

Академик НАН Украины В. М. Яковенко, Д. П. Белозоров,  
С. И. Тарапов

## Форма линии магнитного резонанса в порошках $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$ при низких температурах

*The experimental study of ferromagnetic resonance (FMR) in  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$  powder having the nanosize particles ( $\sim 50\mu\text{m}$ ) at very low temperatures ( $0.35\text{ K} \leq T \leq 4.2\text{ K}$ ) has been performed. The essential frustration of the FMR lineshape is revealed. The FMR-model developed by the authors earlier is the background of the lineshape simulation. It is shown that the lineshape can be described completely by varying not more than one macroscopic parameter which is responsible for the anisotropy of the spin-system caused by the applied magnetic field.*

Легированные магнитные оксидные соединения на основе Mn (манганиты) со структурой перовскита и общей формулой  $\text{R}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$ , где R — трехвалентный редкоземельный элемент (La, Y, Nd), а A — двухвалентный щелочноземельный элемент (Sr, Ca, Ba), привлекают большое внимание исследователей как в связи с очень интересной физикой, так и в связи с возможными широкими практическими приложениями.

Интерес к этим соединениям вызван, прежде всего, колоссальным отрицательным магнитосопротивлением постоянному току, наблюдающимся в пленках манганитов. Максимальная величина магнитосопротивления имеет место в пленках  $\text{La}_{0,67}\text{Ca}_{0,33}\text{MnO}_3$ , причем  $-\Delta\rho/\rho(H = 6T) \sim 10^5\%$  при 77 К, а  $\Delta\rho = \rho(H = 6T) - \rho(H = 0) < 0$ ,  $\rho$  — удельное сопротивление. Такое поведение манганитов обусловлено сложной перестройкой спектра в результате легирования. Действительно, в области концентраций  $0,2 \leq x \leq 0,5$  легированные манганиты испытывают фазовый переход из высокотемпературного парамагнитного состояния с большим сопротивлением активационного типа в ферромагнитное состояние с металлической проводимостью. Температура Кюри  $T_c$  при этом лежит вблизи комнатных температур (для  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$   $T_c = 220\text{--}260$  К, для  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$ , соответственно, 330 К). Заметим, что температура Кюри максимальна при концентрации легирующей примеси  $x \sim 0,3$ , а наибольшая температура Кюри — 380 наблюдается у  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ . Именно в окрестности температуры Кюри имеет место исключительно сильное влияние внешнего магнитного поля (порядка нескольких  $T$ ) на электросопротивление постоянному току. По сравнению с другими металлами легированные манганаты не являются хорошими проводниками. Действительно, их удельное сопротивление в отсутствие магнитного поля составляет для  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  —  $10^{-2}\Omega \cdot \text{см}$ , а для  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$  —  $10^{-4}\Omega \cdot \text{см}$ .

Спецификой легированных манганитов-проводников является существенная связь между ферромагнетизмом и металлической проводимостью. Для ее объяснения был предложен механизм двойного обмена (см., например, [1, 2]). Наряду с этим имеются многочисленные признаки существования магнитных неоднородностей, аналогичных тем, которые существуют в гранулярных магнитных системах. Зависящий от спина перенос электронов по системе этих (металлических) магнитных кластеров и приводит к колоссальному магнитосопротивлению. Таким образом, изучение ФМР в ферромагнитных манганитах-проводниках позволяет не только выяснить возможность использования их в приборах СВЧ [3], но также сделать определенные выводы относительно особенностей спектра и характера магнитных

неоднородностей в этих веществах. Большая работа по изучению особенностей формы линии резонанса в манганитах была проведена Мэрилендской группой [4, 5] для образцов различного типа: массивные кристаллы, пленки, порошки. Изучение этих объектов проводилось в области частот до 32 ГГц и температур выше 77 К. Авторы впервые отметили существенное уширение линии магнитного резонанса для порошков с частицами микронного размера (по сравнению с пленками) и высказали мысль о том, что такая широкая линия представляет собой суперпозицию линий от отдельных зерен. Смещение линий при этом обусловлено анизотропией формы отдельных зерен.

Целью настоящей работы является дальнейшее изучение особенностей формы линии ФМР порошкового образца  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$  с частицами микронных размеров ( $\sim 50$  мкм) в области сверхнизких температур ( $T \leq 4,2$  К). Предполагается, что исследуемые образцы представляют собой систему магнитных кластеров со случайной ориентацией магнитных моментов. Для описания свойств ФМР в таких системах была обобщена теоретическая модель, предложенная авторами ранее [6] для описания формы линии ФМР в случайной системе магнитных моментов. В данной работе она используется для объяснения наблюдаемых в эксперименте линий резонанса. Как оказалось, эта модель не только хорошо описывает наблюдаемые экспериментально линии ФМР, но и позволяет сделать выводы об особенностях статистической системы моментов в области сверхнизких температур.

**1. Методика эксперимента.** Эксперименты проводились с помощью уникального криомагнитного радиоспектроскопического комплекса миллиметрового диапазона длин волн. Радиоспектрометр “БУРАН”, входящий в состав комплекса, представляет собой универсальный физический инструмент, разработанный в ИРЭ НАН Украины и предназначенный для исследования сверхвысокочастотного резонансного и нерезонансного поглощения в электронной спиновой системе твердого тела при низких и очень низких температурах. Уникальность прибора заключается в том, что он позволяет проводить измерения в очень широких диапазонах частот — 60–150 ГГц; температур — 0,3–150 К; магнитных полей — 0–7 Тл.

Детально методика проведения эксперимента по регистрации электронного спинового резонанса (ЭСР) на комплексе БУРАН описана, например, в [7]. В качестве экспериментальных ячеек для исследования спин-резонансных эффектов применяется набор различных резонаторов [5] квазиоптического типа.

В данном случае нами был использован двухзеркальный открытый резонатор, расположенный в камере с жидким  $\text{He}^3$  ( $T = 4,2-0,3$  К). Образец в виде порошка помещен в кварцевую кювету. Кювета зафиксирована на нижнем плоском зеркале и может вращаться вокруг вектора статического магнитного поля (вокруг оси резонатора). Толщина кюветы выбрана достаточно малой (много меньше длины волны), так, чтобы образец оказывался в области максимума магнитной компоненты СВЧ поля. Образец (порошок перовскита  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$ ) сформирован частицами с равновероятным распределением кристаллографических осей. Малая толщина образца также являлась гарантией того, что можно пренебречь паразитным влиянием на регистрируемый сигнал эффекта Фарадея, возникающего при прохождении электромагнитной волны через слой магнетика. Эксперименты проводились на частоте 75 ГГц при взаимном расположении компонент постоянного и переменного полей в соответствии с требованиями электрон-спин-резонансного эксперимента (рис. 1, б).

**2. Результаты эксперимента и теоретическое моделирование.** Основные результаты экспериментов приведены на рис. 2, откуда видно, что с понижением температуры наблюдается значительное уширение линии электронного спинового резонанса. Одновре-

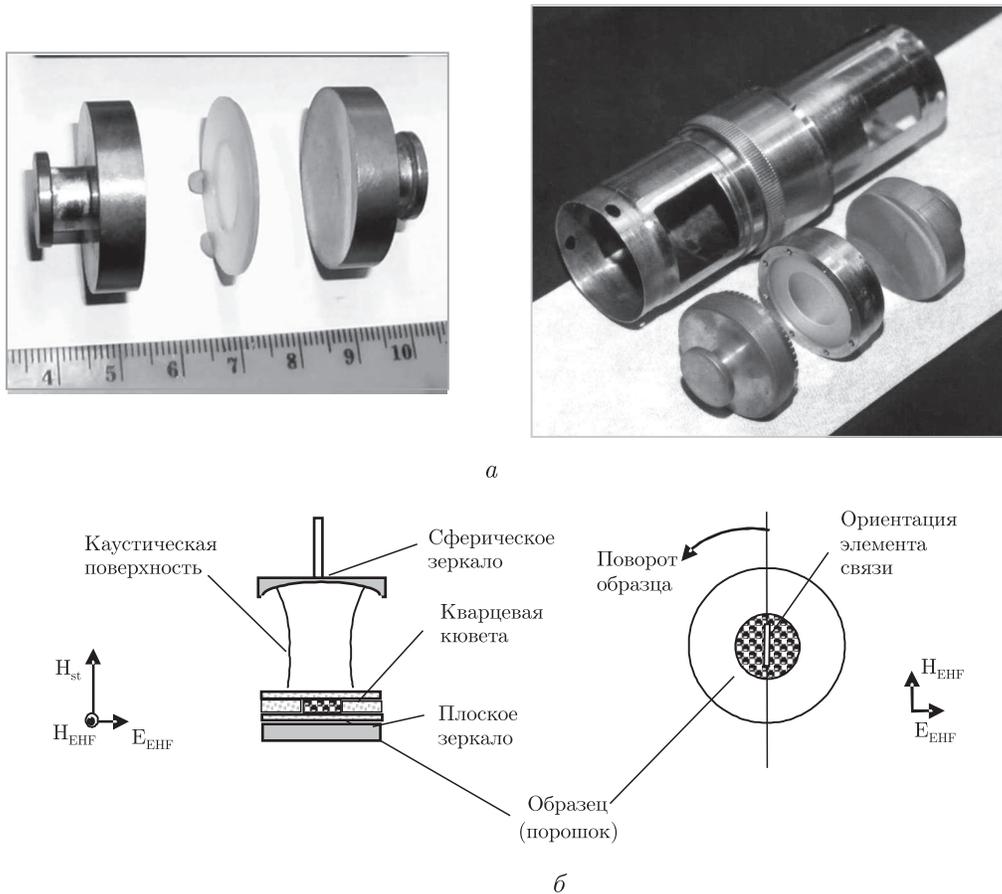


Рис. 1. Внешний вид (а) и схема (б) резонаторной ячейки для ЭПР исследований порошков перовскита  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$

менно нарушается и ее симметрия так, что на правом крыле линии поглощения образуется четко выраженный выступ, смещающийся в область более высоких значений магнитного поля. Ширина линии менялась в пределах 2–7 кОе. Как указывалось выше, такая сложная форма линии может быть результатом “наложения” элементарных линий, связанных с ФМР элементарных частичек образца.

Для описания таких сложных резонансных линий воспользуемся теорией, развитой нами ранее в [6], в которой рассматривалась система, состоящая из магнитных кластеров со случайной ориентацией магнитных моментов. Вероятность ориентации магнитного момента кластера под углом  $\theta$  ( $0 < \theta < \pi/2$ ) к оси  $Z$  (направление приложенного внешнего магнитного поля  $H_0$ ) дается выражением

$$P(\theta) = C[\cos \theta + \alpha(T) \sin \theta], \quad (1)$$

где постоянная  $C$  определяется из условия нормировки

$$\int_0^{\pi/2} P(\theta) d\theta = 1. \quad (2)$$

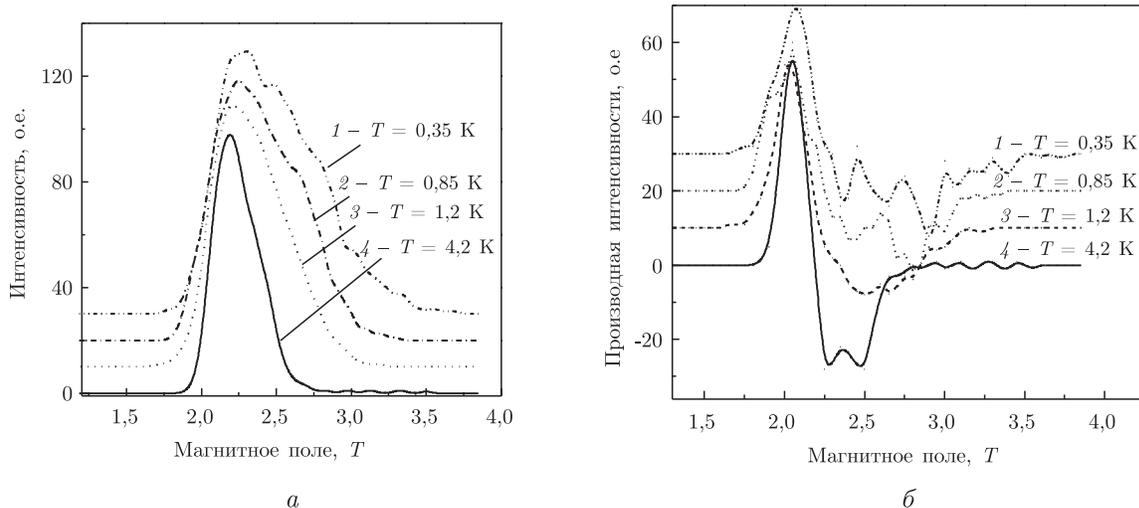


Рис. 2. Экспериментально зарегистрированная форма линии электронного спин-резонансного поглощения и ее первая производная для образца  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$  при различных значениях температуры на частоте 75 ГГц

Заметим, что состояние с  $\theta = 0$  соответствует однородной намагниченности, когда магнитные моменты кластеров ориентированы вдоль оси  $Z$ . Состояние  $P(\theta) = \sin \theta$  соответствует однородному распределению магнитных моментов по углам. Таким образом,  $\alpha(T)$  характеризует соотношение между двумя группами кластеров: группой, в которой магнитные моменты имеют преимущественную ориентацию вдоль направления внешнего магнитного поля, и группой с однородным распределением моментов по углам.

Форму индивидуальной линии поглощения считаем Лоренцовой с постоянной диссипации  $\lambda$ :

$$F[H, H_{\text{рез}}(\theta)] \sim F[(H - H_{\text{рез}})^2 + \lambda^2]^{-1} \quad (3)$$

где  $F[H, H_{\text{рез}}(\theta)]$  — спектральная плотность.

Резонансная линия поглощения сложной системы получается усреднением

$$I(H) \sim \int_0^{\pi/2} P(\theta) F[H, H_{\text{рез}}(\theta)] d\theta, \quad (4)$$

где  $I(H)$  — интенсивность поглощения сложной системой.

Предполагая, что резонансное поле системы принадлежит интервалу  $H_n \leq H \leq H_p$  для  $H_{\text{рез}}$ , получим

$$H_{\text{рез}} = [H_p^{-2} \cos^2 \theta + H_n^{-2} \sin^2 \theta]^{-1/2}. \quad (5)$$

Здесь  $H_p$  — резонансное поле магнитных зерен (кластеров), магнитный момент которых ориентирован вдоль оси  $Z$ ;  $H_n$  — поле для зерен с моментами, лежащими в плоскости  $XY$ .

Подставляя (5) в (3) а затем в (4), получим окончательно

$$H_{\text{рез}} = \frac{H_p^2}{\sqrt{H_p^2/H_n^2 - 1}} \int_{H_n}^{H_p} \frac{dH_{\text{рез}}}{H_{\text{рез}}^2 [(H - H_{\text{рез}})^2 + \lambda^2]} \cdot \left[ \frac{1}{(H_p^2 - H_{\text{рез}}^2)^{1/2}} + \frac{\alpha(T) H_n / H_p}{(H_{\text{рез}}^2 - H_n^2)^{1/2}} \right]. \quad (6)$$

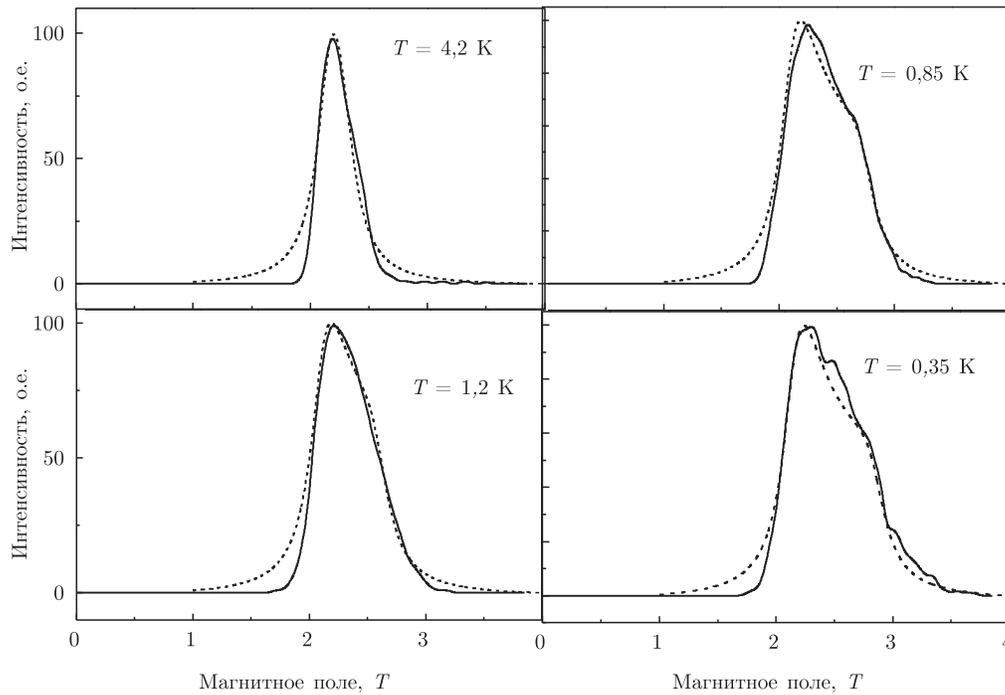


Рис. 3. Экспериментальные и расчетные линии электронного спинового резонанса в диапазоне температур 4,2–0,35 К при частоте 75 ГГц

Таким образом, согласно (6), форма резонансной линии сложной системы магнитных моментов — порошка — описывается в нашей модели четырьмя макроскопическими параметрами:  $\alpha$ ,  $\lambda$ ,  $H_p$ ,  $H_n$ .

Первый параметр описывает магнитную “структуру” порошка, второй — процессы диссипации в зернах, что же касается полей  $H_n$  и  $H_p$ , то они отражают различие резонансных условий, связанное с асимметрией, обусловленной внешним приложенным полем  $H_0$ .

В случае однородного ферромагнитного резонанса для массивного образца резонансное поле (см., например, [8]) определяется суммой поля анизотропии ( $\beta M_s$ ,  $M_s$  — намагниченность насыщения,  $\beta$  — константа магнитной анизотропии) и магнитного поля внутри образца (с учетом размагничивания). Для существенно неоднородной системы (порошок) точное определение средней эффективной намагниченности насыщения, а также полей  $H_n$  и  $H_p$  требует решения сложной задачи динамики связанных магнитодипольным взаимодействием зерен с последующим усреднением по углу  $\theta$ . В этом смысле мы можем говорить лишь о том, что эти поля представляют собой макроскопические параметры, характеризующие степень угловой асимметрии резонансных полей для рассматриваемой системы моментов. Такая асимметрия резонансных полей для направлений вдоль и поперек приложенного магнитного поля может быть обусловлена, в частности, изменением величины намагниченности насыщения под воздействием сильного внешнего поля.

На основе формулы (6) авторами был проведен расчет резонансных кривых, результаты которого показаны на рис. 3. Мы видим, что рассмотренная выше феноменологическая модель достаточно хорошо описывает кривые поглощения изучаемого порошка  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$ . Величины макроскопических параметров, характеризующие расчетные теоретические кривые, приведены в табл. 1.

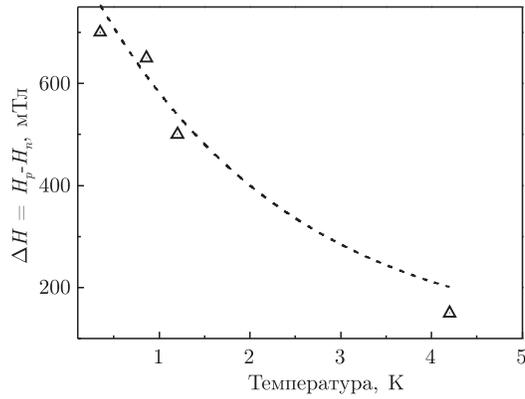


Рис. 4. Температурная зависимость наведенной полем асимметрии порошка,  $\Delta H = H_p - H_n$

Величина  $\Delta H = H_p - H_n$  характеризует степень асимметрии системы, связанную с внешним приложенным полем.

Как видно из табл. 1, при понижении температуры параметры  $\alpha$  и  $\lambda$  сохраняют постоянное значение, т. е. не меняется как магнитная “структура”, так и характер диссипации для индивидуальных линий. Что же касается полей  $H_n$  и  $H_p$ , то отмечается существенное изменение главным образом величины  $H_p$ . Таким образом, в рамках рассмотренной модели изменение ширины и формы линии определяется изменением с температурой только одного параметра — степени асимметрии системы  $\Delta H = H_p - H_n$ . Как уже отмечалось выше, такое возрастание асимметрии при понижении температуры может быть обусловлено как температурными деформациями частиц порошка, так и изменением намагниченности насыщения. Дальнейшее изучение роли каждого из этих факторов представляет несомненный интерес. В частности, представляет интерес связь макроскопических параметров  $H_n$  и  $H_p$  с микроскопическими параметрами, такими как магнитный момент, форма и магнитная анизотропия зерен, а также влияние дипольного взаимодействия между зернами на величину внутреннего поля в системе. Однако эта задача выходит за рамки настоящего исследования.

Зависимость степени асимметрии от температуры в области температур  $T \leq 4,2$  К представлена на рис. 4. Мы видим, что в области сверхнизких температур  $\Delta H$  является почти линейной функцией температуры.

**3.** Таким образом, можно сделать следующие выводы.

1. Проведено экспериментальное определение линии ФМР для порошка легированного манганита-проводника  $\text{La}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{MnO}_3$  в области сверхнизких температур ( $T \leq 4,2$  К). Показано, что при понижении температуры линия претерпевает значительное уширение, при этом существенно меняется форма линии: она становится асимметричной с несколькими ясно различаемыми пиками.

Таблица 1

$T$ , К	$\alpha$	$\lambda^2$	$H_n$ , Т	$H_p$ , Т	$\Delta H$ , мТ
4,2	2	0,02	2,15	2,30	150
1,2	2	0,02	2,10	2,60	500
0,85	2	0,02	2,10	2,75	650
0,35	2	0,02	2,15	2,85	700

2. Построена теоретическая модель, позволяющая описать форму линии случайной системы магнитных моментов с помощью четырех параметров  $\alpha$ ,  $\lambda$ ,  $H_p$ ,  $H_n$ . Численные расчеты, проведенные на основании этой модели, позволили удовлетворительно описать форму линии, полученную экспериментально.

3. Как показано в результате вычислений, экспериментальные линии, полученные для разных температур, описываются вариацией только одного параметра  $\Delta H = H_p - H_n$ , характеризующего степень асимметрии системы, связанной с внешним приложенным магнитным полем. Обсуждаются возможные причины такого поведения. В области температур  $T \leq 4,2$  К  $\Delta H$  является линейной функцией температуры.

*Авторы благодарят проф. С. Бхагата (Мэрилендский университет, США) за предоставленные образцы.*

1. Горьков Л. П. Решеточные и магнитные эффекты в легированных манганитах // Усп. физ. наук. – 1998. – Вып. 168, № 6. – С. 665–671.
2. Dorr K. Ferromagnetic manganites: spin-polarized conduction versus competing interactions // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2006. – **39**. – P. R125–R150.
3. Rinkevich A., Nosov A., Ustinov V. et al. Radiofrequency electromagnetic properties the  $\text{La}_{0.6}\text{Pb}_{0.4}\text{MnO}_3$  manganite under dc-biased magnetization // Ibid. – P. 2015–2018.
4. Bhagat S. M. Technical report 98–1 colossal magnetoresistance manganites. – Ferromagnetic Resonance Group, Department of Physics, Univ Maryland, College Park, MD 20742–4111, 1998. – 298 p.
5. Ramachandran J. S., Bhagat S. M., Peng J. L. FMR of powder  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  // Solid State Comm. – 1995. – **96**. – P. 127–131.
6. Belozorov D. P., Tarapov S. I. Magnetic structure of reentrant magnets near the spin-glass transition // Low Temp. Phys. – 1996. – **22**. – P. 391–393.
7. Tarapov S. Basic of high-frequency electron spin resonance experiment at very low temperatures. – Turkey, Gebze: Publ. Center of Gebze Institute of Technology. – 2000. – 93 p.
8. Ахизер А. И., Барьяхтар В. Г., Пелетминский С. В. Спиновые волны. – Москва: Наука, 1967. – 364 с.

*Институт радиофизики и электроники  
им. А. Я. Усикова НАН Украины, Харьков*

*Поступило в редакцию 31.07.2006*