

# УПРАВЛЯЕМОЕ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ ФАЗОВОЕ РАССЛОЕНИЕ В МАНГАНИТАХ: ИССЛЕДОВАНИЕ МЕТОДОМ ЭЛЕКТРОННОГО МАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА

*В. А. Ацаркин, В. В. Демидов\**

*Институт радиотехники и электроники Российской академии наук  
125009, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 25 апреля 2006 г.

Исследованы спектры электронного магнитного резонанса в манганитах состава  $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  ( $x = 0.3, 0.40, 0.45$ ). В области температур, превышающих точку Кюри на десятки кельвинов, в образцах с  $x = 0.40, 0.45$  зарегистрировано появление спектра ферромагнитного резонанса (ФМР), который накладывается на обычный спектр ЭПР. Спектр ФМР возникает при превышении внешним магнитным полем  $H$  некой критической величины  $H_c$ , которая уменьшается с охлаждением и обращается в нуль при  $T = T_C$ . Эти результаты согласуются с данными магнитных измерений и указывают на индуцированные внешним магнитным полем зарождение и последующий рост ферромагнитных областей, сосуществующих с парамагнитным фоном. Установлено, что на начальной стадии роста объем ферромагнитной фазы пропорционален  $(H - H_c)^\beta$ , где  $\beta = 4.0 \pm 0.3$ , и меняется синхронно с изменением магнитного поля вплоть до частоты 100 кГц. В том же диапазоне полей и температур наблюдаются гистерезисные явления, а также узкие нестабильные спектральные линии, свидетельствующие о динамическом характере фазового расслоения. Интерпретация полученных результатов включает учет конкуренции различных типов магнитного и зарядового упорядочения.

PACS: 75.47.Lx, 76.30.-v, 76.50.+g

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Редкоземельные манганиты с переменной валентностью  $\text{Ln}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$  (A — двухвалентный щелочноземельный элемент) привлекают повышенное внимание благодаря своим необычным магнитным и проводящим свойствам, среди которых особый интерес вызывает эффект колоссального магнитосопротивления. Богатая фазовая диаграмма этих соединений включает различные типы магнитного, зарядового и орбитального упорядочения. Подробную информацию о современном состоянии этой области исследований можно найти, например, в обзорах [1–3], монографии [4] и цитируемой в них литературе. Несмотря на огромное количество публикаций по проблеме манганитов, многие аспекты физической картины, включая фазовую структуру, механизмы спин-спиновых и спин-решеточных взаимодействий, а также природу колоссального магнитосо-

сопротивления и ряда других необычных эффектов, все еще остаются неясными.

В последнее время появляется все больше свидетельств в пользу существования в легированных манганитах при определенных условиях специфического фазового расслоения в нано-, микро- и мезоскопических масштабах. Фазово-неоднородное основное состояние связано с возникновением и сосуществованием кластеров конкурирующих фаз. Типичным и наиболее изученным примером могут служить ферромагнитные «капли» с металлической проводимостью (магнитные поляроны, ферроны), существующие в окружающей их антиферромагнитной (АФ) неметаллической среде (см., например, [5]). Активно исследуется и проблема возникновения ферромагнитных (ФМ) областей в магнитно-неупорядоченном (парамагнитном) окружении [6]. Согласно некоторым теоретическим предсказаниям, здесь следует ожидать появления так называемой «фазы Гриффитса», впервые введенной при рассмотрении изинговских магнетиков с элемента-

\*E-mail: demidov@cplire.ru

ми структурной разупорядоченности [7]. Применимость этой модели к легированным манганитам обсуждалась, например, в работах [8–10], причем было показано, что возникновение такой фазы должно стимулироваться конкуренцией между различными типами магнитного и зарядового упорядочения.

Одним из наиболее ярких примеров возникновения и необычного поведения ферромагнитной фазы внутри парамагнитного окружения может служить спиновая система ионов марганца в  $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  при концентрациях Sr, достаточно близких к полному зарядовому упорядочению (оно имеет место при  $x = 0.5$ ). При значениях  $x = 0.40, 0.45$  охлаждение образцов до температур  $T < 180$  К приводит к возникновению зарядово-упорядоченных кластеров с чередованием  $\text{Mn}^{3+}$ – $\text{Mn}^{4+}$ , имеющих АФ-структуру СЕ-типа. Существование таких областей было подтверждено методом дифракции нейтронов; эти же исследования показали наличие ферромагнитных кластеров, а также островков АФ-фазы А-типа [11]. (Напомним, что АФ-структура А-типа состоит из чередующихся противоположно намагниченных ферромагнитных плоскостей (001), а структура СЕ-типа — из двух зигзагообразных подрешеток с противоположно направленными спинами, см. [1, 4].) Зависимость намагниченности этих материалов от внешнего магнитного поля  $H$  подробно исследована в работах [12, 13]. В области температур  $T_C < T < T^*$ , где  $T_C$  — температура ферромагнитного перехода (точка Кюри), равная соответственно 112 К и 126 К для  $x = 0.40$  и  $x = 0.45$ , а  $T^* \approx 180$ – $200$  К, полевая зависимость намагниченности  $M$  оказалась весьма необычной. При значениях  $H$  ниже некоей пороговой величины  $H_c$  наблюдался линейный рост  $M(H)$ , характерный для парамагнитного состояния, тогда как при  $H > H_c$  происходил резкий критический рост намагниченности с последующим выходом на плато, типичное для насыщенной ферромагнитной фазы. Кривая намагниченности имела гистерезис: возвращение в парамагнитное состояние происходило при более низком значении критического поля  $H'_c < H_c$ . Обе критических величины,  $H_c$  и  $H'_c$ , возрастают с увеличением температуры приблизительно по линейному закону, достигая вблизи  $T^*$  значений 60–70 кЭ. На образцах с меньшей концентрацией Sr ( $x = 0.33$ ) подобных аномалий не обнаружено.

Отметим, что переход диэлектрик – металл, индуцированный внешним магнитным полем, известен в манганитах с зарядовым упорядочением ( $x = 0.5$ ) [14]. Недавно вышла из печати работа японских физиков, где индуцируемая внешним магнитным по-

лем ферромагнитная фаза обнаружена также в слоистом манганите  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  [15].

Измерения статической намагниченности являются по существу интегральными, т. е. не разделяющими вкладов от сосуществующих в образце фаз. Такая дифференциация может быть проведена с помощью магнитно-резонансной спектроскопии, в принципе позволяющей различить спектры электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) от парамагнитной фазы и ферромагнитного резонанса (ФМР) от ферромагнитных областей. Недавно [10] этим методом удалось выделить и исследовать на фоне спектра ЭПР сигнал ФМР в парамагнитной фазе  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  ( $x = 0.125$ ), что было интерпретировано как прямое экспериментальное свидетельство в пользу модели Гриффитса.

Целью настоящей работы является исследование спектров магнитного резонанса образцов  $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ , направленное на дальнейший анализ обнаруженного в работах [12, 13] необычного фазового перехода, индуцированного внешним магнитным полем.

## 2. ОБРАЗЦЫ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ТЕХНИКА

Эксперименты проводились на тех же керамических материалах  $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  с концентрациями стронция  $x = 0.33, 0.40, 0.45$ , которые ранее использовались для магнитных измерений в работах [12, 13]; там же описаны методики синтеза и приведены результаты контроля однофазности этих керамик. Спектры ЭПР (первая производная сигнала поглощения) регистрировались на спектрометре ER200 фирмы Bruker, работающем в частотном диапазоне 9.7 ГГц (магнитные поля от 0 до 9 кЭ, частота магнитной модуляции 100 кГц). Изменение и контроль температуры с точностью до 1 К осуществлялись с помощью системы Oxford.

Образцы, закладываемые в микроволновый резонатор ЭПР-спектрометра, готовились в трех различных видах:

- 1) цельная крупинка твердой керамики размером около  $0.05 \text{ мм}^3$ ;
- 2) керамика растиралась в тонкий порошок (размер зерна порядка 1 мкм), который свободно размещался в контейнере;
- 3) такой же порошок фиксировался парафином, чтобы предотвратить механическое движение отдельных порошинок.

Приготовление образца в виде порошка имело целью исключить возможные искажения формы ли-

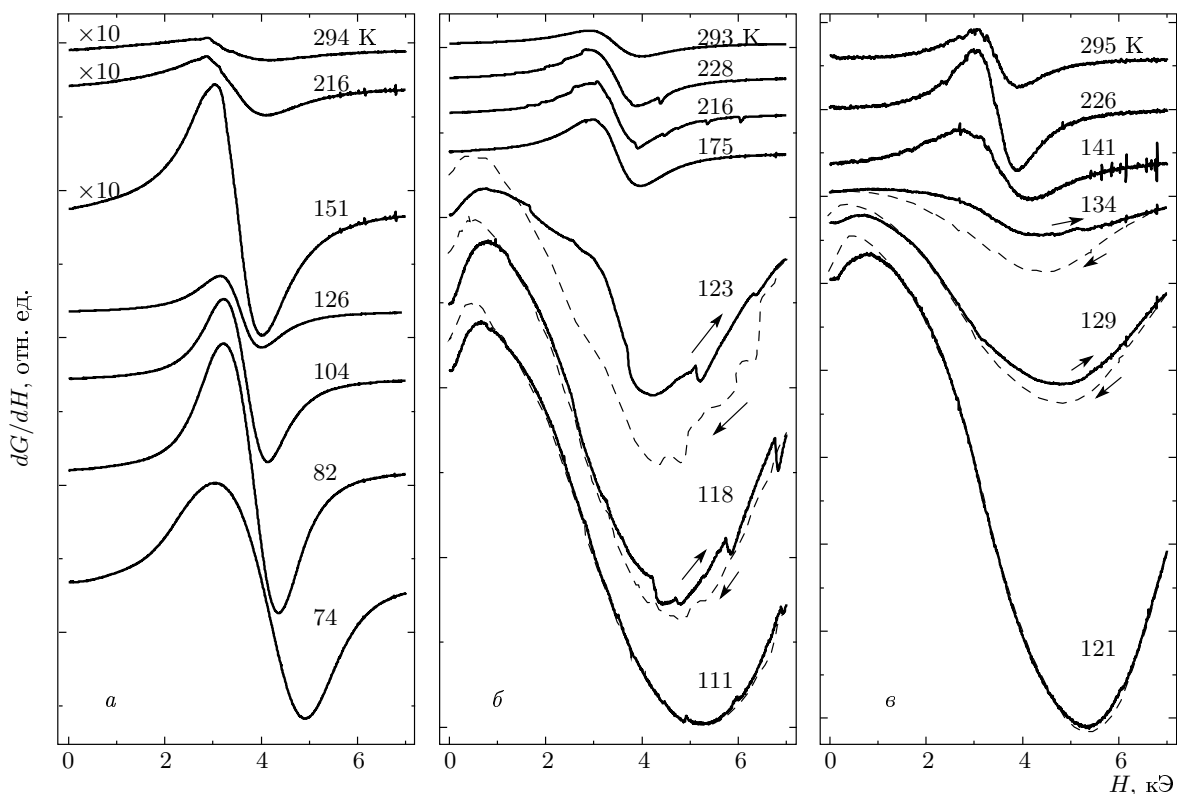


Рис. 1. Температурные зависимости спектров магнитного резонанса для порошковых образцов, не залитых парафином;  $x = 0.33$  (а),  $0.40$  (б),  $0.45$  (в)

нии ЭПР-поглощения за счет изменения фазы микроволнового поля при его распространении в проводящей среде. Как известно, эти искажения отсутствуют, если размер частицы меньше толщины скин-слоя. Согласно нашим наблюдениям, образцы типов 2 и 3 удовлетворяют этому требованию. Частицы свободно лежащего порошка способны ориентироваться во внешнем магнитном поле благодаря своей магнитной анизотропии. В результате образцы типа 2 приобретают текстуру, что ведет к значительному ослаблению неоднородного уширения спектра ФМР, связанного с разбросом ориентации осей легкого намагничивания [16].

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Спектры магнитного резонанса образцов типа 2 с концентрациями стронция  $x = 0.33, 0.40, 0.45$ , записанные при различных температурах, показаны на рис. 1. При  $x = 0.33$  спектр состоит из единственной резонансной линии приблизительно лоренцевой формы с шириной между пиками производной  $\Delta_{pp} \sim 10^3$  Э, которая не испытывает существенных сдвигов и деформаций вплоть до точки Кюри

с  $T_C = 79$  К, при которой происходит ферромагнитный переход. Такая линия типична для легированных редкоземельных манганитов, где происходит усреднение совокупного ЭПР-спектра  $Mn^{3+}$  и  $Mn^{4+}$  за счет изотропных спин-спиновых взаимодействий по механизмам двойного и косвенного обменов [17]. Таким образом, при  $x = 0.33$  никаких существенных аномалий не наблюдается, что коррелирует с данными работ [12, 13].

В отличие от этого, при охлаждении образцов с  $x = 0.40$  и  $x = 0.45$  ниже температуры  $T^*$  (в нашем диапазоне магнитных полей она не превышает 135–140 К) возникают значительные искажения спектров. Они проявляются в виде резкого уширения линий, сдвигов центральных полей, а также гистерезиса при увеличении и последующем уменьшении внешнего поля  $H$  в ходе записи спектров магнитного резонанса. Еще одно отличие связано с появлением нестабильных особенностей в виде дополнительных узких линий, которые не воспроизводятся при обратном и повторном прохождении поля. Отметим, что нестабильные скачки в виде однополярных импульсов на фоне спектральной линии на-

блюдаются в образцах типа 2 также и при более высоких температурах (см. спектры для  $x = 0.40$  при  $T = 216, 228$  К). При охлаждении ниже 115 К для  $x = 0.40$  и 125 К для  $x = 0.45$  дополнительные узкие всплески и гистерезисные явления исчезают. При этом спектры принимают вид, типичный для ФМР в ферромагнитных образцах с умеренной анизотропией. Определенные таким образом температуры Кюри совпадают с данными работ [12, 13].

Было исследовано также влияние способа приготовления образцов с  $x = 0.40, 0.45$  на наблюдаемый спектр ЭПР–ФМР. В массивной керамике при достаточно высоких температурах наблюдается асимметричное искажение спектра, вызванное, очевидно, сдвигом фазы в скин-слое (форма Дайсона). Эта асимметрия исчезает в порошке. С другой стороны, обнаружено, что нестабильные скачки производной сигнала поглощения, наблюдаемые на свободном порошке в диапазоне температур 200–230 К, отсутствуют в твердой керамике и исчезают при фиксации частиц порошка парафином. В противоположность этому нестабильные узкие «линии», наблюдаемые при более низких температурах (от 135 К до  $T_C$ ), сохраняются в образцах всех трех типов.

Специально проведенные опыты показали, что изменения скорости прохождения магнитного поля от 70 Э/с до 350 Э/с, а также амплитуды магнитной модуляции от 1 Э до 10 Э не оказывают существенного влияния на стабильно регистрируемые линии спектров. В то же время формы и особенно амплитуды нестабильных узких линий меняются заметным образом в зависимости от скорости прохождения магнитного поля.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

Особенности спектров ЭПР, возникающие при  $x = 0.40, 0.45$  в ограниченной области температур  $T_C < T < T^*$  (рис. 1), следует связать с аномальным поведением намагниченности этих же материалов, описанным в работах [12, 13]. На рис. 2 показаны начальные участки соответствующих зависимостей намагниченности от внешнего магнитного поля, которые интерпретируются как результат возникновения и последующего роста ферромагнитных включений внутри парамагнитного окружения. Естественно предположить, что подобный же рост объема ферромагнитной фазы под действием внешнего поля  $H$  происходит и в процессе регистрации спектра магнитного резонанса, когда поле  $H$  медленно меняется от 0 до 7 кЭ. Тот факт, что вид спектра практически не зависел от скорости развертки поля, свидетельствует об установлении равновесного объ-

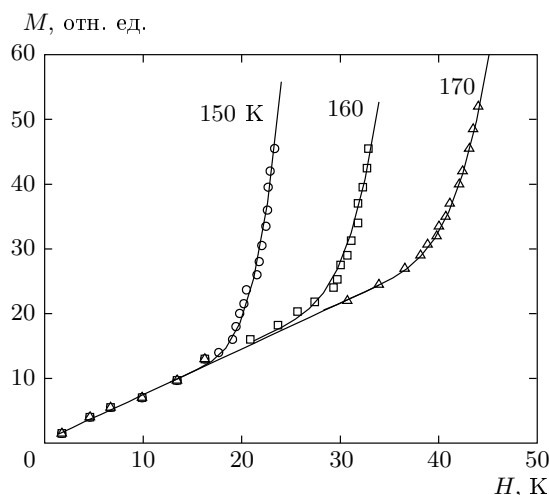


Рис. 2. Начальные участки намагниченности в зависимости от внешнего магнитного поля. Точки — эксперимент по данным работы [12], кривые — описание эксперимента формулой (1)

ема ФМ-фазы в каждой точке спектра. Это согласуется с приведенными в работе [12] оценками скорости установления равновесной намагниченности: для конкретных значений температур и полей, использованных в наших экспериментах, соответствующая постоянная времени оказывается менее 50 мс.

Для количественного сопоставления спектров ЭПР–ФМР с данными по намагниченности мы использовали феноменологическую подгонку кривых, показанных на рис. 2, функцией вида

$$M(H) = \begin{cases} \chi_{PM}H, & H < H_c, \\ \chi_{PM}H + \alpha(H - H_c)^\beta, & H > H_c, \end{cases} \quad (1)$$

где  $\chi_{PM}$  — магнитная восприимчивость парамагнитной фазы,  $\alpha$  — подгоночный коэффициент и  $\beta$  — критический индекс управляемого магнитным полем ферромагнитного фазового перехода. Подчеркнем, что функциональная зависимость типа  $(H - H_c)^\beta$  применима лишь в ограниченной окрестности  $H_c$ . В наших экспериментах магнитные поля не превышали 7 кЭ, что не выходит за рамки данной подгонки (см. рис. 2). Влияние гистерезиса в формуле (1) опущено; впоследствии оно будет учитываться с помощью обозначений  $H_c$  и  $H'_c$ .

Результаты подгонки по формуле (1) показаны на рис. 2 сплошными линиями. Видно, что выбранная форма полевой зависимости очень хорошо согласуется с экспериментом; при этом значение критического индекса  $\beta = 4.0 \pm 0.3$ . Оно будет использовано нами ниже для аналитического описания наблюдавшихся спектров магнитного резонанса.

В соответствии с формулой (1) положим, что в области температур, где возникают описанные выше искажения, спектр состоит из двух компонент: парамагнитной (ЭПР) и ферромагнитной (ФМР), интенсивности которых пропорциональны объемам соответствующих фаз. Примем далее, что при фиксиро-

ванной температуре интенсивность сигнала ЭПР не зависит от магнитного поля, тогда как амплитуда ФМР-поглощения меняется в ходе развертки поля в соответствии с формулой (1). Таким образом, суммарный спектр магнитно-резонансного поглощения в функции от поля  $H$  имеет вид:

$$G(H) = \begin{cases} a_{PM} L_{PM}(H - H_0^{PM}, \Delta_{PM}), & H < H_c, \\ a_{PM} L_{PM}(H - H_0^{PM}, \Delta_{PM}) + a_{FM} L_{FM}(H - H_0^{FM}, \Delta_{FM}), & H > H_c, \end{cases} \quad (2)$$

где  $a_i$ ,  $H_0^i$ ,  $\Delta_i$  — соответственно, значения амплитуд, центральных резонансных полей и полуширин линий ЭПР ( $i = PM$ ) и ФМР ( $i = FM$ ), а  $L_i(H - H_0^i, \Delta_i)$  — форм-факторы соответствующих резонансных линий. В соответствии с формулой (1) принимаем

$$a_{FM} = \alpha(H - H_c)^4, \quad (3)$$

где  $\alpha$  — размерный подгоночный коэффициент. Для упрощения процедуры подгонки примем, что обе линии, ЭПР и ФМР, описываются кривыми Лоренца:

$$L(H - H_0^i, \Delta_i) = \frac{1}{\pi \Delta_i} \left\{ \left[ 1 + \left( \frac{H - H_0^i}{\Delta_i} \right)^2 \right]^{-1} + \left[ 1 + \left( \frac{H + H_0^i}{\Delta_i} \right)^2 \right]^{-1} \right\}. \quad (4)$$

Второе слагаемое в фигурной скобке учитывает влияние компоненты линейно-поляризованного микроволнового поля, вращающейся против направления ларморовой прецессии; этот член необходимо учитывать для широких линий с  $\Delta_i \approx H_0^i$ . Для линии ЭПР лоренцевское приближение оправдывается относительно малой анизотропией спектра в парамагнитной фазе [18]. Для линии ФМР этот довод уже не действителен, поэтому данная методика подгонки будет использована лишь для образцов в виде свободного порошка, где уширяющее действие анизотропии в значительной мере нейтрализуется ориентацией частиц в магнитном поле.

Теперь надо учесть, что экспериментально измеряется не само магнитно-резонансное поглощение  $G(H)$ , а его первая гармоника на частоте магнитной модуляции. В нашем случае, когда амплитуда модуляции магнитного поля значительно меньше ширины регистрируемых линий, первую гармонику обычно полагают равной производной  $dG(H)/dH$ . Поскольку в данной ситуации амплитуда одного из лорен-

цианов ( $a_{FM}$ ) сама зависит от  $H$ , при дифференцировании выражения (2) следует различать два предельных случая.

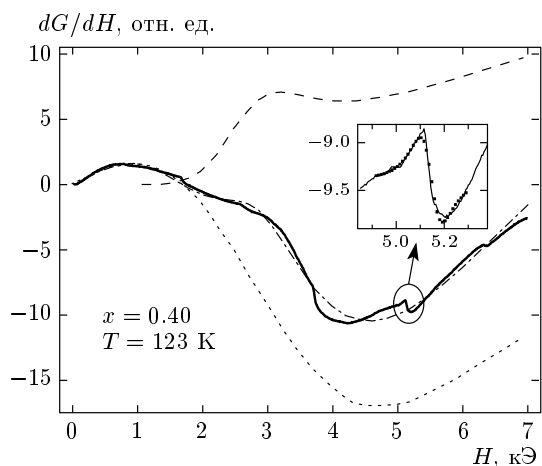
1. Объем ФМ-фазы, определяющий амплитуду  $a_{FM}$ , меняется синфазно с модулирующим полем  $H_m \cos(\Omega_m t)$ . Это означает, что характерное время установления нового объема ферромагнитной фазы при изменении внешнего поля на величину  $H_m \sim 1-10$  Э значительно короче, чем период модуляции, равный в нашем случае 10 мкс. В этой ситуации наблюдаемый сигнал пропорционален производной от функции (2), в которую предварительно подставлены зависящие от  $H$  выражения (3) и (4).

2. Изменение объема ФМ-фазы под действием внешнего поля происходит гораздо медленнее, чем магнитная модуляция. В этом случае величину  $a_{FM}$  в процессе модуляции следует считать постоянной, а наблюдаемый сигнал ФМР будет пропорционален производной от обычной лоренцевой кривой, амплитуда которой медленно меняется в ходе развертки поля по закону  $(H - H_c)^4$ .

Выбор одного из этих двух вариантов будет определяться степенью согласия соответствующей подгонки с экспериментальными спектрами. Заметим, что отмеченная в предыдущем разделе независимость результатов от амплитуды модуляции свидетельствует скорее в пользу первой гипотезы.

Дифференцирование выражений (2)–(4) по первому варианту приводит к следующей формуле для ферромагнитного вклада в наблюдаемый сигнал:

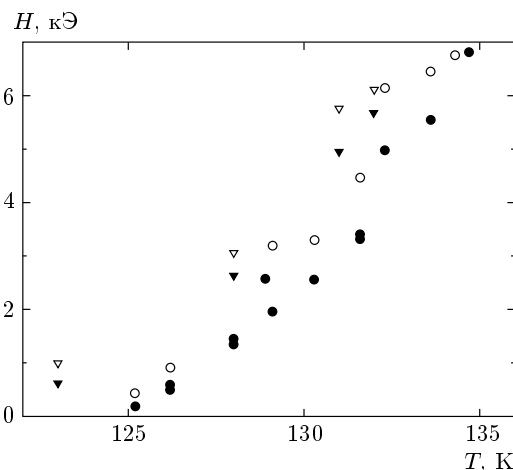
$$Y_{FM}(H) = \frac{2(H - H_c)^3}{1 + \left( \frac{H - H_0^{FM}}{\Delta_{FM}} \right)^2} \times \left\{ 2 - \frac{(H - H_0^{FM})(H - H_c)}{\Delta^2 \left[ 1 + \left( \frac{H - H_0^{FM}}{\Delta_{FM}} \right)^2 \right]} \right\}. \quad (5)$$



**Рис. 3.** Пример подгонки экспериментального спектра по формулам (2)–(5). Сплошная линия с узкими выбросами — экспериментальный спектр; штрихпунктирная линия — подгоночная кривая, полученная суммированием парамагнитного (пунктирная линия) и ферромагнитного (штриховая линия при  $H > H_c$ ) вкладов. На вставке выделен узкий фрагмент спектра; точки — лоренцева форма линии с полушириной 76 Э

Типичный результат подгонки экспериментального спектра ( $x = 0.40$ ,  $T = 123$  К) по формулам (2)–(5) показан на рис. 3. Достигнутое согласие выглядит вполне удовлетворительным, если не принимать во внимание узких нестабильных выбросов, которые будут рассмотрены ниже. Аналогичные результаты получены и для остальных спектров при  $x = 0.40, 0.45$ . Отметим, что формулы (2)–(5) не учитывают некоторого уменьшения объема парамагнитной фазы за счет ее частичного перехода в ферромагнитную с ростом поля  $H > H_c$ . Это приближение оправдано тем обстоятельством, что объемная доля ФМ-фазы, оцененная по площади кривой ФМР-поглощения (т. е. двойного интеграла от наблюдаемого сигнала) в предположении насыщенной намагниченности ферромагнитного состояния, не превышала 1%. Напомним, что по данным измерений намагниченности [12, 13] значительная часть образца становится ферромагнитной даже при минимальных температурах, используемых в наших экспериментах, лишь в очень больших полях 50–60 кЭ.

В асимптотическом пределе высоких полей ( $H \gg H_0^{FM}, \Delta_{FM}$ ) производная  $dG(H)/dH$ , вычисленная по первому варианту, становится линейной функцией разности  $H - H_c$ . Это означает, что на дальнейшем «хвосте» спектра образуется положительный линейный наклон, который может быть принят

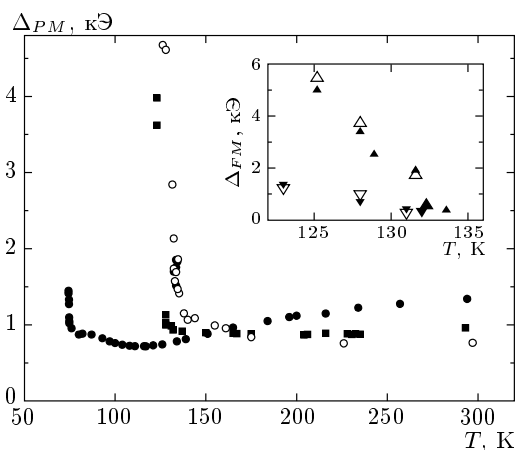


**Рис. 4.** Температурная зависимость критических полей для образцов с  $x = 0.40$  (треугольники) и  $x = 0.45$  (кружки). Светлые значки относятся к возрастанию внешнего магнитного поля ( $H_c$ ), темные — к убыванию ( $H_c'$ )

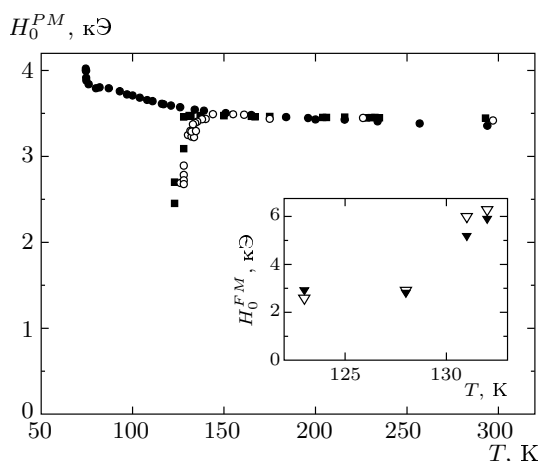
экспериментатором за паразитное искажение базовой нулевой линии. Хотя в наших опытах столь высокие поля не достигались, общее смещение высокопольной части спектра вверх отчетливо наблюдается, см. рис. 1, 3. Второй вариант обработки экспериментальных данных не смог обеспечить удовлетворительного согласия с опытом и был отброшен.

На рис. 4 показаны температурные зависимости критических полей  $H_c, H_c'$ . Видно, что критические поля уменьшаются при охлаждении, стремясь к нулю при температуре Кюри. Это согласуется с результатами магнитных измерений [12, 13].

Температурные зависимости полуширин ( $\Delta_{PM}, \Delta_{FM}$ ) и центральных полей ( $H_0^{PM}, H_0^{FM}$ ) линий ЭПР и ФМР, найденных в результате подгонки, показаны на рис. 5, 6. Для сравнения приведены и соответствующие данные для ЭПР в образце с  $x = 0.33$ . Поведение линии ЭПР при  $x = 0.33$  вполне типично для легированных редкоземельных манганитов (см., например [17]): монотонное сужение линии при охлаждении соответствует теории Хьюбера [17], а критический рост ширины вблизи  $T_C$  имеет, по-видимому, неоднородный характер и не связан с ускорением релаксации [19, 20]. Обе составляющие спектра в образцах  $x = 0.40, 0.45$  (как ЭПР, так и ФМР) демонстрируют выраженные температурные зависимости. В частности, критическое уширение ЭПР-компоненты происходит одновременно с возникновением ФМР-составляющей спектра, т. е. су-



**Рис. 5.** Температурные зависимости полуширин резонансных линий:  $x = 0.33$  (●); ЭПР-составляющие для  $x = 0.40$  (■),  $0.45$  (○). Вставка: ФМР-составляющие для  $x = 0.40$  (▽, ▼),  $0.45$  (△, ▲): светлые (темные) значки — возрастание (убывание) магнитного поля



**Рис. 6.** Температурные зависимости центральных полей резонансных линий:  $x = 0.33$  (●); ЭПР-составляющие для  $x = 0.40$  (■),  $0.45$  (○). Вставка: ФМР-составляющая для  $x = 0.40$ ; светлые (темные) значки — возрастание (убывание) магнитного поля

щественно выше точки Кюри. Одновременно наблюдается значительный сдвиг линии ЭПР в сторону низких полей. Оба эти эффекта связаны, очевидно, с возникновением областей ферромагнитной фазы, что ведет к резкому росту намагниченности и усилению внутренних магнитных полей. Теоретический расчет подобных проявлений в монокристаллах выполнен в работах [18, 21]; на качественном уровне он,

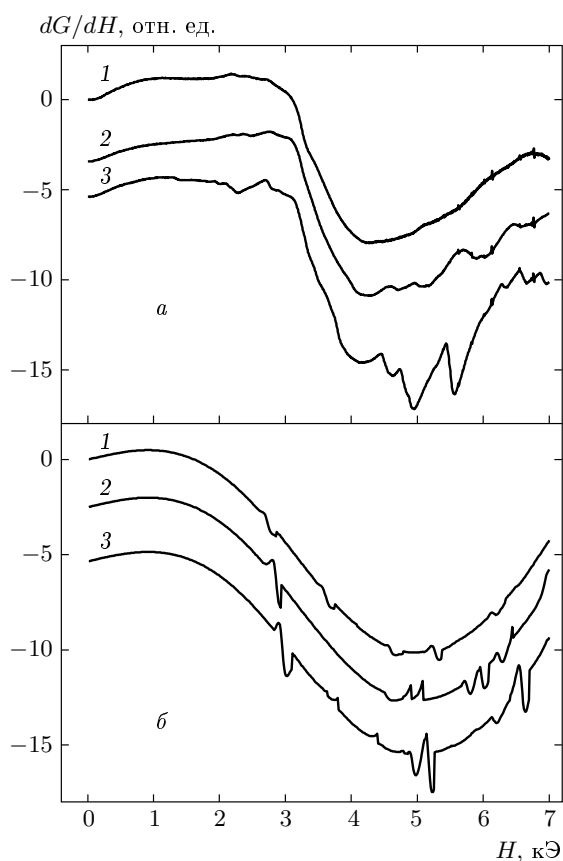
очевидно, может быть применим и к нашему случаю магнитно-ориентированного порошка.

Перейдем теперь к анализу узких нестабильных спектральных особенностей, отчетливо видных на рис. 1, 3, 7. Скачки сигнала, наблюдающиеся при относительно высоких температурах (200–230 К на рис. 1), исчезают при фиксации порошка парафином и отсутствуют в объемной керамике. Естественно предположить, что эти выбросы имеют магнито-механическую природу и связаны с магнитной ориентацией отдельных частиц порошка. Это подтверждается тем, что все сигналы такого рода имеют знак, соответствующий росту резонансного поглощения (выбросы положительны ниже  $H_0$  и отрицательны выше  $H_0$ ). Таким образом, данные особенности не связаны с микроскопической физикой мангани-тов и в дальнейшем не рассматриваются.

Иная интерпретация необходима при рассмотрении относительно узких резонансных сигналов, наблюдавшихся при температурах  $T_C < T < T^*$ , т. е. в том диапазоне, где происходит индуцированный полем рост ФМ-фазы и наблюдается гистерезис. Появление этих сигналов по обе стороны от центра спектра (от  $g$ -фактора, равного 2) свидетельствует об их ферромагнитной природе при наличии анизотропии. Форма узких компонент хорошо описывается производной от обычной лоренцевой функции, см. вставку на рис. 3. В соответствии со сказанным выше, это означает, что объем магнитной фазы, ответственной за подобную линию, не успевает измениться за время ее прохождения ( $\sim 1$  с). В то же время эти линии не воспроизводятся при обратном ходе развертки магнитного поля.

Динамика образования узких линий проиллюстрирована на рис. 7. На рис. 7а показаны спектры магнитного резонанса от образца керамики с  $x = 0.45$  при  $T = 130$  К и разных скоростях изменения внешнего магнитного поля. Видно, что основной спектр остается практически неизменным. В то же время амплитуды узких компонент спектра тем больше, чем ниже скорость изменения магнитного поля (подчеркнем, что постоянная времени при записях спектров гарантировала отсутствие искажений).

Можно предположить, что эти дополнительные линии принадлежат ограниченным ферромагнитным областям, рост объема которых под влиянием поля  $H$  на какое-то время прекратился (или замедлился). Причиной остановки объемного роста может быть пиннинг краев ФМ-кластера на дефекте кристаллической структуры, на границе кристаллита или ФМ-домена. Относительно малая полушири-



**Рис. 7.** Зависимость спектра магнитного резонанса от скорости изменения внешнего магнитного поля при  $T = 130$  К. *a* — экспериментальные спектры в образце с  $x = 0.45$ , *b* — расчетные кривые (см. основной текст); кривые соответствуют скоростям изменения внешнего магнитного поля: 350 (1), 140 (2), 70 (3) Э/с

на (около 100 Э) свидетельствует о том, что время спиновой релаксации этих объектов  $T_2 \sim 10^{-9}$  с, что существенно больше, чем у основной массы спинов образца, а их объем, оцененный по интенсивности соответствующих линий, составляет  $10^{-6}$ – $10^{-5}$  от полного объема образца. Когда в процессе развертки поле  $H$  становится достаточно велико, чтобы преодолеть энергию пиннинга, тормоз «срывается» и кластер исчезает, сливаясь с растущим объемом ФМ-фазы. В результате подобных задержек полное время установления равновесного объема ФМ-фазы при заданном значении  $H$  оказывается достаточно велико (масштаба миллисекунд и даже секунд, как сообщалось в работе [12]), в отличие от быстрого (в масштабе микросекунд или даже короче) изменения ФМ-объема в процессе магнитной модуляции с ма-

лой амплитудой.

Результат численного расчета, основанного на изложенной модели образования и исчезновения узких линий, показан на рис. 7*b*. К подгоночным спектрам, рассчитанным, как и ранее, по формулам (2)–(5), были добавлены лоренцевы линии ФМР с гораздо меньшей амплитудой и случайными значениями резонансного магнитного поля, что соответствует случайным характеристикам поля анизотропии ферромагнитных кластеров. Предполагалось, что малые ферромагнитные области регулярно зарождаются при  $H > H_c$  и возрастают до некоей предельной величины с постоянной времени порядка секунд. В расчете принято, что при возрастании внешнего поля после зарождения кластера на определенную величину (140 Э) он исчезает или сливается с основной массой ферромагнитной фазы. Из рис. 7 видно, что при таких предположениях получается хорошее качественное согласие с экспериментом.

Описанные выше особенности в целом согласуются со сценарием [12, 13], согласно которому зародышами ферромагнитных образований могут служить островки зарядо-упорядоченной АФ-фазы типа СЕ. Энергетические и топологические предпосылки превращения СЕ-порядка в ферромагнитный под действием поля  $H$  отмечались в работах [12, 13]. В пользу этого предположения говорит и тот факт, что в образцах с  $x = 0.33$ , где зарядовое упорядочение отсутствует даже в микромасштабе, не возникает и управляемый внешним магнитным полем ферромагнитный фазовый переход.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследование спектров магнитного резонанса в керамических образцах  $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  подтвердило, что в области концентраций стронция  $x = 0.40$ – $0.45$  при температурах  $T > T_c$  наложение внешнего магнитного поля, превышающего  $H_c$ , приводит к появлению и росту линии ФМР, которая накладывается на обычный для парамагнитного состояния спектр ЭПР. Таким образом, подтверждается вывод, сделанный ранее на основе магнитостатических измерений [12, 13]: под действием поля  $H$  в отдельных областях (кластерах), окруженных парамагнитной средой, происходит ферромагнитный фазовый переход. На основе анализа полевых зависимостей намагниченности и спектров магнитного резонанса установлено, что объем ферромагнитных включений возрастает на начальном участке пропорционально  $(H - H_c)^\beta$ ,



где  $\beta = 4$  играет роль критической экспоненты. При малых изменениях внешнего поля (1–10 Э), характерных для магнитной модуляции в условиях записи ЭПР–ФМР, объем ферромагнитных кластеров осциллирует синфазно с модуляцией вплоть до частоты 100 кГц, что соответствует постоянной времени порядка 1 мкс. В то же время при медленном прохождении магнитного поля через весь спектральный диапазон обнаруживаются метастабильные узкие линии, которые можно отнести к отдельным ферромагнитным доменам, рост которых временно задержан пиннингом. Это наблюдение позволяет понять причины возникновения гистерезиса и относительно медленного установления равновесной намагниченности при значительных изменениях внешнего поля.

Индукцированное полем критическое фазовое расслоение в  $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  имеет место лишь в узком диапазоне концентраций Sr ( $x = 0.40\text{--}0.45$ ) и полностью отсутствует в образцах с  $x = 0.33$ . Это является убедительным указанием на важную роль зародышей зарядового (и одновременно антиферромагнитного) упорядочения, микромасштабные области которого появляются лишь с приближением к  $x = 0.5$ . Таким образом, исследованные материалы относятся к микронеоднородным объектам с конкуренцией различных типов упорядочения, что делает актуальным их анализ в рамках концепции фаз Гриффитса [8, 9]. Эта проблема должна стать предметом дальнейших исследований.

Авторы благодарят Л. И. Королеву и А. И. Абрамович за участие в постановке задачи и плодотворные дискуссии, а также А. Р. Кауля и О. Ю. Горбенко за синтез и предоставление образцов для исследования.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 05-02-16371), Программы фундаментальных исследований Президиума РАН и Программы «Спин-зависимые явления в твердых телах и спинтроника» ОФН РАН.

## ЛИТЕРАТУРА

1. J. M. D. Coey, M. Virlet, and S. Von Molnar, *Adv. Phys.* **48**, 167 (1999).
2. E. Dagotto, J. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
3. E. L. Nagaev, *Phys. Rep.* **346**, 387 (2001).
4. Л. И. Королева, *Магнитные полупроводники*, Физ. фак. МГУ, Москва (2003).
5. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, *УФН* **171**, 577 (2001).
6. К. И. Кугель, А. Л. Рахманов, А. О. Сбойчаков, М. Ю. Каган, И. В. Бродский, А. В. Клапцов, *ЖЭТФ* **125**, 648 (2004).
7. R. B. Griffiths, *Phys. Rev. Lett.* **23**, 17 (1969).
8. J. Burgy, M. Mayr, V. Martin-Mayor, A. Moreo, and E. Dagotto, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 277202 (2001).
9. M. B. Salamon, P. Lin, and S. H. Chun, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 197203 (2002).
10. J. Deisenhofer, D. Braak, H.-A. Krug von Nidda et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 257202 (2005).
11. В. В. Рунов, Д. Ю. Чернышов, А. И. Курбаков и др., *ЖЭТФ* **118**, 1174 (2000).
12. А. И. Абрамович, Л. И. Королева, А. В. Мичурин, *ЖЭТФ* **122**, 1063 (2002).
13. A. I. Abramovich, L. I. Koroleva, and A. V. Michurin, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, L537 (2002).
14. Y. Shiotani, J. L. Sarrao, and Guo-qing Zheng, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 057203 (2006).
15. O. Cépas, H. R. Krishnamurthy, and T. V. Ramakrishnan, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 247207 (2005).
16. A. I. Shames, E. Rozenberg, V. Markovich et al., *Sol. St. Comm.* **126**, 395 (2003).
17. D. L. Huber, G. Alejandro, A. Caneiro, M. T. Causa, F. Prado, M. Tovar, and S. B. Oseroff, *Phys. Rev. B* **60**, 12155 (1999).
18. J. Deisenhofer, M. V. Eremin, D. V. Zakharov et al., *Phys. Rev. B* **65**, 104440 (2002).
19. F. Rivadulla, M. A. Lopez-Quintela, L. E. Yueso et al., *Phys. Rev. B* **60**, 11922 (1999).
20. V. A. Atsarkin, V. V. Demidov, F. Simon et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **258–259**, 256 (2003).
21. J. Deisenhofer, B. I. Kochelaev, E. Shilova, A. M. Balbashov, A. Loidl, and H.-A. Krug von Nidda, *Phys. Rev. B* **68**, 214427 (2003).