

# НЕЛИНЕЙНЫЕ МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА ПСЕВДОКУБИЧЕСКОГО МОНОКРИСТАЛЛА $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$ В КРИТИЧЕСКОЙ ПАРАМАГНИТНОЙ ОБЛАСТИ И ФАЗОВОЕ РАЗДЕЛЕНИЕ

*В. А. Рыжов\**, *А. В. Лазута*, *И. Д. Лузянин*,  
*И. И. Ларионов*, *В. П. Хавронин*, *Ю. П. Черненко*

*Петербургский институт ядерной физики Российской академии наук  
188350, Гатчина, Ленинградская обл., Россия*

*И. О. Троянчук\*\**, *Д. Д. Халявин*

*Институт физики твердого тела и полупроводников Национальной академии наук Беларуси  
220072, Минск, Республика Беларусь*

Поступила в редакцию 15 июня 2001 г.

Представлены результаты исследований второй гармоники намагниченности в параллельных постоянном и гармоническом магнитных полях в критической парамагнитной области для умеренно допированного монокристалла манганита  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$ . Согласно данным нейтронной и рентгеновской дифракций, он кристаллографически однофазен и обладает псевдокубической структурой как при комнатной температуре, так и ниже температуры Кюри  $T_C = 124.1$  К. Хотя в данном соединении удельное сопротивление имеет особенность вблизи  $T_C$  и наблюдается колоссальное магнитосопротивление, оно остается изолятором в ферромагнитном состоянии. В парамагнитной области  $T_C < T < T_* \approx 146.7$  К результаты измерений нелинейного отклика свидетельствуют о сосуществовании двух магнитных фаз. Выше  $T_*$  манганит магнитно-однофазен и его критическое поведение хорошо описывается теорией динамического подобия для изотропных 3D-ферромагнетиков. Неожиданное появление новой магнитной фазы в структурно-однородном кристалле обсуждается на основе идей по фазовому разделению, которое может происходить в умеренно допированных кубических манганитах при орбитальном упорядочении.

PACS: 61.66.Fn, 75.40.Gb, 75.60.-d

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Как известно, появление ферромагнитного упорядочения в манганитах  $\text{LMnO}_3$  (L — трехвалентный редкоземельный ион) является следствием их допирования двухвалентным щелочноземельным элементом (Ca, Sr, Ba) [1]. Допирование приводит к образованию подвижных дырок и выше определенного уровня, благодаря механизму двойного обмена [2], вызывает переход в ферромагнитное металлическое состояние [3]. Обычно при переходе от антиферромагнитного диэлектрического состояния

к ферромагнитному металлическому с увеличением уровня допирования образуется изотропная изоляторная ферромагнитная фаза, которую нельзя описать, используя механизм двойного обмена [1]. В допированных соединениях взаимодействия, отвечающие за ферромагнитный переход, имеют достаточно сложный характер (см., например, [4]). В работе [4] рассматривался важный конкретный пример взаимодействий в кубических манганитах, включающий для  $e_g$ -электронов двойной обмен при наличии орбитально-вырожденных состояний, суперобмен, обусловленный электронными корреляциями, и антиферромагнитный обмен для спинов локализованных  $t_{2g}$ -электронов. При этом спиновые и орбитальные степени свободы оказываются

\*E-mail: ryzhov@omrb.pnpi.spb.ru

\*\*E-mail: troyan@ifftp.bas-net.by

взаимосвязанными. В результате была получена сложная фазовая диаграмма, которая включала области фазового разделения с сосуществованием фаз, имеющих различный магнитный или (и) орбитальный порядок. Образование ферромагнитной изоляторной фазы в этом подходе удалось соотнести с появлением орбитального порядка антиферромагнитного типа, обнаруженного в  $\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.12}\text{MnO}_3$  ниже температуры Кюри [5].

Среди исследованных манганитов только умеренно допированные барием соединения  $\text{L}_{1-x}\text{Ba}_x\text{MnO}_3$  ( $0.15 < x < 0.5$ ) имеют очень слабые структурные искажения для большинства редкоземельных элементов [6, 7]. Данное обстоятельство позволяет отнести эти соединения к манганитам с преобладанием электронных взаимодействий и сопоставить их свойства с результатами, полученными в модели работы [4]. В связи с этим отметим, что в указанном выше соединении  $\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.12}\text{MnO}_3$  присутствуют статические кооперативные ян-теллеровские деформации, развивающиеся при  $T_{JT} \approx 291 \text{ K} > T_C \approx 172 \text{ K}$  и существующие вплоть до температуры орбитального упорядочения  $T_{oo} \approx 145 \text{ K}$  [5].

Одним из важных аспектов магнитных свойств манганитов является их критическое поведение в окрестности ферромагнитного перехода, которое сравнительно слабо изучено. Несмотря на сложность магнитных взаимодействий, приводящих к ферромагнетизму в манганитах, можно ожидать, что в силу свойства универсальности фазовых переходов второго рода их критическое статическое поведение зависит не от всех деталей взаимодействий, а от таких особенностей как симметрия, число компонент параметра порядка и размерность системы. Универсальность динамического поведения помимо этих свойств определяется законами сохранения в системе и перестановочными соотношениями между операторами сильно флуктуирующих величин [8]. Эта универсальность связана с тем, что физика критических явлений обусловлена взаимодействием крупномасштабных флуктуаций, корреляционный радиус которых существенно превосходит межатомные расстояния.

В кубических манганитах взаимодействия, приводящие к ферромагнетизму, изотропны в спиновом пространстве. Если гипотеза универсальности справедлива для этих систем, то естественно полагать, что их критическое поведение не должно отличаться от поведения магнетика, описываемого гейзенберговским гамильтонианом. Аналогичное утверждение справедливо и по отношению к изменению критических свойств при учете дипольных сил, являю-

щихся в изотропных магнетиках основными анизотропными спиновыми взаимодействиями. Рассмотрение обычно пренебрежимо малого влияния одноионной кубической анизотропии, которое, как показывают оценки, несущественно также и в случае кубических манганитов, приведено в [9].

В данной работе мы представляем результаты исследований критической динамики в парамагнитной области монокристалла  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$ , который по данным нейтронной и рентгеновской дифракций имеет псевдокубическую структуру как выше, так и ниже температуры Кюри. Хотя удельное сопротивление этого манганита имеет особенность вблизи  $T_C$ , ферромагнитный переход происходит без изменения диэлектрического состояния. При этом наблюдается колоссальное магнитосопротивление [10].

В предыдущей работе [11] из температурной зависимости нелинейного отклика на низких частотах (1–100 кГц) надежно определена температура ферромагнитного упорядочения  $T_C = 124.1 \text{ K}$  исследуемого монокристалла. Выше  $T_C$  были найдены критические экспоненты для линейной восприимчивости  $\chi$  и третьей гармоники намагниченности в нулевом постоянном магнитном поле, а также для действительной компоненты второй гармоники намагниченности  $M_2$  ( $f = 15.7 \text{ МГц}$ ) в присутствии слабого постоянного поля (см. ниже). Их величины согласуются с предсказаниями теории подобия для изотропных  $3D$ -ферромагнетиков в области температур  $\tau = (T - T_C)/T_C > 0.12$ .

В настоящей статье основное внимание уделено исследованиям нелинейного динамического отклика на воздействие переменного магнитного поля. Температурные и полевые зависимости второй гармоники намагниченности  $M_2(T, H)$  и особенно ее мнимой компоненты позволили определить температурную границу  $T_* \approx 146.7 \text{ K}$  появления второй магнитной фазы. Кроме того, эти данные использовались для анализа спиновой динамики на основе модели изотропного ферромагнетика, в результате чего была получена температурная зависимость скорости  $\Gamma$  спиновой релаксации однородной намагниченности, а также определена величина коэффициента спиновой диффузии  $D$  в области  $T > T_*$ . Ниже этой температуры возникающая вторая магнитная фаза не позволила провести количественный анализ данных  $M_2(T, H)$ . Относительный объем новой фазы, критическое поведение которой радикально отличается от поведения классического изотропного ферромагнетика, растет по мере приближения к  $T_C$ . Предполагается, что ее образование связано с возникновением орбитального порядка, поскольку при 110 К (ниже

$T_C$ ) в кристалле не наблюдается структурных изменений по сравнению с комнатной температурой.

Статья построена следующим образом. В разд. 2 кратко рассмотрена генерация второй гармоники намагниченности в изотропном ферромагнетике и приведены выражения, необходимые для количественного анализа данных. В разд. 3 охарактеризован образец и описаны особенности измерений. Раздел 4 посвящен экспериментальным результатам, обсуждение которых содержится в пятом разделе. Наконец, в Заключение сформулированы принципиальные результаты работы.

## 2. ВТОРАЯ ГАРМОНИКА НАМАГНИЧЕННОСТИ КУБИЧЕСКИХ ФЕРРОМАГНЕТИКОВ В КРИТИЧЕСКОЙ ПАРАМАГНИТНОЙ ОКРЕСТНОСТИ $T_C$

Как было показано в [11], линейные и нелинейные статические магнитные свойства кристалла  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$  в критической парамагнитной окрестности не слишком близкой к  $T_C$  описываются моделью изотропного 3D-ферромагнетика. Исследуя генерацию второй гармоники  $M_2$  в этой области, кратко остановимся на данной модели.

Вторая гармоника намагниченности, индуцируемая в магнетике гармоническим магнитным полем  $h(t) = h \sin \omega t$ , параллельным постоянному, при условии  $M_2 \propto h^2$  описывается динамической восприимчивостью второго порядка  $\chi_{\parallel}^{(2)}$ . В ферромагнетиках, где переход в магнитоупорядоченное состояние обусловлен достаточно сильными взаимодействиями, изотропными в спиновом пространстве, существует температурная область выше  $T_C$ , где слабые анизотропные спиновые взаимодействия, отвечающие за релаксацию однородной намагниченности, могут учитываться по теории возмущений [9, 12]. При этом нелинейный отклик на однородное гармоническое магнитное поле описывается в рамках приближения времени релаксации и соответствующее выражение для  $\chi_{\parallel}^{(2)}$  имеет вид [13]

$$\chi_{\parallel}^{(2)}(\omega) = \frac{\Gamma_{\parallel}}{-2i\omega + \Gamma_{\parallel}} \chi_{\parallel}^{(2)} - i\omega \frac{(\partial/\partial\omega_0)\Gamma_{\parallel}}{(-2i\omega + \Gamma_{\parallel})(-i\omega + \Gamma_{\parallel})} \chi_{\parallel}^{(1)}. \quad (1)$$

Здесь

$$\chi_{\parallel}^{(1)} = \chi_{\parallel}^{(1)}(\tau, H) = \frac{\partial M(\tau, H)}{\partial H},$$

$$\chi_{\parallel}^{(2)} = \chi_{\parallel}^{(2)}(\tau, H) = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 M(\tau, H)}{\partial H^2},$$

$\chi_{\parallel}^{(1)}$  и  $\chi_{\parallel}^{(2)}$  — статические продольные восприимчивости первого и второго порядков соответственно,  $\Gamma_{\parallel} = \Gamma_{\parallel}(H, \omega_0, \tau)$  — скорость релаксации продольной намагниченности. Первое слагаемое в (1) обусловлено нелинейной зависимостью  $M$  от  $H$ . Второй член учитывает влияние переменного поля на релаксационные процессы. Это чисто динамическая часть отклика, обращающаяся в нуль при  $\omega = 0$ . В  $\Gamma_{\parallel}$  разделяются зависимости от  $H$  и  $\omega_0 = g\mu H$  в соответствии со статическим и динамическим влиянием  $H$  на свойства изотропного магнетика [12, 13]. Отметим также, что  $\chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)$  в соответствии с общими свойствами восприимчивостей является нечетной функцией  $H$ , обращающейся в нуль при  $H = 0$  [14]. В области частот  $\omega < \Gamma_{\parallel}$  первый член выражения (1) (следствие нелинейности  $M(H)$ ) дает основной вклад в  $\text{Re} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)$ , в то время как основной вклад второго члена (следствие влияния  $H(t)$  на скорость релаксации однородной намагниченности) приходится на  $\text{Im} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)$ .

В кубическом ферромагнетике основные анизотропные спиновые взаимодействия обусловлены дипольными силами, которые в области температур, где  $4\pi\chi < 1$  (обменная область),  $\chi = \chi_{\parallel}^{(1)}(H = 0)$ , учитываются по теории возмущений. При этом они меняют динамику флуктуаций, приводя к релаксации однородной намагниченности (затухание Хьюбера) со скоростью [9, 15]

$$\Gamma_d = \frac{\gamma_d \omega_d^2}{T_C \tau} = \gamma_{d1} (4\pi\chi)^2 \Omega(\tau). \quad (2)$$

Здесь  $\omega_d = 4\pi(g\mu)^2/V_0$  — характерная дипольная энергия ( $V_0$  — объем элементарной магнитной ячейки),  $\gamma_d \sim \gamma_{d1} \sim 1$  — численные множители и  $\Omega(\tau) = T_C \tau^{5/3}$  — характерная энергия критических флуктуаций (малым для 3D-систем индексом Фишера  $\eta$  мы пренебрегли). В дипольной области ( $4\pi\chi > 1$ ) происходит полное изменение критического поведения [9, 16]. В связи с этим отметим, что дипольный кроссовер при  $4\pi\chi \approx 1$  наблюдался в манганитах в единственной работе при исследовании спиновой релаксации мюонов в  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  [17].

Рассмотрим критическое поведение изотропно-го трехмерного ферромагнетика в магнитном поле. Влияние  $H$  на его статические свойства определяется характерной энергией критических флуктуаций,  $\Omega(\tau)$ . Поле слабое (сильное), если  $g\mu H/\Omega(\tau) \ll (\gg) 1$ . Нас интересует случай слабого поля, когда

$$4\pi\chi_{\parallel}^{(1)}(\tau, H) \approx 4\pi\chi(\tau) = C_{\chi} (\omega_d/T_C) \tau^{-4/3}. \quad (3)$$

Здесь фактор  $C_{\chi}$  обычно близок к  $S(S+1)/3$ , где

$S$  — величина спина магнитного центра. Функцию  $\chi_{\parallel}^{(2)}$  удобно записать в виде

$$\frac{\chi_{\parallel}^{(2)}(\tau, H)}{\chi(\tau)} = -\frac{C_{\parallel}^{(2)} g \mu H}{\Omega^2(\tau)}, \quad (4)$$

где коэффициент  $C_{\parallel}^{(2)}$  устанавливается из разложения  $M$  по  $H$ . Зависимость  $\Gamma_{\parallel}$  от  $\omega$  и  $\omega_0$  в слабом поле определяется обусловленным дипольными силами процессом распада однородной моды на две гидродинамические [9, 12]. В силу существования спиновой диффузии характерным масштабом изменения  $\Gamma_{\parallel}$  является не  $\Omega(\tau)$ , а существенно меньшая величина — скорость  $\Gamma$  релаксации намагниченности при  $\omega = \omega_0 = 0$ . Фактически те же процессы определяют зависимость ширины линии ЭПР от  $H$ . Это обстоятельство использовалось для определения коэффициента спиновой диффузии  $D(\tau)$  в режиме слабого поля в случае  $\omega_0 \gg \Gamma$  при исследовании критической динамики кубических гейзенберговских ферромагнетиков  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  и  $\text{CdCr}_2\text{S}_4$  [18]. В интересующем нас случае, когда  $\omega \ll \omega_0 \ll \Gamma$ , появляется существенная дисперсионная поправка к  $\Gamma$ , обусловленная диффузионной модой [12]. Эту поправку  $\Delta\Gamma_{\parallel}(\tau, \omega_0) \propto D^{-3/2}$  можно представить в виде

$$\begin{aligned} \Delta\Gamma_{\parallel}(\tau, \omega_0) &= \Gamma(\tau) - \Gamma_{\parallel}(\tau, \omega_0) = \\ &= C_{\Gamma_{\parallel}} \Gamma_d \omega_0^2 \left( \Omega(\tau) \Gamma^3 \right)^{-1/2}. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь выделен масштаб дипольного затухания  $\Gamma_d = \gamma_d \omega_d^2 / T_C \tau$ . Численный фактор описывается выражением

$$C_{\Gamma_{\parallel}} \approx \frac{C_{\chi}}{120\pi C_D^{3/2}},$$

в котором множитель  $C_D$  определяется коэффициентом спиновой диффузии

$$D(\tau) = C_D T_C d^2 \tau^{1/3} = D_0 \tau^{1/3}, \quad (6)$$

где  $d$  — постоянная магнитной решетки. Диффузионная поправка (5) — основное слагаемое, определяющее зависимость  $\Gamma_{\parallel}(\omega_0)$  в слабом поле. Определив ее и зная  $C_{\chi}$ , можно найти  $C_D$  и, тем самым, коэффициент спиновой диффузии.

В затухание  $\Gamma$  помимо дипольных сил могут внести вклад и другие взаимодействия, из которых в кубических ферромагнетиках со спином  $S > 1/2$  основными являются взаимодействия с фононами. Соответствующий не критический вклад  $\Gamma_{nc}(\tau)$  изменяется как  $\chi^{-1} \propto \tau^{4/3}$  [12]. В результате получим

$$\Gamma(\tau) = \Gamma_d(\tau) + \Gamma_{nc}(\tau) = \Gamma_d^*(\tau^{-1} + \Lambda \tau^{4/3}). \quad (7)$$

Здесь для удобства дальнейшего использования выделена амплитуда дипольного вклада  $\Gamma_d^* = \gamma_d \omega_d^2 / T_C$  и введен безразмерный параметр  $\Lambda$ , описывающий относительную величину не критической составляющей.

Рассмотрим теперь соотношение между  $\text{Re} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)$  и  $\text{Im} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)$ . Как мы увидим, во всем анализируемом диапазоне изменений  $\tau$  и  $H$  выполняются соотношения

$$\Delta\Gamma_{\parallel}/\Gamma \ll 1, \quad 2\omega/\Gamma_{\parallel} \approx 2\omega/\Gamma \ll 1.$$

Соответственно в линейном по  $H$  режиме из (1) и (4) находим

$$\text{Re} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega) \approx \chi_{\parallel}^{(2)}(0) \propto \tau^{-14/3} \quad (8)$$

и в тех же условиях из (1) и (5) для мнимой компоненты получим

$$\begin{aligned} \text{Im} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega) &\approx -\frac{\omega}{\Gamma^2(\tau)} \chi(\tau) \frac{\partial \Gamma_{\parallel}(\tau, \omega, \omega_0)}{\partial \omega_0} = \\ &= 2C_{\Gamma_{\parallel}} \frac{\omega}{\Gamma(\tau)} \frac{\Gamma_d(\tau)}{\Gamma(\tau)} \frac{\omega_0}{\Gamma(\tau)} \frac{\chi(\tau)}{\sqrt{\Omega(\tau)\Gamma(\tau)}}. \end{aligned} \quad (9)$$

С учетом (8) и (9) отношение мнимой и действительной компонент  $M_2$  имеет вид

$$\begin{aligned} R(\omega, \tau) &= \frac{\text{Im} M_2(\omega)}{\text{Re} M_2(\omega)} = \frac{\text{Im} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)}{\text{Re} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)} = \\ &= C_{\Gamma} \frac{\omega}{\Gamma(\tau)} \frac{\Gamma_d(\tau)}{\Gamma(\tau)} \left( \frac{\Omega(\tau)}{\Gamma(\tau)} \right)^{3/2}. \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь  $C_{\Gamma} = 2C_{\Gamma_{\parallel}}/C_{\parallel}^{(2)}$  — численный множитель порядка единицы. Как мы увидим ниже, несмотря на малость отношения  $\omega/\Gamma \ll 1$  в выражении (10), в обменной области может выполняться неравенство  $R > 1$ , поскольку для этого режима характерно  $\Omega(\tau)/\Gamma(\tau) \gg 1$ . Такое соотношение мнимой и вещественной частей отклика невозможно при  $\omega/\Gamma \ll 1$  для линейной восприимчивости, описываемой лоренцианом. В нашем случае его реализация — следствие существования двух вкладов в  $\chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)$  разной природы, зависимость от  $H$  одного из которых контролируется  $\Omega(\tau)$ , а другого —  $\Omega(\tau)$  и  $\Gamma(\tau)$  (см. (4) и (5)).

При увеличении  $H$  в выражении для  $\text{Im} \chi_{\parallel}^{(2)}(\omega)$  требуется учет членов более высокого порядка по  $\omega_0/\Gamma$ . В этом случае, согласно [12], функция  $\partial \Gamma_{\parallel}(\tau, \omega_0)/\partial \omega_0$ , входящая в (1) и (9), пропорциональна

$$\frac{\partial \Gamma_{\parallel}(\tau, \omega_0)}{\partial \omega_0} \propto x \varphi(x) = x \sqrt{\frac{\sqrt{1+x^2}}{1+\sqrt{1+x^2}}}, \quad (11)$$

где  $x = \omega_0/\Gamma(\tau)$ . В результате выражение (9) для  $\text{Im } \chi_{\parallel}^{(2)}$  умножается на функцию  $\varphi(x)$ .

Наконец отметим, что  $M_2$ , являясь четной функцией  $h$ , в парамагнитной области нечетна по  $H$  как псевдовектор и  $M_2 = 0$  при  $H = 0$ . Поэтому она оказывается чувствительной к появлению спонтанного момента  $M_{sp}$  в образце, так как в ферромагнитном состоянии  $M_2 \propto M_{sp}$  при  $H = 0$ . В результате в зависимости  $M_2(H)$  появится скачок при прохождении  $H$  через нуль, соответствующий изменению направления  $M_{sp}$  [19]. Такое безгистерезисное поведение возможно при исчезающе малой коэрцитивной силе. В противном случае будет наблюдаться гистерезис с  $M_2 \neq 0$  при  $H = 0$ .

### 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Монокристаллический образец  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$  ( $m \approx 54.5$  мг,  $2 \times 2 \times 3$  мм<sup>3</sup>) был взят из одной партии с исследовавшимся ранее [10, 11]. Нейтрон-дифракционные и рентгеновские исследования показали, что образец остается псевдокубическим при температурах 293 и 110 К. В пределах разрешающей способности и светосилы стандартных четырехкружных дифрактометров (нейтронного и рентгеновского), на которых проводились измерения, ян-теллеровских искажений решетки кристалла не обнаружено, равно как и слабых (до  $10^{-3}$ – $10^{-2}$  от интенсивности брэгговских отражений) диффузных сверхструктурных пиков в характерных кристаллографических направлениях [100], [110] и [111]. Параметр решетки  $a = 3.899(\pm 0.002)$  Å при комнатной температуре совпадает по величине с полученным в [10]. Следует подчеркнуть, что ниже  $T_C$  наблюдался ферромагнитный вклад в брэгговские рефлексы. В то же время отражений, соответствующих какой-либо антиферромагнитной фазе, не было обнаружено как выше, так и ниже  $T_C$ .

В данном монокристалле исследовались температурное и полевое поведения второй гармоники нелинейного отклика в параллельных постоянном и гармоническом магнитных полях

$$H(t) = H + h \sin 2\pi f t, \quad f = 15.7 \text{ МГц.}$$

Амплитуда переменного поля  $h$  составляла 35 Э при высоких температурах и уменьшалась до 0.1 Э по мере возрастания сигнала при понижении температуры, чтобы избежать его искажений приемником, с одной стороны, и для выполнения условия  $M_2 \propto h^2$ , с другой. Последнее условие позволяет использовать при описании отклика восприимчивость второго по-

рядка, для которой имеется явное теоретическое выражение (1). Полученные экспериментальные данные приводились к одному значению амплитуды переменного поля. Обе фазовые компоненты сигнала,  $\text{Re } M_2(H, T)$  и  $\text{Im } M_2(H, T)$ , регистрировались одновременно как функции постоянного магнитного поля  $H$  при разных температурах образца. Контролировать появление дальнего магнитного порядка в образце удобно путем детектирования полевого гистерезиса  $M_2$ , для чего использовалась симметричная относительно точки  $H = 0$  развертка постоянного магнитного поля ( $\pm 400$  Э). Ошибка в определении температуры образца была менее 0.2 К. Более подробно экспериментальная установка и метод выделения фазовых составляющих описаны ранее [13, 20], ее чувствительность была не хуже  $10^{-9}$  Гс.

### 4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

#### 4.1. Линейная восприимчивость и транспортные свойства

На рис. 1 приведена температурная зависимость действительной части линейной восприимчивости  $\text{Re } \chi(T) = \chi'(T)$ , полученная в [11]. Как показал проделанный в работе [11] анализ, поведение  $\chi'(\tau)$  согласуется с результатом для изотропного 3D-ферромагнетика в области  $0.07 \leq \tau \leq 1$  ( $133 \text{ К} \leq T < 250 \text{ К}$ ). Зависимость  $\text{Re } M_2(\tau)$  также

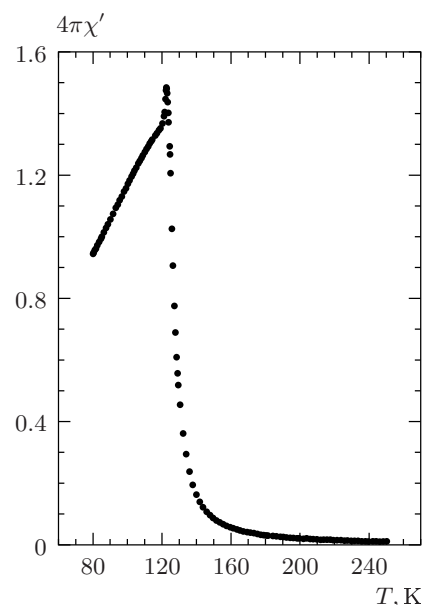
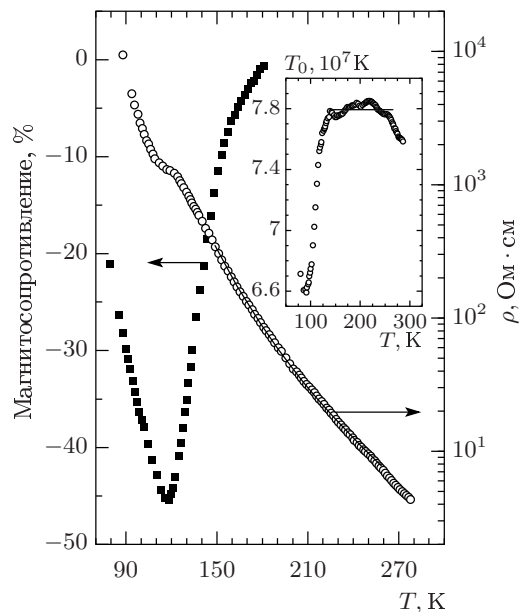


Рис. 1. Зависимость  $4\pi\chi'$  от температуры,  $T_C = 124.1$  К,  $H = 0$



**Рис. 2.** Зависимость удельного сопротивления  $\rho$  и магнитосопротивления, определенного как  $\left(\frac{R(H=9 \text{ кЭ}) - R(H=0)}{R(H=0)}\right) \cdot 100\%$ , от температуры (точки). Для  $\rho(T)$  в области  $T = 145\text{--}265$  К приведена аппроксимация теоретической зависимости  $\rho(T) = \rho_0 \exp(T_0/T)^{1/4}$  (сплошная кривая). На вставке к рисунку экспериментальная и полученная теоретическая ( $T_0 = 7.8 \cdot 10^7$  К,  $\rho_0 = 6.1 \cdot 10^{-10}$  Ом·см) зависимости изображены в других координатах:  $T_0 = T \{\ln[\rho(T)/\rho_0]\}^4$  и  $T$

удовлетворяла степенному закону, соответствующему кубическому ферромагнетику, причем отклонение от него начиналось ниже  $\tau \approx 0.12$  ( $T \approx 139$  К). Отклонение линейной и нелинейной восприимчивостей от характерных степенных законов ниже указанных  $\tau$  трудно объяснить известным дипольным кроссовером [9, 11, 16], так как его температура  $\tau_d \approx 4.3 \cdot 10^{-2}$  ( $T_d \approx 129.4$  К), определяемая равенством  $4\pi\chi(\tau_d) = 1$ , имеет меньшую величину. Действительно, в обычных кубических ферромагнетиках ( $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  и  $\text{CdCr}_2\text{S}_4$ ) линейная восприимчивость перестает удовлетворять скейлинговому закону  $\chi'(\tau) \propto \tau^{-\gamma}$  ( $\gamma \approx 4/3$ ) при  $4\pi\chi \geq 10$ , т. е. существенно ниже дипольного кроссовера [21], тогда как в нашем соединении это явление наблюдается уже при  $4\pi\chi \approx 0.5$ .

На рис. 2 приведены температурные зависимости удельного сопротивления  $\rho$  и магнитосопротивления этого монокристалла, полученные в [10]. Они показывают, что кривая  $\rho(T)$  данной системы имеет особенность вблизи  $T_C$  и, хотя отсутству-

ет переход металл–диэлектрик, наблюдается колоссальное магнитосопротивление. Как демонстрирует рис. 2, зависимость  $\rho(T)$  удовлетворительно описывается моделью проводимости с переменной длиной прыжка носителей [22] в температурном диапазоне  $T \approx 145\text{--}265$  К:

$$\rho(T) = \rho_0 \exp(T_0/T)^{1/4}.$$

На вставке к рисунку приведена зависимость параметра  $T_0 = T \{\ln[\rho(T)/\rho_0]\}^4$  от температуры, полученная из экспериментальных данных в предположении применимости данной модели. Видно, что ниже приблизительно 147 К величины  $T_0$  и соответственно  $\rho(T)$  становятся заметно меньше, чем предсказанные моделью. Поляронный механизм существенно хуже описывает  $\rho(T)$  выше 147 К. Отметим, что и в этом случае ниже 147 К экспериментальная величина  $\rho(T)$  сильно уменьшается по сравнению со значением, которое дает данный механизм.

#### 4.2. Вторая гармоника намагниченности

Температурные и полевые зависимости фазовых составляющих второй гармоники намагниченности,  $\text{Im } M_2$  и  $\text{Re } M_2$ , изучались в температурном диапазоне  $119 \text{ К} < T \leq 204 \text{ К}$ . Регистрировались  $\text{Im } M_2$  и  $\text{Re } M_2$  как функции постоянного поля при разных температурах кристалла. Типичные экспериментальные кривые  $\text{Re } M_2(H)$  и  $\text{Im } M_2(H)$  для некоторых температур приведены на рис. 3. Рисунки 3а, в–з показывают зависимости  $\text{Re } M_2(H)$  и  $\text{Im } M_2(H)$  при прямой и обратной развертках постоянного поля как выше, так и ниже  $T_C$ . На рис. 3б представлены экспериментальная и теоретическая (выражение (12)) зависимости для  $\text{Im } M_2(H)$  при  $T = 168.8$  К.

Фазовая составляющая  $\text{Re } M_2(H)$  имеет близкую к линейной зависимость в диапазоне развертки ( $\pm 400$  Э) при изменении  $T$  от 204 до 146.7 К ( $0.64 \geq \tau \geq 0.18$ ) в согласии с зависимостью  $\text{Re } \chi_2(T, H)$  (4) в области слабого поля. Условие слабости поля для максимального значения  $H = 400$  Э хорошо выполняется и при минимальном значении  $\tau \approx 0.18$  ( $g\mu H/\Omega(0.18) \approx 7.5 \cdot 10^{-3}$ ). Согласно оценке из скейлингового соотношения  $g\mu H \approx T_C \tau_H^{5/3}$ , переход к режиму сильного поля для  $H = 400$  Э происходит гораздо ближе к  $T_C$  при  $\tau_H \approx 10^{-2}$  ( $T_H \approx 125$  К). Сигнал  $\text{Re } M_2(H)$  для  $T = 168.8$  К приведен на рис. 3а. В температурной области  $139 \text{ К} < T \leq T_* \approx 146.7$  К (рис. 3в, д) отклик изменяется: появляются два интервала с разным линейным поведением, разделенные резкой кроссо-

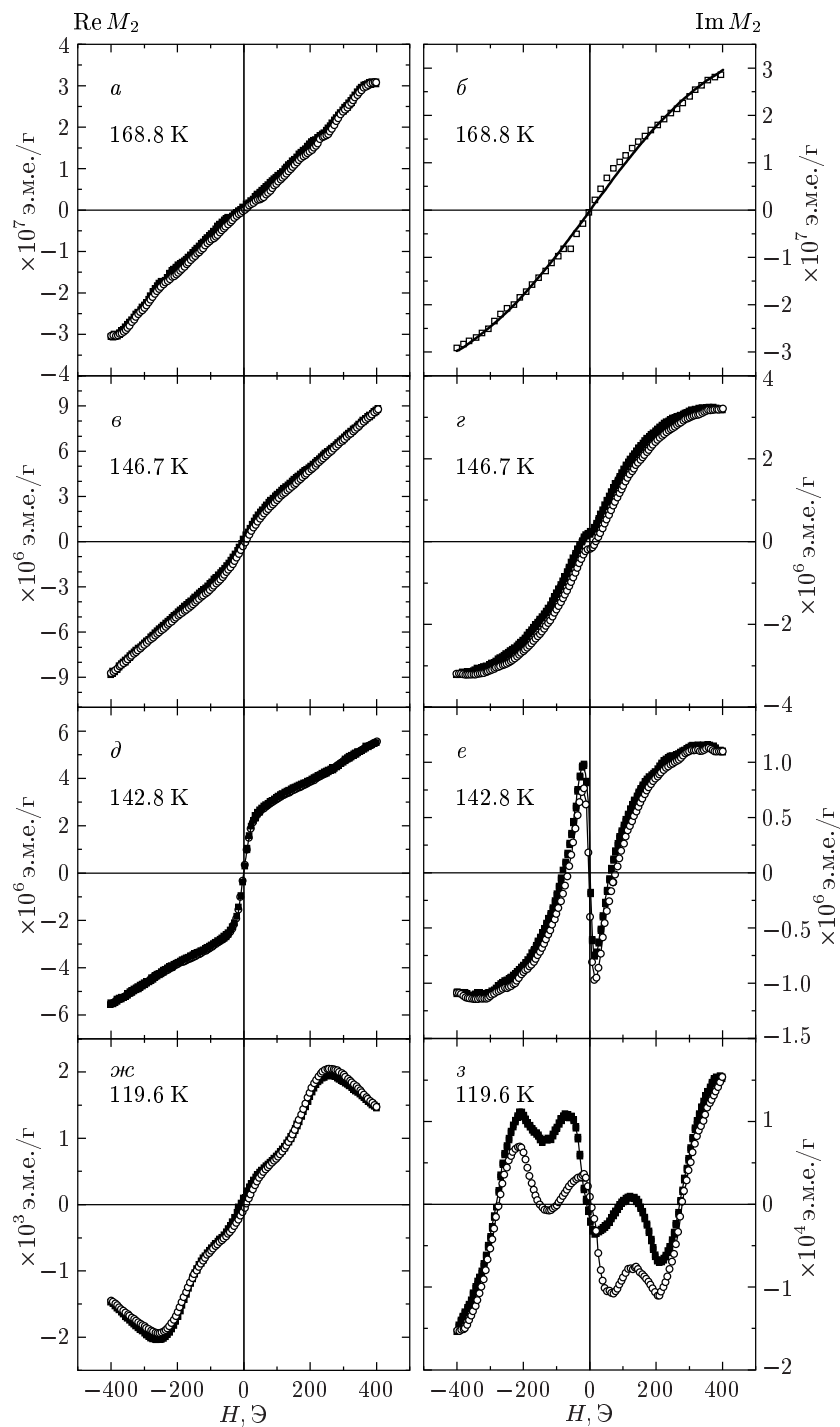


Рис. 3. Экспериментальные кривые  $\text{Re } M_2(H)$  (а, в, д, жс) и  $\text{Im } M_2(H)$  (б, г, е, з) при  $T = 168.8, 146.7, 142.8$  и  $119.6$  К. На рис. б представлены экспериментальная (точки) и теоретическая (сплошная кривая) зависимости  $\text{Im } M_2(H)$  при  $T = 168.8$  К, теоретическая кривая описана в тексте. На остальных рисунках показаны кривые для прямой (темные точки) и обратной (светлые точки) разверток магнитного поля

верной областью, являющейся практически точкой ( $H \approx 30$  Э). При этом зависимость  $\text{Re } M_2(\tau)$  в диапазоне  $30 \text{ Э} < H < 400 \text{ Э}$  согласуется со скейлинговым законом для изотропного 3D-ферромагнетика и ниже  $T_*$  вплоть до  $T \approx 139$  К [11]. В то же время в слабых полях  $H < 30$  Э наблюдается линейная зависимость с большим угловым коэффициентом. При  $T < 139$  К линейный режим в интервале  $30 \text{ Э} < H < 400 \text{ Э}$  сменяется нелинейным поведением. Поскольку определенная выше граница режима сильного поля изотропного ферромагнетика ( $T_H \approx 125$  К) для  $H = 400$  Э явно ниже 139 К, данная нелинейность не объясняется в рамках обычного критического поведения. Описанные изменения  $\text{Re } M_2(H)$  ниже  $T_*$  коррелируют с появлением в слабом поле  $H \approx 20$  Э минимума во второй фазовой компоненте  $\text{Im } M_2(H)$  (рис. 3з, е).

Вероятными причинами наблюдаемой трансформации сигнала  $M_2$  при понижении температуры могут быть: 1) изменение магнитных свойств всей фазы, ответственной за сигнал, при сохранении однородного состояния образца; 2) формирование неоднородного состояния, обусловленного возникновением в части образца новой магнитной фазы, дающей сигнал с нехарактерной для кубического ферромагнетика полевой зависимостью, который суммируется с сигналом от оставшейся исходной фазы. Если видоизменение сигнала в области слабого поля  $H < 30$  Э (рис. 3б–е) обусловлено появлением новой магнитной фазы, разумно предполагать, что особенности температурного поведения величины сигнала и положения его экстремумов (если они есть) при  $H < 30$  Э будут существенно отличаться от их поведения при  $H > 30$  Э. Ясно, что эти особенности не могут появиться в однородном магнитном состоянии изотропного ферромагнетика. Подчеркнем также, что два сигнала  $M_2(H, T)$  с разными температурными зависимостями наблюдались ранее в  $\text{Sm}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_4$  и, как было установлено, за них ответственны две разные магнитные фазы [19].

Для выяснения данного вопроса были определены: 1) величины  $\text{Re } M_2(H, T)$  и  $\text{Im } M_2(H, T)$  при двух значениях постоянного поля:  $H_1 = 22$  Э (вблизи минимума  $\text{Im } M_2(H)$  в слабом поле) и  $H_2 = 198.4$  Э (вдали от этого минимума); 2) положения в магнитном поле экстремумов  $H_m$  обеих фазовых компонент в областях  $H < 30$  Э и  $H > 30$  Э.

На рис. 4 показаны температурные зависимости  $\text{Im } M_2(T, H_i)$  ( $i = 1, 2$ ). Как видно из рисунка, приведенные кривые различаются знаком сигнала и его величиной. При этом на кривой  $\text{Im } M_2(T, H_1)$  наблюдается резкий минимум при  $T \approx T_C$ .

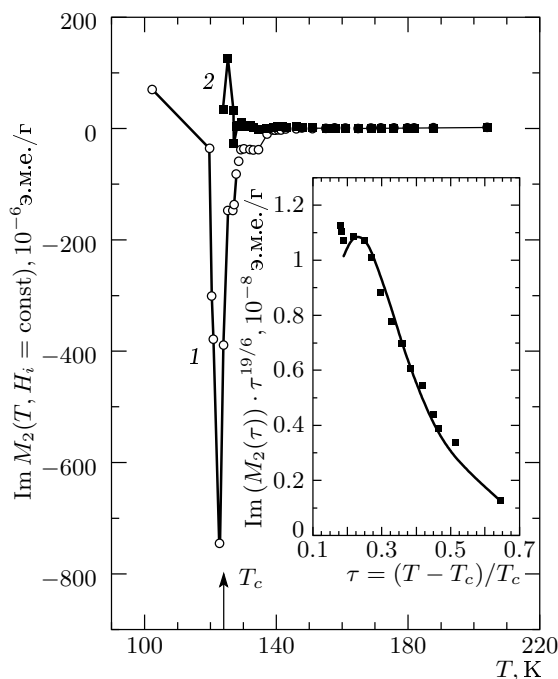


Рис. 4. Графики зависимостей  $\text{Im } M_2(T, H_1 = 22 \text{ Э})$  (кривая 1) и  $\text{Im } M_2(T, H_2 = 198.4 \text{ Э})$  (кривая 2). На вставке представлена аппроксимация  $\text{Im } M_2(\tau, H_2)$  в области температур  $T > 146.7$  К, которая описана в тексте (точки — эксперимент);  $H = 198.4 \text{ Э}$ ,  $\Lambda = 23.63$

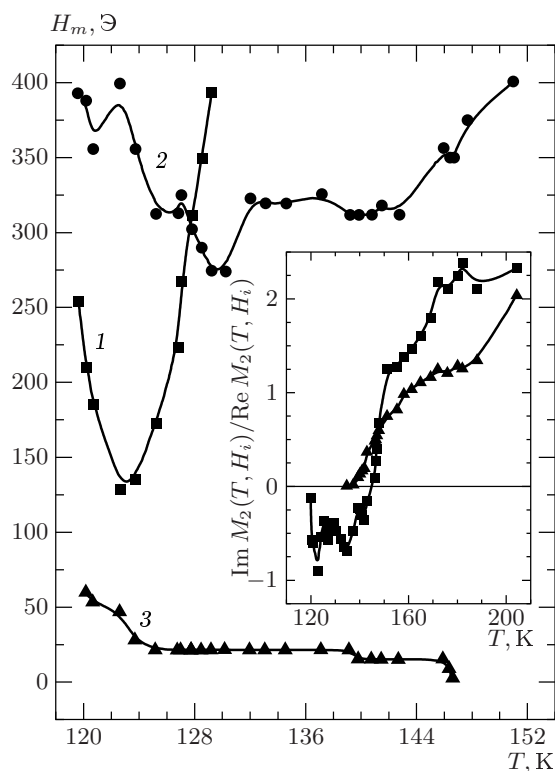
На рис. 5 представлены температурные зависимости положения экстремумов  $H_m$  для обеих фазовых компонент. Рисунок показывает, что положение минимума  $\text{Im } M_2(H)$  в слабых полях ( $H \leq 30$  Э), возникающего при  $T \leq T_*$ , не зависит от температуры практически до  $T \approx T_C$  в отличие от положения максимумов в полях  $H > 30$  Э как для  $\text{Im } M_2(H)$ , так и для  $\text{Re } M_2(H)$ . Отметим, что максимум в  $\text{Re } M_2(H)$  становится наблюдаемым в области развертки H только ниже 130 К и его положение соответствует минимуму при  $T \approx T_C$ .

Суммируем различия температурного поведения  $\text{Im } M_2(T, H)$  в областях  $H < 30$  Э и  $H > 30$  Э.

1)  $\text{Im } M_2(T, H_1)$  имеет другой знак, чем  $\text{Im } M_2(T, H_2)$  (рис. 3, 4), при этом абсолютная величина  $\text{Im } M_2(T, H_1)$  значительно сильнее растет с понижением температуры (рис. 4).

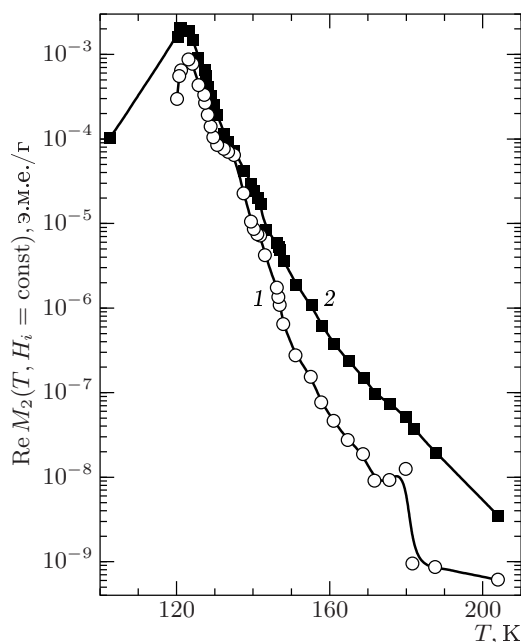
2) Положение минимума  $\text{Im } M_2(T, H)$  в слабых полях  $H < 30$  Э ( $H_m \approx 20$  Э) практически не зависит от температуры его появления при  $T_*$  вплоть до  $T_C$  (рис. 5) в отличие от температурного поведения максимумов  $\text{Im } M_2(T, H)$  и  $\text{Re } M_2(T, H)$  в области  $H > 30$  Э.





**Рис. 5.** Зависимости положения экстремумов сигнала  $H_m$  кривых  $\text{Re } M_2(H)$  (один экстремум (max) — кривая 1) и  $\text{Im } M_2(H)$  (два экстремума: max (2) и min (3)) от температуры ( $T_C = 124.1$  К). Вставка показывает температурные зависимости отношения  $R(T, H_i) = \text{Im } M_2(T, H_i) / \text{Re } M_2(T, H_i)$ ,  $i = 1, 2$ , в полях  $H_1 = 22$  Э (квадраты) и  $H_2 = 198.4$  Э (треугольники)

Неизменность характера полевой зависимости  $\text{Im } M_2$  в слабых полях при изменении температуры, особенно отчетливо проявляющаяся в постоянстве положения экстремума  $H_m$ , не согласуется с традиционным критическим поведением, в соответствии с которым должно быть  $H_m \propto \tau^{5/3}$ . С другой стороны, такая особенность может быть объяснена, если предположить, что за низкополевой сигнал, возникающий ниже  $T_*$ , отвечает новая фаза, находящаяся в критическом режиме. Как известно [23], если магнитная корреляционная длина развивающихся в такой фазе флуктуаций больше типичного размера ее фрагментов, возможен сильный рост величины сигнала без изменения его формы (в частности, без изменения положения экстремума) за счет увеличения объема фазы, не сопровождающегося изменением ее критических свойств. Такое поведение может иметь место в случае определенного простран-



**Рис. 6.** Графики зависимостей  $\text{Re } M_2(T, H_1 = 22 \text{ Э})$  (кривая 1) и  $\text{Re } M_2(T, H_2 = 198.4 \text{ Э})$  (кривая 2);  $T_C = 124.1$  К

ственного распределения новой фазы (образования большого количества ее фрагментов сравнительно небольших размеров внутри первоначальной фазы). Данное предположение также позволяет естественным образом объяснить нелинейный режим изменения  $\text{Re } M_2(H)$  в области  $H > 30$  Э, появляющийся ниже 139 К (см. выше), связав эту особенность с существенным нелинейным вкладом от вновь образующейся фазы.

Отметим также, что сигнал  $M_2(H)$  в области  $H < 30$  Э ниже  $T_*$  сопровождается возникновением небольшого полевого гистерезиса (рис. 3г и 3е соответствуют  $T = 146.7$  и  $142.8$  К), хотя температура ферромагнитного упорядочения находится существенно ниже ( $124.1$  К).

Таким образом, различия температурных зависимостей  $M_2(T, H_i)$  и  $H_m(T)$  для  $H < 30$  Э и  $H > 30$  Э приводят к выводу, что ниже  $T_* \approx 147$  К в кристалле возникает вторая магнитная фаза с нехарактерными для изотропного ферромагнетика критическими особенностями.

Кроме того, как мы увидим ниже, поведение функции  $\text{Im } M_2(\tau)$ , которая значительно сильнее зависит от  $\tau$ , чем  $\text{Re } M_2(\tau)$ , хорошо согласуется с критическим поведением изотропного ферромагнетика только в области от 204 К до  $T_*$ .

На рис. 6 представлены две зависимости:

Re  $M_2(T, H_1 = 22 \text{ Э})$  и Re  $M_2(T, H_2 = 198.4 \text{ Э})$ . Обе функции имеют максимумы при  $T \approx T_C$ . Таким образом, ниже  $T_*$  температурные зависимости обеих фазовых составляющих низкополевого и первоначального сигналов, а также положения их экстремумов  $H_m(T)$ , имеют особенности при  $T \approx T_C$ . Это свидетельствует о возникновении ферромагнитного упорядочения в обеих магнитных фазах практически при одной и той же температуре. Ниже мы будем называть низкополевым сигналом и соответствующую ему магнитную фазу аномальными, а первоначальный сигнал, наблюдаемый выше  $T_*$ , и связанную с ним фазу — обычными.

Как уже отмечалось выше, появление аномального сигнала в парамагнитной области сопровождается полевым гистерезисом в случае компоненты Im  $M_2$  и слабым (коэрцитивная сила  $H_c \approx 6 \text{ Э}$ ) гистерезисом в случае компоненты Re  $M_2$  (рис. 3в, г). Это явление выше  $T_C$  может быть обусловлено характером фрагментации аномальной фазы, а именно тем, что магнитный корреляционный радиус в этой фазе превосходит характерный размер возникающих фрагментов. Фактически, магнитное состояние аномальной фазы остается неизменным вплоть до  $T_C$ . С учетом того, что окружающая обычная фаза находится в критическом режиме, создание внешним полем намагниченности в образце может привести к образованию относительно долгоживущего метастабильного ферромагнитного состояния аномальной фазы.

В классических кубических ферромагнетиках полевой гистерезис Re  $M_2(H)$  с Re  $M_2(0) \neq 0$ , свидетельствующий о появлении спонтанного момента, развивается непосредственно ниже  $T_C$  [13]. Поведение Nd<sub>0.77</sub>Ba<sub>0.23</sub>MnO<sub>3</sub> сложнее: возникающий в Re  $M_2(H)$  при  $T \approx T_*$  такого рода гистерезис уменьшается до нуля при  $T \approx 139.9 \text{ К}$ , а затем снова увеличивается ( $H_c \approx 1.5 \text{ Э}$  при 130.2 К), причем восходящая и нисходящая ветви меняются местами, и сохраняется приблизительно до 123.7 К. Дальнейшее его увеличение наблюдается лишь при  $T \approx 122.6 \text{ К}$  ( $H_c \approx 5 \text{ Э}$ ) ниже  $T_C$  (см. рис. 3ж для близкой температуры). Затем при понижении температуры петля гистерезиса постепенно раскрывается, что указывает на малую коэрцитивную силу вблизи  $T_C$  и ее возрастание с уменьшением  $T$ .

## 5. ОБСУЖДЕНИЕ

Начнем обсуждение с температурной области  $T > T_*$ , где для  $M_2$  наблюдается только один сигнал.

Количественный анализ температурного поведения соответствующей ему обычной магнитной фазы на основе экспериментальных данных для Im  $M_2(H, T)$ , проводился только в этой области.

Прежде всего отметим, что в [11] установлен диапазон  $0.12 \leq \tau \leq 0.64$  (от 139 К до максимальной температуры  $T = 204 \text{ К}$ , где еще наблюдался сигнал), в котором степенная зависимость Re  $M_2(\tau) \propto \text{Re } \chi_2(\tau) \propto \tau^{-\gamma_2}$  с критическим индексом  $\gamma_2 = 5.2 \pm 0.2$  находится в удовлетворительном согласии со скейлинговым результатом (8) для изотропного 3D-ферромагнетика ( $\gamma_2 \approx 14/3$ ).

Экспериментальные данные для Im  $M_2(T, H_2)$  (см. рис. 4) использовались для анализа спиновой динамики. Из спектра ЭПР ( $f_{EPR} = 8.34 \text{ ГГц}$ ) образца при  $T = 204 \text{ К}$  ( $\tau \approx 0.64$ ) было определено значение  $\Gamma \approx 990 \text{ Э}$  ( $g$ -фактор  $\approx 2.05$ ,  $\Delta g \approx 0.12$ ). Оно использовалось для независимой проверки условия  $2\omega/\Gamma \ll 1$ , выполнение которого необходимо для применимости выражений (7)–(10), используемых в анализе зависимости Im  $M_2(T)$ . ЭПР-измерения проводились при самой высокой температуре из области, где измерялась величина  $M_2$ , поскольку влияние поля на критическое поведение и на  $\Gamma$  уменьшается с удалением от точки перехода. Сравнение полученной величины  $\Gamma$  с используемой в данных экспериментах частотой ( $\omega \approx 5.77 \text{ Э}$  в единицах поля) дает отношение  $2\omega/\Gamma \approx 1.2 \cdot 10^{-2}$ .

Перейдем к зависимости Im  $\chi_{\parallel}^{(2)}(\tau)$ , определяемой выражением (9), с затуханием  $\Gamma(\tau)$  в форме (7). Заметим, что

$$\text{Im } \chi_{\parallel}^{(2)}(\tau) \propto \Gamma_d(\tau) \Omega^{-1/2}(\tau) \chi(\tau) \propto \tau^{-19/6},$$

т. е. эта зависимость содержит сильно изменяющийся степенной фактор  $\tau$ , который ухудшает точность определения  $\Lambda$  из экспериментальных данных. Поэтому для нахождения  $\Lambda$  формировался массив точек  $\tau^{19/6} \text{Im } M_2(\tau)$  и для него осуществлялась аппроксимация.

Рассмотрим теперь Im  $M_2(H)$  при фиксированной  $T = 168.8 \text{ К}$ . Сравнение Re  $M_2(H) \propto H$  (рис. 3а) и Im  $M_2(H)$  (рис. 3б) показывает, что эти зависимости различаются и Im  $M_2(H)$  не является линейной функцией поля во всем диапазоне его изменения. Принимая во внимание малость  $2\omega/\Gamma$ , можно заключить, что вклад в Im  $M_2$  от первого члена в (1) мал. Это означает, что причиной различия полевых зависимостей фазовых компонент  $M_2$  является динамический вклад в Im  $M_2$ , возникающий из-за влияния  $h(t)$  на скорость релаксации однородной намагниченности. Об этом же свидетельствует и представленная на вставке к рис. 5 экспериментальная

зависимость  $R(T, H) = \text{Im } M_2(T, H) / \text{Re } M_2(T, H)$ . Как видно из графика, в области высоких температур  $156 \text{ К} \leq T \leq 204 \text{ К}$  эта величина оказывается больше единицы несмотря на малость  $2\omega/\Gamma \ll 1$ . Согласно выражению (10) для  $R$ , малость  $\omega/\Gamma$  может компенсироваться большой величиной множителя  $(\Omega(\tau)/\Gamma(\tau))^{3/2}$  и приводить к соотношению  $R > 1$ . Для определенности приведем значение  $R = 1.16$  для  $T = 168.8 \text{ К}$  ( $\tau \approx 0.36$ ) и  $H = 198.4 \text{ Э}$ . При этом, согласно найденной ниже зависимости  $\Gamma(\tau)$ , имеем  $\Gamma(0.36) \approx 600 \text{ Э}$ , а  $2\omega/\Gamma \approx 2 \cdot 10^{-2}$ .

Нелинейность зависимости  $\text{Im } M_2(H)$  требует аккуратного учета членов старших порядков по  $\omega_0/\Gamma$ . Поэтому при аппроксимации использовалось выражение (9) с множителем  $\varphi$  из (11):

$$\text{Im } M_2(\tau, H)\tau^{19/6} = C_{M_2}\Gamma^{-5/2}(\tau) \times \frac{\omega_0}{\Gamma(\tau)} \sqrt{\frac{\sqrt{1 + (\omega_0/\Gamma(\tau))^2}}{1 + \sqrt{1 + (\omega_0/\Gamma(\tau))^2}}} \quad (12)$$

где  $C_{M_2}$  — нормировочная константа. Аппроксимация проводилась в температурной области ( $0.19 < \tau \leq 0.64$ ) выше  $T_*$ . С использованием найденного при  $T = 204 \text{ К}$  ( $\tau \approx 0.64$ ) значения  $\Gamma_{EPR} \approx 990 \text{ Э}$ , один из двух независимых параметров в (7),  $\Gamma_d^*$ , выражался через второй:

$$\Gamma_d^* = \frac{\Gamma_{EPR}}{(0.64)^{-1} + \Lambda(0.64)^{4/3}},$$

и из экспериментальных данных находился один свободный безразмерный параметр  $\Lambda$ . Вставка на рис. 4 показывает, что такое однопараметрическое выражение позволяет достаточно хорошо описать зависимость  $\text{Im } M_2(\tau)\tau^{19/6}$  при  $\Lambda = 23.4 \pm 0.7$ . Зная  $\Lambda$ , находим  $\Gamma_d^* = 68.5 \pm 1.0 \text{ Э}$ . На вставке приведены три экспериментальные точки при  $T = 146, 146.4$  и  $146.7 \text{ К}$ , не использовавшиеся при подгонке, и в эту область продолжена теоретическая кривая. Как видно из графика, экспериментальная величина  $\text{Im } M_2(\tau)\tau^{19/6}$  в этих точках начинает снова расти вместо предсказываемого теорией уменьшения. Согласно приведенным выше аргументам, причиной расхождения является возникновение новой магнитной фазы ниже  $T_*$ .

Найденное значение  $\Gamma_d^*$  позволяет определить коэффициент  $\gamma_d$  в выражении (2) для затухания Хьюбера. Учитывая, что  $\omega_d = 4\pi(g\mu)^2/d^3 \approx 0.53 \text{ К}$  для  $d \approx 3.9 \text{ \AA}$ , из полученного значения  $\Gamma_d^* = \gamma_d\omega_d^2/T_C \approx 68.5 \text{ Э}$  находим  $\gamma_d \approx 4$ .

Поскольку согласно (5) и (9)  $C_{M_2} \propto C_{\Gamma\parallel} C_\chi \propto C_\chi^2 C_D^{-3/2}$ , определив  $C_{M_2}$  и зная  $C_\chi$ , можно най-

ти  $C_D$ . Величина  $C_\chi \approx 1.9$  определялась с привлечением данных по критической статической восприимчивости кристалла из работы [10]. В результате было найдено  $C_D \approx 0.02$ . Зная  $C_D$ , можно определить константу  $D_0$  в выражении для коэффициента спиновой диффузии (6). В нашем случае  $d \approx 3.9 \text{ \AA}$ , и из (6) находим  $D_0 \approx 3.3 \text{ мЭВ} \cdot \text{\AA}^2$ . Для сравнения приведем значения  $C_D$  и  $D_0$  для классических кубических ферромагнетиков:  $C_D \approx 0.045$ ,  $D_0 \approx 5.4 \text{ мЭВ} \cdot \text{\AA}^2$  в  $\text{CdCr}_2\text{S}_4$  ( $T_C \approx 84 \text{ К}$ ,  $d \approx 4.07 \text{ \AA}$ ) и  $C_D \approx 0.07$ ,  $D_0 \approx 15 \text{ мЭВ} \cdot \text{\AA}^2$  в  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$  ( $T_C \approx 129 \text{ К}$ ,  $d \approx 4.27 \text{ \AA}$ ) [18]. Приведенные величины  $C_D$  в классических ферромагнетиках значительно различаются. Как объясняется в [18], приблизительно постоянным остается только произведение  $C_D\gamma_d$ , равное  $6.5 \cdot 10^{-2}$  ( $\gamma_d \approx 1.45$ ) и  $5.9 \cdot 10^{-2}$  ( $\gamma_d \approx 0.84$ ) соответственно для  $\text{CdCr}_2\text{S}_4$  и  $\text{CdCr}_2\text{Se}_4$ . В исследуемом манганите также получается близкое значение:  $C_D\gamma_d \approx 8 \cdot 10^{-2}$ .

Напомним, что при анализе в качестве  $\Gamma$  (в нулевом поле) использовалась полуширина линии ЭПР. Это приближение оправдано, так как зависящая от  $\omega_0$  диффузионная поправка к  $\Gamma_{\parallel}$  при выбранном  $\tau \approx 0.64$  и заданной частоте не превосходит 15 %.

Поскольку  $\Gamma_d(\tau) \propto \tau^{-1}$ ,  $\Gamma_{nc} \propto \tau^{4/3}$  и обычно  $\Gamma_{nc} > \Gamma_d$  при  $\tau = 1$ , в зависимости (7) для  $\Gamma(\tau)$  наблюдается характерный минимум при некотором  $\tau_{min}$ . Такой минимум был обнаружен не только в кубических ферромагнетиках с локализованными спинами [18], но и в ряде исследованных с помощью ЭПР допированных манганитов с фактически кубической структурой [24]. Последнее наблюдение — непосредственное свидетельство влияния дипольных сил на процессы спиновой релаксации в изотропных манганитах, что в этой работе фактически оказалось незамеченным. Эксперименты в [24] были выполнены в соединениях с таким уровнем допирования, при котором температура перехода диэлектрик–металл  $T_{IM} \approx T_C$ . Измерения на разных резонансных частотах обнаружили, что магнитное поле сильно изменяет температурную зависимость  $\Gamma$  при  $\tau \leq \tau_{min}$ . Анализ показывает, что в этих манганитах влияние поля не может быть полностью сведено к известному видоизменению критического поведения, имеющему место в классических ферромагнетиках и связанному с переходом к режиму сильного поля [9, 12, 13]. Различие можно связать с близостью  $T_C$  и  $T_{IM}$ , т. е. с «металлизацией» дырок.

Полученная нами функция  $\Gamma(\tau)$  также является немонотонной и имеет минимум  $\Gamma_{min} \approx 520 \text{ Э}$  при  $\tau_{min} \approx 0.23$ . Отношение  $\Gamma_d(\tau_{min})/\Gamma_{nc}(\tau_{min}) = 4/3$ , т. е. дипольный вклад в  $\Gamma$  превосходит не критиче-

ский при  $\tau_{min}$ . Это позволяет считать, что величины  $\Gamma_d^*$  и  $\Lambda$  определены достаточно надежно, несмотря на не очень большой интервал  $\tau$ , доступный для анализа.

Наконец, на рис. 3б представлена теоретическая зависимость  $\text{Im } M_2(H)$  при фиксированной температуре  $T = 168.8$  К, описываемая функцией (12), где использовалось определенное выше значение  $\Gamma(\tau) \approx 600$  Э и не было свободных параметров. Хорошее совпадение с экспериментальными точками является важной проверкой достоверности найденного значения  $\Gamma(\tau)$  и согласованности применяемого подхода.

Приведенные результаты показывают, что в критической обменной области при  $T > T_* \approx 146.7$  К существует количественное согласие магнитного поведения монокристалла  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$  и классических гейзенберговских ферромагнетиков. Как обсуждалось во Введении, такое соответствие при совпадении числа компонент параметра порядка и размерностей систем, а также близости их симметричных свойств является следствием свойства универсальности переходов второго рода.

Перейдем теперь к обсуждению экспериментальных результатов в области ниже  $T_*$ . Согласно данным нейтронной и рентгеновской дифракций, структура решетки практически не изменилась при переходе от 293 к 110 К, сохраняя псевдокубический характер. Поскольку трудно ожидать появления структурных изменений в этом интервале, маловероятно, что образование новой фазы связано с перестройкой решетки. Таким образом, из совокупности приведенных данных следует появление двух сосуществующих магнитных фаз ниже  $T_*$ , не связанное со структурной перестройкой, причем с понижением температуры аномальная фаза упорядочивается ферромагнитно при  $T \approx T_C$ , как и обычная. Одной из наиболее вероятных физических причин данного явления может быть различный тип орбитального состояния фаз.

Теоретический анализ кубических манганитов показал, что в этих соединениях при умеренном уровне допирования возможно сосуществование фаз, находящихся в различных орбитальных или (и) магнитных состояниях [4]. В интересном для нас случае парамагнитного и ферромагнитного состояний при конечных температурах рассматривались три типа орбитального порядка: антиферромагнитный ( $G$ ), парамагнитный ( $P$ ) и ферромагнитный ( $F$ ). При этом в ферромагнитном состоянии фазовое разделение возникало из-за конкуренции двух типов ферромагнитного взаимодействия — супероб-

мена, обусловленного электронными корреляциями, и двойного обмена, — которые поддерживают различный тип орбитального порядка. С увеличением допирования  $G$ -тип, где доминирует суперобмен, сменяется  $F$ -типом, где преобладает двойной обмен. Однородные ферромагнитные состояния с  $G$ - и  $F$ -типами орбитального порядка присутствовали в области низких температур соответственно при  $x \leq 0.06$  и  $0.4 < x < 0.5$ . Кроме того, в области допирования  $0.2 < x \leq 0.3$  при  $T = 0$  в ферромагнитном состоянии были найдены две орбитально-упорядоченные фазы с более низкими, чем в случаях  $G$  и  $F$ , орбитальными симметриями. В анализе фазового разделения при конечной температуре эти фазы не учитывались, по-видимому, из-за чрезвычайной сложности возникающей фазовой диаграммы.

Переход от  $P$ - к  $G$ -типу орбитального упорядочения непосредственно наблюдался с помощью резонансного рентгеновского рассеяния в слабодопированном  $\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.12}\text{MnO}_3$  при  $T_{oo} \approx 145$  К [5]. При этом ферромагнитная фаза выше  $T_{oo}$  находилась в металлическом режиме,  $dp/dT < 0$ , тогда как фаза ниже  $T_{oo}$  являлась диэлектриком. Более сложная картина наблюдалась в соединении  $\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25}\text{MnO}_3$ , исследованном методом ЯМР [25]. В интервалах  $160 \text{ К} < T < T_C \approx 250 \text{ К}$  и  $3.2 \text{ К} < T < 20 \text{ К}$  была обнаружена смесь металлической и диэлектрической фаз, а между ними присутствовал сигнал только от металлического состояния. Результат в низкотемпературной области интерпретировался как смесь орбитальных  $G$ - и  $P$ -состояний, обусловленных электронными корреляциями. Считалось, что та же самая смесь орбитальных состояний ответственна за двухфазность системы и в другой области. При этом орбитальное упорядочение связывалось с сильным взаимодействием с ян-теллеровскими фононами.

Из изложенного ясно, что есть определенные основания связать появление аномальной фазы в исследуемом манганите с ее орбитальным упорядочением. Установление орбитального порядка может усилить ферромагнитное взаимодействие в этой фазе. В результате в соответствии с экспериментальными данными магнитный корреляционный радиус может оказаться больше характерного размера орбитально-упорядоченных областей, возникающих в орбитально-парамагнитной обычной фазе. Можно предположить, что тип орбитального порядка аномальной фазы будет промежуточным между  $G$  и  $F$ . Дело в том, что экспериментально обнаруженный  $G$ -тип отвечал фазе с большим удельным сопротив-

лением, чем  $P$ -тип. Последний же вообще соответствовал фазе с металлическим режимом проводимости. В нашем случае ниже  $T_C$  система остается в диэлектрическом состоянии и имеется лишь плато в зависимости  $\rho(T)$  в небольшом температурном интервале ниже  $T_C$ . Если данная особенность удельного сопротивления связана с появлением аномальной фазы, то ее проводимость должна быть больше проводимости орбитальной фазы  $P$ -типа. Учитывая тенденцию к металлизации с увеличением допирования, сопровождающуюся переходом от  $G$ - к  $F$ -типу орбитального порядка, в нашей ситуации мы можем ожидать промежуточного типа орбитального упорядочения, например, одного из двух, обнаруженных при  $T = 0$  К [4]. Если это предположение верно, то с ростом допирования доля аномальной фазы будет возрастать.

Тем не менее, нельзя исключить вариант, когда аномальная фаза имеет  $G$ -тип орбитального порядка, т. е. в данном соединении все еще образуется орбитальная фаза, характерная для области слабого допирования. В этом случае особенность поведения  $\rho(T)$  обусловлена поведением основной фазы, а объем аномальной фазы с большим удельным сопротивлением будет уменьшаться с увеличением допирования.

## 6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследование продольного нелинейного отклика монокристалла  $\text{Nd}_{0.77}\text{Ba}_{0.23}\text{MnO}_3$ , обладающего псевдокубической структурой как в парамагнитной области, так и ниже температуры Кюри, позволило выявить две температурные области с граничной температурой  $T_* \approx 146.7$  К ( $T_C = 124.1$  К). Выше этой температуры система структурно- и магнитно-однофазна. Ее поведение в критической обменной области выше  $T_*$  хорошо согласуется с теорией динамического подобия для изотропных ферромагнетиков и дает близкие к теоретическим значения критических параметров, что является следствием свойства универсальности переходов второго рода. Ниже  $T_*$  система структурно однофазна и магнитно-гетерофазна. Возможной причиной этого явления может быть орбитальное упорядочение, которое приводит к появлению аномальной фазы с отличающимися от обычной фазы магнитными корреляционными свойствами и проводимостью. Как отмечено выше, исследование образцов с большим уровнем допирования может прояснить природу достаточно необычной

гетерофазности магнитного состояния в данной системе, остающейся в диэлектрическом состоянии при  $T < T_C$ .

В заключение авторы выражают признательность И. А. Киселеву, Я. В. Грешневой, И. Р. Мецхваришвили за помощь в экспериментах и С. В. Малееву, а также С. М. Дунаевскому за полезную дискуссию. Работа была поддержана РФФИ (проекты 00-02-16729 и 00-02-81205 Bel2000\_a).

## ЛИТЕРАТУРА

1. Ю. А. Изюмов, Ю. Н. Скрябин, УФН **171**, 121 (2001).
2. C. Zener, Phys. Rev. **82**, 403 (1951).
3. P. G. de Gennes, Phys. Rev. **118**, 141 (1960).
4. S. Okamoto, S. Ishihara, and S. Maekawa, Phys. Rev. B **61**, 451 (2000).
5. Y. Endoh, K. Hirota, S. Ishihara et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 4328 (1999).
6. A. Barnabe, F. Millange, A. Maignan et al, Chem. Mater. **10**, 252 (1998).
7. I. O. Troyanchuk, I. M. Kolesova, H. Szymczak, and A. Nabialek, J. Magn. Magn. Mater. **176**, 267 (1997).
8. А. З. Паташинский, В. Л. Покровский, *Флуктуационная теория фазовых переходов*, Наука, Москва (1982), гл. 3.
9. S. V. Maleev, Sov. Sci. Rev. Sec. A **8**, 1229 (1987).
10. I. O. Troyanchuk, D. D. Khalyavin, S. V. Trukhanov, and H. Szymczak, J. Phys.: Condens. Matter **11**, 8707 (1999).
11. И. Д. Лузянин, В. П. Хавронин, В. А. Рыжов и др., Письма в ЖЭТФ **73**, 369 (2001).
12. А. В. Лазута, С. В. Малеев, Б. П. Топерверг, ЖЭТФ **81**, 2095 (1981).
13. А. В. Лазута, И. И. Ларионов, В. А. Рыжов, ЖЭТФ **100**, 1964 (1991).
14. A. V. Lazuta and V. A. Ryzhov, in *Proceedings of the first Workshop on Nonlinear Physics Theory and Experiment, Italy*, ed. by E. Alfinito, M. Boiti, L. Martina, and F. Pempinelli, World Scientific, Singapore–New Jersey–London–Hong Kong (1995), p. 406.
15. D. L. Huber, J. Phys. Chem. Solids **32**, 2145 (1971).

16. С. В. Малеев, ЖЭТФ **66**, 1809 (1974).
17. V. V. Krishnamurthy, I. Watanabe, K. Nagamine et al., Phys. Rev. B **61**, 4060 (2000).
18. V. N. Berzhansky, V. I. Ivanov, and V. A. Lazuta, Sol. St. Comm. **44**, 77 (1982).
19. L. D. Luzyanin, V. A. Ryzhov, D. Yu. Chernyshov et al., Phys. Rev. B **64**, 094432 (2001).
20. В. А. Рыжов, И. И. Ларионов, В. Н. Фомичев, ЖТФ **66**, 183 (1996).
21. И. Д. Лузянин, В. П. Хавронин, ЖЭТФ **87**, 2129 (1984).
22. N. F. Mott, *Metal-Insulator Transition*, Taylor&Francis, London (1990).
23. M. M. Barber, in *Phase Transition and Critical Phenomena*, ed. by S. Domb and J. L. Lebovitz Academic Press, London-New York (1983), Vol. 8, p. 153.
24. M. T. Causa, M. Tovar, A. Caniero et al., Phys. Rev. B **58**, 3233 (1998).
25. G. Papavassiliou, M. Fardis, M. Belesi et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 761 (2000).