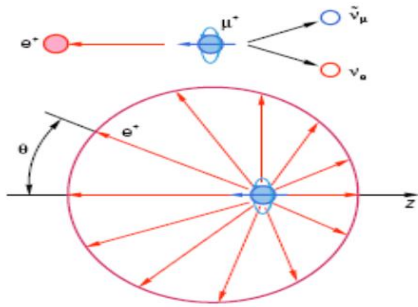


**μ SR-исследования
мультиферроиков-манганитов
на синхроциклотроне
НИЦ «Курчатовский институт» – ПИЯФ**

Лаборатория мезонной физики конденсированных сред
С.И. Воробьев

**Ядерный семинар ОФВЭ
6 июня 2017 г.**



Мюонный метод исследования вещества берет свое начало еще с работы Т. Ли и Ч. Янга, где впервые рассматривался вопрос о несохранении пространственной и зарядовой чётности в слабых взаимодействиях и предлагалось экспериментаторам искать нарушение ранее «незыблемого» закона сохранения природы в β -распаде поляризованных ядер и в распадах мезонов и гиперонов. Опыты, выполненные Ц. Ву, Е. Амблером и др. по изучению β -распада поляризованных ядер ^{60}Co и Р. Гарвина, Л. Лидермана и М. Вейнриха по изучению углового распределения электронов в распаде мюона, явились первыми экспериментальными доказательствами справедливости нарушения закона чётности в слабых взаимодействиях.

Но в 1957 году Р.Л. Гарвин, Л.М. Ледерман и Г. Вейнрих и Дж. И. Фридман, В.Л. Телегди, которые открыли несохранение четности в $\pi \rightarrow \mu \rightarrow e$ распаде, *вряд ли могли предположить, что этот фундаментальный результат в физике элементарных частиц положит начало новому методу изучения свойств вещества* – μ SR-методу. Т.е. в 2017 году μ SR-методу 60 лет!

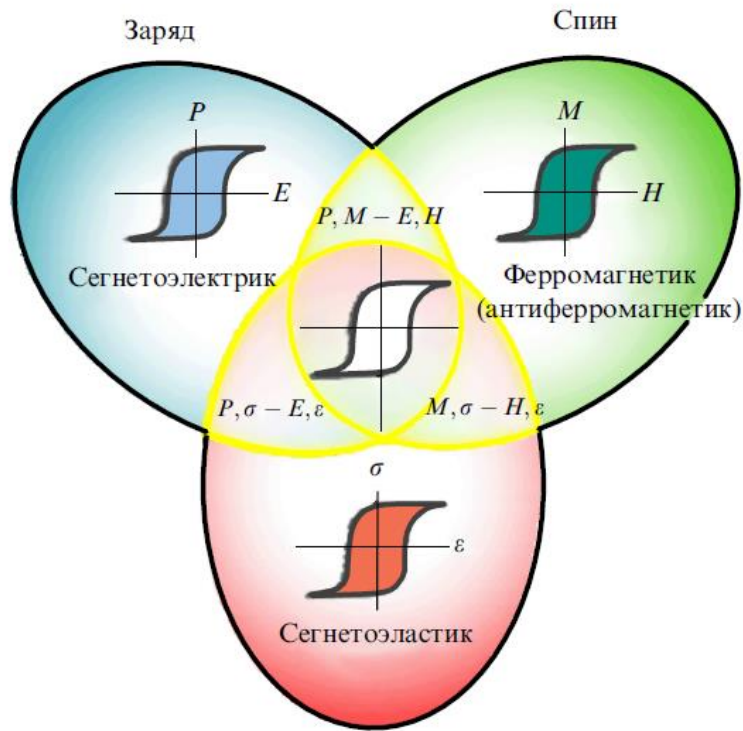
Суть мюонного метода исследования вещества заключается в возможности изучения локальных микрополей в веществе с помощью легкой нестабильной заряженной элементарной частицы – мюона (как положительно заряженного μ^+ , так и имеющего отрицательный электрический заряд μ^-). Для изучения свойств материи наиболее перспективны положительно заряженные мюоны.

В настоящее время в России существует единственная работающая μ SR-установка, расположенная на выходе мюонного канала синхроциклотрона СЦ-1000, которому в ноябре этого года будет 50 лет с момента запуска.

В ПИЯФ μ SR-метод начал развиваться после 1976 года, когда был пущен в эксплуатацию мюонный канал на синхроциклотроне СЦ-1000, тогда и начались первые экспериментальные исследования. μ SR-методу в ПИЯФ, уже 40 лет!



Мультиферроики



Мультиферроиками (или сегнетомагнетиками в отечественной литературе) называют материалы, в которых сосуществуют одновременно два и более типов «ферро» упорядочения: ферромагнитное, сегнетоэлектрическое и сегнетоэластичность.

Впервые предположение о возможности существования магнитного и электрического порядка в одном кристалле было сделано Пьером Кюри, теоретически показавшем, что в кристаллах с определённой симметрией могут одновременно существовать магнитное и электрическое упорядочения.

Экспериментально такие соединения были обнаружены в середине XX века и названы сегнетомагнетиками.

В 1958 году группа ленинградских физиков во главе с Г.А. Смоленским в ФТИ им. А.Ф. Иоффе обнаружила ряд сегнетоэлектриков со структурой перовскита и значительным содержанием ионов железа. Последнее обстоятельство дало основание надеяться, что эти соединения могут быть одновременно сегнетоэлектриками и ферро(антиферро)магнетиками.

Рис. 4. Три класса "ферроупорядоченных" веществ: сегнетоэлектрики, ферромагнетики (антиферромагнетики), сегнетоэластики. Каждый из классов характеризуется соответствующими петлями гистерезиса: $P(E)$, $M(H)$, $\sigma(\epsilon)$, где σ , ϵ — соответственно механическое напряжение и деформация. Мультиферроики лежат на пересечениях этих множеств: $P, M - E, H$ — область, соответствующая сегнетомагнетикам, $P, \sigma - E, \epsilon$ — сегнетоэлектрикам с сегнетоэластическими свойствами; $M, \sigma - H, \epsilon$ — веществам с магнитным и сегнетоэластическим упорядочениями.

Мультиферроики

В мультиферроиках, помимо свойств, характерных для каждого типа упорядочения в отдельности (спонтанная намагниченность, магнитострикция, спонтанная поляризация и пьезоэлектрический эффект) присутствуют свойства, связанные с взаимодействием электрической и магнитной подсистем:

- магнитоэлектрический эффект (индуцированная магнитным полем электрическая поляризация и индуцированная электрическим полем намагниченность);
- эффект магнитоэлектрического контроля (переключение спонтанной поляризации магнитным полем и спонтанной намагниченности электрическим полем);
- магнитодиэлектрический эффект или «магнитоёмкость» (изменение диэлектрической постоянной под действием магнитного поля).

Существуют два основных типа мультиферроиков:

- мультиферроики I типа, в которых магнетизм и сегнетоэлектричество возникают независимо друг от друга;
- мультиферроики II типа, в которых появление сегнетоэлектрического упорядочения является следствием существования магнитного упорядочения.

Такие материалы замечательны тем, что их электрическими свойствами можно управлять с помощью магнитного воздействия и наоборот, что можно использовать для создания устройств хранения информации со сверхвысокой плотностью записи. Кроме того, они могут использоваться в качестве чувствительных магнитных датчиков, в микроволновых устройствах передачи информации и многих других приложениях.

Мультиферроики

В течение длительного времени магнитоэлектрики и мультиферроики являлись узкой и не слишком популярной областью исследования, так как малые величины магнитоэлектрических (МЭ) эффектов и низкие температуры, при которых они проявлялись, не позволяли говорить о их практическом применении. Однако с начала XXI века интерес к ним значительно возрос, так как выяснилось, что мультиферроики потенциально очень важны для будущего магнитного хранения данных и спинтронных устройств, предоставляя простой и быстрый способ изменения своих электрических и магнитных свойств.

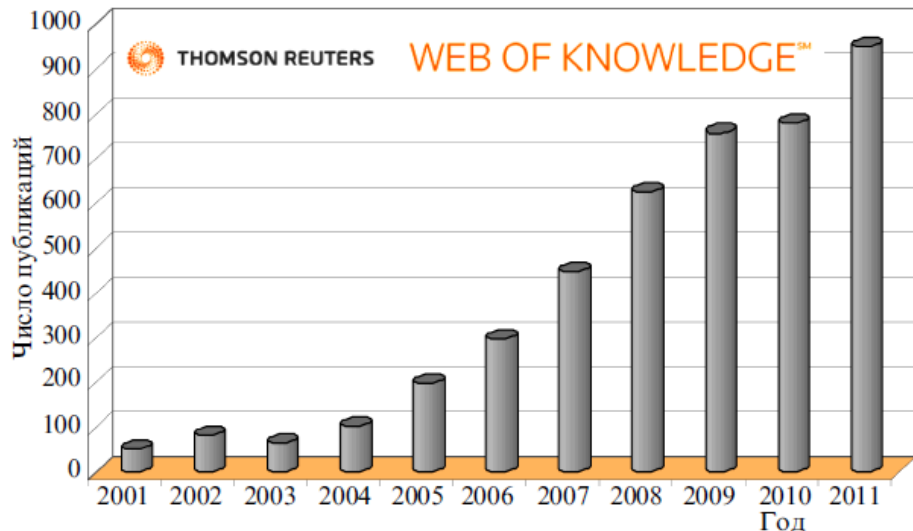
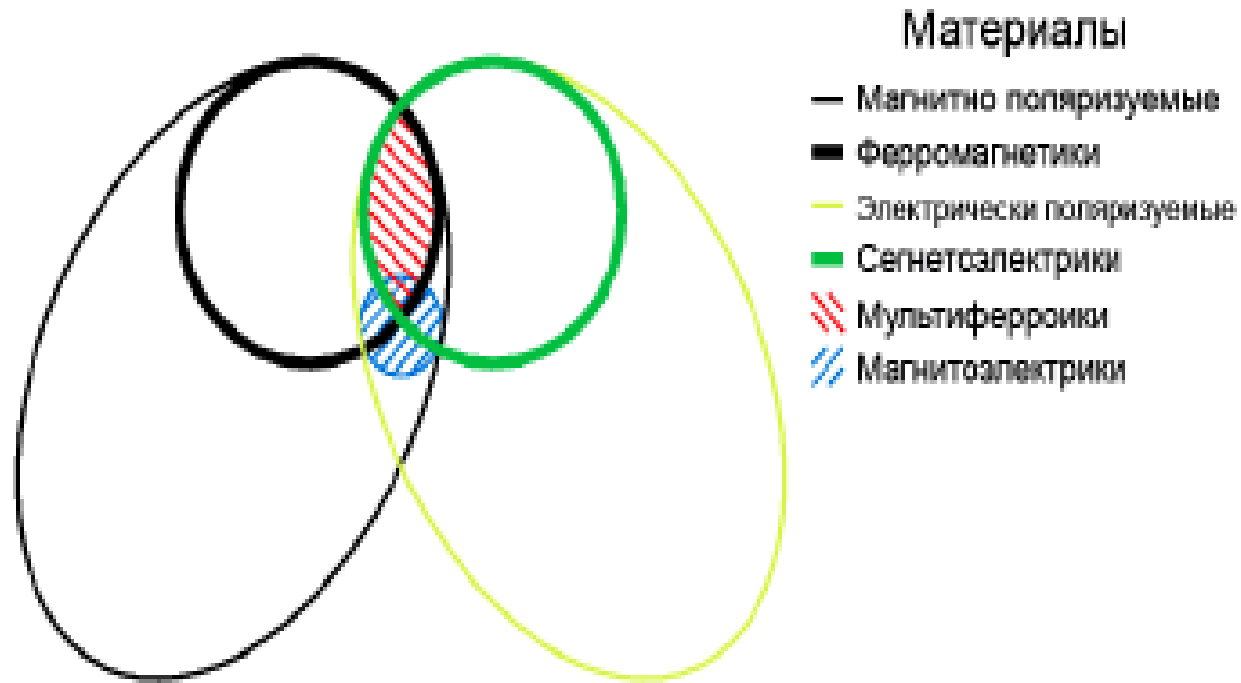


Рис. 1. Количество публикаций по тематике магнитоэлектрических материалов и мультиферроиков в текущем столетии (по данным ISI Web of Knowledge).

Публикации ЛМФКС 2006-2016 гг.

- Статьи в журналах – 9 шт.
(ЖЭТФ, Письма в ЖЭТФ, ФТТ, ПТЭ, Известия РАН. Серия физическая)
- Препринты ПИЯФ – 5 шт.
- Тезисы конференций – 26 шт.
русские конференции – 17, международные конференции – 9.

Мультиферроики



Особый интерес представляют **мультиферроики-манганиты RMnO_3 и RMn_2O_5** , в которых сегнетоэлектрическое упорядочение индуцируется специальным типом магнитного порядка, понижающего симметрию кристалла до нецентросимметричной. Они обладают гигантским магнито-электрическим эффектом, что привлекает к ним внимание исследователей. Изучение особенностей магнитной структуры таких мультиферроиков является ключевым для понимания полярных и структурных их состояний.

Как известно, μSR -метод дает информацию о локальных внутренних полях упорядоченных магнетиков, в которых останавливаются и термализуются мюоны.

**Исследования свойств мультиферроиков
 $\text{Eu}_{0.8}\text{Ce}_{0.2}\text{Mn}_2\text{O}_5$ и EuMn_2O_5
с помощью μSR -метода**

**ЖЭТФ, 2016, том 150, вып. 6 (12), стр. 1170–1178.
JETP, 2016, Vol. 123, № 6, pp. 1017–1024.**

Манганиты RMn_2O_5 (R–редкоземельный ион) являются типичными представителями мультиферроиков, в которых сегнетоэлектрическое упорядочение при $T < T_C \approx 30\text{K}–35\text{K}$ индуцируется магнитным упорядочением с $T_N \approx 40\text{K}–45\text{K}$ и имеется сильное магнитоэлектрическое взаимодействие.

До последнего времени считалось, что RMn_2O_5 имеют centrosymmetric орторомбическую симметрию с пр.гр.*Pbam*. Зарядовое упорядочение ионов марганца переменной валентности вдоль оси *b* при возникновении магнитного порядка приводит к появлению неcentrosymmetric и сегнетоэлектричества за счет обменной стрикции.

В работе [Phys.Rev.Lett. **114**, 117601 (2015)] на основании тщательного структурного исследования при комнатной температуре было показано, что RMn_2O_5 обладают неcentrosymmetric пространственной группой *Pm*. Это допускает существование электрической поляризации в RMn_2O_5 при комнатной температуре. Обнаруженные в работе моноклинные искажения были слабыми на фоне пр.гр.*Pbam*. Авторы не оспаривали хорошо установленные экспериментально низкотемпературные магнитные свойства и наличие магнитно-индуцированного сегнетоэлектричества в RMn_2O_5 . Они полагали, что низкотемпературный полярный порядок сосуществует и усиливает высокотемпературную электрическую поляризацию иной природы.

Напомним, что μSR -метод дает информацию о магнитном состоянии кристалла и полученные нами результаты согласуются с низкотемпературными магнитными свойствами, описываемыми в рамках пр. гр. *Pbam*.

Элементарная ячейка RMn_2O_5 содержит по одному иону Mn разной валентности (Mn^{3+} и Mn^{4+}), и распределение этих ионов в кристалле (зарядовое упорядочение) играет ключевую роль в определении их свойств.

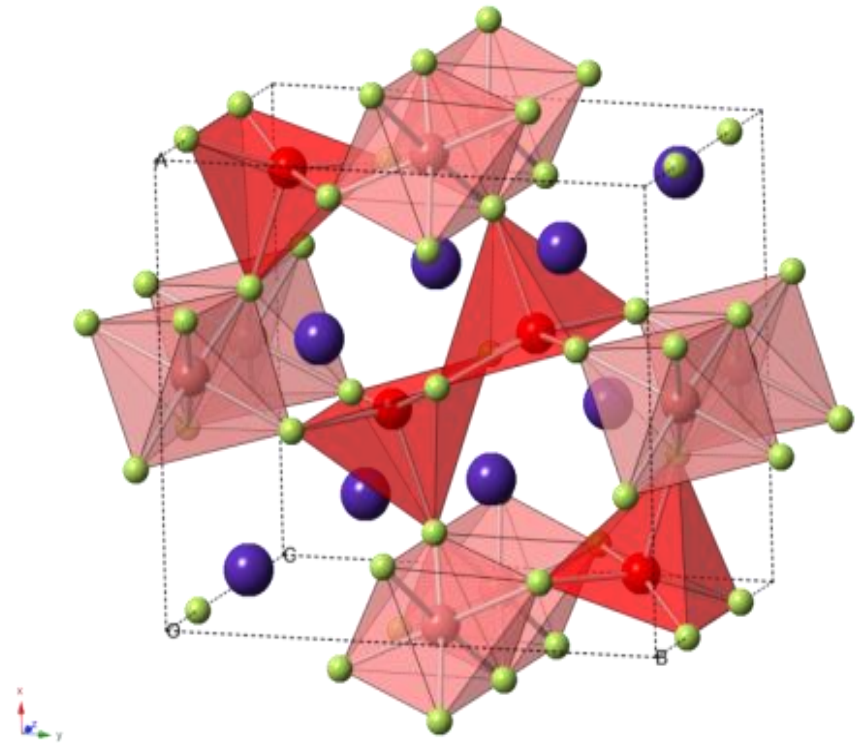
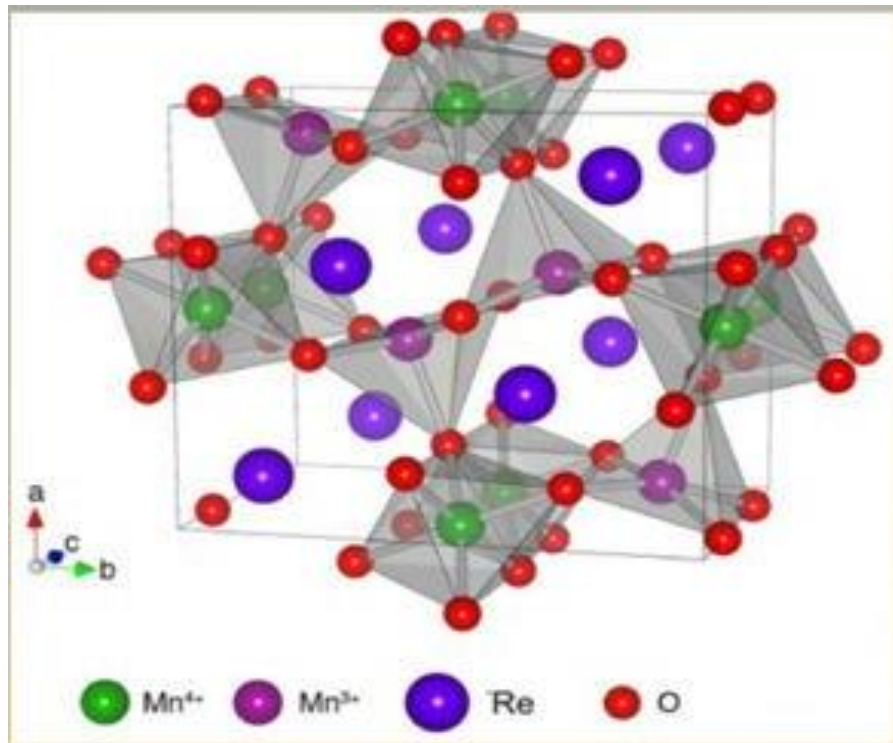
В RMn_2O_5 имеются два типа зарядового упорядочения:

Первый обусловлен парным чередованием ферромагнитных и антиферромагнитных пар ионов Mn^{3+} - Mn^{4+} вдоль оси b . Различие величин косвенного антиферромагнитного обмена между антиферромагнитными парами и двойного обмена между ферромагнитными парами приводит к обменной стрижки, индуцирующей электрическую поляризацию при $T < 30\text{K} - 35\text{K}$.

Второй тип зарядового упорядочения обусловлен распределением ионов в слоях перпендикулярных оси c . Ионы Mn^{4+} занимают позиции $z=0.25c$ и $(1-z)=0.75c$ в октаэдрическом кислородном окружении (MnO_6); ионы Mn^{3+} находятся в позициях $z = 0.5c$ в пятиугольных пирамидах (MnO_5); ионы R^{3+} занимают позиции $z = 0c$.

Зарядовое упорядочение вдоль оси c обусловлено процессами фазового расслоения и самоорганизации носителей заряда, которые характерны для всех манганитов, содержащих ионы Mn^{3+} и Mn^{4+} . Фазовое расслоение приводит к формированию ферромагнитных проводящих областей внутри диэлектрической антиферромагнитной (парамагнитной) матрицы исходного кристалла. Динамически равновесные области фазового расслоения формируются при балансе сильных взаимодействий притяжения носителей заряда (двойной обмен, искажение решетки) и кулоновского их отталкивания. По этой причине фазовое расслоение существует от самых низких температур до температур выше комнатной.

Кристаллическая структура

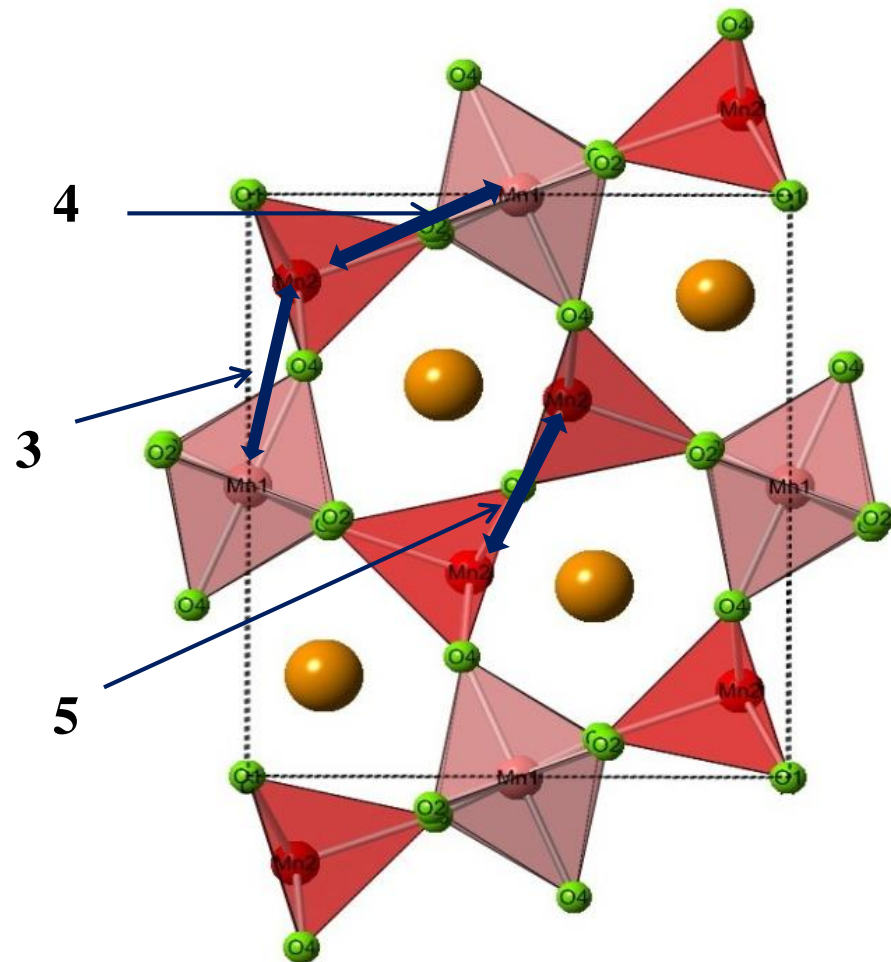
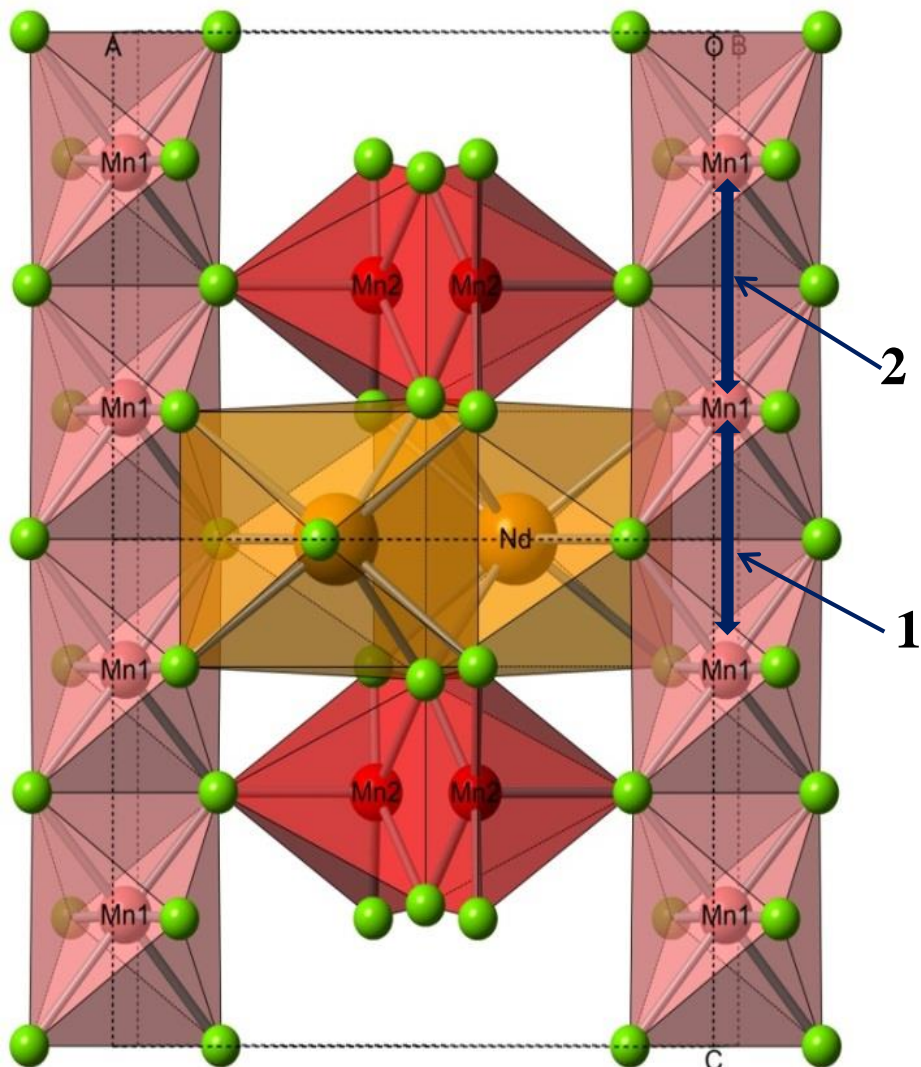


Пространственная группа - $R\bar{3}m$

Обменное взаимодействие в RMn_2O_5

$\text{Mn}_1 = \text{Mn}^{4+}$

$\text{Mn}_2 = \text{Mn}^{3+}$



1 и 2 – обмен между $\text{Mn}^{4+} - \text{Mn}^{4+}$

3, 4, 5 – обмен в плоскости *ab*

3, 4 – между Mn^{4+} и Mn^{3+} ,

5 – взаимодействие между Mn^{3+}

Основной задачей данной работы является сравнительное исследование магнитных свойств соединений $\text{Eu}_{0.8}\text{Ce}_{0.2}\text{Mn}_2\text{O}_5$ (ЕСМО) и EuMn_2O_5 (ЕМО) с помощью μSR -метода.

Исследования проводились в нулевых внешних магнитных полях в диапазоне температур от 15K до 300K .

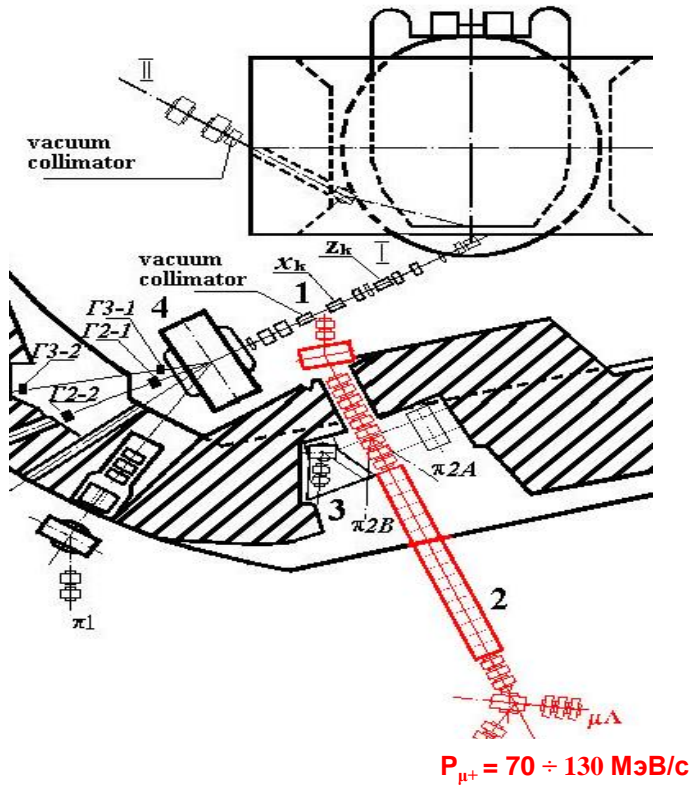
Мюонный метод исследования (μSR -метод) ранее был уже использован для изучения свойств мультиферроиков EuMn_2O_5 [Письма в ЖЭТФ **91**, 561 (2010)] и GdMn_2O_5 [ФТТ **55**, 422 (2013)]. Было обнаружено несохранение поляризации мюонов при переходе исследуемых образцов в магнитоупорядоченное состояние. Отмечалась важная роль процессов переноса заряда между парами ионов Mn^{3+} - Mn^{4+} при формировании дальнего магнитного порядка в этих мультиферроиках.

Измерения были выполнены на μSR -установке, расположенной на выходе мюонного канала синхроциклотрона ПИЯФ [ПТЭ **50**, 36 (2007)].

Использовался пучок положительно заряженных мюонов с импульсом $p_\mu = 90$ МэВ/с, импульсным разбросом $\Delta p_\mu / p_\mu$ (FWHM) = 0.02 и продольной поляризацией $P_\mu \sim 0.90$ – 0.95 .

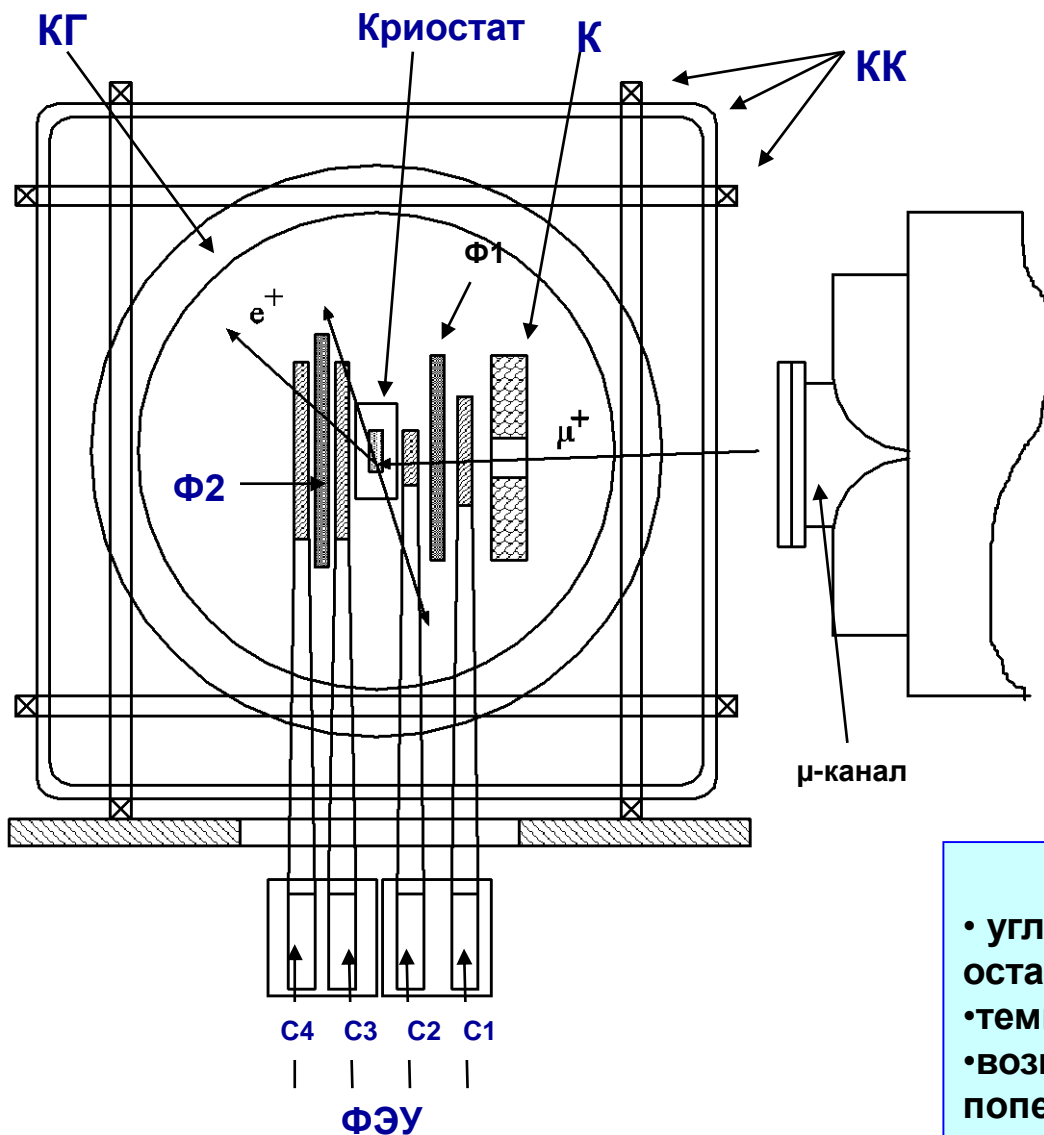
Исследуемые образцы помещались в криостат, который позволял устанавливать температуру образцов в диапазоне 15K – 300K с точностью \sim от 0.1 до 0.5K .

Оба образца были одинаковыми по геометрическим размерам и представляли собой керамические диски диаметром 30 мм и толщиной 12 мм, изготовленные с помощью технологии твердофазного синтеза. Методом рентгеновского фазового анализа была определена структура данных керамических образцов и подтверждена их однофазность. Размер зерен керамики составлял несколько десятков микрон.



Физические параметры μ -канала:

- интенсивность $\leq 10^5 \text{ с}^{-1}$;
- $P_{\mu^+} = 70 \div 130 \text{ МэВ/с}$;
- продольная поляризация мюонов 95%;
- максимальный размер пучка $\text{Ø} 40 \text{ мм}$;
- размер исследуемых образцов $\text{Ø} 20 \div 50 \text{ мм}$ с толщиной по пучку $4 \div 10 \text{ г/см}^2$.



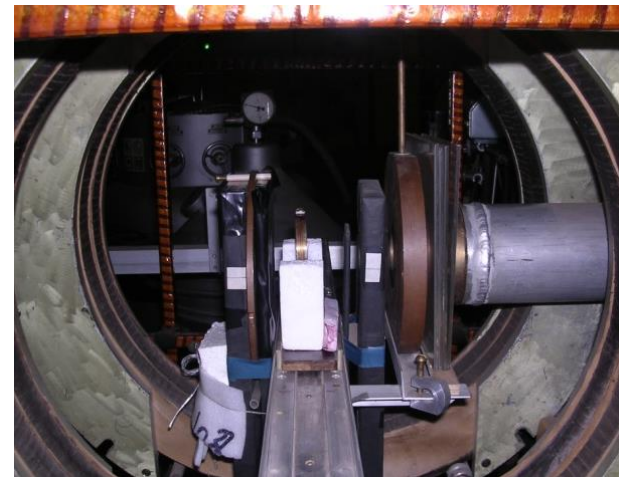
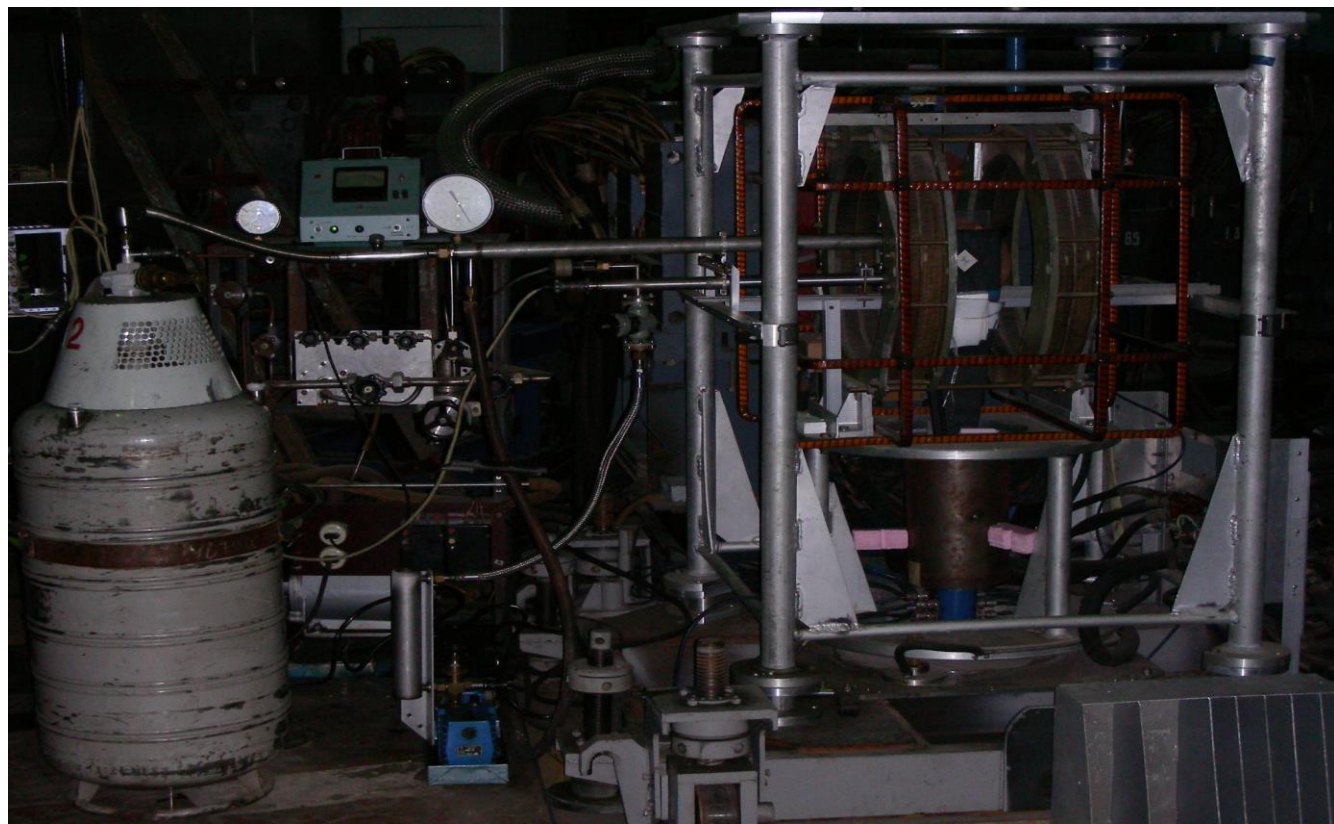
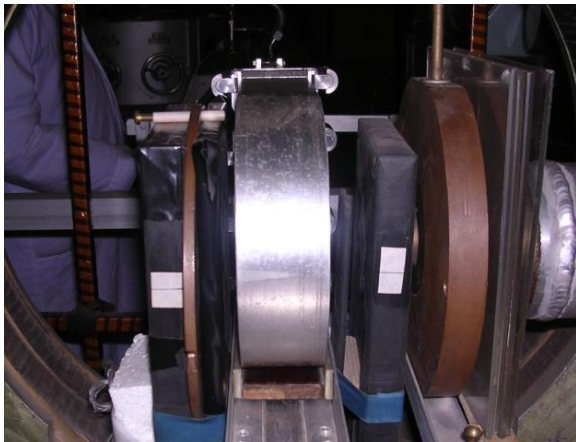
Фотография
μSR-установки



Особенности μSR-установки:

- угловой захват e^+ от распада мюонов, остановившихся в мишени 0,5 стерадиан;
- температурный диапазон 10 ÷ 300 К;
- возможность работать во внешних поперечных магнитных полях до 1,5 кГс;
- анализируемый временной интервал с момента остановки мюона 10 нс ÷ 10 мкс с точностью 0,8 нс.

Рис. Установка для μSR-экспериментов. (КГ – кольца Гельмгольца; КК – компенсирующие катушки; К – коллиматор; Ф1 и Ф2 – фильтры 1 и 2; ФЭУ – фотоэлектронный умножитель); С1 ÷ С4 – сцинтилляционные счётчики.



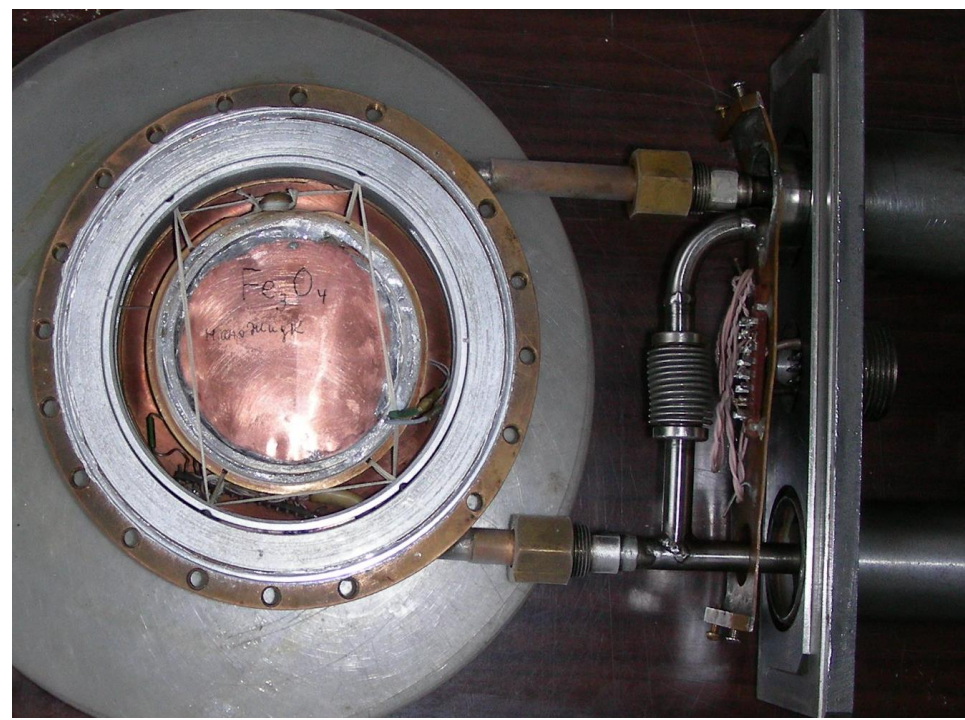
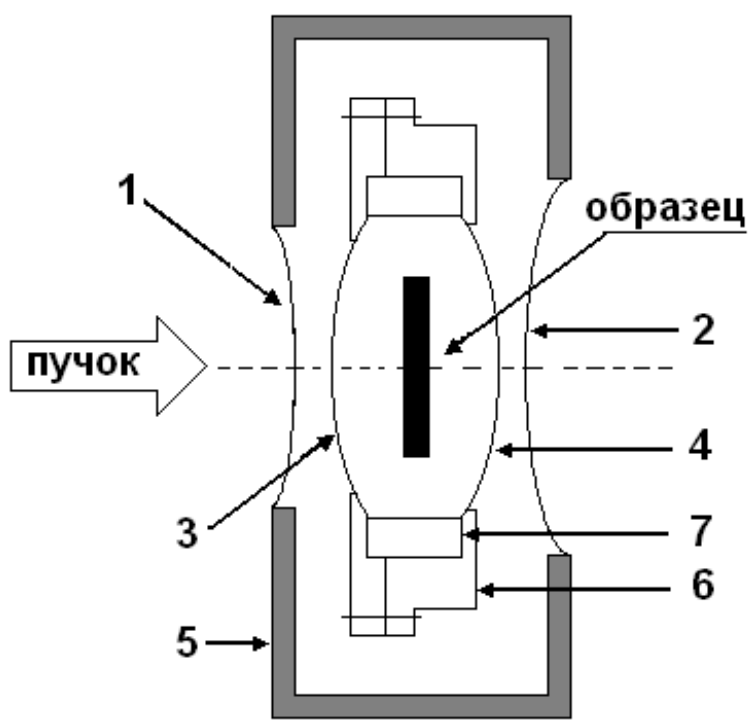
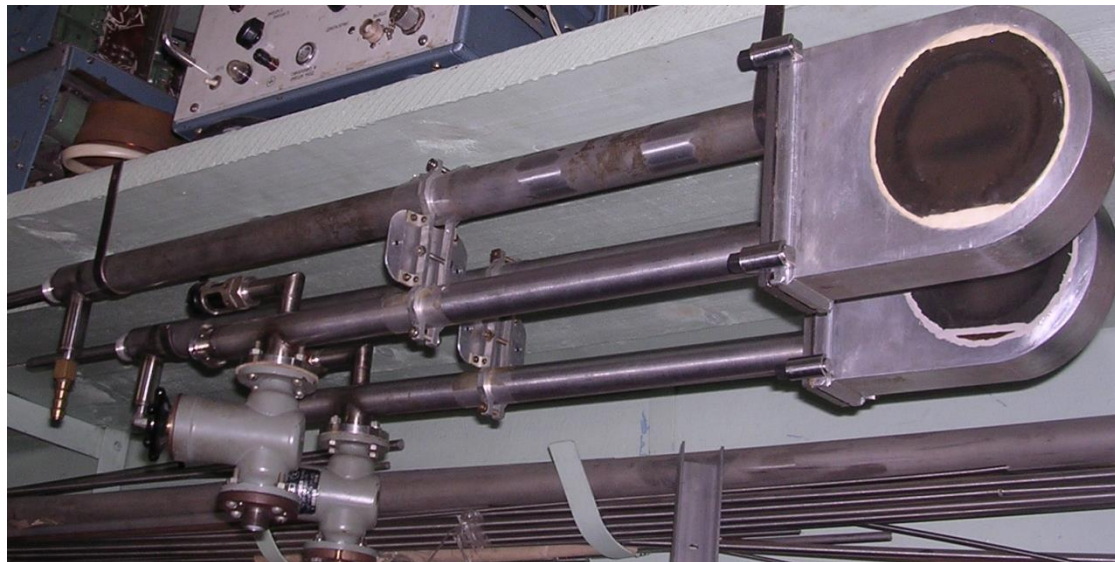


Рис. Криостат и размещение образца в криостате для μ SR-исследований. 1 и 2 (3 и 4)– входное и выходное горячие (холодные) окна соответственно; 5 – корпус криостата; 6 – камера криостата из бериллиевой бронзы; 7 – оправа для крепления образца.



Измерения проводились в трех режимах охлаждения (нагрева) образцов:

Первый режим (RUN1) представлял собой охлаждение образца от температуры $T \approx 290K$ до $T = 41K$ с шагом $\Delta T \approx 5K-10K$ с остановками в промежуточных температурных точках, в которых проводился набор статистики в течение двух часов в режиме стабилизации температуры. Затем относительно быстрое охлаждение (~ 1 час) от температуры $41K$ до $15K$; после этого производилось пошаговое нагревание образца ($\Delta T \approx 2.5K$) с набором статистики в каждой промежуточной точке со стабилизацией температуры до конечной температуры $T = 40K$. **В таком режиме охлаждения были исследованы оба образца.**

Второй режим (RUN2) представлял собой быстрое (~ 1 час) охлаждение от температуры $T = 290K$ до $T = 15K$ с шагом $2.5K$, после чего начинался процесс нагревания с остановками в заданных точках для набора статистики (~ 6 часов на каждую температурную точку). **В этом режиме исследовался только образец ЕСМО.**

Третий режим (RUN3) состоял в том, что осуществлялось быстрое охлаждение образца до температуры $\sim 70K$ (~ 1 час), после чего производили пошаговое понижение температуры с шагом $\Delta T = 5K$ с остановками в заданных температурных точках для набора статистики; время экспозиции составляло примерно два часа на каждую температурную точку. Таким способом охладили образец до температуры $T = 15K$. Затем проводили пошаговое нагревание образца от температуры $T = 17.5K$ до конечной температуры $T \approx 75K$ с шагом $\Delta T = 5K$ с набором статистики в промежуточных температурных точках с экспозицией примерно два часа на точку. **В данном режиме был исследован только образец ЕСМО.**

В процессе эксперимента измерялись временные спектры позитронов от распада мюонов, остановившихся в исследуемых образцах. Измерения спектров производились в двух временных интервалах (10 мкс и 1.1 мкс) с ценой деления ~ 5 нс/канал и ~ 0.8 нс/канал соответственно. Временные спектры описывались следующим выражением:

$$N_e(t) = N_0 \cdot \exp(-t/\tau_\mu) [1 + a_s \cdot G_s(t) + a_b \cdot G_b(t)] + B, \quad (1)$$

где N_0 – нормировочная константа,

τ_μ – время жизни мюона,

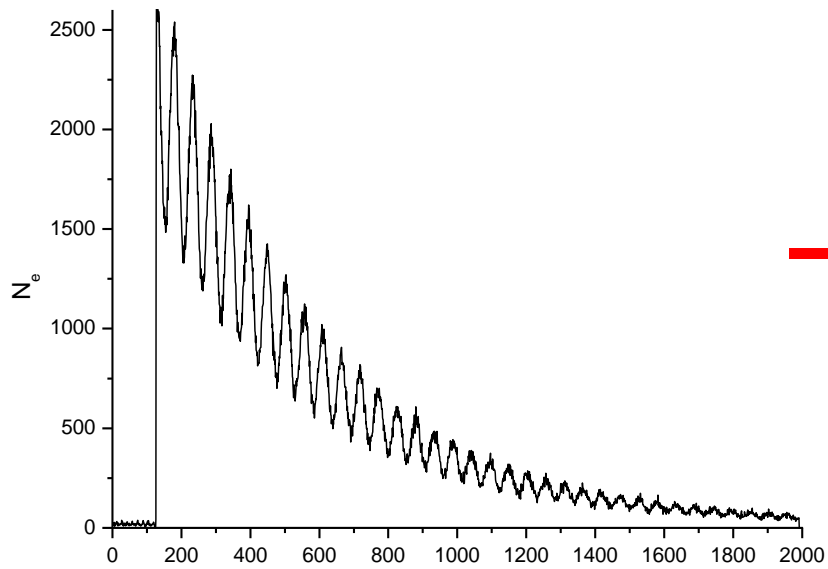
a_s и a_b – парциальные асимметрии позитронов распада мюонов, остановившихся в образце и в конструктивных элементах установки соответственно,

$G_s(t)$ и $G_b(t)$ – соответствующие функции релаксации поляризации мюонов,

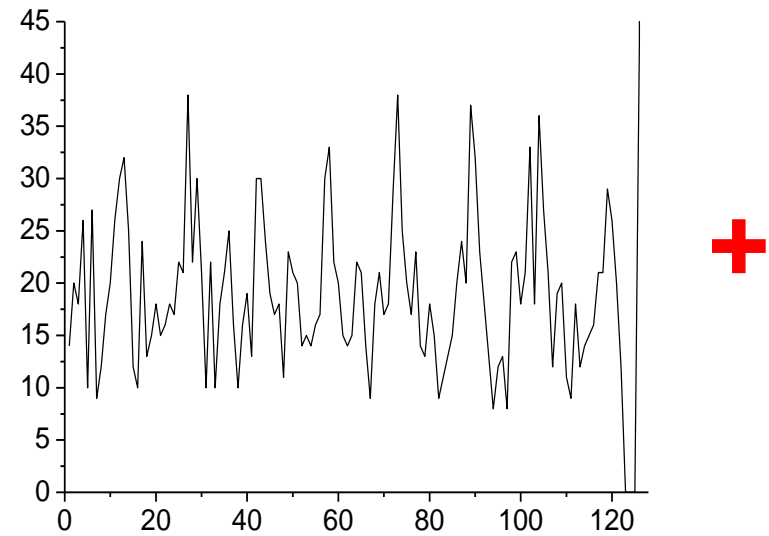
B – фон случайных совпадений. *(Величина и временная структура фона случайных совпадений определяются из обработки начального участка временного спектра, предшествующего моменту остановки мюона в образце).*

Асимметрия a_b для каждого образца извлекаются из обработки временных спектров, измеренных во внешнем магнитном поле при температуре образцов ниже температуры Нееля ($T < T_N$). В этом случае наблюдаемая амплитуда частоты прецессии в заданном внешнем магнитном поле равна вкладу a_b в полную асимметрию. Из этой же обработки находится скорость релаксации поляризации мюонов λ_b , остановившихся в конструктивных элементах. При обработке спектров, измеренных в нулевых внешних магнитных полях, использован следующий вид функции релаксации фоновой компоненты: $G_b(t) = \exp(-\lambda_b \cdot t)$. Для исследуемых керамических образцов $a_b \approx 0.02$, в то время как полная асимметрия $a_F = a_s + a_b \approx 0.3$.

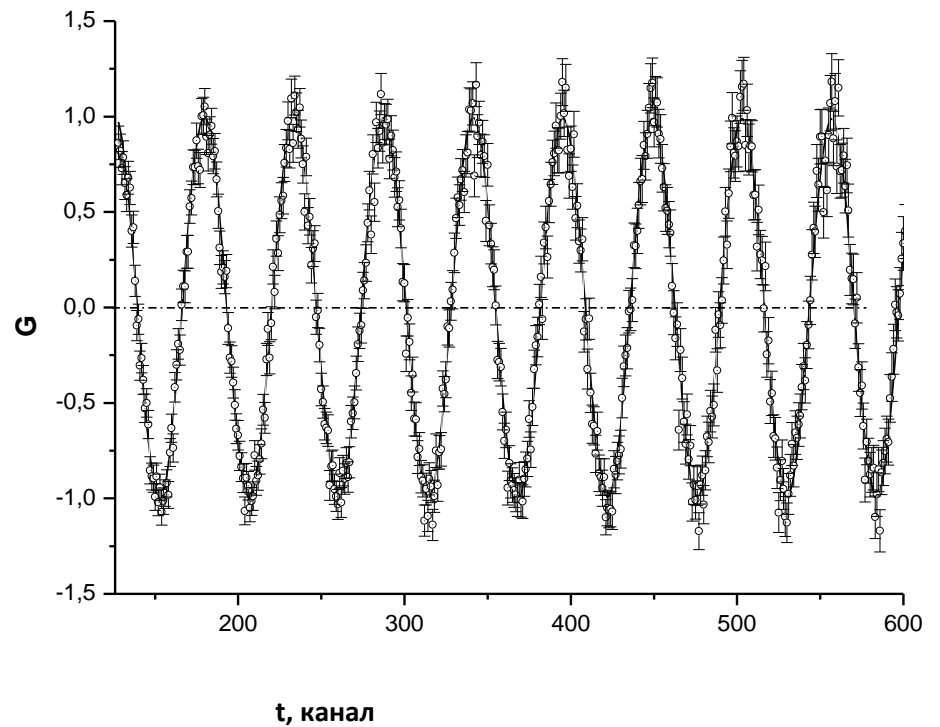
Асимметрия a_F равна амплитуде прецессии спина мюона во внешнем магнитном поле при температуре образца выше температуры Нееля T_N . Начальная асимметрия распада мюонов, остановившихся в образце, $a_s = a_F - a_b$ используется для перенормировки константы N_0 при обработке временных спектров, измеренных в нулевом внешнем магнитном поле. Наблюдаемая остаточная асимметрия a_s зависит от температуры образца.



t, канал



+ Восстановление на
 «кривую» распада
 мюона $\exp(-t/\tau_\mu)$ **=**



При обработке экспериментальных данных использовалось стандартное предположение о факторизации функции релаксации:

$$G_s(t) = G_{st}(t) \cdot G_d(t), \quad (2)$$

где $G_d(t) = \exp(-\lambda \cdot t)$ - динамическая функция релаксации, а $G_{st}(t)$ - статическая функция релаксации, вид и параметры которой определяются распределением локальных магнитных полей в зонах, предпочтительных для локализации мюона после его замедления в образце и завершения процесса его термализации. Такое представление функции релаксации $G_s(t)$ справедливо в том случае, если скорость динамической релаксации существенно меньше скорости релаксации, связанной с разбросом локальных статических магнитных полей. Что касается исследуемых образцов, то это условие выполняется практически во всем диапазоне температур, при которых проводились измерения.

Статическую функцию релаксации в случае изотропного ферромагнетика (антиферромагнетика) при отсутствии внешнего магнитного поля можно представить следующим образом:

$$G_{st}(t) = \sum_i a_i [1/3 + 2/3 \cos(\Omega_i t) \exp(-\Delta_i t)]. \quad (3)$$

Здесь a_i - парциальные амплитуды наблюдаемых частот прецессии спина мюона в локальном внутреннем магнитном поле. Частоты $\Omega_i = 2 \cdot \pi \cdot F_i$ и скорости релаксации Δ_i (дисперсия) зависят от величины локальных магнитных полей и от разброса этих полей в местах локализации мюона в образце. В квадратных скобках слагаемое $1/3$ соответствует доле продольной компоненты в ориентации внутренних магнитных полей относительно направления спина мюона, а слагаемое с коэффициентом $2/3$ соответствует доле поперечной компоненты в ориентации внутренних магнитных полей по отношению к направлению спина мюона.

Используя соотношения (1-3) и принимая во внимание условие $\lambda \ll \Delta$, из экспериментальных временных спектров можно определить температурные зависимости параметров функции релаксации поляризации мюонов, остановившихся в каждом образце.

Результаты и обсуждение.

На рис. 1 и 2 приведены остаточная асимметрия a_s , нормированная на a_0 , и скорость релаксации λ для образцов ЕСМО и ЕМО в режиме *RUN1*.

Скачок относительной остаточной асимметрии a_s/a_0 и максимум скорости релаксации λ соответствуют температуре установления дальнего магнитного порядка $T_N \approx 45\text{K}$ для образца ЕМО и $T_N \approx 42.5\text{K}$ для образца ЕСМО.

Следует отметить, что для обоих образцов ниже температуры магнитного упорядочения T_N наблюдается одинаковая потеря поляризации $\sim 20\%$ ($a_s/a_0 < 1/3$). Это быстрая деполяризация за время меньше 9 нс («мёртвое» время установки). Можно объяснить её за счёт спин-спинового взаимодействия мюона с поляризованными электронами вблизи ферромагнитных пар $\text{Mn}^{3+}\text{--Mn}^{4+}$, которые появляются в результате туннелирования e_g -электронов в соседнюю плоскость, и образованием ферромагнитных комплексов $\text{Mn}^{3+}\text{--Mn}^{3+}\text{--Mu}$ (Mu – связанное состояние μ^+e^-). В образце ЕСМО есть дополнительный канал образования ферромагнитных пар $\text{Mn}^{3+}\text{--Mn}^{4+}$ за счет электронного легирования, но модифицированный таким образом объем образца мал, и поэтому потери поляризации в обоих образцах практически равны.

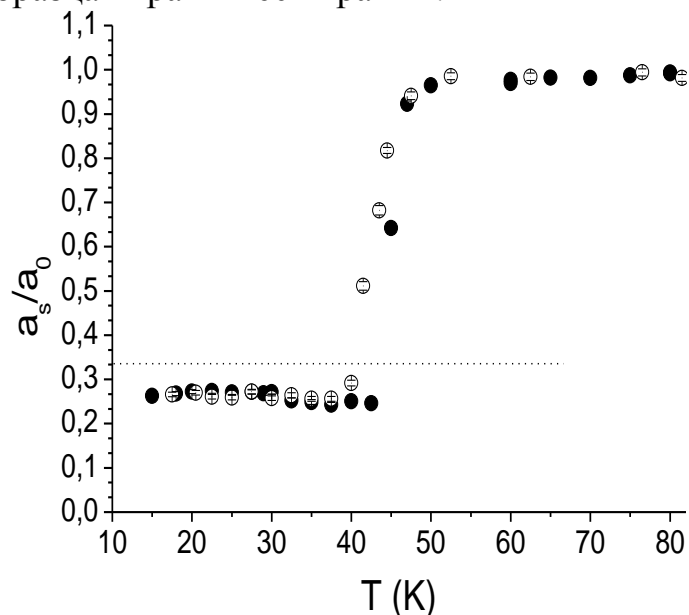


Рис.1. Температурная зависимость нормированной остаточной асимметрии для образцов ЕСМО (светлые точки) и ЕМО (тёмные точки) в режиме *RUN1*; пунктирной линией отмечен уровень $a_s/a_0=1/3$.

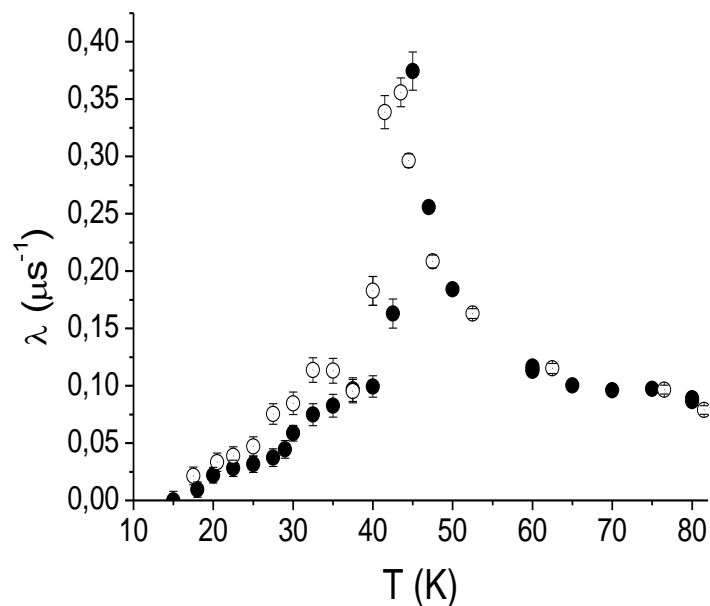


Рис.2. Температурная зависимость скорости релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образцах ЕСМО (светлые точки) и ЕМО (тёмные точки) в режиме *RUN1*.

На рис. 3 приведена скорость релаксации λ для ЕСМО в трех режимах охлаждения (нагрева). Для режима *RUN2* имеет место особенность («плечо») в области температур $25\text{K}–40\text{K}$ и для удовлетворительного описания временных спектров требуется ввести ещё один динамический член в *G*-функцию в виде $a_2 \cdot \exp(-\lambda_2 t)$:

$$G_s(t) = \exp(-\lambda_1 t) \cdot G_{st}(t) + a_2 \cdot \exp(-\lambda_2 t).$$

На рис. 4 для сравнения демонстрируется различный характер релаксации поляризации мюона при температурах внутри этого диапазона ($T=37.5\text{K}$) и вне его ($T=17.5\text{K}$ и $T=70\text{K}$). При этом для лучшего восприятия временные спектры были просуммированы по 10 каналов ($\sim 50\text{ нс}$), чтобы усреднить быстрые осцилляции от прецессии магнитного момента мюона во внутреннем магнитном поле образца ниже температуры магнитного упорядочения $T_N=42.5\text{K}$.

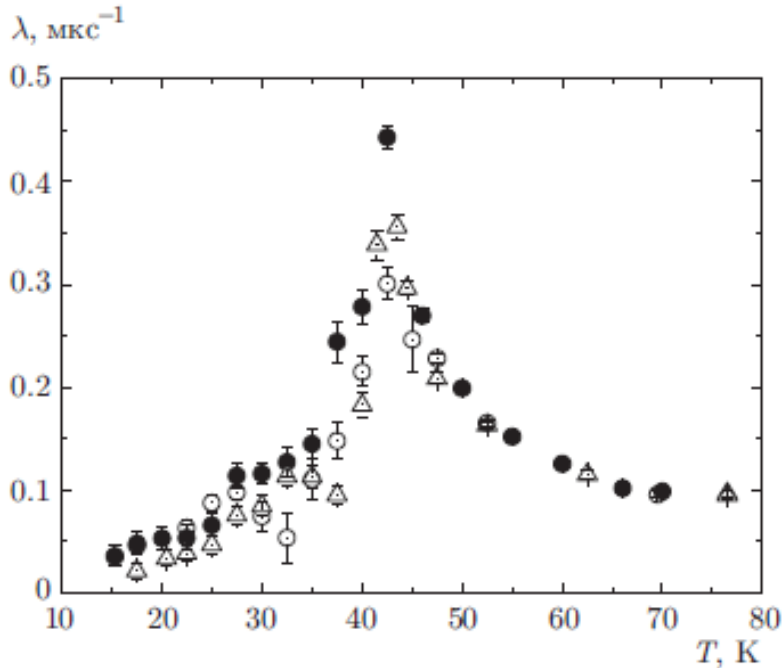


Рис. 3. Температурная зависимость скорости релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образце ЕСМО, для различных режимов охлаждения образца *RUN1* (треугольники), *RUN2* (светлые точки) и *RUN3* (темные точки)

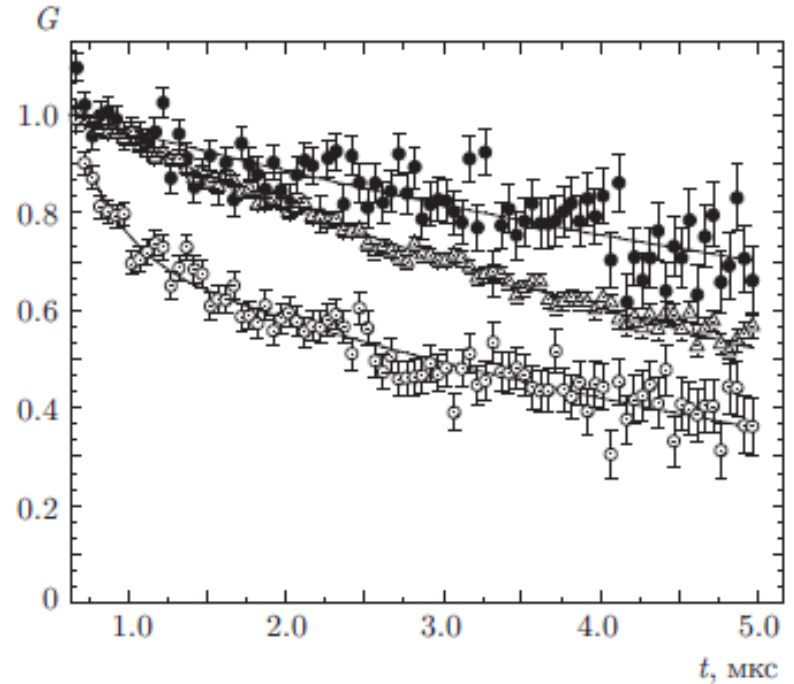


Рис. 4. Функции релаксации $G_d(t)$ при температурах $T = 70\text{ K}$ (треугольники), $T = 37.5\text{ K}$ (светлые точки) и $T = 17.5\text{ K}$ (темные точки) в режиме *RUN2*

На рис. 5 видно, что параметр λ_2 на порядок больше параметра λ_1 , который отвечает за медленную релаксацию поляризации.

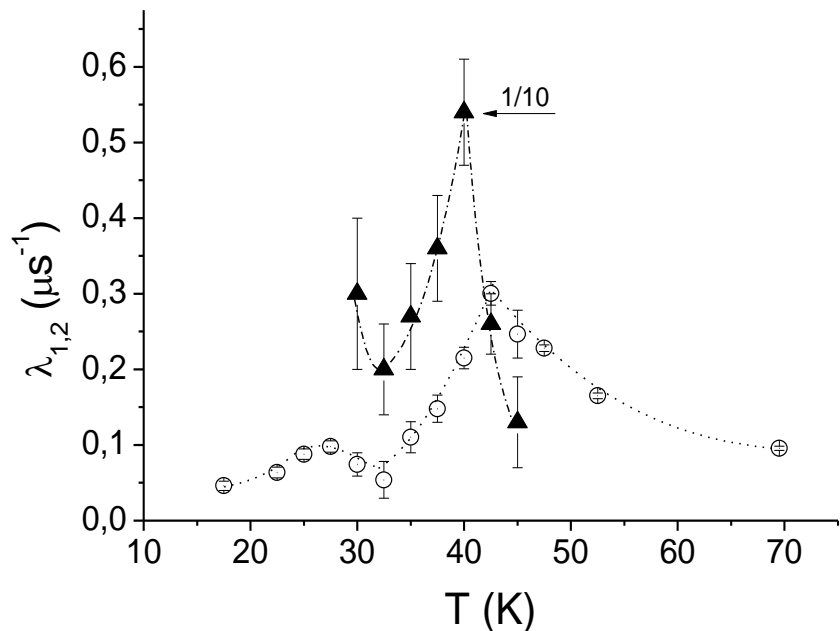


Рис. 5. Эффект расслоения образца ЕСМО по скоростям релаксации поляризации мюонов в режиме измерения *RUN2*; светлые точки- медленно релаксирующая компонента (λ_1), треугольники- быстро релаксирующая компонента (отложена величина $\lambda_2/10$).

Какова доля мюонов, остановившихся в области со столь большой динамикой и нулевым средним магнитным полем за время наблюдения показано на рис. 6

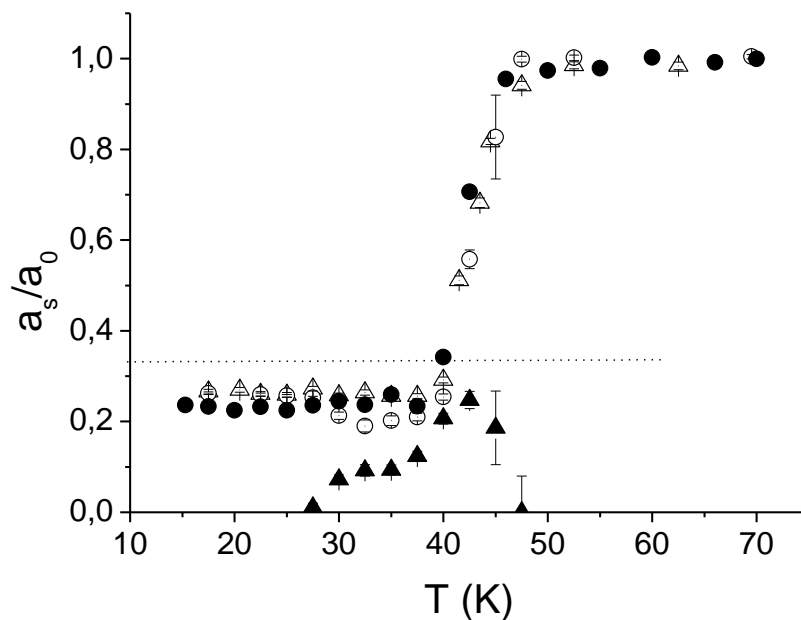
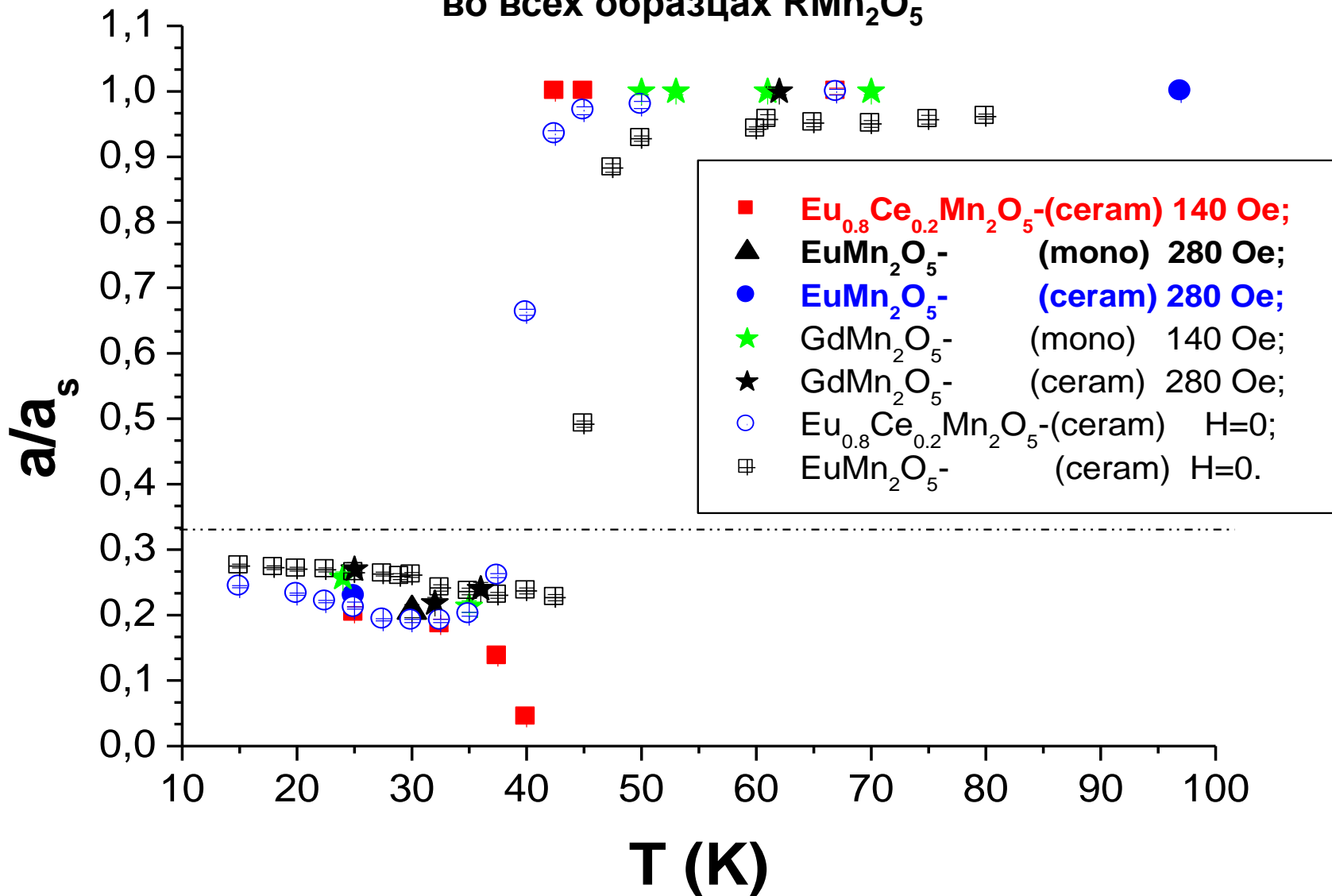


Рис. 6. Температурные зависимости нормированной остаточной асимметрии для образца ЕСМО; *RUN1*- светлые треугольники; *RUN3* - тёмные точки; *RUN2*- (светлые точки - медленно релаксирующая компонента, тёмные треугольники - быстро релаксирующая компонента); пунктирной линией отмечен уровень $a_s/a_0=1/3$.

Перераспределение зарядовой плотности наблюдается
во всех образцах RMn_2O_5



Существенную разницу в температурном поведении параметров функции релаксации для образца ЕСМО в диапазоне $25\text{K}–40\text{K}$ в режимах $RUN1(RUN3)$ и $RUN2$ следует связывать с тем, как происходил процесс охлаждения (нагрева) образца: в режимах $RUN1$ и $RUN3$ точка фазового перехода при температуре $T_N=42.5\text{K}$ проходила медленно, в то время как в режиме $RUN2$ она была пройдена быстро. Как следствие, имеет место заметное различие функций релаксации $G(t)$ в области температур $25\text{K}–45\text{K}$.

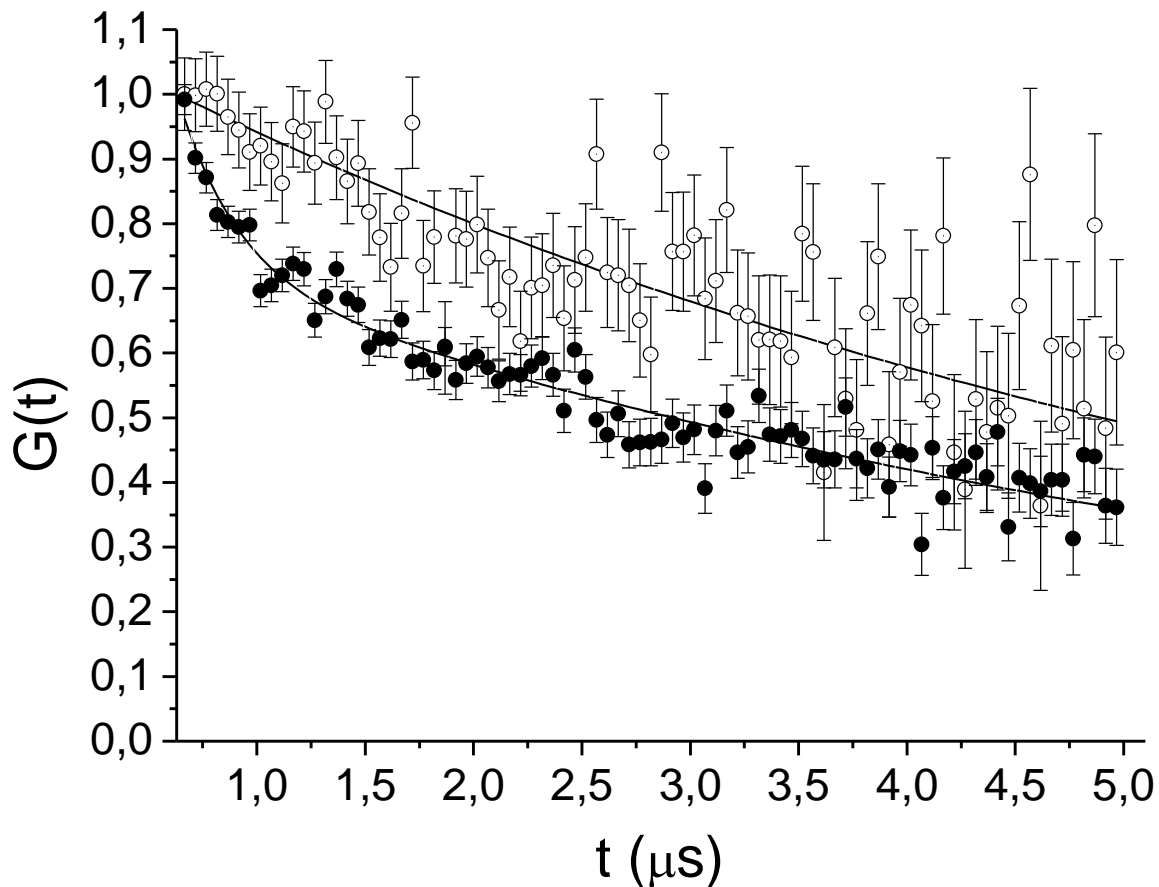


Рис. 7. Функции релаксации $G(t)$ при температуре $T=37.5\text{ K}$ в режимах $RUN1$ (светлые точки) и $RUN2$ (темные точки).

Частота прецессии спина мюона $\Omega_i = 2 \cdot \pi \cdot F_i$ пропорциональна среднему магнитному полю $B_i = \Omega_i / \gamma$ в месте локализации мюона (здесь $\gamma = 13.5544$ кГц/Гс – гиромагнитное отношение для мюона).

Частота F_1 не зависит от температуры в пределах ошибок. Из-за туннелирования электронов в каждой плоскости расположения ионов Mn появляются пары ионов $Mn^{3+}-Mn^{4+}$, которые становятся ферромагнитными в результате процесса двойного обмена электроном между этими ионами. Однако, ферромагнитное упорядочение этих пар отсутствует, и поэтому локальное магнитное поле вблизи этих пар не зависит от температуры за исключением области вблизи антиферромагнитного перехода.

Частота F_2 увеличивается с понижением температуры по закону Кюри-Вейса $F_2 \sim (1 - T/T_N)^\beta$, $T_N = 42.5$ K со степенным коэффициентом $\beta = 0.29 \pm 0.02$, который заметно отличается от аналогичного параметра $\beta = 0.39 \pm 0.01$, определенного для образца ЕМО и характерного для гейзенберговских антиферромагнетиков.

Существенное отличие коэффициента β в ЕСМО по сравнению с ЕМО свидетельствует о различии в температурном поведении их магнитных подсистем. Допирование образца приводит к тому, что антиферромагнитное упорядочение исходной матрицы в ЕСМО оказывается сильнее фрустрировано по сравнению с ЕМО. Это обстоятельство приводит к различию критических индексов для частот прецессии спинов мюона для основной матрицы ЕСМО и ЕМО.

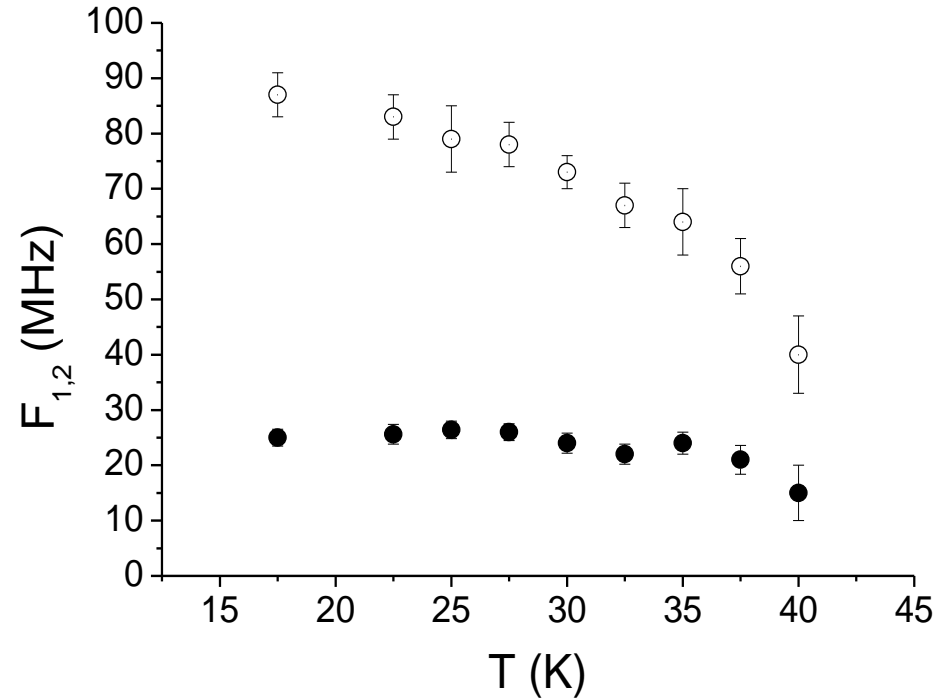


Рис. 8. Температурная зависимость двух наблюдаемых частот прецессии спина мюона для образца ЕСМО, измеренная в режиме RUN2 (F_1 – тёмные точки, F_2 – светлые точки).

В температурном диапазоне 30К–40К доли частот F_1 и F_2 и их дисперсии примерно равны, т.е. $a_1/a_0 \approx a_2/a_0$ и $\Delta_1 \approx \Delta_2$. Но при температурах ниже 30К, вклады a_1 и a_2 и соответствующие дисперсии Δ_1 и Δ_2 заметно различаются (рис. 9 и 10).

Отметим, что при приближении к 30К интенсивности ферромагнитных резонансов от слоев 1D-сверхрешеток в легированном кристалле резко падали [JETP Lett. **95**, 386 (2012), Письма в ЖЭТФ **91**, 561 (2010)], а также изменялся знак магнитосопротивления [Phys.Cond.Matter **23**, 456003 (2011)]. Это связывалось с изменением концентрации носителей заряда в слоях сверхрешеток при изменении характера преобладающей проводимости от туннельной к прыжковой.

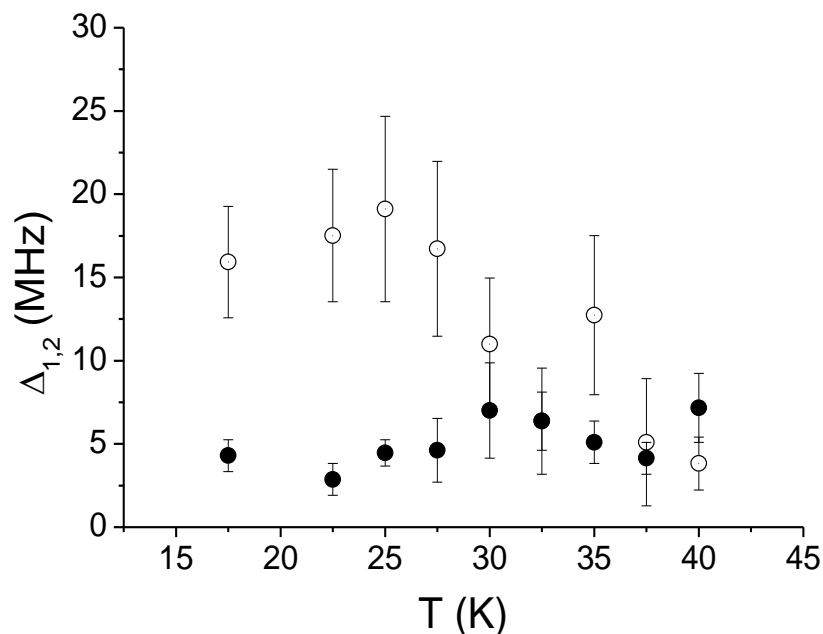


Рис.9. Температурная зависимость дисперсий, наблюдаемых двух частот прецессии спина мюона для образца ЕСМО, измеренная в режиме RUN2 (Δ_1 – светлые точки, Δ_2 – тёмные точки).

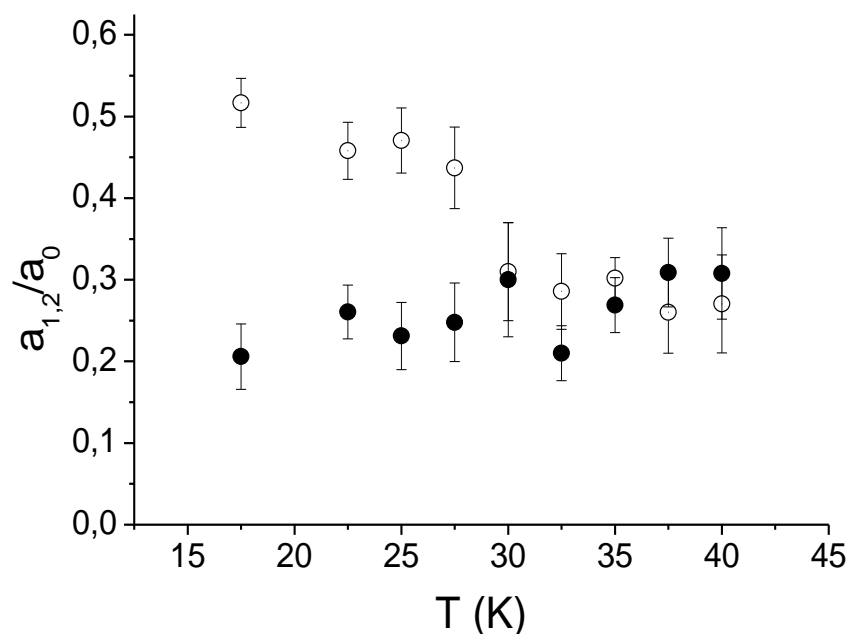


Рис.10. Парциальные амплитуды частот прецессии спина мюона для образца ЕСМО, измеренные в режиме RUN2 (a_1/a_0 – светлые точки, a_2/a_0 – тёмные точки).

Выводы:

Проведено сравнительное изучение релаксации поляризации мюонов в керамических образцах ЕМО и ЕСМО в одинаковых условиях охлаждения и нагревания (*RUNI*). Оказалось, что допирование образца приводит к незначительному сдвигу температуры магнитного фазового перехода ($T_N=45K$ для ЕМО и $T_N=42.5K$ для ЕСМО).

В обоих образцах обнаружены близкие по величине (~20%) быстрые потери поляризации мюонов в области температур ниже температуры магнитного упорядочения T_N . Этот эффект обусловлен появлением ферромагнитных пар ионов ($Mn^{3+}+Mn^{4+}$) в антиферромагнитной матрице и механизмом образования ферромагнитных комплексов ($Mn^{4+}+Mn^{4+}+Mu$). Появление примесных ионов (Mn^{3+}) в плоскости ионов (Mn^{4+}) возможно из-за электронного легирования, с одной стороны, и за счёт туннелирования e_g -электронов из плоскости (Mn^{3+}) в плоскость (Mn^{4+}), причём во втором случае примесные ионы появляются в обеих плоскостях.

Для образца ЕСМО обнаружено различие в температурном поведении релаксации поляризации мюонов при разных способах охлаждения и нагревания в области несоизмерной фазы (25K–42K). Появление фазы с быстрой релаксацией в этой области имеет место только в режиме быстрого охлаждения до температур ниже температуры магнитного упорядочения и может быть связано с возникновением 1D-сверхрешеток и чередующихся ферромагнитных и проводящих слоев.

В структуре функции релаксации поляризации мюонов для образца ЕСМО наблюдаются две частоты прецессии магнитного момента мюона во внутреннем магнитном поле. Температурная зависимость высокой частоты следует закону Кюри–Вейса с показателем $\beta=0.29\pm 0.02$, отличным от значения $\beta=0.39$, характерного для 3D-магнетиков гейзенберговского типа, и является следствием допирования образца и сильной фрустрации его структуры. Независимость низкой частоты от температуры обусловлена наличием одиночных ферромагнитных пар ионов $Mn^{3+}-Mn^{4+}$.

Спасибо за внимание!!!