

*Краткие сообщения*

## Магнитное состояние манганитного наноконпаунда

### $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$

В.А. Сиренко, А.И. Рыкова, А.В. Еременко

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины*

*пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина*

E-mail: eremenko@ilt.kharkov.ua

andrerem@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 30 мая 2013 г.

Проведен сравнительный анализ литературных данных, посвященных исследованию температурных зависимостей намагниченности  $M(T)$  различных манганитов и соединения  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$ . Отметим, что результаты измерений при охлаждении в магнитном поле и без него совпадают лишь в области выше температуры расщепления  $T^*$ . Эта температура зависит от напряженности магнитного поля, при котором измерены зависимости  $M(T)$ . Для всех исследованных керамических образцов сравнивалось относительное изменение величины  $T^*$ , которое описывается степенной функцией с показателем степени меньше 1, что характерно для спинового стекла. Исключение составляет  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$ , состоящий из частиц размером около 70 нм. Для данного манганита поведение величины  $[T^*(H) - T^*(0)]/T^*(H)$  подобно поведению аналогичной величины для суперпарамагнетика со слабым взаимодействием.

Проведено порівняльний аналіз літературних даних, які присвячені дослідженню температурних залежностей намагніченості  $M(T)$  різних манганітів та сполучення  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$ . Зазначимо, що результати вимірювань при охолодженні в магнітному полі і без нього збігаються лише в області вище температури розщеплення  $T^*$ . Ця температура залежить від напруженості магнітного поля, при якому виміряно залежності  $M(T)$ . Для всіх досліджених керамічних зразків порівнювалася відносна зміна величини  $T^*$ , яка описується ступеневою функцією з показником ступеня менше 1, що характерно для спінового скла. Виняток становить  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$ , який складається з частинок розміром близько 70 нм. Для даного манганіта поведінка величини  $[T^*(H) - T^*(0)]/T^*(H)$  подібна до поведінки аналогічної величини для суперпарамагнетика зі слабкою взаємодією.

PACS: 75.50.Lk Спиновые стекла и другие неупорядоченные магнетики;

**75.30.-m** Характерные свойства магнитоупорядоченных материалов;

75.47. Lx Магнитные оксиды.

Ключевые слова: манганит, наноконпаунд, температура расщепления, спиновое стекло.

На сегодняшний день физические свойства манганитов исследуются достаточно эффективно. Наличие в данных соединениях эффекта колоссального магнитосопротивления [1–4] и, соответственно, возможность практического применения вызывает постоянный интерес к их изучению.

Кроме того, необходимо отметить, что магнитные свойства манганитов достаточно уникальны, это обусловлено формированием сложных структур за счет характерной для данных веществ взаимосвязи между различного типа упорядочениями — орбитальным,

зарядовым и магнитным [5–10]. Для манганитов присутствует конкуренция между двойным обменным ферромагнитным и антиферромагнитным суперобменным взаимодействиями [11,12], что приводит к необычным магнитным состояниям, например возможно возникновение состояний, подобных спиновому стеклу. Для установления наличия такого состояния в манганитах сейчас экспериментально изучаются динамика и кинетика магнитных свойств [13–17]. В частности, речь идет о медленных релаксационных процессах при перемагничивании и частотной зависимости динамиче-

Таблица 1. Характеристические температуры соединений манганитов с различным структурным состоянием

Соединение	Состояние образца	$\Theta$ , К	$T_0^*$ , К	Ссылка
$\text{Nd}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$	керамика	70	100	[26]
$\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$	керамика	110,5	110	[20]
$\text{Pr}_{0,4}\text{Bi}_{0,3}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$	керамика	44	44	[25]
$\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$	наноконпаунд	260	280	[27]

Примечание:  $\Theta$  — температура Кюри–Вейсса, определялась линейной экстраполяцией температурной зависимости обратной магнитной восприимчивости  $\chi^{-1}(T)$  в парамагнитной области,  $T_0^*$  — температура расщепления в нулевом магнитном поле.

ской восприимчивости. Однако чаще всего для анализа используют экспериментальные данные по температурным зависимостям намагниченности в постоянном магнитном поле при различных режимах охлаждения манганитного образца: в магнитном поле (field cooled (FC)) и в нулевом (zero field cooled (ZFC)). Оказывается [18–30], что температурные зависимости намагниченности  $M$ , измеренные в FC и ZFC режимах, совпадают лишь в области высоких температур, а ниже определенной температуры, так называемой температуры «расщепления»  $T^*$ , кривые  $M_{ZFC}(T)$  и  $M_{FC}(T)$  расходятся. Данная величина зависит от напряженности магнитного поля, при котором проводятся измерения. Такое поведение характерно как для спиновых стекол [18,19], так и для фазово-сегрегированных систем [20,21], но при этом зависимость  $T^*(H)$  для каждого случая индивидуальна.

В настоящей работе нами использован анализ зависимости  $T^*(H)$ , чтобы выяснить, какое магнитное состояние реализуется в манганитном наноконпаунде  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$ , магнитные свойства которого изучены ранее [27,31,32]. Структура исследуемого образца манганитового наноконпаунда состоит из зерен размером около 70 нм [31]. Полученная нами зависимость  $T^*(H)$  для  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$  сопоставлялась с поведением температуры «расщепления» керамических манганитов. Как будет видно в дальнейшем, она существенно отличается.

Чтобы провести сравнение полученных результатов для  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$  с магнитными свойствами обычных керамических образцов манганитов, рассмотрим зависимость от напряженности внешнего магнитного поля не абсолютного значения  $T^*(H)$ , а изменение относительной величины  $[T^*(0) - T^*(H)]/T^*(0)$ . Значение  $T^*(0)$  находится экстраполяцией  $T^*(H)$  к нулевому значению  $H$ .

Зависимости  $[T^*(0) - T^*(H)]/T^*(0)$  от напряженности магнитного поля  $H$  для исследуемого наноконпаунда и ряда керамических образцов манганитов различного состава представлены на рис. 1. (В табл. 1 приведен список рассматриваемых образцов и их характеристики.) Видно, что кривая для  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$  отличается от кривых для керамических образцов.

Еще более отчетливо это отличие выражено на рис. 2, на котором приведены зависимости  $[T^*(0) - T^*(H)]/T^*(H)$  от напряженности магнитного поля  $H$ . Если для керамических образцов представленные зависимости можно описать степенной функцией, предсказанной в теоретических работах для различных моделей спинового стекла, с показателем степени меньше единицы [33–35], то в случае наноконпаунда это не так. В связи с этим попробуем описать магнитные свойства наноконпаунда иначе.

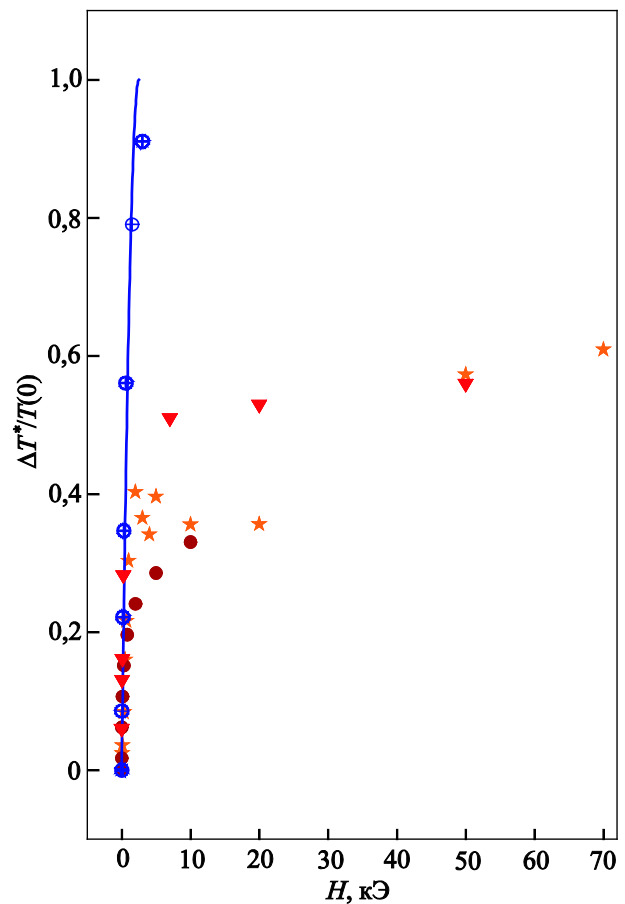


Рис. 1. Зависимость изменения температуры «расщепления» ZFC и FC температурных зависимостей намагниченности от напряженности магнитного поля. Сплошная линия — расчет по формуле (1),  $H_0 = 2,5$  кЭ.  $\text{Nd}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$  (▼);  $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  (★);  $\text{Pr}_{0,4}\text{Bi}_{0,3}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  (●);  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$  (⊕).

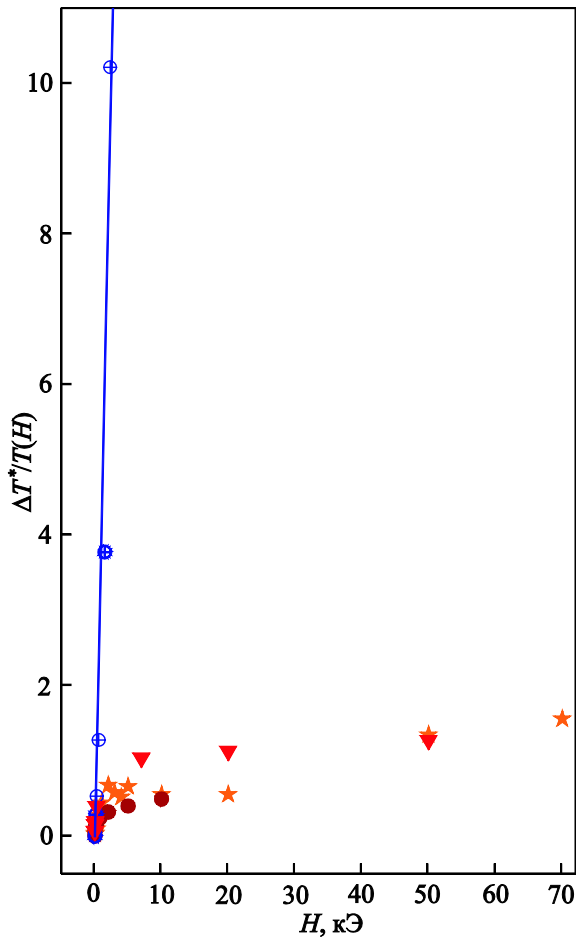


Рис. 2. Зависимость изменения температуры «расщепления» ZFC и FC температурных зависимостей намагниченности от напряженности магнитного поля. Сплошная линия — расчет по формуле (2),  $H_0 = 0,31$  кЭ.  $\text{Nd}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$  (▼);  $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  (★);  $\text{Pr}_{0,4}\text{Bi}_{0,3}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  (●);  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$  (⊕).

В теоретических работах, рассматривающих магнитные свойства ансамбля суперпарамагнитных частиц, получены формулы, которые легко преобразуются к выражениям, удобным для сравнения с экспериментом:

$$[T^*(0) - T^*(H)]/T^*(0) = (2 - H/H_0)H/H_0; \quad (1)$$

$$[T^*(0) - T^*(H)]/T^*(H) = H/H_0. \quad (2)$$

Формула (1) соответствует ансамблю невзаимодействующих суперпарамагнитных частиц [36–38], а формула (2) — ансамблю взаимодействующих суперпарамагнитных частиц [37–41].

Сравнивая зависимости на рис. 1 и 2 с кривыми, рассчитанными по формулам (1) и (2), приходим к выводу, что наноконпаунд  $\text{La}_{0,8}\text{Mn}_{1,04}\text{O}_{3,5}$ , исследованный нами ранее [27], в магнитном отношении представляет собой, скорее всего, ансамбль слабодействующих суперпарамагнитных частиц. То же самое следует сказать о наноконпаунде, исследованном в работе [29].

Авторы искренне благодарят В.В. Еременко за постоянную поддержку и Е.Н. Хацько за полезные замечания.

1. A.P. Ramirez, *J. Phys. Condens. Matter* **9**, 8171 (1977).
2. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
3. L.P. Gorkov and V.Z. Kresin, *Phys. Rep.* **400**, 149 (2004).
4. E. Dagotto, *Science* **309**, 257 (2005).
5. S.F. Edwards and P.W. Anderson, *J. Phys. F* **5**, 965 (1975).
6. B. Sherrington and S. Kirkpatrick, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1792 (1975).
7. J.M. De Teresa, M.R. Ibarra, J. Garsia, J. Blasco, C. Ritter, P.A. Agrabel, C. Marquina, and A. del Moral, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3392 (1996).
8. A. Sundaresan, A. Maignan, and B. Ravean, *Phys. Rev. B* **55**, 5596 (1997).
9. T. Terai, T. Kakeshita, T. Fukuda, T. Saburi, N. Takamoto, K. Kindo, and M. Honda, *Phys. Rev. B* **58**, 14908 (1998).
10. A. Maignon, A. Sundaresan, U.V. Varadaraj, and B. Ravean, *J. Magn. Magn. Mater.* **184**, 83 (1998).
11. K.R. Poeppelmeier, M.E. Leonowicz, and J.M. Longo, *J. Solid State Chem.* **44**, 89 (1982).
12. I.O. Troyanchuk, D.D. Khalyavin, S.V. Trukhanov, G.N. Chobot, and H. Szymczak, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **70**, 583 (1999).
13. E. Dagotto, *Nanoscale Phase Separation and Colossal Magnetoresistance*, Springer Series in Solid State Phys., Springer Verlag, Berlin (2003).
14. F. Rivadulla, M.A. Lopez-Quintela, and J. Rivas, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 167206 (2004).
15. D. Niebieskikwiat, J. Tao, J.M. Zno, and M.B. Salamon, *Phys. Rev. B* **78**, 014434 (2008).
16. J. Dho, W.S. Kim, and N.H. Hur, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 027202 (2002).
17. А.Б. Безносков, Е.Л. Фертман, В.А. Десненко, *ФНТ* **34**, 790 (2008) [*Low Temp. Phys.* **34**, 624 (2008)].
18. J.M. Mydosh, *Spin-Glasses: An Experimental Introduction*, Taylor and Francis, London (1993).
19. S. Chikuzami, *Physics of Ferromagnetism*, Clarendon, Oxford (1997).
20. I.G. Deac, J.F. Mitchell, and P. Schiffer, *Phys. Rep. B* **63**, 172408 (2001).
21. Y. Wang and H.J. Fan, *Phys. Rep. B* **83**, 244409 (2011).
22. V.G. Prokhorov, G.G. Kaminsky, J.M. Kim, T.W. Eom, J.S. Park, Y.P. Lee, V.L. Sretchnikov, G.G. Levchenko, A.V. Paschenko, Yu.V. Medvedev, Yu.M. Nikolaenko, G.V. Bukin, and V.A. Khokhlov, *Fiz. Nizk. Temp.* **37**, 141 (2011) [*Low Temp. Phys.* **37**, 112 (2011)].
23. С.В. Труханов, А.В. Труханов, А.Н. Васильев, А.М. Балагура, Г. Шимчак, *ЖЭТФ* **140**, 942 (2011).
24. В.А. Хохлов, А.Ю. Прохоров, Ю.В. Медведев, Ю.М. Николаенко, А. Мухин, В.П. Пашенко, П.П. Левченко, В.Г. Прохоров, Н.И. Солин, V.L. Svetchnikov, J.S. Park, J.B. Kim, and G.Y.P. Lee, *ЖТФ* **81**, 95 (2011).

25. В.А. Десненко, А.И. Рыкова, В.А. Сиренко, А.В. Федорченко, А.С. Черный, Е.Н. Хацько, А.В. Еременко, *ФНТ* **38**, 261 (2012) [*Low Temp. Phys.* **38**, 206 (2012)].
26. E. Fertman, S. Dolya, V. Desnenko, A. Beznosov, M. Kajnakova, and A. Feher, *J. Magn. Magn. Mater.* **324**, 3213 (2012).
27. А.И. Рыкова, А.В. Терехов, А.С. Черный, Е.Н. Хацько, А.В. Еременко, А. Залеский, *ФНТ* **38**, 674 (2012) [*Low Temp. Phys.* **38**, 529 (2012)].
28. И.К. Галетич, А.В. Еременко, В.А. Пашенко, В.А. Сиренко, В.В. Брук, *ФНТ* **38**, 684 (2012) [*Low Temp. Phys.* **38**, 537 (2012)].
29. V. Markovich, I. Fita, A. Wisniewski, G. Jung, D. Mogilyansky, R. Puzniak, L. Titelman, and G. Gorodetsky, *Phys. Rev. B* **81**, 134440 (2010).
30. Y. Sun, M.V. Salamon, K. Garnier, and R.S. Aherbaok, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 167206 (2003).
31. В.М. Дмитриев, Е.П. Хлыбов, Д.С. Кондрашов, А.Д. Шевченко, В.Н. Уваров, *ФНТ* **34**, 956 (2008) [*Low Temp. Phys.* **34**, 757 (2008)].
32. А.И. Рыкова, А.С. Черный, Е.Н. Хацько, А.Д. Шевченко, В.Н. Уваров, *ФНТ* **34**, 1163 (2008) [*Low Temp. Phys.* **34**, 918 (2008)].
33. J.R.L. de Almeida and D.J. Thouless, *J. Phys. A* **11**, 983 (1978).
34. D.S. Fisher and A.D. Huse, *Phys. Rev. B* **38**, 373 (1988).
35. M. Gabay and G. Toulouse, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 201(1981).
36. R.W. Chantel and P. Wohlfarth, *Phys. Status Solidi A* **91**, 619 (1985).
37. R. Skomski, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, 841 (2003).
38. J. Du, B. Zhang, R.K. Zheng, and X.X. Zhang, *Phys. Rev. B* **75**, 014415 (2007).
39. P. Allia, M. Coisson, P. Tiberto, F. Vinai, M. Knobel, M. Novak, and W.C. Nunes, *Phys. Rev. B* **64**, 014420 (2001).
40. O. Margeat M. Tran, M. Spasova, and M. Farle, *Phys. Rev. B* **75**, 134410 (2007).
41. P. Allia, F. Celegato, M. Coisson, A. Da Re, F. Ronconi, F. Spizzo, P. Tiberto, and F. Vinai, *J. Magn. Magn. Mater.* **290–291**, 580 (2005).

## Magnetic state of the manganite nanocompound $\text{La}_{0.8}\text{Mn}_{1.04}\text{O}_{3.5}$

V.A. Sirenko, A.I. Rykova, and A.V. Yeremenko

A comparative analysis of the literature experimental data of the study on temperature dependence of magnetization  $M(T)$  for different manganites and the compound  $\text{La}_{0.8}\text{Mn}_{1.04}\text{O}_{3.5}$  is provided. Note that the results of measurements under cooling in a magnetic field and without it are the same only in the region above splitting  $T^*$ . This temperature depends on the magnetic field strength at which the measurements as  $M(T)$  have been made. For all the ceramic samples compared was a relative change of  $T^*$  which is described by the power function with an exponent less than 1, what typical of a spin glass. The exception is  $\text{La}_{0.8}\text{Mn}_{1.04}\text{O}_{3.5}$ , which consists of particles of size 70 nm. The behavior of  $[T^*(H) - T^*(0)]/T^*(H)$  value for this manganite is similar to that of superparamagnet with weak interactions.

PACS: 75.50.Lk Spin glasses and other random magnets;

**75.30.-m** Intrinsic properties of magnetically ordered materials;

75.47.Lx Magnetic oxides.

Keywords: manganite, nanocompound, splitting temperature, spin glass.