

Универсальность линии необратимости намагниченности у систем с конкуренцией взаимодействий (манганиты, кобальтиты, ферриты)

В.А. Сиренко, В.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

Статья поступила в редакцию 13 марта 2014 г., опубликована онлайн 21 апреля 2014 г.

Проанализированы экспериментальные данные о температурных зависимостях намагниченности манганитов, кобальтитов и ферритов. Общей особенностью является необратимость намагниченности: ниже температуры T^* при фиксированной напряженности поля намагниченность различна при охлаждении в поле (M_{FC}) и вне его (M_{ZFC}). Показано, что для всех диспергированных образцов (нанокомпунд, нанопорошки) линия $T^*(H)$ универсальна и согласуется с теоретической линией Алмейда–Таулесса ($T^* \sim H^{2/3}$) во всем диапазоне магнитных полей. В случае монолитных образцов (монокристаллы, керамики) в сильных магнитных полях происходит переход к квадратичной зависимости $T^* \sim H^2$, соответствующей теории Габая–Тулуза. Это явление интерпретируется как спин-стекольный полиаморфизм.

Проанализовано результати експерименту щодо температурних залежностей намагнічування манганітів, кобальтітів та феритів. Спільна особливість полягає у необоротності намагніченості: нижче температури T^* при фіксованій напруженості магнітного поля намагніченість відрізняється за умов охолодження у полі (M_{FC}) та у його відсутності (M_{ZFC}). Показано, що для усіх диспергованих зразків (нанокомпунд, нанопорошки) лінія $T^*(H)$ є універсальною і відповідає теоретичній лінії Алмейда–Таулесса ($T^* \sim H^{2/3}$) в усьому діапазоні магнітних полів. У випадку монолітних зразків (монокристали, кераміки) у сильних магнітних полях має місце перехід до квадратичної залежності $T^* \sim H^2$, що відповідає теорії Габая–Тулуза. Це явище розглядається як спин-скляний поліаморфізм.

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

75.30.-c Магнитные свойства наноструктур.

Ключевые слова: спиновое стекло, полиаморфизм, оксиды переходных металлов.

Для окислов переходных металлов (манганитов, кобальтитов и ферритов) характерна конкуренция ферро- и антиферромагнитного обменных взаимодействий, что приводит к особенностям формирования их низкотемпературного магнитного состояния, в частности спинового стекла [1,2]. Для выяснения, реализуется ли такое состояние, чаще всего исследуется температурная зависимость намагниченности при различных условиях охлаждения: в магнитном поле с фиксированным значением его напряженности (field-cooled (FC)) и без поля (zero field cooled (ZFC)). Температурные зависимости намагниченности в ZFC и FC условиях совпадают лишь выше определенной температуры T^* , а ниже они «расщепляются». Полевая зависимость $T^*(H)$ есть линия необратимости (irreversibility line), которую трудно однозначно идентифицировать как критическую [3,4] или же как линию динамического кроссовера [5].

Проанализировав довольно большой объем литературных и экспериментальных данных о полевых зависимостях $T^*(H)$, мы в работе [6] высказали предположение, что переход от линии Алмейда–Таулесса (АТ) [7] к линии Габая–Тулуза (ГТ) [8] на H - T -диаграмме является разновидностью полиаморфизма [9] — спин-стекольным полиаморфизмом. Это явление для всех манганитов универсально и наблюдается как для монокристаллов, так и для керамик различного состава.

В настоящей работе нами предпринята попытка проанализировать зависимость $T^*(H)$ не только манганитов [6,10], но и кобальтитов [11,12], и ферритов [13,15].

Предполагая, что есть участки реальной зависимости $T^*(H)$, описываемые теоретическими АТ [7] и ГТ [8] линиями, мы экспериментальные результаты различных работ представили в координатах $T^*(H^{2/3})$ или $T^*(H^2)$, как показано на рис. 1 в качестве примера для

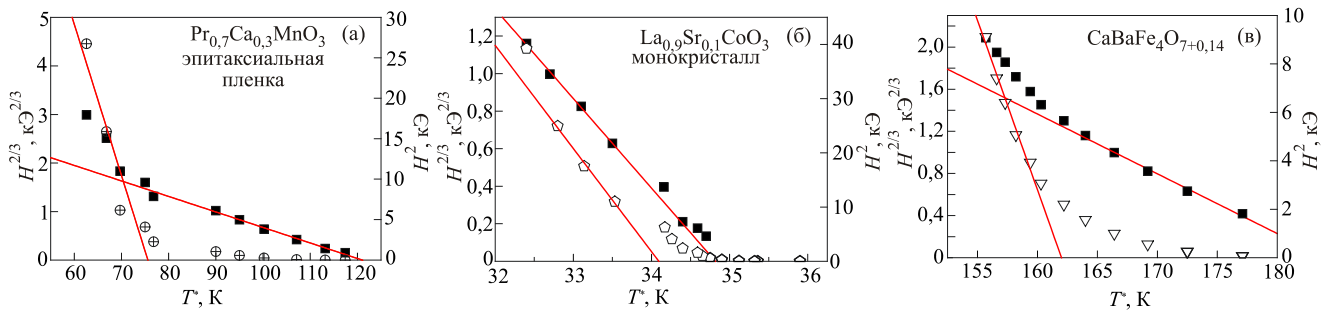


Рис. 1. Зависимость температуры необратимости T^* намагниченности от $H^{2/3}$ (левая шкала, (■)) и H^2 (правая шкала, (⊕)). H — напряженность магнитного поля: манганит (эпитаксиальная пленка) $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ [22] (а); кобальтит, монокристалл $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{CoO}_3$ [11] (б); феррит, керамика $\text{CaBaFe}_4\text{O}_{7+0.14}$ [13] (в). На рис. 1(а) и 1(б) T^* — температура, ниже которой разница ZFC и FC намагниченностей отличается от нуля. На рис. 1(в) зачерненные точки определены так же (авторы [11] называют определенную таким образом температуру T^* температурой сильной необратимости), а светлые точки определены как температура, при которой $(\partial\chi/\partial T) = 0$ (χ — магнитная восприимчивость), которую авторы [11] называют температурой слабой необратимости.

манганита, кобальтита и феррита. Линейные участки на графиках свидетельствуют о том, что в этих диапазонах напряженностей магнитного поля наблюдается либо АТ [7], либо ГТ [8] зависимость. Линейной экстраполяцией находим для каждого из исследованных объектов параметры T_{01}^* , H_{01} и T_{02}^* , H_{02} . В табл. 1 приведены значения этих параметров для манганитов, кобальтитов и ферритов, результаты исследования низкотемпературной намагниченности которых в режимах ZFC и FC нами взяты из литературных данных. В табл. 1 приведены ссылки на статьи, из которых взяты экспериментальные данные, и обозначения для них, используемые на графиках.

Далее рассмотрим следующие величины: $\Delta_1 = T^*(H) - T_{01}^*$ и $\Delta_2 = T^*(H) - T_{02}^*$.

На рис. 2 приведены данные о зависимости величины $\Delta_1/T^*(H)$ от приведенной напряженности магнитного поля H/H_{01} для манганитов, кобальтитов и ферритов. Резкое возрастание величины $\Delta_1/T^*(H)$ с ростом напряженности магнитного поля H/H_{01} наблюдается для манганитового наноконпаунда [10] и порошкообразных окислов железа [14]. Такое поведение характерно для температуры блокировки обычных суперпарамагнетиков, магнитные свойства которых определяются размером частиц и расстоянием между ними, а анизотропия суммарной намагниченности ин-

Таблица 1. Характеристики исследуемых соединений переходных металлов

Химическая Формула	Структурная морфология	T_{01}^* , К	H_{01} , кЭ	T_{02}^* , К	H_{02} , кЭ	Ссылка	Символ
LaMnO_{3+x}	монокристалл	127	4,8	55	68	[24]	★
$p\text{-La}_{0.8}\text{Mn}_{1.04}\text{O}_{3.5}$	наноконпаунд (70 нм)	280	21			[10]	⊕
$\text{La}_{0.23}\text{Ca}_{0.77}\text{MnO}_3$	нанопорошок (12 нм)	142	3,7			[25]	⊗
$\text{Pr}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$	нанопорошок (15,7) нм	221	1,5	155,4	1,28	[26]	+
$\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$	эпитаксиальная пленка (8,4 нм)	121	7,6	114	14,5	[22]	⊕
$\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$	керамика	120	7,75	51,5	17,5	[27]	⊗
$\text{Pr}_{0.4}\text{Bi}_{0.3}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$	керамика	43,1	16,6			[16]	⊕
$\text{Nd}_{0.52}\text{Sr}_{0.48}\text{MnO}_3$	эпитаксиальная пленка (60 нм)	170	2	44	152	[28]	▲
$\text{Nd}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$	керамика	97	1,77	48	158	[29]	▼
$\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{CoO}_3$	монокристалл	35	67,6	34	25,5	[11]	⊕
$\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{CoO}_3$	монокристалл	65,5	19,7	35,47	33,7	[12]	⊕
$\text{K}_{1-2x}\text{Co}_{1+x}[\text{Fe}(\text{CN})_6]_y\text{H}_2\text{O}$	порошок темный	12,1	2,74			[21]	▲
	фотовозбужденный	13,6	2,9			[21]	⊗
Fe_3O_4	нанопорошок	45	1,38	7,4	10	[14]	□
	ультрамелкий порошок	135	1,75			[15]	⊕
Fe_2O_3	нанопорошок спрессованный	234	0,63	101	1,82	[18]	◇
	нанопорошок неспрессованный	208	0,45	75	2,10	[18]	◆
BiFeO_3	эпитаксиальная пленка (300 нм)	145	28,5			[19]	○
	нанопорошок	66	4,12			[20]	▽
$\text{CaBaFe}_4\text{O}_{7+x}$	керамика	185	33,5	162	15	[13]	△

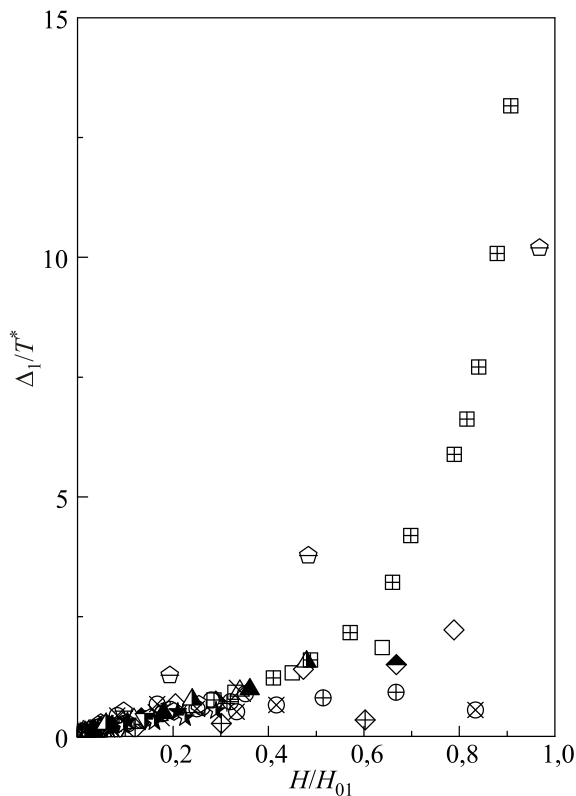


Рис. 2. Зависимость $\Delta_1/T^*(H)$ от напряженности приведенного магнитного поля H/H_{01} . Обозначения в таблице. Резкий рост у наноконпаунда и нанопорошков.

дуцируется внешним магнитным полем. Для монокристаллических образцов (монокристаллических, керамических) — манганитов, кобальтитов и ферритов — $\Delta_1/T^*(H)$ с ростом H/H_{01} возрастает гораздо медленнее (сублинейно). Кроме того, у монокристаллических образцов частотный сдвиг температуры максимума температурной зависимости динамической магнитной восприимчивости $\Phi = \Delta T_{\max}/T_{\max} \Delta \log_{10}(f)$ не превышает 0,02 [16], в то время как для суперпарамагнитных систем характерна величина $\Phi = 0,1-0,13$ [17]. Малая величина Φ характерна для спин-стекольных систем [1,2].

Зависимость Δ_1/T_{01}^* от напряженности магнитного поля H/H_{01} носит более общий характер. В слабых магнитных полях (рис. 3(а)) экспериментальные результаты как для сильно диспергированных (наноконпаунд, нанопорошок), так и для монокристаллических (монокристаллических, керамических) образцов независимо от химического состава (манганиты, кобальтиты, ферриты) описываются теорией де Алмейды–Таулесса [7], $\Delta_1/T_{01}^* \sim H^{2/3}$. Этот результат вызывает удивление, поскольку для исследованных систем более реалистичен гамильтониан Гайзенберга. В теории же де Алмейды–Таулесса [7] использован гамильтониан Изинга. По-видимому, случайный характер магнитной анизотропии приводит к тому, что при измерении намагниченности вдоль магнитного поля поперечные компо-

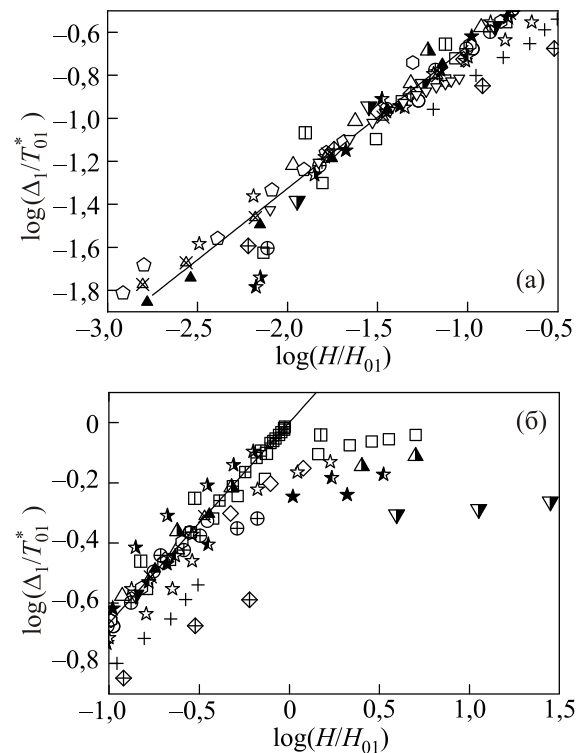


Рис. 3. Зависимость относительного изменения температуры необратимости намагниченности Δ_1/T_{01}^* от напряженности приведенного магнитного поля H/H_{01} . Обозначения в таблице. Область слабых магнитных полей (а). Область сильных магнитных полей (б). Прямая линия с наклоном 2/3 соответствует теоретической линии АТ [7] с показателем степени 2/3.

ненты взаимно компенсируются и система становится изингоподобной. В сильных же магнитных полях ($H > H_{01}$) (рис. 3(б)) у некоторых монокристаллических образцов, как и у полученных по особой технологии нанопорошков с существенным вкладом межчастичных взаимодействий [18,23,25,30,31], результаты отклоняются от линии АТ. В этой области полей экспериментальных данных немного. Все они могут быть уложены на линию ГТ [8] $\Delta_2/T_{02}^* \sim H^2$ при соответствующем подборе параметров T_{02}^* и H_{02} , как показано на рис. 1. Результаты для сильных магнитных полей приведены на рис. 4.

Резюмируя, отметим следующее.

1. Полевая зависимость температуры необратимости в области полей, не превышающих H_{01} , универсальна как для диспергированных (наноконпаунд, нанопорошки), так и для монокристаллических образцов (монокристаллы, керамика) независимо от их химического состава (манганиты, кобальтиты, ферриты) и описывается линией АТ [7].

2. В полях напряженностью $H > H_{01}$ для некоторых монокристаллических образцов наблюдается переход от АТ [7] к линии ГТ [8], которая универсальна для этой области полей.

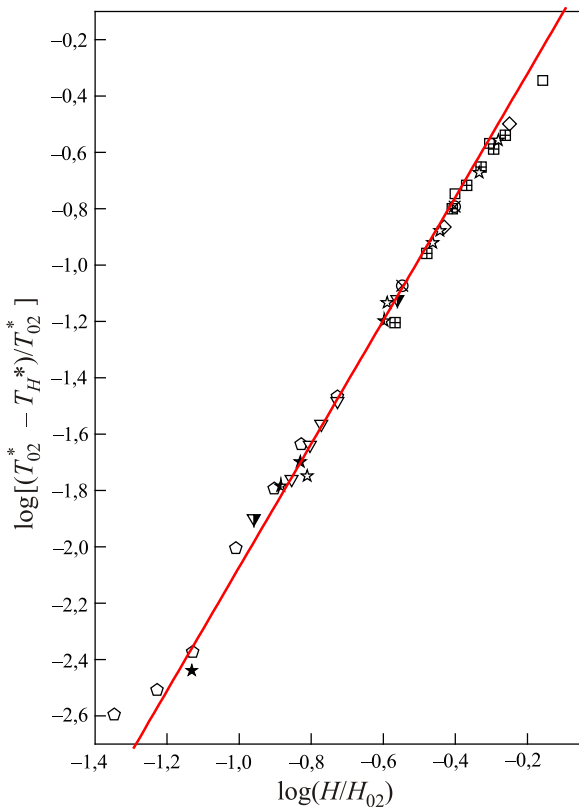


Рис. 4. Зависимость относительного изменения температуры необратимости намагниченности Δ_2/T_{02}^* от приведенной напряженности магнитного поля H/H_{02} . Прямая линия с наклоном 2 соответствует теоретической линии ГТ [8] с показателем степени 2. Обозначения в таблице.

3. Переход от линии АТ [7] к линии ГТ [8] интерпретируется как полиаморфный переход (спинстекольный полиаморфизм [6]).

Работа выполнена при финансовой поддержке Украинского фонда фундаментальных исследований (грант Ф54/252-2013).

1. K. Binder and A.P. Young, *Phys. Rev. B* **29**, 2864 (1984).
2. J.M. Mydosh, *Spin-Glasses: An Experimental Introduction*, Taylor and Francis, London (1993).
3. F. Lefloch, J. Hammann, M. Ocio, and E. Vincent, *Physica B* **203**, 63 (1994).
4. F. Lefloch, J. Hammann, M. Ocio, and E. Vincent, *Europhys. Lett.* **18**, 647 (1992).
5. S. Fisher and A.D. Huse, *Phys. Rev. B* **38**, 373 (1988).
6. В.А. Сиренко, В.В. Еременко, *ФНТ* **40**, 230 (2014) [*Low Temp. Phys.* **40**, 179 (2014)].
7. L. de Almeida and D.J. Thouless, *J. Phys. A: Math. Gen.* **11**, 983 (1978).
8. M. Gabay and G. Toulouse, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 201 (1981).
9. L.S. Palatnik, A.B. Bykovskii, P.A. Panckhka, A.G. Dudolatov, and V.I. Verchenko, *Dokl. Acad. Nauk. SSSR* **254**, 632 (1980).

10. А.И. Рыкова, А.В. Терехов, А.С. Черный, Е.Н. Хацько, А.В. Еременко, А. Залесский, *ФНТ* **38**, 674 (2012) [*Low Temp. Phys.* **38**, 529 (2012)].
11. N. Khan, A. Midya, P. Mandal, and D. Prabhakaran, *J. Appl. Phys.* **113**, 183909 (2013).
12. Wan-Guo Huang, Xiang-Qun Zhang, Hai-Feng Du, Ren-Fu Yang, Yan-Kun Tang, Young Sun, and Zhao-Hua Cheng, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 445209 (2008).
13. Tapati Sarcar, V. Duffort, V. Prolong, V. Caignaert, and B. Raveau, *Phys. Rev. B* **83**, 094409 (2011).
14. G.F. Goya and M.P. Morales, *J. Metastable Nanocrystalline Mater.* **20-21**, 673 (2004).
15. Roy W. Chantrell, M. El-Hilo, and Keven O'Grady, *IEEE Trans. Magnetics* **21**, 3570 (1991).
16. 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)].
17. J.L. Fiorani and E. Tronc, in: *Adv. Chem. Phys.*, I. Prigogine and S.A. Rice (eds.), Vol. XCVIII, 326 (1997).
18. S. Morup, F. Bodker, P.V. Hendriksen, and S. Linderorth, *Phys. Rev. B* **52**, 287 (1995).
19. Manoj K. Singh, Ram S. Katiyar, W. Prellier, and J.F. Scott, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 042202 (2009).
20. Sining Dong, Yiping Yao, Ying Hou, Yukuai Liu, Yang Tang, and Xiaoguang Li, *Nanotechnology* **22**, 385701 (2011).
21. Dusan A. Pejakovic, Jamie L. Manson, Joel S. Miller, and Arthur J. Epstein, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1994 (2000).
22. A. Geddo Lehmann, F. Congiu, N. Lampis, F. Miletto Granozio, P. Perna, M. Radovic, and U. Scotti di Uccio, *Phys. Rev. B* **82**, 01441 (2010).
23. E. Lima, Jr., A.L. Brand, A.D. Arelaro, and G.F. Goya, *J. Appl. Phys.* **99**, 083908 (2006).
24. 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)].
25. B. Dolgin, R. Puzniak, D. Mogilyansky, A. Wisniewski, V. Markovich, and G. Jung, *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 076004 (2013).
26. A.K. Pramanik and A. Banerjee, *Phys. Rev. B* **82**, 094402 (2010).
27. I.G. Deac, J.F. Mitchell, and P. Schiffer, *Phys. Rev. B* **63**, 172408 (2001).
28. 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, and G.V. Bukin, *Fiz. Nizk. Temp.* **37**, 141 (2011) [*Low Temp. Phys.* **37**, 112 (2011)].
29. E. Fertman, S. Dolya, V. Desnenko, A. Beznosov, M. Kajnakova, and A. Feher, *JMMM* **324**, 3213 (2012).
30. P. Vavassori, F. Spizzo, E. Angeli, D. Bisero, and F. Ronkoni, *J. Magn. Magn. Mater.* **262**, 120 (2003)
31. Adriana Zelenakov, Vladimir Zelenk, Stefan Michalk, Jozef Kovac, and Mark W. Meisel, *arXiv:1311.1252 [cond-mat.mes-hall]*.

The universality of the magnetization irreversibility line for the systems with interaction competitions (manganites, cobaltites, ferrites)

V.A. Sirenko and V.V. Eremenko

The measured data on temperature dependences of magnetization are analyzed for manganites, cobaltites and ferrites. Their common feature is irreversibility of magnetization: it differs below the temperature T^* in a certain magnetic field on cooling in a magnetic field (M_{FC}) and without it (M_{ZFC}). It is shown that for each of the dispersed samples (nanocompound, nanopowders), the $T^*(H)$ line is universal and fits well the theo-

retical Almeida–Thouless line ($T^* \sim H^{2/3}$) all over the magnetic field range. In the case of monolithic (single crystals, ceramics), there occurs transition to the square dependence $T^* \sim H^2$ in high magnetic fields in agreement with the Gabay–Toulouse theory. Such an observation is interpreted in terms of spin-glass polyamorphism.

PACS: **75.30.-m** Intrinsic properties of magnetically ordered material;

75.30.-c Magnetic properties of nanostructures.

Keywords: spin glass, polymorphism, transition-metal oxides.