

Санкт-Петербургский государственный университет

*На правах рукописи*

**Воробьев Сергей Иванович**

**ИССЛЕДОВАНИЕ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ  
МАНГАНИТОВ И МАНГАНАТОВ  
С ПОМОЩЬЮ  $\mu$ SR-МЕТОДА**

Специальность 01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

**Автореферат**

диссертации на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2015

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении «Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова» Национального исследовательского центра «Курчатовский институт», г. Гатчина

Научный руководитель: **Геталов Александр Леонидович**  
кандидат физико-математических наук,  
старший научный сотрудник

Официальные оппоненты: **Мамедов Таир Наги оглы**  
доктор физико-математических наук,  
старший научный сотрудник, зам. начальника  
отдела ЛЯП, Объединённый институт ядерных  
исследований, г. Дубна, Московской области

**Набережнов Александр Алексеевич**  
кандидат физико-математических наук,  
доцент, ст. научн. сотр.  
ФГБУН «Физико-технический институт  
им. А.Ф.Иоффе» РАН, г. Санкт-Петербург

Ведущая организация: Федеральное государственное автономное  
образовательное учреждение высшего  
профессионального образования  
«Национальный исследовательский  
ядерный университет «МИФИ», г. Москва

Защита состоится «30» апреля 2015 г. в 11 час. 00 мин. на заседании диссертационного совета Д 212.232.33 по защите докторских и кандидатских диссертаций при Санкт-Петербургском государственном университете по адресу: 198504, Россия, Санкт-Петербург, Ульяновская ул., д. 1. Санкт-Петербургский государственный университет, физический факультет, малый конференц-зал.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке им. М. Горького СПбГУ и на сайте Санкт-Петербургского государственного университета [srbu.ru](http://srbu.ru).

Отзывы на автореферат в двух экземплярах, заверенные печатью, высылать по указанному адресу ученому секретарю диссертационного совета.

Автореферат разослан «09» февраля 2015 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета Д 212.232.33  
к. физ.-мат. наук, доцент



Поляничко А.М.

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность.** Манганиты с общей формулой  $R_{1-x}A_xMnO_3$  являются одной из наиболее интересных и сложных систем, изучаемых в физике конденсированных состояний. Здесь мы имеем сильное взаимодействие между электронами, которые формируют квазилокальные моменты, ферромагнетизм (ФМ) и антиферромагнетизм (АФМ), переход металл–диэлектрик (МД), эффект орбитального упорядочения (ОУ), сильную электрон-фононную связь, зарядовое упорядочение (ЗУ) и пространственное разделение фаз. Физика этих систем с конкурирующими взаимодействиями, с одной стороны куда более сложна, а с другой стороны более интересна, чем простых твердых тел. И основное, пожалуй, это наличие еще одного «сверхэффекта»– эффекта колоссального магнитного сопротивления (КМС). Манганиты проявляют уникальное свойство отрицательного КМС, когда удельное сопротивление образца ( $\rho$ ) при приложении к нему внешнего магнитного поля ( $H$ ) уменьшается во много раз. Стало очевидным, что ни одно из присущих соединениям физических состояний и сопутствующих им явлений не могут рассматриваться изолированно, без связи с другими, и что ни локализованные, ни делокализованные носители не только не являются в них взаимоисключающими, а сосуществуют. Манганиты являются прототипами сильнокоррелированных систем, где спиновые, зарядовые и орбитальные степени свободы проявляют себя одновременно и классические упрощения, при которых пренебрегают некоторыми взаимодействиями для детального изучения других, здесь просто не работают.

Еще одна мотивация изучения манганитов заключается в их богатых фазовых диаграммах, демонстрирующих разнообразие фаз с необычными упорядочениями. При изменении концентрации  $x$  А (щелочные металлы) – элемента резко меняются физические свойства манганитов, и система проходит через цепочку фазовых переходов с разнообразными типами упорядочения: магнитного, структурного, электронного.

Возможность создания материалов с заданными управляемыми параметрами (магнитными и электрическими) стимулирует интерес к изучению мультиферроиков с близкими температурами магнитного и ферроэлектрического упорядочения. Представителями таких соединений, в частности, являются манганаты  $RMn_2O_5$  (R – металл редкоземельной группы элементов), кристаллическая структура которых принадлежит к пространственной орторомбической группе  $Pbam$  [1], а дальний магнитный (AFM) и ферроэлектрический (FE) порядки в этих материалах реализуются при близких значениях температуры (30 – 40 K) [2, 3].

В последние несколько лет наблюдается всплеск интереса к мультиферроикам, веществам, в которых сосуществуют магнитное и электрическое упорядочения [4–6]. С одной стороны, это создание на единой материальной платформе устройств, преобразующих информацию в форме намагниченности в электрическое напряжение и обратно, является весьма привлекательным решением насущных задач сенсорной техники, магнитной памяти и микроэлектроники, в частности спинтроники, стремящейся соединить достоинства энергонезависимой магнитной памяти и быстродействующих электрических систем обработки информации. Бурное развитие новой области электроники – спиновой электроники

(спинтроники) связано с использованием материалов – мультиферроиков в которых одновременно сосуществуют (анти)ферромагнитное [(AFM) FM] и (анти)ферроэлектрическое [(AFE) FE] упорядочение. В спинтронике для преобразования электрического сигнала используется не только заряд электрона, но также и спин, что позволяет создавать принципиально новые устройства для быстродействующей оперативной памяти в компьютерах, сенсоры, преобразователи магнитной информации в оптический сигнал и др.

**Целью настоящей диссертации** являлось проведение с помощью мюонного метода ( $\mu$ SR-метод) экспериментального исследования магнитных свойств манганитов  $\text{RMnO}_3$  ( $R = \text{Y, Ho}$ ) с гексагональной структурой решетки, поликристаллических керамик  $\text{La}_x\text{Ca}_{1-x}\text{MnO}_3$  и  $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{MnO}_3$ , а также редкоземельных манганатов  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  ( $R = \text{Eu, Gd}$ ) на мюонном канале синхротрона ПИЯФ им.Б.П. Константинова. В этих соединениях существуют хотя бы два из трех типов порядка – магнитного, электрического или механического.

**Научная новизна.** В дополнение к другим ядерным методам исследования вещества,  $\mu$ SR-методом было показано, что все образцы являются магнетиками Гейзенберговского типа. Впервые надежно определена в манганите  $\text{YMnO}_3$  особенность вблизи температуры  $\sim 50$  К, что может соответствовать частичному повороту спинов ионов марганца. С помощью  $\mu$ SR-метода в образцах манганата  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  ниже температуры магнитного упорядочения обнаружен эффект потери поляризации мюонов и влияния на него внешнего магнитного поля. Впервые обнаружено явление «памяти» при воздействии на образец  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  внешнего магнитного поля; время релаксации «памяти» зависит от размера структурных единиц образцов (монокристаллов или зерен керамики).  $\mu$ SR-методом впервые были исследованы образцы  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$ .

**Практическая ценность.** Полученные результаты полезны для более полного понимания физики мультиферроиков, практическое применение которых уже сейчас может быть необычайно широко.

#### **Основные положения, выносимые на защиту:**

1. Впервые с помощью  $\mu$ SR-метода было показано, что образец  $\text{HoMnO}_3$  при температуре  $T_N = 74$  К испытывает переход из парамагнитного в антиферромагнитное состояние ( $P \rightarrow \text{AFM}$ ).
2. Впервые с помощью  $\mu$ SR-метода выявлено, что манганит  $\text{HoMnO}_3$  при температуре  $T_{SR} \approx 40$  К испытывает спин-ротационный переход (поворот спинов марганца на  $90^\circ$ ).
3. С помощью  $\mu$ SR-метода было определено, что при температуре  $T_N = 66$  К в образце  $\text{YMnO}_3$  происходит фазовый переход парамагнетик–антиферромагнетик.
4. Впервые с помощью  $\mu$ SR-метода в образцах манганата  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  (из набора монокристаллов и керамики) ниже температуры магнитного упорядочения  $T_N = 40$  К обнаружен эффект потери поляризации мюонов.

5. Впервые с помощью  $\mu$ SR-метода было показано, что при температуре  $T_{N1} = 40\text{--}42$  К образцы  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  испытывают фазовый переход из парамагнитного состояния в состояние с дальним магнитным порядком. При температуре  $\sim 30\text{--}35$  К изменяется характер дальнего магнитного порядка. При температуре  $T_C = 22$  К происходит структурный фазовый переход ферроэлектрического типа, при котором происходит изменение локальных углов связи и расстояний между ионами марганца и кислорода. При температуре  $T_{N2} = 15$  К возникает магнитное упорядочение ионов  $\text{Gd}^{3+}$  (FM-типа). Потеря части полной асимметрии ниже температуры установления дальнего магнитного порядка в манганате  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  может свидетельствовать об образовании мюония. Это указывает на важную роль процессов переноса заряда в формировании дальнего порядка.

**Личный вклад автора.** Автор внес существенный вклад в постановку задач и играл ведущую роль в процессе набора экспериментальных данных, а также в их обработке и физическом анализе.

**Апробация работы.** Основные результаты работы были представлены на:

- 40<sup>th</sup> Зимней школе ПИЯФ РАН, 2006 г.;
- Первом международном, междисциплинарном симпозиуме «Среды со структурным и магнитным упорядочением» (MULTIFERROICS-2007). – Ростов-на-Дону, п. Лоо, 5-10 сентября 2007 г.;
- Научных сессиях НИЯУ МИФИ–2008, 2009, 2010, 2011, 2012 и 2013 гг.;
- XI международном междисциплинарном симпозиуме «Упорядочение в минералах и сплавах» ОМА-11. – Ростов-на-Дону - п. Лоо, 10-15 сентября 2008 г.;
- Втором международном, междисциплинарном симпозиуме «Среды со структурным и магнитным упорядочением» (MULTIFERROICS-2). – Ростов-на-Дону, п. Лоо, 23-28 сентября 2009 г.;
- Международной научной конференции «Актуальные проблемы физики твердого тела» (ФТТ-2009) – Минск, 20-23 октября 2009 г.;
- Конференции (школа-семинар) по физике и астрономии для молодых ученых Санкт-Петербурга и Северо-Запада «Физика. СПб» – Санкт-Петербург, 29-30 октября 2009 г.;
- VI Международной научной конференции «Актуальные проблемы физики твердого тела» (ФТТ-2013) – Минск, 15-18 октября 2013 г.;

и неоднократно обсуждались на семинарах и научных сессиях ОФВЭ ПИЯФ.

Работа дважды премировалась на конкурсах лучших работ ПИЯФ, в 2009 г. и 2010 г.

**Публикации.** По теме диссертации опубликовано 12 работ в научных журналах и сборниках, в том числе 5 статей в рецензируемых журналах из перечня ВАК РФ. Список работ приведен в конце автореферата.

**Структура и объем диссертации.** Диссертационная работа состоит из введения, трех глав и заключения. Она изложена на 113 страницах, включает 56 рисунков и список литературы из 101 наименования.

## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во введении** обоснована актуальность выбранной темы исследования, сформулирована основная цель работы.

**В первой главе** приведены сведения общего характера, необходимые для рассмотрения полученных экспериментальных данных. Здесь кратко изложены основы мюонного метода ( $\mu$ SR-метода) и процедура получения информации в рамках время-дифференциальной методики. Рассмотрены общие представления о поведении поляризованных положительно заряженных мюонов в среде и отмечены модельные предложения, используемые в дальнейшем для интерпретации экспериментальных данных [7–12]. Описан разработанный в ПИЯФ им.Б.П. Константинова интегральный метод представления  $\mu$ SR-данных [13]. Приведены характеристики экспериментальной аппаратуры, а также описаны задачи, которые на ней можно решать.

Использование поляризованных мюонов в качестве уникального инструмента для исследования свойств твердых тел обусловлено тем, что имеется возможность довольно просто проследить поведение поляризации ансамбля частиц в течение 10 – 15 мкс после внедрения их в исследуемое вещество. Дело в том, что распад этих однократно заряженных нестабильных частиц с массой  $m_\mu \approx 105$  МэВ и спином  $S = 1/2$  относится к классу слабых взаимодействий и происходит с нарушением закона сохранения пространственной чётности. Это приводит к анизотропии вероятности вылета образующегося позитрона или электрона ( $\mu \rightarrow e \tilde{\nu}$ ) относительно направления спина покоящегося мюона.

Для применения  $\mu$ SR-метода необходим ансамбль поляризованных мюонов. Пучок поляризованных мюонов получают на ускорителе, бомбардируя высокоэнергичными протонами мезонообразующую мишень (в данной работе это бериллиевая мишень толщиной 18 см). При взаимодействии протонов с ядрами рождаются отрицательно и положительно заряженные  $\pi$ -мезоны с массой примерно равной 140 МэВ. Для образования  $\pi$ -мезонов обычно используют протонные пучки с энергией  $\geq 0,5$  ГэВ (в ПИЯФ 1 ГэВ). На входе  $\mu$ -канала происходит сепарация пучка положительно заряженных  $\pi$ -мезонов с импульсом  $\sim 200$  МэВ/с, которые затем распадаются по схеме  $\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu$  в направлении движения, поэтому поляризация  $\mu^+$ -мюонов составляет  $\sim 100\%$ .

Для проведения всех измерений была использована  $\mu$ SR-установка на мюонном пучке синхротрона ПИЯФ (рис. 1). Исследуемые образцы размещаются в криостате продувного типа [14]; в качестве хладагента используется поток охлажденного газа гелия. При

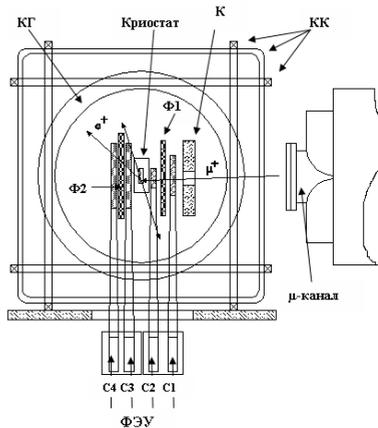


Рис. 1. Установка для  $\mu$ SR-экспериментов. (КГ – кольца Гельмгольца; КК – компенсирующие катушки; К – коллиматор; Ф1 и Ф2 – фильтры 1 и 2; ФЭУ – фотозумножитель; С1÷С4 – сцинтилляционные счётчики.

использовании гелия диапазон доступных температур лежит от 10 К до 300 К и переход от одной температуры к другой не превышает 20 минут. Стабильность установившейся температуры на образце обеспечивается в пределах  $\pm 0,5$  К. На установке можно проводить исследования как в нулевом магнитном поле, компенсируя внешние рассеянные поля кольцами Гельмгольца до уровня  $\sim 0,05$  Гс, так и во внешнем магнитном поле (поперечном или продольном) в диапазоне 5 Гс – 1,5 кГс. Однородность внешних магнитных полей в объеме 200 см<sup>3</sup> не хуже  $10^{-4}$ ; что позволяет вести измерения при скоростях релаксации не менее  $0,005$  мкс<sup>-1</sup>.

**Во второй главе** рассмотрены физические результаты исследования магнитных свойств редкоземельных манганитов  $\text{HoMnO}_3$  и  $\text{YMnO}_3$ , а также приводятся результаты исследования манганитов лантана легированных кальцием и стронцием. Были определены фазовые переходы, и распределения внутренних магнитных полей.

В нашем случае измерялись временные распределения позитронов  $N_e(t)$ , образовавшихся при распаде  $\mu^+$ -мюона ( $\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \tilde{\nu}_\mu$ ) и вылетевших в направлении исходной мюонной поляризации во временном окне  $\Delta t \sim 4,5 \cdot \tau_\mu$  после момента остановки каждого мюона в образце. Временное распределение позитронов описывается выражением

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

где  $N_0$  – нормировочная константа, или, иными словами, число зарегистрированных позитронов;  $\tau_\mu \approx 2,19711 \cdot 10^{-6}$  с – время жизни мюона;  $a_s, a_b$  – начальная асимметрия распада мюонов, остановившихся в образце ( $a_s$ ), и её фоновая компонента ( $a_b$ ) от мюонов, остановившихся во входных окнах криостата и задающем счетчике детектора мюонов;  $G_s(t), G_b(t)$  – функции релаксации поляризации для мюонов, остановившихся в образце и фоновых источниках;  $\Phi$  – фон случайных совпадений.

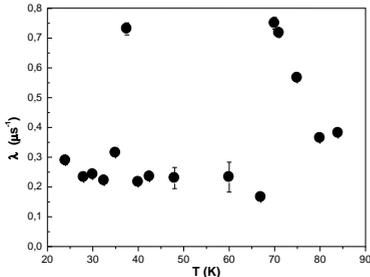


Рис.2. Скорость релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образце  $\text{HoMnO}_3$  в нулевом магнитном поле

При анализе

экспериментальных данных используют предположение о факторизации функции релаксации:  $G_s(t) = G_d(t) \cdot G_{st}(t)$ , где  $G_d(t)$  описывает релаксацию, обусловленную динамическими эффектами, а  $G_{st}(t)$  – функция релаксации в статических полях. При изучении динамических явлений, обуславливающих релаксацию спина мюона, функция релаксации задаётся зависимостью  $G_d(t) = \exp(-\lambda \cdot t)$ , где  $\lambda$  – скорость динамической релаксации. На рис.2 демонстрируется зависимость скорости релаксации поляризации остановившихся мюонов в образце  $\text{HoMnO}_3$  от температуры ( $\lambda$ ).

Видим два пика (74 К и  $\sim 40$  К), которые соответствуют двум фазовым переходам, первый ( $T_N = 74$  К) – переход из парамагнитного состояния в состояние антиферромагнитного упорядочения. Второй переход ( $T \approx 40$  К) связан с разворотом спинов Mn на  $90^0$  (спин-ротационный переход  $T_{SR}$ ) [15–17].

На рис. 3 показана зависимость частот прецессии спина мюона во внутренних магнитных полях от температуры образца  $\text{HoMnO}_3$  в нулевом внешнем магнитном поле. Видим, что при температурах образца меньше  $T_N = 74$  K наблюдается прецессия на двух частотах, одна из которых пренебрежимо мала по сравнению с другой ( $F_1 \approx 40$  МГц;  $F_2 \leq 1$  МГц). По мере понижения температуры образца  $F_1$  монотонно растет, а  $F_2$  уменьшается. При температурах образца ниже температуры  $T_{SR} \approx 40$  K частота  $F_2$  заметно возрастает (практически от 0) и продолжает монотонно расти с понижением температуры. На рис. 4 демонстрируется поведение асимметрии  $a_1$  и  $a_2$  при изменении температуры образца. Видим, что при температуре спин-ротационного перехода ( $T_{SR} \approx 40$  K)

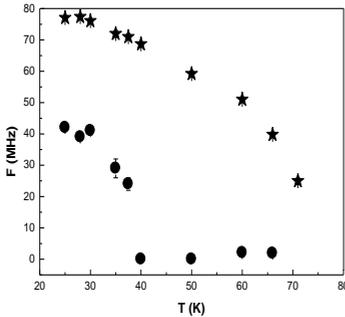


Рис. 3. Поведение частот наблюдаемой прецессии  $F$  от температуры образца  $\text{HoMnO}_3$  в нулевом поле. Звездочки –  $F_1$ , круглые точки –  $F_2$ .

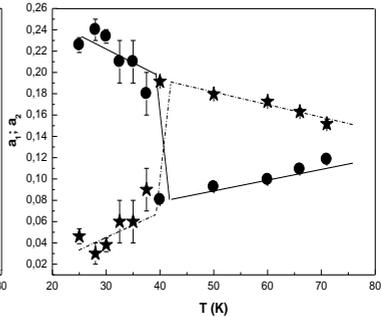


Рис. 4. Зависимость асимметрии от температуры образца  $\text{HoMnO}_3$  в нулевом поле. Линии нанесены для наглядности поведения зависимости. Звездочки –  $a_1$ , круглые точки –  $a_2$ , где  $a_1 + a_2 = a_3$ .

происходит резкое изменение в соотношении между коэффициентами  $a_1$  и  $a_2$ .

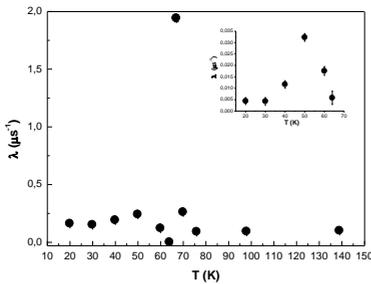


Рис.5. Скорость релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образце  $\text{YMnO}_3$  в нулевом магнитном поле.

Аналогичные исследования были выполнены на образце  $\text{YMnO}_3$ . На рисунках 5 – 9 демонстрируются результаты обработки экспериментальных данных, полученных на образце  $\text{YMnO}_3$ . В поведении зависимости скорости релаксации поляризации ( $\lambda$ ) мюонов, остановившихся в образце  $\text{YMnO}_3$ , от температуры образца виден пик при температуре  $T_N = 66$  K, который соответствует фазовому переходу парамагнетик–антиферромагнетик (рис. 5). В интервале температур (45– 55) K видим не монотонное поведение

параметра  $\lambda$  в зависимости от температуры образца (см. вставку на рис. 5). В интервале температур 20 – 60 К видим прецессию на двух частотах  $F_1$  и  $F_2$ , соотношение между которыми сохраняется в указанном диапазоне температур  $F_2/F_1 \approx 2$  (рис. 6). Отметим особенность в поведении парциальных амплитуд  $a_1$  и  $a_2$  в диапазоне температур 20 К – 60 К. При температуре  $T \approx 50$  К наблюдается изменение в соотношении названных параметров  $a_1/a_2$  (рис. 7).

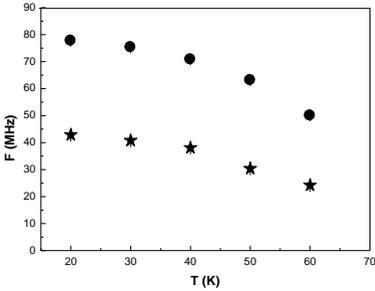


Рис. 6. Поведение частот наблюдаемой прецессии  $F$  от температуры образца  $\text{YMnO}_3$  в нулевом поле. Звездочки –  $F_1$ , круглые точки –  $F_2$ .

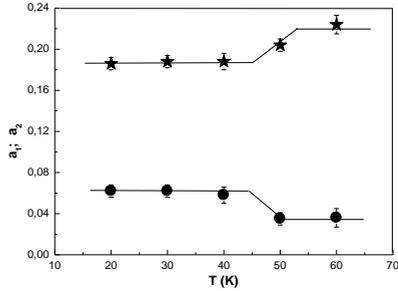


Рис. 7. Зависимость асимметрии от температуры образца  $\text{YMnO}_3$  в нулевом поле. Линии нанесены для наглядности поведения зависимости. Звездочки –  $a_1$ , круглые точки –  $a_2$ , где  $a_1 + a_2 = a_3$ .

Таким образом, для образца  $\text{YMnO}_3$  при температуре  $\sim 50$  К видим особенности в зависимостях от температуры скорости релаксации спина мюона (рис. 5) и парциальных амплитуд  $a_1$  и  $a_2$  (рис. 7). Возможно, это связано с частичным поворотом спинов марганца в соединении  $\text{YMnO}_3$  [18].

Для исследованных образцов  $\text{HoMnO}_3$  и  $\text{YMnO}_3$  зависимость частоты прецессии от температуры хорошо аппроксимируется кривой Кюри-Вейса:  $F \sim F_{\text{max}}(1 - T/T_N)^\beta$  с показателем  $\beta = 0,39 \pm 0,02$ , что соответствует модели 3D-магнетика Гейзенберговского типа [19].

**Третья глава** посвящена исследованию редкоземельных манганатов  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  ( $R = \text{Eu}, \text{Gd}$ ).

В представляемой работе с помощью  $\mu\text{SR}$ -метода в диапазоне температур 15 К – 140 К проведено сравнительное исследование двух типов образцов  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  (из монокристаллов и керамики) и обнаружено качественное различие их свойств. Измерены временные спектры позитронов распада, и на их основе получены температурные зависимости параметров релаксации поляризации мюона, частот прецессии его спина во внутренних магнитных полях образцов и парциальных вкладов разных мод прецессии в полную асимметрию.

Для обоих образцов наблюдается одинаковое температурное поведение параметра  $\lambda_d$  (рис. 8). Виден резкий пик при температуре  $T_N \approx 40$  К, связанный с фазовым переходом парамагнетик–антиферромагнетик ( $\text{PM} \rightarrow \text{AFM}$ ). Наблюдаются

аномалии в поведении  $\lambda_d$  при температурах 30 К (FE1- переход) и 22 К (FE2-переход).

Для обоих образцов (монокристаллов и керамики) две частоты ( $F_{1,2}$ )

присутствуют в спектрах во всем температурном интервале ниже температуры  $T_N$  (рис. 9, 10), при этом соотношение между их парциальными вкладами практически не изменяется (в пределах ошибок) (рис. 11, 12).

Ниже температуры магнитного упорядочения  $T_N = 40$  К обнаружены эффект потери поляризации мюонов и влияние на него внешнего магнитного поля (рис. 13). Оба явления можно объяснить включением дополнительного канала деполаризации мюонов из-за образования мюония в среде с пониженной плотностью электронов за счет процесса зарядового расслоения (перераспределения электронной плотности при фазовом переходе). Впервые обнаружено явление «памяти» при воздействии на образец внешнего магнитного поля; время релаксации «памяти» зависит от размера структурных единиц образцов (монокристаллов или зерен керамики).

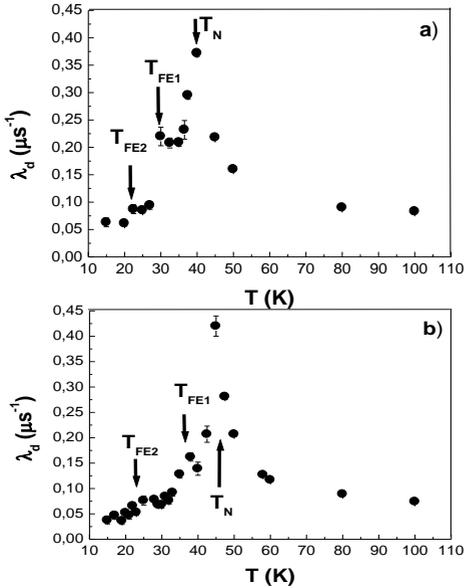


Рис. 8. Температурная зависимость динамической релаксации поляризации мюонов для образца  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  (a – для образца из монокристаллов; b – для керамики); стрелками отмечены аномалии, обсуждаемые в тексте.

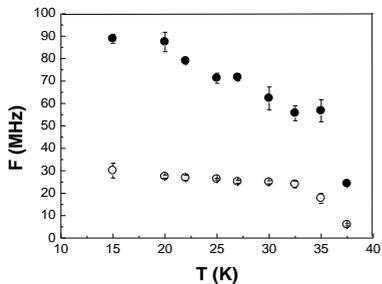


Рис. 9. Температурные зависимости частот прецессии  $F_1$  (светлые точки) и  $F_2$  (темные точки) мюона во внутреннем магнитном поле для образца  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  из монокристаллов (соответствуют закону Кюри-Вейса:  $F_1=39 \cdot (1-T/T_N)^{0.39}$  и  $F_2=109 \cdot (1-T/T_N)^{0.39}$ ).

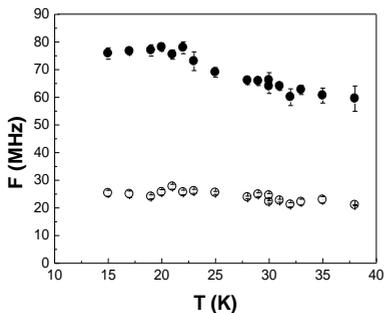


Рис. 10. Температурные зависимости частот прецессии  $F_1$  (светлые точки) и  $F_2$  (темные точки) мюона во внутреннем магнитном поле для образца  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  из керамики.

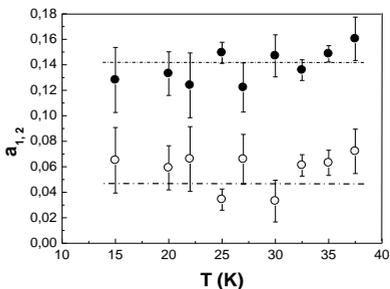


Рис. 11. Температурные зависимости парциальных вкладов  $a_1$  (светлые точки) и  $a_2$  (темные точки) в полную асимметрию в области ниже температуры Нееля  $T_N = 40$  К (для образца  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  из монокристаллов).

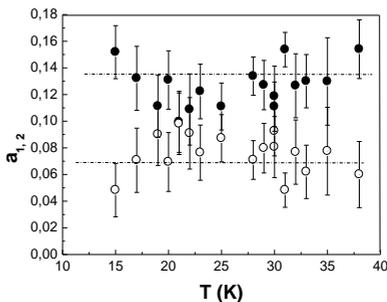


Рис. 12. Температурные зависимости парциальных вкладов  $a_1$  (светлые точки) и  $a_2$  (темные точки) в полную асимметрию в области ниже температуры Нееля  $T_N = 40$  К (для образца  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  из керамики).

Аналогично исследованы: поликристаллический (набор достаточно крупных монокристаллов) и керамический образцы манганата  $GdMn_2O_5$  в области температур 10 – 300 К (рис. 13). Согласно результатам анализа временных спектров прецессии спина мюона во внутреннем магнитном поле установлено существование одного (при  $T = 42\text{--}32$  К), либо двух (при  $T < 32$  К) предпочтительных мест локализации мюона в структуре образцов

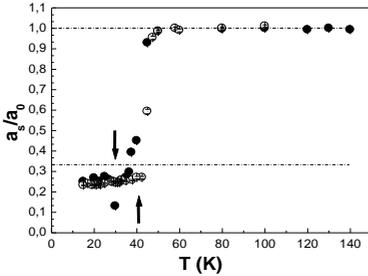


Рис. 13. Температурная зависимость относительной остаточной асимметрии  $a_1/a_0$  для образцов  $GdMn_2O_5$  из монокристаллов (темные точки) и керамики (светлые точки); стрелками отмечены температуры перехода  $T \approx 30$  К (для образца из монокристаллов) и магнитного упорядочения  $T_N \approx 40$  К.

ферромагнитное упорядочение Gd-подсистемы с изменением состояния ионов марганца ( $T_{N2} = 15$  К).

Температурные особенности параметра релаксации поляризации мюона (рис. 15), частот прецессии его спина и парциальных вкладов в полную асимметрию позитронов распада обусловлены серией фазовых переходов: магнитный фазовый переход ( $T_{N1} = 40\text{--}42$  К), структурный фазовый переход (ферроэлектрический) ( $T_C = 20\text{--}22$  К) и

Температурные особенности параметра релаксации поляризации мюона (рис. 15), частот прецессии его спина и парциальных вкладов в полную асимметрию позитронов распада обусловлены серией фазовых переходов: магнитный фазовый переход ( $T_{N1} = 40\text{--}42$  К), структурный фазовый переход (ферроэлектрический) ( $T_C = 20\text{--}22$  К) и

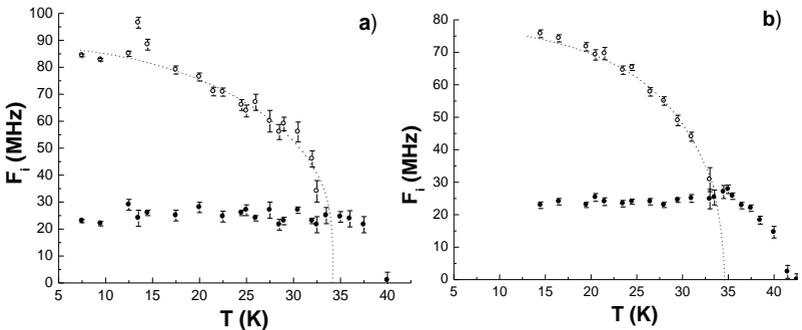


Рис. 14. Температурные зависимости частот прецессии спина мюона во внутреннем магнитном поле керамического (а) и поликристаллического (б) образцов  $GdMn_2O_5$  ( $F_1$  – темные точки,  $F_2$  – светлые точки).

Обнаруженный эффект потери полной асимметрии ниже температуры установления дальнего магнитного порядка  $T_{N1} = 40 - 42$  К может свидетельствовать об образовании мюония (рис. 16). Это указывает на важную роль процессов переноса заряда в формировании дальнего порядка в исследованном мультиферроике  $GdMn_2O_5$ .

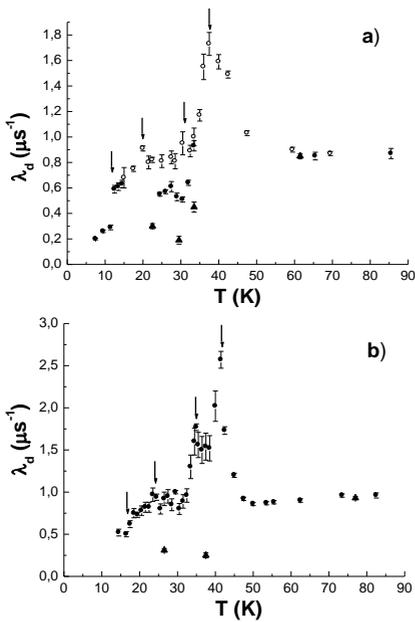


Рис. 15. Температурная зависимость скорости динамической релаксации поляризации мюонов (а – керамический образец  $GdMn_2O_5$ , б – поликристаллический образец  $GdMn_2O_5$ ); темные точки – измерения в режиме нагрева; светлые точки – измерения в режиме охлаждения; треугольники – измерения во внешнем магнитном поле  $H = 280$  Гс; стрелками отмечены точки фазовых переходов.

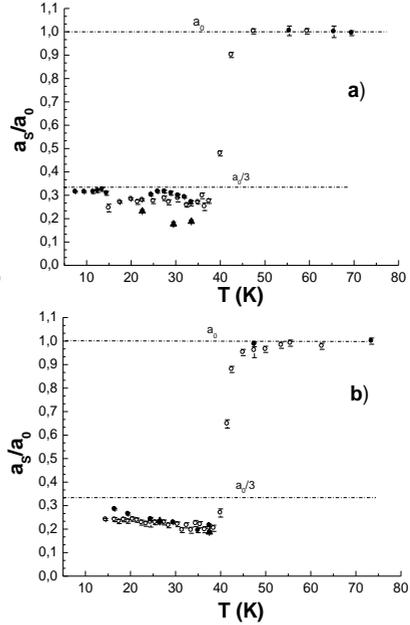


Рис. 16. Температурная зависимость остаточной асимметрии, нормированной на полную асимметрию; а – керамический образец  $GdMn_2O_5$ ; б – поликристаллический образец  $GdMn_2O_5$ ; темными треугольниками отмечены результаты измерений во внешнем магнитном поле  $H = 280$  Гс.

**В заключении** изложены основные результаты и выводы, представленные автором к защите.

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Продемонстрирована высокая эффективность  $\mu$ SR-метода при изучении редкоземельных манганитов и манганатов. Было показано, что все исследованные образцы являются 3D-магнетиками Гейзенберговского типа, т.к. температурные зависимости частот прецессии хорошо аппроксимируются кривой Кюри-Вейса.
2. С помощью  $\mu$ SR-метода было показано, что образец  $\text{HoMnO}_3$  при температуре  $T_N = 74$  К испытывает переход из парамагнитного в антиферромагнитное состояние ( $P \rightarrow \text{AFM}$ ).
3. Впервые с помощью  $\mu$ SR-метода выявлено, что манганит  $\text{HoMnO}_3$  при температуре  $T_{SR} \approx 40$  К испытывает спин-ротационный переход (поворот спинов марганца на  $90^\circ$ ).
4. С помощью  $\mu$ SR-метода было определено, что при температуре  $T_N = 66$  К в образце  $\text{YMnO}_3$  происходит фазовый переход парамагнетик–антиферромагнетик.
5. Впервые была надежно определена для манганита  $\text{YMnO}_3$  особенность вблизи температуры  $\sim 50$  К, что может соответствовать частичному повороту спинов ионов марганца.
6. Впервые с помощью  $\mu$ SR-метода в образцах манганата  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  (из набора монокристаллов и керамики) ниже температуры магнитного упорядочения  $T_N = 40$  К обнаружен эффект потери поляризации мюонов и влияния на него внешнего магнитного поля. Оба явления можно объяснить включением дополнительного канала деполяризации мюонов из-за образования мюония в среде с пониженной плотностью электронов за счет процесса зарядового расслоения (перераспределения электронной плотности при фазовом переходе).
7. Впервые обнаружено явление «памяти» при воздействии на образец  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  внешнего магнитного поля; время релаксации «памяти» зависит от размера структурных единиц образцов (монокристаллов или зерен керамики).
8. Впервые с помощью  $\mu$ SR-метода было показано, что при температуре  $T_{N1} = 40 - 42$  К образцы  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  испытывают фазовый переход из парамагнитного состояния в состояние с дальним магнитным порядком. При температуре  $\sim 30 - 35$  К изменяется характер дальнего магнитного порядка. При температуре  $T_C = 22$  К происходит структурный фазовый переход ферроэлектрического типа, при котором происходит изменение локальных углов связи и расстояний между ионами марганца и кислорода. При температуре  $T_{N2} = 15$  К возникает магнитное упорядочение ионов  $\text{Gd}^{3+}$  (FM-типа).
9. Потеря части полной асимметрии ниже температуры установления дальнего магнитного порядка в манганате  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  может свидетельствовать об образовании мюония. Это указывает на важную роль процессов переноса заряда в формировании дальнего порядка.

## ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. С.Г.Барсов, **С.И. Воробьев**, В.П. Коптев, С.А. Котов, С.М. Микиртычьянц, Г.В. Щербаков. *μSR-установка на мюонном пучке синхротрона ПИЯФ РАН. Препринт ПИЯФ–2694* (2006) 17 стр.
2. С.Г. Барсов, **С.И. Воробьев**, В.П. Коптев, С.А. Котов, С.М. Микиртычьянц, Г.В. Щербаков. *μSR-установка на мюонном пучке синхротрона ПИЯФ РАН. ПТЭ, 50*, № 6 (2007) стр. 36 – 42. (ISSN 0032-8162).
3. С.Г. Барсов, **С.И. Воробьев**, В.П. Коптев, Е.Н. Комаров, С.А. Котов, С.М. Микиртычьянц, Г.В. Щербаков. *Исследование магнитных фазовых переходов и распределения локальных магнитных полей μSR-методом. В сборнике: «Основные результаты научных исследований ПИЯФ РАН в 2005–2006 годах».* Гатчина, ПИЯФ РАН (2007) стр. 122 – 123.
4. С.Г.Барсов, **С.И. Воробьев**, В.П. Коптев, Е.Н. Комаров, С.А. Котов, С.М. Микиртычьянц, Г.В. Щербаков, А.Е. Пестун, Я.М. Муковский. *Исследование гексагональных манганитов  $\text{HoMnO}_3$  и  $\text{YMnO}_3$  с помощью мюонного метода. Письма в ЖЭТФ, 85*, вып. 12 (2007) стр. 795 – 798. (ISSN 0370-274X).
5. С.Г. Барсов, **С.И. Воробьев**, Е.Н. Комаров, В.П. Коптев, С.А. Котов, С.М. Микиртычьянц, Г.В. Щербаков. *Исследование магнитных фазовых переходов и распределений локальных магнитных полей в манганитах редкоземельных металлов μSR-методом. Препринт ПИЯФ–2738* (2007) 34 стр.
6. S.G. Barsov, **S.I. Vorobyev**, V.P. Koptev, E.N. Komarov, S.A. Kotov, S.M. Mikirtychyans, and G.V. Shcherbakov. *μSR-investigations at PNPI. В сборнике ОФВЭ «HEPD: Main scientific activity 2002–2006».* (2007) p. 233 – 240.
7. С.Г. Барсов, **С.И. Воробьев**, Е.И. Головенчиц, А.А. Дзюба, Е.Н. Комаров, В.П. Коптев, С.А. Котов, В.А. Санина, Г.В. Щербаков. *Исследование мультиферроиков  $\text{RMn}_2\text{O}_5$  с помощью μSR-метода. Фазовые переходы, упорядоченные состояния и новые материалы, 8* (2009) стр. 1 – 3. [www.ptosnm.ru/catalog/s/46](http://www.ptosnm.ru/catalog/s/46). (ISSN 2073-0373).
8. С.Г. Барсов, **С.И. Воробьев**, Е.И. Головенчиц, А.А. Дзюба, Е.Н. Комаров, В.П. Коптев, С.А. Котов, В.А. Санина, Г.В. Щербаков. *Исследование манганита  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  с помощью μSR-метода. Сообщение ПИЯФ–2826* (2009) 18 стр.
9. **С.И. Воробьев**, Е.И. Головенчиц, Е.Н. Комаров, В.П. Коптев, С.А. Котов, В.А. Санина, Г.В. Щербаков. *Исследование  $\text{EuMn}_2\text{O}_5$  с помощью μSR-метода. Письма в ЖЭТФ, 91*, вып. 10 (2010) стр. 561– 566. (ISSN 0370-274X).
10. С.Г. Барсов, **С.И. Воробьев**, Е.И. Головенчиц, А.А. Дзюба, Е.Н. Комаров, В.П. Коптев, С.А. Котов, В.А. Санина, Г.В. Щербаков. *Исследование редкоземельных манганитов и манганатов с помощью μSR-метода. Известия РАН. Серия физическая, 74*, № 5 (2010) стр. 738 – 740. (ISSN 0367-6765).
11. **С.И. Воробьев**, А.Л. Геталов, Е.И. Головенчиц, Е.Н. Комаров, В.П. Коптев, С.А. Котов, В.А. Санина, Г.В. Щербаков. *Исследование манганата  $\text{GdMn}_2\text{O}_5$  с помощью μSR-метода. Сообщение ПИЯФ–2845* (2010) 18 стр.

12. **С.И. Воробьев**, А.Л. Геталов, Е.И. Головенциц, Е.Н. Комаров, В.П. Коптев, С.А. Котов, И.И. Павлова, В.А. Санина, Г.В. Щербаков. *Исследование мультиферроика  $GdMn_2O_5$   $\mu$ SR-методом*. ФТТ, **55**, вып. 3 (2013), стр. 422 – 430. (ISSN 0367-3294).

### Список используемой литературы

- [1] М.А. Gilleo, Acta Crystallogr., **10** (1957), 161.
- [2] Е.И. Головенциц, Н.В. Морозов, В.А. Санина, Л.М. Сапожникова. ФТТ, **34**, вып.1 (1992), 108.
- [3] H. Tsujino, K. Kohn. Solid State Commun., **83** (1992), 639.
- [4] А.К. Звездин, А.П. Пятаков. Фазовые переходы и гигантский магнитоэлектрический эффект в мультиферроиках. УФН, **174**, № 4 (2004), 465.
- [5] Manfred Fiebig. Revival of the magnetoelectric effect. J. Phys. D: Appl. Phys., **38** (2005), 123.
- [6] W. Prellier, M.P. Singh, P. Murugavel. The single phase multiferroic oxides: from bulk to thin film. J. Phys: Cond. Matter, **17** (2005), 803.
- [7] A. Schenck. Muon spin rotation spectroscopy. – Bristol (1985), 325 p.
- [8] В.П. Смилга, Ю.М. Белоусов. Мюонный метод исследования вещества. – М.: «Наука» (1991), 344 стр.
- [9] Erik Karlsson. The use of positive muons in metal physics. Phys. Rev. **82**, № 5 (1982), 271.
- [10] Ю.М. Белоусов, В.Н. Горелкин, А.Л. Микаэлян, В.Ю. Милосердин, В.П. Смилга. Исследование металлов с помощью положительных мюонов. УФН, **129**, вып. 1 (1979), 3.
- [11] T.Mc. Mullen, E. Zaremba. Positive muon in solids. Phys. Rev. B, **18** (1978), 3026.
- [12] S.F.J. Cox. Implanted muon studies in condensed matter science. J. Phys. C: Solid State Phys., **20** (1987), 3187.
- [13] С.Г. Барсов, А.Л. Геталов, В.П. Коптев, Л.А. Кузьмин, С.М. Микиртычьянц, Н.А. Тарасов, Г.В. Щербаков. Интегральный метод исследования фазовых переходов в рамках  $\mu$ SR-эксперимента. Препринт ЛИЯФ–1312 (1987), 17 стр.
- [14] А.А. Васильев, С.М. Козлов, В.П. Коптев, Л.А. Кузьмин, С.М. Микиртычьянц, В.А. Трофимов, В.И. Поромов. Криостат для  $\mu$ SR-исследований. Препринт ЛИЯФ–1638 (1990), 14 стр.
- [15] B. Lorenz, A.P. Litvinchuk, M.M. Gospodinov and C.W.Chu, Phys. Rev. Lett., **92** (2004), 087204(4).
- [16] O.P. Vajk, M. Kenzelmann, J.W. Lynn et al., Phys. Rev. Lett., **94** (2005), 087601(4).
- [17] B. Lorenz, Y.Q. Wang, Y.Y. Sun and C.W. Chu. Phys. Rev. B, **70** (2004), 212412.
- [18] P.J. Brown and T. Chatterji. J. Phys: Condens. Matter, **18** (2006), 10085.
- [19] T. Lancaster, S.J. Blundell, D. Andreika et al., Phys. Rev. Lett., **98** (2007), 197203(4).