

## Антиферромагнитный резонанс в $\text{LaMnO}_3$

А.А. Можегоров, Л.Э. Гончарь, А.Е. Никифоров

Уральский государственный университет им. А.М. Горького  
пр. Ленина, 51, г. Екатеринбург, 620083, Россия  
E-mail: a\_mozhegorov@mail.ru

Статья поступила в редакцию 7 сентября 2006 г.

Исследованы зависимости магнитной структуры  $\text{LaMnO}_3$  и частот АФМР в нем от внешнего магнитного поля  $H$  и температуры  $T$ . Использована ранее разработанная модель, которая включает орбитально-зависимый сверхобмен и одноионную анизотропию. Температурные зависимости описаны в рамках приближения среднего поля в хорошем согласии с экспериментом. Построены фазовые диаграммы  $H-T$  в поле, направленном вдоль главных кристаллографических направлений  $(a, b, c)$ . Решена проблема происхождения слабой неколлинеарности спинов  $\text{Mn}^{3+}$ . Предложен оптимальный метод получения выражения для магнитной свободной энергии.

Досліджено залежності магнітної структури  $\text{LaMnO}_3$  і частот АФМР у ньому від зовнішнього магнітного поля  $H$  й температури  $T$ . Використано раніше розроблену модель, що включає орбітально-залежний надобмін та одноіонну анізотропію. Температурні залежності описано в рамках наближення середнього поля у добрій згоді з експериментом. Побудовано фазові діаграми  $H-T$  у полі, спрямованому уздовж головних кристаллографічних напрямків  $(a, b, c)$ . Вирішено проблему походження слабкої неколінеарності спінів  $\text{Mn}^{3+}$ . Запропоновано оптимальний метод одержання виразу для магнітної вільної енергії.

PACS: 75.10.Dg Теория кристаллического поля и спиновые гамильтонианы;  
76.50.+g Ферромагнитный, антиферромагнитный и ферримагнитный резонансы;  
спино-волновой резонанс.

Ключевые слова: манганиты, взаимодействие Дзялошинского–Мория, орбитально-зависимый сверхобмен, магнитная структура.

### Введение

В последние годы наблюдается повышенный интерес к изучению таких соединений, как манганиты  $\text{La}$  и  $\text{Ca}$  и растворов на их основе, в которых обнаружен эффект колоссального магнитосопротивления (КМС). Но понимание некоторых эффектов, обнаруженных в манганитах, таких как: сильное взаимодействие носителей с решеточными и спиновыми возбуждениями, изменение транспортных свойств под воздействием внешних факторов и др., до сих пор не может быть признано удовлетворительным. В связи с этим представляется важным надежно установить, каковы свойства исходных соединений  $\text{LaMnO}_3$  и  $\text{CaMnO}_3$ .

В настоящей работе изучены магнитно-резонансные свойства манганита лантана.

Антиферромагнитный резонанс (АФМР) позволяет получить данные о магнитных взаимодействии

ях между ионами в кристалле антиферромагнетика, симметрии магнитной подсистемы кристалла и другие сведения о ней. Существует классический способ описания АФМР — с помощью уравнения движения намагниченности [1,2]. Однако для того, чтобы воспользоваться этим способом, нужно иметь выражение для магнитной свободной энергии кристалла  $V$ , в котором содержится учет тех или иных взаимодействий ионов друг с другом и реакция магнетика на внешние воздействия. Например для ортоферритов [3,4], показано что для правильного описания их магнитных свойств выражение для  $V$  должно содержать, кроме изотропного обмена, также член, описывающий антисимметричный анизотропный обмен (взаимодействие Дзялошинского–Мория).

Хотя по своей кристаллической структуре ортоферриты схожи с манганитами, до сих пор не было проведено качественного рассмотрения целесооб-

разности включения взаимодействия Дзялошинско-Мория в магнитную свободную энергию для  $\text{LaMnO}_3$ . Этот пробел и призвана восполнить настоящая работа. На сегодняшний день в литературе не находится обоснования или опровержения необходимости учета этого взаимодействия для манганита лантана, за исключением, возможно, работы [5]. Но приведенное авторами [5] исследование АФМР в  $\text{LaMnO}_3$ , во-первых, нельзя считать полным, так как там не рассмотрен весь частотно-полевой спектр АФМР, а во-вторых, результаты работы не имеют качественного согласия с экспериментом [6].

Кроме того, здесь нами на примере  $\text{LaMnO}_3$  предлагается оптимальный метод получения выражения для магнитной свободной энергии [3,7].

### Магнитная свободная энергия для $\text{LaMnO}_3$

Рассмотрим антиферромагнитный резонанс в чистом манганите лантана. Для родственных по кристаллической структуре соединений — ортоферритов — метод АФМР был подробно рассмотрен в работе [3]. Но, как известно из эксперимента, магнитная структура в ортоферритах —  $G$ -типа (см. рис. 5), тогда как в  $\text{LaMnO}_3$  имеется  $A$ -тип упорядочения, ранее не рассмотренный с точки зрения АФМР. Первоначально последуем методике, изложенной у Негтманн [3], с некоторыми дополнениями. Будем исходить из следующего выражения для магнитной свободной энергии кристалла:

$$V = V_{\text{isotropic exchange}} + V_{\text{antisym. anisotr. exchange}} + V_{\text{single-ion anisotropy}} + V_{\text{Zeeman}} \quad (1)$$

В это выражение входят наиболее типичные магнитные взаимодействия [3,8,9] для данного рода соединений: изотропный симметричный обмен, анизотропный антисимметричный обмен (взаимодействие Дзялошинского–Мория), одноионная анизотропия и взаимодействие с внешним магнитным полем (зеемановское взаимодействие). Подробнее имеем:

$$V = \sum_{i>j} E_{ij} (\mathbf{M}_i \cdot \mathbf{M}_j) + \sum_{i,j} \mathbf{D}_{ij} (\mathbf{M}_i \times \mathbf{M}_j) + \sum_{i,\alpha,\beta} A_i^{\alpha\beta} (\mathbf{M}_i^\alpha \cdot \mathbf{M}_i^\beta) + \sum_{i,j} g_{ij} (H_i M_j). \quad (2)$$

Кристалл манганита лантана принадлежит к группе симметрии  $D_{2h}^{16}$  и имеет четыре магнитных подрешетки. Его магнитная структура [2] выражается с помощью симметризованных намагниченностей (векторов ферромагнетизма и антиферромагнетизма)  $A$ ,  $C$ ,  $F$  и  $G$  (см. рис. 5) так:  $A_x F_y G_z$ . Это преимущественно  $A$ -структура (т.е. компонента  $A_x$  самая большая).

Будем рассматривать только взаимодействия между ближайшими соседями, так как обменное взаимодействие сильно спадает с расстоянием (пропорционально  $r^{-10}$  [10]). При учете симметрии получим следующее выражение для  $V$ :

$$\begin{aligned} V = & E_{12} (\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 \cdot \mathbf{M}_4) + E_{14} (\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_4 + \mathbf{M}_2 \cdot \mathbf{M}_3) + D_{12x} (M_{1y} M_{2z} - M_{2y} M_{1z} + M_{3y} M_{4z} - M_{4y} M_{3z}) + \\ & + D_{12z} (M_{1x} M_{2y} - M_{2x} M_{1y} - M_{3x} M_{4y} + M_{4x} M_{3y}) + D_{14x} (M_{1y} M_{4z} - M_{4y} M_{1z} - M_{2y} M_{3z} + M_{3y} M_{2z}) + \\ & + D_{14y} (M_{1z} M_{4x} - M_{4z} M_{1x} + M_{2z} M_{3x} - M_{3z} M_{2x}) - A_{xx} \sum_i M_{ix}^2 - A_{yy} \sum_i M_{iy}^2 - A_{zz} \sum_i M_{iz}^2 - \\ & - A_{xy} (M_{1x} M_{1y} - M_{2x} M_{2y} - M_{3x} M_{3y} + M_{4x} M_{4y}) - A_{yz} (M_{1y} M_{1z} - M_{2y} M_{2z} + M_{3y} M_{3z} - M_{4y} M_{4z}) - \\ & - A_{zx} (M_{1z} M_{1x} + M_{2z} M_{2x} - M_{3z} M_{3x} - M_{4z} M_{4x}) - g\mathbf{H} \sum_i \mathbf{M}_i. \quad (3) \end{aligned}$$

Видно, что в данном выражении содержится большое число параметров — 12. Но известно [7–12], что некоторые из этих параметров малы, по-

этому ими можно пренебречь. Действуя так и используя параметры из работ [10,13], получим:

$$\begin{aligned}
 V = & 2 \frac{J_b}{N^2 g^2 \mu_B^2} ((\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2) + (\mathbf{M}_3 \cdot \mathbf{M}_4)) + 4 \frac{J_{ac}}{N^2 g^2 \mu_B^2} ((\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_4) + (\mathbf{M}_2 \cdot \mathbf{M}_3)) + 4 \frac{D_{12x}}{N^2 g^2 \mu_B^2} \times \\
 & \times (M_{1y} M_{2z} - M_{2y} M_{1z} + M_{3y} M_{4z} - M_{4y} M_{3z}) + 4 \frac{D_{12z}}{N^2 g^2 \mu_B^2} (M_{1x} M_{2y} - M_{2x} M_{1y} - M_{3x} M_{4y} + M_{4x} M_{3y}) + \\
 & + 2 \frac{D_{14x}}{N^2 g^2 \mu_B^2} (M_{1z} M_{4x} - M_{4z} M_{1x} + M_{2z} M_{3x} - M_{3z} M_{2x}) + 2 \frac{D_{14y}}{N^2 g^2 \mu_B^2} \times \\
 & \times (M_{1y} M_{4z} - M_{4y} M_{1z} - M_{2y} M_{3z} + M_{3y} M_{2z}) + \sum_{i, \alpha, \beta} (A_{\alpha\beta}^i \frac{1}{N^2 g^2 \mu_B^2} (M_{i\alpha} M_{i\beta})) - \frac{1}{Ng} g \sum_i (\mathbf{H} \cdot \mathbf{M}_i). \quad (4)
 \end{aligned}$$

Здесь  $N$  — число ионов в каждой подрешетке в единице объема кристалла,  $\mu_B$  — магнетон Бора,  $g$  —  $g$ -фактор каждого иона марганца, равный 2, а  $i = 1, 2, 3, 4$  — номер магнитной подрешетки,  $A_{\alpha\beta}^i$  — матрица одноионной анизотропии  $i$ -ого иона  $\text{Mn}^{3+}$ ,  $J_b$  и  $J_{ac}$  — параметры изотропного симметричного обмена вдоль орторомбической оси  $b$  и в плоскости  $ac$  соответственно,  $D_{12x}, D_{12z}, D_{14x}, D_{14y}$  — векторы взаимодействия Дзялошинского–Мория, величины которых взяты из работы [14]. Они, как и параметры анизотропии, в (4) и (3) совпадают с точностью до множителя.

Параметры одноионной анизотропии ( $A_{\alpha\beta}^i$ ) и изотропного обмена ( $J_b$  и  $J_{ac}$ ) считаются согласно [10,13] орбитально-зависимыми. В дальнейшем предполагается, что кристаллическая и орбитальная структура (см. рис. 1) жестко заданы.

### Зависимости намагниченностей и частот АФМР в $\text{LaMnO}_3$ от внешних параметров

Пользуясь полученным выражением для магнитной свободной энергии (4) и известным методом рассмотрения АФМР [1] с помощью уравнения Ландау–Лифшица без учета диссипации с его линеаризацией по малым отклонениям намагниченности от равновесного направления, можно получить зависимости частот АФМР от внешних параметров.

На рис. 2–4 представлены зависимости частот АФМР от величины, направления внешнего магнитного поля и от температуры, а также зависимости

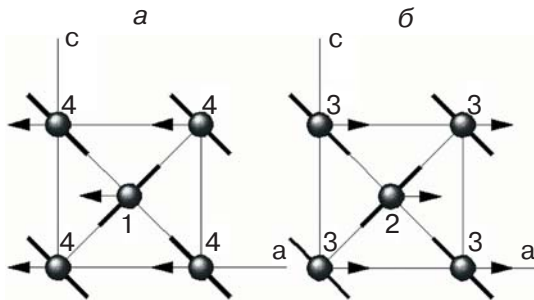


Рис. 1. Орбитальная структура  $\text{LaMnO}_3$  [10].

суммарного ферромагнитного момента в  $\text{LaMnO}_3$  от температуры. Показаны лишь нижние ветви частот АФМР, так как только они наблюдаются экспериментально.

Полевая зависимость частот АФМР вдоль оси  $Ox$  ( $Pnma$ ) представляет наибольший интерес (см. рис. 2), так как это направление легкой оси намагничивания. При значении внешнего магнитного поля, направленного вдоль оси  $Ox$ ,  $H \approx 190$  кЭ наблюдается спин–флоп переход [6]. Учет взаимодействия Дзялошинского–Мория приводит к понижению поля спин–флопа. Дело в том, что начальная магнитная структура  $A$ -типа ( $A_x F_y G_z$ ) с большой  $A$ -компонентой, а спин–флоп переход происходит в состоянии с большой  $G$ -компонентой. Поэтому вблизи перехода имеет место «конкуренция»  $A$ - и  $G$ -компонент, и, когда за счет включения антисимметричного анизотропного обмена  $G$ -компонента увеличивается, «равновесие», точка перехода, смещается в сторону низких полей (примерно на 10 кЭ).

Угловые зависимости частот АФМР (см. рис. 3, а, б) демонстрируют в общем тот же эффект. Например (см. рис. 3, б), зависимости для направления в плоскости  $XOY$ .  $Oy$  не является легкой осью, поэтому при полях больше поля спин–флопа переход наблюдается тогда, когда внешнее магнитное поле близко по направлению к оси  $Ox$ . Учет взаимодействия Дзялошинского–Мория приводит к тому, что это «направление спин–флопа» удаляется от направления легкой оси.

На графике температурной зависимости суммарного магнитного момента (см. рис. 4) можно увидеть, что сам этот момент увеличился при учете взаимодействия Дзялошинского–Мория. Это взаимодействие «увеличивает неколлинеарность» магнитных моментов ионов и дополнительно выводит их из плоскости  $ac$ , поэтому и возрастает слабый ферромагнетизм кристалла. По экспериментальным данным [16] слабый ферромагнитный момент в манганите лантана имеет величину  $\sim 0,1 \mu_B$ /ион. По другим данным в  $\text{La}_{1-x}\text{MnO}_3$  при малых  $x$  имеется магнитный момент  $\sim 0,5 \mu_B$ /ион [17].

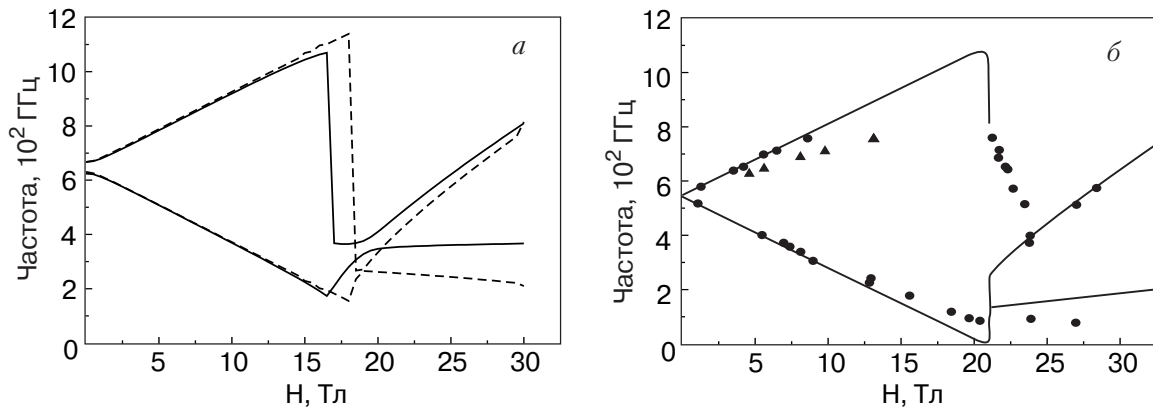


Рис. 2. Полевые зависимости частот АФМР.  $H \parallel O_x$ : без ДМ взаимодействия (---), с ДМ взаимодействием (—) (а); эксперимент (б) [6].

**Обсуждение**

Для анализа приведенных результатов обратимся к формуле (3). Если воспользоваться симметризованными компонентами намагниченностей, построив их как линейные комбинации подрешеточных намагниченностей [3,5]:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{F} &= \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 + \mathbf{M}_4, \\
 \mathbf{C} &= \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4, \\
 \mathbf{G} &= \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3 - \mathbf{M}_4, \\
 \mathbf{A} &= \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2 - \mathbf{M}_3 + \mathbf{M}_4,
 \end{aligned}
 \tag{5}$$

получим выражение (3) в виде

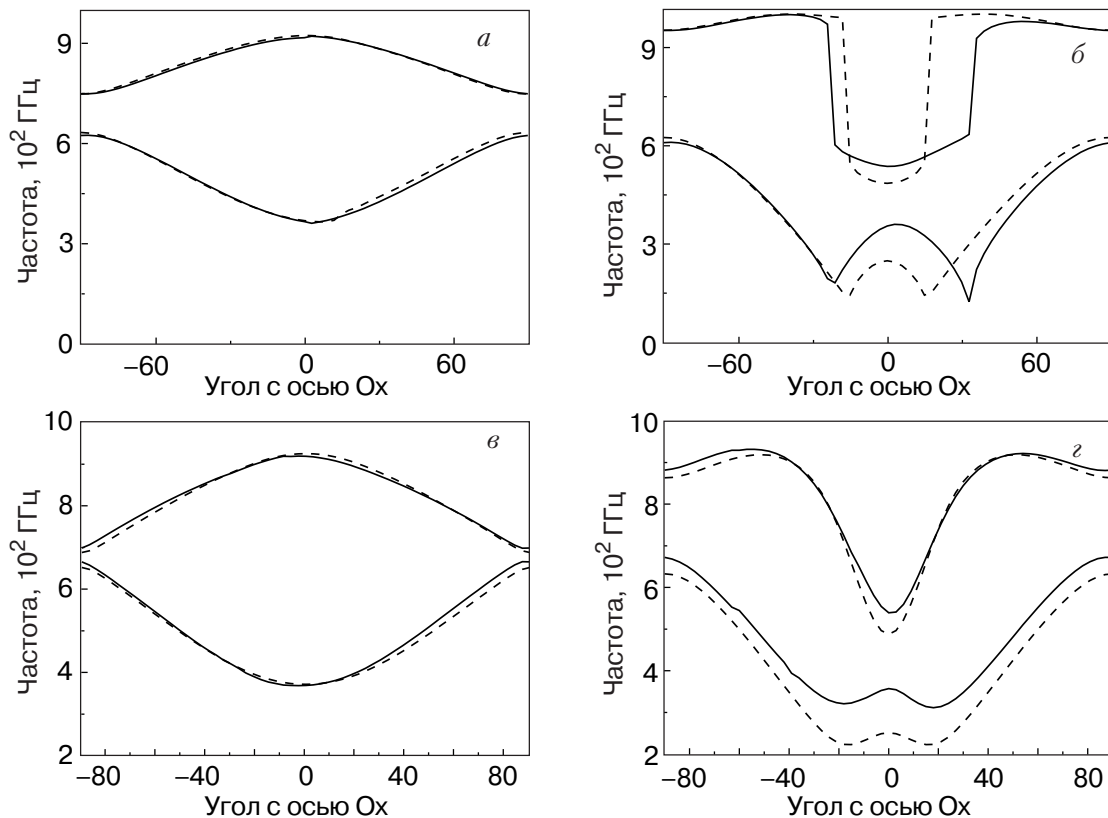


Рис. 3. Угловые зависимости частот АФМР: в плоскости  $XOY$  при  $H$ , кЭ: 100 (а), 230 (б); в плоскости  $XOZ$  при  $H$ , кЭ: 100 (в), 230 (г).  $H \parallel O_x$ , без ДМ взаимодействия (---), с ДМ взаимодействием (—).

$$\begin{aligned}
 V = & \mathbf{F}^2 \frac{1}{2} (E_{12} + E_{14}) + \mathbf{C}^2 \frac{1}{2} (E_{12} - E_{14}) + \mathbf{G}^2 \frac{1}{2} (-E_{12} - E_{14}) + \mathbf{A}^2 \frac{1}{2} (-E_{12} + E_{14}) + \\
 & + D_{12x} (F_z G_y - F_y G_z + A_y C_z - A_z C_y) + D_{12z} (A_x F_y - F_x A_y - C_x G_y + C_y G_x) + \\
 & + D_{14x} (A_z C_y - A_y C_z + F_z G_y - F_y G_z) + D_{14y} (F_x C_z - F_z C_x + A_x G_z - A_z G_x) - \\
 & - A_{xx} (F_x^2 + C_x^2 + G_x^2 + A_x^2) - A_{yy} (F_y^2 + C_y^2 + G_y^2 + A_y^2) - A_{zz} (F_z^2 + C_z^2 + G_z^2 + A_z^2) - \\
 & - A_{xy} (F_x A_y + F_y A_x + C_x G_y + C_y G_x) - A_{yz} (F_y G_z + F_z G_y + A_y C_z + A_z C_y) - \\
 & - A_{zx} (F_z C_x + F_x C_z + A_z G_x + A_x G_z) - g(\mathbf{H} \cdot \mathbf{F}).
 \end{aligned} \tag{6}$$

Здесь видно (6), что параметры одноионной анизотропии ( $A$ ) и параметры взаимодействия Дзялошинского–Мория ( $D$ ) стоят при одних и тех же произведениях симметризованных компонент вида  $F_i G_j$ ,  $F_i A_j$ ,  $F_i C_j$ ,  $G_i A_j$ ,  $G_i C_j$ ,  $A_i C_j$ . Поэтому четко разделить вклады от недиагональных членов одноионной анизотропии и от антисимметричного анизотропного обмена на эксперименте по АФМР не удастся.

Однако использованная нами модель (4) предполагает [10,13], что орбитально-зависимая одноионная анизотропия в локальных осях для каждого ( $n$ -го) иона  $Mn^{3+}$  имеет следующий вид:

$$H_{\text{anis}}^{(n)} = \tilde{D}_n S_{nzl}^2 + \tilde{E}_n (S_{nxl}^2 - S_{nyl}^2), \tag{7}$$

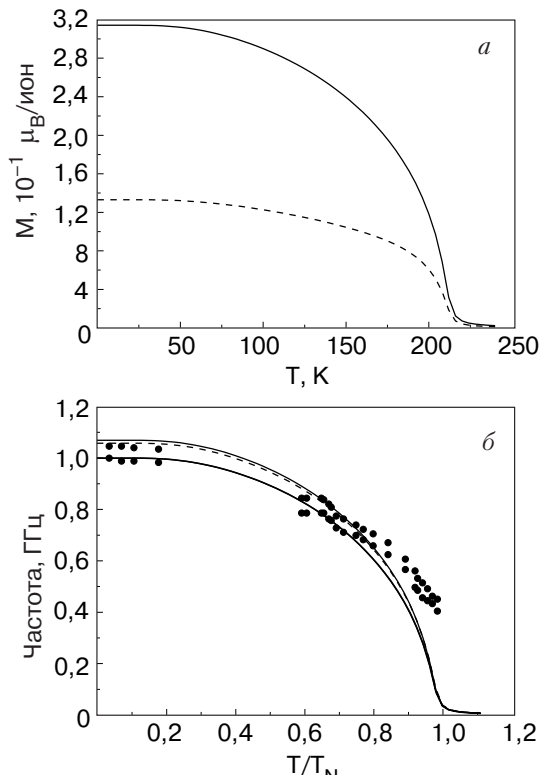


Рис. 4. Температурные зависимости суммарного магнитного момента  $M$  (а) и частот АФМР (б) в  $LaMnO_3$ .  $H = 0$  кЭ, без ДМ взаимодействия (---), с ДМ взаимодействием (—); эксперимент [15] (•).

$\tilde{D}_n$  и  $\tilde{E}_n$  – орбитально-зависимые параметры анизотропии в плоскости  $ac$  и вдоль оси  $b$  для  $n$ -го иона марганца соответственно; индекс  $l$  означает локальные оси, т.е. оси, связанные с осями кислородного октаэдра. При переходе к общекристаллическим осям ( $Pnma$ ) возникают как диагональные, так и недиагональные члены анизотропии, происходящие от одних и тех же параметров.

Таким образом, получается, что, задаваясь видом одноионной анизотропии, можно эффективно отделить вклад от ее недиагональных компонент в магнитную свободную энергию от подобного вклада от антисимметричного анизотропного обмена.

### Заключение

Опираясь на экспериментальные данные по кристаллической, орбитальной и магнитной структурам кристалла [7–9,12,16], а также на данные АФМР [6,11,15,17], получено выражение для магнитной свободной энергии (4), содержащее все значимые параметры магнитных взаимодействий для  $LaMnO_3$ . Ранее столь полного учета всех значимых взаимодействий для этого кристалла не производилось, за исключением, быть может, попытки авторов в работе [5]. Но, как уже отмечалось, результаты работы [5] не согласуются с экспериментальными данными [6,15].

Оказывается, что магнитная структура манганита лантана, наблюдаемая экспериментально,  $A_x F_y G_z$ , определяется одноионной анизотропией, тогда как взаимодействие Дзялошинского–Мория, хотя и вносит некоторые изменения в магнитную структуру, но не является определяющим эту струк-

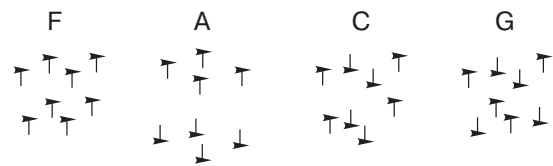


Рис. 5. «Чистые» магнитные структуры.

туру взаимодействиям, в отличие от ортоферритов, где оно является основным [4,16]. Его учет для манганита лантана не приводит к качественным изменениям в магнитной структуре этого кристалла и, как следствие, в спектре АФМР для него.

Работа поддержана грантами CRDF REC-005, РФФИ №04-02-96078 и РФФИ №04-02-16204.

1. А.Г. Гуревич, *Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках*, Наука, Москва (1973).
2. Дж. Сمارт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, Мир, Москва (1968).
3. G.F. Herrmann, *Phys. Rev.* **133**, A1334 (1964).
4. D. Treves, *Phys. Rev.* **125**, 1843 (1962).
5. В.Н. Криворучко, Т.Е. Примак, *ФНТ* **9**, 392 (2003).
6. S. Mitsudo, K. Hirano, H. Nojiri, M. Motokawa, K. Hirota, A. Nishizawa, N. Kaneko, and Y. Endoh, *J. Magn. Magn. Mater.* **177–181**, 877 (1998).
7. B. Salamon Myron, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 583 (2001).
8. F. Moussa, M. Hennion, J. Rodriguez-Carvajal, H. Moudden, L. Pinsard, and A. Revcolevschi, *Phys. Rev.* **B54**, 15149 (1996).
9. J. Murakami, J.P. Hill, D. Gibbs, M. Blume, I. Koyama, M. Tanaka, H. Kawata, T. Arima, Y. Tokura, K. Hirota, and Y. Endoh, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 582 (1998).
10. Л.Э. Гончарь, А.Е. Никифоров, *ФТТ* **42**, 1038 (2000).
11. D. Talbayev, L. Mihaly, and J. Zhou, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 017202 (2004).
12. Q. Huang, A. Santoro, J.W. Lynn, R.W. Erwin, J.A. Borchers, J.L. Peng, and R.L. Greene, *Phys. Rev.* **B55**, 14987 (1997).
13. Л.Э. Гончарь, А. Е. Никифоров, С.Э. Попов, *ЖЭТФ* **118**, 1411 (2000).
14. J. Deisenhofer, M.V. Eremin, D.V. Zakharov, V. A. Ivanshin, R.M. Eremina, H.-A. Krug von Nidda, A.A. Mukhin, A.M. Balbashov, and A. Loidl, *Phys. Rev.* **B65**, 104440 (2002).

15. V.Yu. Ivanov, V.D. Travkin, S.P. Lebedev, A.A. Volkov, A. Pimenov, A. Loidl, A.M. Balbashov, and A.V. Mozhaev, *J. Appl. Phys.* **83**, 7180 (1998).
16. K. Hirota, N. Kaneko, A. Nishizawa, and Y. Endoh, *J. Phys. Soc. Jpn.* **65**, 3736 (1996).
17. V. Markovich, I. Fita, A.I. Shames, R. Puzniak, E. Rozenberg, Ya. Yuzhelevski, D. Mogilyansky, A. Wisniewski, Ya.M. Mukovskii, and G. Gorodetsky, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, 3985 (2003).

### Antiferromagnetic resonance in $\text{LaMnO}_3$

A.A. Mozhegorov, L.E. Gonchar', and A.E. Nikiforov

The external magnetic field and temperature dependences of the magnetic structure and AFMR frequencies in  $\text{LaMnO}_3$  are studied. The recently developed model involving orbit-dependent superexchange and single-ion anisotropy interactions is used. The temperature dependence is described in the mean-field approximation in good agreement with experiments. Phase diagrams  $H-T$  in the main field directions ( $a, b, c$ ) are constructed. The problem of the origin of  $\text{Mn}^{3+}$  spins weak noncollinearity is solved. Also the optimal method of deriving an expression for magnetic free energy is proposed.

PACS: 75.10.Dg Crystal-field theory and spin Hamiltonians;  
**76.50.+g** Ferromagnetic, antiferromagnetic, and ferrimagnetic resonances; spin-wave resonance.

Keywords: manganites, Dzyaloshinsky–Moriya interaction, orbitally-dependent superexchange, magnetic structure.