

Спектр антиферромагнитного резонанса в LaMnO_3

В.Н. Криворучко, Т.Е. Примак

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины
ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина
E-mail: krivoruc@host.dipt.donetsk.ua

Статья поступила в редакцию 16 августа 2002 г.

Исследована существенно неколлинеарная магнитная структура, реализуемая в LaMnO_3 во внешнем магнитном поле, и определена полевая зависимость частот собственных магнитных колебаний системы. Показано, что пренебрежение взаимодействием Дзялошинского, аргументируемое рядом авторов малостью соответствующей константы спинового гамильтониана по сравнению с анизотропией, приводит к некорректному описанию динамики системы.

Досліджено суттєво неколінеарну магнітну структуру, яка реалізується в LaMnO_3 у зовнішньому магнітному полі, та визначено польову залежність частот власних магнітних коливань системи. Показано, що нехтування взаємодією Дзялошинського, яке аргументується рядом авторів тим, що відповідна константа спинового гамильтоніану є малою порівняно з анізотропією, призводить до некоректного опису динаміки системи.

PACS: 75.50.Ee, **76.50.+g**

Нейтроннографические исследования [1,2] положили начало изучению магнитной структуры манганита лантана. Авторами было обнаружено, что LaMnO_3 представляет собой слоистый антиферромагнетик А-типа со слабым ферромагнитным моментом. В дальнейшем этот слабый ферромагнетизм был подробно изучен и связан с наличием в кристалле взаимодействия Дзялошинского [3]. Новый всплеск интереса к этому веществу связан с открытием колоссального магнитосопротивления и открывающимися возможностями их практического применения. Сложная взаимозависимость между магнитными, зарядовыми, орбитальными и структурными упорядочениями требует для понимания поведения этого вещества всестороннего изучения свойств кристалла, и, в частности, его фундаментальных магнитных свойств.

Одним из мощных современных методов исследования динамических свойств магнитоупорядоченных веществ является метод магнитного резонанса. Изучение резонансных свойств манганита лантана [4–9] осложняется наличием в его спектре большой энергетической щели. Большая щель в спектре антиферромагнитного резонанса (АФМР), подтвержденная также экспериментами по рассеянию нейтронов [10], обусловлена большой величиной

одноосной анизотропии, что приводит к необычному для многоподрешеточных антиферромагнетиков соотношению констант спинового гамильтониана: $H_a \gg H_D$, где H_D — поле взаимодействия Дзялошинского, а H_a — поле одноосной анизотропии.

LaMnO_3 в четырех подрешеточной модели был исследован в [7,8] с точки зрения взаимодействия орбитальной и магнитной структуры, однако в этих работах был исключен из рассмотрения антисимметричный обмен H_D . Такое пренебрежение противоречит общим симметричным принципам и, как будет показано далее, искажает поведение магнитной структуры кристалла во внешнем магнитном поле.

В настоящем сообщении в рамках четырехподрешеточной модели исследована неколлинеарная магнитная структура, реализуемая в LaMnO_3 во внешнем магнитном поле, параллельном оси слабого ферромагнетизма и легкой оси кристалла. Проанализировано основное состояние LaMnO_3 и определена полевая зависимость частот собственных магнитных колебаний системы.

1. Как известно [1–3,11] (см. также ссылки в [12,13]), кристалл LaMnO_3 обладает искаженной структурой перовскита с кристаллографической группой $Pnma (D_{2h}^{16})$. При $T_N \sim 140$ К происходит фазовый переход из парамагнитной в антиферро-

магнитную (АФМ) фазу с *A*-типом упорядочения, когда внутри слоя магнитные моменты упорядочены ферромагнитно, а характер магнитного упорядочения между слоями — антиферромагнитный. Элементарная ячейка LaMnO_3 содержит четыре Mn^{3+} иона, находящихся в узлах $1(0,0,0)$, $2(1/2, 0, 1/2)$, $3(0, 1/2, 0)$, $4(1/2, 1/2, 1/2)$. Связав каждый ион с магнитным моментом μ , введем линейные комбинации подрешеточных намагниченностей (в обозначениях работы [14]):

$$\begin{aligned} M &= 4sm = \mu_1 + \mu_2 + \mu_3 + \mu_4, \\ L_1 &= 4sl_1 = \mu_1 - \mu_2 + \mu_3 - \mu_4, \\ L_2 &= 4sl_2 = \mu_1 + \mu_2 - \mu_3 - \mu_4, \\ L_3 &= 4sl_3 = \mu_1 - \mu_2 - \mu_3 + \mu_4, \end{aligned}$$

представляющие собой суммарную намагниченность и три возможных коллинеарных АФМ типа упорядочения *C*, *A* и *G*. Классификацию векторов относительно неприводимых представлений группы D_{2h}^{16} можно найти, например, в [14,15].

Исходя из симметричных соображений, можно записать инвариантное разложение гамильтониана по неприводимым спиновым операторам магнитной группы. Имеем:

$$\begin{aligned} \frac{1}{4M_0} \mathcal{H} &= -\frac{1}{2} H_{e2} l_2^2 + \frac{1}{2} H_{e0} m^2 + \frac{1}{2} H_{e1} l_1^2 + \frac{1}{2} H_{e3} l_3^2 + \\ &+ \frac{1}{2} \sum_i H_{ayi} l_{iy}^2 + \frac{1}{2} \sum_i H_{azi} l_{iz}^2 + H_{Dy} (m_x l_{1z} - m_z l_{1x}) + \\ &+ H_{Dz} (m_x l_{2y} - m_y l_{2x}) + H_{Dx} (m_y l_{3z} - m_z l_{3y}) - \mathbf{H} \cdot \mathbf{m}, \end{aligned} \quad (1)$$

где H_{ei} — эффективные поля обменного взаимодействия, H_{ai} — поля анизотропии, H_D — поля Дзялошинского, H — внешнее магнитное поле, $i = 1, 2, 3$.

Экспериментально установлено [3,10], что в отсутствие внешнего магнитного поля магнитные моменты направлены вдоль оси $\mathbf{a}(x)$. С учетом *A*-типа АФМ упорядочения это приводит к основному состоянию, характеризуемому векторами (m_y, l_{2x}, l_{3z}) . Минимизация магнитной энергии в модели (1) позволяет определить вектора основного состояния:

$$\begin{aligned} l_{2x} &\approx 1, \quad m_y \approx \frac{H_{Dx}}{(H_{e2} + H_{e0})}, \\ l_{3z} &\approx \frac{-H_{Dx} H_{Dz}}{(H_{e2} + H_{e0})(H_{e3} + H_{e2})}. \end{aligned} \quad (2)$$

В соответствии с [3,10] магнитная структура является четырехподрешеточной *A*-типа со слабым ферромагнетизмом ($m_y \sim H_D/H_e$) и антиферромагнетизмом *G*-типа. С учетом малости компоненты l_{3z} ($l_{3z} \sim (H_D/H_e)^2$) полученное из симметрий-

ных соображений основное состояние хорошо согласуется с экспериментом [1,3,12,13].

2. Рассмотрим случай, когда внешнее магнитное поле направлено вдоль оси $\mathbf{b}(y)$, т. е. параллельно слабому ферромагнитному (ФМ) моменту и перпендикулярно ФМ слоям. При этом основное состояние характеризуется тем же набором основных векторов (l_{2x}, m_y, l_{3z}) , что и в отсутствие внешнего магнитного поля, а их зависимость от поля при $H \ll H_e$ описывается выражениями:

$$\begin{aligned} l_{2x} &\approx 1, \quad m_y \approx \frac{H_{Dz} + H_y}{(H_{e2} + H_{e0})}, \\ l_{3z} &\approx \frac{-H_{Dx}(H_{Dz} + H_y)}{(H_{e2} + H_{e0})(H_{e3} + H_{e2})}. \end{aligned} \quad (3)$$

При увеличении внешнего магнитного поля магнитные моменты плавно поворачиваются вдоль него.

Динамические свойства системы описываются уравнениями Ландау–Лифшица для неприводимых векторов [16]. Линеаризуя их, находим собственные частоты магнитных возбуждений четырехподрешеточного LaMnO_3 во внешнем магнитном поле, параллельном оси слабого ФМ. С точностью до членов порядка H_D^2 имеем:

$$\begin{aligned} \omega_{ak1}^2 \gamma^{-2} &\approx (H_{e0} + H_{e2}) H_{a2y} + H_y (H_{Dz} + H_y); \\ \omega_{ak2}^2 \gamma^{-2} &\approx (H_{e0} + H_{e2}) (H_{a2z} + H_{Dz} m_y); \\ \omega_{opt1}^2 \gamma^{-2} &\approx [(H_{e1} + H_{e2} + H_{a1z} + H_{Dz} m_y) \times \\ &\times (H_{e3} + H_{e2} + H_{a3y} + H_{Dz} m_y) + m_y^2 (H_{e1} + H_{e2})^2]; \\ \omega_{opt2}^2 \gamma^{-2} &\approx [(H_{e1} + H_{e2} + H_{a1y} + H_{Dz} m_y) \times \\ &\times (H_{e3} + H_{e2} + H_{a3z} + H_{Dz} m_y) + m_y^2 (H_{e3} + H_{e2})^2]. \end{aligned} \quad (4)$$

В соответствии с принятой классификацией (см., например, [17]) две частоты АФМР являются акустическими ($\omega_{ak1}, \omega_{ak2}$), а две другие ($\omega_{opt1}, \omega_{opt2}$) — обменными модами. Отметим, что частоты ω_{ak1} и ω_{opt1} возбуждаются магнитным полем, параллельным осям легкого намагничивания и слабого ферромагнетизма ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}(x)$ и $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}(y)$), а частоты ω_{ak2} и ω_{opt2} — полем, перпендикулярным этим двум осям ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}(z)$).

Для количественного описания резонансных свойств примем следующие значения параметров спинового гамильтониана [4]: $H_{ei} \approx H_e = 33,9$ Тл, $H_{ai} \approx H_a = 5,3$ Тл, $H_{Dx} \approx H_{Dy} \approx H_{Dz} \approx H_D = 0,2$ Тл. Используя эти константы гамильтониана, мы построили зависимость частот АФМР от внешнего магнитного поля, направленного вдоль оси слабого ФМ. Результаты представлены на рис. 1. Две ниж-

ние ветви представляют собой акустические частоты, а верхняя кривая показывает зависимость от внешнего магнитного поля двух оптических ветвей, которые в рассматриваемом приближении для параметров гамильтониана совпадают.

3. Более сложным получается основное состояние в случае внешнего магнитного поля, направленного вдоль легкой оси кристалла \mathbf{a} (x). Теперь поле индуцирует появление компоненты вектора ферромагнетизма, параллельной направлению поля. В результате основное состояние кристалла характеризуется набором из шести основных векторов ($m_y, l_{2x}, l_{3z}, l_{2y}, m_x, l_{1z}$). Минимизация магнитной энергии дает такое значение векторов основного состояния:

$$\begin{aligned}
 l_{2x} &\approx 1, \quad m_y \approx \frac{H_{Dz} H_{a2y}}{H_{a2y}(H_{e2} + H_{e0}) - H_x^2}; \\
 l_{3z} &\approx \frac{-H_{Dx} H_{Dz} H_{a2y}}{[H_{a2y}(H_{e2} + H_{e0}) - H_x^2](H_{e3} + H_{e2})}; \\
 l_{2y} &\approx \frac{-H_{Dz} H_x}{H_{a2y}(H_{e2} + H_{e0}) - H_x^2}; \\
 m_x &\approx \frac{-H_x H_{Dz}^2}{[H_{a2y}(H_{e2} + H_{e0}) - H_x^2](H_{e0} + H_{e2})}; \\
 l_{1z} &\approx \frac{-H_x H_{Dz}^2 H_{Dy}}{[H_{a2y}(H_{e2} + H_{e0}) - H_x^2](H_{e1} + H_{e2})(H_{e3} + H_{e2})}.
 \end{aligned} \quad (5)$$

Модули векторов основного состояния удовлетворяют соотношениям $l_{2x} \gg m_y \gg l_{3z}$ и $l_{2y} \gg m_x \gg l_{1z}$. Компоненты векторов основного состояния (5) практически не меняются вплоть до некоторого критического поля H_{sf} , в котором происходит опрокидывание магнитных подрешеток перпендикулярно магнитному полю – так называемый спин-флоп переход. Поле абсолютной неустойчивости антиферромагнитной фазы $H_C > H_{sf}$ определяется выражением:

$$H_C = \frac{1}{2} \left[H_{Dz} + \sqrt{H_{Dz}^2 + 4(H_{e0} + H_{e1})H_{a2y}} \right]. \quad (6)$$

Численный анализ поведения векторов основного состояния (5) во внешнем магнитном поле показывает, что главный вектор антиферромагнетизма \mathbf{l}_2 направлен вдоль оси x вплоть до полей, близких к полю спин-флоп перехода. В окрестности фазового перехода I рода $l_{2x} \rightarrow 0$ и главный вектор антиферромагнетизма переориентируется в направлении оси y ($l_{2y} \rightarrow 1$). В поле H_C одна из акустических частот должна обращаться в нуль (см. ниже).

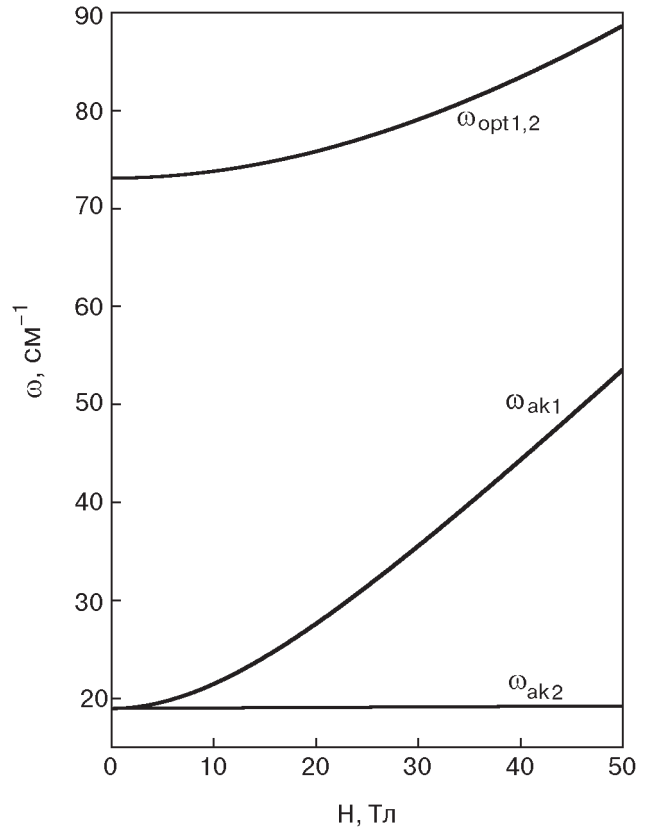


Рис. 1. Частотно-полевая диаграмма LaMnO_3 во внешнем магнитном поле вдоль оси слабого ферромагнетизма.

Существенно неколлинеарная магнитная структура, описываемая шестью компонентами неприводимых векторов (5), приводит к нетривиальной динамике системы, когда все четыре ветви АФМР связаны и возбуждаются переменным магнитным полем вдоль всех основных направлений в кристалле. Выражения для частот АФМР в этом случае имеют вид

$$\begin{aligned}
 \omega_{\text{ak}1}^2 \gamma^{-2} &\approx [(H_{e0} + H_{e2})H_{a2y} + H_x^2] (1 - l_{2y}^2); \\
 \omega_{\text{ak}2}^2 \gamma^{-2} &\approx (H_{e1} + H_{e0})H_{a2z} + H_x^2 + H_{Dz}^2 (1 + l_{2y}^2); \\
 \omega_{\text{opt}1}^2 \gamma^{-2} &\approx [(H_{e1} + H_{e2} + H_{a1z}) \times \\
 &\times (H_{e3} + H_{e2} + H_{a3y}) + H_x^2 + (H_{e1} + H_{e2} - \\
 &- H_{a2y} + H_{a1z})(H_{e3} + H_{e2} - H_{a2y})] l_{2y}^2; \quad (7) \\
 \omega_{\text{opt}2}^2 \gamma^{-2} &\approx [(H_{e1} + H_{e2} + H_{a1y}) \times \\
 &\times (H_{e3} + H_{e2} + H_{a3z}) + H_x^2 + (H_{e1} + H_{e2} - H_{a2y}) \times \\
 &\times (H_{e3} + H_{e2} - H_{a2y} + H_{a3z})] l_{2y}^2.
 \end{aligned}$$

Из выражений (5) и (6) видно, что при $H \rightarrow H_C$ компонента $l_{2y} \rightarrow 1$ и частота собственных магнит-

ных колебаний ω_{ak1} (7) обращается в нуль. Используя те же значения параметров системы, что и для построения рис. 1, мы воспроизвели зависимость частот АФМР для LaMnO_3 во внешнем магнитном поле, параллельном легкой оси кристалла (см. рис. 2). Верхняя кривая представляет частотно-полевою зависимость двух близких оптических ветвей (см. (7)), а две нижние ветви отражают поведение акустических частот в зависимости от внешнего магнитного поля вдоль легкой оси кристалла. Как это видно на рисунке, при приближении поля к значению H_C наблюдается резкое понижение частоты колебаний ω_{ak1} , связанное с приближением к границе абсолютной неустойчивости АФМ фазы.

Главным результатом проведенного анализа является то, что потери устойчивости антиферромагнитной фазы ($\omega_{\text{ak1}} \rightarrow 0$) не происходит, если пренебречь взаимодействием Дзялошинского. В этом случае частоты АФМР монотонно возрастают при увеличении внешнего магнитного поля и особенностей, характерных для спин-флор перехода, частотно-полевая диаграмма не обнаруживает. Таким образом, при рассмотрении динамики манганита лантана пренебрежение взаимодействием Дзялошинского, аргументируемое рядом авторов малостью соответствующей константы спинового гамильтониана по сравнению с константами анизотропии, может привести к некорректным результатам.

Авторы выражают благодарность Ю.Г. Пашкевичу за полезное обсуждение работы.

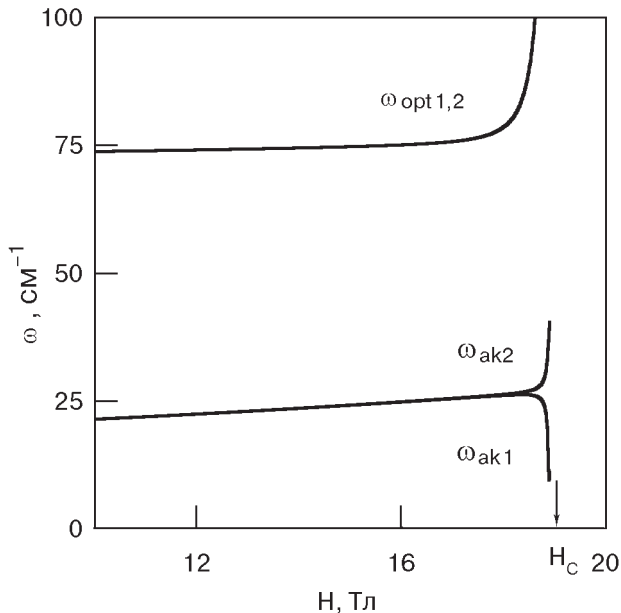


Рис. 2. Зависимость резонансных частот четырехподрешеточного манганита лантана от внешнего магнитного поля вдоль направления легкой оси кристалла. Стрелкой указано значение поля $H_C = 19$ Тл.

1. E.O. Wollan and W.C. Koehler, *Phys. Rev.* **100**, 545 (1955).
2. J.B. Goodenough, *Phys. Rev.* **100**, 564 (1955).
3. G. Matsumoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **29**, 606 (1970).
4. V.Yu. Ivanov, V.D. Travkin, A.A. Mukhin, S.P. Lebedev, and A.A. Volkov, *J. Appl. Phys.* **83**, 7180 (1998).
5. S. Mitsudo, K. Hirano, H. Nogiri, M. Motokawa, K. Hirota, A. Nishizawa, N. Kaneko, and Y. Endoh, *J. Magn. Magn. Mater.* **177–181**, 877 (1998).
6. A. Pimenov, M. Biberacher, D. Ivannikov, A. Loidl, V.Yu. Ivanov, A.A. Mukhin, and A.M. Balbashov, *Phys. Rev.* **69**, 5685 (2000).
7. Л.Э. Гончарь, А.Е. Никифоров, С.Э. Попов, *ЖЭТФ* **118**, 1411 (2000).
8. Л.Э. Гончарь, А.Е. Никифоров, С.Э. Попов, Ю.В. Лескова, *ФТТ* **42**, 1038 (2000).
9. А.М. Балбашов, М. К. Губкин, В.В. Киреев, О.К. Мельников, Т.М. Перкалина, С.В. Пушко, Л.Е. Свистов, А.Я. Шапиро, *ЖЭТФ* **117**, 542 (2000).
10. F. Moussa, M. Hennion, J. Rodriguez-Carvajal, and H. Moudden, *Phys. Rev.* **B54**, 15149 (1996).
11. I. Solovyov, N. Hamada, and K. Terakura, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4825 (1996).
12. Э.Л. Нагаев, *УФН* **166**, 833 (1996).
13. В.М. Локтев, Ю.Г. Погорелов, *ФНТ* **26**, 231 (2000).
14. Fan Zhong and Z.D. Wang, *Phys. Rev.* **B60**, 11883 (1999).
15. Е.А. Туров, *Физические свойства магнитоупорядоченных кристаллов*, Изд-во АН СССР, Москва (1963).
16. В.Г. Барьяхтар, И.М. Витебский, Д.А. Яблонский, *ЖЭТФ* **76**, 1381 (1979).
17. А.И. Звягин, М.И. Кобец, В.Н. Криворучко, А.А. Степанов, Д.А. Яблонский, *ЖЭТФ* **89**, 2298 (1985).

The antiferromagnetic resonance spectrum in LaMnO_3

V.M. Krivoruchko and T.Yu. Prymak

The substantially noncollinear structure realized in LaMnO_3 in external magnetic field is studied. A field diagram of the natural magnetic oscillations of the system is constructed. It is shown that the neglect of Dzyaloshinskii interaction, which, as argued by some authors, is due to the small value of the corresponding constant of the spin Hamiltonian as compared to the anisotropy one, leads to an incorrect description of the system dynamics.