

Аномально сильная релаксация поляризации мюонов в магнитоупорядоченном и парамагнитном состояниях мультиферроика $TbMnO_3$

Д. С. Андриевский[+], С. И. Воробьев[+1)], А. Л. Геталов[+], Е. И. Головенчиц[*], Е. Н. Комаров[+], С. А. Котов[+], В. А. Санина[*], Г. В. Щербаков[+]

[+]*Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова Национального исследовательского центра "Курчатовский институт", 188300 Гатчина, Россия*

[*]*Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 21 ноября 2016 г.
После переработки 7 июля 2017 г.

В мультиферроике $TbMnO_3$ с помощью μSR-метода в магнитоупорядоченном состоянии ниже температуры Нееля (42 K) обнаружена аномально сильная релаксация поляризации мюонов. Такая релаксация обусловлена включением мюониевого канала релаксации поляризации и взаимодействием магнитного момента мюона с неоднородностями внутреннего магнитного поля упорядоченного состояния в виде циклоиды. Выше температуры Нееля, начиная с температур, зависящих от приложенного магнитного поля, обнаружено двухфазное состояние, одна из фаз которого обладала аномально сильной релаксацией поляризации мюонов для парамагнитного состояния. Данные особенности парамагнитного состояния обусловлены наличием областей ближнего магнитного порядка, возникающих в сильно фрустрированном $TbMnO_3$. Истинное парамагнитное состояние наблюдалось лишь при $T \geq 150$ K.

DOI: 10.7868/S0370274X17170039

1. Введение. Мультиферроики принадлежат к классу соединений, в которых сосуществуют магнитное и сегнетоэлектрическое упорядочения. Особый интерес представляют мультиферроики-манганиты $R\mathrm{MnO_3}$ и $R\mathrm{Mn_2O_5}$, в которых сегнетоэлектрическое упорядочение индуцируется специальным типом магнитного порядка, понижающего симметрию кристалла до нецентросимметричной. Данные мультиферроики-манганиты обладают гигантским магнито-электрическим эффектом, что привлекает к ним внимание исследователей [1–7]. Изучение особенностей магнитной структуры таких мультиферроиков является ключевым для понимания их полярных и структурных состояний. Как известно, μSR-метод дает информацию о локальных внутренних полях магнетиков, в которых останавливаются мюоны. Ранее нами проводилось исследование магнитной структуры $R\mathrm{Mn_2O_5}$ ($R=$ Eu, Gd) μSR-методом [8–10]. Основной особенностью $R\mathrm{Mn_2O_5}$ является наличие равного количества ионов Mn^{3+} и Mn^{4+}, и распределение таких ионов в решетке (зарядовое упорядочение) определяет как магнитные, так и сегнетоэлектрические свойства $R\mathrm{Mn_2O_5}$ [5]. В работах [8, 9] было показано, что на свойства релаксации мюонов в $R\mathrm{Mn_2O_5}$ и легированного образца $Eu_{0.8}Ce_{0.2}Mn_2O_5$ [10] действительно большое влияние оказывают пространственное распределение ионов Mn^{3+} и Mn^{4+} и перенос заряда (делокализованных e_g-электронов) между ними.

В представленной работе приведены результаты исследования релаксации поляризации мюонов в $TbMnO_3$, имеющем при комнатной температуре орторомбическую симметрию (пр. гр. $Pbnm$) с параметрами решетки $a = 5.3$ Å, $b = 5.68$ Å, $c = 7.49$ Å [1]. Ионы Mn^{3+} находятся в октаэдрическом кислородном окружении и содержат в 3d-оболочке три локализованных t_{2g}-электрона и один делокализованный e_g-электрон. Основное состояние иона Tb^{3+} ($^7F_6$, $S = 3$, $L = 3$) характеризуется большим магнитным моментом ($J = 9\mu_\mathrm{B}$), в который вносят вклад как спиновый, так и орбитальный моменты, и сильной спин-орбитальной связью. Обычно ионы Tb^{3+} описывают в крайне сильном анизотропном изинговском приближении, жестко фиксирующем ориентацию их моментов в плоскости ab [11].

Для магнитной структуры $TbMnO_3$ характерны синусоидальные и циклоидные спиновые состояния в Mn^{3+}-подсистеме, а также наличие упо-

1)e-mail: Vorobyev_SI@pnpi.nrcki.ru

рядочения в подсистеме ионов Tb^{3+}, связанных с Mn^{3+}-подсистемой Tb–Mn обменным взаимодействием. Магнитная структура подробно была изучена в работах по рассеянию неполяризованных и поляризованных нейтронов, а также по рентгеновскому резонансному магнитному рассеянию [12]. По мере понижения температуры $TbMnO_3$ испытывает три фазовых перехода. При температуре $T_N = 42$ K устанавливается дальний магнитный порядок в виде синусоидальной антиферромагнитной структуры вдоль оси b. При температуре $T_S = 28$ K магнитная структура Mn-подсистемы трансформируется в спиральную циклоиду с вращением спинов в bc-плоскости по мере смещения вдоль оси b и упорядоченных антиферромагнитно вдоль оси c. Одновременно при $T \leq T_S$ появляется упорядочение моментов ионов Tb^{3+} с той же периодичностью, что и для спинов ионов Mn^{3+}. В Tb^{3+}-подсистеме при этом появляется магнитный момент вдоль оси c [12]. При $T_S \approx T_{FE}$ также возникает сегнетоэлектрическое упорядочение вдоль оси c. Включение Tb–Tb обмена ниже $T_{N2} = 7$ K приводит к частичной перестройке упорядоченных Mn^{3+}- и Tb^{3+}-подсистем.

Поликристаллический образец $TbMnO_3$ изучали ранее с помощью μSR-метода [13], но методические ограничения не позволили авторам этой работы получить надежные результаты в области температур магнитоупорядоченного состояния.

Нами с помощью μSR-метода исследован керамический образец $TbMnO_3$ в области температур от 15 K до 290 K. Получена функция релаксации поляризации мюона и найдены ее параметры (асимметрия, релаксация поляризации и частота прецессии спина мюона во внутреннем магнитном поле образца). Результаты таких исследований оказались качественно отличными от тех, которые были получены для RMn_2O_5 и $Eu_{0.8}Ce_{0.2}Mn_2O_5$ [8–10], также как и для наиболее близких по симметрии манганитов-перовскитов $LaMnO_3$ и $La_{1-x}Ca_xMnO_3$ [14, 15]. В этих работах в основном изучали релаксацию поляризации мюонов ниже температуры магнитного упорядочения, а парамагнитное состояние было обычным однофазным со слабой релаксацией поляризации. Вблизи температуры перехода T_N наблюдались узкие интенсивные максимумы скорости релаксации. Только в легированных образцах $Eu_{0.8}Ce_{0.2}Mn_2O_5$ и $La_{1-x}Ca_xMnO_3$ при температурах ниже $T = T_N$ возникало расслоение на две фазы с разными скоростями релаксации поляризации, обусловленное фазовым расслоением (на антиферромагнитную диэлектрическую и проводящую ферромагнитную фазы), характерным для манганитов-перовскитов $LaAMnO_3$ ($A =$ Sr, Ba, Ca) [16, 17]. При этом одна из фаз (ферромагнитная проводящая) обладала повышенной скоростью релаксации поляризации мюонов.

В данной работе в магнитоупорядоченном состоянии (ниже температуры $T_N = 42$ K) было обнаружено резкое усиление релаксации поляризации мюонов. Выше температуры $T_N = 42$ K в парамагнитной фазе вплоть до 150 K наблюдаемые параметры релаксации поляризации мюонов свидетельствовали о том, что состояние образца не является обычным парамагнитным состоянием и его удалось описать лишь в предположении существования двухфазного состояния образца, одна из фаз которого содержит ограниченные невзаимодействующие магнитоупорядоченные области с повышенной релаксацией поляризации мюонов во внутренних полях этих областей. Истинное парамагнитное состояние наблюдалось лишь при температурах $T > 150$ K.

2. Постановка эксперимента. Метод обработки экспериментальных данных. Для исследования образца $TbMnO_3$ использована μSR-установка [18], которую располагали на выходе мюонного канала синхроциклотрона ПИЯФ. Временные спектры позитронов распада мюонов измерялись одновременно в двух диапазонах (0–10 мкс и 0–1.1 мкс) с ценой канала 4.9 нс/канал и 0.8 нс/канал соответственно.

Образец $TbMnO_3$ диаметром 30 мм и толщиной 12 мм был изготовлен в виде керамического диска по технологии твердофазного синтеза. Размеры зерен его структуры составляли несколько десятков микрометров, а однородность образца и его однофазность проверяли с помощью рентгеновского фазового анализа.

Измеренные временные спектры позитронов распада описывали с помощью выражения:

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

где N_0 – нормировочная константа, τ_μ – время жизни мюона, a_s и a_b – асимметрии позитронов от распада мюонов, остановившихся в образце (a_s) и в конструктивных элементах установки (a_b); $G_s(t)$ и $G_b(t)$ – соответствующие функции релаксации поляризации мюонов, B – фон случайных совпадений.

Вклад фона случайных совпадений B определяли из анализа области временного спектра до момента остановки мюона в образце (в этой области отсутствуют события как от образца, так и фоновые события от конструктивных элементов установки).

Параметры фоновой функции релаксации $G_b(t)$ от конструктивных элементов получали из обработки спектров прецессии мюона во внешнем магнитном поле ($H \approx 280$ Гс) при некоторой температуре $T < T_N$:

$$G_b(t) = \exp(-\lambda_b t) \cdot \cos(\Omega_b t).$$

В этом случае на частоте прецессии во внешнем магнитном поле наблюдается только вклад от конструктивных элементов.

Для функции релаксации поляризации мюонов в образце использовали стандартное представление:

$$G_s(t) = G_{\mathrm{d}}(t) \cdot G_{\mathrm{st}}(t),$$

где $G_{\mathrm{d}}(t) = e^{-\lambda t}$ – динамическая функция релаксации, описывающая влияние флуктуаций магнитного поля в образце на поляризацию мюона в течение времени его термализации в образце, а $G_{\mathrm{st}}(t)$ – статическая функция релаксации, вид и параметры которой зависят от распределения локальных магнитных полей в тех зонах, где предпочтительно происходит локализация мюона после его замедления и термализации в образце.

Асимметрия a_s на образце будет рассматриваться как остаточная в том смысле, что она может отличаться от начальной асимметрии a_0 в парамагнитной области, и это отличие отражает появление дополнительных каналов деполяризации мюона при изменении температуры образца. Параметр a_0 определяли из обработки временных спектров прецессии, полученных во внешнем магнитном поле, когда образец находился при комнатной температуре в парамагнитном состоянии.

Параметры функции релаксации находили из экспериментальных временных спектров, измеренных как в нулевом $H = 0$, так и во внешнем $H = 280$ Гс магнитных полях.

3. Результаты измерений и их анализ. При комнатной температуре образец $TbMnO_3$ ведет себя как парамагнетик. В нулевом магнитном поле ($H = 0$) процесс релаксации поляризации мюона описывается функцией $G_s(t) = \exp(-\lambda t)$ с асимметрией a_s. При включении поперечного внешнего магнитного поля ($H = 280$ Гс) наблюдается прецессия магнитного момента мюона с частотой $F = \gamma H \approx 3.8 \cdot 10^3$ кГц, $\gamma = 13.5544$ кГц/Гс, полученной из функции релаксации поляризации мюона $G_s(t) = \exp(-\lambda t)\cos(\Omega t)$ с амплитудой a_0 и угловой частотой $\Omega = 2\pi F$. Такое парамагнитное состояние образца сохраняется вплоть до $T \approx 150$ К. В этом состоянии частота прецессии F (рис. 1) не зависит от температуры, скорость релаксации λ остается на низком уровне ($\lambda \approx 0.4$ мкс$^{-1}$, рис. 2, 3), сохраняется нормированная асимметрия $a_s/a_0 \approx 1.0$ (рис. 4, 5).

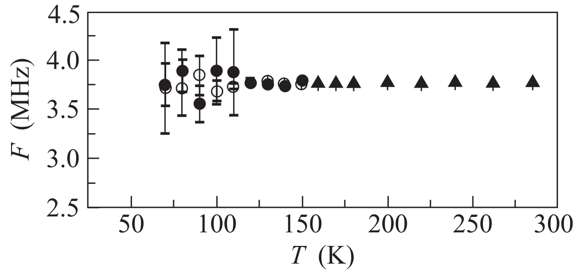

Рис. 1. Температурная зависимость частот F_i $(i = 1, 2)$ прецессии магнитного момента мюона во внешнем магнитном поле $H = 280$ Гс; $T > 150$ К – темные треугольники; $T < 150$ К: $i = 1$ – светлые точки; $i = 2$ – темные точки

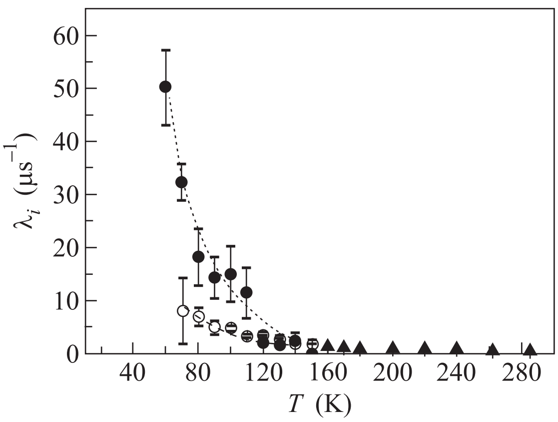

Рис. 2. Температурная зависимость параметра релаксации λ во внешнем магнитном поле $H = 280$ Гс; $i = 1$ – светлые точки; $i = 2$ – темные точки

При температурах $150\,\mathrm{K} > T > T_N$ не удается адекватно описать процесс деполяризации мюонов простой функцией релаксации $G_s(t)$ с одной скоростью релаксации λ и одним параметром асимметрии.

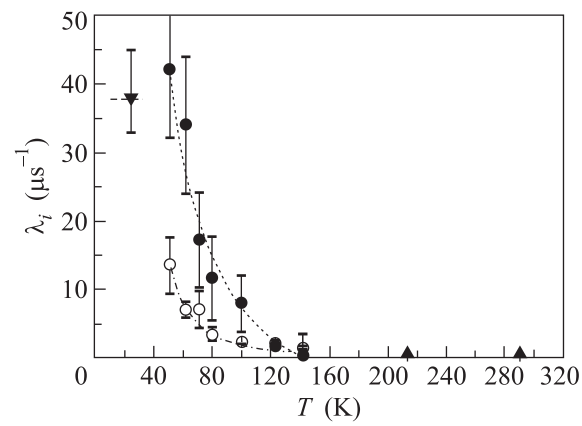

Рис. 3. Температурная зависимость параметра релаксации λ в нулевом внешнем магнитном поле $H = 0$; $i = 1$ – светлые точки; $i = 2$ – темные точки; темный треугольник соответствует значению параметра λ в области $15\,\mathrm{K} < T < 30\,\mathrm{K}$

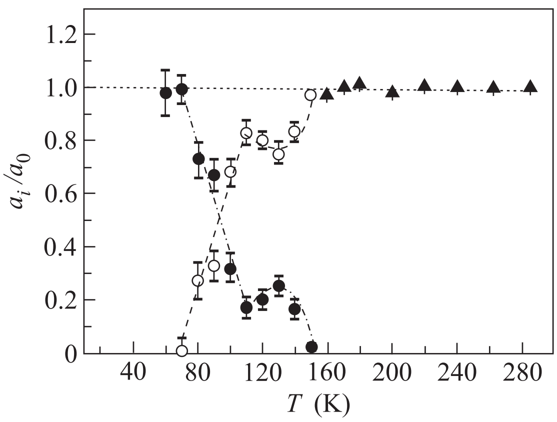

Рис. 4. Температурная зависимость нормированных парциальных вкладов в асимметрию распада мюона во внешнем магнитном поле $H = 280$ Гс; $T > 150$ K – темные треугольники; $50\,\mathrm{K} < T < 150\,\mathrm{K}$: $i = 1$ – светлые точки; $i = 2$ – темные точки

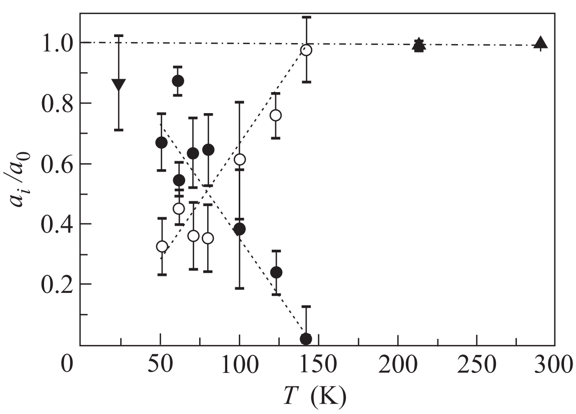

Рис. 5. Температурная зависимость нормированных парциальных вкладов в асимметрию распада мюона в нулевом внешнем магнитном поле $H = 0$; $T > 150$ K – темные треугольники; $50\,\mathrm{K} < T < 150\,\mathrm{K}$: $i = 1$ – светлые точки; $i = 2$ – темные точки; темный треугольник соответствует значению параметра a_s в области $15\,\mathrm{K} < T < 30\,\mathrm{K}$

Необходимо включить добавочный член в функцию $G_s(t)$ в виде $\sim a_2 \exp(-(\lambda_2 t)^\beta)$:

$$a_s G_s(t) = a_1 \exp(-\lambda_1 t) \cos(\Omega_1 t) +$$
$$+ a_2 \exp(-(\lambda_2 t)^\beta) \cos(\Omega_2 t), \quad H \neq 0;$$
$$a_s G_s(t) = a_1 \exp(-\lambda_1 t) + a_2 \exp(-(\lambda_2 t)^\beta),$$
$$\beta = 1/2, \quad H = 0.$$

Таким образом, структура образца оказалась двухфазной (фазы $i = 1, 2$).

Параметр β для фазы 2 подбирался так, чтобы полная асимметрия $a_1 + a_2$, когда параметры a_1 и a_2 определяются независимо, сохранялась во всем температурном диапазоне существования двухфазного состояния и равнялась a_0. Данное необходимое условие для парамагнитной фазы удалось выполнить, если $\beta = 1/2$. Затем окончательно определяют параметры функции релаксации обеих фаз. Первые слагаемые (фаза 1) имеют вид, характерный для парамагнитной фазы. Вторая фаза также должна быть парамагнитной, но может содержать ограниченные невзаимодействующие области с магнитными корреляциями. Отметим, что ранее при обработке данных μSR-исследования разбавленного неупорядоченного магнетика было использовано аналогичное выражение (с показателем $\beta = 1/2$) [19].

Расслоение образца на две фазы при понижении температуры сохранялось вплоть до температур, зависящих от внешнего магнитного поля (см. рис. 4 и 5). В магнитном поле $H = 280$ Гс эта температура равнялась $T = 70{-}80$ K, в то время как в нулевом магнитном поле ($H = 0$) она была заметно ниже: $T \approx 50$ K. Вблизи нижней температурной границы сосуществования фаз скорость релаксации $\lambda_1 = 8{-}12\,\text{мкс}^{-1}$, что значительно ниже $\lambda_2 = 40{-}50\,\text{мкс}^{-1}$. Ниже этих граничных температур продолжает существовать лишь фаза 2 вплоть до температуры T_N, т.е. она определяет особенности критической области вблизи перехода. Сильная релаксация поляризации мюонов в критической области указывает на возникновение нестабильных областей с большой неоднородностью внутреннего магнитного поля. Включение внешнего поля стабилизирует фазу 2, увеличивает скорость релаксации λ_2 и затягивает критическую область вплоть до 70 K (см. рис. 2 и 3). На рис. 4 и 5 приведены температурные зависимости нормированных парциальных вкладов в асимметрию распада мюонов в поле $H = 0$ и $H = 280$ Гс соответственно. Расслоение на две фазы для асимметрий фиксируется вплоть до тех же температур, что и для скоростей релаксации.

Обращает на себя внимание тот факт, что скорость релаксации фазы 2 аномально высока для парамагнитной фазы и слабо изменяется от приложения внешнего магнитного поля (см. рис. 2 и 3). Следовательно, состояние этой фазы прежде всего определяется внутренним полем, значительно превышающим внешнее. Вероятнее всего фаза 2, оставаясь парамагнитной, представляет собой невзаимодействующие изолированные области с магнитным порядком в исходной парамагнитной матрице. Такое состояние существует вплоть до температуры $T = 150$ K, выше которой состояние фазы 2 термическими флуктуациями превращается в обычное парамагнитное и параметры фаз 1 и 2 становятся подобными (см. рис. 2–5).

При понижении температуры образца ($T < 150$ K) происходит перераспределение между вкладами от фаз 1 и 2 в наблюдаемую асимметрию (см. рис. 4, 5). При этом сумма парциальных асимметрий в диапазоне температур 50–150 K остается постоянной величиной, равной начальной асимметрии a_0. Внешнее магнитное поле приводит к появлению коррелированных аномалий асимметрий обеих фаз в области температур 100–150 K и к более высокотемпературному исчезновению фазы 1 при понижении температуры.

Необходимо подчеркнуть, что для $TbMnO_3$ в рамках гипотезы с двумя экспонентами (типа $\sim e^{-\lambda t}$), как это было принято в [14, 15] для $LaMnO_3$ и $La_{1-x}Ca_xMnO_3$, выполнение условия $a_0 \approx a_1 + a_2$ обеспечить невозможно.

При $T \leq T_N = 42$ K образец переходит в магнитоупорядоченное состояние, в котором функция релаксации поляризации мюонов имеет вид

$$G_s(t) = [1/3 + 2/3\exp(-\Delta t)\cos(\Omega t)]\exp(-\lambda t).$$

Здесь $\Omega = 2\pi F$ – частота прецессии магнитного момента мюона во внутреннем магнитном поле, λ и Δ – динамическая скорость релаксации поляризации мюонов и дисперсия соответственно.

Как отмечалось выше, изучение этой области температур затруднительно из-за сильной релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образце $TbMnO_3$, и измерения были проведены лишь при нескольких температурах в диапазоне 15–30 K. Так как параметры Δ, Ω, λ и асимметрии a_s при $T < T_N$ в некотором удалении от критической области обычно мало меняются, нами в области температур 15–30 K была проведена совместная обработка всех измеренных спектров и получены следующие усредненные по этой области температур значения параметров функции релаксации:

$$\lambda = (38 \pm 5)\,\text{мкс}^{-1}, \quad \Omega = 2\pi F = 2\pi(22 \pm 0.6)\,\text{МГц},$$

$$\Delta = (30 \pm 4)\,\text{МГц}, \quad a_s = 0.22 \pm 0.04.$$

На рис. 6 показано поведение функций релаксации поляризации мюонов в образце в нулевом внешнем магнитном поле в интервале температур 15–30 K (нижний спектр, светлые точки) и при температуре 290 K (верхний спектр, светлые треугольники). Как следует из рис. 6, в области магнитного упорядочения при значительном удалении от критической области остается сильная релаксация поляризации мюонов.

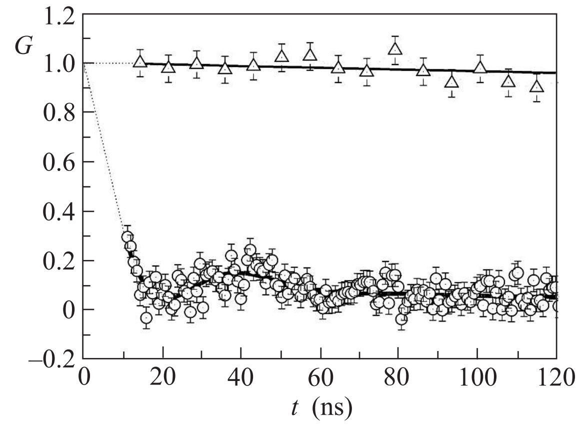

Рис. 6. Функции релаксации $G(t)$ в нулевом внешнем магнитном поле $H = 0$ при температуре $T = 290$ K (светлые треугольники) и в диапазоне температур $T = 15-30$ K (светлые точки); пунктирные линии – экстраполяция к точке $t = 0$ (“0”-времени); сплошные линии – результат моделирования

Из обработки спектра прецессии магнитного момента мюона во внешнем магнитном поле $H = 280$ Гс в парамагнитном состоянии образца ($T = 290$ K) была получена асимметрия, равная $a_0 = 0.252 \pm 0.006$. Поскольку значения a_s и a_0 в пределах ошибок совпадают, можно полагать, что в температурной области 15–30 K есть только один канал релаксации поляризации мюонов, который удовлетворительно описывается использованной в обработке функцией релаксации $G_s(t)$. Исходя из этих результатов, можно оценить внутреннее магнитное поле H и его пространственную дисперсию Δ_H в области температур 15–30 K в местах локализации мюона: $H = (1.62 \pm 0.04)$ кГс, $\Delta_H = (0.35 \pm 0.05)$ кГс. Отметим очень большую дисперсию Δ_H, свидетельствующую о большой неоднородности внутреннего магнитного поля ($\Delta_H/H \approx 0.22$).

Большую скорость динамической релаксации поляризации мюонов в $TbMnO_3$ в области температур $T < T_N$ можно объяснить с помощью мюониевого канала релаксации поляризации [20]. Все ионы Mn в $TbMnO_3$ трехвалентны и содержат по одному e_g-электрону. В интересующей нас области температур (15–30 K) спины ионов марганца упорядочены в виде циклоиды. Такое состояние формируется при учете взаимодействия Дзялошинского–Мория, двойного обмена, обмена Хунда, и эффекта Яна–Теллера [21]. В состоянии циклоиды спины ионов Mn^{3+} одинаковы и сохраняется угол $\theta = 0.28\pi = 50.4^\circ$ между спинами ближайших пар этих ионов на периоде циклоиды [21]. Двойной обмен $J_{\mathrm{de}} = t\cos(\theta/2)$, ответственный за перенос e_g-электронов между ионами Mn^{3+}, приводит к образованию атомов мюония $\mathrm{Mu} = \mu^+ + e_g$.

Интеграл переноса для e_g-электрона $t \approx 300$ мэВ [17], а $\cos(\theta/2) \approx 0.9$. Таким образом, двойной обмен между двумя соседними ионами Mn^{3+} ослабляется в циклоиде несущественно по сравнению с ферромагнитным состоянием и возможность образования мюония существует.

Мюониевый механизм деполяризации мюонов возникает в результате взаимодействия e_g-электрона мюония с неоднородным внутренним магнитным полем спинов ионов Mn^{3+} в циклоиде. При этом деполяризация спина мюона в мюонии осуществляется через сверхтонкое взаимодействие в атоме мюония. Этот механизм работает для всех остановившихся в образце мюонов. Частота сверхтонкого расщепления в свободном атоме мюония $\nu_0 = \omega_0/2\pi \approx 4.46 \cdot 10^9$ Гц [22]. Характерная же частота для двойного обмена $J_{\mathrm{de}} \approx 270$ мэВ составляет $\nu = 6.6 \cdot 10^{13}$ Гц. Стохастическое изменение проекции спина электрона передается спину мюона в мюонии, если $\nu \leq \nu_0$ [22]. В случае быстрого обмена, когда $\nu \gg \nu_0$, сверхтонкая связь в мюонии разрывается. При этом возникает прямое взаимодействие спинов мюонов со стохастическими внутренними магнитными полями циклоиды, которые обуславливают измеренную нами довольно большую поперечную компоненту функции релаксации (большая дисперсия Δ). Высокая частота переориентации спинов e_g-электронов при возникновениях и разрывах сверхтонкого взаимодействия в мюонии приводит к экспоненциальной релаксации продольной поляризации мюонов. Для скорости затухания продольной компоненты λ при $\nu \gg \nu_0$ было получено выражение [20, 22]:

$$\lambda = (\omega_0^*)^2/4\nu,$$

где ω_0^* – частота сверхтонкого расщепления мюония в среде, ν – частота переориентации спина электрона в мюонии. Частота сверхтонкого расщепления в среде ω_0^* может быть меньше вакуумного значения, но для оценки положим $\omega_0^* = \omega_0$. Из экспериментальной величины $\lambda = 38\,\text{мкс}^{-1}$ получаем значение $\nu = 5.2 \cdot 10^{12}$ Гц. Уменьшение этой частоты по сравнению с характерным значением $\nu = 6.6 \cdot 10^{13}$ Гц для двойного обмена можно объяснить тем фактом, что часть мюонов формирует поперечную компоненту функции релаксации. Таким образом, наблюдаемую сильную продольную релаксацию мюонов в $TbMnO_3$ в состоянии спиновой циклоиды действительно можно связать с большой частотой переориентации спинов e_g-электронов мюония при учете двойного обмена.

Обращает на себя внимание большая скорость релаксации как в магнитоупорядоченной, так и в ближней парамагнитной областях (см. рис. 2 и 3), что указывает на подобие внутренних магнитных полей, определяющих параметры функции релаксации. По-видимому, при $T > T_N$ мы имеем дело с областями ближнего порядка с симметрией, близкой к той, которая существует в упорядоченном состоянии. Появление ближнего порядка обусловлено фрустрациями магнитного состояния $TbMnO_3$. Такие фрустрации могут вызываться тем, что среди основных взаимодействий, ответственных за магнитное состояние $TbMnO_3$ [5, 6], оказываются конкурирующие взаимодействия. Конкуренция ферромагнитного обменного взаимодействия ближайших соседних спинов ионов Mn^{3+} в ab-плоскости и антиферромагнитного взаимодействия между спинами, следующими за ближайшими в этой же плоскости, приводят к неколлинеарной антиферромагнитной структуре в интервале температур 29–42 K [21].

Отметим, что в исследованиях температурной зависимости намагниченности монокристаллов $TbMnO_3$ в магнитном поле ($H \| c$, $H = 1$ кГс) была обнаружена аномалия в виде небольшого широкого максимума в интервале температур 60–150 K [23]. Аномалия наиболее отчетливо проявилась только вдоль оси c кристалла, для которой нет преобладающего по величине вклада магнитных моментов ионов Tb^{3+}. Авторы [23] отмечали, что в $TbMn_2O_5$ закон Кюри–Вейса не выполняется вплоть до температуры 150 K. Сосуществующие фазы 1 и 2 в парамагнитной области, в которых различным способом происходит релаксация поляризации мюонов, мы интерпретируем следующим образом. Фаза 1 представляет собой парамагнитное состояние одиночных ионов Mn и Tb. К фазе 2 мы относим невзаимодействующие локальные области ближнего магнитного порядка, расположенные внутри фазы 1. Наблюдаемые температурные зависимости асимметрий фаз 1 и 2 (см. рис. 4 и 5) отражают соотношение данных фаз при различных температурах и магнитных полях. Как следствие, равное соотношение этих фаз имеет место при сравнительно высоких температурах, зависящих от внешнего поля: $T = 80$ K ($H = 0$) и $T = 93$ K ($H = 280$ Гс). Ниже указанных температур и вплоть до T_N преобладает фаза 2. По мере приближения к температуре T_N размеры областей ближнего порядка укрупняются, и внутренние поля в них все больше соответствуют полю в упорядоченной области.

Мы связываем аномалии асимметрий фаз 1 и 2 в температурном интервале 100–150 K с влиянием на области ближнего порядка приложенного внешнего магнитного поля $H = 280$ Гс (см. рис. 4). При отсутствии внешнего поля этих аномалий нет (см. рис. 5). Размеры областей ближнего порядка уменьшаются по мере роста температуры выше T_N. Подмагничивающими полями для областей ближнего порядка являются внутреннее поле анизотропии ионов Tb^{3+} и внешнее поле. Внутреннее поле резко падает с температурой из-за уменьшения намагниченности ионов Tb, что приводит (при $H = 0$) к линейным противофазным температурным изменениям асимметрий двух фаз (см. рис. 5). Внутреннее поле сравнивается с внешним вблизи 100 K, и последнее начинает преобладать над полем анизотропии вплоть до 150 K (т.е. границы существования двухфазного состояния). Отметим, что в [23] аномалия намагниченности вдоль оси c в монокристалле $TbMnO_3$ в поле $H = 1$ кГс начинает проявляться с температуры 60 K.

4. Заключение. Исследование керамического образца $TbMnO_3$ с помощью μSR-метода обнаруживает ряд особенностей, которые до сих пор не наблюдались при изучении других мультиферроиков-манганитов RMn_2O_5 и манганитов-перовскитов типа $LaMnO_3$. Ниже температуры $T_N = 42$ K присутствует однофазное магнитоупорядоченное состояние с аномально сильной релаксацией поляризации мюонов. Такая релаксация обусловлена включением мюониевого канала и прямым взаимодействием магнитного момента мюона с неоднородностями внутренних магнитных полей в состоянии циклоидального упорядочения.

При $T > T_N$ было обнаружено двухфазное состояние, температурный интервал существования которого зависит от приложенного магнитного поля. Из-за фрустрированности магнитного состояния $TbMnO_3$ при температуре $T \geq T_N$ имеется широкая температурная область существования областей ближнего порядка, представляющих собой быстро релаксирующую фазу, в которой скорость релаксации соизмерима с имеющейся при $T \leq T_N$. Вторая фаза парамагнитного состояния является обычной парамагнитной. Существует широкая температурная область критического состояния вблизи температуры T_N, фактически совпадающая с существованием областей ближнего порядка. По мере повышения температуры области ближнего порядка разрушаются термическими флуктуациями. Истинное парамагнитное состояние возникает лишь при $T > 150$ K.

1. T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, and Y. Tokura, Nature (London) **426**, 55 (2003).
2. N. Hur, S. Park, P. A. Sharma, J. S. Ahn, S. Guba, and S.-W. Cheong, Nature (London) **429**, 392 (2004).
3. H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
4. M. Mostovoy, Phys. Rev. Lett. **96**, 067601 (2006).
5. I. A. Sergienko, C. Sen, and E. Dagotto, Phys. Rev. Lett. **97**, 227204 (2006).
6. I. A. Sergienko and E. Dagotto, Phys. Rev. B **73**, 0944345 (2006).
7. J. Van den Brink and D. J. Khomskii, J. Phys.: Cond. Matt. **20**, 434217 (2008).
8. С. И. Воробьев, Е. И. Головенчиц, В. П. Коптев, Е. Н. Комаров, С. А. Котов, В. А. Санина, Г. В. Щербаков, Письма в ЖЭТФ **91**, 561 (2010).
9. С. И. Воробьев, А. Л. Геталов, Е. И. Головенчиц, Е. Н. Комаров, В. П. Коптев, С. А. Котов, И. И. Павлова, В. А. Санина, Г. В. Щербаков, ФТТ **55**, 422 (2013).
10. С. И. Воробьев, Д. С. Андриевский, С. Г. Барсов, А. Л. Геталов, Е. И. Головенчиц, Е. Н. Комаров, С. А. Котов, А. Ю. Мищенко, В. А. Санина, Г. В. Щербаков, ЖЭТФ **150**, 1170 (2016).
11. К. П. Белов, А. К. Звездин, А. М. Кадомцева, Р. З. Левитин, *Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках*, Наука, М. (1979).
12. N. Aliouane, O. Prokhorenko, R. Feyerherm, M. Mostovoy, J. Strempfer, K. Habicht, K. C. Rule, E. Dudzik, A. U. B. Wolter, A. Maljuk, and D. N. Argyriou, J. Phys. Condens. Matters **20**, 434215 (2008).
13. A. A. Nugroho, Risdiana, N. Mufti, T. T. M. Palstra, I. Watanabe, and M. O. Tjia, Physica B **404**, 785 (2009).
14. R. H. Heffner, J. E. Sonier, D. E. MacLaughlin, G. J. Nieuwenhuys, G. Ehlers, F. Mezei, S.-W. Cheong, J. S. Gardner, and H. Roder, Phys. Rev. Lett. **85**, 3285 (2000).
15. R. H. Heffner, J. E. Sonier, D. E. MacLaughlin, G. J. Nieuwenhuys, G. M. Luke, Y. J. Uemura, W. Ratcliff, S. W. Cheong, and G. Balakrishnan, Phys. Rev. B **63**, 094408 (2001).
16. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, УФН **171**, 577 (2001).
17. Л. П. Горьков, УФН **168**, 665 (1998).
18. С. Г. Барсов, С. И. Воробьев, В. П. Коптев, Е. Н. Комаров, С. А. Котов, Г. В. Щербаков, ПТЭ **50**, 36 (2007).
19. O. Ofer, J. Sugiyama, J. H. Brewer, E. J. Ansaldo, M. Mansson, K. H. Chow, K. Kamazawa, Y. Doi, and Y. Hinatsu, Phys. Rev. B **84**, 054428 (2011).
20. А. Н. Белемук, Ю. М. Белоусов, В. П. Смилга, ЖЭТФ **111**, 730 (1997)
21. S. Picozzi, K. Yamauchi, I. A. Sergienko, C. Sen, B. Sanyal and E. Dagotto, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 434208 (2008).
22. В. П. Смилга, Ю. М. Белоусов, *Мюонный метод исследования вещества*, Наука, М. (1991).
23. I. V. Golosovsky, A. A. Mukhin, V. Yu. Ivanov, S. B. Vakhrushev, E. I. Golovenchits, V. A. Sanina, J-U. Hoffmann, R. Feyerherm, and E. Dudzik, Eur. Phys. J. B **85**, 103 (2012).