

05:09;12

# Гигантское радиочастотное магнитопоглощение в кобальтите $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$

© А.Я. Кириченко,<sup>1</sup> Б.И. Белевцев,<sup>2</sup> Г.В. Голубничая,<sup>1</sup> И.Г. Максимчук,<sup>1</sup> Н.Т. Черпак,<sup>1</sup> И.Н. Чуканова<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Институт радиофизики и электроники им. А.Я. Усикова НАН Украины,  
61085 Харьков, Украина  
e-mail: kharkovs@ire.kharkov.ua

<sup>2</sup> Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины,  
61103 Харьков, Украина  
e-mail: belevtsev@ilt.kharkov.ua

<sup>3</sup> Институт монокристаллов НАН Украины,  
61001 Харьков, Украина

(Поступило в Редакцию 2 августа 2006 г.)

Исследовано гигантское радиочастотное магнитопоглощение в поликристаллическом кобальтите лантана  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$  в температурном интервале 77–300 К в диапазоне частот 0.5–12.5 МГц. Температура Кюри  $T_C$  образца составляла около 250 К. Найдено, что магнитопоглощение увеличивается с понижением частоты, достигая при  $f = 0.5$  МГц величины 58% вблизи температуры Кюри. Полученные результаты получили удовлетворительное объяснение на основе известных физических представлений о поглощении высокочастотных волн в магнитных материалах. Обнаруженное гигантское магнитопоглощение и резкое изменение поглощения вблизи температуры Кюри могут найти практическое применение при разработке радиочастотных датчиков магнитного поля и температуры.

PACS: 75.47.Gk, 78.70.Gq

## Введение

Колоссальное отрицательное магнитосопротивление (КМС) легированных манганитов лантана вида  $R_{(1-x)}A_x\text{MnO}_3$  с перовскитоподобной решеткой (где  $R$  — редкоземельный элемент,  $A$  — двухвалентный щелочноземельный элемент) вызывает в последние годы большой интерес [1–4]. Огромные (теоретические и экспериментальные) усилия по изучению этого явления до сих пор не привели к достаточно ясному (и общепризнанному) пониманию причин КМС. В частности, известные теоретические представления о КМС [2–4] не позволяют предсказать ни величину этого эффекта, ни даже основные фундаментальные особенности свойств этих материалов. К настоящему моменту выяснено, однако, что это явление связано с изменениями дальнего и ближнего магнитного порядка в магнитном поле, так что оно наиболее сильно проявляется в области магнитных переходов (например, переходов из парамагнитного в ферромагнитное состояние), где особенно сильны флуктуации намагниченности.

Существующие различные точки зрения на природу КМС [2–4] стимулируют дальнейшее экспериментальное изучение магнитных перовскитных оксидов с использованием различных экспериментальных методов. Одно из направлений исследований связано с влиянием радиочастотных электромагнитных полей на свойства манганитов лантана [5–9]. В частности, было обнаружено гигантское магнитопоглощение радиочастотного электромагнитного поля (с частотой  $f \approx 2.5$  МГц) в кристалле  $\text{La}_{(1-x)}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  ( $x \approx 0.33$ ) [7] вблизи температуры Кюри ( $T_C \approx 374$  К) перехода из парамагнитного

в ферромагнитное состояние. Относительное изменение поглощения составляло около 67% в поле 0.21 Т в температурном интервале 290–350 К. Такую величину магнитопоглощения можно с полным основанием назвать гигантской. Это делает манганиты привлекательными для практических приложений в области комнатной температуры (температурные и магнитные датчики, магниторезистивные головки и пр.). Определение особенностей поглощения в радиочастотном диапазоне может способствовать также и дальнейшему прогрессу в понимании фундаментальных физических свойств манганитов.

Наряду с манганитами гигантское радиочастотное магнитопоглощение было обнаружено и в родственном перовскитном магнитном окисле  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$  [10], который обладает гораздо меньшим магнитосопротивлением по сравнению с манганитами. Было обнаружено, что магнитопоглощение в этом окисле (при частоте 1.33 МГц) вблизи  $T_C$  ( $\approx 250$  К) весьма велико (около 38%) в довольно низком магнитном поле 0.21 Т.

Важной характеристикой ферромагнитного проводника является глубина проникновения электромагнитного поля (называемая также глубиной скин-слоя), определяемая выражением

$$d_s = \sqrt{\frac{2\rho}{\omega\mu_0\mu_r}}, \quad (1)$$

где  $\rho$  — удельное электросопротивление,  $\omega = 2\pi f$  — круговая частота,  $\mu_0$  — магнитная проницаемость вакуума,  $\mu_r(\omega)$  — зависящая от частоты реальная часть высокочастотной магнитной проницаемости. Известно, что магнитопоглощение (так же как и магнетоимпеданс [11]) определяется изменением глубины скин-слоя

$d_s(\omega)$  в магнитном поле. Так как величина  $d_s$  существенно зависит от частоты (1), следует ожидать и соответствующей довольно сильной зависимости эффекта магнитопоглощения от частоты. В связи с этим в настоящей работе проведено изучение влияния частоты на радиочастотное магнитопоглощение в образце кобальтита  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$ , предварительное исследование которого при одной частоте 1.33 МГц описано в работе [10]. Мы действительно обнаружили существенную зависимость этого эффекта от частоты излучения. В исследованном диапазоне частот (0.5–12.5 МГц) магнитопоглощение увеличивается с понижением частоты и достигает максимального значения ( $\approx 58\%$ ) при частоте 0.5 МГц в поле  $H = 0.25$  Т. Даже в гораздо меньшем поле (0.1 Т) величина эффекта при этой частоте остается весьма большой (около 55%). Такие гигантские величины магнитопоглощения вполне сравнимы с теми, что найдены в манганитах с совершенной кристаллической структурой [7]. Это говорит о том, что наличие большого магнитосопротивления в области температуры Кюри не является необходимой предпосылкой для проявления гигантского магнитопоглощения.

В работах [7,10] при обсуждении причин гигантского магнитопоглощения в манганитах и кобальтитах было высказано предположение о том, что этот эффект можно качественно объяснить уменьшением магнитной проницаемости в магнитном поле. Такого рода подход уже давно применяется при рассмотрении гигантского магнетоимпеданса [11]. Эффект магнитопоглощения может быть рассмотрен, однако, и с несколько другой точки зрения. Например, исследования радиочастотного отклика в манганите лантана  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  вблизи перехода металл–диэлектрик показали, что он связан в основном с гистерезисными потерями в ферромагнетике [5]. Действительно, при изучении магнитопоглощения образцов в ферромагнитном состоянии следует учитывать то, что поглощение электромагнитных полей в них связано не только омическими потерями  $P_i$ , определяемыми индукционными токами в объеме  $V$  образца 
$$P_i = \int_V \rho \int_0^T j_B^2 dt dV$$
 ( $\rho$  — удельное сопротивление,  $j_B$  — плотность вихревых токов,  $T$  — период колебаний поля), но и с гистерезисными потерями  $P_h = \int_V \frac{1}{4\pi} \oint H dB dV$  ( $H$  — напряженность магнитного поля,  $B$  — магнитная индукция). При этом гистерезисные потери при  $T < T_C$  могут превосходить потери, обусловленные вихревыми токами. Интересно рассмотреть с этой точки зрения особенности радиочастотного отклика в кобальтите лантана  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$ , что и было проведено в настоящей работе.

## Методика эксперимента

Изучение радиочастотного поглощения производилось на поликристаллическом образце кобальтита состава  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$ , приготовленного методом твердотельного синтеза исходных компонентов при высоких

температурах. Условия приготовления были описаны в работе [12]. В результате этой процедуры была получена таблетка керамического кобальтита, из которой вырезались образцы для различных исследований. Для радиочастотных исследований использовался образец в виде параллелепипеда размером  $21.6 \times 7 \times 4$  мм. В целом образец был достаточно хорошо охарактеризован посредством рентгеноструктурного анализа и измерения резистивных, магниторезистивных и магнитных свойств [10,12]. В частности, было установлено, что температура Кюри этого образца составляет около 250 К.

С целью изучения поглощения электромагнитного поля образец размещался в индукционной катушке диаметром 9.7 мм и длиной, сравнимой с длиной образца. Индукционная катушка являлась элементом радиочастотного резонансного контура измерителя добротности (куметра) типа ВМ 560. По измерению добротности этого контура с образцом и без него можно было определить электромагнитные потери в образце на фиксированной частоте. Поддерживание фиксированной резонансной частоты контура при изменении параметров образца осуществлялось путем управления емкостью контура.

Измерения магнитопольевых и температурных зависимостей потерь образца проводились в частотном диапазоне 0.25–12.5 МГц. Ввиду проведения исследований в таком широком диапазоне частот в опытах использовалось несколько индукционных катушек одинаковых геометрических размеров при сохранении коэффициента заполнения объема магнитного поля образцом, равного 0.38. Амплитуда радиочастотного магнитного поля не превышала  $10 \mu\text{T}$ .

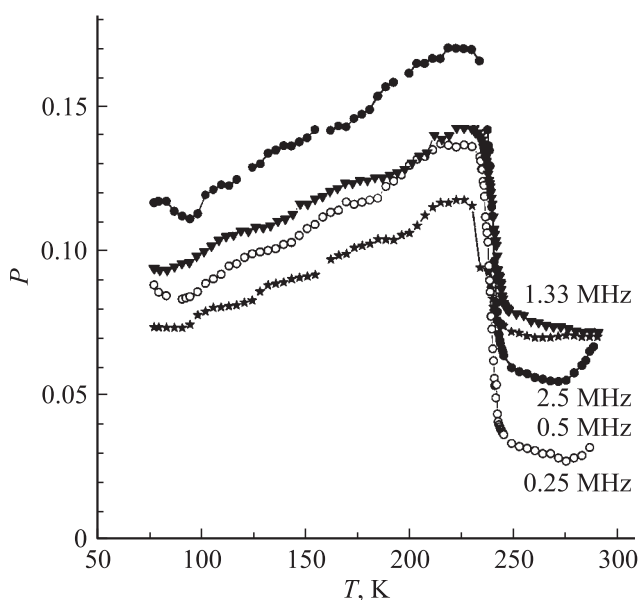
Для осуществления температурных измерений индукционная катушка с образцом размещалась в криостате с азотом, температура в котором медленно повышалась по мере испарения азота, т.е. все приведенные результаты измерений получены при нагреве образца. Измерения температуры производились термопарой медь–константан, находящейся непосредственно на образце.

Криостат размещался в межполюсном зазоре электромагнита, поле в котором можно было изменять от 0 до 0.25 Т. Образец охлаждался в нулевом магнитном поле, после чего поле нужной напряженности включалось при достижении образцом необходимой температуры. Эксперименты проводились с использованием двух направлений внешнего постоянного магнитного поля: коллинеарного вектору напряженности переменного магнитного поля и перпендикулярного ему. В экспериментальных зависимостях, полученных при разной ориентации полей, отмечено лишь влияние фактора размагничивания образца. Поэтому в работе приведены результаты лишь для коллинеарного расположения векторов магнитных полей, когда фактор размагничивания был меньшим.

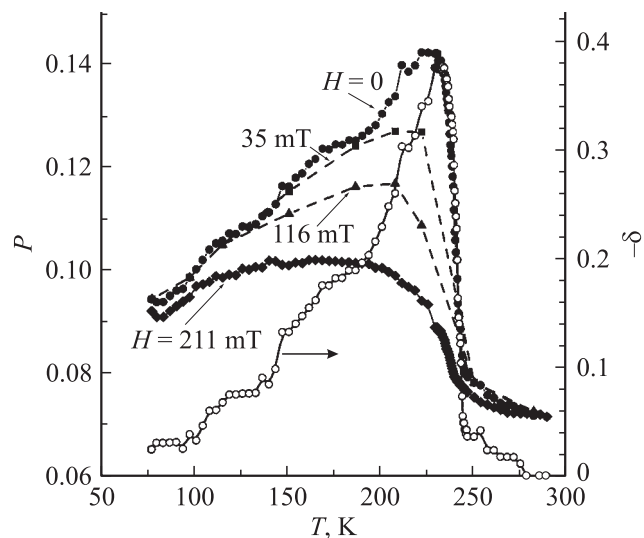
## Результаты эксперимента и их обсуждение

При снижении температуры от комнатной вблизи точки Кюри наблюдается резкое возрастание потерь, связанных в первую очередь с ростом магнитных потерь на динамический гистерезис. На рис. 1 приведены зависимости величины мощности  $P$  потерь высокочастотного поля в образце от температуры  $T$ , полученные для нескольких значений рабочей частоты. В узком интервале температур ( $\Delta T \sim 10$  К) от 245 до 235 К поглощение в образце на частоте 0.25 и 0.5 МГц возрастает примерно в 3 раза. На более высоких частотах изменение мощности потерь вблизи точки Кюри меньше и не превышает 2. Однако интервал температур, в котором происходит резкое возрастание потерь, сохраняется. Дальнейшее снижение температуры приводит к постепенному уменьшению потерь в образце. Таким образом, при  $T = 235$  К обнаруживается максимальное значение потерь. Однако даже при температуре 77 К потери в образце превосходят потери, наблюдаемые при комнатной температуре, когда он находится в парамагнитном состоянии.

Снижение потерь в образце при понижении температуры в интервале температур 77–235 К (как и для случая падения сопротивления на постоянном токе) может быть объяснено уменьшением ферромагнитных флуктуаций. При этом скорость спада потерь при снижении температуры примерно одна и та же. При включении внешнего магнитного поля крутизна перехода его в ферромагнитное состояние постепенно уменьшается, и потери в ферромагнитном состоянии снижаются. Это можно видеть на рис. 2, где приведены температурные зависимости потерь в образце на частоте  $f = 1.33$  МГц



**Рис. 1.** Температурные зависимости поглощения  $P$  электромагнитного поля радиочастотного диапазона для нескольких значений фиксированной частоты.



**Рис. 2.** Температурные зависимости поглощения  $P$  электромагнитного поля с частотой  $f = 1.33$  МГц для нескольких значений внешнего магнитного поля  $H$  и температурная зависимость магнитопоглощения  $\delta$ .

для нескольких значений внешнего постоянного магнитного поля и без поля. При этом максимум поглощения сдвигается в область более низких температур. На этом же рисунке приведена температурная зависимость магнитопоглощения  $\delta = (P_H - P_0)/P_0$ , полученная в магнитном поле  $H = 0.211$  Т ( $P_0$  и  $P_H$  — значения поглощения в отсутствие и при наличии магнитного поля соответственно). Следует отметить, что в исследованном кобальтите магнитопоглощение после перехода через максимум существенно снижается при дальнейшем снижении температуры (почти до нулевых значений в области азотной температуры). Это поведение существенно отличается от температурной зависимости магнитопоглощения манганита  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$  [7], для которого магнитопоглощение оставалось практически постоянным в довольно широком интервале ниже  $T_C$ .

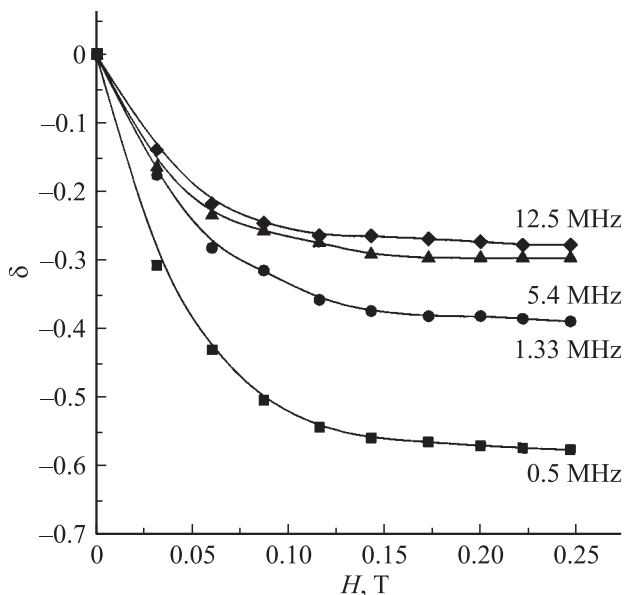
Введение магнитного поля снижает величину потерь во всем интервале температур, где существует ферромагнитное состояние образца, даже при самых низких значениях  $H$ , при этом максимальное снижение потерь (т.е. максимальное отрицательное магнитопоглощение) наблюдается вблизи точки Кюри, а при 77 К влияние магнитного поля становится незначительным. Снижение величины поглощения в образце при введении магнитного поля соответствует уменьшению площади частной петли гистерезиса при перемещении вдоль кривой намагничивания с ростом  $H$ , определяющей величину потерь на гистерезис. Площадь частной петли гистерезиса при возрастании внешнего магнитного поля должна, как известно, постепенно уменьшаться вплоть до исчезновения при значении  $H$ , соответствующем насыщению намагничивания образца. При этом потери на гистерезис должны исчезнуть.

Действительно, как видно из зависимостей магнитопоглощения, полученных для нескольких частот при

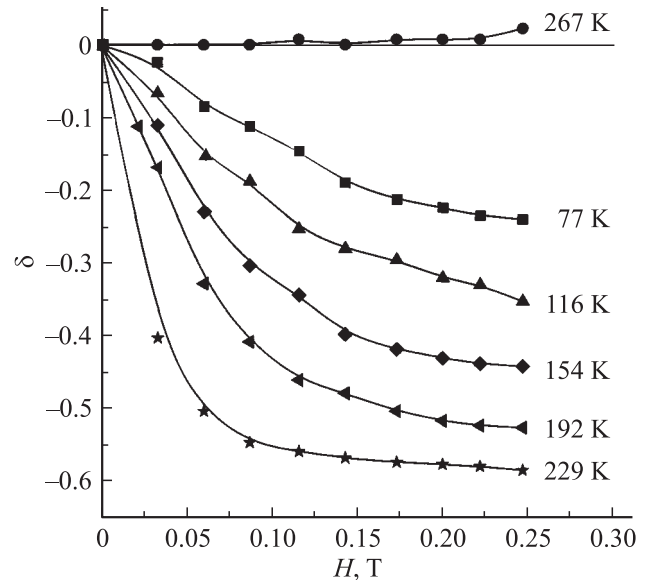
температуре  $T = 214$  К (рис. 3), на всех кривых отмечается быстрый рост отрицательного магнитопоглощения при низких магнитных полях, переходящий в слабое изменение  $\delta$  при напряженностях поля, превышающем 0.1 Т. (Следует отметить, что при взаимно ортогональном направлении магнитных полей это насыщение менее выражено в этом интервале внешних полей из-за влияния фактора размагничивания.) Магнитопоглощение в интервале исследуемых частот достигает 58% на частоте 0.5 МГц и снижается до 26 при 12.5 МГц. Наличием насыщения  $\delta$  при  $H \geq 0.1$  Т в этих образцах магнитопоглощения отличается от магнитосопротивления, которое для этих образцов возрастает монотонно вплоть до магнитных полей величины в несколько Тесла [10]. Переход отрицательного магнитопоглощения к насыщению может определяться насыщением намагниченности, в связи с чем частная петля гистерезиса практически исчезает на этом участке, и гистерезисные потери отсутствуют.

Значения поля насыщения намагниченности с понижением температуры возрастает. Это отчетливо видно из системы полевых зависимостей магнитопоглощения, полученных для нескольких значений температуры на частоте 0.5 МГц, приведенной на рис. 4. Если при температурах вблизи перехода парамагнетик–ферромагнетик  $T = 229$  К можно видеть четкий переход кривых к насыщению, то уже начиная с  $T = 192$  К видно лишь плавное изменение кривизны кривых при повышении напряженности внешнего магнитного поля.

Приведенная выше физическая трактовка результатов на основе учета гистерезисных потерь в ферромагнетиках хорошо согласуется с более формальным объяснением температурных и магнитополевых зависимостей потерь на основе учета поведения магнитной проницаемости. Действительно, измеряемая величина потерь в



**Рис. 3.** Магнитополевые зависимости радиочастотного магнитопоглощения  $\delta$ , полученные для нескольких частот при  $T = 214$  К.



**Рис. 4.** Магнитополевые зависимости радиочастотного магнитопоглощения  $\delta$  ( $f = 1.33$  МГц), полученные для нескольких значений температуры в интервале 77–267 К.

первом приближении пропорциональна поверхностному сопротивлению  $R_s$  [7,19], т. е.

$$P \propto R_s = \sqrt{\frac{\omega \mu_0 \mu_r \rho}{2}} = \frac{\rho}{d_s}. \quad (2)$$

Используя выражение (2) и учитывая поведение  $\mu_r$  (или глубины проникновения  $d_s$ ), можно качественно объяснить все наблюдаемые особенности поведения потерь. При  $T > T_C$  магнитная проницаемость  $\mu_r = 1$ , и в этом случае потери определяются только вихревыми токами, т. е. резистивными свойствами образца. Значение  $\mu_r$  существенно возрастает при уменьшении температуры ниже точки Кюри ( $\mu_r \gg 1$  в магнитомягких ферромагнетиках). Это должно приводить к повышению потерь [см. выражение (2)], что соответствует полученным результатам (рис. 1 и 2). Внешнее магнитное поле приводит к уменьшению  $\mu_r$  и соответственно к понижению потерь и отрицательному магнитопоглощению (рис. 2–4).

Аналогичным образом можно качественно объяснить и наблюдаемую частотную зависимость магнитопоглощения (рис. 3). Для величины магнитопоглощения можно в первом приближении использовать выражение [7,10]:

$$\delta \approx \frac{R_s(H)}{R_s(0)} - 1 = \sqrt{\frac{\mu_r(H)\rho(H)}{\mu_r(0)\rho(0)}} - 1, \quad (3)$$

из которого механизм отрицательного магнитопоглощения в ферромагнетиках также вполне очевиден (см. более подробно в [7,10]). Ниже  $T_C$  можно пренебречь слабым магнитосопротивлением кобальтитов [10] и записать

$$\delta \approx [\mu_r(H)/\mu_r(0)]^{1/2} - 1.$$

Далее учтем, что проницаемость достигает предельной величины  $\mu_r \approx 1$  при  $H > H_s$  (где  $H_s$  — магнитное поле насыщения намагниченности, которое может быть весьма малым в магнитомягких материалах). В этом случае можно записать для максимальной величины  $\delta$  в поле  $H > H_s$  следующее выражение:

$$\delta \approx [\mu_r(0)]^{-1/2} - 1, \quad (4)$$

из которого ясно, что величина магнитопоглощения в ферромагнетиках определяется величиной магнитной проницаемости  $\mu_r(0)$  в нулевом магнитном поле: чем больше  $\mu_r(0)$ , тем больше  $\delta$ . В частности, видно, что  $\delta = 0$ , если  $\mu_r(0) = 1$ , например, при  $T > T_c$ . Посмотрим с этой точки зрения на влияние частоты на величину магнитопоглощения. Известно, что значение  $\mu_r(\omega)$  в ферромагнетиках уменьшается с повышением частоты в радиочастотном диапазоне; при частотах порядка GHz и выше  $\mu_r(\omega)$  стремится к единице [13]. Это справедливо и для магнитных оксидов, таких как легированные манганиты [8,9]. В соответствии с выражением (4) увеличение  $\mu_r(\omega)$  при уменьшении частоты должно приводить к возрастанию магнитопоглощения, что и наблюдается для исследованного кобальтита (рис. 3).

## Заключение

Таким образом, мы исследовали радиочастотное поглощение в образце поликристаллического кобальтита  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$ . Обнаружено, что высокочастотный отклик четко отражает температурный переход из парамагнитного в ферромагнитное состояние в этом материале. Высокая крутизна этого перехода указывает на возможность его использования для создания температурного датчика. Найдено, что в исследованном диапазоне частот (от сотен kHz до десятков MHz) магнитопоглощение увеличивается с понижением частоты, достигая при  $f = 0.5$  MHz величины 58% вблизи температуры Кюри. Это сопоставимо с высокими значениями магнетоимпеданса, полученными для магнитомягких металлических материалов [11], и может быть использовано для создания магнитных датчиков. Полученные в настоящей работе результаты получили удовлетворительное объяснение на основе известных физических представлений о поглощении высокочастотных волн в магнитных материалах.

## Список литературы

- [1] Ramirez A.P. // J. Phys.: Cond. Matter. 1997. Vol. 9. N 39. P. 8171–8199.
- [2] Нагаев Э.Л. // УФН. 1996. Т. 166. № 8. С. 833–858. Phys. Rep. 2001. Vol. 346. P. 387–431.
- [3] Горьков Л.П. // УФН. 1998. Т. 168. № 6. С. 665–671; Gor'kov L.P. and Kresin V.Z. Phys. Rep. 2004. Vol. 400. N 3. P. 149–208.
- [4] Colossal Magnetoresistive Oxides / Ed. by Y. Tokura. Singapore: Gordon and Breach Science Publisher, 2000. 358 p.

- [5] Березин В.А., Багинский К.В., Тулин В.А. и др. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. Вып. 1. С. 58–64.
- [6] Hu J., Qin H., Niu H. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 2003. Vol. 261. N 1–2. P. 105–111.
- [7] Belevtsev B.I., Kirichenko A.Ya., Cherpak N.T. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 2004. Vol. 281. N 1. P. 97–104.
- [8] Wang J., Ni G., Gao W. et al. // Phys. Stat. Sol. 2001. Vol. A183. N 2. P. 421–426.
- [9] Wang J., Liu G., Ni G., Gao W. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 2004. Vol. 280. N 2–3. P. 316–321.
- [10] Belevtsev B.I., Kirichenko A.Ya., Cherpak N.T. et al. // J. Appl. Phys. 2003. Vol. 94. N 4. P. 2459–2463.
- [11] Knobel M. and Pirota R.R. // J. Magn. Magn. Mater. 2002. Vol. 242–245. Pt 1. P. 33–40.
- [12] Belevtsev B.I., Chukanova I.N., Cherpak N.T. et al. // J. Phys.: Cond. Mater. 2002. Vol. 14. P. 2591–2603.
- [13] Вонсовский С.В. Магнетизм. М.: Наука, 1971. С. 1032.