

МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ МАНГАНИТОВ ЛАНТАНА С АКТИВАЦИОННЫМ ТИПОМ ПРОВОДИМОСТИ

*М. И. Куржин**, *Э. А. Нейфельд*, *А. В. Королев*,
Н. А. Угрюмова, *С. А. Гудин*, *Н. Н. Гапонцева*

*Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук
620129, Екатеринбург, Россия*

Статья написана по материалам доклада
на 36-м Совещании по физике низких температур
(Санкт-Петербург, 2–6 июля 2012 г.)

Исследована температурная зависимость электросопротивления и магнитного момента монокристаллических образцов манганитов $\text{La}_{0.85}\text{Ba}_{0.15}\text{MnO}_3$ и $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ в интервале температур 40–300 К в магнитных полях до 90 кЭ. Из анализа экспериментальных данных следует, что магнитосопротивление манганитов лантана вдали от температуры Кюри T_C количественно описываются стандартной для ферромагнетиков s - d -моделью, учитывающей только обменное взаимодействие спинов носителей тока и магнитного момента. Из этих данных также следует, что особенности манганитов лантана, ответственные за колоссальное магнитосопротивление (КМС), проявляются в узком интервале температур $\delta T \approx 20$ К вблизи T_C . Полученные результаты позволили предложить механизм КМС, аналогичный механизму гигантского магнитосопротивления (ГМС), который наблюдается в мультислоях типа Fe/Cr с нанометровой толщиной слоев. Необходимое для ГМС нанорасслоение в манганитах лантана можно описать при учете разброса T_C в интервале существования КМС δT .

DOI: 10.7868/S0044451013050182

1. ВВЕДЕНИЕ

Уже около двух десятилетий эффект колоссального магнитосопротивления (КМС) в манганитах лантана, допированных двухвалентными ионами $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$ ($\text{A} = \text{Ba}, \text{Ca}, \text{Sr}, \dots$), является предметом самого активного интереса многочисленных исследователей [1–6]. Магнитосопротивление, т. е. относительное изменение электросопротивления под влиянием магнитного поля, называется колоссальным из-за аномально большой величины отношения

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\rho(0) - \rho(H)}{\rho(H)} \approx 10^2 - 10^4, \quad (1)$$

где $\rho(H)$ — электросопротивление в магнитном поле H . Для сравнения укажем, что в магнитных металлических гетероструктурах, магнитосопротивление которых называют гигантским (эффект ГМС) [7, 8], величина $\Delta\rho/\rho \approx 1$. В других ферромагне-

тиках $\Delta\rho/\rho \approx 10^{-2}$ [9], а в пара- и диамагнетиках $\Delta\rho/\rho \approx 10^{-5}$ [9].

Несмотря на огромный объем публикаций по манганитам (см. списки литературы в [1–6]), микроскопический механизм КМС до сих пор остается предметом острых дискуссий. Многие авторы связывают проблему КМС с ограниченностью моделей, используемых для описания электропереноса и магнетизма кристаллических веществ. Эту ограниченность они видят в использовании упрощающих предположений, позволяющих приписывать электроперенос и магнетизм разным группам электронов в кристаллах, которые в первом приближении считаются не взаимодействующими. По их мнению, взаимодействие зарядовых, магнитных и решеточных степеней свободы в манганитах оказывается настолько сильным, что их нельзя описывать независимо ни в каком приближении.

Однако отказ от приближений мы считаем наименее благоприятным вариантом для построения теории КМС. В нашей статье (разд. 2) приводятся экспериментальные данные, указывающие на возможность описания магнитосопротивления манганитов

*E-mail: kurkin@imp.uran.ru

с использованием двух слабо взаимодействующих групп электронов. Одна из них ответственна только за электроперенос, вторая — только за магнитные свойства. В разд. 3 обсуждаются экспериментальные результаты, из которых следует, что все особенности манганитов исследованного нами типа, ответственные за КМС, проявляются в узком температурном интервале вблизи температуры Кюри T_C :

$$\delta T/T_C = |T - T_C|/T_C \ll 1. \quad (2)$$

Это свойство манганитов позволило предложить новый механизм КМС, который обсуждается в заключительном разделе статьи.

2. МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ $\text{La}_{0.85}\text{Ba}_{0.15}\text{MnO}_3$ ПРИ ТЕМПЕРАТУРАХ $T \leq 100$ К

Мы измеряли электросопротивление $\rho(T, H)$ и намагниченность $M(T, H)$ монокристаллических образцов $\text{La}_{0.85}\text{Ba}_{0.15}\text{MnO}_3$ и $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ в зависимости от температуры T и магнитного поля H . Измерения проводились на установке PPMS-9 фирмы Quantum Design (USA). Температурные зависимости $\rho(T, H)$ обоих соединений относятся к активационному типу:

$$\rho(T, H) = \rho(0) \exp \{ \Delta(T, H)/k_B T \}, \quad (3)$$

где k_B — константа Больцмана, $\Delta(T, H)$ — энергия активации носителей тока. Их магнитосопротивление имеет сравнительно скромную величину ($\Delta\rho/\rho \approx 5$), сильно уступая значениям $\Delta\rho/\rho$ (1) в манганитах, в которых магнитное упорядочение сопровождается переходом диэлектрик–металл. Однако электросопротивление металлических соединений сложных составов определяется большим числом механизмов, что затрудняет количественное описание экспериментальных данных по их магнитосопротивлению. По этой причине мы предпочли исследовать манганиты с активационным типом сопротивления (3) с достаточно простой зависимостью от температуры. При этом оказалось достаточным использовать самую простую зависимость Δ от H [9], которая соответствует расщеплению в энергетическом спектре носителей тока по спиновому квантовому числу $\sigma = \pm 1/2$ во внешнем магнитном поле H и обменном поле

$$H_{ex} = H_E M(T, H)/M_0, \quad (4)$$

создаваемом носителями магнитного момента $M(T, H)$ [9], $H_E \approx 10^7$ Э — эффективное поле обменного подмагничивания носителей тока,

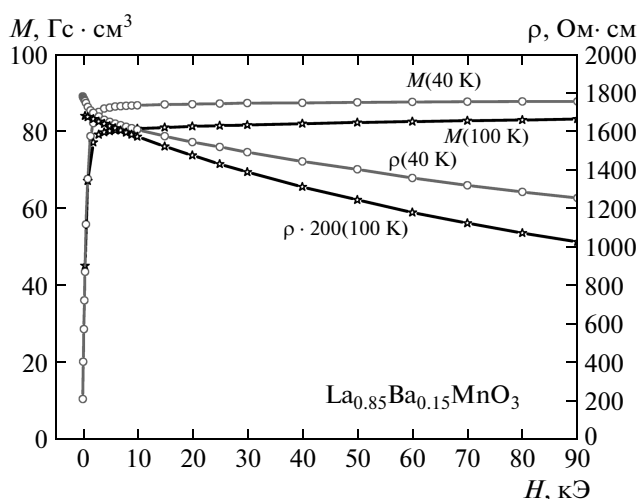


Рис. 1. Зависимости магнитосопротивления ρ и намагниченности M бариевого манганита от магнитного поля H при $T = 40$ К, 100 К

M_0 — намагниченность насыщения при $T = 0$ ($M_0 = M(T, H)$, при $T = 0, H \rightarrow \infty$). В этом приближении

$$\Delta(T, H) = \Delta_0(T) - 2\mu_B |H + H_{ex}|, \quad (5)$$

где μ_B — магнетон Бора, Δ_0 — энергия активации без учета спинового расщепления.

Формулы (3)–(5) описывают зависимость $\rho(T, H)$ и H_{ex} , если известен вид функции $M(T, H)$. При низких температурах ($T < 0.5T_C$) эта функция имеет существенно различный вид на разных интервалах изменения H относительно так называемого поля насыщения H_s [9]. При $H \leq H_s$ зависимость $M(T, H)$ от H определяется магнитными неоднородностями (доменной структурой), возникающими в ферромагнитном образце за счет магнитодипольного взаимодействия (области технической кривой намагничивания [9]). Количественное описание $M(T, H)$ при $H < H_s$ является сложной и до конца нерешенной задачей, поэтому мы ограничились областью

$$H > H_s. \quad (6)$$

При условии (6) полевая зависимость $M(T, H)$ связана с подавлением полем H тепловых флуктуаций $M(T, H)$ (область парапроцесса [9]). В этой области имеет место соотношение

$$M(T, H) = M(T, 0) + \chi(T)H, \quad (7)$$

где $\chi(T)$ — магнитная восприимчивость парапроцесса.

На рис. 1 приведены полевые зависимости $\rho(T, H)$ и $M(T, H)$ для соединения $\text{La}_{0.85}\text{Ba}_{0.15}\text{MnO}_3$ при двух значениях температуры $T = T_1 = 40$ К и $T = T_2 = 100$ К в интервале полей $0 \leq H \leq 90$ кЭ. Области $H > H_s$ (6) соответствуют участки кривых при $H > 10$ кЭ. Для таких H обработка кривых $\rho(T, H)$ по формулам (3)–(5) и (7) позволяет определить величину отношения восприимчивостей $\chi(T_1) = \chi(40)$ и $\chi(T_2) = \chi(100)$ без использования подгоночных параметров:

$$(\chi(100)/\chi(40))_\rho = 2.79 \pm 0.06. \quad (8)$$

Из значений $\chi(100)$ и $\chi(40)$, полученных с помощью кривых $M(T, H)$ при $H > 10$ кЭ (рис. 1), следует, что

$$(\chi(100)/\chi(40))_M = 2.80 \pm 0.04. \quad (9)$$

Из (8), (9) следует, что формулы (3)–(5), (7) в пределах экспериментальных погрешностей идеально описывают магнитосопротивление исследуемого манганита при $T < 0.5T_C$. Отметим, что формулы (3)–(5), (7) предполагают существование двух групп электронов, из которых одна группа (условно s -электроны) ответственна за электроперенос $\rho(T, H)$, а другая (условно d -электроны) определяет намагниченность манганитов $M(T, H)$. При этом для описания магнитосопротивления (формулы (8), (9)) оказалось достаточным учесть расщепление в спектре s -электронов по спиновому квантовому числу $\sigma = \pm 1/2$, что соответствует первому приближению теории возмущений по обменному взаимодействию s - и d -электронов.

Таким образом, при $T < 0.5T_C$ исследованные манганиты лантана практически не отличаются от других ферромагнетиков, в которых КМС не наблюдается. Это позволяет надеяться, что КМС не связано с какими-то уникальными особенностями энергетического спектра электронов и теорию КМС удастся построить в рамках традиционной для ферромагнетиков s - d -модели. Мы полагаем, что для построения такой теории важно знание температурного интервала δT (см. формулу (2)), в котором наблюдается КМС. В следующем разделе обсуждаются экспериментальные данные, позволяющие определить интервал δT .

3. МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ ВБЛИЗИ ТЕМПЕРАТУРЫ КЮРИ T_C

Проблема определения температурного интервала δT (2) состоит в том, что восприимчивость $\chi(T)$

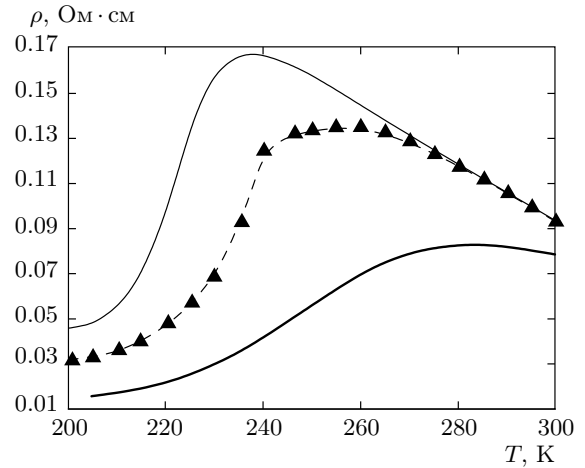


Рис. 2. Температурные зависимости электросопротивления стронциевого манганита при $H = 0$ (верхняя кривая), 50 кЭ (нижняя кривая). Средняя кривая соответствует формулам (3)–(5)

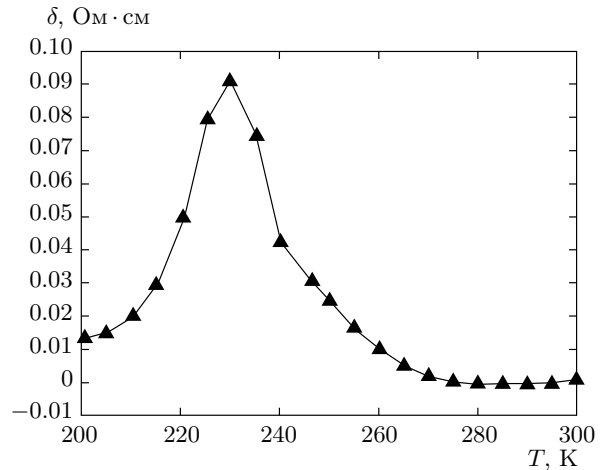


Рис. 3. Разностная кривая для величины $\Delta\rho(T)/\Delta\rho(230)$ (формула (10))

в (7), от которой зависит магнитосопротивление в s - d -модели, имеет расходимость при $T = T_C$ (особенность Кюри–Вейсса [9]). Чтобы выявить специфические для манганитов лантана особенности свойств, ответственных за КМС, нужно исключить влияние указанной расходимости. Для этого использовалась кривая $\rho(T, H)$, снятая при значении $H = 50$ кЭ (нижняя кривая на рис. 2). Мы полагаем, что поле $H = 50$ кЭ способно подавить все магнитные неоднородности, связанные не только с магнитнодипольным взаимодействием, но и с тепловыми флуктуациями в критической области вблизи T_C [9].

Формулы (3)–(5) позволяют построить кривую

$\rho_{s-d}(T, 0)$, которая получается из $\rho(T, 50)$ в предположении, что зависимость $\rho(T, H)$ от H определяется только подмагничиванием носителей тока за счет $s-d$ -обменного взаимодействия. Зависимости $\rho_{s-d}(T, 0)$ на рис. 2 соответствует средняя кривая. Различия между кривой $\rho_{s-d}(T, 0)$ и экспериментальной кривой $\rho(T, 0)$ (верхняя кривая на рис. 2) определяется теми механизмами магнитосопротивления, которые специфичны для манганитов лантана. На рис. 3 приведена температурная зависимость разности

$$\Delta\rho(T, 0) = \rho(T, 0) - \rho_{s-d}(T, 0),$$

нормированной на ее значение в максимуме при $T = 230$ К:

$$\delta(T) = \Delta\rho(T, 0)/\Delta\rho(230, 0). \quad (10)$$

Она имеет вид резонансной кривой с полушириной на полувысоте

$$\delta T = \pm 10 \text{ К}, \quad (11)$$

удовлетворяющей условию (2). Выполнение неравенства (2) позволяет предложить новый механизм КМС, который обсуждается в разд. 4.

4. НЕОПРЕДЕЛЕННОСТИ ТЕМПЕРАТУРЫ КЮРИ КАК ВОЗМОЖНАЯ ПРИЧИНА КМС В МАНГАНИТАХ

По нашему мнению, экспериментальные данные, приведенные в этой статье, указывают на новые возможности при решении проблемы КМС в манганитах лантана. Во-первых, из формул (8), (9) следует, что вдали от T_C магнитосопротивление манганитов прекрасно описывается обычной $s-d$ -моделью. Следовательно, эти вещества, по-видимому, ничем не выделены по сравнению с другими ферромагнетиками, так что проблему КМС не следует связывать с какими-то особенностями электронного спектра.

Во-вторых, из кривых на рис. 2 следует, что вся уникальность свойств манганитов, ответственных за КМС, проявляется в узкой температурной области (с шириной $2\delta T$ (11)) вблизи T_C . Это позволяет связать КМС с фазовым расслоением на ферромагнитные и парамагнитные области в неоднородном материале. Вне зависимости от конкретного механизма фазового расслоения мы можем для описания характеристик материала ввести разброс значений T_C по объему образца (рис. 4):

$$\overline{T}_C - \delta T < T_C < \overline{T}_C + \delta T, \quad (12)$$

где \overline{T}_C — среднее значение T_C , δT — полуширина распределения значений T_C . Мы считаем ее совпадающей с величиной δT (11). Возможности описания неоднородностей \overline{T}_C обсуждались в работе [10].

В рамках такого подхода предлагаемый механизм КМС, обусловленный фазовым расслоением на ферромагнитные и парамагнитные области, аналогичен механизму гигантского магнитосопротивления (ГМС) [7, 8]. Эффект ГМС обнаружен в многослойных металлических структурах, состоящих из ферромагнитных слоев, разделенных неферромагнитными прослойками. Считается [7, 8], что толщина слоев определяется условиями: 1) обменное взаимодействие спинов через неферромагнитную прослойку должно обеспечивать антиферромагнитную ориентацию намагниченностей соседних ферромагнитных слоев (обозначим их символами \mathbf{M}_1 и \mathbf{M}_2) при $H = 0$; 2) толщина прослойки R не должна превышать длину свободного пробега носителей тока с сохранением спина l_s :

$$R < l_s. \quad (13)$$

Для мультислоев Fe/Cr эти условия удовлетворяются при значениях R нанометрового масштаба. Величина

$$\Delta\rho/\rho \approx 1 \quad (14)$$

в таких мультислоях наблюдается в поле \mathbf{H} , которое изменяет взаимную ориентацию \mathbf{M}_1 и \mathbf{M}_2 от антиферромагнитной (вставка на рис. 4а) до ферромагнитной (вставка на рис. 4б).

Эффект типа ГМС может иметь место в случае фазового расслоения, представленного на рис. 4, если размеры неоднородностей удовлетворяют условию (13). В нулевом магнитном поле магнитодипольное взаимодействие разупорядочивает намагниченности ферромагнитных областей (рис. 4а). Их упорядочение в поле $H \neq 0$ (рис. 4б) должно приводить к уменьшению сопротивления, если размеры парамагнитных прослоек R удовлетворяют неравенству (13). Проблема состоит в том, что при ГМС наблюдаемые значения $\Delta\rho/\rho \approx 1$ (14), в то время как КМС соответствуют значения $\Delta\rho/\rho \gg 1$ (1).

Один из возможных механизмов усиления КМС по сравнению с ГМС в мультислоях следует из сравнения рис. 4а и б и вставок на них. Согласно вставкам на рис. 4 магнитные неоднородности в мультислоях существуют только вдоль нормали к плоскости пленки. Разброс T_C , как следует из рис. 4, создает магнитные неоднородности по всем трем направлениям. Трехмерность неоднородностей позволяет электрическому току обходить высокоомные участки образца. Похожая ситуация рассматривалась, в частности, в работе [11]. Наиболее сильно этот эффект проявляется вблизи так называемого порога протекания, существование которого предполагалось во всех моделях КМС [6]. Достоинство

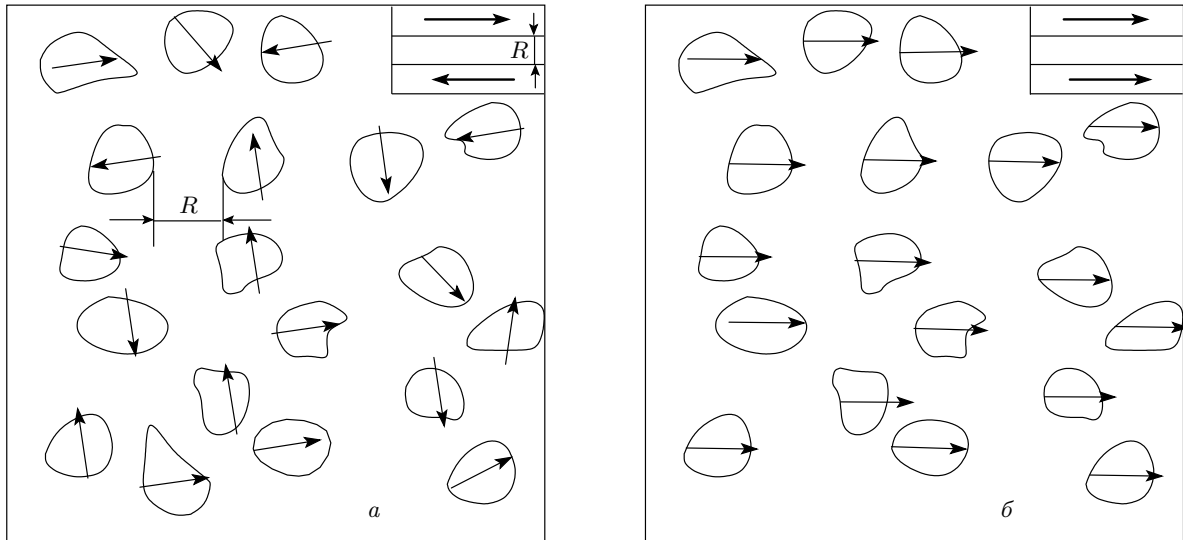


Рис. 4. Магнитные состояния манганита при температуре T_C в интервале (12) в нулевом магнитном поле $H = 0$ (а), в состоянии магнитного насыщения $H > H_s$ (б); R — расстояние между ферромагнитными областями. Вставки: магнитные состояния в нулевом магнитном поле $H = 0$ (а), в состоянии магнитного насыщения $H > H_s$ (б); R — толщина неферромагнитной прослойки

предполагаемой модели КМС в том, что при разбросе T_C в интервале $2\delta T$ (12) порог протекания с неизбежностью существует для определенной температуры T из интервала (12).

Предполагаемый механизм позволяет также указать возможную причину, ответственную за КМС в манганитах. Ею мог бы быть структурный фазовый переход при $T > T_C$, влияющий на температуру T_C и дополнительно способствующий фазовому расслоению с размером неоднородностей R (13). Обнаружение таких фазовых переходов стало бы определяющим аргументом в пользу предлагаемого механизма КМС.

Пороговое протекание является лишь одним из отличий КМС в манганитах от ГМС в металлических мультислоях. В частности, для манганитов считается важным совмещение ферромагнитного упорядочения с переходом диэлектрик–металл [6]. В настоящей статье мы указали только на возможности влияния эффекта ГМС на КМС. Количественное сопоставление этого влияния с влиянием перехода диэлектрик–металл требует дополнительных исследований.

Авторы благодарны А. П. Носову и К. И. Кугелю за обсуждение результатов работы и ценные замечания, которые мы постарались учесть в тексте статьи.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 11-02-00093) и Президиума РАН (проект 12-П-2-1041).

ЛИТЕРАТУРА

1. Э. Л. Нагаев, УФН **166**, 833 (1996).
2. Y. Tokura and Y. Tomioka, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 1 (1999).
3. J. Coey, M. Viret, and S. von Molnar, Adv. Phys. **48**, 167 (1999).
4. M. B. Salamon and M. Jaime, Rev. Mod. Phys. **73**, 583 (2001).
5. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, УФН **171**, 577 (2001).
6. E. Dagotto, *Nanoscale Phase Separation and Colossal Magnetoresistance*, Springer-Verlag, Berlin (2002).
7. H. Zabel, J. Phys.: Condens. Matter **11**, 9303 (1999).
8. D. T. Pierce, J. Unguris, R. J. Celotta et al., J. Magn. Magn. Mater. **200**, 290 (1999).
9. С. В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
10. N. G. Bebenin, R. I. Zainullina, and V. V. Ustinov, J. Magn. Magn. Mater. **322**, 963 (2010).
11. A. L. Rakhmanov, K. I. Kugel, Ya. M. Blanter, and M. Yu. Kagan, Phys. Rev. B **63**, 174424 (2001).