

05;12

Аномалия магнитного гистерезиса в манганитах $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_{3-\delta}$ со структурой перовскита

© В.Т. Довгий, А.И. Линник, В.П. Пащенко, В.Н. Деркаченко,
В.К. Прокопенко, В.А. Турченко, Н.В. Давыдейко

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины
E-mail: pashchen@pashchen.fti.ac. donetsk.ua,
linnik@host.dipt.donetsk.ua

Поступило в Редакцию 14 января 2003 г.

Обнаружена аномалия магнитного гистерезиса в керамических (поликристаллических) и пленочных (монокристаллических) образцах $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_{3-\delta}$ со структурой перовскита. Аномалия гистерезиса в манганит-лантановых перовскитах объяснена магнитодвухфазным состоянием манганитов, сосуществованием и взаимодействием ферромагнитной и антиферромагнитной фаз.

Введение. В настоящее время интенсивно исследуются перовскитоподобные редкоземельные манганиты типа $\text{R}_{1-x}\text{M}_x\text{MnO}_3$, где R — трехвалентные ионы La, Pr, Nd и других редкоземельных элементов, M — двухвалентные ионы Sr, Ca, Ba. Интерес к этим материалам связан с эффектом колоссального магнитосопротивления, который наблюдается в них, с выяснением природы этого явления и возможности их практического применения [1–4].

Для объяснения колоссального магнитосопротивления привлекаются различные механизмы: двойной обмен Зинера и динамический эффект Яна–Теллера [5,6], механизм, связанный с существованием магнитодвухфазного состояния, характерного для магнитных полупроводников [3].

Основной целью данной работы было исследование магнитного состояния: выявление возможности сосуществования различных магнитных фаз [7–12] и фазового расслоения с образованием кластеров [13,14].

Методы получения и исследования образцов. Манганиты являются металлооксидами, в которых проявляется уникальная взаимосвязь электронных, магнитных и структурных свойств, которые могут регулироваться химическим составом и технологией изготовления.

В качестве базового состава был выбран нестехиометрический лантанстронциевый манганит $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_{3-\delta}$ перовскитовой структуры с высокой температурой Кюри ($T_c > 300 \text{ K}$). Особенностью исследованных составов является избыточное содержание марганца, разновалентные ионы которого определяют магнитные и транспортные свойства манганитов [13,14].

Исследуемые керамические образцы получали по стандартной керамической технологии из смеси порошков оксидов La_2O_3 , SrCO_3 , Mn_2O_3 марок „ЧДА“. Синтезирующий отжиг проводили при 900°C в течение 20 h, спекание спрессованных таблетированных образцов осуществляли при температуре 1150°C в течение 21 h.

Монокристаллическую пленку получали лазерным напылением при 730°C (без дополнительного отжига) на монокристаллическую подложку состава LaSrGaO_4 с ориентацией (100).

Измерение магнитных свойств проводили на вибрационном магнитометре и индуктивно-частотной установке, электропроводность определяли четырехконтактным методом, рентгеноструктурный анализ проводили на рентгеновском дифрактометре ДРОН-2.

Экспериментальные результаты и их обсуждение. Согласно рентгеноструктурным данным, керамические образцы содержали перовскитоподобную ромбоэдрически искаженную ($R3c$) фазу с параметрами решетки $a = 0.3893 \text{ nm}$, $\alpha = 90.44^\circ$ и в малых количествах фазу γ - Mn_2O_3 . Монокристаллическая пленка имела близкую к кубической структуру с параметром кристаллической решетки $a = 0.3845 \text{ nm}$.

Исследование магнитных свойств керамических образцов на вибрационном магнитометре показало, что они являются типичными магнитомягкими ферромагнетиками и насыщение достигается в магнитном поле $H \approx 320 \text{ kA/m}$. Удельная намагниченность насыщения керамических образцов составила $85 \text{ A} \cdot \text{m}^2/\text{kg}$ и $53 \text{ A} \cdot \text{m}^2/\text{kg}$, соответственно при температуре 77 и 290 K в магнитном поле 540 kA/m , температура Кюри $T_c = 348 \text{ K}$. Намагниченность насыщения монокристаллической пленки составила 16 kA/m .

Температурная зависимость сопротивления керамики имеет пик $T_{ms} = 348 \text{ K}$, обусловленный переходом металл–полупроводник в районе T_c . Магнитосопротивление $\Delta R/R_0 = R_0 - R_H/R_0$, где R_0 и R_H — сопротивление образцов в магнитном поле $H = 0$ и $H = 400 \text{ kA/m}$, для керамики составило 4.5–5%. Пик магнитосопротивления ($T_p = 334 \text{ K}$) в магнитном поле $H = 400 \text{ kA/m}$ находится ниже температуры Кюри на 14 K. Для монокристаллической пленки магниторезистивный

эффект составил 6–6.5% и пик магнитосопротивления $T_p = 255$ К. Температурная зависимость сопротивления пленки имеет пик сопротивления $T_{ms} = 285$ К, т.е. температура фазового перехода металл–полупроводник керамики выше на 63 К по сравнению с пленкой. Такие расхождения T_{ms} керамики и пленки мы объясняем различной их кислородной нестехиометрией [15], т.е. содержание кислорода выше в медленно охлаждаемой керамике по сравнению с пленкой, не подвергавшейся дополнительному отжигу при пониженной температуре.

Применение индуктивно-частотной методики [16], ранее применяемой для исследования магнитных свойств феррит-гранатовых пленок, позволило выявить аномалии на кривых намагничивания исследованных образцов манганитов. Образцы помещали в выносную индуктивность измерительного генератора, собственная частота которого $f = 5$ МГц. Воздействие внешнего магнитного поля приводит к изменению магнитного состояния пленки или керамического образца и, как следствие, к изменению индуктивности измерительной катушки и резонансной частоты генератора.

На рис. 1 и 2 приведены изменения частоты контура измерительного генератора (Δf) с керамическим или пленочным образцом манганита при воздействии внешнего квазистатического магнитного поля, перпендикулярного (H_{\perp}) или параллельного (H_{\parallel}) плоскости образца, при комнатной температуре ($T = 290$ К).

Величина отстройки частоты пропорциональна величине намагничивания образца ($\Delta f \propto \Delta M$) или изменению энергии магнетика в магнитном поле, поэтому ход кривой $\Delta f = f(H)$ эквивалентен ходу кривой намагничивания $M = f(H)$. Направление изменения магнитного поля на образце показано стрелками. На рис. 1 верхняя часть кривых $\Delta f = f(H)$ демонстрирует наличие „нормального“ гистерезиса, характерного для магнитомягких материалов: кривая намагничивания идет ниже кривой размагничивания. На нижней части зависимости $\Delta f = f(H)$ (в малых полях) проявляется „аномальный“ гистерезис, когда кривая размагничивания идет ниже кривой намагничивания и минимум энергии магнетика достигается в этом же по знаку магнитном поле.

На рис. 2 аналогичные кривые приведены для монокристаллического пленочного образца $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_3$. Из рисунка видно, что кривые намагничивания пленки в магнитном поле, параллельном и перпендикулярном плоскости образца, значительно отличаются. Когда поле

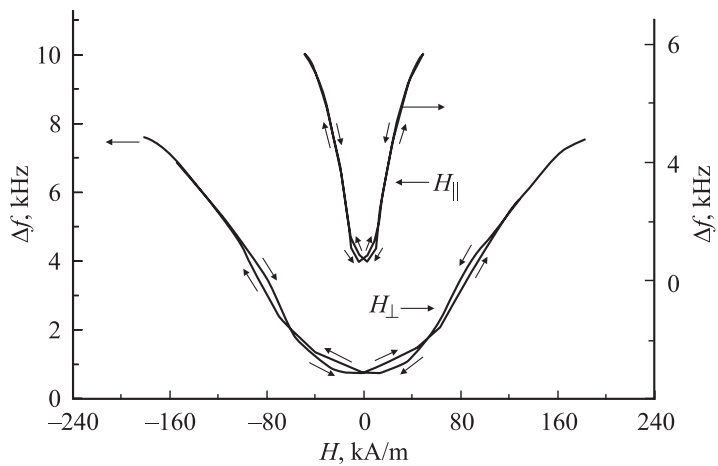


Рис. 1. Изменение резонансной частоты измерительного контура ($\Delta f \propto \Delta M$) с керамическим образцом манганита состава $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_3$ при изменении магнитного поля, параллельного (H_{\parallel}) или перпендикулярного (H_{\perp}) плоскости образца.

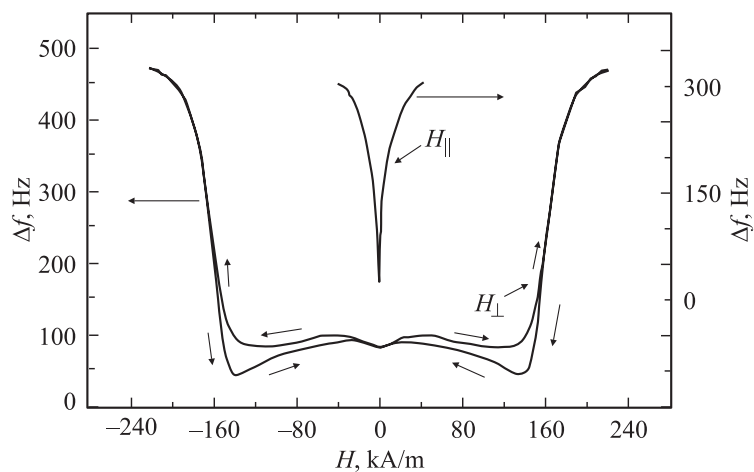


Рис. 2. Изменение резонансной частоты измерительного контура ($\Delta f \propto \Delta M$) с монокристаллическим пленочным образцом $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.2}\text{Mn}_{1.2}\text{O}_3$ при изменении магнитного поля, параллельного (H_{\parallel}) или перпендикулярного (H_{\perp}) плоскости пленки.

приложено параллельно плоскости пленки (H_{\parallel}), происходит насыщение в малых магнитных полях и гистерезис не наблюдается. При намагничивании пленки в поле, перпендикулярном ее поверхности (H_{\perp}), намагниченность не меняется до полей 144 кА/м, а затем происходит быстрое изменение намагниченности до насыщенного состояния. Из рис. 2 видно, что при намагничивании и размагничивании пленочного образца при комнатной температуре ($T = 290$ К) практически не наблюдается „нормального“ гистерезиса, а наблюдается только „аномальный“ гистерезис, когда кривая размагничивания ниже кривой намагничивания и достигает минимального значения в этом же по знаку магнитном поле.

Анализируя данные экспериментов, можно предположить наличие в манганитах магнитных неоднородностей, проявляющих себя как магнитные фазы с различным направлением намагниченности и ответственных соответственно за „нормальный“ и „аномальный“ магнитный гистерезис. Возможным механизмом такого поведения является взаимодействие (обменная анизотропия) между ферромагнитной и антиферромагнитной фазами. Обменная анизотропия в пограничной области, разделяющей две фазы, приводит к сдвигу петли гистерезиса при намагничивании таких материалов в области низких температур [9,17].

По-видимому, такого рода взаимодействие приводит к появлению „аномального“ гистерезиса и его наблюдению при комнатной температуре. Отметим, что величина „аномального“ гистерезиса максимальна при намагничивании образцов до насыщения. На ряде образцов других составов и керамических образцах вышеупомянутого состава, полученных при синтезирующем отжиге 900°C (без отжига при 1150°C), наблюдается только „нормальный“ гистерезис, что, возможно, связано с отсутствием упорядочения в антиферромагнитной фазе. Антиферромагнитная фаза может представлять собой кластеры в кристаллитах и (или) межкристаллитных зонах. Отметим также, что в пленочных образцах манганитов обнаружены магнитно-электрические „мертвые“ слои [18], а в [19] показано, что пленки могут иметь блочную структуру.

Выводы. Обнаружен „аномальный“ магнитный гистерезис на начальных участках кривых намагничивания в керамических и пленочных образцах нестехиометрических манганитов $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,2}\text{Mn}_{1,2}\text{O}_{3-\delta}$. Механизм „аномального“ гистерезиса объяснен наличием и взаимодействием ферромагнитной и антиферромагнитной фаз или кластеров. Этот эффект, видимо, является проявлением различной магнитной восприимчивости ферромагнитной и „скошенной“ магнитных фаз при воздействии внешнего магнитного поля.

Список литературы

- [1] *Jin S., Tiefel T.H., Mc Cormack M.* et al. // *Science*. 1994. V. 264. P. 413–415.
- [2] *Yrushibara A., Moritomo Y., Arima T.* et al. // *Phys. Rev. B*. 1995. V. 51. P. 14103–14109.
- [3] *Нагаев Э.Л.* // *УФН*. 1996. Т. 166. № 8. С. 833–858.
- [4] *Ramires A.P.* // *J. Phys.: Condens. Matter*. 1997. V. 9. P. 8171–8199.
- [5] *Millis A.J., Littlewood P.B., Shraiman B.I.* // *Phys. Rev. Lett.* 1995. V. 74. P. 5144–5147.
- [6] *Millis A.J., Shraiman B.I., Mueller R.* // *Phys. Rev. Lett.* 1996. V. 77. P. 175–178.
- [7] *Королева Л.И., Демин Р.В., Балбашиов А.М.* // *Письма в ЖЭТФ*. 1997. Т. 65. В. 6. С. 449–453.
- [8] *Горбенко О.Ю., Демин Р.В., Кауль А.Р.* и др. // *ФТТ*. 1998. Т. 40. № 2. С. 290–294.
- [9] *Демин Р.В., Королева Л.И., Шимчак Р.* и др. // *Письма в ЖЭТФ*. 2002. Т. 75. В. 7. С. 402–406.
- [10] *Михалев К.Н., Лекомцев С.А., Геращенко А.П.* и др. // *Письма в ЖЭТФ*. 2000. Т. 72. В. 12. С. 867–871.
- [11] *Михалев К.Н., Лекомцев С.А., Геращенко А.П.* и др. // *ФММ*. 2002. Т. 93. № 4. С. 32–41.
- [12] *Арбузова Т.И., Смоляк И.Б., Наумов С.В.* и др. // *ЖЭТФ*. 1999. Т. 116. В. 5. С. 1664–1675.
- [13] *Пащенко В.П., Харцев С.И., Черенков О.П.* и др. // *Неорганические материалы*. 1999. Т. 35. № 12. С. 1509–1516.
- [14] *Пащенко В.П., Прокопенко В.К., Шемяков А.А.* и др. // *Металлофизика и новейшие технологии*. 2000. Т. 22. № 12. С. 18–25.
- [15] *Пащенко В.П., Кучеренко С.С., Поляков П.И.* и др. // *ФНТ*. 2001. Т. 27. № 12. С. 1370–1375.
- [16] *Maartense J.* // *J. Appl. Phys.* 1982. V. 53. N 3 (2). P. 2466–2470.
- [17] *Meiklejohn W.H., Bean C.P.* // *Phys. Rev.* 1957. V. 105. N 3. P. 904–913.
- [18] *Borges R.P., Guichard W., Lunney J.G.* et al. // *J. Appl. Phys.* 2001. V. 89. N 7. P. 3868–3873.
- [19] *Бойков Ю.А., Клаесон Т., Бойков А.Ю.* // *ЖТФ*. 2001. Т. 71. В. 10. С. 54–58.