

05;06;07;12

## Гигантское изменение оптического поглощения пленки $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ вблизи перехода металл–изолятор и возможности его использования

© Ю.П. Сухоруков, Н.Н. Лошкарева, Е.А. Ганьшина,  
А.Р. Кауль, О.Ю. Горбенко, К.А. Фатиева

Институт физики металлов УрО РАН, Екатеринбург  
Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова

Поступило в Редакцию 14 апреля 1999 г.

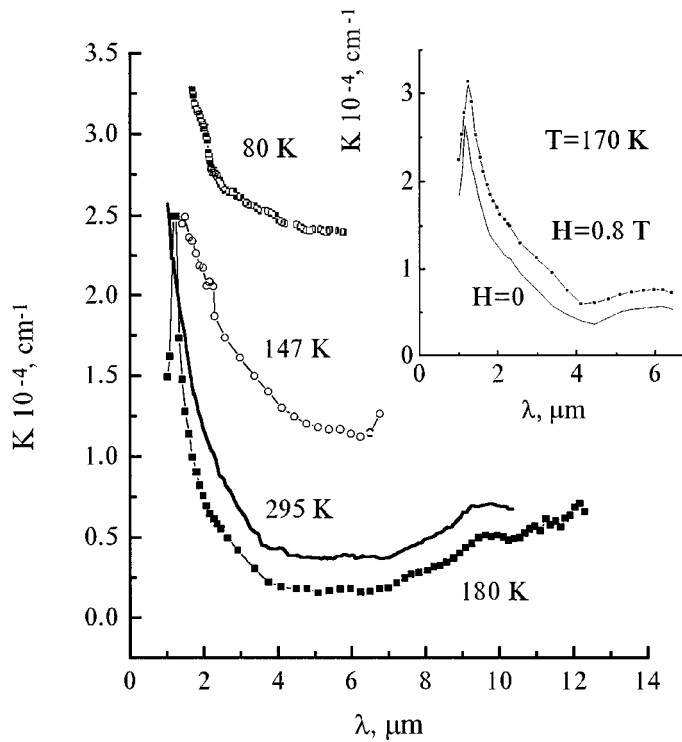
Исследованы спектры поглощения монокристаллической пленки  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  в спектральном интервале 0.1–1.6 eV в температурном диапазоне 80–295 К. При переходе металл–изолятор в области температур 160–180 К обнаружено резкое увеличение интенсивности прошедшего света в  $\sim 400$  раз. Приложение магнитного поля 0.8 Т приводит к относительному изменению интенсивности вблизи перехода, достигающему 55%. Рассмотрены возможности использования наблюдаемых эффектов для создания магнитоуправляемых оптических устройств.

Интенсивно изучаемые в последнее время манганиты с перовскитоподобной структурой являются перспективными материалами для различных устройств, использующих наблюдаемое в этих соединениях явление колоссального магнитосопротивления (КМС) в широком интервале температур. Явление КМС связано с переходом металл–изолятор, происходящим, как правило, вблизи магнитного фазового перехода ферромагнетик–парамагнетик [1]. Резкое изменение электросопротивления монокристаллических пленок  $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_{3+\delta}$  при переходе металл–изолятор и высокое оптическое поглощение в широкой спектральной области явились основой для создания детекторов электромагнитного излучения — болометров [2]. Недавно [3] мы сообщали о влиянии магнитного поля на коэффициент поглощения монокристалла  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$ . Относительное изменение поглощения на длине волны  $3.8 \mu\text{m}$  достигает  $\sim 30\%$  в поле 0.8 Т при 140 К, что указывает на возможность использования манганитов с перовскитоподобной струк-

турой для магнитоуправляемых оптических устройств. В настоящей работе представлены результаты исследования спектров поглощения монокристаллической пленки твердого раствора  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ . Выбор данного состава обусловлен наличием у него острого максимума электрического сопротивления в узком температурном интервале и большого магнитосопротивления в полях меньше 1 Т [4].

Пленка  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  толщиной 300 нм была выращена методом химического осаждения из паровой фазы на монокристаллической подложке из  $\text{SrTiO}_3$  с ориентацией (001) при температуре 750°C и парциальном давлении кислорода 0.003 ат. Исследования методами рентгеновской дифракции, рамановской спектроскопии, просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения указывают на эпитаксиальный характер, структурную и химическую однородность полученной пленки [5,6]. Спектры поглощения измерялись в области 0.8–12  $\mu\text{m}$  (0.1–1.6 eV), температурном интервале 80–295 К и магнитных полях до 1.2 Т на автоматизированном ИК-спектрометре ИКС-21. Магнитное поле прикладывалось вдоль направления распространения света и перпендикулярно плоскости пленки. Экваториальный эффект Керра измерялся в температурном интервале 20–300 К и спектральном диапазоне 1.4–3.5 eV.

На рис. 1 представлены спектры поглощения пленки  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  при различных температурах. Выбор температур поясняет рис. 2, демонстрирующий температурную зависимость интенсивности прошедшего через пленку света ( $I$ ) на длине волны  $\lambda = 2.4 \mu\text{m}$ . Температура 295 К соответствует парамагнитному состоянию пленки, а 80 К — ферромагнитному. При 180 К наблюдается максимальная прозрачность пленки, ниже этой температуры происходит скачкообразное уменьшение прозрачности, связанное с переходом изолятор–металл. При этом интенсивность изменяется более чем в 400 раз. Вид температурной зависимости интенсивности  $I(T)$  (рис. 2) согласуется с температурной зависимостью удельного электросопротивления  $\rho(T)$  (рис. 3). Падение сопротивления при переходе изолятор–металл составляет около четырех порядков от  $1 \Omega \cdot \text{cm}$  (180 К) до  $10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$  (80 К), электросопротивление при 295 К составляет  $1.7 \cdot 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$ . Переход происходит в узком температурном интервале  $\sim 15 \text{ grad}$ . Внешнее магнитное поле 0.8 Т приводит к сдвигу максимумов электросопротивления и оптической прозрачности в область больших температур и понижению интенсивности прошедшего света в максимуме. Влияние магнитного поля существенно в узком температурном интервале вблизи перехода



**Рис. 1.** Спектры поглощения пленки  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  при различных температурах. На вставке — спектры поглощения в магнитном поле и без поля.

изолятор–металл. Относительное изменение интенсивности прошедшего света при приложении магнитного поля  $\Delta I/I_{H=0} = (I_{H=0} - I_H)/I_{H=0}$  в поле 0.8 Т достигает максимального значения  $\sim 55\%$  в коротковолновой области (при  $2.4 \mu\text{m}$ ) и сохраняется значительным ( $\sim 40\%$ ) вплоть до  $11 \mu\text{m}$ . При максимальной прозрачности пленки (рис. 1, кривая при 180 К) в исследованном спектральном диапазоне наблюдаются полосы поглощения при  $1.3 \mu\text{m}$  ( $\sim 1 \text{ eV}$ ) и  $10 \mu\text{m}$  ( $0.12 \text{ eV}$ ), соответствующие локальным состояниям. При длинах волн, меньших  $3 \mu\text{m}$ , наблюдается рост поглощения. При переходе в металлическое состояние поглощение увеличивается во всем спектральном диапазоне  $0.8\text{--}12 \mu\text{m}$ . Внешнее

магнитное поле в ферромагнитной области действует так же, как охлаждение, т. е. приводит к увеличению поглощения (вставка к рис. 1).

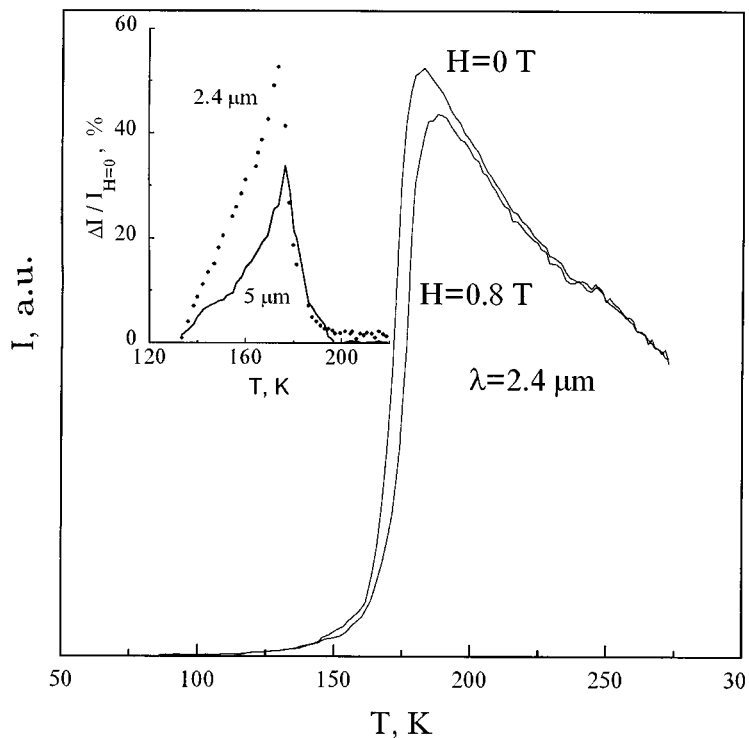
Анализ спектров поглощения пленки  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  в исследованном спектральном интервале предполагает учет следующих факторов:

1. Полосы поглощения при 1.3 и 10  $\mu\text{m}$ , так называемые MIR (midinfrared)-полосы. Наличие этих полос является особенностью спектров сильно коррелированных систем. Они наблюдаются в спектрах всех купратных ВТСП соединений [7] и в спектрах легированных манганитов, содержащих ионы марганца в разновалентном состоянии: в поликристаллах  $\text{La}_{0.7-y}\text{Pr}_y\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  [8], в монокристалле  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$  [3], поликристаллах  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  [9]. Природа этих полос связана с сильным корреляционным эффектом, возникающим при введении дополнительной дырки или электрона в базисные кластеры [10].

2. Перераспределение спектрального веса из высокоэнергетической области, где имеют место переходы с переносом заряда и  $d-d$ -переходы (и в особенности наиболее близкие по энергии переходы, связанные с Ян-Теллеровским расщеплением  $e_g$  уровней [8]), в низкоэнергетическую область, где проявляется взаимодействие света с носителями заряда, при охлаждении пленки ниже температуры Кюри. Подобный эффект наблюдался нами при исследовании спектра поглощения монокристалла  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$  при охлаждении ниже  $T_C$  [3]. Такое перераспределение в зависимости от температуры для  $\text{La}_{0.7-y}\text{Pr}_y\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  [8] аналогично перераспределению спектрального веса оптической проводимости монокристаллов  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  [11] и  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  [12] в зависимости от концентрации Sr, которое также является общей чертой сильно коррелированных систем [10]. Действие этого фактора в пленке  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  приводит к общему увеличению поглощения при охлаждении ниже  $T_C$ .

3. "Хвосты" межзонного поглощения.

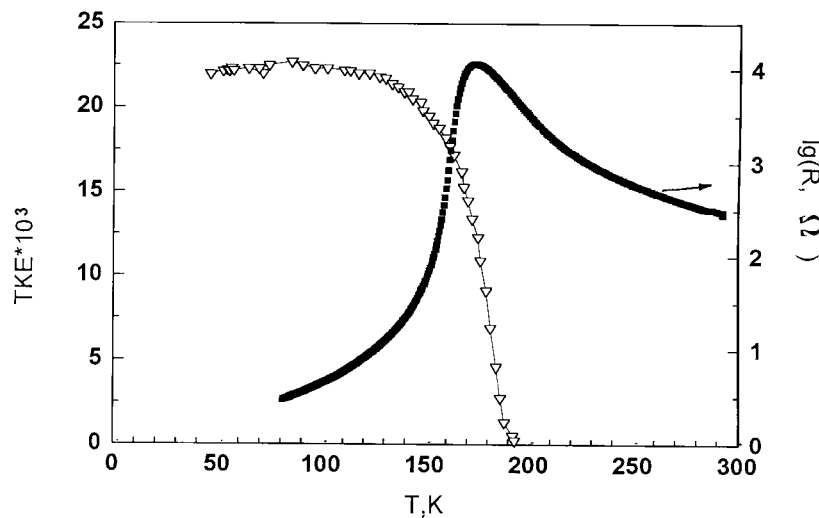
Температурная зависимость интенсивности прошедшего света  $I(T)$  в области взаимодействия света с носителями заряда обычно отражает температурное поведение сопротивления  $\rho(T)$ . Однако в случае манганитов лантана с низким уровнем легирования ( $x < 0.16$  при  $\delta \approx 0$  [13]), возможно зарядовое и магнитное разделение фаз [1]. В таком неоднородном состоянии совпадения зависимостей  $I(T)$  и  $\rho(T)$  может и не быть [9]. При высоком уровне легирования, как в пленке  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ , наблюдается корреляция зависимостей  $I(T)$  и  $\rho(T)$  (рис. 2, 3).



**Рис. 2.** Температурные зависимости интенсивности света, прошедшего через пленку  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  в магнитном поле и без поля. На вставке — температурные зависимости относительного изменения интенсивности прошедшего света под действием магнитного поля 0.8 Т при фиксированных длинах волн.

Измерения температурной зависимости экваториального эффекта Керра (ЭЭК, рис. 3) также подтверждают появление однородной ферромагнитной фазы. Температура, при которой возникает ЭЭК (190 К), близка к температуре начала перехода изолятор–металл  $\sim 180$  К (рис. 2,3).

Переход изолятор–металл в пленке  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  может быть объяснен сдвигом края подвижности, зависящим от магнитного



**Рис. 3.** Температурные зависимости электросопротивления [4] и экваториального эффекта Керра при 2.3 eV в магнитном поле 0.1 Т для пленки  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

беспорядка [14]. Край подвижности пересекает уровень Ферми  $E_F$  при температуре перехода изолятор–металл  $T_M$ . Ниже этой температуры проводимость металлического типа, в то время как выше проводимость происходит благодаря активации носителей на край подвижности и прыжками между локализованными состояниями. Магнитное поле понижает край подвижности из-за уменьшения магнитного беспорядка, что приводит к более высокой температуре перехода (рис. 2).

Для пленки  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  наблюдается гистерезис интенсивности прошедшего света при фиксированной длине волны в зависимости от магнитного поля. Первое включение магнитного поля величиной 0.8 Т, а затем его выключение не привело к восстановлению первоначальной (до включения) интенсивности  $I_0$ . Новая интенсивность  $I_1$  оказалась меньше  $I_0$  на  $\sim 17\%$ . Интенсивность  $I_1$  стала начальной и конечной точкой при измерениях гистерезиса  $I(H)$ . Размагничивание пленки путем коммутации и уменьшения напряженности поля до нуля

не привело к восстановлению первоначальной интенсивности  $I_0$ . Все результаты влияния магнитного поля на оптическое поглощение хорошо воспроизводятся лишь при охлаждении пленки до 80 К в магнитном поле  $\sim 0.8$  Т.

Гигантское изменение интенсивности прошедшего света и существенное влияние магнитного поля на поглощение пленки  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  вблизи перехода изолятор–металл являются основой для создания ряда оптоэлектронных устройств:

Модулятор инфракрасного излучения, работающий в широком спектральном диапазоне (1–11  $\mu\text{m}$ ) в области температур вблизи перехода изолятор–металл (165–180 К). Основа работы — изменение поглощения пленки при приложении магнитного поля — эффект магнитопоглощения. Как следует из вставки к рис. 2, устройство обладает высокой глубиной модуляции (до 55%). Конструкция его предельно проста — источник магнитного поля и пленка  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ . Величина управляющего поля может составлять менее 0.1 Т при направлении поля вдоль плоскости эпитаксиальной пленки. Подобное устройство, использующее монокристалл магнитного полупроводника  $\text{HgCr}_2\text{Se}_4$ , описано нами в [15].

Оптический затвор, перекрывающий инфракрасное излучение при охлаждении устройства ниже  $\sim 140$  К. Используется гигантское (в  $\sim 400$  раз) изменение прозрачности в узком температурном диапазоне.

Ослабитель излучения, управляемый температурой и/или магнитным полем. При стабилизации температуры, попадающей в область сильного изменения интенсивности  $I(T)$ , дополнительный нагрев увеличивает прозрачность, а приложение магнитного поля ее уменьшает.

Таким образом, в монокристаллической пленке  $\text{La}_{0.35}\text{Pr}_{0.35}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  обнаружено гигантское изменение поглощения в инфракрасной области спектра вблизи перехода изолятор–металл (165–180 К) и существенное влияние магнитного поля на поглощение. Наблюдаемые эффекты связаны с переходом изолятор–металл, природа которого связывается с движением края подвижности при изменении температуры и магнитного поля. Предложен ряд устройств, использующих эти явления.

Авторы благодарны Н.Г. Бебенину за плодотворное обсуждение работы.

Работа поддержана РФФИ грант 99–02–16595.

## Список литературы

- [1] *Назаев Э.Л.* // УФН. 1996. Т. 166. № 8. С. 833–858.
- [2] *Hao Y.H., Zeng X.T., Wong H.K.* // J. Appl. Phys. 1996. V. 79. N 3. P. 1810.
- [3] *Loshkareva N.N., Sukhorukov Yu.P., Gizhevskii B.A.* et al. // Phys. Stat. Sol. (A). 1997. V. 164. P. 863–866.
- [4] *Gorbenko O.Yu., Bosak A.A., Kaul A.R.* et al. // MRS Proceedings. 1998. V. 495. P. 333–338.
- [5] *Gorbenko O.Yu., Kaul A.R., Bosak A.A.* et al. // High Temperature Superconductors and Novel Inorganic Materials (NATO ASI series). 1999. P. 233–238.
- [6] *Guettler B., Skuja L., Gorbenko O.Yu.* et al. // MRS Proceedings 1998. V. 517. P. 111–123.
- [7] *Thomas G.A., Rapkine D.H., Cooper C.L.* et al. // Phys. Rev. B 45. 1992. N 5. P. 2474–2479.
- [8] *Kim K.H., Jung J.H., Eom D.J.* et al. // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 81. P. 4983–4986.
- [9] *Лошкарева Н.Н., Сухоруков Ю.П., Наумов С.В.* и др. // Письма в ЖЭТФ. 1998. Т. 68. В. 1. С. 89–92.
- [10] *Moskvin A.S.* // Physica. B. 1998. V. 252. P. 186–197.
- [11] *Номерованная Л.В., Махнев А.А., Лобов И.Д., Румянцев А.Ю.* // Новые магнитные материалы микроэлектроники. Тез. XVI Международной школы-семинара. Москва. МГУ. 1998. С. 361–362.
- [12] *Usida S., Ido T., Takadi H., Orima T.* et al. // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. P. 7942–7951.
- [13] *Imada M., Fujimori A., Tokura Y.* // Rev. Mod. Phys. 1998. V. 70. P. 1039–1263.
- [14] *Bebenin N.G., Ustinov V.V.* // J. Phys.: Condens. Matter 1998. V. 10. P. 6301–6309.
- [15] *Лошкарева Н.Н., Сухоруков Ю.П., Гижевский Б.А., Самохвалов А.А.* // Письма в ЖТФ. 1989. Т. 15. В. 17. С. 83–86.