

Акустические исследования монокристалла $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$

© А.В. Гольцев, К.В. Дьяконов, Н.Ф. Картенко, Л.А. Кулакова, В.В. Попов,
Э.З. Яхкинд, Я.М. Муковский*, В.П. Дьяконов**,***

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Московский государственный институт стали и сплавов,
117936 Москва, Россия

** Донецкий физико-технический институт Национальной академии наук Украины,
83114 Донецк, Украина

*** Institute of Physics, Polish Academy of Sciences,
02-668 Warsaw, Poland

E-mail: k.dyakonov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 11 февраля 2005 г.)

Сообщается об акустических, резистивных и магнитных исследованиях монокристалла манганита лантана $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$, выполненных в температурной области, включающей магнитный фазовый переход второго рода. Акустические измерения проведены импульсным эхо-методом в диапазоне частот 14–90 МГц. Обнаружено, что при понижении температуры скорость продольной акустической волны, распространяющейся вдоль оси [111] монокристалла, резко возрастает ниже критической температуры магнитного фазового перехода. Дисперсия скорости звука не наблюдалась. Резкий рост скорости звука сопровождается пиком поглощения. Наблюдаемые эффекты обсуждаются в рамках взаимодействия звука с магнитными моментами ионов марганца.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 04-02-17598), ОФН РАН, МНТЦ (грант № 1859) и Polish Government Agency KBN (проект N 1 P03B 025 26).

1. Введение

В последние годы активно изучаются соединения редкоземельных манганитов $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$, где R — редкоземельный металл (La, Nd, Pr), A — щелочно-земельный металл (Ca, Sr, Ba). Эти соединения привлекают к себе огромное внимание благодаря сложному переплетению электронных, магнитных и решеточных свойств, а также благодаря колоссальной чувствительности их сопротивления к магнитному полю и механическим деформациям (см., например, обзоры [1,2]). Это делает данные материалы удобными модельными объектами для исследования физики сильно коррелированных систем и перспективными для разнообразных технических приложений (в частности, в устройствах записи, хранения и обработки информации).

В настоящее время считается установленным, что свойства манганитов определяются не только механизмом двойного обмена [3], но и сильным электрон-фононным взаимодействием ян-теллеровского типа [4]. Сильное электрон-фононное взаимодействие делает акустические методы исследований особенно привлекательными для более глубокого понимания физических свойств манганитов и природы эффекта колоссального магнетосопротивления. Изучение акустических характеристик (поглощение и скорость звука) манганитов позволяет получать важную независимую информацию о релаксационных процессах в электронной, фононной и магнитной подсистемах исследуемых объектов, а также о структурных и магнитных фазовых переходах и механизмах электрон-фононного и спин-фононного взаимодействия [5–7].

В настоящей работе мы сообщаем о комплексных акустических, резистивных и магнитных исследованиях монокристалла манганита лантана $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$, выполненных в температурной области, включающей магнитный переход и переход металл-диэлектрик. $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ является типичным соединением, обнаруживающим магнетосопротивление в области ферромагнитного фазового перехода с высокой критической температурой $T_c \approx 340$ К. Простая фазовая диаграмма исследуемого соединения и возможность изготовления монокристаллических образцов высокого качества делают $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ удобным объектом для изучения особенностей и механизмов взаимодействия акустических волн с электронной, фононной и магнитной подсистемами в редкоземельных манганитах.

2. Методика эксперимента

Монокристалл $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ выращивался из предварительно спеченной керамики методом бестигельной зонной плавки с радиационным нагревом [8]. Рентгеноструктурный анализ кристалла проводился методами Лауэ и колебания образца, дифрактограмма растертого в порошок образца получена на аппарате ДРОН-2 (CuK_α -излучение). Измерения поглощения и скорости продольной акустической волны проводились в интервалах температур 77–420 К и частот 14–90 МГц. Цилиндрический образец диаметром 3 мм и длиной 5 мм, ориентированный вдоль кубической оси [111], изготавливался с помощью охлаждаемой резки с последующей тонкой шлифовкой и оптической полировкой торцов.

Звук возбуждался резонансными преобразователями из ниобата лития и пьезокерамики, приклеенными к полированной грани образца посредством склейки Nonaq Storcock. Использовались как основные частоты преобразователя ($f = 50, 30$ и 14 MHz), так и его высшие гармоники.

Данные о скорости звука получены методом совмещения ВЧ-заполнения последовательных эхо-импульсов — методом Пападакиса [9]. Точность относительных измерений при этом была около 0.01%.

Сопротивление образца измерялось четырехзондовым методом в интервале температур 77–470 К. Восприимчивость определялась индукционным методом на частоте 1 kHz.

В процессе измерений образец помещался в криостат, наполняемый парами жидкого азота, а температура регулировалась нагревателем и измерялась термопарой. Скорость изменения температуры в процессе измерений составляла 1 K/min.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Согласно результатам измерения поликристалла, представленным на рис. 1, образец $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ имеет ромбоэдрическую симметрию. Параметры элементарной ячейки приведены в таблице. Полученные результаты хорошо согласуются с данными [10].

Рентгеновские исследования кристалла показали, что образец является блочным монокристаллом с разориентацией блоков, не превышающей 1° . Качество монокристалла не позволило выявить ромбоэдрическое искажение; согласно нашим данным, $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ имеет кубическую псевдоячейку с постоянной решетки $a = 3.91$ (1) Å. На рис. 2 показана эпилауэграмма исследованного образца.

Параметры элементарной ячейки монокристалла $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$

Гексагональная псевдоячейка		Ромбоэдрическая ячейка	
$a_H, \text{Å}$	$c_H, \text{Å}$	$a_R, \text{Å}$	γ, deg
5.530 (3)	13.404 (6)	5.492	60.46

При $T = 430$ К величина удельного сопротивления монокристалла $\rho = 6 \cdot 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$, а температурная зависимость сопротивления R (рис. 3) имеет вид, типичный для образцов данного состава [10]: широкий максимум в области температур 470–350 К и резкое (примерно в 5 раз) уменьшение R при $T = 330$ –350 К.

По данным магнитных измерений, представленных на рис. 3, при температуре $T_c \approx 337$ К в образце происходит магнитный фазовый переход второго рода. Величина магнетосопротивления $\Delta\rho(H)/\rho(0) = [\rho(H) - \rho(0)]/\rho(0)$ возрастает при приближении к температуре перехода и составляет -7% в поле $H = 30$ kOe при $T = 300$ К.

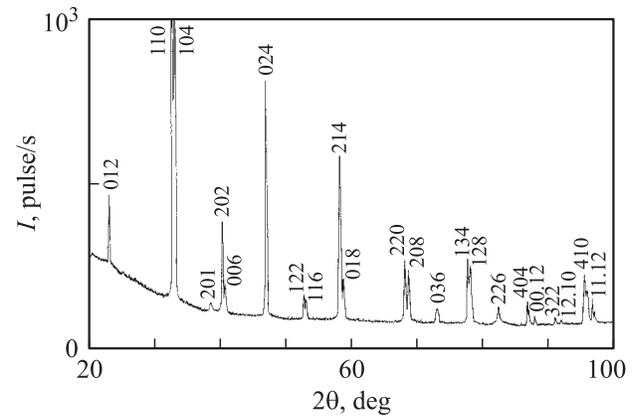


Рис. 1. Дифрактограмма монокристалла $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$. Индексы рефлексов соответствуют гексагональной псевдоячейке.

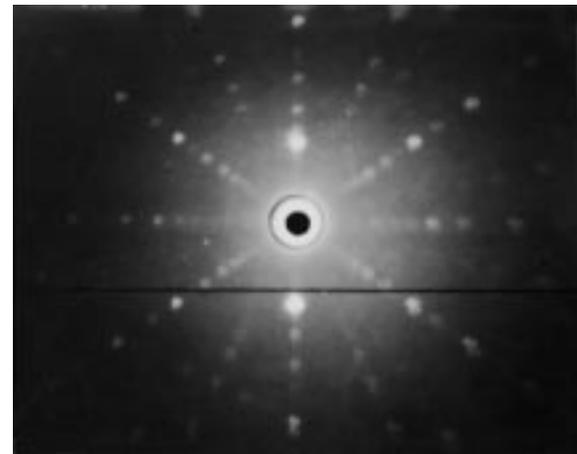


Рис. 2. Эпилауэграмма монокристалла $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$, полученная вдоль кубической оси [110].

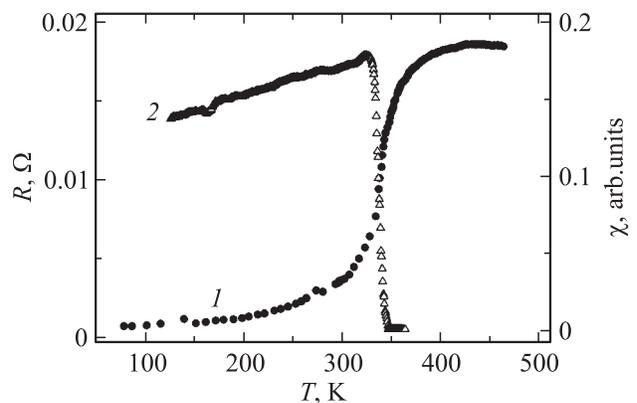


Рис. 3. Температурные зависимости сопротивления R в нулевом магнитном поле (1) и магнитной восприимчивости χ (2) монокристалла $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$.

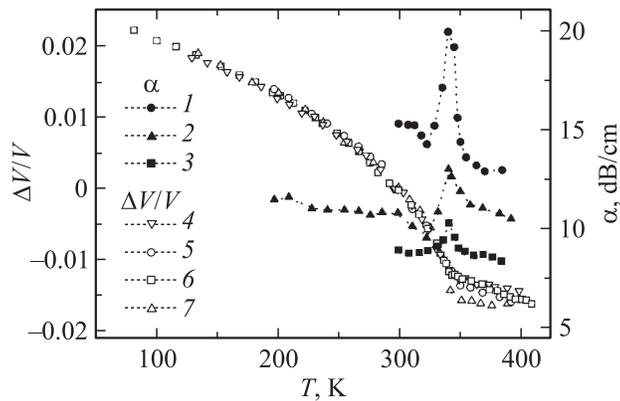


Рис. 4. Температурные зависимости коэффициента поглощения α (1–3) и относительного изменения скорости $\Delta V/V$ (4–7) продольной акустической волны в монокристалле $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$. f , MHz: 1, 4 — 90, 2, 5 — 50, 3, 6 — 36, 7 — 14.

Результаты измерений температурных зависимостей коэффициента поглощения α и относительного изменения скорости $\Delta V/V$ продольной акустической волны, распространяющейся в монокристалле $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ вдоль направления [111], показаны на рис. 4. При $T = 300$ К абсолютная величина скорости акустической волны $V = 6.41 \cdot 10^5$ см/с. На кривой $\Delta V/V(T)$ можно выделить три характерных участка. В областях температур $T > 345$ К и $T < 325$ К скорость монотонно растет с понижением температуры, а в области магнитного фазового перехода ($T \approx 340$ К) наблюдается резкое изменение скорости звука ($\Delta V/V \sim 1\%$). В пределах точности измерений ни температурного гистерезиса, ни дисперсии скорости звука не наблюдалось.

Коэффициент поглощения α акустической волны на всех частотах за пределами интервала температур, соответствующего фазовому переходу, имеет слабую температурную зависимость (рис. 4). В области перехода ($T \approx 340$ К) наблюдается достаточно резкий максимум поглощения. Согласно результатам измерений, величина поглощения $\Delta\alpha$ в максимуме увеличивается с ростом частоты, при этом в пределах точности измерений температурное положение максимума от частоты звука не зависит.

Отсутствие дополнительных особенностей на температурных зависимостях коэффициента поглощения и скорости звука свидетельствует об отсутствии структурных превращений в манганитах данного состава, что подтверждается результатами нейтронных и рентгеновских исследований [11].

Полученные нами данные о поглощении и скорости звука качественно согласуются с результатами температурных измерений скорости продольной акустической волны и коэффициента внутреннего трения в монокристалле $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$, выполненных на фиксированной частоте 100 kHz методом составного вибратора в работе [12]. Авторы [12], так же как и мы, наблюдали рост скорости звука и максимум внутреннего трения

в области магнитного фазового перехода. Кроме того, в [12] сообщается о наблюдении „гигантского“ пика коэффициента внутреннего трения при $T = 415$ К, который не сопровождается аномалиями на температурной зависимости скорости звука и связан, по мнению авторов, с релаксационными процессами в системе точечных дефектов в образце. Отсутствие аналогичного пика поглощения при наших измерениях может свидетельствовать либо об отсутствии подобных точечных дефектов в исследованном монокристалле, либо о том, что наблюдение этого эффекта на частотах 14–90 MHz возможно лишь в области высоких температур (по нашим оценкам с использованием данных, приведенных в [12], при $T \approx 570$ –660 К).

Обнаруженный нами максимум поглощения в области магнитного перехода при $T \approx 340$ К (рис. 4) может быть объяснен дополнительным поглощением, обусловленным взаимодействием продольной акустической волны с параметром порядка (спонтанным магнитным моментом). В общем случае имеются следующие механизмы дополнительного поглощения [13–15]. Прежде всего, согласно теории Ландау–Халатникова [13,15], учет критического замедления релаксации параметра порядка вблизи фазового перехода второго рода в области $T < T_c$ приводит к возникновению дополнительного вклада в поглощение, который как функция частоты имеет классический для дебаевской релаксации вид

$$\alpha_R = \frac{AM^2}{\tau} \frac{\omega^2 t}{1 + \omega^2 t^2},$$

где A — численный множитель, M — спонтанный магнитный момент, $\tau = 1 - T/T_c$ — приведенная температура, $\omega = 2\pi f$ — циклическая частота акустической волны, $t = t_0 \tau^{-1}$ — время релаксации спонтанного магнитного момента. Как функция температуры вклад α_R имеет вид асимметричного пика с максимумом при температуре, при которой выполняется условие $\omega t = 1$. Характерное время спиновой релаксации t_0 для обычных магнетиков порядка 10^{-9} с, поэтому для области частот $f = 14$ –90 MHz температурный максимум α_R должен располагаться достаточно близко к T_c . Это согласуется с наблюдаемым положением пика поглощения.

Кроме механизма Ландау–Халатникова дополнительный вклад в поглощение звука может вносить взаимодействие звука с критическими флуктуациями намагниченности. Этот вклад имеет вид симметричного пика $\alpha_F \propto |\tau|^{-n}$, расходящегося при $T = T_c$, где n — некоторая критическая экспонента [14,15]. Однако эта расходимость может наблюдаться только в очень чистых материалах. В реальных веществах расходимость сглаживается, например, структурными дефектами и неоднородностями. В некоторых случаях флуктуационный вклад α_F может оказаться малым по сравнению с α_R [15].

Форма обнаруженного нами пика поглощения в $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ (рис. 4) заметно отличается от пика Ландау–Халатникова. Лучше она может быть описана суммой вклада Ландау–Халатникова и флуктуационного

вклада: $\alpha = \alpha_R + \alpha_F$. К сожалению, точность измерений не позволяет разделить эти вклады и провести их детальный анализ.

4. Заключение

В настоящей работе обсуждаются результаты акустических, резистивных и магнитных исследований монокристалла манганита лантана $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ в широкой температурной области, включающей магнитный фазовый переход при $T_c \approx 340$ К. Акустические измерения, выполненные импульсным эхо-методом в диапазоне частот 14–90 МГц, показали, что с понижением температуры скорость продольной акустической волны, распространяющейся вдоль оси [111] монокристалла, начинает резко возрастать ниже T_c . Резкое возрастание скорости звука сопровождается пиком поглощения. Эти аномалии акустических свойств указывают на сильное взаимодействие акустической волны с магнитными моментами ионов марганца в $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$. Проведенный теоретический анализ показывает, что асимметричная форма пика поглощения свидетельствует о наличии в этом соединении не только релаксационного вклада Ландау–Халатникова в поглощение звука, но также и большого вклада, обусловленного взаимодействием звука с критическими флуктуациями намагниченности вблизи магнитного фазового перехода второго рода.

Список литературы

- [1] Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Скрябин. УФН **171**, 2, 121 (2001).
- [2] С.М. Дунаевский. ФТТ **46**, 2, 193 (2004).
- [3] C. Zener. Phys. Rev. **82**, 3, 403 (1951).
- [4] A.J. Millis, P.B. Littlewood, B.I. Schirmer. Phys. Rev. Lett. **74**, 25, 5144 (1995).
- [5] Р.И. Зайнуллина, Н.Г. Бебенин, В.В. Машкауцан, А.М. Бурханов, В.С. Гавико, В.В. Устинов, Я.М. Муковский, Д.А. Шулятев, В.Г. Васильев. ЖЭТФ **120**, 1, 139 (2001).
- [6] Х.Г. Богданова, А.Р. Булатов, В.А. Голенищев-Кутузов, Л.В. Блохина, А.В. Капралов, А.В. Королев, Э.А. Нейфельд, М.М. Шакирзянов. ФТТ **45**, 2, 284 (2003).
- [7] J. Mira, J. Rivas, A. Moreno-Gobbi, M. Perez Macho, G. Paolini, F. Rivadulla. Phys. Rev. B **68**, 9, 92404 (2003).
- [8] D. Shulyatev, S. Karabashev, A. Arsenov, Ya. Mukovskii. J. Cryst. Growth **198/199**, 511 (1999).
- [9] E.J. Papadakis. J. Acoust. Soc. Am. **42**, 5, 1045 (1967).
- [10] A. Urushibara, Y. Morimoto, T. Arima, A. Asamitsu, G. Kido, Y. Tokura. Phys. Rev. B **51**, 20, 14103 (1995).
- [11] Y. Endoh, H. Nojiri, K. Kaneko, K. Hirota, T. Fukuda, H. Kimura, Y. Murakami, S. Ishihara, S. Maekawa, S. Okamoto, M. Motokawa. Cond-mat/9812404.
- [12] R.I. Zainullina, N.G. Bedenin, A.M. Burkhanov, V.V. Ustinov, Ya.M. Mukovskii. Phys. Rev. B **66**, 6, 064421 (2002).
- [13] Л.Д. Ландау, И.М. Халатников. ДАН СССР **96**, 3, 469 (1954).
- [14] F. Schwabl. Phys. Rev. B **7**, 5, 2038 (1973).
- [15] S. Zherlitsyn, G. Bruls, A. Goltsev, B. Alavi, M. Dressel. Phys. Rev. B **59**, 21, 13861 (1999).