

Вольт-амперные характеристики поликристаллического $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ в области низких температур

© К.А. Шайхутдинов, Д.А. Балаев, С.И. Попков, С.В. Семенов,
Н.В. Сапронова, Н.В. Волков

Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН,
Красноярск, Россия

E-mail: smp@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 21 апреля 2011 г.)

Экспериментально исследованы вольт-амперные характеристики (ВАХ) поликристаллического замещенного манганита лантана $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ при температурах, близких к температуре перехода металл-диэлектрик, и при низких температурах. В обоих случаях ВАХ проявляют нелинейные свойства, сильно зависящие от величины приложенного магнитного поля. Установлено, что механизмы, ответственные за нелинейные свойства при указанных температурах, различны: вблизи перехода металл-диэлектрик вид ВАХ определяется фазовым расслоением внутри гранул, тогда как при низких температурах вид ВАХ определяет туннелирование носителей через диэлектрические прослойки гранул.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Лаврентьевского конкурса молодежных проектов СО РАН № 12.

Вольт-амперные характеристики (ВАХ) замещенных манганитов лантана $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$ (R — трехвалентные редкоземельные ионы La^{3+} , Nd^{3+} , Pr^{3+} , Sm^{3+} и др., A — двухвалентные ионы Ca^{2+} , Sr^{2+} , Ba^{2+} , Pb^{2+}) подробно исследовались многими авторами [1–9]. Основной особенностью ВАХ соединений $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$ можно считать их нелинейные свойства, сильно зависящие от величины внешнего магнитного поля. Так, нелинейности ВАХ монокристаллических образцов манганитов обычно объясняются в предположении, что кристалл находится в неоднородном состоянии магнитного фазового расслоения, когда фазы с различной проводимостью сосуществуют в объеме образца и внешнее воздействие, такое как магнитное поле, меняет объемное соотношение между фазами [2,3,10]. В этом случае основные особенности ВАХ проявляются при температурах, близких к температуре перехода металл-диэлектрик, которая для монокристаллов практически совпадает с температурой Кюри. Это связано с тем, что в данном температурном интервале фазовое расслоение на ферромагнитные проводящие области и антиферромагнитные диэлектрические области проявляется в наибольшей степени, вследствие чего магнитосопротивление образца максимально.

В случае поликристаллов $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$ в области температур, близких к переходу металл-диэлектрик ВАХ также нелинейны и чувствительны к величине внешнего магнитного поля [3], что связано с проявлением фазового расслоения. Однако в случае поликристаллических замещенных манганитов лантана, для которых основным состоянием является состояние ферромагнитного металла, в области температур существенно ниже температуры перехода металл-диэлектрик наблюдаются зна-

чительный магниторезистивный эффект и нелинейность ВАХ. В данном случае это может быть связано со спин-зависимым туннелированием носителей тока между ферромагнитными гранулами через диэлектрические межкристаллитные границы. Величина низкотемпературного магнитосопротивления зависит в первую очередь от протяженности межкристаллитных границ и их природы [11,12]. Например, как было показано нами [13], в случае поликристаллического $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ межкристаллитные границы являются антиферромагнитным диэлектриком, что вносит дополнительный вклад в низкотемпературное магнитосопротивление из-за обменного взаимодействия антиферромагнитной прослойки с ближайшими ферромагнитными доменами гранул. Большая величина низкотемпературного магнитосопротивления, сравнимая с таковой вблизи перехода металл-диэлектрик, несомненно, должна оказывать влияние и на вид ВАХ при низких температурах. Таким образом, целью настоящей работы является изучение ВАХ поликристаллического $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ в температурных диапазонах, где магниторезистивный эффект максимален: в области низких температур и вблизи перехода металл-диэлектрик. Значения измерительного тока выбирались так, чтобы избежать процессов внутреннего разогрева носителей и появления на ВАХ участков с отрицательным дифференциальным сопротивлением [1].

Выбор данного соединения связан со следующим. Ранее [2,13–15] уже были охарактеризованы и исследованы монокристаллические образцы $(\text{La}_{1-x}\text{Eu}_x)_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ ($x = 0, 0.2, 0.4, 0.6$) и установлено, что образец с $x = 0.5$ находился на грани в ряду замещений, где еще наблюдается переход металл-

диэлектрик, при этом значение магниторезистивного эффекта в нем максимально. Именно этот образец и был выбран нами для измерения ВАХ.

Для приготовления поликристаллического $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ ранее синтезированные монокристаллические образцы перетирались в агатовой ступке и прессовались в таблетки, которые отжигались в печи при температуре 873 К в течение 6 h. Полученные таблетки обладали достаточной прочностью для проведения магнитотранспортных измерений. Результаты сканирующей электронной микроскопии показали, что средний размер гранул составляет 1–2 μm . Просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения выявила, что внутренняя часть гранулы представляет собой монокристалл $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$, а внешняя оболочка аморфна и имеет толщину 5 nm. Результаты исследования магнитотранспортных свойств моно- и поликристаллического $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ опубликованы в работах [1,13,15].

Транспортные измерения проводились стандартным четырехзондовым методом с использованием установки PPMS Quantum Design. Контакты наносились с помощью серебряной оксидной пасты. Размеры образцов составляли $\sim 0.5 \times 0.5$ mm, расстояние между потенциальными контактами ~ 0.1 mm. Зависимости сопротивления от температуры $\rho(T)$ измерялись при стабильном токе. ВАХ регистрировались в режиме заданного тока. Использовались значения аппаратурного тока (до $\sim 10^{-5}$ А), при которых не наблюдалось разогрева и прямой и обратный ход ВАХ совпадал. Максимальное значение удельной мощности составляет не более 0.5 W/cm³.

На рис. 1,а приведены температурные зависимости удельного электросопротивления $\rho(T)$ поликристаллического (левая ось, логарифмическая шкала) и монокристаллическая (правая ось) образцов $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ в нулевом внешнем поле и при $H = 90$ kOe. Для монокристалла переход металл-диэлектрик происходит в окрестности $T \approx 185$ К. Известно, что в поликристаллических манганита лантана наблюдается уменьшение температуры перехода металл-диэлектрик из-за присутствия межгранульных границ [11,12]. Это проявляется и для исследованных образцов. Из рис. 1,а видно, что температура перехода металл-диэлектрик для поликристалла сдвигается и составляет величину ~ 120 К. При этом температура Кюри, полученная из магнитных измерений, одинакова для монокристаллического образца и поликристалла и составляет ≈ 225 К [15].

Также видно, что для поликристаллического образца значения ρ на несколько порядков превышают эти величины для монокристалла. Кроме того, в окрестности $T \approx 40$ К зависимость $\rho(T)$ обнаруживает минимум, а в области низких температур имеет место значительный рост сопротивления с понижением температуры. Значительное увеличение удельного сопротивления для поликристалла по сравнению с монокристаллическим

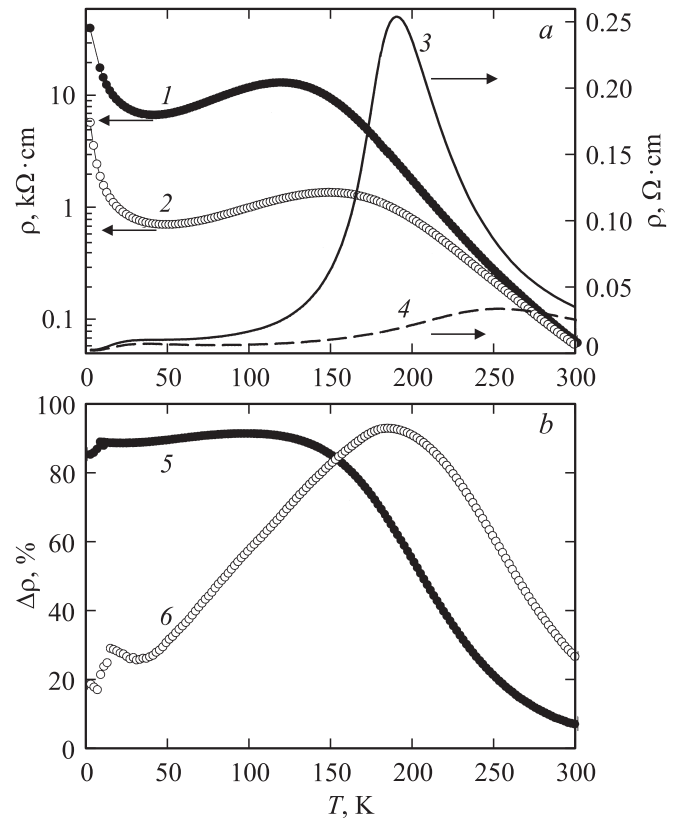


Рис. 1. Температурные зависимости $\rho(T)$ $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ при $H = 0$ (1, 3) и 90 kOe (2, 4) (a) и относительного магнитосопротивления $\Delta\rho = \{\rho(H = 0) - \rho(H = 90 \text{ kOe})\} / \rho(H = 0)$ (5, 6) (b). 1, 2, 5 — поликристалл, 3, 4, 6 — монокристалл.

образцом даже при комнатной температуре, очевидно, вызвано влиянием межгранульных границ. Это особенно ярко проявляется в области низких температур, в которой вид $\rho(T)$ определяется тунелированием через межгранульные диэлектрические прослойки, обладающие антиферромагнитным упорядочением [13]. Минимум $\rho(T)$, очевидно, отражает конкуренцию двух механизмов: уменьшение ρ самих гранул манганита (как в монокристалле) и туннельный тип проводимости (через межгранульные прослойки). Как видно, приложение внешнего поля приводит к уменьшению сопротивления как в области перехода металл-диэлектрик, так и в области низких температур.

Отметим, что данные $\rho(T)$ для поликристалла в области низких температур не следуют активационной или прыжковой зависимости $\rho(T) \sim \exp(T^{-n})$ [16] ($n = 0.25 - 1.0$), что может быть следствием нелинейного вида ВАХ (см. далее).

Температурные зависимости относительного магнитосопротивления $\Delta\rho = \{\rho(H = 0) - \rho(H)\} / \rho(H = 0)$, полученные из данных рис. 1,а, приведены на рис. 1,б. Если для монокристалла значение $\Delta\rho$ демонстрирует максимум в районе перехода металл-диэлектрик

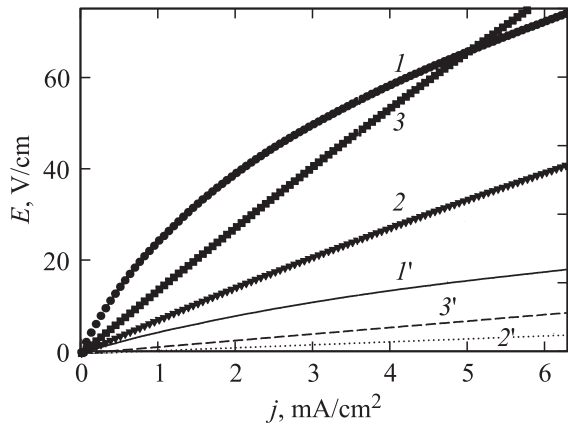


Рис. 2. ВАХ поликристаллического образца при $H = 0$ ($1-3$) и 90 кОе ($1'-3'$). T , К: $1, 1' - 2$; $2, 2' - 20$; $3, 3' - 120$ К.

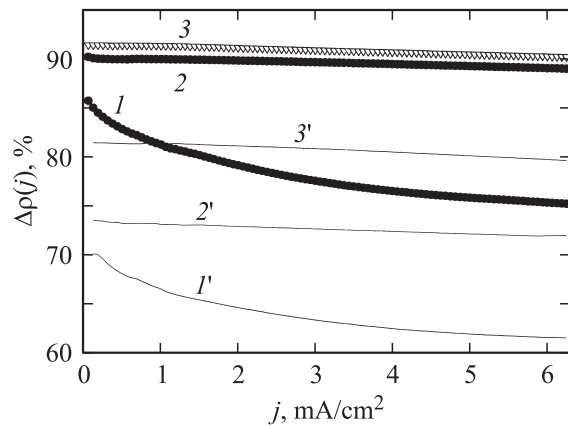


Рис. 3. Зависимости $\Delta\rho(j) = \{\rho(H = 0, j) - E(H, j)\} / E(H = 0, j)$ поликристаллического образца при $H = 90$ ($1-3$) и 50 кОе ($1'-3'$). T , К: $1, 1' - 2$; $2, 2' - 20$; $3, 3' - 120$.

($\Delta\rho(185\text{ K}) \approx 92\%$) и в области низких температур становится незначительным, то для поликристалла величина $\Delta\rho$ имеет практически то же значение ($\approx 92\%$), но уже во всей области ниже температуры перехода металл-диэлектрик.

Туннельный характер проводимости в поликристалле подтверждается видом ВАХ. На рис. 2 приведены ВАХ поликристаллического образца при $T = 2, 20$ и 120 К в нулевом поле и при $H = 90$ кОе. Нелинейный вид ВАХ туннельного типа отчетливо прослеживается для всех данных, приведенных на этом рисунке в случае $H = 0$. Во внешнем поле $H = 90$ кОе для диапазона тока до ~ 6.5 mA/cm^2 ВАХ становятся линейными для $T = 20$ и 120 К, причем это наблюдается для всего температурного интервала выше 20 К. Естественно, наибольшая нелинейность ВАХ (отклонение от закона Ома) имеет место при $T = 2$ К, где процессы туннелирования вносят доминирующий вклад. При данной температуре (2 К) в поле $H = 90$ кОе, как видно из рис. 2, нелинейность ВАХ сохраняется.

Если определить „эффективное сопротивление“ ρ_j как $\rho_j = E(j)/j$, то из рис. 2 следует, что при плотности тока $j > 5$ mA/cm^2 величина ρ_j при температуре перехода металл-диэлектрик (120 К) сравнима со значением при 2 К. При малых значениях j отношение $\rho_j(2\text{ K})/\rho_j(120\text{ K}) \approx 3$, что можно получить, анализируя ВАХ, а также из зависимости $\rho(T)$ для поликристалла (рис. 1), которая измерена при $j \approx 0.06$ mA/cm^2 (аппаратурный ток ~ 0.1 $\mu\text{A/cm}^2$).

В случае нелинейности ВАХ относительное магнитосопротивление будет также зависеть от тока. На рис. 3 приведены полученные из ВАХ значения магнитосопротивления $\Delta\rho(j) = \{E(H = 0, j) - E(H, j)\} / E(H = 0, j)$ при $H = 50$ и 90 кОе как функции j . Видно, что для $T = 2$ К имеет место заметное уменьшение $\Delta\rho(j)$ при увеличении тока до использованного значения 6.5 mA/cm^2 . При температурах 20 и 120 К изменение $\Delta\rho(j)$ невелико, поскольку нелинейность ВАХ при этих температурах меньше.

Таким образом, для поликристаллического ($\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5}$) $_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$, рассматриваемого в настоящей работе, величина магниторезистивного эффекта в области температур ниже температуры перехода металл-диэлектрик практически постоянна и достигает значения 90% . Однако механизмы, ответственные за наблюдаемое магнитосопротивление, различны. Это влияет на вид ВАХ при различных температурах. Так, вблизи температуры перехода металл-диэлектрик магнитосопротивление определяется влиянием магнитного поля на соотношение объемов проводящих и диэлектрических фаз (механизм фазового расслоения) внутри гранул. В этом случае ВАХ остаются линейными в достаточно широком интервале значений тока. В области низких температур, когда гранулы уже находятся в основном состоянии ферромагнитного металла, доминирующий вклад в магнитосопротивление вносит межгранульное туннелирование носителей через диэлектрические прослойки гранул. В этом случае ВАХ типичны для туннельных структур, т.е. они сильно нелинейные и имеет место зависящее от тока магнитосопротивление. В области промежуточных температур, очевидно, имеет место суперпозиция описанных выше механизмов, которая определяет большую величину магнитосопротивления для поликристаллического замещенного манганита лантана.

Список литературы

- [1] K.A. Shaykhtudinov, S.I. Popkov, D.A. Balaev, S.V. Semenov, A.A. Bykov, A.A. Dubrovskiy, N.V. Sapronova, N.V. Volkov. *Physica B* **405**, 4961 (2010).
- [2] N. Volkov, G. Petrakovskii, K. Patrin, K. Sablina, E. Eremin, V. Vasiliev, A. Vasiliev, M. Molokcev. *Phys. Rev. B* **73**, 104401 (2006).
- [3] Colossal magnetoresistive oxides / Ed. Y. Tokura. Gordon and Breach Sci. Publ., Amsterdam (2000). 358 p.
- [4] T. Wu, J.F. Mitchell. *Phys. Rev. B* **74**, 214423 (2006).

- [5] H. Jin, A.K. Raychaudhuri. *Appl. Phys. Lett.* **93**, 182 110 (2008).
- [6] A. Asamitsu, Y. Tomioka, H. Kuwahara, Y. Tokura. *Nature* **3889**, 50 (1997).
- [7] И.К. Камиллов, К.М. Алиев, Х.О. Ибрагимов, Р.С. Абакарова. *Письма в ЖЭТФ* **78**, 957 (2003).
- [8] H. Jain, A.K. Raychaudhuri, N. Ghosh, H.L. Bhat. *Phys. Rev. B* **76**, 104 408 (2007).
- [9] Y. Yamato, M. Matsukawa, Y. Murano, S. Kobayashi, R. Suryanarayanan. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43**, 145 003 (2010).
- [10] Э.Л. Нагаев. *УФН* **166**, 833 (1996).
- [11] P. Dey, T.K. Nath. *Phys. Rev. B* **73**, 214 425 (2006).
- [12] M. Pekala, N. Kozlova, V. Drozd. *J. Appl. Phys.* **104**, 123 902 (2008).
- [13] K.A. Shaykhtudinov, S.I. Popkov, S.V. Semenov, D.A. Balaev, A.A. Dubrovskiy, K.A. Sablina, N.V. Sapronova, N.V. Volkov. *J. Appl. Phys.* **109**, 053 711 (2011).
- [14] N. Volkov, G. Petrakovskii, P. Boni, E. Clementyev, K. Patrin, K. Sablina, D. Velikanov, A. Vasiliev. *J. Magn. Magn. Mater.* **309**, 1 (2007).
- [15] K.A. Shaykhtudinov, S.I. Popkov, S.V. Semenov, D.A. Balaev, A.A. Dubrovskiy, K.A. Sablina, N.V. Volkov. *J. Phys.: Conf. Ser.* **200**, 052 025 (2010).
- [16] E. Rozenberg, M. Auslender, I. Felner, G. Gorodetsky. *J. Appl. Phys.* **88**, 2578 (2000).