

Теплофизические свойства монокристалла $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$

© А.Б. Батдалов¹, А.Г. Гамзатов^{1,¶}, А.М. Алиев¹, Л.Н. Ханов¹,
А.А. Мухучев¹, Х.Э. Камалудинова²

¹ Институт физики им. Х.И. Амирханова ДагНЦ РАН,
Махачкала, Россия

² Филиал Дагестанского государственного университета,
Хасавюрт, Россия

¶ E-mail: gamzatov_adler@mail.ru

(Поступила в Редакцию 6 февраля 2017 г.)

Измерены теплоемкость (C_P), термодиффузия (η), теплопроводность (κ) и электросопротивление монокристалла $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ в интервале температур 80–350 К и в магнитных полях до 40 кОе. На зависимостях $C_P(T)$, $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ вблизи T_C наблюдаются аномалии, которые в магнитном поле подавляются. Минимумы на зависимостях $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ вблизи T_C объясняются рассеянием фононов на флуктуациях магнитного параметра порядка. В поведении $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ в окрестности $T_S = 200$ К наблюдаются аномалии, связанные со структурным переходом из ромбодрической (R) в орторомбическую (O^*) фазу.

Работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО России (тема „Фазовые переходы, магнито-транспортные, магнитокалорические и магнитоэлектрические явления в сильнокоррелированных электронных системах“ № 0203-2016-0009) с использованием оборудования Аналитического центра коллективного пользования Дагестанского научного центра РАН.

DOI: 10.21883/FIT.2017.09.44861.029

1. Введение

Соединения $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ являются наиболее исследованными из семейства манганитов. По данным Web of Science, исследованию физических свойств системы $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ и их композитов посвящено около 500 научных работ. Магнитная и структурная фазовые диаграммы, электрические, магнитные и упругие свойства для системы $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ достаточно хорошо изучены [1–13], в то же время сведения о тепловых свойствах (теплопроводность, теплоемкость, термодиффузия) на одних и тех же образцах и влияние на них магнитного поля недостаточно полно отражены в литературе. Одним из малоизученных в литературе вопросов является анализ теплопереноса в манганитах. Данная работа является попыткой несколько восполнить этот пробел и посвящена изучению особенностей теплопередачи в монокристалле $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ вблизи температур фазовых переходов и влияния магнитного поля на этот процесс. По фазовой диаграмме состав $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ при $T_S = 200$ К испытывает структурный фазовый переход, а при $T_C = 277$ К — переход ферромагнетик–парамагнетик [13]. Считается установленным, что основным механизмом теплопередачи в перовскитных манганитах является фононный, а в качестве доминирующего механизма рассеяния фононов рассматриваются дефекты кристаллической решетки. Известно также, что величина теплопроводности является низкой, незначительно превышающей минимальное теоретическое значение теплопроводности решетки. В то же время конкретные вопросы, связанные с особенностями рассеяния фононов вблизи температур различного рода упорядочений (магнитное, зарядовое, структурное) до конца не изучены.

Особого внимания заслуживает изучение влияния магнитного поля на фононную составляющую теплопроводности манганитов. Как правило, магнитное поле не оказывает влияния на фононную теплопроводность твердого тела, меняя только электронную компоненту. В манганитах фононная компонента может зависеть от магнитного поля путем изменения механизма рассеяния фононов.

В данной работе приводятся результаты комплексного исследования теплофизических свойств монокристаллического манганита $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ в интервале температур 80–350 К и в магнитных полях до 40 кОе. В частности, приводятся результаты экспериментального исследования температурных зависимостей теплоемкости, термодиффузии, теплопроводности и электросопротивления.

Экспериментальные исследования $C_P(T)$ и $\eta(T)$ проводились методом ас-калориметрии. Электросопротивление измерялось стандартным четырехконтактным методом. Данные по теплоемкости и термодиффузии использовались для определения теплопроводности, которые связаны соотношением $\kappa = (d/M)C_P\eta$, где d — плотность образца, M — молярная масса.

2. Результаты и обсуждение

Результаты исследования теплоемкости, термодиффузии, теплопроводности и электросопротивления представлены на рис. 1 и 2. На рис. 1 (слева) приведены температурные зависимости теплоемкости в интервале температур 80–350 К в магнитных полях 0, 20 и 40 кОе. На зависимости $C_P(T)$ при $T_C = 277$ К наблюдается ано-

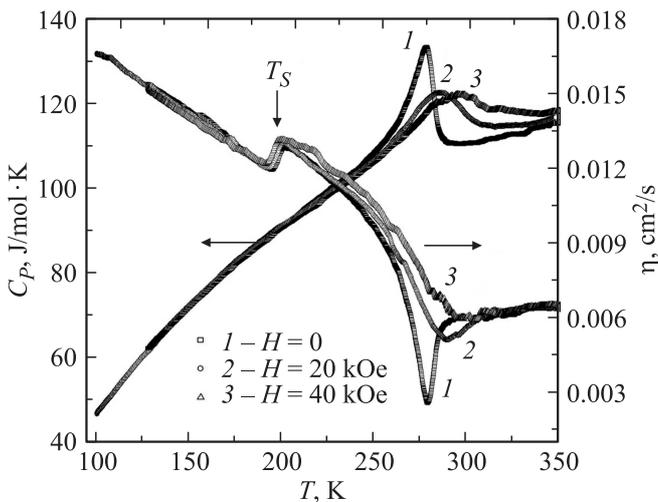


Рис. 1. Температурные зависимости теплоемкости (слева) и термодиффузии (справа) монокристалла $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ в магнитных полях 0, 20 и 40 кОе.

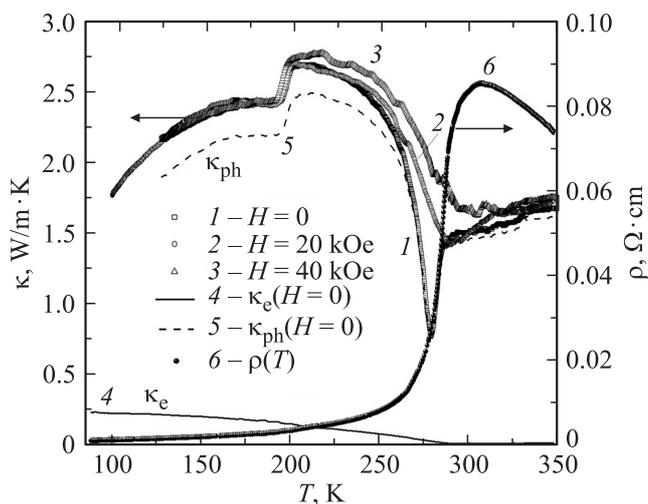


Рис. 2. Температурные зависимости теплопроводности (слева) монокристалла $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ в магнитных полях 0, 20 и 40 кОе и температурная зависимость электросопротивления (справа) $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ при $H = 0$.

малия, связанная с фазовым переходом ферромагнетик–парамагнетик. С ростом магнитного поля аномалия теплоемкости подавляется и максимум теплоемкости смещается в сторону высоких температур, что характерно для фазовых переходов ферромагнетик–парамагнетик. При этом в полях 40 кОе нет полного подавления аномалии. Аналогичное поведение теплоемкости близких составов наблюдалось в работах [12,14].

На рис. 1 (справа) приведена температурная зависимость $\eta(T)$ в магнитных полях 0, 20 и 40 кОе. В окрестности T_C наблюдается ярко выраженный минимум, который полностью подавляется в магнитном поле 40 кОе.

Температурная зависимость теплопроводности $\kappa(T)$ приведена на рис. 2. Обращают на себя внимание

низкие для кристаллических твердых тел значения κ и аномалия в виде резкого минимума, которая подавляется магнитным полем. Так как теплопроводность магнитных материалов может быть представлена как сумма электронной, магнетонной и фононной составляющих $\kappa = \kappa_e + \kappa_m + \kappa_{ph}$, то наблюдаемая аномалия в поведении $\kappa(T)$ может быть связана с каждым из них. Оценка электронной составляющей из соотношения Видемана–Франца $\kappa_e = LT/\rho$, (L — постоянная Лоренца) с использованием экспериментальных данных $\rho(T)$ показала, что вкладом от κ_e можно пренебречь (рис. 2). Для оценки магнитной составляющей мы воспользовались выражением кинетической теории для теплопроводности магнетонов $\kappa_m = (1/3)\Delta C_P v_m \tau_m$, где v_m и τ_m — скорость и время релаксации магнетонов [15–16]. Подробный теоретический анализ теплопроводности близкого по составу образца $\text{La}_{0.83}\text{Sr}_{0.17}\text{MnO}_3$ приводится в [17]. Оценки показывают, что κ_m почти на два порядка меньше наблюдаемой при T_C аномалии $\kappa(T)$ и поэтому вкладом от κ_m так же можно пренебречь. Таким образом, аномалии в поведении $\kappa(T)$ связаны с изменениями в механизмах рассеяния фононов. В качестве доминирующего механизма рассеяния в манганитах в парамагнитной фазе рассматриваются рассеяния фононов на искажениях октаэдров MnO_6 , вызванные эффектом Яна–Теллера на ионах Mn^{3+} [17,18]. При переходе в ферромагнитную фазу искажения снимаются [15], вызывая резкий рост теплопроводности [16,17].

На рис. 2 (справа) приведена температурная зависимость электросопротивления для образца $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$. Отметим, что температурный ход имеет характерный для большинства легированных манганитов вид и демонстрирует переход металл–диэлектрик при $T_{MI} = 307$ К. В данной работе мы не будем рассматривать подробный анализ электросопротивления, так как в литературе имеется огромное количество работ подробного анализа электросопротивления манганитов с аналогичной температурной зависимостью [19–22]. Кратко отметим, что в высокотемпературной парамагнитной области зависимость $\rho(T)$ носит полупроводниковый характер и может быть интерпретирована на основе концепции поляронов малого радиуса, представляющих собой электрон или дырку, движущиеся вместе с вызванной им деформацией кристаллической решетки. Проводимость в таком случае осуществляется путем прыжков носителей по локализованным состояниям (прыжковая проводимость). Зависимость $\rho(T)$ при $T > T_{MI}$ описывается термоактивационным законом вида: $\rho = D T_{\text{exp}}(E_P/k_B T)$, где E_P — энергия активации поляронного прыжка, D — коэффициент, не зависящий от T . В низкотемпературной ферромагнитной фазе ($T < T_C$) зависимость $\rho(T)$ аппроксимируется выражением, включающим несколько механизмов рассеяния: $\rho_{\text{FM}}(T) = \rho_0 + AT^2 + BT^{4.5}$, где ρ_0 — остаточное сопротивление, член AT^2 обычно приписывают взаимному рассеянию носителей заряда, а член $BT^{4.5}$ обусловлен электрон-магнетонными процес-

сами рассеяния [23]. Вблизи перехода поведение $\rho(T)$ можно описать в рамках теории перколяции [19,21,22].

Вернемся к рассмотрению минимума на зависимостях $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ вблизи T_C . Для объяснения наблюдаемого минимума в поведении теплопроводности вблизи T_C удобно привлечь данные по анализу термодиффузии. Напомним, что термодиффузия связана с длиной свободного пробега носителей тепла l_{ph} и скоростью звука v_S соотношением $\eta = (1/3)v_S l$ и наблюдаемые при T_C минимумы на зависимостях $\eta(T)$, в принципе, могут быть обусловлены уменьшением скорости распространения звука, которая наблюдается в манганитах при критических температурах [10,11,23]. Учет этого обстоятельства приводит к некоторому уменьшению глубины минимума, но общую картину не меняет, так как $\Delta\eta/\eta$ составляет более 20%, в то время как $\Delta v_S/v_S$ — в несколько раз меньше [10,24]. Учитывая, что в области T_C теплопроводность носит преимущественно фононный характер (см. рис. 2), последнее означает, что при T_C возникает дополнительный канал релаксации фононов, в качестве которого выступают флуктуации магнитного параметра порядка, приводящие к резкому уменьшению η , следовательно и l_{ph} . Это должно привести и к уменьшению κ_{ph} вблизи T_C , что мы наблюдаем на рис. 2. Глубокий минимум на зависимости $\kappa(T)$ и его поведение в магнитном поле свидетельствует о сильно развитых флуктуациях магнитного параметра порядка. При приложении внешнего магнитного поля флуктуации частично подавляются, а канал рассеяния фононов сильно сужается, что приводит к росту κ_{ph} вблизи T_C . Вдали от T_C намагниченность быстро насыщается, флуктуации исчезают и поле не изменяет магнитного состояния образца и поэтому теплопроводность слабо зависит от магнитного поля. Аналогичных взглядов для теплопроводности манганита $(La_{1-x}Na_x)_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ придерживаются авторы [25]. Заметим, что минимумы на зависимостях $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ вблизи T_C были обнаружены и для сильно легированной системы $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ ($x > 0.50$) [26], а также для ряда других манганитов [27–29].

Как было сказано выше согласно фазовой диаграмме $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ [5,7,8,13], при понижении температуры вблизи $T_S = 200$ К в составе с $x = 0.175$ наблюдается структурный фазовый переход из ромбоэдрической (R) в орторомбическую (O^*) фазу. Как видим из рис. 1 и 2 на зависимостях $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ при $T = 200$ К наблюдаются небольшие скачки, которые связаны с этим структурным переходом [30]. На зависимостях $C_p(T)$ и $\rho(T)$ при температурах 200 К каких-либо аномалий не наблюдаются.

Таким образом, можно утверждать, что в образце $La_{0.825}Sr_{0.175}MnO_3$ вблизи температуры магнитного фазового перехода T_C действует дополнительный канал рассеяния фононов на флуктуациях магнитного параметра порядка. Вдали от T_C флуктуации исчезают и превалирует взаимодействие фононов с локальными искажениями кристаллической решетки ($T > T_C$), формирующие дальнейший температурный ход теплопроводности.

3. Заключение

Показано, что фононный механизм теплопереноса является основным, а в качестве доминирующего механизма рассеяния фононов рассматриваются локальные искажения кристаллической решетки. Установлено сильное влияние флуктуаций магнитного параметра порядка на фононную теплопроводность $La_{0.825}Sr_{0.175}MnO_3$ вблизи T_C , приводящие к минимуму на зависимостях $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ в нулевом поле. Магнитное поле подавляет флуктуации, сглаживает аномалии, увеличивает теплопроводность вблизи T_C . В поведении $\kappa(T)$ и $\eta(T)$ вблизи $T_S = 200$ К наблюдаются скачки, обусловленные структурным переходом из ромбоэдрической в орторомбическую фазу.

Список литературы

- [1] Э.Л. Нараев. УФН **166**, 833 (1996).
- [2] E. Dagotto, T. Hott, A. Moreo. Phys. Rep. **344**, 1 (2001).
- [3] Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Скрябин. УФН **171**, 121 (2001).
- [4] M.B. Salamon, M. Jaime. Rev. Mod. Phys. **73**, 583 (2001).
- [5] С.М. Дунаевский. ФТТ **46**, 193 (2004).
- [6] Y. Tokura. Rep. Prog. Phys. **69**, 797 (2006).
- [7] G.-L. Liu, J.-S. Zhou, J.B. Goodenough. Phys. Rev. B **64**, 144414 (2001).
- [8] А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, В.Д. Травкин, С.П. Лебедев, А. Пименов, А. Лоидл, А.М. Балбашов. Письма в ЖЭТФ **68**, 331 (1998).
- [9] A. Urushibara, Y. Moritomo, T. Arima, A. Asamitsu, G. Kido, Y. Tokura. Phys. Rev. B **51**, 14103 (1995).
- [10] Х.Г. Богданова, А.Р. Булатов, В.А. Голенищев-Кутузов, Л.В. Елохина, А.В. Капралов, А.В. Королев, Э.А. Нейфельд, М.М. Шакирзянов. ФТТ **45**, 284 (2003).
- [11] А.В. Голенищев-Кутузов, В.А. Голенищев-Кутузов, Р.И. Калимуллин, А.В. Семенников. ФТТ **57**, 1596 (2015).
- [12] М.Н. Хлопкин, Г.Х. Панова, А.А. Шиков, В.Ф. Синянский, Д.А. Шулятев. ФТТ **42**, 111 (2000).
- [13] B. Dabrowski, X. Xiong, Z. Bukowski, R. Dybziński, P.W. Klamut, J.E. Siewenie, O. Chmaissem, J. Shaffer, C.W. Kimball, J.D. Jorgensen, S. Short. Phys. Rev. B **60**, 7006 (1999).
- [14] A. Szewczyk, M. Gutowska, B. Dabrowski, T. Plackowski, N.P. Danilova, Yu.P. Gaidukov. Phys. Rev. B **71**, 224432 (2005).
- [15] J.L. Cohn, J.J. Neumeier, C.P. Popoviciu, K.J. McClellan, T. Leventouri. Phys. Rev. B **56**, R8495 (1997).
- [16] А.М. Алиев, Ш.Б. Абдулвагидов, А.Б. Батдалов, И.К. Камилов, О.Ю. Горбенко, В.А. Амеличев, А.Р. Кауль, В.А. Трунов. ФТТ **45**, 124 (2003).
- [17] D. Varshney, I. Mansuri, N. Kaurav. J. Low Temp. Phys. **155**, 177 (2009).
- [18] P.G. Radaelli, M. Marezio, H.Y. Hwang, S.-W. Cheong, B. Batlogg. Phys. Rev. B **54**, 8992 (1996).
- [19] G. Li, H.-D. Zhou, S.J. Feng, X.-J. Fan, X.-G. Li, Z.D. Wang. J. Appl. Phys. **92**, 1406, (2002).
- [20] И.К. Камилов, А.Г. Гамзатов, А.М. Алиев, А.Б. Батдалов, Ш.Б. Абдулвагидов, О.В. Мельников, О.Ю. Горбенко, А.Р. Кауль. ЖЭТФ **132**, 885 (2007).

- [21] A.G. Gamzatov, A.B. Batdalov. *Phase Trans.* **83**, 10 (2010).
- [22] A.G. Gamzatov, A.B. Batdalov, I.K. Kamilov. *Physica B* **406**, 2231 (2011).
- [23] K. Kubo, N. Ohata. *J. Phys. Soc. J.* **33**, 21 (1972).
- [24] H. Fujishiro, M. Ikebe, Y. Konno, T. Fukase. *J. Phys. Soc. Jpn* **66**, 3703 (1997).
- [25] M. Tachibana, E. Takayama-Muromachi. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 242507 (2008).
- [26] M. Ikebe, H. Fujishiro, S. Kanoh, T. Mikami. *Phys. Status Solidi B* **225**, 135 (2001).
- [27] И.К. Камиллов, А.Г. Гамзатов, А.М. Алиев, А.Б. Батдалов, Ш.Б. Абдулвагидов, О.В. Мельников, О.Ю. Горбенко, А.Р. Кауль. *ФНТ* **33**, 1091 (2007).
- [28] A.G. Gamzatov, A.M. Aliev, Sh.B. Abdulvagidov, A.B. Batdalov, O.Y. Gorbenko, A.R. Kaul. *Physica B* **395**, 151 (2007).
- [29] А.М. Алиев, А.Б. Батдалов, А.Г. Гамзатов. *ФНТ* **36**, 217 (2010).
- [30] J.S. Zhou, J.B. Goodenough. *Phys. Rev. B* **64**, 024421 (2001).