

03,05

Колоссальное магнитосопротивление слоистого манганита $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ и его описание „спин-поляронным“ механизмом проводимости

© С.А. Гудин, Н.И. Солин, Н.Н. Гапонцева

Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: gudin@imp.uran.ru

Исследовалось сопротивление монокристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_{2(1-z)}\text{O}_7$ в магнитных полях от 0 до 90 кОе. В рамках „спин-поляронного“ механизма проводимости удалось описать наблюдаемое магнитосопротивление для температуры $T = 75$ К, вблизи которой находится максимум колоссального магнитосопротивления. Такая величина колоссального магнитосопротивления обеспечивается за счет трехкратного роста размера полярона. Метод разделения вкладов в магнитосопротивление от разных механизмов проводимости, разработанный для веществ с активационным типом проводимости, был обобщен на соединения, в которых наблюдается переход металл–диэлектрик. Получено, что для температуры 75 К, вклад от „ориентационного“ механизма в магнитном поле 5 кОе достигает своего максимального значения ($\approx 20\%$) и практически исчезает в полях, больших 50 кОе.

Работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО России (тема „Квант“ („Quantum“), № 01201463332) при частичной поддержке УрО РАН (проект № 15-8-2-10).

DOI: 10.21883/FTT.2018.06.45978.27M

Существующая теория электронных свойств кристаллических веществ предполагает, что их электросопротивление ρ определяется рассеянием носителей тока на нарушениях периодичности идеальной решетки. К ним относят 1) локализованные „статические“ дефекты решетки, такие как точечные дефекты, дислокации, межкристаллические границы, внешняя поверхность кристалла и т. п. и 2) различные нелокализованные нарушения перемещающиеся по кристаллу, описываемые при помощи квазичастиц [1–3]. Влияние магнитного поля \mathbf{H} на ρ (магнитосопротивление (MR)) обычно считается слабым

$$K(H) = \Delta\rho/\rho = (\rho(0) - \rho(H))/\rho(H) \ll 1, \quad (1)$$

поскольку сила Лоренца в сотни раз слабее сил Кулона. Отношение к MR изменилось после открытия эффекта гигантского MR (GMR) с параметром $K(H) \approx 1$ [4,5]. Эффект GMR вначале был обнаружен в многослойных пленках Fe-Cr с толщиной неферромагнитных прослоек Cr, обеспечивающей антипараллельную ориентацию магнитных моментов соседних слоев Fe в отсутствие магнитного поля ($H = 0$) [6,7]. Предполагается, что механизм проводимости, определяющий GMR, обусловлен зависимостью сопротивления между ферромагнитными слоями от угла θ между направлениями их магнитных моментов. Этот механизм MR в [8,9] назван „ориентационным“ или θ -механизмом.

Еще более сенсационным считается открытие колоссального MR (CMR) с параметром $K \gg 1$ в редкоземельных манганитах, допированных двухвалентными ионами [10]. Наиболее популярная гипотеза, предлагаемая для объяснения CMR, предполагает существование

фазового расслоения на низко- и высокорезистивную фазы, размеры которых „ r “ зависят от поля [11–17]. С ростом H низкоомные включения начинают перекрываться, что может привести к сильному уменьшению ρ вблизи порога протекания [16,17]. Этот механизм MR для краткости будем называть „размерным“ или r -механизмом [8,9].

Считаем, что проводимость σ определяется только „ориентационным“ и „размерным“ механизмами (θ - и r -)

$$\sigma(H) = \sigma_r(H) + \sigma_\theta(H). \quad (2)$$

С ростом магнитного поля вклад в проводимость от „ориентационного“ θ -механизма увеличивается и достигает своего максимального значения в точке $H = H_{sat}$ (H_{sat} — поле магнитного насыщения), в которой магнитные моменты ферромагнитных включений должны ориентироваться вдоль \mathbf{H} . Это означает, что при $H > H_{sat}$ вклад в проводимость от θ -механизма становится постоянным.

Т. е. при $H > H_{sat}$ зависимость намагниченности $M(H)$ (рис. 1) должна определяться влиянием \mathbf{H} только на размеры ферромагнитных включений, т. е.

$$\sigma(H) = \sigma_r(H) + P_1, \quad (3)$$

здесь $P_1 = \text{const}$.

При $H < H_{sat}$ зависимость (2) определяется обоими r - и θ -механизмами. Это позволяет оценить $\sigma_\theta(H)$ по разности

$$\sigma_\theta(H) = \sigma(H) - \sigma_r(H), \quad (4)$$

если предположить, что при $H = H_{sat}$ r -механизм проводимости не испытывает никаких аномалий. В качестве σ_r

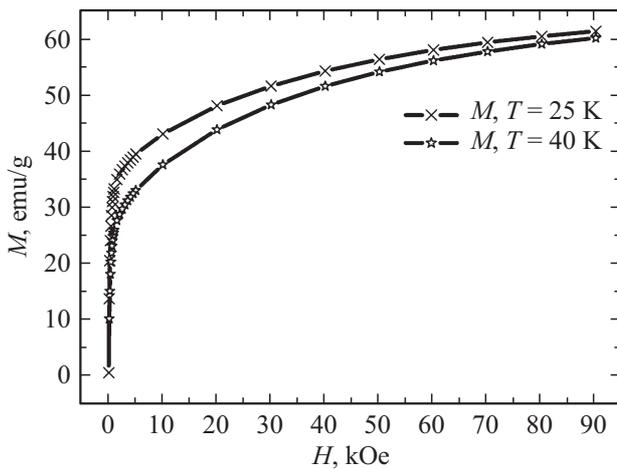


Рис. 1. Полевые зависимости намагниченности $M(H)$, измеренные при $T = 25$ К и $T = 40$ К для соединения $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$.

в (4) можно использовать зависимость $\sigma(H)$ (2), экстраполированную из области $H > H_{sat}$. Таким способом, в [9] удалось разделить влияние вкладов в проводимость на измеряемое сопротивление $\rho(H)$ для манганита состава $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$. Оказалось, что $\rho_r(H)$ и $\rho_\theta(H)$ при $H < H_{sat}$ в этом соединении имеют сравнимые значения: $\rho_\theta(H) \approx 0.6\rho_r(H)$. Однако параметр CMR $K(H)$ в этом соединении имеет достаточно скромную величину: $K(H) \approx 5$ при $H = 50$ кОе.

В этой статье сообщаются результаты для слоистого манганита $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ с $K(H) \approx 10^3$, близкой к рекордной [18–20].

Исследуемый монокристалл $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_{2(1-z)}\text{O}_7$ с $z \approx 0.1$ с размерами $4 \times 2 \times 1$ мм выращен Балбашовым и др. в Московском энергетическом институте [21]. Магнитные и электрические исследования проведены на установках PPMS-9 Quantum Design (USA) и на магнитометре MPMS-5XL SQUID (подробнее смотри [22–24]). Измерения произведены в базисной плоскости образца (ток направлен вдоль оси a , $H \uparrow c$). На рис. 2 представлены температурные зависимости $\rho(T, H)$, измеренные 4-х контактным методом в температурном интервале $4\text{K} < T < 200\text{K}$ при значениях H , изменяющихся от 0 кОе до 90 кОе с шагом 10 кОе. Величина MR $K(H)$ (выражение (1)) при $T > 80\text{K}$ и $H = 90$ кОе имеет значение

$$K(90) = (\rho(0) - \rho(90)) / \rho(90) \sim 10^3.$$

Зависимость $\rho(H)$ при температуре $T = 75\text{K}$ представлена на рис. 3. Как отмечалось выше (см. формулы (2)–(4)), для разделения наблюдаемой зависимости $\rho(H)$ на составляющие $\rho_\theta(H)$ и $\rho_r(H)$, соответствующие θ - и r -механизмам проводимости, необходимо оценить поле магнитного насыщения H_{sat} . Как и в [9], мы использовали оценку $H_{sat} = 10$ кОе, которая связывает H_{sat} с магнитодипольным взаимодействием однодомных

ферромагнитных включений в неферромагнитной матрице. При такой оценке величина H_{sat} сравнима с размагничивающими полями поверхности ферромагнитных образцов, достигающих значений ≈ 10 кОе.

Таким образом, возникновение CMR связывают с образованием неоднородных зарядовых и спиновых состояний. Природа фазового разделения связана с тем, что если концентрация носителей недостаточна для превращения кристалла в ферромагнитный (ФМ) металл, носители могут локализоваться в отдельных частях кристалла и образовать там ФМ-состояние [11]. Комплекс электрон + ферромагнитная область представляет собой: феррон в антиферромагнитном состоянии [25], в парамагнитном состоянии — ферромагнитные спиновые поляроны [26,27]. Зависимость $\sigma_r(H)$ мы описываем, как и в [22], на основе „спин-поляронного“ механизма проводимости [14]. Здесь под спиновыми поляронами пони-

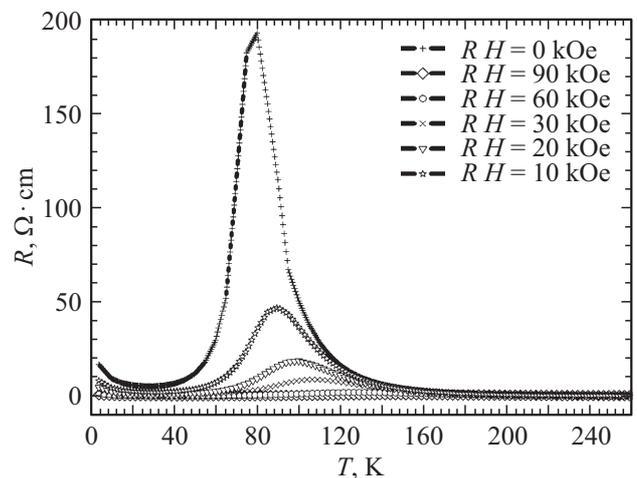


Рис. 2. Электросопротивление $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ в зависимости от температуры T при значениях поля H : 0, 10, 20, 30, 60, 90 кОе.

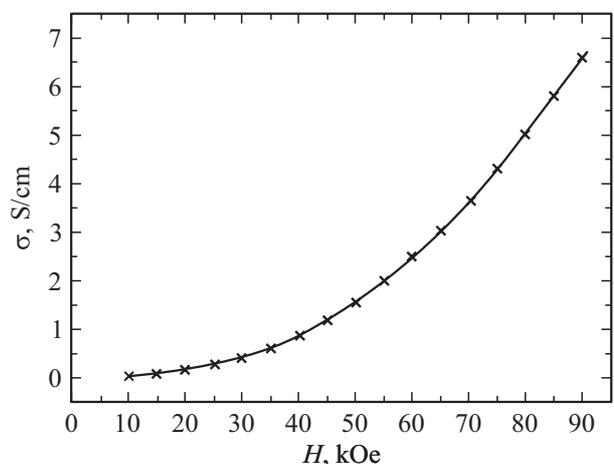


Рис. 3. Проводимость $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ в зависимости от магнитного поля H , при температуре $T = 75\text{K}$, крестики — экспериментальные значения, сплошная линия — расчет.

маются квазичастицы, описывающие магнитные неоднородности нанометровых размеров. В [14] было показано, что для слоистых манганитов $(La_{1-x}Sr_x)_{n+1}Mn_nO_{3n+1}$ спин-поляронное состояние является наиболее лучшей аппроксимацией к точному основному состоянию, чем все оптимальные энергии однородных состояний.

Хотя природа носителей заряда в низкотемпературном металлическом состоянии легированных манганитов до сих пор не ясна, данные фотоэмиссионной спектроскопии показывают сохранение поляронов как основных носителей заряда в $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ ниже ТС [28].

В данной работе мы предполагаем, что поляронная проводимость в $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ сохраняется в низкотемпературном металлоподобном состоянии. Транспортные свойства „спин-поляронного“ или „размерного“ механизма проводимости $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ связаны с увеличением размера поляронов при уменьшении температуры и приложении магнитного поля. Движение ФМ-поляронов как целого крайне медленно, так как они обладают довольно большой эффективной массой и обычно запинингованы на примесные центры. Основной механизм проводимости — перескоки электронов проводимости с одного ФМ-полярона на соседний.

Согласно [14] величина энергетического барьера для такого прыжка $A(H)$ пропорциональна

$$A(H) \sim \frac{e^2}{R_{Pol}(H)}, \quad (5)$$

где R_{Pol} — радиус полярона, e — заряд электрона. В [15] для проводимости σ_r было показано

$$\sigma_r(T, H) = B\sigma_{\min} \frac{\omega_0}{T} \exp\left(-\frac{A(H)}{2T}\right). \quad (6)$$

Здесь σ_{\min} — минимальная проводимость образца, ω_0 — характерная частота колебаний решетки. Учтем в первом приближении линейную зависимость радиуса полярона от поля H [14,22]

$$R_{Pol}(T, H) = x(T) + y(T)H, \quad (7)$$

получим, что для температуры T_1 вклад в проводимость от размерного механизма описывается выражением

$$\sigma_r(H) = P_2 \exp\left(\frac{P_3}{P_4 + H}\right). \quad (8)$$

Здесь

$$P_2 = B\sigma_{\min} \frac{\omega_0}{T_1}, \quad P_3 = -\frac{e^2}{2T_1 y}$$

и $P_4 = x/y$ — параметры. При температуре $T_1 = 75$ К, вблизи которой находится максимум MR, используя (8), опишем экспериментальные данные $\sigma(H)$ для слоистого манганита состава $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ в магнитных полях, больших H_{sat} , при которых „ориентационный“

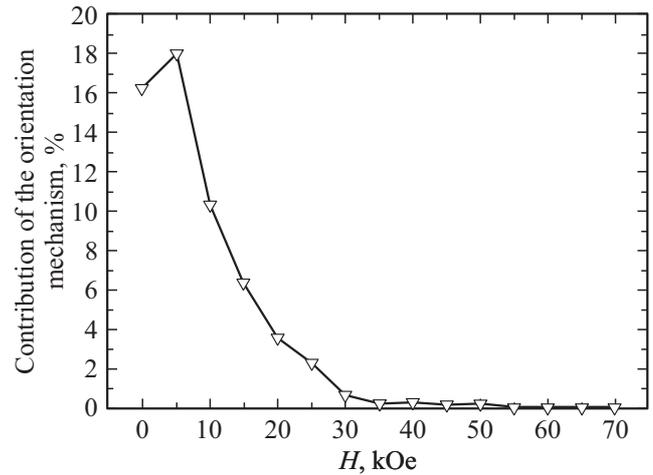


Рис. 4. Вклад в проводимость $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ (в процентах) для температуры $T = 75$ К от „ориентационного“ механизма.

θ -механизм уже вносит постоянный по магнитному полю вклад. Значения параметров

$$P_1 = (0.006 \pm 0.003) \text{ S/cm}, \quad P_2 = (174 \pm 3) \text{ S/cm},$$

$$P_3 = \frac{A_1}{yT} = (427 \pm 3) \text{ кОе}, \quad P_4 = \frac{x}{y} = (40.5 \pm 0.5) \text{ кОе}, \quad (9)$$

были определены из требования совпадения экспериментальных и расчетных значений проводимости для температуры $T = 75$ К и полей $H \geq 10$ кОе (рис. 3). Крестики — экспериментальные данные, сплошная линия — расчетные значения. Вычисленная кривая $\rho(H)$ проходит через экспериментальные точки, с точностью погрешности измерения. Таким образом, в рамках „спин-поляронного“ механизма проводимости вблизи температурного максимума CMR, удалось описать наблюдаемое магнитосопротивление $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$.

Вычисленный вклад в проводимость $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ (в процентах) для температуры $T = 75$ К от „ориентационного“ механизма представлен на рис. 4. Получено, что для температуры 75 К, находящейся вблизи максимума CMR, вклад от „ориентационного“ механизма в магнитном поле 5 кОе достигает своего максимального значения около 20% и практически исчезает в полях больших 50 кОе.

Определим относительное изменение размера полярона в магнитном поле H по сравнению с $H = 0$ кОе

$$R_{Pol}(T, H)/R_{Pol}(T, 0) = 1 + \frac{y}{x}H. \quad (10)$$

Из полученных расчетных параметров следует, что при $T = 75$ К в магнитном поле $H = 90$ кОе линейный (вдоль магнитного поля) размер полярона увеличивается примерно в 3 раза по сравнению с его размером в нулевом магнитном поле. Увеличение довольно существенно, но возможно.

В рамках „спин-поляронного“ механизма проводимости удалось описать наблюдаемое магнитосопротивление манганита $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ с параметром CMR близким к рекордному. Такая величина CMR обеспечивается за счет трехкратного роста линейного (вдоль магнитного поля) размера полярона, т.е. по крайней мере при температуре отвечающей максимуму магнитосопротивления основную роль в проводимость под воздействием магнитного поля вносят изменения размеров и формы магнитных неоднородностей.

Метод разделения вкладов в магнитосопротивление от различных механизмов проводимости, разработанный для веществ с активационным типом проводимости, был обобщен на соединения, в которых наблюдается переход металл–диэлектрик. Получено, что для температуры 75 К, находящейся вблизи максимума CMR вклад от „ориентационного“ механизма в магнитном поле 5 кОе достигает своего максимального значения около 20% и практически исчезает в полях бóльших 50 кОе.

Авторы благодарят К.И. Кугеля за ценные замечания, сделанные при обсуждении результатов этой работы.

Список литературы

- [1] А.А. Абрикосов. Основы теории металлов. Наука, М. (1987). 520 с.
- [2] В.Ф. Гантмахер, И.Б. Левинсон. Рассеяние носителей тока в металлах и полупроводниках. Наука, М. (1984). 351 с.
- [3] И.М. Лифшиц, М.Я. Азбель, М.И. Каганов. Электронная теория металлов. Наука, М. (1971). 416 с.
- [4] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [5] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, W. Zinn. *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1989).
- [6] M. Zabel. *J. Phys. Condens Matter.* **11**, 9303 (1999).
- [7] D.T. Pierce, J. Unguris, R.J. Celotta, M.D. Stiles. *JMMM* **200**, 290 (1999).
- [8] М.И. Куркин, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.А. Угрюмова, С.А. Гудин, Н.Н. Гапонцева. *ФТТ* **55**, 5, 896 (2013). M.I. Kurkin, E.A. Neifel'd, A.V. Korolev, N.A. Ugryumova, S.A. Gudina, N.N. Gapontseva. *Phys. Solid State* **55**, 5, 974 (2013).
- [9] С.А. Гудин, М.И. Куркин, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.Н. Гапонцева, Н.А. Угрюмова. *ЖЭТФ* **148**, 5, 1005 (2015). S.A. Gudina, M.I. Kurkin, E.A. Neifel'd, A.V. Korolev, N.A. Ugryumova, N.N. Gapontseva. *J. Exp. Theor. Phys.* **121**, 5, 878 (2015).
- [10] S. Jin, T.H. Tiefel, M. Mc Cormack, R.A. Fastnacht, R. Ramesh, L.M. Chen. *Science* **264**, 413 (1994).
- [11] Э.Л. Нагаев. *УФН* **166**, 8, 833 (1996). E.L. Nagaev. *Phys.-Usp.* **39**, 8, 781 (1996).
- [12] M.B. Salamon, M. Jaime. *Rev. Mod. Phys.* **73**, 583 (2001).
- [13] E. Dagotto. *Nanoscale Phase Separation and Colossal Magnetoresistance*. Springer-Verlag, Berlin (2002). 452 p.
- [14] М.Ю. Каган, К.И. Кугель. *УФН* **171**, 6, 577 (2001). M.Yu. Kagan, K.I. Kugel'. *Phys.-Usp.* **44**, 6, 553 (2001).
- [15] A.O. Sboychakov, A.L. Rakhmanov, K.I. Kugel', Ya.M. Blanter, M.Yu. Kagan. *J. Phys. Rev. B* **63**, 174424 (2001).
- [16] A.O. Sboychakov, A.L. Rakhmanov, K.I. Kugel', M.Yu. Kagan, I.V. Brodsky. *J. Phys.: Condens. Matter.* **15**, 1705 (2003).
- [17] Y. Moritomo, A. Asamitsu, H. Kuwahara, Y. Tokura. *Nature (London)* **380**, 141 (1996).
- [18] M. Tokunaga, N. Miura, Y. Moritomo, Y. Tokura. *Phys. Rev. B* **59**, 11151 (1999).
- [19] C.L. Zhang, X.J. Chen, C.C. Almasan, J.S. Gardner, J.L. Sarrao. *Phys. Rev. B* **65**, 134439 (2002).
- [20] M. Balbashov, S.G. Karabashev, Ya.M. Mukovskiy, S.A. Zverkov. *J. Cryst. Growth.* **167**, 365 (1996).
- [21] N.I. Solin. *JMMM* **401**, 677 (2016).
- [22] М.И. Куркин, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.А. Угрюмова, С.А. Гудин, Н.Н. Гапонцева. *ЖЭТФ* **143**, 5, 948 (2013). M.I. Kurkin, E.A. Neifel'd, A.V. Korolev, N.A. Ugryumova, S.A. Gudina, N.N. Gapontseva. *J. Exp. Theor. Phys.* **116**, 5, 823 (2013).
- [23] С.А. Гудин, Н.Н. Гапонцева, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.А. Угрюмова. *Изв. РАН. Сер. Физич.* **78**, 9, 1142 (2014). S.A. Gudina, N.N. Gapontseva, E.A. Neifel'd, A.V. Korolev, N.A. Ugryumova. *Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys.* **78**, 9, 900 (2014).
- [24] Э.Л. Нагаев. *Письма в ЖЭТФ* **6**, 484 (1967).
- [25] T. Kasuya, A. Yanase, T. Takeda. *Solid State Commun.* **8**, 1543 (1970).
- [26] М.А. Кривоглаз. *УФН* **106**, 360 (1972).
- [27] N. Mannella, W.L. Yang, K. Tanaka, X.J. Zhou, H. Zheng, J.F. Mitchell, J. Zaanen, T.P. Devereaux, N. Nagaosa, Z. Hussain, Z.-X. Shen. *Phys. Rev. B* **76**, 233102 (2007).