

05,11

Соотношение между магнитосопротивлением и магнитокалорическим эффектом в манганитах $\text{La}_{1-x}\text{Ag}_x\text{MnO}_3$

© А.Г. Гамзатов, А.Б. Батдалов

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

E-mail: gamzatpv_adler@mail.ru

(Поступила в Редакцию 11 мая 2011 г.)

Предложено обобщенное выражение, связывающее магнитосопротивление с изменением магнитной энтропии для манганитов $\text{La}_{1-x}\text{Ag}_x\text{MnO}_3$. Показано, что корректный учет действующих механизмов возникновения магнитосопротивления приводит к удовлетворительному согласию между экспериментальными и рассчитанными значениями ΔS_M .

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 09-08-96533, 11-02-01124) и программы ОФН РАН „Сильнокоррелированные электроны в твердых телах и структурах“.

В манганитах эффект колоссального магнитосопротивления (КМС) и магнитокалорический эффект (МКЭ) обычно наблюдаются вблизи температуры магнитного фазового перехода и можно предположить, что существует определенная связь между изменением магнитной энтропии и удельным электросопротивлением. Теоретические исследования, основанные на моделях $s-d$ обмена [1], модели двойного обмена [2] и т.д., предсказывают линейную связь между изменением магнитной энтропии и удельным электросопротивлением с коэффициентом пропорциональности, не зависящим от температуры.

Выражение, связывающее удельное электросопротивление с изменением магнитной энтропии в манганитах приведена в работе [3], где авторы предложили альтернативный метод, с помощью которого можно оценивать изменение магнитной энтропии из данных по температурной и полевой зависимости удельного сопротивления. В [4] показано, что связь между магнитокалорическим эффектом и магнитосопротивлением наблюдается не только в манганитах, но и в сплавах TmCu и TmAg .

В настоящей работе на примере образца $\text{La}_{0.85}\text{Ag}_{0.15}\text{MnO}_3$ предложено обобщенное выражение, связывающее магнитосопротивление с изменением магнитной энтропии для манганитов. Выбор именно этого образца обусловлен тем, что величины МКЭ и эффекта КМС для этого состава наибольшие среди образцов системы $\text{La}_{1-x}\text{Ag}_x\text{MnO}_3$. Кроме того, электрические и магнитокалорические свойства данного образца исследованы нами достаточно подробно [5–8].

Согласно [3], в манганитах связь между изменением магнитной энтропии ΔS_M и сопротивлением ρ выглядит следующим образом:

$$\Delta S_M(T, H) = -\alpha \int_0^H \left[\frac{\partial \ln \rho}{\partial T} \right]_H dH, \quad (1)$$

где параметр α определяет магнитные характеристики образца и для манганита $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$

$\alpha = 21.72 \text{ emu/g}$. Как показано в [3], это соотношение справедливо в узком температурном интервале вблизи температуры магнитного фазового перехода. Хорошее согласие полученных по формуле (1) и по данным калорических измерений значений ΔS_M вблизи T_C для состава $\text{La}_{0.9}\text{MnO}_3$ наблюдали авторы [9]. В работе [10] на примере образца $\text{La}_{0.85}\text{Ag}_{0.15}\text{MnO}_3$ показано, что значение ΔS_M , рассчитанное по формуле (1), качественно согласуется с результатами калорических измерений в узком температурном интервале вблизи температуры фазового перехода.

Наиболее простое соотношение между $\Delta \rho$ и ΔS_M было предложено [11]. Было показано, что связь между изменением энтропии и изменением сопротивления имеет вид:

$$\rho(T, H) - \rho(T, 0) = K[S(T, H) - S(T, 0)], \quad (2)$$

т.е. отношение изменения сопротивления $\Delta \rho$ к изменению магнитной энтропии ΔS_M есть величина постоянная и не зависящая от температуры. Данное соотношение достаточно хорошо выполняется для образцов $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{CoO}_3$, SrRuO_3 и CoPt_3 , и плохо — для поликристаллического манганита $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$. Как утверждают авторы [11], это связано с возникновением дополнительного магнитосопротивления в манганитах из-за эффекта Яна–Теллера и электронного фазового расслоения. Линейную связь между $\Delta \rho$ и ΔS_M для ферромагнитных сплавов RAI_2 ($R = \text{Pr, Nd, Tb, Dy, Ho, Er}$) наблюдали и авторы [12].

Когда речь идет о манганитах, задача нахождения изменения магнитной энтропии по данным электросопротивления существенно усложняется. Дело в том, что величину магнитокалорического эффекта в магнитных материалах определяет подавление спиназупорядоченного состояния под действием магнитного поля, а в манганитах такое подавление вблизи T_C приводит к эффекту КМС. Как известно, в манганитах наряду с классическим эффектом магнитосопротивления MR_{sd} ,

существенный вклад в общее магнитосопротивление MR_{total} вносят и другие механизмы (за счет эффекта Яна–Теллера, фазового расслоения). В поликристаллических образцах существенный вклад в MR_{total} вносит и туннельное магнитосопротивление MR_{tun} , основанное на туннелировании носителей тока через границы гранул; его относительная величина может достигать существенных величин, особенно при низких температурах [5,13,14]. Следовательно ΔS_M , полученные по формулам (1) и (2) на основании экспериментальных значений $\rho(T, H)$ для поликристаллических манганитов могут оказаться не совсем верными.

В гранулированных магнитных структурах магнитокалорический эффект реализуется за счет переориентации спинов, находящихся внутри гранул под действием внешнего магнитного поля. Так как вероятность межгранульного туннелирования определяется взаимной ориентацией магнитных моментов соседних гранул, то туннельное магнитосопротивление, являющееся следствием процессов, происходящих на поверхности гранул не будет вносить вклад в величину МКЭ, т.е. $\Delta S_M \sim MR_{sd}$. Общее магнитосопротивление гранулированных ферромагнитных материалов будет иметь следующий вид: $MR_{total} = MR_{sd} + MR_{tun}$, где MR_{tun} — вклад, обусловленный межгранульным туннелированием носителей заряда. Тогда связь между ΔS_M и MR_{total} для гранулированных ферромагнитных манганитов будет иметь вид:

$$\Delta S_M = A(MR_{total} - MR_{tun}) \quad \text{или} \\ \Delta S_M = A \cdot MR_{total}(1 - \delta), \quad (3)$$

где $\delta = MR_{tun}/MR_{total}$, в монокристаллах $MR_{tun} \rightarrow 0$ и формула (3) принимает вид (2).

Для того, чтобы воспользоваться формулой (3), необходимо четко различать вклады от MR_{tun} и MR_{sd} . Нам не известны ни экспериментальные, ни теоретические работы, посвященные процедуре выделения доли различных вкладов в общее магнитосопротивление в магнитных материалах, в частности и в манганитах. Но есть большое количество работ, посвященных анализу температурного хода MR_{tun} в гранулированных ферромагнетиках в широкой области температур [15–17], которые в первом приближении можно использовать и для манганитов. В гранулированных манганитах для описания температурной зависимости магнитосопротивления, обусловленного межгранульным спинзависимым туннелированием, авторы [17] предложили следующую эмпирическую зависимость: $MR_{tun} = (A + B/(1 - T))$, где A, B — подгоночные параметры. В настоящей работе для разделения различных вкладов в общее магнитосопротивление мы будем придерживаться двух разных идей, предложенных в работах [15,16]. В [15] приведено выражение для температурной зависимости туннельного магнитосопротивления в гранулированных ферромагнетиках, а в [16] — для магнитной туннельной структуры.

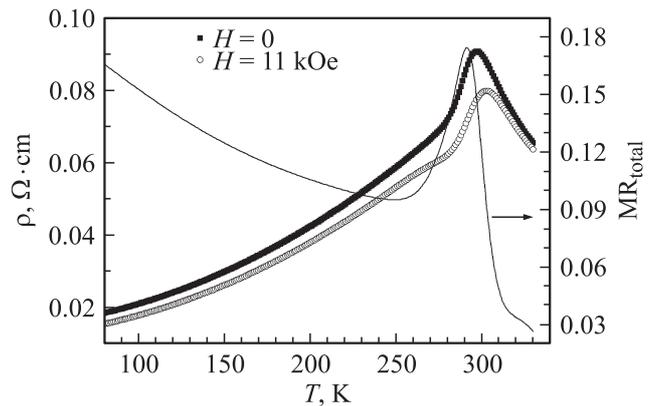


Рис. 1. Температурная зависимость электросопротивления $La_{0.85}Ag_{0.15}MnO_3$. Сплошная линия — температурная зависимость $MR_{total} = (\rho_0 - \rho_H)/\rho_0$ в магнитном поле $H = 11$ кОе.

Согласно [15], температурная зависимость MR_{tun} для гранулированных ферромагнетиков определяется выражением

$$MR_{tun}(T, H) = -P^2 L^2 (\mu_{300}(300/T)^{3/2}(H/kT)), \quad (4)$$

где P — не зависящая от магнитного поля спиновая поляризация электронов проводимости, $L(x) = \coth(x) - 1/x$ — функция Ланжевена с $x = \mu_{300}(300/T)^{3/2}(H/kT)$, μ_{300} — подгоночный параметр, определяющий магнитный момент гранул и характеризующий размеры гранул.

В отличие от [15], в работе [16] для описания туннельного магнитосопротивления магнитных туннельных структур использован несколько иной подход, и для случая прямого туннелирования температурная зависимость MR_{tun} имеет следующий вид:

$$MR_{tun}(T) = ((1 + P^2)/(1 - P^2)) - 1 \quad (5)$$

где $P = P_0(1 - \beta T^{3/2})$ — определяет зависимость поляризации от температуры, β — параметр, зависящий от рода материала, P_0 — полная эффективная поляризация спинов при 0 К.

Рассмотрим на примере образца $La_{0.85}Ag_{0.15}MnO_3$ механизмы разделения MR_{tun} от MR_{total} используя формулы (4) и (5). На рис. 1 приведена зависимость $\rho(T)$ для образца $La_{0.85}Ag_{0.15}MnO_3$ как в магнитном поле $H = 11$ кОе, так и без поля в интервале температур 77–350 К. Там же приведена температурная зависимость магнитосопротивления MR_{total} . Как видим, магниторезистивный эффект в поле 11 кОе вблизи температуры перехода металл–изолятор достигает значения $\sim 18\%$, а с понижением температуры наблюдается рост магниторезистивного эффекта. Такое поведение связано с тем, что вероятность туннелирования между гранулами зависит от взаимной ориентации магнитных моментов соседних гранул. Магнитное поле, ориентируя магнитные моменты соседних гранул параллельно полю, приводит к увеличению вероятности туннелирования,

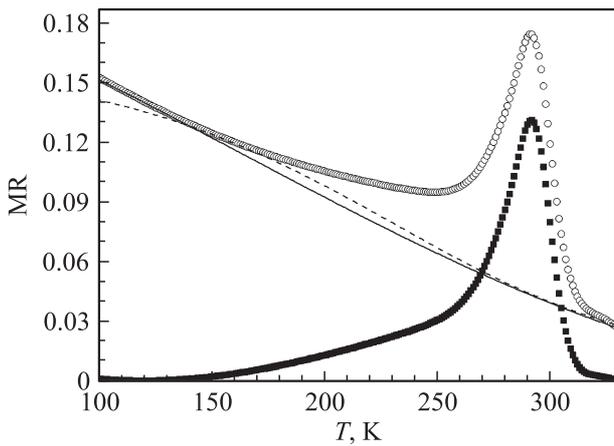


Рис. 2. Зависимость магнитосопротивления от температуры. Кружки — MR_{total} (эксперимент). Сплошная линия — аппроксимация с помощью формулы (4) со значениями $P = 0.41$, $\mu_{300} = 1200 \mu_B$. Штриховая линия — аппроксимация с помощью формулы (5) со значениями $P_0 = 0.32$, $\beta = 3.42 \cdot 10^{-8}$. Квадраты — $MR_{sd} = MR_{total}(T) - MR_{tun}(T)$, где вместо $MR_{tun}(T)$ использовали формулу (5).

следовательно, к росту проводимости, т.е. к магниторезистивному эффекту. Такой механизм приводит к возникновению отрицательного магнитосопротивления намного ниже T_C , вплоть до гелиевых температур, и он суммируется с эффектом КМС вблизи T_C . Более того (см. рис. 1), с понижением температуры туннельный вклад увеличивается, так как при этом уменьшается вероятность рассеяния туннелирующих носителей на тепловых флуктуациях. Аналогичный ход температурной зависимости магнитосопротивления характерен для большинства манганитов керамической природы. Очевидно, чем меньше размер гранул, тем больше будет туннельный вклад в MR_{total} [17,18]. При определенных условиях вблизи T_C может наблюдаться случай, когда при $\delta \rightarrow 1$, $\Delta S_M \rightarrow 0$.

Результаты анализа экспериментальных данных с помощью формул (4) и (5) в интервале температур 77–330 К приведены на рис. 2. Надо отметить, что при использовании формул (4) и (5) для аппроксимации экспериментальных данных $MR_{total}(T)$ мы предполагаем, что температурный ход MR_{tun} в манганитах не имеет особенностей в области перехода или эти особенности пренебрежимо малы. Температурная зависимость MR_{sd} , полученная как $MR_{sd} = MR_{total}(T) - MR_{tun}(T)$, приведена на рис. 2. Как видно из рис. 2, температурный ход $MR_{tun}(T)$, определяемый с помощью формулы (4), ниже 130 К заметно расходится с экспериментом, тогда как формула (5) хорошо согласуется с экспериментальными данными вплоть до 77 К. Так же следует отметить, что значения степени поляризации P , получаемые в рамках различных моделей, несколько отличаются. Так, по данным модели, описываемой формулой (4) $P \approx 0.4$, в то время как формула (5) дает $P_0 \approx 0.3$. Анализ поведения

$\rho(T)$ для $La_{0.85}Ag_{0.15}MnO_3$ при низких температурах в рамках модели спинполяризованного туннелирования показывает, что при $T = 5$ К в нулевом магнитном поле $P \approx 0.6$ [19]. Такое различие связано с различным интервалом аппроксимации с помощью формул (4) и (5).

На рис. 3 приведены температурные зависимости изменения магнитной энтропии, полученные с помощью формул (1)–(3). Там же для сравнения приведена температурная зависимость МКЭ, полученная по данным теплоемкости $\Delta S_M(T, H) = \int_{T_1}^{T_2} (C(T, H) - C(T, 0)) T^{-1} dT$ в поле 11 кОе [6]. Как видим из рис. 3, значения ΔS_{max} , полученные с помощью формул (1)–(3) хорошо согласуются с данными calorических измерений вблизи T_C . Вдали от T_C , особенно при $T \ll T_C$, значения $\Delta S_M(T)$, полученные с помощью формул (1) и (2), сильно расходятся с данными calorических измерений. Заметим, что соотношение (2) в случае гранулированных ферромагнитных материалов дает большую ошибку и при $T > T_C$, тогда как результаты, полученные с помощью формулы (3) с коэффициентом пропорциональности $A = 14$ Дж/кг К, показывают хорошее согласие с данными calorических измерений в довольно широком температурном интервале.

Из равенства (3) вытекает довольно интересный вывод. Так как $MR_{total} = (\rho_0 - \rho_H)/\rho_0 \leq 1$, то из формулы (3) следует, что величина магнитокалорического эффекта в манганитах, при любых значениях магнитного поля не может быть больше некоторой постоянной величины A , т.е. при $MR_{total} = 1$, $\Delta S_M = A$. Анализ наших предыдущих работ [5–8] с использованием соотношения (3) показывает, что для системы $La_{1-x}Ag_xMnO_3$ максимально допустимая величина ΔS_M равна примерно 14–15 Дж/кг К, и чтобы достичь такого значения изменения магнитной энтропии, необходимы очень сильные магнитные поля. Заметим, что в манганитах полевые зависимости МКЭ и КМС вблизи T_C выходят на насыщение при полях ~ 40 кОе, дальнейший рост магнитного поля приводит лишь к незначительному росту величины

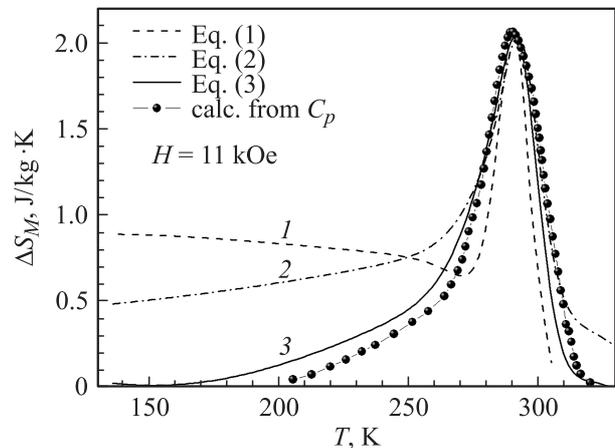


Рис. 3. Температурная зависимость ΔS_M , полученная разными методами.

МКЭ [20]. Максимальные величины МКЭ в манганитах вблизи T_C , полученные из данных калорических измерений колеблются в пределах $5 \div 10$ J/kg K в полях 50–90 кОе. Так, для $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.25}\text{Sr}_{0.05}\text{MnO}_3$ в поле 50 кОе $\Delta S_M = 10.2$ J/kg K [21], а для $(\text{La}_{0.6}\text{Ca}_{0.4})_{0.9}\text{Mn}_{1.1}\text{O}_3$ в поле $H = 90$ кОе $\Delta S_M = 9.5$ J/kg K [22]. О максимальной величине МКЭ в магнитных материалах говорится и в работе [23], где приводится оценка максимального адиабатного изменения температуры на единицу магнитного поля, которое может быть достигнуто в принципе в магнитных материалах. Как показано в [23], ΔT никогда не может превышать ~ 18 K/T, а для гадолиния $\Delta T = 2.6\text{--}2.9$ K/T.

Таким образом, описана процедура разделения различных вкладов в общее магнитосопротивление манганитов. На примере образца $\text{La}_{0.85}\text{Ag}_{0.15}\text{MnO}_3$, показано, что корректный учет действующих механизмов магнитосопротивления позволяет оценить изменение магнитной энтропии в манганитах $\text{La}_{1-x}\text{Ag}_x\text{MnO}_3$. В заключение отметим, что на основании выражения (3) можно косвенно оценить изменение магнитной энтропии из данных электрических измерений в манганитах.

Авторы выражают благодарность А.М. Алиеву и А.М. Агаларову за полезные и ценные замечания.

Список литературы

- [1] T. Kasuya. Prog. Theor. Phys. **16**, 58 (1956).
- [2] K. Kubo, N. Ohata, J. Phys. Soc. Jpn. **33**, 21 (1972).
- [3] C.M. Xiong, J.R. Sun, Y.F. Chen, B.G. Shen, J. Du, Y.X. Li. Magnetism, IEEE Transact. Magn. **41**, 122 (2005).
- [4] R. Rawat I. Das, J. Phys.: Cond. Matter **13**, L379 (2001).
- [5] И.К. Камиллов, А.Г. Гамзатов, А.М. Алиев, А.Б. Батдалов, Ш.Б. Абдулвагид, О.В. Мельников, О.Ю. Горбенко, А.Р. Кауль. ЖЭТФ **132**, 885 (2007).
- [6] I.K. Kamilov, A.G. Gamzatov, A.M. Aliev, A.B. Batdalov, A.A. Aliverdiev, Sh.B. Abdulvagidov, O.V. Melnikov, O.Y. Gorbenko, A.R. Kaul. J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 4413 (2007).
- [7] A.G. Gamzatov, A.B. Batdalov. Phase Transitions **83**, 10 (2010).
- [8] А.Г. Гамзатов, А.М. Алиев, А.Б. Батдалов, Ш.Б. Абдулвагидов, О.В. Мельников, О.Ю. Горбенко. Письма в ЖТФ **32**, 16 (2006).
- [9] M. Patra, K. De, S. Majumdar, S. Giri. Appl. Phys. Lett. **94**, 092 506 (2009).
- [10] А.Г. Гамзатов, А.Б. Батдалов, А.Р. Кауль, О.В. Мельников. ФТТ **53**, 170–175 (2011).
- [11] N. Sakamoto, T. Kyomen, S. Tsubouchi, M. Itoh. Phys. Rev. B **69**, 092 401 (2004).
- [12] J.C.P. Campoy, E.J.R. Plaza, A.A. Coelho, S. Gama. Phys. Rev. B **74**, 134 410 (2006).
- [13] J. Yang, B.C. Zhao, R.L. Zhang, Y.Q. Ma, Z.G. Sheng, W.H. Song, Y.P. Sun. Solid State Commun. **132**, 83 (2004).
- [14] А.И. Товстолыткин, В.М. Цмоць, Л.И. Панькив, П.Г. Литовченко, И.С. Панькив. Физика низких температур **36**, 280 (2010).
- [15] Е.З. Мейлихов. Письма в ЖЭТФ, **69**, 579 (1999).
- [16] Y. Lu, M. Tran, H. Jaffres, P. Seneor, C. Deranlot, F. Petroff, J.-M. George, B. Lepine, S. Ababou, G. Jezequel. Phys. Rev. Lett. **102**, 176 801 (2009).
- [17] S. Karmakar, S. Taran, B.K. Chaudhuri. Phys. Status Solidi B **241**, 5633 (2004).
- [18] J. Yang, B.C. Zhao, R.L. Zhang, Y.Q. Ma, Z.G. Sheng, W.H. Song Y.P. Sun. Solid State Commun. **132**, 83 (2004).
- [19] A.G. Gamzatov, A.B. Batdalov, O.V. Melnikov, O.Yu. Gorbenko. Low Temp. Phys. **35**, 219 (2009).
- [20] A. M. Tishin, Y.I. Spichkin. The Magnetocaloric Effect and its Applications. Institute of Physics, N. York, (2003).
- [21] Z.B. Guo, Y.W. Du, J.S. Zhu, H. Huang, W.P. Ding, D. Feng. Phys. Rev. Lett. **78**, 1142 (1997).
- [22] Э.Е. Зубов, Р. Пужняк, В.П. Пашенко, В.И. Михайлов, А. Есенчук, С.Ф. Миронова, С. Пехота, В.П. Дьяконов, В.Н. Варюхин, Г. Шимчак. ФТТ **51**, 1970 (2009).
- [23] V.I. Zverev, A.M. Tishin, M.D. Kuz'min. J. Appl. Phys. **107**, 043 907 (2010).