03,05

Аномальное изменение размера спинового полярона в парамагнитной области температур в La_{1.2}Sr_{1.8}Mn₂O₇

© С.А. Гудин

Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, Россия E-mail: gudin@imp.uran.ru

Поступила в Редакцию 8 июля 2021 г. В окончательной редакции 13 июля 2021 г. Принята к публикации 16 июля 2021 г.

Продолжены исследования магнитных и электрических свойств двойного перовскита La_{1.2}Sr_{1.8}Mn₂O₇, обладающего вблизи температуры Кюри величиной колоссального магнитосопротивления превышающей 1200. Показано, что наблюдаемое в La_{1.2}Sr_{1.8}Mn₂O₇ колоссальное магнитосопротивление хорошо описывается на основе "ориентационного" и "спин-поляронного" механизмов проводимости. Обнаружено, что в отсутствии магнитного поля, линейный размер спинового полярона, уменьшается с ростом температуры в ферромагнитной области, а при переходе манганита в парамагнитное состояние линейный размер начинает возрастать, достигая максимума при 180 К. При температурах, превышающих 180 К аномальное температурное изменение размера спинового полярона исчезает. В отсутствии магнитного поля, обнаруженый пик на температурной кривой изменения размера спинового полярона максимален, с включением магнитного поля высота пика уменьшается. Предложены механизмы, объясняющие такое аномальное температурное поведение размера спинового полярона.

Ключевые слова: колоссальное магнитосопротивление, спиновый полярон, слоистые манганиты, механизмы проводимости.

DOI: 10.21883/FTT.2021.12.51653.31s

1. Введение

Открытие магнитосопротивления колоссального (КМС) [1,2], а именно эффекта, в котором удельное сопротивление образца при включении магнитного поля изменяется в десятки и более раз, заставило задуматься о механизмах проводимости так сильно зависящих от приложенного внешнего магнитного поля. Приложенное магнитное поле не изменяет проекцию скорости частиц на направление приложенного электрического поля, но благодаря силе Лоренца закручивает их траектории в плоскости, перпендикулярной приложенному магнитному полю. В результате за время между двумя столкновениями (время свободного пробега) частица пройдет путь вдоль направления приложенного электрического поля меньший, чем в отсутствие магнитного поля, т.е. сопротивление в магнитном поле из-за силы Лоренца должно увеличиваться. В манганитах, обладающих эффектом КМС, сопротивление в магнитном поле обычно уменьшается. До сих пор не создана последовательная микроскопическая теория, адекватно описывающая свойства таких допированных манганитов со структурой перовскита. Однако было установлено [3-7], что возникновение КМС в допированных манганитах связано с образованием неоднородных зарядовых и спиновых состояний (редкая земля при допировании замещается на металл, имеющий другую валентность, что и приводит к образованию зарядовых неоднородностей). Основное объяснение такой большой величины магнитосопротивления (МС), предполагает существование в допированных манганитах фазового расслоения на низко- и высокорезестивную фазы, размеры которых увеличиваются с ростом величины приложенного магнитного поля, увеличение размера может привести к соприкосновению низкоомных включений, что, в свою очередь, приводит к сильному уменьшению сопротивления вблизи порога протекания. Образование зарядовых неоднородностей приводит в манганитах к возникновению поляронов, но так как эти поляроны имеют некоторый объем, а манганиты являются ферро- или антиферромагнетиками, то на занятый поляроном объем приходится часть электронной спиновой плотности. Т.е. такой полярон имеет некий собственный магнитный момент, поэтому говорят о магнитных или спиновых поляронах (ферронах) [8,9]. Механизм магнитосопротивления, в котором сопротивление зависит от размера магнитных неоднородностей назван "размерным" [10] или "спин-поляронным" [11].

2. Описание проводимости в магнитно-фазово-расслоенном манганите

При протекании тока через магнитно-фазово-расслоенный манганит носитель тока переходит из одной магнитоупорядоченной области в другую. В отсутствие магнитного поля направления магнитных моментов этих областей разориентированы. С ростом величины приложенного внешнего магнитного поля направления магнитных моментов ферромагнитноупорядоченных областей начинают ориентироваться по полю, полностью ориентируясь вдоль него в больших полях. Если длина свободного пробега носителя тока без переворота спинового магнитного момента больше расстояния между магнитоупорядоченными областями, то удельное сопротивление будет зависеть (как и в случае металлических сверхрешеток обладающих гигантским магнитосопротивлением (ГМС) [12,13]) от направлений магнитного упорядочения ферромагнитноупорядоченных областей, так называемый "ориентационный" механизм проводимости [14,15]. Т.е. этот механизм проводимости, определяющий ГМС в магнитных металлических сверхрешетках, может вносить вклад и в КМС в магнитнофазово-расслоенных манганитах. Таким образом, проводимость σ в монокристаллических допированных манганитах, обладающих КМС, определяется "ориентационным" и "размерным" механизмами (θ - и r-):

$$\sigma(H) = \sigma_r(H) + \sigma_\theta(H), \qquad (1)$$

где Н — внешнее магнитное поле.

Для каждого конкретного значения температуры ориентационный механизм в магнитных полях больших поля насыщения вносит в проводимость постоянный вклад (магнитные моменты в полях превышающие поле магнитного насыщения не меняют своей ориентации, так как уже выстроены вдоль направления приложенного магнитного поля).

$$\sigma_{\theta}(H > H_{sat}) = P_1(T), \qquad (2)$$

здесь $P_1 = \text{const}$ для конкретного значения T.

В [8,16] была описана спин-поляронная удельная проводимости σ_r :

$$\sigma_r(T,H) = B\sigma_0 \frac{\omega_0}{T} \exp\left(-\frac{A(H)}{2T}\right), \qquad (3)$$

где T — температура, σ_0 — остаточная проводимость образца, ω_0 — характерная магнонная частота, B — размерный множитель. A(H) — энергетический барьер определяющийся кулоновским отталкиванием между совершающим прыжок электроном с зарядом e и поляроном с зарядом q:

$$A(H) = k \, \frac{eq}{R_{\rm Pol}(H)},\tag{4}$$

 $k = \frac{1}{4\pi\varepsilon\epsilon_0}$, ε — диэлектрическая проницаемость спинового полярона, ε_0 — электрическая постоянная, $R_{\rm Pol}$ — радиус полярона (в отсутствии магнитного поля, полярон имеет сферическую форму). С увеличением магнитного поля *H* размер полярона $R_{\rm Pol}$ вдоль направления приложения поля растет

$$R_{\text{Pol}}(T,H) = x(T) + y(T)H,$$
(5)

(x(T) и y(T) принимают только положительные значения), форма полярона искажается, вытягиваясь вдоль приложенного поля, и $R_{\rm Pol}$ становится равной половине размера полярона вдоль направления приложенного магнитного поля. В дальнейшем для краткости величину $R_{\rm Pol}$ будем называть радиусом полярона.

 $P_2(T) = B\sigma_0 \frac{\omega_0}{T}, \quad P_3(T) = -\frac{ke q}{2T v(T)}$

Введя обозначения

И

$$P_4(T) = x(T)/y(T) \tag{6}$$

получим формулу для проводимости для $H > H_{sat}$ в параметрическом виде

$$\sigma(H) = P_1 + P_2 \exp\left(\frac{-P_3}{P_4 + H}\right). \tag{7}$$

Как следует из (6), параметр $P_2(T)$ обратно пропорционален температуре и для его вычисления используем полученные ранее для температуры T = 75 К значения этого параметра $P_2(T = 75 \text{ K}) = (174 \pm 3)$ S/cm [11]. Используя метод разделения вкладов в проводимость от "ориентационного" и "спин-поляронного" механизмов рассеяния [10,15,17] для каждой конкретной температуры проводится расчет удельной проводимости образца.

Исследования магнитных и электрических свойств двойного перовскита La_{1.2}Sr_{1.8}Mn₂O₇

В настоящей работе продолжены исследования магнитных и электрических свойств двойного перовскита $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ [11,18,19], обладающего вблизи температуры Кюри величиной колоссального магнитосопротивления превышающей 1200. Экспериментальные данные по температурным и магнитным изменениям сопротивления монокристаллического $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$, используемые в данной работе и представленные на рис. 1, взяты из работы [11].

Было обнаружено, что в парамагнитной области температур в отсутствие магнитного поля размер полярона с ростом температуры ведет себя не обычно, но для более глубокого понимания происходящих в этой области температур процессов расчетных данных не хватало. Возник вопрос, связано ли обнаруженное отклонение от монотонного спада в области выше температуры Кюри с погрешностями расчета, и таким образом оно является флуктуационным биением, обусловленным тем, что для каждой точки на графике "температура относительный размер спинового полярона" необходимо было проводить отдельный расчет, или обнаруженная аномалия связана с физическими процессами? В работе проведены дополнительные расчеты, дающие возможность однозначно ответить на этот вопрос.



Рис. 1. Электросопротивление в зависимости от температуры *Т* при значениях поля *H*: 0, 10, 20, 30, 60, 90 kOe.



Рис. 2. Удельная проводимость в магнитном поле H: (*a*) для температуры 105 К, (*b*) для температуры 120 К. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчет. На вставках полученные значения параметров (2) и (6), R^2 — коэффициент детерминации.



Рис. 3. Изменение радиуса полярона, отнесенного к константе keq, в зависимости от температуры T при значениях поля H: 0, 10, 20, 30, 90 kOe; точки обозначены квадратами, кружками, треугольниками, звездочками, снежинками, соответственно (обозначения для разных температур приведены на вставках).

2 приведена удельная проводимость На рис. $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ в магнитном поле *H*: (*a*) — для температуры 105 K, (b) — для температуры 120 K. Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчет. На вставках полученные значения параметров (2) и (6). R² — коэффициент детерминации, характеризующий на сколько хорошо коррелируют расчетные и экспериментальные данные. Значение коэффициента детерминации 1 означает функциональную зависимость между переменными. Вычисленные кривые удельной проводимости проходят через экспериментальные точки с достаточно большой точностью рис. 2. Получено, что коэффициент детерминации превышает значение 0.9996 для всех температур при которых производились расчеты (для $T = 105 \text{ K } R^2 = 0.999987$, а для $T = 120 \text{ K } R^2 = 0.9997 \text{ см. вставки на рис. 2,$ *a*и*b*).Значение коэффициентов детерминации, близких к 1, указывает на то, что отклонение экспериментальных точек от расчетных кривых минимально.

Согласно (5) и (6) запишем радиус полярона в единицах *keq*:

$$R_{\rm Pol}(T,H)/keq = \frac{(P_4+H)}{2P_3T}.$$
 (8)

На рис. З представлено изменение радиуса полярона, отнесенного к константе keq, в зависимости от изменения температуры T при значениях поля H: 0, 10, 20, 30, 90 kOe, расчетные значения обозначены квадратами, кружками, треугольниками, звездочками, снежинками соответственно. Для наглядности тенденций, расчетные точки для каждого значения магнитного поля соединены отрезками. С ростом температуры размер полярона уменьшается. Однако в области выше 110 K



Рис. 4. Размер полярона в относительных единицах в зависимости от температуры T при значениях поля H: 0 kOe (снежинки), 10 kOe (кружки), 20 kOe (звездочки), 30 kOe (треугольники) (обозначения для разных температур приведены на вставках).

для полей меньших 90 kOe обнаружено, как было ранее упомянуто, аномальное поведение изменения размера спинового полярона (см. рис. 4). В отсутствии магнитного поля, линейный размер спинового полярона, уменьшается с ростом температуры в ферромагнитной области, а при переходе манганита в парамагнитное состояние линейный размер начинает возрастать, достигая максимума при 180 К. При температурах, превышающих 180 К аномальное температурное изменение размера спинового полярона исчезает. В отсутствии магнитного поля, обнаруженные изменения ("горб" на кривой) размера полярона максимален, с включением магнитного поля высота "горба" уменьшается. В поле 20 kOe "горб" полностью исчезает, переходя в точку перегиба на температурной кривой относительного размера спинового полярона. В магнитных полях больше 30 kOe аномальное температурное поведение размера полярона полностью пропадает.

На рис. 4 представлено изменение радиуса полярона, отнесенного к константе keq, в зависимости от температуры T для диапазона температур от 90 до 260 К в магнитных полях H: 0, 10, 20, 30 kOe.

Включение магнитного поля увеличивает размер спинового полярона. Аномальное увеличение размера спинового полярона при температурах выше 110 К ("горб" на нижней кривой рис. 4) на величину отрезка [AB] практически эквивалентно энергетическому воздействию магнитным полем 20 kOe (длины отрезков [AB] и [CD] равны). В магнитном поле 10 kOe размер спинового полярона претерпевает изменения аналогичные изменениям в отсутствии магнитного поля, но увеличение размера начинается с температуры 125 К и высота "горба" (отрезок [FE]) на графике меньше. Аномальное увеличение размера практически эквивалентно энергетическому воздействию магнитным полем 10 kOe (длины отрезков [FE] и [HG] равны). Увеличение магнитного поля с 20 до 30 kOe приводит к увеличению размера спинового полярона сопоставимому с увеличением размера при изменении магнитного поля с 10 до 20 kOe (длины отрезков [KM] и [HG] равны), горб полностью пропадает.

Спиновые поляроны образовываются из-за ферромагнитных зарядовых неоднородностей, создаваемых в манганите допированием элементом другой валентности. Образованию квазичастиц препятствует температура, стремящаяся их разрушить. Магнитное поле, воздействуя на магнитный момент спинового полярона, действует против разупорядочивающего воздействия температурных колебаний решетки, что приводит к росту размера полярона при включении магнитного поля. Но для ферромагнитой области температур на спиновый полярон действует среднее магнитное поле, стремящееся коллективизировать обособленные магнитные моменты поляронов. В результате размер полярона определяется минимизацией его свободной энергии поверхности. При переходе в парамагнитную область с дальнейшим ростом температуры препятствующее образованию полярона воздействие среднего магнитного поля исчезает, что приводит к увеличению свободной энергии поверхности, и как результат к увеличению размера спинового полярона. Дальнейший рост температуры компенсирует эффект от увеличения свободной энергии и после достижения некоторой температуры аномальный рост размера полярона исчезает, сменяясь тенденцией уменьшения размера.

4. Заключение

В работе продолжены исследования магнитных и электрических свойств двойного перовскита La_{1.2}Sr_{1.8}Mn₂O₇, обладающего вблизи температуры Кюри величиной колоссального магнитосопротивления превышающей 1200. Показано, что магнитосопротивление в рассматриваемом соединении определяется изменением размеров и направлений магнитных моментов магнитных неоднородностей (спиновых поляронов), — "спин-поляронный" и "ориентационный" механизмы соответственно. Удельная проводимость определяется прыжковой проводимостью носителей с одного спинового (ферромагнитного) полярона на соседний. Наблюдаемое в La_{1.2}Sr_{1.8}Mn₂O₇ колоссальное магнитосопротивление хорошо описывается на основе "ориентационного" и "спин-поляронного" механизмов проводимости. В работе обнаружено, что в отсутствии магнитного поля, линейный размер спинового полярона, уменьшается с ростом температуры в ферромагнитной области, а при переходе манганита в парамагнитное состояние линейный размер начинает возрастать, достигая максимума при 180 К. При температурах превышающих 180 К аномальное температурное изменение размера спинового полярона исчезает. В отсутствии магнитного поля, обнаруженный пик на температурной кривой изменения размера спинового полярона максимален, с включением магнитного поля высота пика уменьшается. В поле 20 kOe пик полностью исчезает, переходя в точку перегиба на температурной кривой размера спинового полярона. В магнитных полях больше 30 kOe аномальное температурное поведение размера полярона полностью пропадает. Предложены механизмы, объясняющие такое аномальное температурное поведение размера спинового полярона.

Благодарности

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

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания МИНОБРНАУКИ "Квант" № АААА-А18-118020190095-4 при частичной поддержке РФФИ (проект № 19-02-01000).

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Э.Л. Нагаев. УФН 166, 8, 833, (1996).
- [2] Y. Tokura, Y. Tomioko. JMMM **200**, 1 (1999).
- [3] Y. Coey, M. Viret, S. von Molnor. Adv. Phys. 48, 167 (1999).
- [4] E. Dagotto. Nanoscale Phase Separation and Colossal Magnetoresistance. Springer-Verlag, Berlin (2002). p. 452.
- [5] M.B. Salamon, M. Jaime. Rev. Mod. Phys. 73, 583 (2001).
- [6] R. von Helmholtz, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, K. Samwer. Phys. Rev. Lett. **71**, 2331 (1993).
- [7] S. Jin, T.H. Tiefel, M. McCormack, R.A. Fastnacht, R. Ramesh, L.M. Chen. Science 264, 413 (1994).
- [8] A.L. Rakhmanov, K.I. Kugel', Ya.M. Blanter, M.Yu. Kagan. J. Phys. Rev. B 63, 174424 (2001).
- [9] К.И. Кугель, А.Л. Рахманов, А.О. Сбойчаков, М.Ю. Каган, И.В. Бродский, А.В. Клапцов. ЖЭТФ 125, 648 (2004).
- [10] М.И. Куркин, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.А. Угрюмова, С.А. Гудин, Н.Н. Гапонцева. ЖЭТФ 55, 5, 896 (2013).
- [11] С.А. Гудин, Н.И. Солин, Н.Н. Гапонцева. ФТТ 60, 6, 1067 (2018). [S.A. Gudin, N.I. Solin, N.N. Gapontseva. Phys. Solid State 60, 6, 1078 (2018).]
- [12] M. Zabel. J. Phys. Condens. Matter 11, 9303 (1999).
- [13] D.T. Pierce, J. Unguris, R.J. Celotta, M.D. Stiles. JMMM 200, 290 (1999).
- [14] М.И. Куркин, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.А. Угрюмова, С.А. Гудин, Н.Н. Гапонцева. ЖЭТФ 143, 5, 948 (2013).
 [М.І. Kurkin, Е.А. Neifel'd, A.V. Korolev, N.A. Ugryumova, S.A. Gudin, N.N. Gapontseva. JETP 116, 5, 823 (2013)].

- [15] С.А. Гудин, М.И. Куркин, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.А. Угрюмова, Н.Н. Гапонцева. ЖЭТФ 148, 5, 1005 (2015). [S.A. Gudin, M.I. Kurkin, E.A. Neifel'd, A.V. Korolev, N.A. Ugryumova, N.N. Gapontseva. JETP 121, 5, 878 (2015)].
- [16] М.Ю. Каган, К.И. Кугель. УФН 171, 6, 577 (2001).
 [М.Yu. Kagan, К.I. Kugel'. Phys.-Usp. 44, 6, 553 (2001).]
- [17] С.А. Гудин, Н.Н. Гапонцева, Э.А. Нейфельд, А.В. Королев, Н.А. Угрюмова. Изв. РАН. Сер. Физ. 78, 9, 1142 (2014).
 [S.A. Gudin, N.N. Gapontseva, E.A. Neifel'd, A.V. Korolev, N.A. Ugryumova. Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 78, 9, 900 (2014)].
- [18] С.А. Гудин, Н.И. Солин. ЖЭТФ 157, 4, 648 (2020). [S.A. Gudin, N.I. Solin. J. Exp. Theor. Phys. 130, 4, 543 (2020)].
- [19] С.А. Гудин, Н.И. Солин. ФТТ **62**, *5*, 669 (2020). [S.A. Gudin, N.I. Solin. Phys. Solid State **62**, *5*, 756 (2020)].

Редактор Ю.Э. Китаев