

## О ПРИРОДЕ ГИГАНТСКОГО МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЯ В ФЕРРОМАГНИТНЫХ ЛАНТАНОВЫХ МАНГАНИТАХ

*М.К.Губкин, Т.М.Перекалина*

*Институт кристаллографии РАН*

*117333, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 24 октября 1994 г.

Предложено качественное объяснение природы необычно высокого (почти в 1300 раз) магнитосопротивления, открытого недавно в эпитаксиальных пленках  $\text{La-Ca-Mn-O}$ . Эффект приписан существованию в образцах пространственно-неоднородного магнитного упорядочения, приводящему к перколяционному переходу металл-полупроводник. Интерпретация аргументируется полученными ранее авторами данными электрических, магнитных и ЯМР измерений на лантановых манганитах со сходными свойствами. Обосновано предположение, что столь же высокие значения магнитосопротивления будут обнаружены на широком классе составов и, в частности, - на  $\text{La}_{0,9}\text{Na}_{0,1}\text{Mn}_{1-x}\text{Me}_x\text{O}_3$  ( $\text{Me}=\text{Re}, \text{Cu}, \text{Co}$ ), если таковые будут получены в виде монокристаллов или эпитаксиальных пленок. При этом магнитосопротивление названных керамик в слабых ( $< 1$  кЭ) полях выше, чем у пленок  $\text{La-Ca-Mn-O}$ .

Недавно было опубликовано сенсационное сообщение [1] о наблюдении гигантского изотропного отрицательного магнитосопротивления (МС) на эпитаксиальных пленках  $\text{La-Ca-Mn-O}$ . При приложении внешнего магнитного поля  $H = 60$  кЭ величина сопротивления  $\rho$  изменялась на три порядка:  $\rho(H=0) \equiv \rho_0 = 1270\rho(H) \equiv 1270\rho_H$  (типичное для этого класса веществ значение  $\Delta\rho \equiv \rho_0 - \rho_H$  составляет несколько десятков процентов от величины  $\rho_0$ ). Обнаруженный эффект имеет хорошие перспективы для применения в микроэлектронике. При этом в [1] констатируется неясность механизма, приводящего к столь высокой величине МС. В настоящей работе предложено качественное объяснение наблюдаемого явления на основании экспериментальных данных, приведенных в [1], а также результатов [2-5], полученных нами ранее на манганитах различных составов.

Перечислим основные особенности приведенных в [1] экспериментальных кривых в четырех пунктах.

1. Температура  $T_\rho$  ( $\sim 77$  К), при которой наблюдали аномалии  $\rho_0$  и  $\rho_0/\rho_H$  была значительно ниже точки Кюри  $T_C$ :  $T_C - T_\rho \sim 200$  К. В то же время, согласно теории двойного обмена (см., например, [6-8]), объясняющей ферромагнетизм (ФМ) и электропроводность в лантановых манганитах, температуры  $T_C$  и  $T_\rho$  должны совпадать: ФМ фаза обладает металлической проводимостью, а парамагнитная - полупроводниковой.

2. Температура  $T_\rho$  зависела от термообработок: после отжига образца в атмосфере кислорода при  $900^\circ\text{C}$   $T_\rho$  снизилась со 110 К до 77 К.

3. Высота пика  $\rho_0/\rho_H$  также зависела от термообработки: после указанного выше отжига отношение  $\rho_0/\rho_H$  увеличилось со 110 до 1270.

4. Температурная зависимость намагниченности  $M$  сильно отличалась от характерных для ФМ кривых  $M(T)$ , в особенности - в области  $T_\rho < T < T_C$ .

Все перечисленные особенности (кроме столь же высоких значений  $\rho_0/\rho_H$ , о которых речь пойдет ниже) наблюдались нами и ранее [2, 4, 5] на керамиках  $\text{La}_{0,9}\text{Na}_{0,1}\text{Mn}_{1-x}\text{Me}_x\text{O}_3$  ( $\text{Me}=\text{Re}, \text{Cu}, \text{Co}$ ). С целью их объяснения средствами

ЯМР были проведены исследования [3] локальных полей на ядрах  $^{139}\text{La}$ , создаваемых осуществляющими двойной обмен поляризованными по спину носителями тока. По результатам [3] был сделан вывод о том, что в исследованных составах лантановых манганитов имеет место теоретически предсказанное в работах Э.Л.Нагаева (изложение см., например, в [9]) разделение магнитных фаз, т.е., наряду с обладающими металлической проводимостью ФМ областями, в образцах имеются неферромагнитные<sup>1)</sup> области с активационной проводимостью. Согласно данным [3], объемная доля последних растет с повышением  $T$ . Тогда, при определенной температуре, высокопроводящие ФМ области могут выйти из соприкосновения друг с другом, и при дальнейшем нагревании проводимость все более будет определяться неферромагнитной матрицей. В терминах теории протекания (см., например, [10]), температура  $T_p$  соответствует порогу перколяции. Приложение внешнего магнитного поля  $H$  увеличивает (незначительно) объемную долю ФМ фазы, поэтому вблизи порога перколяции наблюдается и аномалия  $\rho_0/\rho_H$ . Вышесказанное объясняет п. 1.

Разделением магнитных фаз нетрудно объяснить и особенность 2. Согласно [9], разделение магнитных фаз связано с флуктуациями концентрации акцепторов. При этом хорошо известно (см., например, [11]), что в зависимости от термообработок в лантановых манганитах меняется содержание кислорода, причем сверхстехеометрический кислород является акцепторной примесью, создающей дополнительные дырки  $\text{Mn}^{4+}$ . Изменение при отжиге пространственного распределения акцепторов влияет, очевидно, и на пространственную неоднородность магнитного упорядочения и, следовательно, – на температуру  $T_p$ . Связь температуры  $T_p$  с режимом термообработки для лантановых манганитов замечена и исследована, например, в [12].

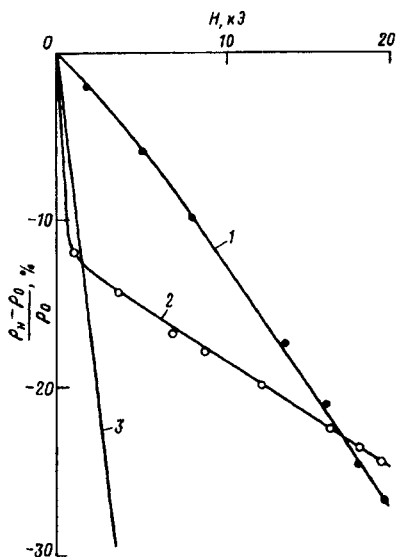
Указанное в п. 3 увеличение  $\rho_0/\rho_H$  при понижении  $T_p$  можно объяснить следующим образом. Температурная зависимость  $\rho$  в парамагнитной фазе хорошо описывается активационным соотношением  $\exp\{\Delta E/kT\}$ , где  $\Delta E$  – энергия активации, а  $k$  – постоянная Больцмана. При  $T \sim T_C \sim 300\text{ K}$  удельное сопротивление парамагнитной фазы  $\sim 10^{-2}$  Ом·см (см., например, [8]). Сопротивление ФМ металлической фазы имеет тот же порядок величины. Вот почему при  $T_p \sim T_C$  переход к металлической проводимости не сопровождается резким скачком  $\rho$ <sup>2)</sup>. Прямо противоположное имеет место в случае  $T_p \ll T_C$ , связанном (см. выше) с разделением магнитных фаз. Сопротивление неферромагнитных областей с активационной проводимостью экспоненциально возрастает с охлаждением от  $T_C$  к  $T_p$ , и перколяционный переход к металлической проводимости должен сопровождаться изменением  $\rho$  на несколько порядков. Очевидно, что примерно так же должна вырасти и величина МС вблизи  $T_p$ . Этот вывод качественно подтверждается экспериментальными данными, приведенными в [1]. Возможна и грубая количественная оценка. Согласно [1], при  $T_p = 110\text{ K}$  имеем  $\rho_0/\rho_H = 110$ , а (после термообработки) при  $T_p = 77\text{ K}$   $\rho_0/\rho_H = 1270$ . Из приведенной в [1] кривой  $\rho(T)$  имеем  $\Delta E \approx 0,07\text{ эВ}$ . Считая, что  $\rho_H$  примерно соответствует сопротивлению металлической фазы и имеет слабую температурную зависимость, а  $\rho_0$  в основном определяется неферромагнитной фазой, получаем, что отношение величин МС  $[\rho_0(T_1)/\rho_H(T_1)]/[\rho_0(T_2)/\rho_H(T_2)]$  при  $T_1 = 77\text{ K}$  и  $T_2 = 110\text{ K}$  должно

<sup>1)</sup> В данном случае скорее всего – парамагнитные.

<sup>2)</sup> При  $T_p \sim T_C$  наибольший вклад в МС вносит, по-видимому, рассеяние носителей на критических флуктуациях намагниченности.

быть порядка  $\rho_0(T_1)/\rho_0(T_2) \approx \exp\{\Delta E(1/kT_1 - 1/kT_2)\} \approx 25$ . В эксперименте [1] это соотношение имеет тот же порядок величины:  $\approx 12$ .

Реализация в образцах пространственно-неоднородного упорядочения объясняет и указанную в п.4 необычную зависимость  $M(T)$ . При  $T > T_p$  доля ФМ областей, дающих вклад в намагниченность, сокращается, и это приводит характерному "прогибу" кривой  $M(T)$ . Измерения [1] проводились в довольно высоком поле ( $H = 10$  кЭ), достаточном, по-видимому, для ориентации большинства ФМ кластеров, поэтому при  $T > T_p$  величина  $M(T)$  сохраняет высокое значение ( $\sim 0,5 M(0)$ ).



Изотермы МС в области  $T_p$ : 1 - монокристалла  $\text{La}_{0,9}\text{Na}_{0,1}\text{MnO}_3$  (290 К), 2 - керамики  $\text{La}_{0,9}\text{Na}_{0,1}\text{Mn}_{0,9}\text{Cu}_{0,1}\text{O}_3$  (77 К), 3 - эпитаксиальной пленки  $\text{La-Ca-Mn-O}$  (77 К)

Вероятная причина отсутствия в сильных полях высоких значений МС на исследованных нами в керамиках  $\text{La}_{0,9}\text{Na}_{0,1}\text{Mn}_{1-x}\text{Me}_x\text{O}_3$ , обладающих особенностями 1 ÷ 4, состоит в большом вкладе в величину  $\rho$  границ между зернами. Последний не зависит от магнитного поля и, в случае сильного падения  $\rho$  при приложении  $H$ , величина  $\rho_0/\rho_H$  оказывается ограниченной. Определяющую роль межзеренных границ в величине МС предполагают сами авторы [1]. Ими же обосновывается предположение, что в наблюдаемом эффекте гигантского МС размерные эффекты не играют сколько-нибудь существенной роли. Вкладом в сопротивление межзеренных границ можно объяснить отличие изотерм магнитосопротивления в области  $T_p$ , полученных нами на керамиках с  $T_p \ll T_C$  и монокристаллах с  $T_p \approx T_C$  (типичные кривые приведены на рисунке). Видно, что если для монокристаллов зависимость  $\Delta\rho(H)$  близка к линейной, то для керамик при  $H > 1$  кЭ изотерма испытывает излом, обнаруживая как бы тенденцию к "насыщению". Обращает на себя внимание значительно более высокая чувствительность МС к магнитному полю в области малых  $H$ , наблюдаемая на керамике. Для удобства сопоставления на том же рисунке приведен участок изотермы МС для пленки  $\text{La-Ca-Mn-O}$ , построенный по данным [1]. Видно, что представляющая наибольший интерес для приложений величина МС в области малых полей на упомянутых керамиках даже несколько выше "рекордных" показателей, приведенных в [1].

Подытоживая сказанное, можно с высокой степенью достоверности утверждать, что аномалия МС вблизи  $T_p \ll T_C$  связана с порогом перколяции для ФМ областей, объемная доля которых падает с ростом  $T$ . В этом случае пик МС должен быть тем выше, чем больше разница между  $T_C$  и  $T_p$ . Есть все основания предполагать, что высокие величины МС в сильных ( $\sim 60$  кЭ) полях будут обнаружены на широком классе веществ с  $T_p \ll T_C$ , в частности, – на  $\text{La}_{0,9}\text{Na}_{0,1}\text{Mn}_{1-x}\text{Me}_x\text{O}_3$  ( $\text{Me}=\text{Re}, \text{Cu}, \text{Co}$ ), если таковые будут получены в виде монокристаллов или эпитаксиальных пленок. При этом уже измеренные нами величины МС в слабых ( $< 1$  кЭ) полях превосходят значения, приведенные в [1].

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 94-02-04713-а).

- 
1. M.Mc.Cormack, S.Jin, T.H.Tiefel et al., *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3045 (1994).
  2. М.К.Губкин, Т.М.Перекалина, А.В.Быков, В.А.Чубаренко, *ФТТ* **35**, 1443 (1993).
  3. М.К.Губкин, А.В.Залесский, В.Г.Кривенко и др., *Письма в ЖЭТФ* **60**, 56 (1994).
  4. М.К.Губкин, Т.М.Перекалина, *Кристаллография* (в печати).
  5. М.К.Губкин, Т.М.Перекалина, *Кристаллография* (в печати).
  6. C.Zener, *Phys. Rev.* **82**, 403 (1951).
  7. K.Kubo and Ohata, *J. Phys. Soc. Japan* **33**, 21 (1972).
  8. С.Крупичка. *Физика ферритов и родственных им магнитных окислов*, М.: "Мир", 1976. (S.Kruoicka. *Physic der ferrite und der verwandten magnetischen oxide*. Prag. 1973).
  9. Э.Л.Нагасв. *Магнетики со сложными обменными взаимодействиями*, М.: "Наука" 1988.
  10. Дж.Займан. *Модели беспорядка*, М.: "Мир" 1982 (J.M.Ziman. *Models of disorder*. London-N.Y.-Melbourn. 1979).
  11. G.H.Jonker and G.Van Santen, *Physica* **16**, 337 (1950).
  12. Т.М.Перекалина, А.Я.Шапиро, И.Э.Липиньски, С.А.Черкезян, *ФТТ* **31**, 681 (1991).