

АНОМАЛИИ МАГНИТОСТРИКЦИИ И ТЕПЛООВОГО РАСШИРЕНИЯ В РАЙОНЕ ТОЧКИ КЮРИ СОЕДИНЕНИЯ $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ СО СТРУКТУРОЙ ПЕРОВСКИТА

Л.И.Королева¹⁾, Р.В.Демин, А.М.Балбашов*

*Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия*

**Московский энергетический институт
111250 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 11 февраля 1997 г.

Обнаружено, что в монокристалле $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ со структурой перовскита объемная часть магнитострикции ω в районе температуры Кюри T_c отрицательна и зависимость $|\omega|$ от температуры имеет максимум вблизи T_c . Величина $|\omega|$ в максимуме резко возрастает с увеличением магнитного поля. Коэффициент теплового расширения в районе T_c возрастает с увеличением температуры много быстрее, чем по линейному закону. Парамагнитная температура Кюри, определенная из закона Кюри – Вейсса, которому подчиняется парамагнитная восприимчивость этого кристалла, оказалась ниже T_c . Указанные аномалии, а также переход металл – полупроводник в районе T_c , характерный для этого материала, объяснены существованием в нем магнитно-двухфазного состояния, состоящего из проводящей ферромагнитной матрицы, в которой расположены антиферромагнитные изолирующие микрорегионы, занимающие не более 5% объема образца.

PACS: 75.50.Pp

В настоящее время интенсивно исследуются соединения со структурой перовскита $\text{Re}_{1-x}\text{Me}_x\text{MnO}_3$, где Re – трехвалентные ионы La, Pr, Y, Nd и других редкоземельных элементов или их смесь и Me – двухвалентные ионы Sr, Ca и Ba [1]. Интерес к этим материалам вызван гигантским магнитосопротивлением (ГМС), наблюдавшимся в них при комнатной температуре при определенном уровне легирования. Между тем, природа ГМС в них не ясна в настоящее время. Делались попытки связать ГМС, наблюдавшееся в них, с двойным обменом Зинера, с поляронными эффектами, вызванными сильным электрон-фононным взаимодействием, происходящим от эффекта Яна – Теллера, и с зарядовым упорядочением. Однако как показали расчеты, проведенные в [2,3], один двойной обмен Зинера не в состоянии объяснить наблюдавшиеся экспериментальные факты, например такие, как большие величины удельного электросопротивления ρ выше температуры Кюри T_c и скачок ρ в районе T_c . Кроме того, он предсказывает слабую зависимость ρ от уровня легирования и отличные от наблюдавшихся зависимости ρ от магнитного поля H и температуры T ниже T_c [2]. Кроме того, двойной обмен Зинера предсказывает только металлическую ферромагнитную (ФМ) фазу при низких температурах, тогда как в составах с $0.1 \leq x \leq 0.16$ (Re=La) низкотемпературная ФМ фаза – полупроводниковая. Авторы работ [3,4] предложили для объяснения аномалий ρ и ГМС в этих соединениях объединить двойной обмен Зинера и динамический эффект Яна – Теллера. Таким путем они объяснили переход металл – полупроводник в районе T_c переходом от поляронного типа проводимости выше T_c к перескоковому ниже T_c . Авторы работ [5,6] подобным

¹⁾ e-mail: koroleva@rem.phys.msu.su

образом пытались объяснить данные нейтронной дифракции для соединений $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0.1$ и 0.15). Однако это предположение не в состоянии объяснить тот факт, что температуры перехода металл-полупроводник и максимума ГМС очень близки к точке Кюри.

В настоящей работе предлагается другой механизм для объяснения особенностей в районе T_c электросопротивления, ГМС, магнитострикции и теплового расширения этих материалов, а именно наличие магнитно-двухфазного состояния, характерного для магнитных полупроводников [1].

В данной работе исследованы намагниченность, парамагнитная восприимчивость χ , магнитострикция λ и тепловое расширение $\Delta l/l$ монокристалла $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ в области температур от -80 до 440 К. Монокристалл был выращен методом бестигельной зонной плавки и имел ромбоэдрическую структуру, пространственная группа $R\bar{3}c$, постоянные решетки $a = 5.511 \pm 0.001 \text{ \AA}$ и $c = 13.362 \pm 0.002 \text{ \AA}$ при 300 К. Измерения намагниченности, предпринятые с помощью вибрационного магнитометра, показали, что намагниченность достигает насыщения уже при $H = 2 \text{ кЭ}$ как в легком, так и в трудном направлениях намагничивания. Температура Кюри, определенная с помощью метода термодинамических коэффициентов Белова - Аррота, оказалась равной 371 К, что практически совпадает с литературными данными [7]. Температурная зависимость парамагнитной восприимчивости, измеренной весовым методом, подчиняется закону Кюри - Вейсса $\chi = C/(T - \Theta)$ с парамагнитной точкой Кюри $\Theta = 364$ К.

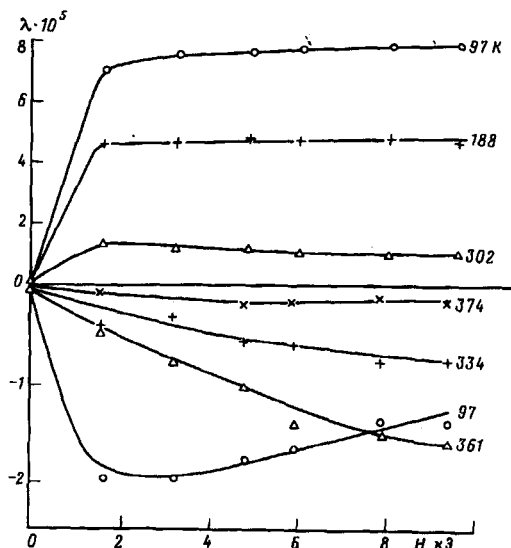


Рис.1. Полевая зависимость поперечной ($\lambda < 0$) и продольной ($\lambda > 0$) магнитострикции λ при различных температурах. Температуры (в Кельвинах) указаны около кривых

Магнитострикция и тепловое расширение измерялись с помощью тензометрических датчиков, имеющих сопротивление $92.30 \pm 0.01 \text{ Ом}$ и коэффициент тензочувствительности 2.26 . Один датчик наклеивался на плоскую поверхность образца, параллельную направлению роста кристалла, другой - на кварц. При измерениях датчики на образце и кварце были расположены одинаково по отношению к направлению магнитного поля. Точность измерений $\Delta l/l$ составляла $4 \cdot 10^{-6}$. На рис.1 приводятся изотермы продольной (λ_{\parallel}) и поперечной (λ_{\perp}) магнитострикции для некоторых температур. Из экспериментальных кри-

вых $\lambda_{\parallel}(H)$ и $\lambda_{\perp}(H)$ были построены изотермы анизотропной магнитострикции $\lambda_t = \lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp}$ и объемной магнитострикции $\omega = \lambda_{\parallel} + 2\lambda_{\perp}$. Их температурная зависимость в поле 9 кЭ представлена на рис.2. Как видно из рис.2, анизотропная часть магнитострикции плавно спадает к нулю в районе T_c . Кривые $\lambda_t(T)$ в полях выше 2 кЭ практически совпадают с приведенной на рис.2 кривой $\lambda_t(T)$. Обращает на себя внимание довольно большая величина λ_t в области низких температур: так при 100 К $\lambda_t \cong 10^{-4}$. Как видно из рис.2, объемная магнитострикция положительна в области температур ниже 280 К, однако при более высоких температурах она становится отрицательной и ее абсолютная величина проходит через максимум в районе T_c ; при дальнейшем повышении температуры $|\omega|$ быстро уменьшается, приближаясь к нулю. На вставке к рис.2 показана зависимость $\omega(T)$ в районе T_c в разных магнитных полях, на которой видно, что $|\omega|_{max}$ увеличивается с ростом H от 3 до 9 кЭ приблизительно в 2 раза. На рис.3 показана температурная зависимость коэффициента теплового расширения $\Delta l/l$. Известно, что для диа- и парамагнетиков эта зависимость близка к линейной. Как видно из рис.3, начиная с 320 К, коэффициент теплового расширения возрастает с повышением температуры значительно быстрее, чем по линейному закону. По данным работ [7,8] в указанном составе наблюдалась проводимость металлического типа и резкое возрастание ρ в районе T_c .

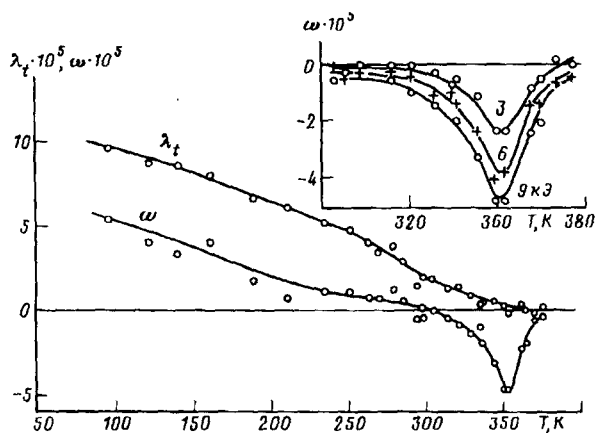


Рис.2. Температурная зависимость анизотропной магнитострикции λ_t и объемной магнитострикции ω в поле 9 кЭ. На вставке: температурная зависимость ω в районе точки Кюри в различных магнитных полях (поле в кЭ указано около кривых)

Похожее поведение магнитострикции и теплового расширения наблюдали авторы [9] на керамике $\text{La}_{0.6}\text{Y}_{0.07}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$. По их мнению, аномалии теплового расширения и магнитострикции связаны с образованием сразу выше T_c поляронов малого радиуса. Как говорилось в начале статьи, указанная гипотеза не может объяснить того, почему образование поляронов происходит вблизи T_c .

Описанные выше аномалии объемной магнитострикции, теплового расширения и электросопротивления можно объяснить наличием электронного разделения фаз в кристалле [1]. Известно, что в магнитных полупроводниках энергия электронов проводимости минимальна при полном ФМ упорядочении в кристалле. Однако в невырожденном антиферромагнитном (АФМ) полупроводнике концентрация электронов мала, чтобы изменить состояние кристалла в целом. Поэтому электроны создают из-за выигрыша в энергии $s-d$ -обмена в АФМ полупроводнике ФМ микрообласти и стабилизируют их своей автоло-

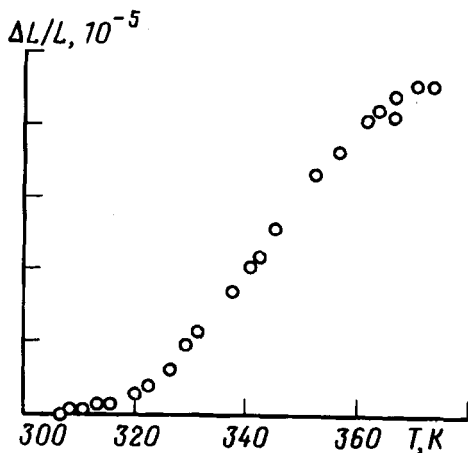


Рис.3. Температурная зависимость коэффициента теплового расширения $\Delta l/l$

кализацией в них. Эти микрообласти получили различные названия у разных авторов, которые их исследовали: ферроны [1], гигантские квазимолекулы [10], магнитные поляроны и др. С увеличением концентрации примесей размеры таких ФМ капель в изолирующей АФМ матрице увеличиваются, и при достаточно высоком уровне легирования происходит их перколяция. При этом образуется другое магнито-двухфазное состояние: в проводящей ФМ матрице располагаются изолирующие АФМ микрообласти. Яназе и Касуя показали, что в гигантской квазимолекуле параметры решетки уменьшаются [10], поскольку это приводит к экранированию нового распределения заряда и понижению ее энергии путем увеличения перекрытия облаков зарядов центрального иона и его ближайших соседей.

Соединение $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ – это сильно легированный АФМ полупроводник LaMnO_3 , в котором уже произошло слияние ФМ капель и образовалась проводящая ФМ фаза, внутри которой располагаются изолирующие АФМ микрообласти. В точке Кюри указанное магнито-двухфазное состояние термически разрушается, следствием чего является избыточное термальное расширение образца, которое и наблюдалось в данной работе (рис.3). Однако наложение внешнего магнитного поля при $T \geq T_c$ увеличивает степень ФМ порядка вблизи примесей сильнее, чем в среднем по кристаллу, так как его действие усиливается $s-d$ -обменом. То есть магнитное поле создает разрушенное нагреванием магнито-двухфазное состояние и свойственное ему сжатие решетки. Таким путем можно объяснить резкое увеличение отрицательной объемной магнетострикции в районе T_c (рис.2). Однако указанный выше процесс создания магнито-двухфазного состояния полем имеет место в ограниченном интервале температур немного выше T_c . Поэтому кривые $|\omega|(T)$ проходят через максимум и при дальнейшем повышении температуры быстро спадают.

Магнито-двухфазное состояние подтверждается тем фактом, что спонтанная намагниченность при 4.2 К рассматриваемого состава по данным [7,8] меньше ожидаемой при полном ФМ упорядочении, а именно составляет 95% от последней. В пользу наличия АФМ микрообластей в ФМ матрице свидетельствует и тот факт, что $T_c = 371$ К больше $\Theta = 364$ К. Обычно для ФМ наблюдается соотношение $T_c \leq \Theta$. Известно, что парамагнитная температура Кюри определяется суммой обменных взаимодействий, имеющих место в кри-

сталле. Вклад в Θ от АФМ микрообластей понижает величину Θ . В то же время температура Кюри T_c является температурой магнитного превращения одноосевой ФМ части кристалла (во всяком случае тогда, когда она занимает почти весь объем кристалла, что имеет место в данном случае) и поэтому $T_c > \Theta$.

Резкое возрастание ρ в районе T_c также характерно для рассмотренного выше магнитно-двухфазного состояния. Нагаевым показано [1], что для указанного вида магнитно-двухфазного состояния имеются два механизма, по которым примесно-магнитное взаимодействие влияет на сопротивление: рассеяние носителей заряда, уменьшающее их подвижность, и образование хвоста их зоны, состоящего из локализованных состояний. В [1] показано, что в районе T_c происходит резкое уменьшение подвижности носителей заряда и их частичная локализация в хвосте зоны.

Таким образом, с помощью магнитно-двухфазного состояния объясняется весь комплекс необычных свойств в районе T_c в этом материале: резкое возрастание коэффициента теплового расширения, максимум модуля отрицательной объемной магнитострикции, резкое возрастание удельного электросопротивления и тот факт, что $T_c > \Theta$.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований.

-
1. Э.Л.Нагаев, УФН 166, 833 (1996).
 2. A.J.Millis, P.B.Littlewood, and B.I.Shraiman, Phys. Rev. Lett. 74, 5144 (1995).
 3. A.J.Millis, B.I.Shraiman, and R.Mueller, Phys. Rev. Lett. 77, 175 (1996).
 4. A.J.Millis, Phys. Rev. B53, 8434 (1996).
 5. Y.Yamada, O.Hino, S.Nohdo, and R.Kanao, Phys. Rev. Lett. 77, 904 (1996).
 6. S.J.L.Billinge, R.J.DiFrancesco, G.H.Kwei et al., Phys. Rev. Lett. 77, 715 (1996).
 7. A.Urushibara, Y.Moritomo, T.Arima et al., Phys. Rev. B51, 14103 (1995).
 8. H.Y.Hwang, S.-W.Cheong, N.P.Ong, and B.Battlogg, Phys. Rev. Lett., 77, 2041 (1996).
 9. M.R.Ibarra, P.A.Algarabel, C.Marquina et al., Phys. Rev. Lett. 75, 3541 (1995).
 10. A.Yanase and T.Kasuya, J. Phys. Soc. Jpn. 25, 1025 (1968).