

Взаимосвязь магнитных и структурных фаз в монокристалле манганита $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0.175$)

Х. Г. Богданова, А. Р. Булатов, В. А. Голенищев-Кутузов⁺, А. В. Капралов⁺, В. Е. Леонтьев, А. А. Потапов⁺

Казанский физико-технический институт Казанского научного центра РАН, 420029 Казань, Россия¹⁾

⁺ *Казанский государственный энергетический университет, 420066 Казань, Россия*

Поступила в редакцию 12 июля 2004 г.

В результате изучения зависимостей скоростей и затухания поперечных ультразвуковых волн на частоте 770 МГц, электропроводности от температуры и приложенного магнитного поля обнаружены температурный и магнитный гистерезисы упругих параметров и электросопротивления, обусловленные влиянием намагниченности образца на структурный фазовый переход. Установлено влияние двухфазности кристаллической структуры на процесс намагничивания и поведение удельного электросопротивления вблизи концентрационного пересечения магнитного и структурного фазовых переходов.

PACS: 62.65.+k, 75.50.Pr

В манганитах лантана $\text{La}_{1-x}\text{R}_x\text{MnO}_3$ ($\text{R} = \text{Ca}, \text{Ba}, \text{Sr}$) сильное взаимодействие электронной, магнитной и решеточной подсистем создает многообразие физических свойств: структурные и магнитные фазовые переходы, переходы диэлектрик – металл, зависящие от концентрации R-ионов и температуры [1].

Было установлено, что обнаруженное в них колоссальное магнетосопротивление (КМС) имеет место при переходе от состояния парамагнитного изолятора в состояние ферромагнитного металла в приложенном магнитном поле [2]. Однако природа КМС пока неясна, поскольку предложенная модель магнитного двухфазного состояния [3] не объясняет всего многообразия экспериментальных фактов. Более того, становится все более очевидным, что природа КМС не описывается одним механизмом и может зависеть в определенных составах манганитов не только от магнитных, но и от диэлектрических фаз.

Вопрос о влиянии намагниченности на характер структурных фазовых переходов и КМС обсуждается практически с самого начала обнаружения КМС [1, 2]. Однако менее изученным является влияние самих структурных фаз на намагниченность и КМС, хотя определенные усилия в этом направлении в последнее время предпринимались [4, 5].

Эти обстоятельства побудили нас провести исследование взаимосвязи магнитного и структурного упорядочений и их роли в эффекте КМС с помощью высокочастотных ультразвуковых (УЗ) волн и магниторезистивных измерений. Использование высокочастотного ультразвука на частоте $f = 770$ МГц с длиной волны $\lambda \cong 5$ мкм позволяет более точно

определить фазовые и пространственные неоднородности, обусловленные флуктуациями структуры или намагниченности. Кроме того, скорость и затухание УЗ волн весьма чувствительны к фазовым структурным или магнитным превращениям. Исследования выполнялись на монокристалле $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0.175$), поскольку ранее предполагалось [1, 6], что пересечение температур структурного и магнитного фазовых переходов в интервале концентраций $0.17 \leq x \leq 0.18$ происходит в достаточно размытом температурном диапазоне $T = (180-280)$ К. Однако для $x = 0.175$ температура структурного перехода нуждалась в уточнении. Кроме того, в образце с $x = 0.175$ наблюдалось возникновение микроскопических структурных неоднородностей [7]. Поэтому следовало ожидать, что в таком образце наиболее сильно взаимное влияние магнитных и структурных упорядоченностей. Кроме того, в образце с $x = 0.175$ наблюдался наибольший эффект КМС из всех лантаностронциевых манганитов.

Образец, выращенный в группе А. М. Балбашова (МЭИ), имел форму параллелепипеда с размерами $5 \times 5 \times 8$ мм, торцы которого были плоскопараллельны с точностью до нескольких секунд; грани образца были перпендикулярны осям [100], [010], [001]. Ультразвуковые импульсы с длительностью $\tau_u = 0.5 \div 0.8$ мкс возбуждались и детектировались стержневыми пьезопреобразователями x -среза, изготовленными из ниобата лития. Скорость и затухание поперечных УЗ волн в зависимости от температуры $T = 150-350$ К и приложенного магнитного поля $H = 0-10$ кЭ измерялись по схеме пьезопреобразователь – образец – пьезопреобразователь. УЗ импульсы распространялись вдоль оси [100] в кубическом пред-

¹⁾ e-mail: acustica@dionis.kfti.knc.ru

ставлении. Удельное электросопротивление образца в зависимости от внешних воздействий (температуры и магнитного поля) определялось четырехзондовым методом.

Конечно, при использовании столь высоких акустических частот одной из причин возникновения каких-либо акустических аномалий может быть пространственная неоднородность химического состава образца. Однако проведенный в ИФМ УрО РАН рентгеновский микропробный анализ химической композиции для атомов La, Sr и Mn не выявил каких-либо неоднородностей в их распределении с точностью до 1 мкм. Подтверждением химической однородности образца является и узкая ширина кривых намагниченности и магнитной восприимчивости [8], поскольку любые пространственные неоднородности приводили бы к температурному уширению этих кривых. Так как длина акустической волны составляла ~ 5 мкм, то причиной обнаруженных акустических аномалий не могут быть неоднородности химического состава.

Итак, в результате изучения особенностей распространения поперечных ультразвуковых волн в образце с $x = 0.175$ были обнаружены резкие изменения в скорости и затухании в трех температурных интервалах $T = 297-307$ К, $T = 280-285$ К и $T = 200-230$ К (рис.1, 2). Акустические аномалии в окрестности 283 К имели безгистерезисный харак-

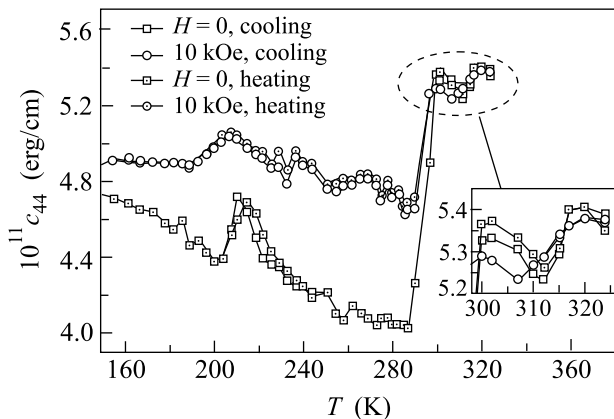


Рис.1. Температурная зависимость модуля упругости c_{44} в манганите $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ (на вставке приведен участок (295–325) К в увеличенном масштабе)

тер и вполне соответствовали фазовому переходу из парамагнитного в ферромагнитное состояние, что и подтверждается магнитными измерениями, выполненными на том же образце [8]. Изменения в скорости и затухании с центрами вблизи 305 К и 220 К имеют гистерезисный характер, что позволило отне-

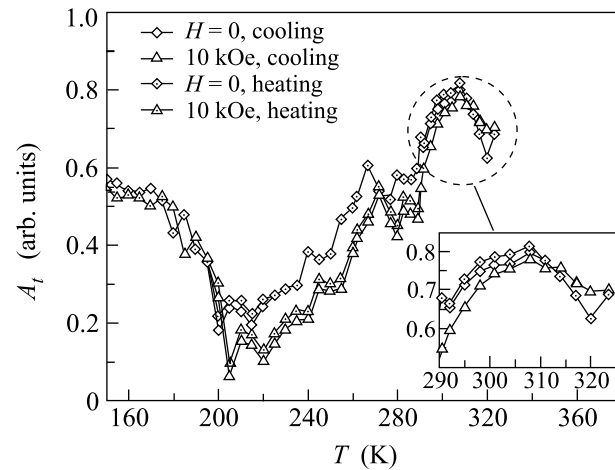


Рис.2. Температурная зависимость амплитуды поперечной моды ультразвуковых колебаний в манганите $\text{La}_{0.825}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$ (на вставке приведен участок (295–325) К в увеличенном масштабе)

сти их к фазовым переходам первого рода. Значительное увеличение затухания с понижением температуры в интервале $T = 200-300$ К, на наш взгляд, обусловлено рассеянием ультразвуковых волн на ранее обнаруженных микроскопических структурных неоднородностях [7], поскольку ниже 200 К с образованием однородной структуры, наоборот, возникает уменьшение затухания.

Начиная с температур $T = 310$ К и до $T = 150$ К, значения скоростей и затухания изменялись в приложенном магнитном поле. Наиболее сильные изменения упругих модулей (c_{44}) в магнитном поле возникли в интервале температур $T = 200-300$ К, причем эти изменения также имели гистерезисную форму. Такие магнитные изменения начинались уже в полях, значительно меньших 10 кЭ. Приложение магнитного поля также сдвигало максимумы изменения скорости и затухания вблизи 300 К в сторону меньших температур.

Начиная с $T = 305$ К, наблюдалось падение удельного электросопротивления в магнитных полях $H < 10$ кЭ (рис.3), носящее гистерезисный характер в интервале температур $T = 200-220$ К, причем в значениях КМС при поле в 10 кЭ существует два максимума при $T = 310$ и $T = 220$ К.

Таким образом, можно утверждать, что обнаруженные нами резкие изменения параметров акустических волн и электросопротивления в окрестности 305 и 220 К можно отнести к фазовым переходам первого рода и, более того, к переходам из ромбоэдрического состояния в ромбическое состояние, соответственно в парамагнитной и ферромагнитной фазах.

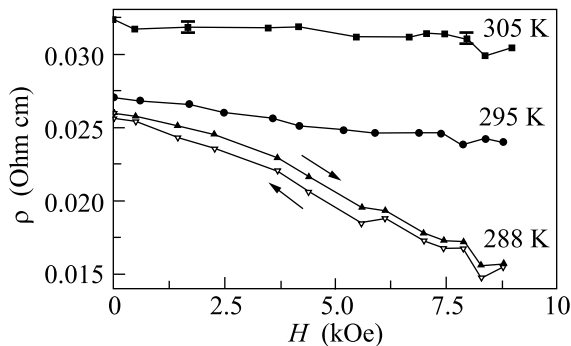


Рис.3. Зависимость удельного электросопротивления (ρ) от приложенного магнитного поля при трех значениях температуры: $T = 288$ К, 295 К и 305 К

На первый из них существенное влияние оказывает возникновение магнитного упорядочения. Как следует из графика роста T_c с повышением концентрации ионов Sr [1], графика температурной зависимости возрастания намагниченности для образца с $x = 0.175$ [9] и данных ЯМР [9], уже при температуре $T \sim 310$ К возникают локальные области с намагниченностью, превышающей среднюю намагниченность образца. Вследствие роста спонтанной намагниченности будет происходить обратный переход из орторомбической в ромбоэдрическую фазу, подобно тому, как это уже ранее предполагалось для образца с $x = 0.170$ в приложенном магнитном поле [1]. Необходимость приложения внешнего поля для образца с $x = 0.170$ заключалась в практическом отсутствии спонтанной намагниченности вблизи температуры структурного фазового перехода T_s . В нашем же случае такая намагниченность уже присутствует и внешнее поле только увеличивает общую намагниченность образца.

Поскольку разность упругих энергий ΔE между двумя структурами невелика (так для элементарной ячейки $\Delta E = \frac{1}{2}cK(\Delta V/V)^2$, где V – объем элементарной ячейки, c – модуль упругости, ΔV – изменение объема ячейки при структурном переходе, κ – объемный модуль упругости, $\kappa = \frac{1}{3}(c_{11} + 2c_{12})$), то при использовании известных данных по значению ΔV для данной композиции кристалла [10] $\Delta E/k_B$ приобретает значение ~ 5.5 К, где k_B – постоянная Больцмана. Как следует из рис.1, изменение модуля упругости c_{44} в окрестностях структурного фазового перехода не превышает (10–15)%, что примерно соответствует точности измерения разности энергий ΔE . При оценке ΔE использовалось усредненное значение c_{44} .

В то же время, изменение магнитной энергии для элементарной ячейки при намагниченности M и спине $3/2$ для ионов Mn^{3+} составляет $\Delta E_M/Mk_B \approx$

$6k_B/T$ [11]. Поскольку в парамагнитной фазе происходит неполное изменение ромбоэдрической структуры в ромбическую, то поля спонтанной намагниченности M достаточно для температурного сдвига на 3–5 К. Окончательное установление орторомбической структуры происходит при втором переходе, уже в ферромагнитной фазе в интервале температур $T = 200$ – 230 К. При приложении поля $H \leq 10$ кЭ возрастает степень ферромагнитного спинового упорядочения, что приводит к усилению возникшего при структурном переходе $R \rightarrow O$ возрастания скорости и уменьшению затухания поперечных акустических волн.

Вблизи пересечения структурного и магнитного фазовых переходов в парамагнитной фазе возникают микроскопические неоднородности, охарактеризованные нами как магнитоупругие домены [7]. Наличие таких доменов можно рассматривать как двухфазное магнитное и двухфазное структурное состояние образца, которые определяются температурой и приложенным магнитным полем. Здесь уместно провести аналогию с ферроэлектрическими релаксорами, которые также относятся к классу перовскитов. В них также смешанная композиция параэлектрической и сегнетоэлектрической фаз индуцирует сегнетоэлектрические кластеры, расположенные в параэлектрической фазе [12, 13]. Следовательно, состояние кристалла манганита с $x = 0.175$ в диапазоне $T = 200$ – 310 К можно рассматривать как характерное для неоднородных реструктурированных систем.

Образование микроскопических структурных неоднородностей в определенной степени влияет на характер намагниченности и особенно на температурный ход электропроводности и КМС. Возникновение упругих напряжений на границах доменов, как это уже теоретически предполагалось [14], будет препятствовать процессу монодоменизации образца и образованию однородного ферромагнитного состояния. Об этом свидетельствует возникновение магнитного гистерезиса в электросопротивлении при температуре двухфазного структурного состояния (рис.3).

Возникновение двухфазного структурного состояния $R-O$, характерного для лантан-стронциевого манганита с $x = 0.175$, приводит к увеличению электросопротивления вблизи $T=300$ - 310 К вследствие уменьшения транспорта носителей заряда между ферромагнитными доменами. Это возрастание сопротивления является одной из причин увеличения размаха изменения сопротивления в приложенном магнитном поле (рис.3). Подтверждением этому является растянутое по температуре уменьшение электросопротивления [8] и два пика в температур-

ном характере КМС, а также и небольшой скачок в изменении T_c вблизи $x = 0.175$ [2].

Таким образом, можно полагать, что для образца с концентрацией Sr, равной 0.175 во всем температурном диапазоне 220–300 К сосуществуют два структурных состояния: ромбоэдрическое и ромбическое. Причем ромбоэдрическое состояние удерживается магнитным упорядочением образца. В свою очередь, наличие двухфазного структурного состояния приводит к замедлению роста ферромагнитной упорядоченности образца.

1. A. Asamitsu, Y. Moritomo, R. Kumai et al., Phys. Rev. **B54**, 1716 (1996).
2. A. Urushibara, Y. Moritomo, T. Arima et al., Phys. Rev. **B51**, 14103 (1995).
3. E. Dagotto, Phys. Rep. **1**, 344 (2001).
4. J. Mira, J. Rivas, A. Moreno-Gobbi et al., Phys. Rev. **B68**, 092404 (2003).
5. F. Kordero, C. Castellano, R. Cantelli et al., Phys. Rev. **B68**, 012403 (2002).
6. X. Г. Богданова, А. Р. Булатов, В. А. Голенищев-Кутузов и др., Акустический журнал **5**, 596 (2002).
7. X. Г. Богданова, А. Р. Булатов, В. А. Голенищев-Кутузов и др., Письма в ЖЭТФ **78**, 753 (2003).
8. X. Г. Богданова, А. Р. Булатов, В. А. Голенищев-Кутузов и др., ФТТ **45**, 284 (2003).
9. Н. А. Виглин, С. В. Наумов, Я. М. Муковский, ФТТ **43**, 1855 (2001).
10. R. Dabrowski, X. Xiong, Z. Bukowski et al., Phys. Rev. **B60**, 7006 (1999).
11. Дж. Такер, В. Ремптон, *Гиперзвук в физике твердого тела*, М: Мир, 1975.
12. D. Viehland, S. J. Jang, L. E. Cross et al., J. Appl. Phys. **68**, 2916 (1990).
13. Z. G. Lu and G. Calvarin, Phys. Rev. **B51**, 2694 (1995).
14. D. I. Khomskii and K. I. Kugel, Phys. Rev. **B67**, 134401 (2003).