

Перколяционная природа перехода металл – диэлектрик в $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$

Р. В. Поморцев¹⁾, А. В. Королев, В. Е. Архипов, В. П. Дякина

Институт физики металлов Уральского отд. РАН, 620219 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 30 мая 2001 г.

На монокристалле соединения $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$ исследованы температурные зависимости электросопротивления, намагниченности и дифференциальной магнитной восприимчивости в окрестности перехода металл – диэлектрик и магнитного перехода ферромагнетик – парамагнетик. Независимо друг от друга экспериментально определены критические температуры для обоих переходов. Показано, что с точностью до 2–3% эти температуры совпадают. Обсуждение результатов проведено в рамках теории перколяции.

PACS: 64.60.Ak, 71.30.+h, 75.30.-m, 75.50.-y

Исследование природы перехода металл – диэлектрик в легированных манганитах лантана $\text{La}_{1-x}\text{B}_x\text{MnO}_3$, в которых трехвалентные ионы La^{3+} частично заменена на двухвалентные ионы металла В, в частности, на Sr^{2+} , Ca^{2+} или Ba^{2+} , несмотря на интенсивное изучение этих веществ [1–3], остается весьма актуальной задачей. К настоящему времени хорошо известно, что в легированных манганитах в области концентраций $0.16 < x < 0.4$ с ростом температуры наблюдается фазовый переход из низкотемпературной ферромагнитной фазы с металлической проводимостью в высокотемпературную парамагнитную фазу, обладающую диэлектрическими свойствами с энергией активации ΔE . Такое поведение манганитов является очень необычным и находит свое объяснение только в общих чертах. В частности, в работах [4, 5] появление энергии активации авторы связывают с существованием в парамагнитной фазе больших поляронных флуктуаций. В ферромагнитном же состоянии эти флуктуации обладают сильным затуханием. Но главная интрига заключается в том, что в манганитах лантана, по крайней мере в области перехода металл – диэлектрик, однородное состояние является неустойчивым относительно фазового расслоения на области с металлическими и диэлектрическими свойствами [6–8]. В этом случае если не полное объяснение, то, по-видимому, понимание многих экспериментальных фактов становится более естественным, если использовать методы, развитые для теории неупорядоченных сред. Так, например, в работах [9, 10] было высказано предположение, что в легированных манганитах лантана переход из металлического состояния в диэлектрическое как с изменением концентрации, так и с изменением

температуры имеет перколяционный характер. Однако экспериментальное подтверждение эта гипотеза получила еще недостаточно полно. Нам известны лишь две работы [11, 12], в которых перколяционная модель получила определенное подтверждение.

В настоящей работе исследованы температурные зависимости электросопротивления, намагниченности и дифференциальной магнитной восприимчивости в области температур 200–422 К в соединении $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$. Температура Кюри $T_C = 253.4$ К определена из анализа температурной зависимости дифференциальной магнитной восприимчивости, а для нахождения температуры перколяционного перехода T_p предложена независимая процедура, которая позволила определить $T_p = 248.2$ К. Полученные таким образом T_p и T_C совпадают с точностью до 2–3%.

Все измерения в данной работе выполнены на образцах, которые ранее были использованы в экспериментах, описанных в [13]. Исследуемые образцы были вырезаны из монокристалла $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$, выращенного методом плавающей зоны с радиационным разогревом зоны ксеноновой лампой. Электросопротивление измерялось на постоянном токе четырехконтактным методом. Магнитные измерения проводились на СКВИД-магнитометре MPMS-5XL в центре магнитометрии Института физики металлов. Измерения действительной χ' и мнимой χ'' составляющих динамической магнитной восприимчивости выполнены при амплитудном значении магнитного поля $H_{\sim} = 4 \text{ Э}$, меняющегося с частотой $f = 80 \text{ Гц}$.

На рис.1 представлена температурная зависимость сопротивления в интервале температур 200–422 К. Отчетливо видно, что при $T_{\text{max}}^{\rho} \approx 267 \text{ К}$ сопротивление имеет максимум. Левее максимума

¹⁾e-mail: pomor@imp.uran.ru

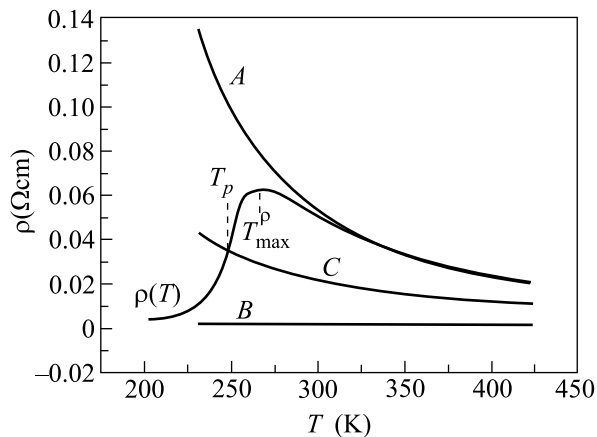


Рис.1. Температурная зависимость сопротивления монокристалла $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$ в области перехода металл – диэлектрик – $\rho(T)$. Кривая A – температурная зависимость сопротивления диэлектрической фазы, B – величина сопротивления образца в металлическом состоянии при $T < 100$ К, C – вспомогательная кривая, определенная формулой (4)

с понижением температуры сопротивление резко уменьшается и при $T < 100$ К достигает минимального значения, равного $\rho_M = 0.0019 \text{ Ом} \cdot \text{см}$. В области температур $T > T_{\text{max}}^p$ с ростом температуры сопротивление убывает. При этом убывание имеет экспоненциальный характер:

$$\rho_D(T) = \rho_0 \exp(\Delta E/kT), \quad (1)$$

где $\Delta E = 81.7 \text{ эВ}$, а $\rho_0 = 0.00222 \text{ Ом} \cdot \text{см}$ (кривая A). Определение этих величин было произведено во время процедуры линейной интерполяции $\ln \rho_D(T)$ в зависимости от T^{-1} в интервале температур $300 \leq T \leq 422$ К. Следует отметить, что найденная таким образом энергия активации $\Delta E = 81.7 \text{ мэВ}$ значительно меньше характерных для манганитов ширины зон и величин щелей в энергетическом спектре, которые по разным оценкам $\sim 1 \text{ эВ}$ [2]. В других системах ситуация схожая. Например, в образцах $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ такого же состава ($x = 0.2$) энергия активации в диэлектрическом состоянии при высоких температурах равна 160 мэВ .

В простом перколяционном подходе, который по существу является макроскопическим, конкретные детали механизма проводимости различных фаз отсутствуют. Достаточно знать лишь величины проводимостей металлической и диэлектрической фаз, их удельные концентрации p и $(1-p)$, соответственно, а также критическую концентрацию металлической фазы p_k , при которой формируется бесконечный проводящий кластер и сопротивление образца резко падает. В нашем случае мы наблюдаем резкое изме-

нение сопротивления не от концентрации, а в зависимости от температуры. Поэтому вместо критической концентрации достаточно определить критическую температуру T_p возникновения такого кластера. Для этого воспользуемся известным соотношением из теории перколяции, которое связывает величину проводимости образца при $p = p_k$ с величинами проводимостей каждой фазы:

$$\sigma(p = p_k) = [\sigma_M]^u [\sigma_D]^{1-u}, \quad (2)$$

где $u = s/(s+t)$, а s и t – критические индексы [14, 15].

Воспользовавшись этим равенством, легко получить соответствующее выражение для величины сопротивления в критической точке при $T = T_p$:

$$\rho(T_p) = [\rho_M]^u [\rho_D(T_p)]^{1-u}, \quad (3)$$

где мы учли, что сопротивление образца в диэлектрическом состоянии в нашем случае зависит от температуры, а сопротивление образца в металлическом состоянии постоянно (кривые A и B на рис.1). Фактически выражение (3) представляет собой уравнение для определения T_p .

Чтобы найти T_p , воспользуемся следующим построением. Определим вспомогательную функцию $f(T)$ следующим образом:

$$f(T) = [\rho_M]^u [\rho_0]^{1-u} \exp[(1-u)\Delta E/kT] \quad (4)$$

и построим ее график в зависимости от T (кривая C на рис.1). Точка пересечения графика $f(T)$ с графиком $\rho(T)$ (экспериментальная кривая) определит искомую критическую температуру T_p . При построении были использованы следующие значения для величин, входящих в (4): $\rho_M = 0.0019 \text{ Ом} \cdot \text{см}$, $\rho_0 = 0.00222 \text{ Ом} \cdot \text{см}$, $\Delta E = 81.7 \text{ мэВ}$, а для критических индексов были использованы значения $s = 0.7$ и $t = 2.1$ [14]. При этих значениях s и t критическая температура оказалась равной $T_p = 248.2$ К, что почти на 19 К ниже температуры T_{max}^p .

Как уже отмечалось, исследуемые образцы обладают ферромагнитными свойствами. Из рис.2а видно, что восприимчивость χ' , измеренная при нулевом статическом поле H в зависимости от температуры, характеризуется хорошо выраженной “кик”-точкой, которой соответствует критическая температура T_K . Отметим, что при всех температурах действительная часть динамической восприимчивости χ' на два и более порядка выше мнимой компоненты χ'' ($\chi' \gg \chi''$). Поэтому восприимчивость χ' в рассматриваемых экспериментах имеет смысл дифференциальной обратной магнитной восприимчивости. Если рассматривать этот эксперимент в рамках хорошо известных представлений о переходе ферромагнитного образца в парамагнитное состояние [16], то совершенно оче-

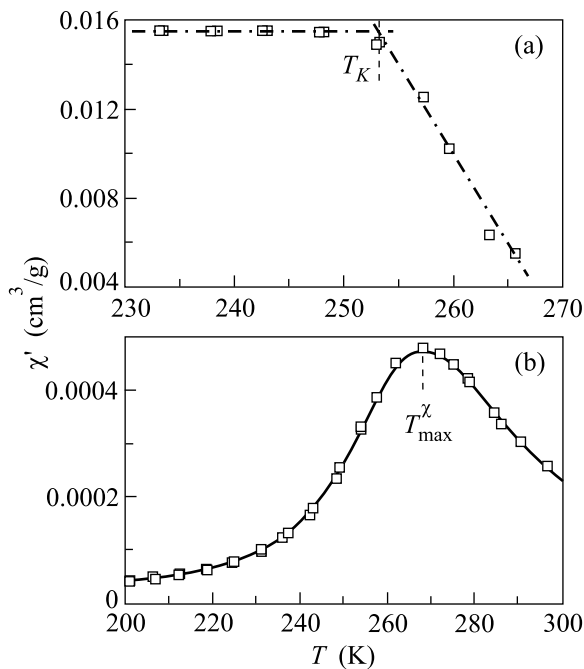


Рис.2. Фрагменты температурной зависимости магнитной восприимчивости χ' для монокристалла $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$ при $H = 0$ (a) и 10^4 Э (b)

видно, что $T_K < T_C$. Отметим также, что численные значения температуры T_K меняются на несколько градусов при изменении направления магнитного поля в образце. Анализ этой ситуации позволяет сделать вывод, что кинк-метод дает возможность оценить значение величины T_C лишь в первом приближении. При этом остаются сомнения относительно погрешности в определении T_C , которые, как нам представляется, обусловлены следующим важным обстоятельством. В рассматриваемом эксперименте в точке T_K мы имеем дело не с фазовым переходом второго рода типа порядок – беспорядок, а с принципиально другим переходом – переходом многодоменного образца в однодоменное состояние. По сути дела этот переход является переходом по полю H , аналогично тому как происходит намагничивание образца вблизи точки перегиба изотермы $M(H)$ при выходе на насыщение. Именно это обстоятельство создает трудности и неопределенность в трактовке и обработке результатов таких экспериментов. Несложно показать, что аналогичные измерения на образце, находящемся в однодоменном состоянии, могут полностью снять неопределенность при определении величины T_C .

Чтобы перевести исследуемый образец в однодоменное состояние, необходимо поместить его в достаточно сильное статическое магнитное поле $H > NH_S$, где N – размагничивающий фактор образца,

а M_S – спонтанная намагниченность. Для типичного ферромагнитного образца можно показать, что в однодоменном состоянии зависимость χ' от температуры при $H = \text{const}$ будет иметь единственный максимум при $T = T_{\text{max}}^\chi$, причем $T_{\text{max}}^\chi > T_C$. Действительно, как видно из рис.2b, полученная зависимость $\chi'(T)$ при $H = \text{const}$ имеет указанный максимум. Отметим, что успешная постановка такого эксперимента обеспечена исключительно использованием СКВИД-магнитометра. Для нахождения величины T_C мы провели измерения $\chi'(T)$ при различных значениях магнитного поля и построили зависимость T_{max}^χ от H (рис.3). Найденная зависимость $T_{\text{max}}^\chi(H)$ позволяет определить величину T_C как точку пересечения указанной кривой с осью ординат.

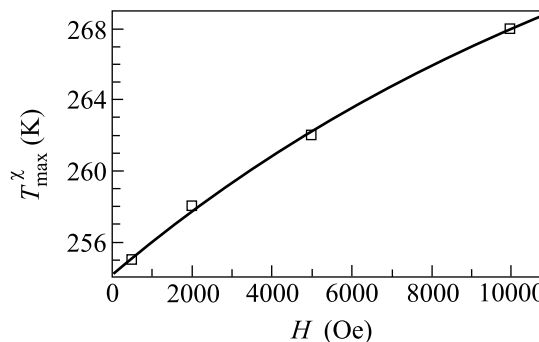


Рис.3. Зависимость температуры максимума T_{max}^χ от напряженности статического магнитного поля H

В результате обработки экспериментальных данных мы нашли, что максимальная величина T_K составляет $T_K = 252.5$ К, а величина $T_{\text{max}}^\chi(H = 0) = 254.2$ К. Таким образом, можно оценить значение температуры Кюри $T_C = 253.4$ К как среднее между этими двумя величинами T_K и $T_{\text{max}}^\chi(H = 0)$ с разумной погрешностью ± 1 К.

Перколяционная картина поведения сопротивления в зависимости от температуры не будет полной, если неизвестно критическое поведение сопротивления от $(T_p - T)$. Совершенно очевидно, что в нашем случае критический индекс можно попытаться определить только в области температур ниже T_p , ибо при $T > T_p$ критическое поведение $\rho(T - T_p)$ замаскировано сильной температурной зависимостью диэлектрической фазы. По этой причине ограничимся исключительно областью температур $T < T_p$ и построим график зависимости сопротивления от приведенной температуры $(T_p - T)/T_p$ (рис.4). Если бы сопротивление диэлектрической фазы было бы бесконечно большим, то критическое поведение $\rho(T_p - T)$ распространялось бы вплоть до $T \rightarrow T_p$. В нашем слу-

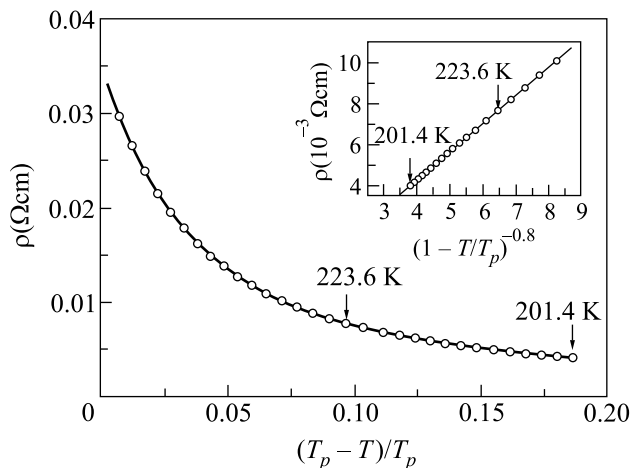


Рис.4. Экспериментальная зависимость сопротивления $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$ при $201.4 \text{ K} \leq T \leq 248 \text{ K}$ от приведенной температуры $(T_p - T)/T_p$. На вставке – сопротивление на участке $201.4\text{--}223.6 \text{ K}$ в зависимости от $(1 - T/T_p)^{-0.8}$

чае сопротивление диэлектрической фазы имеет конечное значение, поэтому в окрестности T_p (на рис.4 в окрестности нуля) существует область кроссовера [16], рассмотрение которой выходит за рамки данной работы. В классической теории перколяции критическое поведение возникает в области, ограниченной условием $\varepsilon^{s+t}h > 1$, где $\varepsilon = (p_k - p)/p_k$, а $h = (\sigma_D/\sigma_M) \ll 1$. Здесь мы оценим границу области, в пределах которой можно увидеть критическое поведение сопротивления, следующим образом. Предположим, что $(p_k - p)/p_k \propto (T_p - T)/T_p$. В этом случае нетрудно увидеть, что область критического поведения сопротивления определится из следующего условия:

$$(1 - T/T_p)^{s+t}(\rho_D/\rho_M) > 1, \quad (5)$$

которое выполняется при $T < 223.6 \text{ K}$. Определенный в температурном интервале $201.4 \text{ K} < T < 223.6 \text{ K}$ критический индекс μ оказался равным -0.8 [10]. Другими словами, ниже 223.6 K поведение ρ можно представить в виде

$$\rho \propto (T_p - T)^{-0.8}. \quad (6)$$

На рис.4 (см. вставку) видно, что экспериментально полученная температурная зависимость для образцов $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$ с хорошей степенью точности удовлетворяет закону (6). Найденное нами значение критического индекса $\mu = -0.8$ удовлетворительно согласуется с величиной $\mu = -0.6$, которая получена Горьковым [10] из анализа критического поведения коэффициента магнитной жесткости и критического поведения намагниченности для образцов $\text{La}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$.

В заключение мы хотели бы отметить следующее. Нами было проведено независимое определение двух различных критических температур: критической температуры перехода металл – диэлектрик $T_p = 248.2 \text{ K}$ и критической температуры магнитного перехода $T_C = 253.4 \text{ K}$, которые оказались близки. На наш взгляд, совпадение этих температур с точностью 2–3% является не случайным, а отражает тот факт, что в области высоких температур и при $x = 0.2 \text{ La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{MnO}_3$ представляет собой двухфазную неупорядоченную систему, состоящую из диэлектрической матрицы, в которой содержатся металлические ферромагнитные включения. С понижением температуры оба перехода имеют перколяционный характер, а полученные экспериментальные результаты подтверждают гипотезу, высказанную в работах Горькова и Кресина [9, 10], о природе перехода металл – диэлектрик в легированных манганитах лантана.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 99-02-16280).

1. *Colossal Magnetoresistance, Charge Ordering, and Related Properties of Manganese Oxides*, Eds. C. N. R. Rao and B. Raveau, World Scientific Singapore, 1998.
2. *Colossal Magnetoresistance Oxides*, Ed. Y. Tokura, Gordon & Breach, London, 1999.
3. M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
4. A. J. Millis, R. Mueller, and B. I. Shraiman, *Phys. Rev.* **B54**, 5389 (1996).
5. H. Roder, J. Zang, and A. R. Bishop, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1356 (1996).
6. S. Yunoki, J. Hu, A. L. Malvezzi et al., *Phys. Rev. Lett.* **80**, 845 (1998).
7. D. Khomskii, *Physica* **B280**, 325 (2000).
8. M. Yu. Kogan, D. I. Khomskii, and M. V. Mostovoy, *Eur. Phys. J* **B12**, 217 (1999).
9. Л. П. Горьков, В. З. Кресин, *Письма в ЖЭТФ* **67**, 934 (1998).
10. Л. П. Горьков, *УФН* **168**, 665 (1998).
11. V. Podzorov, M. Vehara, M. E. Gershenson et al., *Phys. Rev.* **B61**, R3784 (2000).
12. M. Maug, A. Moreo, J. A. Verges et al., arXiv:condmat/0007480.
13. В. Е. Архипов, В. Г. Гавико, К. М. Демчук и др., *Письма в ЖЭТФ* **71**, 169 (2000).
14. В. И. Шкловский, А. Л. Эфрос, *Электронные свойства легированных полупроводников*, М.: Наука, 1979.
15. A. L. Efros and V. I. Shklovskii, *Phys. Stat. Sol.* (b) **76**, 475 (1976).
16. И. К. Камиллов, Х. К. Алиев, *УФН* **140**, 639 (1993).