

МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ И ЭФФЕКТ ХОЛЛА В $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$

А. Е. Карькин*

Институт физики металлов
Уральского отделения Российской академии наук
620219, Екатеринбург, Россия

Д. А. Шулятев, А. А. Арсенов

Московский институт стали и сплавов
107071, Москва, Россия

В. А. Черепанов, Е. А. Филонова

Уральский государственный университет
620083, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 15 февраля 1999 г.

На монокристаллических и керамических образцах $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ проведено сравнительное изучение продольного ρ_{xx} и поперечного ρ_{xy} электросопротивлений и магнитной восприимчивости χ_{ac} в широкой области температур $T = 1.7\text{--}370$ К и магнитных полей $H = 0\text{--}13.6$ Тл. Показано, что для монокристаллов выполняется ожидаемое для процессов рассеяния носителей заряда на магнитных флуктуациях соотношение $\rho_{xy} \sim \rho_{xx}$. В поликристаллах наблюдается зависящий от H дополнительный вклад в сопротивление, предположительно связанный с плоскими (вблизи границы зерна) и объемными «дефектами» магнитной подрешетки. Процесс рассеяния носителей на этих магнитных дефектах не дает видимого вклада в аномальный эффект Холла и магнитную восприимчивость χ_{ac} , что приводит к кажущемуся более быстрому, чем линейное, изменению ρ_{xy} в зависимости от ρ_{xx} . В предположении, что данные соединения являются металлами с постоянной концентрацией носителей, вычисленная в приближении молекулярного поля проводимость $\sigma = 1/\rho_{xx}$, обусловленная критическим магнитным рассеянием, воспроизводит основные особенности экспериментальных данных: уменьшение и сдвиг с возрастанием поля H пика в сопротивлении в окрестности точки Кюри, а также относительно медленное с повышением температуры T изменение производной $d\sigma/dH$ при $T \leq T_C$. Большая наблюдаемая величина холловской концентрации ≈ 2 дырки на ячейку указывает на возможность существования в этих соединениях носителей разного знака.

PACS: 75.70.Pa

1. ВВЕДЕНИЕ

Отрицательное магнитосопротивление, обнаруженное в марганцевых перовскитах типа $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ в широкой области легирования x как в ферромагнитных металлах, так и в ферромагнитных диэлектриках, так или иначе связано с изменением дальнего или ближнего магнитного порядка, так как присутствует только в ферромагнитной

*E-mail: karkin@orar.e-burg.su

области или немного выше точки Кюри T_C , где еще заметны ферромагнитные флуктуации. Наиболее распространенное объяснение этого эффекта связано с предполагаемой делокализацией носителей заряда, возникающей или при упорядочении магнитных моментов ниже T_C , или при воздействии внешнего магнитного поля [1–8]. Относительно высокая величина электросопротивления ρ в окрестности T_C (5–30 мОм·см для образцов с $x \geq 0.2$) и его полупроводниковое поведение ($d\rho/dT < 0$) при $T > T_C$ как будто согласуется с этим предположением [1, 4, 5, 7]. Параметр, характеризующий область перехода между металлом и диэлектриком (ПМД), — минимальная проводимость Мотта

$$\sigma_M \approx 0.03(e^2/\hbar)n^{1/3} \quad (1)$$

для концентрации носителей $n \sim 3 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ (0.2 дырки на ячейку) имеет величину $\approx 0.1 \text{ (мОм}\cdot\text{см)}^{-1}$. Согласно этой оценке, соединения этого типа при $x > x_c$ (где критическая концентрация $x_c \approx 0.15$ для $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ или $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{MnO}_3$) должны быть диэлектриками выше T_C и металлами при низких температурах, так что концепция индуцированного магнитным беспорядком ПМД выглядит вполне правдоподобной.

Однако существует несколько экспериментальных наблюдений, которые трудно понять в рамках данной ПМД-модели. Во многих случаях, когда проводимость σ меньше или порядка оцененной выше величины σ_M , тем не менее она имеет явно металлический тип. Это относится как к области $T \geq T_C$, где часто наблюдается $d\rho/dT > 0$ [2], так и к области низких температур, где $\sigma < \sigma_M$, но проводимость остается конечной при $T \rightarrow 0$ [4, 5]. Далее, в рамках ПМД-модели увеличение проводимости под действием поля H объясняется уменьшением (закрытием) щели или псевдощели ΔE . Можно ожидать, что при $T \leq T_C$ величина ΔE будет линейно уменьшаться с ростом H , $\Delta E \approx \Delta E_0 - a_H H$ [9], так что концентрация носителей и проводимость должны меняться как

$$\begin{aligned} n \propto \sigma &\propto \exp[(a_H H - \Delta E_0)/T] && \text{при } \Delta E > 0, \\ n \propto \sigma &\sim \text{const} && \text{при } \Delta E = 0, \end{aligned}$$

где a_H — постоянная, не зависящая от поля и температуры. С ростом H проводимость должна быстро (экспоненциально) увеличиваться при относительно малых полях и насыщаться при более сильных, а величина $d\sigma/dH$ резко (приблизительно как $\exp[\Delta E/T]$) увеличиваться с ростом T . Такое ожидаемое поведение зависимости $\sigma(H)$ явно не согласуется с экспериментом, при $T \leq T_C$ проводимость линейно увеличивается с ростом H без каких-либо признаков насыщения и $d\sigma/dH$ относительно медленно меняется с температурой [3, 8, 10]. Концентрация носителей n должна иметь сильные (экспоненциальные) зависимости от поля и температуры. Однако, например, в соединениях $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ [4] и $\text{Pr}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ [5] определенная по измерениям постоянной Холла концентрация $n_H = 1/(R_H e)$ при $T < T_C$ (но не слишком близко к T_C , где преобладает аномальный эффект Холла) практически не зависит ни от поля, ни от температуры.

Другая возможность описания свойств этих материалов состоит в том, что при всех температурах (выше и ниже T_C) для концентраций $x > x_c$ предполагается металлический тип проводимости, концентрация носителей не зависит от поля и температуры, а эффект отрицательного магнитосопротивления полностью определяется уменьшением амплитуды рассеяния носителей заряда на локализованных магнитных моментах под воздействием магнитного поля. Такая модель, однако, должна давать объяснение слишком большим наблюдаемым величинам ρ при $T \geq T_C$. Если в обычной формуле Друде

положить длину свободного пробега равной фермиевской длине λ_F , получим соотношение для проводимости $\sigma \approx 0.6(e^2/h)n^{1/3}$, что дает оценку для концентрации носителей $n \sim 10^{-3}-0.1$ дырок на ячейку. Эта величина значительно меньше экспериментальных значений холловской концентрации $n_H = 0.5-1.0$ дырок на ячейку [4, 5, 11], как и величины $n_H = 0.2$, ожидаемой из простых химических соображений. Таким образом, концепция металлического типа проводимости для этих соединений, так же как и для многих других систем с сильными электронными корреляциями, также имеет определенные трудности.

Другая характерная особенность соединений этого типа связана с тем, что есть значительное различие в поведении зависимостей $\rho(T, H)$ моно- и поликристаллических образцов в области низких температур, наглядно продемонстрированное в [2] для $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$. Такое различие, естественно, связывалось с процессами рассеяния носителей заряда в поликристаллах в областях вблизи границ зерен. В области малых полей $H < 0.5$ Тл наблюдаемое поведение $\rho(T, H)$ объяснялось туннелированием спиновых поляронов через границу зерен, но механизм магнитосопротивления при больших полях не ясен [2].

Эти сильно упрощенные соображения показывают, что природа транспорта в таких соединениях пока еще далека от понимания. Не ясны как характер проводимости вблизи T_C и при более высоких температурах (металл или диэлектрик), так и механизм столь сильного увеличения проводимости под действием магнитного поля.

В данной работе мы провели подробное сравнительное исследование магнитосопротивления и эффекта Холла в зависимости от температуры и поля для моно- и поликристаллических образцов с номинальным составом $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$. Подобные исследования, проведенные для близких по составу образцов $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$, к сожалению, не содержат данных об эффекте Холла, а также о магнитосопротивлении в окрестности точки Кюри. Эффект Холла изучался ранее в основном на эпитаксиальных пленках различных составов [4, 5], однако их дефектное состояние с точки зрения зависимостей ρ от поля и температуры лежит где-то между монокристаллами и керамиками и ближе по своим свойствам к последним. В недавно опубликованной работе эффект Холла изучался также на монокристаллах $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ [11]. Такие исследования на этих магнитных материалах особенно информативны из-за аномального эффекта Холла, возникающего вследствие асимметричного рассеяния носителей заряда на магнитном беспорядке (магнитные примеси или несовершенства спиновой решетки). Так как рассеяние этого типа влияет как на продольную ρ_{xx} , так и на поперечную ρ_{xy} составляющие сопротивления, изучение поведения их зависимостей от поля и температуры дает возможность получить существенные данные о механизме отрицательного магнитосопротивления в этих соединениях.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Монокристаллические образцы $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ выращены методом бестигельной зонной плавки с радиационным нагревом [6]. Поликристаллические образцы $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ были синтезированы по стандартной керамической технологии из исходных веществ La_2O_3 , SrCO_3 и Mn_2O_3 . Требуемые навески перетирались и отжигались в несколько стадий в интервале температур 850–1100°C. Время отжига на последней стадии составляло 70 часов. Полученные таким образом порошки прессовались и

отжигались 20 часов при 1300°C. Близкие величины T_C , а также ρ при $T > T_C$ для наших монокристаллических и керамических образцов свидетельствует о близости их стехиометрических составов.

Измерения электросопротивления $\rho_{xx} = \rho$ и восприимчивости χ_{ac} проводились на образцах размерами $1 \times 1 \times 6$ мм³, эффекта Холла ρ_{xy} и ρ — на квадратных пластинах площадью 1.5×1.5 мм² и толщиной 120 мкм (керамики) и 80 мкм (монокристаллы) с симметричными контактами по углам, приготовленными ультразвуковой пайкой индием. Измерения ρ_{xx} и ρ_{xy} проводились четырехконтактным методом при постоянном токе 1 мА. Для монокристаллов ось (110) параллельна току и перпендикулярна полю. Для минимизации погрешностей при измерении эффекта Холла изменялись направления измерительного тока, магнитного поля и переключались токовые и потенциальные контакты. Измерения ρ на длинных образцах были сделаны в постоянных полях $H = 0-13.6$ Тл при изменении температуры от 1.7 до 370 К, а данные на плоских образцах (ρ_{xy} и ρ) были получены при фиксированных температурах от 4.2 до 360 К с шагом 20 К при сканировании H . Так как $\rho_{xy} \ll \rho_{xx}$, типичное холловское напряжение имеет величину порядка 10 нВ на фоне несимметричного сигнала порядка 10 мкВ, поэтому точность измерения ρ_{xy} составляла 10-30%. Измерения χ_{ac} проводились стандартным методом двух катушек в переменном поле порядка 10^{-4} Тл с частотой 1 кГц, параллельном постоянному внешнему полю $H = 0-0.1$ Тл.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показаны вычисленные по данным восприимчивости $\chi_{ac}(H, T)$ зависимости намагниченности $M(H, T)$ в полях до 0.1 Тл для монокристаллического и керамического образцов. Намагниченность почти насыщается при $H \geq 0.06$ Тл. При $H = 0.1$ Тл для керамического образца ясно виден типичный для ферромагнетика пик в восприимчивости при $T = T_C$, для монокристалла особенность вблизи T_C имеет менее выраженный характер.

Поведение $\rho(T, H)$ в целом согласуется с тем, что наблюдалось ранее в [2, 12] для образцов близкого состава. Величина ρ в окрестности T_C в керамиках в полтора раза больше, чем в монокристаллах, приблизительно половина этой разницы может быть отнесена за счет пористости керамики, так что абсолютная величина сопротивления при высоких температурах лишь на 30% больше, чем в монокристалле. Зависимости ρ от поля и температуры вблизи T_C для керамик и монокристаллов также очень похожи.

Различия в низкотемпературном поведении $\rho(T, H)$ более значительны (рис. 2). При $T < 50$ К сопротивление керамик можно описать полиномом $\rho = \rho_0 - a_1 T + a_3 T^3$, где параметры a_1 и ρ_0 наиболее сильно зависят от H . Для монокристаллов в этой же области температур сопротивление может быть описано аналогичной зависимостью (см. также рис. 6), однако параметры ρ_0 , a_1 и a_3 более чем на порядок величины меньше и практически не зависят от поля. В области промежуточных температур $50 < T < 150$ К поведение сопротивления для монокристаллов (см. ниже рис. 6) и керамик ближе к зависимости типа $\rho = a_2 T^2$. Для керамик при $T < 150$ К проводимость $\sigma = 1/\rho$ быстро возрастает при малых полях $H \leq 0.5$ Тл и при высоких значениях полей увеличивается почти линейно, при $T \geq 150$ К нелинейный участок отсутствует (рис. 2). Замечательная особенность поведения проводимостей $\sigma(H)$ для монокристаллов и керамик состоит в том, что во всей области ферромагнитного состояния $T < T_C$, несмотря на значи-

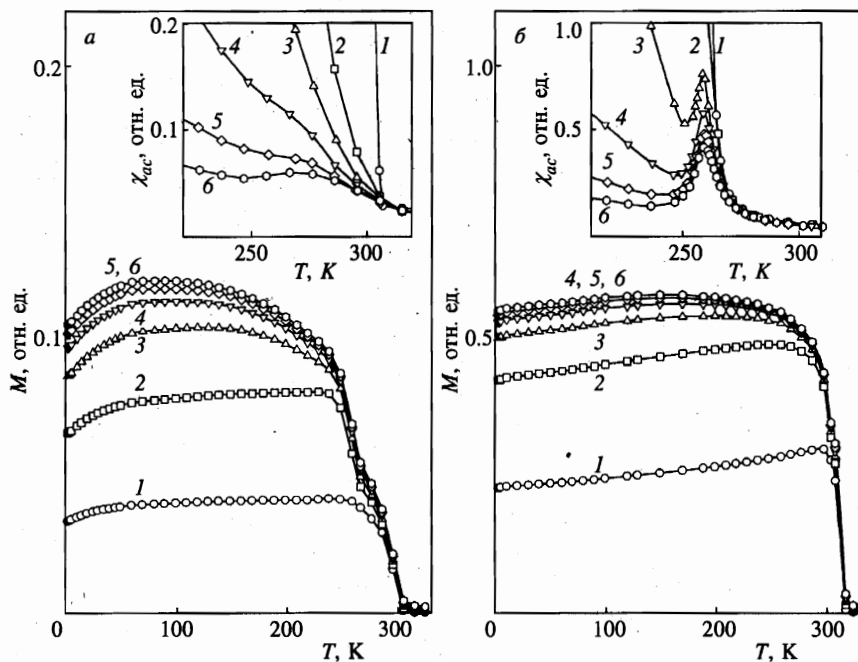


Рис. 1. Температурные зависимости намагниченностей M , вычисленные по данным восприимчивости χ_{ac} для монокристаллического (а) и поликристаллического (б) образцов $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$. Зависимости 1-6 соответствуют величинам магнитных полей 0-0.1 Тл. На вставке — χ_{ac} в окрестности точек Кюри

тельное изменение проводимости σ , величина $d\sigma/dH$ почти не меняется (постоянная магнитопроводимость).

На рис. 3 показаны зависимости $\rho_{xy}(H)$ для нескольких температур. При значениях T , достаточно близких к T_C , аномальный эффект Холла электронного типа дает преобладающий вклад, тогда как нормальный эффект Холла дырочного типа имеет заметный вклад только при низких температурах. В керамиках нормальный вклад при низких температурах приблизительно в полтора раза больше, чем в монокристаллах, что также может быть отнесено на счет пористости керамических образцов. Величина R_H относительно мала, на порядок величины меньше того значения, что ожидается для концентрации носителей 0.2 дырки на элементарную ячейку. Аномальный эффект Холла в керамиках почти в полтора раза меньше, чем в монокристаллах (с учетом пористости — в два раза), и имеет очень похожее поведение в зависимости от поля и температуры (рис. 3).

Полный холловский сигнал описывается выражением [13]

$$\rho_{xy} = R_H(T)B + \mu_0 R_A(T)M(B, T), \quad (2)$$

где R_H , R_A — нормальная и аномальная постоянные Холла, M — намагниченность. В пределе достаточно больших полей, где намагниченность $M(B, T)$ равна намагниченности насыщения M_S , получим $\rho_{xy} = R_H(T)B + \mu_0 R_A(T)M_S$. Линейная экстраполяция кривых $\rho_{xy}(B, T)$ из области высоких значений полей позволяет выделить оба вклада, именно таким образом были определены величины холловской концентрации

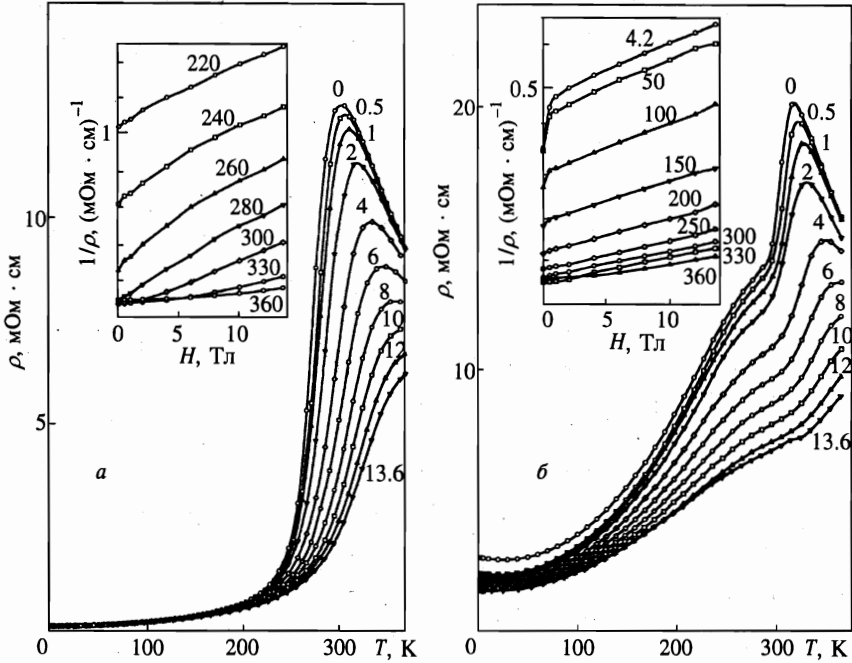


Рис. 2. Температурные зависимости электросопротивления ρ для монокристаллического (а) и поликристаллического (б) образцов $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$. Цифрами обозначены величины магнитных полей H в Тл. На вставках показаны полевые зависимости проводимости $1/\rho$, цифрами обозначены температуры в К

$n_H = 1/(R_H e)$ и R_A , например, в работе [4]. В действительности этот способ применим только в области достаточно низких температур. Аномальная постоянная Холла R_A определяется теми же параметрами (спиновыми корреляторами), что и сопротивление ρ [13–18]. В случае рассеяния носителей на спиновых флуктуациях $R_A \propto \rho$ [14], хотя есть и более экзотические модели, предсказывающие зависимость $R_A \propto \rho^2$ [18]. Для «обычных» ферромагнетиков ρ , так же как и R_A , почти не зависит от B (см. равенство (2)) и процедура линейной экстраполяции вполне законна. Однако, если величины ρ и R_A определяются одними и теми же процессами рассеяния, амплитуда которых зависит от поля, R_A также будет функцией B , т. е. $R_A \propto \rho(B)$, так что соотношение (2) можно представить в виде

$$\rho_{xy} = R_H(T)B + c_H \rho(T, B)M(T, B),$$

где c_H — постоянная. Таким образом, поперечное сопротивление ρ_{xy} оказывается немонотонной и довольно сложной функцией магнитного поля B , так что обычная процедура разделения нормального и аномального вкладов в эффект Холла верна только в той области температур, где ρ не имеет заметной зависимости от поля. Для монокристаллов это сводится к области низких температур, где сопротивление ρ мало и аномальный вклад в ρ_{xy} практически не заметен.

Чтобы продвинуться дальше, предположим, что R_H , как в случае обычного металла, не зависит от T . Вычитая нормальный вклад ($R_H = 0.2 \cdot 10^{-9}$ м³/Кл) и ограничиваясь областью больших полей, чтобы не учитывать фактор размагничивания и

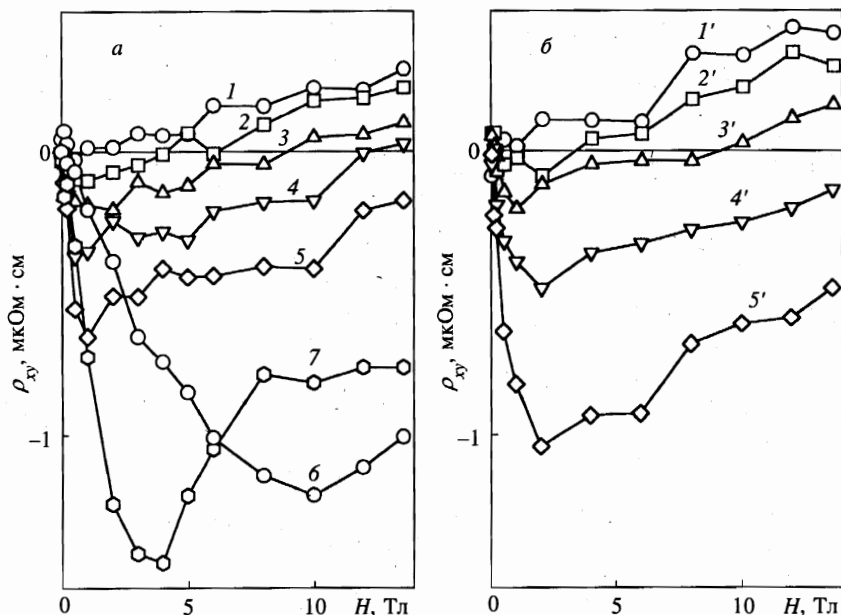


Рис. 3. Зависимости поперечного электросопротивления ρ_{xy} от поля H для монокристаллического (а) и поликристаллического (б) образцов $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ при различных температурах: 1 — 4.2 К, 2 — 60 К, 3 — 160 К, 4 — 200 К, 5 — 260 К, 6 — 300 К, 7 — 340 К; 1' — 4.2 К, 2' — 120 К, 3' — 200 К, 4' — 260 К, 5' — 320 К

различие между B и H (так как $\mu_0 M_S \approx 0.6$ Тл для $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$, это соответствует полям $H \geq 1$ Тл), получим

$$\rho_A = \rho_{xy} - R_H H \sim \rho(T, H)M(T, H). \quad (3)$$

Чтобы проверить это соотношение, мы вычислили намагниченность в приближении молекулярного поля, используя соотношение $m = B_2((m + h)/t)$, где $B_2(x)$ — функция Бриллюэна для спина $j = 2$, $m = M/M_S$, $t = T/T_C$, $h = H/H_{mol}$, молекулярное поле $H_{mol} = k_B T_C / (2\mu_B) \approx 200$ Тл [13]. На рис. 4 показаны зависимости аномального вклада ρ_A и произведения ρt от поля H , данные для ρ_{xy} и ρ взяты для одного и того же образца. В целом наблюдается неплохое качественное согласие в поведении этих двух величин, хотя некоторые детали (например, положение максимумов) воспроизводятся не очень хорошо. Отметим, что в области больших полей величина ρt имеет почти линейную зависимость от H , которая возникает из-за полевых зависимостей как сопротивления ρ , так и намагниченности m . Поэтому процедура линейной экстраполяции из области больших полей для разделения аномального и нормального эффектов Холла невозможна, по крайней мере, для $T \geq 180$ К ($0.6T_C$), так что часто наблюдаемое кажущееся увеличение постоянной Холла R_H при приближении к T_C [4] связано, по-видимому, именно с сильной зависимостью аномальной постоянной Холла $R_A = \rho_A/M$ от поля. Чтобы проверить соотношение (3), мы построили зависимость ρ_A/m от $\rho - \rho_0$, используя данные для полей $H \geq 1$ Тл и области температур 160–360 К, где ρ_A имеет заметно отличную от нуля величину (рис. 5). В качестве остаточного сопротивления ρ_0 , соответствующего рассеянию на немагнитных примесях, мы взяли для

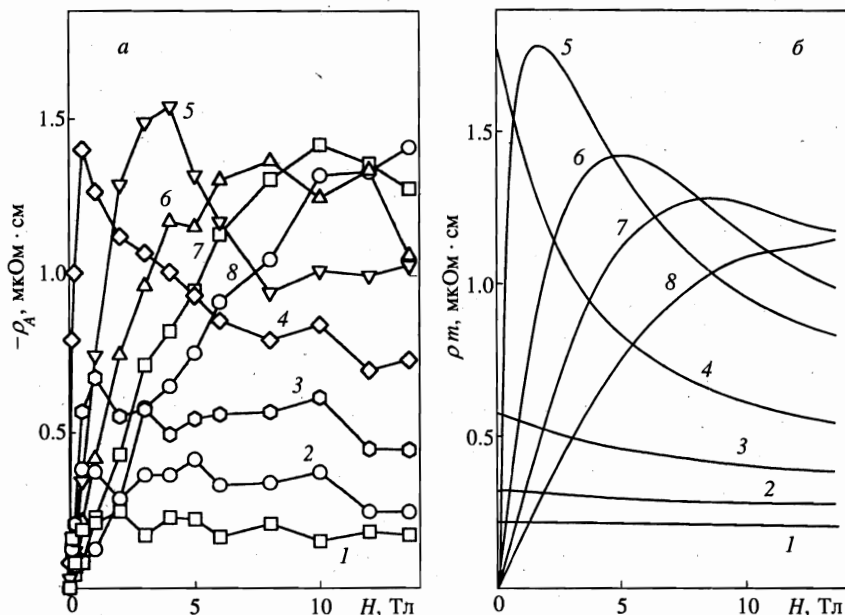


Рис. 4. Зависимости от H аномального вклада в поперечное электросопротивление $\rho_{xy} - R_H H$ (а) и произведения электросопротивления ρ на намагниченность m , вычисленную в приближении молекулярного поля (б) для монокристаллического образца $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ при различных температурах: 1 — 160 К, 2 — 200 К, 3 — 240 К, 4 — 280 К, 5 — 300 К, 6 — 320 К, 7 — 340 К, 8 — 360 К

простоты величину 0.11 мОм·см, равную экспериментальной величине ρ при $T = 4.2$ К и $H = 13.6$ Тл. Обработка этих данных по формуле $\rho_A/m = \rho^k$ дает $k = 0.95 \pm 0.05$. Таким образом, можно считать, что для монокристаллического образца соотношение (3) выполняется достаточно хорошо.

Для керамических и монокристаллических образцов зависимости $\rho_{xy}(H, T)$ подобны (рис. 3), тогда как $\rho(H, T)$ при низких температурах меняются различным образом (рис. 2). Только в окрестности точки Кюри при $T = (0.9-1.15)T_C$ наблюдается коррелированное поведение величин ρ_A/m и ρ , при более низких температурах такая корреляция практически отсутствует. Это означает, что «дополнительные», по сравнению с монокристаллами, процессы рассеяния, дающие вклад в сопротивление, не дают заметного вклада в аномальный эффект Холла. Причина такого различия не очень понятна, так как если даже эти дополнительные процессы относятся к тонкому слою вблизи границ зерна, то они должны давать вклад как в сопротивление, так и в эффект Холла.

Единственным механизмом, способным описать зависимость $\rho(T)$ в металлическом ферромагнетике типа той, которая наблюдается для монокристаллического образца в окрестности точки Кюри (рис. 2), является критическое рассеяние носителей заряда на спиновых флуктуациях [13, 19–21]. Большое по величине критическое рассеяние, а также эффект отрицательного магнитосопротивления экспериментально наблюдались более 30 лет назад в системах типа $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{S}$ с относительно низкими концентрациями носителей $10^{18}-10^{21}$ см⁻³ [21]. Сечение критического рассеяния Σ можно определить

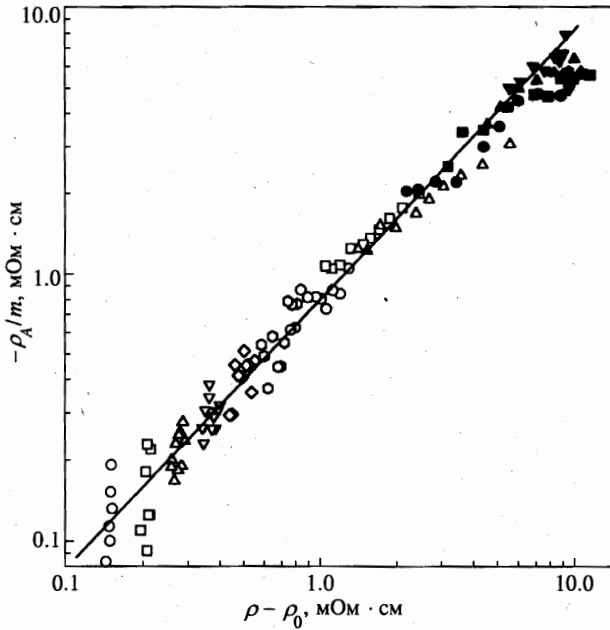


Рис. 5. Зависимость отношения аномального вклада в эффект Холла ρ_A к вычисленной намагниченности m от сопротивления $\rho - \rho_0$ (см. текст) для монокристаллического образца $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ в интервале температур $T = 160\text{--}360$ К. Светлыми точками показаны данные для $T < T_C = 300$ К, темными — для $T \geq T_C$

соотношением [20]

$$d\Sigma/d\Omega \propto \chi(q)/\chi_0, \quad (4)$$

где q — вектор рассеяния, Ω — телесный угол, χ_0 — парамагнитная восприимчивость, $\chi(q)$ — обобщенная восприимчивость, которая для малых q имеет вид [20]

$$\chi(q) \sim (1/\chi(H, T) + (qR)^2)^{-1},$$

$\chi(H, T) = dm/dH$ — восприимчивость, R — феноменологический параметр, имеющий величину порядка нескольких межатомных расстояний. Для вычисления ρ нужно проинтегрировать выражение (4) по q (с весом q^2). Так как $\chi_0 \propto T_C/T = 1/t$, запишем результат в виде [20, 21]

$$\begin{aligned} \rho/\rho_\infty &= t\chi(H, T)z(y), \\ z(y) &= 2[y - \ln(1+y)]/y^2, \\ y &= 4(k_F R)^2\chi(H, T), \end{aligned} \quad (5)$$

$k_F = 2\pi/\lambda_F$ — волновой вектор Ферми, ρ_∞ — сопротивление при высоких температурах, соответствующее парамагнитному рассеянию. Когда параметр y мал, что соответствует температурам не слишком близким к T_C (малые величины χ) и большим длинам волн λ_F , функция $z(y)$ близка к единице, так что

$$\rho/\rho_\infty = t\chi(H, T). \quad (6)$$

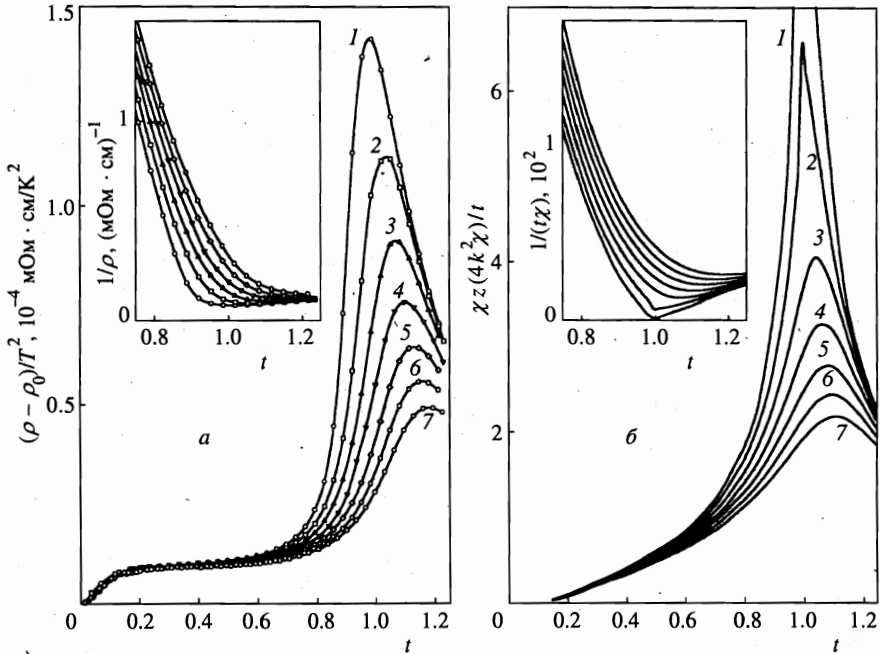


Рис. 6. Зависимости экспериментальных величин $(\rho - \rho_0)/T^2$ для монокристаллического образца $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (а) и вычисленных функций $\chi z/t$ (б) от приведенной температуры $t = T/T_C$ (см. текст). На вставках — экспериментальные величины проводимости $1/\rho$ и функции $1/t\chi$. Кривые 1-7 соответствуют магнитным полям 0, 2, 4, 6, 8, 10 и 12 Тл

Это — быстро возрастающая функция, имеющая острый пик вблизи T_C и стремящаяся к постоянной величине при высоких температурах. При малых λ_F , типичных для обычных металлов типа Fe, влияние $z(y)$ сводится к сглаживанию особенности вблизи T_C , поэтому сопротивление ρ имеет зависимость, монотонно возрастающую при $T < T_C$, и постоянную при $T > T_C$.

При конечных величинах параметра y вид функции $\rho(T, H)$ определяется неизвестными величинами k_F и R . Однако для сравнения экспериментальных кривых $\rho(T, H)$ с вычисленными с помощью формул (5) достаточно использовать выражение (6), так как функция $1/z(y)$ при $y \leq 0.5$ с точностью несколько процентов аппроксимируется линейной функцией $1 + (8/3)y$, так что проводимость подчиняется соотношению

$$\frac{\sigma}{\sigma_\infty} = \frac{1}{t\chi(H, T)} + \frac{8}{3} \frac{(k_F R)^2}{t} \tag{7}$$

Так как вблизи точки Кюри t меняется относительно медленно, при уменьшении λ_F происходит просто параллельный сдвиг функции $1/[t\chi(H, T)]$, которая вблизи точки Кюри имеет линейную зависимость $\propto |t - 1|$, у которой наклон слева в два раза больше.

Для вычисления $\rho(H, T)$ можно использовать или экспериментальные данные $\chi(H, T)$, или непосредственно сечения $d\Sigma(H, T)/d\Omega$, полученные из данных по малоугловому рассеянию нейтронов. Такие данные для керамических образцов $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ были получены в работе [3] и действительно показывают согласован-

ное изменение этих трех величин вблизи T_C . Здесь мы использовали только восприимчивости $\chi(H, T)$, вычисленные в приближении молекулярного поля. Вычисленные функции $1/[t\chi(H, T)]$ и экспериментальные проводимости $\sigma(H, T)$ для температур $T = (0.75-1.25)T_C$ и полей $H = 0-13.6$ Тл показаны на рис. 6. Ясно видно неплохое качественное согласие в поведении $\rho(H, T)$ и $1/[t\chi(H, T)]$. При $T < T_C$ величина $1/[t\chi(H, T)]$ хорошо воспроизводит две основные особенности поведения $\sigma(H, T)$: линейное уменьшение при приближении к T_C и сдвиг кривых, пропорциональный величине H . При $T > T_C$ воспроизводится уменьшение наклона кривых $\sigma(H, T)$ и более медленное и нелинейное с ростом H увеличение σ , но нет количественного согласия. Отметим, что здесь мы пока не используем никаких подгоночных параметров, единственный параметр при вычислении восприимчивости — это спин $j = 2$.

Так как приближение молекулярного поля учитывает только дальний магнитный порядок, оно не описывает низкотемпературного поведения намагниченности M и восприимчивости χ (спиновые волны), и неточно предсказывает их критическое поведение $M \propto (1-t)^\alpha$, $1/\chi \propto (t-1)^\beta$, $\alpha = 1/2$ и $\beta = 1$. Более реалистичные критические индексы $\alpha = 0.4$ и $\beta = 4/3$ [13] приведут, в частности, к более медленному возрастанию $1/\chi$ при $T > T_C$, что ближе к экспериментальной ситуации для $\sigma(T)$. С другой стороны, даже в совершенных образцах χ не расходится при $T = T_C$. Пик в восприимчивости (рис. 1) при $T = T_C$ более острый в случае керамики по сравнению с монокристаллом, что также соответствует поведению ρ в этих образцах (рис. 2).

Согласно (5), особенность в сопротивлении, так же как эффект отрицательного магнитосопротивления, должны практически исчезать при $k_F R \sim 1$. В предположении $R = 5-10$ Å концентрация носителей, при которой может наблюдаться магнитосопротивление, должна быть меньше $3 \cdot 10^{19} - 3 \cdot 10^{20}$ см⁻³, или 0.05–0.5 дырки на ячейку для $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$. Хотя это очень приблизительная оценка, можно, вероятно, экспериментально наблюдать такую ситуацию, когда с увеличением легирования и, следовательно, концентрации носителей величина магнитосопротивления будет уменьшаться.

Чтобы сравнить экспериментальные зависимости $\rho(T, H)$ с вычисленными по формулам (5) в более широком интервале температур, на рис. 6 мы построили температурные зависимости величин $(\rho - \rho_0)/T^2$ и $\chi z/t$, используя здесь подгоночный параметр $k_F R = 0.2$. При $0.5 \leq t \leq 1.25$ вычисленные функции $\chi z/t$ правильно воспроизводят уменьшение сопротивления при увеличении поля, однако температурный сдвиг максимума в полтора раза более медленный по сравнению с экспериментальным. При $t < 0.5$ приближение молекулярного поля неприменимо, так что нельзя понять, с чем связано наблюдаемое поведение типа $\rho \propto t^3$ при $t < 0.1$ и $\rho \propto t^2$ при $0.1 \leq t < 0.5$ (рис. 6) — или с рассеянием на локализованных моментах (спиновые волн), или с какими-либо другими процессами.

В керамических образцах пик зависимости $\rho(T)$ в окрестности T_C (рис. 2) выглядит заметно уменьшенным по сравнению с аналогичным пиком для монокристаллов. Так как аномальный эффект Холла в керамиках также в два раза меньше, сопротивление здесь можно формально представить как сумму двух вкладов. Первый, составляющий приблизительно половину от полного, связан с критическим рассеянием и имеет заметную величину только вблизи T_C . Второй дополнительный вклад ρ_{add} , так или иначе связанный с искажениями кристаллической и (или) магнитной решеток вблизи границы зерна, можно формально представить в виде

$$\rho_{add} = \rho_1(T)M + \rho_2 H. \quad (8)$$

Первый член, линейный по намагниченности M , естественно отождествить с процессами рассеяния в области непосредственной близости к границе зерна, где можно ожидать быстрого изменения направления магнитного момента в масштабе нескольких межатомных расстояний, тогда второй соответствует искажениям магнитного порядка в значительно большем объеме образца. При приближении к T_C намагниченность уменьшается и становится почти линейной по полю (рис. 1), это соответствует уменьшению нелинейного вклада в проводимость (рис. 2). «Объемный» член $\rho_2 H$ в (8), однако, не дает вклада в аномальный эффект Холла, а также никак не обнаруживается при измерениях объемно-чувствительных величин, таких как намагниченность [2]. С другой стороны, измерения теплоемкости керамических образцов ($0 < x < 0.3$) обнаруживают большой магнитный вклад в области низких температур, приблизительно линейный по T [22, 23]; подобное поведение, более типичное для спиновых стекол, чем для обычных ферромагнетиков, может указывать на существование дополнительных магнитных возбуждений, которые также могут приводить к процессам магнитного рассеяния носителей заряда.

Холловская концентрация носителей порядка двух дырок на ячейку выглядит чрезмерно завышенной, так что должен существовать механизм, приводящий к уменьшению постоянной Холла, например, существование двух типов носителей с разными знаками. Изменение знака термоэдс, экспериментально наблюдаемое в подобных соединениях, возможно, подтверждает это предположение [24]. Этот эффект должен быть наиболее заметен, если концентрации (или k_F) носителей разного знака заметно различаются. Вблизи точки Кюри проводимость σ пропорциональна k_F^2 , так что термоэдс $S = (S_h \sigma_h - S_e \sigma_e) / (\sigma_h + \sigma_e)$, где индексы h и e относятся к дыркам и электронам, будет иметь особенность в виде пика, так как температурные зависимости σ_h и σ_e значительно различаются в этой области температур. Похожие особенности вблизи T_C можно ожидать и для постоянной Холла.

Отметим, что модель критического рассеяния применима, по-видимому, только к соединениям типа $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ или $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{MnO}_3$, для которых (при $x \geq x_c$) отсутствуют эффекты, которые могут привести к значительной перестройке электронного спектра и таким образом индуцировать переход металл—диэлектрик. К таким эффектам могут приводить фазовые переходы типа структурных или электронных (зарядовое упорядочение), или ферромагнитный переход в том случае, когда он сопровождается значительным изменением объема кристаллической решетки. Именно в этих случаях, вероятно, и наблюдается «колоссальное» изменение проводимости под воздействием магнитного поля: на несколько порядков [25–29].

Таким образом, мы показали, что для монокристаллического образца $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ основной источник рассеяния носителей заряда, а также эффект отрицательного магнитосопротивления связаны с магнитным критическим рассеянием, тогда как взаимодействие носителей с дефектами другого типа относительно мало и заметно только при низких температурах. Вычисления, проведенные в приближении молекулярного поля, правильно воспроизводят основные особенности поведения проводимости σ и аномального эффекта Холла в зависимости от температуры T и поля H , в частности, почти линейное по H увеличение σ , слабо зависящее от температуры при $T \leq T_C$ (постоянная магнитопроводимость). В области преобладающего критического рассеяния наблюдается линейная зависимость между продольным ρ и аномальным поперечным ρ_A сопротивлениями. Для керамических образцов наряду с критическим рассеянием присутствует дополнительный вклад в сопротивление, величина которого

определяется как намагниченностью образца M , так и внешним полем H . Этот дополнительный вклад, связанный с процессами рассеяния носителей заряда соответственно вблизи границы и в объеме зерна, не дает видимого вклада в аномальный эффект Холла, что приводит к кажущемуся нарушению соотношения $\rho_A \sim \rho$. Проведенный анализ указывает на то, что соединение $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ является металлом во всей области температур с относительно низкой концентрацией носителей. Слишком высокая величина холловской концентрации носителей, приблизительно две дырки на ячейку, предполагает существование в этих соединениях носителей разного знака.

Авторы благодарны Ю. Н. Скрябину, М. В. Садовскому и Э. З. Валиеву за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 97-02-17315), МНТЦ (проект 636), Программы Государственной поддержки ведущих научных школ РФ (проект 96-15-96515).

Литература

1. H. L. Ju, C. Know, Qi Li et al., Appl. Phys. Lett. **65**, 2108 (1994).
2. H. Y. Hwang, S.-W. Cheong, N. P. Ong, and B. Batlog, Phys. Rev. Lett. **77**, 2041 (1996).
3. J. M. De Teresa, M. R. Ibarra, P. A. Algarabel et al., Lett. Nature **386**, 256 (1997).
4. P. Wagner, D. Mazilu, L. Trappeniers et al., Phys. Rev. B **55**, R14721 (1997).
5. P. Wagner, I. Gordon, A. Vantomme et al., Europhys. Lett. **41**, 49 (1998).
6. A. M. Balbashov, S. G. Karabashev, Y. M. Mukovskii, and S. N. Zver'kov, J. Cryst. Growth **167**, 365 (1996).
7. G. J. Snyder, M. R. Beasley, and T. H. Geballe, Appl. Phys. Lett. **69**, 4254 (1996).
8. A. J. Millis, B. I. Shraiman, and R. Mueller, Phys. Rev. Lett. **77**, 175 (1996).
9. N. G. Bebenin and V. V. Ustiniv, J. Phys.: Condens. Matter **10**, 6301 (1998).
10. J. P. Mitchel, D. N. Argiriou, C. D. Porter et al., Phys. Rev. B **54**, 6172 (1996).
11. A. Asamitsu and Y. Tokura, Phys. Rev. B **58**, 47 (1998).
12. В. Е. Архипов, В. П. Дякина, С. Г. Карабашев и др., ФММ **84**, 632 (1997).
13. С. В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
14. Ю. Каган, Л. А. Максимов, ФТТ **7**, 536 (1965).
15. J. Kondo, Prog. Theor. Phys. **27**, 772 (1962).
16. J. Kondo, Prog. Theor. Phys. **28**, 846 (1962).
17. E. A. Stern, Phys. Rev. Lett. **15**, 62 (1963).
18. L. Berger, Phys. Rev. B **2**, 4559 (1970).
19. P. G. De Gennes and J. Friedel, Phys. Chem. Sol. **4**, 71 (1958).
20. Ю. А. Изюмов, Р. П. Озеров, *Магнитная нейтронография*, Наука, Москва (1966).
21. З. Метфессель, Д. Маттис, *Магнитные полупроводники*, Мио, Москва (1972).
22. B. F. Woodfield, M. L. Wilson, and J. M. Byers, Phys. Rev. Lett. **78**, 3201 (1997).
23. А. Е. Карькин, А. Н. Петров, В. А. Черепанов, Е. А. Филонова, направлена в ФТТ.
24. M. A. Senaris-Rodriguez and J. B. Goodenough, J. Sol. St. Chem. **118**, 323 (1995).
25. A. Asamitsu, Y. Moritomo, and Y. Tokura, Phys. Rev. B **53**, R2952 (1996).
26. M. McCormack, S. Jin, T. H. Tiefel et al., Appl. Phys. Lett. **64**, 3045 (1994).
27. A. Asamitsu, Y. Moritomo, Y. Tomloka et al., Lett. Nature **373**, 407 (1995).
28. S. J. L. Billinge, R. G. DiFrancesco, G. H. Kwei et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 715 (1996).
29. V. Caignaert, A. Maignan, and B. Raveau, Sol. State Comm. **95**, 357 (1995).