

ИЗОТОП-ЭФФЕКТ И РАЗДЕЛЕНИЕ ФАЗ В ПЛЕНКАХ (La_{0.5}Pr_{0.5})_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃: ОПТИЧЕСКИЕ ДАННЫЕ

Н. Н. Лошкарева^а, Ю. П. Сухоручков^а, Е. А. Ганьшина^{б*}, Е. В. Мостовщикова^а,
Р. Ю. Кумаритова^б, А. С. Москвин^с, Ю. Д. Панов^с, О. Ю. Горбенко^б, А. Р. Кауль^б

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

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

^с Уральский государственный университет
620083, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 15 сентября 2000 г.

Предложен новый подход к изучению разделения фаз в манганитах лантана — совместное исследование оптических и магнитооптических свойств, дающих отклики соответственно от проводящих и ферромагнитных областей. Изучено влияние изотоп-замещения ¹⁶O на ¹⁸O в эпитаксиальных пленках (La_{0.5}Pr_{0.5})_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃, осажденных на подложку SrTiO₃ или LaAlO₃, на спектры поглощения в ИК-области и экваториальный эффект Керра, измеренный в диапазоне 1.5–3.8 эВ. Обнаружено, что гигантское уменьшение температуры максимума сопротивления пленки на SrTiO₃ и исчезновение перехода металл–диэлектрик в пленке на LaAlO₃ при изотоп-замещении сопровождаются уменьшением вклада свободных носителей в спектры поглощения, проявлением полос локализованных состояний и уменьшением величины экваториального эффекта Керра. Эффект Керра и температурная зависимость пропускания света свидетельствуют о наличии ферромагнитных металлических областей в изотоп-замещенной пленке (La_{0.5}Pr_{0.5})_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃/LaAlO₃ в области низких температур при полупроводниковом характере ее электросопротивления во всем температурном интервале. Изменения в спектрах поглощения объясняются на основе модели псевдо-ян-теллеровских полярных центров и разделения фаз. Оптические и магнитооптические данные свидетельствуют о перколяционной природе гигантского изотоп-эффекта в манганитах.

PACS: 78.66.-w, 78.30.Ly

1. ВВЕДЕНИЕ

Манганиты со структурой перовскита интенсивно изучаются в связи с проблемой колоссального магнитосопротивления (КМС). Необычные свойства манганитов связаны с взаимодействием зарядовых, спиновых, орбитальных и локальных структурных (ян-теллеровских) степеней свободы, с сильной зарядовой неоднородностью, статическим и динамическим разделением фаз и перколяционными эффектами [1–3]. Одним из наиболее ярких явлений в манганитах с КМС является гигантский

изотопический сдвиг. Уменьшение температуры Кюри T_C при замещении изотопа кислорода ¹⁶O на изотоп ¹⁸O в La_{0.8}Ca_{0.2}MnO₃ достигает 21 К [4], а в системе (La_{1-y}Pr_y)_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃ для состава с $y = 0.75$ замещение приводит к замене ферромагнитного металлического состояния на антиферромагнитное изолирующее состояние [5]. Основными причинами такого сильного изменения свойств при изотопическом замещении считают изменение электрон-фононного взаимодействия [4, 5] и явления, возникающие вблизи порога перколяции [2, 3]. Сильный изотоп-эффект наблюдается вблизи фазовой границы ферромагнетик–антиферромагнетик для манганитов тех составов, для которых элек-

*E-mail: eagan@magn.phys.msu.ru

тронная e_g -зона является наиболее узкой, вследствие чего существенными являются процессы локализации носителей заряда. К таким материалам относятся, например, $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{MnO}_3$ [4], $(\text{La}_{1-y}\text{Pr}_y)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ при $y = 0.75$ и 0.5 [5, 6], $(\text{La}_{0.5}\text{Nd}_{0.5})_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ [7]. В системах, в которых обнаружен сильный изотоп-эффект, наблюдаются разделение фаз, значительные гистерезисные эффекты при циклах нагрев–охлаждение, релаксационные процессы с большими временами релаксации. Для исследования существенно неоднородных систем предпочтительны локальные методы, позволяющие изучать отдельные составляющие неоднородной системы. В настоящей работе предложен новый квазилокальный подход к неоднородным системам — изучение оптических свойств (оптического поглощения и магнитооптического эффекта Керра). Основная идея использования оптических методов в изучении разделения фаз и перколяционных явлений связана, естественно, с различием оптического отклика для различных фаз. Так, в отсутствие перколяции металлические области в диэлектрической матрице не могут быть обнаружены в измерениях проводимости на постоянном токе, но хорошо проявляются в ИК-спектрах поглощения. Квазилокальный характер оптических методов в приложении к исследованию манганитов с КМС обусловлен тем, что оптическое поглощение в области взаимодействия с носителями заряда дает информацию о проводящих (поглощающих свет) областях в изолирующей (прозрачной) матрице и выявляет зарядовое разделение фаз [8], а эффект Керра, имеющий место в ферромагнитных областях кристалла, позволяет делать заключение о магнитном разделении фаз [9]. Кроме того, в спектрах оптического поглощения манганитов хорошо проявляются делокализованные и локализованные состояния [10], что дает возможность проследить за процессом локализации носителей при изотопическом замещении. Цель данной работы — изучение природы гигантского изотопического эффекта при замещении кислорода ^{16}O на ^{18}O в эпитаксиальных пленках $(\text{La}_{0.5}\text{Pr}_{0.5})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$.

Результаты оптических исследований сопоставляются с данными, полученными при изучении электросопротивления.

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Пленки $(\text{La}_{0.5}\text{Pr}_{0.5})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ толщиной 60 нм были выращены методом химического осаждения

из паровой фазы на монокристаллических перовскитных подложках LaAlO_3 (LAO) и SrTiO_3 (STO) [11, 12]. Исследования методами рентгеновской дифракции, рамановской спектроскопии и просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения указывают на эпитаксиальный характер, структурную и химическую однородность полученных пленок.

Параметры кристаллической решетки для пленок на подложке LAO

$$\frac{a}{2} = \frac{b}{2} = 0.3846 + 0.0003 \text{ нм}, \quad \frac{c}{2} = 0.3872 + 0.0002 \text{ нм},$$

на подложке STO

$$\frac{a}{2} = \frac{b}{2} = 0.3879 + 0.0003 \text{ нм}, \quad \frac{c}{2} = 0.3823 + 0.0002 \text{ нм},$$

где c соответствует нормали к поверхности пленки, тетрагональные искажения для пленок на подложках LAO и STO составляют соответственно 0.7 и -1.5% .

Нейтроннографические эксперименты на керамических образцах того же состава показали [13], что данное соединение при температурах ниже $T_C = 175$ К является коллинеарным ферромагнетиком. Температура зарядового упорядочения составляет $T_0 = 200$ К. Вследствие эпитаксиальных напряжений свойства пленок манганитов обычно отличаются от свойств керамических образцов того же состава [11].

Процесс изотопического обмена ионов кислорода ^{16}O на ионы ^{18}O , проведенный в Курчатовском институте, описан в [5]. В результате обмена примерно 85% ионов кислорода ^{16}O было замещено на ионы кислорода ^{18}O .

Спектры поглощения образцов манганитов исследовались с использованием автоматизированного спектрометра ИКС-21 в области энергий 0.09–0.9 эВ и монохроматора МДР-4 в области энергий 1.0–3.6 эВ. Температурные измерения спектров проведены в диапазоне 80–293 К в режиме нагрева с предварительным охлаждением в магнитном поле и без поля. Магнитное поле до 0.8 Тл прикладывалось нормально к пленке.

Экваториальный эффект Керра (ЭЭК) был измерен в спектральной области 1.5–3.8 эВ и в температурном диапазоне 20–300 К в режиме охлаждения–нагрев при ориентации магнитного поля (0.1 Тл) в плоскости пленки.

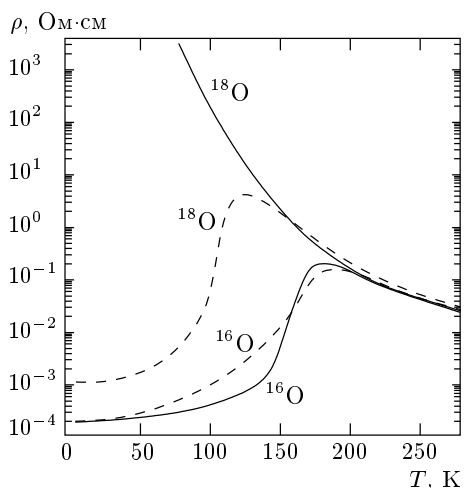


Рис. 1. Температурная зависимость электросопротивления для пленок состава $(La_{0.5}Pr_{0.5})_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ после отжига в ^{16}O и ^{18}O . Штриховые линии — для пленок на подложках $SrTiO_3$ (STO) и сплошные — на $LaAlO_3$ (LAO) [14]

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Как видно из рис. 1, взятого из [14], электросопротивление ρ изучаемых пленок с изотопом ^{16}O на обеих подложках ($^{16}O/LAO$ и $^{16}O/STO$) имеет максимум при 189 К, ниже этой температуры наблюдается переход диэлектрик–металл. Изотопическое замещение не приводит к увеличению сопротивления при комнатной температуре. Однако в области низких температур сопротивление пленки $^{18}O/LAO$ существенно выше сопротивления пленки $^{16}O/LAO$, например, при 80 К более чем на шесть порядков. Для пленок на STO эта разница при той же температуре составляет примерно 1.5 порядка. Если для пленок на подложке STO максимум ρ при изотопическом замещении смещается приблизительно на 60 К, то для пленки $^{18}O/LAO$ он не наблюдается до 4.2 К.

Согласно данным работы [15], измерения сопротивления в режиме охлаждения–нагрев при приложении магнитного поля в плоскости пленки показывают гистерезис, ширина петли которого в поле 1 Тл достигает 60 К.

Изученные нами спектры поглощения пленок ^{16}O и ^{18}O на STO при комнатной температуре (рис. 2) подобны друг другу: имеется широкий максимум при 1.5 эВ, слабый максимум около 0.14 эВ и рост поглощения при энергиях больше 2.5 эВ. Однако при температуре 80 К спектры поглощения пленок ^{16}O и ^{18}O на STO (рис. 3) существенно раз-

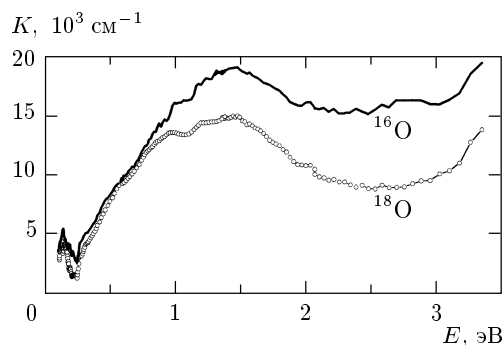


Рис. 2. Спектры поглощения пленок ^{16}O и ^{18}O состава $(La_{0.5}Pr_{0.5})_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ на подложке STO при комнатной температуре

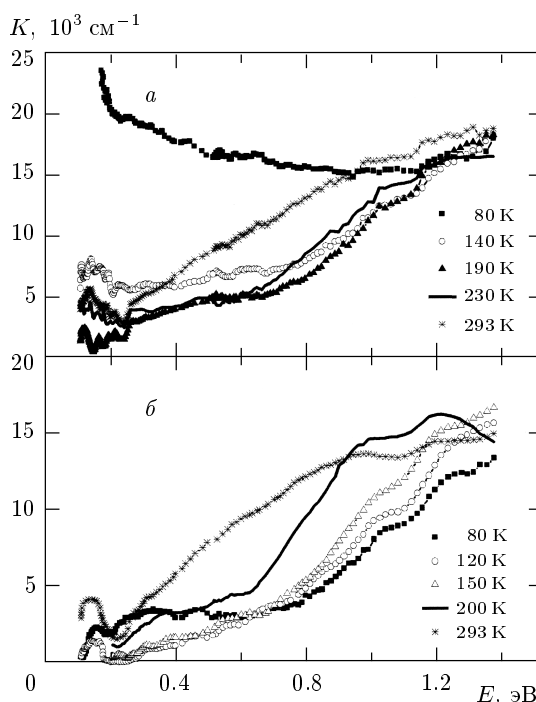


Рис. 3. Спектры поглощения пленок ^{16}O (а) и ^{18}O (б) состава $(La_{0.5}Pr_{0.5})_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ на подложке STO, охлажденных без магнитного поля, при различных температурах

личны. Для пленки ^{16}O (рис. 3а) наблюдается рост поглощения при уменьшении энергии, характерный для взаимодействия света со свободными носителями заряда. Для пленки ^{18}O вклад свободных носителей в поглощение вблизи 0.2 эВ мал. Если низкоэнергетический край полосы поглощения при 1.5 эВ для пленки ^{16}O при всех температурах практически не имеет особенностей, кроме слабовыраженного «плеча» при 1.2 эВ, то, напротив, вид спектров для плен-

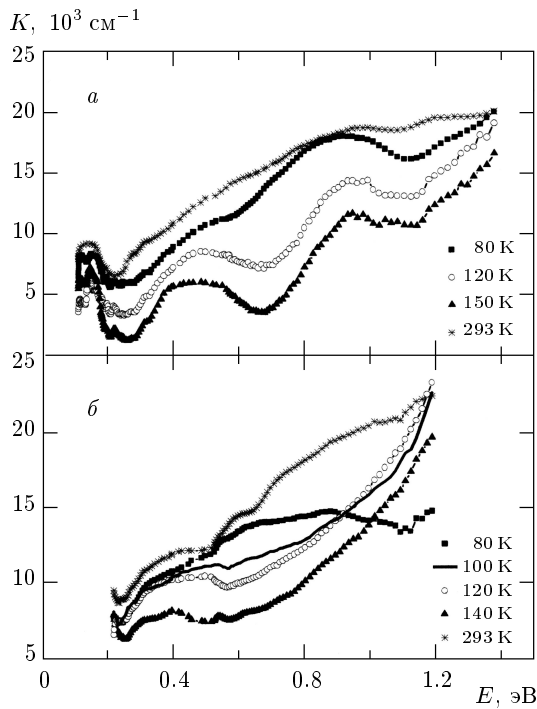


Рис. 4. Спектры поглощения пленок ^{18}O состава $(\text{La}_{0.5}\text{Pr}_{0.5})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ на подложках STO (а) и LAO (б), охлажденных в поле 0.8 Тл, при различных температурах. Кривые разнесены по оси ординат для удобства восприятия

ки ^{18}O в этой области (рис. 3б), особенно после охлаждения в поле (рис. 4а), свидетельствует о сложной структуре края полосы поглощения при 1.5 эВ и наличии локализованных состояний как в парамагнитной, так и в ферромагнитной областях. В спектрах, полученных после охлаждения пленок без приложения магнитного поля, слабовыраженные при комнатной температуре полосы поглощения при 0.95 и 1.2 эВ модифицируются в плечи, которые при охлаждении смещаются в область больших энергий. В спектрах, полученных после охлаждения пленок от комнатной температуры до температуры жидкого азота в поле 0.8 Тл (рис. 4), кроме ярко выраженной полосы поглощения при 0.80–0.95 эВ в области температур 80–150 К имеется полоса при 0.40–0.50 эВ.

Подобные закономерности спектров наблюдаются и для пленок ^{16}O и ^{18}O на подложке LAO. Различие состоит лишь в том, что для пленки $^{18}\text{O}/\text{LAO}$ (рис. 4б) полоса поглощения около 0.9 эВ отчетливо наблюдается лишь при 80 К и имеется некоторое уменьшение энергии полос поглощения по сравнению с пленками на подложке STO. На рис. 5 показана температурная зависимость пропускания света

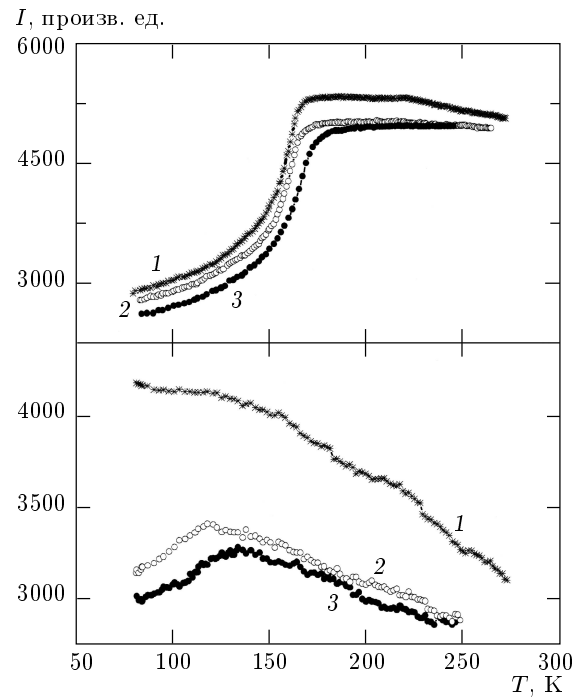


Рис. 5. Температурные зависимости пропускания при энергии 0.4 эВ пленок ^{16}O (а) и ^{18}O (б) на подложке LAO: 1 — охлаждение без поля; 2 — охлаждение в поле; 3 — охлаждение и измерение в магнитном поле 0.8 Тл

для пленок ^{16}O и ^{18}O на LAO. Кривые пропускания для пленки $^{16}\text{O}/\text{LAO}$ в режимах нагрева с предварительным охлаждением как в магнитном поле, так и без него различаются несущественно (рис. 5а). Однако для пленки $^{18}\text{O}/\text{LAO}$ (рис. 5б) монотонная зависимость пропускания в случае охлаждения без поля меняется в режиме охлаждения в поле на зависимость с максимумом примерно при 120 К. Проведенное вслед за этим измерение пропускания в поле 0.8 Тл (с предварительным охлаждением пленки в поле) привело к сдвигу максимума пропускания (кривая 3) к $T \approx 135$ К. Величина магнитопротекания, т. е. отношения изменения пропускания в магнитном поле к величине пропускания без поля, была определена из измерений пропускания после предварительного охлаждения в поле, а затем нагрева с включением–выключением поля в каждой точке. Магнитопротекание пленки $^{16}\text{O}/\text{LAO}$ достигает примерно 6% (рис. 6) в магнитном поле 0.8 Тл, а для пленки $^{18}\text{O}/\text{LAO}$ его значение существенно меньше. Следует заметить, что при повторных измерениях пропускания (поглощения) пленок воспроизводится лишь вид спектральных и температурных зависимостей, абсолютные значения пропускания, как прави-

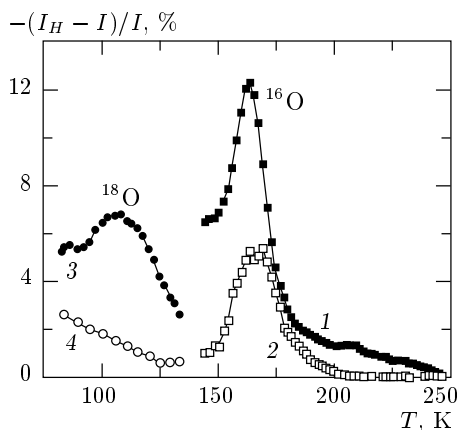


Рис. 6. Магнитопропускание пленок ^{16}O и ^{18}O состава $(\text{La}_{0.5}\text{Pr}_{0.5})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ на подложке LAO при 0.4 эВ: 1, 3 — при постоянном магнитном поле 0.8 Тл; 2, 4 — при включении и выключении поля 0.8 Тл в каждой точке

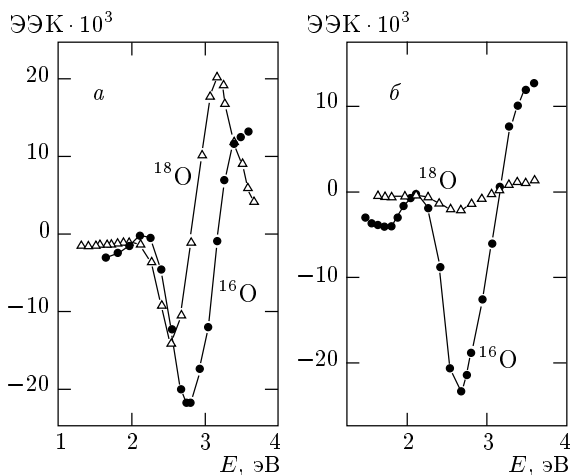


Рис. 7. Спектральные зависимости ЭЭК для пленок ^{16}O и ^{18}O состава $(\text{La}_{0.5}\text{Pr}_{0.5})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ на подложках STO (а) и LAO (б)

ло, систематически изменяются. Наибольшие различия при повторных измерениях, особенно при больших интервалах времени между измерениями, наблюдаются для пленок ^{18}O .

Спектральные зависимости ЭЭК пленок ^{16}O на STO и LAO в области низких температур $T < 80$ К практически одинаковы (рис. 7) и соответствуют спектрам, наблюдаемым для керамических и пленочных образцов $(\text{La}, \text{Pr})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ [9, 16]. Изотопическое замещение приводит к уменьшению ЭЭК, наиболее сильному для пленки ^{18}O на подложке LAO. Для пленки $^{18}\text{O}/\text{STO}$ наблюдается замет-

ная модификация спектра (сдвиг основного экстремума в область низких энергий и появление дополнительного максимума при 3.25 эВ). Такое же изменение спектров наблюдалось в керамиках $(\text{La}_{1-x}\text{Pr}_x)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ при $x = 0.75$ для кривых, полученных в процессе охлаждения [9].

Температурные зависимости ЭЭК, измеренные при энергии 2.9 эВ, значительно различаются для всех четырех пленок (рис. 8). Общей чертой температурных зависимостей является существенный гистерезис при измерениях в режиме нагрев-охлаждение. Температура, ниже которой появляется ЭЭК, т.е. появляется ферромагнитный порядок, близка к температуре максимума сопротивления в режиме нагрева в поле для всех пленок. Величины ЭЭК для пленок ^{16}O на обеих подложках приблизительно равны. Замена изотопа ^{16}O на ^{18}O приводит к уменьшению величины ЭЭК в насыщении. Наименьшая величина ЭЭК наблюдается для пленки $^{18}\text{O}/\text{LAO}$. Сравнение температурной зависимости ЭЭК с температурной зависимостью пропускания при энергии 0.14 эВ (а также при 0.4 эВ) в режиме охлаждения в поле дает близкое соответствие температуры появления ЭЭК и максимума пропускания света для всех пленок. Следует отметить, что при измерении ЭЭК для пленки ^{16}O на подложке STO в области температур 150–200 К наблюдается ЭЭК другого знака по сравнению со знаком эффекта в области низких температур. Измерения ЭЭК со стороны подложки не показали изменение знака. Этот факт является прямым доказательством появления поверхностного магнетизма в данных пленках.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

4.1. Электронная структура допированных манганитов

Традиционный подход к электронной структуре манганитов предполагает применимость стандартных зонных моделей с учетом сильного электронно-колебательного взаимодействия. «Физика низких энергий» допированных манганитов (в масштабе примерно до 4 эВ) определяется при этом e_g -состояниями иона Mn, которые связаны сильным хундовским обменом с локализованными t_{2g} -состояниями Mn, а также ян-теллеровским взаимодействием с решеткой. Модель двойного обмена с сильным ян-теллеровским взаимодействием предполагает, таким образом, зонный Mn_{e_g} -ха-

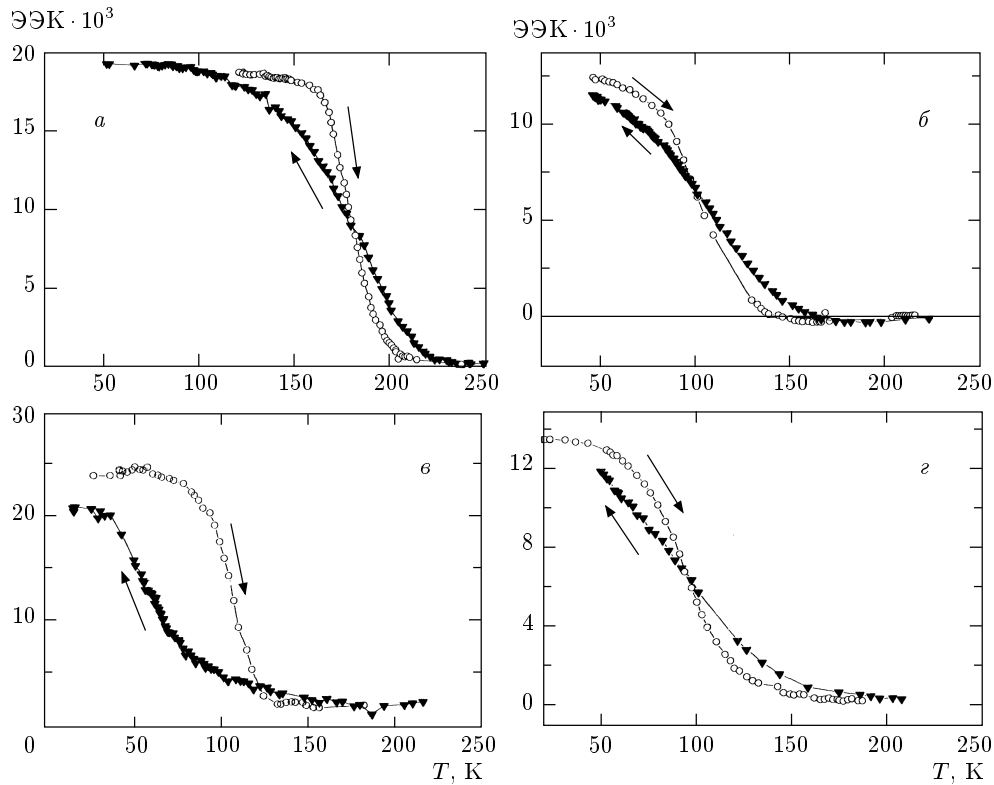


Рис. 8. Температурные зависимости ЭЭК для пленок ^{16}O (а, б) и ^{18}O (в, г) состава $(\text{La}_{0.5}\text{Pr}_{0.5})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ на подложках STO (а, в) и LAO (б, г), полученные в процессе охлаждения-нагрев (направление изменения температуры указано стрелками)

рактически допированных дырок в системах типа $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$.

Экспериментальные факты, однако, не столь однозначно позволяют определить характер допированных дырок в этих системах. Так, исследование спектра электронных энергетических потерь вблизи перехода $\text{O}_{1s}-\text{O}_{2p}$ в $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ привело авторов работы [17] к неожиданному выводу об O_{2p} -характере дырочных носителей в этой системе в широкой области допирования ($0 \leq x \leq 0.7$). Об этом же свидетельствуют и результаты исследования [18] обменного расщепления $3s$ -состояния Mn в рентгеновских электронных спектрах, весьма чувствительного к валентному состоянию марганца. Авторы работы [18] показали, что величина обменного расщепления $3s$ -состояния Mn в системах типа $\text{La}_{1-y}\text{MnO}_3$, $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ практически не меняется при изменении формальной валентности Mn от 3.0 до 3.3. В этой же работе получены убедительные свидетельства в пользу появления ионов Mn^{2+} в кислород-дефицитных составах типа $\text{LaMnO}_{3-\delta}$. При низком уровне легирования ($x < 0.3$) в рент-

геновских фотоэмиссионных $K\beta$ -спектрах Mn системы $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ [19] наблюдается «моновалентное» Mn^{3+} -состояние марганца и, соответственно, наиболее вероятен O_{2p} -характер дырок. При высоких уровнях легирования ($x > 0.3$) эти спектры, напротив, указывают, скорее всего, на смешанновалентное состояние $\text{Mn}^{3+}-\text{Mn}^{4+}$ в соотношении, отвечающем величине x , что означает преимущественно Mn_{3d} -характер допированных дырок.

Наблюдаемый экспериментально перенос спектральной плотности из высокоэнергетической полосы с переносом заряда, $\text{O}_{2p}-\text{Mn}_{3d}$, в область меньших энергий при дырочном допировании согласуется с представлениями о появлении при этом значительной концентрации O_{2p} -дырок.

На возможно еще более сложный характер транспортных процессов в допированных манганитах указывают результаты высокотемпературных исследований LaMnO_3 [20], свидетельствующих в пользу неустойчивости манганитов относительно реакции диспропорционирования, которую условно можно представить как реакцию



образования дырочных и электронных центров, структура которых предполагает смешанную валентность марганца типа $\text{Mn}^{3+}\text{--Mn}^{4+}$ для дырочных центров.

В целом, характер зарядовых флуктуаций в манганитах с КМС остается одним из центральных дискуссионных вопросов теории и эксперимента. Состояние с $x = 0.3$ в случае нашего состава $(\text{La}, \text{Pr})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ отвечает, скорее всего, смешанному $\text{Mn}_{3d}\text{--O}_{2p}$ -характеру зарядовых флуктуаций.

4.2. Электронная неоднородность, разделение фаз и перколяционные явления в манганитах

Все нарастающее количество экспериментальных фактов свидетельствует в пользу формирования в допированных манганитах, как и во многих других сильнокоррелированных оксидах типа купратов, никелатов, ванадитов, сложного неоднородного состояния, для которого характерен дуализм металл-диэлектрик.

В широком смысле такие системы можно характеризовать неким самосогласованным распределением различных зарядовых, спиновых, орбитальных и структурных флуктуаций со своими временами жизни и корреляционными длинами. Введение приближения эффективной однородной среды для описания систем с сильно развитыми статическими и динамическими флуктуациями может быть спорным.

Гетеровалентное легирование в манганитах приводит к формированию мощных локальных неоднородностей потенциала. Соответствующие потенциальные ямы могут служить не только центрами локализации дырок (или электронов), но и центрами зародышеобразования для фазы, обеспечивающей максимально эффективное экранирование зарядовой неоднородности. Такие центры зарядовой неоднородности могут иметь сложную структуру с различным характером зарядовых, спиновых и орбитальных флуктуаций. С ростом концентрации легирующих ионов (Ca^{2+} , Sr^{2+} , . . .), а значит, и центров зарядовой неоднородности растет их перекрывание, которое может приводить к росту корреляционной длины тех или иных зарядовых, спиновых или орбитальных флуктуаций с последующим формированием соответствующего дальнего порядка. В простейшем случае, когда центры зарядовой неоднородности можно рассматривать как микрообласти новой

(ферромагнитной металлической) фазы, этот процесс может быть описан в рамках модели перколяционного фазового перехода. В этой модели проводимость, как и ряд других величин вблизи предела перколяции, представляется в виде степенной функции некоторого «геометрического параметра порядка» $p - p_c$ [21], в качестве которого в простейшем случае можно рассматривать отклонение объемной доли p металлической фазы от критического значения p_c , соответствующего пределу перколяции. Например,

$$\sigma \propto (p - p_c)^t, \quad (1)$$

где t — критический показатель [21]. В свою очередь, геометрический параметр порядка вблизи предела перколяции можно связать с концентрацией центров зарядовой неоднородности:

$$p - p_c \propto (x - x_c)^a,$$

где x_c — критическая концентрация, так что

$$\sigma \propto |x - x_c|^{at}.$$

Для критической температуры T_{MI} разрушения перколяции и перехода металл-диэлектрик при $p \geq p_c$ также можно написать

$$T_{MI} \approx T_{MI}^0 (p - p_c)^\gamma, \quad (2)$$

где γ — критический показатель, а T_{MI}^0 — некоторая характерная температура, определяемая микроскопическими транспортными параметрами.

В работе [22] показано, что концентрационная зависимость низкотемпературной проводимости $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ в области $x < 0.3$ может быть представлена в виде

$$\sigma(x) \propto (x - x_c)^{at}$$

с критическим значением концентрации $x_c = 0.174$ и $at = 0.5$, что хорошо укладывается в рамки перколяционной модели.

Принципиальной особенностью рассматриваемого варианта перколяционной модели манганитов с КМС является (ферро)магнитный характер металлических областей, что приводит к ряду аномалий магнитного поведения. Прежде всего, это эффект, связанный с резким ростом относительного объема металлических ферромагнитных областей при температурах ниже критической температуры T_C^0 «локального» ферромагнитного упорядочения. При этом температурная зависимость намагниченности, а также кривая намагничивания будут отражать результат наложения двух эффектов — «внутреннего»

эффекта упорядочения спинов в металлических областях и «внешнего» эффекта увеличения объема магнитоупорядоченной фазы с характерной эффективной «температурой Кюри» $T_C < T_C^0$. В простейшей модели роль T_C может выполнять температура максимума среднего коэффициента «теплового расширения» металлической магнитоупорядочивающейся фазы, $\alpha(T) = \partial p / \partial T$. Именно внешний эффект может привести и к перколяционному переходу диэлектрик–металл при $T_{MI} < T_C^0$. В общем случае температуры T_{MI} и T_C могут несколько различаться.

Перколяционный переход металл–диэлектрик с критическим значением $p = p_c$ объема металлической фазы в манганитах с КМС может быть сдвинут в сторону как меньших, так и больших значений концентрации x двухвалентных элементов, например, соответствующим подбором ионных радиусов легирующих ионов, создающим условия для относительного понижения энергии металлической или диэлектрической фазы. Эти условия выполняются, в частности, для состава $\text{La}_{5/8-y}\text{Pr}_y\text{Ca}_{3/8}\text{MnO}_3$ с $y = 3/8$ [23] и для нашего состава. Все особенности тепловых, электронных и магнитотранспортных свойств $\text{La}_{5/8-y}\text{Pr}_y\text{Ca}_{3/8}\text{MnO}_3$ связаны с преобладающим вкладом перколяционной проводимости через ферромагнитные металлические области, которые сосуществуют с зарядово-упорядоченными изолирующими областями. Отметим, что перколяционный переход сопровождается сильными флуктуациями геометрического параметра порядка, а также аномальными релаксационными явлениями, гистерезисом, эффектами памяти.

Измерения $1/f$ -шумов в поликристаллических и монокристаллических образцах $(\text{La, Pr})_{5/8}\text{Ca}_{3/8}\text{MnO}_3$ [24] с низкими значениями эффективной температуры магнитного упорядочения T_C указывают на перколяционный механизм перехода из неоднородного зарядово-упорядоченного состояния в металлическое ферромагнитное. Прежде всего, нужно отметить ряд особенностей, характерных для фазовых переходов первого рода, включая сильный температурный гистерезис сопротивления и намагниченности. В отличие от поведения, типичного для перехода в однородных системах, намагниченность в изучаемых кристаллах изменяется вблизи T_C плавно и примерно линейно зависит от $T_C - T$ даже в слабом магнитном поле. Анализ скэйлингового поведения $1/f$ -шумов и сопротивления согласуется с предсказаниями перколяционной модели о разделении фаз с областями проводящей фазы, хаотически распре-

деленными в изолирующей матрице. Интересно, что авторы работы [24] обнаружили различие в критическом поведении поли- и монокристаллических образцов. Величины сопротивлений в обоих случаях близки, однако ρ для монокристаллов как функция температуры показывает воспроизводимые скачки вблизи T_C с изменением сопротивления более чем на порядок. Авторы предположили, что скачки обусловлены настолько большим размером проводящих областей в монокристалле по сравнению с поликристаллом, что они уже не могут считаться достаточно малыми по сравнению с размерами системы, как это предполагается в перколяционных моделях.

4.3. Перколяция и гигантский изотопический эффект в допированных манганитах

Изотопическое замещение в однородной системе не должно приводить к сколь-нибудь заметным изменениям оптических свойств за пределами фононного спектра. Действительно, ни энергетический спектр оптически активных центров, ни силы осцилляторов оптических переходов практически не меняются при таком замещении. Основной эффект изотопического замещения связан с колебаниями решетки, поэтому сильные эффекты следует ожидать только для систем с сильным электрон-фононным взаимодействием или для ян-теллеровских систем. Изотопическое замещение ^{16}O – ^{18}O благодаря большому относительному изменению массы изотопа (12.5%) приводит, с одной стороны, к заметной стабилизации (псевдо)ян-теллеровских центров (ян-теллеровских поляронов), а с другой стороны — к существенной вибронной редукации различных электронных матричных элементов, в частности интегралов переноса электрона (дырки). Все эти проявления изотоп-замещения можно связать с вибронным механизмом изотоп-эффекта. Для однородной регулярной решетки это приводит к увеличению эффективной массы ян-теллеровских поляронов и способствует их локализации, в частности, с небольшой модификацией соответствующего спектра поляронного ИК-поглощения. Однако для неоднородных систем с разделением фаз изотопическое замещение ^{16}O – ^{18}O будет сопровождаться дополнительным эффектом роста относительного объема диэлектрической фазы локализованных ян-теллеровских поляронов, сопровождаемым аномальными явлениями вблизи перколяционного предела. Именно с этим «перколяционным» механизмом может быть связан аномальный от-

клик на изотопическое замещение в системах с разделением фаз [2, 3]. Выражение (1) позволяет установить соотношение между константой α изотоп-эффекта по критической температуре перехода металл–изолятор T_{MI} и p , справедливое вблизи перколяционного предела ($x \geq x_c$)

$$\alpha_0 = \left(-\frac{\partial \ln T_{MI}}{\partial \ln M_0} \right) \approx \left(-\frac{\partial \ln T_{MI}^0}{\partial \ln M_0} \right) + \gamma \frac{p_c}{p - p_c} \left(-\frac{\partial \ln p}{\partial \ln M_0} \right) = \alpha_{vibr} + \alpha_{perc}. \quad (3)$$

Другими словами, изотоп-эффект включает два аддитивных вклада — вибранный (α_{vibr}) и перколяционный (α_{perc}). Первый имеет чисто микроскопическое электронное происхождение и описывает влияние изотоп-замещения на микроскопические параметры электронного транспорта, тогда как второй отражает разделение фаз и изотопическое изменение относительного объема фаз. Принципиальным следствием из соотношения (3) является вывод о появлении степенной расходимости,

$$\alpha_{perc} \propto |x - x_c|^{-\alpha},$$

константы α изотоп-эффекта вблизи критической точки, соответствующей перколяционному пределу. Именно этот факт близости к пределу перколяции может объяснить наблюдаемые anomalously большие значения константы изотоп-эффекта в серии $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ при $x_c \approx 0.18$ [4]. В этой системе характеры температурной зависимости намагниченности в слабом внешнем магнитном поле и концентрационной зависимости константы изотоп-эффекта по эффективной температуре Кюри (определяемой как температура, при которой намагниченность достигала половины максимума) как при $x > x_c$, так и при $x < x_c$ вполне соответствуют предсказаниям перколяционной модели. Константу $\alpha_p = -\partial \ln p / \partial \ln M_0$ изотоп-эффекта по относительному объему фаз можно рассматривать как своеобразный коэффициент «изотопической податливости» системы с разделением фаз, характеризующий влияние изотоп-замещения на относительный объем фаз и эффективность перколяционного изотоп-эффекта. Отметим, что большие значения этой величины вдали от предела перколяции могут тем не менее сопровождаться относительно небольшим вкладом в изотоп-эффект для T_C .

4.4. Оптические свойства манганитов

В отличие от многих типичных систем на основе $3d$ -элементов, для манганитов с КМС характер-

ны anomalously сильные флуктуации зарядового состояния и кристаллических полей в подрешетке как Mn_{3d} , так и в O_{2p} , а также многофазное состояние с сосуществованием металлических и диэлектрических областей. Все это существенно усложняет интерпретацию оптических свойств этих систем. Так, модель разделения фаз предполагает существование оптически неоднородной среды, многие свойства которой будут аналогичными известным и активно исследуемым диэлектрическим системам типа стекол с металлическими включениями [25–27]. В частности, это появление (квази)древеской оптической проводимости с интегральным весом, пропорциональным объему p металлических областей. Наряду с (квази)древесским вкладом носителей в оптике манганитов будут проявляться и достаточно узкие резонансные переходы в дырочных и электронных центрах. Исследование оптических свойств манганитов дает важный инструмент изучения их электронного строения и многофазной структуры.

В спектрах оптической проводимости нелегированного манганита LaMnO_3 выделяются низкоэнергетическая полоса 2.4 эВ и высокоэнергетическая полоса 5.2 эВ [28], которые естественно связать соответственно с $d-d$ -переходом ${}^5E_g \rightarrow {}^5T_{2g}$ в ионах Mn^{3+} и нижним из разрешенных переходов с переносом заряда $\text{O}_{2p} \rightarrow \text{Mn}_{3d}$ в октаэдрических комплексах $(\text{MnO}_6)^{9-}$ [29]. Введение ионов Ca^{2+} , Sr^{2+} (дырочное допирование) приводит к существенной перестройке оптических свойств в широком спектральном диапазоне. Интенсивность низкоэнергетической полосы 2.4 эВ резко уменьшается, а высокоэнергетическая полоса постепенно смещается в область меньших энергий. Спектральный вес в целом перемещается в инфракрасную область с отчетливо выраженным пиком при 1.5 эВ [28, 30]. Природа этого пика обсуждалась различными авторами. Согласно [28], он связан с переходом с переносом заряда $\text{O}_{2p} \rightarrow \text{Mn}_{3d}$, тогда как большинство авторов связывают его с различными одноцентровыми, либо двухцентровыми $d-d$ -переходами. Так, по мнению авторов работы [31] эта полоса поглощения, вероятно, связана с непрямыми переходами между занятыми ($e_{g\uparrow}^{(1)}$) и пустыми ($e_{g\uparrow}^{(2)}$) состояниями (состояния ($e_g^{(1)}$) и ($e_g^{(2)}$) принадлежат e_g -зоне ионов Mn^{3+} , расщепленной ян-теллеровским взаимодействием). Такой электродипольный $d-d$ -переход возможен из-за гибридизации e_g -состояний марганца и $2p$ -состояний кислорода. Сдвиг полосы и рост величины коэффициента ИК-поглощения в области ферромагнитного упорядочения связаны при этом с появлением вклада зон-

ных носителей и перераспределением спектрального веса из высокоэнергетической в низкоэнергетическую область [32]. На наш взгляд, этот переход может быть связан и с $d-d$ -переходом ${}^5E_g-{}^5T_{2g}$ в ионах Mn^{3+} , кристаллическое поле для которых в допированных образцах экранировано дырочной плотностью, частично локализованной на окружающих ионах кислорода. Действительно, частичная экранировка отрицательного заряда ионов кислорода будет приводить к понижению параметра кристаллического расщепления, что, в свою очередь, вполне может привести к уменьшению энергии ${}^5E_g-{}^5T_{2g}$ -перехода со значения 2.4 эВ в чистом манганите примерно до 1.5 эВ в замещенных составах.

Основная часть оптической информации в манганитах получена путем измерения и обработки спектров отражения, что не позволяет обнаружить и тем более исследовать многие важные особенности, связанные с относительно слабыми, но весьма информативными $d-d$ -переходами и запрещенными переходами с переносом заряда. В частности, это касается переходов в ионах Mn^{4+} или в октаэдрических комплексах $(MnO_6)^{8-}$, появление которых в системах типа $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ является следствием дырочного допирования. Магнитооптическая активность таких переходов в пироклорах $A_2Mn_2O_7$ с октаэдрическими комплексами $(MnO_6)^{8-}$ в спектральном диапазоне 1.5–4.5 эВ исследовалась в работе [33] с помощью эффекта Керра. Были обнаружены полосы вблизи 2.6 и 3.1 эВ, приписанные $d-d$ -переходам ${}^4A_{2g}-{}^4T_{2g}$ и ${}^4A_{2g}-{}^4T_{1g}$ соответственно в ионах Mn^{4+} и октаэдрических комплексах $(MnO_6)^{8-}$. Полоса вблизи 3.8 эВ и очень интенсивная полоса с максимумом $E \geq 4.3$ эВ могут быть отнесены при этом соответственно к запрещенному и разрешенному переходам с переносом заряда. Эта классификация в целом согласуется и с данными работы [34] по ряду систем с Mn^{4+} .

Результаты одного из первых измерений эффекта Фарадея в манганитах на примере системы $La_{1-x}Ca_xMnO_3$ в области 1.5–3.0 эВ были приведены в работе [35]. Авторы отметили наличие большого фарадеевского вращения с максимумами вблизи перехода ${}^5E_g-{}^5T_{2g}$ в ионах Mn^{3+} (1.5 эВ) и перехода с переносом заряда (3.1 эВ). Исследования магнитооптического эффекта Керра для системы $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ в области 0.9–5.3 эВ проведены в работе [36]. Спектральные зависимости комплексного полярного эффекта Керра, а точнее — рассчитанные на их основе недиагональные компоненты тензора диэлектрической проницаемости, были обработаны в простейшей «двухосцилляторной» модели.

Эта модель удовлетворительно описывает низкочастотную полосу с пиком при 1.2 эВ, однако в области 2–5 эВ расхождение между наблюдаемым спектральным поведением и вкладом одного модельного «осциллятора» с энергией 3.1 эВ выходит далеко за рамки ошибки. Авторы приписали магнитооптическую активность в исследуемом диапазоне вкладу переходов с переносом заряда $O_{2p}-Mn_{3d}$. При измерении экваториального эффекта Керра (ЭЭК) для системы $La_{1-x}Pr_x)_{0.7}(CaSr)_{0.3}MnO_3$ было установлено, что за магнитооптическую активность этих соединений ответственны переходы в октаэдрических комплексах Mn^{3+} и Mn^{4+} [9, 16].

В целом, для допированных манганитов в спектральной области 2–3 эВ следует ожидать сильную магнитооптическую активность ионов Mn^{3+} и Mn^{4+} , с которыми связываются уникальные свойства этих оксидов.

Рассмотрим общие особенности оптических и магнитооптических спектров исследованных нами пленок. Спектры поглощения, представленные на рис. 3 и 4, свидетельствуют о сложном характере полосы вблизи 1.5 эВ, на ее низкоэнергетическом краю четко проявляется вклад локализованных состояний. Полосы локализованных состояний, так называемые MIR-полосы (middle infrared band), являются общей особенностью оптического поглощения многих оксидов переходных металлов — сильно коррелированных систем. Две полосы, описанные выше, при 0.14 и 0.45 эВ, наблюдались нами в спектрах поглощения монокристаллов $La_{0.9}MnO_3$ и $(La_{0.9}Sr_{0.1})_{0.9}MnO_3$ [10, 37]. Полоса оптической проводимости при энергии 0.4 эВ имеет место для монокристалла $La_{0.9}Sr_{0.1}MnO_3$ [30] и поликристалла $La_{7/8}Sr_{1/8}MnO_3$ [31] и связывается с полярным. Фононное поглощение в манганитах со структурой перовскита происходит при энергиях меньше 0.09 эВ. Существование полос локализованных состояний при высокой концентрации носителей, создаваемой при легировании, не может быть объяснено одноэлектронной зонной моделью. Существование таких полос параллельно с друдевским (или квазидрудевским) вкладом является важным аргументом в пользу электронной неоднородности системы и разделения фаз.

Природа полос локализованных состояний и многие особенности свойств оксидов переходных металлов успешно объясняются на основе кластерной модели [2], предполагающей существование в манганитах электронных и дырочных псевдо-ян-теллеровских кластеров с двухэлектронной (бозонной, биполярной) природой носителей.

Переходы в основных кластерах $[\text{MnO}_6^{8-}]$ формируют полосу фундаментального поглощения (выше 3 эВ), а низкоэнергетические переходы в дырочном и электронном кластерах соответствуют MIR-полосам. Происхождение MIR-полос связано с сильным корреляционным эффектом при введении дополнительной дырки (электрона) в основной кластер, приводящим к псевдовыврождению энергии состояний с дыркой (электроном), локализованной в состояниях Mn_{3d} и O_{2p} , а значит, резонансу валентности (типа $\text{Mn}^{4+}-\text{Mn}^{3+}$ в дырочном кластере) и понижению энергии перехода с переносом заряда. Фактически, MIR-полосы при этом связываются с переходами с переносом заряда $\text{Mn}_{3d}-\text{O}_{2p}$ внутри электронных и дырочных кластеров.

Дырочные и электронные кластеры MnO_6 в модели [2] образуют центры зарядовой неоднородности, которые могут иметь сложную структуру и содержать различное количество кластеров. Энергетические состояния полярных кластеров, а значит, и центров зарядовой неоднородности, определяются зарядовыми, спиновыми и орбитальными степенями свободы. Поэтому центры зарядовой неоднородности по сути являются большими ян-теллеровскими магнитными поляронами. Их образованию способствуют локальные неоднородности потенциала, возникающие в результате неизоэлектронного замещения или создания вакансий. Именно с формированием центров зарядовой неоднородности можно связать зародышеобразование металлической фазы в манганитах со структурой перовскита, а значит, статическое и/или динамическое разделение фаз [2].

Представленные в данной работе результаты могут быть объяснены в рамках модели из [2]. Действительно, полоса при 0.14 эВ в монокристаллах $\text{La}_{0.9}\text{MnO}_3$ и $(\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1})_{0.9}\text{MnO}_3$ была приписана нами переходам в дырочном кластере MnO_6^{8-} , а полоса при 0.4 эВ — переходам в соответствующем электронном кластере [10]. Другое возможное объяснение полосы при 0.4 эВ — это результат делокализации полярных кластеров [2], т. е. быстрого двух-электронного обмена в паре, состоящей из электронного и дырочного кластеров, что может приводить к образованию единой полосы, центрированной при энергии

$$\Delta_M = c_e \Delta_e + c_h \Delta_h,$$

где $c_{e,h}$ и $\Delta_{e,h}$ — концентрация и энергия пиков MIR-полос для электронов и дырок. Если предположить, что с переходами в электронном кластере связана полоса при 0.95 эВ, т. е. в нашем случае $\Delta_h = 0.14$ эВ, а $\Delta_e = 0.95$ эВ, то

$\Delta_M \approx (\Delta_h + \Delta_e)/2 \approx 0.5$ эВ. Такая делокализация сопровождается увеличением проводимости и образованием Друде-подобного металлического вклада. Именно эта ситуация наблюдается ниже перехода металл-диэлектрик, при котором возникает дополнительное поглощение в области 0.2 эВ. Поглощение в области дырочного пика при 0.14 эВ также увеличивается ниже перехода металл-диэлектрик, что может быть за счет как увеличения Друде-подобного вклада, так и изменения интенсивности самого пика.

Как видно из рис. 5, интенсивность полос поглощения при 0.14 и 0.4 эВ сильно зависит от магнитного порядка, поэтому полосы локализованных состояний можно связать с магнитными поляронами. В общем случае интенсивность поляронных полос поглощения отражает проводимость в системе поляронов. Подобная температурная зависимость для полос поглощения при 0.14 и 0.4 эВ (на рис. 5 представлена температурная зависимость только для полосы при 0.4 эВ), как и в случае монокристаллов $\text{La}_{0.9}\text{MnO}_3$ и $(\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1})_{0.9}\text{MnO}_3$ [2, 10], указывает на принадлежность полос одному образованию — центру зарядовой неоднородности, содержащему электронные и дырочные кластеры. Следует отметить, что выявить закономерности температурной зависимости интенсивности полосы поглощения при 0.9 эВ не удается из-за ее сдвига при изменении температуры (см. рис. 3 и 4) и из-за наложения на нее других полос поглощения.

Сопоставляя спектр ЭЭК пленок ^{18}O на LAO и STO (см. рис. 7) со спектрами поглощения этих пленок (см. рис. 3 и 4), заметим, что одновременно с появлением интенсивной полосы при 0.9 эВ в спектре поглощения пленки $^{18}\text{O}/\text{STO}$ наблюдается и сдвиг спектра ЭЭК в сторону меньших энергий. Эти явления, по-видимому, взаимосвязаны. В предположении, что полоса при 0.9 эВ связана с низкоэнергетическими переходами в электронных кластерах, увеличение ее интенсивности для пленки $^{18}\text{O}/\text{STO}$ означает рост числа электронных кластеров. Изменение соотношения дырочных и электронных кластеров в центрах зарядовой неоднородности (в ферромагнитных областях) может изменить энергии переходов в кластерах Mn^{3+} и Mn^{4+} из-за изменения величины экранировки кристаллического поля за счет носителей, что должно приводить к изменению спектральной зависимости ЭЭК. В пленке $^{18}\text{O}/\text{LAO}$ полоса при 0.9 эВ менее выражена и сдвига в спектральной зависимости ЭЭК нет (см. рис. 7). Уменьшение ЭЭК при изотоп-обмене обусловлено уменьшением объемной доли ферромагнитных областей за счет зарядово-упорядоченных антиферромагнитных облас-

тей. Различие в величинах уменьшения ЭЭК для пленок на LAO и STO, по-видимому, связано с различными процессами локализации носителей в пленках и вызвано различным характером напряжений, возникающих в пленках на разных подложках.

В ряде работ [8, 10] нами было показано, что уменьшение оптического пропускания в области взаимодействия с носителями заряда при охлаждении ниже температуры Кюри («металлический» вклад) при сохранении полупроводникового характера зависимости $\rho(T)$ на постоянном токе является доказательством разделения фаз, т. е. существования металлических капель в изолирующей матрице. Сопоставление оптических и магнитооптических данных с данными по измерению электросопротивления показывает, что наиболее ярко разделение фаз проявляется в пленке $^{18}\text{O}/\text{LAO}$. Действительно, пропускание этой пленки (охлаждение в поле) уменьшается ниже 120 К (см. рис. 5), демонстрируя наличие «металлического» вклада, связанного с переходом диэлектрик–металл. Для этой же пленки рост ЭЭК начинается ниже 125 К (см. рис. 8). Таким образом, пропускание и эффект Керра свидетельствуют о наличии ферромагнитных проводящих областей в пленке $^{18}\text{O}/\text{LAO}$. Однако электросопротивление этой пленки в нулевом магнитном поле продолжает монотонно увеличиваться ниже 125 К (см. рис. 1). Эти факты являются подтверждением того, что оптические методы оказываются более чувствительными к малому количеству ферромагнитных металлических капель в изолирующей матрице, чем электросопротивление.

Замещение изотопа ^{16}O на ^{18}O , с точки зрения оптических свойств, приводит к уменьшению вклада, связанного со свободными носителями, и усилению интенсивности полос локализованных состояний, т. е. к существенной локализации носителей. Природа такой локализации, по-видимому, носит перколяционный характер [2, 3]. Система, находящаяся вблизи порога перколяции, оказывается исключительно чувствительной к различным воздействиям (свет, электрическое поле, внешнее давление и т. д.). Этим воздействием в данном случае является замена изотопа ^{16}O на ^{18}O . В результате такой замены объемная доля ферромагнитных металлических капель уменьшается, а антиферромагнитных зарядово-упорядоченных областей растет. Полагая, что носителями являются поляроны, локализацию носителей при увеличении массы кислорода можно объяснить сужением поляронной зоны [3].

Приложение магнитного поля при охлаждении пленки является дополнительным воздействием,

сильно влияющим на характер неоднородного многофазного состояния, приводя, в частности, к росту объема и размера металлических ферромагнитных областей, что, в свою очередь, вызывает увеличение интенсивности MIR-полос с одновременным подавлением эффектов неоднородного уширения, характерного для малых металлических капель. Кривые зависимости ЭЭК от температуры в режиме нагрева (после охлаждения в поле) вблизи T_C имеют более резкий спад.

При измерении магнитопротекания переключение поля в каждой точке (см. рис. 6) приводит к тому, что релаксация в системе носителей не успевает произойти за время измерения, поэтому величина магнитопротекания значительно (не менее чем в два раза) меньше, чем рассчитанная из кривых на рис. 5 при приложении постоянного поля во время нагрева пленки от 80 К до комнатной температуры. Существование долговременной релаксации и невозвратных явлений — один из важнейших признаков неоднородных систем.

Сильное различие в результатах изотопического замещения для пленок на LAO и STO связано с различным характером напряжений, возникающих в пленках на разных подложках: растягивающих для подложки STO и сжимающих для подложки LAO. Это обусловлено тем, что в плоскости пленки параметр a подложки LAO больше, а для STO меньше, чем параметр пленки [14, 38]. С этим обстоятельством связан и различный характер магнитной анизотропии пленок на подложках STO и LAO, о чем свидетельствует, в частности, появление ЭЭК другого знака в области температур $145\text{ K} < T < 205\text{ K}$ для пленки $^{16}\text{O}/\text{STO}$.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Температура, внешнее магнитное поле, изотопическое замещение, облучение светом в допированных манганитах приводят к радикальной перестройке оптического спектра в широкой спектральной области до 5 эВ. С учетом чрезвычайно малого масштаба энергии этих возмущений, особенно в случае внешнего магнитного поля и изотопического замещения, объяснение этих аномалий может быть связано с перколяционными явлениями.

Проведенные в работе оптические и магнитооптические исследования эпитаксиальных пленок $(\text{La}_{0.5}\text{Pr}_{0.5})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ с замещением части кислорода ^{16}O на ^{18}O действительно свидетельствуют в пользу модели разделения фаз и перколяционного характера изменений, возникающих при изотопическом замещении. Наблюдаемые спектральные

особенности интерпретированы в рамках модели псевдо-ян-теллеровских электронных и дырочных кластеров.

Авторы благодарят Н. А. Бабушкину за проведение изотоп-замещения. Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (проект 99-02-16595) и INTAS (проекты 97-30252 и 97-11954).

ЛИТЕРАТУРА

1. Э. Л. Нагаев, УФН **166**, 833 (1996).
2. A. S. Moskvina, Physica B **252**, 186 (1998).
3. D. Khomskii, Physica B **280**, 325 (2000).
4. G. Zhao, K. Conder, H. Keller, and K. A. Müller, Nature **381**, 676 (1996); Phys. Rev. B **60**, 11914 (1999).
5. N. A. Babushkina, L. M. Belova, O. Yu. Gorbenko et al., Nature **391**, 159 (1998).
6. N. A. Babushkina, L. M. Belova, A. N. Taldenkov et al., J. Phys.: Condens. Matter **11**, 5865 (1999).
7. G. Zhao, H. Keller, J. Hofer et al., Sol. St. Comm. **104**, 57 (1997); M. R. Ibarra, G. Zhao, J. M. De Teresa et al., Phys. Rev. B **57**, 7446 (1998).
8. Н. Н. Лошкарева, Ю. П. Сухоруков, С. В. Наумов и др., Письма в ЖЭТФ **68**, 89 (1998).
9. E. A. Gan'shina, O. Yu. Gorbenko, A. R. Kaul et al., J. Phys.: Condens. Matter **12**, 2857 (2000).
10. Н. Н. Лошкарева, Ю. П. Сухоруков, Э. А. Нейфельд и др., ЖЭТФ **117**, 440 (2000).
11. O. Yu. Gorbenko, A. R. Kaul, A. A. Bosak et al., HTSC and Novel Inorganic Materials (NATO ASI series), 233 (1999).
12. B. Guettler, L. Skuja, O. Yu. Gorbenko et al., MRS Proceedings **517**, 111 (1998).
13. А. М. Балагуров, В. Ю. Помякушин, В. Л. Аксенов и др., Письма в ЖЭТФ **67**, 672 (1998).
14. O. Yu. Gorbenko, A. R. Kaul, N. A. Babushkina et al., Aust. J. Phys. **52**, 269 (1999).
15. N. A. Babushkina, L. M. Belova, D. I. Khomskii et al., Phys. Rev. B **59**, 6994 (1999).
16. E. A. Gan'shina, O. Yu. Gorbenko, N. A. Babushkina et al., in *Non-Linear Electromagnetic Systems*, IOS Press, Amsterdam (1998), p. 325
17. H. L. Ju, H.-C. Sohn, and Kannan M. Krishnan, Phys. Rev. Lett. **79**, 3230 (1997).
18. V. R. Galakhov, M. Demeter, S. Bartkowski et al., submitted to Phys. Rev. Lett.
19. T. A. Tyson, Q. Qian, C.-C. Kao et al., Phys. Rev. B **60**, 4665 (1999).
20. J.-S. Zhou and J. B. Goodenough, Phys. Rev. **60**, R15002 (1999).
21. D. Stauffer and A. Aharoni, *Introduction to Percolation Theory*, Taylor and Francis, London (1992).
22. A. Urushibara, Y. Moritomo, T. Arima et al., Phys. Rev. B **51**, 14103 (1995).
23. K. H. Kim, M. Uehara, C. Hess et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 2961 (2000).
24. V. Podzorov, M. Uehara, M. E. Gershenson et al., Phys. Rev. B **61**, R3784 (2000).
25. J. A. A. Perenboom, P. Wyder, and F. Meyer, Phys. Rep. **78**, 173 (1981).
26. Ping Sheng, Phys. Rev. Lett. **45**, 60 (1980).
27. N. Del Fatti, F. Vallee, C. Flytzanis et al., Chem. Phys. **251**, 215 (2000).
28. K. Takenaka, K. Iida, Y. Sawaki et al., J. Phys. Soc. Jap. **68**, 1828 (1999).
29. J. M. D. Coey, M. Viket, and S. von Molnar, Adv. Phys. **48**, 167 (1999).
30. Y. Okimoto, T. Katsufuji, T. Ishikawa et al., Phys. Rev. B **55**, 4206 (1997).
31. J. H. Jung, K. H. Kim, H. J. Lee et al., Phys. Rev. B **59**, 3793 (1999).
32. Н. Н. Лошкарева, Ю. П. Сухоруков, В. Е. Архипов и др., ФТТ **41**, 475 (1999).
33. E. A. Balykina, E. A. Ganshina, G. S. Krinchik et al., J. Magn. Magn. Mat. **117**, 259 (1992).
34. A. G. Paulusz and H. I. Burrus, Chem. Phys. Lett. **17**, 527 (1972).
35. J. F. Lawler, J. G. Lunney, and J. M. D. Coey, J. Appl. Phys. Lett. **65**, 3017 (1994).
36. S. Yamaguchi, Y. Okimoto, K. Ishibashi, and Y. Tokura, Phys. Rev. B **58**, 6862 (1998).
37. N. N. Loshkareva, Yu. P. Sukhorukov, B. A. Gizhevskii et al., Phys. St. Sol. (a) **164**, 863 (1997).
38. O. Yu. Gorbenko, M. A. Novojilov, I. E. Graboy et al., *Book of Abstracts of E-MRS Spring Meeting 2000*, Strasbourg, France (2000), p. P-22.