# ТЕПЛОЕМКОСТЬ И ЭЛЕКТРОСОПРОТИВЛЕНИЕ МАНГАНИТА Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> ВБЛИЗИ *T<sub>c</sub>* В ПОЛЯХ ДО 26 кЭ: ФЛУКТУАЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ И СЦЕНАРИЙ РАЗВИТИЯ КОЛОССАЛЬНОГО МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЯ

Ш. Б. Абдулвагидов, И. К. Камилов, А. М. Алиев, А. Б. Батдалов

Институт физики Дагестанского научного центра Российской академии наук 367003, Махачкала, Россия

Поступила в редакцию 2 октября 2002 г.

С целью количественного исследования флуктуационных эффектов и уточнения сценария развития колоссального магнитосопротивления в окрестности  $T_c$  проведены прецизионные измерения теплоемкости и электросопротивления манганита Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> в интервале температур 77–300 K и магнитных полей до 26 кЭ. Экспериментально обнаружен и интерпретирован новый тип гистерезиса, обусловленный скачкообразным изменением  $T_c$  при фазовом переходе ферромагнетик–парамагнетик. Впервые экспериментально обнаружено влияние флуктуаций параметра порядка на теплоемкость манганита Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> и дана количественная оценка флуктуационных эффектов, обоснован флуктуационный механизм колоссального магнитосопротивления вблизи  $T_c$ . В сильном магнитном поле при приближении к  $T_c$  обнаружен переход от одномерного критического поведения к трехмерному. Показано, что магнитное поле преобразует статическую картину реализации микроскопических ферромагнитных областей в Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> вблизи  $T_c$  в динамическую. Обнаружена анизотропия колоссального магнитосопротивления sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> корошо описываето по образцу. Показано, что электросопротивление Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> хорошо описывается в рамках модели двойного обмена.

PACS: 75.30.Vn, 75.40.Cx, 75.30.Kz

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

Явление колоссального магнитосопротивления (KMC) в манганитах и связанные с ним эффекты и фазовые переходы интенсивно исследуются уже довольно долго [1]. Однако природа KMC и сопутствующих фазовых переходов еще не установлена. Очевидно, что требуются новые экспериментальные данные с применением прецизионных экспериментальных методик. Все еще остаются недостаточно исследованными тепловые свойства манганитов [2]. А такие вопросы, как влияние флуктуаций на теплоемкость и электросопротивление манганитов, имеющие большое значение для уточнения механизма КМС в окрестности  $T_c$ , вообще экспериментально не затрагивались.

В манганитах проявляется глубокая взаимосвязь

магнитной, решеточной и электронной подсистем, что, по-нашему мнению, довольно редкое явление в физике твердого тела, в которой чаще всего кристаллическая решетка рассматривалась как некая данность, подобно пространству и времени, устанавливающая закономерности, согласно которым происходят электронные и магнитные фазовые переходы. Так, в полупроводниках от свойств кристаллической решетки зависят эффективные массы электронов и дырок и их концентрации, в диэлектриках — эффективная масса поляронов, в сверхпроводниках — энергия виртуального фонона, в ферро-, ферри- и антиферромагнетиках — величины интегралов обменного взаимодействия. В отличие от перечисленных систем оказалось, что в манганитах магнитные и обменные взаимодействия являются ведущими и определяют электронные и решеточные свойства кристалла. По этой причине кристалличе-

<sup>&</sup>lt;sup>\*</sup>E-mail: lowtemp@datacom.ru

скую решетку манганитов называют мягкой, обозначая ее податливость влиянию магнитного поля и обменного взаимодействия. В самом деле, изменение объема элементарной ячейки манганитов в результате спонтанной магнитострикции вблизи  $T_c$  сравнимы по величине с соответствующими изменениями при структурных фазовых переходах.

Как известно, антиферромагнитная матрица в манганитах выступает как диэлектрическая материнская порода, в которой возникают зародыши ферромагнитной фазы. Однако КМС в манганитах всегда оказывается индуцированным магнитным фазовым переходом ферромагнетик-парамагнетик, что наводит на мысль о возможности существования веществ с эффектом КМС, но без антиферромагнитной матрицы, т.е. обычных ферромагнетиков. В ферромагнитном состоянии такое вещество должно быть металлом, а в парамагнитном — полупроводником или диэлектриком, тогда КМС в нем объяснялось бы тривиально, аналогично исчезновению электросопротивления в высокотемпературных сверхпроводниках, в рамках флуктуационной теории фазовых переходов. Изменение типа проводимости в таких веществах становится возможным благодаря их гигантской магнитострикции [3, 4], которая при определенных условиях может привести к таким изменениям зонной структуры твердого тела (появлению зоны проводимости), т. е. к классическому фазовому переходу типа перехода Мотта [5].

Целью настоящей работы было количественное исследование флуктуационных эффектов и уточнение сценария развития КМС в окрестности  $T_c$ , уточнение механизмов электропроводности в ферро- и парамагнитном состояниях в манганитах. Соединение  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  оказалось оптимальным объектом по своему составу, по-видимому, из всех манганитов, который как нельзя лучше подходил для проведения этих исследований.

Технология получения образца  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ подробно описана в [6]. Керамика  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ представляла собой, по данным рентгенографии, однофазный орторомбический перовскит с параметрами решетки a = 0.5424(1) нм, b = 0.7678(2) нм, c = 0.5434(2) нм. Растровая электронная микроскопия показала однородный гранулометрический состав керамики со средним размером гранул 2 мкм, с хорошей спайностью и пористостью около 20 %. Рентгеноспектральный микроанализ указывает на однородный химический состав гранул, отвечающий формуле  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ . Кислородный индекс, определенный методом йодометрического титрования [7], составил 3.02. Исследования

проведены на автоматизированной установке для измерения удельной теплоемкости малых образцов методом калориметрии на переменном токе с относительной точностью не хуже 0.1% [8]. Средняя температура калориметра измерялась медь-константановой термопарой с диаметром проволочек 100 мкм, а температурные осцилляции хромель-константановой термопарой с диаметром проволочек 25 мкм. Скорость изменения температуры не превышала 0.01 К/мин, а в окрестности перехода — 0.005 К/мин. Осцилляции температуры образца с частотой 2 Гц возбуждались с помощью переменного светового потока от лампы накаливания. Амплитуда осцилляций температуры образца не превышала 0.05 К, что особенно важно при исследованиях в окрестности фазовых переходов. Электросопротивление измерялось стандартным четырехзондовым методом.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

## 2.1. Теплоемкость

На рис. 1 приведены температурные зависимости теплоемкости  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в полях 0 и 26 кЭ в интервале температур 77–300 К в режимах охлаждения и нагрева. Как видно из рисунка, теплоемкость  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  как в поле, так и без поля обнаруживает аномалии вблизи  $T_c$ ,



Рис.1. Температурная зависимость теплоемкости Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> при нагреве (∘) и охлаждении (●) без поля и в поле 26 кЭ. Зависимости в поле для наглядности отодвинуты от зависимостей без поля на величину 10 Дж/моль К

ходит в однородное ферромагнитное состояние с

подверженные гистерезису, причем Т<sub>с</sub> зависит от напряженности приложенного поля Н и от направления изменения температуры. При H = 0 в режиме нагрева (индекс «+»), т.е. при фазовом переходе ферромагнетик-парамагнетик,  $T_c^+(H) = 128.6$  K, в режиме охлаждения (индекс «-»), т.е. при фазовом переходе парамагнетик-ферромагнетик,  $T_c^-(H) = 113.3$  К, а при H = 26 кЭ имеем  $T_c^+(H) = 152.7$  К и  $T_c^-(H) = 150.6$  К. Таким образом, значения критической температуры с увеличением напряженности магнитного поля возрастают, а ширина гистерезиса  $\Delta T_c = T_c^+ - T_c^$ уменьшается:  $\Delta T_c(0) = 15$  K,  $\Delta T_c(26 \text{ к}\Theta) = 2$  K. Соответствующие этим критическим температурам значения скачков теплоемкости, рассчитанные с помощью экстраполяции экспериментальных данных до и после перехода, составили при H = 0 $\Delta C_p^+ = 4.3$  Дж/моль · К,  $\Delta C_p^- = 4$  Дж/моль · К, а в поле 26 кЭ скачки теплоемкости практически сравнялись:  $\Delta C_p^+ = \Delta C_p^- = 8.7$  Дж/моль $\cdot$  К. Ввиду того что гистерезис в магнетиках может быть следствием долговременной релаксации и признаком фазового перехода первого рода, измерения повторялись при различных скоростях изменения температуры и в различных интервалах термоциклирования, однако значения  $T_c$ , а следовательно, и  $\Delta T_c$  как в поле, так и без поля не изменились. Анализ этих результатов показал, что такое поведение может иметь физическое толкование только в том случае, если предположить, что при фазовых переходах парамагнетик-ферромагнетик наблюдается скачкообразное изменение  $T_c$ , т.е. ферромагнитной и парамагнитной фазам соответствуют различные значения  $T_c$ .

Ранее для предварительного объяснения экспериментальных данных [6] нами привлекалась модель электронного фазового расслоения, согласно которой при  $T < T_c$  соединение  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$ представляет из себя антиферромагнитный диэлектрик с вкрапленными в него металлическими ферромагнитными кластерами. Однако последующий тщательный анализ экспериментальных данных, приведенных в [6], показал, что по причине отсутствия в Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> антиферромагнитной диэлектрической матрицы для их интерпретации вообще нет необходимости использовать указанную модель. Впоследствии это предположение было полностью подтверждено результатами экспериментов по нейтронной дифракции и мюонной спиновой релаксации [9, 10], согласно которым в  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  фазовое расслоение вообще не реализуется:  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ниже  $T_c$  пере-

магнитным моментом ионов марганца  $3.37 \mu_B$  в насыщении при T = 4 К, соответствующим почти полному магнитному упорядочению (3.55  $\mu_B$ ) без всяких признаков наличия антиферромагнитной фракции ниже Т<sub>с</sub>. Кроме того, по данным нейтронно-дифракционных экспериментов вблизи Т<sub>с</sub> наблюдается сильное уменьшение мольного объема (сжатие решетки) Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3.02</sub> при переходе в ферромагнитную фазу, что, по нашему мнению, обусловлено гигантской спонтанной магнитострикцией. Пространственная группа при этом остается одной и той же, *Pnma*, во всем температурном интервале, т.е. структурный фазовый переход, в соответствии с классификациями типов фазовых переходов по Эренфесту и Ландау, в этом случае не происходит. Параметры решетки при этом изменяются очень своеобразно: ромбическое основание решетки резко сжимается (наблюдается скачок на температурной зависимости параметров а и с), в то время как параметр b изменяется значительно меньше. По нашему мнению, такое изменение межатомных расстояний и углов в плоскости основания элементарной ячейки приводит к увеличению энергии косвенного обменного взаимодействия между ионами марганца, а следовательно, и значения  $T_c^+$ , соответствующего ферромагнитной фазе. Поэтому переход из ферромагнитной в парамагнитную фазу происходит в кристаллической решетке с другим (более высоким, как видно из наших данных) значением  $T_c^+$ , что приводит к гистерезису в поведении исследованных нами свойств  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$ . В магнитном поле рост величин  $T_c^+, T_c^-$  и уменьшение ширины гистерезиса  $\Delta T_c$  объясняются тем, что в  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  из-за гигантской магнитострикции происходит сближение параметров решетки и углов между магнитоактивными ионами марганца до и после фазового перехода.

В результате для манганита  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  характерен новый тип гистерезиса, который обусловлен скачкообразным изменением  $T_c$  и не имеет ничего общего, кроме внешнего вида, с гистерезисом, связанным с фазовым переходом первого рода. Следовательно, гистерезис такого типа не может служить достаточным признаком фазового перехода первого рода. И в принципе неправильно делать однозначный вывод о типе фазового перехода только по одному качественному признаку — наличию или отсутствию гистерезиса [11], как это часто происходит (см., например, [10, 12, 13]). Судить о типе фазового перехода по отсутствию или наличию гистерезиса, а еще того хуже, по ширине гистерезиса, резкости и

величине аномалий — это все равно, что судить о типе фазового перехода по значению скрытой теплоты перехода, т. е. считать, что если скрытая теплота перехода мала, то это фазовый переход второго рода, а если она велика, то это фазовый переход первого рода. К сожалению, приходится отмечать, что указанные классификации типов фазовых переходов практически не используются при исследованиях манганитов. Эти рассуждения поддерживаются и авторами работы [14], которые указывают, что ферромагнитный переход в манганите La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> относится к фазовым переходам второго рода, а резкость перехода по данным теплоемкости могла бы быть признаком фазового перехода первого рода, если бы не отсутствие гистерезиса. Конечно, для определения типа фазового перехода было бы важно иметь возможность экспериментального измерения бесконечного скачка теплоемкости. Однако на практике в самом лучшем случае удается измерить только достаточно большую величину теплоемкости, в сотни раз превышающую регулярное значение теплоемкости за пределами области перехода из-за случайного шума, всегда присутствующего в измерительном тракте.

Как видно из рис. 1, в нулевом поле теплоемкость плавно меняется от значения, соответствующего ферромагнитной фазе, до значения, характерного для парамагнитной фазы. По классификации фазовых переходов Ландау это соответствует непрерывному изменению параметра порядка от единицы в ферромагнитной фазе до нуля при переходе в парамагнитную фазу, а также означает, что в исследованном нами образце реализуется фазовый переход второго рода. Фазовый переход в точке Кюри в  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  в нулевом магнитном поле хорошо описывается теорией фазовых переходов Ландау [15] с тем отличием, что переход ферромагнетик-парамагнетик происходит при критической температуре  $T_c^+$ , а обратный переход происходит уже при другой температуре  $T_c^-$ , которая в случае нулевого поля намного меньше  $T_c^+$ . В поле 26 кЭ критические температуры сближаются ( $\Delta T_c(26 \text{ k}\Theta) \approx 2 \text{ K}$ ). Кроме того, магнитное поле приводит к появлению  $\lambda$ -пика теплоемкости, характерного для систем с существенным влиянием флуктуаций в окрестности Т<sub>с</sub>, что свидетельствует о том, что для описания фазового перехода в Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> в магнитном поле необходимо привлечь флуктуационную теорию фазовых переходов [16].

Обычно такое поведение не присуще ферромагнетикам, поэтому изложим простое объяснение природы появления  $\lambda$ -пика теплоемкости Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> в магнитном поле. Ширина критической области вблизи *T<sub>c</sub>* определяется соотношением Гинзбурга–Леванюка:

$$\varepsilon = \frac{1}{32\pi^2} \left(\frac{k_B}{\Delta C_p \xi^3}\right)^2,\tag{1}$$

где  $\varepsilon = |T/T_c - 1|$  — приведенная температура,  $\Delta C_p$  — скачок теплоемкости при  $T_c$ ,  $\xi$  — радиус корреляции [17,18].

Очевидно, что при  $T < T_c$  доминирует ферромагнитная фаза, в которой возникают флуктуации парамагнитной фазы с температурой в интервале  $[T_c; (\varepsilon + 1)T_c]$ , а при  $T > T_c$  будет преобладать парамагнитная фаза с флуктуациями ферромагнитной фазы с температурой в пределах  $[(\varepsilon - 1)T_c; T_c]$ . Из-за гистерезиса для появления парамагнитной (ферромагнитной) флуктуации в ферромагнитной (парамагнитной) фазе необходимо, чтобы температура флуктуирующей области самопроизвольно увеличилась (уменьшилась) на величину не меньшую, чем ширина гистерезиса  $\Delta T_c$ . В Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> в отсутствие поля  $\Delta T_c = 15$  K, чему соответствует существенное изменение внутренней энергии  $dU = C_p \xi^3 \Delta T_c$  флуктуирующих областей, что, как известно из термодинамики и статистической физики, означает крайне малую вероятность возникновения таких флуктуаций. Вследствие этого радиус корреляции температурных флуктуаций оказывается значительно меньше радиуса корреляции флуктуаций магнитного параметра порядка. Напротив,  $\Delta T_c = 2$  К в поле 26 кЭ, и dU значительно уменьшается. Отметим, что в этом случае  $\Delta T_c$  становится намного меньше обычной ширины флуктуационной  $\varepsilon$ -окрестности,  $\varepsilon = T_c \pm 10$  К для ферро- и антиферромагнетиков, сегнетоэлектриков и других веществ. Радиус корреляции тепловых флуктуаций оказывается сравнимым с радиусом корреляции флуктуаций магнитного параметра порядка, при этом, согласно соотношению (1), вероятность флуктуаций резко возрастает, что и обнаруживается в эксперименте. Таким образом, в отсутствие поля теплоемкость  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  ведет себя в соответствии с теорией фазовых переходов Ландау, а в поле 26 кЭ с флуктуационной теорией фазовых переходов.

Для количественной оценки флуктуационных эффектов вблизи  $T_c$  аномальные части теплоемкости  $\Delta C_p$  были выделены посредством вычитания из измеренных зависимостей теплоемкости  $C_p$ (см. рис. 1) регулярной части теплоемкости  $C_B$ , представляющей собой аппроксимацию алгебраическим полиномом третьей степени теплоемкости



Рис.2. Аномальная часть теплоемкости  $\Delta C_p$  манганита Sm\_{0.55}Sr\_{0.45}MnO\_3 при нагреве без поля ( $\circ$ ), а также при нагреве ( $\triangle$ ) и охлаждении ( $\blacktriangle$ ) в поле  $26 \ \kappa \Im$ 

 ${
m Sm}_{0.55}{
m Sr}_{0.45}{
m MnO_3}$  в нулевом поле в режиме охлаждения:

$$C_B = a_0 + a_1 T + a_2 T^2 + a_3 T^3 \tag{2}$$

с коэффициентами

$$a_0 = -62.67944 \ \text{Дж}/(\text{моль} \cdot \text{K}),$$
  
 $a_1 = 1.51493 \ \text{Дж}/(\text{моль} \cdot \text{K}^{-2}),$   
 $a_2 = -0.00618 \ \text{Дж}/(\text{моль} \cdot \text{K}^{-3}),$   
 $a_3 = 1.08297 \cdot 10^{-5} \ \text{Дж}/(\text{моль} \cdot \text{K}^{-4}).$ 

Температурные зависимости аномальной части теплоемкости,  $\Delta C_p = C_p - C_B$ , в нулевом магнитном поле при измерении с нагревом образца и в магнитном поле 26 кЭ при измерениях с нагревом и охлаждением показаны на рис. 2. Как видно из рисунка, в нулевом поле величины  $\Delta C_p$  при переходе в окрестности  $T_c$  изменяются от одного почти постоянного значения в парамагнитной фазе до другого также почти постоянного значения в ферромагнитной фазе без явных признаков влияния флуктуаций, что очевидно из отсутствия  $\lambda$ -пика теплоемкости. В поле 26 кЭ картина фазового перехода качественно изменяется: при нагреве и охлаждении наблюдается характерный для фазовых переходов второго рода  $\lambda$ -пик теплоемкости.

Флуктуационный вклад выше  $T_c$  (знак «плюс») описывается следующим выражением [19,20]:

$$\Delta C_p = C^+ \varepsilon^{-\alpha},\tag{3}$$

где  $C^+=k_B/8\pi\xi^3$  — критические амплитуды теплоемкости выше  $T_c,\,\alpha=2-d/2$  — критический ин-



Рис.3. Двойная логарифмическая зависимость аномальной части теплоемкости  $\Delta C_p$  манганита  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  от приведенной температуры  $T/T_c-1$  в нулевом поле при  $T_c=127.5$  K (a), а также при нагреве ( $\delta$ ) и охлаждении (6) в поле H=26 кЭ соответственно при  $T_c=153.425$  К и 151.400 К

декс теплоемкости, d — размерность флуктуирующего пространства.

На рис. За аномальная часть теплоемкости

 $\Delta C_p$  в нулевом магнитном поле представлена в двойном логарифмическом масштабе зависимостью  $\Delta C_p(T/T_c - 1)$  при температуре  $T_c = 127.5$  K, соответствующей максимуму теплоемкости. В интервале [-3, -2] изменения  $\lg(T/T_c-1)$  наблюдается линейная зависимость со значением критического индекса теплоемкости практически равным нулю ( $\alpha = 0.03$ ), что подтверждает наши предположения об отсутствии существенного влияния флуктуаций параметра порядка на формирование фазового перехода в нулевом поле (в теории Ландау  $\alpha = 0$ ). Линейная зависимость в узком интервале [-1.6, -1.4] с большой величиной  $\alpha = 10.26$ , далекой от любых стандартных значений, говорит об отсутствии флуктуационного размытия фазового перехода в  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  в нулевом поле. Таким образом, точка Кюри в  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  в нулевом поле может быть классическим примером фазового перехода второго рода в полном соответствии с теорией фазовых переходов Ландау [15], не учитывающей влияния флуктуаций параметра порядка на формирование фазового перехода.

Обычно, если следовать теории скейлинга [16], за T<sub>c</sub> принимают температуру, при которой критические индексы выше и ниже  $T_c$  становятся равными друг другу. Однако в нашем случае подобная скейлинговая процедура невозможна из-за существенной разницы критических температур ферромагнитной и парамагнитной фаз Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub>. Поэтому мы несколько изменили процедуру определения *T<sub>c</sub>*, с тем чтобы учесть существование различных значений Т<sub>с</sub> ферромагнитной и парамагнитной фаз. За их исходные значения были взяты температуры максимумов теплоемкости, соответствующие режимам нагрева,  $T_c^+$ , и охлаждения,  $T_c^-$ . Затем мы изменяли их значения с последовательно уменьшающимся температурным шагами 0.1, 0.01, 0.001 К до тех пор, пока критические индексы теплоемкости в ферромагнитной и парамагнитной фазах не совпали друг с другом. Таким образом получены значения  $T_c^+ = 153.425 {\rm ~K}$ и $T_c^- = 151.400 {\rm ~K}.$ 

В проведенной количественной оценке влияния флуктуаций на теплоемкость в окрестности  $T_c$  для обеспечения наибольшей достоверности полученных результатов использован только один параметр аппроксимации,  $T_c$ , в то время как при подобной обработке в качестве подгоночных параметров используются регулярная часть теплоемкости и другие подгоночные параметры.

На рис. 36, в аномальные части теплоемкости  $\Delta C_p$  в поле 26 кЭ в циклах нагрева и охлаждения представлены в виде зависимостей  $\Delta C_p(T/T_c - 1)$ 

в двойном логарифмическом масштабе при соответствующих значениях  $T_c$ . Как видно из рисунков, приблизительно в одних и тех же интервалах  $lg(T/T_c-1)$  обнаруживаются линейные зависимости  $lg \Delta C_p$ . Рассчитанные в этих интервалах с помощью выражения (3) параметры флуктуационной теории фазовых переходов сведены в таблицу.

Как видно из таблицы, в магнитном поле 26 кЭ в режимах как нагрева, так и охлаждения критические индексы  $\alpha$  и амплитуды  $C^+$  имеют значения, позволяющие получить имеющую физический смысл размерность *d* флуктуирующего пространства и сопоставимые с размерами элементарной ячейки  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  радиусы корреляции *ξ.* Вдали от *T<sub>c</sub>* размерность флуктуирующих областей d = 1, а по мере приближения к  $T_c$  при  $\lg \varepsilon = -1.9$  наблюдается переход к трехмерному (d = 3) критическому поведению, при этом растут и сами размеры ферромагнитных капель. Примечательно, что значения размерности пространства с точностью до второго знака после запятой дают реальные физические значения, т. е. целочисленные значения размерностей. Примечательно также, что полученные нами из обработки экспериментальных данных теплоемкости (см. таблицу) и авторами работы [10] из экспериментов по малоугловому рассеянию нейтронов значения радиуса корреляции магнитного параметра порядка  $\xi$  в  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  хорошо согласуются друг с другом, если не сказать, что в пределах погрешностей эксперимента практически совпадают.

Также эксперименты по малоугловому рассеянию нейтронов [10] показывают, что время жизни так называемых ферромагнитных кластеров в  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  в сильном магнитном поле не более чем  $10^{-12}$  с, поэтому логичнее было бы придерживаться единой терминологии и называть их флуктуациями магнитного параметра порядка в соответствии с общеизвестной флуктуационной теорией фазовых переходов. В нулевом поле, как видно из анализа данных на рис. 3а, образующиеся микроскопические ферромагнитные области перестают флуктуировать, т.е. становятся статическими, и в этом случае более уместен термин «ферромагнитный кластер». Таким образом, магнитное поле преобразует статическую картину сосуществования ферромагнитных и парамагнитных областей в  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  вблизи  $T_c$  в динамическую.

Результаты анализа флуктуационных эффектов в манганите  $\text{Sm}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  наводят на мысль о флуктуационной природе KMC. В магнитном поле при  $T > T_c$  в  $\varepsilon$ -окрестности  $T_c$  появляются флук-

$T_c, \mathbf{K}$	Н, кЭ	Интервал изменения $\lg arepsilon$	α	$C^+,  \operatorname{Дж}/\mathrm{см}^3 \cdot \mathrm{K}$	d	$\xi, Å$
Цикл нагрева						
153.425	26	[-2.8, -1.9]	0.50	0.0018725	3.00	6.64
		[-1.9, -1.3]	1.50	$2.401 \cdot 10^{-5}$	1.00	28.39
Цикл охлаждения						
151.400	26	[-2.8, -1.93]	0.50	0.0021748	3.00	6.32
		[-1.93, -1.45]	1.50	$2.32 \cdot 10^{-5}$	1.00	28.72

туации ферромагнитной фазы каплевидной формы с характерными размерами порядка  $\xi = 7$  Å в преобладающей по объему парамагнитной фазе с векторами намагниченности, ориентированными преимущественно по внешнему полю, что способствует взаимному притяжению ферромагнитных диполей и образованию из них чего-то наподобие ферромагнитных нитевидных доменов. Это напоминает расположение железных опилок на листе бумаги вдоль силовых линий магнитного поля, создаваемого подковообразным постоянным магнитом. С увеличением напряженности магнитного поля длина нитевидных доменов становится сравнимой с размерами образца и электросопротивление резко убывает, приводя к эффекту КМС. Более того, упорядочение магнитных моментов ферромагнитных кластеров в магнитном поле приводит к превращению изолирующих связей вдоль границ между ними в проводящие, что проявляется в сдвиге эффективной перколяционной точки вверх по шкале температур [14]. Таким образом, для возникновения порога протекания даже не требуется непосредственного контакта ферромагнитных кластеров или капель.

Отметим, что образование подобной структуры в нулевом поле оказывается невозможным из-за того, что этому препятствуют огромные силы поверхностного натяжения на границах раздела ферромагнитной и парамагнитной фаз, возникающие благодаря гигантской величине спонтанной магнитострикции соединения  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  [4]. Кроме того, образование подобной структуры становится невозможным также и потому, что в нулевом поле флуктуации в  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  практически полностью подавляются из-за большой разницы критических температур ферромагнитной и парамагнитной фаз.

В случае реализации в Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> описанного сценария в магнитном поле должна проявиться анизотропия электросопротивления, зависящая от взаимной ориентации магнитного поля и электрического тока, причем эффект анизотропии должен

быть максимальным вблизи  $T_c$  и уменьшаться по мере снижения температуры при  $T < T_c$ , а в парамагнитном состоянии, при  $T > T_c$ , анизотропия должна исчезать. Действительно, измерения анизотропии электросопротивления в Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> в поле 26 кЭ оправдали наши ожидания: относительное изменение сопротивления при перпендикулярной и параллельной или антипараллельной ориентациях направлений тока и магнитного поля составляет  $\rho_{\perp}/\rho_{\parallel} - 1 = 0.102, 0.191$  и 0 соответственно при T = 77, 139 и 300 К. Относительное же изменение KMC составило KMC<sub>||</sub>/KMC<sub>\perp</sub> - 1 = 0.104, 0.127 и 0 соответственно при T = 77, 139 и 300 К.

Таким образом, при соответствующих нитевидной доменной структуре значениях температуры и магнитного поля реализуется одномерное критическое поведение (см. таблицу), а при дальнейшем приближении к  $T_c$  сверху, т.е. при  $T > T_c$ , при понижении температуры или увеличении поля интенсивность флуктуаций усиливается и они приобретают трехмерный характер, тем самым приводя к реализации в магнитном поле конечно-размерного скейлинга.

#### 2.2. Электросопротивление

На рис. 4 приведены температурные зависимости электросопротивления в полях 0, 6, 13 и 26 кЭ в режимах охлаждения и нагрева. Как видно из рисунка, на зависимости сопротивления  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ от обратной температуры также наблюдается гистерезис, который подавляется магнитным полем и смещается в сторону более высоких температур. Из рисунка также видно, что внешнее магнитное поле сильно подавляет электросопротивление, приводя тем самым к эффекту КМС, который достигает максимального значения при  $T_c$ . Кроме того, переход от металлического характера проводимости к полупроводниковому в отсутствие поля происходит резко, а в поле 26 кЭ этот переход происходит в ин-



Рис.4. Температурная зависимость электросопротивления  $\rho$  манганита  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в полях 0 (кружки), 6 кЭ (треугольники), 13 кЭ (квадраты), 26 кЭ (перевернутые треугольники). Нагреву соответствуют темные значки, охлаждению — светлые. На вставке приведена та же зависимость в других координатах

тервале примерно 10 К, что соответствует ширине флуктуационной области в обычных ферромагнетиках. Такое размытие переходной области возможно за счет возрастания влияния флуктуаций магнитного параметра порядка при увеличении поля: без поля ширина критической области в  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$ практически равна нулю, следствием чего является быстрая смена типа поведения электропроводности; в поле 26 кЭ флуктуационная область существенно расширяется, поэтому еще в парамагнитной фазе, при  $T > T_c$ , появляются микрообласти ферромагнитной фазы, приводящие к уменьшению  $\rho$  по мере приближения к  $T_c$ , а при  $T = T_c - \kappa$  возникновению флуктуационного по своей природе порога протекания. Если отвлечься от различного характера температурных зависимостей  $\rho$  при  $T > T_c$  и  $T < T_c$ в манганитах и высокотемпературных сверхпроводниках, то влияние флуктуаций на КМС манганитов и сверхпроводящий переход в ВТСП проявляются одинаково с той лишь разницей, что из-за конечного значения  $\rho$  в ферромагнитной фазе манганитов возникновение порога протекания не проявляется так же ярко, как в ВТСП, где оно приводит к полному исчезновению отличного от нуля электросопротивления образца.

Таким образом, анализ результатов измерений электросопротивления  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в зависимости от температуры как без поля, так и в отлич-

ном от нуля магнитном поле указывает на то, что размытие области перехода металл-полупроводник и возникновение порога протекания в магнитном поле обусловлены влиянием термодинамических флуктуаций на фазовый переход при  $T_c$ .

Резкое уменьшение электросопротивления при измерении без поля в режиме охлаждения и более пологий ход кривой  $\rho(T)$  в режиме нагрева объясняются следующим образом. При качественно различающемся температурном ходе электросопротивления  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  ниже и выше  $T_c$  (электросопротивление в ферромагнитном состоянии растет, а в парамагнитном убывает) гистерезис с переходом в ферромагнитное состояние из-за уменьшения значения  $T_c$ , соответствующего парамагнитному состоянию, приводит при измерении в режиме охлаждения к большой разнице электросопротивлений ферромагнитной и парамагнитной фаз при соответствующей температуре. В результате наблюдается резкое уменьшение электросопротивления в режиме охлаждения. В режиме нагрева по тем же самым причинам наблюдается обратный эффект: гистерезис с переходом из ферромагнитного в парамагнитное состояние, из-за того что  $T_c$  ферромагнитной фазы выше Т<sub>с</sub> парамагнитной фазы, приводит к приближению величины электросопротивления ферромагнитной фазы по мере возрастания температуры к величине электросопротивления парамагнитной фазы, в результате чего аномалия электросопротивления в окрестности T<sub>c</sub> становится более пологой в режиме нагрева.

Кроме того, анализ температурных зависимостей электросопротивления  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  в различных магнитных полях (см. рис. 4) наводит на мысль о том, что в магнитном поле электросопротивление  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  хорошо описывается моделью двойного обмена, для которой характерны более быстрый, чем экспоненциальный, рост  $\rho(T)$  при  $T < T_c$ , высокое значение  $T_c$  и характерная для полупроводников зависимость  $\lg \rho(T) \propto 1/T$  при  $T > T_c$ . В модели двойного обмена скорость релаксации носителей тока зависит от взаимной ориентации спинов ионов в соседних узлах, при этом в отсутствие дальнего магнитного порядка (в парамагнитной фазе) или в окрестности  $T_c$ , где сильно развиты термодинамические флуктуации, приводящие к разупорядочению спинов соседних магнитоактивных ионов, может происходить локализация носителей тока.

Следовательно, в модели двойного обмена флуктуационные эффекты, заключающиеся в упорядочивании и/или разупорядочивании спинов в микроскопических объемах с характерными размерами порядка  $\xi$ , по-видимому, должны оказывать существенное влияние на поведение электросопротивления вблизи  $T_c$ .

Изюмов и Скрябин [21] показали, что температурная зависимость электросопротивления в такой системе определяется выражением

$$\rho(T) = \rho_0 \exp\left(\frac{1 - \langle S_0 S_1 \rangle / S^2}{1 + \langle S^z \rangle / S} \frac{W}{4kT}\right), \qquad (4)$$

где  $\langle S_0 S_1 \rangle$  — парная корреляционная функция спинов на ближайших узлах, W — ширина затравочной зоны. В экспоненте имеются два множителя, противоположным образом зависящие от температуры. При T < T<sub>c</sub> первый множитель мал в ферромагнитной области, что делает электросопротивление также очень малым. В окрестности Т<sub>с</sub> он резко возрастает и выходит на константу при  $T > T_c$  в парамагнитной фазе, где корреляция спинов на соседних узлах уже не наблюдается. Затем, при  $T > T_c$ , становится существенным второй множитель в экспоненте, так как переход металл-полупроводник моттовского типа, наблюдающийся в точке Кюри и сопровождающийся колоссальной магнитострикцией, должен привести к существенному изменению положения края подвижности  $E_c$ , химического потенциала  $\mu$  и ширины W затравочной зоны. Линейные участки температурной зависимости электросопротивления при  $T > T_c$  хорошо аппроксимируются выражением (4) при ширине затравочной зоны W = 110.79 мэВ. При  $T < T_c$  электросопротивление  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  также описывается выражением (4), в котором первый член в показателе экспоненты резко возрастает по мере приближения к T<sub>c</sub>: как видно из рис. 4, при T < T<sub>c</sub> электросопротивление Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> растет быстрее, чем по экспоненте, причем с нарастающей степенью отклонения от экспоненты (см. вставку на рис. 4). Таким образом, данные по электросопротивлению Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> хорошо согласуются с моделью двойного обмена.

## 3. ВЫВОДЫ

Экспериментально обнаружен и интерпретирован новый тип гистерезиса, обусловленный скачкообразным изменением  $T_c$  при фазовом переходе ферромагнетик-парамагнетик. Экспериментально обнаружено влияние флуктуаций на теплоемкость и электропроводность манганита Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub>, дана их количественная оценка и предложен флуктуационный механизм колоссального магнитосопротивления. Обнаружен переход от

поведения теплоемкости Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> в соответствии с теорией фазовых переходов Ландау в нулевом поле к поведению теплоемкости в сильном магнитном поле в соответствии с флуктуационной теорией фазовых переходов. В сильном магнитном поле при приближении к Т<sub>с</sub> одномерное критическое поведение меняется на трехмерное. Показано, магнитное поле преобразует статическую что картину реализации микроскопических ферромагнитных областей в  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  вблизи  $T_c$ в динамическую. Обнаружена анизотропия электросопротивления  $\rho$  манганита  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ , зависящая от взаимной ориентации внешнего магнитного поля и электрического тока, протекающего по образцу. Показано, что электросопротивление  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в магнитном поле хорошо описывается моделью двойного обмена. В манганите  $\mathrm{Sm}_{0.55}\mathrm{Sr}_{0.45}\mathrm{MnO}_3$  обнаружено, что магнитное поле в отличие от обычных ферромагнетиков не подавляет флуктуации параметра порядка в окрестности  $T_c$ , а напротив, способствует увеличению их интенсивности. Показано, что в Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub> плавная смена типа поведения электросопротивления при T<sub>c</sub> обусловлена влиянием флуктуаций на электросопротивление  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ . Обоснован флуктуационный сценарий развития КМС, реализующийся в  $Sm_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$  в окрестности  $T_c$ .

Авторы благодарны О. Ю. Горбенко за предоставление высококачественного образца Sm<sub>0.55</sub>Sr<sub>0.45</sub>MnO<sub>3</sub>. Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты №№ 00-07-90241, 02-07-06048, 02-02-17895, 00-15-96662).

## ЛИТЕРАТУРА

- 1. Э. Л. Нагаев, УФН 166, 833 (1996).
- M. B. Salamon and M. Jaime, Rev. Mod. Phys. 73, 583 (2001).
- А. М. Кадомцева, Ю. Ф. Попов, Г. П. Воробьев и др., ФТТ 42, 1077 (2000).
- А. И. Абрамович, Л. И. Королева, А. В. Мичурин и др., ФТТ 42, 1451 (2000).
- P. Njvak, M. Marysko, M. M. Savosta, and A. N. Ulyanov, Phys. Rev. B 60, 6655 (1999).
- А. М. Алиев, Ш. Б. Абдулвагидов, А. Б. Батдалов, и др., Письма в ЖЭТФ 72, 668 (2000).
- A. A. Bosak, O. Yu. Gorbenko, A. R. Kaul et al., J. Magn. Magn. Mat. 211, 61 (2000).

- Ш. Б. Абдулвагидов, Г. М. Шахшаев, И. К. Камилов, ПТЭ № 5, 134 (1996).
- А. М. Алиев, Ш. Б. Абдулвагидов, А. Б. Батдалов и др., ФТТ 45, 124 (2003).
- 10. J. M. De Teresa, M. R. Ibarra, P. Algarabel et al., Phys. Rev. B 65, 100403(R) (2002).
- N. D. Mathur and P. B. Littlewood, Sol. St. Comm. 119, 271 (2001).
- A. Asamitsu, Y. Moritomo, Y. Tomioka et al., Nature 373, 407 (1995).
- 13. F. Millange, S. de Brion, and G. Chouteau, Phys. Rev. B 62, 5619 (2000).

- 14. M. B. Salamon, P. Lin, and S. H. Chun, Phys. Rev. Lett. 88, 197203-1 (2002).
- 15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика*, ч. 1, Наука, Москва (1976).
- 16. А. З. Паташинский, В. Л. Покровский, Флуктуационная теория фазовых переходов, Наука, Москва (1982).
- **17**. А. П. Леванюк, ЖЭТФ **36**, 810 (1959).
- **18**. В. Л. Гинзбург, ФТТ **2**, 2031 (1960).
- 19. Л. П. Горьков, ЖЭТФ 34, 735 (1958).
- 20. Л. Г. Асламазов, А. И. Ларкин, ФТТ 10, 1104 (1968).
- **21**. Ю. А. Изюмов, Ю. Н. Скрябин, УФН **171**, 121 (2001).