

ХАРАКТЕРИСТИКИ ФАЗОВО-РАССЛОЕННОГО СОСТОЯНИЯ МАНГАНИТОВ И ИХ СВЯЗЬ С ТРАНСПОРТНЫМИ И МАГНИТНЫМИ СВОЙСТВАМИ

*К. И. Кугель**, *А. Л. Рахманов*, *А. О. Сбойчаков*

*Институт теоретической и прикладной электродинамики Российской академии наук
125412, Москва, Россия*

М. Ю. Каган, *И. В. Бродский*, *А. В. Клапцов*

*Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук
119334, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 19 августа 2003 г.

В рамках модели неоднородного состояния, учитывающей наличие ферромагнитно-коррелированных областей, описывается температурная и магнитопольевая зависимости сопротивления, магнитосопротивления и восприимчивости манганитов в интервале параметров, отвечающих диэлектрическому поведению. Основной упор делается на область сравнительно высоких температур и малых полей. Сравнение теоретических результатов с экспериментальными данными позволяет выявить основные характеристики неоднородного состояния.

PACS: 64.75.+g, 75.47.Lx, 71.10.-w, 75.47.-m

1. ВВЕДЕНИЕ

Необычные свойства и богатство фазовой диаграммы манганитов вызвали огромный поток работ, посвященных различным аспектам физики этих соединений. Особое внимание к манганитам связано в последнее время с возможностью образования в них разного типа неоднородных зарядовых и спиновых состояний, таких как решеточные и магнитные поляроны, капельные и страйп-структуры и т. д. [1–3]. Аналогичные явления характерны для многих сильнокоррелированных систем с преобладанием потенциальной энергии взаимодействия электронов над их кинетической энергией. Отметим, что одним из первых наиболее ярких примеров такого рода является образование ферромагнитных (ФМ) капель (ферронов) в антиферромагнитных (АФМ) полупроводниках при слабом легировании [4]. Другой аналогичный пример — возникновение струны (линейного следа фрустрированных спинов) при движении дырки по АФМ-изолятору [5]. Эти примеры относятся к случаю так называемого электронного фазово-

го расслоения, обусловленного тем, что отдельные носители заряда изменяют вокруг себя локальное электронное окружение. Помимо мелкомасштабного фазового расслоения, в манганитах может наблюдаться крупномасштабное расслоение, отвечающее сосуществованию различных фаз, характерное для фазовых переходов первого рода (например, между АФМ- и ФМ-состояниями). Примером такого крупномасштабного расслоения является возникновение сравнительно больших ФМ-капель размером порядка 100–1000 Å внутри АФМ-матрицы, которые наблюдаются, в частности, с помощью методов нейтронной дифракции [6]. Отметим также, что притяжение между одноэлектронными ферромагнитными каплями (обусловленное упругими или магнитодипольными взаимодействиями) может приводить к слиянию ферронов и образованию неоднородностей промежуточных и крупных масштабов [7]. Имеются четкие экспериментальные указания, что фазовое расслоение характерно не только для магнитоупорядоченных фаз, но и для парамагнитной области [1–3, 8]. Таким образом, образование неоднородных состояний оказывается характерным для раз-

*E-mail: kugel@orc.ru

личных областей фазовой диаграммы манганитов. Фазовое расслоение должно оказывать существенное влияние на их магнитные и транспортные свойства.

Роль фазового расслоения чаще всего обсуждается для области существования антиферромагнетизма и в особенности вблизи перехода между АФМ- и ФМ-состояниями. Однако, как уже указывалось ранее, даже при температурах выше соответствующих фазовых переходов в парамагнитной области состояние манганитов тоже может быть неоднородным. Анализ экспериментальных данных показывает, что в области высоких температур поведение сопротивления, магнитосопротивления и магнитной восприимчивости довольно схоже для широкого спектра манганитов с различным низкотемпературным состоянием [9–12]. При этом магнитосопротивление вдали от ФМ–АФМ-перехода и даже в парамагнитной области оказывается достаточно большим. Кроме того, величина магнитной восприимчивости манганитов заметно выше, чем у обычных антиферромагнетиков. Данные экспериментальные факты свидетельствуют в пользу существования заметных ФМ-корреляций в высокотемпературной области.

Будем исходить из предположения, что ферромагнитно-коррелированные области существуют в манганитах при температурах выше характерных температур возникновения дальнего магнитного (ФМ или АФМ) порядка. Такое предположение дает возможность описать в рамках единой модели особенности поведения сопротивления, магнитосопротивления и магнитной восприимчивости манганитов в неметаллическом состоянии. Будем базироваться на модели проводимости фазово-расслоенных манганитов, развитой в работах [9, 13–15], и использовать экспериментальные данные, полученные для манганитов различного состава в работах [9–12]. Отметим, что в данной работе мы не ограничиваемся рассмотрением только одноэлектронных магнитных капель (ферронов), а обобщаем часть полученных ранее результатов на случай произвольного количества электронов в ферромагнитно-коррелированной области. В разд. 2 мы анализируем температурную зависимость электросопротивления в неоднородном состоянии вдали от порога перколяции по ферромагнитным областям. В разд. 3 в рамках тех же предположений обсуждается магнитосопротивление манганитов, а в разд. 4 — магнитная восприимчивость. В результате показано, что высокотемпературное поведение манганитов может быть описано в рамках модели неоднородного состояния. Сравнение теоретиче-

ских результатов с экспериментальными данными позволяет выявить основные характеристики ферромагнитно-коррелированных областей.

2. СОПРОТИВЛЕНИЕ

При рассмотрении температурной зависимости электросопротивления будем в основном опираться на картину, обсуждаемую в работе [13]. Суть этой картины состоит в следующем. Имеется неферромагнитная диэлектрическая матрица, в которую вкраплены ферромагнитные капли малого размера. Перенос заряда осуществляется путем туннелирования носителей тока с капли на каплю. Вероятность туннелирования зависит, вообще говоря, от приложенного магнитного поля. Рассматривается случай, когда капли не перекрываются и система далека от порога перколяции. Будем считать, что в каждой капле сосредоточены k носителей тока. Каждый новый носитель, туннелирующий на каплю, испытывает кулоновское отталкивание со стороны уже имеющихся на капле носителей. Энергия этого отталкивания A предполагается достаточно большой ($A > k_B T$). Тогда основной вклад в проводимость вносят процессы с участием капель, содержащих k , $k+1$ и $k-1$ электронов. Соответствующая формула для электросопротивления $\rho(T)$ имеет вид

$$\rho = \frac{k_B T \exp(A/2k_B T)}{128\pi e^2 \omega_0 l^5 k n^2}, \quad (1)$$

где e — заряд электрона, ω_0 — частота, соответствующая характерной энергии электронов в капле, l — характерная длина туннелирования, n — концентрация ферромагнитных капель. Формула (1) может быть легко выведена методом, изложенным в [13] (см. Приложение), и является непосредственным обобщением соответствующего выражения для сопротивления, полученного в [13] для случая одноэлектронных капель. Электросопротивление (1) имеет термоактивационный характер. При этом роль энергии активации играет половина энергии кулоновского отталкивания (подробнее см. [13]).

Выражение (1) достаточно хорошо описывает температурную зависимость электросопротивления для широкого класса манганитов. Для иллюстрации на рис. 1–4 показаны кривые $\rho(T)$, измеренные для шести разных материалов. Экспериментальные данные взяты для образцов, исследованных в работах [9–12], а подробная численная информация любезно предоставлена нам авторами соответствующих работ. Как видно из рисунков и подрисунковых подписей, образцы различались составом, ти-

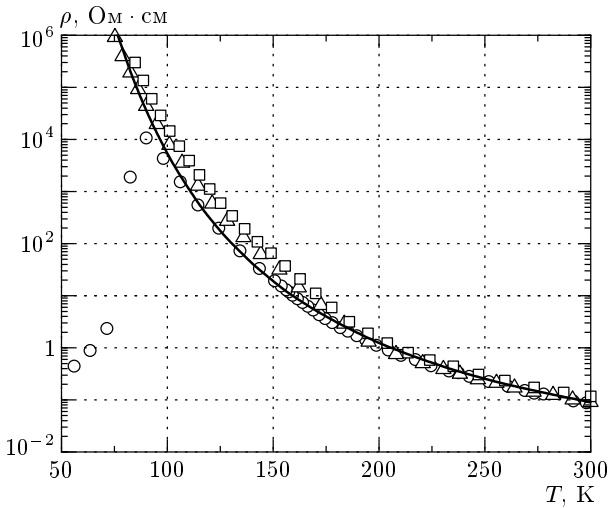


Рис. 1. Температурная зависимость удельного сопротивления образцов $(La_{1-y}Pr_y)_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ [9]. Квадраты — $y = 1$, образец с изотопным замещением ^{16}O на ^{18}O . Треугольники — $y = 0.75$ с изотопным замещением ^{16}O на ^{18}O . Кружки — $y = 0.75$ с изотопом кислорода ^{16}O . Сплошная линия — теоретическая кривая (1)

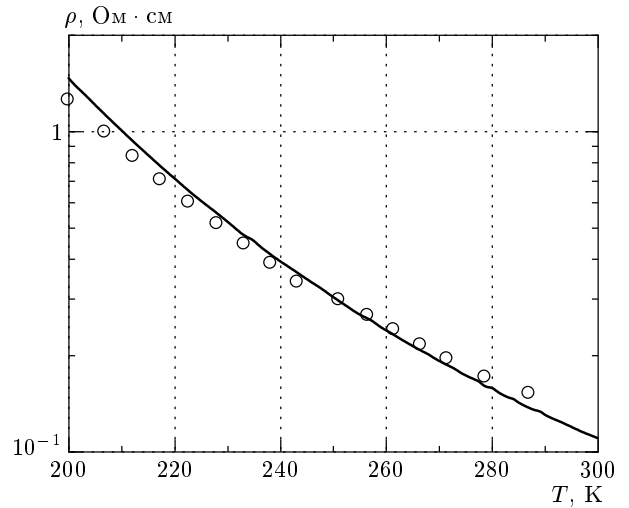


Рис. 3. Температурная зависимость удельного сопротивления слоистого манганита $(La_{0.4}Pr_{0.6})_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ [11]. Кружки — экспериментальные данные, сплошная линия — теоретическая кривая (1)

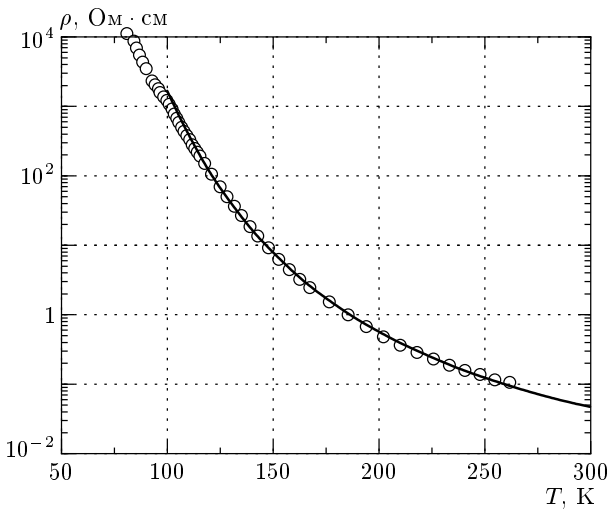


Рис. 2. Температурная зависимость удельного сопротивления образца $Pr_{0.71}Ca_{0.29}MnO_3$ [10]. Кружки — экспериментальные данные, сплошная линия — теоретическая кривая (1)

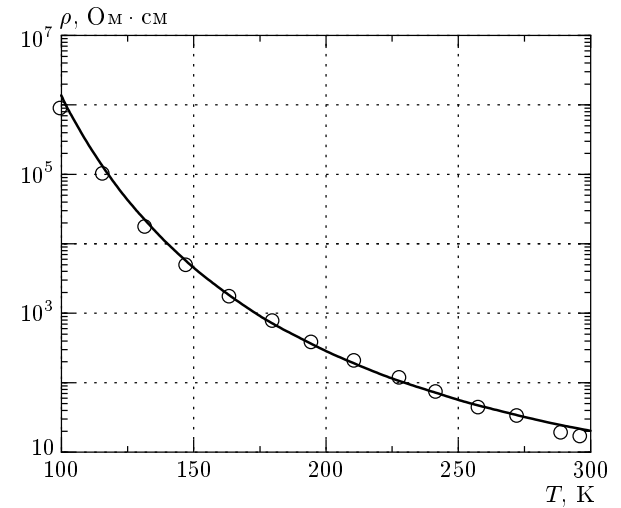


Рис. 4. Температурная зависимость удельного сопротивления образца $La_{0.8}Mg_{0.2}MnO_3$ [12]. Кружки — экспериментальные данные, сплошная линия — теоретическая кривая (1)

пом кристаллической структуры, величиной электросопротивления (при одинаковой температуре она различается у них более чем в сто раз), а также типом низкотемпературного поведения (от металлического у одних образцов до диэлектрического у других). Вместе с тем в высокотемпературной области

(выше температуры перехода в ферромагнитное состояние) зависимость $\rho(T)$ у всех образцов является универсальной и с высокой точностью подчиняется закону

$$\rho(T) \propto T \exp(A/2k_B T)$$

(см. сплошные линии на рисунках).

С помощью формулы (1) и экспериментальных

Таблица 1

Образцы	A , К	$\rho(200\text{ К})$, Ом·см	$l^5 n^2 k$, 1/см	Источник
$(\text{La}_{1-y}\text{Pr}_y)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$	3650	1.25	$2 \cdot 10^5$	[9] (рис. 1)
$\text{Pr}_{0.71}\text{Ca}_{0.29}\text{MnO}_3$	3500	0.57	$3 \cdot 10^5$	[10] (рис. 2)
$(\text{La}_{0.4}\text{Pr}_{0.6})_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7^*$	3600	1.5	$1.5 \cdot 10^5$	[11] (рис. 3)
$\text{La}_{0.8}\text{Mg}_{0.2}\text{MnO}_3$	3700	283	$1 \cdot 10^3$	[12] (рис. 4)

данных можно найти некоторые количественные характеристики фазово-расслоенного состояния. Так, анализ, проведенный в работах [12, 16], показал, что применение формулы (1) к описанию экспериментальных данных дает практически однозначную оценку для величины кулоновской энергии A . В частности, по представленным на рис. 1–4 экспериментальным данным величина кулоновского барьера A определяется с точностью не хуже 2–3 % и для описываемых здесь материалов лежит в диапазоне от 3500 до 3700 К (см. табл. 1). В формулу (1) входит характерная частота ω_0 . Как отмечалось в работах [12, 13, 16], ее величина может меняться в весьма ограниченных пределах 10^{13} – 10^{14} Гц. Эту оценку можно получить, например, из принципа неопределенности $\hbar\omega_0 \sim \hbar^2/2ma^2$, где a — характерный размер капли, m — масса электрона. Полагая, что $a \approx 1$ –2 нм, мы получим приведенную выше оценку. Следует также отметить, что приводимые значения размера капли позволяют получить правильную по порядку величины оценку кулоновской энергии A . Эта энергия порядка $e^2/\varepsilon a$. Полагая для диэлектрической проницаемости $\varepsilon \sim 10$, мы получим согласующуюся с экспериментом оценку энергии A .

Оценить длину туннелирования l достаточно сложно. Однако можно утверждать, что в области применимости формулы (1) она не может быть много меньше, чем расстояние между каплями [13]. Если это не так, то сопротивление описывалось бы зависимостью иного типа. В квазиклассическом приближении длина туннелирования порядка характерного размера волновой функции, если высота барьера сравнима с глубиной потенциальной ямы. В нашем случае размер волновой функции электрона порядка размера феррона, а из самой модели образования ферронов [2] следует, что высота барьера фактически совпадает с глубиной потенциальной ямы. Тогда естественно предположить, что длина туннелирования того же порядка, что и размер феррона (несколько нанометров), но, вообще говоря, может заметно (в разы) отличаться от a .

Достаточно нетривиальным является вопрос об оценке концентрации ферронов n . С одной стороны, следуя работам [12, 16], казалось бы, можно определить n через концентрацию допирующего элемента x как $n \approx x/d^3$. При таком подходе мы наталкиваемся, по крайней мере, на два противоречия. Во-первых, уже при умеренных концентрациях двухвалентного элемента $x = 0.1$ –0.2 капли должны перекрываться, образуя сплошной металлический и ферромагнитный кластер. Однако вещество может оставаться диэлектриком даже при более высоких концентрациях ($x = 0.5$ –0.6), по крайней мере, в области высоких температур. Во-вторых, как видно из экспериментов, связь между концентрацией допирующего элемента и проводимостью манганита весьма сложна: изменение x в два раза может менять сопротивление на два порядка [12, 16] для одних материалов, для других же $\rho(x)$ оказывается немонотонной функцией в определенной области концентраций. Отметим, что эти противоречия существенны не только для используемой нами модели фазового расслоения, но и для других моделей, пытающихся описать свойства манганитов (например, поляронных моделей [17, 18]). К сожалению, на данный факт не обращают внимания авторы работ [12, 16] при анализе результатов своих экспериментов с точки зрения существующих моделей проводимости манганитов. Напрашивается вывод, что число носителей тока, участвующих в процессах переноса, отнюдь не совпадает с концентрацией x допирующего двухвалентного элемента. Это особенно очевидно в случае зарядового упорядочения, когда часть носителей заряда, возникших в результате допирования, оказывается локализованной, образуя периодическую структуру.

Таким образом, с помощью формулы (1) и экспериментальных данных можно определить значение комбинации параметров $l^5 n^2 k$. В табл. 1 приведены данные для кулоновской энергии A , удельного сопротивления при 200 К, а также величины $l^5 n^2 k$, найденные с помощью формулы (1) и эксперимен-

тальных данных, приведенных на рис. 1–4. Отметим, что если точность определения величины A составляет ± 50 К, то произведение параметров $l^5 n^2 k$ оценивается лишь по порядку величины (уже хотя бы потому, что с такой точностью нам известна частота ω_0).

3. МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЕ

В работах [9, 14, 15] показано, что рассматриваемая модель фазового расслоения приводит к весьма специфической температурной и магнитопольевой зависимости магнитосопротивления $MR(T, H)$. Так, в области достаточно высоких температур и не очень сильных магнитных полей для магнитосопротивления справедлива следующая формула (см. Приложение):

$$MR \approx 5 \cdot 10^{-3} \frac{\mu_B^3 S^5 N_{eff}^3 Z^2 g^3 J^2 H_a}{(k_B T)^5} H^2, \quad (2)$$

где μ_B — магнетон Бора, S — средний спин иона марганца, N_{eff} — число атомов марганца в капле, Z — число ближайших соседей иона марганца, g — фактор Ланде, J — обменный интеграл ферромагнитного взаимодействия, H_a — эффективное поле магнитной анизотропии капли. Закон $MR \propto H^2/T^5$ был экспериментально обнаружен для ряда манганитов в области диэлектрической фазы [9, 10]. К этому же закону в области высоких температур приводит обработка экспериментальных данных из работ [11, 12] (см. рис. 5–8).

Величина S зависит от относительного содержания трехвалентного и четырехвалентного ионов марганца и лежит в пределах от $3/2$ до 2 . В дальнейшем для оценок мы принимаем $S = 2$; Z — это число ионов марганца, с которыми взаимодействует электрон проводимости, находящийся в капле. Можно полагать, что по порядку величины Z равно числу ближайших соседей иона марганца, то есть $Z \approx 6$. Фактор Ланде g определяется экспериментально. Для манганитов обычно принимается, что g близко к спиновому значению 2 . Обменный интеграл J характеризует магнитное взаимодействие электрона проводимости с молекулярным полем, создаваемым ферромагнитно-коррелированными спинами в капле. Это молекулярное поле и обеспечивает ферромагнитное состояние в области низких температур. Соответственно для оценки J можно воспользоваться известным соотношением теории молекулярного поля $S(S+1)ZJ/3 \sim k_B T_C$, где T_C — температура Кюри. Величина T_C определяется эксперименталь-

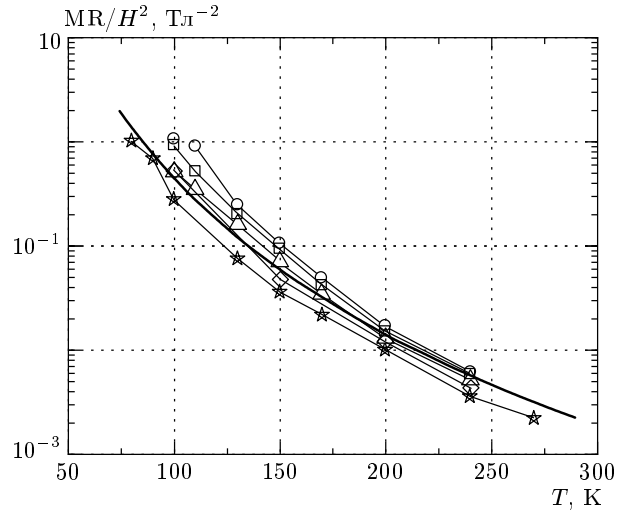


Рис. 5. Температурная зависимость отношения MR/H^2 для образцов $(La_{1-y}Pr_y)_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ [9]. Кружки — $y = 0.75$. Квадраты — $y = 0.75$, образец с замещением 30% ^{16}O на изотоп ^{18}O . Треугольники — $y = 0.75$ с изотопным замещением ^{16}O на ^{18}O . Ромбы — $y = 1$. Звездочки — $y = 1$ с изотопным замещением ^{16}O на ^{18}O . Сплошная линия — теоретическая кривая (2) ($MR \propto 1/T^5$)

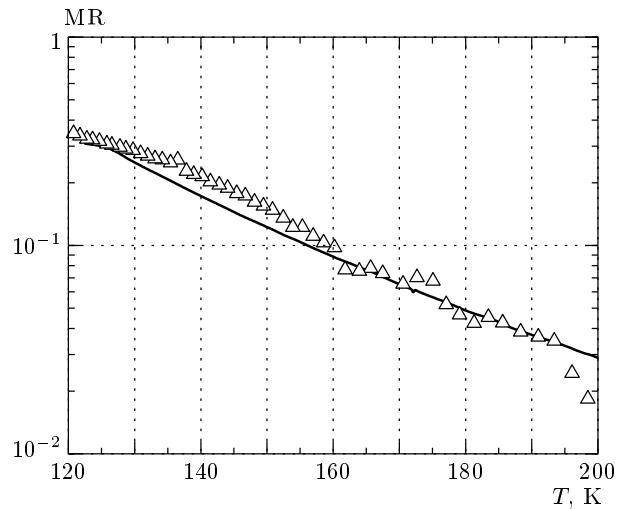


Рис. 6. Температурная зависимость магнитосопротивления образца $Pr_{0.71}Ca_{0.29}MnO_3$ при $H = 2$ Тл. Треугольники — экспериментальные данные [10], сплошная линия — теоретическая кривая (2)

но (по рассеянию нейтронов и измерению намагниченности) и составляет, например, для манганитов системы La–Pr–Ca примерно $100\text{--}120$ К [6].

Магнитная анизотропия манганитов, связанная с кристаллической решеткой, обычно невелика. По

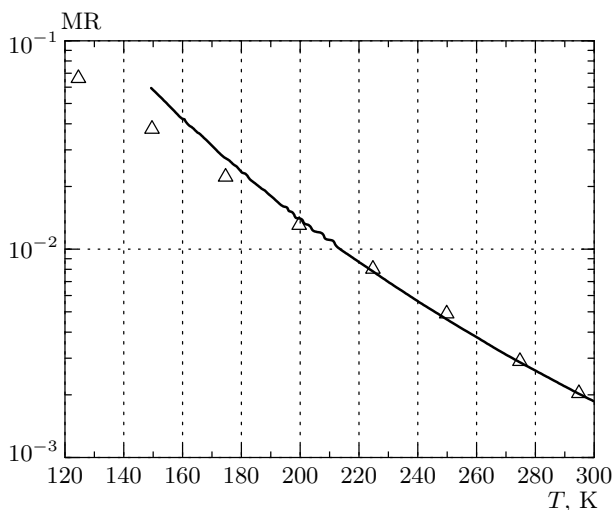


Рис. 7. Температурная зависимость магнитосопротивления образца $(La_{0.4}Pr_{0.6})_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ при $H = 1$ Тл. Треугольники — экспериментальные данные [11], сплошная линия — теоретическая кривая (2)

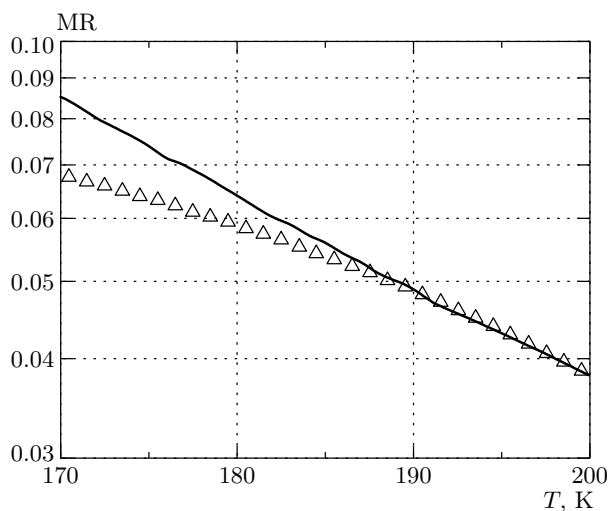


Рис. 8. Температурная зависимость магнитосопротивления образца $La_{0.8}Mg_{0.2}MnO_3$ при $H = 1.5$ Тл. Треугольники — экспериментальные данные [12], сплошная линия — теоретическая кривая (2)

этой причине эффективное поле магнитной анизотропии H_a определяется анизотропией формы капли и может быть оценено как $H_a = \pi(1 - 3\tilde{N})M_s$, где \tilde{N} — размагничивающий фактор капли (вдоль длинной оси), M_s — магнитный момент единицы объема капли. В дальнейшем мы будем полагать, что капля достаточно вытянута ($\tilde{N} \ll 1$) и $M_s = Sg\mu_B\pi/d^3$. Тогда $H_a \approx 2$ кЭ.

Величина N_{eff} естественно определяется размером капли и в принципе могла бы быть определена из нейтронных исследований. Однако нам не известны такие измерения, которые бы выполнялись в широком диапазоне температур для интересующих нас систем. По этой причине N_{eff} в нашем рассмотрении является подгоночным параметром. Тогда, воспользовавшись формулой (2) и приведенными выше оценками, мы можем найти N_{eff} из экспериментальных данных по магнитосопротивлению (в той области параметров, где $MR \sim H^2/T^5$). Соответствующие результаты приведены в табл. 2. Используя при подгонке кривые показаны сплошными линиями на рис. 5–8. Величина T_C принималась равной 120 К.

Таким образом, размер ферромагнитно-коррелированных областей оказывается примерно одинаковым для всех рассмотренных составов в области температур 200–300 К. Объем этих областей примерно равен объему шарика диаметром 7–8 постоянных решеток. Естественно предположить, что число носителей заряда в одной капле, участвующих в туннелировании, равно числу атомов допирующего элемента, попавших в каплю. Соответственно можно принять для оценок, что $k = N_{eff}x$, где x — атомная концентрация допирующего элемента. Значения x и k также приведены в табл. 2.

4. МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ

Концентрацию капель можно оценить из данных по магнитной восприимчивости, если предположить, что ферромагнитно-коррелированные области вносят в нее основной вклад. При высоких температурах ($k_B T \gg \mu_B g S N_{eff} H, \mu_B g S N_{eff} H_a$) для восприимчивости $\chi(T)$ имеем

$$\chi(T) = \frac{n(\mu_B g S N_{eff})^2}{3k_B(T - \Theta)}, \tag{3}$$

где Θ — постоянная Кюри–Вейса. Результаты соответствующей обработки эксперимента приведены в табл. 3. Используя при подгонке кривые показаны сплошными линиями на рис. 9–12. С помощью полученных результатов можно оценить концентрацию ферромагнитной фазы как $p = nN_{eff}d^3$. При расчетах полагалось, что постоянная решетки $d = 3.9 \text{ \AA}$ для всех образцов. С помощью данных табл. 1–3 можно также оценить длину туннелирования носителей l .

Таблица 2

Образцы	N_{eff}	x	k	Источник
$(La_{1-y}Pr_y)_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$	250	0.3	75	[9] (рис. 5)
$Pr_{0.71}Ca_{0.29}MnO_3$	200	0.29	58	[10] (рис. 6)
$(La_{0.4}Pr_{0.6})_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7^*$	250	0.4	100	[11] (рис. 7)
$La_{0.8}Mg_{0.2}MnO_3$	265	0.2	53	[12] (рис. 8)

Таблица 3

Образцы	Θ , К	n , cm^{-3}	p	l , Å	Источник
$(La_{1-y}Pr_y)_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$	55	$1.8 \cdot 10^{18}$	0.03	24	[9] (рис. 9)
$Pr_{0.71}Ca_{0.29}MnO_3$	105	$6 \cdot 10^{18}$	0.07	17	[10] (рис. 10)
$(La_{0.4}Pr_{0.6})_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7^*$	255	$2.5 \cdot 10^{18}$	0.04	19	[11] (рис. 11)
$La_{0.8}Mg_{0.2}MnO_3$	150	$0.6 \cdot 10^{18}$	0.01	14	[12] (рис. 12)

* Общая химическая формула этого соединения — $(La_{0.4}Pr_{0.6})_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$.

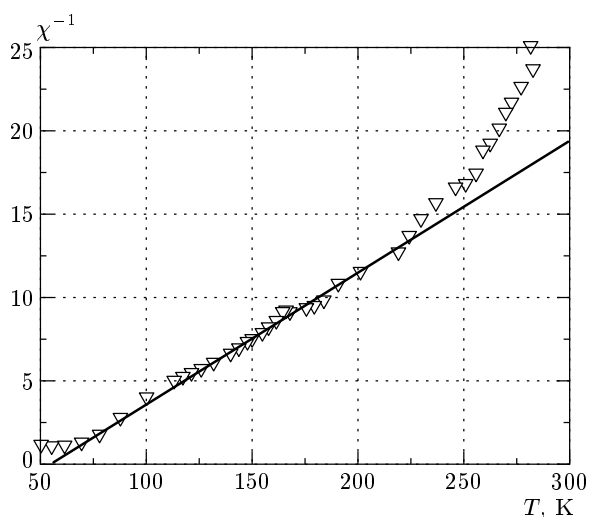


Рис. 9. Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости образца $(La_{1-y}Pr_y)_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ при $y = 1$. Треугольники — эксперимент [9], сплошная линия — теоретическая кривая (3). Для остальных образцов данной группы поведение $\chi(T)$ в области высоких температур весьма схоже с приведенным на рисунке (см. [9])

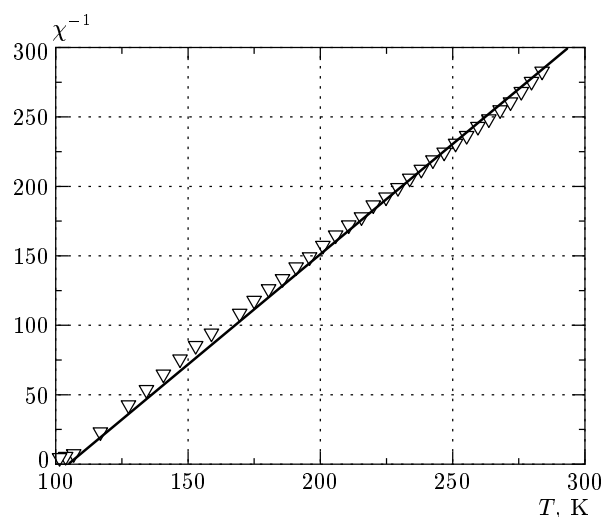


Рис. 10. Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости образца $Pr_{0.71}Ca_{0.29}MnO_3$. Треугольники — эксперимент [10], сплошная линия — теоретическая кривая (3). Измеряемый образец был пористым, и его плотность принималась равной 0.8 от теоретической

5. ОБСУЖДЕНИЕ

Итак, проведенный выше анализ показывает, что простая модель туннелирования электрона меж-

ду ферромагнитно-коррелированными областями (ФМ-каплями) позволяет описать экспериментальные данные по проводимости и магнитосопротивлению широкого класса манганитов. Сопоставление теории и эксперимента по температурным зависи-

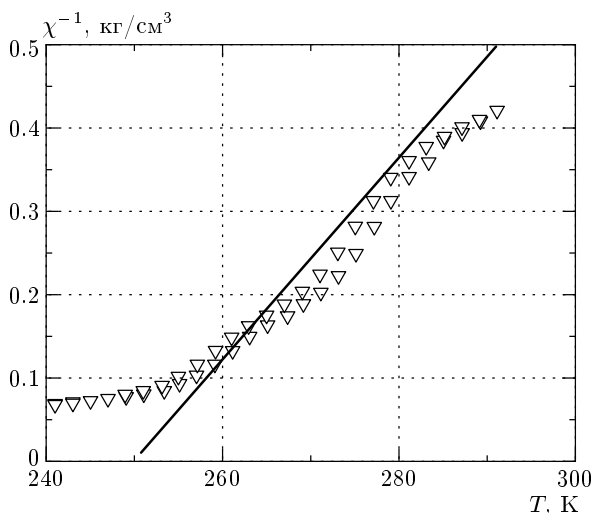


Рис. 11. Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости слоистого образца $(La_{0.4}Pr_{0.6})_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$. Треугольники — эксперимент [11], сплошная линия — теоретическая кривая (3)

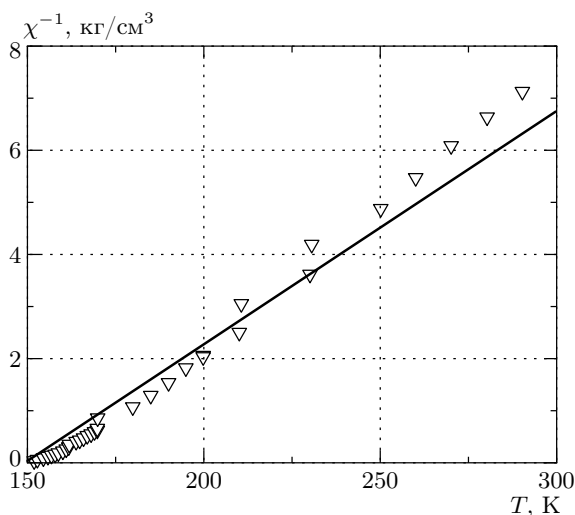


Рис. 12. Температурная зависимость обратной магнитной восприимчивости образца $La_{0.8}Mg_{0.2}MnO_3$. Треугольники — эксперимент [12], сплошная линия — теоретическая кривая (3)

мостям сопротивления, магнитосопротивления и магнитной восприимчивости дает возможность найти характеристики фазово-расслоенного состояния, такие как размер ФМ-капель, их плотность, число электронов в капле, и оценить характерную длину туннелирования носителей тока. При этом полученные величины параметров системы представляются

достаточно разумными. Так, характерная длина туннелирования оказывается порядка размеров ФМ-капель, концентрация ферромагнитной фазы в высокотемпературной области заметно меньше порога протекания и составляет от 1 до 7%. Отметим также, что капли оказываются многоэлектронными и содержат 50–100 носителей тока, а найденный из эксперимента параметр A равен по порядку величины энергии кулоновского отталкивания добавочного электрона на металлическом шарике диаметром $(7-8)d$. Полученные численные значения параметров капель (характерный кулоновский барьер, размеры и длина туннелирования) близки для манганитов с сильно различающимися транспортными свойствами.

Одной из особенностей фазово-расслоенных манганитов является большая величина $1/f$ -шума в области температур, где материал является диэлектриком [19, 20]. В рамках используемой нами модели фазового расслоения в работах [13, 14] была получена формула для постоянной Хуге:

$$\alpha_H = \frac{\langle \delta U^2 \rangle_\omega V_s \omega}{U_{dc}^2} = 2\pi^2 l^3 \ln^2 \left(\frac{\tilde{\omega}_0}{\omega} \right), \quad (4)$$

где $\langle \delta U^2 \rangle_\omega$ — спектральная плотность флуктуаций напряжения, V_s — объем образца, U_{dc} — приложенное напряжение, $\tilde{\omega}_0 = \omega_0 \exp(A/2k_B T)$. Подставляя в формулу (4) приведенные в таблицах и тексте оценки, получим, что $\alpha_H \approx 10^{-16} \text{ см}^3$ при температурах 100–200 К и частотах 1–1000 с^{-1} . Эта величина на 3–5 порядков выше, чем в полупроводниках.

Итак, мы имеем достаточно согласованную схему для описания транспортных свойств манганитов при тех условиях, когда ферромагнитно-коррелированные области не образуют перколяционного кластера. Более того, предложенный подход оказывается справедливым для достаточно широкого интервала концентраций допирующего элемента. Однако, как указывалось выше, остается не вполне ясным вопрос о связи концентрации ферромагнитных капель с уровнем допирования. Если считать применимой рассматриваемую картину фазового расслоения, то становится ясным, что отнюдь не все электроны или дырки, которые должны образоваться в результате допирования, участвуют в процессах переноса. Попробуем привести некие качественные соображения, иллюстрирующие различие в эффективной концентрации носителей при переходе из парамагнитного в магнитоупорядоченное состояние.

На фазовой диаграмме типичного манганита в области низких температур и малой концен-

трации допирующего элемента мы имеем область АФМ-состояния с включениями ФМ-фазы. При повышении уровня допирования происходит переход из АФМ- в ФМ-состояние. В области высоких температур манганит находится в парамагнитном (ПМ) состоянии. При понижении температуры происходит переход из ПМ- в АФМ- и ФМ-состояние в зависимости от уровня допирования. Рассмотрим поведение такой системы вблизи тройной точки. В АФМ-фазе радиус области R , которую один электрон переводит в ФМ-состояние, можно оценить как [3]

$$R = d (\pi t / 4 J_{ff} S^2 Z)^{1/5},$$

где J_{ff} — постоянная АФМ-взаимодействия. В области высоких температур в ПМ-фазе радиус области R_T , которую один электрон переводит в ФМ-состояние, соответствует размеру так называемого температурного феррона и $R_T = d (\pi t / 4 k_B T \ln(2S + 1))^{1/5}$ [3]. Критическая концентрация $x_c \approx 0.15$ перекрытия низкотемпературных ферронов находится из оценки $x_c \sim (3/4\pi) \cdot (d/R)^3$, а высокотемпературных ферронов — из оценки $\delta_c \sim (3/4\pi) \cdot (d/R_T)^3$. Подставляя формулы для радиусов низкотемпературного и высокотемпературного ферронов в отношении x_c/δ_c , вблизи тройной точки сосуществования ФМ-, АФМ- и ПМ-фаз находим

$$\frac{x_c}{\delta_c} \sim \left[\frac{T \ln(2S + 1)}{z J_{ff} S^2} \right]^{3/5} \sim \left[\frac{T_C \ln(2S + 1)}{T_N} \right]^{3/5}, \quad (5)$$

где T_C и T_N — температуры Кюри и Нееля. Поскольку в реальных манганитах $T_C \sim T_N \sim 120\text{--}150$ К и $\ln(2S + 1) \sim 1.6$ для $S = 2$, то $\delta_c \leq x_c$, что соответствует экспериментальным данным, согласно которым $\delta \sim 1\text{--}7\%$. Таким образом, хотя формула (5) выявляет правильную тенденцию, природа разбаланса заряда в парамагнитной области остается до конца не понятной. По-видимому, при $x > x_c$ (в реальных экспериментах концентрация x может достигать порядка 50 %) остаточный заряд локализован в парамагнитной матрице вне температурных ферронов. Более детальное исследование этого вопроса — предмет отдельного рассмотрения.

В заключение авторам приятно выразить благодарность В. А. Аксенову, Н. А. Бабушкиной, И. Ф. Волошину, И. Гордону, Ф. В. Кусмарцеву, В. В. Мошталкову, А. Н. Талденкову, Г. Уильямсу, Л. М. Фишеру, Д. И. Хомскому, С. В. Чёнгю и Х. Чжоу за полезные обсуждения и предоставленные экспериментальные данные. Работа была вы-

полнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 02-02-16708 и НШ-1694.2003.2), INTAS (грант № 01-2008) и CRDF (грант № RP2-2355-MO-02).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Приведем здесь краткий вывод формул для сопротивления (1) и магнитосопротивления (2). Рассмотрим систему металлических ферромагнитных капель в диэлектрической матрице, помещенную в электрическое поле E . Перенос заряда происходит вследствие туннелирования электронов с капли на каплю. В основном состоянии в каждой капле сосредоточено k носителей тока. Каждый новый носитель, туннелирующий на каплю, испытывает кулоновское отталкивание со стороны уже имеющихся на капле носителей. Энергия этого отталкивания A предполагается достаточно большой ($A > k_B T$). Тогда, как указывалось выше, основной вклад в проводимость вносят процессы с участием капель, содержащих $k, k + 1$ и $k - 1$ электронов. Пусть N — полное число капель в системе, N_1, N_2, N_3 — число капель соответственно с $k, k + 1$ и $k - 1$ электронами. Мы полагаем, что число капель постоянно. Тогда $N_2 = N_3, N_1 + 2N_2 = N$. Запишем статистическую сумму системы в виде [13]

$$Z = \sum_{m=0}^{N/2} C_N^m C_{N-m}^m \exp(-m\beta), \quad \beta = \frac{A}{k_B T}, \quad (6)$$

где C_N^m — биномиальные коэффициенты. Используя формулу Стирлинга, заменяя суммирование на интегрирование и вычисляя соответствующий интеграл методом перевала, стандартным образом получаем выражения для температурных средних чисел $N_{1,2,3}$:

$$\begin{aligned} \bar{N}_2 = \bar{N}_3 &= N \exp\left(-\frac{A}{2k_B T}\right), \\ \bar{N}_1 &= N - 2\bar{N}_2 = N \left[1 - 2 \exp\left(-\frac{A}{2k_B T}\right)\right]. \end{aligned} \quad (7)$$

В нашей модели при туннелировании электрона происходит один из следующих четырех процессов: 1) две капли с k электронами превращаются в капли с $k + 1$ и $k - 1$ электронами; 2) процесс обратный предыдущему; 3) капли с k и $k + 1$ электронами меняются местами; 4) капли с k и $k - 1$ электронами меняются местами. Полная плотность тока является суммой вкладов от всех четырех процессов: $j = j_1 + j_2 + j_3 + j_4$. Как показано в работе [13], все четыре процесса дают одинаковый вклад в проводимость. Рассмотрим в качестве примера только

третий из них. Плотность электронов, участвующих в таком процессе, равна $(k+1)n_2$, где n_2 — концентрация капель с $k+1$ электронами. Полагая $k \gg 1$, имеем

$$j_3 \approx ekn_2 \left\langle \sum_i v^i \right\rangle = ekn_2 \left\langle \sum_i \frac{r^i \cos \theta^i}{\tau(r^i, \theta^i)} \right\rangle, \quad (8)$$

где $\langle \dots \rangle$ означает статистическое усреднение, суммирование ведется по всем каплям с $k+1$ электронами, $\langle v^i \rangle$ — средняя скорость электронов вдоль направления электрического поля, r^i — расстояние между каплями, участвующими в данном процессе, θ^i — угол между вектором \mathbf{E} и направлением движения электрона, $\tau(r^i, \theta^i)$ — характерное время туннелирования. Выражение для τ запишем в стандартном виде [21]:

$$\tau(r, \theta) = \omega_0^{-1} \exp \left(\frac{r}{l} - \frac{eEr \cos \theta}{k_B T} \right), \quad (9)$$

где l и ω_0 — длина туннелирования и характерная частота. Вдали от порога протекания усреднение в (8) соответствует пространственному среднему от скорости v^i , умноженной на число капель N_1 , доступных для перескока. Полагая электрическое поле малым, $eEl/k_B T \ll 1$, и считая $A/k_B T \gg 1$, в первом порядке по E получаем

$$\left\langle \sum_i v^i \right\rangle = \frac{eE\omega_0}{k_B T} N e^{-A/2k_B T} \left\langle r^2 \cos^2 \theta e^{-r/l} \right\rangle_V, \quad (10)$$

где $\langle \dots \rangle_V$ означает усреднение по объему образца. Подставляя (10) в (8), после интегрирования по пространству получим выражения для соответствующего вклада в ток. Воспользовавшись очевидным соотношением $\rho = j_3/4E$, приходим к формуле (1). Мы видим, что сопротивление убывает с температурой по закону

$$\rho(T) \propto T \exp \left(\frac{A}{2k_B T} \right),$$

что характерно для систем с туннельной проводимостью [21].

Перейдем теперь к вычислению магнитосопротивления. Вероятность туннелирования зависит, в частности, от взаимной ориентации спина электрона и магнитного момента капли. Ориентация ферромагнитно-коррелированных областей в магнитном поле приводит к повышению вероятности перехода и, тем самым, к снижению сопротивления с ростом магнитного поля, которое и наблюдается в экс-

перименте. Проводимость системы можно представить в виде $\sigma(H) = \sigma_0 \langle \Sigma(H) \rangle$, где $\Sigma(H)$ — «спиновый» вклад в вероятность туннелирования электрона. При таком определении $MR = \langle \Sigma(H) \rangle - 1$. Обозначим эффективный магнитный момент капли как $M = \mu_B g N_{eff} S$. Пренебрегая взаимодействием капель, представим свободную энергию капли в магнитном поле в виде

$$U(H) = U(0) - M(H \cos \theta + H_a \cos^2 \psi), \quad (11)$$

где θ — угол между приложенным полем \mathbf{H} и направлением \mathbf{M} , H_a — поле анизотропии, а ψ — угол между осью анизотропии и направлением магнитного момента капли (мы полагаем для простоты, что анизотропия одноосная). Пусть \mathbf{H} параллельно оси z , а ось анизотропии лежит в плоскости (x, z) под углом β к вектору \mathbf{H} . Тогда

$$\cos \psi = \sin \theta \sin \beta \cos \varphi + \cos \theta \cos \beta,$$

где φ — угол между осью x и проекцией вектора \mathbf{M} на плоскость (x, y) .

В классическом пределе каждой ориентации вектора \mathbf{M} соответствует вероятность

$$P(H, \theta, \varphi) = A(H) \exp \left[\frac{M(H \cos \theta + H_a \cos^2 \psi(\theta, \varphi))}{k_B T} \right], \quad (12)$$

где $A(H)$ — нормировочный множитель. Стационарными состояниями электрона являются состояния с сохраняющейся проекцией спина $s = \pm 1/2$ на направление эффективного поля в ферромагнитно-коррелированной области. Пусть электрон взаимодействует с Z магнитными атомами в капле. Энергия такого взаимодействия равна $E_s = -JSZs$. Поскольку величина JSZ порядка температуры Кюри, величина E_s много больше энергии взаимодействия спина электрона с магнитным полем, если $H \ll 100$ Тл. При этом направление эффективного поля совпадает с направлением вектора \mathbf{M} . Тогда вероятность для электрона иметь проекцию спина s равна

$$P_s = \frac{\exp(-E_s/k_B T)}{2 \operatorname{ch}(E_s/k_B T)}. \quad (13)$$

При переносе электрона на другую каплю он оказывается в эффективном поле, направленном под углом ν к исходному, где

$$\cos \nu = \cos \theta_1 \cos \theta_2 + \sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos(\varphi_1 - \varphi_2),$$

а индексы «1» и «2» нумеруют капли. Тогда работа по перемещению электрона из первой капли во

вторую равна $\Delta E_s = E_s(1 - \cos \nu)$. Соответственно, вероятность перехода из капли в каплю пропорциональна $\exp(-\Delta E_s/k_B T)$. Теперь, учитывая все вероятностные множители и усредняя по каплям, запишем искомое выражение в виде

$$\langle \Sigma(H) \rangle = \int_0^{2\pi} d\varphi_1 \int_0^{2\pi} d\varphi_2 \int_0^\pi \sin \theta_1 d\theta_1 \times \\ \times \int_0^\pi \sin \theta_2 d\theta_2 P(\theta_1, \varphi_1) P(\theta_2, \varphi_2) \times \\ \times \sum_{s=\pm 1/2} P_s(\theta_1) \exp\left(-\frac{\Delta E_s}{k_B T}\right). \quad (14)$$

В области высоких температур, когда $k_B T$ больше зеемановской энергии $\mu_B g S N_{eff} H$ и энергии магнитной анизотропии $\mu_B g S N_{eff} H_a$, с помощью равенств (12)–(14) получаем формулу (2).

Более подробно пределы применимости полученных выражений для сопротивления и магнитосопротивления обсуждаются в работах [13–15].

ЛИТЕРАТУРА

1. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
2. E. L. Nagaev, *Phys. Rep.* **346**, 387 (2001).
3. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, *УФН* **171**, 577 (2001).
4. Э. Л. Нагаев, *Письма в ЖЭТФ* **6**, 484 (1967).
5. Л. Н. Булаевский, Э. Л. Нагаев, Д. И. Хомский, *ЖЭТФ* **54**, 1562 (1968).
6. А. М. Balagurov, V. Yu. Pomjakushin, D. V. Sheptyakov et al., *Phys. Rev. B* **64**, 024420 (2001).
7. J. Lorenzana, C. Castellani, and C. Di Castro, *Phys. Rev. B* **64**, 235127 (2001); *Phys. Rev. B* **64**, 235128 (2001).
8. Н. И. Солин, В. В. Машкауцан, А. В. Королев и др., *Письма в ЖЭТФ* **77**, 275 (2003).
9. Н. А. Бабушкина, Е. А. Чистотина, К. И. Кугель и др., *ФТТ* **45**, 480 (2003).
10. L. M. Fisher, A. V. Kalinov, I. F. Voloshin et al., *Phys. Rev. B* **68**, 174403 (2003).
11. P. Wagner, I. Gordon, V. V. Moshchalkov et al., *Europhys. Lett.* **58**, 285 (2002).
12. J. H. Zhao, H. P. Kunkel, X. Z. Zhou, and G. Williams, *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, 9349 (2001).
13. А. Л. Рахманов, К. И. Кугель, Ya. M. Blanter, and M. Yu. Kagan, *Phys. Rev. B* **63**, 174424 (2001).
14. А. О. Сбойчаков, А. Л. Рахманов, К. И. Кугель и др., *ЖЭТФ* **122**, 869 (2002).
15. А. О. Sboychakov, А. Л. Rakhmanov, К. И. Kugel et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, 1705 (2003).
16. J. H. Zhao, H. P. Kunkel, X. Z. Zhou, and G. Williams, *Phys. Rev. B* **66**, 184428 (2002).
17. M. Ziese and C. Srinitiwawong, *Phys. Rev. B* **58**, 11519 (1998).
18. G. Jakob, W. Westerburg, F. Martin, and H. Adrian, *Phys. Rev. B* **58**, 14966 (1998).
19. V. Podzorov, M. Uehara, M. E. Gershenson et al., *Phys. Rev. B* **61**, R3784 (2000).
20. V. Podzorov, M. E. Gershenson, M. Uehara, and S.-W. Cheong, *Phys. Rev. B* **64**, 115113 (2001).
21. Н. Мотт, Э. Дэвис, *Электронные процессы в некристаллических веществах*, Мир, Москва (1982).