

МАГНИТОРЕФРАКТИВНЫЙ ЭФФЕКТ В $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ В ИК-ОБЛАСТИ СПЕКТРА

Ю. П. Сухоруков^{a*}, А. В. Телегин^a, А. Б. Грановский^{b**}, Е. А. Ганьшина^b,
С. В. Наумов^a, Н. В. Костромитина^a, Л. В. Елохина^a, Х. Гонзалес^{c***}

^a Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук
620990, Екатеринбург, Россия

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

^c Departamento Fisica de Materiales, Facultad de Quimica, Universidad del Pais Vasco
20009, San Sebastian, Spain

Поступила в редакцию 10 февраля 2010 г.

Проведены комплексные исследования спектров отражения и магнитоотражения, магнитосопротивления, электрических свойств и экваториального эффекта Керра кристаллов $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. Измерения выполнены в широком температурном и спектральном диапазонах, в магнитных полях до 3.5 кЭ. Установлено, что магнитоотражение является высокочастотным откликом в инфракрасной области спектра на колоссальное магнитосопротивление вблизи температуры Кюри. Показана корреляция между полевой и температурной зависимостями магнитоотражения и колоссального магнитосопротивления. Ранее развитая теория магниторефрактивного эффекта для металлических систем на качественном уровне позволяет объяснить полученные экспериментальные данные. Отмечаются как недостатки теории магниторефрактивного эффекта применительно к манганитам, так и возможные дополнительные механизмы, определяющие магнитоотражение.

1. ВВЕДЕНИЕ

Магниторефрактивный эффект (МРЭ) является высокочастотным откликом на магнитосопротивление (МС) и проявляется как изменение отражения, пропускания (поглощения) электромагнитного излучения магнитным металлом или полупроводником при его намагничивании [1–4]. Первоначально термин МРЭ применялся для ближнего ИК-диапазона спектра и только для металлических мультислоев и гранулированных сплавов с гигантским МС [1–3]. Впоследствии МРЭ стали называть все эффекты в магнитоотражении и магнитопропускании в любых магнетиках со значительным магнитосопротивлением, будь то туннельное, колоссальное, анизотропное и другие возможные типы МС. При этом магниторефрактивный эффект наблюдался не только в ИК-,

но и в видимом, и в СВЧ-диапазонах спектра [4]. Большой интерес к МРЭ обусловлен, по крайней мере, двумя обстоятельствами. Во-первых, будучи четным магнитооптическим эффектом, но не связанным со спин-орбитальным взаимодействием, он на один–два порядка превышает традиционные нечетные и четные магнитооптические эффекты, что способствует перспективности его использования в магнитофотонике, в частности, для создания модуляторов электромагнитного излучения и бесконтактных магнитных сенсоров. Во-вторых, изучение спектров МРЭ является новым методом спектроскопии магнетиков, который позволяет исследовать механизмы взаимодействия электромагнитного излучения с веществом и механизмы магнитотранспорта.

Поскольку определяющая индексы рефракции n и k диэлектрическая проницаемость

$$\varepsilon(\omega, H) = \varepsilon_r(\omega, H) - i \frac{4\pi\sigma(\omega, H)}{\omega} = \varepsilon' - i\varepsilon'' = (n - ik)^2 \quad (1)$$

*E-mail: suhorukov@imp.uran.ru

**E-mail: granov@magn.ru

***J. Gonzalez, julianmaria.gonzalez@ehu.es

линейно зависит от проводимости образца $\sigma(\omega, H)$, изменяющейся при намагничивании образца во внешнем магнитном поле H , именно второй член $4\pi\sigma(\omega, H)/\omega$ в выражении (1) описывает МРЭ. Однако и первый член $\varepsilon_r(\omega, H)$, характеризующий вклады за счет токов смещения, межзонных переходов и взаимодействия излучения с фононами, также может зависеть от магнитного поля и определять вклады в магнитоотражение и магнитопропускание. В частности, даже в немагнитных диэлектриках при определенных условиях можно наблюдать заметное магнитоотражение [5]. В силу этого при экспериментальном исследовании МРЭ необходимо выделять различные вклады в магнитоотражение и магнитопропускание.

У «хороших» (высокопроводящих) металлов частотная зависимость $\sigma(\omega, H)$ подчиняется закону Друде–Лоренца и поэтому МРЭ согласно формуле (1) быстро уменьшается при приближении от ИК-диапазона спектра к видимому. Для «плохих» (низкопроводящих) металлов $\sigma(\omega, H)$ слабо зависит от частоты, поэтому для них возможно наблюдение МРЭ и в видимом диапазоне спектра. Манганиты с колоссальным МС при $T < T_C$ можно отнести к «плохим» металлам, они обладают одними из самых высоких значений МС, что делает исследование МРЭ в манганитах наиболее перспективным.

Ранее в большом цикле работ (например, работы [6–8] и ссылки в них) мы показали наличие эффекта гигантского магнитопропускания в ИК-области спектра в монокристаллах, пленках и гетероструктурах манганитов лантана. Поскольку в монокристаллах и тонких пленках манганитов лантана толщиной, сравнимой с величиной скин-слоя, МРЭ может определяться вкладами магнитоотражения (см., например, работу [9]), магнитопропускания [10], интерференционными явлениями [11] и вкладом диэлектрической подложки [5], которые не только маскируют спектральные зависимости, но могут даже изменить знак МРЭ, это затрудняет процесс измерений и интерпретации полученных результатов. В настоящей работе исследуется магнитоотражение от кристалла $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ с толщиной, существенно превышающей величину скин-слоя.

Существуют единичные работы по исследованию магнитоотражения в кристаллах манганитов. Измерения магнитоотражения в этих работах выполнены либо при температурах далеких от T_C , и поэтому связь между магнитоотражением и магнитосопротивлением не была установлена, либо для весьма ограниченного интервала длин волн и магнитных полей [9, 12, 13]. Таким образом, четкая картина

поведения МРЭ вблизи T_C в кристаллах манганитов (спектральная, полевая и температурная зависимости МРЭ) на данный момент отсутствует. Исследованию этих зависимостей и корреляции магнитоотражения и магнитосопротивления в кристаллическом $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ и посвящена настоящая работа.

2. ОБРАЗЦЫ И УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

В качестве объекта для исследований был выбран манганит состава $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. Физические свойства такого состава изучены детально (см. работу [14] и ссылки в ней), что облегчает проведение сравнительного анализа свойств исследуемых образцов. Образцы были вырезаны из массивного кристалла $(\text{LaCa})\text{MnO}_3$, выращенного методом зонной плавки с радиационным нагревом из поликристаллической заготовки в виде плотного стержня по процедуре, описанной в работе [15]. Заготовка получена спеканием прессованного порошка на воздухе при $T = 1250^\circ\text{C}$. Поликристаллический порошок номинального состава $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ был получен методом твердофазного синтеза из порошков La_2O_3 , CaO и Mn_3O_4 на воздухе при $T = 1100^\circ\text{C}$. Рост кристалла проводился на воздухе со скоростью около 10 мм/час. Несмотря на наличие микротрещин вдоль оси роста плотность кристалла превышает 99% от теоретической величины и близка к плотности монокристалла. Рентгеновская дифракция и рентгеноструктурный анализ показали, что направление роста кристалла совпадает с кристаллографическим направлением [110] в кубическом представлении. В нем присутствуют внутренние неоднородности, которые появляются в процессе приготовления заготовки и роста кристалла. Существуют и менее выраженные структурные домены с ориентацией [100] и [111], указывающие на то, что кристалл является блочно-мозаичным.

В работе приведены результаты исследований двух образцов, вырезанных вдоль оси роста кристалла в виде пластин размерами $5.5 \times 4 \times 0.5$ мм³. Состав поверхности образцов и распределение элементов La, Ca и Mn вдоль большой стороны пластин были определены методом рентгеновского микроанализа на сканирующем микроанализаторе JXA-733.

На рис. 1 сплошными линиями (1) показано распределение элементов Ca, La, Mn по длине образца №1 на глубине до 2 мкм. На рисунке видно, что существенных вариаций состава в этом образце нет. Образец имеет состав $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. Для

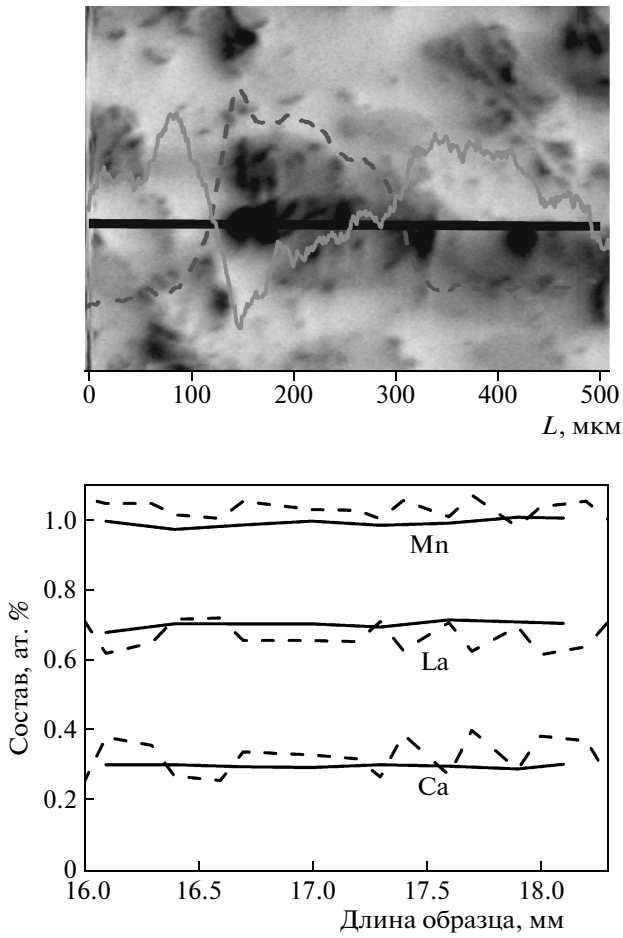


Рис. 1. Верхняя панель — интенсивности рентгеновского излучения по поверхности образца: светлые области — повышенное содержание La, темные области — повышенное содержание Ca. Сплошная и штриховая линии — интенсивность излучения La и Ca вдоль выбранного направления (прямая линия). Нижняя панель — распределение ионов Ca, La и Mn по длине кристалла $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ для образца № 1 (сплошные кривые) и образца № 2 (штриховые кривые) при $T = 295$ К

сравнения и выяснения, какое влияние на МРЭ и магнитотранспортные свойства оказывают мозаичность и отклонение от стехиометрии, мы приводим данные для образца № 2. Штриховые линии на рис. 1 показывают распределение элементов в образце № 2. Концентрация Ca меняется от 0.25 ат. % до 0.4 ат. %, концентрация La — от 0.61 ат. % до 0.71 ат. %, концентрация Mn — от 0.96 ат. % до 1.07 ат. %. Это означает, что образец № 2 является неоднородным по составу и имеет дефекты в виде вакансий в катионной и анионной подрешетках. Известно, что одно-

родность состава зависит от коэффициента распределения элементов в процессе роста. Кальций имеет малый коэффициент распределения, вследствие чего кристаллы $(\text{LaCa})\text{MnO}_3$ вырастают неоднородными (см. работу [16] и ссылки в ней). Верхняя панель на рис. 1 демонстрирует наличие в образце № 2 областей неоднородного распределения La и Ca размерами от 100 мкм до 1 мм.

Коэффициенты зеркального отражения образцов ($R = Y/Y_{\text{Al}}$, где Y и Y_{Al} — интенсивности естественного света, отраженного от образца и Al-зеркала) исследовались на высокочувствительном ИК-спектрометре при падении света близком к нормальному в диапазоне длин волн $0.8 \text{ мкм} \leq \lambda \leq 25 \text{ мкм}$, температурном интервале от 100 К до 300 К и в магнитном поле до $H = 3.5$ кЭ, направленном вдоль поверхности образца. Относительная погрешность определения отражения составляла 0.2%. Образец и Al-зеркало находились в одной плоскости. Поскольку поверхностный слой образца может обладать сложным составом, для определения эффективной температуры Кюри (T_C^*) отражательной поверхности мы использовали экваториальный эффект Керра как наиболее удобный метод определения температуры магнитного упорядочения поверхности. Эффект Керра исследовался при угле падения света 67° в энергетическом интервале от 1.5 эВ до 4.2 эВ при температурах до 300 К и в магнитном поле до 3.5 кЭ. Экспериментально измерялось относительное изменение интенсивности p -поляризованного отраженного от образца света $\delta = [I_H - I_0]/I_0$, где I_H и I_0 — интенсивности отраженного поляризованного света при наличии и в отсутствие магнитного поля [17].

Температурные зависимости интенсивности отраженного света, эффекта Керра, магнитоотражения, электросопротивления и магнитосопротивления измерялись в режиме нагрева со скоростью около 1–3 К/мин. Одновременно с оптическими исследованиями измерялось удельное электросопротивление (ρ) четырехконтактным методом в магнитных полях до 3.5 кЭ, направленных перпендикулярно току и вдоль плоскости образца. Серебряные проводники припаивались к образцам индиевым припоем с помощью ультразвукового паяльника.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Толщина образцов существенно превышает величину скин-слоя, которая составляет менее 1 мкм при

длине волны $\lambda = 10$ мкм. Это позволило нам использовать отражательные методики для исследования оптических и магнитооптических свойств поверхности образцов. Спектр экваториального эффекта Керра кристаллов $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ имеет вид, характерный для легированных манганитов [6, 10]. Величина эффекта Керра пропорциональна намагниченности образца. Ввиду наличия в образцах неоднородности по составу мы определяли эффективную температуру Кюри (T_C^*) по началу роста эффекта Керра. Из данных по $\delta(T)$ следует, что для первого кристалла $T_C^* \approx 230$ К и близка к температуре Кюри для монокристаллов подобного состава (например, [14, 18]). Для второго образца $T_C^* \approx 250$ К. Более высокая температура Кюри по сравнению с образцом № 1 свидетельствует о наличии в образце № 2 объемной доли высокотемпературной ферромагнитной фазы, состав которой согласно работе [19] близок к $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$. Наличие магнитных неоднородностей в обоих образцах проявилось в пятикратном уменьшении величины эффекта Керра и уменьшении температуры Кюри по сравнению с данными для высококачественной монокристаллической пленки состава $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, исследованной в работе [10].

Спектры отражения кристаллов $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ при $T = 295$ К и $T = 100$ К имеют вид подобный спектрам, приведенным в работах [9, 20]. В парамагнитной области величина коэффициента зеркального отражения меняется от 28 % при длине волны $\lambda = 3.5$ мкм до 9 % при $\lambda = 13.5$ мкм перед фоновым спектром, максимумы фоновых полос в котором центрируются при $\lambda = 17.2$ мкм (580 см^{-1}) и $\lambda = 28$ мкм (360 см^{-1}). В ферромагнитной области при $T < 230$ К наблюдается рост коэффициента отражения, связанный со вкладом свободных носителей заряда, наиболее сильный перед областью остаточных лучей ($R \approx 40$ % при $T = 100$ К).

Температурная зависимость относительного отражения обоих образцов ($R_{rel} = Y/Y_{300 \text{ К}}$), измеренного при $\lambda = 12.5$ мкм (правая шкала), и удельного электросопротивления (левая шкала) образца № 1 показаны на рис. 2. Сопротивление образца № 1 является типичным для монокристаллов и качественных поликристаллов $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ [19, 21]. Тем не менее наличие максимума сопротивления при $T_p \approx 250$ К и близкой к T_C^* аномалии при $T = 230$ К свидетельствуют о том, что объем образца № 1 не является однородным по составу. В зависимости $\rho(T)$ образца № 2 имеются два максимума сопротивления при $T_p \approx 230$ К близкой к T_C^* для состава $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ и при $T_p \sim 170$ К, что является

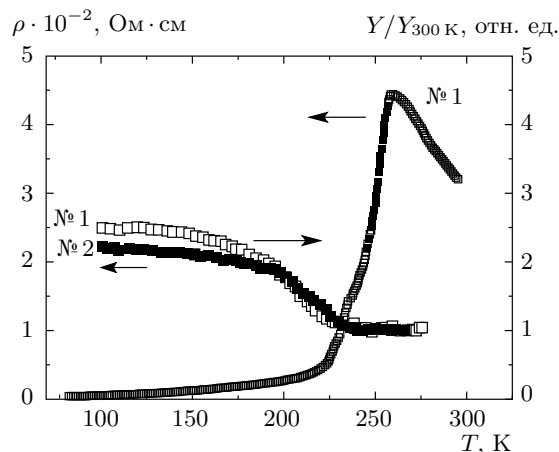


Рис. 2. Температурные зависимости относительного отражения $Y/Y_{300 \text{ К}}$ для образцов № 1, 2 (правая ось) при $\lambda = 12.5$ мкм и удельного электросопротивления ρ для образца № 1 (левая ось)

ся типичным для поликристаллических образцов с кристаллитами малых размеров. Наличие низкотемпературного максимума во втором образце, вероятно, связано с усиленной блочно-мозаичной структурой и большим вкладом дефектной фазы по составу близкой к $\text{La}_{0.65}\text{Ca}_{0.35}\text{Mn}_{1.05}\text{O}_3$. В спектре отражения кристаллов доминирующую роль играет фаза состава $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, что сопровождается увеличением отраженного света, начиная с температуры $T_0 \approx 230$ К, близкой к T_C^* (рис. 2). Присутствие фазы $\text{La}_{0.65}\text{Ca}_{0.35}\text{Mn}_{1.05}\text{O}_3$ в образце № 2 (кривая 2) приводит к незначительному уменьшению $R_{rel}(T)$ в области низких температур.

Определим коэффициенты магнитоотражения и магнитосопротивления соответственно как

$$\Delta R/R = [R_H - R_0]R_0, \quad \Delta \rho/\rho = [\rho_H - \rho_0]/\rho_0,$$

где R_H и ρ_H — коэффициент отражения и удельное электросопротивление при наличии магнитного поля, а R_0 и ρ_0 — эти же параметры в отсутствие поля. В температурной зависимости $\Delta R/R$ образца № 1 при длине волны $\lambda = 12.5$ мкм в температурном интервале 215–245 К достигается максимум около 4.6 % положительного знака (рис. 3а). Положение максимума $T_{\Delta R/R}^{max} \approx 230$ К близко к характерным температурам T_C^* , T_p и T_0 этого кристалла. Наличие усиленной блочно-мозаичной структуры в неоднородном по составу образце № 2 приводит к появлению в температурной зависимости $\Delta R/R$ двух максимумов около 3 % при $T_{\Delta R/R}^{max} \approx 170$ К и около 2 % при $T = 230$ К, близких к температурам T_0 и T_C^*

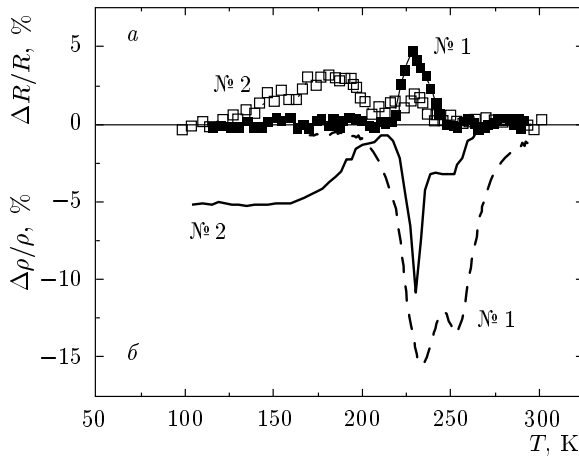


Рис. 3. Температурные зависимости: а) магнитоотражения $\Delta R/R$ при $\lambda = 12.5$ мкм, б) магнитосопротивления $\Delta\rho/\rho$ для образцов №№ 1, 2 в магнитном поле 3 кЭ

ферромагнитных фаз составов $\text{La}_{0.65}\text{Ca}_{0.35}\text{Mn}_{1.05}\text{O}_3$ и $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ (рис. 3а). Ранее было установлено, что магнитопротекание и колоссальное МС в манганитах достигают максимума вблизи T_C^* (например, [6]). По-видимому, это относится и к исследуемому магнитоотражению. Как и магнитосопротивление в манганитах, эффект магнитоотражения достигает максимума вблизи T_C^* (рис. 3).

Блочно-мозаичная структура кристаллов может быть представлена в виде среды, содержащей области (блоки) высокопроводящей и низкопроводящей фаз, в том числе и на поверхности образцов. Развитая теория МРЭ [2, 4] применима только к металлам, однако мы полагаем возможным применить ее для проведения оценок и качественного описания магнитоотражения в кристаллах манганитов, содержащих большую долю высокопроводящей металлической фазы.

Согласно теории МРЭ при нормальном падении света для «хороших» металлов в области Хагена–Рубенса ($\omega\tau \ll 1$, где τ — время релаксации, ω — частота падающего света) [2] магнитоотражение определяется через МС как

$$\frac{\Delta R}{R} = -\frac{1}{2} (1 - R) \frac{\Delta\rho}{\rho}. \quad (2)$$

Для «плохих» металлов, когда проводимость $\sigma(\omega, H)$ слабо зависит от частоты, выражение (2) усложняется [22]:

$$\frac{\Delta R}{R} = -(1-R) \frac{\Delta\rho}{\rho} k^2 \left[\frac{3n^2 - k^2 - 1}{(n^2 + k^2) [(1-n)^2 + k^2]} \right]. \quad (3)$$

Однако важным является то, что в обоих случаях должна иметь место корреляция температурных и полевых зависимостей магнитоотражения и магнитосопротивления.

Температурная зависимость $\Delta\rho/\rho$ образца №1 демонстрирует полосу с двумя близкими максимумами и слабый рост МС по мере понижения температуры (рис. 3б). Положение первого максимума при $T = 230$ К близко к T_C^* и $T_{\Delta R/R}^{max}$. Максимум при $T = 250$ К в пределах ошибки не проявляется в температурной зависимости магнитоотражения. Температурная зависимость $\Delta\rho/\rho$ образца №2 имеет полосы с максимумами при $T_{MR}^{max} \approx 230$ К и $T_{MR}^{max} \approx 170$ К на фоне низкотемпературного роста МС. Низкотемпературный рост магнитосопротивления, скорее всего, связан с туннелированием спин-поляризованных электронов между областями блочно-мозаичной структуры, как это имело место в поликристаллах и пленках манганитов с вариантной структурой (например, [7, 23]). Магнитоотражение и магнитосопротивление образцов №№ 1, 2 имеют четко выраженные максимумы при $T \approx 230$ К близкой к температуре Кюри для монокристаллов $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, в то время как аналогичная корреляция при других температурах не является четкой. Различие обусловлено тем, что в кристаллах магнитоотражение является оптическим откликом на магнитосопротивление в тонком скин-слое размером около 1 мкм. В то же время, магнитосопротивление является усредненной по объему кристалла величиной. В пределах ошибки измерений не было обнаружено особенностей в магнитоотражении, связанных с ростом МС при понижении температуры. По-видимому, отсутствие оптического отклика на туннельное магнитосопротивление связано с дополнительной температурной зависимостью индексов рефракции при $T < 200$ К (см. соотношения (2) и (3)), значительно уменьшающей магнитоотражение. Это подтверждается данными по температурной зависимости R_{rel} (рис. 2) и косвенно — результатами измерения эффекта Холла и термоэдс [14], свидетельствующими о наличии в соединении $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ как дырочной, так и электронной проводимости в этой области температур. Нельзя исключить также, что туннельное МС и оптический отклик на него в манганитах связаны с различными группами носителей.

Полевые зависимости магнитоотражения и магнитосопротивления кристаллов при $T = 230$ К (например, для образца №1 на рис. 4) также коррелируют друг с другом, как это предсказывается соотношениями (2) или (3) и является отличительным

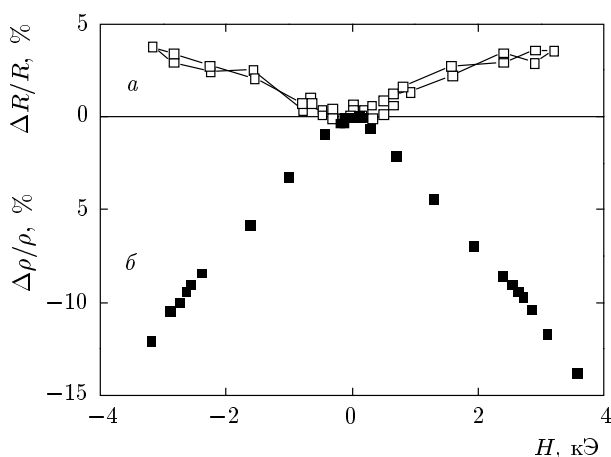


Рис. 4. Полевые зависимости: *a*) магнитоотражения $\Delta R/R$ при $\lambda = 12.5$ мкм, *б*) колоссального магнитосопротивления $\Delta\rho/\rho$ для образца №1 при $T = 230$ К

признаком МРЭ [4,22]. Таким образом, магнитоотражение в окрестности температуры Кюри в кристаллах $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ является высокочастотным откликом на колоссальное МС и представляет собой магниторефрактивный эффект на отражении.

Оценим величину МРЭ. Поскольку в окрестности $T_C = 225$ К для образца №1 при $\lambda = 12.5$ мкм коэффициент отражения $R \approx 0.17$, согласно формуле (2) максимальное значение МРЭ на отражении при $\Delta\rho/\rho \approx 14\%$ составляет $\Delta R/R \approx 5\%$, что близко к экспериментальному значению (рис. 3). Использование соотношения (3) для оценки МРЭ при тех же параметрах приводит к тому же значению $\Delta R/R$, что и формула (2).

Несмотря на хорошее согласие расчетных данных с экспериментом, необходимо отметить ряд обстоятельств. Во-первых, выражение (2) справедливо при $\omega\tau \ll 1$, т.е. при значительно больших длинах волн, где экспериментальное значение $\Delta R/R \approx 4.6\%$ (рис. 5). Во-вторых, в развитой теории МРЭ не учитывается, что за МРЭ и МС в манганитах могут быть ответственны разные типы носителей тока [4, 22]. В-третьих, в окрестности T_C^* кроме магнитоотражения вклад в МРЭ может дать и такой механизм, как, например, изменение эффективной массы полярона в магнитном поле, предложенный для немагнитных диэлектриков в работе [5]. Хотя такой механизм весьма спорен, в его пользу свидетельствует то, что экспериментальное значение $\Delta R/R \approx 4.6\%$ наблюдается только в спектральной области вблизи фоновой полосы (см. рис. 5). Наконец, в развитой теории МРЭ [2, 4, 22] не учитывает-

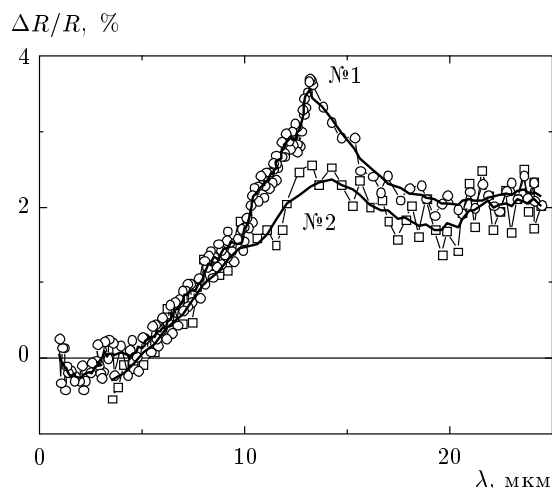


Рис. 5. Спектральные зависимости магнитоотражения $\Delta R/R$ образцов №№ 1, 2 в магнитном поле 3 кЭ при $T = 230$ К (сплошные линии проведены для наглядности)

ся специфический механизм колоссального магнитосопротивления в $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, который согласно работе [14] состоит в том, что приложение магнитного поля изменяет соотношение объемов высокопроводящей (компонента 1) и низкопроводящей (компонента 2) фаз в образце. Очевидно, что для двухкомпонентного композита формулы (2) и (3) следует модифицировать, используя для расчета проводимости и диэлектрической проницаемости теорию эффективной среды, например, приближение Бруггемана [24] или в самом простейшем случае средневзвешенные значения:

$$\sigma_{eff}(0) = x\sigma_1 + (1 - x)\sigma_2, \tag{4}$$

$$\begin{aligned} \sigma_{eff}(H) &= (x + y)\sigma_1 + (1 - x - y)\sigma_2, \\ y &= \frac{\Delta\rho(H)}{\rho} \frac{\sigma_{eff}(0)}{\sigma_2 - \sigma_1}. \end{aligned} \tag{5}$$

Здесь x — концентрация высокопроводящей фазы в отсутствие поля, $x + y$ — концентрация этой же фазы в присутствии магнитного поля, σ_1 и σ_2 — проводимости соответственно высокопроводящей и низкопроводящей фаз. Соответствующие выражения можно записать и для эффективной диэлектрической проницаемости композита и тогда нетрудно рассчитать МРЭ. Но даже для этой простейшей модели (а не более последовательного приближения Бруггемана) окончательные выражения для МРЭ достаточно громоздки. Поскольку параметры модели x , σ_1 , σ_2 и индексы рефракции неизвестны, мы

ограничимся только оценкой по порядку величины, согласно которой МРЭ по сравнению с выражением (3) увеличивается в $x/2(\epsilon'_2 - \epsilon'_1)$ раз, где ϵ'_1 и ϵ'_2 — действительные части диэлектрической проницаемости высокопроводящей и низкопроводящей фаз. Этот множитель может привести как к увеличению, так и к уменьшению значений МРЭ в зависимости от конкретных параметров модели. Таким образом, несмотря на количественное согласие рассчитанных значений магнитоотражения по формулам (2) и (3) с данными эксперимента, нельзя полностью исключить, что и другие механизмы кроме МРЭ могут давать вклад в магнитоотражение.

Рассмотрим теперь спектральные зависимости магнитоотражения (рис. 5). В кристаллах $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ оно имеет место при $\lambda > 5$ мкм. В области $0.8 \text{ мкм} < \lambda < 5 \text{ мкм}$ в пределах ошибки эффект не наблюдался. В спектральной зависимости магнитоотражения обоих образцов имеется максимум 2–4 % вблизи T_C^* в поле 3 кЭ и в интервале длин волн 12–15 мкм, т. е. вблизи первой фононной полосы $\lambda = 17$ мкм (600 см^{-1}) (рис. 5). Вблизи второй фононной полосы при $\lambda = 25$ мкм (400 см^{-1}) также имеет место незначительное увеличение магнитоотражения. В целом, вид спектра магнитоотражения качественно соответствует представлениям теории МРЭ. Так, в работе [2] показано, что магнитоотражение должно иметь максимум в окрестности частоты $\omega \sim \tau^{-1}$ и убывать как при увеличении длины волны, так и при приближении к видимому диапазону спектра, становясь пренебрежимо малым уже при $\lambda < 3\text{--}5$ мкм. Аналогичный результат получен и в работе [25]. Если для гранулированных сплавов длина волны, соответствующая максимуму магнитоотражения, приходится на область 20–24 мкм [2], то для менее проводящих манганитов изменение положения максимума в сторону более коротких волн вполне закономерно в силу меньших значений времени релаксации ($\tau \sim 5 \cdot 10^{-15}$ с, [20]). Важно отметить, что во всем диапазоне длин волн магнитоотражение положительно, что соответствует теории МРЭ. Увеличение магнитоотражения вблизи фононных полос также можно объяснить в рамках теории МРЭ, так как магнитоотражение линейно зависит от множителя $1 - R$ (см. формулы (2) и (3)). Следовательно, для объяснения полученных данных в кристаллах $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ не требуется привлечения каких-либо дополнительных механизмов.

Однако при сопоставлении наших данных с результатами, полученными рядом авторов для дру-

гих манганитов или манганитов того же состава в виде монокристаллических или поликристаллических пленок, возникает ряд вопросов. Прежде всего, мы не обнаружили магнитоотражения в видимой области спектра, тогда как авторы работы [26] нашли положительное магнитоотражение около 2 % при использовании лазерного излучения с $\lambda = 0.65$ мкм для пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$. На наш взгляд, это связано с рядом обстоятельств, способствующих возможности наблюдения МРЭ в видимом диапазоне. Во-первых, у этих пленок МС достигало 80 % (в поле 80 кЭ), что значительно больше, чем для наших образцов. Во-вторых, магнитоотражение измерялось в поле 7 кЭ, что в два раза превышает использованное в нашей установке. И, в-третьих, что наиболее важно, магнитоотражение измерялось при угле падения 45° . Как показано в работе [22], МРЭ существенным образом зависит от угла падения света. В нашем случае использовалось падение света близкое к нормальному.

В монокристаллах $\text{La}_x\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_{3/8}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ наблюдались смена знака $\Delta R/R$ при $\lambda = 2$ мкм и большая величина $\Delta R/R \approx 40$ % при $\lambda = 0.8$ мкм в поле 70 кЭ и температурах 4 К и 30 К [13, 27]. Отличие от наших данных, кроме характеризующегося другими физическими свойствами состава, может быть связано с большими значениями магнитного поля и низкими температурами. При таких условиях измерений возможно влияние магнитного поля на электронную структуру, сопровождающееся изменением вероятности межзонных оптических переходов. Этот механизм обсуждался в работах [3, 28] для металлических систем с гигантским МС и, строго говоря, не есть МРЭ, так как определяется не вторым, а первым членом в выражении (1). Тем не менее, эти результаты показывают возможность достижения заметных значений магнитоотражения и в видимой области спектра. Наконец, обсудим различие спектров магнитоотражения в наших кристаллических образцах с блочно-мозаичной структурой и в поликристаллических пленках $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ [25]. Для последних отчетливо видна конкуренция двух вкладов: на фоне широкого положительного спектра МРЭ (4–22 мкм) вблизи первой фононной полосы проявляется узкий участок спектра, в котором МРЭ отрицательно. В нашем случае во всей области спектра магнитоотражение положительно и значительно больше, чем в работе [25]. Авторы работы [25] считают, что дополнительный вклад противоположного знака в области фононной полосы связан с деформационными модами октаэдров

MnO₆. Поскольку этот вклад мал, возможно, он не заметен в нашем случае или октаэды MnO₆ в кристаллах находятся в слабдеформированном состоянии. Возможно, что отрицательное МРЭ связано и с тем, что, например, в пленках необходимо учитывать магнитоотражение от диэлектрической подложки и интерференционные явления, как это выявлено в работе [5]. Для монокристаллов такой механизм возможен только при наличии диэлектрической фазы в высокопроводящей матрице, но в составе La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃ он существенно ослаблен.

Таким образом, одновременные исследования магнитоотражения, магнитосопротивления, экваториального эффекта Керра и анализ полученных данных в рамках теории магниторефрактивного эффекта позволяют сделать вывод о том, что магнитоотражение в кристаллах La–Ca-манганитов является оптическим откликом на колоссальное магнитосопротивление вблизи температуры Кюри.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные экспериментальные исследования показывают, что магнитоотражение в инфракрасной области спектра в кристаллах La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃ является оптическим откликом на колоссальное магнитосопротивление вблизи температуры Кюри. Установлена корреляция между полевой и температурной зависимостями магнитоотражения и колоссального магнитосопротивления. Наличие неоднородностей на поверхности кристалла приводит к появлению в температурной зависимости магнитоотражения максимумов, положение которых близко к соответствующим температурам Кюри содержащихся в этом образце ферромагнитных фаз наибольшего объема. Показано подобие формы экспериментальных спектров магнитоотражения в среднем ИК-диапазоне с теоретически рассчитанными в работе [2]. Проведен анализ различных механизмов, влияющих на величину магниторефрактивного эффекта, применительно к манганитам с колоссальным магнитосопротивлением. Представляет несомненный интерес дальнейшее развитие теории магниторефрактивного эффекта применительно к однородным и неоднородным по составу монокристаллам легированных манганитов лантана, обладающих колоссальным магнитосопротивлением, с учетом дополнительных факторов, влияющих на величину как магнитоотражения, так и магнитопротекания.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 10-02-00038, 09-02-12455-офи, 09-02-00309), а также в рамках программы Президиума РАН (№ 09-П-2-1004), программы УрО и СО РАН (№ 09-С-2-1016) и молодежного научного проекта УрО РАН № 8-м. Один из авторов (А. Б. Г.) благодарит за финансовую поддержку Министерство образования и Министерство науки и инновации Испании (грант № SAB2009-0104).

Авторы выражают огромную благодарность Л. Н. Рыбиной за содействие при выращивании монокристаллов, А. М. Бурханову за подготовку образцов для эксперимента, Н. И. Солину за дополнительные измерения электрических свойств, К. И. Кугелю и Н. Г. Бебенину за полезные дискуссии.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. C. Jacquet and T. Valet Mater, Res. Symp. Proc. **384**, 477 (1995).
2. А. Б. Грановский, М. В. Кузьмичев, Ж. П. Клерк, ЖЭТФ **116**, 1762 (1999).
3. В. В. Устинов, Ю. П. Сухоруков, М. А. Миляев и др., ЖЭТФ **135**, 293 (2009).
4. А. Б. Грановский, Е. А. Ганьшина, А. Н. Юрасов и др., Радиотехн. и электрон. **52**, 1152 (2007).
5. В. Г. Кравец, Опт. и спектр. **98**, 449 (2005).
6. E. Gan'shina, N. Loshkareva, Yu. Sukhorukov et al., J. Magn. Magn. Mater **300**, 62 (2006).
7. Ю. П. Сухоруков, Е. А. Ганьшина, Н. Н. Лошкарева и др., ФММ **131**, 642 (2007).
8. Ю. П. Сухоруков, Н. Н. Лошкарева, Е. А. Ганьшина и др., ФММ **107**, 622 (2009).
9. A. V. Boris, N. N. Kovaleva, A. V. Bazhenov et al., Phys. Rev. B **59**, R697 (1999).
10. Yu. P. Sukhorukov, E. A. Gan'shina, B. I. Belevtsev et al., J. Appl. Phys. **91**, 4403 (2002).
11. A. S. Moskvina, E. V. Zenkov, Yu. P. Sukhorukov et al., J. Phys.: Condens. Mater. **15**, 2635 (2003).
12. Y. Okimoto and Y. Tokura, J. Supercond. Incorp. Nov. Magn. **13**, 271 (2000).
13. H. J. Lee, K. H. Kim, M. W. Kim et al., Phys. Rev. B **65**, 115118(6) (2002).
14. N. G. Bebenin, R. I. Zainullina, N. S. Bannikova et al., Phys. Rev. B **78**, 064415(7) (2008).

15. A. M. Balbashov, S. G. Karabashev, Ya. M. Mukovskiy et al., *J. Cryst. Growth* **167**, 365 (1996).
16. N. G. Bebenin, R. I. Zainullina, and V. V. Ustinov. *J. Magn. Magn. Mater* **322**, 963 (2010).
17. Е. А. Балькина, Е. А. Ганьшина, Г. С. Кринчик, *ЖЭТФ* **93**, 1879 (1987).
18. Manh-Huong Phan, V. Srinivas, Seong-Cho Yu et al., *J. Appl. Phys.* **93**, 8200 (2003).
19. R. I. Zainullina, N. G. Bebenin, V. V. Ustinov et al., *Phys. Rev. B* **76**, 014408(4) (2007).
20. Н. Н. Лошкарева, Ю. П. Сухоруков, В. Е. Архипов, *ФТТ* **41**, 475 (1999).
21. В. Е. Найш, *ФММ* **92**, 16 (2001).
22. А. Б. Грановский, И. В. Быков, Е. А. Ганьшина, *ЖЭТФ* **123**, 1256 (2003).
23. M. Ziese, *Rep. Progr. Phys.* **65**, 143 (2002).
24. Е. А. Ганьшина, М. В. Вашук, А. Н. Виноградов, *ЖЭТФ* **125**, 1172 (2004).
25. Rodrigo F. C. Marques, Paul R. Abernethy et al., *J. Magn. Magn. Mater* **272-276**, 1740 (2004).
26. D. Hrabovsky, J. M. Caicedo, G. Herranz, I. et al., *Phys. Rev. B* **79**, 052401(4) (2009).
27. M. Fiebig, K. Miyano, Y. Tomioka et al., *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2310 (1999).
28. R. J. Baxter, D. J. Pettifor, E. Y. Tsymbal et al., *J. Phys.: Condens. Mater.* **15**, L695 (2003).