

# ОПИСАНИЕ КОЛОССАЛЬНОГО МАГНИТОСОПРОТИВЛЕНИЯ La<sub>1.2</sub>Sr<sub>1.8</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> НА ОСНОВЕ СПИН-ПОЛЯРОННОГО МЕХАНИЗМА ПРОВОДИМОСТИ В ФЕРРОМАГНИТНОЙ ОБЛАСТИ ТЕМПЕРАТУР

С. А. Гудин\*, Н. И. Солин

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук  
620108, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 6 июня 2019 г.,  
после переработки 20 сентября 2019 г.  
Принята к публикации 24 сентября 2019 г.

Исследовалось сопротивление монокристалла La<sub>1.2</sub>Sr<sub>1.8</sub>Mn<sub>2(1-z)</sub>O<sub>7</sub> в магнитных полях от 0 до 90 кЭ в ферромагнитной области температур. В рамках спин-поляронного механизма проводимости описано наблюдаемое магнитосопротивление манганита La<sub>1.2</sub>Sr<sub>1.8</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub>. Магнитосопротивление определяется изменением размеров и направлений магнитных моментов магнитных неоднородностей (спиновых поляронов). Показано, что величина колоссального магнитосопротивления обеспечивается за счет увеличения (вдоль магнитного поля) линейного размера полярона. С использованием метода разделения вкладов в магнитосопротивление от различных механизмов проводимости получено, что для температуры 80 К в малых магнитных полях вклад в магнитосопротивление от ориентационного механизма близок к 50%. С увеличением магнитного поля этот вклад уменьшается, становясь в полях, больших 30 кЭ, малой величиной. Полученные сравнимые по величине вклады в удельную проводимость от ориентационного и спин-поляронного механизмов однозначно показывают необходимость учета при расчетах магнитосопротивления обоих механизмов проводимости. Вычислено температурное изменение размера полярона (в относительных единицах) в отсутствие магнитного поля и в магнитном поле 90 кЭ.

DOI: 10.31857/S0044451020040070

Следствием открытия в 1988 г. гигантского магнитосопротивления (ГМС) [1, 2] стало переоткрытие в допированных манганитах колоссального магнитосопротивления (КМС), превышающего по величине на несколько порядков ГМС [3, 4]. КМС было переоткрыто, так как впервые в допированных манганитах сопротивление в магнитном поле было померено в 1954 г. [5], но тогда на такую большую величину магнитосопротивления никто не обратил внимания. До открытия ГМС влияние магнитного поля  $H$  на сопротивление  $\rho$  считалось слабым, так как сила Лоренца в сотни раз слабее сил Кулона, т. е. магнитосопротивление

$$\text{MR}(H) = \frac{|\Delta\rho|}{\rho} = \frac{|\rho(0) - \rho(H)|}{\rho(H)} \ll 1. \quad (1)$$

\* E-mail: gudin@imp.uran.ru

Если не рассматривать квантовые эффекты, то магнитное поле не изменяет проекцию скорости частиц на направление электрического поля, но, благодаря силе Лоренца, закручивает траектории частиц в плоскости, перпендикулярной приложенному магнитному полю. В магнитном поле за время свободного пробега (время между двумя столкновениями) частица (носитель тока) пройдет путь вдоль направления приложенного электрического поля меньший, чем в отсутствие магнитного поля. Открытие ГМС величиной  $\text{MR}(H) \approx 1$  в многослойных пленках Fe–Cr с толщиной неферромагнитных прослоек Cr, обеспечивающей в отсутствие магнитного поля антипараллельную ориентацию магнитных моментов соседних слоев Fe (рис. 1) [1, 2, 6, 7], заставило задуматься о других механизмах проводимости, вызывающих такое большое увеличение магнитосопротивления. Предполагается, что механизм проводимости, определяющий ГМС, обусловлен зависимостью

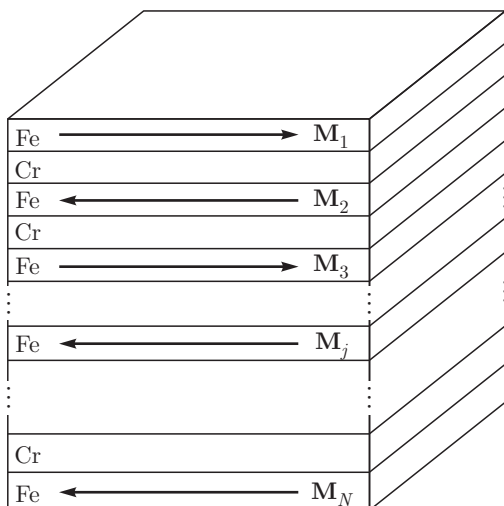


Рис. 1. Магнитная металлическая сверхрешетка (Fe/Cr)<sub>N</sub>. Магнитные моменты  $M_j$  слоев железа обозначены стрелками

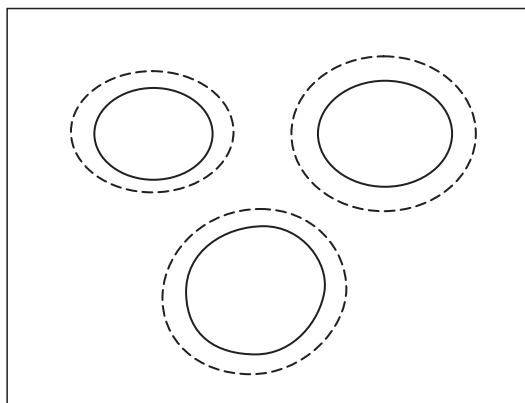


Рис. 2. Фазовое расслоение манганита на низкорезистивную и высокорезистивную фазы. Низкорезистивную фазу ограничивают сплошные линии в случае  $H = 0$  и штриховые линии при  $H \neq 0$

сопротивления между ферромагнитными (ФМ) слоями от угла  $\theta$  между направлениями их магнитных моментов. Этот механизм магнитосопротивления в [8, 9] назван ориентационным, или  $\theta$ -механизмом.

Открытие в манганитах эффекта КМС с параметром  $MR \gg 1$  стало вызовом для существующей электронной теории вещества. Хотя за прошедшие 25 лет написаны тысячи статей (см. обзоры [10–15]), посвященных этой проблеме, последовательная микроскопическая теория свойств манганитов так и не создана. Тем не менее установлено, что возникновение КМС связано с образованием в манганитах неоднородных зарядовых и спиновых состояний [10–14]. Огромную величину магнитосо-

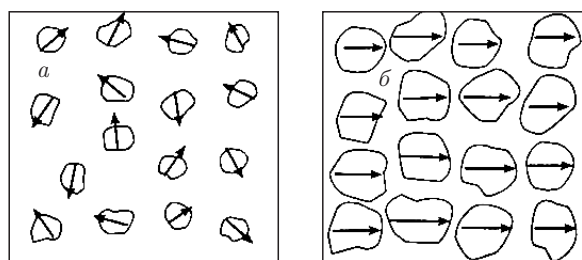


Рис. 3. Магнитное упорядочение низкорезистивной ФМ-фазы фазово-расслоенного манганита для полей  $H = 0$  (a) и  $H > H_{sat}$  (б), магнитные моменты областей низкорезистивной фазы обозначены стрелками

противления в манганитах связывают с перколяционными процессами, которые начали изучать еще в пятидесятых годах 20 века [16]. Наиболее популярная гипотеза, предлагаемая для объяснения КМС, предполагает существование фазового расслоения на низкорезистивную (ФМ) и высокорезистивную фазы (рис. 2), размеры  $r$  которых зависят от поля  $H$ . С ростом  $H$  низкоомные включения начинают перекрываться, что может привести к сильному уменьшению  $\rho$  вблизи порога протекания [10, 17–23]. Этот механизм магнитосопротивления назван размерным [9, 24, 25], или спин-полярным [26].

При протекании тока через магнитно-фазово-расслоенный манганит носитель тока переходит из одной магнитоупорядоченной области в другую. Если длина свободного пробега носителя тока без переворота спинового магнитного момента больше расстояния между магнитоупорядоченными областями, то удельное сопротивление будет (как и в случае металлических сверхрешеток с ГМС (см. рис. 1)) зависеть от направлений магнитного упорядочения ФМ-упорядоченных областей (рис. 3). В отсутствие магнитного поля из-за магнитодипольного взаимодействия направления магнитных моментов этих областей разориентированы. С ростом величины приложенного внешнего магнитного поля направления магнитных моментов ФМ-упорядоченных областей начинают ориентироваться по полю, полностью ориентируясь вдоль него в полях, больших  $H_{sat}$ . Таким образом, ориентационный механизм — механизм проводимости, определяющий ГМС в магнитных металлических сверхрешетках, — может вносить вклад и в КМС в магнитно-фазово-расслоенных манганитах.

Как и в работе [26], считаем, что проводимость  $\sigma$  определяется только ориентационным и размерным механизмами ( $\theta$ - и  $r$ -):

$$\sigma(H) = \sigma_r(H) + \sigma_\theta(H). \quad (2)$$

Зависимость  $\sigma_r(H)$  мы определяем на основе спин-поляронного механизма проводимости, как и в работах [17, 21]. Здесь под спиновыми поляронами понимаются квазичастицы, описывающие ФМ-неоднородности нанометровых размеров. В работе [21] было показано, что для слоистых манганитов  $(La_{1-x}Sr_x)_{n+1}Mn_nO_{3n+1}$  поляронное состояние является наилучшим описанием основного состояния. Хотя природа носителей заряда в низкотемпературном металлическом состоянии легированных манганитов до сих пор не ясна, данные фотоэмиссионной спектроскопии показывают, что поляроны сохраняются как основные носители заряда в  $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$  ниже  $T_C$  [22]. В ФМ-состоянии магнитные неоднородности существуют на разных масштабах. На микроуровне — это магнитные домены, на атомарном масштабе — «магнитные», т. е. обладающие магнитным моментом, атомы, так как в сложных магнетиках, таких как  $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ , часть атомов является носителями магнитного момента, а часть — нет. Рассматриваемые нами магнитные неоднородности существуют на масштабе длины, лежащем между двумя этими случаями. Из-за того что трехвалентный лантан в  $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$  замещается на двухвалентный стронций, в этом монокристаллическом манганите возникают зарядовые неоднородности (описываемые нами на языке поляронов). Эти зарядовые неоднородности существуют как в ФМ-, так и в парамагнитном состояниях, так как вызваны не обменными взаимодействиями, а существованием двух сортов атомов (La и Sr), находящихся в эквивалентных узлах решетки. Зарядовые неоднородности имеют некоторый объем, в который попадает часть  $d$ -электронов, определяющих ФМ-состояние манганита, т. е. эти неоднородности будут иметь некоторый магнитный момент. Поэтому в работе рассматриваются магнитные или спиновые поляроны.

Транспортные свойства «спин-поляронного», или «размерного» механизма проводимости  $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$  связаны с увеличением размера ФМ-поляронов при уменьшении температуры и приложении магнитного поля. Основной механизм проводимости — перескоки электронов проводимости с одного ФМ-полярона на соседний. Энергетический барьер  $A(H)$  для такого прыжка [21] определяется кулоновским отталкиванием между совершающим прыжок электроном с зарядом  $e$  и поляроном с зарядом  $q$ :

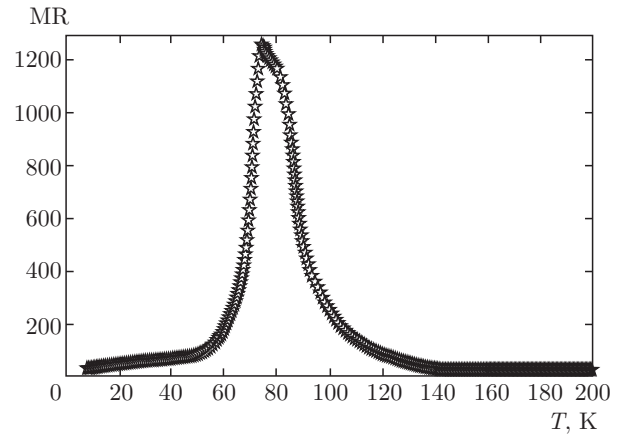


Рис. 4. Магнитосопротивление  $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$  в зависимости от температуры  $T$  при  $H = 90$  кЭ

$$A(H) = \frac{aeq}{R_{pol}(H)}, \quad (3)$$

где  $R_{pol}$  — радиус полярона,  $a$  — размерный коэффициент. В работе [17] для проводимости  $\sigma_r$  было получено

$$\sigma_r(T, H) = B\sigma_0 \frac{\omega_0}{T} \exp\left(-\frac{A(H)}{2T}\right), \quad (4)$$

где  $B$  — размерный коэффициент,  $\sigma_0$  — остаточная проводимость образца,  $\omega_0$  — магنونная частота. Учитывая в первом приближении линейную зависимость радиуса полярона от поля  $H$  [21, 27],

$$R_{pol}(T, H) = x(T) + y(T)H, \quad (5)$$

получим, что для температуры  $T$  вклад в проводимость от размерного механизма описывается выражением

$$\sigma_r(H) = P_2 \exp\left(\frac{P_3}{P_4 + H}\right), \quad (6)$$

где величины

$$P_2 = B\sigma_0 \frac{\omega_0}{T}, \quad P_3 = -\frac{aeq}{2Ty(T)}, \quad P_4 = \frac{x(T)}{y(T)} \quad (7)$$

являются параметрами.

Для вычисления магнитосопротивления был использован метод разделения вкладов в проводимость, разработанный для соединения  $La_{0.85}Sr_{0.15}MnO_3$  [9, 24, 25] и развитый для описания электросопротивления слоистого манганита  $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$  [26] с величиной КМС ( $MR(H) \approx 10^3$ ), близкой к рекордной (рис. 4). Метод основан на различии двух типов процессов намагничивания структурно-неоднородного вещества полем  $H$ .

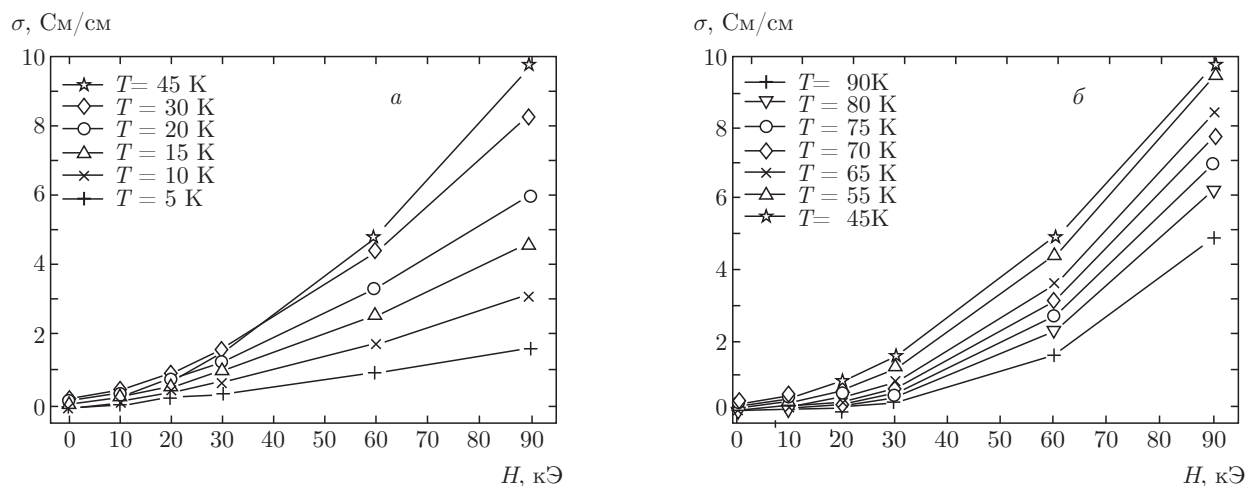


Рис. 5. Удельная проводимость  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  в зависимости от магнитного поля  $H$  для диапазонов температур 5–45 К (а) и 45–90 К (б), символы — экспериментальные значения

С ориентацией магнитных моментов ФМ-включений связаны  $\theta$ -процессы. Эти процессы заканчиваются при достижении поля магнитного насыщения  $H_{sat}$ , когда все магнитные моменты ФМ-включений ориентированы по полю. Дальнейшее намагничивание при  $H > H_{sat}$  происходит только за счет роста размеров ФМ-фазы. В этих магнитных полях вклад в проводимость от ориентационного механизма для конкретной температуры становится постоянным:

$$\sigma_0(H > H_{sat}) = P_1, \tag{8}$$

где  $P_1 = \text{const}$ .

Для каждой конкретной температуры, используя экспериментальные данные  $\sigma(H)$  и полученное значение  $P_1$ , вычисляем для  $H > H_{sat}$  ориентационные вклады в проводимость  $\sigma_\theta(H)$ . Используя полученные для  $H > H_{sat}$  данные и предполагая, что с увеличением магнитного поля размер полярона (5) увеличивается так, что при достижении поля насыщения  $H = H_{sat}$  изменения размера происходят плавно, без аномалий, можно получить ориентационный вклад в проводимость из разности:

$$\sigma_\theta(H) = \sigma(H) - \sigma_r(H). \tag{9}$$

Исследуемый монокристалл  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_{2(1-z)}\text{O}_7$  с  $z \approx 0.1$  размерами примерно  $4 \times 2 \times 1 \text{ мм}^3$  выращен в Московском энергетическом институте [28]. Магнитные и электрические исследования проведены на установках PPMS-9 Quantum Design (USA) и на магнитометре MPMS-5XL SQUID (подробнее см. работы [8, 27]). Измерения удельного электросопротивления проведены четырехконтактным методом в базисной плоскости образца (ток направлен вдоль оси  $a$ , поле  $H$  параллельно оси  $c$ ).

В работе [26] сообщаются результаты исследований для слоистого манганита  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  при температуре  $T = 75 \text{ К}$ , вблизи которой находится максимум КМС. Были получены следующие значения параметров:

$$\begin{aligned} P_1 &= 0.006 \pm 0.003 \text{ См/см}, \\ P_2 &= 174 \pm 3 \text{ См/см}, \end{aligned} \tag{10}$$

$$P_3 = 427 \pm 3 \text{ кЭ}, \quad P_4 = 40.5 \pm 0.5 \text{ кЭ}.$$

Настоящая работа продолжает исследования  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  и представляет результаты расчетов для ФМ-области температур от 5 до 90 К. Экспериментальные данные для удельной проводимости  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  в зависимости от магнитного поля  $H$  представлены на рис. 5 для диапазонов температур 5–45 К и 45–90 К. Для каждой конкретной температуры экспериментальные значения удельной проводимости на рис. 5 обозначены определенным символом (обозначения приведены на вставках). Для того чтобы было легче проследить динамику изменения проводимости, эти символы соединены линиями. Исследуемый температурный диапазон разделен на два участка, так как проводимость в магнитном поле (например, в поле 90 кЭ) растет с ростом температуры в диапазоне от 5 до 45 К (рис. 5а) и уменьшается в диапазоне от 45 до 90 К (рис. 5б). Для малых полей удельная проводимость изменяется в долях См/см, в поле 90 кЭ наблюдается разброс значений удельной проводимости от минимального значения 1.5 См/см для температуры 5 К до почти 10 См/см для температуры 45 К.

Как и в работе [26], мы использовали оценку величины поля насыщения  $H_{sat} = 10 \text{ кЭ}$ , которая свя-

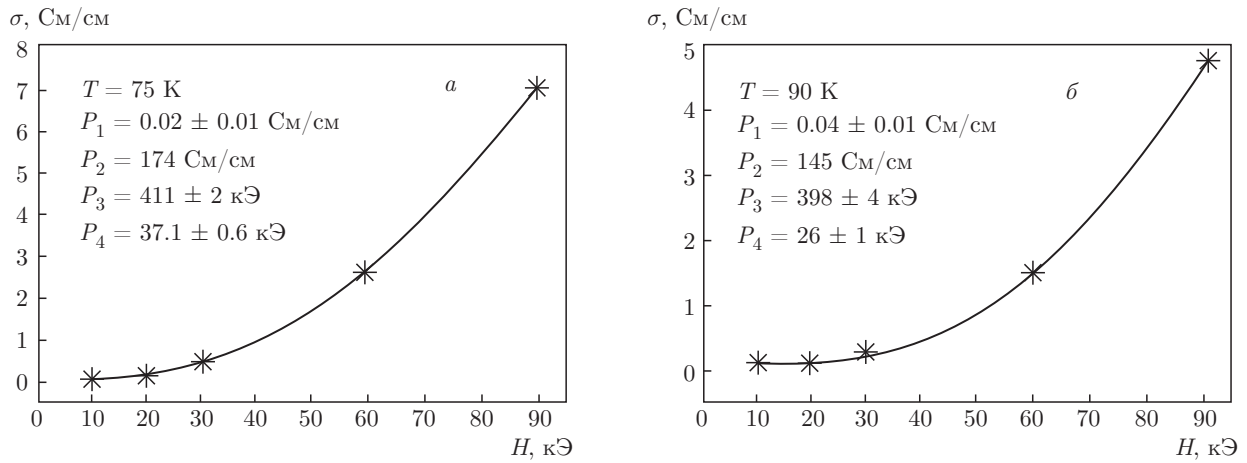


Рис. 6. Удельная проводимость  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  в магнитном поле  $H$  для температур 75 К (а) и 90 К (б). Точки — экспериментальные значения, сплошные линии — расчет. Приведены полученные значения параметров

зывает  $H_{sat}$  с магнитно-дипольным взаимодействием однодоменных ФМ-включений в неферромагнитной матрице. При такой оценке величина  $H_{sat}$  сравнима с размагничивающими полями поверхности ФМ-образцов, достигающих значений 10 кЭ. Параметр  $P_2$  (7) зависит от температуры обратно пропорционально. Тогда, используя полученные в работе [26] для температуры  $T_1 = 75$  К данные (10) для параметра  $P_2(T_1)$ , можем определить  $P_2(T)$  для любой другой интересующей нас температуры  $T$ :

$$P_2(T) = P_2(T_1) \frac{T_1}{T}. \quad (11)$$

Используя полученные формулы и вычисляя параметры (10) для каждой конкретной температуры, проведем расчет проводимости для диапазона температур от 5 до 90 К в магнитных полях до 90 кЭ из требования наилучшего совпадения экспериментальных и расчетных значений. Примеры расчета удельной проводимости для температур 75 и 90 К представлены на рис. 6. Как видно из рис. 4, для температуры 75 К магнитосопротивление имеет максимальную величину, уменьшаясь в 2.5 раза при достижении температуры 90 К. В работе [26] исследовалось магнитосопротивление для температуры 75 К, и расчетная кривая, содержащая 4 параметра, проводилась через 17 экспериментальных точек. В настоящей работе исследуется температурный интервал от 5 до 90 К, и для каждой конкретной температуры мы имеем меньшее количество экспериментальных данных, но и свободных параметров стало на один меньше.

Для проверки схожести результатов работы [26] и настоящей работы проведен расчет удельной про-

водимости для температуры 75 К для магнитных полей 10, 20, 30, 60, 90 кЭ (рис. 6а). Результаты настоящей работы и работы [26] для температуры 75 К достаточно близки. Как видно из рис. 6, вычисленные кривые удельной проводимости проходят через экспериментальные точки с достаточно большой точностью. Коэффициент детерминации характеризует, насколько хорошо расчетная кривая соответствует экспериментальным данным. Для всех расчетных точек получено, что коэффициент детерминации превышает 0.9996. Значение коэффициентов детерминации, близких к единице, указывает на то, что расчетные кривые удельной проводимости находятся достаточно близко к экспериментальным точкам.

Используя полученные параметры, вычислим относительный размер полярона в единицах  $aeq$ , где  $a$  — коэффициент пропорциональности в выражении (3):

$$\frac{R_{pol}(T, H)}{aeq} = \frac{P_4 + H}{2P_3T}. \quad (12)$$

На рис. 7 представлено изменение размера полярона в относительных единицах в зависимости от температуры  $T$  при  $H = 0, 90$  кЭ. С ростом температуры размер полярона плавно, без скачков уменьшается. Так как в каждой температурной точке параметры в уравнениях (6) и (8) вычислялись независимо, такое полученное согласованное изменение (без разброса) размера полярона косвенно подтверждает правильность рассматриваемой модели удельной проводимости.



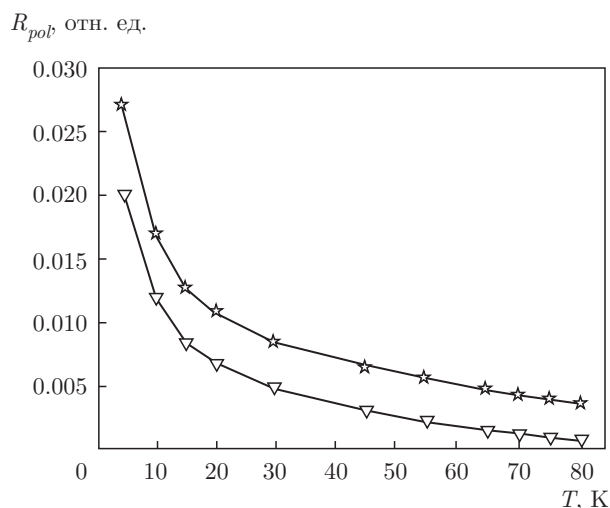


Рис. 7. Размер полярона в относительных единицах  $m/aeq$  в зависимости от температуры  $T$  при значениях поля  $H = 0$  кЭ (треугольники) и  $H = 90$  кЭ (звездочки)

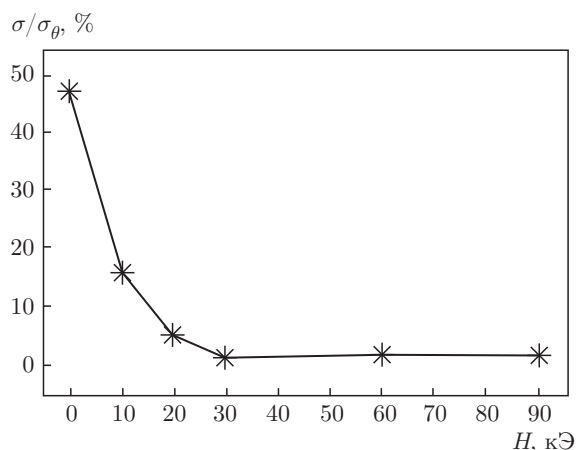


Рис. 8. Вклад в удельную проводимость  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  для температуры  $T = 80$  К от ориентационного механизма

Вычисленный вклад в удельную проводимость  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  для температуры  $T = 80$  К от ориентационного механизма представлен на рис. 8. Получено, что для температуры 80 К в малых магнитных полях вклад в магнитосопротивление от ориентационного механизма близок к 50 %, с увеличением магнитного поля этот вклад уменьшается, становясь в полях  $H > 30$  кЭ малой величиной.

В настоящей работе в рамках спин-поляронного механизма проводимости описано наблюдаемое магнитосопротивление манганита  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  с величиной КМС, близкой к рекордной. Показано, что такая величина КМС обеспечивается за счет увеличения (вдоль магнитного поля) линейного размера полярона. Магнитосопротивление

$\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  определяется изменением размеров и направлений магнитных моментов магнитных неоднородностей (спиновых поляронов). Используя метод разделения вкладов в магнитосопротивление от различных механизмов проводимости, мы получили, что для температуры 80 К в малых магнитных полях вклад в магнитосопротивление от ориентационного механизма близок к 50 %. С увеличением магнитного поля этот вклад уменьшается, становясь в полях  $H > 30$  кЭ малой величиной. Полученные сравнимые по величине вклады в удельную проводимость от ориентационного и спин-поляронного механизмов однозначно показывают, что при расчетах магнитосопротивления необходимо учитывать оба механизма проводимости. Вычислено температурное изменение размера полярона в отсутствие магнитного поля и в магнитном поле 90 кЭ.

**Благодарности.** Авторы благодарят К. И. Кугеля за ценные замечания, сделанные при обсуждении результатов этой работы.

**Финансирование.** Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства образования и науки «Квант» (№ 01201463332) при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 19-02-01000).

## ЛИТЕРАТУРА

1. M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert et al., Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
2. G. Binesch, P. Grunberg, F. Saurenbach et al., Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
3. R. von Helmholt, J. Wecker, B. Holzapfel et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 2331 (1993).
4. S. Jin, T. H. Tiefel, M. Mc Cormack et al., Science **264**, 413 (1994).
5. J. Volger, Physica **20**, 49 (1954).
6. M. Zabel, J. Phys.: Condens Matter. **11**, 9303 (1999).
7. D. T. Pierce, J. Unguris, R. J. Celotta et al., J. Magn. Mater. **200**, 290 (1999).
8. М. И. Куркин, Э. А. Нейфельд, А. В. Королев и др., ФТТ **55**, 896 (2013).
9. С. А. Гудин, М. И. Куркин, Э. А. Нейфельд и др., ЖЭТФ **148**, 1005 (2015).
10. Э. Л. Нагаев, УФН **166**, 833 (1996).

11. Y. Tokura and Y. Tomioko, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 1 (1999).
12. Y. Coey, M. Viret, and S. von Molnor, *Adv. Phys.* **48**, 167 (1999).
13. E. Dagotto, *Nanoscale Phase Separation and Colossal Magnetoresistance*, Springer-Verlag, Berlin (2002), p. 452.
14. M. B. Salamon and M. Jaime, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 583 (2001).
15. Н. Г. Бебенин, Р. И. Зайнуллина, В. В. Устинов, *УФН* **188**, 801 (2018).
16. S. R. Broadbent and J. M. Hammersley, *Proc. Cambr. Phil. Soc.* **53**, 629 (1957).
17. A. L. Rakhmanov, K. I. Kugel, Ya. M. Blanter et al., *Phys. Rev. B* **63**, 174424 (2001).
18. А. О. Сбойчаков, А. Л. Рахманов, К. И. Кугель и др., *ЖЭТФ* **122**, 869 (2002).
19. К. И. Кугель, А. Л. Рахманов, А. О. Сбойчаков и др., *ЖЭТФ* **125**, 648 (2004).
20. E. L. Nagaev, *Phys. Lett. A* **238**, 299 (1998).
21. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, *УФН* **171**, 577 (2001).
22. N. Mannella, W. L. Yang, K. Tanaka et al., *Phys. Rev. B* **76**, 233102 (2007).
23. А. О. Sboychakov, A. L. Rakhmanov, K. I. Kugel et al., *J. Phys.: Condens. Matter.* **15**, 1705 (2003).
24. М. И. Куркин, Э. А. Нейфельд, А. В. Королев и др., *ЖЭТФ* **143**, 948 (2013).
25. С. А. Гудин, Н. Н. Гапонцева, Э. А. Нейфельд и др., *Изв. РАН, сер. физ.* **78**, 1142 (2014).
26. С. А. Гудин, Н. И. Солин, Н. Н. Гапонцева, *ФТТ* **60**, 1067 (2018).
27. N. I. Solin, *J. Magn. Magn. Mater.* **401**, 677 (2016).
28. M. Balbashov, S. G. Karabashev, Ya. M. Mukovskiy et al., *J. Crystal Growth* **167**, 365 (1996).