Колоссальное магнитосопротивление системы $Sm_{1-x}Sr_xMnO_3$

© С.М. Дунаевский, А.Л. Малышев, В.В. Попов*, В.А. Трунов

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова Российской академии наук,

188350 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

* Физико-технический институт им. А.Ф.Иоффе Российской академии наук,

194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 13 мая 1997 г.)

Представлены результаты исследований температурных зависимостей удельного сопротивления, дифференциальной магнитной восприимчивости и магнитосопротивления частично замещенного перовскита $Sm_{1-x}Sr_xMnO_3$ (x = 0.16-0.4). В соединении с x = 0.30 при температуре 77 K обнаружено колоссальное отрицательное магнитосопротивление, достигающее 90% во внешнем магнитном поле 30 kOe.

1. В настоящее время во всем мире наблюдается повышенный интерес к изучению электрических, магнитных и структурных характеристик оксидов переходных металлов со структурой перовскитов. В первую очередь это вызвано обнаружением в частично замещенных манганатах $La_{1-x}L_xMnO_3$ (L = Ca, Ba, Sr и др. двухвалентные ионы) эффекта "колоссального" отрицательного магнитосопротивления (КМС) [1,2], которое более чем на порядок превосходит "гигантское" магнитосопротивление (ГМС), наблюдаемое в металлических магнитных сверхрешетках. Величина эффекта максимальна при концентрации носителей тока, близкой к критической, при которой наблюдается переход металл-изолятор. В основе физического объяснения отрицательного магнитосопротивления лежит механизм двойного обмена Зинера [3], который при наличии достаточного количества ионов Mn⁺³ и Mn⁺⁴, находящихся в эквивалентных кристаллических позициях, способствует установлению высокопроводящего ферромагнитного состояния системы. При достаточно высокой температуре манганаты являются парамагнетиками, проводимость которых обеспечивается дырками, диффундирующими в среде неупорядоченных спинов ионов Mn⁺³ и Mn⁺⁴. При приложении внешнего магнитного поля возникает частичное магнитное упорядочение, подвижность дырок растет, а сопротивление всего образца падает. Очевидно, что эффект максимален вблизи температуры перехода в ферромагнитное состояние Т_с, когда система в магнитном отношении является наиболее "мягкой". Механизм двойного обмена дает лишь качественную картину возникновения ГМС (КМС) в перовскитах. В действительности магнитные и диэлектрические переходы сопровождаются изменениями кристаллической структуры вещества, что затрудняет построение теоретических моделей, позволяющих дать количественное описание фазовых переходов.

2. В данной работе представлены результаты исследований электрических и магнитных свойств соединения $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (x = 0.16-0.4). Система $\text{Sm}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ интересна [4,5] как в связи с возможностью наблюдения отрицательного магнитосопротивления (при x = 0.1-0.5), так и для выяснения влияния переменной (смешанной) валентности ионов Sm на транспортные свойства и магнитную структуру перов-

скитов. Образцы Sm_{1-x}Sr_xMnO₃ (x = 0.16-0.4) были синтезированы в соответствии со стандартной керамической технологией, последним этапом которой был отжиг керамики в кислороде при $T = 1200^{\circ}$ C в течение 12 h. По предварительным данным рентгеновской и нейтронной дифракции, все они были однофазными и имели структуру перовскита (орторомбическую для x = 0.16 и кубическую с a = 3.846 Å для x = 0.3). Химический состав образцов контролировался при помощи рентгеновского флуоресцентного анализа, который с точностью $\sim 1\%$ показал то же содержание атомов Sm, Sr и Mn в соединении, что и стандартный химический анализ.

В работе были выполнены исследования температурных зависимостей удельного сопротивления $\rho(T)$ (T = 4.2-300 K) и дифференциальной магнитной вос-



Рис. 1. Зависимость удельного сопротивления $Sm_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ от температуры. В области температур от 150 K до комнатной наблюдается полупроводниковый тип проводимости с энергией активации $\sim 0.2 \text{ eV}$. *1*, *2* — ход сопротивления, измеренного при понижении и повышении температуры соответственно.



Рис. 2. Магнитосопротивление $Sm_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ при увеличении (1) и уменьшении (2) внешнего магнитного поля (T = 77 K).

приимчивости $\chi(T)$ ($T = 77-300 \,\mathrm{K}$). С понижением температуры наблюдался характерный для диэлектриков экспоненциальный рост сопротивления с энергией активации $\approx 0.1 - 0.15 \,\text{eV}$, в то время как парамагнитная восприимчивость до 100 К оставалась практически постоянной. В районе 90 К наблюдался резкий рост χ , свидетельствующий о магнитном переходе в ферромагнитное состояние. Для определения магнитного упорядочения при более низких температурах нами проводятся нейтронографические исследования образцов, синтезированных на основе изотопа Sm¹⁵⁴ и обладающих малым поглощением нейтронов. Результаты этих прецизионных структурных исследований будут представлены в отдельной работе. Температурная зависимость $\rho(T)$ для соединения с x = 0.3 показана на рис. 1. Обращают на себя внимание гистерезис ниже максимума и очень высокое значение удельного сопротивления манганата на основе самария, которое при низких температурах на несколько порядков превосходит удельное сопротивление соединения того же состава, но на основе лантана. Кроме того, сама температура, при которой сопротивление образца максимально, гораздо ниже аналогичной температуры манганатов лантана. В интервале температур от 30 до 4.2 К $\rho(T)$ практически не изменяется. Для образцов с меньшим содержанием атомов стронция из-за аномально высокого удельного сопротивления нам не удалось выполнить измерения при температурах ниже 77 К. Для образца с x = 0.22 максимум удельного сопротивления лежит около 85 К, затем оно падает, а ниже 80 К вновь возрастает. Такое поведение совпадает с поведением системы La-Sr-Mn-O3 [6] соответствующего состава.

Измерения магнитосопротивления были выполнены в полях до 30 kOe четырехзондовым методом при 77 K и комнатной температуре. Параметр, характеризующий эффект ГМС, определялся нами как $\delta(H,T) = [R(H,T) - R(0,T)]/R(0,T)$, где H — внешнее магнитное поле, T — температура. Результаты измерений для образца с x = 0.3 представлены на рис. 2. Хорошо видно, что уже в поле H = 10 kOe при T = 77 K имеет место 60% падение сопротивления, характерное для КМС. Следует отметить, что ряд авторов определяет параметр $\delta(H, T)$ как [R(H, T) - R(0, T)]/R(H, T). Очевидно, что в этом случае в поле 10 кОе эффект достигает 15%, а в поле 30 кОе он превосходит 2000%. При комнатной температуре эффект не превосходит 1.5%.

Несмотря на то что качественно температурные зависимости удельного сопротивления исследованной нами системы напоминают аналогичные зависимости частично замещенных манганатов на основе лантана $La_{1-x}L_xMnO_3$, между этими системами существуют принципиальные различия, обусловленные различием свойств редкоземельных элементов. Основными отличительными чертами манганата самария являются аномально высокое значение удельного сопротивления и низкое значение температуры перехода от диэлектрического к "металлическому" характеру проводимости, совпадающей с точкой Кюри (для случая x = 0.3). Дополнительный отжиг в кислороде в течение 12 h практически не влиял на транспортные характеристики образцов.

3. Существующие теоретические подходы к объяснению КМС в рамках двойного обмена учитывают в перовскитах только кислородно-марганцевую подсистему, при этом атомы металлов полагаются ответственными лишь за создание нужного числа свободных носителей и игнорируя их атомные магнитные свойства. Очевидно, что при таком подходе свойства системы должны очень слабо зависеть от типа редкоземельного элемента, что противоречит не только нашим данным (аномально высокое значение удельного сопротивления и низкое значение температуры перехода от диэлектрического к металлическому характеру проводимости Т_т в манганате самария по сравнению с манганатом лантана), но и результатам исследований соединения Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃ [7], которое в отсутствие внешнего магнитного поля не переходит в металлическое состояние даже при понижении температуры до 20 К, оставаясь при этом в парамагнитном состоянии.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 96-02-18143).

Список литературы

- [1] R. von Helmolt, J. Vecker, B. Holzapfel, L. Schultz, K. Samver. Phys. Rev. Lett. **71**, 2331 (1993).
- [2] S. Jin, T.H. Tiefel, M.McCormack, R.A. Fastnacht, R. Ramesh, L.H. Chen. Science 264, 413 (1994).
- [3] C. Zener. Phys. Rev. 82, 403 (1951).
- [4] V. Caignaert, A. Maignan, B. Raveau. Solid State Commun. 95, 357 (1995).
- [5] F. Damay, N. Nguen, A. Maignan, M. Kervieu, B. Raveau. Solid State Commun. 98, 997 (1996).
- [6] A. Urushibara, Y. Moritomo, T. Arima, A. Asamitsu, G. Kido, Y. Tokura. Phys. Rev. B 51, 14103 (1995).
- [7] J. Borralt, M.R. Lees, G. Balakrishnan, D.Mc.K. Paul. Appl. Phys. Lett. 68, 424 (1996).