

УДК 544.032.4; 53.098

# ИССЛЕДОВАНИЕ ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТИ В МАНГАНИТЕ ПЕРОВСКИТЕ

**ЗАХВАЛИНСКИЙ ВАСИЛИЙ СЕРГЕЕВИЧ,**

д. ф-м. наук, профессор

**УСАТЫЙ ИВАН МИХАЙЛОВИЧ**

Аспирант

НИУ БелГУ «Белгородский государственный университет»

**Аннотация:** Исследована температурная зависимость сопротивления керамического образца  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  в интервале температур 5-310 К в магнитных полях до 5 Тл. В рамках феноменологической модели были выявлены механизмы релаксации носителей заряда в различных температурных интервалах. Было показано, что в интервале температур  $T = 25 - 80\text{K}$ , температурная зависимость сопротивления описывается степенной зависимостью  $\sim T^3$ , что свидетельствует о полуметаллическом характере проводимости. Так, же был проанализирован низкотемпературный минимум электросопротивления в рамках модели межгранульного спин – поляризованного туннелирования.

**Ключевые слова:** температурная зависимость, керамика, магнитное поле, электросопротивление, сильно коррелированные системы.

## ELECTRICAL TRANSPORT STUDIES ON THE $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ MANGANITE

**Zakhvalinskii Vasilii Sergeevith,  
Usatyy Ivan Mikhailovich**

**Abstract:** The temperature dependence of the resistance of ceramic  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  in the temperature range 5–310 K in magnetic fields up to 5 T was investigated. Within the framework of the phenomenological model, the mechanisms of carrier relaxation for various temperature ranges were identified. It was shown that in the temperature range  $T = 25-80\text{K}$ , manganite is described by a power dependence  $\sim T^3$ , which indicates the half-metallic nature of conductivity. Also, the low-temperature minimum of the electrical resistance was analyzed in the framework of the model of charge carriers tunneling.

**Key words:** temperature dependence, ceramics, magnetic field, electrical resistance.

**Введение:** За последнее время можно говорить о ряде новых явлений, связанных с манганитами, легированных различными примесями. Остановимся здесь только на двух: эффект колоссального магнитосопротивления [1,2] и появление низкотемпературной слабой локализации электрона [3,4]. Надо заметить, что появление подобных свойств у манганитов обусловлено прежде всего сложной структурой этих соединений, наличием сильно коррелированной электронной подсистемы, сильного взаимодействия между зарядом и спином электронов и кристаллической решеткой. Последний эффект представляющего большой интерес с точки зрения как практического использования в частности развития спинтроники, так и фундаментальной науки и привлекает внимание исследователей к нанокompозитными материалам, таким как манганит  $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$  (где А- двухвалентный атом, обычно

*Ca, Ba, Sr*).

Нелегированное соединение  $LaMnO_3$  (содержащее в своем составе  $Mn^{3+}$ ) является антиферромагнитным диэлектриком ( $T_N \approx 130K$ ). Если же в нем происходит замена трехвалентного  $La$  двухвалентными атомами  $\{Ca, Ba, Sr\}$  и, соответственно, появление ионов  $Mn^{4+}$ , то для концентрации примеси  $0,2 \leq x \leq 0,5$  в низких температурах вещество  $La_{1-x}A_xMnO_3$  является ферромагнитным металлом. Заметим, что в стронциевой системе область растворимости ограничена значениями  $x \leq 0,6$  [5].

Интересен так же тот факт, что в низкотемпературном интервале на зависимости  $\rho(T)$  для большинства манганитов керамической природы наблюдается минимум. В настоящей работе исследовалась керамика  $La_{0,5}Sr_{0,5}MnO_3$ , и как было показано [14], для поликристаллических манганитов (как и наш образец), наиболее подходящая модель, описывающая низкотемпературный минимум является межгранульное спин поляризованное туннелирование электрона. Актуальность исследований этого направления, в первую очередь обусловлена возможностью его практического применения, например при изготовлении элементов спинтроники, что в последние годы представляет большой интерес для создания суперкомпьютеров.

В настоящей работе проведён анализ зависимости электросопротивления  $\rho$  керамики манганита-перовскита  $La_{0,5}Sr_{0,5}MnO_3$  в интервале температур  $5K \leq T \leq 310K$  от напряженности магнитного поля, в диапазоне значений от 0 до 5Тл.

**Эксперимент:** Керамический образец  $La_{0,5}Sr_{0,5}MnO_3$  был получен с применением стандартной твердофазной реакции. Для синтеза использовались исходные материалы  $La_2O_3$ ,  $MnO_2$ , и  $SrCO_3$ . Порошок  $La_2O_3$  гигроскопичен, и поэтому он подвергался предварительному отжигу. Смеси порошков исходных материалов отжигались на воздухе при температуре  $1360^\circ C$  в течение 40 часов с промежуточным измельчением. Полученный порошок прессовался в таблетки под давлением  $2000 \text{ кг/см}^2$ , затем таблетки отжигались на воздухе при температуре  $1360^\circ C$  в течение 22 часов. В соответствии с результатами рентгенофазового анализа было установлено, что образец  $La_{0,5}Sr_{0,5}MnO_3$ , имел ромбоэдрическую структуру (пространственная группа  $R3c$ ). Параметры решётки исследованного образца:  $a = 5.473\text{\AA}$ ,  $b = 5.473\text{\AA}$ ,  $c = 13.345\text{\AA}$ .

Измерения электропроводности были проведены на автоматизированной установке замкнутого цикла (Mini Cryogen Free Measurements System (Cryogenic Ltd, UK)) в интервале температур 5-310 К и в магнитном поле до 5 Тл.

**Результаты и обсуждения:** Исследованы температурные зависимости керамики  $La_{0,5}Sr_{0,5}MnO_3$  удельного сопротивления в интервале температур 5-310К в магнитных полях до 5Тл. На рис. 1 приведены экспериментальные данные  $\rho(T)$ , где в области высоких температур ( $T > 200K$ ) наблюдается переход металл – диэлектрик с температурой перехода  $T_{MI}$ . Приложенное магнитное поле, как видно из рис.1, подавляет удельное сопротивление образца, что в литературе называется эффектом колоссального магнитосопротивления, а температура перехода металл-диэлектрик  $T_{MI}$  смещается к более высоким значениям. Данное поведение образца обусловлено увеличением концентрации ферромагнитных доменов в объёме. Магнитное поле способствует увеличению температуры ферромагнитного упорядочения спинов в манганите и подавляет пространственную разориентацию спинов на ионах марганца. Это является причиной наблюдаемого уменьшения  $\rho$  на кривой  $\rho(T, H)$  в сторону высоких температур относительно соответствующего максимума на зависимости, измеренной при  $H = 0$ . При низких температурах ( $T < 50K$ ) на зависимости  $\rho(T)$  наблюдается четко выраженный минимум ( $T = T_{min}$ ), который с ростом магнитного поля подавляется. Своим происхождением низкотемпературный минимум на зависимости  $\rho(T)$  в поликристаллическом манганите  $La_{0,5}Sr_{0,5}MnO_3$  обязан межгранульному рассеянию, о котором будет сказано ниже.

В литературе имеются многочисленные теоретические работы, посвященные электронному транспорту в манганитах [15]. В соответствии с имеющимися теоретическими моделями [16,17] процесс релаксации электронов в  $3d$  – ферромагнитных металлах задается эмпирическим выражением

$$\rho = \rho_0 + \rho_m T^m + \rho_n T^n \quad (1)$$

где  $\rho_0$  – не зависящее от температуры остаточное сопротивление, которое определяется процессами рассеяния на примесях, дефектах, границах зерен и доменных стенках [18];  $m$  и  $n$  определяют

зависимые от температуры механизмы рассеяния.

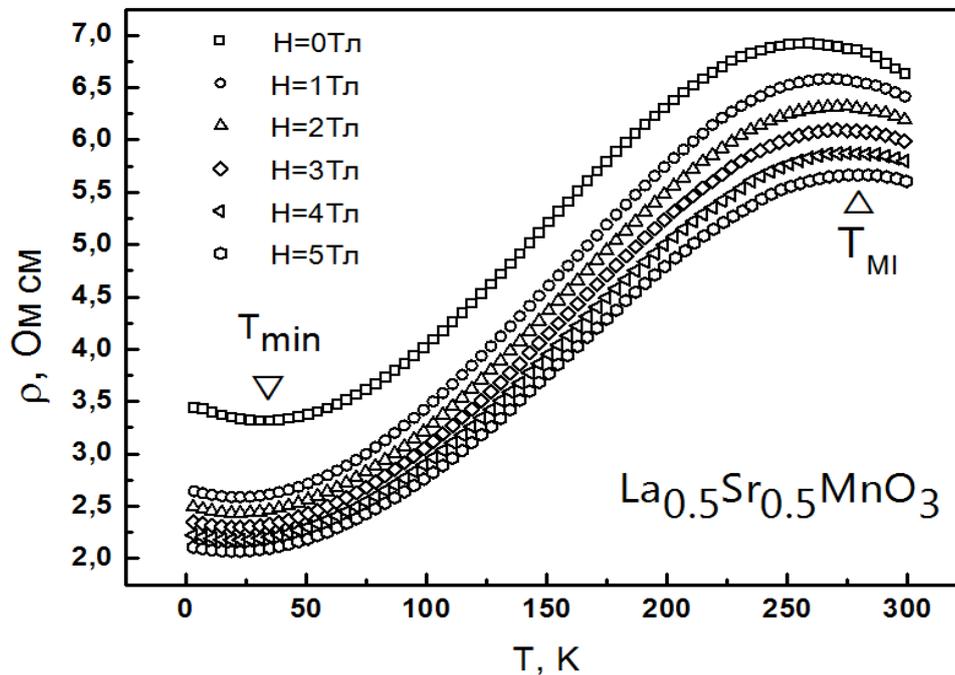


Рис. 1. Температурная зависимость удельного сопротивления образца  $La_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$  в магнитных полях от 0 до 5Тл. Стрелочками обозначена температура перехода металл – диэлектрик ( $T_{MI}$ ) и значение низкотемпературного минимума ( $T_{min}$ )

В качестве основных механизмов релаксации носителей зарядов в манганитах, при  $T < T_{MI}$ , были отмечены: электрон – электронные [19], одномагннные [20], электрон – магннные [21] и электрон – фоннные [22] процессы рассеивания, описываемые степенной зависимостью  $\rho_2 T^2$ ,  $\rho_3 T^3$ ,  $\rho_{4.5} T^{4.5}$  и  $\rho_5 T^5$ , соответственно. Более того было показано, что в области низких температур ( $T < T_{min}$ ) поведение удельного сопротивления коррелируется со слабой локализацией электрона, которая описывается  $-\rho_{1/2} T^{1/2}$  [3,4,23].

Экспериментальные данные  $\rho(T)$  в области низких температур ( $T < 80K$ ), хорошо аппроксимировались следующим соотношением

$$\rho = \rho_{01} - \rho_{1/2} T^{1/2} + \rho_3 T^3 \quad (2)$$

При  $T_{min} < T < T_{MI}$  электросопротивление LSMO следовала соотношению

$$\rho = \rho_{02} + \rho_2 T^2 \quad (3)$$

Результат аппроксимации экспериментальных данных выражением(2) и (3) приведён на рис. 2 сплошными красными и темными линиями соответственно (параметры аппроксимации приведены в таблице). При низких температурах ( $T < 80K$ ) наблюдалось снижение удельного сопротивления, и при ( $T = T_{min}$ ) сопротивление проходило через минимум. Этот переход представлен на вставке к рис. 2 где изображена зависимость  $\rho(T)$  в интервале температур 5-100К. Из рисунка видно, что с ростом магнитного поля глубина минимума уменьшается, но при этом нет полного подавления даже в магнитном поле 5Тл, что можно увидеть из рис. 1. Видно, что красные и темные линии аппроксимации достаточно хорошо описывают экспериментальные результаты, как в зависимости от температуры, так и в зависимости от магнитного поля. Следовательно, основными механизмами процессов релаксации носителей заряда керамики  $La_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$  в интервале температур  $0 < T < T_{MI}$  является эффект слабой локализации( $\sim T^{1/2}$ ), одномагннный( $\sim T^3$ ) и электрон – электронный ( $\sim T^2$ ) процесс рассеивания.

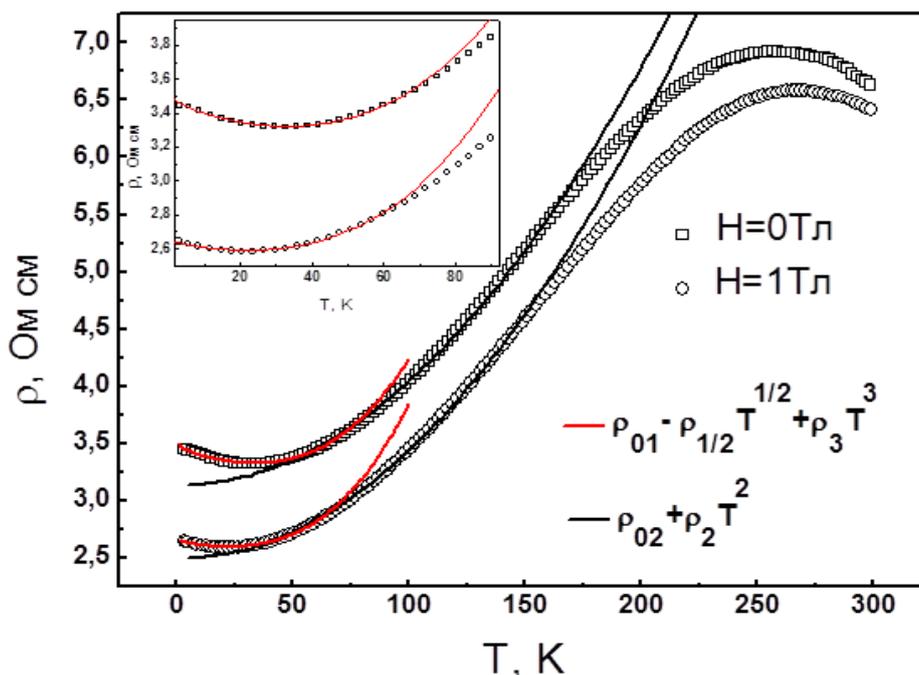


Рис. 2. Температурная зависимость удельного сопротивления образца  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  в магнитных полях 0 и 1Тл. Сплошные темные и красные линии соответствуют уравнению  $\rho = \rho_{02} + \rho_2 T^2$  и  $\rho = \rho_{01} - \rho_{1/2} T^{1/2} + \rho_3 T^3$  соответственно

Таблица 1

Значения параметров аппроксимации с помощью формул (2) и (3)

$H, \text{Тл}$	$\rho_{01}, \text{Ом} \cdot \text{см}$	$\rho_{02}, \text{Ом} \cdot \text{см}$	$\rho_{1/2} \cdot 10^{-3}, \text{Ом} \cdot \text{см}/\text{К}^{1/2}$	$\rho_3 \cdot 10^{-6}, \text{Ом} \cdot \text{см} / \text{К}^3$	$\rho_2 \cdot 10^{-5}, \text{Ом} \cdot \text{см} / \text{К}^2$
0	3.5	3.1	47.9	1.3	9.0
1	2.7	2.5	25.3	1.7	9.6
2	2.5	2.3	23.5	1.6	8.8
3	2.4	2.2	21.2	1.6	8.4
4	2.3	2.1	19.2	1.5	8.1
5	2.1	2.0	17.1	1.4	7.6

Все параметры, как видно из таблицы 1, непрерывно снижаются с увеличением магнитного поля. Параметр  $\rho_{01}$  находится в том же порядке, что и  $\rho_{02}$ . Уменьшение  $\rho_0$ , которое определяет остаточное сопротивление, может быть связано с увеличением размеров зерна (уменьшение суммарной удельной поверхности зерен), за счет наличия магнитного поля, спины, будут выравниваться в направлении магнитного поля и в результате увеличат магнитный домен, что улучшает качество образца. Параметр  $\rho_2$ , вызванный электрон – электронным рассеянием, характеризует сопротивление в ферромагнитной области, и так же снижается с приложенным магнитным полем. Предположительно, это происходит потому, что магнитное поле стремится выронить спины домена в направлении поля, а локализованные спины двух катионов  $\text{Mn}^{+3}$  и  $\text{Mn}^{+4}$  вблизи доменных границ будут стремиться быть параллельны. В результате  $e_g$  – электроны легко переносятся между катионами  $\text{Mn}^{+3}$  и  $\text{Mn}^{+4}$  через доменные стенки, а удельное сопротивление с ростом магнитного поля, уменьшается.

Существование слабой локализации в низких температурах, в поликристаллических манганитах хорошо коррелируются с моделью об межгранульном спин-поляризованном транспорте (СПТ) электрона [8-10]. Суть модели заключается в том, что при низких температурах в нулевом магнитном поле магнитные моменты на границах ближайших зерен, между которыми происходит туннельный перенос заряда, ориентированы антипараллельно друг другу. Такое антиферромагнитное расположение магнит-

ных моментов означает наличие энергетического барьера для носителей заряда на границе между двумя гранулами. Вероятность туннелирования носителей будет определяться взаимным расположением магнитных моментов соседних гранул. С ростом температуры тепловая энергия «размораживает» магнитные моменты соседних гранул, помогая носителям тока перескочить энергетический барьер под действием электрического поля, что приводит к уменьшению сопротивления с ростом температуры, при  $T = T_{min}$  сопротивление проходит через минимум [14]. Из таблицы, видно, что параметр  $\rho_{1/2}$  с ростом магнитного поля уменьшается. Предположительно, можно сказать, что внешнее магнитное поле, ориентирует намагниченность в гранулах вдоль направления магнитного поля, и создает тот же эффект, что и прирост температуры при этом  $\rho_{1/2}$  уменьшается с приложенным магнитным полем, что и наблюдается в таблице. Поэтому можно сделать вывод что, стремление спинов к параллельной конфигурации, присутствующих в домене, подавляет различные вклады рассеяния и в результате  $\rho_0, \rho_{1/2}, \rho_3, \rho_2$  уменьшается с применением магнитного поля [23]. Так же, стоит отметить, что на низкотемпературном участке ( $T = 25 - 80K$ ) поведение удельного сопротивления следовало соотношению  $\rho \sim T^3$ , что является идентификатором проводимости полуметаллического (half-metals) типа [20]. Особенностью полуметаллов является, то что проводимость определяется только спинполяризованными электронами. Этот результат представляет большой интерес, так как имеется возможность практического использования (при изготовлении элементов спинтроники). Аналогичный результат был получен в работах [20] где исследовался образец  $LSMO(x = 0.2, 0.3, 0.4)$  и был идентифицирован полуметаллический характер проводимости в температурах до 30K. Следует отметить, что экспериментальные результаты электросопротивления обычно дополняются магнитными измерениями, которые проводятся на таких установках как магнитометры переменного [24] или постоянного тока, и полученный результат требует дополнительных исследований.

**Заключение:** Прослежена динамика изменения электросопротивления в температурном интервале 5-310K манганита  $La_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$ . С использованием феноменологической модели, были аппроксимированы экспериментальные данные удельного сопротивления, и выявлены типы рассеяния в интервале температур  $5K < T < T_{MI}$ . В рамках модели были идентифицированы: эффект слабой локализации ( $\sim T^{1/2}$ ), одномагнетонный ( $\sim T^3$ ) и электрон – электронный ( $\sim T^2$ ) процесс рассеивания. Результаты аппроксимации были проанализированы и приведены к соответствующим моделям. Общая картина поведения электросопротивления в окрестности перехода металл - диэлектрик где наблюдался эффект колоссального магнитосопротивления имеет характерный для большинства манганитов керамической природы вид и был проанализирован в рамках модели двойного обмена. С использованием модели межгранульного спин – поляризованного туннелирования, проанализирован низкотемпературный минимум электросопротивления манганита. Так же был идентифицирован полуметаллический тип проводимости в интервале температур  $T = 25 - 80K$ . Можно сделать вывод что в манганите  $La_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$  проявляется эффект спин – поляризованного транспорта в области низких температур, что дает возможность практического использования для спинтроники.

### Список литературы

1. P K Siwach, H K Singh, and O N Srivastava, Journal of Physics: Condensed Matter, 2008. Low field magnetotransport in manganites. 20 (27), 273201.
2. В. М. Локтев, Ю. Г. Погорелов Особенности физических свойств и колоссальное магнитосопротивление манганитов // Физика низких температур. 2000. т. 26, № 3. С. 231-261.
3. E. Rozenberg, M. Auslender, I. Felner, and G. Gorodetsky, J. Appl. Phys. 88, 2578 (2000).
4. Gopalarao, T.R., S. Ravi and D. Pamu, 2016. Electrical transport and magnetic properties of epitaxial  $Nd_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$  thin films on (001)-oriented  $LaAlO_3$  substrate. Magnetism and Magnetic Materials, 409: 148-154.
5. Y. Tokura, Rep. Prog. Phys. 69, 797 (2006)
6. C. Zener, Phys. Rev. 82, 403 (1951)

7. A. Urushibaru, Y. Moritomo, T. Arima, A. Asamitsu, G. Kido, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* 51, 14103 (1995).
8. M. I. Auslender, E. Rozenberg, A. E. Kar'kin, B. K. Chaudhuri, and G. Gorodetsky, *J. Alloy Comp.* 326, 81 (2001).
9. M. Auslender, A. E. Kar'kin, E. Rozenberg, and G. Gorodetsky, *J. Appl. Phys.* 89, 6639 (2001).
10. А. Г. Гамзатов, А. Б. Батдалов, О. В. Мельников, О. Ю. Горбенко, *ФНТ* 35, 290 (2009).
11. Y. Xu, J. Zhang, G. Cao, C. Jing, and S. Cao, *Phys. Rev. B* 73, 224410 (2006).
12. G. Lalitha, P. Venugopal Reddy, *J. Alloy Comp.* 494, 476 (2010).
13. J. Zhang, Y. Xu, Sh. Cao, Y. Zhang, and C. Jing, *Phys. Rev. B* 72, 054410 (2005).
14. А. Г. Гамзатов, Т. А. Гаджимурадов, Женвен Ли, Ли Пи, Юэн Чжан Низкотемпературный транспорт в манганите  $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.4}\text{Li}_{0.1}\text{MnO}_3$  в сильных магнитных полях // *ЖЭТФ*. 2016. том 149, вып. 1. С. 172-180.
15. K. Kubo, N. Ohata. *J. Phys. Soc. Jpn.* 33, 1, 21 (1972)
16. D.A. Goodings. *Phys. Rev.* 132, 2, 542 (1963).
17. B. Raquet, M. Virtet, J.M. Broto, E. Sondergard, O. Cespedes, R. Mamy. *J. Appl. Phys.* 91, 10, 8129 (2002)
18. Ю.А. Бойков, Т.Класон, В.А. Данилов, *ФТТ* 47, 2189 (2005).
19. A. Mehri, W. Cheikhrouhou Koubaa, M. Koubaa, A. Cheikhrouhou, Effect of sodium substitution on the structural, magnetic and magnetocaloric properties of  $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$  perovskite manganites, *Phys. Procedia* 2 (2009) 975-982
20. N. Furukawa, Unconventional one-magnon scattering resistivity in half-metals, *J. Phys. Soc. Jpn.* 69 (2000) 1954–1957.
21. G.J. Snyder, R. Hiskes, S. DiCarolis, M.R. Beasley, T.H. Geballe, Intrinsic electrical transport and magnetic properties of  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  and  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$  MOCVD thin films and bulk material, *Phys. Rev. B* 53 (1996) 14434–14444.
22. S. Shamsuddin, S.N. Supardan, Abdel-Baset M.A. Ibrahim, A.K. Yahya, Ultrasonic anomaly near the charge ordering transition in Sr-doped  $\text{Nd}_{0.3}\text{La}_{0.2}\text{Ca}_{0.5-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  manganites, *J. Supercond. Nov. Magn.* 27 (2013) 1229–1234.
23. A. Tozri, J. Khelifi, H. Baaziz, E. Dhahri, E.K. Hlil, Electrical transport studies on the  $\text{La}_{0.7-x}\text{Pr}_x\text{Ba}_{0.3}\text{MnO}_3$  ( $x = 0, 0.1$  and  $0.2$ ) manganite: double metal–insulator transitions and low-temperature resistivity minimum, *Mater. Lett.* 131 (2014) 61–63.
24. Усатый И. М, Захвалинский В. С. Конструкционные Особенности В Установках Для Измерения Комплексной Магнитной Восприимчивости Индуктивным Методом // *Научные Ведомости Белгородского Государственного Университета. Серия: Математика. Физика*. 2018. Т. 50. № 3. С. 317–322.

© В.С. Захвалинский, И.М. Усатый, 2019