

На правах рукописи



СЕМЁНОВ СЕРГЕЙ ВАСИЛЬЕВИЧ

МАГНИТОТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА МАТЕРИАЛОВ НА ОСНОВЕ  
ЗАМЕЩЕННЫХ МАНГАНИТОВ ЛАНТАНА

01.04.07 – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

Диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико – математических наук

Красноярск – 2013

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук (ИФ СО РАН)

**Научный руководитель:** кандидат физико – математических наук, доцент Шайхутдинов Кирилл Александрович, лаборатория сильных магнитных полей ИФ СО РАН, заведующий лабораторией

**Официальные оппоненты:** доктор физико-математических наук, профессор Вальков Валерий Владимирович, лаборатория теоретической физики ИФ СО РАН, заведующий лабораторией

кандидат физико–математических наук, Клементьев Евгений Станиславович, лаборатория нейтронных исследований ИЯИ РАН, старший научный сотрудник

**Ведущая организация:** ФГОУ ВПО «Новосибирский национальный исследовательский государственный университет»

Защита состоится \_\_\_\_\_ 2013 г. в \_\_\_\_\_ часов на заседании диссертационного совета Д 003.055.02 по защитам диссертаций при ФГБУН Институте физики им. Л.В. Киренского СО РАН по адресу: 660036, г. Красноярск, Академгородок, 50, строение 38.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФГБУН Института физики им. Л.В. Киренского СО РАН

Автореферат разослан “\_\_\_” \_\_\_\_\_ 2013 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета  
доктор физ. – мат. наук \_\_\_\_\_



Втюрин А.Н.

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы. За последние двадцать лет физические свойства материалов на основе замещенных манганитов лантана активно изучались. Так, на сегодняшний день существует большое количество как экспериментальных [1,2], так и теоретических [3–5] обзорных работ и монографий. Такой интерес к данным системам, прежде всего, вызван многообразием наблюдаемых физических явлений, таких, как колоссальное отрицательное магнитосопротивление (КМС), переход металл-диэлектрик, высокая степень спиновой поляризации, индуцированные транспортным током и оптическим излучением резистивные переключения и т. д. Всё это делает материалы на основе замещенных манганитов перспективными в плане практического применения. Однако, для эффективного применения манганитов в устройствах функциональной микроэлектроники необходимо понимание физических механизмов ответственных за наблюдаемые явления. Так, анализ экспериментальных работ по исследованию магнитотранспортных свойств материалов на основе замещенных манганитов, показал, что ряд вопросов остался открытым. Во-первых, несмотря на большое количество работ, посвященных низкотемпературным магнитотранспортным свойствам материалов на основе замещенных манганитов, до конца не ясен механизм возникновения минимума электросопротивления поликристаллических замещенных манганитов лантана в области низких температур. Кроме этого, отсутствует подробное исследование низкотемпературного гистерезиса магнитосопротивления и его температурной эволюции. Во-вторых, нет единого мнения о природе нелинейного электрического транспорта в системах замещенных манганитов, в том числе до конца не ясен механизм возникновения на вольт-амперных характеристиках участков с отрицательным дифференциальным сопротивлением. Поэтому целесообразно подробно исследовать магнитотранспортные свойства как моно-, так и поликристаллических материалов на основе замещенных манганитов лантана в широком диапазоне температур, магнитных полей и транспортных токов.

Таким образом, исследования магнитотранспортных свойств материалов на основе замещенных манганитов лантана являются актуальными, как с точки зрения прикладной, так и с точки зрения фундаментальной науки.

Целью данной работы является экспериментальное выяснение:

1) физических механизмов, определяющих низкотемпературный минимум электросопротивления и гистерезис магнитосопротивления поликристаллических материалов на основе замещенных манганитов лантана.

2) механизмов, ответственных за нелинейный электрический транспорт моно- и поликристаллических материалов на основе замещенных манганитов лантана.

В связи с этим в работе были поставлены следующие задачи:

1) Провести исследование магнитных и транспортных свойств поликристаллического замещенного манганита лантана  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  в широком диапазоне температур и магнитных полей. Обозначить основные особенности магнитотранспортных свойств, интерпретировать полученные результаты. Провести сравнительное исследование магнитных и транспортных свойств моно-, и поликристаллического манганита  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ . Выявить основные различия магнитотранспортных свойств, и интерпретировать полученные результаты.

2) Целенаправленно исследовать низкотемпературные особенности магнитотранспортных свойств поликристаллического  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ . Подробно изучить гистерезисные зависимости магнитосопротивления в области низких температур и их температурную эволюцию. Предложить физический механизм, ответственный за наблюдаемые явления.

3) Провести измерения вольт-амперных характеристик монокристаллического  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  в широком диапазоне транспортных токов, выявить основные особенности. Изучить температурную эволюцию ВАХ. Выяснить физический механизм, ответственный за наблюдаемые явления. Измерить ВАХ поликристаллического  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  в широком диапазоне транспортных токов, и магнитных полей. Исследовать полевые зависимости сопротивления в широком диапазоне транспортных токов.

Научная новизна:

1) При проведении сравнительных исследований моно-, и поликристаллических замещенных манганитов впервые использовался подход, когда поликристаллический образец синтезировался из серии монокристаллических образцов того же состава. Экспериментально показано, что в процессе спекания поликристаллического образца на границах гранул формируется антиферромагнитная фаза с  $T_N \approx 40$  К.

2) Предложена модель, объясняющая появление гистерезиса магнитосопротивления в широком интервале магнитных полей выше полей насыщения ферромагнитных гранул в поликристаллических материалах на основе замещенных манганитов лантан. Наблюдаемый гистерезис объясняется спин-зависимым туннелированием носителей в сети туннельных

контактов ферромагнитный металл – антиферромагнитный диэлектрик – ферромагнитный металл.

3) Показано, что при исследовании вольт-амперных характеристик оксидных материалов с низкой теплопроводностью, к которым также относятся замещенные манганиты лантана, необходимо учитывать внутренний локальный перегрев образца, который может приводить к возникновению как, гистерезисных особенностей, так и к появлению участков с отрицательным дифференциальным сопротивлением на ВАХ.

4) Впервые обнаружена смена характера зависимостей магнитосопротивления замещенных манганитов лантана при измерениях в больших плотностях транспортного тока. Обнаружено, что в данных условиях полевые зависимости электросопротивления  $\rho(H)$  характеризуются как обычным для манганитов отрицательным, так и ранее не наблюдавшимся, положительным магнитосопротивлением.

Практическая ценность. Полученные в данной работе результаты, несомненно, имеют практическую значимость, поскольку, расширяют перспективы практического применения исследуемых в работе материалов на основе замещенных манганитов лантана.

На защиту выносятся:

1) Результаты сравнительного экспериментального анализа магнитотранспортных свойств моно-, и поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ .

2) Результаты исследования гистерезисных зависимостей магнитосопротивления поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$  в области низких температур. Анализ полученных результатов в рамках модели спин-зависимого туннелирования носителей тока в сети туннельных контактов ферромагнитный металл – антиферромагнитный диэлектрик – ферромагнитный металл.

3) Результаты исследования температурной эволюции вольт-амперных характеристик монокристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ . Оценка влияния локального внутреннего разогрева образца на вид вольт-амперных характеристик.

4) Результаты измерений вольт-амперных характеристик поликристаллического  $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$  во внешнем магнитном поле и полевых зависимостей сопротивления при больших плотностях транспортного тока.

Личный вклад автора. Автор принимал непосредственное участие во всех экспериментальных исследованиях, активно участвовал в интерпретации полученных результатов и подготовке к публикации научных статей

Апробация. Результаты, полученные в работе, докладывались на следующих конференциях: III Международная Конференция «Фундаментальные Проблемы Высокотемпературной Сверхпроводимости» (ФПС'08) 13–17 Октября 2008, г. Звенигород;

The International Conference on Magnetism 2009 (ICM-2009), July 26 - 31, 2009, Karlsruhe, Germany; III Международный, междисциплинарный симпозиум «Среды со структурным и магнитным упорядочением» (Multiferroics-3), сентябрь 2011 г. Лоо.; XIV Международный, междисциплинарный симпозиум «Упорядочение в минералах и сплавах» (OMA-14), сентябрь 2011, г. Лоо; XIV Международный, междисциплинарный симпозиум «Порядок, беспорядок и свойства оксидов» (ODPO-14), сентябрь 2011, г. Лоо;

Публикации. По теме диссертационной работы опубликовано пять работ в центральной научной печати.

Структура и объем работы: Диссертация состоит из введения, четырех разделов и заключения, занимает объем 101 страницу машинописного текста, включая 35 рисунков и список цитированной литературы (103 наименования).

## СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении указана актуальность темы, сформулирована цель, показаны новизна и практическая ценность исследований, приведена аннотация полученных результатов и структура диссертации.

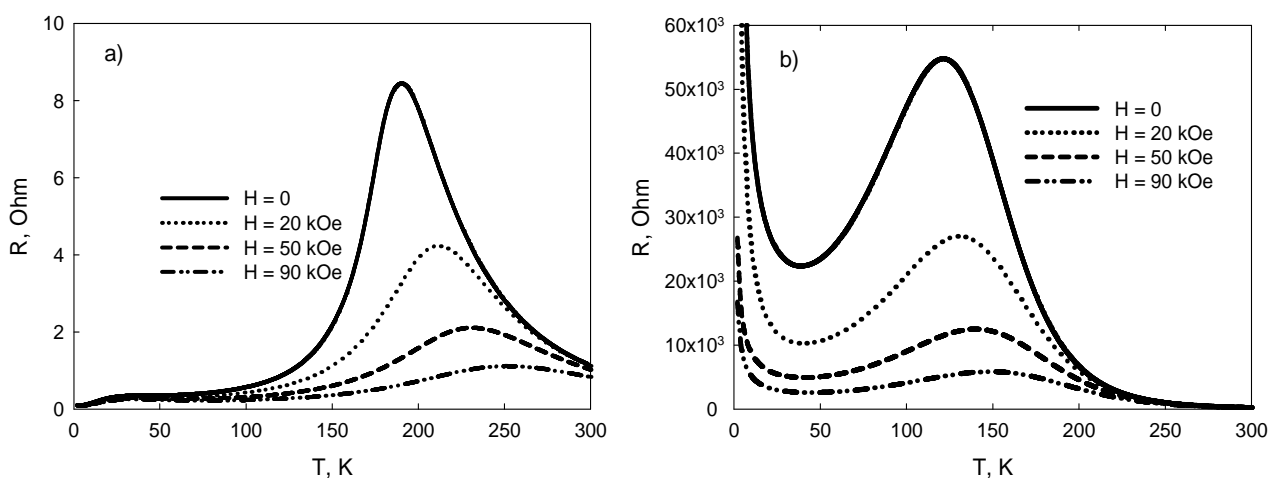
В первом разделе проведен обзор экспериментальных работ, посвященных исследованию магнитотранспортных свойств материалов на основе замещенных манганитов лантана. Основное внимание уделено работам, в которых был обнаружен низкотемпературный минимум электросопротивления и гистерезис магнитосопротивления поликристаллических замещенных манганитов лантана. Кроме этого, рассмотрены работы, в которых на вольт-амперных характеристиках замещенных манганитов наблюдались участки с отрицательным дифференциальным сопротивлением. В конце литературного обзора дана постановка задачи.

Во втором разделе приведены методики синтеза монокристаллических  $((La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3)$  и поликристаллических  $(La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3)$  и  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3)$  образцов замещенных манганитов лантана, исследуемых в данной работе. Описаны экспериментальные установки, и основные методики измерений магнитных и транспортных свойств, использованные при проведении исследований.

Третий раздел работы посвящен исследованию низкотемпературных магнитотранспортных свойств поликристаллических материалов на основе замещенных манганитов лантана. Для выяснения роли межгранульных границ в магнитотранспортных свойствах поликристаллических материалов на основе замещенных манганитов был предложен следующий подход. За основу взять монокристалл манганита, изучить подробно его магнитотранспортные характеристики. Далее исходные монокристаллы перетереть,

спрессовать и отжечь, тем самым, получить поликристаллический образец, в котором кристаллиты обладали бы свойствами исходного монокристалла, а все возможные эффекты возникли бы от межгранульных границ, сформированных в процессе синтеза.

В качестве исходного монокристалла нами был выбран ранее синтезированный и изученный образец состава  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  (далее – монокристалл). Для получения поликристаллических образцов  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  исходные монокристаллы перетирались в агатовой ступке, а затем прессовались в виде таблетки. Спрессованная таблетка отжигалась в печи при температуре  $600\text{ }^\circ\text{C}$  в течение 3 часов, в результате получался образец, обладающий достаточной механической прочностью для проведения магнитотранспортных исследований. Сканирующая электронная микроскопия (SEM) полученного поликристаллического образца показала, что средний размер кристаллитов составляет  $\sim 1\text{-}2\text{ }\mu\text{m}$ . Просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения границы гранул выявила наличие поверхностного слоя с толщиной порядка  $2\text{-}5\text{ nm}$ , отличающегося по структуре от внутреннего объема гранул. Тем самым, поверхностный слой, сформированный в процессе синтеза, выступает в роли межгранульных границ в  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ .



**Рис. 1. Температурные зависимости электросопротивления  $R(T)$  монокристаллического (а) и поликристаллического (б)  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ .**

Результаты измерений зависимостей  $R(T)$   $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  при различных значениях приложенного магнитного поля приведены на рис. 1.а (для монокристалла) и 1.б (для поликристалла). Обращает на себя внимание различие в поведении  $R(T)$  для поли- и монокристалла. Смещение перехода металл-диэлектрик (для поликристалла) в область более низких температур связано с уменьшением размера кристаллитов по сравнению с исходным монокристаллом. Так же наблюдается различие в абсолютных значениях электросопротивления, что связано с наличием межкристаллитных границ в поликристалле.

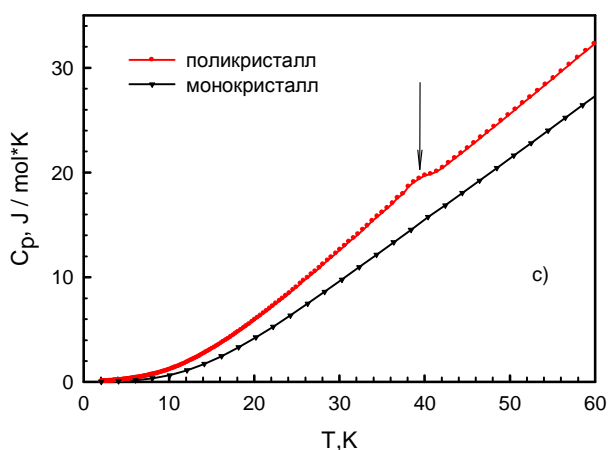
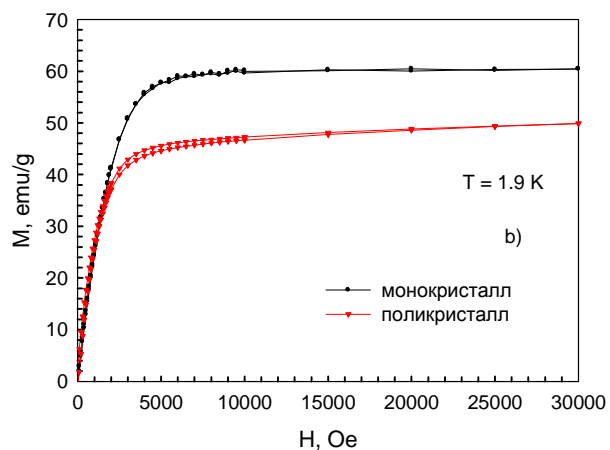
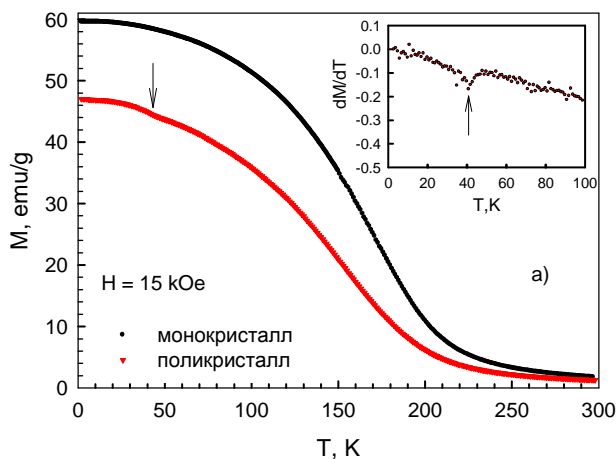
Кроме этого, в окрестности температуры  $\approx 40$  К для поликристаллического образца наблюдается минимум сопротивления, а при гелиевых температурах сопротивление достигает значений, сравнимых с таковыми в окрестности перехода металл-диэлектрик. Измерения зависимостей  $R(T)$  во внешнем магнитном поле для поли- и монокристалла показали различие в величине и температурном поведении магниторезистивного эффекта ( $MR = [\rho(H) - \rho(0)] / \rho(0)$ ). В случае монокристаллического образца магнитосопротивление максимально в окрестности температуры перехода металл-диэлектрик (при  $T \approx 185$  К и  $H = 90$  кОе для монокристалла значение  $MR$  составило - 93 %) и незначительно по величине в области низких температур, в то время как для поликристаллического образца в диапазоне 2 – 150 К значения  $MR$ -эффекта практически не изменяются и имеют ту же величину, что и для монокристаллического образца.

Естественно связать возникновение минимума на зависимости  $R(T)$  поликристаллического образца с влиянием межгранульных границ. Значительный рост сопротивления в области низких температур даёт основания утверждать, что эти границы диэлектрические. В этом случае магнитосопротивление поликристаллического образца в области низких температур определяется процессами туннелирования носителей через межгранульные прослойки, что, по-видимому, и объясняет значительную величину  $MR$ -эффекта в области низких температур.

На рис. 2 приведены температурные (а) и полевые (б) зависимости намагниченности и температурные зависимости теплоемкости (с) образцов  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ . Из температурных зависимостей намагниченности  $M(T)$  видно, что температура Кюри  $T_C$  для двух образцов практически одинакова, однако абсолютные значения и ход зависимостей  $M(T)$  (рис. 2.а) разные. Из полевой зависимости намагниченности  $M(H)$  при  $T = 1.9$  К (рис. 2.б) также видно, что для монокристаллического образца величина  $M$  насыщается в полях  $\sim 5$  кОе, тогда как в случае поликристалла в полях больше 5 кОе имеет место практически линейное возрастание  $M$ . Обратим внимание на то, что на кривой  $M(T)$  (см. вставку рис. 2.а, где приведены данные  $dM/dT$ ) и температурной зависимости теплоемкости  $C_p(T)$  (рис. 2.с.) поликристаллического образца при  $T \approx 40$  К наблюдаются особенности, соответствующие магнитному фазовому переходу.

Таким образом, по данным магнитных измерений и измерений теплоемкости (рис. 2) можно заключить, что при синтезе поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ , в образце формируется вторая фаза, обладающая магнитным порядком с температурой магнитного фазового перехода  $T \approx 40$  К, которая, на наш взгляд, может являться антиферромагнитной. Из данных просвечивающей электронной микроскопии можно сказать, что второй фазой,

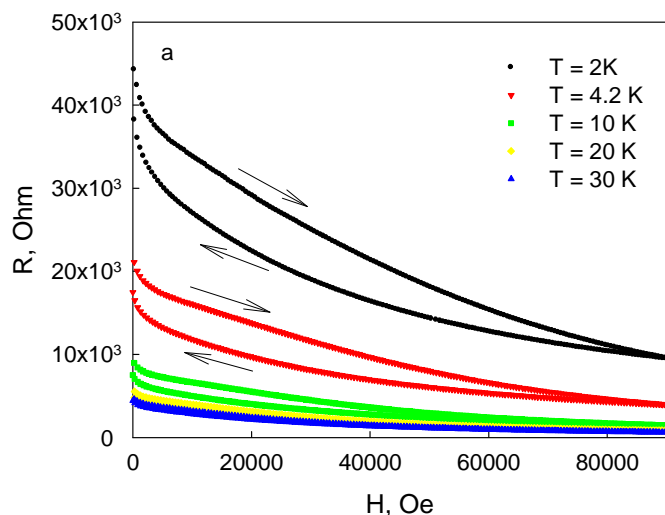




**Рис. 2.** Температурные  $M(T)$  (а) и полевые  $M(H)$  (б) зависимости намагниченности, температурные зависимости теплоемкости  $C_p(T)$  (с) моно- и поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ .

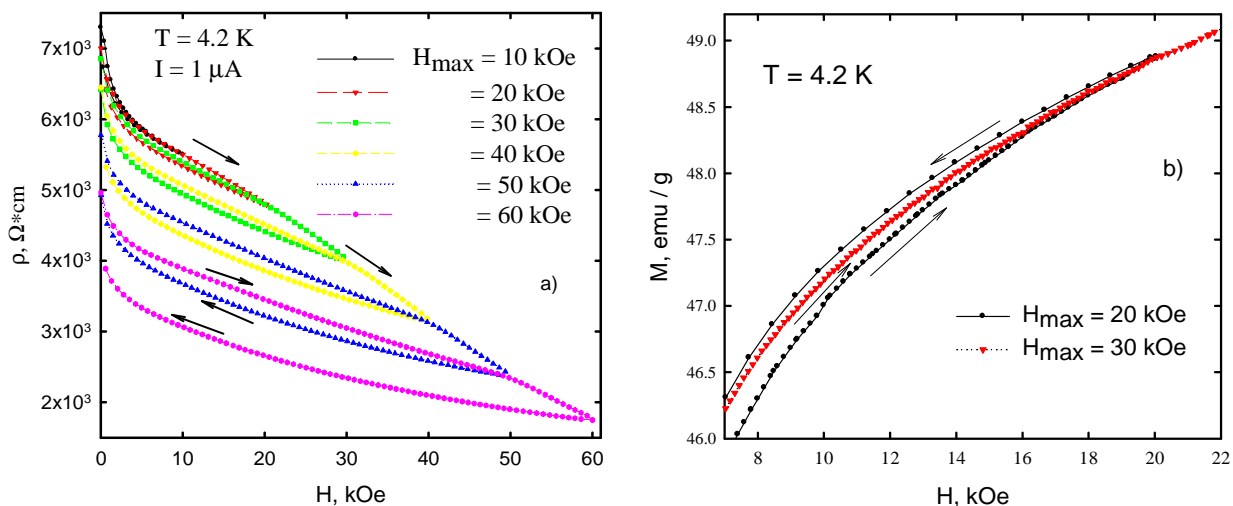
свойства которой отличаются от свойств сердцевины гранул, может являться материал поверхностного слоя кристаллитов, толщина которого составляет  $\sim 5$  nm.

На рис. 3. приведены зависимости  $R(H)$  поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ , измеренные в широком температурном интервале. В области низких температур, зависимости  $\rho(H)$  обладают гистерезисом, ширина которого уменьшается с повышением температуры. Выше температуры минимума электросопротивления  $\approx 40$  К гистерезисных особенностей не наблюдается.



**Рис. 3.** Полевые зависимости электросопротивления  $R(H)$  поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ .

Рис. 4. демонстрирует гистерезисные зависимости магнитосопротивления (а) и часть гистерезисных зависимостей намагниченности (б) поликристаллического образца, измеренные при следующих условиях: охлаждение в условиях  $zfc \rightarrow$  развёртка поля до  $H_{\max}$   $\rightarrow$  вывод внешнего поля до  $H \downarrow = 0$ , затем без снятия магнитной предыстории внешнее поле вновь увеличивалось до следующей величины  $H_{\max}$ , и внешнее поле уменьшалось до  $H \downarrow = 0$ .



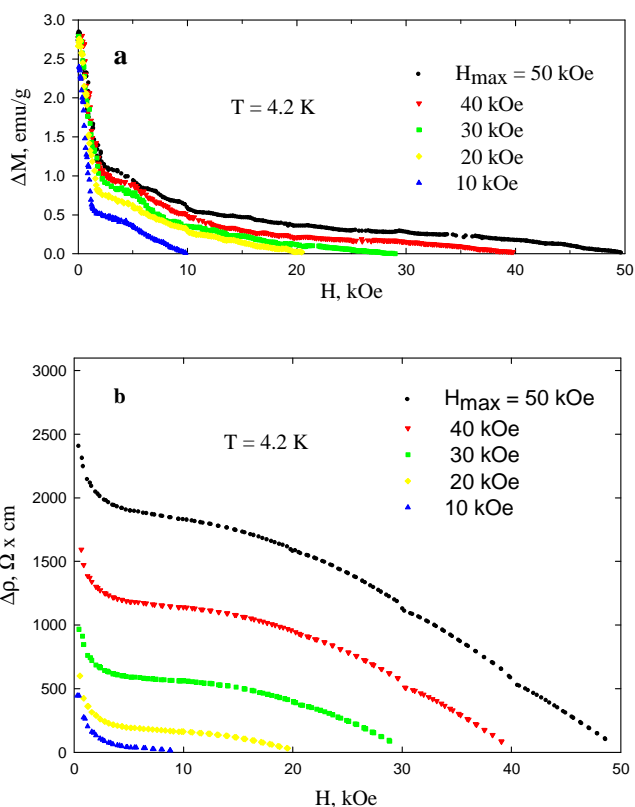
**Рис. 4. Зависимости  $\rho(H)$  (а) и участок зависимости  $M(H)$  (б) поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ , измеренные при различных значениях максимального приложенного поля  $H_{\max}$ .**

Поведение гистерезисных зависимостей  $\rho(H)$ , и  $M(H)$  показанных на рис. 4 указывает на то, что образец «помнит» своё магнитное состояние, определяемое величиной максимально приложенного поля. Магнитосопротивление является чувствительной характеристикой этого состояния. Величина «высоты» гистерезиса намагниченности  $\Delta M = |M(H \uparrow) - M(H \downarrow)|$  и магнитосопротивления  $\Delta \rho = \rho(H \uparrow) - \rho(H \downarrow)$  (при  $H \uparrow = H \downarrow$ ) увеличивается с ростом  $H_{\max}$ .

Интересно сопоставить зависимости  $\Delta M$  и  $\Delta \rho$ . На рис. 5 показаны эти зависимости для различных значений  $H_{\max}$ . Термомагнитная предыстория одинакова для магнитных и магниторезистивных данных на этом рисунке. Сравнивая данные на рис. 5.a и 5.b можно заключить, что качественно поведение гистерезисных зависимостей намагниченности и магнитосопротивления идентично, хотя имеет место нелинейная зависимость параметров  $\Delta M$  и  $\Delta R$ , характеризующих гистерезис. Кроме того, гистерезис  $M(H)$  достаточно узок, в то время как зависимость  $R(H)$  проявляет значительный гистерезис.

Для описания гистерезисного поведения  $R(H)$  и  $M(H)$  предлагается следующая модель. Ядро гранулы остаётся ферромагнитным (FM) ( $T$  измерения  $\ll$  температуры Кюри), на поверхности гранул образуется антиферромагнитная (AF) фаза. Поскольку размер гранул по

данным SEM составляет  $\sim 10^2 \div 10^3$  nm, оценка линейного размера протяжённости AF прослойки даёт  $\sim 2 \div 5$  nm, объём оставшегося ядра гранул достаточен для формирования доменной структуры. Поэтому FM фаза имеет доменную структуру, и домены, соседствующие с AF фазой (назовём их дальше N-доменами (neighbor-domains)), могут быть обменно связаны как с ней, так и с FM доменами, составляющими ядро гранул. Для граничащих с AF “шубой” N- доменов возможна конкуренция обменов с AF и FM фазами.



**Рис. 5.** Величина «высоты» гистерезиса намагниченности  $\Delta M = |M(H\uparrow) - M(H\downarrow)|$  (a) и магнитосопротивления  $\Delta \rho = \rho(H\uparrow) - \rho(H\downarrow)$  (b) (при  $H\uparrow = H\downarrow$ ) для различных значений  $H_{\max}$ .

Обмен с FM фазой способствует повороту магнитного момента по полю, в то время как обмен с AF может препятствовать упорядочению. Результатом такой конкуренции может стать метастабильное состояние магнитных моментов N-доменов. В результате энергия магнитных моментов N-доменов может иметь локальные точки минимума. Естественно, что увеличение внешнего поля способствует перескоку через потенциальные барьеры, а при циклировании поля наблюдается гистерезис. Тот факт, что гистерезис  $M(H)$  достаточно узок (см. рис.2.b, рис. 3.b) подтверждает, что его формирует малая часть FM фазы.

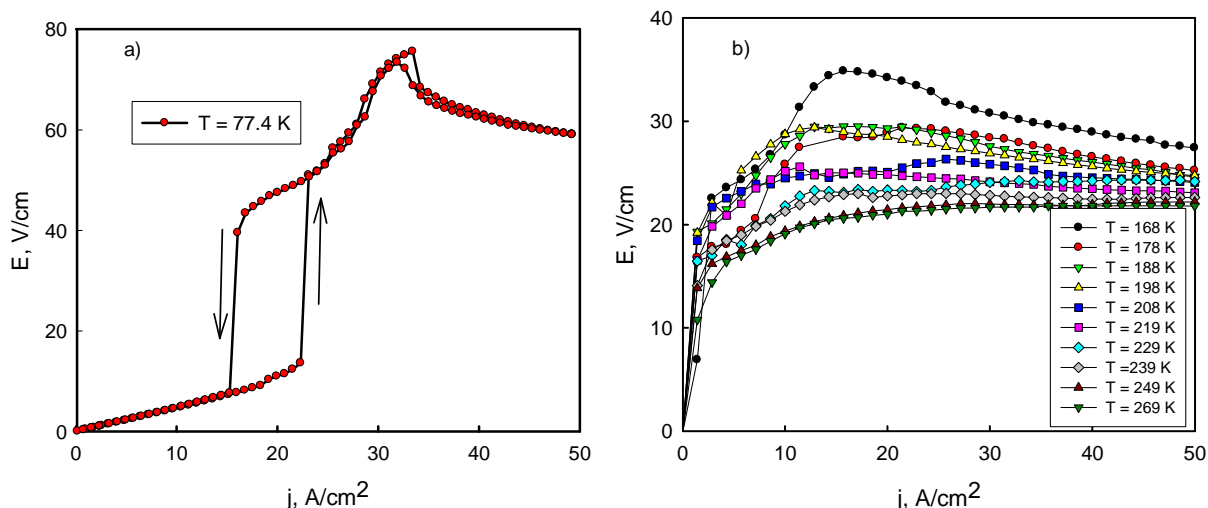
Предложенная модель может объяснить гистерезис  $R(H)$ , если считать, что магнитосопротивление вызвано эффектом туннелирования носителей через диэлектрические прослойки. Электроны туннелируют через AF прослойку, причём магнитосопротивление определяется не ориентацией магнитных моментов сердцевин гранул, а взаимной ориентацией магнитных моментов N-доменов. Из полностью размагниченого состояния (в котором сопротивление максимально) в слабых полях (до  $\sim 5$  kOe) изменение  $R(H)$

наибольшее, подобно зависимости  $M(H)$ . Однако магнитосопротивление значительно и в области полей 20÷60 кОе, в то время как зависимость  $M(H)$  в этом диапазоне возрастает слабо. Вклад N-доменов в результирующую намагниченность образца сравнительно небольшой (суммарная намагниченность определяется, очевидно, суперпозицией вкладов от FM фазы, AF фазы, и N-доменов). А туннельное магнитосопротивление, и вид зависимостей  $R(H)$  определяется процессами выстраивания N-доменов по полю. Поэтому, узкий гистерезис  $M(H)$  проявляется в значительном гистерезисе  $R(H)$ . Выше была продемонстрирована корреляция параметров гистерезисных зависимостей  $R(H)$  и  $M(H)$  при одинаковой магнитной предыстории. Таким образом, в рамках предложенной модели может быть качественно объяснено гистерезисное поведение магнитосопротивления поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ . Оно связано с формированием в области низких температур сети туннельных контактов ферромагнетик – антиферромагнетик – ферромагнетик. Туннелирование носителей тока также может быть причиной низкотемпературного минимума сопротивления, в этом случае происходит конкуренция металлического характера сопротивления гранул и диэлектрического поведения межгранульных границ.

В четвертом разделе приведены результаты исследования вольт-амперных характеристик (ВАХ) материалов на основе замещенных манганитов лантана в широком диапазоне транспортных токов. В частности, экспериментально исследована температурная эволюция ВАХ монокристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ . На рис. 6 приведены экспериментальные ВАХ, полученные при различных температурах: рис. 6.a – температура кипения жидкого азота, рис. 6.b – эволюция ВАХ в температурном интервале 168 – 269 К. При измерении температурной эволюции ВАХ в качестве хладагента использовался охлажденный жидким азотом этиловый спирт. Это позволило проводить измерения ВАХ в широком температурном интервале вплоть до комнатных температур, при этом образец всегда находился в жидкой среде. Измерения ВАХ проводились как при постоянной развертке тока, так и в импульсном режиме с различной продолжительностью прямоугольного импульса от 200 миллисекунд до 1 секунды. Влияния режимов развертки тока на вид ВАХ обнаружено не было. Следует также отметить, что во время измерений (одно измерение ВАХ продолжалось от 5 до 60 секунд) визуально не наблюдалось кипения и даже следов конвекции этилового спирта, что говорит о том, что термодинамическая равновесная температура образца во время измерений не изменялась.

ВАХ при  $T = 77.4$  К (рис. 6.a) характеризуется линейным участком при малых значениях транспортного тока, далее – гистерезисной особенностью, после чего следует участок с отрицательным дифференциальным сопротивлением. Семейство ВАХ, измеренных

в этиловом спирте при температурах до  $\sim 200$  К (рис. 6.b), также характеризуются участком с отрицательным дифференциальным сопротивлением, однако гистерезисной особенности при данных температурах не наблюдается. Таким образом, на ВАХ  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  наблюдается эффект «токового переключения», при котором дифференциальное сопротивление образца резко меняется при определенных значениях приложенного напряжения или транспортного тока.



**Рис. 6. ВАХ монокристаллического  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  полученные при различных температурах: (а) – 77.4 К, (б) - температурная эволюция ВАХ в интервале 168 – 269 К.**

По нашему мнению возможным объяснением ВАХ подобного вида может являться локальный джоулев разогрев образца во время измерений. Действительно, проведенные в диссертационной работе исследования показали, что  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ , как и другие замещенные манганиты обладают очень низкой теплопроводностью ( $k \approx 1$  W/m $\cdot$ К при  $T = 300$  К). Оценка электронного вклада в теплопроводность из закона Видемана-Франца дает следующее соотношение  $k_e(T) < 0.01 \cdot k(T)$ . Обозначим  $\tau_{cc}$  – среднее время между столкновениями носителей друг с другом, а  $\tau_{ph}$  – среднее время рассеяния фононов на дефектах кристаллической решетки. Можно заключить, основываясь на законе Видемана-Франца, что между характерными временами выполняется следующее соотношение:  $\tau_{cc} \ll \tau_{ph}$ . Данная ситуация аналогична описанной в монографии [8], в которой рассматривается неравновесный нагрев электронного газа в полупроводниках.

При условии слабого энергетического обмена между электронной и фононной подсистемами, функция распределения носителей по энергиям под действием электрического поля отклоняется от равновесной в сторону увеличения средней энергии. В данном случае говорят, что электрическое поле греет электронный газ, и вводят понятие электронной температуры  $T_{cc}$ , как меры средней энергии газа носителей, которая может

отличаются от температуры решетки. Такой перегрев электронного газа приводит к тому, что в образце с температурной зависимостью электросопротивления полупроводникового типа реализуется неоднородное течение тока. Образец разбивается на области слабого и сильного тока. Области сильного тока формируют токовые шнуры цилиндрической формы внутри объема образца. Естественно, что такое шнурование тока может приводить к значительному локальному разогреву токовых траекторий, при этом, конечная температура токового канала будет определяться теплообменом с остальным объемом образца и хладагентом. Такой локальный перегрев может приводить к формированию ВАХ с участками, характеризующимися отрицательным дифференциальным сопротивлением.

Из уравнения теплопроводности Фурье при простом разогреве за счет джоулева тепла, аналогично работе [9], можно оценить перегрев токового канала  $\Delta T$ :

$$\Delta T = P \times \ell / (k \times S), \quad (1)$$

где  $P$  – мощность, выделяемая в образце при прохождении тока,  $\ell$  – длина токового канала,  $k$  – теплопроводность образца,  $S$  – общая площадь поперечного сечения всех токовых каналов. Все переменные, входящие в данное выражение, вообще говоря, являются функциями температуры, поэтому для точного расчета необходимо использовать их температурные зависимости. Конечная температура токового канала

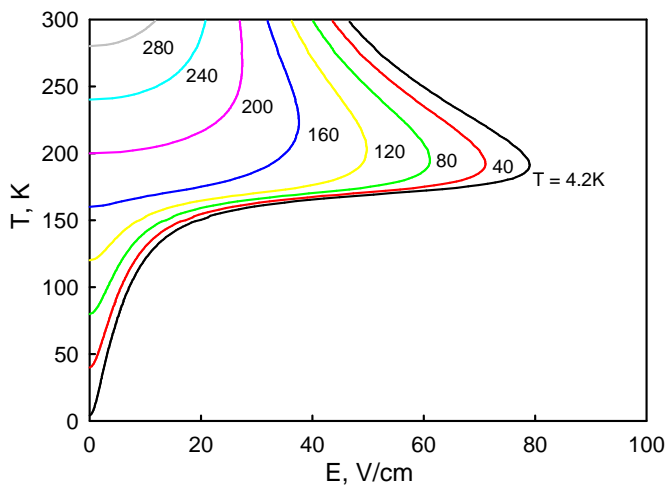
$$T_{fin} = T_0 + \Delta T, \quad (2)$$

где  $T_0$  – начальная температура, т.е. температура измерения ВАХ. Таким образом, можно оценить перегрев токового канала в образце следующим выражением:

$$T_{fin}(E) = T_0 + E^2 \times \ell^3 (T) \times [R(T) \times k(T) \times S(T)]^{-1}, \quad (3)$$

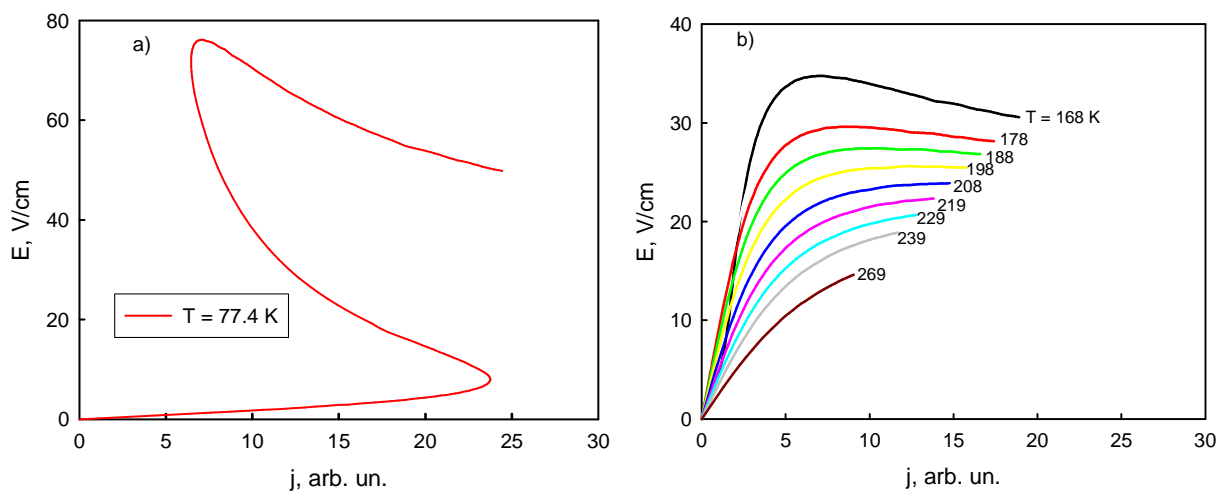
где  $E$  – напряженность электрического поля,  $R(T)$ ,  $k(T)$  – экспериментальные температурные зависимости сопротивления и теплопроводности образца. В данном случае, поскольку вклад электронной теплопроводности мал и весь перенос будет сосредоточен внутри токовых каналов, именно объем образца, а не хладагент выступает в качестве теплоотводящего вещества. Непосредственного определения величин  $\ell$  и  $S$  в работе не проводилось. Для оценки можно принять параметр  $\ell$ , равный расстоянию между потенциальными контактами, а  $S$  в процессе моделирования считать подгоночным параметром, не большим, чем площадь поперечного сечения образца.

На рис. 7 представлены результаты моделирования нагрева токового шнура с использованием выражения (3) для различных начальных температур. При моделировании использовался подгоночный параметр  $S/\ell = 0.25$  см, что близко к геометрическим параметрам образца. Из результатов моделирования можно заключить, что при значениях напряженности поля в несколько десятков В/см, в образце происходит значительный разогрев, отличающийся от начальной температуры на сотни градусов.



**Рис. 7. Зависимости температуры токового канала от напряженности электрического поля  $T(E)$  полученные с использованием выражения (4) для различных начальных температур (температуры измерения ВАХ).**

Из полученных зависимостей  $T(E)$  можно получить приблизительный вид зависимостей  $E(I)$ . Расчетные ВАХ представлены на рис. 8. На рис. 8.b приведены расчетные ВАХ для температурного диапазона  $T = 168 - 269$  К, на рис. 8.a – для  $T = 77.4$  К. Если сопоставить экспериментальные данные (рис. б) с расчетными (рис. 8), видно, что наблюдается качественное согласие между ними. Также модельные ВАХ правильно



**Рис. 8. Качественная оценка вида ВАХ (a) - при  $T = 77.4$  К, (b) - для температурного диапазона  $T = 168 - 269$  К.**

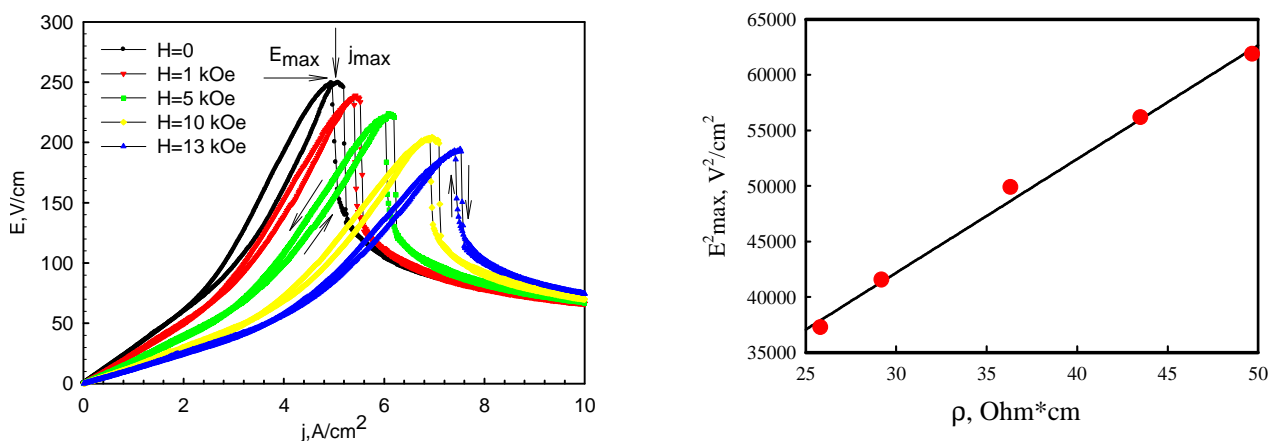
отражают эволюцию ВАХ с ростом температуры. Отметим, что согласие между экспериментальной ВАХ, измеренной при  $T = 77.4$  К и расчетной значительно хуже. Это может быть связано с тем, что в образце при данных температурах невыгодно образовывать неоднородное течение (т.к. с ростом температуры сопротивление вначале растет) и весь объем образца участвует в токопереносе. В этом случае уже необходимо учитывать существующее фазовое расслоение в  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$  и для расчета использовать сеть параллельно и последовательно соединенных элементов с разным сопротивлением, зависящим от температуры.

Таким образом, при исследовании вольт-амперных характеристик оксидных материалов с низкой теплопроводностью, к которым также относятся замещенные манганиты лантан, необходимо учитывать внутренний локальный перегрев образца, который может приводить к возникновению как, гистерезисных особенностей, так и к появлению участков с отрицательным дифференциальным сопротивлением на ВАХ.

Кроме этого, в данном разделе исследовались ВАХ поликристаллического замещенного манганита лантана  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  при  $T = 77.4 \text{ K}$  в магнитных полях до 13 кОе (см. рис. 9.а).

Отметим основные особенности данных зависимостей. При небольших значениях плотности тока (до  $\approx 2.2 \text{ A/cm}^2$ ) ВАХ линейны. Далее, при дальнейшем увеличении тока ВАХ становятся нелинейными и по достижению некоторого критического значения плотности тока  $j_{\text{cr}}$  наблюдается резкое уменьшение дифференциального сопротивления и выход ВАХ на участок, характеризуемый отрицательным дифференциальным сопротивлением. Как было показано выше, к ВАХ подобного вида может приводить локальный разогрев образца во время измерений.

В пользу этого механизма указывает также тот факт, что значения удельной мощности при значениях  $E_{\text{max}}$  и  $j_{\text{max}}$  (см. рис. 9.б), при которой наблюдается эффект «токового переключения», для всех значений внешних магнитных полей  $H$  одинаковы. Таким образом, положение максимумов  $E_{\text{max}}$  определяется только мощностью, выделяющейся во время измерений. Удельная мощность, выделяющаяся в образце во время измерений:  $P = E \times j = E^2/\rho$ . Следовательно, если зависимость  $E^2$  от  $\rho$  линейна, то ее наклон определяет величину  $P$ . На рис. 9.б. представлена данная зависимость, которая в пределах погрешности

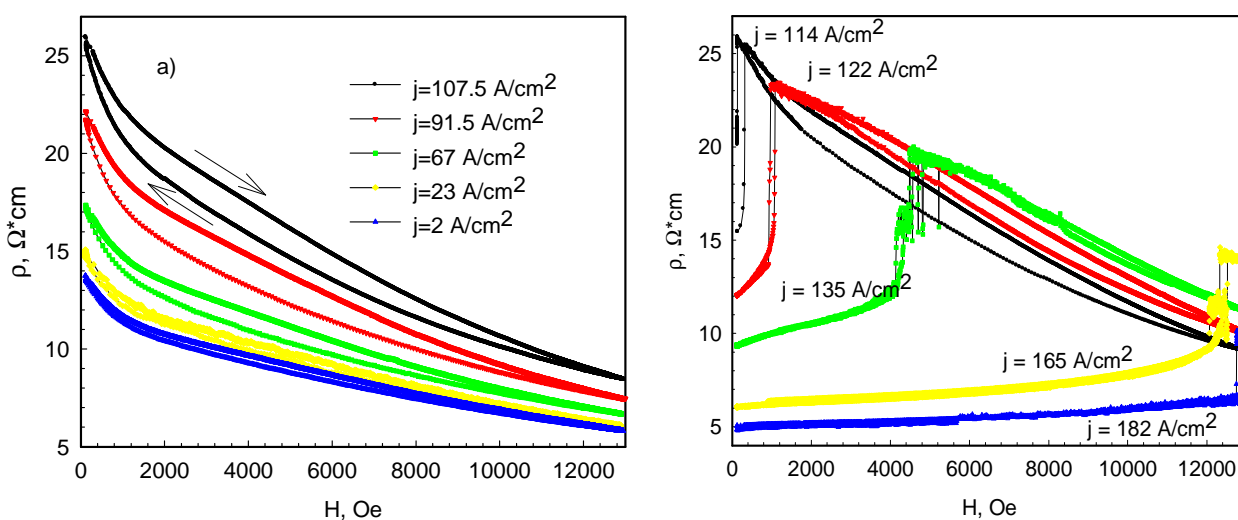


**Рис. 9.** а) Вольт-амперные характеристики поликристаллического  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  измеренные при  $T=77.4 \text{ K}$ , при различных значениях внешнего магнитного поля. б) Зависимость  $E^2$  от  $\rho$  при значениях  $E_{\text{max}}$  и  $j_{\text{max}}$  (см. рис.9.а).



линейна, значения удельной мощности  $P = 1300 \pm 100 \text{ W/cm}^3$ . Таким образом, положение максимумов  $E_{\max}$  не зависит от параметров самого образца, а определяется только мощностью, выделяющейся во время измерений.

Стабильность термодинамической температуры образца одновременно с локальным разогревом токовых траекторий (как при измерениях в режиме  $j < j_{\max}$ , так и при  $j > j_{\max}$ ) а также сильное влияние внешнего поля на ВАХ и значение  $j_{\max}$  обуславливают аномальную зависимость магнитосопротивления от поля при измерениях в больших плотностях транспортного тока ( $j > j_{\max}$ ). На рис. 10 представлены зависимости  $\rho(H)$ , измеренные в указанных режимах:  $j < j_{\max}$  - рис. 10.a,  $j > j_{\max}$  - рис. 10.b. Для режима  $j < j_{\max}$  зависимости  $\rho(H)$  типичны для поликристаллических замещённых манганитов лантана.



**Рис. 10. Зависимости  $\rho(H)$ , измеренные в режимах:  $j < j_{\max}$  – (a),  $j > j_{\max}$  – (b).**

Для режима при  $j \geq j_{\max}$  наблюдается совершенно иная, нетипичная для замещённых манганитов лантана картина. Наблюдаются участки, как с отрицательным, так и с положительным магнитосопротивлением.

Таким образом, если ВАХ замещённых манганитов лантана определяются локальным разогревом образца, вид зависимостей  $\rho(H)$  становится крайне чувствительным к величине транспортного тока и в некоторых случаях  $\rho(H)$  характеризуются участками с положительным магнитосопротивлением, что для образцов данного состава, наблюдается впервые.

В заключении сформулированы основные выводы данной работы.

1) Проведен сравнительный экспериментальный анализ магнитных и транспортных свойств моно- и поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ . Обнаружено, что в процессе синтеза поликристаллического образца на границах гранул формируется вторая фаза, обладающая магнитным порядком с температурой магнитного фазового перехода  $T \approx 40$  К. Проведено подробное исследование низкотемпературного поведения электросопротивления  $R(T)$  и магнитосопротивления  $R(H)$  поликристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$ . Обнаружен широкий гистерезис зависимостей  $R(H)$  в области низких температур.

2) Предложена модель, объясняющая наблюдаемые низкотемпературные особенности на зависимостях  $R(T)$  и  $R(H)$  поликристаллических материалов на основе замещенных манганитов лантана (минимум сопротивления и гистерезис) формированием сети туннельных контактов ферромагнитный металл– антиферромагнитный диэлектрик – ферромагнитный металл.

3) Подробно исследована температурная эволюция ВАХ монокристаллического  $(La_{0.5}Eu_{0.5})_{0.7}Pb_{0.3}MnO_3$  в широком диапазоне транспортных токов. Обнаружено, что ВАХ характеризуется участком с отрицательным дифференциальным сопротивлением. Показано, что при исследовании вольт-амперных характеристик оксидных материалов с низкой теплопроводностью, к которым также относятся замещенные манганиты лантана, необходимо учитывать внутренний локальный перегрев образца, который может приводить к возникновению как гистерезисных особенностей, так и к появлению участков с отрицательным дифференциальным сопротивлением на ВАХ.

4) Проведено экспериментальное исследование ВАХ поликристаллического  $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$  при  $T=77.4$  К в магнитных полях до 13 кОе. На ВАХ обнаружен участок с отрицательным дифференциальным сопротивлением. Обнаружена смена характера полевых зависимостей магнитосопротивления замещенных манганитов лантана при измерениях в больших плотностях транспортного тока. Обнаружено, что в данных условиях зависимости  $\rho(H)$  характеризуются как обычным для манганитов отрицательным, так и ранее не наблюдавшимся, положительным магнитосопротивлением.

**Основные результаты диссертации опубликованы в работах:**

- 1) Шайхутдинов К.А., Семенов С.В., Балаев Д.А., Петров М.И., Волков Н.В. Гистерезис магнитосопротивления в гранулярном  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  при низких температурах // ФТТ. – 2009. – Т.51(№ 4). – С. 734-736.
- 2) Shaykhutdinov K.A., Popkov S.I., Semenov S.V., Balaev D.A., Dubrovskiy A.A., Sablina K.A., Volkov N.V. Low-temperature resistivity of polycrystalline  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  in a magnetic fields // J. Phys.: Conf. Ser. – 2010. – Vol. 200(№ 5). – P. 052025.
- 3) Shaykhutdinov K.A., Popkov S.I., Balaev D.A., Semenov S.V., Bykov A.A., Dubrovskiy A.A., Sapronova N.V., Volkov N.V. Non-linear current–voltage characteristics of  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  single crystals: Possible manifestation of the internal heating of charge carriers // Physica. B. – 2010. – Vol. 405(№ 24). – P. 4961–4965.
- 4) Shaykhutdinov K.A., Popkov S.I., Semenov S.V., Balaev D.A., Dubrovskiy A.A., Sablina K.A., Sapronova N.V., Volkov N.V. Low-temperature resistance and magnetoresistance hysteresis in polycrystalline  $(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5})_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$  // J. Appl. Phys. – 2011. – Vol. 109(№ 5). – P. 053711.
- 5) Shaykhutdinov K.A., Semenov S.V., Popkov S.I., Balaev D.A., Bykov A.A., Dubrovskiy A.A., Petrov M.I., Volkov N.V. Magnetoresistance of substituted lanthanum manganites  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  upon nonequilibrium overheating of carriers // J. Appl. Phys. – 2011. – Vol. 109(№ 8). – P. 083711.

## Цитированная литература

1. Нагаев Э.Л. Манганиты лантана и другие магнитные проводники с гигантским магнитосопротивлением // *Успехи физических наук.* – 1996. – Т. 166(№ 8). – С. 833–858.
2. Coey J.M.D., Viret M., Molnár S. Von. *Advances in Physics Mixed-valence manganites // Advances in Physics.* – 1999. – Vol. 48(№ 2). – P. 167–293.
3. Изюмов Ю.А., Скрыбин Ю.Н. Модель двойного обмена и уникальные свойства манганитов // *Успехи физических наук.* – 2001. – Т. 171(№ 2). – С. 121–148.
4. Каган М.Ю., Кугель К.И. Неоднородные зарядовые состояния и фазовое расслоение в манганитах // *Успехи физических наук.* – 2001. – Т. 171(№ 6). – С. 577–596.
5. Дунаевский С.М. Магнитные фазовые диаграммы манганитов в области их электронного легирования ( О б з о р ) // *Физика твердого тела.* – 2004. – Т. 46(№ 2). – С. 193.
6. *Physics of manganites // ed. Kaplan T., Mahanti S.* – New York. Plenum Pub. – 2002. – P. 296.
7. *Colossal Magnetoresistive Oxides // ed. Tokura Y.* – New York. Gordon and Breach Science. – 2000. – P. 280.
8. Бонч-Бруевич В.Л., Калашников С.Г. *Физика полупроводников // М. Наука.* – 1977. – С. 675.
9. Lavrov A., Tsukada I., Ando Y. Normal-state conductivity in underdoped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  thin films: Search for nonlinear effects related to collective stripe motion // *Physical Review B.* – 2003. – Vol. 68(№ 9). – P. 094506.

Подписано в печать 26.04.2013.

Формат 60×90/16. Уч.-изд. л. 1.

Усл. печ. л. 1.5. Тираж 70 экз. Заказ № 17

Типография ФГБУН Института физики им. Л.В. Киренского СО РАН

660036, Красноярск, Академгородок, 50, ИФ СО РАН