

УДК 537.6/9

**КРИТИЧЕСКОЕ ПОВЕДЕНИЕ СОПРОТИВЛЕНИЯ МАНГАНИТОВ ЛАНТАНА В ПАРАМАГНИТНОЙ ОБЛАСТИ**

**Бебенин Н.Г., Зайнуллина Р.И., Устинов В.В.**

*Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург,*

*e-mail: bebenin@imp.uran.ru*

Проведен анализ температурной зависимости сопротивления  $\rho(T)$  монокристаллов манганитов лантана, обладающих колоссальным магнитосопротивлением, при температурах, превышающих температуру Кюри  $T_c$ . Большинство манганитов характеризуется максимумом на кривой  $\rho(T)$  при  $T_{peak} > T_c$ , что обычно считается признаком перехода металл-полупроводник при  $T = T_{peak}$ . Кроме того, анализируются данные для  $La_{0.75}Sr_{0.25}MnO_3$ , который принято считать металлом, так как при всех температурах  $d\rho/dT > 0$ . Показано, что поведение сопротивления вблизи  $T_c$  во всех случаях определяется критическими флуктуациями в магнитной подсистеме. Энергия активации  $E_a$  зависит от температуры и при  $T > T_c$  всегда положительна, поэтому наличие пика на кривой  $\rho(T)$  не является указанием на переход металл-полупроводник. В случае  $La_{0.75}Sr_{0.25}MnO_3$  величина  $E_a$  оказалась существенно меньше  $k_B T$ . Это указывает на то, что манганиты  $La_{1-x}Sr_xMnO_3$  с  $x \geq 0.25$  близки не к металлам, как обычно полагают, а к бесщелевым полупроводникам.

**Ключевые слова:** манганиты лантана; сопротивление; критическое поведение

**CRITICAL BEHAVIOR OF RESISTIVITY OF LANTHANUM MANGANITES IN PARAMAGNETIC STATE**

**Bebenin N.G., Zainullina R.I., Ustinov V.V.**

*Institute of Metal Physics n.a. M.N. Mikheyev UB RAS, Ekaterinburg, e-mail: bebenin@imp.uran.ru*

The temperature dependence of resistivity  $\rho(T)$  of lanthanum manganites single crystals exhibiting colossal magnetoresistance is analyzed for temperatures above Curie temperature  $T_c$ . Majority of the manganites demonstrate maximum at  $\rho(T)$  curve, which is usually regarded as indication of metal-semiconductor transition. The data for  $La_{0.75}Sr_{0.25}MnO_3$ , which is commonly supposed to be a metal since  $d\rho/dT > 0$  at all temperatures, is also considered. It is shown that near  $T_c$  the behavior of resistivity is determined by critical fluctuations in all cases. Activation energy depends on temperature and is always positive at  $T > T_c$ , therefore the peak at  $\rho(T)$  is not an evidence for the metal-insulator transition. In the case of  $La_{0.75}Sr_{0.25}MnO_3$  the activation energy turns out to be less than  $k_B T$ . This indicates that  $La_{1-x}Sr_xMnO_3$  manganites with  $x \geq 0.25$  is closer to gapless semiconductors rather than metals.

**Keywords:** lanthanum manganites; resistivity; critical behavior

Манганиты  $La_{1-x}D_xMnO_3$  ( $D = Sr, Ba, Ca$ ) являются ферромагнетиками при  $0.1 < x < 0.5$ . В окрестности температуры Кюри  $T_c$  в этих сложных оксидах наблюдается большое по величине («колоссальное») магнитосопротивление (КМС), что в значительной мере обуславливает интерес к этим соединениям [4].

Температурная зависимость сопротивления  $\rho(T)$  большинства КМС манганитов характеризуется выраженным максимумом на кривой  $\rho(T)$ , который расположен при температуре  $T_{peak}$  несколько превышающей  $T_c$ . Поскольку при  $T < T_{peak}$  производная  $d\rho/dT$  положительна, что характерно для металлов, а при  $T > T_{peak}$  наблюдается типичная для полупроводников зависимость с  $d\rho/dT < 0$ , многие авторы полагают, что при  $T = T_{peak}$  происходит переход металл-полупроводник, который и является причиной появления КМС эффекта. Исключением являются манганиты  $La_{1-x}Sr_xMnO_3$  при концентрации стронция  $x \geq 0.25$ , поскольку в этих соединениях пик сопротивления не наблюдается, и при всех температурах  $d\rho/dT > 0$ . Эти манганиты считают находящимися в металлическом состоянии при всех температурах.

Переход из ферромагнитного в парамагнитное состояние может быть как первого, так и второго рода. Магнитный переход пер-

вого рода наблюдается в  $La_{1-x}Ca_xMnO_3$  при содержании кальция  $0.25 \leq x \leq 0.5$ , при  $0.1 \leq x \leq 0.25$  имеет место переход второго рода. В  $La_{1-x}Sr_xMnO_3$  и  $La_{1-x}Ba_xMnO_3$  магнитный переход является переходом второго рода.

В  $La_{1-x}Ca_xMnO_3$ , когда магнитный переход является переходом первого рода, в парамагнитной области температур хорошо выполняется закон Аррениуса

$$\rho(T) = \rho_0 \exp[E_a / (k_B T)],$$

где  $\rho_0 = \text{const}$ ,  $E_a$  – не зависящая от температуры энергия активации,  $k_B$  – константа Больцмана [2]. При наличии перехода второго рода энергию активации можно считать постоянной, если температура заметно превосходит как  $T_c$ , так и  $T_{peak}$ .

Различие между  $T_c$  и  $T_{peak}$ , а также причина появления температурной зависимости энергии активации в случае магнитного перехода второго рода обычно не обсуждаются. В настоящем сообщении на основе анализа экспериментальных данных для ряда манганитов показывается, что природа указанных особенностей состоит в развитии критических флуктуаций в магнитной подсистеме манганита при приближении к температуре фазового перехода.

В настоящей работе будут анализироваться только данные для монокристаллов. Многочисленные попытки интерпретации результатов для поликристаллов нельзя считать удовлетворительными, поскольку в случае поликристаллов КМС манганитов основной вклад в сопротивление дают границы между зернами, а не процессы внутри кристаллитов, которые представляют непосредственный интерес.

### Температурная зависимость сопротивления вблизи точки Кюри

На рис. 1 показана температурная зависимость сопротивления монокристаллов  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  [3]. Наибольшее сопротивление имеет кристалл  $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ , который в ферромагнитной области температур находится в полупроводниковом состоянии. Максимум сопротивления соответствует  $T_{\text{peak}}=245$  К, что заметно выше температуры Кюри  $T_C=232$  К. При росте концентрации стронция разница между  $T_{\text{peak}}$  и  $T_C$  увеличивается (при  $x=0.20$   $T_{\text{peak}}=340$  К, тогда как  $T_C=308$  К), а при  $x \geq 0.25$  пик на кривой  $\rho(T)$  отсутствует. Поскольку особенности на кривых  $\rho(T)$  имеют место в окрестности  $T_C$ , очевидно, что их появление связано с магнитным фазовым переходом, иными словами, с взаимодействием носителей заряда с магнитной подсистемой.

### Теоретическая модель. Сравнение с экспериментом

Состояние магнитной подсистемы определяется, во-первых, величиной намагниченности, и, во-вторых, спиновыми корреляционными функциями вида

$$G_q^{\alpha\beta} = \langle S_q^\alpha S_{-q}^\beta \rangle,$$

где  $q$  – волновой вектор, а  $\alpha$  и  $\beta$  – декартовы индексы. В парамагнитной области при отсутствии магнитного поля намагниченность равна нулю и, следовательно, особенности на кривой  $\rho(T)$  обусловлены температурной зависимостью  $G_q(T)$ . Как известно, в случае широкозонной  $s-d$  модели рассеяние на критических флуктуациях, которые описываются  $G_q(T)$ , приводит к появлению расходимости на кривой  $dp/dT$  при  $T=T_C$ , поскольку  $G_{q=0}$  имеет особенность при  $T=T_C$ . Для случая узкозонной  $s-d$  модели, которая используется при описании КМС манганитов, имеющиеся расчеты относятся только к металлическому состоянию, что делает их результаты мало пригодными для анализа экспериментальных данных. В работе [1] при анализе данных для монокристалла  $\text{La}_{0.72}\text{Ba}_{0.28}\text{MnO}_3$  нами был использован простой феноменологический подход, суть которого состоит в следующем. Определим локальную энергию активации соотношении

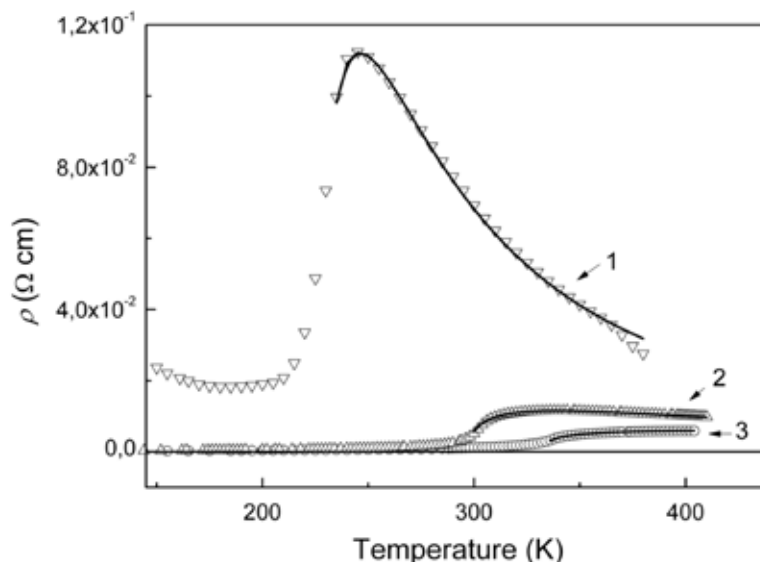


Рис. 1. Температурная зависимость сопротивления монокристаллов  $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$  (кривая 1),  $\text{La}_{0.80}\text{Sr}_{0.20}\text{MnO}_3$  (кривая 2) и  $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$  (кривая 3). Символы – данные эксперимента, сплошные линии – расчет

ем  $\varepsilon_a = d \ln r / d(T^{-1})$ . Предположим, что температурная зависимость сопротивления имеет экспоненциальный характер, но энергия активации  $E_a$  зависит от температуры. Тогда

$$\varepsilon_a = E_a - T \frac{dE_a}{dT}. \quad (1)$$

Поскольку  $\varepsilon_a$  определяется через производную  $dp/dT$ , можно предположить, что  $\varepsilon_a$  имеет те же особенности, что и  $G_{q=0}$ . Естественно поэтому предположить, что

$$\varepsilon_a = \varepsilon_a^m - \frac{C}{T - T_a}, \quad (2)$$

где  $\varepsilon_a^m$ ,  $C$  и  $T_a$  константы, подлежащие определению из эксперимента, причем  $T_a$  должна быть близка к температуре Кюри. Мы провели обработку кривых  $\varepsilon(T)$  для ряда манганитов, включая  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ . Оказалось, что с помощью формулы (2) удается хорошо описать экспериментальную зависимость  $\varepsilon_a(T)$ , причем во всех случаях  $T_a$  близка к  $T_c$ , а константа  $C$  равна 2 – 2.5 эВ К. Зависимость  $\varepsilon_a^m$  от концентрации двухвалентных ионов показана на рис. 2.

Равенство (1) можно рассматривать как уравнение для  $E_a(T)$ . Считая, что  $E_a$  при возрастании температуры стремится к  $\varepsilon_a^{\text{lim}}$ , то решая уравнение (1) с  $\varepsilon_a(T)$  в виде (2), получаем

$$E_a(T) = \varepsilon_a^m + \frac{C}{T_a} \left[ 1 + \frac{T}{T_a} \ln \left( 1 - \frac{T_a}{T} \right) \right]. \quad (3)$$

Теперь сопротивление в парамагнитной области мы можем описать соотношением

$$\rho(T) = \rho_0 \exp[E_a(T) / (k_B T)].$$

Поскольку зависимость  $E_a(T)$  известна, предэкспоненциальный множитель  $\rho_0$  можно определить, используя экспериментальное значение сопротивления при какой-либо температуре.

Расчетные кривые для  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  показаны на рис. 1 сплошными линиями; для монокристаллов других манганитов с магнитным фазовым переходом второго рода результаты оказываются аналогичными. Согласие расчетных и экспериментальных кривых является очень хорошим, что говорит об адекватности использованного нами

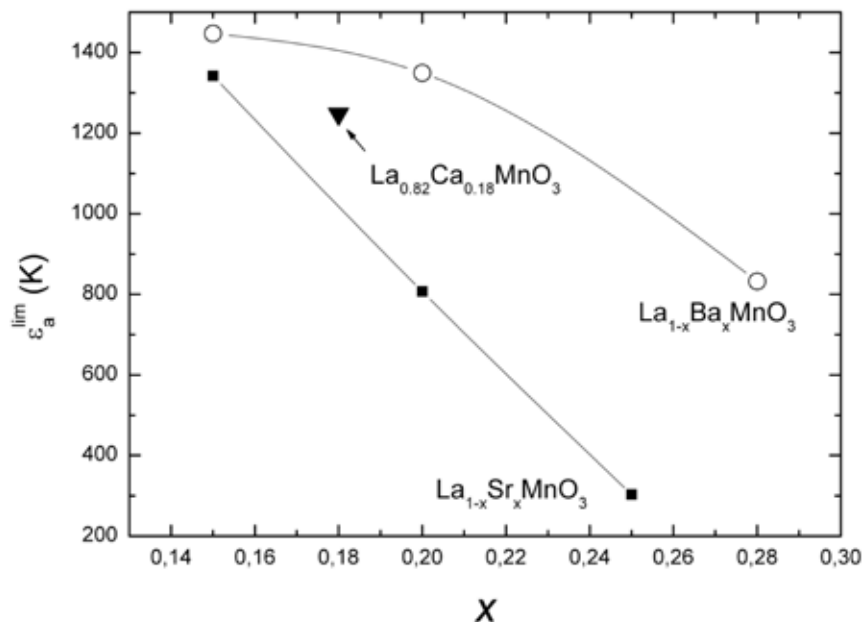


Рис. 2. Зависимость  $\varepsilon_a^{\text{lim}}$  от концентрации двухвалентных ионов

подхода. Во всех случаях  $\rho_0$  по порядку величины близко к  $\sigma_{\min}^{-1}$ , где  $\sigma_{\min}$  – минимальная металлическая проводимость, равная  $\sim 10^3$  (Ом см)<sup>-1</sup> [4].

### Выводы

Результаты проведенных расчетов показывают, что при  $T=T_{peak}$  энергия активации  $E_a(T)$  положительна, так что переход металл-полупроводник при  $T=T_{peak}$  не происходит. Неожиданным является тот факт, что в рамках изложенного подхода удается хорошо описать температурную зависимость сопротивления кристалла  $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ . Величина энергии активации, однако, оказывается в этом случае хотя и положительной, но существенно меньше  $k_B T$ . Это указывает на то, что лантан – стронциевые манганиты с  $x \geq 0.25$  близки не к металлам, как обычно полагают, а к бесщелевым полупроводникам. На это же указывает и то, что

сопротивление  $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$  в парамагнитной области температур в несколько раз превышает  $\sigma_{\min}^{-1}$ .

*Работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО России (тема «Спин» № 01201463330), проект РАН №15–17–2–17.*

### Список литературы

1. Бебенин Н.Г. Явления переноса в монокристалле  $\text{La}_{0.72}\text{Ba}_{0.28}\text{MnO}_3$  / Н.Г. Бебенин, Р.И. Зайнуллина, Н.С. Чущева, Л.В. Елохина, В.В. Устинов, Я.М. Муковский // ФММ. – 2007. – Т. 103. – С. 271.
2. Bebenin N.G. Magnetic phase transition and electronic transport in single-crystalline  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  / N.G. Bebenin, R.I. Zainullina, N.S. Bannikova, V.V. Ustinov, Y.M. Mukovskii // Phys. Rev. B. – 2008. – Vol. 78. – P. 064415.
3. Bebenin N.G. Electronic transport in ferromagnetic  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  / N.G. Bebenin, R.I. Zainullina, V.V. Mashkautsan, V.V. Ustinov, Ya.M. Mukovskii // Phys. Rev. B. – 2004. – Vol. 69. – P. 104434.
4. Salamon M.B. The physics of manganites: Structure and transport / M.B. Salamon, M. Jaime // Rev. Mod. Phys. – 2001. Vol. 73. – P. 583.