

PACS: 72.15.Gd, 72.60.+g, 81.40.Vw

В.Т. Довгий, А.И. Линник, В.И. Каменев, В.К. Прокопенко, В.И. Михайлов,  
Н.В. Давыдейко, Т.А. Линник, В.Н. Спиридонов, Г.Ю. Бочковая

## ОСОБЕННОСТИ МАГНИТНО-НЕОДНОРОДНОГО СОСТОЯНИЯ МОНОКРИСТАЛЛА МАНГАНИТА $Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$ . ЭФФЕКТЫ ДАВЛЕНИЯ

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины  
ул. Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина

Статья поступила в редакцию 20 июля 2009 года

*Обнаружены хаотические осцилляции магнитной восприимчивости в монокристалле манганита  $Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$  в температурном диапазоне сосуществования его ферро- и антиферромагнитной фаз. Установлена зависимость амплитуды осцилляций от напряженности подмагничивающего поля. Появление осцилляций восприимчивости связывается с магнитными образованиями (переходными областями), которые могут существовать на границе раздела ферро- и антиферромагнитной фаз. Обнаружено, что воздействие внешнего гидростатического давления до 10 kbar приводит к смещению температуры зарядового упорядочения в сторону низких температур.*

**Ключевые слова:** манганиты, магнитная восприимчивость, осцилляции, магнитная неоднородность, фазовые переходы, магнитосопротивление

### 1. Введение

Развитие нового направления микроэлектроники – спинтроники требует разработки и использования новых материалов, в которых процессы переноса заряда определяются их магнитным состоянием. В этом отношении редкоземельные манганиты со структурой перовскита типа  $R_{1-x}M_xMnO_3$  (где R – трехвалентные ионы La, Pr, Nd и других редкоземельных элементов, M – двухвалентные ионы Sr, Ca, Ba) являются перспективными материалами. Природа наблюдаемого в них колоссального магнитосопротивления (КМС) до конца не установлена. Эти системы демонстрируют богатые фазовые диаграммы с разнообразными типами структурного, магнитного, зарядового и орбитального упорядочения [1], в которых наблюдается уникальная взаимосвязь электронных, магнитных и структурных свойств.

Важную роль в физике манганитов играют неоднородные состояния, проявляющиеся в виде зарядового упорядочения катионов марганца ( $Mn^{3+}$  –  $Mn^{4+}$ ), структурных и магнитных поляронов, фазового расслоения как на микроскопическом (10–20 Å), так и на мезоскопическом (порядка 1000 Å)

уровнях. Многие исследователи связывают явление КМС в манганитах с их магнитно-неоднородным состоянием [2–6].

В указанных материалах наблюдаются зарядовое упорядочение ионов  $Mn^{3+}/Mn^{4+}$ , орбитальное упорядочение ионов  $Mn^{3+}$ , фазовые переходы антиферромагнетик–ферромагнетик и ферромагнетик–парамагнетик. Отметим, что данные о влиянии давления на указанные фазовые переходы малочисленны и носят противоречивый характер [7–9].

В виду этого целью данной работы явилось исследование поведения магнитно-неоднородного состояния, с которым связывают явление КМС, при воздействии переменного и постоянного магнитных полей, а также влияния внешнего гидростатического давления на фазовые переходы.

## 2. Методика получения и исследования образцов

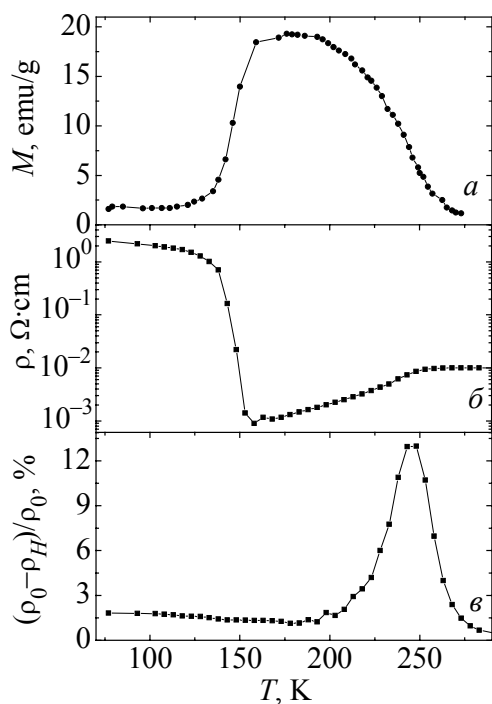
Монокристаллические образцы состава  $Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$  выращены методом плавающей зоны с радиационным нагревом. Параметры кристаллической решетки монокристалла и направления кристаллографических осей определяли на рентгеновском дифрактометре ДРОН-2 ( $Ni K_{\alpha}$ -излучение) по положению линий (600), (060), (088). Постоянные решетки составили:  $a = 5.4780 \text{ \AA}$ ;  $b = 5.4308 \text{ \AA}$ ;  $c = 7.6116 \text{ \AA}$ .

Измерение намагниченности проводили на вибрационном магнитометре, электропроводность определяли четырехзондовым методом. Магнитную восприимчивость измеряли модуляционным методом на индуктивно-частотной установке (рабочая частота автодина  $\sim 5 \text{ MHz}$ ) при основной частоте модуляции  $330 \text{ Hz}$ , амплитуду модулирующего поля  $H_{mod}$  изменяли в пределах 1–10 Oe.

Образцы помещали в выносную катушку индуктивности автодина, которая находилась в температурной ячейке. Воздействие внешнего переменного магнитного поля (с частотой  $330 \text{ Hz}$ ) приводит к изменению магнитного состояния образца, что является модулирующим сигналом для высокочастотной несущей автодина. Амплитуда этой модуляции пропорциональна магнитной восприимчивости исследуемого вещества ( $A \sim \chi$ ), поэтому ход кривой  $A = f(T)$  эквивалентен ходу температурной зависимости восприимчивости  $\chi(T)$ . Исследование под давлением до 10 kbar проводили в камере высокого давления типа цилиндр–поршень из немагнитных материалов БрБ2 и ХНЮ40. В качестве среды, передающей давление, использовали смесь керосин–масло (1:1). Температуру измеряли термометром, калиброванным при различных давлениях, а давление – манганиновым манометром сопротивления.

## 3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

В настоящей работе проведено изучение кристаллической структуры, магнитных и транспортных свойств кристаллов состава  $Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$ . Особое внимание было уделено исследованию низкочастотной магнитной восприимчивости  $\chi$  в температурном диапазоне 77–300 К с использованием оригинальной индуктивно-частотной установки (изучены ориентационное и



**Рис. 1.** Температурные зависимости удельной намагниченности  $M$  (а), удельного сопротивления  $\rho$  (б) и магнитосопротивления  $\Delta\rho/\rho = (\rho_0 - \rho_H)/\rho_0$  (в) монокристалла  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$

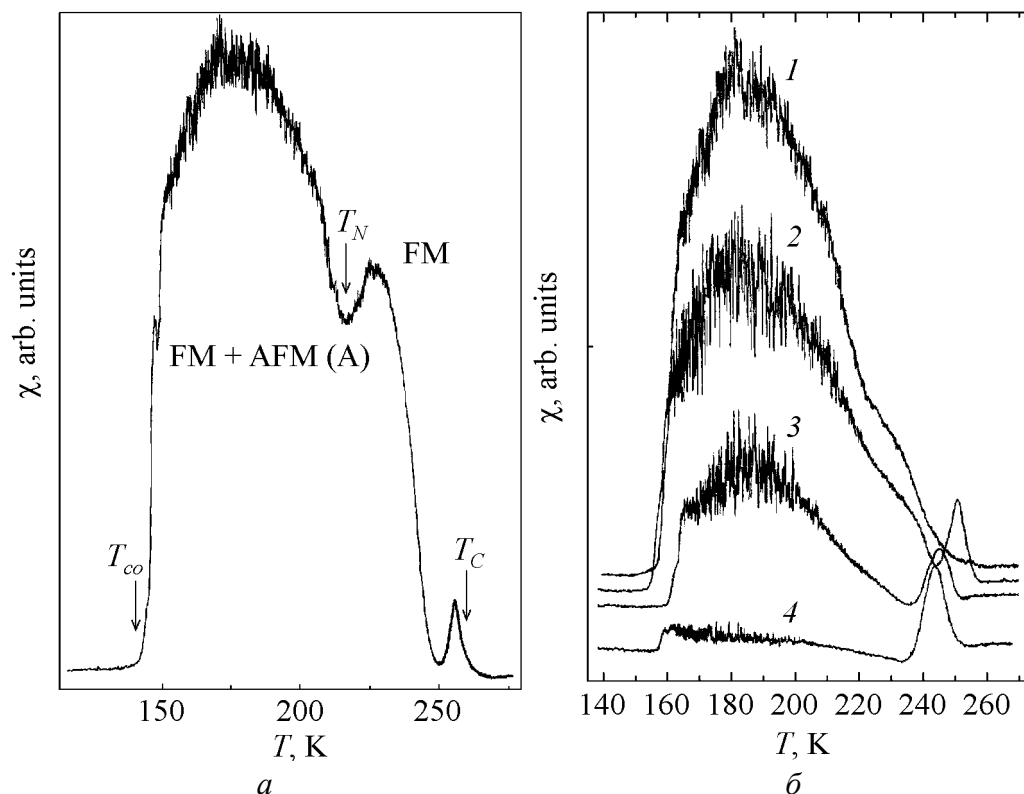
ферромагнитного упорядочения с металлическим типом проводимости (FM/M), где наблюдаются максимальные значения намагниченности (рис. 1,а) и минимальные значения сопротивления (рис. 1,б), что соответствует исчезновению зарядового, орбитального упорядочений и появлению большого числа носителей тока. При  $T > 260$  К имеет место область парамагнитного изолятора.

Отметим, что температурная зависимость сопротивления (рис. 1,б) имеет слабо выраженный пик в области фазового перехода «металлический» тип проводимости–«полупроводниковый», так как полупроводниковая «ветвь» имеет слабую температурную зависимость. Магниторезистивный эффект  $\Delta\rho/\rho_0$  в данном образце носил обычный характер и составил для магнитного поля 5 кОе 13.5%. Соответствующая этому значению  $\Delta\rho/\rho_0$  температура магниторезистивного типа  $T_p$  составила 248 К.

На рис. 2,а приведена температурная зависимость восприимчивости  $\chi$  (модулирующее поле  $H_{\text{mod}}$  амплитудой 10 Ое направлено примерно перпендикулярно оси  $c$  кристалла). Видно, что большие значения  $\chi$  имеют место в области температур  $150 \text{ К} \leq T \leq 260 \text{ К}$ , что согласно фазовой диаграмме [1] соответствует области ферромагнитного металла FM/M. При  $T < 150$  К образец находится в состоянии антиферромагнитного изолятора AFM/I CE-типа, где наблюдаются зарядовое и орбитальное упорядочения ионов  $\text{Mn}^{3+}$  и  $\text{Mn}^{4+}$  [10,11]. На рис. 1 показано, что в этой области температур удельное сопротивление

полевые зависимости  $\chi(T)$ , что позволило получить дополнительные сведения об их магнитно-неоднородном состоянии.

На рис. 1 приведены температурные зависимости удельной намагниченности  $M$  (измерены в магнитном поле 1 кОе), удельного электросопротивления  $\rho$  и магнитосопротивления  $\Delta\rho/\rho = (\rho_0 - \rho_H)/\rho_0$  (магнитное поле 5 кОе параллельно измерительному току). Согласно фазовой диаграмме  $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  [1] для  $x = 0.5$  при температуре  $T < 150$  К (т.е. ниже температуры зарядового упрочнения  $T_{co}$ ), образец находится в состоянии антиферромагнитного изолятора (AFM/I) CE-типа, где наблюдаются зарядовое и орбитальное упорядочения ионов  $\text{Mn}^{3+}$  и  $\text{Mn}^{4+}$ . В этой области намагниченность минимальна, сопротивление велико. Температурный диапазон  $150 \text{ К} \leq T \leq 260 \text{ К}$  соответствует обла-



**Рис. 2.** Температурные зависимости магнитной восприимчивости  $\chi$  монокристалла  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  в нулевом подмагничивающем поле ( $H_{\text{mod}} \perp c$ ) (а) и в постоянном подмагничивающем поле  $H_{dc}$  (б), Ое: 1 – 0, 2 – 100, 3 – 300, 4 – 1000 ( $H_{dc}, H_{\text{mod}} \parallel c$ )

$\rho$  образца велико, а намагниченность  $M$  минимальна, что хорошо коррелирует с фазовой диаграммой и температурной зависимостью  $\chi$ . Температурные зависимости намагниченности, электросопротивления, восприимчивости демонстрируют фазовый переход первого рода ( $T \approx 150$  К) из антиферромагнитного изолирующего AFM/I в ферромагнитное металлическое FM/M-состояние. Поскольку примененная нами методика фактически фиксирует колебания ферромагнитного момента под воздействием переменного магнитного поля, для наблюдения максимальных значений  $\chi$  необходимы два условия: достаточная величина магнитного момента и малое значение поля магнитной анизотропии. Именно это и наблюдается в области  $150 \text{ К} \leq T \leq 260 \text{ К}$ . При  $T > 260 \text{ К}$  имеет место область парамагнитного изолятора, и магнитная восприимчивость снова минимальна.

В температурном диапазоне 150–220 К обнаружены осцилляции магнитной восприимчивости. Из данных нейтронографических исследований [11] известно, что в этом температурном диапазоне существуют две фазы: ферромагнитная и антиферромагнитная А-типа (примерно 20%), для которой точка Нееля  $T_N \sim 220$  К. Из рис. 2,а видно, что при этой температуре наблюдается аномалия на кривой  $\chi(T)$ . Выше данной температуры до точки Кюри ( $T_C \approx 260$  К) существует только ферромагнитная фаза, и  $\chi$  постепенно падает до 0. Но главным обстоятельством является то, что выше  $T_N$  осцилляции восприимчивости не наблюдаются.

Изменение направления модулирующего поля на перпендикулярное (т.е. параллельно оси  $c$  кристалла) практически не изменило характера зависимости  $\chi(T)$  исследуемого монокристалла, хотя можно отметить, что амплитуда огибающей  $\chi(T)$  уменьшилась примерно вдвое (на графиках максимальные величины  $\chi$  приведены к одинаковым значениям). На рис. 2,б для нового направления модулирующего поля представлена зависимость  $\chi(T)$ , полученная при той же амплитуде модулирующего поля, что и на рис. 2,а ( $H_{\text{mod}} = 10$  Ое) для различных значений постоянного подмагничивающего поля. Направление поля – примерно параллельно оси  $c$  кристалла. Так же, как и на рис. 2,а, в области ферромагнитного упорядочения  $150 \text{ К} \leq T \leq 260 \text{ К}$  наблюдаются максимальные значения восприимчивости, а в температурном диапазоне  $150\text{--}220 \text{ К}$  – осцилляции восприимчивости.

Обратим внимание на два обстоятельства:

1) осцилляции восприимчивости обнаружены только в температурном диапазоне  $150\text{--}220 \text{ К}$  для различных ориентаций магнитного поля (постоянного и переменного), где сосуществуют фазы FM/M и AFM/I A-типа. В области существования только FM-фазы ( $220 \text{ К} \leq T \leq 260 \text{ К}$ ) осцилляции  $\chi$  не наблюдаются;

2) с ростом постоянного поля величина пика  $\chi(T)$  уменьшается, но амплитуда осцилляций увеличивается (см. кривые 1–3) и только в поле  $\approx 1000$  Ое уменьшается и амплитуда осцилляций (кривая 4).

Что касается влияния напряженности постоянного подмагничивающего поля, то уменьшение амплитуды огибающей  $\chi(T)$  с ростом этого поля не удивительно, так как оно играет роль поля анизотропии, от величины которого зависит значение  $\chi$ . В то же время рост амплитуды осцилляций с увеличением поля подмагничивания является необычным.

Как уже отмечалось, главным фактором, определяющим появление хаотических осцилляций  $\chi$ , является сильная магнитная неоднородность образца: одновременное сосуществование ферро- и антиферромагнитной фаз в температурном диапазоне  $150\text{--}220 \text{ К}$ . Если предположить, что между указанными фазами есть переходные области (подобные доменным границам между доменами в ферромагнетике), то именно эти области будут наиболее чувствительными к воздействию магнитных полей. С другой стороны, данные области испытывают сильное влияние близлежащих антиферромагнитных участков, которые индуцируют локальные поля анизотропии, случайно ориентированные в пространстве. Под воздействием  $H_{\text{mod}}$  эти участки выходят из равновесия, а релаксация идет случайным образом, что и вызывает хаотические осцилляции  $\chi$ . При повышении внешнего подмагничивания легко намагничивающаяся ферромагнитная фаза способствует росту объема переходных областей и соответственно увеличению амплитуды осцилляций. Однако когда внешнее поле превышает  $1000$  Ое, происходит «замораживание» как собственно ферромагнитной фазы, так и переходных участков, что приводит к уменьшению и амплитуды огибающей  $\chi$ , и амплитуды осцилляций.

Обращает на себя внимание также наличие пика восприимчивости в районе точки Кюри, который имеет ориентационную (наблюдается без поля смещения при ориентации  $H_{\text{mod}}$  перпендикулярно оси  $c$ ) и полевою зависимости. Как видно из рис. 2,б, при  $H = 0$  (кривая 1) пик восприимчивости в области  $T_C$  отсутствует. При  $H \neq 0$  в районе  $T_C$  появляется пик, который по мере увеличения подмагничивания смещается в область низких температур.

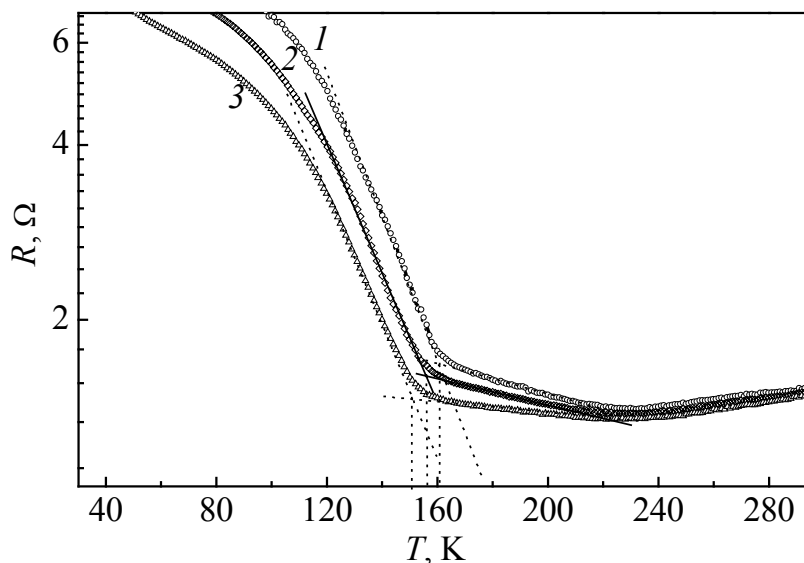
Появление пика восприимчивости в районе точки Кюри характерно для примененной нами методики записи  $\chi(T)$ , особенно когда речь идет о начальной восприимчивости (т.е. в отсутствие постоянного магнитного поля). Следует только найти правильную ориентацию модулирующего поля, чтобы минимизировать влияние поля анизотропии на возбуждение магнитных моментов. В нашем случае это происходит при ориентации  $H_{\text{mod}} \perp c$ -оси. Однако наложение постоянного магнитного поля должно гасить пик, поскольку это поле начинает играть роль поля анизотропии. Тот факт, что для изучаемого образца наложение постоянного поля не только не гасит упомянутый пик, но, напротив, усиливает его и сдвигает в область низких температур, свидетельствует о том, что FM-фаза, которая существует в диапазоне  $220 \text{ K} \leq T \leq 260 \text{ K}$ , является сильно неоднородной и чувствительной к магнитному полю в области фазового перехода ферромагнитное состояние  $\leftrightarrow$  парамагнитное состояние.

Как уже упоминалось, при температуре  $T_N = 220 \text{ K}$  происходит разрушение антиферромагнитной фазы  $A$ -типа, однако ее элементы (кластеры), имеющие ближний ферромагнитный порядок (в плоскости  $ab$ ), продолжая существовать при температуре выше  $T_N$ , могут испытывать некоторое упорядочение под влиянием намагниченной внешним полем ферромагнитной фазы. Это упорядочение усиливает синхронный отклик системы на модулирующее поле, вызывая появление пика  $\chi$  вблизи  $T_C$ . С ростом внешнего подмагничивания увеличивается коллинеарность ферромагнитного упорядочения, а само упорядочение начинается с более низких температур.

На рис. 3 представлены температурные зависимости сопротивления  $R$  исследуемого монокристалла при внешнем гидростатическом давлении  $P$ , равном 0, 5 и 10 kbar. Видно, что с ростом давления электросопротивление уменьшается, а экстремумы  $R(T)$  смещаются в сторону низких температур, и  $T_{co}$  уменьшается со скоростью  $dT_{co}/dP \approx -1 \text{ K/kbar}$ . Отметим, что манганиты с малым замещением  $\text{La}^{3+}$  на  $\text{Sr}^{2+}$  или  $\text{Ca}^{2+}$ , в которых также наблюдаются зарядовое и орбитальное упорядочения, демонстрируют смещение  $T_{co}$  в область высоких температур при воздействии внешнего гидростатического давления [12–14].

#### 4. Выводы

1. Осцилляции восприимчивости наблюдаются только в температурном диапазоне 150–220 К для различных ориентаций магнитного поля (постоянного и переменного), где сосуществуют фазы FM/M и AFM/I  $A$ -типа. В области существования только FM-фазы ( $220 \text{ K} \leq T \leq 260 \text{ K}$ ) осцилляции  $\chi$  не наблюдаются.



**Рис. 3.** Зависимость электросопротивления  $R$  от температуры монокристалла  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  при воздействии внешнего давления  $P$ , kbar: 1 – 0 ( $T_{co} = 161$  К); 2 – 5 ( $T_{co} = 156$  К); 3 – 10 ( $T_{co} = 151$  К)

2. С ростом постоянного поля смещения величина пика  $\chi(T)$  уменьшается монотонно, тогда как амплитуда осцилляций изменяется немонотонно.

3. Пик восприимчивости в районе точки Кюри имеет как ориентационную, так и полевую зависимость и смещается с увеличением постоянного поля в область низких температур.

4. Воздействие на монокристалл внешнего гидростатического давления до 10 kbar приводит к смещению температуры зарядового упорядочения  $T_{co}$  в область низких температур.

1. R. Kajimoto, H. Yoshizawa, H. Kawano, H. Kuwahara, Y. Tokura, K. Ohoyama, M. Ohashi, *Phys. Rev.* **B60**, 9506 (1999).
2. Э.Л. Нагаев, *УФН* **166**, 833 (1996).
3. M.-Uehara, S. Mori, C.H. Chen, S.-W. Cheong, *Nature* **399**, 560 (1999).
4. J.M. De Teresa, M.R. Ibarra, P.A. Algarabel, C. Ritter, C. Marquina, J. Blasco, J. Garsia, A. del Moral, Z. Arnold, *Nature* **386**, 256 (1997).
5. О.Ю. Горбенко, Р.В. Демин, А.Р. Кауль, Л.И. Королева, Р. Шимчак, *ФТТ* **40**, 290 (1998).
6. Р.В. Демин, Л.И. Королева, *ФТТ* **46**, 1051 (2004).
7. A.S. Roy, A. Husman, T.F. Rosenbaum, J.F. Mitchell, *Phys. Rev.* **B63**, 094416 (2001).
8. Taka-hisa Arima, Kenji Nakamura, *Phys. Rev.* **B60**, R15013 (1999).
9. Y. Moritomo, H. Kuwahara, Y. Tomioka, Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B55**, 7549 (1997).
10. R. Mahendiran., M.R. Ibarra, A. Maignan, F. Millang, A. Arulraj, R. Mahesh, B. Raveau, C.N.R. Rao, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2191 (1999).
11. C. Ritter, R. Mahendiran, M.R. Ibarra, L. Morellon, A. Maignan, B. Raveau, C.N.R. Rao, *Phys. Rev.* **B61**, R9229 (2000).

12. B. Martines, R. Senis, L.I. Balcells, V. Laukhin, I. Fontcuberta, L. Pinsard, A. Revcolewshi, Phys. Rev. **B61**, 8643 (2000).
13. R. Senis, V. Laukhin, B. Martines, I. Fontcuberta, X. Obradors, A.A. Arsenov, Y.M. Mukovskii, Phys. Rev. **B57**, 14680 (1998).
14. А.Е. Петрова, Е.С. Ицкевич, В.А. Вентцель, В.Ф. Крайденев, А.В. Руднев, ФНТ **27**, 1123 (2001).

*В.Т. Довгий, О.І. Ліннік, В.І. Каменєв, В.К. Прокопенко, В.І. Михайлов, Н.В. Давидейко, Т.О. Ліннік, В.М. Спиридонов, Г.Ю. Бочковая*

### ОСОБЛИВОСТІ МАГНІТНО-НЕОДНОРІДНОГО СТАНУ МОНОКРИСТАЛУ МАНГАНІТА $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ . ЕФЕКТИ ТИСКУ

Виявлено хаотичні осциляції магнітної сприйнятливості в монокристалі манганіта  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  в температурному діапазоні співіснування його феро- та антиферомагнітної фаз. Встановлено залежність амплітуди осциляцій від напруженості поля, що підмагнічує. Появу осциляцій сприйнятливості пов'язано із магнітними утвореннями (перехідними областями), що можуть співіснувати на межі розділу феро- та антиферомагнітної фаз. Встановлено, що дія зовнішнього гідростатичного тиску до 10 кбар призводить до зміщення температури зарядового впорядкування в бік низьких температур.

**Ключові слова:** манганіти, магнітна сприйнятливість, осциляції, магнітна неоднорідність, фазові переходи, магнітоопір

*V.T. Dovgii, A.I. Linnik, V.I. Kamenev, V.K. Prokopenko, V.I. Mikhaylov, N.V. Davydeiko, T.A. Linnik, V.N. Spiridonov, G.Yu. Bochkova*

### MAGNETIC INHOMOGENEOUS STATE PECULIARITIES OF SINGLE CRYSTAL MANGANITE $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ . EFFECTS OF PRESSURE

Random oscillations of the magnetic susceptibility in the manganite single crystal  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  have been detected in the temperature range of ferro- and antiferromagnetic phases coexistence. The dependence of oscillations amplitude on intensity of a bias field is proved. The occurrence of the susceptibility oscillations is related to magnetic formations (transition areas), which can exist at the ferro-antiferromagnetic phase interface. The action of external hydrostatic pressure up to 10 kbar has been found to decrease the temperature of charge ordering.

**Keywords:** manganites, magnetic susceptibility, oscillations, magnetic inhomogeneity, phase transitions, magnetoresistance

**Fig. 1.** Temperature dependences of specific magnetization  $M$  (a), specific resistance  $\rho$  (b) and magnetoresistance  $\Delta\rho/\rho = (\rho_0 - \rho_H)/\rho_0$  (c) of single crystal  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$



**Fig. 2.** Temperature dependences of single crystal  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  magnetic susceptibility  $\chi$  in zero bias field ( $H_{\text{mod}} \perp c$ ) (a) and in dc bias field  $H_{dc}$ , Oe: 1 – 0, 2 – 100, 3 – 300, 4 – 1000 ( $H_{dc}, H_{\text{mod}} \parallel c$ )

**Fig. 3.** Temperature dependence of single crystal  $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  electroresistance  $R$  at influence of external pressure  $P$ , kbar: 1 – 0 ( $T_{co} = 161$  K); 2 – 5 ( $T_{co} = 156$  K); 3 – 10 ( $T_{co} = 151$  K)