

Спин-поляризованный транспорт в манганите $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$

А.Г. Гамзатов, А.Б. Батдалов

Институт физики ДагНЦ РАН, г. Махачкала, 367003, Россия
E-mail: gamzatov_adler@mail.ru

О.В. Мельников, О.Ю. Горбенко

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, г. Москва, 119899, Россия

Статья поступила в редакцию 27 октября 2008 г.

Подробно исследован низкотемпературный минимум электросопротивления $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$. Анализ экспериментальных данных показывает, что обнаруженный низкотемпературный минимум электросопротивления в нулевом магнитном поле и большой магниторезистивный эффект, растущий при понижении температуры, можно объяснить в рамках модели спин-поляризованного туннелирования носителей тока через границы гранул.

Докладно досліджено низькотемпературний мінімум електроопору $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$. Аналіз експериментальних даних показує, що низькотемпературний мінімум електроопору, який виявлено, в нульовому магнітному полі та великий магніторезистивний ефект, що росте при зниженні температури, можна пояснити в рамках моделі спін-поляризованого тунелювання носіїв струму через границі гранул.

PACS: 72.25.–b Спин-поляризованный перенос;
72.15.–v Электронная проводимость в металлах и сплавах.

Ключевые слова: манганиты, магниторезистивный эффект, туннелирование.

Введение

Исследование манганитов $\text{Ln}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$ (Ln — редкоземельный ион, А — легирующий ион), в которых трехвалентный редкоземельный ион частично замещен не двухвалентным щелочноземельным, как обычно, а одновалентным ионом, представляет значительный научный и практический интерес. Результаты исследования транспортных свойств манганитов, допированных одновалентными ионами (Na, K, Ag), показали, что для них характерна большая величина магниторезистивного эффекта при низких температурах вдали от T_C [1–4]. Более того, для некоторых образцов эффект КМС растет с понижением T , что вместе с обнаруженным при гелиевых температурах четко выраженным минимумом электросопротивления в нулевом магнитном поле требует дополнительных разъяснений.

Наличие минимума в температурной зависимости электросопротивления при низких температурах

наблюдали в манганитах $\text{La}_{1-x}\text{Ag}_x\text{MnO}_3$ [2,4], $\text{La}_{1-x}\text{K}_x\text{MnO}_3$ [3], $\text{La}_{0,55}\text{Ho}_{0,15}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ и $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ [5], $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [6,7], $\text{La}_{0,73}\text{Ca}_{0,27}\text{MnO}_3$ [8].

В литературе нет консенсуса относительно механизма возникновения низкотемпературного минимума в электросопротивлении манганитов. Так, авторы [3] для объяснения минимума в керамике $\text{La}_{1-x}\text{K}_x\text{MnO}_3$ придерживаются механизма межгранульного спин-поляризованного туннелирования носителей тока, который впервые был предложен для объяснения магнитосопротивления в гранулированных ферромагнетиках [9], основанный на туннелировании электронов между двумя ферромагнитно заряженными гранулами. Природа низкотемпературного минимума в манганитах в рамках модели спин-поляризованного туннелирования также подробно описана в [10]. В работе [8] для объяснения роста удельного электросопротивления в манганитах при понижении

температуры используют механизм кулоновской блокады электронов в соседних зернах, основанный на невозможности туннелирования электронов через границы зерен вследствие их кулоновского отталкивания.

Исследование электросопротивления в образцах $\text{La}_{1-x}\text{Ag}_x\text{MnO}_3$ ($y \leq x$) показало [4], что в высокотемпературной парамагнитной области поведение электросопротивления интерпретируется на основе концепции поляронов малого радиуса, причем энергия активации убывает с ростом уровня легирования. В низкотемпературной ферромагнитной фазе электросопротивление аппроксимируется выражением $\rho_{FM}(T) = \rho_0 + AT^2 + BT^{4,5}$, предполагающим наличие межэлектронного и электрон-магнонного взаимодействия [4,11]. Также для некоторых составов был обнаружен минимум электросопротивления и большой магниторезистивный эффект при низких температурах, который приписывают рассеянию носителей тока на границах гранул, антиферромагнитно упорядоченных друг относительно друга.

В настоящей работе в рамках различных моделей анализируются механизмы возникновения минимума в температурной зависимости электросопротивления манганита $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$.

Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведена температурная зависимость электросопротивления образца $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$ как в магнитном поле $H = 11$ кЭ, так и без поля в интервале температур 4,2–350 К, а также температурная зависимость магниторезистивного эффекта. Как видим, магниторезистивный эффект в поле 11 кЭ вблизи температуры перехода металл—изолятор достигает значения ~22%, а с понижением температуры вплоть до гелиевых температур наблюдается рост магниторе-

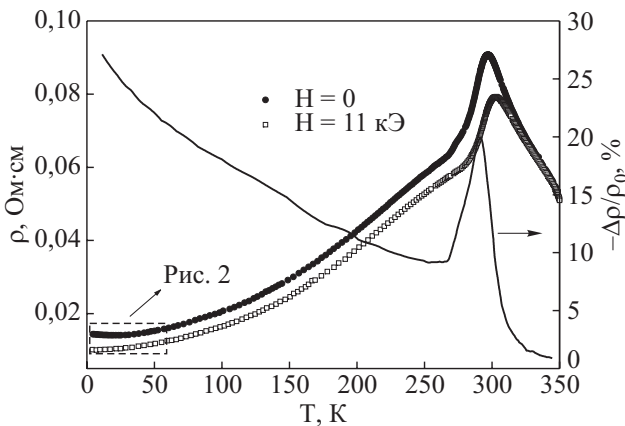


Рис. 1. Температурная зависимость электросопротивления $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$ в магнитном поле 11 кЭ и без поля. Справа приведена температурная зависимость $-\Delta\rho/\rho_0$, %.

зистивного эффекта, который достигает при 5 К величины 27%.

Рассмотрим более подробно поведение сопротивления с уменьшением температуры (рис. 2). Как видим на рисунке, с понижением температуры в поведении $\rho(T)$ при $T_{\min} \approx 20$ К наблюдается минимум, который в магнитном поле 11 кЭ полностью подавляется, приводя тем самым к эффекту КМС при низких температурах. Качественное объяснение механизма возникновения минимума в температурной зависимости электросопротивления в данных манганитах нами ранее описано в работе [4].

Транспорт через границы зерен очень чувствителен к приложенному магнитному полю. Согласно модели, предложенной Helman и др. [9], глубина минимума удельного сопротивления уменьшается с ростом магнитного поля и при некоторых значениях поля минимум полностью исчезает. В работе [3] для объяснения минимума в температурной зависимости удельного сопротивления при низких температурах в манганитах $\text{La}_{1-x}\text{K}_x\text{MnO}_3$ использована модель, предложенная авторами [10], где показано, что при низких температурах зависимость $\rho(T, H)$ имеет вид

$$\rho(T, H) = \frac{\rho_0 + \rho_1 T^{3/2}}{1 + \varepsilon \langle \cos \theta_{ij} \rangle}. \quad (1)$$

В равенстве (1) ρ_0 и ρ_1 — не зависящие от поля параметры, $\varepsilon = P^2$, где P — степень поляризации носителей тока в каждой грануле и $\langle \cos \theta_{ij} \rangle$ — спиновая корреляционная функция, равная

$$\langle \cos \theta_{ij} \rangle = -L\left(\frac{|J|}{k_B T}\right), \text{ для } (H = 0). \quad (2)$$

В выражении (2) $L(x) = \text{cth}(x) - 1/x$ — функция Ланжевена ($x = |J|/k_B T$), а J — интеграл антиферромаг-

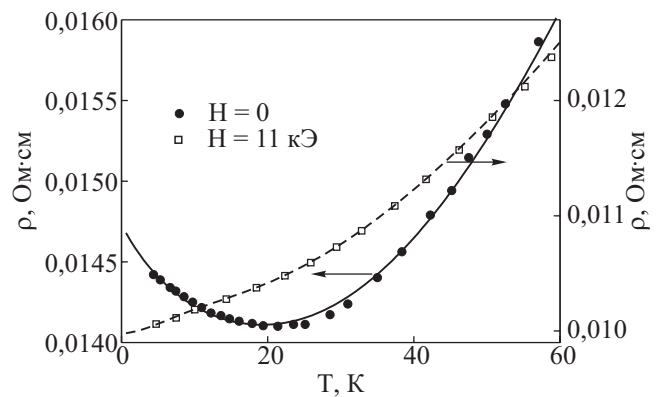


Рис. 2. Низкотемпературное поведение $\rho(T)$ $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$ в магнитном поле 11 кЭ и без поля. Линии соответствуют аппроксимации по формулам (1)–(3).

нитного обмена между зернами. При $H \neq 0$ упрощенное выражение для спиновой корреляционной функции, полученное в работе [12] для малых спиновых систем, взаимодействующих изотропно между ближайшими соседями (спинами), для эффективного поля $g\mu B/J = 3/2$ имеет вид

$$\langle \cos \theta_{ij} \rangle = \frac{1}{4} - \frac{1}{3 + \exp(-3J_S / k_B T)}. \quad (3)$$

Для описания экспериментальных данных $\rho(T,0)$ используем выражение (1) и (2), а для $\rho(T,H)$ — (1) и (3). На рис. 2 представлены результаты аппроксимации экспериментальных данных $\rho(T)$ как при $H = 0$ (сплошная линия), так и при $H = 11$ кЭ (пунктирная линия), а в табл. 1 приведены подгоночные параметры, наилучшим образом описывающие экспериментальные данные $\rho(T,H)$. Как видно, данная модель достаточно хорошо описывает наблюдаемые экспериментальные результаты. Хорошее согласие теории спин-поляризованного туннелирования с экспериментальными данными отмечают авторы [11], которые дали теоретическое описание минимума удельного сопротивления в $\text{La}_{0,5}\text{Pb}_{0,5}\text{MnO}_3 + 10\% \text{Ag}$ в рамках модели межгранульного спин-поляризованного туннелирования.

Таблица 1. Значения параметров в моделях спин-поляризованного туннелирования и кулоновской блокады, наилучшим образом описывающие экспериментальные данные

H , кЭ	ρ_0	ρ_1	ϵ	J_S/k_B	A	$\Delta^{1/2}$
0	0,00941	$9,13 \cdot 10^{-6}$	0,362	84	0,0134	0,073
11	0,00873	$6,71 \cdot 10^{-6}$	1,5	41	—	—

Теперь рассмотрим другую модель, позволяющую объяснить низкотемпературный минимум в удельном сопротивлении в гранулированных системах. Sheng и другие [13] получили выражение $\rho(T) = A \exp(\sqrt{\Delta/T})$, описывающее рост сопротивления с уменьшением температуры при низких температурах для гранулированных систем, где $\Delta \sim E_C$, $E_C = (e^2/4\pi\epsilon_0\epsilon r)$ — энергетический барьер (ϵ_0 — электрическая постоянная, ϵ — диэлектрическая проницаемость, r — размер зерен). Впервые такой подход в манганитах для объяснения поведения $\rho(T)$ поликристаллических образцов $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ был применен Valcells и др. [14], которые провели экспериментальную оценку вклада кулоновской блокады в удельное сопротивление в $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$. Наличие вклада кулоновской блокады в удельное сопротивление манганитов подтверждено и другими авторами, в частности Deu и др. [6], исследовавшими влияние размера зерна на магнито-транспортные свойства однофазных, нанокристаллических, гранулированных образцов $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$,

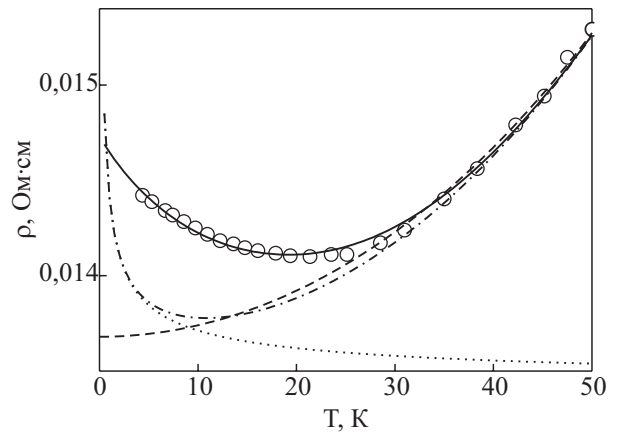


Рис. 3. Экспериментальные данные $\rho(T)$ для $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$ и кривые аппроксимации, полученные с помощью различных моделей: эксперимент (O), спин-поляризованное туннелирование (—), $\rho_0 + AT^2 + BT^{4,5}$ (---), модель кулоновской блокады (· · · ·), $CB + \rho_0 + AT^2 + BT^{4,5}$ (- · - ·).

со средним размером зерна 14–27 нм, и показали, что зависимость удельного сопротивления от температуры при низких температурах ($T < 40$ К) достаточно хорошо описывается в рамках модели кулоновской блокады электронов.

На рис. 3 приведены аппроксимации экспериментальных данных температурной зависимости электросопротивления при низких температурах для $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$ в нулевом поле. Результаты аппроксимации в рамках модели кулоновской блокады показывают, что модель кулоновской блокады в чистом виде (пунктирная линия) хотя и описывает рост сопротивления с понижением температуры при низких температурах, но не позволяет количественно объяснить минимум сопротивления для данного образца. В то же время отметим, что модель кулоновской блокады в комплексе с механизмами электрон-электронного ($\sim T^2$) и электрон-магнонного ($\sim T^{4,5}$) рассеяния позволяет качественно объяснить минимум в температурной зависимости сопротивления, но хорошего согласия с экспериментом не наблюдается. Такое сильное расхождение наших экспериментальных данных и модели кулоновской блокады связано с тем, что модель кулоновской блокады достаточно хорошо описывает поведение $\rho(T)$ для гранулированных систем с размером гранул порядка 10–100 нм, а средний размер гранул исследуемого нами образца порядка 1 мкм.

В работе [15] получено сложное выражение для полевой зависимости магнитосопротивления, учитывающее вклады от различных механизмов.

$$MR = -A \int_0^H f(k) dk - JH - KH^3, \quad (4)$$

где $f(k) = A \exp(-Bk^2) + Ck^2 \exp(-Dk^2)$.

Первый член в выражении (4) ответственен за спин-поляризованное туннелирование, а два последующих слагаемых — за механизм двойного обмена. Дифференцируя выражение (4) по H , получим:

$$\frac{d(MR)}{dH} = A \exp(-BH^2) + CH^2 \exp(-DH^2) - J - 3KH^2. \quad (5)$$

Авторы [3,5] показали, что зависящий от направления спина механизм туннелирования становится преобладающим при низких температурах.

Яркой иллюстрацией вышесказанного является характер зависимости магнитосопротивления от H при разных T , приведенный на вставке рис. 4. При $T = 77 \text{ K}$ основной вклад в $MR(\sim \Delta\rho/\rho_0)$ вносит спин-зависимое туннелирование носителей заряда по границам зерен. Этот механизм преимущественно проявляется при низких температурах и очень чувствителен к изменению магнитного поля, т.е. наблюдается резкий рост $|\Delta\rho/\rho_0|$ в слабых полях и плавный выход на слабую линейную зависимость ρ от H с ростом поля (без насыщения даже в сильных магнитных полях). Вблизи T_C , где наблюдается «классический эффект» КМС, гранулы теряют свои преимущественные ориентации магнитных доменов благодаря тепловому движению и вклад от туннелирования стремится к нулю, при этом основной вклад в $|\Delta\rho/\rho_0|$ вносит механизм двойного обмена. На это указывает и аппроксимация с помощью формулы (5) экспериментальных данных $\rho(H)$ при $T = 77 \text{ K}$. Как видим коэффициенты $J = 0,0048$ и $K = -3,2 \cdot 10^{-6}$, ответственные за механизм двойного

обмена, очень малы, что подтверждает вывод о том, что при низких температурах существенный вклад в магнитосопротивление вносит механизм спин-поляризованного туннелирования.

На рис. 5 приведены температурные зависимости корреляционной функции для исследуемой нами системы $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$ при нулевом поле $H = 0$ и при значении эффективного поля, равного $g\mu_B H/J = 3/2$. Данные зависимости получены с использованием формулы (2) и (3) со значениями коэффициента антиферромагнитного обмена, взятого из табл. 1. Как видим на рис. 5, при $T \rightarrow 0$, $\langle \cos\theta_{ij} \rangle \rightarrow -1$, т.е. спины электронов на границах соседних гранул упорядочены антиферромагнитно. С ростом температуры вследствие роста тепловых флуктуаций наблюдается отклонение от антиферромагнитного упорядочения. Если при $T = 5 \text{ K}$ $\langle \cos\theta_{ij} \rangle \approx -0,94$, что соответствует углу $\theta \approx 160^\circ$, то при $T = 60 \text{ K}$ $\langle \cos\theta_{ij} \rangle \approx -0,415$, что соответствует $\theta \approx 115^\circ$. Детальный анализ температурной и полевой зависимости спиновых корреляционных функций для малых магнитных систем приведен в работе [12].

Предположение об АФ корреляциях между гранулами по данным магнитных измерений на поликристаллических образцах манганитов также показывает отрицательное значение корреляционной функции $\langle \cos\theta_{ij} \rangle$ [5,10]. Так, в работе [5] для поликристаллических образцов $\text{La}_{0,7-x}\text{Ho}_x\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ ($x = 0$ и $0,15$) получили значения корреляционной функции $-0,8788$ и $-0,63$ соответственно для $x = 0$ и для $x = 0,15$.

Как отмечают авторы [5], отрицательное значение корреляционной функции согласуется с тем фактом, что существуют два взаимодействия, управляющие направлением намагниченности гранул: свободная ось которого ориентирована случайно и стремится разупорядочить направление намагниченности и магнитостатическое дипольное взаимодействие меж-

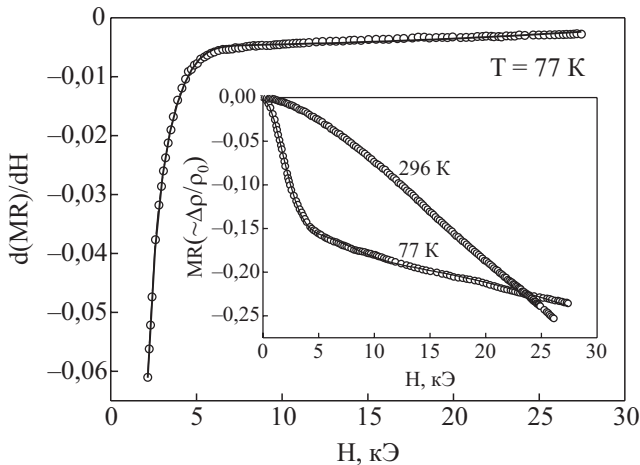


Рис. 4. Магнитополевая зависимость $d(MR)/dH$ для $\text{La}_{0,85}\text{Ag}_{0,15}\text{MnO}_3$ при $T = 77 \text{ K}$. На вставке — полевая зависимость магнитосопротивления при $T = 77$ и 296 K . Линии соответствуют аппроксимации с помощью выражений (4) и (5) с коэффициентами аппроксимации (при $T = 77 \text{ K}$): $A = -0,2493$, $B = 0,3917$, $C = -0,0076$, $D = 0,1681$, $J = 0,0048$, $K = -3,2 \cdot 10^{-6}$.

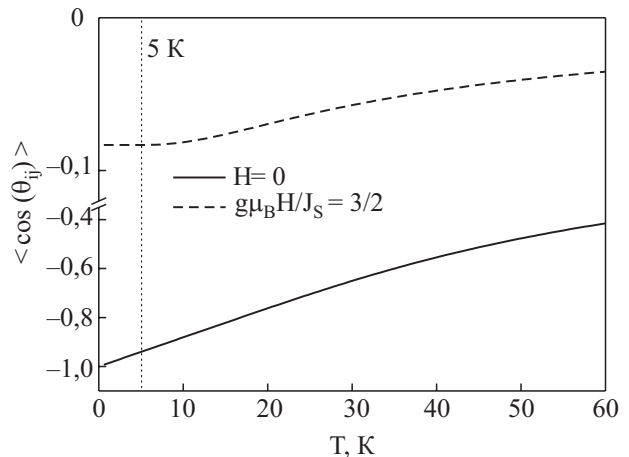


Рис. 5. Температурная зависимость корреляционной функции $\langle \cos\theta_{ij} \rangle$ при $H = 0$ и при $g\mu_B H/J = 3/2$.

ду гранулами, которое имеет тенденцию антипараллельного выстраивания между гранулами.

Заключение

Обнаруженный низкотемпературный минимум электросопротивления в нулевом магнитном поле и большой магниторезистивный эффект, растущий при понижении температуры, можно объяснить в рамках модели спин-поляризованного туннелирования носителей тока через границы гранул. Исследование магнитополевой зависимости электросопротивления при различных температурах подтверждает данный вывод.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (06-02-96612) и программой ОФН РАН.

1. L. Pi, M. Hervieu, A. Maigan, C. Martin, and B. Raveau, *Solid State Commun.* **126**, 229 (2003).
2. M. Battabyal and T.K. Dey, *Solid State Commun.* **131**, 337 (2004).
3. S. Das and T.K. Dey, *Solid State Commun.* **134**, 837 (2005).
4. И.К. Камилов, А.Г. Гамзатов, А.М. Алиев, А.Б. Батдалов, Ш.Б. Абдулвагидов, О.В. Мельников, О.Ю. Горбенко, А.Р. Кауль, *ЖЭТФ* **132**, 885 (2007).
5. P. Raychaudhuri, K. Sheshadri, P. Taneja, S. Bandyopadhyay, P. Ayyub, A. K. Nigam, R. Pinto, Sujeet Chaudhary, and S. B. Roy, *Phys. Rev.* **B59**, 13919 (1999).
6. P. Dey and T. K. Nath, *Phys. Rev.* **B73**, 214425 (2006).
7. A. de Andres, M. Garcia-Hernandez, and J.L. Martinez, *Phys. Rev.* **B60**, 7328 (1999).
8. M. Garcia-Hernandez, F. Guinea, A. de Andres, J.L. Martinez, C. Prieto, and L. Vazquez, *Phys. Rev.* **B61**, 9549 (2000).
9. J.S. Helman and B. Abeles, *Phys. Rev. Lett.* **37**, 9549 (1976).
10. M.I. Auslender, E. Rozenberg, A.E. Karlin, B.K. Chaudhuri, and G. Gorodetsky, *J. Alloys Comp.* **326**, 81 (2001).

11. И.К. Камилов, А.Г. Гамзатов, А.М. Алиев, А.Б. Батдалов, Ш.Б. Абдулвагидов, О.В. Мельников, О.Ю. Горбенко, А.Р. Кауль, *ФНТ* **33**, 1091 (2007).
12. O. Ciftija, M. Luban, M. Auslender, and J. Luscombe, *Phys. Rev.* **B60**, 10122 (1999).
13. Ping Sheng, B. Abeles, and Y. Arie, *Phys. Rev. Lett.* **31**, 44 (1973).
14. L. Balcells, J. Foncuberta, B. Martinez, and X. Obradors, *Phys. Rev.* **B58**, R14697 (1998).
15. P. Raychaudhuri, T. K. Nath, A. K. Nigam, and R. Pinto, *J. Appl. Phys.* **84**, 2048 (1998).

Spin-polarized transport in manganite



A.G. Gamzatov, A.B. Batdalov, O.V. Melnikov,
and O.Yu. Gorbenko

The low-temperature minimum of $\text{La}_{0.85}\text{Ag}_{0.15}\text{MnO}_3$ resistivity is studied comprehensively. According to the experimental data the low-temperature minimum of resistivity in zero magnetic field and the significant magnetoresistive effect, increasing with temperature decrease, can be explained within the model of spin-polarized tunneling of carriers through the grain boundaries.

PACS: **72.25.-b** Spin polarized transport;
72.15.-v Electronic conduction in metals and alloys.

Keywords: manganites, magnetoresistive effect, tunneling.