

Возможное наблюдение орбитонных возбуждений в манганитах методом туннельной спектроскопии

В.М. Свистунов, В.Н. Леонова

*Национальный технический университет «Харьковский политехнический институт»
ул. Фрунзе 21, г. Харьков, 61002, Украина
E-mail: svistunov@kpi.kharkov*

М.А. Белоголовский, Ю.Ф. Ревенко

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

Статья поступила в редакцию 22 июня 2009 г.

На примере моттовского диэлектрика LaMnO_3 обсуждаются экспериментальные попытки обнаружения элементарных возбуждений орбитально-упорядоченного состояния (орбитонов) в сильнокоррелированных электронных системах с помощью комбинационного рассеяния и метода неупругого рассеяния рентгеновских лучей. Представлены результаты исследований дифференциальной проводимости гетероструктур, образованных серебряным острием и легированным манганитом $\text{La}_{0,57}\text{Ca}_{0,43}\text{MnO}_3$, в области напряжений выше фононных и магнонных частот манганитов. Обнаружены три максимума при энергиях, соответствующих пикам в спектрах комбинационного рассеяния LaMnO_3 . Предполагается, что указанные максимумы обусловлены взаимодействием туннелирующих электронов с возбуждениями в орбитальной подсистеме деградированной области, примыкающей к интерфейсу металл–манганит.

На прикладі моттівського діелектрика LaMnO_3 обговорюються експериментальні спроби виявлення елементарних порушень орбітально-упорядкованого стану (орбітонів) в сильнокорельованих електронних системах за допомогою комбінаційного розсіювання та методу непружного розсіювання рентгенівських променів. Представлено результати досліджень диференціальної провідності гетероструктур, які утворені срібним вістрям та легованим манганітом $\text{La}_{0,57}\text{Ca}_{0,43}\text{MnO}_3$, в області напруг вище фононних та магнонних частот манганітів. Виявлено три максимуми при енергіях, що відповідають пікам у спектрах комбінаційного розсіювання LaMnO_3 . Передбачається, що зазначені максимуми обумовлені взаємодією тунелюючих електронів з порушеннями в орбітальній підсистемі деградованої області, яка пов'язана з інтерфейсом метал–манганіт.

PACS: 75.47.Lx Манганиты;
73.43.Lr Коллективные возбуждения.

Ключевые слова: сильнокоррелированные электронные системы, орбитальное упорядочение, манганиты, гетероконтакты, электронное туннелирование.

В случае вырождения электронных уровней в ионах переходных металлов в сильнокоррелированных электронных системах, какими являются, например, манганиты с колоссальным магнитосопротивлением, возмущение орбитально-упорядоченного состояния может приводить к появлению волн деформации соответствующих электронных облаков [1]. Элементарный квант

такого коллективного возбуждения в подобных соединениях называют орбитоном. К материалам, в которых должны существовать орбитоны, относится, в частности, моттовский диэлектрик LaMnO_3 с вырожденными d -состояниями в Mn^{3+} ионах [1,2]. Несмотря на большой интерес к этому новому типу квазичастиц в твердых телах, до сих пор даже сам вопрос об их наблю-

дении в LaMnO_3 остается открытым. В первом эксперименте такого рода [2] для этого были исследованы спектры комбинационного рассеяния в LaMnO_3 , которые демонстрировали ряд отчетливо выраженных пиков при энергиях как менее 100 мэВ, которые идентифицировались с колебаниями кристаллической решетки данного материала, так и выше верхней границы фононного спектра. По мнению авторов, последние пики не могут быть связаны с процессами многофононного рассеяния (см. соответствующие аргументы в [2]) и являются результатом взаимодействия фотонов с орбитальными возбуждениями электронной подсистемы. Тем не менее эти выводы были подвергнуты сомнению в публикации [3], где были выполнены измерения оптической проводимости и обнаружены подобные пики в LaMnO_3 в той же области энергий от 100 до 160 мэВ, однако на основании параллельных экспериментов с LaCoO_3 Грунингер и др. [3] пришли к выводу, что эти особенности являются все-таки следствием многофононных процессов рассеяния, с чем, впрочем, не согласились авторы исходной работы по наблюдению орбитонов в LaMnO_3 [4].

Последовавшая затем теоретическая дискуссия (см. работы [5–8] и ссылки в них) продемонстрировала существенную роль взаимодействия орбитальных и решеточных степеней свободы. Смешанный характер соответствующих орбитон-фононных возбуждений для достаточно слабой орбитон-фононной связи обсуждался в работе ван ден Бринка [5], который интерпретировал пики комбинационного спектра выше 160 мэВ в LaMnO_3 как фононные сателлиты зоны орбитонных возбуждений. Авторы работы [6] также полагают, что в случае LaMnO_3 орбитон-фононная связь достаточно слаба и может приводить только к небольшому сдвигу орбитонной зоны. Напротив, Аллен и Перебейнос [7] утверждают, что соответствующая константа орбитон-фононной связи g должна быть очень большой, и соответствующие собственные моды являются локальными возбуждениями. Наконец, в работе [8] предпринята попытка на основе простой модели изучить, при каких значениях параметра g возможно наблюдение орбитонных мод. Показано, что даже в случае промежуточных значений g должны наблюдаться отчетливые особенности, связанные с гибридизацией орбитонных и фононных состояний, причем в области энергий за границей фононного спектра [8].

Тем не менее убедительных доказательств существования орбитальных волн в сложных оксидах переходных металлов нет. В работе [9] предпринята попытка отойти от техники комбинационного рассеяния и использовать для обнаружения орбитонов иной экспериментальный метод, а именно: неупругое рассеяние рентгеновских лучей с разрешением по энергии около 6 мэВ. Однако авторам не удалось обнаружить никаких

признаков наличия орбитальных возбуждений в LaMnO_3 вплоть до 200 мэВ, а также в магнитных соединениях KCuF_3 и YTiO_3 , причем в последних двух соединениях не было зарегистрировано никаких различий в спектрах ниже и выше температуры магнитного упорядочения, хотя связь спиновых и орбитальных степеней свободы должна была быть существенной. Авторы высказывают два основных предположения — либо орбитоны находятся совсем в другой области энергий, либо чувствительность их метода является в данном случае недостаточной.

В настоящей работе нами предпринята попытка регистрации орбитонных возбуждений с помощью метода электронного туннелирования. Исходным материалом было не обсуждавшееся выше соединение LaMnO_3 , а легированный манганит состава $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$. Как было показано в нашей предыдущей работе [10], вблизи интерфейса между манганитом и острием из серебра образуется очень тонкий диэлектрический слой. Хотя его состав неизвестен, можно предположить, что он довольно близок по составу к LaMnO_3 , так как образует достаточно высокий потенциальный барьер для туннелирующих электронов и, следовательно, является хорошим изолятором. Кроме того, анализ фононных особенностей $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ в [10] показал, что мы имеем дело с наноразмерной областью на поверхности манганита, которая непосредственно примыкает к границе раздела металл–оксид. Если задачей предыдущего исследования были измерения фононных особенностей в районе энергий 100 мэВ, то в настоящей работе мы ставили своей

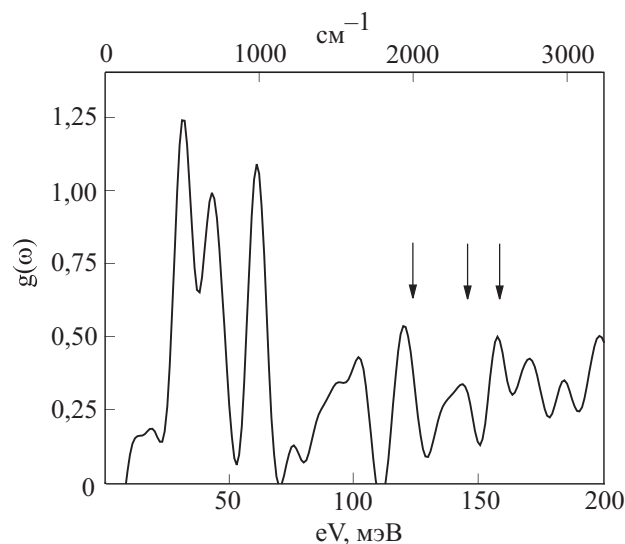


Рис. 1. Восстановленная из нечетной части дифференциальной проводимости функция электрон-бозонного взаимодействия $g(\omega)$ для гетероконтакта Ag с массивным образцом $\text{La}_{0,57}\text{Ca}_{0,43}\text{MnO}_3$. Местоположения трех основных пиков в спектре комбинационного рассеяния LaMnO_3 [2] указаны стрелками. Сопrotивление гетероконтакта $R(V=0) = R_0 = 300 \text{ Ом}$, $T_{\text{exp}} = 77 \text{ К}$.

целью детальные измерения дифференциальной проводимости контактов $\text{Ag/La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ и ее анализ при напряжениях выше 100 мВ в районе предполагаемых орбитонных особенностей [2]. Для сравнения с результатами работы [10] далее в качестве примера приведены экспериментальные данные для того же соединения $\text{La}_{0,57}\text{Ca}_{0,43}\text{MnO}_3$. При этом следует заметить, что и в других случаях наблюдавшиеся выше 100 мэВ особенности были подобными.

Способ изготовления образцов, методика измерений и процедура восстановления спектров электрон-бозонных взаимодействий $g(\omega)$ из нечетной части дифференциальной проводимости контактов на основе исследованных манганитов описаны в [10,11]. На рис. 1 приведена функция $g(\omega)$ в диапазоне энергий до 200 мэВ, восстановленная из результатов туннельных измерений при 77 К. Отчетливо видны дополнительные максимумы выше 100 мэВ, которые не могут быть непосредственно связаны с фоннными либо магнными возбуждениями в манганите, так как находятся за границами их спектров (см. соответствующие ссылки в статье [10]). Местоположения трех основных пиков в интервале от 120 до 160 мэВ очень хорошо согласуются с аналогичными тремя особенностями в спектре комбинационного рассеяния LaMnO_3 с энергиями 125, 145 и 160 мэВ [2] и, соответственно, могут быть объяснены взаимодействием туннелирующих электронов с возбуждениями в орбитальной подсистеме того наноразмерного участка манганита, который находится в непосредственной близости от интерфейса металл–манганит. Что касается более слабых максимумов при энергиях выше 160 мэВ, то они, по-видимому, являются фоннными сателлитами зоны орбитонных возбуждений, предсказанными в работе [5]. Подчеркнем особо, что, на наш взгляд, указанные выше особенности вряд ли могут быть обусловлены многофоннными процессами, поскольку даже в туннельных характеристиках таких сильно связанных сверхпроводников как свинец последние проявляют себя в виде довольно слабых нелинейностей [12]. Наконец, в том случае, если в исследованных манганитах существует очень сильное электрон-фоннное взаимодействие с определенной модой в колебательном спектре решетки (это, в принципе, возможно), то тогда наблюдаемые особенности должны быть гармониками одной и той же частоты, что не наблюдается в наших экспериментах.

В заключение отметим тот факт, что наблюдение предполагаемых волн орбитальной деформации в орбитально-упорядоченной электронной подсистеме манганитов с помощью эффекта электронного туннелирования открывает новые возможности для исследования данного явления при изменении внешних условий, например, магнитного поля, что позволит

исследовать взаимодействие орбитонов с другими квазичастичными возбуждениями в сильнокоррелированных электронных средах.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Украины (договор Ф25/147-2008).

Авторы признательны Ю.А. Колесниченко за полезные обсуждения и ценные замечания.

1. Y. Tokura and N. Nagaosa, *Science* **288**, 462 (2000).
2. E. Saitoh, S. Okamoto, K.T. Takahashi, K. Tobe, K. Yamamoto, T. Kimura, S. Ishihara, S. Maekawa, and Y. Tokura, *Nature* **410**, 180 (2001).
3. M. Grüninger, R. Ruckamp, M. Windt, P. Reutler, C. Zobel, T. Lorenz, A. Freimuth, and A. Revcolevschi, *Nature* **418**, 39 (2002).
4. E. Saitoh, S. Okamoto, K.T. Takahashi, K. Tobe, K. Yamamoto, T. Kimura, S. Ishihara, S. Maekawa, and Y. Tokura, *Nature* **418**, 40 (2002).
5. J. van den Brink, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 217202 (2001).
6. S. Ishihara, Y. Murakami, T. Inami, K. Ishii, J. Mizuki, K. Hirota, S. Maekawa, and Y. Endoh, *New J. Phys.* **7**, 119 (2005).
7. P.B. Allen and V. Perebeinos, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4828 (1999).
8. K.P. Schmidt, M. Grüninger, and G.S. Uhrig, *Phys. Rev.* **B76**, 075108 (2007).
9. Y. Tanaka, A.Q.R. Baron, Y.-J. Kim, K.J. Thomas, J.P. Hill, Z. Honda, F. Iga, S. Tsutsui, D. Ishikawa, and C.S. Nelson, *New J. Phys.* **6**, 161 (2004).
10. В.М. Свистунов, В.Н. Леонова, М.А. Белоголовский, М.А. Оболенский, Т. Endo, H. Szymczak, *ФHT* **35**, 320 (2009) [*Low Temp. Phys.* **35**, 243 (2009)].
11. V.M. Svistunov, V.N. Leonova, M.A. Belogolovskii, Yu.V. Medvedev, Yu.F. Revenko, Y. M. Strzhemechny, D. Hui, and T. Endo, *Modern Phys. Lett.* **B22**, 2811 (2008).
12. J.M. Rowell, in: *Tunneling Phenomena in Solids*, L. Burstein and S. Lundquist (eds.), Plenum Press, New York (1969), p. 276.

Possible observation of orbital excitations in manganites with a tunneling spectroscopy method

V.M. Svistunov, V.N. Leonova,
M.A. Belogolovskii, and Yu.F. Revenko

Referring to the Mott dielectric LaMnO_3 , we discuss experimental efforts to reveal elementary excitations in an orbitally-ordered state (orbitons) of strong-correlated electron systems using Raman scattering and x-ray inelastic scattering techniques. Results of our investigations of the differential con-

ductance of heterostructures formed by a silver tip and a doped manganite $\text{La}_{0.57}\text{Ca}_{0.43}\text{MnO}_3$ in the voltage-bias region above manganite phonon and magnon frequencies are presented. We have observed three maxima at energies corresponding to the peaks in the Raman spectra of LaMnO_3 . It is supposed that the maxima are due to the interaction of tunneling electrons with excitations in the orbital subsystem of a degraded region nearby the metal–manganite interface.

PACS: 75.47.Lx Manganites;
73.43.Lp Collective excitations.

Keywords: strong-correlated electron systems, orbital ordering, manganites, heterocontacts, electron tunneling.