

Кинетические свойства и магнитная восприимчивость $\text{La}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{MnO}_3$ под гидростатическим давлением

Е. С. Ицкевич, В. Ф. Крайденев, А. Е. Петрова, В. А. Вентцель, А. В. Руднев

*Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина РАН
г. Троицк Московской области, 142090, Россия*

E-mail: apetrova@ns.hppi.troitsk.ru

Статья поступила в редакцию 10 июня 2002 г., после переработки 8 июля 2002 г.

Измерены магнитная восприимчивость χ , термоэдс α и электросопротивление ρ манганата $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ с $x = 0,1$. Измерения проведены на монокристаллах в интервале температур 80–300 К и до давлений 10 кбар. Термоэдс $\alpha(T)$ положительна, имеет куполообразную форму и уменьшается с ростом давления. На кривых $\chi(T)$ и $\rho(T)$ наблюдались особенности при $T \approx 95, 120$ и 135 К. Особенность при $T_{OO} \approx 95$ К связывается с орбитальным упорядочением, а при $T_{CA} \approx 135$ К — с переходом наклонный антиферромагнетик \leftrightarrow парамагнетик. Обсуждается физическая причина особенности при $T_M = 120$ К. Температуры переходов растут с увеличением давления со скоростью $\partial T_{CA}/\partial P = 0,43$ К/кбар и $\partial T_M/\partial P = 0,57$ К/кбар. Небольшая особенность обнаружена на зависимостях $\rho(T)$ и $\alpha(T)$ при $T = 225\text{--}235$ К.

Виміряно магнітну сприйнятливості χ , термоерс α та електроопір ρ манганату $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ з $x = 0,1$. Виміри проведено на монокристалах в інтервалі температур 80–300 К та до тисків 10 кбар. Термоерс $\alpha(T)$ є позитивною, має куполоподібну форму та зменшується з ростом тиску. На кривих $\chi(T)$ та $\rho(T)$ спостерігалися особливості при $T \approx 95, 120$ та 135 К. Особливість при $T_{OO} \approx 95$ К пов'язується з орбітальним впорядкуванням, а при $T_{CA} \approx 135$ К — з переходом похилій антиферомагнетик \leftrightarrow парамагнетик. Обговорюється фізична причина особливості при $T_M = 120$ К. Температури переходів зростають із збільшенням тиску зі швидкістю $\partial T_{CA}/\partial P = 0,43$ К/кбар та $\partial T_M/\partial P = 0,57$ К/кбар. Невелика особливість спостерігалася на залежностях $\rho(T)$ та $\alpha(T)$ при $T = 225\text{--}235$ К.

PACS: 75.30.-m, 62.50.+p

Интерес к сложным оксидам Mn с перовскитной кристаллической структурой, обладающим колоссальным магнитным сопротивлением (КМС), рядом интересных и необычных физических свойств (зарядовое и орбитальное упорядочение, квантовые фазовые переходы), обусловлен возможностью их практического применения. Подобную кристаллическую структуру имеют и ВТСП оксиды меди. Основной момент, сближающий манганаты с купратами, заключается в механизме легирования двухвалентными металлами, в частности La, заменяющими трехвалентный редкоземельный ион, благодаря чему система приобретает новые свойства [1]. По аналогии с ВТСП можно считать, что характерной особенностью слоистых перовскитных манганатов является двумерный характер проводимости в плоскости

MnO_2 и сильное взаимодействие двумерных носителей заряда с оптическими фононами.

Результаты различных экспериментальных работ по этим материалам во многом не совпадают. Это объясняется сильной зависимостью физических параметров металлооксидов от степени легирования, стехиометрии и структурных дефектов.

Интерес к соединению ряда $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ с $x = 0,1$ продиктован тем, что данная концентрация Sr соответствует нижнему краю области концентраций $x = 0,1\text{--}0,15$, в которой основное низкотемпературное состояние — ферромагнитный изолятор (ФМИ). При $0 < x < 0,1$ реализуется наклонный антиферромагнетизм (НАФ). На другом конце этой области при $x \geq 0,16$ основным состоянием является ферромагнитный металл (ФММ). Согласно фазовой диаграмме $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ [2] и данным работ

[3–5], в образце с $x = 0,1$ при понижении температуры происходят три фазовых перехода.

1. При $T = T_s = 320$ К наблюдается структурный переход орторомбической фазы O в орторомбическую фазу с ян-теллеровскими (ЯТ) искажениями O' ($O \rightarrow O'$). При этом образец остается в состоянии парамагнитного изолятора (ПМИ).

2. При $T = T_{CA} \approx 150$ К происходит магнитный переход из парамагнитной фазы в фазу наклонного антиферромагнетизма, причем состояние НАФ во многих работах [6–10] признано неустойчивым и сопровождается фазовым разделением на ферромагнитные поляроны (капли) в АФ матрице.

3. При $T = T_{OO} \approx 95$ – 105 К наблюдается структурный переход в псевдокубическую фазу O^* ($O' \rightarrow O^*$) с одновременным магнитным переходом в состояние ФМИ. Это сопровождается новым орбитальным, а возможно, и зарядовым упорядочением, обусловленным суперобменом.

Физические свойства $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ изучали во многих работах: магнитную восприимчивость χ в [2,5,11,12], электросопротивление ρ в [2–4], намагниченность M в [4,11–13], проводимость $\sigma(\omega)$ и диэлектрическую проницаемость $\epsilon(\omega)$ в субмиллиметровом и оптическом диапазонах частот в [11,12,14–16], скорость звука V_t в [17].

Важную роль в понимании механизмов, определяющих поведение манганатов, играют исследования под давлением. Единственной известной нам работой, проведенной на $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ под давлением до 8,8 кбар, является работа [4]. Полученные в ней на основании измерения электросопротивления под давлением сдвиги температур фазовых переходов 2,3 К/кбар для T_{CA} (T_C) и 2,5 К/кбар для T_{OO} близки найденным нами в [18] для образцов $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ с более высоким содержанием Sr ($x = 0,125$). Поскольку образец с $x = 0,1$ находится на границе с АФ областью, подобное совпадение кажется странным и нуждается в дополнительной проверке. Цель настоящей работы — получение дополнительной информации о механизме магнитных фазовых переходов при сравнительном исследовании кинетических и магнитных свойств $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ под давлением. Для этого были проведены измерения магнитной восприимчивости χ , электросопротивления ρ и термоэдс α в диапазоне температур 80–300 К и гидростатических давлений до 10 кбар.

Образцы

Монокристаллические образцы $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ с $x = 0,1$ вырезаны из цилиндрического бруска, ось которого совпадает с направлением оси [100] кристалла, выращенного методом плавающей зоны с радиационным нагревом [19].

Магнитная восприимчивость

Магнитную восприимчивость χ измеряли модуляционным методом на переменном токе частотой 19 Гц и с амплитудой магнитного поля ≈ 10 Э [20]. Модуляционную и приемную катушки помещали внутри камеры высокого давления. Давление при охлаждении со скоростью 0,3–0,5 К/мин измеряли манганиновым манометром во всем диапазоне температур.

На рис. 1 представлены температурные зависимости магнитной восприимчивости при разных давлениях, а на вставке — зависимость $\chi(T)$ при атмосферном давлении. Рост восприимчивости при охлаждении от комнатной температуры начинается при $T \sim 160$ К, зависимость $\chi(T)$ имеет два максимума при температурах 135 и 119 К. Первый максимум (T_{CA}) можно соотнести с фазовым переходом парамагнитный изолятор \rightarrow наклонный антиферромагнетик, а второй (T_M) может быть обусловлен разными причинами, которые будут рассмотрены ниже. Вблизи 100 К наблюдается минимум с последующим ростом и точкой перегиба при 95 К. Это область орбитального упорядочения (T_{OO}), а также структурного ($O' \rightarrow O^*$) и магнитного перехода НАФ \rightarrow ФМИ. С ростом давления все особые точки смещаются в область более высоких температур.

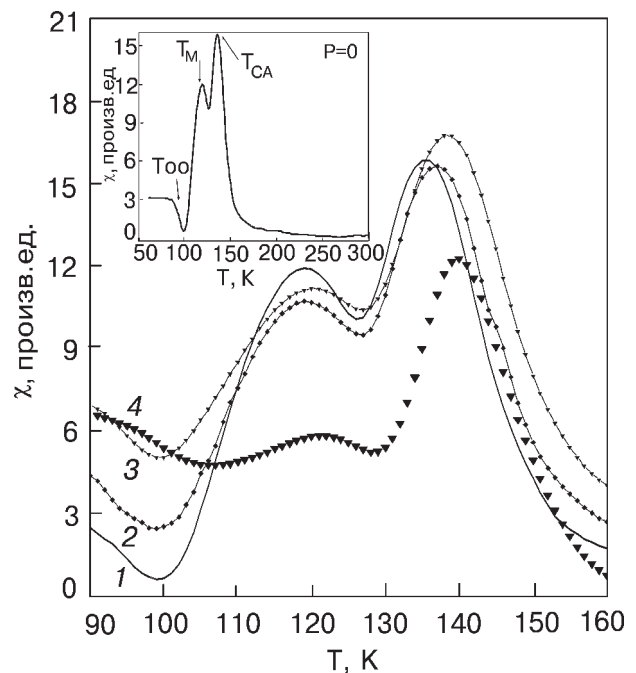


Рис. 1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости $La_{0,9}Sr_{0,1}MnO_3$ при давлениях P , кбар: 0 (1); 4,3 (2); 6,2 (3); 8 (4). Указаны средние значения давлений для интервала температур, соответствующего фазовым переходам. На вставке изображена зависимость $\chi(T)$ при $P = 0$.

Электросопротивление

Образец для измерения электросопротивления представлял собой цилиндр диаметром 5 мм и высотой 7 мм. Измерения ρ проводили обычным четырехконтактным методом. Контакты изготавливали с помощью Ag-пасты. Расстояние между потенциальными выводами составляло 3,5 мм. Измерительный ток не превышал 100 мкА. Удельное сопротивление при комнатной температуре и атмосферном давлении $\rho_{300} = 4,0$ Ом·см.

Для создания гидростатических давлений использовали стальную камеру фиксированного давления с диаметром внутреннего канала 12 мм [21]. В качестве среды, передающей давление, использовали силиконовую жидкость ПЭС-1.

На рис. 2 в логарифмическом масштабе приведены зависимости $\rho(T)$ при разных давлениях. Участки с $d\rho/dT > 0$ отсутствуют. Однако явно видна тенденция появления подобных участков с повышением давления. За исключением области $T \approx 100\text{--}140$ К кривые $\ln \rho(T)$ аппроксимируются прямыми линиями с изломом в характерных точках фазовых переходов: $T \approx 100, 120, 136$ и 225 К. С увеличением давления сопротивление ρ уменьшается, а точки излома смещаются в сторону больших температур. С этими характерными точками в порядке понижения температуры мы связываем следующие фазовые переходы: 1) $T_p \approx 225\text{--}235$ К — переход в парамагнитной изоляторной фазе с решеткой O' , возможно, связан с диффузией вакансий и упорядочением структуры; 2) $T_{CA} \approx 136$ К — парамагнитный изолятор \rightarrow наклонный антиферромагнетик с сохранением неизменной искаженной решетки O' и состояния изолятора; не исключается и фазовое расслоение на ферромагнитные поляроны

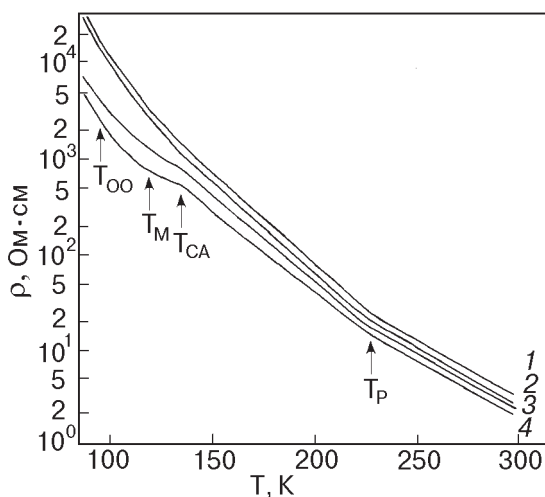


Рис. 2. Температурная зависимость электросопротивления $\text{La}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{MnO}_3$ при давлениях P кбар: 0 (1); 5,3 (2); 7,7 (3); 9,9 (4). Значения давлений соответствуют комнатной температуре.

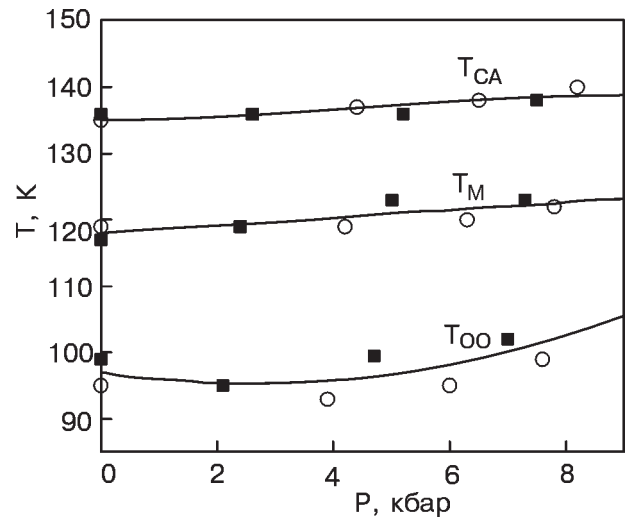


Рис. 3. Зависимость критических температур T_{CA} , T_M , T_{OO} от давления для $\text{La}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{MnO}_3$, полученная из измерений электросопротивления (■) и магнитной восприимчивости (○). Значения давлений приведены с учетом сброса давления при понижении температуры.

(ферроны) и АФ матрицу; 3) $T_M \approx 120$ К — фазовый переход, обусловленный либо «замораживанием» поляронов и образованием спинового стекла [5], либо изменением параметров решетки; 4) $T_{OO} \approx 100$ К — структурный переход $O' \rightarrow O^*$, сопровождаемый магнитным переходом в состояние ферромагнитного изолятора с орбитальным упорядочением и возможным зарядовым упорядочением типа приведенного в [22].

На рис. 3 представлены зависимости температур фазовых переходов T_{CA} , T_M и T_{OO} от давления, полученные из измерений электросопротивления, а также из измерений магнитной восприимчивости. Усредненные зависимости от давления из измерений ρ и χ характеризуются $\partial T_{CA}/\partial P = 0,43$ К/кбар и $\partial T_M/\partial P = 0,57$ К/кбар.

Для контроля стабильности электросопротивления во времени при давлении 5,3 кбар были измерены две зависимости $\rho(T)$ с интервалом 15 дней. Обнаружено, что выдержка под давлением понижает ρ . Наибольшее уменьшение ρ (свыше 20%) наблюдалось в области комнатных температур и сводилось на нет при $T < 130$ К.

Термоэдс

Измерения термоэдс проводили в динамическом режиме при охлаждении и отогреве камеры высокого давления по модифицированной методике, изложенной в работе [23] и успешно применявшейся ранее для измерения α в металлах, ВТСП и манганатах. На рис. 4 представлены температурные зависимости термоэдс α при разных давлениях.

Обсуждение результатов

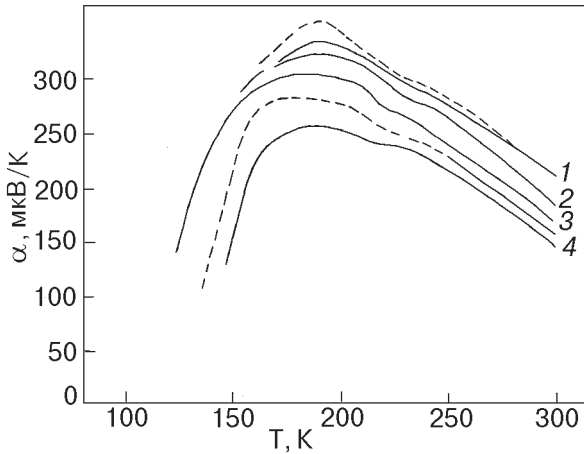


Рис. 4. Температурная зависимость термоэдс $\text{La}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{MnO}_3$ при давлениях P , кбар: 0 (1); 5,3 (2); 7,7 (3); 9,9 (4). Сплошные линии — охлаждение, пунктирные — отогрев. Давление соответствует комнатной температуре.

Можно отметить некоторые черты, характерные для всех кривых.

— При всех давлениях кривые имеют куполообразную форму с температурой максимума $T_{\text{max}} \approx 185\text{--}190$ К.

— С ростом давления термоэдс падает: в точке максимума α уменьшается от 350 мкВ/К при $P = 0$ до 250 мкВ/К при $P \approx 10$ кбар.

— При $T > T_{\text{max}}$ термоэдс уменьшается почти линейно до комнатной температуры со скоростью $\approx 1,3$ мкВ/К².

— При $T < T_{\text{max}}$ с уменьшением температуры α уменьшается очень резко. Измерение термоэдс в этой области затруднено вследствие высокого электросопротивления образца и ограничено снизу $T \approx 120\text{--}150$ К.

— При всех давлениях в области температур 230–240 К наблюдалась такая же особенность, как и на кривых $\ln \rho(T)$.

— Значения α в цикле охлаждение — нагрев показали существенный гистерезис, особенно заметный при $T \leq 220$ К. Повторное охлаждение от комнатной температуры дает значения термоэдс выше предыдущего на $\sim 10\%$. Это видно на кривых $\alpha(T)$ на рис. 4 для давлений $P = 0$ и ≈ 10 кбар. При вторичном охлаждении значения α повторяют значения при отогреве.

— Значение α при $T = 300$ К при выдержке под давлением 10 кбар в течение 7 дней уменьшилось на $\sim 20\%$.

Влияние давления на манганиты можно свести к трем основным факторам:

1) давление уменьшает расстояние между атомами $d_{\text{Mn-O}}$, что увеличивает перекрытие орбит, вероятность перескока t_{ij} и вызывает уширение зоны проводимости W ($\partial d_{\text{Mn-O}}/\partial P < 0$; $\partial W/\partial P > 0$) [24,25];

2) давление увеличивает геометрический угол θ в цепочке Mn–O–Mn [24,25], что опять же приводит к увеличению параметра t_{ij} и уширению зоны проводимости $W \sim |\cos \theta|/d^{3,5}$ ($\partial \theta/\partial P > 0$; $\partial W/\partial P > 0$);

3) давление уменьшает величину коэффициента электрон-фононной связи α_0 , обусловленной ЯТ поляронами ($\partial \alpha_0/\partial P < 0$; $\partial \ln T_C/\partial P > 0$) [26,27], где T_C — температура Кюри.

В работах [24,27] изучен относительный вклад этих факторов в изменение температуры Кюри T_C манганатов под давлением. На основе экспериментальных данных по относительному изменению под давлением $d_{\text{Mn-O}}$ ($k_d = -2,32 \cdot 10^{-5}$ кбар⁻¹) и угла θ ($k_\theta = (8,5\text{--}16) \cdot 10^{-5}$ кбар⁻¹), полученных в работе [24] на большом числе окислов $\text{L}_{2/3}\text{A}_{1/3}\text{MnO}_3$ ($L = \text{La, Pr}$; $A = \text{Ca, Sr, Ba}$), в работе [27] была сделана теоретическая оценка $\partial \ln T_C/\partial P = \partial \ln W/\partial P \approx 4 \cdot 10^{-4}$ кбар⁻¹. Однако эксперименты на манганатах $(\text{La,Y})_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [27], $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ с $x = 0,125$ [18,28] и $x = 0,1$ [4] дали среднее значение $\partial T_C/\partial P \approx 2$ К/кбар и, следовательно, $\partial \ln T_C/\partial P \approx 2 \cdot 10^{-2}$ кбар⁻¹. Это более чем на порядок выше теоретической оценки, учитывающей зависимость от давления только параметров $d_{\text{Mn-O}}$ и θ . Поэтому, как предложено в работе [27], необходимо учитывать третий фактор, т.е. электрон-решеточную (поляронную) связь и ее зависимость от давления. Снятие вырождения основного состояния e_g электронов за счет эффекта Яна–Теллера приводит к локальным деформациям решетки вокруг этих электронов и образованию так называемых ЯТ поляронов. Эффективная зона проводимости этих поляронов имеет вид

$$W_{\text{eff}} = W \exp(-2\alpha_0). \tag{1}$$

В случае сильной хундовской связи ($J_H \gg W_{\text{eff}}$) $T_C \sim W_{\text{eff}}$ и

$$\partial \ln T_C/\partial P = \partial \ln W/\partial P - 2\partial \alpha_0/\partial P. \tag{2}$$

По оценкам [27], $\partial \alpha_0/\partial P = -(1\text{--}2) \cdot 10^2$ кбар⁻¹. Таким образом, вклад изменения энергии поляронной связи в увеличение под давлением температуры T_C на порядок больше, чем вклады, обусловленные изменением расстояния $d_{\text{Mn-O}}$ и угла θ ($\approx 4 \cdot 10^{-4}$ кбар⁻¹). Действуя в одну сторону, эти три фактора обеспечивают хорошую корреляцию расчетных оценок и

экспериментальных результатов для зависимости $\partial \ln T_C / \partial P$ ($\sim 10^{-2}$ кбар $^{-1}$).

Как следует из [18,28], в образце $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ с $x = 0,125$ характеристические температуры T_C , T_{OO} (T_{CO}), T_M изменяются под давлением с близкими скоростями ~ 2 К/кбар. Это свидетельствует об одинаковой физической причине, лежащей в основе этих изменений. Подобный одинаковый порядок изменения характеристических температур (T_{char}) T_{CA} , T_{OO} , T_M (0,4–0,6 К/кбар) наблюдается и для образца $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ с $x = 0,1$, только в 4–5 раз меньше, чем для образца с $x = 0,125$. Это приводит к значению $\partial \ln T_{\text{char}} / \partial P \approx 5 \cdot 10^{-3}$ кбар $^{-1}$ в исследуемых образцах, что, на наш взгляд, можно объяснить двумя причинами. С уменьшением x в системе $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ величина α_0 возрастает от 0,07 для $x = 0,15$ до $\alpha_0 = 0,19$ при $x = 0,1$ [26]. Это обусловлено ростом ЯТ искажений решетки с уменьшением x . Можно предположить сильное падение $\partial \alpha_0 / \partial P$ при малых x . Но нам кажется более реальным предположение, высказанное в [25], что низкая величина $\partial T_N / \partial P \sim 0,3$ К/кбар (T_N — температура Нееля), наблюдаемая в LaMnO_3 вплоть до 60 кбар, объясняется сильной локализацией носителей и отсутствием даже при таком давлении двойного обмена. Низкие значения производных $\partial T_N / \partial P$ получены и для других АФ изоляторов: CaMnO_3 (0,41 К/кбар), YCrO_3 (0,38 К/кбар), LaTiO_3 (0,23 К/кбар). Но с легированием и появлением двойного обмена и ферромагнетизма величины производных $\partial T_C / \partial P$ в манганатах возрастают до 1,5–2 К/кбар. Очевидно, это связано с сильной зависимостью двойного обмена от давления. В изученных нами манганатах, находящихся на границе АФ области, двойной обмен еще очень мал.

Заметное различие в значениях характеристических температур и их производных по давлению, полученных в настоящей работе и в [4], а также завышенное значение ρ_{300} по сравнению с [3] потребовало проверить стехиометрический состав исследованных образцов. Проведенный иодометрический анализ образцов на содержание кислорода дал значение $2,995 \pm 0,005$ атомов О на атом Мп.

Расхождения в температурном ходе кинетических параметров и температур фазовых переходов у разных исследователей для образцов одинакового состава обусловлен разными условиями химического синтеза, определяющего стехиометрический состав этих образцов [29]. При малых уровнях легирования могут образоваться большие скопления вакансий в узлах La, Sr и/или в узлах Мп. В первом случае увеличится концентрация дырок, что будет способствовать двойному обмену и аналогично увеличению концентрации Sr. Во втором случае в вакантных узлах металла могут локализоваться за-

ряды, которые вызовут смещение атомов кислорода, что подобно увеличению ЯТ искажений решетки. Из термогравиметрического анализа, проведенного в [29] на образцах с $x = 0,1$, не имеющих, как и у нас, участка с $\partial \rho / \partial T > 0$ на кривой $\ln \rho(T)$, получено $3,002 \pm 0,002$ атомов кислорода на атом Мп. Поскольку в этих манганатах содержание кислорода не может быть больше 3, то эта цифра говорит о почти полном отсутствии вакансий в узлах La, Sr и Мп. Поэтому мы пришли к заключению, что расхождение данных обусловлено либо наличием в наших образцах дислокаций, либо несоблюдением стехиометрического состава и наличием вакансий в кристаллах других авторов.

Как показали исследования $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ в субмиллиметровом диапазоне частот 100–1100 ГГц [15], для значений $x = 0,1$ –0,175 в диапазоне температур 10–300 К перенос заряда (электропроводность) осуществляется в основном локализованными носителями даже в тех областях, где $d\rho/dT > 0$. Как правило, выполнение этого неравенства свидетельствует о наличии металлической проводимости. Оказалось, что носители зарядов в этом диапазоне x и температур еще сильно связаны с решеткой. Эта сильная локализация носителей должна непременно проявить себя и в температурной зависимости $\rho(T)$, полученной на постоянном токе. Во всем диапазоне температур при всех давлениях мы не обнаружили участка с падением сопротивления, который описан в работах [2–4], а наблюдали лишь тенденцию к появлению такого участка при $T < T_{CA}$ с увеличением давления (рис. 2). Для выяснения природы электропроводности и степени локализации носителей заряда были построены зависимости $\ln \rho = f(1/T^{1/4})$ и $\ln \rho = f(1/T)$ (рис. 5) для максимального давления 10 кбар. В случае прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка

$$\rho = \text{const} \cdot \exp [(T_0/T)^{1/4}], \quad (3)$$

где T_0 — характеристическая температура.

Если же термически активированные прыжки происходят только между ближайшими соседями (проводимость Миллера–Абрахамса) или же осуществляется термическое возбуждение носителей с локализованного уровня Ферми на край подвижности, то

$$\rho = \text{const} \cdot \exp (E/T), \quad (4)$$

где E — разность энергий двух состояний [30]. Первый тип зависимости представлен на рис. 5, а. На кривой наблюдаются два прямолинейных участка: один в низкотемпературной (НТ) области ФМ изолятора ($T \approx 90$ –110 К) и другой в высокотемпературной (ВТ) области ПМ изолятора ($T \approx$

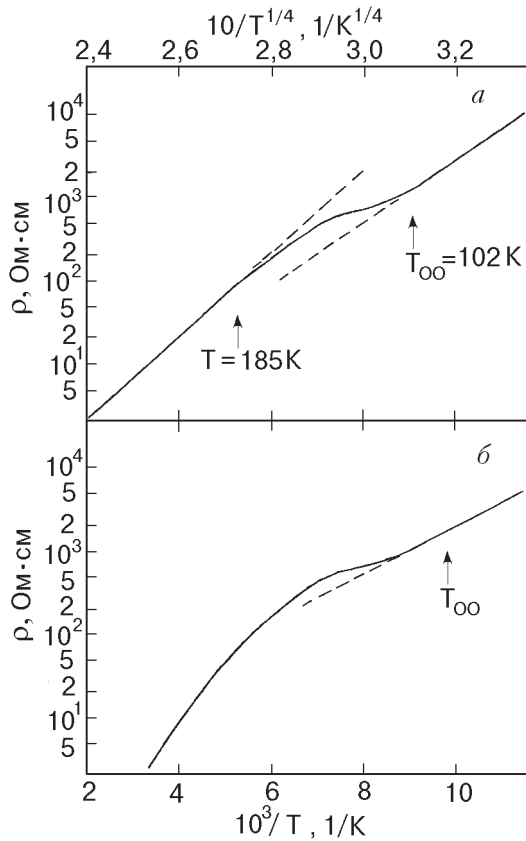


Рис. 5. Температурная зависимость электросопротивления $\text{La}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{MnO}_3$ при давлении $P = 9,9$ кбар: $\rho = f(1/T^{1/4})$ (а); $\rho = f(1/T)$ (б). Давление соответствует комнатной температуре.

$\approx 185\text{--}300$ К). Это свидетельствует о прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка в данных температурных областях. На рис. 5,б показан второй тип зависимости $\ln \rho = f(1/T)$. В высокотемпературной области зависимость явно нелинейна, но в низкотемпературной наблюдается хорошая линейная аппроксимация. Однако термическое возбуждение носителей более вероятно в ВТ области, чем в НТ. Возможно, что линейная аппроксимация объясняется малыми размерами НТ области (~ 15 К). К тому же начало линейной зависимости (~ 108 К) сдвинуто по отношению к температуре T_{00} на ~ 6 К. Все эти факторы заставляют отказаться от присутствия термического возбуждения в пользу механизма перескока с переменной длиной прыжка.

Отклонение зависимости электросопротивления от формулы (3) в диапазоне $100\text{--}185$ К интересно сопоставить с температурой достижения максимума термоэдс $T_{\max} \approx 185\text{--}190$ К на кривой зависимости $\alpha(T)$. В пределах точности эксперимента обе характерные точки, T_{\max} и граница ВТ области, почти не зависят от давления. При понижении температуры ниже ~ 185 К происходит резкое уменьшение термоэдс и замедле-

ние скорости увеличения электросопротивления. Это указывает на то, что при этой температуре вступает в силу новый механизм, увеличивающий проводимость. Мы склонны объяснять это появлением ФМ кластеров и двойного обмена. Этот механизм будет присутствовать при дальнейшем понижении температуры до T_{00} , когда образец полностью переходит в орбитально упорядоченное состояние ФМИ.

Из графиков $\ln \rho = f(1/T^{1/4})$ для всех давлений был определен параметр T_0 . Значения T_0 при атмосферном давлении для НТ ($T_0^{(lt)} = 1,3 \cdot 10^8$ К) и ВТ ($T_0^{(ht)} = 2,32 \cdot 10^8$ К) областей коррелируют с данными работ [2,31]. Характеристическая температура T_0 , определяющая наклон прямых на рис. 5,а, зависит от состояния образца. В высокотемпературной части графика образец находится в состоянии ПМИ, а в низкотемпературной — в состоянии ФМИ. То, что $T_0^{(lt)} < T_0^{(ht)}$, по-видимому, объясняется и тем, что в состоянии ФМИ рассеяние носителей на упорядоченных спинах меньше, чем на неупорядоченных в состоянии ПМИ. Зависимость температуры T_0 от давления для образцов с $x = 0,1$ в НТ и ВТ областях носит нерегулярный характер, но в среднем с увеличением давления T_0 уменьшается.

Относительно аномалии ρ и χ при температуре $T_M \approx 120$ К пока нет единого мнения. В работе [5] ответственным за аномалию считали образование спинового стекла. Это заключение было сделано на основе наблюдения сдвига максимума магнитной восприимчивости при 120 К в сторону больших температур при увеличении частоты модулирующего поля. Мы проделали подобный эксперимент, изменяя частоту модуляции от 19 Гц до 10 кГц, и не обнаружили подобного изменения. Мы склонны считать, что наблюдаемая в измерениях ρ и χ точка фазового перехода $T_M \approx 120$ К связана не с образованием спинового стекла [5], а с переходом от смеси двух фаз O' и O^* , которые, согласно нейтронографическим исследованиям [29], сосуществуют в узком интервале температур $120\text{--}140$ К, к одной структурной фазе O^* .

Общий вид температурной зависимости термоэдс $\alpha(T)$ для $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ с $x = 0,1$ встречался ранее для других перовскитных структур. Подобный характер зависимости $\alpha(T)$ с широким максимумом (горбом) в области $160\text{--}190$ К наблюдался нами ранее в иттриевых и ртутных ВТСП купратах в нормальном состоянии. В соединении $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,4}$ $T_{\max} \approx 190$ К [32]. В ртутных купратах с увеличением числа плоскостей CuO_2 T_{\max} увеличивается от 165 К для Hg-1223 до 195 К для Hg-1245 [33]. Общим для манганатов и ВТСП купратов является перовскитная структура и близкие оптические частоты фононных спектров: $160\text{--}600$ cm^{-1} . Попытка объяс-

нить появление широкого максимума на кривых $\alpha(T)$ в ВТСП купратах сильным электрон-решеточным взаимодействием и образованием вибронов (теория коррелированного полярона) была сделана в [34]. Однако реальное изменение T_c , α_{\max} и T_{\max} под давлением в Y-купратах далеко не всегда совпадает с теорией даже по знаку. Но большое сходство поведения $\alpha(T)$ в ВТСП купратах и манганатах, когда в тех и других носителей заряда мало и они сильно локализованы, заставляет предполагать, что объяснение этому лежит все же в сильном электрон-решеточном взаимодействии.

Аномалия, обнаруженная нами в опытах по электросопротивлению и термоэдс в области 220–235 К, наблюдалась и в измерениях по распространению звука с частотой 770 МГц в образцах $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ с $x = 0,175$ [35]. Поскольку в исследованном нами случае переход происходил в фазе парамагнитного изолятора, а в работе [35] в фазе ферромагнитного металла, то, вероятнее всего, этот переход связан со структурными изменениями, например, с уменьшением ЯТ деформаций решетки, а не с магнитными превращениями.

Выводы

1. На температурных зависимостях электросопротивления и магнитной восприимчивости образца $\text{La}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{MnO}_3$ в области температур 90–300 К и при давлениях до 10 кбар наблюдали особенности при $T \approx 100, 120$ и 135 К, идентифицируемые как точки фазовых переходов. На температурных зависимостях электросопротивления и термоэдс обнаружена аномалия при $T \approx 220$ К.

2. В диапазоне температур 90–300 К электросопротивление имеет полупроводниковый ход.

3. В областях температур 90–110 и 185–300 К проводимость обусловлена прыжками носителей с переменной длиной прыжка.

4. Термоэдс в измеренном диапазоне температур 150–300 К положительна и имеет куполообразную форму с максимумом при температуре $T_{\max} \approx 195$ К. Абсолютная величина α в этом интервале температур с ростом давления уменьшается ($\partial\alpha/\partial P < 0$).

5. С ростом давления все точки фазовых переходов, за исключением температуры T_p , смещаются в сторону больших температур со скоростью $\partial T_{CA}/\partial P = 0,43$ К/кбар и $\partial T_M/\partial P = 0,57$ К/кбар. Такая малая скорость, вероятно, свидетельствует о слабой роли двойного обмена в исследованных образцах. Температура T_p , находящаяся в области 225–250 К, по-видимому, связана с неким структурным переходом, и с ростом давления сдвигается в сторону меньших температур.

6. Мы не получили доказательств, что аномалия, наблюдаемая на зависимостях $\rho(T)$ и $\chi(T)$ при $T \approx 120$ К, обусловлена образованием спинового стекла.

Авторы благодарят А. М. Абакумова за проведение иодометрического анализа исследованных образцов.

Работа поддержана грантом РФФИ №00-02-16019, программой РФ по ВТСП и грантом INTAS (проект № 99-1136).

1. Л. П. Горьков, *УФН* **168**, 6, 665 (1998).
2. M. Paraskevopoulos, F. Mayr, J. Hemberger, A. Loidl, R. Heichele, D. Maurer, V. Muller, A. A. Muchin, and A. M. Balbashov, *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, 3993 (2000).
3. A. Urushibara, Y. Moritomo, T. Arima, A. Asamitsu, G. Kido, and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B51**, 14103 (1995).
4. R. Senis, V. Laykhin, B. Martinez, J. Fontcuberta, X. Obradors, A. A. Arsenov, and Y. M. Mukovskii, *Phys. Rev.* **B57**, 14680 (1998).
5. V. Skumryev, J. Nogues, J. S. Munoz, B. Martinez, R. Senis, J. Fontcuberta, L. Pinsard, A. Revcolevschi, and Y. M. Mukovskii, *Phys. Rev.* **B62**, 3879 (2000).
6. Э. Л. Нагаев, *Письма в ЖЭТФ* **6**, 484 (1967); *ЖЭТФ* **54**, 228 (1968).
7. Э. Л. Нагаев, *Письма в ЖЭТФ* **16**, 558 (1972); В. А. Кашин, Э. Л. Нагаев, *ЖЭТФ* **66**, 2105 (1974).
8. Э. Л. Нагаев, *УФН* **166**, 833 (1996).
9. A. Moreo, S. Yunoki, and E. Dagotto, *Science* **283**, 2034 (1999).
10. М. Ю. Каган, К. И. Кугель, *УФН* **171**, 577 (2001).
11. А. А. Мухин, В. Ю. Иванов, В. Д. Травкин, С. П. Лебедев, А. Пименов, А. Лойдл, А. М. Балбашов, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 331 (1998).
12. M. Paraskevopoulos, F. Mayr, C. Hartinger, A. Pimenov, J. Hemberger, P. Lunkenheimer, A. Loidl, A. A. Muchin, and V. Yu. Ivanov, *J. Magn. Magn. Mater.* **211**, 118 (2000).
13. K. Gosh, R. L. Green, S. E. Lofland, S. M. Bhagat, S. G. Karabashev, D. A. Shulyatev, A. A. Arsenov, and Y. M. Mukovskii, *Phys. Rev.* **B58**, 8206 (1998).
14. V. Yu. Ivanov, V. D. Travkin, A. A. Muchin, S. P. Lebedev, A. A. Volkov, A. Pimenov, A. Loidl, A. M. Balbashov, and A. V. Mozhaev, *J. Appl. Phys.* **83**, 7180 (1998).
15. A. Pimenov, C. Hartinger, A. Loidl, A. A. Muchin, V. Yu. Ivanov, and A. M. Balbashov, *Phys. Rev.* **B59**, 12419 (1999).
16. Y. Okimoto, T. Katsufuji, T. Arima, and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B55**, 4206 (1997).
17. Ю. П. Гайдуков, Н. П. Данилова, А. А. Мухин, А. М. Балбашов, *Письма в ЖЭТФ* **68**, 141 (1998).
18. А. Е. Петрова, Е. С. Ицкевич, В. А. Вентцель, В. Ф. Крайденев, А. В. Руднев, *ФНТ* **27**, 1123 (2001).

19. A. M. Balbashov, S. G. Karabashev, Ya. M. Mukovskii, and S. A. Zverkov, *J. Cryst. Growth* **167**, 365 (1996).
20. А. Г. Бударин, В. А. Вентцель, О. А. Воронов, А. В. Руднев, *Измерительная техника №4*, 66 (1982).
21. Е. С. Ицкевич, *ПТЭ №4*, 148 (1963).
22. Y. Yamada, O. Hino, S. Nohdo, R. Kanao, T. Inami, and S. Katano, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 904 (1996); Y. Yamada, J. Suzuki, K. Oikawa, S. Katano, and J. A. Fernandez-Baca, *Phys. Rev.* **B62**, 11600 (2000).
23. С. Л. Будько, А. Г. Гапотченко, Е. С. Ицкевич, В. Ф. Крайденев, *ПТЭ № 5*, 189 (1986).
24. P. G. Radaelli, G. Iannone, M. Marezio, H. Y. Hwang, S. W. Cheong, J. D. Jorgensen, and D. N. Argyriou, *Phys. Rev.* **B56**, 8265 (1997).
25. L. Pinsard-Gaudart, J. Rodriguez-Carvajal, A. Daoud-Aladine, J. Goncharenko, M. Medarde, R. I. Smith, and A. Revcolevschi, *Phys. Rev.* **B64**, 064426 (2001).
26. Guo-Meng Zhao, K. Conder, H. Keller, and K. A. Muller, *Nature (London)* **381**, 676, (1996).
27. V. Laukhin, J. Fontcuberta, J. L. Garcia-Munoz, and X. Obradors, *Phys. Rev.* **B56**, R 10009 (1997).
28. Е. С. Ицкевич, В. Ф. Крайденев, *ФТТ* **43**, 1220 (2001).
29. B. Dabrowski, X. Xiong, Z. Bukowski, R. Dybziński, P. W. Klamut, J. E. Siewenie, O. Chmaissem, J. Shaffer, C. W. Kimball, J. D. Jorgensen, and S. Short, *Phys. Rev.* **B60**, 7006 (1999).
30. Н. Мотт, Э. Дэвис, *Электронные процессы в некристаллических веществах*, Москва, Мир (1982).
31. J. Fontcuberta, B. Martinez, A. Seffar, S. Pinol, J. L. Garcia-Munoz, and X. Obradors, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1122 (1996).
32. В. Ф. Крайденев, Е. С. Ицкевич, *ФНТ* **22**, 1028 (1996).
33. Е. С. Ицкевич, В. Ф. Крайденев, И. Г. Куземская, *ЖЭТФ* **118**, вып. 3(9), 647 (2000).
34. J. B. Goodenough and J. S. Zhou, *Phys. Rev.* **B49**, 4251 (1994); J. S. Zhou and J. B. Goodenough, *Phys. Rev.* **B51**, 3104 (1995).
35. X. Г. Богданова, А. Р. Булатов, В. А. Голенищев-Кутузов, М. М. Шакирзянов, *ФТТ* **43**, вып. 8, 1512 (2001).

Kinetic properties and magnetic susceptibility of $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$ under hydrostatic pressure

E. S. Itskevich, V. F. Kraidenov, A. E. Petrova, V. A. Venttsel, and A. V. Rudnev

The magnetic susceptibility χ , thermopower α and resistivity ρ of manganite $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ with $x = 0,1$ are measured. The thermopower $\alpha(T)$ is everywhere positive, has a dome-like form and decreases with pressure. The curves $\chi(T)$ and $\rho(T)$ display some peculiarities at temperatures of about 95, 120 and 135 K. The peculiarity at $T_{OO} \approx 95$ K is supposed to be due to with the orbital order and that at $T_{CA} \approx 135$ K with the canted antiferromagnet \leftrightarrow paramagnet transition. The reason of the peculiarity at $T_M = 120$ K is discussed. The temperatures of the transitions increase with pressure at rates $\partial T_{CA}/\partial P = 0.43$ K/kbar and $\partial T_M/\partial P = 0.57$ K/kbar. The dependences $\rho(T)$ and $\alpha(T)$ exhibit a minor anomaly at $T = 225\text{--}235$ K.