

Визуализация фазового перехода антиферромагнитный изолятор—ферромагнитный металл в манганите $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$

С. Л. Гнатченко, А. Б. Чижик, И. О. Шкляревский, Д. Н. Меренков

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail: gnatchenko@ilt.kharkov.ua*

В. И. Каменев, Ю. Г. Пашкевич

*Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина НАН Украины,
Украина, 340114, г. Донецк, ул. Р. Люксембург, 72*

K. V. Kamenev, G. Balakrishnan, and D. McK Paul

Department of Physics, University of Warwick, Coventry CV4 7AL, England

Статья поступила в редакцию 10 марта 1999 г.

Обнаружено, что фазовый переход первого рода из антиферромагнитного (АФМ) немагнитного состояния в ферромагнитное (ФМ) магнитное состояние в манганите $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ сопровождается существенным изменением отражения видимого света. Этот эффект был использован для визуализации фазового перехода АФМ—ФМ в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$. Сосуществование АФМ и ФМ фаз визуально наблюдалось в процессе спонтанного и индуцированного магнитным полем перехода АФМ—ФМ. В обоих случаях переход происходил путем зарождения и расширения доменов энергетически выгодной фазы. Однако периодическая доменная структура магнитного промежуточного состояния в процессе перехода не возникала. В АФМ состоянии обнаружена полосовая доменная структура, тогда как ФМ фаза была однородной.

Виявлено, що фазовий перехід першого роду з антиферромагнітного (АФМ) немагнітного стану до ферромагнітного (ФМ) магнітного стану в манганіті $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ супроводжується значною зміною відбиття видимого світла. Цей ефект було використано для візуалізації фазового переходу АФМ—ФМ в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$. Співіснування АФМ і ФМ фаз візуально спостерігалось в процесі спонтанного та індукованого магнітним полем переходу АФМ—ФМ. В обох випадках перехід відбувався шляхом зародження і розширення доменів енергетично вигідної фази. Але періодична доменна структура магнітного проміжного стану в процесі переходу не утворювалась. В АФМ стані виявлено полосову доменну структуру, тоді як ФМ фаза була однорідною.

PACS: 75.30.Kz, 78.20.-e

В последнее десятилетие манганиты — оксиды марганца со структурой перовскита $\text{R}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$, где $\text{R} = \text{La}^{3+}, \text{Nd}^{3+}, \text{Pr}^{3+}, \text{Eu}^{3+}, \dots$; $\text{A} = \text{Ca}^{2+}, \text{Sr}^{2+}, \text{Ba}^{2+}, \text{Pb}^{2+}, \dots$ — привлекают к себе повышенное внимание в связи с наблюдением в этих соединениях колоссального магнитосопротивления [1]. Этот эффект, наблюдаемый в манганитах в окрестности температуры Кюри T_C , представляет интерес с точки зрения изучения природы явления и его практического применения. Кроме

того, манганиты проявляют целый ряд других интересных свойств: зарядовое и орбитальное упорядочение, эффект Яна—Теллера, спонтанные и индуцированные фазовые переходы (ФП). В ряде манганитов имеет место спонтанный и индуцированный магнитным полем ФП из антиферромагнитного (АФМ) немагнитного в ферромагнитное (ФМ) магнитное состояние. В частности, этот ФП наблюдается в кристалле $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ [2–4].

При понижении температуры до $T_C \approx 255$ К в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ происходит ФМ упорядочение, а при температуре T_{M-I} вблизи 160 К — спонтанный ФП первого рода ФМ металл—АФМ изолятор. Переход из ФМ в АФМ состояние в этом кристалле совпадает с установлением зарядового упорядочения [2], т.е. возникновением пространственного упорядочения дырок и соответственно пространственного упорядочения ионов Mn^{3+} и Mn^{4+} . Отметим, что температура перехода T_{M-I} в манганитах не всегда совпадает с температурой зарядового упорядочения T_{co} . Например, в $\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ $T_{M-I} < T_{co}$ [5]. В области температур $T < T_{M-I}$ магнитное поле приводит к плавлению зарядового упорядочения в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ и индуцирует переход в ФМ металлическое состояние.

Ранее переход ФМ металл — АФМ изолятор исследовался в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ путем измерений электропроводности и намагниченности [2,3], методами рентгенографии [2] и дифракции нейтронов [4]. Было установлено, что в обоих состояниях кристалл $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ имеет орторомбическую структуру (пространственная группа $Pnma$ [1,4]). Электропроводность изменяется при ФП более чем на два порядка, а намагниченность — на величину около $2,5\mu_B/\text{Mn}$ [2,3]. Фазовый переход сопровождается значительным ($\sim 10^{-3}$ – 10^{-2}) изменением параметров кристаллической решетки [2,4]. При переходе в АФМ состояние увеличивается объем магнитной элементарной ячейки и устанавливается АФМ структура CE -типа [2,4,6]. В настоящей работе обнаружено, что при ФП кристалла $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ из ФМ металлического в АФМ неметаллическое состояние происходит заметное уменьшение интенсивности отраженного от кристалла видимого света. Обнаруженный эффект был использован для визуализации и изучения двухфазного состояния, образующегося при ФП.

Кристаллы $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ были получены методом зонной плавки и имели цилиндрическую форму. Образцы вырезались в виде пластинок перпендикулярно оси цилиндра. Средний их размер составлял около 3 мм, а толщина варьировалась от 0,5 до 2 мм. По данным рентгеновских исследований, образцы не были монокристаллическими. Однако они были сильно текстурированными с преимущественной ориентацией осей кристаллитов (100) и (010) в установке $Pnma$ под углом 15° к оси цилиндра. Разориентация осей кристаллитов между собой не

превышала нескольких градусов. Параметры решетки, измеренные при комнатной температуре, совпадали с точностью до третьего знака с приведенными для $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ в работе [4]. Поверхности пластинок полировались механически до зеркального состояния. Для снятия напряжений, возникающих в результате механической полировки, отполированные образцы отжигались на воздухе при температуре 950°C в течение 20 ч. Исследования перехода ФМ металл—АФМ изолятор в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ проводились путем измерения интенсивности отраженного света от полированной поверхности пластинки и визуального наблюдения двухфазного состояния, образующегося в процессе ФП. Образцы помещались в гелиевый оптический криостат со сверхпроводящим соленоидом. Температура образца могла изменяться в пределах $10\text{ K} < T < 300\text{ K}$ и измерялась термопарой медь-константан. Оптическая схема установки для измерения интенсивности отраженного света включала He-Ne лазер, модулятор света по интенсивности и фотоэлектронный умножитель. Свет лазера с $\lambda = 633$ нм отражался от пластинки, модулировался по интенсивности и попадал на ФЭУ. Угол падения света на образец был около 10° . Сигнал с ФЭУ регистрировался синхронным усилителем. Визуальные наблюдения доменной структуры проводились в видимом свете с помощью микроскопа. Для наблюдения и записи изображения образца с доменной структурой использовалась видеокамера с монитором и видеоманитофоном. Применялась также компьютерная обработка полученного изображения.

Температурная $I(T)$ и полевая $I(H)$ зависимости интенсивности отраженного света в окрестности ФП первого рода ФМ металл — АФМ изолятор приведены на рис. 1. На рис. 1,а показана температурная зависимость $I(T)$, измеренная в отсутствие магнитного поля. Фазовому переходу соответствует скачок интенсивности отраженного света. В АФМ неметаллическом состоянии величина I почти в два раза меньше, чем в ФМ металлическом состоянии. При охлаждении переход происходил при $T \approx 154$ К, а при нагреве — при $T \approx 162$ К, т.е. ФП сопровождался температурным гистерезисом, ширина которого составляла около 8 К. Скачок интенсивности отраженного света наблюдался также при ФП АФМ изолятор—ФМ металл, индуцированном магнитным полем при $T < 154$ К. На рис. 1,б приведена зависимость

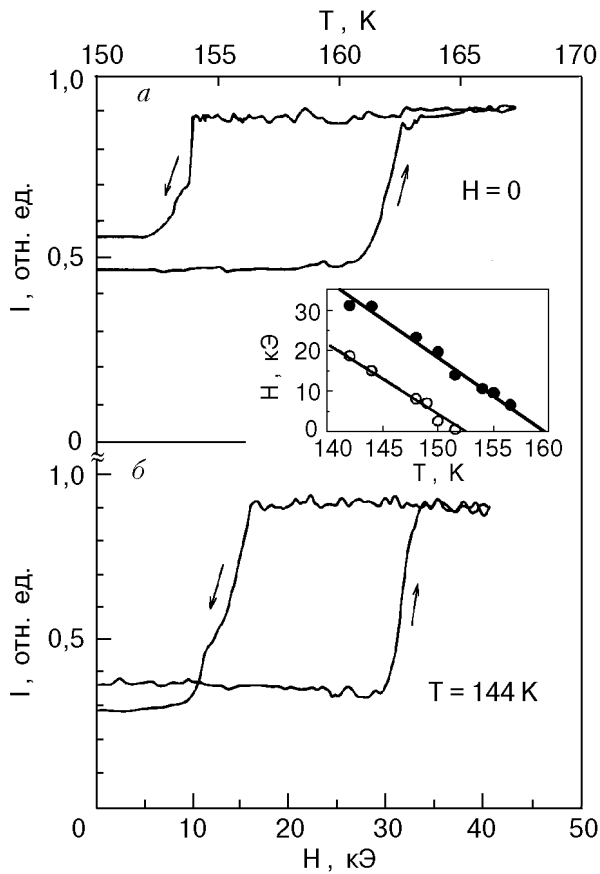


Рис. 1. Температурная ($H = 0$) и полевая ($T = 144$ К) зависимости интенсивности отраженного света. Скачки на зависимостях соответствуют фазовому переходу АФМ изолятор—ФМ металл. На вставке приведен фрагмент фазовой H - T -диаграммы $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$, полученный из оптических измерений. Темные точки соответствуют переходу при увеличении поля или температуры, светлые — переходу при уменьшении этих параметров.

$I(H)$, измеренная при $T = 144$ К. Как видно на рисунке, переход сопровождается изменением I более чем в два раза и полевым гистерезисом шириной около 16 кЭ. На вставке к рис. 1 показан фрагмент фазовой H - T -диаграммы $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$, восстановленный из оптических измерений. Отметим, что результаты исследования перехода АФМ изолятор—ФМ металл в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$, полученные путем измерений отражения света, хорошо согласуются с данными из транспортных и магнитных измерений в работе [2].

Обнаруженный эффект изменения интенсивности отраженного света был использован для визуализации ФП первого рода из АФМ неметаллического в ФМ металлическое состояние в манганите $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$. С помощью микроскопа в отраженном белом свете были проведены визуальные наблюдения образования двухфазного состояния при ФП.

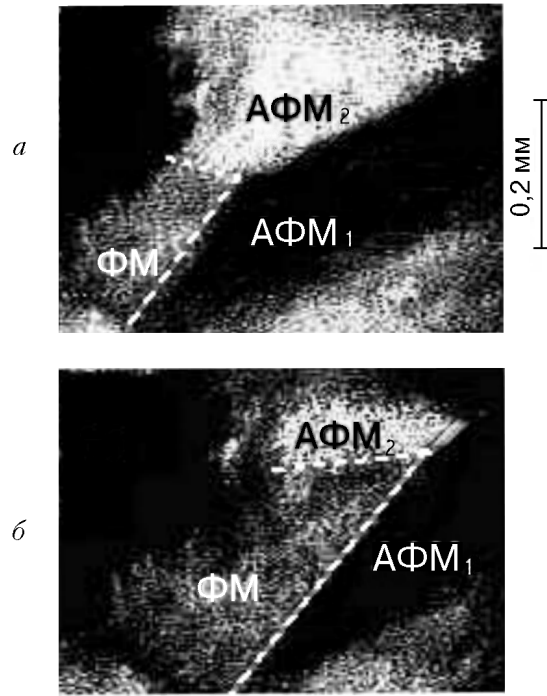


Рис. 2. Доменная структура, наблюдаемая в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ в процессе фазового перехода АФМ изолятор—ФМ металл. Черный и белый домены — АФМ фаза, серый домен — ФМ фаза. Пунктиром выделен участок межфазной границы между АФМ и ФМ состояниями, который смещается при увеличении поля. Температура образца $T = 152$ К, внешнее магнитное поле $H \approx 14$ (а) и 16 (б) кЭ.

Переход первого рода АФМ изолятор—ФМ металл в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ происходил путем зарождения и расширения доменов энергетически выгодной фазы. По мере их расширения концентрация энергетически невыгодной фазы уменьшалась, а затем ее домены исчезали и образец полностью переходил в энергетически выгодное состояние. Образование доменов происходило в различных участках образца, возникающая двухфазная доменная структура не воспроизводилась при нескольких наблюдениях перехода в одинаковых условиях, т.е. она не определялась однозначно неоднородностями образца, температуры или поля. Однако при переходе не наблюдалось образование периодической полосовой доменной структуры магнитного промежуточного состояния. Сосуществование АФМ и ФМ фаз наблюдалось в температурном интервале около 2 К и в полевым 5–7 кЭ.

Визуальные наблюдения также позволили установить, что АФМ неметаллическая фаза является неоднородной. В АФМ состоянии наблюдалась полосовая доменная структура,

которая не изменялась при введении магнитного поля вплоть до поля перехода в ФМ состояние. В ФМ состоянии образец был практически однородным, хотя в некоторых случаях в нем можно было различить слабоконтрастные следы доменной структуры, наблюдавшейся в АФМ фазе до перехода в ФМ состояние. Вид доменной структуры в АФМ состоянии не повторялся при повторных наблюдениях перехода из ФМ в АФМ фазу, хотя ориентация доменных границ в образце сохранялась. В некоторых случаях при ФП из ФМ в АФМ могла образоваться однородная АФМ фаза, т.е. переход осуществлялся в одно из двух возможных АФМ состояний. С разной концентрацией двух типов АФМ доменов связана неодинаковая величина I на петлях гистерезиса для АФМ состояния (рис. 1).

На рис. 2 показан участок образца, на котором видны домены АФМ фазы (белый и черный) и домен ФМ фазы (серый). При увеличении магнитного поля объем ФМ фазы растет за счет уменьшения объемов белого и черного доменов АФМ фазы. Смещающийся с ростом поля участок границы между ФМ и АФМ фазами выделен на фотографиях пунктирной линией.

Образование доменной структуры в АФМ состоянии наблюдалось методом электронной микроскопии в $\text{Pr}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ [7]. В этом манганите кристаллическая доменная структура возникает в результате структурного ФП с понижением симметрии с $I4/mcm$ до $Fmmm$, который сопровождает ФП из металлического ФМ в немагнитное АФМ состояние. Однако в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ переход в АФМ состояние не сопровождается изменением симметрии, хотя параметры ромбической ячейки претерпевают сильные изменения [2]. Кроме того, исследованные образцы не являются монокристаллическими. Поэтому образование в них полосовой доменной структуры с границами, проходящими через весь образец, должно быть обусловлено дальнедействующим взаимодействием. В АФМ фазе отсутствуют поля размагничивания. Возможно, возникновение доменной структуры в АФМ фазе вызвано упругими напряжениями, возникающими в кристалле при ФП вследствие сильных изменений параметров кристаллической решетки.

Вызывает также вопрос отсутствие магнитного промежуточного состояния в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ при фазовом переходе ФМ—АФМ в магнитном поле. Скачок намагниченности при этом переходе составляет около 400 Гс. Соответственно ширина

полевого интервала существования промежуточного состояния в тонких пластинках $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ должна достигать 5 кЭ. Эта величина сравнима с наблюдавшимся в эксперименте полевым интервалом существования двухфазного состояния в исследованных образцах. Поэтому отсутствие промежуточного состояния нельзя объяснить неоднородностями образца. Возможно, при ФП в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ оно не образуется вследствие слишком большой энергии межфазных стенок, что обусловлено упругими напряжениями, возникающими на границе в результате изменений $\sim 10^{-2}$ параметров кристаллической решетки при этом переходе.

В заключение отметим, что обнаруженное в работе изменение коэффициента отражения света при фазовом переходе ФМ металл—АФМ изолятор в $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$ позволило визуализировать двухфазное состояние, определить характер фазового перехода и основные свойства двухфазной доменной структуры. Была обнаружена доменная структура в АФМ фазе. Однако выявление природы доменной структуры, наблюдаемой в АФМ состоянии, и причин, вследствие которых при переходе не образуется магнитное промежуточное состояние, требуют дальнейших исследований.

1. A. P. Ramirez, *J. Phys.: Condens. Matter.* **9**, 8171 (1997).
2. H. Kuwahara, Y. Tomioka, A. Asamitsu, Y. Morimoto, and Y. Tokura, *Science* **270**, 961 (1995).
3. Y. Tokura, H. Kuwahara, Y. Morimoto, Y. Tomioka, and A. Asamitsu, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3184 (1996).
4. H. Kawano, R. Kajimoto, H. Yoshizawa, Y. Tomioka, H. Kuwahara, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4253 (1997).
5. M. Tokunaga, N. Miura, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B57**, 5259 (1998).
6. E. O. Wollan and W. C. Koehler, *Phys. Rev.* **100**, 545 (1955).
7. F. Damay, C. Martin, M. Hervieu, A. Maignan, B. Raveau, G. Andre, and F. Bouree, *J. Magn. Magn. Mater.* **184**, 71 (1998).

Visualization of the antiferromagnetic insulator-ferromagnetic metal phase transition in manganite $\text{Nd}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{MnO}_3$

S. L. Gnatchenko, A. B. Chizhik,
I. O. Shklyarevskiy, D. N. Merenkov,
V. I. Kamenev, Yu. G. Pashkevich,
K. V. Kamenev, G. Balakrishnan,
and D. McK Paul

It is found that the first-order phase transition from the antiferromagnetic (AFM) nonmetallic state

to the ferromagnetic (FM) metallic one in manganite $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ is accompanied by a significant change of reflectivity of visible light. The effect was used to visualize the AFM-FM phase transition in $\text{Nd}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$. The coexistence of AFM and FM phases was visually observed during the spontaneous and field-induced AFM-FM transitions. In both

cases the transition occurred by nucleation and expansion of domains of an energetically favorable phase. But a periodic domain structure of a magnetic intermediate state was not formed under the phase transition. A stripe domain structure was observed in the AFM state whereas the FM phase was found to be uniform.