

ФАЗА ГРИФФИТСА, МАГНИТНЫЕ И ТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА ДОПИРОВАННЫХ МАНГАНИТОВ

В. Н. Криворучко^{а}, М. А. Марченко^{б**}*

*Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина Национальной академии наук Украины
83114, Донецк, Украина*

Поступила в редакцию 2 августа 2011 г.

Предложена феноменологическая модель магнитных и магниторезистивных свойств ферромагнитных манганитов. Модель основана на методах, используемых при описании систем с гистерезисом, учитывает эффекты фазовой сепарации и предполагает переход ферромагнитных манганитов в фазу Гриффитса при температуре выше температуры Кюри. Формализм позволяет описывать проводящие свойства системы в температурном интервале от низких температур до температуры Гриффитса (T_G). В рамках единого подхода удается качественно объяснить совокупность экспериментально установленных закономерностей в поведении ферромагнитных манганитов на основе изучения температурных и полевых зависимостей сопротивления и намагниченности, гистерезисных свойств и магниторезистивного эффекта (МРЭ), дать общую классификацию манганитов по величине МРЭ и др. Параметром, отвечающим за характер отклика системы на тепловые эффекты, является отношение наибольшего энергетического барьера, разделяющего различные состояния системы при нулевой температуре $W_A(0)$, к энергии тепловых флуктуаций W_{Cfl} при T_G . Установлено, что отношение $W_A(0)/W_{Cfl}$ определяет температурный интервал существования фазы Гриффитса. Показана взаимосвязь между величиной МРЭ и значением параметра $W_A(0)/W_{Cfl}$ данной системы. Обсуждаются особенности поведения намагниченности и сопротивления манганитов в фазе Гриффитса.

1. ВВЕДЕНИЕ

Несмотря на большое количество сообщений, посвященных свойствам манганитов, общепринятого объяснения магнитотранспортных характеристик этих материалов все еще нет. Эксперименты по исследованию магниторезистивных свойств во многих случаях показывают сложную взаимосвязь между проводимостью и намагниченностью, а также важную роль термодинамической истории системы. Вместе с тем, в настоящее время экспериментально установлен ряд общих закономерностей в поведении допированных манганитов [1–5]. Так, температурная зависимость сопротивления имеет хорошо выраженный максимум. Температура, соответствующая максимуму сопротивления в нулевом магнитном поле, температура перехода металл–изолятор T_{MI} , близка к температуре Кюри T_C . Величина магниторезистивного эффекта с ростом T_C уменьшается. Для веществ с большей температурой Кюри

амплитуда пика сопротивления меньше, чем для соединений с меньшим значением T_C . Во внешнем магнитном поле сопротивление уменьшается, а температура T_{MI} увеличивается. Выше T_C зависимость сопротивления от величины намагниченности аппроксимируется экспоненциальной кривой вида $\exp(-\chi M^2)$, причем константа χ меньше для соединений с большей температурой Кюри.

Как неоднократно было показано, магнитные свойства манганитов хорошо описываются теорией двойного обмена между ионами марганца Mn^{+3} и Mn^{+4} через анион кислорода O^{-2} [1–5]. Считается, что электрон, переходящий от катиона к катиону, отвечает как за ферромагнетизм, так и за проводимость. Однако теория двойного обмена исходит из однородного состояния системы, тогда как одной из особенностей ферромагнитных манганитов, демонстрирующих колоссальный магниторезистивный эффект, является фазовая сепарация — разбиение вещества на кластеры с различными магнитными и проводящими характеристиками [1–5]. В настоящее время активно предпринимаются попытки описать

*E-mail: krivoruc@krivoruc.fti.ac.donetsk.ua

**E-mail: marchenko@fti.dn.ua

эффекты фазовой сепарации в рамках обобщения представлений о фазе Гриффитса [6–14].

В классической модели фаза Гриффитса возникает в магнетиках, у которых отсутствует часть магнитных связей [15, 16]. Было показано, что у такого типа систем выше температуры Кюри T_C реализуется новая фаза, представляющая собой ферромагнитные кластеры в парамагнитной матрице. Этот фазовый режим обычно и называется фазой Гриффитса [6–14]. Гриффитс [15] показал существование особенностей в термодинамических свойствах системы в температурном интервале $T_C(p) < T < T_G$. Величина этого интервала определяется параметром p — вероятностью того, что магнитные связи в магнетике не будут разорваны. Температура Кюри $T_C(p)$ — температура, при которой формируется бесконечный ферромагнитный кластер, — оказывается зависящей от степени разупорядоченности системы и определяет нижнюю температурную границу существования фазы Гриффитса. Температура T_G , соответствующая температуре Кюри идеальной системы, определяет верхнюю границу существования фазы Гриффитса и одновременно является температурой перехода в парамагнитную фазу.

Для манганитов существование фазы, подобной фазе Гриффитса, подтверждается наблюдением сигнала ФМР выше температуры Кюри [8, 13], появлением в температурной зависимости восприимчивости участка с поведением, не характерным для ферромагнитного или парамагнитного состояний [6, 7, 12, 14], существенным отличием критических индексов от их значений в теории фазовых переходов второго рода [6, 9] и другими особенностями.

Несмотря на большое количество попыток, существенного прогресса в построении микроскопической теории магниторезистивных свойств манганитов пока нет (см., например, обзор [17]). По-видимому, ключевым моментом здесь, как и в случае ВТСП-систем, является последовательный учет неоднородного основного состояния системы — фазовой сепарации. В то же время известно, что всякая микроскопическая теория чтобы быть классической, должна содержать все, что необходимо, и ничего лишнего. Определить, что необходимо, а что лишнее, позволяют феноменологические модели.

Недавно в работах [18, 19] была предложена феноменологическая модель магнитных и транспортных свойств ферромагнитных манганитов. Модель основана на методе Прейзаха, который традиционно применяется для моделирования свойств систем с гистерезисом и предполагает существование вы-

ше температуры T_C фазы Гриффитса. Исследованы основные закономерности транспортных свойств допированных манганитов выше и ниже температуры T_C и установлено, что в рамках сделанных предположений удастся адекватно учесть эффекты фазовой сепарации манганитов. В работах [18, 19] рассмотрен частный случай симметричного распределения функции Прейзаха. В данном сообщении изучается поведение систем с параметрами, присущими магнитомягким и магнито жестким материалам, исследованы их магнитные и магнитотранспортные свойства, включая гистерезисные; приведены также результаты для симметричного распределения функции Прейзаха, не вошедшие в работы [18, 19]. Показано, что в рамках данного подхода удастся качественно объяснить всю совокупность экспериментально наблюдаемых закономерностей в поведении ферромагнитных манганитов: температурные и полевые зависимости сопротивления и намагниченности, магниторезистивные и гистерезисные свойства, дать общую классификацию манганитов по величине магниторезистивного эффекта (МРЭ), восстановить область существования фазы Гриффитса и др.

2. МОДЕЛЬ ПРЕЙЗАХА И ФАЗА ГРИФФИТСА

2.1. Классическая модель Прейзаха

Развитый нами метод базируется на модели Прейзаха [20, 21]. В классической модели Прейзаха предполагается, что система, для которой наблюдается необратимый магнитный отклик, состоит из большого числа физически бесконечно малых взаимодействующих объектов — гистеронов. Каждый гистерон характеризуется элементарной прямоугольной петлей гистерезиса, определяемой полями переключения, h_A и h_B , такими что $h_A \geq h_B$. При значениях магнитного поля $H > h_A$ гистерон находится в состоянии $+\mu$; при $H < h_B$ — в состоянии $-\mu$; состояние гистерона в интервале полей $h_B < H < h_A$ зависит от термодинамической предыстории системы. Соответствие между реальной магнитной системой и системой гистеронов устанавливается при помощи функции Прейзаха $P(h_A, h_B)$. Функция $P(h_A, h_B)$ описывает плотность (число) гистеронов с полями переключения (h_A, h_B) . Эта функция симметрична, $P(h_c, h_u) = P(h_c, -h_u)$, и нормирована:

$$\int_0^{\infty} dh_c \int_{-\infty}^{\infty} P(h_c, h_u) dh_u = 1,$$

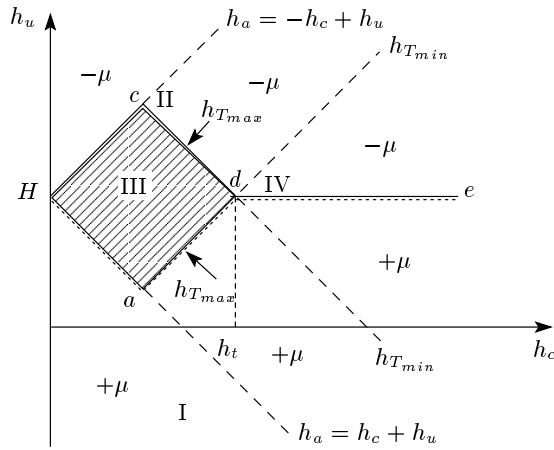


Рис. 1. Плоскость Прейзаха и состояния гистеронов во внешнем поле H при температуре T

где $h_u = (h_A + h_B)/2$, $h_c = (h_A - h_B)/2$. Считается [20], что функция $P(h_c, h_u)$ является заданной и может быть однозначно восстановлена экспериментально. Один из способов прямого восстановления функции Прейзаха из измерений намагниченности описан в работе [22].

Плоскость с координатами (h_A, h_B) или (h_c, h_u) носит название плоскости Прейзаха. Она позволяет наглядно представить действие внешнего поля на систему гистеронов. С учетом температурных эффектов плоскость (h_c, h_u) разбивается на несколько характерных областей (см. рис. 1) [23]. Так, при заданном внешнем поле H и температуре T в областях I и II гистероны характеризуются одним из состояний соответственно $+\mu(T)$ и $-\mu(T)$. В области IV состояние гистеронов определяется термодинамической предысторией системы. Последняя описывается линией $b(H, h_c)$ на плоскости Прейзаха, и разделяет область IV на две с различными состояниями гистеронов, $+\mu(T)$ и $-\mu(T)$. В соответствии с работой [23] для описания температурных эффектов на плоскости Прейзаха вводится суперпарамагнитная область (область III на рис. 1), в которой состояние гистеронов определяется распределением Больцмана для данной температуры. Таким образом, учитывается возможность наличия обратимых переходов системы из одного состояния в другое. Размеры суперпарамагнитной области определяются «полем» $h_t = (k_B T / \mu_0) \ln(t_{exp} / \tau_0)$ (поле тепловой вязкости [23]). Здесь t_{exp} — характерное время измерения (наблюдения); типичные значения τ_0 лежат в интервале 10^{-12} – 10^{-9} с; T — температура и k_B — постоянная Больцмана. Для стандартных статических экспериментальных исследований параметр $\ln(t_{exp} / \tau_0)$ принимается равным 25 [20].

В общем случае состояния гистеронов описываются оператором $\varphi(H, T; h_c, h_u)$, который может принимать значение $\{+\mu(T), -\mu(T), \mu(T) \times \text{th}[\mu(T)(H - h_u)/k_B T], \pm\mu(T)\}$ соответственно в областях (I, II, III, IV), где $\mu(T)$ — магнитный момент гистерона при температуре T . Если известна функция распределения Прейзаха и «история» изменений магнитного поля $b(H, h_c)$, то намагниченность определяется из выражения [20, 23]

$$M(H, T) = M_s \int_0^\infty dh_c \int_0^{b(H, h_c)} P(h_c, h_u, T) \times \varphi(H, T; h_c, h_u) dh_u, \quad (1)$$

где M_s — намагниченность насыщения, $P(h_c, h_u, T)$ — функция распределения Прейзаха. Обычно полагают [20], что нет зависимости между локальным полем коэрцитивности h_c и полем взаимодействия h_u , и функция распределения Прейзаха может быть разбита на произведение составляющих. Так, для описания гистерезиса намагниченности часто используется гауссово распределение

$$P(h_c, h_u) = (2\pi\Lambda_c^2)^{-1/2} \exp\left[-\frac{(h_c - h_{c0}(T))^2}{2\Lambda_c^2}\right] \times (2\pi\Lambda_u^2)^{-1/2} \exp\left(-\frac{h_u^2}{2\Lambda_u^2}\right), \quad (2)$$

где Λ_c и Λ_u — среднеквадратичные отклонения по полям коэрцитивности и взаимодействия, $h_{c0}(T)$ — средняя величина поля коэрцитивности при данной температуре.

Влияние температуры на величину энергетических барьеров, разделяющих состояния гистеронов, определяется соответствующими зависимостями параметров функции распределения Прейзаха, которые традиционно выбираются в виде функций от T/T_C . Примеры описания гистерезиса намагниченности системы в рамках подхода Прейзаха и с учетом температурных эффектов можно найти в работах [23–25].

Для допированных манганитов с учетом возможного существования фазы Гриффитса в работе [19] была предложена температурная шкала в единицах температуры Гриффитса T/T_G . Тогда зависимости параметров распределения и намагниченности гистеронов от температуры можно задать выражения-

ми вида [19]

$$\begin{aligned} h_{c0}(T) &= h_{c0} \left(1 - \frac{T}{T_G}\right)^{\gamma_h}, \\ \Lambda_c(T) &= \Lambda_{c0} \left(1 - \frac{T}{T_G}\right)^{\gamma_c}, \\ \Lambda_u(T) &= \Lambda_{u0} \left(1 - \frac{T}{T_G}\right)^{\gamma_u}, \\ \mu(T) &= \mu_0 \left(1 - \frac{T}{T_G}\right)^{\gamma_M}, \end{aligned} \quad (3)$$

где γ_h , γ_c , γ_u и γ_M — степени температурных зависимостей параметров, μ_0 — намагниченность гистерона при нулевой температуре. Выражения (3) могут носить и более сложный характер, необходимо только, чтобы при $T = T_G$ все «магнитные» барьеры обращались в нуль.

Отклик исследуемой системы на температурное воздействие определяется отношением двух характерных энергий: энергии анизотропии при $T = 0$, $W_A(0) = \mu_0 h_{c0}$, которая устанавливает верхний предел величины энергетических барьеров, существующих в системе, и энергии критических термических флуктуаций $W_{Cfl} = k_B T_G \ln(t_{exp}/\tau_0)$; последняя определяет наибольшую высоту энергетического барьера, который может быть термически активирован для системы с $T_C = T_G$ [19]. Естественно ввести отношение этих энергий $\eta = W_A(0)/W_{Cfl}$. Для систем с $\eta \ll 1$ энергии тепловых флуктуаций достаточно для активации большинства энергетических барьеров; в этом случае в отклике системы на внешнее поле характерно преобладание обратимых процессов (обратимый суперпарамагнитный отклик). Следуя работе [23], будем называть такие системы флуктуационно-доминирующими. Анизотропно-доминирующие системы [23] с $\eta > 1$ характеризуются значительной коэрцитивностью во всем интервале температур существования магнитоупорядоченной фазы. Таким образом, параметр $W_A(0)/W_{Cfl}$ является естественным параметром классификации магнитных веществ по отношению к отклику на внешнее воздействие при конечных температурах.

2.2. Системы с двойным обменом. Фазовая сепарация

Следуя работам [18, 19], будем полагать, что рассматриваемая система может быть представлена в виде совокупности магнитных гистеронов, расположенных в реальном пространстве. Такое представление возможно всегда, когда гистерону можно привести в соответствие физически бесконечно малую,

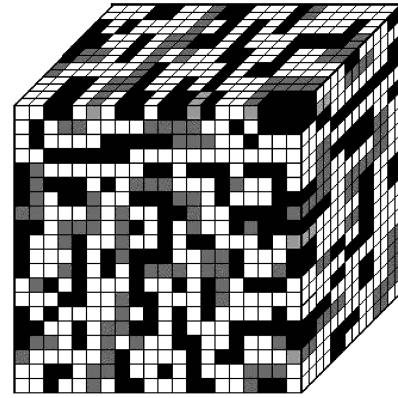


Рис. 2. Система как ансамбль гистеронов

но конечную область реального образца. Рисунок 2 иллюстрирует одно из возможных расположений ансамбля гистеронов в реальном пространстве, где кубы белого и черного цветов представляют гистероны соответственно « $+\mu$ » и « $-\mu$ »; серым цветом обозначена совокупность гистеронов, находящихся в суперпарамагнитном состоянии (элементы из области III на рис. 1). Одновременно рис. 2 иллюстрирует и одно из состояний системы при фазовой сепарации (ср., например, с экспериментально наблюдаемой картиной фазовой сепарации на рис. 3 [26]). Отметим, что разбиение на проводящие и непроводящие кластеры (на рис. 2 первые обозначены белым или черным цветом, вторые — серым) в реальных веществах сохраняется вплоть до низких температур. Это хорошо учитывается предложенной теорией, так как доля непроводящих кластеров зависит от площади суперпарамагнитной области (область III на рис. 1), величина которой с понижением температуры уменьшается, эта область лишь при нулевой температуре.

Здесь следует отметить, что в реальных веществах проводимость между двумя соседними магнитными кластерами зависит от многих факторов. Мы принимаем во внимание зависимость транспортных свойств системы только от взаимной ориентации намагниченности гистеронов (т.е. учитывается рассеивание электронов только на границе между гистеронами). Несмотря на это явное упрощение, модель, как будет видно ниже, адекватно воспроизводит физику явления. Причиной является механизм двойного обмена, который сильно зависит от взаимной ориентации спинов соседних ионов марганца (более детальное обсуждение этого вопроса можно найти в работе [19]).

Как уже отмечалось, в модели двойного обмена

реальное перемещение электрона от одного атома марганца Mn^{3+} к другому Mn^{4+} обеспечивает как магнитное взаимодействие между ионами, так и металлические свойства системы. Таким образом, объем ферромагнитной фазы равен объему металлической фазы. Тогда для намагниченности вместо формулы (1) имеем

$$M(H, T) = M_s V_m^{(R)}(H, T) \int_0^\infty dh_c \times \int_0^{b(H, h_c)} P(h_c, h_u, T) \varphi(H, T; h_c, h_u) dh_u. \quad (4)$$

Здесь

$$V_m^{(R)}(H, T) = \left(\int_0^\infty dh_c \int_{-\infty}^{b_1(h_c)} dh_u P(h_c, h_u) \right)^2 + \left(\int_0^\infty dh_c \int_{b_2(h_c)}^\infty dh_u P(h_c, h_u) \right)^2 \quad (5)$$

есть объем металлической фазы, найденный в первом исчезающем приближении с учетом магнитного состояния ближайших гистеронов при температуре T и внешнем поле H [18]. Граница $b_1(h_c)$ (линия $H-a-d-e$ на рис. 1) выделяет область, где гистероны находятся в состоянии $+\mu$. Граница $b_2(h_c)$ (линия $H-c-d-e$ на рис. 1) выделяет область, где гистероны находятся в состоянии $-\mu$. (Во избежание недоразумений отметим, что в отличие от формулы (15) из работы [19], здесь мы полагаем $V_m^{(R)}(H, T=0) = 1$.)

Полную проводимость системы можно представить в виде суммы обратимой и необратимой частей:

$$\sigma_{tot} = \sigma_{rev}(T) + \sigma_{irr}(H, T).$$

Первое слагаемое, $\sigma_{rev}(T)$, не зависит от магнитного порядка в системе; второе слагаемое зависит, и благодаря этому в транспортных свойствах наблюдаются эффекты необратимости. Далее, как и в случае (4), при вычислении проводимости системы ограничимся учетом магнитного состояния ближайших гистеронов. Тогда в первом исчезающем приближении необратимую часть проводимости можно представить в виде [19]

$$\sigma_{irr}(H, T) = \sum_{i,j=I}^{IV} \sigma_{i,j}(T) V_{i,j}^{(R)}(H, T)$$

или

$$\sigma_{irr}(H, T) = \sigma_m(T) V_m^{(R)}(H, T) + \sigma_{sp}(T) V_{sp}^{(R)}(H, T) + \sigma_I(T) V_I^{(R)}(T, H).$$

Здесь $V_m^{(R)}(H, T)$ — объем проводящих путей с параллельной ориентацией намагниченности соседних гистеронов (металлическое состояние), $V_{sp}^{(R)}(H, T)$ — объем пар гистеронов, из которых хотя бы один находится в суперпарамагнитном состоянии (гистерон из области III на рис. 1), $V_I^{(R)}(H, T)$ — объем пар гистеронов с антипараллельной ориентацией магнитных моментов внутри пары (диэлектрическое состояние); $\sigma_m(T)$, $\sigma_{sp}(T)$, $\sigma_I(T)$ — соответствующие таким путям проводимости. Далее мы будем полагать $\sigma_I(T) = 0$. Упрощая модель, предполагаем также, что проводимость пары гистеронов, когда только один гистерон из пары находится в суперпарамагнитном состоянии, σ_{sp-m} , равна проводимости пары гистеронов, когда оба гистерона находятся в суперпарамагнитном состоянии σ_{sp-sp} , т. е. $\sigma_{sp-sp}(T) = \sigma_{sp-m}(T) = \sigma_{sp}(T)$. Следуя работе [19], примем, что $\sigma_{rev}(T)$ отвечает поляронному типу проводимости, $\sigma_{rev}(T) = \sigma_{sp}(T)$. Считаем также, что выше и ниже температуры Кюри характерные параметры проводимости не меняются. Таким образом, полную проводимость системы можно записать в виде

$$\sigma_{tot}(H, T) = \sigma_m(T) V_m^{(R)}(H, T) + \sigma_{sp}(T) \left[1 - V_m^{(R)}(H, T) \right]. \quad (6)$$

Хотя все эти предположения в реальных системах могут полностью и не выполняться, тем не менее, как будет показано, модель сохраняет физику явления и адекватно воспроизводит магнитные и магниторезистивные свойства манганитов. Кроме того, отказ от сделанных приближений и развитие теории на общие случаи достаточно очевидны, и мы на этом не останавливаемся.

Как и в случае намагниченности, моделирование транспортных свойств требует задания температурных зависимостей проводимостей $\sigma_m(T)$ и $\sigma_{sp}(T)$. В металлическом режиме электрическое сопротивление манганитов может быть записано в виде (см., например, [27])

$$\rho_{dc}(T) = \rho_0 + \rho_{ec} T^2 + \rho_{em} T^{9/2} = \sigma_m^{-1}(T), \quad (7)$$

где $\rho_0 = \rho_{dc}(T=0)$ — остаточное сопротивление, возникающее от процессов, не зависящих от температурных эффектов. Слагаемое, пропорциональное

T^2 , представляет вклад электрон-электронного рассеяния, пропорционального $T^{9/2}$ — оно описывает двухмагнотные процессы рассеяния в ферромагнитной фазе [28] (отметим, что для манганитов одномагнотные процессы рассеяния в ферромагнитной фазе запрещены). Эксперименты подтверждают, что при низких температурах сопротивление манганитов в основном определяется электрон-электронным рассеянием, тогда как при высоких температурах более существенными становятся двухмагнотные процессы рассеяния.

Многочисленные экспериментальные результаты, включая исследования транспортных свойств [29–31] и изотопных эффектов [32] указывают на поляронный тип проводимости в парамагнитной области. Известно [33], что в модели малых поляронов электрическое сопротивление может быть выражено как

$$\rho(T) = \rho_0 T^n \exp(E_p/k_B T),$$

где E_p — сумма энергий активации, необходимая для создания и активации перескоков поляронов (для манганитов $E_p \sim 2-3k_B T_C$); $n = 1$ для адиабатических и $n = 1.5$ для неадиабатических процессов. Для проводимости в суперпарамагнитном состоянии будем использовать выражение

$$\sigma_{sp}(T) = \sigma_{sp0} T^{-1} \exp(-E_p/k_B T). \quad (8)$$

Как будет показано в следующем разделе, полученные выражения воспроизводят все основные экспериментальные закономерности температурных и полевых зависимостей намагниченности и магнорезистивности допированных манганитов.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ВЫЧИСЛЕНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В данном разделе представлены результаты численного расчета магнитных и транспортных свойств систем, описываемых соотношениями (2)–(8). Основные отличия исследуемых систем от изученных в работе [19] состоят в том, что, во-первых, для вычислений использовались несимметричные распределения функции Прейзаха с параметрами $\Lambda_{c0} \neq \Lambda_{u0}$. В соответствии с традиционной классификацией [34], системы с соотношением параметров $\Lambda_{c0} \gg \Lambda_{u0}$ относят к магнитомягким материалам (мы будем называть их система *A*), тогда как с $\Lambda_{c0} \ll \Lambda_{u0}$ — к магнито жестким (система *B*). Вид распределений, характеризующих системы *A*, *B* на плоскости Прейзаха, иллюстрируют вставки на рис. 3. Для сравнения

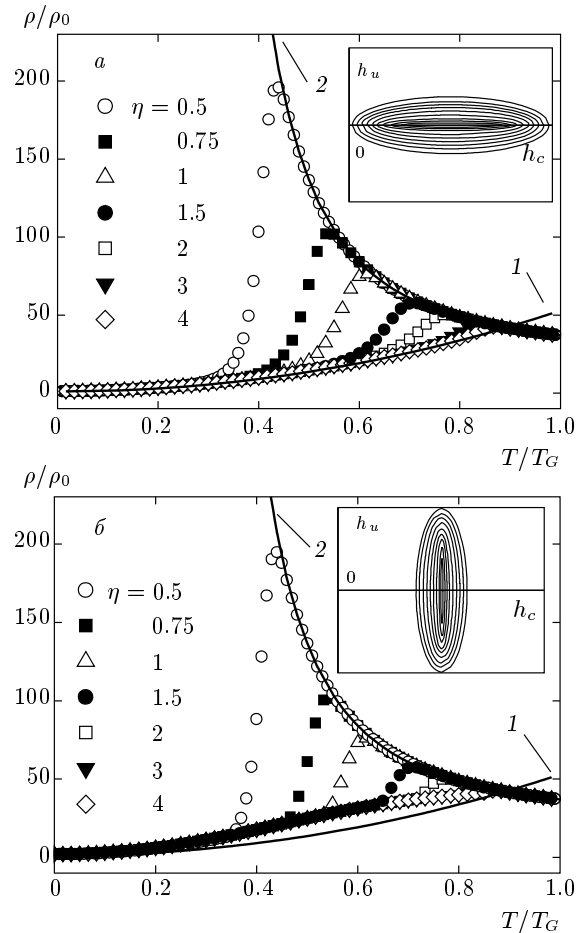


Рис. 3. Температурная зависимость сопротивления систем *A* (*a*) и *B* (*b*) при различных значениях параметра $\eta = W_A(0)/W_{Cfl}$; $H/h_{c0} = 0.05$. На вставках показаны соответствующие функции распределения Прейзаха. Сплошные линии 1 и 2 отвечают металлическому и поляронному характерам сопротивления и описываются соответственно уравнениями (7) и (8)

мы будем приводить и некоторые результаты с симметричным распределением Прейзаха ($\Lambda_{c0} = \Lambda_{u0}$, система *C*). Во-вторых, в отличие от работы [19], константы металлической $1/\rho_0$ и суперпарамагнитной σ_{sp0} проводимостей различны. В-третьих, мы детально обсудим характерные свойства намагниченности и сопротивления, в том числе и гистерезисные, во всей области температур, включая и фазу Гриффитса. Это позволит нам апробировать модель [18, 19] и проверить ее применимость для описания свойств допированных манганитов.

При моделировании выбирались следующие параметры функции распределения Прейзаха. Систе-

ма A : $\Lambda_{c0} = 0.3$, $\Lambda_{u0} = 0.05$, система B : $\Lambda_{c0} = 0.05$, $\Lambda_{u0} = 0.3$, система C : $\Lambda_{c0} = \Lambda_{u0} = 0.35$. Остальные параметры совпадают и имеют следующие значения $\gamma_c = \gamma_u = \gamma_h = 0.3$, $\gamma_M = 0.5$, $\rho_{em}/\rho_0 = 2$, $\rho_{ee}/\rho_0 = 50$, $\sigma_{sp0} = 0.2$, $M_s = 1$, $E_p = 2$ Э/г·см³·К. Полевые величины нормированы на h_{c0} — среднюю величину поля коэрцитивности, температура измеряется в единицах T_G , сопротивление — в единицах ρ_0 . При выбранных единицах ($T_G = 1$ и $\ln(t_{exp}/\tau_0) = 25$) в отношении $\eta = W_A(0)/W_{Cfl} = \mu_0 h_{c0}/(k_B T_G \ln(t_{exp}/\tau_0))$ в качестве свободного параметра выбирались значения $k_B/\mu_0 h_{c0}$. Тогда системам с $k_B/\mu_0 h_{c0} = 0.08, 0.053, 0.04, 0.027, 0.02, 0.013, 0.01$ соответствуют значения $\eta = 0.5, 0.75, 1, 1.5, 2, 3, 4$.

3.1. Температурные зависимости сопротивления

На рис. 3 представлены температурные зависимости сопротивления систем A и B для различных значений η ($\eta = 0.5, 0.75, 1, 1.5, 2, 3, 4$) во внешнем магнитном поле $H/h_{c0} = 0.05$. Температурные зависимости вычислялись в стандартном режиме охлаждения в магнитном поле (field cooling, FC). Функции $\rho(T, H)/\rho_0$ на рис. 3 достигают максимума при некоторой температуре. Температура, соответствующая пику сопротивления, традиционно принимается за температуру перехода металл–изолятор T_{MI} . Для систем с разными функциями распределения (системы A и B), но с одинаковым параметром η , существенного различия в амплитуде пика сопротивления нет. Как отмечалось ранее, с ростом параметра η система становится более устойчивой к тепловым флуктуациям. Действительно, как видно на рис. 3, рост η проявляется в том, что температура T_{MI} увеличивается, а амплитуда пика сопротивления уменьшается. Такое поведение соответствует экспериментально наблюдаемому поведению $\rho(T)$ манганитов с разным значением T_{MI} [1–5]. При низких температурах зависимости $\rho(T, H)/\rho_0$ совпадают с металлической частью отклика сопротивления (сплошная линия 1 на рис. 3а и 3б). С повышением температуры тепловые флуктуации уменьшают проводимость из-за перехода гистеронов в суперпарамагнитное состояние, и при достаточно высокой температуре в проводящих свойствах доминируют активационные процессы. Для систем с преобладающими температурными флуктуациями температурный интервал металлической проводимости относительно мал, а резкое возрастание сопротивления при приближении к температуре T_{MI} свидетельствует о су-

щественной доли немагнитных кластеров. Для анизотропно-доминирующих систем число гистеронов в суперпарамагнитном состоянии мало, температурная область существования металлического состояния велика. Выше T_{MI} система демонстрирует полярный тип проводимости (сплошная линия 2 на рис. 3, зависимость (8)) и обратимый полевой отклик. На рис. 3 также видно, что у флуктуационно-доминирующих систем ($\eta < 1$) полярный тип проводимости наблюдается на большем интервале температур $T_C < T < T_G$, чем у анизотропно-доминирующих систем ($\eta > 1$).

Графики на рис. 4 показывают изменение сопротивления с температурой при разных значениях внешнего магнитного поля H/h_{c0} ; для сравнения приведены флуктуационно-доминирующая, рис. 4а и в, и анизотропно-доминирующая, рис. 4б и г, системы. Включение магнитного поля понижает амплитуду пика сопротивления и смещает его в область больших температур. Смещение T_{MI} связано с тем, что при включении внешнего магнитного поля стабилизируется ферромагнитная фаза и, следовательно, необходима уже большая температура, чтобы термически активировать (перевести в парамагнитное состояние) гистероны и индуцировать переход металл–изолятор. Уменьшение величины пика сопротивления происходит из-за стабилизации ферромагнитной фазы под действием внешнего магнитного поля. Как видно на рис. 4, температурное поведение сопротивления магнитомягких (рис. 4а и б) и магнито жестких (рис. 4в и г) материалов, соответствующих данному параметру η , качественно подобно.

Результаты, приведенные на рис. 3 и 4, полностью соответствуют экспериментальным закономерностям, установленным для манганитов, демонстрирующих колоссальный МРЭ [1–5]. В общем случае, с ростом температуры перехода T_{MI} сам переход становится более плавным, а величина сопротивления в точке T_{MI} уменьшается. «Колоссальный» МРЭ наблюдается в соединениях с наименьшим T_{MI} (T_C); типичным представителем таких систем является $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. Для соединений с наибольшим значением T_{MI} (T_C) МРЭ будет наименьшим; примером таких соединений является $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$.

3.2. Гистерезисные характеристики

Как уже отмечалось, традиционно метод Прейзаха используется для описания систем с гистерезисом [20, 35]. На рис. 5 представлено симметричное семейство петель гистерезиса сопротивления и на-

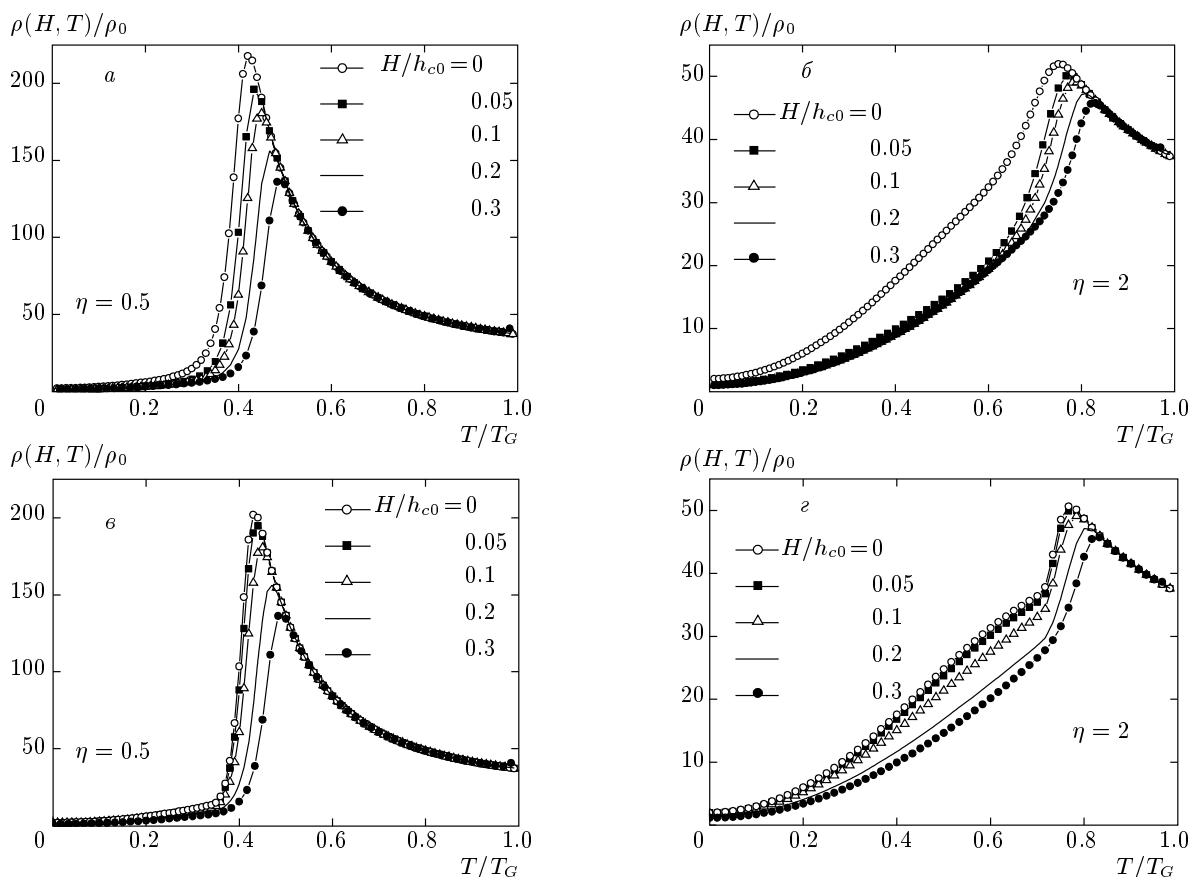


Рис. 4. Температурные зависимости сопротивления систем с $\eta = 0.5$ и $\eta = 2$ при различных значениях внешнего магнитного поля: система A ($a, б$), система B ($в, г$)

магнитичности для системы с преобладающими температурными флуктуациями при температуре ниже температуры Кюри $T/T_G = 0.3$. Отметим, что для систем A, B и C температуры Кюри близки и при $\eta = 0.5$ равны соответственно $T_C/T_G = 0.43, 0.42, 0.45$. Полевые зависимости намагниченности вычислялись по формуле (4), рис. 5 a и $б$ соответствуют отклику системы A ; рис. 5 $в$ и $г$ — системы B ; рис. 5 $д$ и $е$ — системы C . При построении графиков предполагалось, что образец исходно находится в размагниченном состоянии. Затем строились петли так, что увеличивалась амплитуда циклически изменяющегося поля H/h_{c0} . Кривая первоначального намагничивания на рисунках не показана. Максимум сопротивления приходится на поле коэрцитивности H_C , которое легко получить из полевой зависимости намагниченности как значение поля, при котором $M(H_C) = 0$. Это естественно, так как минимум проводимости приходится на состояние с нулевой намагниченностью. Такая корреляция между полевыми зависимостями намагниченности и сопротивле-

ния действительно наблюдается в многочисленных экспериментах (см., например, работы [36, 37] и приведенные там ссылки). Как и ожидалось, для системы B (магнито жесткие материалы), рис. 5 $в, г$, поле коэрцитивности слабо меняется в зависимости от величины приложенного поля (ср. с рис. 14.1 из работы [20]). Для системы A (магнитомягкие материалы), рис. 5 $a, б$, поле коэрцитивности сильно меняется с увеличением внешнего поля. Промежуточное положение занимают системы с симметричным распределением Прейзаха, рис. 5 $д, е$. Поведение $\rho(H, T)$ и $M(H, T)$ для анизотропно-доминирующих систем носит качественно подобный характер, и мы их здесь не приводим. На рис. 6 показана температурная зависимость поля коэрцитивности для систем A, B и C при значениях параметра $\eta = 0.5$ и $\eta = 2$.

Заметим, что частные петли гистерезиса сопротивления, см. рис. 5 $a, в, д$, не лежат внутри максимальных петель, что действительно наблюдается в ряде экспериментов [36, 38, 39]. Таким образом, для гистерезиса сопротивления (в отличие от гисте-

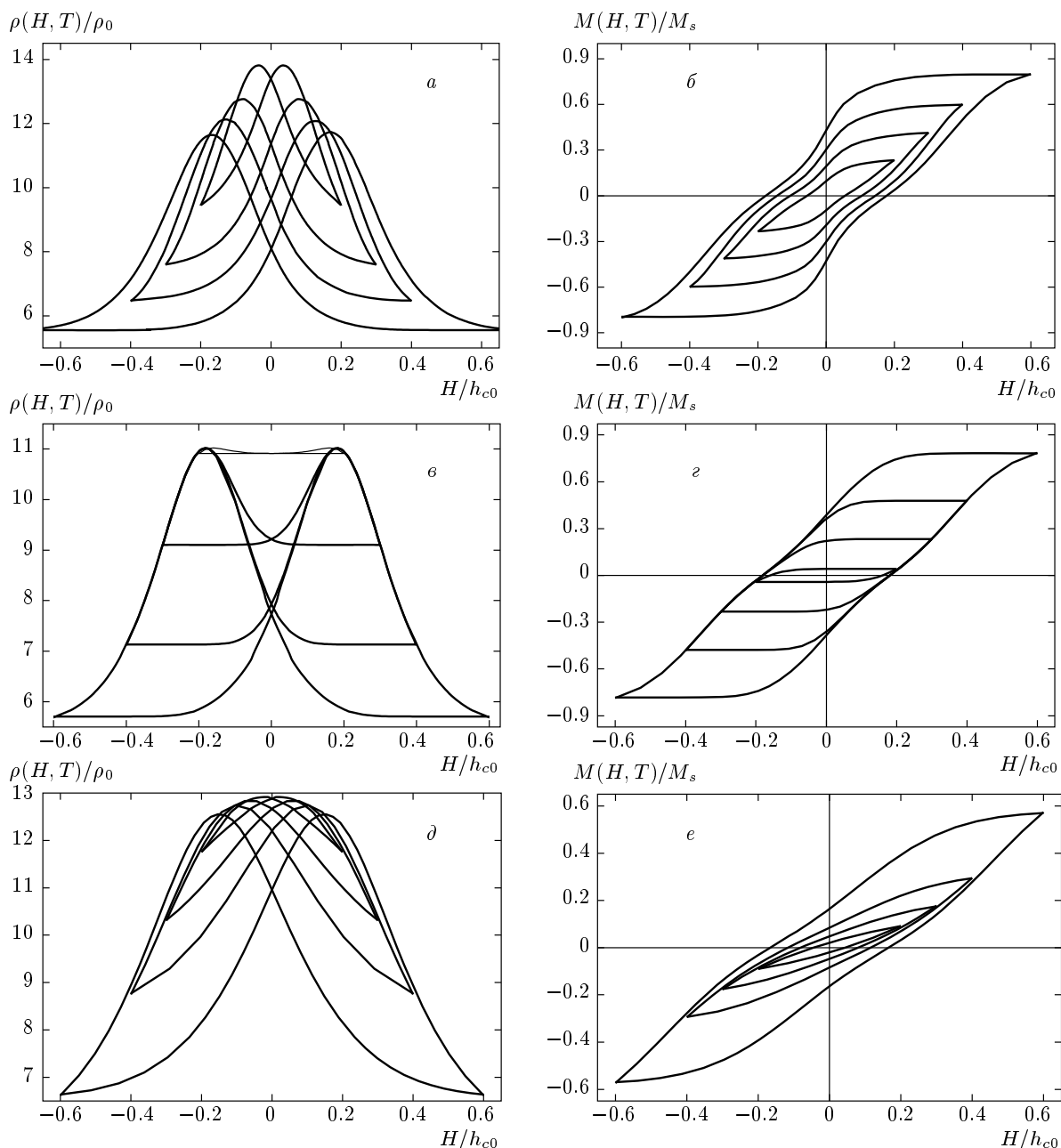


Рис. 5. Петли гистерезиса магниторезистивности и намагниченности системы $\eta = 0.5$ при температуре $T/T_C = 0.3$. Система A (а,б), система B (в,з), система C (д,е)

резиса намагниченности) свойство конгруэнтности не выполняется. Нарушение конгруэнтности для петель гистерезиса сопротивления обусловлено дополнительной работой, выполненной внешними источниками за время цикла Δt . Можно показать [40], что энергия, перешедшая в тепло δQ при бесконечно малом преобразовании системы $\delta b(h_c)$ с гистерезисом, может быть выражена как

$$\delta Q = 2\mu_0 M_s \int_0^\infty h_c |\delta b(h_c)| P(h_c, b(h_c)) dh_c + \sigma_{rev} E^2 \Delta t + \left(\sigma(|M|) + 2M_s \int_0^\infty dh_c \times \right. \\ \left. \times \frac{d\sigma(|M|)}{d|M|} \delta b(h_c) P(h_c, b(h_c)) \right) E^2 \Delta t, \quad (9)$$

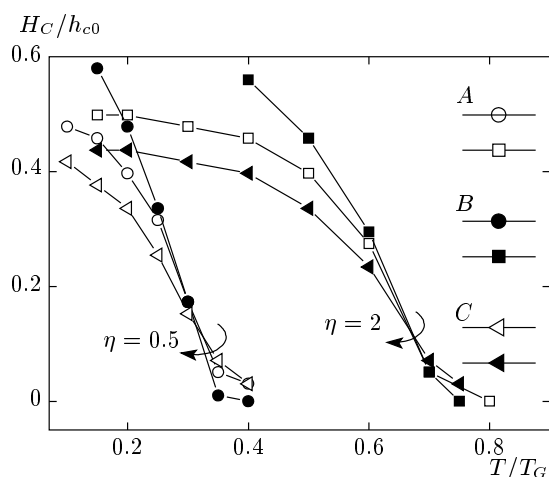


Рис. 6. Температурная зависимость поля коэрцитивности для систем A , B и C ; $H/h_{c0} = 0.6$

где E — внешнее электрическое поле и Δt — время, за которое произошло изменение $\delta b(h_c)$. Первое слагаемое всегда положительно за счет положительности функции распределения Прейзаха $P(h_c, h_u)$. (Это же слагаемое отвечает и за потери для гистерезиса намагниченности [20].) Второе и третье слагаемые — джоулевы потери, причем только последнее слагаемое зависит от намагниченности и отвечает за нарушение условия конгруэнтности петель гистерезиса сопротивления. В общем случае, с повышением поля магнитный порядок системы растет, проводимость возрастает и, следовательно, потери увеличиваются. Заметим, однако, что при определенной конфигурации функции распределения Прейзаха третье слагаемое может быть пренебрежимо малым и свойство конгруэнтности будет выполняться достаточно хорошо и для гистерезиса сопротивления, как, например, в случае системы B , рис. 5в. Выражение (9) обобщает результаты [41] для переменных, не являющихся термодинамически сопряженными (в данном случае, это магнитное поле H и сопротивление ρ).

3.3. Фаза Гриффитса

Область существования фазы Гриффитса определяется температурным интервалом $T_C < T < T_G$. Нижняя граница T_C находится или из температурной зависимости намагниченности при $H \rightarrow 0$ как температура, при которой $M(H, T) \rightarrow 0$, или из температурной зависимости сопротивления как температура пика T_{MI} (см. рис. 3). Нами были построены зависимости $M(H, T)$ во внешнем магнитном поле

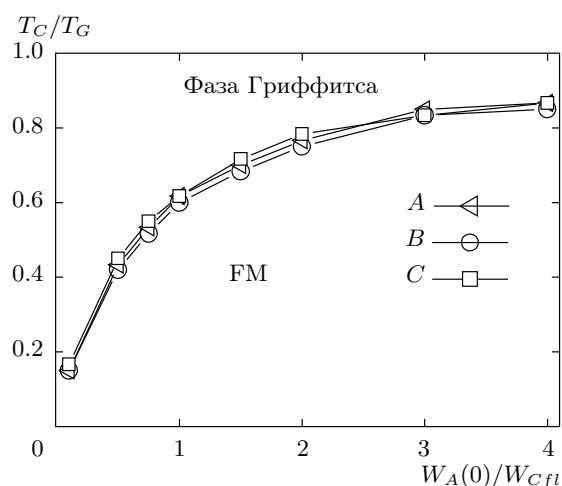


Рис. 7. Зависимость температуры перехода ферромагнитная фаза — фаза Гриффитса от параметра $W_A(0)/W_{Cfl}$. Кривые A , B и C описывают системы с распределением Прейзаха: $A - \Lambda_{c0} \gg \Lambda_{u0}$ (магнитомягкие материалы); $B - \Lambda_{c0} \ll \Lambda_{u0}$ (магнитожесткие); $C - \Lambda_{c0} = \Lambda_{u0}$; $H/h_{c0} = 0$

$H/h_{c0} = 0.05$ (не приводятся) и вычислена температура Кюри T_C/T_G для систем A , B , C при различных значениях параметра η . Установлено, что значения T_C/T_G и T_{MI}/T_G для всех систем практически совпадают.

Анализируя полученные результаты (рис. 3–6) видим, что модель предлагает естественный параметр для качественной классификации допированных манганитов. Этот параметр является отношением характерных энергий $W_A(0)/W_{Cfl}$, определяющих способность системы «сопротивляться» термическим флуктуациям. Для систем с преобладанием анизотропии/коэрцитивности ($W_A(0)/W_{Cfl} > 1$) температурный интервал существования фазы Гриффитса $T_C < T < T_G$ относительно мал. Такие системы демонстрируют небольшой магнито-резистивный эффект. Системы с доминированием термических флуктуаций ($W_A(0)/W_{Cfl} < 1$) будут находиться в фазе Гриффитса в достаточно широком интервале температур и демонстрируют больший магнито-резистивный эффект. Такое поведение характерно для систем с любым видом функции распределения Прейзаха (системы A , B , C). Для выяснения физического смысла отношения $W_A(0)/W_{Cfl}$ на рис. 7 представлена зависимость величины T_C от $\eta = W_A(0)/W_{Cfl}$ во внешнем поле $H/h_{c0} = 0$. Наблюдается увеличение отношения $T_C(\eta)/T_G$ с ростом η . Сравнение поведения $T_C(\eta)/T_G$ с зависимо-

стью $T_C(p)$ (см. рис. 1 в работе [15]) позволяет сделать вывод, что параметр $W_A(0)/W_{Cfl}$ выполняет роль, аналогичную параметру перколяции p в модели Гриффитса. На рис. 7 представлены зависимости T_C/T_G от $W_A(0)/W_{Cfl}$ для систем с разным соотношением параметров Λ_{c0} и Λ_{u0} . Видно, что отношение T_C/T_G систем с данным параметром $W_A(0)/W_{Cfl}$, но с разным распределением Прейзаха фактически совпадают. Из этого можно сделать вывод, что вид функции распределения Прейзаха не влияет на характер зависимости T_C/T_G от отношения $W_A(0)/W_{Cfl}$.

Здесь следует указать и на отличие классической фазы Гриффитса от фазы, подобной фазе Гриффитса, которая реализуется в данной модели. В классической фазе Гриффитса обменные связи нарушены случайно, но, будучи нарушенными, остаются фиксированными относительно кристаллографической решетки. В рассматриваемой модели, как и в допированных манганитах, это не так: проводящее состояние любой наперед выбранной пары гистеронов — металлическое, диэлектрическое или суперпарамагнитное — не является фиксированным, а зависит от внешних воздействий и определяется термодинамической вероятностью, в том числе и термодинамической историей системы. Именно такое поведение является характерным для систем с фазовой сепарацией [1–5, 26].

Транспортные свойства материалов, находящихся в фазе Гриффитса, еще недостаточно изучены, поэтому исследования в этой области представляют самостоятельный интерес. Как уже отмечалось, в фазе Гриффитса рассматриваемая система представляет собой совокупность парамагнитных и разориентированных друг относительно друга ферромагнитных кластеров и демонстрирует обратимый отклик магнитных и транспортных свойств. Для систем с двойным обменом от доли металлической составляющей объема V_m зависит поведение намагниченности и сопротивления в фазе Гриффитса. На рис. 8а представлена зависимость V_m от внешнего магнитного поля. Выше температуры Кюри при разных значениях T/T_G существенная часть (объема) исследуемой системы находится в суперпарамагнитном состоянии, и при $H \rightarrow 0$ доля металлических связей V_m стремится к нулю. В малых полях из-за сильных тепловых флуктуаций значение V_m практически не меняется. Поле должно превысить некоторое «критическое» значение (для больших температур — большее), чтобы образовался бесконечный проводящий кластер, при этом объем металлической фазы становится отличным от нуля.

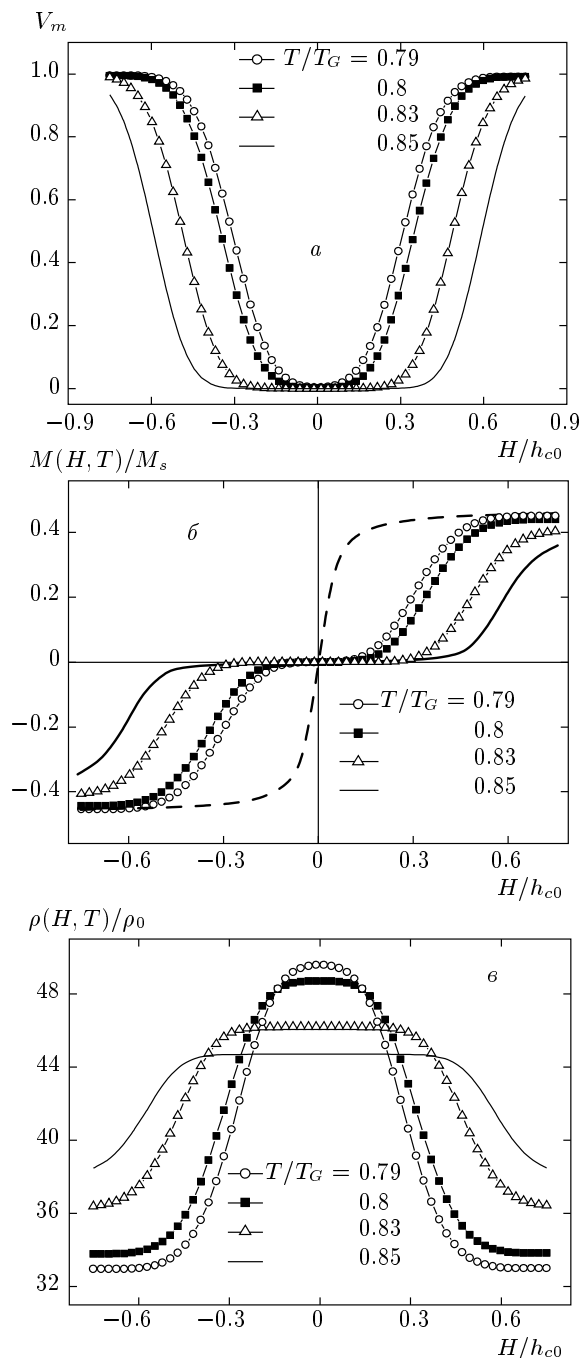


Рис. 8. Характеристики магнитоэжесткой системы в фазе Гриффитса при разных значениях температуры. а) Объем ферромагнитных/металлических кластеров, выражение (5); б) намагниченность, выражение (4), штриховая линия — функция Ланжевена (намагниченность парамагнетика при $T/T_G = 0.79$); в) сопротивление, выражение (6); $W_A(0)/W_{Cfl} = 2$, $T_C/T_G = 0.75$

Полевая зависимость намагниченности, описываемая выражением (4), в фазе Гриффитса в области малых полей отличается специфическим поведением, см. рис. 8б. Для сравнения на рис. 8б приведена также и классическая зависимость намагниченности в парамагнитной фазе — функция Ланжевена (штриховая линия на рис. 8б). Отличие от классического поведения обусловлено именно тем, что намагниченность в фазе Гриффитса пропорциональна ферромагнитной составляющей объема V_m . Тогда в достаточно малых полях намагниченность системы будет практически равна нулю. Намагниченность начнет возрастать только в полях, соответствующих зарождению металлических кластеров.

В соответствие с физикой формирования металлических кластеров в фазе Гриффитса в полевой зависимости сопротивления (выражение (6), рис. 8в) наблюдается широкое плато, высота которого уменьшается с увеличением температуры. Как и в случае с намагниченностью, такое поведение сопротивления связано с тем, что при $T_C < T < T_G$ доля объема с металлическим типом проводимости мала. Уменьшение величины плато сопротивления с ростом температуры связано с ростом вклада поляронного типа проводимости (сплошная линия 2 на рис. 3). Здесь мы приводим результаты для магнито жесткой системы со значением параметра $\eta = 2$. Для других значений параметра η и для других форм распределения Прейзаха полевые зависимости сопротивления и объема металлических кластеров в температурном интервале $T_C < T < T_G$ качественно аналогичны. Отметим, что уширение плато сопротивления и уменьшение его высоты с увеличением температуры действительно экспериментально наблюдались уже в первых работах по исследованию магнито резистивных свойств манганитов (см., например, данные для сопротивления при $T > T_C$ на рис. 2 из работы [42]).

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Развит феноменологический метод описания магнитных и транспортных свойств ферромагнитных манганитов в широком диапазоне температур и магнитных полей. Подход основан на развитии физических представлений, используемых при описании систем с гистерезисом. Формализм последовательно учитывает температурные эффекты, эффекты фазовой сепарации и естественно вводит представление о существовании фазы Гриффитса и соответствующей температуры Гриффитса $T_G > T_C$. Рассмотрены

магнитомягкие и магнито жесткие системы. Различия в поведении этих систем наблюдаются в гистерезисном поведении сопротивления и намагниченности при $T < T_C$; в фазе Гриффитса полевые зависимости намагниченности и сопротивления, а также температурные зависимости указанных величин не зависят от распределения Прейзаха и носят качественно подобный характер. Установлена фундаментальная роль параметра (отношения энергий) $W_A(0)/W_{Cfl}$, характеризующего способность системы сопротивляться термическим флуктуациям и определяющего область существования фазы Гриффитса. В рамках данного подхода с единых позиций удается ввести в рассмотрение и учесть эффекты фазовой сепарации; обосновать и установить область существования фазы Гриффитса; показать, что ниже температуры T_C в отклике системы (намагниченность и сопротивление) на внешние воздействия преобладают необратимые вклады. Показано, что выше температуры T_C в фазе Гриффитса полевые зависимости намагниченности имеют вид, отличный от классического для парамагнитной фазы вида. В целом, удается воспроизвести все основные закономерности, установленные экспериментально для ферромагнитных манганитов в температурном интервале $0 < T < T_G$.

Авторы благодарят Е. В. Мелихова за полезное обсуждение работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. M. Coey, M. Viret, and S. von Molnar, *Adv. Phys.* **48**, 167 (1999).
2. Ю. А. Изюмов, Ю. Н. Скрябин, *УФН* **171**, 121 (2001).
3. M. B. Salamon and M. Jaime, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 583 (2001).
4. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
5. D. M. Edwards, *Adv. Phys.* **51**, 1259 (2002).
6. M. B. Salamon, P. Lin, and S. H. Chun, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 197203 (2002).
7. M. B. Salamon and S. H. Chun, *Phys. Rev. B* **68**, 014411 (2003).
8. J. Deisenhofer, D. Braak, H.-A. Krug von Nidda et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 257202 (2005).
9. P. Y. Chan, N. Goldenfeld, and M. Salamon, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 137201 (2006).

10. W. Jiang, X. Z. Zhou, G. Williams et al., Phys. Rev. B **79**, 214433 (2009).
11. V. M. Kalita, A. F. Lozenko, S. M. Ryabchenko et al., Ukr. J. Phys. **54**, 157 (2009).
12. A. K. Pramanik and A. Banerjee, Phys. Rev. B **81**, 024431 (2010).
13. S. K. Misra, S. I. Andronenko, S. Asthana, and D. Bahadur, J. Magn. Magn. Mater. **322**, 2902 (2010).
14. Y. Ying, T. W. Eom, N. V. Dai, and Y. P. Lee, J. Magn. Magn. Mater. **323**, 323 (2011).
15. R. Griffiths, Phys. Rev. Lett. **23**, 17 (1969).
16. A. J. Bray, Phys. Rev. Lett. **59**, 586 (1987).
17. T. V. Ramakrishnan, J. Phys.: Condens. Matter **19**, 125211 (2007).
18. V. N. Krivoruchko, Y. V. Melikhov, and D. C. Jiles, Phys. Rev. B **77**, 180406(R) (2008).
19. V. N. Krivoruchko, M. A. Marchenko, and Y. Melikhov, Phys. Rev. B **82**, 064419 (2010).
20. G. Bertotti, *Hysteresis in Magnetism*, Academic, New York (1998).
21. F. Preisach, Z. Phys. **94**, 277 (1935).
22. C. R. Pike, A. P. Roberts, and K. L. Verosub, J. Appl. Phys. **85**, 6660 (1999).
23. T. Song, R. M. Reshko, and E. Dan Dahlberg, J. Phys.: Condens. Matter **13**, 3443 (2001).
24. V. Basso, C. Beatrice, M. LoBue et al., Phys. Rev. B **61**, 1278 (2000).
25. В. Н. Криворучко, М. А. Марченко, ФНТ **34**, 947 (2008).
26. M. Fäth, S. Freisem, A. A. Menovsky et al., Science **285**, 1540 (1999).
27. N. Panwar, A. Rao, R. S. Singh et al., J. Appl. Phys. **104**, 083906 (2008).
28. K. Kubo and N. Ohata, J. Phys. Soc. Jpn. **33**, 21 (1972).
29. M. Viret, L. Ranno, and J. M. D. Coey, Phys. Rev. B **55**, 8067 (1997).
30. G. J. Snyder, C. H. Booth, F. Bridges et al., Phys. Rev. B **55**, 6453 (1997).
31. В. Н. Криворучко, С. И. Харцев, ФНТ **24**, 1070 (1998).
32. M. Jaime, H. T. Hardner, M. B. Salamon et al., Phys. Rev. Lett. **78**, 915 (1997).
33. N. F. Mott and E. A. Davis, *Electronic Processes in Non-Crystalline Materials*, Clarendon, Oxford (1979).
34. С. В. Вонсовский, *Магнетизм*, Наука, Москва (1971).
35. М. А. Красносельский, А. В. Покровский, *Системы с гистерезисом*, Наука, Москва (1983).
36. M. D. Coey, Phil. Trans. Roy. Soc. A **356**, 1519 (1998).
37. M. Ziese, Rep. Progr. Phys. **65**, 143 (2002).
38. J. Rivas, L. E. Hueso, A. Fondado et al., J. Magn. Magn. Mater. **221**, 57 (2000).
39. M. M. Savosta, V. N. Krivoruchko, I. A. Danilenko et al., Phys. Rev. B **69**, 024413 (2004).
40. Y. Melikhov, V. N. Krivoruchko, and D. C. Jiles, *Joint European Magnetic Symposia*, Krakow, Poland, 23–28 August 2010 (abstract # 315, p. 146).
41. G. Bertotti, Phys. Rev. Lett. **76**, 1739 (1996).
42. C. L. Canedy, K. B. Ibsen, G. Xiao et al., J. Appl. Phys. **79**, 4546 (1996).