

Сравнение механизмов отрицательного магнитосопротивления в марганцевых перовскитах и хромовых шпинелях

© В.А. Гавричков, Н.Б. Иванова, С.Г. Овчинников, Т.Г. Аминов*, А.Д. Балаев, Г.Г. Шабунина*, В.К. Чернов**, М.В. Петухов**

Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук, 660036 Красноярск, Россия

* Институт общей и неорганической химии им. Н.С. Курнакова Российской академии наук, 117907 Москва, Россия

** Красноярский государственный технический университет, 660074 Красноярск, Россия

E-mail: gav@iph.krasnoyarsk.su

(Поступила в Редакцию 22 декабря 1998 г.)

В вырожденном ферромагнитном полупроводнике $\text{HgCr}_2\text{Se}_4(n)$ наблюдался переход в полевой зависимости электросопротивления от квадратичной ($\sim H^2$) выше T_c к линейной ($\sim H$) ниже T_c . Наряду с большим отрицательным магнитосопротивлением эти магнитоэлектрические эффекты соответствуют эффектам, наблюдаемым на перовскитоподобных оксидах $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$. Поскольку нелегированный полупроводник HgCr_2Se_4 является ферромагнетиком приблизительно с той же критической температурой, что и легированный, а какие-либо сведения об эффекте Яна–Теллера в этом соединении отсутствуют, мы считаем, что наши результаты ставят под сомнение существующие гипотезы (поляронную и двойного обмена) происхождения гигантского магнитосопротивления в $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$. В качестве возможного механизма магнитосопротивления для обоих соединений обсуждается механизм примесного *sd*-рассеяния.

Детальный анализ магнитосопротивления тонких пленок перовскитоподобного оксида $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$ показывает, что температурная и полевая зависимости электросопротивления полностью обусловлены только намагниченностью при температурах как выше, так и ниже T_c [1]. Причем в соответствии с представлениями о носителях тока как о поляронах малого радиуса $\rho(M) \approx \rho(0)(1 - \gamma M^2)$ [2–4]. Авторы [1] наблюдали резкий переход в низкополевой ($H \rightarrow 0$) зависимости электросопротивления от квадратичной ($\sim H^2$) выше T_c к линейной ($\sim H$) ниже T_c . В соответствии с поляронными представлениями при всех температурах, как выше T_c , так и ниже T_c , должна наблюдаться отрицательная кривизна в низкополевой зависимости электросопротивления [2–4]. Однако ниже T_c экспериментальные зависимости имеют положительную кривизну [1]. Более того, в [5] в образцах этих же составов была обнаружена зависимость электросопротивления от направления намагниченности. Обнаруженная значительно ранее аналогичная анизотропия магнитосопротивления для переходных металлов была хорошо понята в терминах *sd*-рассеяния [6]. Все это — новые вопросы для теории электропроводности в оксидах переходных металлов.

Цель настоящей работы — сравнение экспериментальных зависимостей магнитосопротивления ферромагнитного полупроводника $\text{HgCr}_2\text{Se}_4(n)$, полученных при температурах выше и ниже температуры магнитного фазового перехода T_c , с аналогичными зависимостями для $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$. Подобно последним, вырожденный магнитный полупроводник $\text{HgCr}_2\text{Se}_4(n)$ обладает большим отрицательным магнитосопротивлением ($\Delta\rho/\rho \approx 100\%$) с пиком в области T_c . Согласно

зонным расчетам [7], дно зоны проводимости в данном соединении имеет *4s-3d*-характер. В работе [8] был предложен *4s-3d*-механизм примесного рассеяния носителей в нестехиометричных магнитных полупроводниках, согласно которому температурная и полевая зависимости электросопротивления определяются соответствующими зависимостями намагниченности: $\rho = \rho(M(T, H))$. Результаты расчета [9] для $\text{HgCr}_2\text{Se}_4(n)$, основанные на этом механизме рассеяния, имеют хорошее соответствие как с самим наличием большого отрицательного магнитосопротивления, так и с его температурной зависимостью для этого нестехиометричного соединения. Поэтому естественно предположить, что, исходя из одного и того же механизма *sd*-рассеяния, и в случае этого соединения могут иметь место перечисленные выше особенности магнитосопротивления.

Для идентификации механизма рассеяния, приводящего к гигантскому отрицательному магнитосопротивлению, мы провели наблюдение аналогичных [1] низкополевых зависимостей электросопротивления для $\text{HgCr}_2\text{Se}_4(n)$ как выше, так и ниже T_c . Как и в [1], мы наблюдали переход от квадратичного поведения магнитосопротивления выше T_c к линейному ниже T_c . Более того, в последнем случае также наблюдался отдельный пик в магнитосопротивлении, накладывающийся на линейную полевую зависимость и косвенно свидетельствующий о существовании зависимости электросопротивления от направления магнитного поля. Подчеркнем, что мы имели дело с совершенно отличным от $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$ соединением, вероятно объединенным с ним лишь общностью фазового расслоения на проводящие и непроводящие фазы [10] и одним и тем же механизмом рассеяния.

Механизм воздействия двойного обмена на магнитосопротивление исключен: нелегированное соединение HgCr_2Se_4 является ферромагнитным полупроводником с $T_c = 106$ К. С повышением уровня легирования или нестехиометрии температура Кюри лишь незначительно возрастает, тогда как подвижность носителей в T_c возрастает примерно на два порядка [11]. Какие-либо данные об эффекте Яна–Теллера отсутствуют. Таким образом, представления о поляронной природе носителей в случае этого соединения также должны быть исключены из рассмотрения. Реально мы можем иметь дело с рассеянием на спиновом беспорядке и рассеянии на дефектах нестехиометрии. Однако сильная концентрационная зависимость подвижности при низких температурах [11] свидетельствует в пользу последнего.

1. Образцы и методика измерений

Монокристаллические образцы были приготовлены по технологии, описанной в [12], и впоследствии подвергнуты дополнительному отжигу в парах ртути при давлении паров $P = 4.1$ ат. и температуре $T = 350^\circ\text{C}$ для образца 1 и $P = 2.7$ ат., $T = 428^\circ\text{C}$ для образца 2. Такой отжиг позволяет получать вырожденные образцы HgCr_2Se_4 n -типа с концентрацией носителей, слабо зависящей от температуры. Контакты к образцам для резистивных измерений были изготовлены путем микросварки с последующим применением ртутно-индиевой амальгамы. В качестве подводящих проводов использовался тонкий серебряный провод диаметром $6\ \mu\text{m}$. Четыре контакта располагались вдоль одной линии для резистивных измерений и по углам квадрата — для холловских измерений на большой грани образца. Магнитное поле до $7\ \text{T}$ создавалось сверхпроводящим соленоидом.

Эдс Холла, полученная как разность напряжений на потенциальных контактах при противоположных направлениях поля, оказалась практически постоянной в интервале температур $4.2\text{--}160\ \text{K}$, что говорит о слабой зависимости концентрации носителей от температуры. Магнитотранспортные измерения были проведены в диапазоне полей $H = 0\text{--}6\ \text{T}$ при двух температурах $T = 4.2$ и $125\ \text{K}$ для первого, $T = 4.2$ и $111\ \text{K}$ для второго образца. Магнитное поле было приложено вдоль направления тока. В работе анализируется начальный участок магнитополевой зависимости удельного электросопротивления ρ при H , меньшем $0.6\ \text{T}$. На рис. 1, a, b приведены полевые зависимости электросопротивления для двух исследуемых образцов при температурах $T = 125\ \text{K}$ для первого и $T = 111\ \text{K}$ для второго образца, что в обоих случаях выше $T_c = 106\ \text{K}$. На рис. 2, a, b приведены полевые зависимости электросопротивления при температуре $T = 4.2\ \text{K}$ для тех же образцов.

2. Результаты измерений

На рис. 1, a, b полевые зависимости электросопротивления для двух исследуемых образцов имеют квадратичный характер: $\rho(H)|_{H \rightarrow 0} \sim H^2$. На рис. 2, a, b электросопротивление с ростом поля сначала увеличивается, а затем, достигнув максимума, монотонно уменьшается в более высоких полях. Выделенные из этих данных линейные зависимости и оставшиеся пики магнитосопротивления приведены на рис. 2, a, b и c, d соответственно. Наиболее замечательной особенностью всей совокупности экспериментальных данных является переход от квадратичной зависимости электросопротивления (рис. 1, a, b) выше T_c к линейной ниже T_c (рис. 2, a, b). Наличие пика в магнитосопротивлении, накладывающегося при низких полях на линейную зависимость, может быть отнесено к проявлению зависимости электросопротивления от угла между направлением намагниченности и направлением тока в присутствии процессов вращения намагниченности. Амплитуда пика стремится к нулю при $T \rightarrow T_c$. Каждому из двух образцов

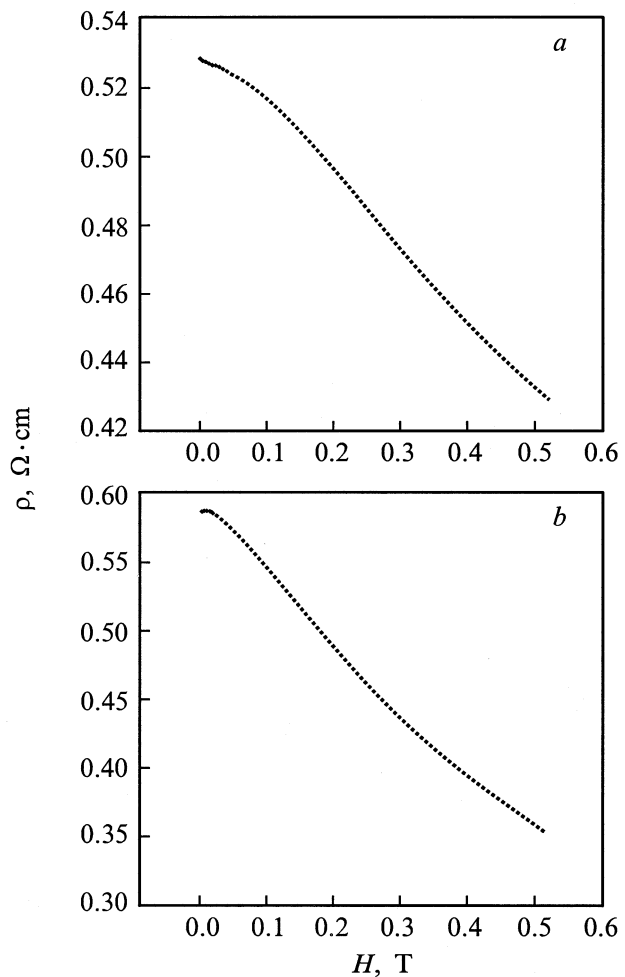


Рис. 1. Полевая зависимость электросопротивления при температуре $T = 125\ \text{K}$ для первого (a) и при $T = 111\ \text{K}$ для второго (b) образца.

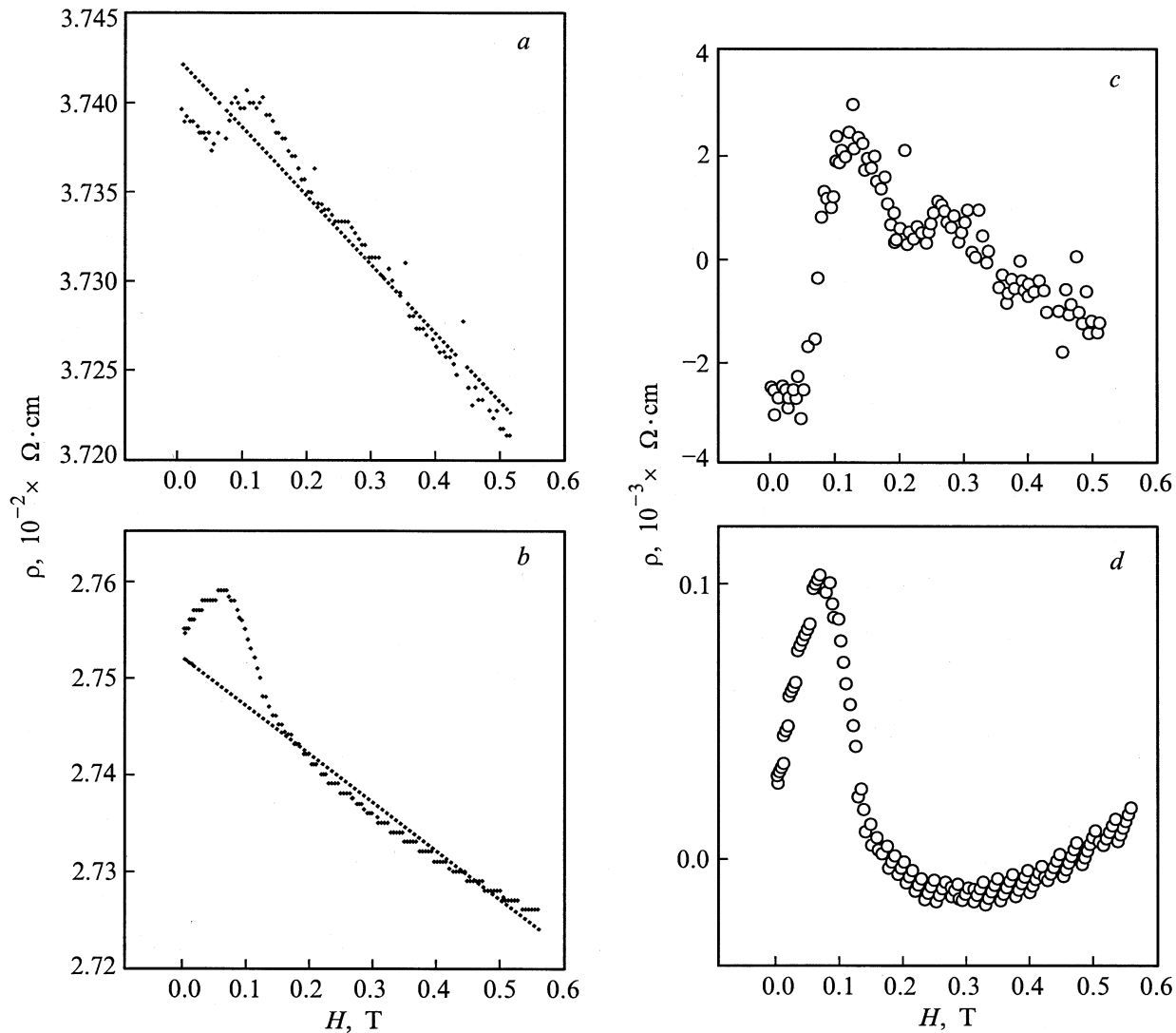


Рис. 2. Полевая зависимость электросопротивления для первого (a) и второго (b) образцов при температуре $T = 4.2$ К и выделенные из них линейные зависимости. Остаточное положительное магнитосопротивление: (c, d) для первого и второго образцов соответственно.

соответствует свое значение поля, при котором наблюдается максимум, и свое значение амплитуды самого максимума. Дополнительные измерения, направленные на явное выделение зависимости магнитосопротивления от угла между приложенным полем и направлением тока, не проводились. Однако уже имеющиеся данные обнаруживают сходство с результатами, полученными на эпитаксиальных пленках $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$ [5]. Напомним, что в объемных образцах $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$ анизотропия магнитосопротивления не наблюдалась до сих пор.

3. Обсуждение результатов

Таким образом, наблюдая сходные полевые зависимости электросопротивления в совершенно различных соединениях $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_\delta$ и $\text{HgCr}_2\text{Se}_4(n)$, мы приходим к выводу о том, что наряду с механизмом воздействия

двойного обмена на магнитосопротивление и поляронной природой носителей примесный механизм sd -рассеяния может иметь место в качестве первопричины для большого отрицательного магнитосопротивления.

Соответствующая теория, основанная только на представлениях о sd -механизме рассеяния, также воспроизводит искомый переход от квадратичной зависимости электросопротивления выше T_c к линейной ниже T_c [13]. В основе этих теоретических представлений лежат результаты расчета зонной структуры магнитного полупроводника с учетом сильных кулоновских корреляций носителей в $3d$ -состояниях хрома [14]. Согласно этим расчетам, зоны $4s$ - и $3d$ -состояний ведут себя совершенно различным образом: если зона более диффузных $4s$ -состояний с понижением температуры сильно расщепляется по спину за счет sd -обмена, амплитуда парциальной плотности $3d$ -состояний, соответствующих

переходу ${}^4A_2 \leftrightarrow {}^5E$, меняется без изменения энергии самих состояний. Сдвиги d -зоны возможны только за счет гейзенберговского обмена, но они порядка $T_c \approx 0.01$ К и много меньше sd -обменного взаимодействия. В результате доли $4s$ - и $3d$ -состояний, а также эффективный параметр гибридизации между ними сильно изменяются в соответствии с намагниченностью полупроводника. Вместе с ними меняется распределение носителей по $4s$ - и $3d$ -каналам рассеяния, а также скорость релаксации в последнем. Как показывают расчеты [13], скачок в температурной зависимости электросопротивления и пик магниторезистивного отношения должен наблюдаться при $T \leq T_c$, а амплитуда эффекта зависит от конкретных особенностей рассеяния носителей в $3d$ -канале. Анизотропия магнитосопротивления в этом случае становится естественным следствием спин-орбитального взаимодействия, как это имело место для ферромагнитных переходов металлов [6].

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 99-02-17405), а также ФЦП "Поддержка интеграции высшего образования и фундаментальной науки" (грант № 69).

Список литературы

- [1] J. O'Donnell, M. Onellion, M.S. Rzchowski, J.N. Eckstein, J. Bozovic. *Phys. Rev.* **B54**, 10, R6841 (1996).
- [2] N. Furukawa. *J. Phys. Soc. Jpn.* **63**, 3214 (1994).
- [3] J. Inoue, S. Maekawa. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3407 (1995).
- [4] A.J. Millis, P.B. Littlewood, B.I. Shraimen. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 5144 (1995).
- [5] J.N. Eckstein, I. Bozovic, J. O'Donnell, M. Onellion, M.S. Rzchowski. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 9, 1312 (1996).
- [6] R.I. Potter. *Phys. Rev.* **B10**, 4626 (1974); A.P. Malozemoff. *Phys. Rev.* **B32**, 6080 (1985).
- [7] T. Kambara, T. Oguchi, G. Yokoyama, K.I. Gondaira. *Jpn. J. Appl. Phys.* **19**, 223 (1980).
- [8] В.А. Гавричков, М.Ш. Ерухимов, С.Г. Овчинников. Препринт № 452Ф. Ин-т физики им. Л.В. Киренского **18** (1987).
- [9] В.А. Гавричков, С.Г. Овчинников. *ФТТ* **41**, 1, 68 (1999).
- [10] Э.Л. Нагаев. *ФТТ* **43**, 11, 2069 (1998).
- [11] A. Selmi, A. Mauger, M. Heritier. *J. Appl. Phys.* **57**, 1, 3216 (1985); A. Selmi et al. *JMMM* **66**, 3, 295 (1988).
- [12] Т.Г. Аминов, В.Т. Калинин, В.Е. Махоткин, Л.И. Очертянова, Г.Г. Шабунина. *Неорганические материалы* **12**, 1299 (1976); В.Т. Калинин, Т.Г. Аминов, А.А. Бабицына, А.В. Зачатская, Н.П. Лужная, В.П. Турчанов, М.А. Чернищина, Г.Г. Шабунина, Н.П. Шапшева. *Магнитные полупроводниковые шпинели типа $CdCr_2Se_4$* . Штиинца, Кишинев (1978). 150 с.
- [13] V.A. Gavrichkov, S.G. Ovchinnikov. *Phys.* **B259–261**, 828 (1999).
- [14] В.А. Гавричков, С.Г. Овчинников, М.Ш. Ерухимов, И.С. Эдельман. *ЖЭТФ* **90**, 1275 (1986).