

УДК 538.915;538.955

## ИССЛЕДОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ ПРОВОДИМОСТИ $\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25}\text{MnO}_3$ В ОКРЕСТНОСТИ ФЕРРОМАГНИТНОГО ПЕРЕХОДА ПОСРЕДСТВОМ ОДИНОЧНЫХ ИМПУЛЬСОВ ТОКА

© 2008 г. В. Б. Красовицкий, Б. И. Белевцев

Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины, Харьков  
E-mail: belevtsev@ilt.kharkov.ua

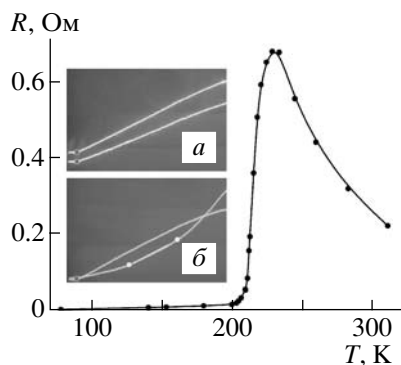
Измерены зависимости сопротивления образца  $\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25}\text{MnO}_3$  от температуры и величины тока с помощью одиночных линейно нарастающих во времени импульсов тока. Обнаружено, что при температурах, близких к температуре Кюри  $T_C$ , сопротивление образца существенно зависит от величины тока. Наблюдаемые особенности могут быть связаны с неоднородным джоулевым разогревом образца, обусловленным смешанным фазовым состоянием манганитов вблизи фазового перехода ферромагнетик–парамагнетик и перколяционным характером этого перехода.

В последние годы интенсивно исследуются сложные оксиды марганца со структурой перовскита, известные как манганиты с общей формулой  $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$ , где  $R$  – редкоземельный,  $A$  – щелочно-земельный элементы. Большой интерес к манганитам обусловлен их уникальными физическими свойствами и возможностями их практического применения. Одним из таких свойств является колоссальное (отрицательное) магнетосопротивление вблизи температуры Кюри  $T_C$  перехода из парамагнитного (ПМ) в ферромагнитное (ФМ) состояние. Этот переход нередко сопровождается настолько сильным (в десятки раз) уменьшением электросопротивления, что это выглядит как переход изолятор–металл. Величина эффекта зависит от кристаллического совершенства образцов, их химического состава, а также она очень чувствительна к внешним воздействиям, в частности к магнитному и электрическому полям. В известных работах по изучению влияния электрического поля (или тока  $J$ ) в массивных и пленочных образцах манганитов (например, в [1–4]) в той или иной степени наблюдался эффект джоулева разогрева образцов измерительным током. Этот эффект может приводить к термической бистабильности в металлах, в которых в области фазовых переходов наблюдается ступенчатая зависимость сопротивления от температуры с положительным температурным коэффициентом [5].

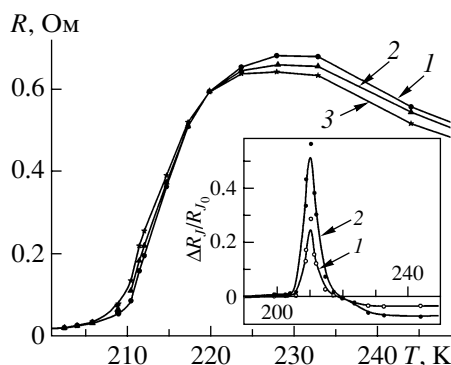
В настоящей работе исследованы нелинейные эффекты в проводимости массивного образца  $\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25}\text{MnO}_3$ , выращенного методом плавающей зоны с радиационным разогревом [6, 7]. Структура образца была близка к монокристаллической. Для измерений использовали часть образца, исследованного ранее в [6]. Известно [6–8], что переход ПМ–ФМ в этой системе является переходом I рода и носит перколяционный характер. В

области перехода система неоднородна и состоит из смеси ПМ- и ФМ-фаз. Эффекты неомичности в таких системах обусловлены прежде всего джоулевым разогревом, который приводит к повышению температуры образца. Однако в неоднородных системах и джоулев разогрев может быть неоднородным. Цель настоящего исследования – выявление таких эффектов. Для этого поведение проводимости образца в области ПМ–ФМ-перехода изучали посредством одиночных линейно нарастающих во времени импульсов тока (в квазиadiaбатическом режиме). Это позволило избежать слишком сильного глобального разогрева образца (по сравнению с известными исследованиями на постоянном токе) при одновременном обеспечении достаточно большой величины измерительного тока, что дало возможность выявить особенности электропереноса в такой неоднородной среде.

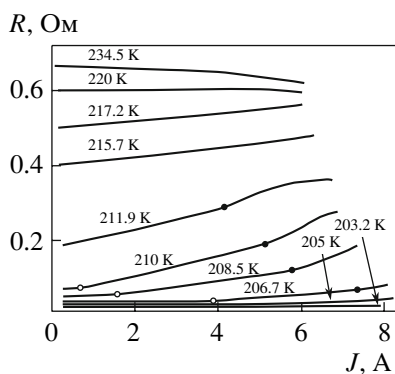
Измерения были проведены в интервале температур 77–320 К. Образец ( $2 \times 2 \times 3$  мм<sup>3</sup>) был приклеен к медной пластинке (покрытой тонкой изолирующей прослойкой), расположенной в камере с сильно разреженным газообразным гелием ( $10^{-3}$ – $10^{-4}$  мм рт. ст.), погруженной в жидкий азот. Токосъемные и потенциальные контакты к образцу припаивали индием. Электрические измерения проводили по стандартной четырехзондовой методике с использованием одиночных импульсов тока, линейно нарастающих во времени (“пилообразной” формы), длительностью  $t_p$  от 0.25 до 5 мс и амплитудой  $J_{\max}$  до 10 А (максимальная плотность тока  $\approx 2.5 \cdot 10^2$  А/см<sup>2</sup>). Рабочий диапазон длительности импульсов тока был подобран так, чтобы длительность  $t_p$ , с одной стороны, превышала характерные времена магнитной релаксации такого рода манганитных образцов и, с другой стороны, отвечала желательной минимизации тепловыделения на образце. Последнее определяется не только длительно-



**Рис. 1.** Температурное изменение сопротивления образца в омическом режиме. На вставке: пример осциллограмм падения напряжения (верхние кривые) и тока (нижние кривые);  $t_p = 3.6$  мс и  $J_{\max} = 8$  А, тип 1 (а) и тип 2 (б).



**Рис. 2.** Зависимость сопротивления образца от температуры при токах 2.7, 5.4 и 8 А (кривые 1, 2 и 3 соответственно). На вставке: температурная зависимость  $\Delta R_J(T)/R_{J_0}(T) = [R_J(T) - R_{J_0}(T)]/R_{J_0}(T)$  (см. текст); 1 –  $J = 5.4$  А, 2 –  $J = 8$  А.



**Рис. 3.** Зависимость сопротивления образца от величины тока при различных температурах.

стью импульса тока, но и его амплитудой, а также величиной сопротивления образца, которое при ПМ–ФМ-переходе (в интервале 200–230 К) изменяется в ~40 раз (рис. 1). После охлаждения образ-

ца до температуры жидкого азота измерения проводили при фиксированных температурах. При этом сигнал–отклик падения напряжения на образце  $U(t)$  и сигнал, пропорциональный величине тока через образец  $J(t)$ , одновременно регистрировались на двухлучевом запоминающем осциллографе В6-9. На рис. 1 (вставка) представлены два типа характерных осциллограмм:  $U(t)$  и  $J(t)$ . В одном случае кривые тока и напряжения подобны друг другу (тип 1, рис. 1, вставка а). В другом случае (в области резкого повышения сопротивления при ФМ–ПФ-переходе) на кривых  $U(t)$  проявляются два четких излома (тип 2, рис. 1, вставка б).

Зависимости сопротивления от температуры при заданном токе  $R_J(T)$  и сопротивления от тока при заданной температуре  $R_T(J)$  определены по данным соответствующих осциллограмм  $U(t)$  и  $J(t)$ . Для построения зависимостей  $R_J(T)$  использованы импульсы тока различной длительности и амплитуды. Для получения базовой, не искаженной влиянием тока зависимости  $R_0(T)$  (рис. 1), обрабатывались данные для коротких импульсов тока небольшой амплитуды  $t_p = 0.25$  мс;  $J_{\max} = 1$  А. При таких параметрах реализовались осциллограммы первого типа (рис. 1), что указывает на выполнение закона Ома. Полученная зависимость  $R_0(T)$  совпадает с зависимостью  $R(T)$ , измеренной [6] на этом же образце при малых постоянных токах менее 5 мА.

На рис. 2 показаны зависимости  $R_J(T)$  для трех значений тока 2.7, 5.4 и 8 А, которые реализуются соответственно через 0.25, 0.5 и 0.75 мс после начала импульса. При любой температуре джоулев разогрев приводит к повышению температуры образца. Зависимость  $R(T)$  в омическом режиме – это кривая с довольно резким максимумом при  $T_p \approx 230$  К (рис. 1). Ясно, что при  $T < T_p$  джоулев нагрев должен повышать сопротивление, а выше  $T_p$  – понижать, что в первом приближении и наблюдается. На вставке рис. 2 представлена температурная зависимость относительного изменения сопротивления при изменении тока  $\Delta R_J(T)/R_{J_0}(T) = [R_J(T) - R_{J_0}(T)]/R_{J_0}(T)$ , где  $R_{J_0}(T)$  – сопротивление, измеренное при минимальном токе. Характерно, что пик  $\Delta R_J(T)$  находится в области наиболее крутого возрастания сопротивления при этом магнитном переходе ( $\approx 210$  К).

Существенные особенности нелинейного поведения проявились на токовых зависимостях сопротивления  $R_T(J)$  в интервале температур 200–240 К (рис. 3). Ниже температур  $\approx 203$ –205 К сопротивление образца не зависит от тока (в изученном интервале токов). Выше  $\approx 214$ –215 К сопротивление возрастает с током (осциллограммы типа 1, рис. 1, вставка а), а выше  $\approx 220$  К – возрастает при малых токах, но при достаточно больших токах – начинает убывать, что согласуется с данными рис. 2. Все

это соответствует ожидаемому влиянию джоулева разогрева для достаточно однородных систем (см. похожие результаты для системы  $\text{La-Ca-Mn-O}$  [1, 2]).

В интервале  $\approx 205\text{--}214$  К, однако, кривые  $R_T(J)$  демонстрируют совершенно другой характер нелинейности с двумя изломами, характерными для осциллограмм типа 2 (рис. 1, вставка б). Это поведение не соответствует влиянию джоулева разогрева для однородных систем и, по-видимому, обусловлено некоторыми особенностями исследованного магнитного перехода I рода. В этом температурном интервале магнитного перехода система наиболее неоднородна и состоит из смеси ПМ- и ФМ-фаз [6, 7, 8]. Первый излом, наблюдаемый при меньших значениях тока, связан с началом заметного влияния джоулева разогрева образца. Об этом свидетельствует совпадение моментов начала заметного изменения сопротивления с током при разных температурах (не заполненные точки на рис. 3) с соответствующими моментами резкого возрастания во времени по степенному закону энергии, выделяемой на образце  $Q_R = J(t)^2 R(t) t \sim t^n$  ( $n \approx 4$ ). Второй излом на зависимостях  $R_T(J)$  (рис. 3, заполненные точки) наблюдается при гораздо больших токах и, как и первый излом, смещается в сторону меньших токов при увеличении температуры. Среднее повышение температуры образца к моменту появления второго излома можно определить по величине изменения сопротивления от начала импульса до данного излома, сравнив эту величину с зависимостью  $R_J(T)$  при минимальном токе (рис. 1). В интервале температур  $210\text{--}214$  К это изменение составляет  $\approx 0.1$  Ом, что соответствует разогреву образца всего лишь на 2 К. Соответствующая оценка нагрева образца, выполненная в предположении адиабатического характера процесса по формуле  $\Delta T = Q_R/mC$  ( $m$  и  $C$  – масса и теплоемкость образца), дает близкую величину. Отметим, что сопротивление токовых контактов при всех температурах существенно ниже сопротивления образца и не может являться причиной его нагрева. Об этом свидетельствует независимость сопротивления образца от величины тока при температурах ниже  $\approx 203$  К, т.е. при значениях сопротивления образца, меньших нескольких сотых Ома.

Исследованный в настоящей работе образец был изучен ранее в [6], где были измерены сопротивление (на постоянном токе), намагниченность, скорость и поглощение звука. Наблюдаемые в [6] аномалии свойств вблизи ПМ–ФМ-перехода интерпретированы на основе существования многофазного состояния вблизи  $T_C$ . Известно [7, 8], что в этой системе ФМ-кластеры могут присутствовать при температурах выше  $T_C$ , в то время как некоторое количество ПМ диэлектрических кластеров может сохраняться существенно ниже  $T_C$ . Такая ситуация подразумевает перколяционный характер перехода ФМ – ПМ. Это послужило основой и при интерпретации результатов настоящей работы.

При повышении температуры вблизи  $T_C$  объемная доля ФМ-фазы уменьшается, а доля ПМ-фазы растет. Вблизи порога протекания проводимость системы определяется небольшим количеством высокопроводящих ФМ перколяционных каналов (шнуров). В этих условиях возможен неоднородный джоулев нагрев, чему способствует подача коротких импульсов тока, при которой локально генерируемое тепло не успевает рассеиваться в окружающую среду за время измерения. Ранее неоднородный джоулев нагрев наблюдали на постоянном токе в тонких и узких пленках  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  шириной около 50 мкм [3], что позволяло достигать значительных плотностей тока. В этой работе наблюдались скачки сопротивления при превышении величины тока некоторых критических значений (зависящих от температуры). Такого рода скачки характерны при возникновении бистабильного состояния в области фазовых переходов с S-образной вольт-амперной характеристикой [5] (что наблюдали и для пленок манганитов [4]). Нестабильные состояния такого типа при больших токах возможны, в принципе, и для однородных систем. Присущая же манганитам неоднородность в области фазовых переходов способствует усилению такого рода эффектов. Действительно, большой локальный перегрев в области перколяционных ФМ токовых каналов приводит к переходу, по крайней мере, части этих каналов в ПМ-состояние, так что вместо сплошного проводящего канала образуется цепочка изолированных ФМ-островков в диэлектрической ПМ-матрице. Это приводит к резкому повышению сопротивления всей системы, и именно эти процессы отражаются в осциллограммах типа 2 (рис. 1, вставка б). Таким образом, импульсная методика позволила обнаружить проявление неоднородной перколяционной структуры в массивном образце манганита вблизи фазового перехода, что согласуется с результатами исследования другими методами [6–8].

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Sudheendra L., Rao C.N.R.* // J. Appl. Phys. 2003. V. 94. P. 2767.
2. *Gao J., Shen S.Q., Li T.K., Sun J.R.* // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 82. P. 4732.
3. *Palanisami A., Weissman M.B., Mathur N.D.* // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. 094419.
4. *Imamori S., Tokunaga M., Hakuta S., Tamegai T.* // Appl. Phys. Lett. 2006. V. 89. 172508.
5. *Gurevich A.V., Mints R.G.* // Rev. Mod. Phys. 1987. V. 59. P. 941.
6. *Belevtsev B.I., Zvyagina G.A., Zhekov K.R. et al.* // Phys. Rev. B. 2006. V. 74. 054427.
7. *Belevtsev B.I., Naugle D.G., Rathnayaka K.D.D. et al.* // Physica. B. 2005. V. 355. P. 341.
8. *Белевцев Б.И.* // Физика низких температур. 2004. Т. 30. С. 563; *Belevtsev B.I.* // Low Temp. Phys. 2004. V. 30. P. 421.