

ВЛИЯНИЕ МАГНИТНОГО ПОЛЯ НА МЕХАНИЗМЫ ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТИ МОДИФИЦИРОВАННЫХ ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ ОКСИДОВ ПЕРЕХОДНЫХ МЕТАЛЛОВ

В.А. Доросинец, В.К. Ксеневиц, Д.В. Адамчук
Белорусский государственный университет,
пр. Независимости 4, 220030 Минск, Беларусь,
dorosinets@bsu.by, ksenevich@bsu.by, adamchukDV@bsu.by

Исследовалась зависимость сопротивления от температуры $R(T)$ пленок манганита $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, подвергнутых лазерной обработке, для интервала от температуры максимума сопротивления T_M до комнатной температуры. Установлено, что доминирующим механизмом электропроводности в исходных пленках является адиабатический поляронный транспорт. Для модифицированных пленок этот механизм сохраняется только на участке вблизи комнатной температуры, в то время как на температурном интервале, примыкающем к T_M , механизмом, определяющим электропроводность, является прыжковая проводимость с переменной длиной прыжка. Приложение магнитного поля с индукцией в диапазоне до 8 Тл приводит к расширению температурного интервала доминирования механизма поляронного транспорта. Предложено объяснение наблюдаемых особенностей на кривых $R(T)$ модифицированных пленок на основе зависимости энергии формирования поляронов от степени структурного беспорядка в пленках и зависимости величины деформации октаэдров MnO_6 от упорядоченности спиновой подсистемы.

Ключевые слова: манганит; полярон; прыжковая проводимость; магнитное поле; закон Мотта.

MAGNETIC FIELD INFLUENCE ON ELECTRIC CONDUCTIVITY MECHANISMS OF TRANSITION METAL OXIDES MODIFIED BY LASER RADIATION

V.A. Dorosinets, V.K. Ksenevich, D.V. Adamchuk
Belarusian State University,
4 Nezavisimosty Ave., 220030 Minsk, Belarus,
dorosinets@bsu.by, ksenevich@bsu.by, adamchukDV@bsu.by

Thin films of manganite $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ possessing a high degree of structural perfection were treated with laser pulses. The degradation of the films manifests itself in a decrease in the temperature of the resistance maximum T_M on the curve of the temperature dependence of the resistance $R(T)$. A comparative analysis of the contributions of the different mechanisms of electrical conductivity in the temperature range from room temperature to T_M is carried out for both initial and modified films. It was found that the dominant mechanism in the entire temperature range for the initial films is adiabatic polaron transport. For modified films, in the absence of an applied magnetic field, this mechanism is observed only in the region near room temperature, while in the temperature interval adjacent to T_M the hopping conductivity with a variable hopping length (VRH) dominates. This behavior can be associated with increased defectiveness of films due to the oxygen deficiency. It was found that magnetic field leads to an expansion of the temperature range where the polaron transport mechanism dominates. The observed change in the properties of the films finds explanation by taking into account the dependence of the polaron formation energy on the degree of structural disorder in the films and deformation of the MnO_6 octahedras. A manifestation of this dependence at the macroscopic level is the inverse dependence of the polaron formation energy on T_M . The structural disorder leads to the fluctuations of the electrostatic potential, which causes the localization of free charge carriers, stimulating the VRH conductivity. The magnetic field, aligning the spins of manganese ions, contributes to the partial elimination of deformations of the MnO_6 octahedras, and, consequently, to an increase in the value of T_M and a decrease of the polaron formation energy.

Keywords: manganite; polaron; hopping conductivity; magnetic field; Mott's law.

Введение

Оксиды металлов характеризуются ши-

роким спектром применения от датчиков газа до электронных устройств. Для каж-

дой области применения образцы должны обладать требуемыми электрофизическими свойствами, для чего применяются разнообразные методы их модификации, включая отжиг в различных газовых средах, ионная имплантация и облучение. Одновременно в ряде случаев для стабильной работы устройств выдвигаются высокие требования к устойчивости относительно высоких температур и разнообразного типа излучений. Одним из удобных и широко распространенным методов исследования степени модификации электрофизических свойств образцов является исследование температурных зависимостей сопротивления $R(T)$. В данной работе представлены результаты исследования механизмов электропроводности пленок манганита $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, относящегося к классу оксидов переходных металлов.

Метод обработки пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ импульсами лазерного излучения и особенности магнитосопротивления в низкотемпературной области модифицированных образцов в состоянии фазового распада магнитной системы представлены ранее в [1]. В данной работе представлены результаты исследования температурных зависимостей сопротивления модифицированных лазерным излучением пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ в высокотемпературной области выше температуры Кюри.

Результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены температурные зависимости сопротивления в нулевом магнитном поле и в магнитном поле с индукцией 8 Тл для исходной пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$. Температура максимума сопротивления, T_M , соответствующая переходу диэлектрик-металл для пленки в отсутствие магнитного поля составляла 260 К. Как видно из рисунка, зависимость $R(T)$ для температур выше T_M соответствует полупроводниковому типу, а приложение магнитного поля приводит к сдвигу значения T_M в высокотемпературную область и уменьшению значения $R(T_M)$, что

типично для манганитов, проявляющих эффект колоссального магнитосопротивления.

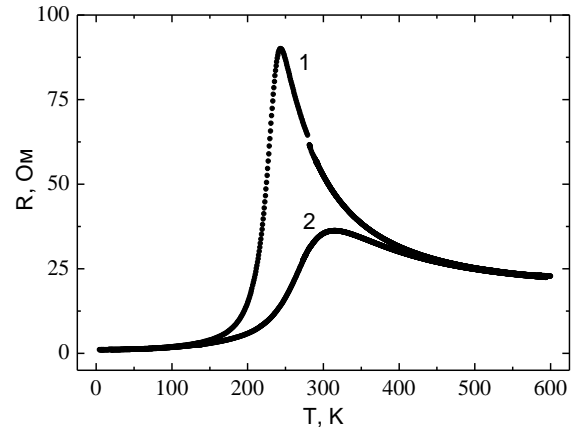


Рис. 1. Температурные зависимости сопротивления для исходной пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ для различных значений индукции магнитного поля, Тл: 1 – 0; 2 – 8

Fig. 1. Temperature dependences of the resistance for the initial $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ film for different values of magnetic field, T: 1 – 0; 2 – 8

В настоящее время нет единого мнения о доминирующем механизме электропроводности в манганитах для рассматриваемого интервала температур. Среди разнообразия предложенных моделей наиболее обоснованными и признанными считаются модели прыжков поляронов по ближайшим состояниям и прыжков дырок с переменной длиной прыжка (VRH). Первая модель описывается активационным законом с независимой от температуры энергией активации E :

$$R = R_0 T^n \exp\left(\frac{E}{kT}\right) \quad 1)$$

Различают два типа поляронного прыжкового транспорта в зависимости от частоты оптических фононов: адиабатический ($n=1$) и неадиабатический ($n=1.5$). В первом случае обратная среднего времени деформации кристаллической решетки меньше частоты прыжков носителей зарядов. Для второго случая характерно обратное соотношение. Зависимость (1) преимущественно наблюдается для монокристаллических и эпитаксиальных образцов, характеризующихся высокой степенью структурного совершенства.

В то же время, в ряде случаев экспериментальные зависимости $R(T)$ манганитов в области высоких температур описываются моттовским законом прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка:

$$R = R_0 \exp\left(\frac{T_0}{kT}\right)^{1/4} \quad (2)$$

Причем моттовский закон выполняется преимущественно для монодисперсных поликристаллических или же очень тонких пленок, для которых существенно влияние подложек, вносящих механические деформации в пленки.

На рис. 2 представлены зависимости $R(T)$ для исходной пленки в координатах, приводящих к спрямлению экспериментальных кривых, при выполнении зависимостей (1) или (2), соответственно.

Из сравнения рис. 2а и 2б можно заметить, что зависимости $R(T)$ лучше аппроксимируются в рамках модели поляронного активационного транспорта, чем механизма прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка. Причем наилучшее спрямление экспериментальных данных достигается для $n=1$, что указывает на адиабатический характер прыжков носителей заряда и, следовательно, на высокое совершенство кристаллической структуры кристаллической решетки.

На рис. 3 приведены зависимости $R(T)$ для модифицированной в результате лазерной обработки пленки. Как видно из рис. 3а, для данного случая в температурной области, примыкающей к T_M , зависимость (1) более не применима, хотя она по-прежнему выполняется для более высоких температур. Приложение магнитного поля приводит к расширению области выполнения зависимости (1). Стрелками на рис. 3а отмечены низкотемпературные границы выполнения соотношения (1) для значений индукции магнитного поля 0 и 8 Тл.

В то же время согласно рис. 3б в температурной области, примыкающей к T_M , наблюдается спрямление экспериментальных кривых в масштабе $\ln R \sim T^{-1/4}$, что

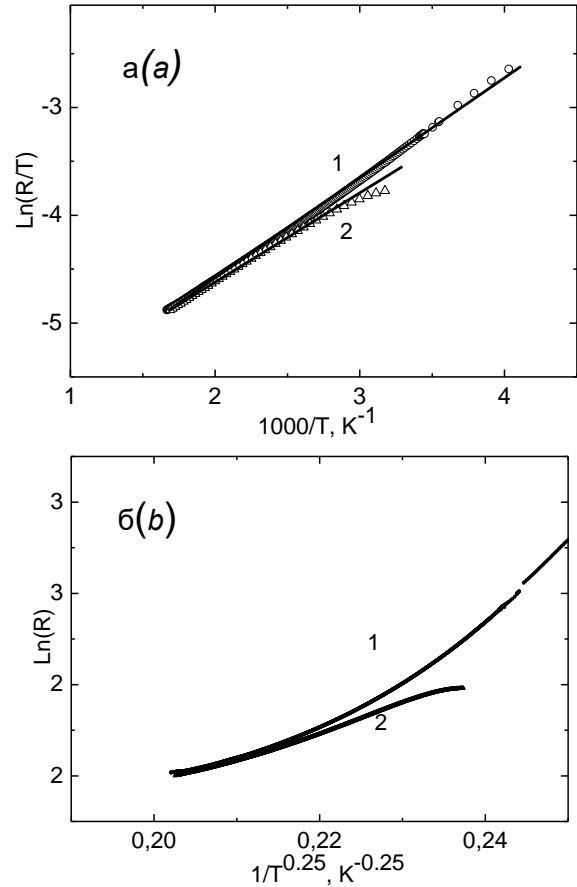


Рис. 2. Температурные зависимости сопротивления исходной пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ для значений индукции магнитного поля, Тл: 1 – 0; 2 – 8: а – в координатах $\ln R \sim 1/T$; б – в координатах $\ln R \sim T^{-1/4}$

Fig. 2. Resistance temperature dependences of the initial $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ film for the values of the magnetic field, T: 1 – 0; 2 – 8: а – in coordinates $\ln R \sim 1/T$; б – in coordinates $\ln R \sim T^{-1/4}$

свидетельствует о доминировании прыжкового механизма с переменной длиной прыжков, что можно связать с повышенной дефектностью вследствие образовавшегося в результате лазерной обработки дефицита кислорода.

Как было установлено в [3], для манганитов характерна обратная зависимость энергии активации для поляронного транспорта от T_M . Следовательно, повышение степени беспорядка в результате нестехиометрии по кислороду в модифицированных пленках, ослабляет спиновое взаимодействие в модели двойного обмена и вызывает деформацию октаэдров MnO_6 , что при-

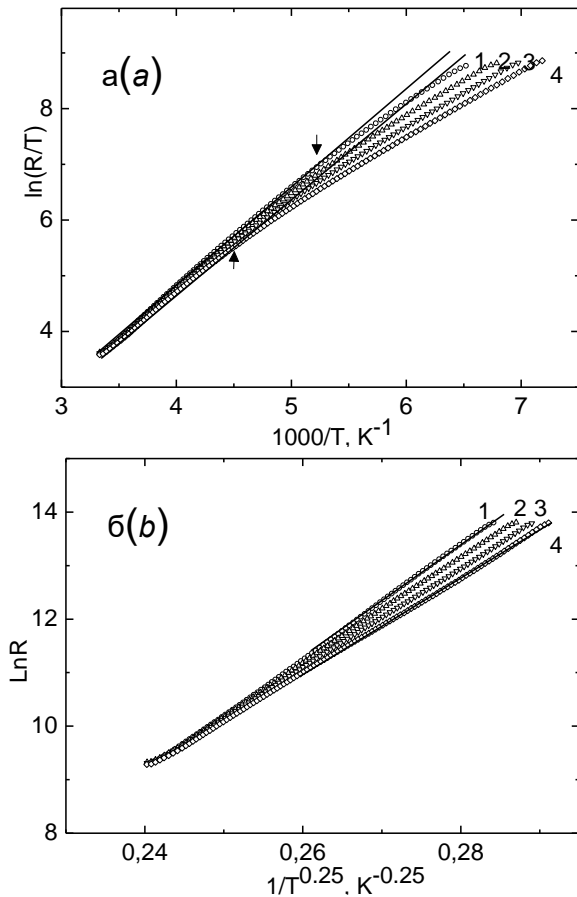


Рис. 3. Температурные $R(T)$ для модифицированной пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ для различных значений индукции магнитного поля, Тл: 1 – 0; 2 – 2; 3 – 4; 4 – 8: а – в координатах $\text{Ln}R \sim 1/T$; б – в координатах $\text{Ln}R \sim T^{-1/4}$

Fig. 3. Temperature dependences of the resistance for the modified $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ film for different values of the magnetic field induction, T: 1 – 0; 2 – 2; 3 – 4; 4 – 8: а – in coordinates $\text{Ln}R \sim 1/T$; б – in coordinates $\text{Ln}R \sim T^{-1/4}$

водит к значительному повышению энергии образования поляронов. Одновременно, возникающие при этом флуктуации электростатического потенциала способствуют локализации свободных носителей заряда, стимулируя проявление механизма прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка. Магнитное поле, выстраивая спины ионов марганца способствуют устранению деформаций октаэдров MnO_6 , и, следовательно, энергии образования поляронов. Влияние магнитного поля на механизм электропроводности подтверждает тесную связь различных степеней свободы в манганитах.

Заключение

Анализ температурных зависимостей сопротивления $R(T)$ пленок манганита $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, подвергнутых воздействию импульсов лазерного излучения, позволяет определить доминирующие механизмы электропроводности в области температур выше температуры максимума сопротивления T_M . Установлено, что в области, примыкающей к T_M , основными механизмами электропроводности являются адиабатический поляронный транспорт для исходных пленок и прыжковая проводимость с переменной длиной прыжка для модифицированных пленок. Изменение механизма электропроводности обусловлено структурными дефектами (преимущественно вакансиями кислорода), приводящими к искажению октаэдров MnO_6 , появлению флуктуаций электростатического потенциала и ослаблению спинового взаимодействия. Приложение магнитного поля приводит к понижению энергии формирования поляронов, повышая вклад поляронного транспорта.

Библиографические ссылки

1. Доросинец В.А. Деградация электрофизических свойств манганитов под воздействием излучения. В кн.: Углов В.В., редактор. Материалы 13-й Межд. Конф. «Взаимодействие излучений с твердым телом» (30 сентября- 3 октября 2019 года), г. Минск. Минск: БГУ; 2019. С. 245-247.
2. Ziese M., Srinithiwarawong C. Polaronic effects on the resistivity of manganite thin films. *Physical Review B* 1998; 58(17): 11519-11525.
3. Song X. F., Lian G. J., Xiong G. C. Small polaronic transport in oxygen-deficient $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ thin films. *Physical Review B* 2005; 71(21): 214427-4.

References

1. Dorosinets V.A. Degradation of Electrophysical Properties of Manganites under Exposure to Radiation. In Book: Uglov V.V. [ed.]. Proceedings of the 13th International conference, "Interaction of Radiation with Solids" (September 30 – October 3, 2019) Minsk. Minsk: BSU; 2019. P.245-247. (In Russian).
2. Ziese M., Srinithiwarawong C. Polaronic effects on the resistivity of manganite thin films. *Physical Review B* 1998; 58(17): 11519-11525.
3. Song X. F., Lian G. J., Xiong G. C. Small polaronic transport in oxygen-deficient $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ thin films. *Physical Review B* 2005; 71(21): 214427-4.