

На правах рукописи



Гребенькова Юлия Эрнестовна

МАГНИТООПТИКА ТОНКИХ ПЛЕНОК МАНГАНИТОВ

$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$

01.04.11 – Физика магнитных явлений

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Красноярск – 2014

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук.

- Научный руководитель:** доктор физико-математических наук, профессор, гл. н. с.
Эдельман Ирина Самсоновна
- Официальные оппоненты:** доктор физико-математических наук, доцент, с. н. с.
Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук
Терещенко Олег Евгеньевич;
доктор физико-математических наук, профессор кафедры «Фотоника и лазерные технологии» Института инженерной физики и радиоэлектроники Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего профессионального образования Сибирского федерального университета
Слабко Виталий Васильевич
- Ведущая организация:** Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б. Н. Ельцина.

Защита состоится «___» _____ 2014 г. в ___ часов ___ минут на заседании диссертационного совета Д 003.055.02 при Институте физики им. Л.В. Киренского СО РАН по адресу: 660036, г. Красноярск, Академгородок, 50, стр. 38.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института физики им. Л.В. Киренского СО РАН.

Автореферат разослан

«___» _____ 2014 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д 003.055.02
доктор физико-математических наук



Втюрин Александр Николаевич

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность

Замещенные манганиты со структурой перовскита, описываемые общей формулой $R_{1-x}A_xMnO_3$, где R - трехвалентный редкоземельный ион, а A - двухвалентный ион щелочноземельного металла, являются одними из центральных объектов исследований в современной физике магнитных явлений. Исходные члены этого ряда $RMnO_3$ являются Моттовскими диэлектриками с антиферромагнитным основным состоянием. При замещении части ионов редкой земли двухвалентными ионами щелочного металла возникает большое разнообразие магнитных и электрических фаз, свойства которых зависят от типа двухвалентных ионов и их концентрации. В частности, в области значений x от ~ 0.2 до ~ 0.5 соединения, как правило, находятся в ферромагнитной металлической фазе. Особый интерес к этим материалам связан с их уникальными магнитными и транспортными свойствами [1-5], такими, как колоссальное магнитосопротивление [1, 3, 5], зарядовое, спиновое и орбитальное упорядочение [2], спин-поляризованное туннелирование носителей зарядов [4, 5]. Открытие колоссального магнитосопротивления вызвало взрывной интерес к замещенным манганитам и бурному развитию теоретических исследований их электронной и магнитной структуры. Но, несмотря на активное изучение подобных материалов, многие аспекты наблюдаемых в них явлений остаются до конца не выясненными. Стоит отметить, что при переходе от массивных кристаллов к тонкопленочным образцам, которые чрезвычайно востребованы в случае практических приложений, физические свойства последних могут также зависеть от природы подложки [6, 7], толщины слоя и разнообразных поверхностных эффектов [8, 9].

Оптические свойства замещенных манганитов чрезвычайно интересны и сами по себе, и как источник информации об особенностях электронной структуры соединений. Однако, в спектрах оптической проводимости манганитов в видимой и ближней инфракрасной областях спектра наблюдается лишь одна широкая полоса, иногда со слабо заметной тонкой структурой. Это привело к появлению большого количества различных интерпретаций и неоднозначности сопоставления оптических данных с расчётами электронной структуры. Значительно более информативной в этом плане является магнитооптическая спектроскопия, которая позволяет разрешать большее количество особенностей в спектрах. Основное количество работ посвящено магнитооптическим методам исследования манганитов лантана типа $La_{1-x}A_xMnO_3$ ($A = Sr$ и Ca). При этом магнитооптика соединений с редкими землями представлена разрозненными работами, например, магнитооптика соединений $Pr_{1-x}Sr_xMnO_3$, вообще, не исследована. Кроме того, слабо отражены зависимости магнитооптических эффектов от концентрации двухвалентного элемента и типа редкой земли. Обращает на себя внимание отсутствие температурных исследований и, таким образом, отсутствие сопоставления температурных изменений намагниченности и магнитооптических эффектов в одних и тех же образцах.

Наиболее распространенным из магнитооптических методов исследования является эффект Керра (ЭК), наблюдаемый в отраженном свете (например, [10, 11]). Несколько работ также посвящено исследованию эффекта Фарадея (ЭФ) в проходящем свете [12, 13]. Оба эти метода характеризуются существенными недостатками с точки зрения сопоставления их спектров с особенностями электронной структуры исследуемых соединений: при исследовании ЭК большую роль играет качество обработки поверхности в случае массивных кристаллов и многократные отражения в случае тонких пленок; интерпретация спектральных особенностей ЭФ и ЭК представляет собой нетривиальную задачу, поскольку суммарное вращение данных эффектов является сложной функцией диагональных и недиагональных компонент тензора диэлектрической проницаемости.

Методика магнитного дихроизма лишена указанных недостатков, так как, в отличие от ЭФ и ЭК, он наблюдается непосредственно на полосах поглощения. Магнитный дихроизм оказывается и наиболее эффективным для разделения широких сложных полос, состоящих из отдельных перекрывающихся компонент. Удобно так же отсутствие вклада в

дихроизм непоглощающей подложки, который должен учитываться при измерении ЭФ. К настоящему времени появились первые работы по исследованию магнитного кругового дихроизма (МКД) в пленках $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ [14, 15]. Магнитный линейный дихроизм (МЛД) в манганитах, насколько нам известно, ранее не исследовался.

Диссертационная работа, посвященная систематическому исследованию спектральных и температурных зависимостей магнитного дихроизма в двух соединениях манганитов с различными концентрациями замещающего элемента в сопоставлении с температурными зависимостями намагниченности, направлена на частичное заполнение указанных пробелов.

Цель работы - исследование влияния типа и концентрации иона-лантаноида на магнитооптические эффекты в тонких пленках замещенных манганитов $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$, установление корреляции между магнитными и магнитооптическими свойствами исследуемых соединений; определение электронных переходов, ответственных за выявленные магнитооптические особенности. В качестве основного метода исследования магнитооптических свойств использован магнитный дихроизм.

Для достижения поставленных целей необходимо решить следующие **задачи**:

- с помощью атомно-силовой и электронной микроскопии, а также рентгеновской дифракции определить фазовый состав, кристаллическую структуру образцов и распределение неоднородностей на поверхности пленок;

- исследовать полевые и температурные зависимости намагниченности пленок при параллельной и перпендикулярной ориентации внешнего магнитного поля относительно плоскости образца;

- получить при различных температурах спектры МКД для всех исследуемых пленок и спектры МЛД для некоторых образцов;

- разложить экспериментальные магнитооптические спектры на составляющие и проанализировать температурный ход интенсивности каждой компоненты в сравнении с температурным ходом намагниченности пленок;

- провести анализ влияния иона лантаноида, концентрации Sr^{2+} и толщины пленок на их магнитооптические особенности, установить природу наблюдаемых спектральных линий.

Научная новизна

Впервые исследованы магнитооптические свойства манганитов празеодима на примере МКД в тонких пленках $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0.2$ и 0.4). Показано, что спектры МКД содержат больше особенностей по сравнению с оптическими спектрами, их форма зависит от концентрации двухвалентного элемента и типа проводимости, но, в отличие от представленных в литературе спектров ЭК, не зависит от толщины исследованных пленок.

Для пленок $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ показано различное изменение интенсивности полос МКД, наблюдаемых в различных областях спектра, при изменении концентрации Sr, не совпадающее с изменением намагниченности.

Впервые получены спектральные и температурные зависимости МЛД в пленочных структурах $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, демонстрирующие дополнительные спектральные особенности в сравнении со спектрами МКД.

Обнаружены различные температурные зависимости интенсивностей полос магнитного дихроизма для пленок с металлическим типом проводимости ($\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$): от кривых, совпадающих с температурной зависимостью намагниченности, до кривых с перегибом.

Научная и практическая ценность

Результаты исследования являются важным шагом на пути понимания электронных состояний в замещенных манганитах и поиска новых функциональных материалов на их основе. Методика одновременного изучения магнитного кругового и линейного дихроизма в тонких пленках манганита может быть использована для получения более полной картины электронных возбуждений в данных материалах в различных областях спектра.

Достоверность полученных результатов обеспечена использованием аттестованных образцов, обоснованностью использованных в работе экспериментальных методик исследования магнитных и магнитооптических характеристик образцов и хорошей воспроизводимостью результатов на пленках различной толщины.

Научные положения, выносимые на защиту

- Морфология и структура исследованных пленок: образцы являются поликристаллическими со средним линейным размером в плоскости 48 нм, постоянные решетки соответствуют данным для массивных аналогов; для образцов $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ прослеживается текстура.

- Характерное поведение полевых и температурных зависимостей намагниченности в пленках манганитов празеодима, объяснённое в предположении сосуществования в них ферромагнитной и спин-стекольной фаз.

- Экспериментальное наблюдение спектров МКД и МЛД для $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, спектров МКД для $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ пленок и результаты разложения этих спектров на составляющие компоненты, выявившие большее количество спектральных особенностей по сравнению с оптическими спектрами.

- Влияние увеличения концентрации Sr^{2+} на положения и интенсивности компонент МКД и МЛД спектров, проявляющееся в смещении центров тяжести пиков в область низких энергий, в сильном возрастании интенсивности высокоэнергетических пиков, появлении дополнительных пиков при понижении температуры в случае пленок с металлической проводимостью.

- Зависимость температурного поведения интенсивности различных компонент от типа проводимости замещенного манганита: в случае ферромагнитного изолятора интенсивность всех компонент имеет одинаковый температурный ход, совпадающий с ходом намагниченности; в случае металлических образцов компоненты характеризуются различными температурными зависимостями их интенсивностей.

- Идентификация выявленных МКД и МЛД пиков с электронными переходами в ионах марганца Mn^{3+} (в низкоэнергетической области) и Mn^{4+} (в высокоэнергетической области), а также со свободными носителями заряда (в области 1.9 - 2.5 эВ).

Личный вклад соискателя заключается в постановке, совместно с научным руководителем, цели и задач исследования; в проведении измерений магнитооптических свойств образцов; в обработке, анализе и интерпретации магнитных и спектральных данных, а также других вспомогательных результатов комплексного исследования, полученных различными экспериментальными методами; в подготовке научных статей и тезисов докладов, отражающих основные результаты исследования.

Апробация работы

Основные результаты работы были представлены и обсуждены на Восемнадцатой Всероссийской научной конференции студентов-физиков и молодых ученых (ВНКСФ-18), Красноярск, 2012; XXII Международной конференции «Новое в магнетизме и магнитных материалах» (НМММ), Астрахань 2012; Всероссийской молодежной научной школе «Актуальные проблемы физики», Таганрог - Ростов на дону, 2012; Четырнадцатой Всероссийской молодежной конференции по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектроники, Санкт-Петербург, 2012; Пятом Евро-Азиатском симпозиуме «Тенденции в области магнетизма» (EASTMAG), Владивосток, 2013; Международной конференции «Функциональные материалы» (ICFM) Симферополь 2013, Пятнадцатой Всероссийской молодежной конференции по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектроники, Санкт-Петербург, 2013.

Работа поддержана грантами РФФИ №11-02-00972 и №12-02-92607, Грантами Президента РФ по программе «Поддержка ведущих научных школ» №НШ-1044.2012.2 и №НШ-2886.2014.2.

Публикации

По теме диссертации опубликовано 13 научных работ: 3 статьи в периодических изданиях по списку ВАК, 1 статья в зарубежном журнале, 2 препринта и 7 работ в сборниках тезисов международных и всероссийских научных конференций и симпозиумов.

Соответствие диссертации паспорту специальности

Содержание диссертации соответствует формуле п.2 Паспорта специальности 01.04.11 Физика магнитных явлений: «Экспериментальные исследования магнитных свойств и состояний веществ различными методами, установление взаимосвязи этих свойств и состояний с химическим составом и структурным состоянием, выявление закономерностей их изменения под влиянием различных внешних воздействий» ...

Структура диссертации

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, списка литературы и списка сокращений и условных обозначений, изложенных на 106 страницах. Список цитируемой литературы содержит 106 наименований. В тексте диссертации имеется 7 таблиц и 48 рисунков.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обосновывается актуальность выбранной диссертационной темы исследования, сформулированы цели и задачи, отражены научная новизна и практическая ценность полученных результатов, приведены основные научные положения, выносимые на защиту, а также личный вклад соискателя, апробация работы и структура диссертации.

Первая глава посвящена литературному обзору физики структур LaMnO_3 - $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ - SrMnO_3 и PrMnO_3 - $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ - SrMnO . В частности, рассмотрены магнитные свойства соединений $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$, природа магнетизма в замещенных манганитах, а также результаты исследования оптической проводимости и магнитооптических эффектов в данных материалах. Выявлены проблемы магнитооптики манганитов, не решенные к моменту начала настоящего исследования. Приведены результаты теоретических расчетов зонной структуры манганитов, демонстрирующие разногласия между различными авторами.

Во второй главе приводится описание методики получения пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ и основных методов исследования их структурных, магнитных, оптических и магнитооптических свойств. Дополнительно представлена методика измерения электросопротивления для некоторых из рассматриваемых образцов. Приведено детальное описание экспериментальной установки для измерения магнитного дихроизма и геометрия экспериментов в случаях МКД и МЛД.

Пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ были получены в Национальном исследовательском технологическом университете «МИСиС» методом реактивного высокочастотного магнетронного распыления на постоянном токе с использованием распылительной системы со сдвоенными катодами. В качестве рабочего газа была использована аргоно-кислородная смесь $\text{Ar}/\text{O}_2 = 4/1$. Остаточное давление в камере перед напылением составляло $3 \cdot 10^{-6}$ Торр, рабочее суммарное давление смеси - $3 \cdot 10^{-3}$ Торр. В качестве подложек использовался монокристаллический оксид циркония, стабилизированный иттрием (YSZ), температура которого при напылении составляла 750°C . Толщина пленок варьировалась от 20 до 150 нм и регулировалась временем подачи тока на распыляемую мишень. Химический анализ, проведенный методом Резерфордского обратного рассеяния, показал, что состав полученных пленок в пределах точности метода совпадает со стехиометрией соединения.

Третья глава посвящена исследованию структуры, морфологии и магнитных свойств полученных пленок. Показано, что все пленки являются поликристаллическими со средним линейным размером кристаллитов в плоскости 48 нм. На рентгеновских дифрактограммах пленок каждого состава проявились пики, принадлежащие только одной фазе: $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ в соответствии с распыляемыми мишенями. Для образцов $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ прослеживается ярко выраженная текстура. Согласно фазовым диаграммам соединений $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$, пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ являются ферромагнитными металлами, а пленки $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ - ферромагнитными изоляторами. Параметры ячейки исследуемых образцов соответствуют данным для массивных аналогов. Исследование морфологии поверхности пленок показало наличие шероховатостей порядка 1 нм.

Полевые зависимости намагниченности всех исследуемых пленок манганита лантана, в двух взаимно перпендикулярных ориентациях внешнего магнитного поля относительно плоскости образца (Рисунок 1), представляют собой симметричные петли гистерезиса с резко различными значениями поля насыщения (H_S). При намагничивании в плоскости (H_{\parallel}) магнитное насыщение (M_S) достигается в поле H_S , равном ~ 1 кЭ, а при нормальном намагничивании (H_{\perp}) в том же температурном режиме H_S близко к 8 кЭ, что свидетельствует о преимущественно плоскостной магнитной анизотропии в пленке.

Кроме того, обнаружено, что величина намагниченности в поле насыщения (M_S) одинакова для двух направлений внешнего поля, однако она зависит от толщины пленок:

чем больше толщина пленки, тем больше величина удельной намагниченности. Такое поведение можно связать с нарушением магнитного порядка на границах разделов пленка-подложка, пленка-атмосфера или наличием, так называемого, «мертвого слоя», который и уменьшает суммарную намагниченность образца. Для того чтобы оценить толщину подобного слоя, была проведена экстраполяция зависимости намагниченности пленок от толщины, которая показала наличие «мертвого слоя» толщиной ≈ 12 нм.

При измерении магнитных параметров пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ учитывалась возможность вклада от подложки, однако в максимальных использованных полях величина намагниченности монокристалла YSZ была на 5 порядков меньше намагниченности пленки, поэтому её пренебрегли.

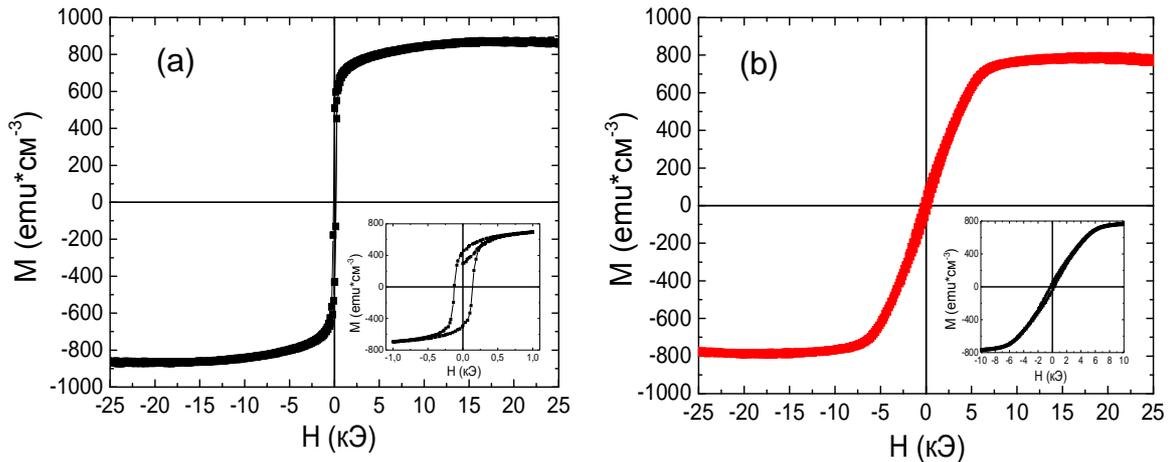


Рисунок 1. Полевые зависимости намагниченности для образца $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ толщиной $d = 90$ нм при $T = 5$ К в поле H_{\parallel} (a) и H_{\perp} (b). На вставках: те же зависимости в меньших полях.

Температурная зависимость намагниченности, записанная для образцов, охлажденных в магнитном поле, FC, (Рисунок 2 а) соответствует температурной зависимости намагниченности массивного кристалла того же состава, однако с меньшей температурой Кюри ~ 300 К. Кривые температурной зависимости намагниченности, записанные для образцов, охлажденных в отсутствии магнитного поля, ZFC, (Рисунок 2 б) характеризуются максимумом, типичным для неоднородных магнитных систем таких, например, как ансамбли суперпарамагнитных частиц или спиновое стекло. Температура, при которой кривые FC и ZFC сливаются, так называемая температура необратимости (T_{irr}), и температура, при которой на кривой ZFC наблюдается максимум (T_{m}), зависят от толщины пленок.

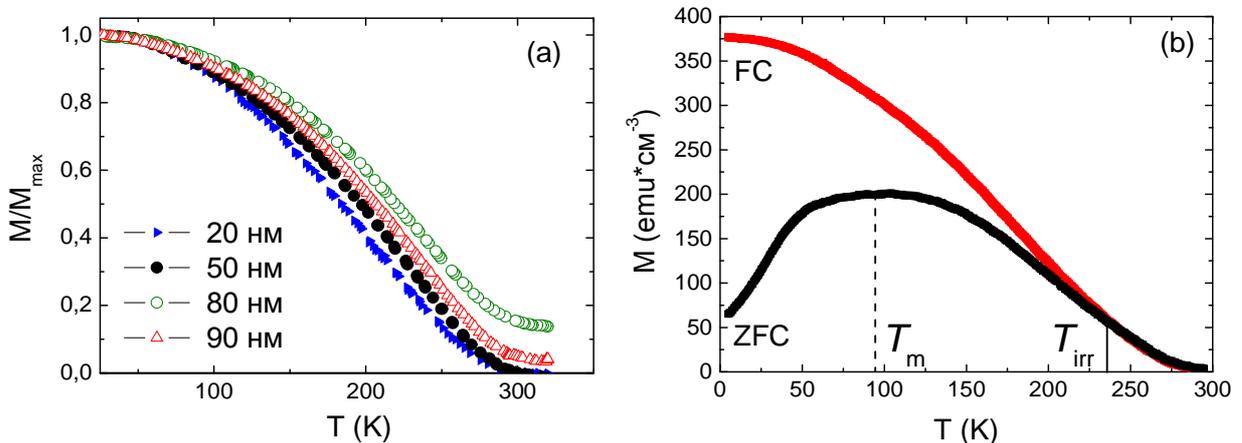


Рисунок 2. Температурные зависимости намагниченности $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ пленок различной толщины: а – режим FC в поле $H_{\parallel} = 1$ кЭ; б – режимы FC и ZFC в поле $H_{\parallel} = 50$ Э.

В случае пленок манганитов празеодима при обеих ориентациях магнитного поля также наблюдаются симметричные петли гистерезиса с близкими значениями H_C (Рисунок 3).

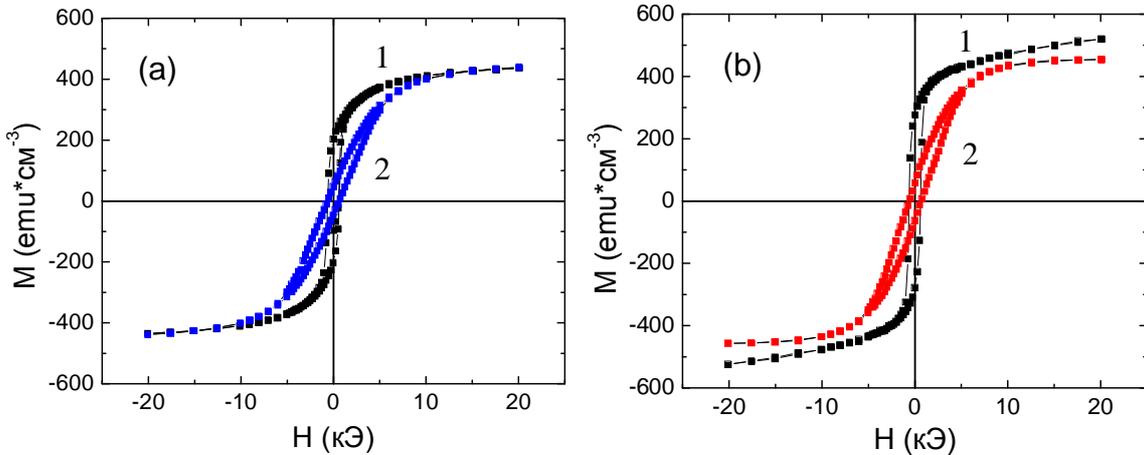


Рисунок 3. Полевые зависимости намагниченности пленок $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$, $d = 100$ нм, - (a) и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$, $d = 80$ нм, - (b) в магнитном поле, направленном вдоль (кривые 1) и нормально (кривые 2) плоскости пленок при $T = 5$ К.

Магнитное насыщение при $T = 5$ К не достигается даже при 20 кЭ, однако при повышении температуры коэрцитивная сила уменьшается, и в сравнительно малом внешнем поле ($H_S \sim 1.5$ кЭ) пленка намагничивается до насыщения (Рисунок 4).

Исследование температурной зависимости намагниченности показало, что для пленок $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ характерен резкий рост намагниченности при понижении температуры, соответствующий поведению массивных кристаллов того же состава. В случае пленок

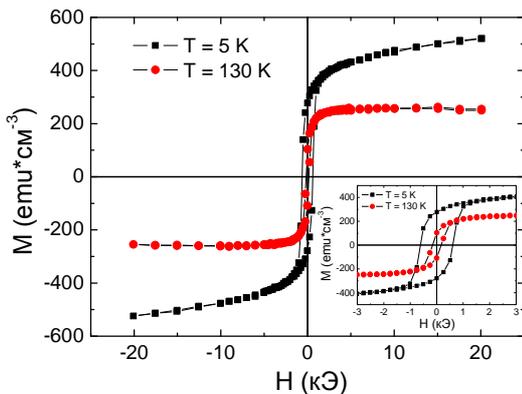


Рисунок 4. Полевые зависимости намагниченности пленки $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ($d = 80$ нм), снятые в магнитном поле H_{\parallel} при двух различных температурах. На вставке: те же зависимости в меньших полях.

$\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ рост намагниченности при понижении температуры происходит не так быстро, как в случае объемных кристаллов [16, 17], кроме того, на FC кривых не наблюдается особенностей в области 100 К и температурного гистерезиса, характерных для массивных поликристаллических образцов $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ [17]. Температура Кюри для пленок $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ равна приблизительно 120 К и 250 К, соответственно, что существенно ниже по сравнению с T_C монокристаллов (~ 150 К и ~ 290 К).

Вблизи 5 К намагниченность пленок с концентрацией стронция $x = 0.2$ и $x = 0.4$ различна. При этом отношение величин намагниченности для этих двух концентраций остается практически одинаковым при увеличении внешнего магнитного поля. Заметим также, что во всем температурном интервале разница в величине намагниченности двух рассматриваемых соединений не превышает 25 %. Кроме того, наблюдается различие FC и ZFC кривых, аналогичное тому, что имело место для пленок манганита лантана. При этом значения характерных температур $T_{\text{ит}}$ и T_m зависят от величины и ориентации внешнего магнитного поля. Прежде всего, чем больше поле, тем ниже эти температуры, что характерно как для спинового стекла, так и для суперпарамагнитных систем.

Таким образом, характерными магнитными особенностями исследованных пленок манганита можно назвать зависимость M_S от толщины пленок в случае $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$; зависимость M_S от температуры в случае $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$; наличие термомагнитных эффектов

(разница между FC и ZFC кривыми) и зависимость $T_{ит}$ и T_m от толщины пленок, величины и ориентации внешнего магнитного поля.

Поскольку в случае пленок с лантаном петли гистерезиса демонстрируют магнитное насыщение в сравнительно небольшом поле, различие кривых FC и ZFC объяснено хаотическим распределением осей легкого намагничивания кристаллитов в пленке и конкуренцией между энергиями магнитной кристаллографической анизотропии и Зеемановской. Как известно, величина кристаллографической анизотропии манганитов уменьшается приблизительно на порядок при повышении температуры от гелия до T_C (например, [18]). Именно эта анизотропия определяет характер температурной зависимости намагниченности образцов, охлажденных в режиме ZFC. Из-за ее уменьшения при нагревании образца приложенное постоянное внешнее поле вынуждает магнитные моменты отдельных кристаллитов все сильнее к нему подстраиваться, что приводит к увеличению суммарной намагниченности всей пленки. Однако при повышении температуры начинает уменьшаться сама спонтанная намагниченность материала. Таким образом, конкуренция этих двух процессов приводит к тому, что на кривой ZFC может появиться максимум прежде, чем обе кривые ZFC и FC сольются.

В свою очередь, в случае пленок с празеодимом их магнитное насыщение зависит от температуры, и при 5 K не достигается даже в больших полях. Поэтому для объяснения полевого и температурного поведения этих образцов мы рассмотрели механизм, предполагающий сосуществование фазы спинового стекла с ферромагнитно упорядоченной фазой, аналогично тому, как это было сделано в работе [19]. При этом было предположено, что продольные компоненты спинов упорядочены ферромагнитно, а поперечные фрустрированы (Рисунок 5 а). При некоторой температуре T_f , называемой температурой замораживания спинового стекла, поперечные компоненты упорядочиваются антиферромагнитно (Рисунок 5 б).

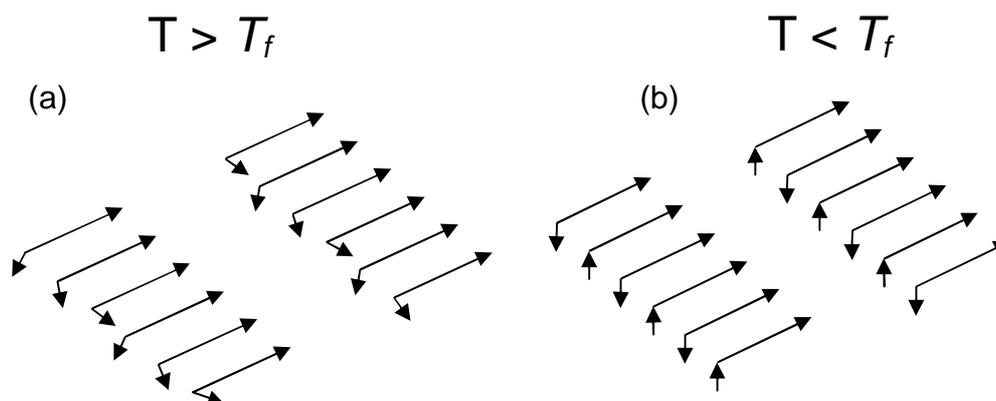


Рисунок 5. Схема распределение продольных и поперечных компонент спина в образце, в предположении сосуществования в нем фазы спинового стекла с ферромагнитно упорядоченной фазой.

Допуская, что температура T_m совпадает с T_f , мы проследили поведение T_m от внешнего поля и получили зависимость (Рисунок 6), описывающуюся линией Алмейды-Таулесса (1.1), характерной для спинового стекла

$$[1 - T_f(H)/T_f(0)] \sim H^{2/3}. \quad (1.1)$$

Здесь $T_f(H)$ – температура замораживания при определенной величине магнитного поля, $T_f(0)$ – температура замораживания в нулевом поле.

Практически идеальная линейная зависимость этой температуры от $H^{2/3}$ свидетельствует в пользу того, что наблюдаемое магнитное поведение пленок связано с замораживанием магнитных моментов спин - стекольной фазы. Если это, действительно так, то $T_m = T_f$.

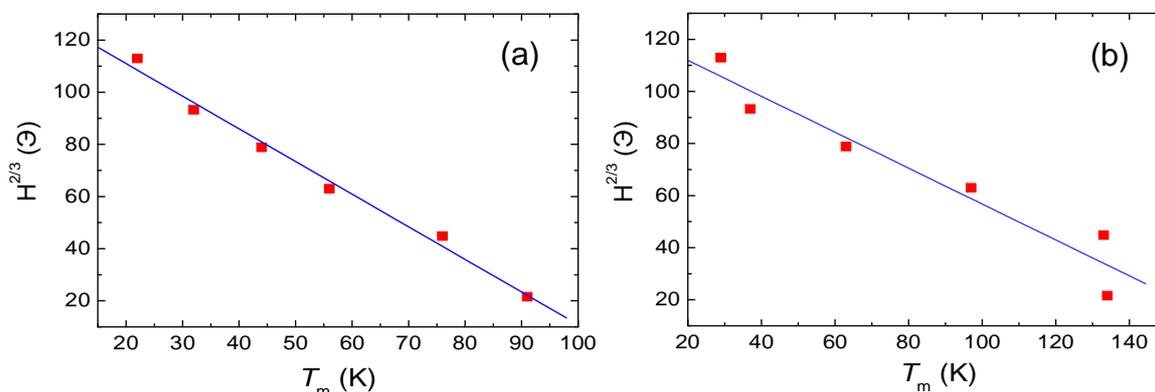


Рисунок 6. Зависимость температуры T_m от величины приложенного внешнего поля H_{\parallel} для семейства ZFC кривых: а - образец $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ ($d = 100$ нм); б - $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ($d = 80$ нм).

Четвертая глава посвящена детальному исследованию спектральных и температурных зависимостей МКД и МЛД в пленках $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$.

Спектры поглощения, снятые при комнатной температуре для всех исследованных образцов подобны друг другу. Типичная кривая представлена на Рисунке 7 а, она характеризуется плавным изменением величины поглощения при увеличении энергии фотона с одним широким максимумом в области 1.4 эВ. Аналогичный ход поглощения наблюдался и ранее для пленочных образцов того же состава [20]. Основными особенностями таких спектральных зависимостей являются наличие относительно слабого пика в области 1.5 - 2 эВ и сильный рост поглощения в области выше 3 эВ.

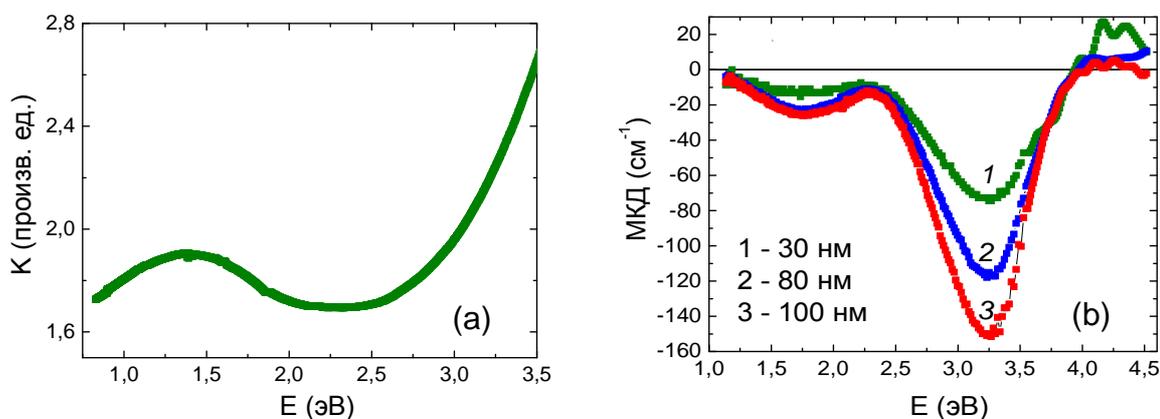


Рисунок 7. а - спектр поглощения $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ пленки $d = 50$ нм при $T = 295$ К.; б - спектры МКД для $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ пленок при $H_{\perp} = 3$ кЭ и $T = 295$ К. Величина эффекта приведена к толщине пленок.

В отличие от одного имеющегося максимума в спектре поглощения, на спектральных зависимостях МКД в том же энергетическом интервале наблюдается большее количество резонансных особенностей одного знака (Рисунке 7 б): широкая полоса, центрированная при 1.7 эВ и близкая к полосе в спектре поглощения; и интенсивный асимметричный широкий пик, центрированный вблизи 3.25 эВ. Известна одна работа, в которой также наблюдался высокоэнергетический пик МКД [14].

При понижении температуры в спектрах прослеживается рост интенсивности наблюдаемых полос и появление относительно слабого пика противоположного знака вблизи 2.4 эВ (Рисунок 8). Отметим, что появление подобного пика характерно только для пленок толщиной больше 30 нм, в то время как для образца толщиной 20 нм аналогичный пик наблюдается уже при комнатной температуре, а его интенсивность также характеризуется ростом при понижении температуры.

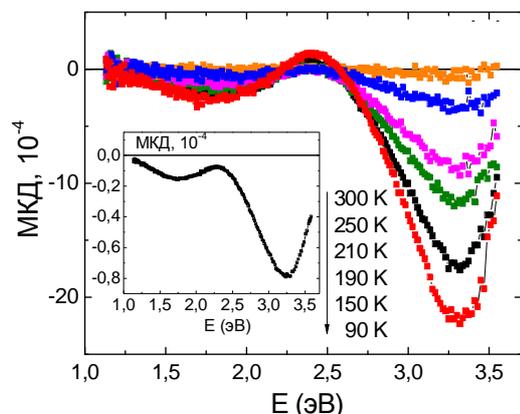


Рисунок 8. Спектры МКД при различных температурах в поле $H_{\parallel} = 3$ кЭ для пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, $d = 90$ нм. На вставке: спектр МКД при комнатной температуре.

Спектры МЛД характеризуются таким же набором полос, что и спектры МКД (в области от 1 до 3.5 эВ наблюдаются один положительный пик и два отрицательных). Однако эти полосы сдвинуты по энергии и более асимметричны, а вблизи 2.4 эВ заметен изгиб.

Поскольку асимметрия магнитооптических полос, наблюдаемых на спектральных зависимостях магнитного дихроизма, может быть обусловлена наложением нескольких резонансов, спектры МКД и МЛД были аппроксимированы кривыми формы Гаусса и Лоренца, соответственно, подобно тому, как спектр оптической проводимости LaMnO_3 был

представлен суммой Лоренцевых осцилляторов в работе [21]. Подгоночными параметрами являлись величина эффекта в максимуме (амплитуда), положение и ширина линии. Наилучшее совпадение между расчетными и экспериментальными данными было получено в предположении шести лоренцевых компонент в случае МЛД (Рисунок 9 а) и четырех гауссовых полос в случае МКД (Рисунок 9 б). Таким образом, сравнивая данные разложения, следует заключить, что МЛД спектры содержат большее количество резонансных линий по сравнению с МКД спектрами.

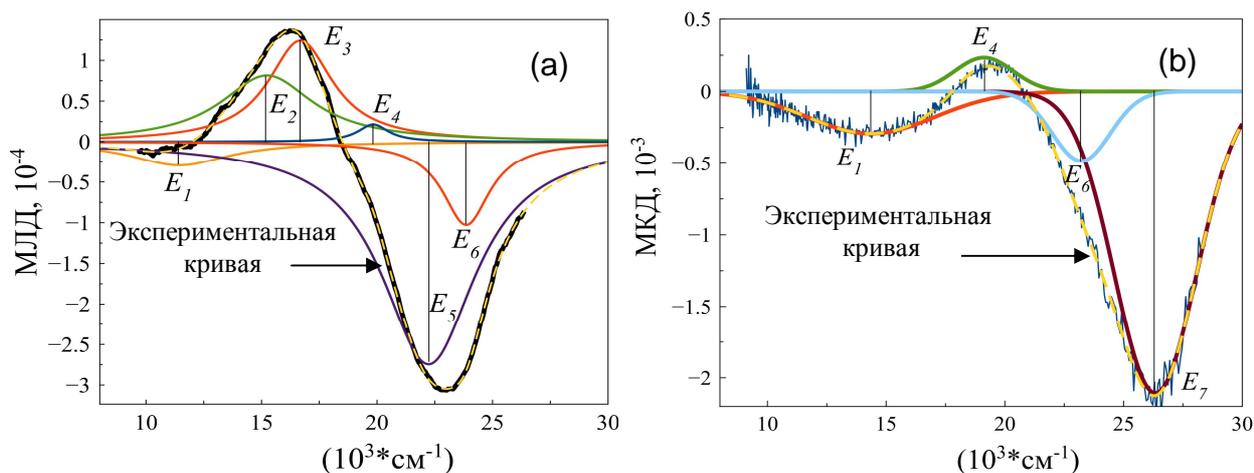


Рисунок 9. Аппроксимация экспериментальных магнитооптических спектров, записанных при $T = 90$ К и $H_{\parallel} = 3$ кЭ для пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ($d = 90$ нм): а – компонентами формы Лоренца для МЛД, б – компонентами формы Гаусса для МКД. Сумма компонент разложения совпадает с экспериментальными кривыми.

Температурное поведение интенсивности рассматривалось для каждой составляющей компоненты. При обработке температурных зависимостей был использован метод полиномиальной регрессии, который позволил более наглядно представить поведение всех выявленных полос (Рисунок 10). Из кривых, представленных на Рисунке 10, видно, что при понижении температуры интенсивности всех компонент возрастают, однако их

температурное поведение отличается друг от друга. В случае МКД (Рисунок 10 а) температурный ход интенсивности полос одинакового знака, центрированных при энергиях E_1 , E_6 и E_7 , близок к температурной зависимости намагниченности образца, однако интенсивность полосы E_4 изменяется по-другому закону. В случае МЛД (Рисунок 10 б) температурное поведение интенсивности высокоэнергетических компонент E_5 и E_6 также близко к температурной зависимости намагниченности образца, в то время как ход интенсивности полос E_3 и E_4 совпадает с температурным ходом полосы E_4 в спектре МКД. Для температурных зависимостей интенсивности низкоэнергетических полос E_1 и E_2 в МЛД спектре не удалось получить четкой закономерности, видимо, из-за их близости к краю исследованного спектрального интервала. Однако для E_1 полосы прослеживается тенденция, характерная для E_5 и E_6 , (хоть и с небольшим кинком), а для E_2 полосы - тенденция, характерная для E_3 и E_4 (вставка на Рисунке 10 б).

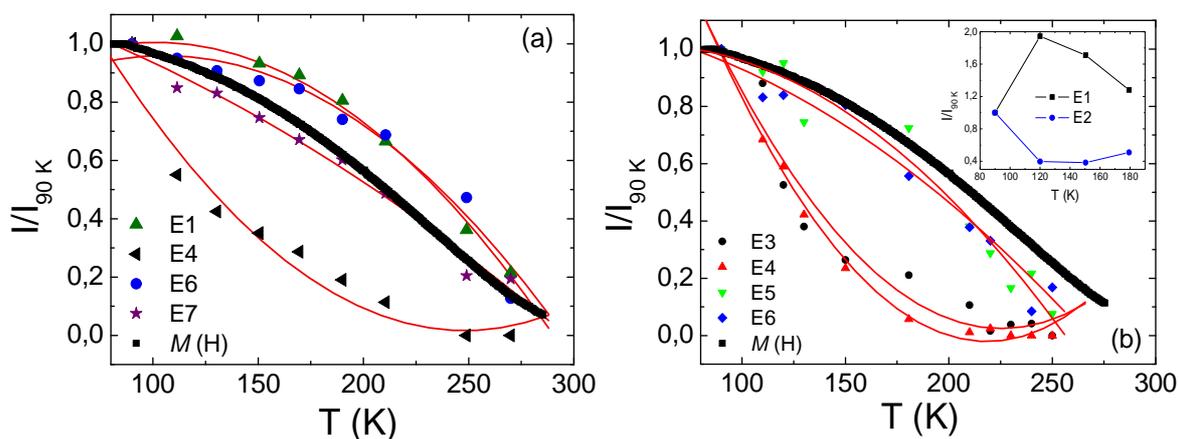


Рисунок 10. Температурное поведение интенсивности полос в спектрах МКД (а) и МЛД (б) для пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ($d = 90$ нм) в сравнении с температурным поведением ее намагниченности - кривая $M(H)$. $H_{\parallel} = 3$ кЭ. На вставке: температурный ход интенсивности E_1 и E_2 полос в спектрах МЛД.

Пятая глава посвящена детальному исследованию спектральных и температурных зависимостей магнитного кругового дихроизма в пленках $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$.

Типичные спектры поглощения, снятые при комнатной температуре для $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ пленок, представлены на Рисунке 11 а. Отметим, что их форма идентична форме кривых поглощения для пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и, соответственно, характерна для других соединений манганита, представленных в литературе. В случае $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ образцов с различным содержанием Sr^{2+} главным отличием между спектрами является сдвиг спектрального веса $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ пленки к более низким энергиям по сравнению с $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$, в частности, полоса вблизи 1.5 эВ становится центрированной в области 1.2 эВ.

В свою очередь, спектры МКД для исследуемых пленок $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ по своей форме имеют сходство со спектральными зависимостями МКД для пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (Рисунок 11 б) и характеризуются двумя главными особенностями одного знака: интенсивной широкой полосой в области 3.2 - 3.4 эВ и значительно более слабым асимметричным пиком, центрированным в интервале 1.7 - 2 эВ. Таким образом, не обнаружено заметного влияния типа лантаноида на форму МКД спектра в исследованном энергетическом интервале. Сравнивая МКД спектры двух различных пленок, для соединений $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ следует также отметить сдвиг спектрального веса к более низким энергиям, подобно картине, наблюдаемой в спектрах поглощения.

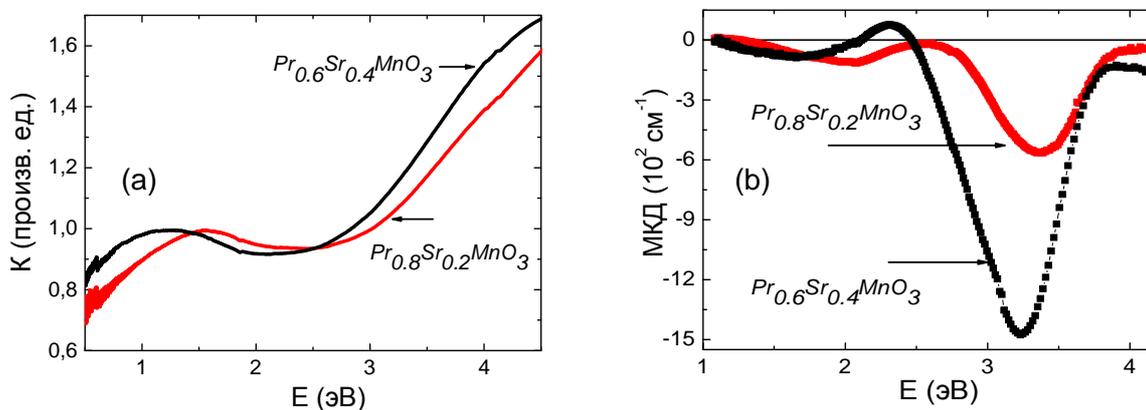


Рисунок 11. а - спектры поглощения для пленок $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ ($d = 150$ нм) и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ($d = 150$ нм) при $T = 295$; б - спектры МКД при $T = 100$ К в магнитном поле $H_{\perp} = 3$ кЭ для тех же образцов.

Спектры МКД для образцов $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ были сняты при различных температурах в магнитном поле, направленном нормально плоскости образцов. При понижении температуры интенсивность двух основных полос одного знака в областях 1.7-2 и 3.2 - 3.4 эВ возрастает, как видно на Рисунке 12. Кроме того, в спектре $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ при понижении температуры появляется относительно слабый пик противоположного знака вблизи 2.3 эВ (Рисунок 12 б). Подобное наблюдалось ранее в случае LSMO пленок (Рисунок 8). Интересно

отметить, что такой пик отсутствует на спектральных зависимостях всех исследуемых $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ образцов вплоть до самой низкой температуры измерения (сравнить вставки на Рисунке 12 а и б).

Однако наличие этого максимума не единственное различие между двумя соединениями манганита празеодима. Другой особенностью является сильное возрастание величины МКД в интервале 2.5-3.6 эВ и незначительный её спад в низкоэнергетической области при переходе от образца с более низкой к образцу с более высокой концентрацией Sr. Такое поведение можно проследить на Рисунке 11 б, которое, следует заметить, не согласуется с поведением намагниченности этих пленок, поскольку, как отмечалось в Главе 3, разница в величине намагниченности на FC кривых, измеренных в различном магнитном поле для двух рассматриваемых соединений, не превышала 25 % во всем температурном интервале.

Подобно разложению магнитооптических спектров пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ на составляющие, МКД спектры образцов $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ были аппроксимированы кривыми формы Гаусса (Рисунок 13) Наилучшее совпадение между расчетными и экспериментальными данными было получено в предположении четырех полос для пленок $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и пяти полос для

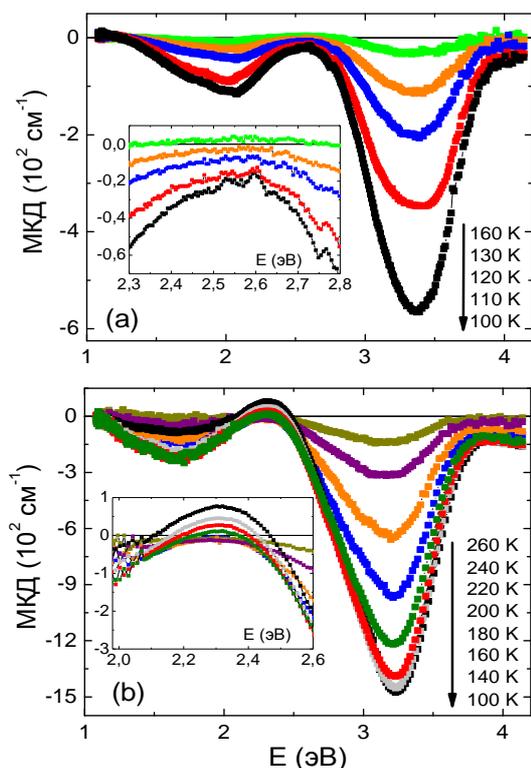


Рисунок 12. МКД спектры при различных температурах в магнитном поле $H_{\perp} = 3$ кЭ: а - $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ ($d = 150$ нм); б - $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ($d = 150$ нм); в - спектры двух этих образцов при $T = 100$ К (кривые 1-2, соответственно). Вставки на (а) и (б): область между двумя главными пиками, в масштабе.

пленок $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$.

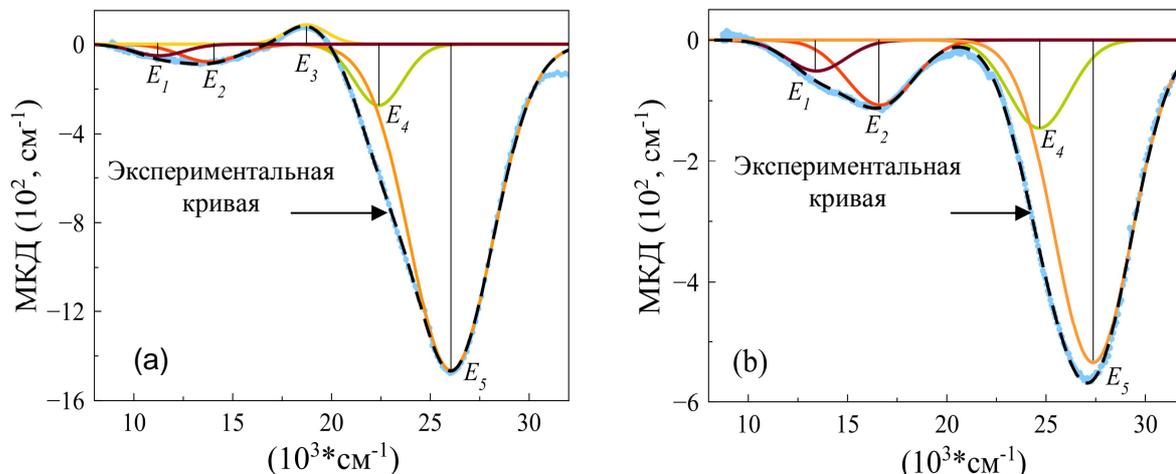


Рисунок 13. Аппроксимация экспериментальных магнитооптических спектров, записанных при $T = 100$ К и $H_{\perp} = 3$ кЭ: а – $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ ($d = 130$ нм); б – $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ ($d = 150$ нм). Сумма компонент разложения (формы Гаусса) совпадает с экспериментальными кривыми.

Температурная зависимость интенсивности каждой гауссовой компоненты была проанализирована отдельно. При этом величина интенсивности при $T = 100$ К была взята за единицу. Полученные результаты представлены на Рисунке 14 для двух пленок манганита празеодима с различным содержанием Sr. Для образца с низкой концентрацией Sr^{2+} ($x = 0.2$) интенсивности всех полос с понижением температуры изменяются одинаково (Рисунок 14 а), при этом ход кривых близок к температурной зависимости намагниченности пленки. Для образца с более высокой концентрацией Sr^{2+} ($x = 0.4$) температурное поведение интенсивности полос более сложное (Рисунок 14 б). Таким образом, температурное поведение интенсивности различных гауссовых компонент является третьей разницей между двумя исследуемыми соединениями.

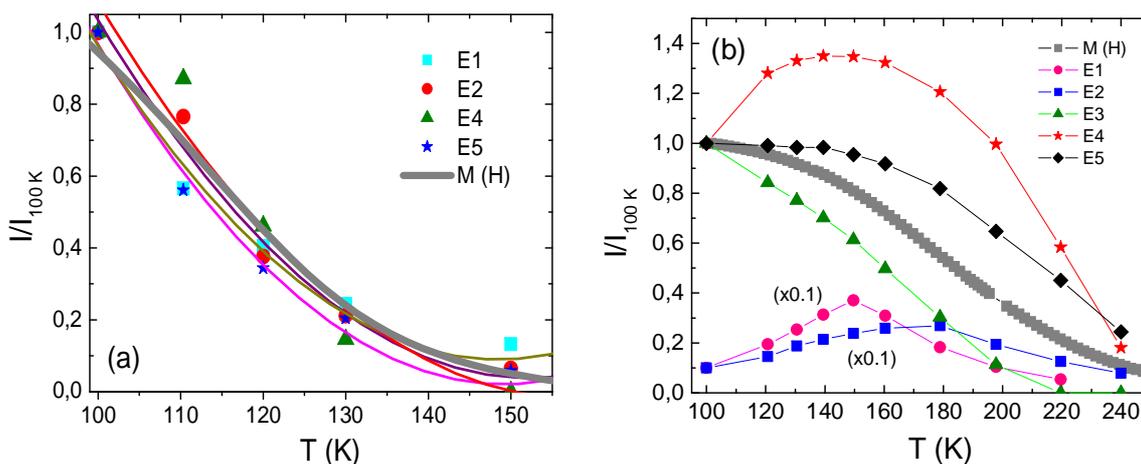


Рисунок 14. Температурные зависимости интенсивностей полос в МКД спектрах $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$, $d = 150$ нм, - (а) и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$, $d = 130$ нм, - (б) в сравнении с температурным поведением намагниченности пленок. Магнитное поле $H_{\perp} = 3$ кЭ.

Объединив полученные данные, мы проследили эволюцию магнитооптических спектров исследуемых пленок с изменением концентрации Sr от 0.2 до 0.4. А именно: последовательное смещение центров тяжести наблюдаемых магнитооптических полос в область низких энергий; сильное возрастание величины эффекта в интервале 2.5-3.6 эВ и

незначительный её спад в низкоэнергетической области; появление в спектрах пленок с металлической проводимостью дополнительного пика при понижении температуры; и различный температурный ход интенсивностей спектральных линий.

Поскольку в литературе не удалось найти каких-либо магнитооптических данных для $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ соединений, полученные данные МКД можно сравнить с магнитооптическим поведением других манганитов, в частности с $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Из Рисунков 7 б и 11 б можно проследить, что их спектры весьма близки. В Таблице 1 представлены энергии всех полос, выявленных в МКД и МЛД спектрах пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$, $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$. Полученная картина свидетельствует о последовательном смещении центров тяжести полос в область низких энергий с увеличением концентрации Sr^{2+} в образце.

Таблица 1. Энергии центров тяжести резонансных линий в магнитооптических спектрах LSMO и PSMO пленок.

		E_1 (эВ)	E_2 (эВ)	E_3 (эВ)	E_4 (эВ)	E_5 (эВ)	E_6 (эВ)	E_7 (эВ)	E_8 (эВ)
$\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$	МКД	1.6	2.0	-	-	-	-	3.1	3.4
$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$	МЛД	1.4	-	1.9	2.1	2.5	2.7	3.0	-
	МКД	-	1.7	-	-	2.4	-	2.9	3.3
$\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$	МКД	1.3	1.7	-	-	2.3	-	2.8	3.2

Исходя из спектральных зависимостей МКД и МЛД только для пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, невозможно четко разделить механизмы, определяющие появление тех или иных магнитооптических полос. Поэтому основное внимание обратим на спектры МКД пленок манганитов Pr с различной концентрацией Sr. Ранее мы отметили сильное возрастание величины эффекта в интервале 2.5 - 3.6 эВ и незначительный её спад в низкоэнергетической области при переходе от образца $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ к $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$. Подобная картина свидетельствует о том, что электронные переходы, ответственные за наблюдаемые магнитооптические эффекты, по-разному реагируют на изменение относительного содержания Pr и Sr в соединении. Разница между характеристиками МКД в $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$, очевидно, связана с различиями в их проводимости и в концентрации ионов Mn^{4+} . Поскольку интенсивность высокоэнергетических пиков при 2.8 и 3.2 эВ возросла, практически, пропорционально концентрации легирующих ионов Sr^{2+} (примерно в 2 и 2.7 раза, соответственно, Рисунок 13), их появление должно быть обусловлено электронными переходами с участием Mn^{4+} ионов. При этом, некоторое уменьшение интенсивности низкоэнергетических полос в интервале 1.3 - 2 эВ свидетельствует о том, что они связаны, в основном, с ионами Mn^{3+} . Полоса противоположного знака вблизи 2.4 эВ не наблюдается в спектре МКД ферромагнитного изолятора $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ (Рисунок 12 а), однако она характерна для металлов $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ и $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, а также для других манганитов лантана с металлической проводимостью, исследованных с помощью ЭК [например, 11]. Подобная закономерность, позволяет связать эти особенности с вкладом носителей заряда.

Рассмотрим более подробно природу выявленных магнитооптических полос, представленных в Таблице 1. Во многих работах бесструктурная полоса поглощения в спектрах антиферромагнитных манганитов RMnO_3 при 2 эВ была связана с непрямыми переходами между занятыми и пустыми состояниями, принадлежащими e_g - зоне ионов Mn^{3+} . Авторам работы [21] удалось разрешить на фоне этой полосы особенности вблизи 1.3, 1.9, 2.3, и 2.7 эВ, которые они связали, на основе теоретического анализа с запрещенными $t_{1g}(\pi) \rightarrow e_g$ (1.3 и 1.9 эВ) и разрешенными $t_{2u}(\pi) \rightarrow e_g$ (2.3 и 2.7 эВ) $p \rightarrow d$ переходами, а полосу при 2 эВ с $d \rightarrow d$ переходом в ионах Mn^{3+} . По аналогии с этой работой полосы, выявленные в

настоящей работе при 1.4 и 1.7 эВ, можно связать с $p \rightarrow d$ и $d \rightarrow d$ переходами, соответственно, в ионах Mn^{3+} .

Необычное температурное поведение этих пиков в случае $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ и $Pr_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$ пленок, а именно наличие кинка на кривых (Рисунок 14 б и вставка на Рисунке 10 б), может быть объяснено перераспределением спектрального веса между электронными переходами различной природы, как это было отмечено в [22] при исследовании температурной зависимости оптической проводимости металлических манганитов. Авторы [22] показали, что при наличии в образце металлической фазы низкоэнергетические спектры представляют собой суперпозицию двух вкладов: внутризонных возбуждений и пика Друде с различными температурными зависимостями. Кроме того, в других работах при исследовании оптической проводимости пленок $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ были построены температурные зависимости интенсивностей оптических полос, расположенных в различных спектральных интервалах. На кривой, соответствующей изменению спектрального веса в области 0 - 3 эВ, также наблюдался характерный кинк. Таким образом, температурное поведение рассматриваемых E_1 и E_2 полос (Таблица 1) определяется конкуренцией двух механизмов: ростом намагниченности и снижением вкладов межзонных ($p \rightarrow d$) и внутризонных ($d \rightarrow d$) переходов, что объясняет наличие кинка.

Перераспределение спектрального веса является не единственным следствием допирования манганитов. Следует также отметить и появление октаэдрических комплексов $(Mn^{4+}O_6)^{8-}$. Магнитооптика $(Mn^{4+}O_6)^{8-}$ была изучена в работе [23] на примере ЭК в пирохлоре $A_2Mn_2O_7$, в спектральной зависимости которого были выявлены полосы вблизи 2.6 и 3.1 эВ, они приписывались $d \rightarrow d$ переходам ${}^4A_{2g} \rightarrow {}^4T_{2g}$ и ${}^4A_{2g} \rightarrow {}^4T_{1g}$ в ионах Mn^{4+} . Основываясь на результатах работы [23], авторы [13] также связали несимметричную форму пика в спектре фарадеевского вращения с близостью двух $d \rightarrow d$ переходов при 2.7 и 3.1 эВ в ионах Mn^{4+} . Таким образом, полосы E_6 и E_7 с близкими энергиями (Таблица 1), обнаруженные в МЛД и МКД спектрах LSMO и PSMO пленок, следует отнести к тем же $d \rightarrow d$ переходам в ионах Mn^{4+} .

Интересно отметить, что температурное поведение интенсивности этих полос соответствует температурному поведению намагниченности исследуемых пленок, однако, для образцов с металлической проводимостью наблюдаемая картина неоднозначная. В частности, для соединения $Pr_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$ на температурной зависимости интенсивности полосы E_7 (Таблица 1) прослеживается кинк вблизи 140 К (Рисунок 15 б). Предположительно, подобное поведение связано с влиянием соседних полос, центрированных при меньших энергиях.

Поскольку формы спектров МКД и ЭК близки друг к другу, самую интенсивную полосу E_8 (Таблица 1) можно сравнить с высокоэнергетической полосой, которая наблюдалась многими авторами в спектрах ЭК и приписывалась переходу с переносом заряда $O(2p) \rightarrow Mn(3d)$. В настоящей работе было отмечено, что для всех исследуемых пленок температурный ход интенсивности такой полосы всегда повторяет температурное поведение намагниченности и не испытывает каких-либо перегибов. Кроме того, прослежено возрастание ее интенсивности и при увеличении степени допирования Sr^{2+} , что позволяет объяснить появление пика E_7 переходом с переносом заряда с $O(2p)$ на $Mn^{4+}(3d)$.

Особое внимание привлекают полосы $E_3 - E_5$ (Таблица 1), появляющиеся в магнитооптических спектрах при понижении температуры (Рисунок 8 и Рисунок 12 б). Основываясь на данных сравнительного анализа магнитооптического поведения пленок $Pr_{1-x}Sr_xMnO_3$ с различной проводимостью (Рисунок 12), мы предположили, что полосы $E_3 - E_5$ могут быть связаны со свободными носителями заряда, появление которых обусловлено замещением трехвалентного празеодима двухвалентным стронцием. В подтверждение такому предположению можно привлечь и тот факт, что транспортные свойства исследуемых пленок демонстрируют переход металл – изолятор (Рисунок 15) в районе температур, при которых на магнитооптических спектрах появляются полосы вблизи 2.4 эВ (Рисунок 8 и Рисунок 12 б).

В свою очередь, температурный ход интенсивности данных полос вызывает не меньше интереса, поскольку он не совпадает с аналогичным ходом намагниченности пленки (Рисунок 10 и Рисунок 14 б). В работе [8] было показано, что носители заряда в манганитах поляризованы по спину в магнитном поле ионного остова, при этом степень спиновой поляризации существенно различалась в глубине образца и на его поверхности. Представленные на Рисунках 10 и 14 б температурные зависимости интенсивности $E_3 - E_5$ полос близки по форме, именно, к температурной зависимости намагниченности на поверхности пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, измеренной с помощью спин-разрешенной фотоэмиссионной спектроскопии на глубине 0.5 нм в [10]. Поэтому температурный ход $E_3 - E_5$ полос можно было бы связать с вкладом поверхности. Однако этот вопрос требует дополнительного исследования, поскольку вклад поверхностных состояний не должен быть определяющим при достаточно больших толщинах пленок.

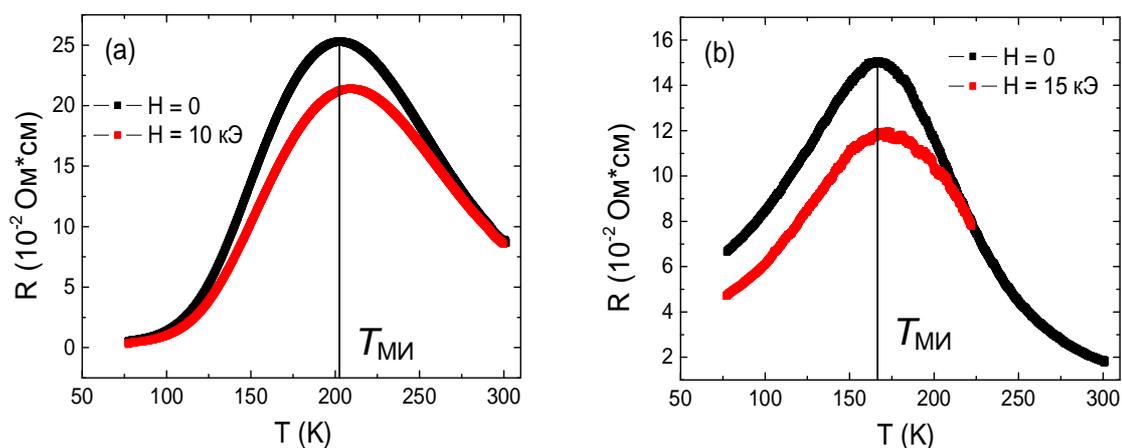


Рисунок 15. Температурные зависимости удельного сопротивления поликристаллических пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ №4 (а) и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ №5 (б), снятые при различных значениях внешнего магнитного поля H_{\perp} .

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Впервые исследованы магнитооптические свойства манганитов празеодима на примере магнитного кругового дихроизма (МКД) в тонких поликристаллических пленках $\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0.2$ и 0.4) в сопоставлении с их магнитными свойствами, а также магнитный линейный дихроизм (МЛД) в поликристаллических пленках $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$.

2. В спектрах МКД и МЛД выявлено значительно большее количество особенностей по сравнению с оптическими спектрами. Показано, что на форму МКД спектров исследованных составов влияет не тип лантаноида (La, Pr), а характер проводимости: в спектрах пленок с металлической проводимостью ($\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$) при температуре перехода металл – изолятор появляются дополнительные пики. Обнаружено различное изменение интенсивности пиков МКД в различных областях спектра с увеличением концентрации Sr^{2+} , непропорциональное изменению намагниченности образцов.

3. С помощью аппроксимации магнитооптических спектров суммой гауссовых и лоренцевых компонент выявлен полный набор спектральных особенностей МКД и МЛД, которые сопоставлены с электронными переходами в ионах марганца Mn^{3+} (в низкоэнергетической области), Mn^{4+} (в высокоэнергетической области), а также со свободными носителями заряда (в области 1.9 - 2.5 эВ).

4. Обнаружен и объяснен различный характер температурных зависимостей интенсивности полос магнитного дихроизма в пленках с различным типом проводимости. В случае диэлектрических пленок ($\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$) интенсивность всех максимумов МКД изменяется с температурой одинаково в соответствии с температурной зависимостью намагниченности. Для пленок с металлическим типом проводимости ($\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$) наблюдаются различные по характеру температурные зависимости интенсивности вплоть до кривых с перегибом, и только для некоторых полос МКД и МЛД температурный ход интенсивности близок к температурному ходу намагниченности.

ПУБЛИКАЦИИ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Edelman, I. Visible magnetic circular dichroism spectroscopy of the $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ and $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ thin films / I. Edelman, Yu. Greben'kova, A. Sokolov, M. Molokeev, A. Aleksandrovsky, V. Chichkov, N. Andreev, Y. Mukovskii // **AIP Advances**. - 2014.- Vol. 4. - P. 057125.
2. Гребенькова, Ю. Э. Линейный и квадратичный магнитооптические эффекты в проходящем свете в тонких пленках $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ / Ю. Э. Гребенькова, А. Э. Соколов, И. С. Эдельман, Н. В. Андреев, В. И. Чичков, Я. М. Муковский // **Письма в ЖЭТФ**. - 2013. - Т. 98. - Вып. 8. - С. 518.
3. Гребенькова, Ю. Э. Намагниченность и магнитный круговой дихроизм поликристаллических пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{YSZ}$ / Ю. Э. Гребенькова, А. Э. Соколов, Е. В. Еремин, И. С. Эдельман, Д. А. Марущенко, В. И. Зайковский, В. И. Чичков, Н. В. Андреев, Я. М. Муковский // **ФТТ**. - 2013. - Т. 55. - Вып. 4. - С. 771.
4. Гребенькова, Ю. Э. Магнитные и магнитооптические свойства поликристаллических пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ / Ю. Э. Гребенькова, И. С. Эдельман, А. Э. Соколов, Е. В. Еремин, М. В. Рауцкий, Н. В. Андреев, В. И. Чичков, Я. М. Муковский // **Известия РАН. Серия физическая**. - 2013. - Т. 77. - № 10. - С. 1383.
5. Гребенькова, Ю. Э. Температурные и полевые зависимости намагниченности поликристаллических пленок $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$: **Препринт № 855Ф** / Ю. Э. Гребенькова, Е. А. Степанова, М. С. Молокеев, В. И. Чичков, Н. В. Андреев, И. Э. Эдельман. - Красноярск: ИФ СО РАН, 2014. - 18 с.
6. Greben'kova, Yu. Visible magnetic circular dichroism spectroscopy of the $\text{Pr}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ and $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ thin films: **Preprint №854** / Yu. Greben'kova, A. Sokolov, M. Molokeev, E. Stepanova, V. Chichkov, N. Andreev, I. Edelman. Krasnoyarsk: Kirensky Institute of Physics, 2014. - 16 pp.
7. Гребенькова, Ю. Э. Магнитный круговой дихроизм в пленочных структурах $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3/\text{YSZ}$ / Ю. Э. Гребенькова, И. С. Эдельман // Тезисы докладов 15-й всероссийской молодежной конференции «Физика полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто-и наноэлектроники». - Санкт-Петербург: Издательство Политехнического университета. - 2013. - С. 22.
8. Greben'kova, Yu. E., Magneto-optical spectroscopy of manganite thin films / Yu. E. Greben'kova, A. E. Sokolov, I. S. Edelman, N. V. Andreev, V. I. Chichkov // Abstracts of international conference «Functional Materials». – Ukraine, Simferopol: DIP. – 2013. - P. 186.
9. Greben'kova, Yu. E., Linear and circular magnetic dichroism in thin films of lanthanum manganite / Yu. E. Greben'kova, A. E. Sokolov, I. S. Edelman, N. V. Andreev, V. I. Chichkov // Abstracts of V Euro-Asian Symposium "Trends in MAGnetism": Nanomagnetism. - Vladivostok: Directorate of publishing activities of Far Eastern Federal University. - 2013. - P. 324.
10. Гребенькова, Ю. Э. Магнитное и магнитооптическое поведение пленочных структур $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{YSZ}$ / Ю. Э. Гребенькова, И. С. Эдельман // Тезисы докладов 14-й всероссийской молодежной конференции «Физика полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто-и наноэлектроники». - Санкт-Петербург: Издательство Политехнического университета. - 2012. - С. 18.
11. Гребенькова, Ю. Э. Температурная зависимость намагниченности и магнитного кругового дихроизма пленочных структур $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{YSZ}$ / Ю. Э. Гребенькова, И. С. Эдельман, А. Э. Соколов, Е. В. Еремин, Н. В. Андреев, В. И. Чичков // Материалы Всероссийской молодежной научной школы «Актуальные проблемы физики» в рамках фестиваля науки. - Издательство Южного федерального университета. - 2012. – С. 76-78.
12. Гребенькова, Ю. Э. Магнитные и магнитооптические свойства поликристаллических пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ / Ю. Э. Гребенькова, И. С. Эдельман, А. Э. Соколов, Е. В. Еремин, В. И. Зайковский, В. И. Чичков // Сборник трудов XXII

международной конференции «Новое в магнетизме и магнитных материалах». – Астрахань: . – 2012. - С. 516-518.

13. Гребенькова, Ю. Э. Магнитный круговой дихроизм и намагниченность поликристаллических пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ на YSZ / Ю. Э. Гребенькова, А. Э. Соколов, Е. В. Еремин, В. И. Чичков // Материалы конференции 18-й Всероссийской научной конференции студентов-физиков и молодых ученых. – Красноярск: Издательство АСФ России. – 2012. - С. 305-306.

СПИСОК ЦИТИРУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ramirez, A. P. Colossal magnetoresistance / A. P. Ramirez // J. Phys.: Condens. Matter. - Vol. 9. - 1997. - P. 8171-8199.
2. Coey, J. M. D. Mixed-valence manganites / J. M. D. Coey, M. Viret, S. von Molnar // Advances in Physics. - Vol. 48 (2). - 1999. - P. 167-293.
3. Haghiri-Gosnet, A-M. CMR manganites: physics, thin films and devices / A-M Haghiri-Gosnet, J-P Renard // J. Phys. D: Appl. Phys. - Vol. 36. - 2003. - P. R127-R150.
4. Волков, Н. В. Спинтроника: магнитные туннельные структуры на основе манганитов / Н. В. Волков // УФН. - Т. 182. - № 3. - 2012. - С. 263-285.
5. Yu-Kuai, Liu. Colossal magnetoresistance in manganites and related prototype devices / Liu Yu-Kuai, Yin Yue-Wei, Li Xiao-Guang // Chin. Phys. B. - Vol. 22 (8). - 2013. - P. 087502
6. Tsui, F. Strain-dependent magnetic phase diagram of epitaxial $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ thin films / F. Tsui, M. C. Smoak, T. K. Nath, C. B. Eom. // Appl. Phys. Lett. - Vol. 76 (17). - 2000. - P. 2421-2423.
7. Majumdar, Sayani. Pulsed laser deposition of $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$: thin-film properties and spintronic applications / Sayani Majumdar, Sebastiaan van Dijken // J. Phys. D: Appl. Phys. - Vol. 47. - 2014. - P. 034010.
8. Park, J.-H. Magnetic Properties at Surface Boundary of a Half-Metallic Ferromagnet $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ / J.-H. Park, E. Vescovo, H.-J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, T. Venkatesan // Phys. Rev. Lett. - Vol. 81 (9). - 1998. - P. 1953-1956.
9. Liu, H. L. Thickness-dependent optical properties of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ thin films / H. L. Liu, M. X. Kuo, J. L. Her, K. S. Lu, S. M. Weng, L. M. Wang, S. L. Cheng, J. G. Lin // J. Appl. Phys. - Vol. 97. - 2005. - P. 113528.
10. Yamaguchi, S. Magneto-optical Kerr effects in perovskite-type transition-metal oxides: $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ and $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ / S. Yamaguchi, Y. Okimoto, K. Ishibashi, Y. Tokura // Phys. Rev. B. - Vol. 58 (11). -1998. - P. 6862 - 6870.
11. Veis, M. Magneto-optic spectroscopy of $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ films on SrTiO_3 (100) and (110) substrates / M. Veis, S. Visnovsky, Ph. Lecoeur, A-M. Haghiri-Gosnet, J-P. Renard, P. Beauvillain, W. Prellier, B. Mercey, J. Mistr'k, T. Yamaguchi // J. Phys. D: Appl. Phys. - Vol. 42. - 2009. - P. 195002.
12. Lawler, J. F. Magneto-optic Faraday effect in $(\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x)\text{MnO}_3$ films / J. F. Lawler, J. G. Lunney, J. M. D Coey // Appl. Phys. Lett. - Vol. 65. - 1994. - P. 3017-3018.
13. Сухоруков, Ю. П. Магнитооптический эффект Фарадея в пленках $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ / Ю. П. Сухоруков, А. М. Москвин, Н. Н. Лошкарева, И. Б. Смоляк, В. Е. Архипов, Я. М. Муковский, А. В. Шматок // ЖТФ. - Т. 71. - В. 6. -2001. - С. 139-142.
14. Nath, T. K. Magnetic circular dichroism spectroscopy in epitaxial $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ thin films / T. K. Nath, J. R. Neal, G. A. Gehring // J. Appl. Phys. - Vol. 105. - 2009. - P. 107D709.
15. Gehring, G. A. Magneto-optic studies of magnetic oxides / G. A. Gehring, M. S. Alshammari, D. S. Score, J. R. Neal, A. Mokhtari, A. M. Fox // JMMM. - Vol. 324. - 2012. - P. 3422-3426.
16. Robler, S. Ferromagnetic transition and specific heat of $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ / S. Robler, S. Nair Harikrishnan, U. K. Robler, C. M. N. Kumar, Suja Elizabeth, S. Wirth // Phys. Rev. B. - Vol. 84 - 2011 - P. 184422.

17. Maheswar Repaka, D. V. Magnetocaloric effect and magnetothermopower in the room temperature ferromagnet $\text{Pr}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ / D. V. Maheswar Repaka, T. S. Tripathi, M. Aparnadevi, R. Mahendiran // *J. Appl. Phys.* - Vol. 112. - 2012. - P. 123915.
18. Steenbeck, K. Magnetic anisotropy of ferromagnetic $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ epitaxial thin films: Dependence on temperature and film thickness / K. Steenbeck, T. Habisreuther, C. Dubourdieu, J. P. Senateur // *J. Appl. Phys.* - Vol. 80. - 2002. - P. 3361.
19. Lehmann, A. G. Pure ferromagnetism vs. re-entrant spin glass behavior in epitaxial $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ on $\text{SrTiO}_3(001)$ and $\text{LaAlO}_3(001)$: the role of the substrate structural transition / A. G. Lehmann, C. Sanna, F. Congiu, G. Concas, L. Maritato // *Phys. Status Solidi B.* - Vol. 246 (8). - 2009. - P. 1948-1955.
20. Лошкарева, Н. Н. Носители заряда в спектрах оптической проводимости манганитов лантана / Н. Н. Лошкарева, Ю. П. Сухоруков, В. Е. Архипов, С. В. Окатов, С. В. Наумов, И. Б. Смоляк, Я. М. Муковский, А. В. Шматок // *ФТТ.* – Т. 41. - Вып. 3. - 1999. - С. 474-482.
21. Moskvin, A. S. Interplay of p-d and d-d charge transfer transitions in rare-earth perovskite manganites / A. S. Moskvin, A. A. Makhnev, L. V. Nomerovannaya, N. N. Loshkareva, A. M. Balbashov // *Phys. Rev. B.* - Vol. 82 - 2010 - P. 035106.
22. Okimoto, Y. Variation of electronic structure in $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($0 < x < 0.3$) as investigated by optical conductivity spectra / Y. Okimoto, T. Katsufuji, T. Ishikawa, T. Arima, Y. Tokura // *Phys. Rev. B.* - Vol. 55 (7). - 1997. - P. 4206-4214.
23. Balykina, E. A. Magneto-optical properties of new manganese oxide compounds / E. A. Balykina, E. A. Ganshina, G. S. Krinchik, A. Yu. Trifonov // *JMMM.* - Vol. 117. - 1992. - P. 259-269.