

Отклик зарядовой подсистемы на структурные, орбитальные и магнитные фазовые переходы в двойных манганитах $R\text{BaMn}_2\text{O}_6$

Е.В. Мостовщикова, С.В. Наумов, А. Степанов, С.Г. Титова¹, С.В. Пряничников¹, Е.В. Стерхов¹

Институт физики металлов имени М.Н. Михеева УрО РАН, г. Екатеринбург

¹Институт металлургии УрО РАН, г. Екатеринбург

Из сопоставления оптических свойств в ближнем ИК диапазоне и структурных и магнитных свойств двойных манганитов $R\text{BaMn}_2\text{O}_6$ с упорядочением редкоземельных ионов $R = \text{Pr}$, Nd , Sm , или $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x$ и ионов Ba в А-позиции показано различие отклика зарядовой подсистемы в зависимости от типа зарядового/орбитального упорядочения и характера антиферромагнитного упорядочения (А-типа с ферромагнитным вкладом или СЕ типа). В манганите с $R=\text{Pr}$ орбитальное упорядочение $d_{x^2-y^2}$ приводит к изолирующему состоянию при низких температурах. В манганитах с $R=\text{Nd}$, $\text{Nd}_{0.75}\text{Sm}_{0.25}$ или $\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}$ при попарном выстраивании орбитально упорядоченных слоев $d_{3x^2-r^2}/d_{3y^2-r^2}$ наблюдается полупроводниковый характер носителей заряда, а при послойном выстраивании слоев – «металлический». В манганитах с $R=\text{Nd}_{0.25}\text{Sm}_{0.75}$ и Sm отсутствие выраженного «металлического» характера зарядовой подсистемы связывается с формированием антиферромагнитного упорядочения СЕ типа.

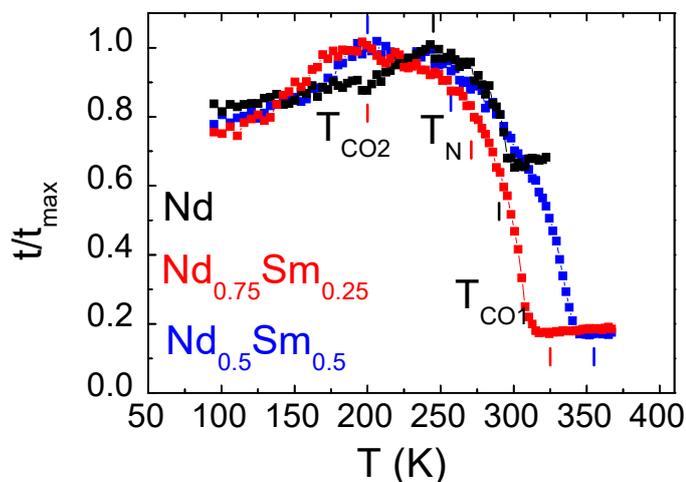


Рисунок - 1 Температурные зависимости относительного изменения пропускания света упорядоченных двойных манганитов $R\text{BaMn}_2\text{O}_6$, измеренные при $E=0.15$ эВ. Стрелками отмечены температуры структурных и магнитных фазовых переходов.

Публикации:

1. The origin of the structural transition in double-perovskite manganite $\text{PrBaMn}_2\text{O}_6$ / E.V. Sterkhov⁰, N.M. Chtchelkatchev⁰, E.V. Mostovshchikova¹, R.E. Ryltsev⁰, S.A. Uporov⁰, G.L. Pascut⁰, A.V. Fetisov⁰. – Текст: непосредственный // Journal of Alloys and Compounds. — 2022. — V. 892. — P. 162034—162042.
2. Отклик зарядовой подсистемы на фазовые переходы в двойных манганитах $\text{LnBaMn}_2\text{O}_6$ / Е. В. Мостовщикова¹, Е. В. Стерхов⁰, Я. Я. Пыжьянов¹, С. Г. Титова⁰. – Текст: непосредственный // Журнал экспериментальной и теоретической физики. — 2023. — V. 163. — P. 58—65.
3. A-site isovalent substitution effect in the double manganites $\text{Nd}_{1-x}\text{Sm}_x\text{BaMn}_2\text{O}_6$ / E.V. Sterkhov⁰, S.A. Uporov⁰, L.B. Vedmid⁰, O.M. Fedorova⁰, E.V. Mostovshchikova¹,

Актуальность Послойное упорядочение редкоземельных ионов R и ионов Ba в двойных манганитах $RBaMn_2O_6$ приводит к появлению зарядового и орбитального упорядочения, структурным фазовым переходам и существенному увеличению температур магнитных фазовых переходов. Существует вопрос о природе и взаимосвязи фазовых переходов в разных подсистемах в манганитах с разными редкоземельными ионами. В литературе преимущественно исследуются порошковые образцы, поэтому остается малоизученной зарядовая подсистема и ее изменения при указанных фазовых переходах.

Цель установить сходства и различия изменений в зарядовой подсистеме при структурных и магнитных фазовых переходах и их взаимосвязь в двойных манганитах $RBaMn_2O_6$ с разными редкоземельными ионами

Задачи исследования:

1) синтезировать серию образцов манганитов $RBaMn_2O_6$ с разными редкоземельными ионами, а также с разной степенью упорядочения в А-позиции; 2) исследовать структурные, магнитные и оптические свойства; 3) установить зависимость изменений зарядовой подсистемы от типа магнитной структуры орбитального упорядочения.

Объект исследования: порошки и поликристаллы манганитов $RBaMn_2O_6$ с упорядочением редкоземельных ионов $R = Pr, Nd, Sm$, или $Nd_{1-x}Sm_x$ и ионов Ba в А-позиции.

Методы исследования: синтез – метод топотактической реакции; данные о структурных и магнитных фазовых переходах – рентгеновская порошковая дифракция в интервале температур 100–350 К, магнитные измерения в интервале температур 5–350 К; данные об изменениях зарядовой подсистемы – исследование температурных зависимостей пропускания света в ближнем ИК диапазоне, интервале температур 90–350 К, в магнитном поле до 8 кЭ.

Авторский вклад сотрудников ИФМ: идея исследования, постановка задачи, проведение оптических экспериментов, сопоставление и анализ результатов исследования, написание статей в соавторстве.

1. Определены структурные изменения с температурой в манганитах с разными редкоземельными ионами.

По данным рентгеновской дифракции установлено, что в рассматриваемых манганитах имеется структурный переход с изменением параметров решетки без изменения типа кристаллической структуры. В манганитах с $R=Pr, Nd$ реализуется тетрагональная $Pmmm$ структура, в манганитах с $R=Nd_{0.75}Sm_{0.25}, Nd_{0.5}Sm_{0.5}, Nd_{0.25}Sm_{0.75}$ и Sm – псевдокубическая $P4/mmm$. Структурные переходы связаны с расщеплением дуплетных $3d$ состояний при орбитальном упорядочении. В манганитах с разными редкоземельными ионами реализуется разное орбитальное упорядочение: $d_{x^2-y^2}$ для Pr , для $Nd, Nd_{1-x}Sm_x$ и Sm – попарное упорядочение (AABV) слоев упорядоченных диагонально орбиталей $d_{3x^2-r^2}/d_{3y^2-r^2}$ при высоких температурах и поочередное упорядочение (ABAB) при $T < 200$ К.

Вид редкоземельного иона	Pr	Nd	$Nd_{0.75}Sm_{0.25}$	$Nd_{0.5}Sm_{0.5}$	$Nd_{0.25}Sm_{0.75}$	Sm
--------------------------	----	----	----------------------	--------------------	----------------------	----

Пространственная группа	Pmmm	Pmmm	P4/mmm	P4/mmm	P4/mmm	P4/mmm
T_s, K	180-200	270-300	325	340	400	380-400

2. Определены температуры магнитных фазовых переходов и изменений орбитального упорядочения.

По данным температурных и полевых зависимостей намагниченности установлено, что в манганите $PrBaMn_2O_6$ наблюдается фазовый переход из парамагнитного (ПМ) в ферромагнитное (ФМ) состояние при $T_C=305 K$ и переход в антиферромагнитное (АФМ) состояние А-типа с ФМ взаимодействием внутри плоскостей при $T_N=262 K$. В манганитах $NdBaMn_2O_6$ и $Nd_{1-x}Sm_xBaMn_2O_6$ наблюдается переход ПМ – А-АФМ при 230-245 К (для Nd) и 271, 257 К (для $Nd_{0.75}Sm_{0.25}$ и $Nd_{0.5}Sm_{0.5}$, соответственно). В манганитах $Nd_{0.25}Sm_{0.75}$ и Sm ниже 276 К и 250 К, соответственно, реализуется АФМ состояние СЕ- типа без ФМ взаимодействий.

3. Исследована эволюция зарядовой подсистемы.

Для определения изменений в зарядовой подсистеме двойных манганитов исследованы температурные зависимости пропускания света $t(T)$ в ближнем ИК диапазоне (0.09-0.5 эВ) между областью полос поглощения, связанных с фононами, и краем фундаментального поглощения. Исходя из предположения зарядовой однородности исследуемых образцов (нет сосуществования фаз с разной проводимостью) из зависимостей $t(T)$ сделаны выводы о характере проводимости в образцах и определены температуры перехода «металл-изолятор», при которых полупроводниковый характер пропускания света ($dt/dT < 0$, т.е. $d\rho/dT < 0$) меняется на «металлический» ($dt/dT > 0$, $d\rho/dT > 0$).

Обнаружено что при формировании зарядово/орбитально упорядоченного состояния при понижении температуры происходит резкий рост пропускания света, свидетельствующий об усилении локализации носителей заряда. Если по данным намагниченности имеется ФМ вклад (ФМ состояние в области между T_C и T_N для $PrBaMn_2O_6$ или А-АФМ состояние в случае $NdBaMn_2O_6$ или $Nd_{0.75}Sm_{0.25}BaMn_2O_6$, $Nd_{0.5}Sm_{0.5}BaMn_2O_6$), то ниже T_C наблюдается «металлический» характер проводимости в системе.

Выводы:

Проведенный анализ структурных, магнитных и оптических данных упорядоченных двойных манганитов $RBaMn_2O_6$ ($R=Pr, Nd, Sm, Nd_{1-x}Sm_x$) указывает на корреляцию характера проводимости с типом и последовательностью структурных и магнитных фазовых переходов. «Металлический» характер проводимости в двойных манганитах обнаруживается только при наличии ФМ корреляций (ФМ упорядочения или А-АФМ состояния с ФМ взаимодействием внутри ab слоев).