# ИНДУЦИРОВАННОЕ ДАВЛЕНИЕМ ИЗМЕНЕНИЕ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ ПОВЕРХНОСТИ ГРАНУЛ La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>

В. Ю. Таренков, А. И. Дьяченко, В. Н. Криворучко\*

Донецкий физико-технический институт им. А. А. Галкина Национальной академии наук Украины 83114, Донецк, Украина

Поступила в редакцию 7 февраля 2001 г.

Транспортные свойства текстурированных пленок и туннельных контактов La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>, обусловленные поверхностным состоянием гранулы, изучены в слабых магнитных полях (меньше 100 Э) и давлениях до 10 кбар. Исследованы два типа туннельных контактов: контакты на механическом изломе и контакты La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>-изолятор-сверхпроводник. Хотя в последнем случае только один электрод является магнитным материалом, все образцы демонстрируют низкополевой магниторезистивный эффект. Гидростатическое сжатие существенно меняет транспортные свойства керамических и туннельных образцов, подавляя магниторезистивный эффект. Причины такого поведения обсуждаются в модели спин-поляризованного неупругого туннелирования носителей заряда через потенциальный барьер, сформированный не только межгранульной областью, но и поверхностью контактирующих гранул. Приводятся аргументы в пользу того, что с наибольшей вероятностью магнитное состояние барьера и его высота меняются под действием давления из-за перехода поверхности гранул в металлическое состояние.

PACS: 73.40.Gk, 73.40.Rw, 75.70.Pa

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время экспериментально установлено, что моно- и поликристаллические образцы манганитов лантана проявляют достаточно разные магниторезистивные свойства. В то время как сопротивление монокристаллических образцов меняется мало в слабых магнитных полях, для поликристаллических и керамических систем характерно заметное уменьшение сопротивления уже в слабом поле (см., например, [1-4]). В ранних исследованиях это явление интерпретировалось в рамках феноменологической модели [5], где коэффициент прохождения носителей заряда через изолирующий барьер зависел только от относительной ориентации намагниченности электродов. Позднее появился ряд веских экспериментальных и теоретических аргументов, указывающих на более сложную физику туннельного эффекта в контактах, образованных магнетиками, в частности, в туннельных системах манганитов лантана [6-15]. А именно, характер протекания тока в манганитовых материалах определяется как магнитным состоянием самой гранулы, так и структурой межгранульного барьера. Свидетельством этого являются, например, заметные изменения транспортных характеристик контактов от температуры [6, 8, 11, 12, 14]; зависимость свойств туннельного контакта от материала барьера при одном и том же материале электродов [10, 11]; наличие магниторезистивных свойств даже тогда, когда только один из электродов контакта является магнитным [10, 11, 15, 16] и т. д. Эти результаты указывают на то, что межгранульные границы являются не только потенциальным барьером, но и определяют характер туннелирования спин-поляризованных электронов из глубины гранулы.

В настоящее время предложено несколько моделей, учитывающих роль межгранульного потенциального барьера в формировании транспортных свойств керамических образцов манганитов лантана. Однако, несмотря на предпринятые усилия, исчерпывающее понимание роли межзеренных границ в проявлении эффекта спин-зависимого туннелирования все еще отсутствует, что проявляется и в некоторой противоречивости этих моделей. Так, в [1,2] предложена модель, основан-

<sup>\*</sup>E-mail: krivoruc@host.dipt.donetsk.ua

ная на спин-поляризованном туннелировании между ферромагнитными гранулами через изолирующий немагнитный барьер поверхности гранулы. Наоборот, авторы работы [4,6] предположили появление магнитной поляризации поверхности гранулы за счет намагниченности внутри гранулы. В [17, 18] указывается на большую вероятность туннелирования через парамагнитные примесные состояния в межгранульном барьере. Авторы [11, 15, 19] предложили описание, предполагающее наличие спонтанного магнитоупорядоченного состояния (кластеров) в барьере. Параллельно [14, 20] развиваются модели, где дополнительный туннельный барьер между гранулами возникает из-за искривления зон между внутренним объемом гранулы и ее поверхностью, после перехода содержимого в грануле в магнитоупорядоченное состояние.

Для исследования роли поверхности гранул как потенциального барьера интерес представляют методики, эффективно меняющие характер протекания туннельного тока через барьер. Уникальные возможности в этом отношении предоставляет метод гидростатического сжатия образца, так как реакция проводимости контакта между металлами на давление существенно зависит от структуры барьера (см., например, [21-23]). Заметим, что в большинстве ранее проведенных туннельных экспериментов на манганитах лантана преследовалась цель получения максимального магниторезистивного эффекта в малых магнитных полях. При этом возможности туннельного эффекта как инструмента для спектроскопических исследований полностью не были реализованы.

Цель настоящего исследования состоит в проверке предположений работ [6,11,15,19] о существенной роли магнитного состояния приграничной области гранулы (интерфейса) в формировании транспортных характеристик как туннельных контактов, так и керамических образцов манганитов лантана. Использовались методика гидростатического сжатия образца и существующие данные об изменении транспортных свойств манганитов под давлением [24-28]. Ожидались проявление внутренней пространственно-неоднородной магнитной структуры интерфейса в туннельных характеристиках контактов, чувствительность этих характеристик к малым магнитным полям и давлениям. Действительно, спектроскопические особенности туннелирования позволили нам провести анализ обнаруженного полного подавления низкополевого магниторезистивного эффекта в условиях гидростатического сжатия и связать это явление со структурой пространственно-неоднородного состояния исследуемого микрокристалла манганита.

## 2. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ И ОБРАЗЦЫ

Возможность получения туннельных контактов на одной грануле продемонстрирована многочисленными исследованиями купратных сверхпроводящих перовскитов, сходных с манганитами по морфологии и механическим свойствам (см., например, [29] и цитированную там литературу), а использованная нами методика приготовления стабильных контактов на микрокристаллах позволила проводить исследования при высоких гидростатических давлениях.

Суть методики приготовления контактов на одном микрокристалле состоит в изготовлении керамической пластинки размерами  $0.1 \times 1 \times 10$  мм<sup>3</sup>, гранулы которой выстроены в одном направлении и плотно прилегают друг к другу, образуя высокотекстурированную структуру. Пластинка приклеивается к гибкой подложке. Подложка изгибается до появления трещины в керамической пластинке, проходящей через все гранулы в области деформации. При снятии внешней нагрузки пластинка возвращается в исходное положение, трещина «закрывается» и микрокристаллики плотно прижимаются друг к другу по линиям излома. В наибольшей степени «правильное» совмещение разлома микрокристаллов следует ожидать в той области пластинки, где сдвиговая деформация минимальна. По-видимому, это является одной из причин того, что такая методика приводит к реализации всего одного действующего контакта типа микрокристалл-микрокристалл. В литературе контакты, приготовленные по аналогичной методике, получили название контакты на изломе (break junction) [29-31]. Выбору среди конкурирующих контактов одного контакта с минимальным туннельным сопротивлением способствует также сама специфика туннельного эффекта, в котором величина тока экспоненциально зависит от толщины барьера (изменение толщины барьера на 1 Å обычно меняет сопротивление контакта в несколько раз). Малая толщина пластинки, используемая в обсуждаемой технологии, является дополнительным важным фактором для приготовления контактов микрокристалл-микрокристалл.

Объектами исследований являлись керамические образцы La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>, изготовленные по методике, изложенной в [15]. В частности, пониженная температура и малое время отжига позволяли получить пластинки, межзеренные связи которых проявляли туннельный характер протекания тока, что отражалось в наблюдении ярко выраженного низкополевого магниторезистивного эффекта, обусловленного спин-зависимым туннелированием электронов. Сопротивление исходных пластин при комнатной температуре находилось в интервале 2–10 Ом. Переходное сопротивление токовых и потенциальных контактов составляло  $R \sim 10^{-7}$  Ом·см<sup>2</sup>.

Для проверки качества полученных пластин  $La_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$  измерялись температурные зависимости их сопротивления. Последние имели характерный максимум в районе 360 K, связанный с переходом металл-диэлектрик. Измерялась также величина магниторезистивного эффекта,  $[\rho(T,0) - \rho(T,H)]/\rho(T,0)$ , в слабом магнитном поле; при T = 77 K и H = 100 Э эффект составлял 3–4%.

Как и в [15], туннельные контакты на пластинках керамики La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> приготавливались двумя способами. Переходы типа немагнитный металл-керамика (контакты Pb-I-LaSrMnO, где I изолятор) формировались впрессовыванием капли свинца в поверхность керамических пластинок. Такие контакты образуются при изломе микрокристалликов манганита и проникновении металла (Pb) в область излома. Выбор свинца в качестве электрода давал возможность наблюдать энергетическую щель Pb при переходе в сверхпроводящее состояние. Наличие сверхпроводящей щели было однозначным доказательством туннельного механизма протекания тока в контактах Pb-I-LaSrMnO.

Приготовление симметричных контактов LaSrMnO-I-LaSrMnO типа «break junction» осуществлялось по описанной выше технологии. Заметим, что дополнительный вклад в туннельный барьер в контактах этого типа возникает, по-видимому, и из-за обедненности носителями заряда поверхности разлома керамической пластинки. Как и для купратных сверхпроводников, концентрация кислорода играет существенную роль в положении манганит-лантановой системы на фазовой диаграмме. При механическом разломе керамики кислород диффундирует с поверхности разлома, что приводит к формированию на поверхности гранулы диэлектрической (полупроводниковой) прослойки. Это обстоятельство и способствует образованию туннельного контакта.

Контакты изготавливались как при азотной, так и при комнатной температуре, однако их качество существенно не зависело от температуры, при которой проходил излом. Характеристики контактов, приготовленных из пластин, полученных в одном технологическом цикле, мало отличались друг от друга. Для туннельных исследований отбирались образцы с сопротивлением контактов несколько десятков ом, что намного превышало сопротивление пластин и снимало проблему четырехзондового подключения контакта [23]. Гидростатическое сжатие образцов осуществлялось в камере типа поршень-цилиндр с керосино-масляной передающей средой. Для контроля параметров внутри камеры размещались манганиновый датчик давления и термометр из медной проволоки.

#### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В начале исследований были изучены транспортные характеристики керамических пластинок La0.6Sr0.4MnO3 в отсутствие внешнего давления и изменение этих характеристик под воздействием давления. В соответствии с приведенными в литературе данными для образцов исследуемого состава [24-28] установлено сильное влияние давления на проводимость во всем измеренном диапазоне температур. На рисунке 1 показана зависимость приведенного сопротивления R(H, P)/R(0, 0) керамической пластинки La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> от магнитного поля при T = 77 К при различных значениях приложенного давления Р. Учитывая, что при низких температурах магнитное состояние внутри гранул слабо меняется под действием давления, естественно считать, что наблюдаемое изменение R(H) от P обусловле-



Рис. 1. Влияние давления на магниторезистивные свойства керамической пластинки  $La_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$  в слабых магнитных полях: P = 0, 3, 6.5, 9.8 кбар (соответственно кривые 1-4)



Рис.2. Влияние давления на магниточувствительную часть туннельной проводимости несимметричного (Pb-l-La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>) контакта в слабых магнитных полях: P = 0, 3, 6 кбар (соответственно кривые 1-3)



Рис. 3. Влияние давления на магниточувствительную часть туннельной проводимости симметричного (La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>-l-La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>) контакта в слабых магнитных полях: P = 0, 3, 6.5 кбар (соответственно кривые 1-3)

но влиянием гидростатического сжатия на проводимость межзеренных границ (интерфейса). Одновременно это указывает и на значительный вклад интерфейса в полное сопротивление образца.

Сходное воздействие давления на проводимость



Рис. 4. Изменение приведенной проводимости  $\sigma(V)/\sigma(0)$ симметричного La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>-I- $-La_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$ туннельного контакта при T = 77 К под действием давления: P = 0, 3, 6.5, 10 кбар (соответственно кривые 1-4); стрелками указана энергия кулоновской щели,  $E_C~pprox~100$  мэВ. На вставке показана эта же зависимость при P=0 кбар и  $T=4.2~{\rm K}$  в области малых значений напряжений смещения; стрелками показано положение псевдощели  $\Delta_p pprox 40$  мэВ

наблюдается и для туннельных контактов. На рисунках 2 и 3 приведены характеристики R(H, P)/R(0, 0)для несимметричного (LaSrMnO–I–Pb) и симметричного (LaSrMnO–I–LaSrMnO) контактов от магнитного поля при T = 77 К и различных значениях приложенного давления. Как это видно на рис. 2, магниторезистивные свойства контакта сохраняются, даже если только один из берегов является магниторезистивным материалом. На контактах обоего типа наблюдается уменьшение магниторезистивного эффекта с увеличением давления. При давлении  $P \approx 8$  кбар, так же как и для объемного образца, эффект практически полностью исчезает.

Заметим, что в гистерезисных зависимостях R(H) для объемных образцов (рис. 1) и туннельных контактов (рис. 2 и 3) максимумы сопротивления в магнитных полях  $H \approx 30$  Э практически совпадают. Гистерезис на кривых R(H) вызван остаточной намагниченностью микрокристаллов образца, а поле максимума сопротивления соответствует полю коэрцетивности  $H_C \approx 30$  Э.

На рисунках 4 и 5 показана зависимость проводимости перехода от напряжения смещения при T = 77 К при различных значениях давления, соответственно для симметричного и несимметричного контактов. Оба типа переходов демонстрируют ли-



Рис.5. Изменение приведенной проводимости  $\sigma(V)/\sigma(0)$  несимметричного (Pb-l-La<sub>0.6</sub> Sr<sub>0.4</sub> MnO<sub>3</sub>) туннельного контакта при T = 77 K под действием давления: P = 0, 3, 6.5, 10 кбар (соответственно кривые 1-4); стрелками указана энергия кулоновской щели  $E_C \approx 100$  мэВ. На вставке a показана эта же зависимость при P = 0 кбар и T = 4.2 K в области малых значений напряжений смещения; стрелками указана энергетическая щель Pb  $\Delta_S \approx 1.4$  мэВ. На вставке  $\delta$  показана эта же зависимость при T = 23 K; стрелками показано положение псевдощели  $\Delta_p \approx 40$  мэВ

нейный характер проводимости при низких температурах,  $\sigma = \sigma_0 (1 + \gamma |V|)$ , в широкой области напряжений смещения,  $|eV| \leq E_C \sim 100$  мэВ. Как показано в следующем разделе, кулоновское взаимодействие электронов и дырок на локализованных уровнях в барьере формирует эту аномально сильную линейную зависимость проводимости контакта от напряжения. На вставках рис. 4 и 5а показана проводимость туннельных контактов при T = 4.2 K и нулевом давлении в области малых значений напряжения смещения. Туннельный характер протекания тока особенно наглядно демонстрирует проявление сверхпроводящей энергетической щели свинца,  $\Delta_s \approx 1.4$  мэВ, в проводимости несимметричного контакта (указана стрелками на рис. 5*a*). Сильное размытие щелевой характеристики в плотности состояний свинца, по-видимому, обусловлено как влиянием локализованных уровней на туннельный процесс, так и инжекцией спин-поляризованных электронов в сверхпроводник. Для разных контактов наблюдались также особенности за энергетической щелью свинца (см. рис. 5а), обусловленные, по всей вероятности, неупругим туннелированием электронов через примесные состояния в барьере с испусканием



Рис. 6. Температурная зависимость сопротивления несимметричного (Pb-l-La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>) туннельного контакта при P = 0, 3 и 6 кбар (соответственно кривые 1-3) и керамической пластинки при P = 0 кбар (кривая 4)

реальных фононов (магнонов) [23]. Как это видно на рис. 4 и 5, с ростом гидростатического сжатия нормированная проводимость  $\sigma(V)/\sigma(0)$  становится менее чувствительной к напряжению. Это обстоятельство указывает на перестройку межзеренного потенциального барьера и изменяющийся характер туннелирования электронов под действием давления.

Как отмечалось выше, исследуемые контакты отвечают всем критериям «туннельности» — наличие сверхпроводящей энергетической щели, проявление фононных (магнонных) особенностей и кулоновской щели. Тем не менее температурная зависимость сопротивления контакта LaSrMnO-I-Pb, кривая 1 на рис. 6, существенно отличается от классической туннельной зависимости R(T), для которой характерно слабое температурное убывание сопротивления,  $\sigma(T) = \sigma_0 + \gamma T + \alpha T^2$  [23]. Подобное изменение  $\sigma(T)$  характерно в области температур  $k_BT \sim 0.1$  эВ (1000 К). В нашем же случае при  $T \approx 250 \text{ K}$  наблюдается аномально быстрое увеличение сопротивления контакта с понижением температуры, которое трудно объяснить в рамках классического туннельного эффекта. Необычно высокую скорость увеличения туннельного сопротивления уже при  $T \sim T^* < 300~{\rm K}$ мы связываем с раскрытием псевдощели  $\Delta_p$  на берегах или интерфейсе туннельного контакта при температуре  $T < T^*$ . (Заметим, что если кулоновская щель Ес является характеристикой «двумерности» барьера, то в псевдощель  $\Delta_p$  основной вклад дают трехмерные кулоновские

14 ЖЭТФ, вып. 1 (7)

корреляции. Присутствие псевдощели в соединениях с колоссальным магниторезистивным эффектом недавно было непосредственно обнаружено с помощью метода ARPES [32].)

Отражение такой псевдощели в зависимостях  $\sigma(V)$  для LaSrMnO–I–Pb показано на вставке рис. 56. Аналогичная, но менее выраженная особенность наблюдается и на симметричных контактах LaSrMnO-I-LaSrMnO (см. вставку на рис. 4). Любопытно, что восстановленные по этим особенностям величина псевдощели  $\Delta_p \approx 40$  мэВ и температура  $T^*~\approx~280~{\rm K}$  неплохо согласуются с соотношением БКШ,  $2\Delta_p = 3.5T^*$ . С увеличением давления зависимость R(T) несколько сглаживается (см. кривые 2, 3 на рис. 6), однако поведение R(T) сохраняет свою особенность (резкое увеличение) в точке  $T \sim T^* = 280$  К. Таким образом, зависимость величины псевдощели от давления практически не меняется. Наблюдаемое сглаживание R(T)-характеристики туннельных контактов под действием давления свидетельствует о трансформации магнитной структуры и металлизации приповерхностных слоев контакта.

На рисунке 6 (см. кривую 4) приведена также температурная зависимость сопротивления керамической пластинки  $La_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$  в нулевом внешнем поле (следует обратить внимание на изменение масштаба). Эта зависимость типична для рассматриваемого класса соединений [24–28]. Сравнение кривых 1 и 4 показывает совершенно разное поведение температурных зависимостей сопротивления туннельного контакта и керамики. Обусловлено это тем, что в последнем случае сопротивление образца формируют не только области интерфейса, но и внутренние области гранул, причем с увеличением температуры этот вклад в сопротивление становится определяющим.

### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Остановимся подробнее на зависимости проводимости контакта от напряжения смещения и температуры. Слагаемое q|V| («линейный фон») обусловлено резонансным туннелированием электронов через локализованные состояния, расположенные в центре туннельного барьера [33, 34]. Покажем, что такие процессы являются неупругими, т. е. должны сопровождаться испусканием некоторой бозонной моды.

Рассмотрим туннелирование электронов через систему локализованных состояний в барьере, при котором существенно кулоновское взаимодействие



Рис.7. Модель туннельного контакта между двумя гранулами манганита лантана. Туннельный барьер образован как межгранульным слоем, так и поверхностными областями гранул

электронов (или дырок) на примесных центрах (см. рис. 7). Пусть положительное напряжение приложено к правому электроду туннельного контакта. Будем отсчитывать энергии  $E_i$  локализованных состояний от уровня химического потенциала этого электрода. Анализируем только резонансные процессы, т.е. процессы туннелирования через локализованные уровни, расположенные в центре туннельного барьера. Для качественного анализа ограничимся случаем нулевой температуры, когда в процессе туннелирования участвуют локализованные уровни с энергией  $E_i \geq 0$ . Предполагаем, что система в целом электронейтральна.

Характерное время жизни электрона на примесном центре с энергией  $E_i \geq 0$  порядка  $\hbar/\Gamma$ , где  $\Gamma = \Gamma_0 \exp(-d/a_0)$  — энергетическая ширина примесного состояния,  $a_0$  — его радиус, d — толщина туннельного барьера (оценка параметра  $\Gamma_0$  приведена в работе [35]). Пусть электрон туннелирует на пустой уровень 1 с энергией  $E_1$  с левого берега. Для сохранения в системе барьерных состояний электронейтральности необходимо, чтобы одновременно (в квантовомеханическом смысле за время  $\tau \ll \hbar/\Gamma$ ) электрон с заполненного уровня 2 (с энергией  $E_2$ ) ушел на правый берег. Таким образом, на уровне 2 возникает положительно заряженная «дырка», притяжение к которой электрона 1 уменьшает энергию системы барьерных состояний на величину, равную  $e^2/4\varepsilon\varepsilon_0r_{12}$ . Суммируя энергетические затраты придем к неравенству

$$\delta E_{12} = E_1 - E_2 - e^2 / 4\pi\varepsilon_0 \varepsilon r_{12} > 0, \qquad (1)$$

где  $r_{12}$  — расстояние между 1-й и 2-й примесью,  $\varepsilon_0$  и  $\varepsilon$  — диэлектрические константы. Подчеркнем необычность анализируемого туннельного процесса. Входящий и выходящий электроны разнесены на расстояние  $r_{12}$ , которое (особенно при малых напряжениях V на контакте) может быть достаточно большим. По существу, система примесных уровней «захватывает» первый электрон и испускает другой электрон.

Положительность приращения энергии (1) для подавляющего большинства туннельных процессов означает, что распределение уровней энергии  $E_i$ локализованных состояний в барьере соответствует равновесному. Согласно (1) состояния с малыми энергиями  $E_1$  и  $E_2$  должны находиться на значительном расстоянии  $r_{12}$  друг от друга. Это объясняет уменьшение плотности уровней g(E) для малых энергий (эффект кулоновской щели в примесных полупроводниках [36]). Точное распределение g(E) по энергиям E получается при численном моделировании отмеченного туннельного процесса по методу Монте-Карло. Результат [33, 34] приводит к следующей зависимости для кулоновской щели:  $g(E) \propto |E|^{\gamma}$ , где показатель  $\gamma$  зависит от отношения ширины W разброса примесных состояний по энергиям E<sub>i</sub> к «ширине» кулоновской щели  $E_C \approx e^2/4\pi\varepsilon\varepsilon_0 r_D \ (r_D - {\rm среднее} {\rm pacctoshue} {\rm между}$ примесными состояниями в центральной прослойке барьера).

Наблюдаемая величина кулоновской щели  $E_C \approx 100$  мэВ (см. рис. 4, 5) позволяют оценить параметры примесных состояний интерфейса. Предполагаем, что заряды в интерфейсе экранируются так же, как и в оксидах купратов. Тогда при  $\varepsilon \approx 4$  получаем  $r_D = 36$  Å, что соответствует концентрации локализованных состояний  $N_l = r_D^{-3} \approx 2 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup>. В полупроводниках переход от металлической проводимости к активационной обычно происходит при концентрациях, удовлетворяющих критерию Мотта,  $N_l a^3 \approx k_M$ , где a — радиус примесных состояний. Учитывая, что состояния в интерфейсе находятся на пороге протекания, при  $r_D = 36$  Å и  $k_M \approx 0.02$ получаем радиус a = 9Å, что весьма близко к оценке радиуса поляронных состояний в манганитах (a = 8 Å) (см., например, [37, 38]). При этом сама величина кулоновской щели  $E_C \approx 100$  мэВ согласуется с величинами активационных щелей, полученных в результате измерений термоэдс, и с оценками характерной энергии локальных однопримесных состояний [38]. Наблюдаемому изменению туннельной проводимости в районе кулоновской щели  $\Delta \sigma \approx 1$  Ом<sup>-1</sup> соответствует  $N = \Delta \sigma / \sigma_C \approx 6 \cdot 10^3$  локализованных уровней с энергетической шириной  $\Gamma = N(2\pi^2 a S \rho_1)^{-1}$  мэВ (здесь  $\sigma_C = e^2 / \pi \hbar \approx 77.5 \cdot 10^{-5}$  Ом<sup>-1</sup> — «квант проводимости»,  $\rho_1 = N_1 / W$  — плотность состояний для локализованных уровней,  $W \approx 2E_C$  — ширина примесной зоны).

При узком распределении примесных состояний по энергиям ( $W/E_C \leq 0.7$ ) показатель  $\gamma < 1$  и при дальнейшем уменьшении W на функции g(E) возникает широкий минимум при  $|V| \leq E_C$  за счет так называемой кулоновской блокады туннельного тока. Если же  $W/E_C \geq 1$ , то  $\gamma \approx 1$ –1.3 и функция туннельной проводимости контакта приобретает линейный фон:

$$\sigma(V) = dJ/dV = \sigma_0 + q|eV|^{\gamma},$$

q — константа,  $\sigma_0$  — фоновая, нерезонансная часть проводимости контакта.

Избыточная энергия  $\delta E_{12}$  (1), возникающая при инжекции электрона 1 и испускании электрона 2, может переносится с помощью магнонов, фононов или других бозеподобных возбуждений, которые возможны в системе заряженных примесных состояний. Их наличие обеспечивает синхронизацию процесса входа электрона 1 и выхода электрона 2. Внешне этот процесс выглядит как неупругое туннелирование электрона с левого берега контакта на правый, из состояния с энергией  $E_1$  в состояние с энергией  $E_2$ , при котором выражение для разности энергий  $\Delta E_{12} = \delta E_{12} + e^2/4\pi\varepsilon_0\varepsilon r_{12}$  справедливо и для примесной системы.

Проанализируем теперь влияние температуры на туннельный ток через локализованные состояния. В общем случае неупругий туннельный ток можно представить в виде [23, 33, 34]:  $J = J_1 + J_2$ , где  $e = \hbar = 1$ :

$$J_{1} \sim \int d\omega F(\omega) \left[ S(V - \omega) - S(-V - \omega) \right],$$

$$S(E) = \int_{-\infty}^{\infty} dE' f(E') \left( 1 - f(E + E') \right) =$$

$$= \frac{E}{1 - \exp(-E/kT)},$$
(2)

f(E) — фермиевские функции распределения,  $F(\omega)\equiv F(\omega,T)$  — эффективная спектральная функция распределения бозонных возбуждений

 $14^{*}$ 

в системе примесных состояний. Для моделирования с помощью метода Монте-Карло спектр эффективных возбуждений в примесной системе аппроксимировался выражением

$$F(\omega, T) = \frac{2}{\pi} \operatorname{arctg} \frac{\omega}{aT}$$
(3)

(значение параметра *a* определялось варьированием интеграла и лежало в интервале a = 1-2). При  $|eV| \gg kT$  проводимость  $\sigma_1 = dJ_1/dV \propto e|V|$ .

Компонента тока

$$J_2 \sim \int d\omega F(\omega)n(\omega) \left[S(V-\omega) - S(\omega-V) + S(V+\omega) - S(-\omega-V)\right] = VG_2T,$$

$$\sigma_2 = dJ_2/dV \propto G_2 T, \quad G_2 = 2 \int_0^\infty \frac{F(x,T)}{\exp(x) - 1} \, dx, \quad (4)$$

 $n(\omega)$  — бозевские функции распределения.

При  $e|V| \gg kT$  имеем  $F(\omega, T) \approx 1$ , поэтому при больших напряжениях полная проводимость контакта  $\sigma(V) \sim \sigma_0 + q|eV|$ . С другой стороны, при V = 0 проводимость

$$\sigma(T) \sim 2 \int_{0}^{\infty} d\omega F(\omega) \left( S'(-\omega) + n(\omega) \right) = 2kT\alpha_{T},$$

$$\alpha_{T} = \frac{1}{4} \int_{0}^{\infty} \frac{xF(x,T)}{\operatorname{sh}^{2}(x/2)} dx.$$
(5)

Таким образом, предположение о неупругом характере резонансного туннелирования с испусканием коллективной моды со спектром  $F(\omega, T)$  согласуется с экспериментом, если  $F(\omega, T) \to 1$  при  $\hbar \omega \gg kT$ . В результате для эффективной плотности уровней g(E) получаем температурную зависимость

$$g(E) = G_2 T + \int_0^\infty d\omega F(\omega, T).$$

Далее задавалось значение a в выражении (3) и вычислялись константы  $G_2$  (4) и  $\alpha_T$  (5). Оказалось, что параметр  $G_2$  и коэффициент  $\alpha_T$  в температурной зависимости туннельной проводимости  $\sigma(T)_{V=0} = \sigma_0 + 2q\alpha_T(kT)$  связаны соотношением  $\alpha_T \approx G_2^{0.83}$ . Наблюдаемое в эксперименте значение параметра  $\alpha_T = 1.1-1.2$  достигается при  $G_2 \approx 1.2$ .

При анализе предполагалось, что линейный фон q|V| обусловлен резонансным туннелированием электронов через локализованные состояния (это обеспечивает большую величину эффекта). Процесс инжекции электрона с левого берега на уровень 1 и ухода электрона с уровня 2 на правый берег трактуется как неупругий процесс, при котором одновременно образуются два возбуждения: магнон (фонон) + электрон-дырочная пара («экситон»). Эффективный спектр такого комбинированного бозевского возбуждения дается выражением типа (3). Он приводит к появлению линейного фона q|V|в функции проводимости контакта. Наблюдаемая независимость параметра q от магнитного поля позволяет сделать заключение, что для исследуемых нами контактов при резонансном туннелировании не сохраняется не только энергия, но и спин туннелирующих электронов. Такое возможно, если неупругое туннелирование сопровождается испусканием магнонов в области интерфейса контакта.

#### 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе изучено влияние гидростатического сжатия на транспортные свойкерамики  $La_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$ ства И туннель-La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>–I–Pb ных контактов И La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>-I-La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>. Анализ экспериментальных данных показал, что давление не изменяет туннельного характера прохождения электронов в изучаемых структурах. Наоборот, температурная зависимость тока, проходящего через контакт, приобретает более «классический туннельный вид». В то же время магниторезистивный эффект подавляется, хотя магнитные свойства берегов контакта сохраняются. Сделан вывод, что область интерфейса контакта (нанометровой ширины) находится вблизи границы перехода между металлом и изолятором. Как известно, эту границу можно сместить путем приложения давления порядка P ~ 10 кбар [24-28]. Указанный диапазон давлений и был реализован в настоящем исследовании. Исходя из полученных данных и проведенного анализа, естественно считать, что поверхностный слой электродов исследуемых туннельных контактов и гранул керамики находится в фазе магнитного изолятора (полупроводника). Давление переводит эти области в металлическое состояние, так что магнитное состояние внутренних областей гранулы распространяется на ее поверхностные участки и туннелирование приобретает «стандартный характер».

Таким образом, в керамических системах манганитов лантана образование туннельных межзеренных контактов ответственно за спин-зависимое туннелирование электронов и низкополевой магниторезистивный эффект. При этом поверхность гранулы представляет собой дополнительный туннельный контакт. Наиболее эффективным является резонансное туннелирование через примесные уровни, расположенные в центре потенциального барьера, образованного как истинным (изолирующем) барьером, так и интерфейсом контактирующих гранул. Туннелирование через такие состояния приводит к формированию кулоновской щели в плотности состояний носителей заряда. При достаточно большой толщине барьера резонансные процессы с испусканием (поглощением) бозонов преобладают. При этом процессы туннелирования через примесные состояния магнитного кластера наномасштаба дают решающий вклад в низкополевой магниторезистивный эффект.

## ЛИТЕРАТУРА

- H. Y. Hwang, S.-W. Cheong, N. P. Ong, and B. Batlogg, Phys. Rev. Lett. 77, 2041 (1996).
- Yu Lu, X. W. Li, G. Q. Gong, and G. Xiao, Phys. Rev. B 54, 8357 (1996).
- J. M. D. Coey, M. Viret, and S. V. Molnar, Adv. Phys. 48, 167 (1999).
- 4. J. E. Evetts, M. G. Blamire, N. D. Mathur et al., Trans. R. Soc. Lond. A 356, 1593 (1998).
- 5. M. Julliere, Phys. Lett. A 54, 225 (1975).
- N. Zhang, W. Ding, W. Zhong et al., Phys. Rev. B 56, 8138 (1997).
- J. Y. T. Wei, N.-C. Yeh, R. P. Vasquez, and A. Gupta, J. Appl. Phys. 83, 7366 (1998).
- K. Steenbeck, T. Eick, K. Krisch et al., Appl. Phys. Lett. 73, 2506 (1998).
- S. Lee, H. Y. Hwang, B. I. Shraiman et al., Phys. Rev. Lett. 82, 4508 (1999).
- J. M. De Teresa, A. Barthelemy, A. Fert et al., Phys. Rev. Lett. 82, 4288 (1999).
- 11. M. Ziese, Phys. Rev. B 60, R738 (1999).
- 12. P. Lyu, D. Y. Xing, and J. Dong, Phys. Rev. B 60, 4235 (1999).
- 13. A. Tiwari and K. P. Rajeev, Phys. Rev. B 60, 10591 (1999).
- 14. R. Gross, L. Alff, B. Buchner et al., J. Magn. Magn. Mat. 211, 150 (2000).
- **15**. В. М. Свистунов, Ю. В. Медведев, В. Ю. Таренков и др., ЖЭТФ **118**, 629 (2000).

- 16. H. B. Peng, X. X. Zhang, Z. Xie et al., Phys. Rev. B 61, 8955 (2000).
- 17. F. Guinea, Phys. Rev. B 58, 9212 (1998).
- 18. R. Jansen and J. C. Lodder, Phys. Rev. B 61, 5860 (2000).
- M. Ziese, G. Hyedon, R. Hohne et al., Appl. Phys. Lett. 74, 1481 (1999).
- 20. Н. И. Солин, С. В. Наумов, А. А. Самохвалов, ФТТ
   42, 899 (2000).
- **21**. В. Г. Барьяхтар, О. В. Григуть, А. В. Василенко и др., Письма в ЖЭТФ **47**, 457 (1988).
- **22**. В. М. Свистунов, В. Ю. Таренков, А. И. Дьяченко и др., ЖЭТФ **47**, 457 (1988).
- 23. E. L. Wolf, Principles of Electron Tunneling Spectroscopy, Oxford University Press, New York (1985).
- 24. H. Y. Hwang, T. T. M. Palstra, S.-W. Cheong, and B. Batlogg, Phys. Rev. B 52, 15046 (1995).
- K. Khazeni, Y. X. Jia, Li Lu et al., Phys. Rev. Lett. 76, 295 (1996).
- 26. J. J. Neumeier, M. F. Hundley, J. D. Thompson, and R. H. Heffner, Phys. Rev. B 52, R7006 (1995).
- 27. R. Wang, R. Mahesh, and M. Itoh, Phys. Rev. B 60, 14513 (1999).
- 28. J. M. De Teresa, M. R. Ibarra, J. Blasco et al., Phys. Rev. B 54, 1187 (1996).
- 29. A. I. D'yachenko, V. Yu. Tarenkov, R. Szymczak et al., Phys. Rev. B 61, 1500 (2000).
- 30. J. Moreland and J. W. Ekin, J. Appl. Phys. 68, 4876 (1990).
- N. Miyakawa, P. Guptasarma, J. F. Zasadzinski et al., Phys. Rev. Lett. 80, 157 (1998).
- 32. T. Saitoh, D. S. Dessau, Y. Moritomo et al., Phys. Rev. B 62, 1039 (2000).
- 33. А. И. Дьяченко, В. Ю. Таренков, А. В. Абалешев,
   В. М. Свистунов, ФТТ 38, 1690 (1996).
- 34. А. И. Дьяченко, ФТВД 8, 47 (1998).
- 35. А. И. Ларкин, К. А. Матвеев, ЖЭТФ 93, 1030 (1987).
- 36. A. L. Efros and B. I. Shklovski, J. Phys. C 8, L49 (1975).
- 37. M. Hennion, F. Moussa, G. Biotteau et al., Phys. Rev. Lett. 81, 1957 (1998); Phys. Rev. B 61, 9513 (2000).
- **38**. В. М. Локтев, Ю. Г. Погорелов, ФНТ **26**, 231 (2000).