

Магнитная структура и транспортные свойства атомно-разупорядоченного кристалла двумерного манганита $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$

© С.Ф. Дубинин, В.Е. Архипов, Ю.Г. Чукалкин, С.Г. Теплоухов, В.Д. Пархоменко, Я.М. Муковский*

Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук,
620219 Екатеринбург, Россия

* Московский институт стали и сплавов,
117936 Москва, Россия

E-mail: dubinin@uraltc.ru

(Поступила в Редакцию 11 мая 2006 г.)

В широком температурном интервале исследовались магнитная структура и транспортные свойства частично разупорядоченных кристаллов двумерных манганитов $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x = 0.3, 0.4$). Атомно-разупорядоченное состояние в кристаллах достигалось путем воздействия быстрых нейтронов дозой $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. В этом случае концентрация дефектов замещения в среднем по кристаллу составляет $\cong 4\%$. Установлено, что дефекты замещения являются причиной перехода манганита данного класса из состояния ферромагнитного металла в состояние изолятора со структурой спинового стекла. Полученные результаты обсуждаются в рамках соотношения кинетической энергии носителей заряда и обменной энергии локализованных спинов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Госконтракта № 02.452.11. 7004, Программы ОФН РАН „Влияние атомно-кристаллической и электронной структуры на свойства конденсированных сред“, Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 04-02-16053-а).

PACS: 61.80.Hg, 75.47.Lx

1. Введение

Путем воздействия быстрых нейтронов представляется возможным дозированно вводить в массивный кристалл двумерного манганита $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ так называемые антиузельные дефекты, т.е. частично разупорядочивать исходное распределение катионов в этих оксидах. Детальный анализ атомной и магнитной структуры такого радиационно-модифицированного манганита позволяет, по нашему мнению, более корректно обозначить физические причины, формирующие магнитное состояние и транспортные свойства соединений данного класса.

В исходном состоянии двумерные манганиты имеют объемно-центрированную тетрагональную ячейку (пространственная группа $I4/mmm$) с параметрами решетки $a = b \cong 3.87 \text{ \AA}$, $c \cong 20.14 \text{ \AA}$, которая включает в себя две формульные единицы. На рис. 1 показаны общие размеры элементарной ячейки. На этом рисунке указаны темными кружками только ионы марганца, взаимное расположение которых будет использоваться далее. В магнитном отношении соединения $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x = 0.3, 0.4$) являются ферромагнетиками (FM) с температурами Кюри: $T_C = 105 \text{ K}$ ($x = 0.3$) и $T_C = 126 \text{ K}$ ($x = 0.4$). Температурная зависимость параметра ферромагнитного порядка манганита с $T_C = 126 \text{ K}$ приведена, например, на рис. 2, b в работе [1]. В магнитоупорядоченном состоянии обсуждаемые соединения являются металлами, а в парамагнитной области — хорошими изоляторами [1–3].

Обычно фазовые переходы металл–изолятор в точке Кюри манганитов трактуются в рамках модели двойного обмена (DE). Действительно, при легировании антиферромагнитного (AF) манганита ионами двухвалентного стронция, которые замещают трехвалентные атомы лантана, в наполовину заполненной e_g зоне марганца возникают дырки (другими словами, ионы Mn^{4+}). Поскольку энергия дырок минимальна при FM упорядочении ло-

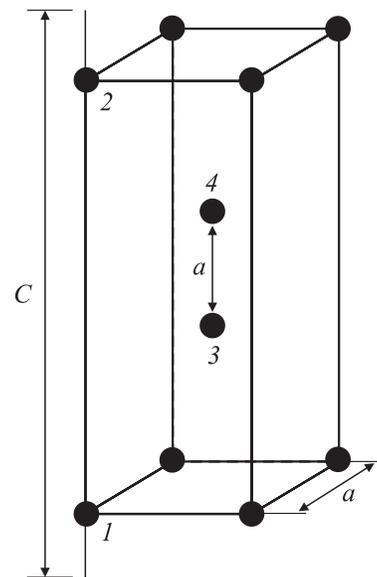


Рис. 1. Положение ионов Mn в элементарной ячейке двумерного манганита $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$.

кальных спинов ионов Mn^{3+} и Mn^{4+} , при определенной концентрации дырок ферромагнитное состояние становится основным, а диэлектрический характер проводимости парамагнитной фазы при понижении температуры ниже точки Кюри меняется на металлический. Эта модель DE широко применяется в настоящее время при трактовке магнитных и транспортных характеристик наиболее распространенных трехмерных манганитов, в которых ферро- и антиферромагнитные корреляции хорошо наблюдаются в нейтронографических экспериментах. Сложнее дело обстоит в слоистых двумерных манганитах. Известно, что магнитная структура соединений этого класса формируется конкуренцией FM и AF взаимодействий. Существенно то, что антиферромагнитный косвенный обмен имеет место в этих материалах только между двумя ближайшими слоями марганца, состоящими из ионов типа 3, 4 (рис. 1). Впервые антиферромагнитные корреляции А-типа (при $T = 142$ К, $L \cong 2.4 \cdot a$ Å вдоль [100]) были обнаружены методом дифракции тепловых нейтронов в работе [1]. По нашему мнению, антиузельные дефекты, возникающие в кристалле в результате воздействия быстрых нейтронов, должны изменить соотношение между DE- и AF-косвенным обменом в двойных слоях типа 3-4, а значит, должны модифицировать магнитную структуру и транспортные свойства двумерного манганита. Представляется интересным проверить сформулированные здесь физические гипотезы.

2. Образцы и методика эксперимента

Монокристаллы оксидов $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ ($x = 0.3, 0.4$) были выращены методом зонной плавки. Разброс блоков мозаики в кристаллах не превышал 25 угловых минут. Образцы имели форму цилиндра диаметром и высотой 0.3 и 1 см соответственно. Облучение быстрыми нейтронами кристаллов манганитов производилось при температуре 340 К в активной зоне ядерного реактора. Доза быстрых нейтронов составила $2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ($E_n \geq 1$ Mev).

Эксперименты по упругому рассеянию тепловых нейтронов были выполнены на специальном многоканальном дифрактометре для исследований монокристаллов. Длина волны падающих на образец нейтронов λ , сформированная двойным кристалл-монохроматором из пиролитического графита и деформированного германия, составляла 1.567 Å. Эффективная монохроматизация первичного пучка и оптимальный выбор длины волны монохроматических нейтронов позволили подавить на дифракционной картине кристалла эффекты кратных дифракционных гармоник. Это обстоятельство существенно повышает чувствительность нашей нейтронографической методики. Магнитные измерения проводились на вибромагнитометре, оборудованном для работ с радиоактивными образцами. Измерения электросопротивления проводились стандартным четырехточечным методом Монггомери в интервале температур 1.5–300 К.

3. Модель радиационных повреждений в манганитах

Хорошо известно [4], что радиационные повреждения твердых тел быстрыми нейтронами осуществляются по схеме

$$n^\circ \Rightarrow \text{ПВА} \Rightarrow \text{КАС}, \quad (1)$$

где n° — быстрый нейтрон, ПВА — первично выбитый быстрым нейтроном атом, КАС — каскад атомных столкновений, создаваемый в процессе торможения ПВА. В работе [4] установлено, что в оксидах переходных элементов каскадная область, сформированная полным пробегом одного ПВА ($L \sim 1000$ Å), состоит из большого числа отдельных субкаскадных областей малого размера ($l \sim 12$ Å). Большой пробег ПВА и малый размер субкаскадных областей, образующихся в результате торможения вторично выбитых атомов (ВВА), являются следствием химического состава веществ данного класса, а именно, относительно небольшой удельной плотности тяжелых ионов переходного элемента в кристаллической решетке оксида [4].

Определим сначала основной тип дефектов, сохраняющийся после воздействия быстрых нейтронов в поврежденных микрообластях кристалла двумерного манганита. Напомним в этой связи экспериментальную ситуацию в трехмерных манганитах на примерах $LaMnO_3$ [5] и $La_{0.8}Ba_{0.2}MnO_3$ [6]. По результатам порошковой дифракции нейтронов в работах [5,6] было установлено, что такими дефектами в манганите являются так называемые дефекты атомного замещения катионов, которые принято называть антиузельными дефектами. При этом было показано, что концентрация редкоземельных элементов в подрешетке марганца зависит от химического состава манганита. Например, в соединении $LaMnO_3$ концентрация антиузельных дефектов в субкаскадной микрообласти составляет 6%, а манганите $La_{0.8}Ba_{0.2}MnO_3$ — около 10%.

Выделим теперь дифракционные эффекты в облученном манганите $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$, обусловленные антиузельными дефектами. На рис. 2 приведены картины нейтронной дифракции кристалла $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ при 300 К (т. е. в парамагнитном состоянии), измеренные вдоль направления [001]. На рис. 2, а дифрактограмма относится к исходному кристаллу, а на рис. 2, б — к облученному образцу. Как видно из рисунков, исходный структурный мотив кристалла не изменился после воздействия быстрых нейтронов. Изменение претерпели только интенсивности некоторых брэгговских рефлексов вследствие частичного атомного разупорядочения. Например, на картине рассеяния облученного кристалла отсутствует пик (002), который на дифрактограмме исходного кристалла имел небольшую интенсивность. Сравним величины интенсивностей (002) и (0,0,10) рефлексов на дифракционной картине облученного кристалла, находим, что концентрация антиузельных дефектов в субкаскадной области $La_{1.2}Sr_{1.8}Mn_2O_7$ составляет $\cong 10\%$.

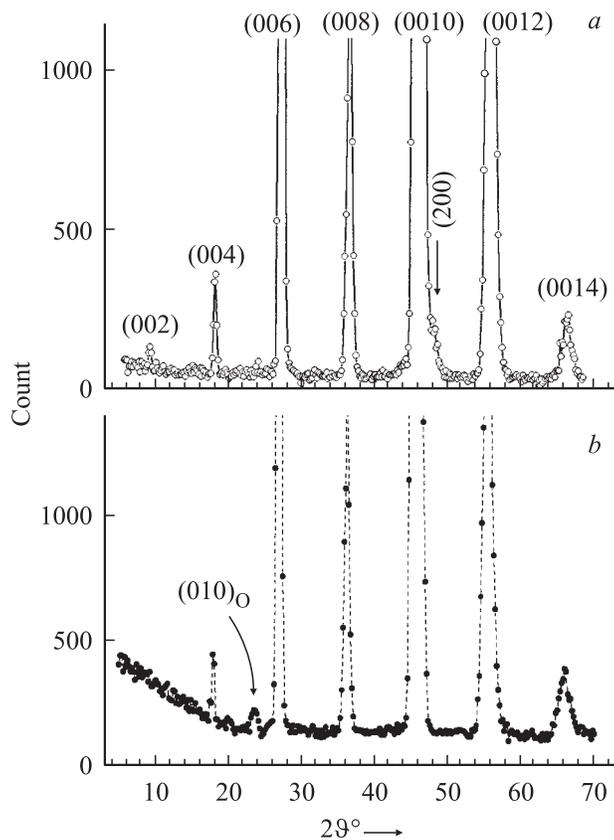


Рис. 2. Картины дифракции тепловых нейтронов монокристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$, измеренные при 300 К вдоль направления $[001]$ до и после воздействия быстрых нейтронов дозой $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ при 340 К: *a* — до облучения, *b* — после облучения.

Представляет интерес возникновение на рис. 2, *b* небольшого по величине интенсивности диффузного максимума в окрестности $2\theta \cong 23^\circ$. Угловое положение этого максимума очень близко к положению брэгговского рефлекса $(010)_O$ на дифракционной картине соединения типа LaMnO_3 . Угловое положение диффузного максимума $(020)_O$, который является кратным $(010)_O$, совпадает с угловым положением пика $(0,0,10)$ исходной фазы и тем самым не выявляется на дифракционной картине. Анализ кристаллической структуры двумерного манганита показывает, что образование антиузельных дефектов может приводить к появлению структурных корреляций перовскитного типа. Корреляционная длина, определенная из полуширины диффузного максимума $(010)_O$, составляет около $60 \text{ \AA} \cong 3 \cdot c$.

Одно из важных следствий наличия антиузельных дефектов в кристаллах манганитов состоит в том, что они являются источников упругой продольной деформации решетки, поскольку радиус катиона стронция почти вдвое превышает радиус иона марганца. Ранее в нашей работе [7] на картинах нейтронного рассеяния облученного ($F = 2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$) манганита $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ были обнаружены дополнительные диффузные макси-

мы слева и справа от структурного рефлекса $(200)_O$, которые однозначно свидетельствовали о существовании во всем объеме облученного кристалла длинноволновых поперечных атомных смещений. Период этих длинноволновых искажений соответствовал 125 \AA . Логично предположить, что длинноволновые и хорошо коррелированные деформации спонтанно возникают в решетке, чтобы уменьшить градиент напряжений на границе субкаскадной микрообласти с исходной решеткой и тем самым частично компенсировать возрастание упругой энергии манганита, обусловленное неоднородно расположенными в кристалле антиузельными дефектами. В настоящее время эти длинноволновые поперечные искажения принято относить к эффектам самоорганизации кристаллической решетки [8]. Именно эти деформации являются причиной подавления кооперативного эффекта Яна–Теллера и структурных доменов, и в конечном итоге они формируют структурное состояние O^* в облученном соединении $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$.

На наш взгляд, подобный дифракционный эффект, который представлен на рис. 3, обнаружен и в настоящей работе. На рис. 3 приведен профиль брэгговского рефлекса (200) на картине рассеяния облученного кристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ при 300 К, измеренный вдоль направления $[001]$. Темными кружками на рисунке указаны экспериментальные точки, а сплошной и штриховой линиями указаны результаты профильного анализа. Как видно из рисунка, экспериментальный максимум представляет собой суперпозицию двух максимумов, имеющих форму Гаусса. Один из них широкий в пространстве волнового вектора, но имеет относительно небольшую по величине пиковую интенсивность, а ширина большего по интенсивности пика значительно меньше и почти

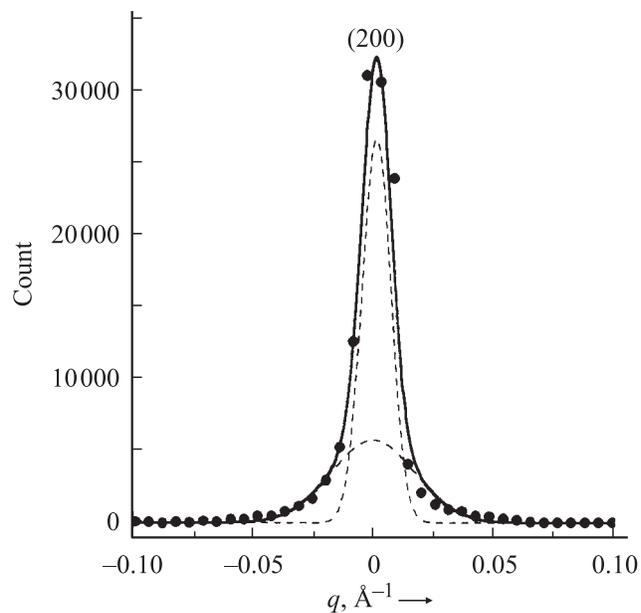


Рис. 3. Нейтрон-дифракционная картина облученного кристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$, измеренная при 300 К вблизи (200) рефлекса в направлении $[001]$.

совпадает с инструментальным разрешением. Отметим здесь, что происхождение широкого максимума может быть связано с возникновением в облученном кристалле $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ поперечных длинноволновых атомных смещений (только этот тип смещений фиксируется на дифракционной картине в данной геометрии сканирования). Корреляционная длина поперечных искажений составляет $\sim 150 \text{ \AA}$. Логично сопоставить эти длинноволновые деформации, так же как и в упомянутом выше примере $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$, с эффектом самоорганизации кристаллической решетки [8], который обуславливает понижение общей упругой энергии кристалла, содержащего антиузельные дефекты.

Для качественного понимания магнитных и транспортных свойств облученных манганитов необходимо также иметь представление о топологических особенностях дефектных микрообластей в пространственно неоднородной кристаллической решетке. Поскольку образование под воздействием быстрых нейтронов дефектных микрообластей в кристалле является процессом статистическим, при анализе физических свойств обсуждаемых здесь веществ удобно воспользоваться, например, общими представлениями теории протекания в континуальной среде [9], в которой важную роль играют зафиксированные в пространстве случайные свойства среды и связанность областей с одинаковыми свойствами. В этом плане можно условно ввести понятие „белого“ пространства, относящегося к исходной кристаллической решетке с определенными магнитными и транспортными характеристиками, которое статистически заполняется „черными“, т.е. дефектными кластерами. При малых дозах облучения вероятность перекрытия „черных“ кластеров мала. В этом случае их называют конечными кластерами (КК). Отметим, что размер КК может зависеть от исследуемого физического свойства. Например, величины КК могут отличаться при построении теоретических схем переноса заряда и магнитного устройства спин системы в неупорядоченных средах в силу различной степени чувствительности обменных взаимодействий и длины свободного пробега электрона к величинам атомных смещений (замещений) в кристалле. Выше некоторой критической концентрации „черные“ кластеры перекрываются в кристалле. Это означает в рамках теории протекания, что в „белом“ пространстве сформировался бесконечный тип „черного“ кластера (БК). Например, объемная доля магнитного БК — v_{cr1}^m — в соответствии с результатами работы [10] составляет в трехмерном магнитном оксиде 0.2. Отметим, что в трехмерном ферромагнитном оксиде величины магнитного и структурного БК одинаковы. Выше концентрации v_{cr1}^m в облученном оксиде сосуществует два типа магнитных БК. И наконец, при достижении следующей критической концентрации $v_{cr2}^m \cong 0.97$ [10] прекращается протекание по „белому“ пространству, т.е. исходный „белый“ БК распадается на конечные кластеры и остается только магнитный „черный“ БК.

4. Особенности магнитного состояния и транспортных свойств атомно-разупорядоченных двумерных манганитов $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x = 0.3, 0.4$)

На рис. 4 и 5 представлены результаты, характеризующие магнитную структуру и транспортные свойства радиационно-модифицированных кристаллов двумерных манганитов $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($x = 0.3, 0.4$).

Обратимся сначала к результатам магнитных измерений. На рис. 4 приведены температурные зависимости намагниченности облученного быстрыми нейтронами кристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$, измеренные вдоль направления [100] при различных величинах внешнего магнитного поля. Темными и светлыми кружками на рисунке указаны величины намагниченности образца охлажденного соответственно во внешнем магнитном поле и без наложения поля. Напомним еще раз, что в исходном состоянии этот манганит являлся ферромагнетиком с температурой Кюри, равной 125 К. Как видно на рис. 4, облучение приводит к радикальному изменению магнитного состояния двумерного манганита. Из рис. 4 следует, что в облученном образце при 5 К отсутствует спонтанная намагниченность. Таким образом, дальний ферромагнитный порядок отсутствует в облученном кристалле даже при гелиевых температурах. Из рис. 4 следует также, что удельная намагниченность σ при понижении температуры от 120 К сначала возрастает, затем при некоторой температуре $T_f \cong 45 \text{ К}$ наблюдается отчетливо выраженный максимум на кривой $\sigma(T)$, который хорошо виден в более крупном масштабе на вставке рис. 4. По мере увеличения магнитного поля

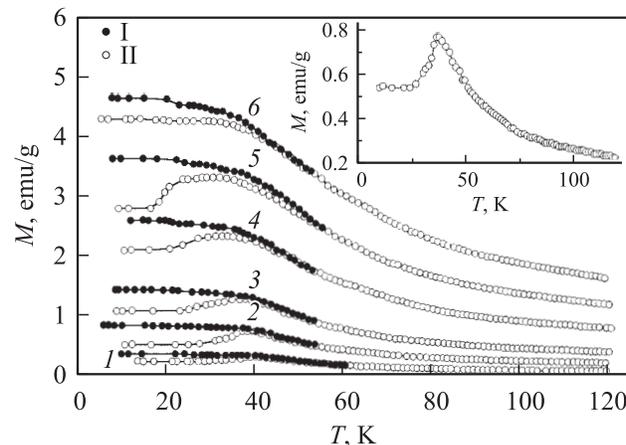


Рис. 4. Температурные зависимости намагниченности облученного быстрыми нейтронами кристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($F = 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$), измеренные вдоль [100] при различных величинах внешнего магнитного поля (I и II — образец охлажден соответственно в магнитном поле, равному полю измерения, и без магнитного поля): 1 — 0.43, 2 — 1.11, 3 — 2.0, 4 — 3.97, 5 — 5.95, 6 — 13.0 kOe. На вставке приведена в более крупном масштабе зависимость 2 (II).

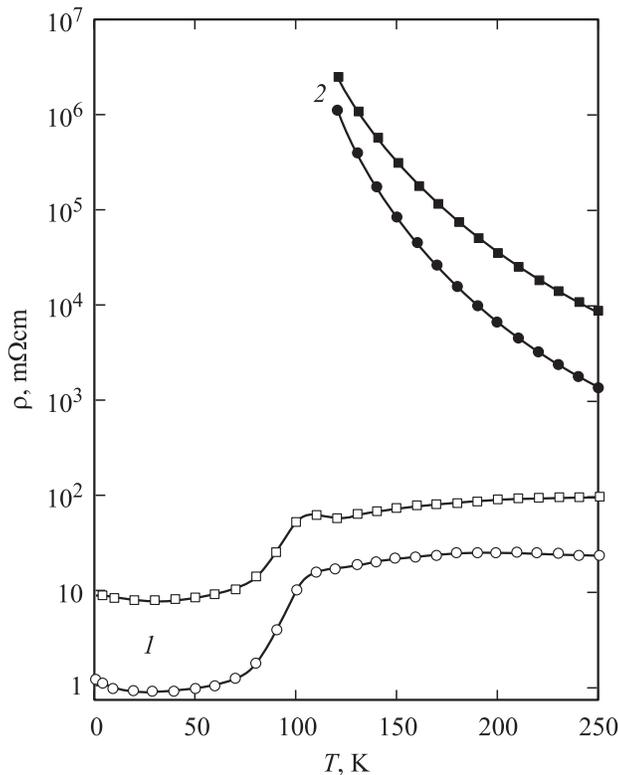


Рис. 5. Температурные зависимости электросопротивления $\text{La}_{1.4}\text{Sr}_{1.6}\text{Mn}_2\text{O}_7$, измеренные до облучения (кривые 1) и после облучения дозой $F = 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ (кривые 2). Светлыми и темными кружками указаны результаты измерений ρ_{ab} в базисной плоскости ab , светлыми и темными квадратами указаны результаты измерений ρ_c вдоль оси c .

максимум σ размывается, а его местоположение смещается в область более низких температур. Охлаждение в магнитном поле также приводит к исчезновению этого максимума. При температурах ниже T_f отличаются намагниченности образца, охлажденного от комнатной температуры в магнитном поле и без магнитного поля. Такие эффекты обычно истолковывают как одно из экспериментальных проявлений неэргодичности, характерной для магнитного состояния „спиновое стекло“ (SG) с „температурой замерзания“ T_f . Таким образом, облучение двумерного манганита приводит к магнитному превращению $\text{FM} \rightarrow \text{SG}$. Разберем данный факт более подробно, чтобы обозначить особенности формирования спиновой системы в двумерном манганите.

Напомним в этой связи экспериментальную ситуацию в нашей работе [7], где подробно обсуждается магнитная структура трехмерного манганита $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ после воздействия той же самой дозой быстрых нейтронов — $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2}$ (в исходном состоянии этот оксид является ферромагнетиком с точкой Кюри 235 К). На кривых $M(T)$ облученного манганита $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$ существует две критические температуры. Одна из них при $T_c = 166 \text{ K}$ связана с возникновением дальнего ферромагнитного порядка, вторая температура свиде-

тельствует о возникновении спинстекольной фазы ниже $T_f = 110 \text{ K}$. Таким образом, в трехмерном и двумерном манганитах после воздействия одинаковым уровнем быстрых нейтронов типы магнитных структур различаются. В общих чертах этот факт хорошо согласуется с основными представлениями теории протекания. Действительно, объемная доля дефектных (черных) кластеров в трехмерном кристалле $\nu = 0.4$ [7] превышает значение первого порога протекания $\nu_{cr1}^m = 0.2$, а это означает, что в данном случае должно реализоваться два типа бесконечных кластера. При этом логично считать, что в атомно-разупорядоченной части кристалла возникает спинстекольное состояние (поскольку диамагнитные ионы стронция в подрешетке марганца существенно локализуют эффект двойного обмена), а в „белом“ пространстве кристаллической решетки сохраняется ферромагнитный тип порядка с более низким значением (относительно исходной величины) температуры Кюри. Понижение T_c „белого“ БК связано с уменьшением величины двойного обмена, обусловленным упомянутым выше эффектом самоорганизации кристаллической решетки.

Чтобы более отчетливо представить физические причины, определяющие магнитное состояние в дефектном двумерном манганите, выделим основные обменные параметры в элементарной ячейке исходного соединения, приведенной на рис. 1. Напомним, что в марганцевых позициях кристаллической структуры обсуждаемого здесь двумерного манганита находится 40% ионов Mn^{4+} . Высокая концентрация Mn^{4+} свидетельствует о том, что ферромагнитный DE обмен должен определять магнитную структуру кристалла. Об этом свидетельствует также высокое значение величины температуры Вейсса в $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$. По данным работы [11], $\Theta = 270 \text{ K}$. Хорошо известно, что величина параметра Θ определяется полным пакетом обменных взаимодействий между ионами Mn в парамагнитной области. Принимая во внимание указанные выше аргументы, можно обозначить основные взаимодействия в элементарной ячейке двумерного манганита

$$J > 0, \quad J_{1-3,2-4} > 0, \quad (2)$$

$$J_{3-4} < 0, \quad J_{3-4}^{\text{DE}}(T) > 0, \quad (3)$$

где J — сильный ферромагнитный обмен внутри каждого отдельного слоя, поскольку расстояние между ионами Mn–Mn в этом случае является наименьшим; $J_{1-3,2-4}$ — ферромагнитное взаимодействие между слоями типа 1–3 и 2–4, которые, очевидно, меньше по абсолютной величине, чем J ; $J_{3-4} < 0$ — антиферромагнитный косвенный обмен А-типа между ближайшими слоями перовскитного типа 3–4; $J_{3-4}^{\text{DE}} > 0$ — ферромагнитный двойной обмен (DE) между слоями 3–4. Мы намеренно выделили в соотношениях (3) обменные параметры, конкуренцией которых главным образом определяется тип магнитной структуры. Как было показано в работе [1], в области $126 < T < 300 \text{ K}$ в

кристалле $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ сосуществуют квазистатические короткодействующие корреляции, определяющиеся взаимодействиями (3). Ниже $T_C = 126\text{ K}$ в манганите устанавливается дальний ферромагнитный порядок, поскольку по мере понижения температуры усиливающийся двойной обмен между ближайшими слоями атомов марганца подавляет более слабые по величине антиферромагнитные корреляции. Важно при этом иметь в виду, что ферромагнитный порядок в двумерном манганите формируется всеми положительными обменными взаимодействиями в системе соотношений (3) и (4), т.е. длина магнитной ячейки в направлении длинного периода равна $c = 20.14\text{ \AA}$.

Приведем теперь аргументы в пользу того, что эффективности воздействия быстрых нейтронов на магнитную структуру трехмерного и двумерного манганитов различны. В трехмерном манганите размеры магнитного КК, очевидно, определяются объемом субкасадной области $v_1 = 4/3 \cdot \pi(l/2)^3 = 904.3\text{ \AA}^3$, где $l = 12\text{ \AA}$ — линейный размер разупорядоченной микрообласти. В двумерном манганите линейные размеры КК не должны быть меньше длинного периода элементарной ячейки. Необходимо также иметь в виду, что поперечные атомные смещения, индуцированные антиузельскими дефектами, должны сильно ослаблять обмен $J_{3-4}^{\text{De}}(T) > 0$. Об этом свидетельствует существенное понижение температуры Вейсса в облученном кристалле. Как видно из рис. 6, величина Θ в облученном кристалле составляет около 40 K , а это примерно в шесть раз меньше ее исходного значения. Итак, быстрые нейтроны более эффективно подавляют дальний ферромагнитный порядок в двумерном кристалле. В рамках теории протекания это означает, что объем магнитного „черного“ БК занимает практически все пространство двумерного кристалла. Другими словами, спин-система во всем объеме радиационно-модифицированного двумерного кристалла ниже температуры замерзания $T_f = 45\text{ K}$ должна соответствовать структуре спинового стекла, в которой сосуществуют почти равнозначные статические ферро-

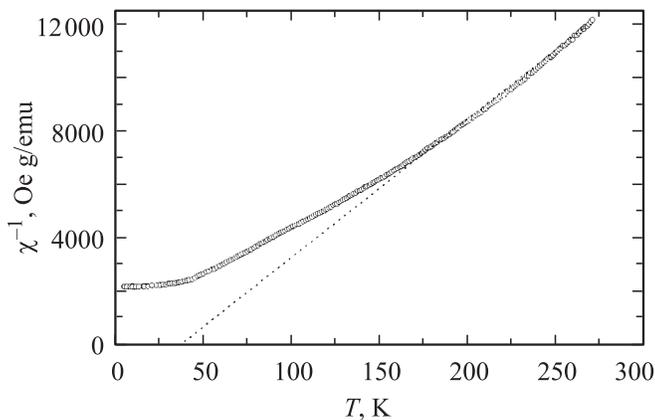


Рис. 6. Температурная зависимость обратной восприимчивости монокристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ($H = 14\text{ kOe}$) после воздействия быстрых нейтронов ($F = 2 \times 10^{19}\text{ cm}^{-2}$).

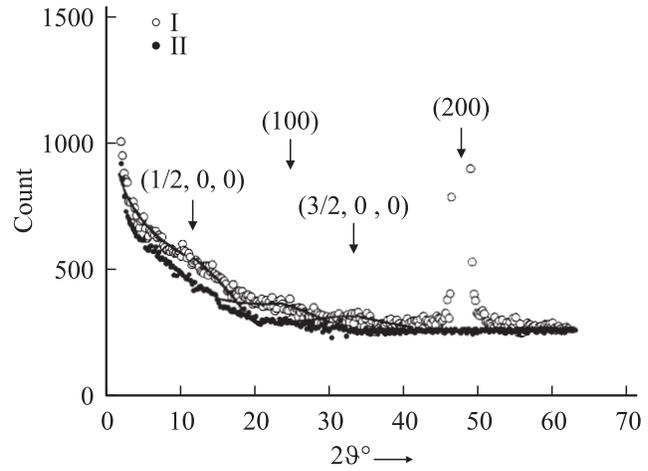


Рис. 7. Картины дифракции тепловых нейтронов монокристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$, измеренные при 78 K после воздействия быстрых нейтронов: I — вдоль направления $[100]$; II — в направлении, составляющем на плоскости a^*c^* 10° относительно $[001]$.

и антиферромагнитные корреляции. Выше T_f магнитные корреляции становятся квазистатическими, но должны сохраняться на картине рассеяния кристалла до тех пор, пока их время жизни больше 10^{-12} s — времени взаимодействия теплового нейтрона с магнитным моментом ионов марганца.

Картины рассеяния тепловых нейтронов, приведенные на рис. 7, находятся в полном соответствии с нашими модельными представлениями. Светлыми кружками на рис. 7 показана дифракционная картина облученного монокристалла $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$, измеренная при 78 K вдоль направления $[100]$, которое включает все интересные нас точки обратной решетки

$$(1/2, 0, 0)_{\text{AF}}, \quad (100)_{\text{F}}, \quad (3/2, 0, 0)_{\text{AF}}. \quad (4)$$

Чтобы надежно выделить относительно слабые магнитные корреляции по типу (4), в качестве фоновой кривой использовалась картина рассеяния, измеренная при 78 K в несимметричном направлении, составляющем 10° на плоскости a^*c^* с осью $[001]$, которое совершенно определено не содержит интересующие нас эффекты рассеяния. Таким способом выделялся ближний магнитный порядок, например, в работе [1]. На рис. 7 можно выделить два типа магнитных корреляций. Это антиферромагнитные корреляции с волновым вектором $(1/2, 0, 0)_{\text{AF}}$, которые формируются обменом $J_{3-4} < 0$, и ферромагнитный ближний порядок по типу $(100)_{\text{F}}$, обусловленный $J_{3-4}^{\text{De}}(T) > 0$. Как видно из рисунка, указанные эффекты рассеяния имеют относительно малую интенсивность и большую протяженность по углу рассеяния. Эти факторы однозначно свидетельствуют об их происхождении. Действительно, брэгговский рефлекс (100) относится к категории запрещенных рефлексов в рамках пространственной группы $I4/mmm$, а

значит, ферромагнитный эффект рассеяния на рис. 7 может быть обусловлен только локальными корреляциями внутри перовскитного двойного слоя 3–4. Очевидно, что антиферромагнитные корреляции А-типа также могут реализоваться только в спаренном слое 3–4. Средняя величина упомянутых магнитных корреляций составляет $\xi \cong 6 \text{ \AA} = 1.5a$.

Представляет также интерес большой эффект ферромагнитного диффузного рассеяния около узла обратной решетки (000). Как видно на рис. 7, интенсивность этого эффекта рассеяния не зависит от направления ориентации кристалла в плоскости ac , он существует в широком диапазоне углов. Отмеченные особенности малуглового рассеяния обусловлены, по нашему мнению, полным пакетом короткодействующих ферромагнитных корреляций спиновых моментов марганца в дефектном кристалле $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$, взаимосвязанных обменными параметрами (2) и (3).

Обратимся теперь к транспортным свойствам атомно-разупорядоченного двумерного манганита. Как видно из рис. 5, электросопротивление облученного образца в окрестности 90–100 К увеличилось по отношению к исходной величине на 6–7 порядков, это означает, что в кристалле манганита имел место переход металл-изолятор, индуцированный антиузельными дефектами. В рамках развитых выше физических представлений модификация транспортных свойств облученного манганита $\text{La}_{1.4}\text{Sr}_{1.6}\text{Mn}_2\text{O}_7$ (рис. 5) является полностью предсказуемой. Действительно, существенное уменьшение длины свободного пробега электрона обусловлено, во-первых, разрывами двойного обмена антиузельными дефектами и, во-вторых, неоднородными дисторсионными искажениями кристаллической решетки, осуществляющимися во всем объеме двумерного манганита. В рамках теории протекания весь объем облученного двумерного кристалла представляет собой „черный“ БК.

Таким образом, полученные в работе результаты свидетельствуют о фундаментальной роли параметров кинетической энергии носителей заряда и обменной энергии локализованных спинов в формировании основных физических свойств двумерных манганитов. Изменяя соотношение этих параметров, посредством дозированного ввода в массивный кристалл антиузельных дефектов удается кардинальным образом изменять их магнитную структуру и транспортные свойства.

В заключение авторы выражают благодарность А.Е. Карькину за измерения электросопротивления кристалла манганита $\text{La}_{1.4}\text{Sr}_{1.6}\text{Mn}_2\text{O}_7$.

Список литературы

- [1] T.G. Perring, G. Aeppli, Y. Moritomo, Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. **78**, 3197 (1997).
- [2] L. Vasiliu-Doloc, S. Rosenkranz, R. Osborn, S.K. Sinha, J.W. Lunn, J. Mesot, O.H. Seeck, G. Preosti, A.J. Fedro, J.F. Mitchell. Phys. Rev. Lett. **83**, 4393 (1999).
- [3] С.Ф. Дубинин, В.Е. Архипов, С.Г. Теплоухов, В.Д. Пархоменко, Я.М. Муковский, Э.А. Нейфельд. ФТТ **47**, 255 (2005).
- [4] С.Ф. Дубинин, В.Д. Пархоменко. ФММ **90**, 83 (2000).
- [5] Ю.Г. Чукалкин, А.Е. Теплых. ФТТ **48**, 2202 (2006).
- [6] Ю.Г. Чукалкин, А.Е. Теплых, В.И. Воронин, А.Е. Карькин, И.Ф. Бергер, Б.Н. Гощицкий. ФММ **99**, 45 (2005).
- [7] С.Ф. Дубинин, Ю.Г. Чукалкин, С.Г. Теплоухов, В.Е. Архипов, В.Д. Пархоменко, Я.М. Муковский. ФТТ **48**, 1805 (2006).
- [8] П.А. Селищев. Самоорганизация в радиационной физике. ООО „Видавництво“, Киев (2004). 240 с.
- [9] Б.Н. Шкловский, А.Л. Эфрос. Теория протекания и проводимость сильно неоднородных сред. УФН **117**, 401 (1975).
- [10] Yu.G. Chukalkin, V.R. Shtirts, B.N. Goshchitskii. Phys. Stat. Sol. (a) **125**, 301 (1991).
- [11] И.Б. Смоляк, Т.И. Арбузова, С.В. Наумова. Тр. конф. НМММ XIX. Изд-во физического факультета МГУ, М. (2004). С. 538.