

Влияние света на фазовый переход антиферромагнитный диэлектрик–ферромагнитный металл в тонких пленках $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$

P. Aleshkevych¹, M. Baran¹, В.А. Бедарев², В.И. Гапон², О.Ю. Горбенко³,
С.Л. Гнатченко², А.Р. Кауль³, R. Szymczak¹, H. Szymczak¹

¹*Institute of Physics, Polish Academy of Sciences, Al. Lotnikow 32/46, 02-668 Warsaw, Poland*

²*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины,
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: vgaпон@ilt.kharkov.ua*

³*Московский государственный университет, г. Москва, 119899, Россия*

Статья поступила в редакцию 16 марта 2004 г., после переработки 20 апреля 2004 г.

Исследовано влияние светового облучения на магнитные и транспортные свойства эпитаксиальных тонких пленок манганита $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$. Обнаружено, что облучение пленок светом He–Ne лазера приводит к увеличению их намагниченности и уменьшению электрического сопротивления, стимулируя фазовый переход антиферромагнитный диэлектрик – ферромагнитный металл, наблюдаемый в этом кристалле в магнитном поле при низких температурах. Показано, что поле фазового перехода заметно уменьшается после облучения пленок светом. Сделан вывод о том, что световое облучение вызывает образование и рост ферромагнитных металлических кластеров внутри антиферромагнитной диэлектрической фазы. Механизм воздействия света на магнитное и электрическое состояния манганита $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ может быть связан с фотоиндуцированным переносом электронов с ионов Mn^{3+} на ионы Mn^{4+} , что приводит к плавлению зарядового упорядочения, имеющего место в исследуемом манганите в антиферромагнитном диэлектрическом состоянии, и вызывает переход кристалла в ферромагнитную металлическую фазу.

Вивчено вплив світлового опромінення на магнітні та транспортні властивості епітаксіальних тонких плівок манганіту $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$. Виявлено, що опромінення плівок світлом He–Ne лазера приводить до зростання їх намагніченості та зменшення електричного опору, стимулюючи фазовий перехід антиферомагнітний діелектрик – феромагнітний метал, що спостерігається у цьому кристалі в магнітному полі при низьких температурах. Показано, що поле фазового переходу помітно зменшується після опромінення плівок світлом. Зроблено висновок, що світлове опромінення приводить до виникнення та розростання феромагнітних металевих кластерів всередині антиферомагнітної діелектричної фази. Механізм впливу світла на магнітний та електричний стан манганіту $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ може бути пов'язаний з фотоіндукованим переносом електронів з іонів Mn^{3+} на іони Mn^{4+} , що призводить до плавлення зарядового впорядкування, яке має місце в дослідженому манганіті в антиферомагнітному діелектричному стані, та викликає перехід кристалу до феромагнітної металевої фази.

PACS: 71.30.+h, 75.30.Kz

Введение

Наблюдение эффекта колоссального магнитосопротивления в манганитах, содержащих ионы Mn^{3+} и

Mn^{4+} , вызвало в последнее десятилетие огромный интерес к этим соединениям как с научной, так и с прикладной точек зрения. Электрическое сопротивление манганитов может уменьшаться на порядки вели-

чины в магнитном поле в окрестности температуры Кюри или же в процессе индуцированных магнитным полем фазовых переходов. Особый интерес представляют собой манганиты, на резистивные свойства которых или на наблюдаемый в них фазовый переход диэлектрик – металл можно воздействовать световым облучением [1–4]. К таким манганитам относятся, например, $(\text{La}_{0,3}\text{Nd}_{0,7})_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$, облучение которого светом приводит к уменьшению электрического сопротивления [1], а также $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$, в котором свет вызывает фазовый переход из диэлектрического в металлическое состояние [2–4].

В монокристалле $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ фазовый переход диэлектрик – металл был индуцирован светом Nd-YAG импульсного лазера с длиной волны $\lambda = 532$ нм (вторая гармоника) при температуре $T = 30$ К. Природа этого фотоиндуцированного фазового перехода связывается авторами с плавлением зарядового упорядочения ионов Mn^{3+} и Mn^{4+} и формированием металлических ферромагнитных (ФМ) кластеров внутри диэлектрической антиферромагнитной (АФМ) фазы в процессе облучения светом. Поскольку манганиты непрозрачны для видимого света, фотоиндуцированный фазовый переход в монокристалле $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ происходит в приповерхностном слое, толщина которого близка по величине к глубине проникновения индуцирующего света. В связи с этим для исследования влияния света на фазовые переходы в манганитах в большей степени подходят тонкие пленки, достаточно прозрачные для индуцирующего излучения.

Недавно влияние света на индуцированный магнитным полем фазовый переход антиферромагнетик – ферромагнетик было обнаружено нами в тонкой достаточно прозрачной для видимого света пленке манганита $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ при температурах $T < 50$ К [5]. Облучение пленки светом He-Ne ($\lambda = 633$ нм) или Ar ($\lambda = 488$ нм) лазера приводило к росту намагниченности и стимулировало фазовый переход из АФМ в ФМ состояние. Следует отметить существенное отличие наших экспериментальных данных [5] от результатов, описанных в более ранних работах по исследованию фотоиндуцированного фазового перехода диэлектрик – металл в монокристаллах $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [2–4]. Так, плотность потока светового излучения в экспериментах с пленкой $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [5] была на пять порядков величины меньше, чем пороговая плотность светового потока, вызывавшего фотоиндуцированный переход в манганите $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [2–4]. При этом доза облучения, необходимая для достижения насыщения фотоиндуцированного эффекта, в наших экспериментах была выше на 8–9 порядков величины.

Соотношение ионов Mn^{3+} и Mn^{4+} в манганитах $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ и $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ одинаково, а магнитные фазовые H – T -диаграммы этих соединений подобны [5]. Учитывая это, можно ожидать, что индуцированный магнитным полем фазовый переход из АФМ в ФМ состояние, наблюдавшийся в процессе магнитных измерений в пленке $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [5], должен сопровождаться существенным уменьшением электрического сопротивления, т.е. переходом из диэлектрического в металлическое состояние. В связи с этим несомненный интерес представляет изучение влияния светового облучения как на намагниченность, так и на проводимость пленки $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ в магнитном поле.

В настоящей работе приведены результаты комплексных исследований резистивных и магнитных свойств пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ в магнитном поле и результаты изучения влияния света на индуцированный полем фазовый переход антиферромагнитный диэлектрик – ферромагнитный металл.

Образцы и экспериментальная методика

Исследуемые образцы $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ представляли собой тонкие пленки, изготовленные методом МОСVD (Metalorganic Chemical Vapor Deposition). Пленки осаждали в инертном газе из исходных паров летучих растворов при $T = 860^\circ$ С на подложку, вырезанную из монокристаллов SrLaGaO_4 или SrTiO_3 в плоскости (001). После осаждения полученные пленки отжигали в атмосфере кислорода в течение 0,5 часа при той же температуре (подробно метод описан в работе [6]). Катионный состав и однородность пленок контролировали методом вторичной масс-спектрометрии. Согласно проведенным рентгеновским исследованиям, полученные пленки $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ являются эпитаксиальными и не имеют поликристаллических включений. Параметры кристаллической решетки, полученные из рентгеновских данных, находятся в хорошем согласии с параметрами для объемных материалов того же состава. Кристаллическая структура пленок соответствует орторомбической пространственной группе $Pnma$. Толщина исследуемых пленок была около 350 нм, а толщина подложки – около 0,5 мм. И пленка, и подложка были достаточно прозрачны для видимого света. По данным спектральных исследований, пропускание пленки с подложкой для света длиной волны $\lambda = 633$ нм при низких температурах составляет около 10%.

В настоящей работе исследовали две пленки $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$: пленка 1, осажденная на подложку SrLaGaO_4 , и пленка 2, осажденная на подложку SrTiO_3 . Параметры этих пленок, в частности их намагниченность и электропроводность, заметно

различаются. Тем не менее температурные зависимости намагниченности и электрического сопротивления, а также зависимости этих величин от внешнего магнитного поля качественно одинаковы. В обеих пленках при температурах $T < 50$ К наблюдается индуцированный магнитным полем необратимый фазовый переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние.

В работе выполнены измерения намагниченности и электропроводности двух пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ как в отсутствие освещения, так и при облучении пленок светом He-Ne лазера с длиной волны $\lambda = 633$ нм. Плотность потока светового излучения составляла около $0,1 \text{ Вт/см}^2$. Намагниченность пленок измеряли с помощью СКВИД-магнетометра MPMS-5 Quantum Design с оптической вставкой (fiber-optic sample holder) для освещения образца в процессе измерений. Образец (пленка на подложке) имел форму диска диаметром около 3 мм. Измерения намагниченности проводили в температурной области $5 \text{ К} < T < 300 \text{ К}$ в полях до 50 кЭ. Магнитное поле было ориентировано перпендикулярно поверхности пленки.

Для измерения температурных и полевых зависимостей электрического сопротивления пленок использовали оптический гелиевый криостат. Для пленки 1 измерения проводили в температурной области $25 \text{ К} < T < 300 \text{ К}$ в магнитном поле до 30 кЭ, ориентированном, как и при измерении намагниченности, перпендикулярно поверхности пленки. Для пленки 2 измерения выполнены в температурной области $25 \text{ К} < T < 250 \text{ К}$ в магнитном поле до 10 кЭ. В этом случае поле было ориентировано параллельно поверхности пленки. Сопротивление измеряли двухконтактным методом, поскольку его величина была достаточно большой (от 10^3 до 10^9 Ом). Два электропроводящих контакта из серебряной пасты наносили на поверхность пленки на расстоянии около 3 мм друг от друга. Длина контактов вдоль зазора между ними также равна 3 мм. При исследовании влияния света на проводимость пленок облучали участок образца, расположенный между электрическими контактами.

Результаты магнитных измерений

Измерения полевых зависимостей намагниченности $m(H)$ в отсутствие светового облучения показали, что в пленках $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ в области температур $T < 50$ К наблюдается индуцированный магнитным полем фазовый переход из АФМ в ФМ состояние. Зависимости $m(H)$ для пленок 1 и 2 приведены на рис. 1 и 2 соответственно. На рис. 1 показана зависимость $m(H)$ (светлые квадраты) для пленки 1 при $T = 25$ К, полученная после охлаждения образца от комнатной температуры в отсутствие

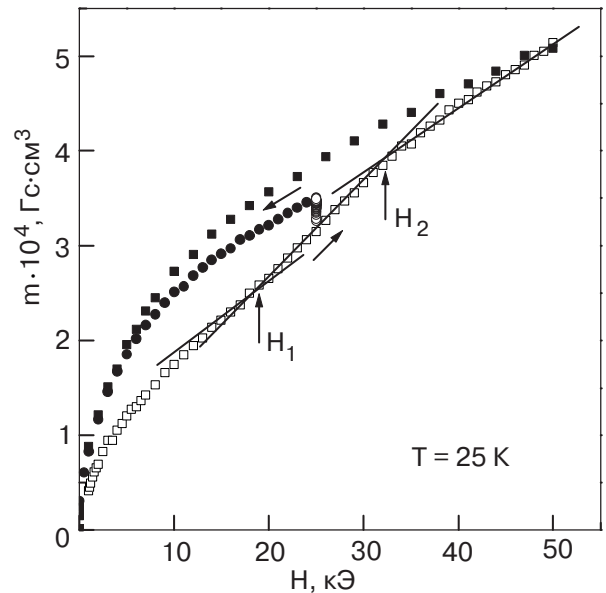


Рис. 1. Полевые зависимости намагниченности пленки 1 при температуре $T = 25$ К: в неосвещенной пленке (\square и \blacksquare); при облучении пленки в постоянном внешнем поле $H = 25$ кЭ (\circ); в облученной пленке при уменьшении внешнего поля (\bullet).

магнитного поля (zero-field cooling – ZFC). Эта первичная после охлаждения зависимость измерена при увеличении магнитного поля от 0 до 50 кЭ. На этой кривой, которая подобна зависимости $m(H)$, полученной в тех же условиях в кристалле $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [7], наблюдаются два излома в полях $H_1 \approx 19$ кЭ и $H_2 \approx 32$ кЭ. В пленке 1 переход из АФМ в ФМ состояние происходит в интервале полей $19 \text{ кЭ} < H < 32 \text{ кЭ}$. Зависимость $m(H)$, измеренная при уменьшении магнитного поля от 50 кЭ до 0 (темные квадраты на рис. 1), лежит на графике существенно выше, и обратный переход из ФМ в АФМ состояние не наблюдается. При последующем увеличении поля от 0 до 50 кЭ (с предварительным перемагничиванием пленки в полях до -50 кЭ или без перемагничивания) кривая $m(H)$ практически совпадает с полученной при уменьшении поля от 50 кЭ до 0. Таким образом, индуцированный магнитным полем фазовый переход из АФМ в ФМ состояние в исследуемой пленке $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ является необратимым, как и в кристалле $\text{Pr}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ [7,8].

Полевые зависимости намагниченности пленки 2 показаны на рис. 2. Как и в случае пленки 1, магнитное поле индуцирует в пленке 2 фазовый переход из АФМ в ФМ состояние при первом введении магнитного поля после охлаждения образца в нулевом поле от комнатной температуры. Однако начало перехода наблюдается в несколько больших магнитных полях. При $T = 25$ К излом на кривой $m(H)$, соответствующий полю H_1 , наблюдается при ≈ 25 кЭ, тогда как в пленке 1 при этой температуре $H_1 \approx 19$ кЭ. Кроме

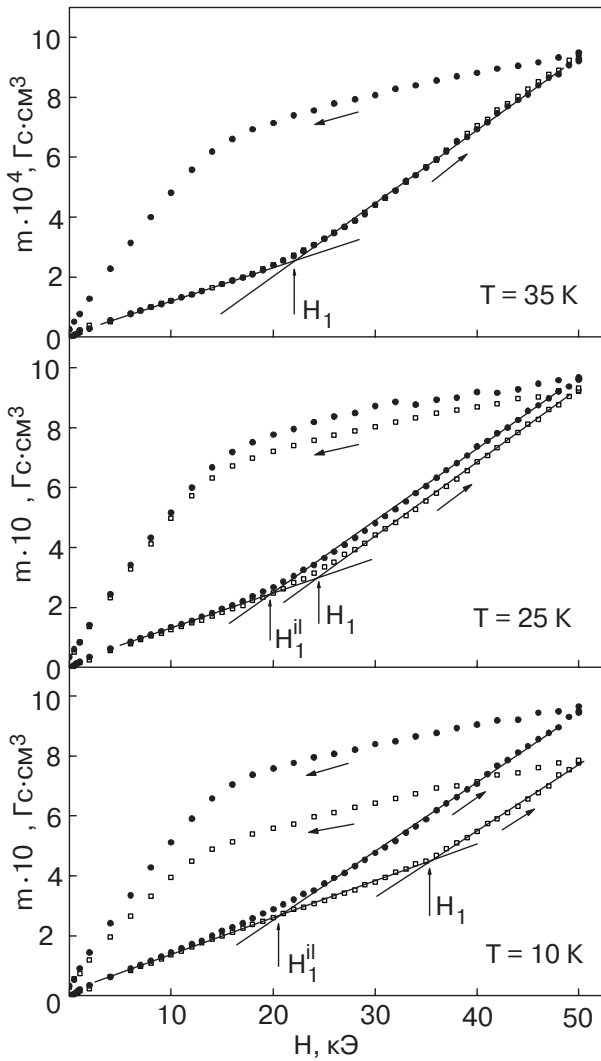


Рис. 2. Полевые зависимости намагниченности, измеренные в пленке 2 при температурах $T = 10, 25$ и 35 К в необлученной (\square) и облученной (\bullet) пленках.

того, окончание перехода (излом на зависимости $m(H)$ в поле H_2) в пленке 2 не наблюдается вплоть до 50 кЭ, т.е. полевой интервал $\Delta H = H_2 - H_1$ в этой пленке шире, чем в пленке 1. При уменьшении поля от 50 кЭ до 0 зависимость $m(H)$, как и в случае пленки 1, лежит на графике существенно выше, а кривая $m(H)$, полученная при последующем увеличении поля от 0 до 50 кЭ, практически с ней совпадает. Таким образом, и в пленке 2 переход из АФМ в ФМ состояние, индуцируемый магнитным полем, также является необратимым.

Облучение исследуемых пленок светом He-Ne лазера с длиной волны $\lambda = 633$ нм в магнитном поле вызывало рост намагниченности и стимулировало фазовый переход из АФМ в ФМ состояние. Эксперименты по исследованию влияния света на намагниченность пленок и фазовый переход из АФМ в ФМ состояние проводили следующим образом. Вначале пленку 1 охлаждали в отсутствие магнитного поля от комнатной

температуры до температуры, при которой проводили измерения (на рис. 1 приведены данные для $T = 25$ К). Затем магнитное поле медленно увеличивали до величины близкой к $(H_1 + H_2)/2$ и измеряли намагниченности в процессе увеличения поля. Внешнее поле напряженностью 25 кЭ (рис. 1) соответствует приблизительно середине области H_1-H_2 , в которой в пленке 1 при $T = 25$ К происходит переход из АФМ в ФМ состояние. В этом поле включали облучение образца светом. В процессе облучения наблюдали увеличение намагниченности пленки (светлые кружки на рис. 1).

Кинетика роста намагниченности пленки 1 под действием света показана на рис. 3,а. Как видно на зависимости намагниченности от времени облучения $m(H)$, при включении света ($t = 1$ ч) намагничен-

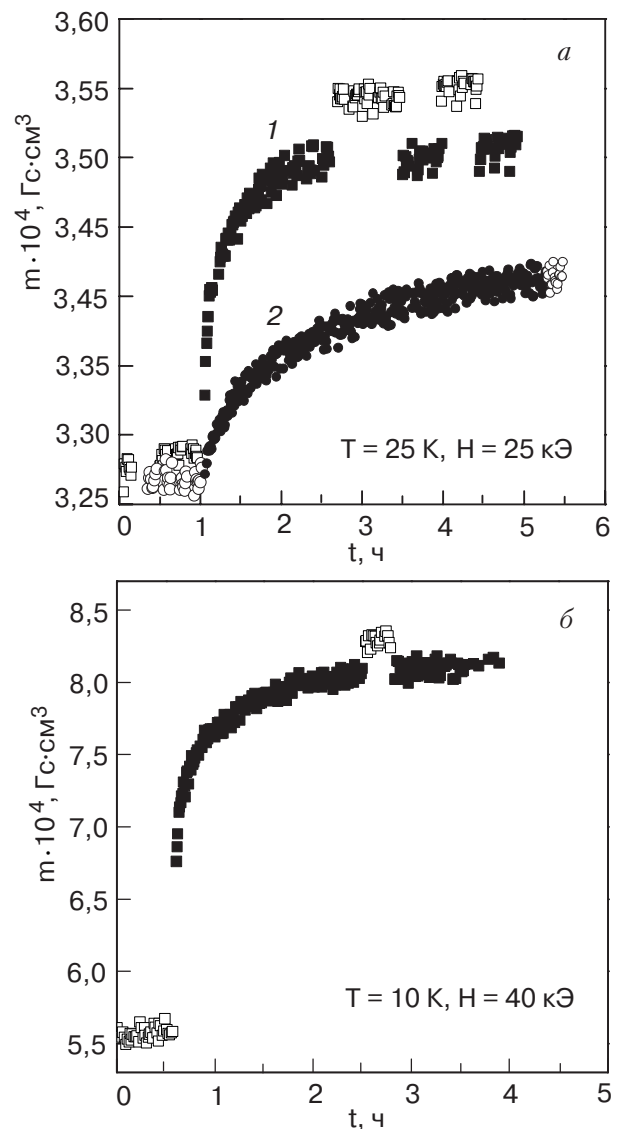


Рис. 3. Зависимости намагниченности пленок 1 (а) и 2 (б) от времени облучения: светлые точки — в отсутствие облучения, темные — при облучении пленок. Для пленки 1 показаны зависимости, измеренные при облучении линейно поляризованным (1) и неполяризованным (2) светом.

ность пленки вначале быстро растет, а затем стремится к насыщению. Изучено влияние линейно поляризованного и неполяризованного света на намагниченность исследуемой пленки. Плотности светового потока излучения в обоих случаях были одинаковыми. Как видно на рис. 3,а, в первом случае намагниченность пленки на зависимости от времени облучения возрастает намного быстрее, чем при облучении неполяризованным светом. Время достижения насыщения намагниченности при облучении образца поляризованным светом составляло немногим более одного часа. При облучении же образца неполяризованным светом фотоиндуцированное изменение намагниченности не достигало насыщения даже после 4 часов облучения.

Увеличение намагниченности пленки при облучении не связано с ее нагревом светом. Для определения величины нагрева образца лазерным светом была использована температурная зависимость намагниченности пленки 1 в ФМ состоянии, в котором, как показал эксперимент, фотоиндуцированное изменение намагниченности отсутствует. При исходной температуре образца $T = 25$ К облучение приводит к росту его температуры на 3–4 К. Такому увеличению температуры соответствует рост намагниченности (см. ZFC-зависимость $m(H)$ на рис. 4,а) на $4 \cdot 10^{-6}$ Гс·см³, что почти на порядок меньше, чем увеличение намагниченности, наблюдаемое под действием света (рис. 3,а). Кроме того, температура образца достигает равновесного значения при включении облучения существенно быстрее, чем фотоиндуцированное изменение достигает насыщения. Когда после достижения насыщения облучение выключали, наблюдался небольшой рост намагниченности пленки (светлые квадраты на рис. 3,а), что связано с охлаждением образца. При последующем включении света, приводящем к нагреву образца, намагниченность быстро возвращалась к прежнему значению (темные квадраты на рис. 3,а).

Как видно на рис. 1, намагниченность пленки при облучении не достигает значения, соответствующего ФМ фазе в поле 25 кЭ. Однако ее величина существенно увеличивается под действием света. Полевая зависимость намагниченности, измеренная при уменьшении поля от 25 кЭ до 0 после выключения облучения (темные кружки на рис. 1), лежит на графике существенно выше первичной зависимости $m(H)$, полученной при увеличении поля в отсутствие облучения (светлые квадраты на рис. 1). Измеренная при последующем увеличении поля от 0 до 25 кЭ в отсутствие облучения зависимость $m(H)$ совпадает с полученной при уменьшении поля. Таким образом, индуцированные светом изменения в образце остаются после выведения магнитного поля и проявляются,

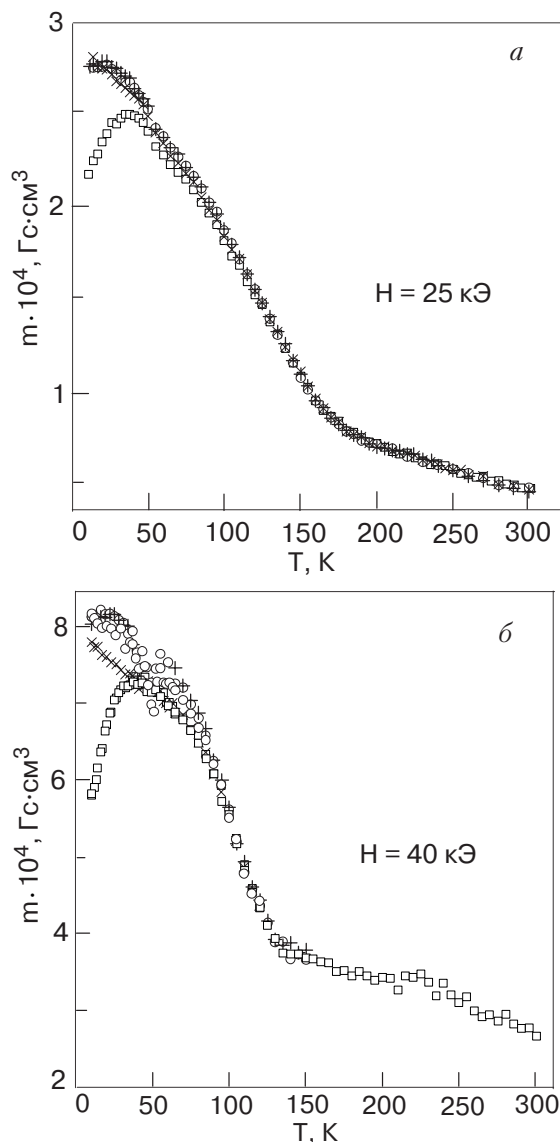


Рис. 4. Температурные зависимости намагниченности пленок 1 (а) и 2 (б) в полях $H = 25$ и 40 кЭ соответственно: зависимости ZFC и FC, измеренные в необлученном (\square и \times) и облученном (пленку облучали во время измерений и предварительно более 1 часа до измерений) (\circ и $+$) образцах.

когда поле вводится снова. Фотоиндуцированный переход в другое магнитное состояние в пленке $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ так же необратим, как и переход, индуцированный магнитным полем. Релаксация фотоиндуцированного изменения намагниченности не наблюдалась в пределах погрешности измерений в течение 20 часов после выключения облучения.

Отметим также, что увеличение намагниченности под действием света наблюдалось и в полях $H < H_1$, хотя величина фотоиндуцированного изменения при этом меньше, чем в области полей, соответствующей фазовому переходу из АФМ в ФМ состояние. Исследования зависимости фотоиндуцированного изменения намагниченности от температуры

пленки показали, что его величина растет с понижением температуры.

Подобные изменения магнитного состояния образца под действием света наблюдались и в пленке 2. На рис. 3,б приведена зависимость намагниченности этой пленки от времени ее облучения линейно поляризованным светом в магнитном поле $H = 40$ кЭ при температуре $T = 10$ К. Как видно на рисунке, намагниченность пленки 2 растет под облучением, а время достижения насыщения фотоиндуцированного изменения намагниченности составляет около 1,5 часов. Таким образом, в обеих пленках 1 и 2 световое облучение вызывало увеличение намагниченности и стимулировало переход из АФМ в ФМ состояние. Для пленки 2 были измерены полевые зависимости намагниченности в образце, облученном светом. Эти зависимости приведены на рис. 2 (темные кружки). Как и при измерении полевых зависимостей в необлученной пленке, образец каждый раз предварительно охлаждали в нулевом поле от комнатной температуры до температуры, при которой проводили измерения. После этого пленку облучали светом в течение 1 часа, а затем измеряли полевую зависимость намагниченности пленки при продолжавшемся облучении в полях от 0 до 50 кЭ и от 50 кЭ до 0. Как видно на рис. 2, влияние светового облучения на зависимость $m(H)$, практически незаметное при $T = 35$ К, хорошо проявляется при $T = 25$ К и сильно возрастает при $T = 10$ К. При этом поле H_1 , в котором начинается переход из АФМ в ФМ состояние, уменьшается под действием света. Смещение поля H_1 в облученной пленке по сравнению с необлученной составляет около 5 кЭ при $T = 25$ К и около 15 кЭ при $T = 10$ К, т.е. величина $H_1^{II} - H_1$ заметно увеличивается при понижении температуры.

Учтено также влияние светового облучения на температурные зависимости намагниченности $m(H)$ пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$. Зависимости $m(H)$ пленок 1 и 2 измеряли в магнитном поле при нагревании образца, охлажденного предварительно в отсутствие поля или в магнитном поле, при котором затем проводили измерения (field cooling – FC), от комнатной до гелиевой температуры. На рис. 4 приведены ZFC- и FC-температурные зависимости намагниченности пленок 1 (рис. 4,а) и 2 (рис. 4,б), измеренные в поле $H = 25$ кЭ и 40 кЭ соответственно. Различие между ZFC- и FC-зависимостями в необлученных пленках четко наблюдается при температурах $T < 50$ К для пленки 1 и $T < 40$ К для пленки 2 и связано с существованием в образце неоднородного магнитного состояния, которое содержит АФМ и ФМ фазы. На рис. 4 также приведены ZFC- и FC-температурные зависимости намагниченности для облученных пленок. Пленки облучали

при $T = 10$ К и $H = 25$ кЭ линейно поляризованным светом до измерений намагниченности не менее 1 часа и во время измерений. Как видно на рис. 4, для облученной пленки 1 ZFC- и FC-зависимости не отличаются и совпадают с FC-зависимостью намагниченности, измеренной для необлученной пленки. Для облученной пленки 2 ZFC- и FC-зависимости также совпадают и идут на графике даже выше FC-зависимости для необлученной пленки. Полученные результаты дополнительно подтверждают, что облучение светом He–Ne лазера стимулирует фазовый переход из АФМ в ФМ состояние в пленках $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$. Различие температурных зависимостей намагниченности для облученной и необлученной пленок наблюдается при $T < 50$ К для пленки 1 (ZFC-зависимости) и при $T < 80$ К для пленки 2 (ZFC- и FC-зависимости). Отметим, что изменение ZFC-намагниченности под действием света не может быть объяснено нагревом образца. В результате нагрева ZFC-намагниченность может достичь только своего максимального значения, которое меньше, чем величина намагниченности облученных пленок при $T < 50$ К. Для пленки 2 обе ZFC- и FC-зависимости лежат выше FC-зависимости необлученной пленки. Нагрев образца не может привести к такому результату.

Результаты резистивных измерений

Фазовый переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние и влияние на этот переход светового облучения наблюдали также при исследовании электропроводности пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ в магнитном поле при температурах $T < 50$ К. Вольт-амперные характеристики исследуемых пленок были нелинейными. Известно, что приложенное электрическое поле, возникающее в пленке $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ при измерении электропроводности, само по себе может вызывать фазовый переход из диэлектрического в металлическое состояние [9]. Измерения температурных и полевых зависимостей $R(T)$ и $R(H)$ проводили в режиме заданного напряжения. Его величина экспериментально подбиралось минимальной, но достаточной для обеспечения точности измерений, и составляла 0,5 В. Электрическое сопротивление обеих исследованных пленок приблизительно одинаково при комнатной температуре ($\approx 2 \cdot 10^3$ Ом) и сильно возрастает с ее понижением. На рис. 5 приведены зависимости $R(T)$ для пленок 1 (рис. 5,а) и 2 (рис. 5,б), измеренные при охлаждении пленок. Время снижения температуры от комнатной до 25 К варьировалась от 45 мин до 4 ч. При этом влияния скорости охлаждения на электрическое состояние образца не было обнаружено. Как видно на рис. 5, при пониже-

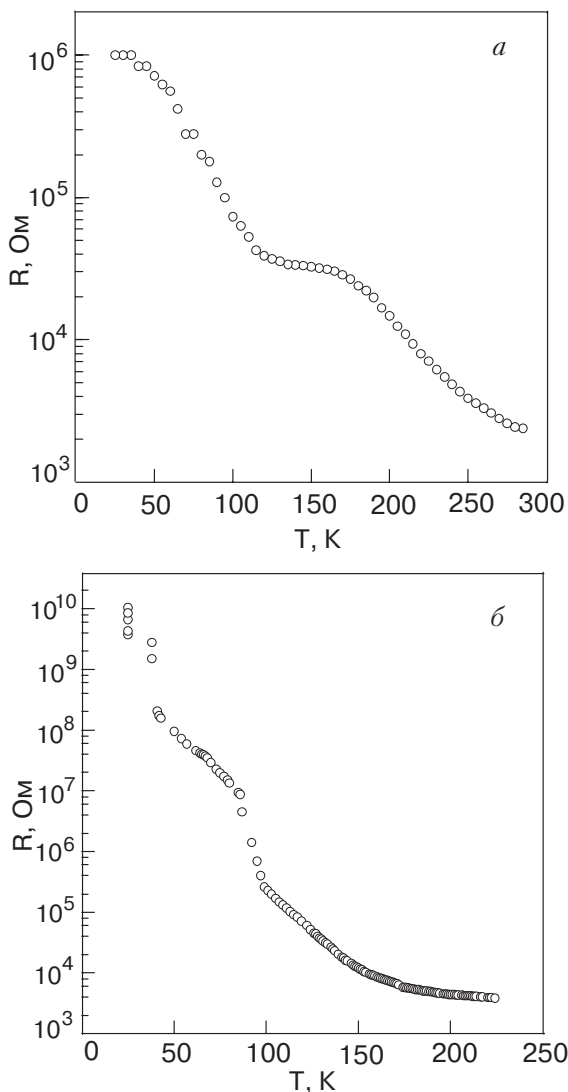


Рис. 5. Температурные зависимости электрического сопротивления пленок 1 (а) и 2 (б).

нии температуры сопротивление пленок плавно возрастает, а начиная с температур 100–110 К наблюдается резкий рост сопротивления. Возможно, излом на зависимости $R(T)$, наблюдаемый для обеих пленок вблизи 100 К, связан с АФМ упорядочением. При низких температурах сопротивления пленок 1 и 2 существенно различаются. Сопротивление пленки 1 достигает значения $\sim 10^6$ Ом, тогда как сопротивление пленки 2 на несколько порядков выше, 10^9 – 10^{10} Ом. В области низких температур (при $T < 50$ – 70 К) наблюдается неоднозначность в определении электрического сопротивления пленок. Так, при $T = 25$ К сопротивление пленки 1 при нескольких охлаждениях устанавливалось в пределах $5 \cdot 10^5$ – $2 \cdot 10^6$ Ом, а сопротивление пленки 2 – в пределах $4 \cdot 10^9$ – $1 \cdot 10^{10}$ Ом. Следует отметить, что измерения сопротивления второй пленки при $R > 10^8$ Ом имели высокую погрешность. С этим могут быть связаны скачки на кривой $R(T)$, а также значитель-

ный разброс точек. Поэтому при $R > 10^8$ Ом о температурном ходе сопротивления пленки 2 можно судить только качественно.

Зависимости электрического сопротивления пленок 1 и 2 от напряженности магнитного поля, полученные в необлученных и облученных пленках, приведены на рис. 6. Эти зависимости измеряли при первом введении магнитного поля после охлаждения пленки в его отсутствие от комнатной температуры до температуры, при которой проводили измерения. Обращает на себя внимание, что на зависимостях $R(H)$ (рис. 6) переход АФМ диэлектрик – ФМ металл проявляется в меньших полях и происходит более резко, чем на зависимостях $m(H)$ (рис. 1 и 2). Так, в случае пленки 1 в отсутствие облучения переход на зависимости $R(H)$ при $T = 25$ К наблюдается в интервале полей $H_1 \approx 14,5$ кЭ и $H_2 \approx 16,5$ кЭ (рис. 6,а), в то

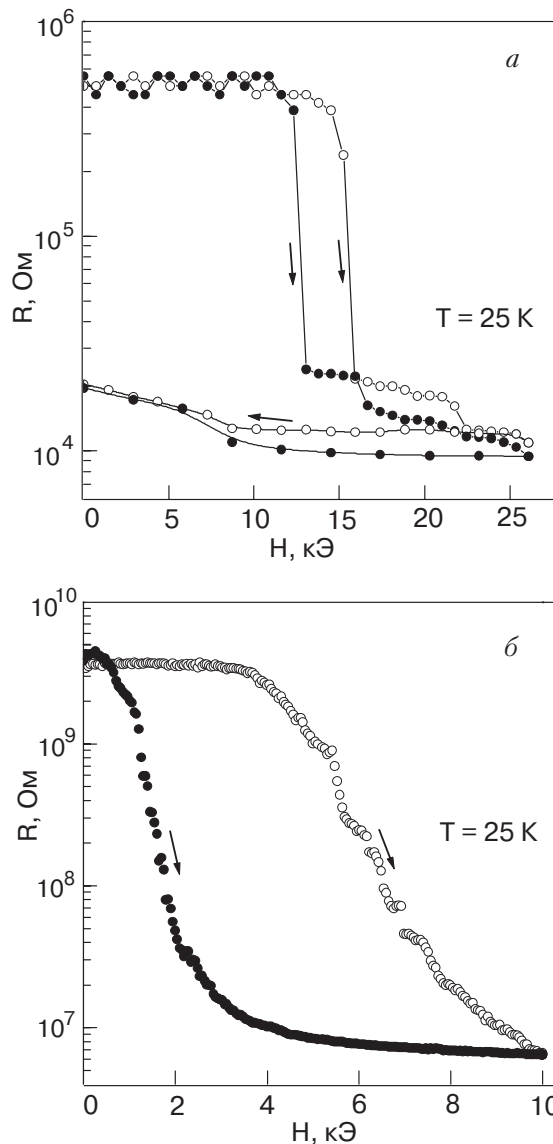


Рис. 6. Полевые зависимости электрического сопротивления пленок 1 (а) и 2 (б), измеренные при $T = 25$ К в необлученной (○) и облученной (●) пленках.

время как на зависимости $m(H)$ при той же температуре (рис. 1) переход происходит в интервале полей $H_1 \approx 19$ кЭ и $H_2 \approx 32$ кЭ. Для пленки 2 в отсутствие облучения переход на зависимости $R(H)$ при $T = 25$ К начинается в поле $H_1 \approx 3,6$ кЭ и практически заканчивается в поле $H_2 \approx 10$ кЭ (рис. 6,б), тогда как на зависимости $m(H)$ при той же температуре (рис. 2) переход начинается при $H_1 \approx 25$ кЭ, а окончание перехода не наблюдается вплоть до 50 кЭ. Наблюдаемое различие в магнитных и резистивных измерениях связано, по-видимому, с присутствием в образце в случае измерения зависимостей $R(H)$ электрического поля, которое само может вызывать фазовый переход из диэлектрического в металлическое состояние [9]. Совместное воздействие электрического и магнитного полей на электронную и магнитную подсистемы кристалла в случае резистивных измерений приводит к тому, что фазовый переход происходит при меньших значениях внешнего магнитного поля.

При уменьшении магнитного поля обратный переход из металлического в диэлектрическое состояние не наблюдается (рис. 6,а, на рис. 6,б обратный ход по полю не показан). Таким образом, резистивные измерения, как и магнитные, показывают, что индуцированный магнитным полем переход АФМ диэлектрик – ФМ металл является необратимым.

Эксперименты по измерению электрического сопротивления в облученных пленках $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$, так же как и магнитные измерения, показали, что облучение пленок светом He–Ne лазера с $\lambda = 633$ нм приводит к заметному понижению магнитного поля, в котором наблюдается переход из диэлектрического в металлическое состояние. Перед облучением пленку охлаждали в отсутствие поля от комнатной температуры до температуры, при которой проводили измерения. После установления нужной температуры пленку облучали при $H = 0$ в течение 1 часа, а затем измеряли зависимость $R(H)$. В процессе измерения полевой зависимости продолжали облучать пленку. Как видно на рис. 6,а и б, при $T = 25$ К световое облучение приводит к смещению перехода АФМ диэлектрик – ФМ металл в сторону низких полей на величину ~ 3 кЭ для пленки 1 и величину ~ 4 кЭ для пленки 2. Уменьшение полей перехода под действием светового облучения наблюдали в экспериментах по измерению электрического сопротивления в области температур $T < 50$ К. Необходимо отметить, что после облучения пленки ее резистивные свойства возвращались к исходному состоянию, наблюдавшемуся до облучения, только после отогрева образца до комнатной температуры и выдерживания при этой температуре в течение суток.

Кинетика изменения электрического сопротивления пленок под действием светового облучения представлена на рис. 7. В экспериментах по исследованию

кинетики величину внешнего магнитного поля устанавливали в интервале $H_1^{\text{II}} < H < H_1$, где H_1^{II} и H_1 – поля, в которых при заданной температуре начинается переход из диэлектрического в металлическое состояние в облученной и необлученной пленках соответственно. В течение нескольких минут измеряли сопротивление необлученной пленки, а затем, в момент времени, отмеченный стрелкой на рис. 7, включали световое облучение. Как видно на рис. 7,а, после облучения пленки 1 около 1 мин ее сопротивление скачком уменьшалось почти на порядок величины. Наблюдаемое под действием света уменьшение R близко по величине к уменьшению сопротивления пленки 1 при фазовом переходе, индуцированном магнитным полем (рис. 6,а). В пленке 2 фотоиндуцированный фазовый переход происходит медленнее (рис. 7,б). При этом сопротивление пленки уменьша-

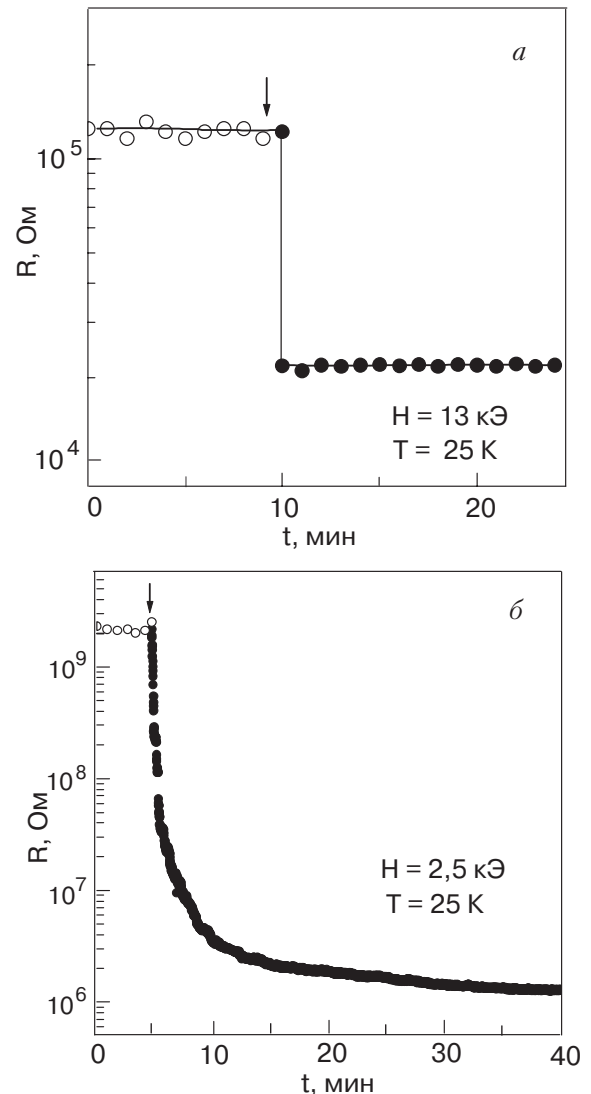


Рис. 7. Зависимости электрического сопротивления пленок 1 (а) и 2 (б) от времени облучения. Светлые точки – в отсутствие облучения, темные точки – при облучении пленок. Стрелками указан момент включения света.

ется под действием света на три порядка величины, что хорошо согласуется с уменьшением R при переходе, индуцированном магнитным полем (рис. 6,б). Отметим, что для пленки 2, как и для пленки 1, изменение электрического сопротивления под действием света происходит существенно быстрее (рис. 7), чем изменение намагниченности (рис. 3).

Так же как при изучении влияния света на магнитные свойства пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$, при исследовании влияния облучения на их резистивные свойства проводили проверку того, что наблюдаемые фотоиндуцированные изменения не связаны с тривиальным нагревом образца. С этой целью была измерена температурная зависимость сопротивления пленки 1 в металлическом состоянии, в котором фотоиндуцированное изменение R не наблюдалось. Эту зависимость измеряли в отсутствие магнитного поля, предварительное введение которого индуцировало необратимый переход диэлектрик – металл. Используя полученную зависимость $R(T)$, можно определить величину нагрева пленки лазерным излучением. Оказалось, что при исходной температуре образца $T = 25$ К облучение приводит к росту его температуры на величину не более 3 К. Отметим, что практически такое же изменение температуры пленки на 3–4 К наблюдалось под действием света и при магнитных измерениях. Увеличение температуры пленки на 3 К не может привести к смещению фазового перехода в сторону низких полей на величину ~ 3 кЭ, которое наблюдается в эксперименте (рис. 6,а). Согласно фазовой H – T -диаграмме, полученной для пленки 1 по результатам резистивных измерений при $U = 0,5$ В, для такого смещения фазового перехода температура пленки должна достичь 40 К, т.е. свет должен нагревать образец на 15 К.

Обсуждение результатов и выводы

Проведенные исследования влияния светового облучения на магнитные и резистивные свойства пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ и наблюдаемый в этих пленках индуцированный магнитным полем переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние позволяют сделать следующие заключения.

– Облучение пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ видимым светом с длиной волны $\lambda = 633$ нм в магнитном поле при $T < 50$ К вызывает увеличение намагниченности и уменьшение электрического сопротивления пленок и стимулирует переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние. В облученных пленках индуцированный магнитным полем переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое со-

стояние происходит при меньших значениях внешнего поля, чем в необлученных пленках.

– Фотоиндуцированный переход АФМ диэлектрик – ФМ проводник является необратимым. Вызванные светом изменения состояния манганита $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ остаются после выведения магнитного поля и проявляются при последующем его введении без изменений в том же виде, в котором они наблюдались после облучения пленки в магнитном поле. Релаксация фотоиндуцированных изменений намагниченности и электрического сопротивления не наблюдается. Необходимо отметить, что облучение светом пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ в отсутствие магнитного поля не вызывает изменений их намагниченности и электрического сопротивления ни непосредственно в процессе облучения, ни при последующем введении магнитного поля после включения облучения.

– При одинаковых условиях фотоиндуцированное изменение электрического сопротивления достигает насыщения существенно быстрее, чем фотоиндуцированное изменение намагниченности. По-видимому, присутствие электрического поля в пленках манганита $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ ускоряет процесс наведения фотоиндуцированных изменений.

– Линейно поляризованный свет вызывает переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние существенно быстрее, чем неполяризованный свет при тех же условиях.

Механизм воздействия света на магнитные и резистивные свойства пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ может быть связан с неоднородным состоянием манганита. Как известно, для манганитов характерно возникновение фазового разделения. При низких температурах в пленках $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,1}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ наряду с АФМ диэлектрической фазой существуют области ФМ металлической фазы. О неоднородном состоянии кристалла свидетельствует различие ZFC- и FC-температурных зависимостей намагниченности при $T < 50$ К. Наличие ФМ фазы проявляется в нелинейной зависимости намагниченности в малых полях для пленки 1 (рис. 1). В пленке 2, где зависимость $m(H)$ в малых полях линейна (рис. 2), количество ФМ металлических кластеров меньше, чем в пленке 1. Это подтверждается наблюдением при низких температурах существенно большего (на 3–4 порядка при $T = 25$ К) сопротивления пленки 2, чем пленки 1 (рис. 5).

Облучение манганита светом может приводить к образованию новых и росту существующих ФМ металлических кластеров внутри АФМ диэлектрической фазы [2–4]. Увеличение концентрации ФМ металлической фазы в кристалле под действием света приводит к увеличению намагниченности и

уменьшению электрического сопротивления. Таким образом, свет стимулирует фазовый переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние и смещает его в область более низких магнитных полей. Из магнитных измерений следует, что световое облучение приводит к переходу только некоторой части антиферромагнитной фазы в ферромагнитную. При этом даже после достижения насыщения фотоиндуцированного эффекта намагниченность меньше величины, соответствующей зависимости $m(H)$, измеренной при уменьшении H от 50 кЭ до 0 (рис. 1). В то же время электрическое сопротивление пленок $\text{Pr}_{0,6}\text{La}_{0,4}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ уменьшается под действием света до того же значения (рис. 7), что и при фазовом переходе, индуцированном магнитным полем (рис. 6). Это можно объяснить, если учесть, что при переходе некоторой части кристалла в ФМ металлическое состояние может возникнуть перколяционный кластер [10–12], пронизывающий всю пленку, и с этого момента образец будет показывать металлическую проводимость. При этом значительная часть пленки может оставаться в АФМ диэлектрическом состоянии. Дальнейшее облучение манганита светом может приводить к возникновению новых и росту существующих ФМ металлических кластеров внутри оставшейся АФМ диэлектрической фазы и, соответственно, к росту концентрации ФМ фазы и увеличению намагниченности. При этом резистивные свойства пленки могут изменяться незначительно, поскольку проводимость определяется существующим перколяционным кластером. Такая модель объясняет наблюдаемое в эксперименте более быстрое насыщение фотоиндуцированного изменения электрического сопротивления по сравнению с фотоиндуцированным изменением намагниченности. Возникновением перколяционного кластера можно объяснить и наблюдение более резкого перехода АФМ диэлектрик—ФМ металл на зависимостях $R(H)$ (рис. 6), тогда как на зависимостях $m(H)$ (рис. 1 и 2) этот переход происходит в более широком полевом интервале.

Присутствие электрического поля в образце при исследовании резистивных свойств пленок также, по-видимому, оказывает влияние на фазовый переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние. Оно может вызывать переход в АФМ диэлектрических областях, расположенных между ФМ металлическими кластерами, и способствовать тем самым образованию перколяционного кластера. Таким образом, присутствие электрического поля также может приводить к более резкому фазовому переходу и быстрому насыщению фотоиндуцированного изменения электрического сопротивления.

Как отмечено выше, релаксация фотоиндуцированных изменений намагниченности и электрического сопротивления не была экспериментально обнаружена. Индуцированный светом переход из АФМ диэлектрического в ФМ металлическое состояние является необратимым. Можно предположить, что неоднородное состояние, существующее в магнитном поле и состоящее из областей АФМ диэлектрической фазы и ФМ металлической фазы, не является стабильным. Переход под действием света части АФМ диэлектрической фазы в ФМ металлическую изменяет концентрацию фаз и переводит кристалл в более стабильное состояние. После выключения светового воздействия пленка манганита находится в более стабильном состоянии и поэтому релаксация не наблюдается. В случае справедливости сделанного предположения приходим к заключению, что состояние кристалла, возникающее при его охлаждении от комнатной температуры до температуры, при которой проводили измерения, в отсутствие магнитного поля является стабильным и поэтому не изменяется при облучении.

С другой стороны, время релаксации фотовозбужденного состояния может быть очень большим, таким, что релаксация не проявляется при проведении эксперимента в течение нескольких часов (в эксперименте по исследованию фотоиндуцированного изменения намагниченности релаксация не была зарегистрирована в течение 20 часов). В кристалле $\text{Pr}_{0,67}\text{Ca}_{0,33}\text{MnO}_3$ время перехода из металлического в диэлектрическое состояние после выключения магнитного поля составляло около 3 ч при $T = 40$ К [13]. Причем это время увеличивалось на два порядка величины при понижении температуры от 45 до 40 К. Можно предположить, что в наших экспериментах при более низких температурах время релаксации на много порядков больше.

Механизм воздействия света на рассматриваемый фазовый переход в пленках манганитов может быть связан с фотоиндуцированным переносом электронов с ионов Mn^{3+} на ионы Mn^{4+} . Под действием света происходит переход электрона e_g с иона Mn^{3+} на ион Mn^{4+} через O_{2p} орбиту кислорода [1]. Изменение валентности ионов Mn может приводить к плавлению зарядового упорядочения, которое имеет место в АФМ диэлектрическом состоянии, и вызывать переход в ФМ металлическую фазу. Возможно, что линейно поляризованный свет индуцирует направленный перенос заряда между ионами Mn^{3+} и Mn^{4+} в кристаллической решетке, что способствует более быстрой перестройке электронного, магнитного и структурного состояний кристалла. Этим можно объяснить наблюдавшийся в эксперименте более быстрый процесс фотоиндуцированных изменений

под действием поляризованного света по сравнению с неполяризованным.

Работа частично выполнена в рамках проекта НАН Украины № 3 – 026/2004.

1. J.M. Dai, W.H. Song, J.J. Du, J.N. Wang, and Y.P. Sun, *Phys. Rev.* **B67**, 144405 (2003).
2. K. Miyano, T. Tanaka, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4257 (1997).
3. T. Mori, K. Ogawa, K. Yoshida, K. Miyano, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 3570 (1997).
4. K. Ogawa, W. Wei, K. Miyano, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B57**, R15033 (1998).
5. M. Baran, S.L. Gnatchenko, O.Yu. Gorbenko, A.R. Kaul, R. Szymczak, and H. Szymczak, *Phys. Rev.* **B60**, 9244 (1999).
6. O.Yu. Gorbenko, A.R. Kaul, N.A. Babushkina, and L.M. Belova, *J. Mater. Chem.* **7**, 747 (1997).
7. Y. Tomioka, A. Asamitsu, Y. Moritomo, and Y. Tokura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **64**, 3626 (1995).
8. Y. Tomioka, A. Asamitsu, H. Kuwahara, Y. Moritomo, and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B53**, R1689 (1996).
9. A. Asamitsu, Y. Tomioka, H. Kuwahara, and Y. Tokura, *Nature* **388**, 50 (1997).
10. Э.Л. Нагаев, *УФН* **166**, 833 (1996).
11. Л.П. Горьков, *УФН* **168**, 665 (1998).
12. В.М. Локтев, *ФНТ* **26**, 231 (2000).
13. A. Anane, J.P. Renard, L. Reversat, C. Dupas, P. Veillet, M. Viret, L. Pinsard, and A. Revcolevschi, *Phys. Rev.* **B59**, 77 (1999).

Effect of light on antiferromagnetic dielectric–ferromagnetic metal phase transition in thin $\text{Pr}_{0.6}\text{La}_{0.1}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ films

P. Aleshkevych, M. Baran, V.A. Bedarev, V.I. Gapon, O.Yu. Gorbenko, S.L. Gnatchenko, A.R. Kaul, R. Szymczak, and H. Szymczak

The effect of light illumination on the magnetic and transport properties of epitaxial thin films of manganite $\text{Pr}_{0.6}\text{La}_{0.1}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ was studied. It has been found that the illumination of films with He–Ne laser light in the external magnetic field increases magnetization and decreases electric resistance. The antiferromagnetic dielectric–ferromagnetic metal phase transition that is observed in this crystal in the magnetic field at low temperatures is stimulated by light. It has been found that the phase transition field decreases noticeably after light illumination. It can be concluded that light illumination induces the formation and increase of ferromagnetic conductor clusters within the antiferromagnetic dielectric phase. The mechanism of the effect of light on the magnetic and transport properties of $\text{Pr}_{0.6}\text{La}_{0.1}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ can be related to the photoinduced electron transfer from Mn^{3+} to Mn^{4+} ions. This process stimulates the melting of the charge ordering that exists in this manganite in the dielectric state as well as the transition of the crystal to the ferromagnetic metal phase.