

Гигантский динамический изотоп-эффект в $(\text{La}_{0.25}\text{Pr}_{0.75})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ по данным ЯМР ^{139}La

Михалев К.Н., Литвинов И.Е., Низаматьянова З.Н., Якубовский А.Ю., Кауль А.Р.



В манганитах исходном $(\text{La}_{0.25}\text{Pr}_{0.75})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}^{16}\text{O}_3$ и с изотопным обогащением ^{18}O ($(\text{La}_{0.25}\text{Pr}_{0.75})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{Mn}^{18}\text{O}_3$) получены спектры ЯМР ^{139}La , измерены времена спин-спиновой релаксации в парамагнитной области во внешних магнитных полях 5, 9.4Тл. В манганите, обогащенном более тяжелым изотопом кислорода, во внешнем поле 5Тл обнаружено исчезновение сигнала в области зарядового упорядочения ($T < T_{\text{CO}}$), связанное с аномальным возрастанием скорости спин-спиновой релаксаций. При увеличении внешнего магнитного поля до 9.4Тл разница в поведении скоростей релаксации для двух образцов в области зарядового порядка также заметна, хотя величина эффекта значительно уменьшается. Наблюдаемый огромный изотоп-эффект является явным свидетельством значительной роли движения кислорода в формировании дальнего магнитного порядка в исследуемых манганитах.

Ярким свидетельством возможного влияния динамики решетки на проводимость манганитов является изотоп-эффект, когда при замещении $^{16}\text{O} \rightarrow ^{18}\text{O}$ в ряде манганитов в определенной области температур инициируется переход металл-изолятор. Наибольший изотоп-эффект наблюдался в $(\text{La}_{0.25}\text{Pr}_{0.75})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. Образцы этого соединения, обогащенные разными изотопами кислорода (^{16}O , ^{18}O) были детально исследованы различными методами, включая ЯМР в упорядоченном состоянии, ЭПР и дифракцию нейтронов. Эти исследования позволили идентифицировать микроскопическое фазовое расщепление в упорядоченном состоянии и построить магнитную фазовую диаграмму в этом манганите.

В настоящей работе представлены результаты анализа спектров ЯМР ^{139}La и измерений скорости спин-спиновой релаксации в области температур 80-350К и в магнитных полях 5, 9.4Тл для образцов манганита $(\text{La}_{0.25}\text{Pr}_{0.75})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, обогащенных разными изотопами кислорода: ^{16}O (LPCMO¹⁶) и ^{18}O (LPCMO¹⁸).

Спектры ЯМР ^{139}La в исследуемых образцах представляют собой неоднородно-уширенные линии, в которых распределение сверхтонких полей в области высоких температур сравнимо с квадрупольным уширением в первом порядке по теории возмущений, а в области низких тем-

ператур является основным механизмом, определяющим форму линии.

Спектры ^{139}La в LPCMO¹⁸ демонстрируют почти такую же форму линии ЯМР, как и спектры, полученные для LPCMO¹⁶. Поведение сдвига линии в зависимости от температуры также совпадает в поле 5Тл для обоих образцов. Однако сигнал ЯМР исчезает в LPCMO¹⁸ во внешнем магнитном поле 5Тл в области температур ниже 180К, где было обнаружено состояние зарядового упорядочения. Для выяснения природы этого явления были измерены времена спин-спиновой релаксации ^{139}La для исследуемых образцов. Оказалось, что для образца с более тяжелым изотопом кислорода скорость спин-спиновой релаксации резко возрастает в области зарядового упорядочения в поле 5Тл (рис. 1), а для LPCMO¹⁶ - наоборот, уменьшается. При этом в области температур $T > 180\text{K}$ значения скоростей релаксации на обоих образцах ведут себя одинаковым образом и от температуры (с точностью до погрешности) не зависят. При увеличении внешнего магнитного поля до 9.4Тл, разница в поведении скорости релаксации также наблюдается, однако величина эффекта уменьшается. В этом магнитном поле поведение сдвигов линий в области зарядового упорядочения также отличается для LPCMO¹⁶ и LPCMO¹⁸.

В предпереходной области $T_{\text{C}}, T_{\text{N}} < T < T_{\text{CO}}$ обобщенную восприимчивость $\chi(q, \omega)$ можно

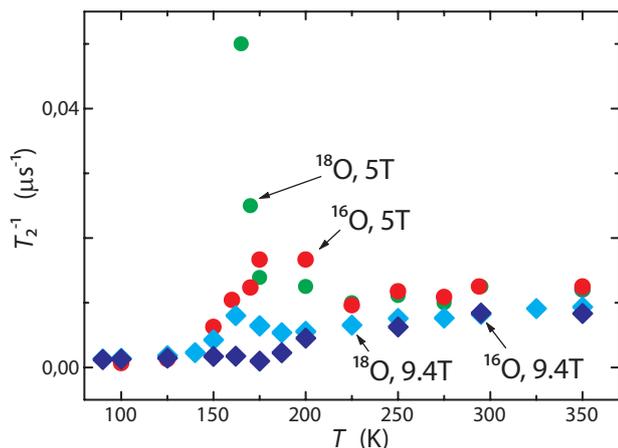


Рис.1

Температурная зависимость скорости спин-спиновой релаксации ^{139}La в образцах $(\text{La}_{0.25}\text{Pr}_{0.75})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ с разным изотопным составом по кислороду (во внешнем магнитном поле 5 Тл ^{18}O – ●, ^{16}O – ● и 9.4 Тл ^{18}O – ◆, ^{16}O – ◆)

описать спектром спиновых флуктуаций, которые в большинстве случаев предшествуют переходу в упорядоченное состояние, причем время корреляции флуктуаций для LPCMO¹⁸ близко к обратной частоте ЯМР: $\tau_c \sim 1/\nu_R$. Подобное исчезновение сигнала ЯМР за счет аномально быстрой поперечной релаксации наблюдали ранее в слабо-допированных манганитах [1] также в предпереходной области. Авторы [1] объясняли это явление аномальной зарядовой динамикой, связанной с локальными структурными искажениями, возникающими при диффузии дырки вследствие эффекта Яна-Теллера.

Вообще говоря, зарядовая динамика в манганите должна сопровождаться спиновой. При диффузии дырки в модели двойного обмена будет меняться как зарядовое состояние ионов

марганца, так и спиновое. Наиболее логично предположить, что для LPCMO¹⁸ движение мостикового кислорода менее интенсивно (частота тепловых колебаний меньше), степень перекрытия орбиталей $O_p\text{-Mn}_{3d}$ меньше, а частота перескока дырки сравнима с частотой ЯМР, в результате мы получаем антиферромагнитные (и зарядовые) флуктуации в предпереходной области, антиферромагнитное упорядочение ниже 150К в этом образце и плохую проводимость. Наоборот, в LPCMO¹⁶ вследствие изменения степени подвижности иона кислорода, степень перекрытия орбиталей марганец-кислород больше, частота перескока дырки существенно превышает частоту ЯМР. В этом случае следует ожидать переход в ферромагнитное состояние в области низких температур и металлическую проводимость.

Детальный анализ различных вкладов в скорость спин-спиновой релаксации в этом манганите позволил установить, что аномалия в поведении скорости релаксации для образца с более тяжелым изотопом кислорода связана со значительным ростом анизотропии флуктуирующих магнитных полей в области зарядового порядка, что, возможно, связано с квантовым критическим переходом, управляемым внешним магнитным полем.

Полученные результаты более подробно описаны в ряде публикаций [2-3] и могут быть использованы для создания и апробации адекватных микроскопических моделей изотоп-эффекта и локализации электронов в манганитах.

¹ G. Allodi, M. C. Guidi, R. De Renzi, A. Caneiro, and L. Pinsard, *Phys. Rev. Lett.*, 87, 127206 (2001).

² K. Mikhalev, A. Pogudin, A. Yakubovskii, A. Kaul', O. Gorbenko, K. Kumagai, Y. Furukawa. In *proceedings of Moscow International Symposium on Magnetism (MISM)* p.202 (2005)

³ K. Mikhalev, A. Pogudin, A. Yakubovskii, A. Kaul', O. Gorbenko, K. Kumagai, Y. Furukawa. *JMMM*, 300, e118 (2006).