

相分离 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系的再入型 自旋玻璃行为和电荷有序*

俞 坚 张金仓† 曹桂新 王仕鹏 敬 超 曹世勋

(上海大学物理系, 上海 200444)

(2004 年 8 月 18 日收到, 2005 年 10 月 18 日收到修改稿)

研究了 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系的结构和输运特性. 结构分析表明, 在 300 K 下, 体系表现为 O' 型正交结构并存在典型的 Jahn-Teller 畸变. 在 8 T 磁场下, 体系出现顺磁绝缘-铁磁金属的转变, 庞磁电阻效应发生. 磁测量发现, 样品的奈尔温度 T_N 和电荷有序转变温度 T_{CO} 分别在 150 和 240 K 左右, 在 41 K 左右出现典型再入型自旋玻璃行为, 同时观察到了负的磁化率异常. 结果表明, $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系在低温下存在着典型的相分离和多种复杂的磁相互作用竞争机制, 这为强关联锰氧化物体系物理机制的理解提供了重要的实验资料.

关键词: 庞磁电阻, 自旋玻璃态, 负磁化强度, 电荷有序

PACC: 6110M, 7200, 7550L, 7530H

1. 引 言

锰氧化物体系的庞磁电阻(CMR)效应是近年来凝聚态物理学领域中一个重要的研究方向. 该效应最初是在金属多层膜中发现的^[1]. 对锰氧化物而言, 其母体材料 $R\text{MnO}_3$ ($R = \text{La}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Pr}$ 等稀土元素) 为反铁磁长程有序绝缘体, 当掺入二价碱土元素 $\text{Ca}, \text{Ba}, \text{Sr}$ 等后, 形成具有庞磁电阻效应的 $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$ (A 代表碱土元素) 钙钛矿型锰氧化物^[2-4]. 由于这一效应在信息存储及磁敏传感器等方面可能的广泛应用前景^[5-7], 因而受到国内外科技工作者的高度关注, 并进行了大量细致的理论和实验研究工作. 对锰氧化物体系中 CMR 效应的产生机理, 最初比较统一的认识是所谓的双交换机制和 Jahn-Teller (J-T) 畸变. 按照双交换机制, 在 CMR 锰氧化物中, Mn 原子处于 6 个 O 原子所形成的八面体中心位置, Mn 位上的 3d 轨道被八面体所形成的晶格场分裂成 3 个低能量的 t_{2g} 态和两个高能量的 e_g 态^[8]. 3d 轨道态明显分裂为自旋和载流子两部

分, 其后果是 e_g 传导电子的自旋 ($s = 1/2$) 和 t_{2g} 电子的局域自旋 ($s = 3/2$) 之间产生有效的强耦合. 这种原位的铁磁性耦合符合 Hund 规则, 交换能 J_H (Hund 耦合能) 在锰氧化物中大约为 2—3 eV, 这要比电子在相邻位置 (i, j) 间的跃迁作用 t_{ij} 要大. 在强耦合极限下, J_H/t_{ij} 趋向于无穷. 有效跃迁的绝对值 t_{ij} 可以用 $t_{ij} = t_{ij}^0 \cos(\theta_{ij}/2)$ 描述^[9, 10], t_{ij} 依赖于相邻自旋间的角度 θ_{ij} . 对 3d 电子而言, 外磁场可以使原来五重简并的能级按角动量的本征态分裂为 5 个不同的能级或者部分解除简并. 按照 Hund 法则, 一定数量的电子占据这些分裂的能级, 在占据这些能级的电子中, 当简并能级中的电子数比简并度少时, 有时晶体会自发地发生畸变, 对称性变低, 轨道简并度解除, 使电子的占有能级变得更低. 按照这些观点, 可以解释 CMR 中的大部分现象和机理. 但是随着研究的深入, 人们又在各种掺杂的锰氧化物中发现了大量有趣而且用“双交换作用”和“J-T 效应”解释不了的现象, 例如电荷/轨道有序态、自旋玻璃态、电荷有序反铁磁和铁磁团簇共存等等. 由此引申出了很多新的理论和现象, 如巡游电子之间的库仑相互作用、

* 国家自然科学基金(批准号: 10274049)上海市教育委员会“曙光”计划(批准号: 03SG35)和上海市教育委员会重点学科建设计划(批准号: T0104)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: jczhang@staff.shu.edu.cn

小极化子、电-声子的相互作用、相分离、多相间竞争机制等。已经在越来越多的 CMR 体系甚至单晶材料中发现了相分离现象,被认为是体系的本征特性。所谓相分离又分为电子相分离和结构相分离两种。电子相分离是由长程库仑相互作用引起的,相的大小为纳米数量级的团簇,如自旋玻璃态^[11]等。结构相分离是由一级金属绝缘体相变中的无序度引起,相的大小为微米数量级团簇。自旋玻璃态是基于纳米量级的电子相分离,外磁场增加时其中的铁磁团簇将随着外场的取向逐渐与外场方向一致,在铁磁团簇和反铁磁团簇边界区域 Mn^{3+} 和 Mn^{4+} 间自旋夹角减小从而使自旋阻挫得以降低。当自旋阻挫减弱到一定的时候, Mn^{3+} 和 Mn^{4+} 间的强相互作用将触发反铁磁团簇的融化,在表现形式上磁化强度因此会有一个突变,但是当外加磁场进一步增大超过一个临界磁场时,化合物的自旋玻璃态会随着反铁磁团簇的融化而消失。电荷有序则是 Mn^{3+} 和 Mn^{4+} 呈规则的晶格状分布,与自旋玻璃态相比较,其被融化的临界磁场都比自旋玻璃态的融化磁场大 5 个数量级左右。对于这些丰富的物理现象,尽管已经做了大量理论和实验研究工作,但迄今为止,尚未见有一套理论能对这些现象给予完满的解释。

对典型的 CMR 锰氧化物 $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ 体系,当 x 介于 0.2 和 0.5 之间时,材料表现为铁磁性金属性质,且观测到了 CMR 效应^[12]。而当 $x > 0.5$ 时,材料又转变成为反铁磁绝缘体^[13]。有趣的是,在掺杂浓度大致为 $x = 0.5$ 的一个狭小区域内存在着一个由铁磁金属态到反铁磁绝缘态转变的相边界^[6]。自由的 La^{3+} 是没有自旋磁矩的,而 Nd^{3+} 则具有自旋磁矩^[14],为锰氧化物 CMR 机理研究提供尽可能详尽的实验资料,并基于 $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$ 在半掺杂时是样品的最佳电荷有序浓度的普遍认识,本文研究了 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系输运和磁特性的研究结果,证明该体系在强的外磁场下存在 CMR 效应,给出了体系出现电荷有序态和反铁磁转变的特征温度分别在 $T_{\text{CO}} = 240 \text{ K}$ 和 $T_{\text{N}} = 150 \text{ K}$ 左右,发现了该体系中典型的再入型自旋玻璃行为,自旋玻璃转变温度 T_{SG} 在 41 K 附近。同时,观察到了存在于该体系中负的磁化异常,表明半掺杂的 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 基态存在有多种复杂而丰富的磁相互作用之间竞争机制,这为

强关联锰氧化物体系物理机制的理解提供了重要的实验资料。

2. 实 验

$\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品采用传统的固相反应法制备高纯的 Nd_2O_3 , CaCO_3 和 MnO_2 粉末经精确称量后充分混合研磨,然后在高温炉中以 $360 \text{ }^\circ\text{C/h}$ 的速度升温至 $1100 \text{ }^\circ\text{C}$,保温 12 h 后自然降温至室温。预烧好的样品再次充分混合研磨后,压成直径为 10 mm、厚度约为 2 mm 的薄片,然后加温至 $1300 \text{ }^\circ\text{C}$ 后保温 24 h。上述过程再重复两次以保证初始反应物充分反应。结构分析利用日本理学公司生产的 Dmax/RC 型粉末 X 射线衍射仪;电阻率测量采用标准的四端引线法进行,电输运和磁输运测量均在美国 Quantum Design 公司的 PPMS-9 系统上进行,相应的温度测试范围为 2.4—300 K。

3. 结果分析与讨论

图 1 给出了 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品 X 射线衍射的实验结果,其结构具有典型的 ABO_3 正交结构和很好的单相性,可利用正交 $Pnma$ 空间群指标化^[15]。经拟合得到的晶格常数结果列于表 1 中,符合 $c/\sqrt{2} < a < b$ 的关系,表明 0.5 半掺杂的 $\text{Nd}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ 的晶格为 O' 型的正交结构,具有 J-T 不稳定性畸变的典型特征^[16]。从能带结构上看,这种 J-T 效应引起的晶格畸变使得反铁磁态的能量低于铁磁态,从而成为体系稳定的基态。

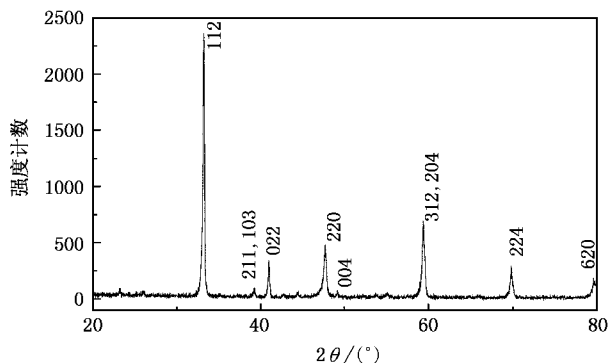


图 1 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品的 X 射线衍射结构分析结果

表 1 样品的晶格参数、A 位离子平均半径、容忍因子 t 和无序度 σ^2

样 品	a/nm	b/nm	c/nm	$\langle r_A \rangle/\text{nm}$	t	σ^2
$\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$	0.5339	0.5429	0.7553	0.117	0.915	8.54×10^{-5}

为了考察 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系在低温区磁特性, 我们测定了在外加磁场为 4000 A/m 情况下的磁化特征(图 2). 从图 2 可以看到, 在 120 K 左右样品的零场冷(ZFC)和场冷(FC)热磁曲线开始出现分叉现象, 根据 Zener^[17] 的双交换理论和 Kawano 等^[18] 在 $\text{La}_{0.875}\text{Sr}_{0.125}\text{MnO}_3$ 体系中低温处所发现的 A 型翻转反铁磁结构, Ca^{2+} 的掺入使样品中出现了 Mn^{4+} , $\text{Mn}^{3+}-\text{O}-\text{Mn}^{4+}$ 键形成的双交换作用与 $\text{Mn}^{3+}-\text{O}-\text{Mn}^{3+}$ 键形成的超交换作用相互竞争, 出现了铁磁和反铁磁不均匀团簇的共存. 这种反铁磁不均匀团簇的出现可能是导致磁化曲线分叉的主要原因, 此种分叉现象即为铁磁-反铁磁相分离现象的典型特征^[19]. 当温度进一步降至 41 K 时, ZFC 曲线和 FC 曲线分叉现象变得更加明显, 这是样品中存在自旋玻璃态的证据之一^[20]. 由图 2 可以看到, FC 热磁曲线随着温度的降低磁化强度突然增大, 越过 41 K 后磁化强度增大趋于平缓, 但尚未达到饱和, 整体上表现为反铁磁性, 这表明样品在低温下各相竞争中铁磁相增加并出现“铁磁团簇”的增强效应. 而对应于 ZFC 热磁曲线上出现了一个尖峰, 这是自旋玻璃态的一个明显特征^[20]. 值得注意的是, 随着温度的进一步降低, 磁化强度不断减小并出现负值, 这种负的磁化异常可能是由于低温下纳米到微米尺度下铁磁、反铁磁和自旋玻璃相之间的相互竞争和交换耦合中所表现出的抗磁行为所致, 宏观上表现出抗磁特性, 其详细机理还需要进一步澄清. 为进一步澄清样品低温下抗磁性随磁场的变化, 图 3 给出了 4.2 K 下测得的 $M-H$ 曲线. 由图 3 的结果可以看出, 随磁场的进一步增大, 样品磁化强度以近似反铁磁金属性的行为变化, 直到 $7 \times 10^6 \text{ A/m}$ 时仍未表现出铁磁行为. 图 3 内插图给出了低场区的 $M-H$ 放大图, 发现 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 的抗磁性在磁场为 4000 A/m 时即消失. 扫描磁场 $7 \times 10^6 \rightarrow 0$ 和 $0 \rightarrow 7 \times 10^6 \text{ A/m}$ 时相比较发现有一明显的磁滞后行为, 表明样品中可能产生了一个较小的铁磁相, 至于这个铁磁相是否由抗磁成分转化而来尚不敢肯定, 但可以肯定的是, 在较高的磁场下抗磁成分消失, 样

品的磁性是由小的铁磁团簇和反铁磁相共同组成的.

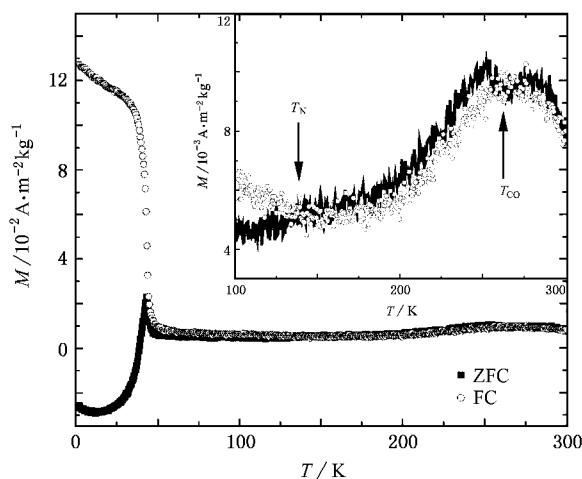


图 2 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品在 4000 A/m 外加磁场下的场冷(空心圈)和零场冷(实心圈)的 $M-T$ 曲线. 内插图为样品在 $100-300 \text{ K}$ 范围内的放大图

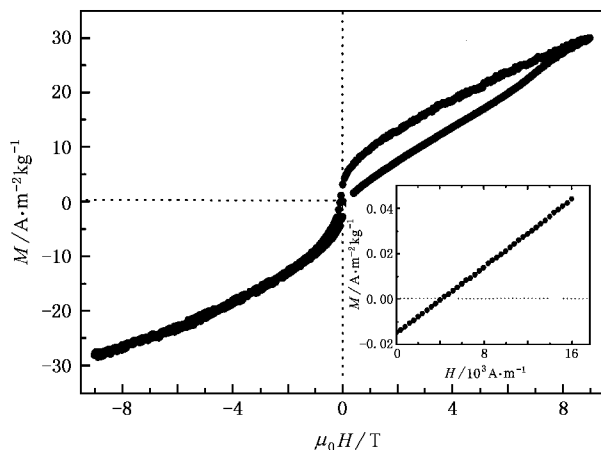


图 3 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品在 4.2 K 时的 $M-H$ 曲线. 内插图为 4.2 K 时 $0-16000 \text{ A/m}$ 范围内放大的 $M-H$ 曲线

在高的外加磁场下, 体系则表现出完全不同的磁化特征, 图 4 给出了在 4×10^6 和 $6 \times 10^6 \text{ A/m}$ 外场下的热磁曲线. 从图 4 可以看到, 低温区磁化强度随温度降低平缓地增长, 表现出典型的反铁磁特性. 至 20 K 左右斜率有大的增加, 曲线突然上升, 但直至 2 K 仍未达到饱和. 另外可以发现, 对 $6 \times 10^6 \text{ A/m}$ 外场下样品的 FC 和 ZFC 曲线在 120 K 附近有一个交叉点, 即在 120 K 以上的高温区域, FC 曲线对应的磁化强度小于 ZFC 对应的磁化强度. 这一现象是

非常奇特的,在传统的铁磁体系中尚未出现过.其机理可能是由于在 $6 \times 10^6 \text{ A/m}$ 的 FC 条件下,升温测量时样品先被磁化,所以在 120 K 温度以下时,FC 对应的磁化强度大于 ZFC 对应的磁化强度.而 FC 测量在降温时所加的磁场,对升温过程中的反铁磁-顺磁转变造成了抑制,致使 120 K 以上时 FC 曲线对应的磁化强度小于 ZFC 对应的磁化强度,从而使峰值下降.与图 2 的内插图中的磁化强度分叉现象相对应,证明了样品中不均匀团簇的存在.低温下 $6 \times 10^6 \text{ A/m}$ 磁场 ZFC 热磁曲线和 FC 热磁曲线形状基本类似,没有发生像图 2 中 ZFC 热磁曲线和 FC 热磁曲线分离现象,表明自旋玻璃态在 8 T 以上的强磁场下已经被融化.随着温度的升高,样品在所有外场下的 $M-T$ 曲线的变化趋势逐渐趋于一致.可见磁场的大小在较高温区时对样品磁性的影响并不太明显,曲线的变化规律基本一致,只是在同一温度下,外加磁场越大磁化强度也越大.温度继续升高时,在 170—300 K 范围内样品处于顺磁态.从 $T = 170 \text{ K}$ 样品磁化强度最低点起,随着温度升高,样品的磁化强度逐渐增大,在 250 K 附近磁化强度达到最大值,然后又逐渐减小.根据 Goodenough^[21] 提出的“半共价键交换理论”,对反铁磁结构的 CE 相而言,样品在 170 K 时反铁磁相在各相竞争中占优势,表现出反铁磁性,170 K 对应于奈尔温度 T_N .随着温度的升高, Mn^{3+} 和 Mn^{4+} 离子方向逐渐扭转而呈规则的晶格状分布,到了 250 K 附近时离子分布完全规则,可被视为巡游的局域电子形成广义的 Wigner 晶格,即所谓的电荷有序,其电荷有序转变温度 $T_{CO} = 250 \text{ K}$,对应在 $M-T$ 曲线上出现了峰值转变.在 T_{CO} 以上磁矩逐渐转为无序,表现出顺磁特性.可以看出,电荷有序态与自旋玻璃态不同,即使在 $6 \times 10^6 \text{ A/m}$ 的强磁场下电荷有序态也不会被融化^[22].以上所述可以看到,在电荷有序转变温度 T_{CO} 以上,体系表现为顺磁性,在 T_{CO} 以下表现出电荷有序反铁磁性.

为了确定在 50 K 以下 $M-T$ 曲线突变的物理本质,基于交流磁化率测量在两相共存相分离化合物中的特殊意义,本实验对体系的交流磁化率进行了测量(图 5),实验是在 800 A/m 交变场和 1000 Hz 频率条件下进行的.从图 5 可以看到,升降温曲线在

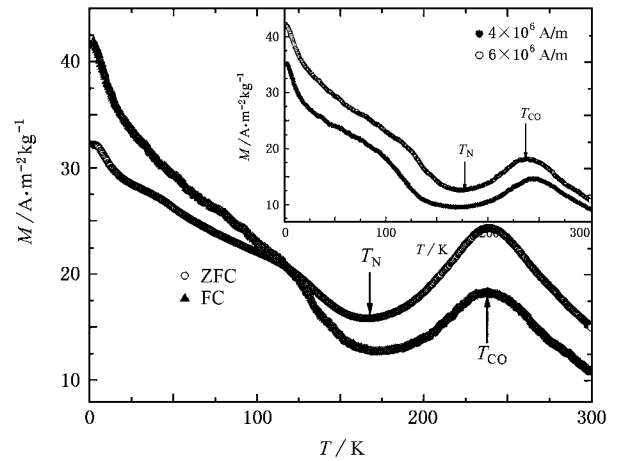


图 4 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品在 $6 \times 10^6 \text{ A/m}$ 外加磁场下 FC 和 ZFC 的 $M-T$ 曲线.内插图为 4×10^6 和 $6 \times 10^6 \text{ A/m}$ 外加磁场下 FC 的 $M-T$ 曲线

240, 150 和 41 K 附近都出现了变化,前两者分别对应于电荷有序温度 T_{CO} 和奈尔温度 T_N ,后者的尖峰效应显然应该是自旋玻璃转变的典型特征,一般将该尖峰温度定义为自旋玻璃转变温度 T_{SG} ^[20].为了确切证明 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 低温下这一变化确为自旋玻璃转变,图 6 给出了样品在 480 A/m 交变场频率分别为 10, 995 和 3330 Hz 时的交流磁化率随温度的变化关系.从图 6 可以看出,随着频率的增加,交流磁化率对应的峰值温度 T_f 向高温移动,这是自旋玻璃态的直接证据^[20].图 6 中的内插图给出了 T_f-f 关系曲线,可以看出 T_f 是关于测量频率 f 的线性函数.值得注意的是,这一自旋玻璃转变是在长程反铁磁有序温度 T_N 下发生的,即这种自旋玻璃转变为一种典型的再入型的自旋玻璃行为.在这种情况下,体系处于相竞争失措状态,使得长程磁有序态转变为磁无序态或短程磁有序态.说明在低温下体系出现了自旋玻璃态与电荷有序的共存.对自旋玻璃而言,自旋转变温度 T_{SG} 与峰值温度 T_f 的对应函数关系服从下列关系:

$$\frac{\tau}{\tau_0} = \left(\frac{T_f - T_{SG}}{T_{SG}} \right)^{-2\nu}, \quad (1)$$

式中, τ_0 是自旋特征时间常量, ν 是临界指数.在传统的均匀自旋玻璃体系中, τ_0 约为 10^{-13} s .对于本实验的 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系,我们可以运用(1)式计算得到 τ_0 和 ν 的值,其中最大的弛豫时间 τ_{\max} 由交

变磁场频率决定, $\tau_{\max} = 1/\omega$, 自旋玻璃转变温度 T_{SG} 通过延伸 T_f-f 曲线至频率为零处得到. 从图 5 可估计得出本实验 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 的 τ_0 和 z 的值分别为 1.91×10^{-6} 和 1.02. τ_0 值明显大于均匀自旋玻璃体系的 10^{-13} s, 表明体系中存在着更有序的磁状态. 结合前面的实验结果, 似乎可以证明 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系在低温下的自旋玻璃态为团簇型玻璃相, 且和铁磁相团簇是共存的.

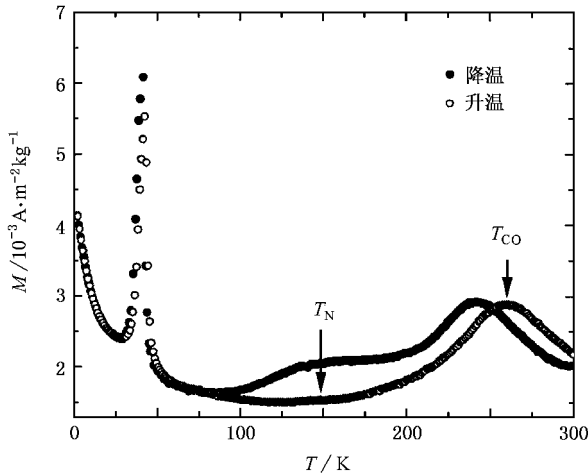


图 5 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品在 800 A/m, 1.0 kHz 交流外场下磁化率随温度的变化关系

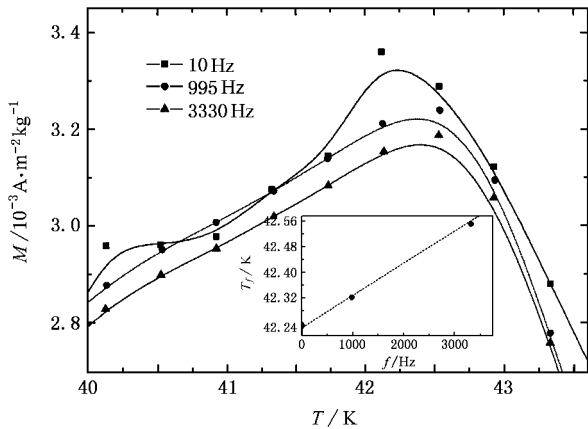


图 6 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品在 480 A/m 不同频率的交变场下的磁化强度随温度的变化. 内插图为 T_j 与测量频率 f 的关系

在锰氧化物 CMR 体系中, 磁特性和电输运性质之间存在着直接的关联, 为看到在本实验的 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系上述这些复杂磁特性与输运特性之间的关系和相互影响, 图 7 (a) 给出了零场和外加 6×10^6 A/m 磁场时样品的电阻率随温度的变化关

系. 从图 7 (a) 可以看出, $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 在不加外场情况下, 在整个温区电阻率随温度的下降而上升, 呈现出典型的半导体绝缘行为. 在 6×10^6 A/m 外场下, 高温区域样品电阻率呈半导体特性, 在 80 K 左右出现绝缘-金属的转变, 电阻率随着温度的下降出现金属性导电行为. 从图 7 (b) 可以看出, 样品在 6×10^6 A/m 外场下具有显著的 CMR 效应, 在 50 K 时仍没有达到最大的磁电阻值. 如上所述, $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品的基态为在反铁磁基底上的多相共存态, Ca^{2+} 的半掺杂使样品中出现 Mn^{4+} , 且 Mn^{4+} 和 Mn^{3+} 的理论之比为 1:1, 为双交换作用提供了必要条件. 对于 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 的电阻率随温度的变化行为, 结合双交换理论可以认为: 当温度降低到 80 K 左右时, 强场下 J-T 效应使得 $\text{Mn}^{3+}-\text{O}-\text{Mn}^{4+}$ 键的键角趋于 180° , 双交换作用使体系出现铁磁金属性, 体系从半导体性变为金属性. 文献 [8, 23, 24] 对 $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 和 $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系的研究结果指出, 随着温度的降低该类体系可形成电荷有序而使其变为绝缘体, Mn-O-Mn 键间同时存在反铁磁和铁磁的耦合作用. 而从上述 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系的研究可以看到, $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系不同于半替代的 $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 和 $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 体系, 这里, 铁磁耦合作用(双交换作用)使其出现绝缘-金属的转变.

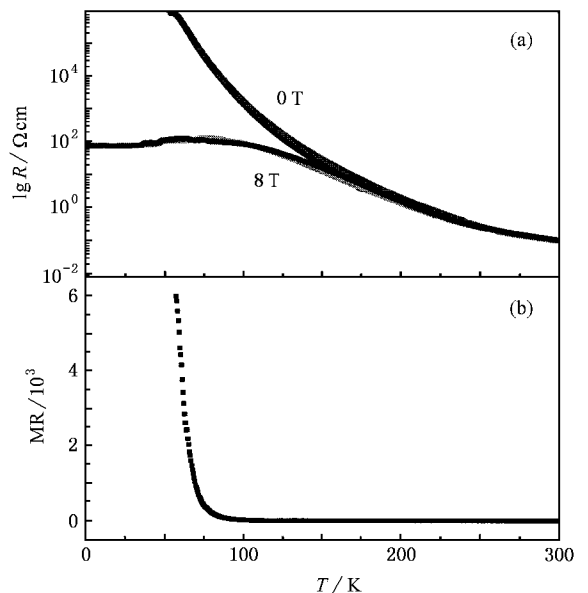


图 7 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品在 0 和 8 T 外加磁场下的 $\rho-T$ 曲线 (a) 及 8 T 时磁电阻 MR 随温度 T 的变化曲线 (b)

4. 结 论

对 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 的结构和电磁输运特性进行了系统研究. 结果表明, 在常温下该体系具有 O' 型正交结构, 表现出强的 J-T 畸变且伴随着 CMR 效应和绝缘-金属相变的发生. 在外加直流和交流磁场的热磁曲线中, 170 和 250 K 附近都存在奈尔温度 T_N 和电荷有序温度 T_{CO} , 电荷有序转变温度 T_{CO} 的变化趋势是随着外场的增大而朝低温区移动. 交流

热磁曲线在 41 K 时出现峰值, 低场下直流热磁 ZFC 曲线和 FC 曲线发生明显的分叉现象, 表明低温下样品出现相分离现象, 由于铁磁与反铁磁相竞争的失措, 导致了 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 样品在 41 K 出现了自旋玻璃转变, 且表现出再入型的自旋玻璃行为. 同时, 观察到了样品在直流低场下 ZFC 曲线中出现了负磁化强度异常, 表明 $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ 低温下的基态存在着多种复杂的磁相互作用之间的竞争机制. 这为强关联锰氧化物体系物理机制的理解提供了重要的基础研究资料.

-
- [1] Baibich M N, Broto J M, Fert A *et al* 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [2] Von Helmolt R, Wecker J, Holzapfel B *et al* 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 2331
- [3] Xiao C T, Han L A, Xue D S *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1245 (in Chinese) [肖春涛、韩立安、薛德胜等 2003 物理学报 **52** 1245]
- [4] Jin S, Tiefel T H, McCormack M *et al* 1994 *Science* **264** 413
- [5] Xu M X, Jiao Z K 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 1007 (in Chinese) [徐明祥、焦正宽 1998 物理学报 **47** 1007]
- [6] Moses D, Sinclair M, Heeger A J 1987 *Appl. Phys. Lett.* **58** 2710
- [7] Hylton T L, Coffey K R, Parker M A *et al* 1993 *Science* **261** 1021
- [8] Tokura Y, Tomioka Y 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 1
- [9] Anderson P W, Hasegawa H 1955 *Phys. Rev.* **100**(1) 675
- [10] Anderson P W, Hasegawa H 1955 *Phys. Rev.* **100**(2) 675
- [11] Ma X, Lu Y, Kou Z Q *et al* 2005 *Chin. Phys.* **14** 192
- [12] Schiffer P, Ramirez A P, Bao W *et al* 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 3336
- [13] Ramirez A P, Schiffer P, Choeng S W *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 3188
- [14] Liu K, Wu X W, Ahn K H *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **54** 3007
- [15] Kou Z Q, Di N L, Lu Y *et al* 2005 *Chin. Phys.* **14** 398
- [16] Kimura T, Tomioka Y, Kumai R *et al* 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 3188
- [17] Zener C 1951 *Phys. Rev.* **82** 403
- [18] Kawano H, Kajimoto R, Kubota M *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **53** 2202
- [19] Elbio D, Takashi H, Adriana M 2001 *Phys. Rep.* **344** 1
- [20] Mydosh J A 1993 *Spin Glass: An Experimental Introduction* (London: Taylor & Francis)
- [21] Goodenough J B 1955 *Phys. Rev.* **100** 564
- [22] López J, de Lima O F 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 4395
- [23] Tomioka Y, Asamitsu A, Kuwahara H *et al* 1996 *Phys. Rev. B* **53** R1689
- [24] Wollan E O, Koehler W C 1955 *Phys. Rev.* **100** 545

Reentering spin glass behavior and charge ordering in phase separation $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ system^{*}

Yu Jian Zhang Jin-Cang[†] Cao Gui-Xin Wang Shi-Peng Jing Chao Cao Shi-Xun

(Department of Physics , Shanghai University , Shanghai 200444 , China)

(Received 18 August 2004 ; revised manuscript received 18 October 2005)

Abstract

Half-doped manganese oxides are very important on clarifying physical mechanism of strong correlation electron system and colossal magnetoresistance (CMR) effect due to their rich physical content. The structure , electrical and magnetic transport properties of $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ manganite was systemically studied. The results show that $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ compound displays the O' -orthorhombic structure and indicate the existence of the typical Jahn-Teller distortion under 300 K. The transport properties show that the system undergoes paramagnetic insulator-ferromagnetic metal transition under a magnetic field of 8 T and is accompanied by CMR effect. Meanwhile , it is found that the temperature of antiferromagnetic transition and charge ordering is around 150 and 240 K , respectively. There appears a typical reentrant spin glass behavior around 41 K and the negative magnetization is also observed in the compound. All these phenomena indicate that there exist several complex magnetic interactions in the ground state of this half-doped $\text{Nd}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ compound at low temperature. The present results provide experimental data for strongly electronic correlated system of manganites.

Keywords : colossal magnetoresistance , spin glass , negative magnetization , charge ordering

PACC : 6110M , 7200 , 7550L , 7530H

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10274049) , the " Down " Program of Education Committee of Shanghai , China (Grant No. 03SG35) and the Leading Academic Discipline Program of Education Committee of Shanghai , China (Grant No. T0104) .

[†] Corresponding author. E-mail : jczhang@staff.shu.edu.cn