

Ag 掺杂 La-K-Mn-O 非均匀多晶体系的电磁性质

吴 坚^{1)†} 张世远²⁾

1) 河海大学理学院, 南京 210098)

2) 南京大学物理系, 南京 210093)

(2006 年 1 月 25 日收到, 2006 年 3 月 26 日收到修改稿)

用溶胶-凝胶方法制备了 $1/m\text{Ag}_2\text{O-La}_{0.833}\text{K}_{0.167}\text{MnO}_3$ (LKMO/Ag) 系列样品, 其中 $1/m$ 代表 Ag_2O 和 $\text{La}_{0.833}\text{K}_{0.167}\text{MnO}_3$ (LKMO) 的摩尔比, $m = 32, 16, 8, 4$ 和 2 . 研究了此系列样品的结构、磁性和输运特性. X 射线衍射实验表明, LKMO/Ag 是一个非均匀的系统, 样品由磁性的钙钛矿相 LKMO 和金属 Ag 相组成. 由于 Ag 相的加入, 在室温条件下, 磁电阻效应明显增强. 在 $300\text{ K}, 0.5\text{ T}$ 磁场下, $m = 4$ 样品的磁电阻可以达到 32% . 5.5 T 磁场下, 其磁电阻可达 64% . 而单纯的 LKMO 样品在相同条件下的磁电阻分别为 10% 和 35% . 在低温下, 加 Ag 样品的磁电阻效应反而减小. 样品含 Ag 越多, 磁电阻效应越小. 用非本征磁电阻(包括自旋极化隧穿和自旋相关散射)和本征磁电阻在不同温区对总磁电阻的相对贡献对此系列样品的磁电阻现象作了定性的解释.

关键词: 自旋极化隧穿, 自旋相关散射, 低场磁电阻, 高场磁电阻

PACC: 7530V, 7570C, 7550G, 7550S

1. 引 言

最近, 在多晶钙钛矿化合物样品中晶粒之间的磁电阻(inter-grain magnetoresistance)效应引起人们的广泛兴趣^[1-8], 特别是大块多晶样品在居里温度以下温度区间内所表现出来的相当大的低场(约为 10^{-2} T)磁电阻效应. 与居里温度附近所表现出来的本征磁电阻不同, 一般称这种磁电阻为非本征磁电阻(extrinsic magnetoresistance)^[5]. 通常情况下, 在晶界和相界面, 铁磁自旋的排列处于一种无序状态, 因此, 它们可以作为 Mn^{3+} 自旋极化离子的 e_g 传导电子的散射中心, 导致多晶钙钛矿材料较高的零场电阻率. 外加磁场可以使这些晶界中的自旋排列整齐, 从而降低电阻率, 产生磁电阻. 对非本征磁电阻的微观机理一般采用自旋极化隧穿(spin-polarized tunneling, SPT)^[2]和自旋相关散射(spin-dependent scattering, SDS)^[3]模型来解释. 在样品未达到饱和磁化之前, 这两种模型给出的磁电阻 R_M 都和 (M/M_S) (M 是磁化强度, M_S 是饱和磁化强度)成正比.

影响晶界和相界面处的自旋无序的因素目前还在

探索和研究之中. 以前的研究工作主要集中在样品微结构的精修上^[9-15]. 例如, 样品颗粒的精修^[11, 12], 钙钛矿/绝缘层两相共同烧结^[13, 14]和无定型相的生成^[15]等. 这些处理过程主要是通过晶粒之间引入绝缘相, 减弱晶粒之间的铁磁相互作用. 但这样也有一个缺点就是极大地增加了样品的电阻率. 例如, 80% 钙钛矿和 CeO_2 共同烧结后的样品, 在 $10\text{ K}, 0.05\text{ T}$ 磁场作用下, 磁电阻可以达到 20% , 但电阻率却高达 $10^3\ \Omega\cdot\text{m}$. 对应用来说, 这么高的电阻率是不实用的. 从另一个角度来说, 要造成晶界或相界面处的磁无序, 加入绝缘相并不是唯一的不可或缺的条件, 只要磁的交换作用被阻断, 任何一个不纯相, 甚至非磁性的金属相都可以造成晶界处的 Mn 离子自旋排列的无序, 造成非本征磁电阻的增加. 而且, 由于金属相的引入, 电流多了一条传输的通路, 可以极大地降低材料的电阻率. 已有工作表明^[16, 17]: Ag 是超导材料 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) 外延膜的一个理想的掺杂元素, 大多数 Ag 相不会进入钙钛矿晶格, 一般它只能以金属的形态分布于晶界或样品的缺陷处. 因此, 我们在 $\text{La}_{0.833}\text{K}_{0.167}\text{MnO}_3$ (LKMO) 中加入 Ag_2O , 并研究了此系列样品的微结构、电性和磁性, 主要目的是探索 Ag 相是否能够减弱钙钛矿颗粒之

† E-mail: jwuwnwl@yahoo.com

间的磁耦合,增加晶界处 Mn 离子自旋的无序度和非本征磁电阻.和超导材料 YBCO 相比,只有少数小组^[18,19]研究了 Ag 的加入对钙钛矿材料输运性质的影响.而且,主要的研究集中在 Ag 相的加入对结构所造成的影响.我们的工作则主要着眼于 Ag 的加入对晶界和非本征磁电阻所造成的作用,这有利于更好地研究非本征磁电阻的起源和磁性晶粒之间电子的输运性质.

2. 样品的制备与晶体结构

首先用 sol-gel 方法制备多晶的 LKMO 粉末^[20],然后按比例加入 Ag_2O ,构成名义成分为 $1/mAg_xO-La_{0.833}K_{0.167}MnO_3$ ($1/m$ 为摩尔比, $m = 32, 16, 8, 4, 2$) 的样品.混和后的粉末压成块材,分成 2 批分别在 1000°C , 1200°C 空气气氛中烧结 10h. 1000°C 烧结的样品记为 LKMO/Ag1000, 1200°C 烧结的样品记为 LKMO/Ag. 本文主要研究 LKMO/Ag 的性质.

图 1 示出了 LKMO/Ag 样品室温下的 X 射线衍射谱.从图中可见所有样品中都包含有菱面体相的钙钛矿结构.从图中还可见,金属 Ag 相也存在于样品中,即使是 $m = 32$ 的样品,从图 1 的插图中可见在角度为 38.1° 处也有典型的 Ag 相衍射峰.另一个值得注意的现象是 $m = 2$ 样品 Ag 的衍射峰强度比 $m = 4$ 衍射峰的强度要弱.我们分析认为这主要是由于金属 Ag 在样品中的分布不均匀造成的.因为在样品的烧结过程中,金属 Ag 有向表面团聚的趋势.对 $m = 2$ 的样品,这种趋势非常的明显,在烧结

后的样品表面,用肉眼就可见到细小金属 Ag 的颗粒.做 XRD 试验时,一般情况下都要用砂纸把样品的表面进行打磨,使样品的表面光滑、平整.这样处理后,对 $m = 2$ 的样品表面 Ag 的含量可能会比 $m = 4$ 的样品表面 Ag 的含量还要低.对同一个样品,我们曾经做过多次的 XRD 曲线测量.在其他测量条件相同的情况下,我们测出 Ag 峰的强度也并不完全一样.其原因可能是 Ag 在样品里的分布是不均匀的,测量时每次放置样品的位置不同, X 射线在样品表面的吸收也会不同.所以即使是同一个样品,前后两次做出的 X 射线衍射的强度也不会完全一致.

3. 实验结果

图 2(a) 示出的是典型 LKMO/Ag 样品在 0.01 T 磁场下的升温 $M-T$ 曲线.居里温度 T_C 定义为 $M-T$ 曲线上斜率最大的拐点处所对应的温度,如图中的箭头所示.对 $m = 32, 16, 8, 4, 2$ 和 LKMO 样品,居里温度分别为 $281, 281, 284, 287, 284$ 和 278 K .

图 2(a) 实验数据表明,含金属 Ag 相样品的居里温度比纯 LKMO 样品的居里温度稍高.同样的结果也被 Joly 等人^[21]在研究 La-Ag-Mn-O 系列样品时报道.他们认为, Ag_2O 烧结过程中,在 $300-400^\circ\text{C}$ 时,发生分解,多余的氧气会在钙钛矿相晶格周围形成气氛,钙钛矿相会被进一步氧化.从而,在含 Ag 相样品中, Mn^{3+}/Mn^{4+} 的比率会下降,而改变居里温度.其他研究小组也有类似的研究结果^[22-24].还有一点需要说明的是,在 LKMO 系列中,居里温度最高的样品并不是通常按双交换理论得到的 Mn^{3+}/Mn^{4+} 比率为 0.33 的样品,而是要略低于这个比率^[25].从图 2(a) 还可见,含 Ag 样品的居里温度基本是一致的,都约在 285 K 左右.这说明含 Ag 样品中 Ag 含量的多少对居里温度没有影响.这个事实从侧面反应出大部分金属 Ag 没有进入 LKMO 晶格,从而含 Ag 样品的居里温度主要由样品中的磁性 LKMO 钙钛矿相决定,而非磁性的金属 Ag 对居里温度的影响很小.

图 2(b) 是强磁场 (3 T) 作用下,磁化强度随温度的变化曲线.从图中可以看出低温下,饱和磁化强度随 Ag 含量的增加而减少.同时,在强磁场的作用下, LKMO 样品的居里温度所对应的拐点向高温方向发生移动,也就是在强磁场的作用下, LKMO 样品

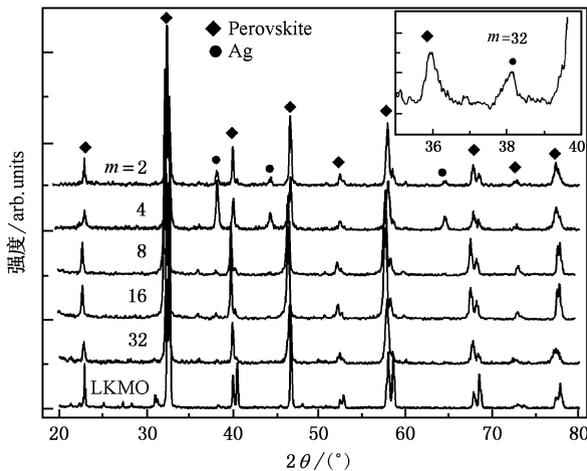


图 1 LKMO/Ag 的 XRD 衍射图(◆代表钙钛矿相,●代表金属 Ag 相,插图是 $m = 32$ 的样品在角度 $35^\circ-40^\circ$ 的放大图)

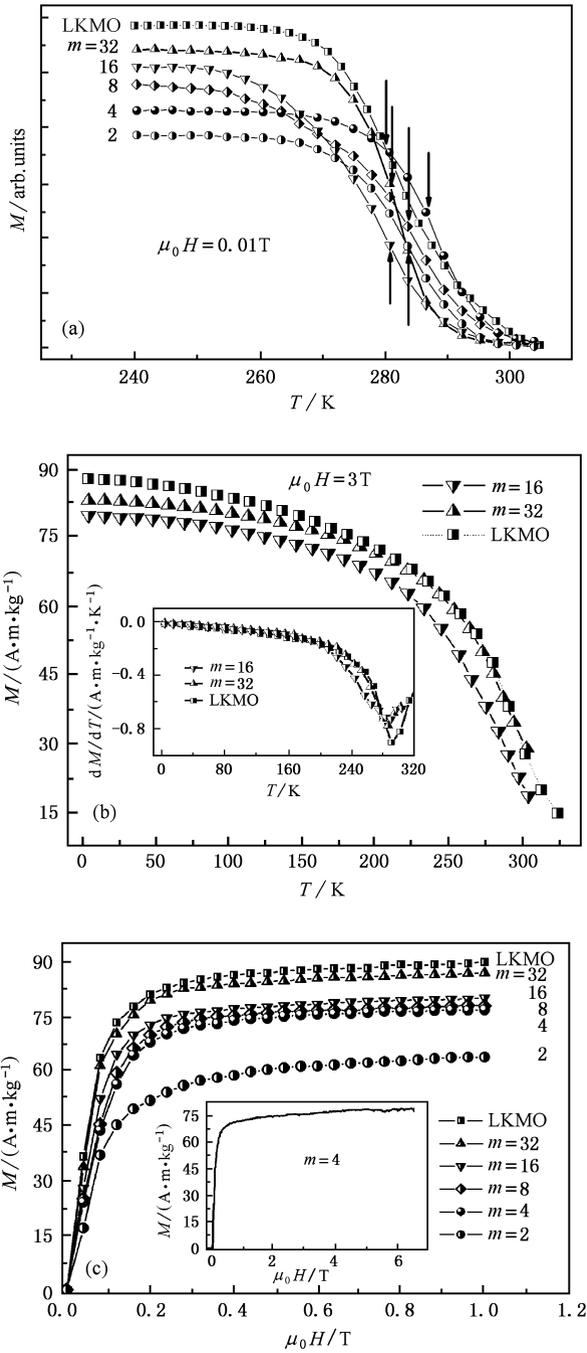


图 2 (a) LKMO/Ag 低场下的 $M-T$ 曲线(箭头所指处为各样品所对应的居里温度点)(b) LKMO/Ag 强场下的饱和磁化强度 $M-T$ 曲线(插图是 $dM/dT-T$ 曲线, 曲线的最低点对应强场下该样品的居里温度)(c) LKMO/Ag 样品低温 4.2 K 下的磁化曲线

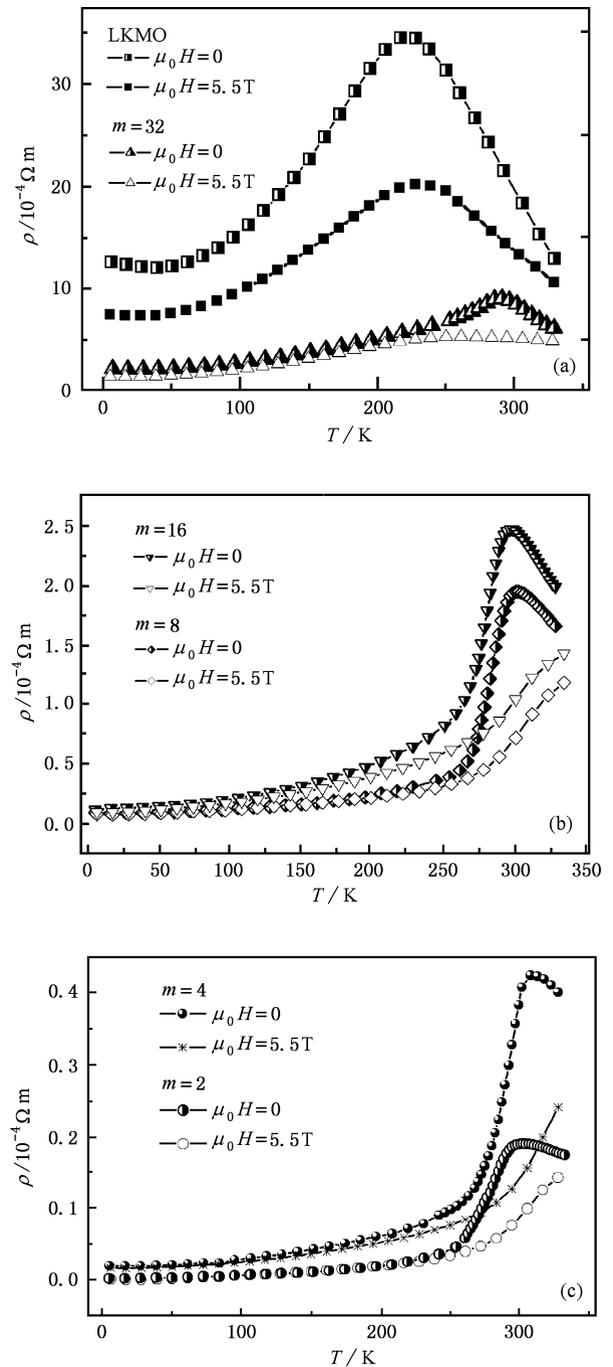


图 3 (a) LKMO 和 $m=32$ 样品在零场和 5.5 T 磁场下电阻率随温度变化的关系曲线 (b) $m=16$ 和 8 样品在零场和 5.5 T 磁场下电阻率随温度变化的关系曲线 (c) $m=4$ 和 2 样品在零场和 5.5 T 磁场下电阻率随温度变化的关系曲线

的居里温度升高(从 278 K 变为 291 K). 而含 Ag 样品($m=32, 16$)的 $M-T$ 曲线只是微微地向高温方向移动. 从图 2(b) 的插图可以看到, 在 3 T 磁场的作下, LKMO 和含 Ag 样品($m=32, 16$)的居里温度几乎是一致的都在 290 K 左右($dM/dT-T$ 曲线最低

点所对应的温度). 这个事实反映了样品中非磁性的 Ag 相在强场作用下对磁化强度随温度的变化影响是很小的, 强场主要影响磁性的 LKMO 钙钛矿相.

图 2(c) 示出了 LKMO/Ag 样品在低温 4.2 K 情况下的磁化曲线. 可以看出, 当磁场达到 0.5 T 时,

磁化强度已经达到饱和磁化强度的 95% 以上. 在磁场继续增大的过程中, 磁化强度也继续增大而趋近饱和. 这些变化过程和下面要介绍的电阻率在低温下随磁场的变化趋势基本一致. 另外, 也可以看到, 由于非磁性 Ag 相的影响, 随 Ag 含量的增加, 样品单位质量的饱和磁化强度逐渐下降.

图 3(a)(b)和(c)是 LKMO/Ag 样品在零场和 5.5 T 磁场作用下的电阻率随温度变化的关系曲线. 随温度的下降, 零场电阻率曲线呈现出绝缘体-金属转变. 转变点的峰值对应着转变温度 T_p . 从图中可以得出, 对 LKMO 和 $m = 32, 16, 8, 4, 2$ 样品, 转变温度 T_p 分别为 230, 289, 298, 301, 309 和 304 K. 对比居里温度, 可以看到, 纯 LKMO 样品的转变温度 (230 K) 低于居里温度 (278 K). 这一点和其他文献 [22] 的报道相同. 但含金属 Ag 相的样品的转变温度都略高于居里温度 (约 > 10 K). 可见, Ag_2O 加入 LKMO 在烧结过程中分解放出氧气, 形成氧气气氛烧结对 LKMO 晶体的性质有了很大的影响. 从图 3(a)(b)和(c)中还能看到, 随 Ag 含量的增大, 样品的电阻率大幅度下降. 对 $m = 2$ 的样品, 其电阻率大约只有纯 LKMO 样品的 1/100. 一个显而易见的

解释是含 Ag 样品中的金属 Ag 为电子的输运提供了一条额外的通道. 随外磁场 (5.5 T) 的加入电阻率曲线的峰值向高温方向移动, 同时电阻率峰值减小 (仅对 LKMO 和 $m = 32$ 的样品而言; 其他含 Ag 相的样品强磁场下的电阻率峰值已经在我们的测量范围以外, 图中未观测到). 在居里温度附近出现较大的庞磁电阻.

图 4 是 LKMO/Ag 样品升温的 DSC 曲线. 样品的升温速率是 10 K/min. 可以看到在曲线上有一个吸热峰, 这一结果说明在升温过程中存在一级相变. 这个一级相变就是金属-绝缘体转变, 和电阻率曲线图上转变峰所对应的温度一致. 但 DSC 曲线上峰所对应的温度和金属-绝缘体转变峰所对应的温度有一定的差异, 前者所对应的温度偏低, 具体的原因还需深入探讨.

强场磁电阻随温度的变化关系如图 5 所示. 在强磁场 5.5 T 的作用下, 室温 300 K 左右时, 几乎所有含 Ag 样品的庞磁电阻都在 60% 左右. 最大的磁电阻出现在 $m = 8$ 样品中, 最大值约为 67%. 在 265 K 以上的温度区间, 含 Ag 样品的磁电阻比纯 LKMO 样品的磁电阻大大增加. 但 265 K 以下的区域, 纯

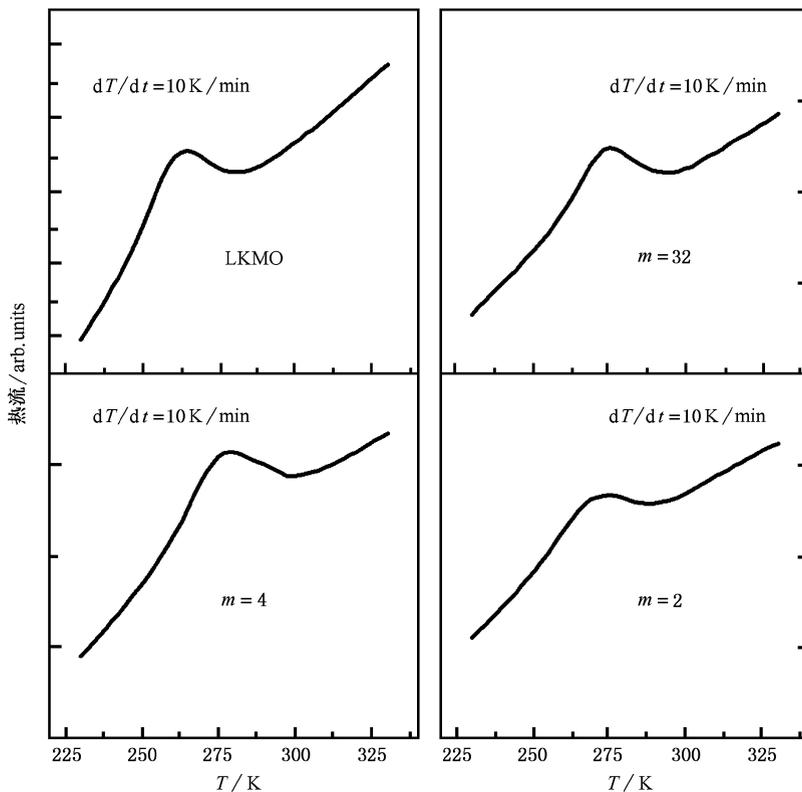


图 4 $m = 16$ 和 8 样品在零场和 5.5 T 磁场下电阻率随温度变化的关系曲线

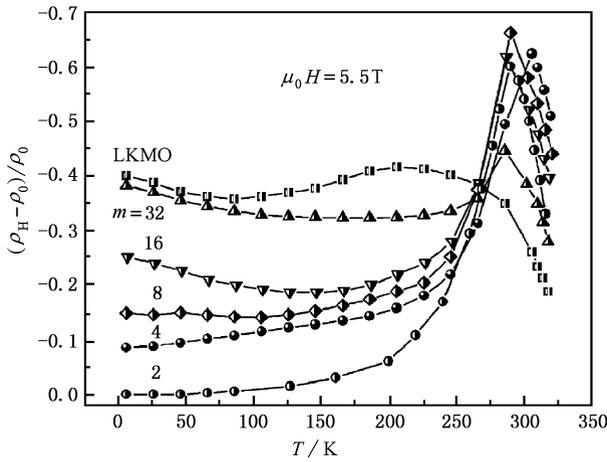


图 5 LKMO/Ag 样品的强场磁电阻随温度的变化曲线

LKMO 样品比 LKMO/Ag 样品的磁电阻要大;从图 5 还可以看到,对 LKMO, $m = 32$ 和 16 的样品,从 4.2 K 起,高场磁电阻随温度的增加而微微下降,然后随温度的增加而增加,在居里温度附近达到极大值,接着随温度的增加而下降;对富含 Ag 的样品($m = 8, 4$ 和 2),从低温 4.2 K 起,高场磁电阻随温度的增加而增加,在居里温度附近达到极大值,然后随温度的增加而下降. 还有一个重要的特征是,在温度低于 265 K 时,除 $m = 2$ 外的其他样品的磁电阻随着温度改变,磁电阻数值变化较小,也就是说样品的磁电阻效应具有较好的温度稳定性;并且样品的磁电阻(除 $m = 2$ 外)都有相当大的数值. 室温(300 K)下,归一化的电阻率随磁场的变化曲线如图 6(a) 所示. 除 $m = 2$ 样品外,磁电阻比率($\frac{\rho_H}{\rho_0} - 1$)的绝对值随 Ag 含量的增大而增大. 含 Ag 样品在室温条件下,可以产生相当大的增强磁电阻效应. 例如,在 1 T 磁场下,纯 LKMO 样品的磁电阻约为 8% 左右,而 $m = 4$ 样品的磁电阻值却可以高达 66%;在相对较低的磁场(0.5 T)下,纯 LKMO 样品的磁电阻约为 6% 左右,而 $m = 4$ 样品的磁电阻值高达 32%. 为了进一步探索金属 Ag 的加入对磁电阻效应产生何种作用,我们还做了改变温度烧结的试验. 图 6(b) 所示的是

LKMO 粉末按摩尔比率加入 $\frac{1}{m} \text{Ag}_2\text{O}$ (m 的意义与前相同),压成块材,1000 °C 烧结后的样品(记为 LKMO/Ag1000),在室温(300 K)下测得的归一化的电阻率随磁场的变化曲线. 从图 6b 可以看到,1000 °C 下烧结的样品的磁电阻效应和 1200 °C 下烧结的

对应样品的磁电阻效应相比要小得多,而且 Ag 的加入没有明显地改善磁电阻效应, $m = 8, 16$ 在 1000 °C 下烧结样品的磁电阻比纯的 LKMO1000 还要小. 我们认为,在不同的温度烧结情况下,同一种样品的磁电阻性质有极大的不同,一个可能的原因是由于烧结温度的不同,K 离子的流失从而造成 A 位离子的缺位情况也是不同的,从而对磁电阻产生较大的影响. 由于缺乏其他的试验数据,且本文主要讨论同一烧结温度下(1200 °C)含 Ag 样品的磁电阻性质的变化情况,故就此问题就不再展开讨论. 总的来看,由于金属 Ag 相的加入,1200 °C 下烧结的 LKMO/Ag 系列样品中室温下的低场磁电阻效应得到了极大的优化,这也为这类材料的实际应用提供了思路 and 选择.

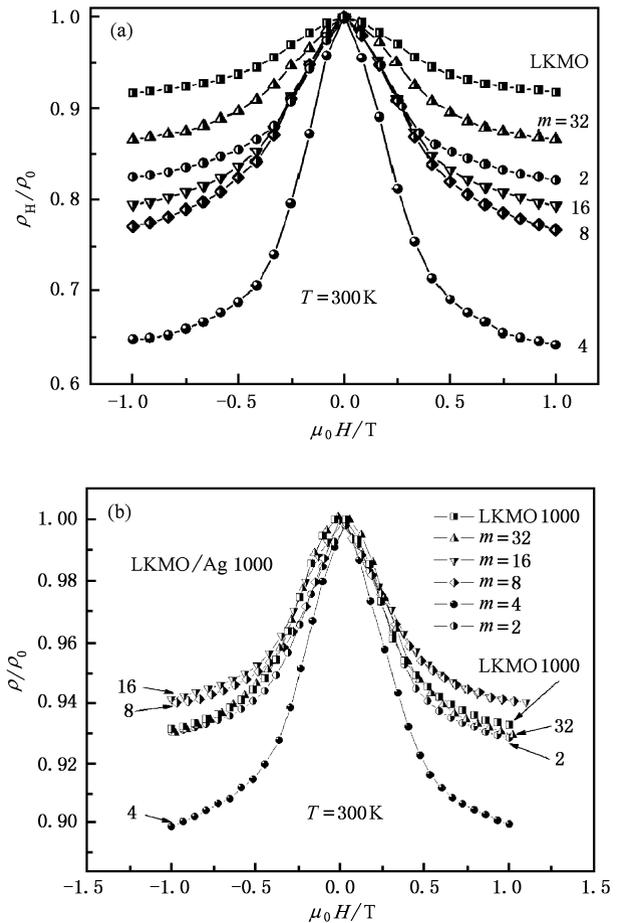


图 6 (a) 300 K, LKMO/Ag 系列样品归一化电阻率随磁场的变化曲线 (b) 300 K, LKMO/Ag1000 系列样品的归一化电阻率随磁场的变化曲线

在低温情况下, LKMO/Ag 样品的磁电阻效应随金属 Ag 含量的变化趋势和室温的情况完全相反.

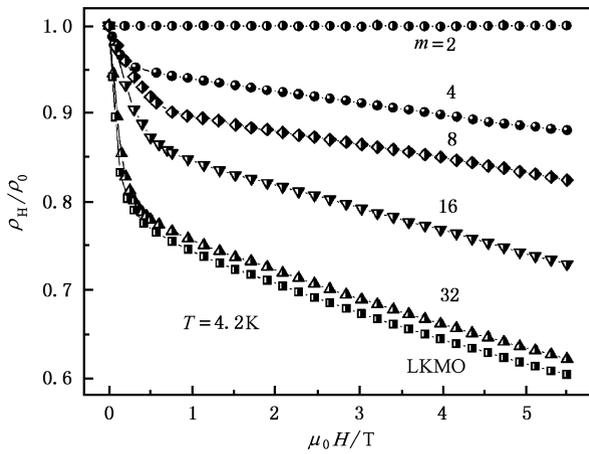


图7 4.2 K LKMO/Ag 样品归一化的电阻率随磁场变化曲线

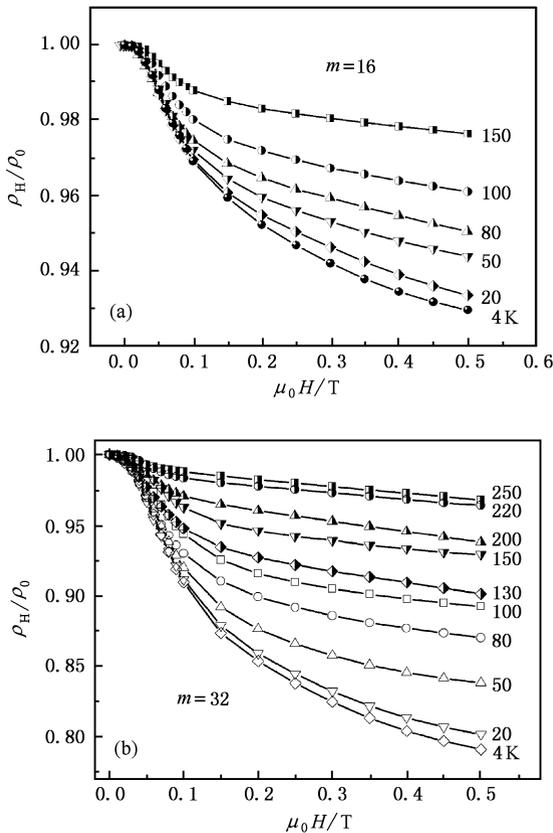


图8 (a) $m = 16$ 样品在不同的温度下归一化电阻率随磁场的变化曲线 (b) $m = 32$ 样品在不同的温度下归一化电阻率随磁场的变化曲线

图7是低温4.2 K下,归一化的电阻率随磁场的变化曲线.从图7中可以看出:在低温、相同磁场条件下,磁电阻随Ag含量的增加而降低,和室温的情况完全相反.对 $m = 2$ 的样品,低温下几乎测不到电阻率随磁场的变化.图7中电阻率曲线变化的另外一个特征是在低场下(< 0.5 T),电阻率随磁场的增

加而快速下降;当磁场超过0.5 T时,电阻率随磁场增加而下降的速率明显降低.反映在曲线上是电阻率曲线在低场和高场下以不同的斜率随磁场变化而变化.这个特征和多晶La-Sr-Mn-O中观测到的磁场中电子的输运行为极为相似^[2].高场和低场下不同的磁输运行为反应了在样品中电子自旋对磁场的不同响应过程.低场下,分布在晶界两相交界面及磁畴中无序的电子自旋很快随磁场增加而排列整齐,反应在图上的是电阻率曲线随磁场的增加而快速下降,此时的磁电阻主要来自非本征磁电阻的贡献.当磁场大于0.5 T,磁化趋近饱和时,电阻率随磁场的下降主要来源于磁场对钙钛矿晶粒内双交换及 e_g 电子退局域化的作用.图8(a)和(b)是 $m = 16$, $m = 32$ 样品在低磁场、不同温度下归一化电阻率随磁场变化的放大曲线.从图8(a)和(b)可以看到,在低温区域($T < 265$ K),同一个样品的低场(< 0.5 T)磁电阻随温度的增加而下降.

4. 讨 论

Ziese等人^[26]研究了从 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 同一个靶材在不同的衬底长出的3个外延膜和一个多晶膜的磁电阻效应和磁粘滞系数并总结出低场下大的磁电阻归因于畴壁散射.我们根据图1中的X射线衍射峰的半高宽和Scherrer公式,得出LKMO晶粒大小约为20—30 nm,这比单畴颗粒的临界尺寸还要小.在这么小的单畴颗粒组成的系统中,畴壁散射的影响可以不计.在Co-Ag, Co-Cu颗粒膜系统中有一种磁电阻理论^[27],磁电阻的起因是在磁性Co粒子和非磁性的金属基体(Ag或Cu)交界处传导电子的自旋相关散射.根据这些理论和我们样品的微结构特征,在LKMO/Ag系列样品中的磁电阻可以分为本征磁电阻 MR_{in} (intrinsic magnetoresistance)和非本征磁电阻 MR_{ex} (extrinsic magnetoresistance)两部分.非本征磁电阻 MR_{ex} 来源于自旋相关散射(SDS)^[1,27,28]、自旋极化隧穿(SPT)^[3,29].而本征磁电阻 MR_{in} 主要来源于晶粒内部Mn-O-Mn之间的双交换作用和电子-声子相互作用.整个样品的磁电阻效应是以上这3种效应在不同温度区间贡献的总和.我们把LKMO/Ag样品中的电阻率简单地写为

$$\rho = \rho_{\text{in}} + \rho_{\text{ex}} = \rho_{\text{in}} + \rho_{\text{SPT}} + \rho_{\text{SDS}}, \quad (1)$$

ρ_{ex} 、 ρ_{in} 分别代表非本征电阻率和本征电阻率, ρ_{SDS} 和 ρ_{SPT} 代表非本征电阻率中自旋相关散射效应、自旋

极化隧穿效应的贡献. 与此对应 LKMO/Ag 样品中的磁电阻率 $R_{MR} = (\rho_H - \rho_0) / \rho_0$ 可以分为

$$\begin{aligned} R_{MR} &= R_{MR-in} + R_{MR-ex} \\ &= R_{MR-in} + R_{MR-SPT} + R_{MR-SDS}, \quad (2) \end{aligned}$$

其中 R_{MR-in} 和 R_{MR-ex} 分别代表来本征磁电阻比率和非本征磁电阻比率, R_{MR-SDS} 和 R_{MR-SPT} 代表非本征磁电阻比率中自旋相关散射效应、自旋极化隧穿效应的贡献. 根据文献[3, 29], 在高温区间, 自旋极化隧穿效应很小. 高温时, 把磁电阻比率公式简化为

$$\begin{aligned} R_{MR} &= \frac{\rho_H - \rho_0}{\rho_0} = \frac{\Delta\rho_{in} + \Delta\rho_{ex}}{\rho_0} \\ &= \frac{\Delta\rho_{in} + \Delta\rho_{SDS} + \Delta\rho_{SPT}}{\rho_0} \\ &\approx \frac{\Delta\rho_{in} + \Delta\rho_{SDS}}{\rho_0} \\ &= R_{MR-in} + R_{MR-SDS}. \quad (3) \end{aligned}$$

可见在室温下、居里温度附近, 样品的磁电阻效应主要来源于本征磁电阻 R_{MR-in} 和非本征磁电阻中的自旋相关散射效应 R_{MR-SDS} . 由于金属 Ag 存在于晶界中, 作为一个非磁性的散射中心, 导致电子自旋无序度增加, 增大了自旋相关散射效应. 所以, 室温下、居里温度附近, 在低场时 ($\mu_0 H < 0.5$ T), 样品的磁电阻随金属 Ag 含量增大而增大, 如图 6(a) 所示. 随着磁场的增大, 磁化趋近饱和过程, 晶界处无序的自旋逐渐排列整齐, 自旋相关散射磁电阻比率 R_{MR-SDS} 也逐渐趋于饱和. 故高温、强场的情况下, 磁电阻主要是由饱和的 R_{MR-SDS} 和本征磁电阻比率 R_{MR-in} 构成. 借此可以解释在 5.5 T 磁场下、居里温度附近, 富含 Ag 相样品的磁电阻基本一致 (约在 60% 左右, 如图 5 所示). 同时, 由于金属 Ag 存在于晶界中, 电流多了一条传输的通路, 可以极大地降低材料的电阻率 ρ_0 , 由 (3) 式可见富含 Ag 相样品比纯 LKMO 样品的磁电阻大大增强 (LKMO 样品在居里温度附近的磁电阻为 40% 左右, 而富含 Ag 相样品的磁电阻约在 60% 左右).

双交换理论和许多关于钙钛矿锰氧化物, 特别是单晶样品的磁电阻实验数据都表明: 在居里温度以下, 本征磁电阻很小. 从我们的实验结果来看, 在居里温度以下一直到低温 4.2 K 区间, LKMO/Ag 样品 ($m = 2$ 的样品除外) 的磁电阻都具有相当大的数值. 既然本征磁电阻很小, 那么在这个温度区间内的磁电阻主要由自旋相关散射和自旋极化隧穿效应构成. 按照自旋极化隧穿理论^[4-27], 其磁电阻的大小和势垒的高度和宽度紧密相关. 在磁性钙钛矿 LKMO 相之间存在金属 Ag 相, Ag 相为电子的输运提供了一条通路, 大大降低了磁性钙钛矿颗粒之间的势垒高度和宽度. 这一点也可从样品的电阻率数据得出: 纯 LKMO 在 4.2 K 时的剩余电阻率 ρ_0 为 $12.6 \times 10^{-4} \Omega \cdot m$, 但 $m = 2$ 样品的剩余电阻率 ρ_0 为 $2.3 \times 10^{-7} \Omega \cdot m$. 所以, 随金属 Ag 含量的增加, 降低了钙钛矿颗粒之间的势垒高度和宽度, 样品的自旋极化隧穿磁电阻效应也随之减小, 如图 7 所示; 另外从图 7 中还可以看到, 对 $m = 2$ 样品, 由于 Ag 含量太多, 已经超过渗流域值, 低温下几乎看不到磁电阻. 只有在居里温度附近才能看到比较明显的磁电阻效应.

5. 结 论

我们在非均匀 LKMO/Ag 系统中, 观测到不同温度区间内不同的电子输运性质. 金属 Ag 相的加入, 可以极大地增强低场下的室温磁电阻效应, 但减弱了低温区间内 (4.2—265 K) 的磁电阻效应. 对 $m = 4$ 的样品, 室温 (300 K) 0.5 T 磁场下的磁电阻可以高达 32%, 5.5 T 的磁场下, 磁电阻可以到达 64%, 这些效应比纯 LKMO 多晶样品大大增强. 我们主要用了金属 Ag 相的加入, 极大减小了样品的零场下的电阻率, 减弱了磁性 LKMO 颗粒之间势垒的高度和宽度, 以及本征磁电阻和非本征磁电阻在不同温度区间的相对贡献来定性解释了这些现象.

[1] Gupta A, Gong G Q, Xiao G, Duncombe P R, Lecoer P, Trouilloud P, Wang Y Y, Dravid V P, Sun J Z 1996 *Phys. Rev. B* **54** R15629
 [2] Hwang H Y, Cheong S W, Ong N P, Batlogg B 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 2041
 [3] Li X W, Gupta A, Xiao G, Gong G Q 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 1124

[4] Lee S, Hwang H Y, Shraiman B I, Ratcliff W D, Cheong S W 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 4508
 [5] Coey J M D, 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 5576
 [6] Gao P, Zheng Z M, Xin D Y 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2128 (in Chinese) [高 鹏、郑之明、邢定钰 2002 物理学报 **51** 2128]
 [7] Wang X J, Sui Y, Qian Z N, Cheng J G, Liu Z G, Li Y, Su W H, Ong C K 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 907 (in Chinese) [王先杰、

- 隋 郁, 千正男, 程金光, 刘志国, 李 妍, 苏文辉, Ong C K
2005 物理学报 **54** 907]
- [8] Kou Z Q, Dai N L, Ma X, Li Q A, Cheng Z H 2005 *Chin. Phys.* **14** 1653
- [9] Steenbeck K, Eick T, Kirsch K, O'Donnell K, Steinbeib E 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 968
- [10] Walter T, Dorr K, Muller K-H, Holzapfel B, Eckert D, Wolf M, Schlafer D, Schultz L 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 2218
- [11] Andres A, Garcia-Hernandez M, Martinez J L, Prieto C 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 3884
- [12] Hueso L E, Rivas J, Rivadulla F, Lopez-Quintela M A 1999 *J. Appl. Phys. Lett.* **86** 3881
- [13] Balcells L I, Carrillo A E, Martinez B, Fontcuberta J 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 4014
- [14] Petrov D K, Krusin-Elbaum L, Sun J Z, Field C, Duncombe P R 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 995
- [15] Liu J-M, Li J, Huang Q, You L P, Wang S J, Ong C K, Wu Z C, Liu Z G 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 2286
- [16] Moshfegh Z, Wang Y Q, Sun Y Y, Mesarwi A, Hor P H, Ignatiev A 1993 *Physica C* **218** 396
- [17] Kalyanaraman R, Oktyabrsky S, Narayan J 1999 *J. Appl. Phys. Lett.* **85** 6636
- [18] Shreekala R, Rajeswari M, Pai S P, Lland S E, Smolyaninova V, Ghosh K, Ogale S B, Bhagat S M, Downes M J, Greene R L, Ramesh R, Venkatesan T 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 2857
- [19] Tao T, Cao Q Q, Gu K M, Xu H Y, Zhang S Y, Du Y W 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 723
- [20] Zhong W, Chen W, Ding W P, Zhang N, Hu A, Du Y W, Yan Q J 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **195** 112
- [21] Joly V L J, Joy P A, Date S K 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 3747
- [22] Manoharan S S, Kumar D, Hegde M S, Satyalakshmi K M, Prasad V, Subramanyam S V 1995 *J. Solid State Chem.* **117** 420
- [23] Gupta A, McGuire T R, Duncombe P R, Rupp M, Sun J Z, Gallagher W J, Xiao G 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 3494
- [24] Joseph J V L, 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 3747
- [25] Boudaya C, Laroussi L, Dhahri E, Joubert J C, Cheikhrouhou A 1998 *J. Phys. : Condens. Matter* **10** 7485
- [26] Ziese M, Hyedon G, Hohne R, Esquinaz P, Dienelt J 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1481
- [27] Gross R, Alff L, Buechner B, Freitag B H, Hoefener C, Klein J, Lu Y F, Mader W, Philipp J B, Rao M S R, Reutler P, Ritter S, Thienhaus S, Uhlenbruck S, Wiedenhorst B 2000 *J. Magn. Magn. Mater.* **211** 150
- [28] Chien C L, Xiao J Q, Jiang J S 1993 *J. Appl. Phys.* **79** 5309
- [29] Inoue J, Maekawa S, 1996 *Phys. Rev. B* **53** R11927

The magnetic and electronic transport properties in Ag-doped La-K-Mn-O inhomogeneous system

Wu Jian¹† Zhang Shi-Yuan²

¹ College of Sciences, Hohai University, Nanjing 210098, China)

² National Laboratory of Solid State Microstructures and Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

(Received 25 January 2006 ; revised manuscript received 26 March 2006)

Abstract

Microstructure, magnetic and electronic transport properties of the inhomogeneous system $1/m \text{ Ag}_2\text{O-La}_{0.833}\text{K}_{0.167}\text{MnO}_3$ ($1/m$ is molar ratio, $m = 32, 16, 8, 4$, and 2) have been studied. X-ray diffraction patterns show that all the samples are the two-phase composite and consist of a magnetic $\text{La}_{0.833}\text{K}_{0.167}\text{MnO}_3$ (LKMO) perovskite phase and a nonmagnetic metal Ag phase. The room temperature magnetoresistance (MR) effect is enhanced significantly due to the addition of Ag. For the $m = 4$ sample the MR ratio increases from 10% of the pure compound LKMO to 32% under a lower field of 0.5 T and from $\sim 35\%$ of LKMO to 64% under a higher field of 5.5 T at the temperature of 300 K. In the low temperature range from 4.2 K to 265 K, however, the MR ratio of the Ag-doped sample decreases with increasing the Ag content in the samples. The effect is discussed qualitatively by use of the relative change among the intrinsic MR effect and the extrinsic MR effect including the spin-polarized-tunneling and spin-dependent scattering effects at grain boundaries.

Keywords : spin-polarized tunneling, spin-dependent scattering, low-field magnetoresistance, high-field magnetoresistance

PACC : 7530V, 7570C, 7550G, 7550S

† E-mail : jwuwnl@yahoo.com