

# Ag<sub>2+δ</sub>Te 薄膜的低温纵向磁电阻效应

梁冰青 王荫君 陈 熹

(中国科学院物理研究所与凝聚态物理中心磁学国家重点实验室, 北京 100080)

(1999 年 6 月 10 日收到; 1999 年 7 月 22 日收到修改稿)

采用高真空电子束蒸发镀膜方法制备了不同结构的 Ag-Te 多层膜, 通过热处理得到了不同自掺杂浓度  $\delta$  的非磁性 Ag<sub>2+δ</sub>Te 薄膜. Ag<sub>2.1</sub>Te 薄膜在低温下有很大的负纵向磁电阻, 并且出现电阻率和磁电阻的多重峰现象. 这可能与 Ag 的掺杂浓度  $\delta$  和测量温度有很大关系, 用掺杂的能带理论解释了有关的多重峰现象.

PACC: 7220M; 6110

## 1 引 言

目前, 人们对巨磁电阻的研究主要集中在磁性材料和钙钛矿型氧化物等方面, 对非磁性材料磁输运特性的研究工作则较少. 1997 年 Xu 等<sup>[1]</sup>在自掺杂的非磁性材料 Ag<sub>2+δ</sub>Te 和 Ag<sub>2+δ</sub>Se 的块材上发现了巨大的横向磁电阻效应, 在磁场为  $3.2 \times 10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$  时的室温磁电阻为 120%; 在温度为 4.5 K, 磁场为  $4.8 \times 10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$  时, 磁电阻为 400%. Chuprakov 等<sup>[2]</sup>在有取向的 Ag<sub>1.73</sub>Te 薄膜上也观察到巨大的横向磁电阻效应, 当磁场为  $4.0 \times 10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$  时得到室温磁电阻值为 60%; 而温度为 90 K 时磁电阻达到峰值, 为 390%. 但在没有取向的薄膜中, 磁电阻值在 10—100 K 范围内几乎与温度无关, 这与块材的结果有很大的不同. 这种差异可能是由于载流子密度、薄膜的微结构等原因所致. 但是这些都不能很好地解释 Ag<sub>2+δ</sub>Te 的磁电阻产生机制.

本文通过测量低温下不同掺杂浓度  $\delta$  的 Ag<sub>2+δ</sub>Te 薄膜的纵向磁输运特性, 对薄膜中出现的负磁电阻, 以及电阻率和磁电阻的多重峰现象进行了分析和解释.

## 2 实验方法

实验所用薄膜样品采用高真空电子束蒸发镀膜方法制备. 本底真空度约为  $10^{-4} \text{ Pa}$ , Ag 和 Te 的纯度均为 99.99%. 样品采用石英玻璃为基底, 在基底上交替蒸镀 Ag 和 Te, 制备 Ag-Te 多层膜. 多层膜有 5 层, 结构为基底/Ag(40 nm)/Te(50 nm)/Ag( $d_{\text{Ag}}$ )/Te(20 nm)/Ag(20 nm), 其中  $d_{\text{Ag}}$  表示不同自掺杂 Ag 的 Ag-Te 多层膜中 Ag 层的厚度. 各层的厚度由石英晶体振荡器控制, 蒸发速率控制在 0.05 nm/s 左右. 再将制备好的 Ag-Te 多层膜放在真空度为  $10^{-4} \text{ Pa}$  以及温度为 430 °C 的环境中进行 3 h 的热处理, 得到不同掺杂浓度  $\delta$  的 Ag<sub>2+δ</sub>Te 薄膜. 实验采用电感耦合等离子体发射光谱仪监测其成分,  $\delta$  分别为

0.10, 0.25, 0.40 薄膜的晶体结构利用 X 射线衍射仪进行分析.

用标准的直流四探针引线法测量低温纵向磁电阻 (LMR), LMR 定义为  $[\rho(H) - \rho(0)]/\rho(0)$ . 外加磁场平行于膜面和通过薄膜样品的电流, 所加的最大磁场为  $5.2 \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$ .

### 3 结果及讨论

图 1 为磁场  $H=0$  和  $5.6 \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$  时  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜的纵向电阻率  $\rho$  与温度的关系. 我们感兴趣的是磁场  $H=5.2 \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$  的曲线, 在温度  $T < 100 \text{ K}$  时,  $\rho$  具有多重波动峰. 当  $H=0$  时, 仅在温度为  $70 \text{ K}$  时出现一个峰. 为了更好地了解多重峰现象, 测量了该样品  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  在所选温度下的 LMR, 如图 2 所示. 由图 2 可知, 在温度  $T=1.5 \text{ K}$  的曲线上出现磁电阻多重峰现象. 因此,  $\rho$  和 LMR 中出现的多重峰现象与测量温度有关.

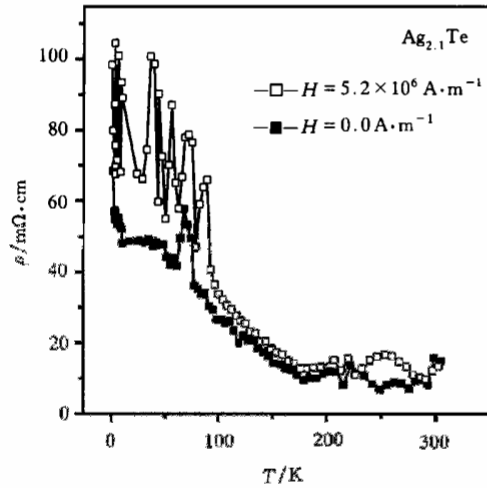


图 1 磁场为  $H=0$  和  $5.2 \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$ ,  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜的纵向电阻率与温度的关系

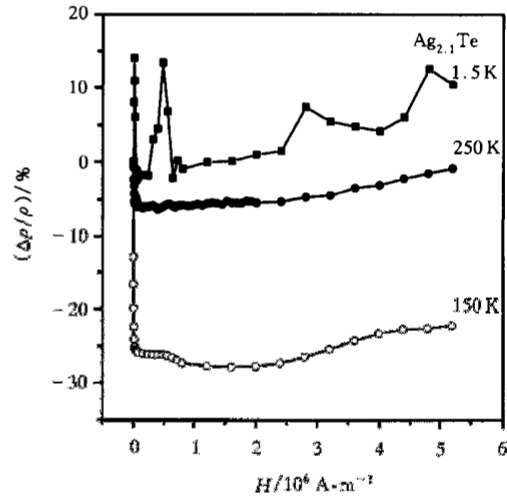


图 2  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜在温度为 1.5, 150, 250 K 时的 LMR 与磁场的关系

图 3 和图 4 分别为掺杂浓度  $\delta$  为 0.25 和 0.40 的  $\text{Ag}_{2.25}\text{Te}$  和  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜, 对应温度为 1.5, 150, 250 K 时 LMR 与磁场的关系曲线. 在掺杂浓度  $\delta$  较大的  $\text{Ag}_{2.25}\text{Te}$  和  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜中, 都没有发现 LMR 的多重峰现象. 因此, LMR 的多重峰现象同时也与  $\delta$  有很大关系. 此外, 不同  $\delta$  的 LMR 有很大的不同. 例如,  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜在 1.5 K 时得到正 LMR, 但在  $T=150$  和  $250 \text{ K}$  时却得到负 LMR;  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜在  $T=1.5 \text{ K}$  时得到负 LMR; 而  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜在高场下观测到正 LMR. 同时, 一个显著的特点是在很低的磁场 ( $H < 1.6 \times 10^5 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$ ) 下, 负 LMR 很快就达到最大值, 如  $H = 1.6 \times 10^5 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$  时在  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜中得到最大负磁电阻值为  $-27\%$ . 从图 4 还可看到,  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜在  $T=1.5 \text{ K}$  和磁场约为  $4.0 \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-1}$  时发生从负 LMR 到正 LMR 的转变. 这表明  $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  薄膜中复杂的 LMR 现象与纵向电阻率  $\rho$  和 LMR 的多重峰现象一样, 也与 Ag 的掺杂浓

度  $\delta$  和测量温度有关.

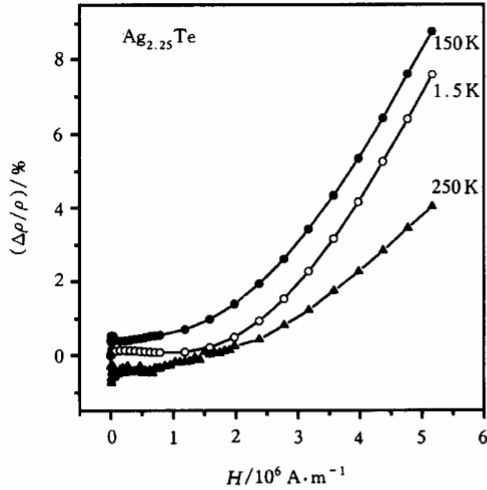


图3  $\text{Ag}_{2.25}\text{Te}$  薄膜在温度为 1.5, 150, 250 K 时的 LMR 与磁场的关系

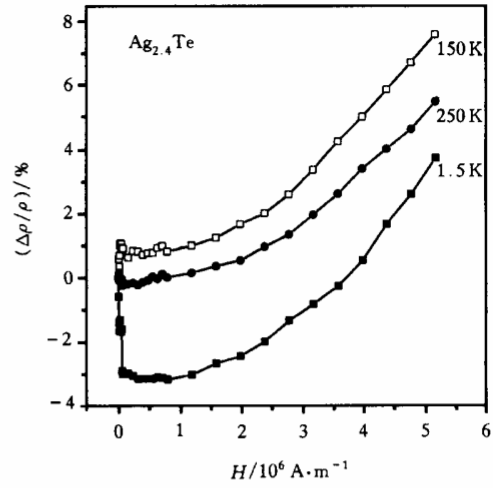


图4  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜在温度为 1.5, 150, 250 K 时的 LMR 与磁场的关系

通过以上分析可知, 负 LMR 以及多重峰现象与  $\delta$  有关, 而  $\delta$  又对薄膜的晶体结构和取向有很大影响. 图 5 为不同  $\delta$  的  $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  薄膜的 X 射线衍射谱.  $\delta$  小的  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜中, 同时存在很强的单斜相<sup>[3,4]</sup>  $\beta\text{-Ag}_2\text{Te}$  的衍射峰(004)和(103). 在  $\delta$  较大的  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜中, 在 X 射线衍射谱上有很强的衍射峰(004)和 $(\bar{1}21)$ , 而衍射峰(103)很弱, 基本上可以忽略不计. 然而, 在  $\delta$  介于两者之间的  $\text{Ag}_{2.25}\text{Te}$  薄膜的衍射谱上, 出现的衍射峰正好与  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  的相反, 这里衍射峰(103)很强, 而衍射峰(004)和 $(\bar{1}21)$ 基本上可以忽略不计. 这种复杂晶体结构和取向可能是导致出现异常磁电阻现象的主要原因.

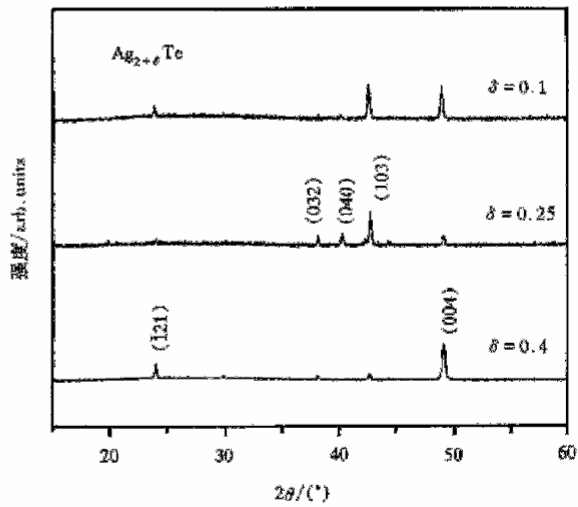


图5 不同掺杂浓度的  $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  薄膜的 X 射线衍射谱

在很多有巨磁电阻的材料中, 取向和无取向的薄膜在低温下的磁电阻有很大的不同<sup>[5,6]</sup>. 本实验中, 出现了  $\rho$  和 LMR 的多重峰以及负 LMR 的现象. 由于不同的  $\delta$  导致的  $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  薄膜中复杂晶体结构和取向与  $\text{Ag}_{1.73}\text{Te}$  薄膜<sup>[2]</sup> 所具取向不相同, 因此, 我们得到的纵向磁输运特性就完全不同于  $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  块材<sup>[1]</sup> 和  $\text{Ag}_{1.73}\text{Te}$  薄膜<sup>[2]</sup> 的横向磁输运特性. 在  $\text{Ag}_{1.73}\text{Te}$  薄膜和  $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  块材中仅得到正磁电阻, 并且在取向为

( $\bar{1}21$ )的  $\text{Ag}_{1.73}\text{Te}$  薄膜,在温度为 90 K 和磁场为  $4.0 \times 10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$  时出现磁电阻为 390% 的一个峰值.此外,电阻率和磁电阻的振荡多出现在具有超晶格结构的多层膜中,例如在超晶格的 Ni/Co 多层膜<sup>[7]</sup>中出现振荡的电阻率和磁电阻,这与 Co 和 Ni 厚度有关.但是,这些理论和实验并不能很好地解释实验中出现的异常磁电阻现象.

Ag-Te 是一种窄能带的自掺杂 n 型半导体材料<sup>[8]</sup>.图 1 中在温度大于 100 K,薄膜的  $\rho$  随温度变化呈单调下降也正说明这一点.在半导体中,当掺杂浓度增加,有可能发生从非金属态到金属态的转变,这是由于掺杂电子波函数(杂质能带)重叠导致电子非局域化的结果.我们用 Toyozawa 模型<sup>[9]</sup>解释负磁电阻和磁电阻的多重峰现象.根据 Toyozawa 提出的负磁电阻理论,他认为杂质能带包括起源于定域电子的激发态和基态的几个子带,由于激发态波函数区域大,激发态子带的迁移率高于基态的迁移率,因此,可以推测观察到的负磁电阻效应来源于线性塞曼效应引起的激发能级的移动,导致电子转移到高迁移率的子带而造成的.根据这个模型,由于温度和塞曼效应的作用,在  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜中存在的子带导致 LMR 在低温下出现多重峰,如图 1 中磁场  $H = 5.2 \times 10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$  的  $\rho$  与温度的关系曲线上,以及图 2 中温度  $T = 1.5 \text{ K}$  的 LMR 与磁场的关系曲线上出现波动的多重峰,伴随着电阻率发生很大的变化.但在  $\text{Ag}_{2.25}\text{Te}$  和  $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜中,由于掺杂浓度  $\delta$  较大而导致能带的重叠,使电子的定域范围增大,因此在 LMR 效应中有可能不出现多重峰现象,如图 3 和图 4 所示.

任何一个磁电阻效应都包括正磁电阻效应和负磁电阻效应<sup>[10]</sup>.因此,测量得到磁电阻的大小和符号实际上决定于这两个效应叠加的结果. $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  在低温下产生负 LMR 效应的同时也产生正 LMR 效应,这个正 LMR 可能是电子受到洛伦兹力作用<sup>[11]</sup>而产生的.如图 4 所示, $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜在  $T = 1.5 \text{ K}$  和磁场约为  $4.0 \times 10^6 \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$  时,正和负的 LMR 叠加的结果出现了负 LMR 到正 LMR 的转变. $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  在低场下出现负 LMR 和从负 LMR 到正 LMR 的转变,这些现象同样可以在其他半导体(如  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{CoO}_3$ <sup>[12]</sup> 和 GaSb 中掺杂 Te<sup>[13]</sup>)中观测到.

## 4 结 论

$\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$  薄膜在低温下出现异常的 LMR 效应. $\text{Ag}_{2.4}\text{Te}$  薄膜在  $T = 1.5 \text{ K}$  时出现负 LMR,并随磁场强度的增大发生从负 LMR 到正 LMR 的转变. $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  薄膜在  $T = 150 \text{ K}$  时得到最大的负 LMR 值,为 -27%,并且其纵向电阻率  $\rho$  和 LMR 在低温下出现多重峰现象.通过分析可知出现的多重峰现象与 Ag 的掺杂浓度和温度有关,并用掺杂的能带理论很好地解释了多重峰现象.

- [1] R. Xu, A. Husmann, T. F. Rosenbaum *et al.*, *Nature(London)*, **390**(1997), 57.
- [2] I. S. Chuprakov, K. H. Dahmen, *Appl. Phys. Lett.*, **72**(1997), 2165.
- [3] J. Schneider, H. Schulz, *Z. Kristallogr.*, **203**(1993), 1.
- [4] T. Ohtani, K. Maruyama, K. Ohshima, *Mater. Res. Bull.*, **32**(1997), 343.
- [5] H. Y. Hwang, S. W. Cheong, N. P. Ong *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **77**(1996), 2041.

- [6] A. Gupta, G. Q. Gong *et al.*, *Phys. Rev.*, **B54**(1996), R15629.
- [7] J. M. Gallego, D. Lederman, S. Kim *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1994), 4515.
- [8] J. Schneider, H. Schulz, *Z. Kristallogr.*, **203**(1993), 1.
- [9] Y. Toyozawa, *J. Phys. Soc. Jap.*, **17**(1962), 986.
- [10] R. P. Khosla, J. R. Fischer, *Phys. Rev.*, **B2**(1970), 4084.
- [11] A. B. Pippard, *Magnetoresistance in Metals*(Cambridge University Press, Cambridge, 1989).
- [12] A. V. Samoilov, G. Beach, C. C. Fu *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **83**(1998), 6998.
- [13] C. D. Kourkoutas, P. D. Bekris, G. J. Papaioannou *et al.*, *Solid State Commun.*, **55**(1985), 881.

## LOW-TEMPERATURE LONGITUDINAL MAGNETORESISTANCE EFFECT IN $\text{Ag}_{2+\delta}\text{Te}$ THIN FILMS

LIANG BING-QING WANG YIN-JUN CHEN XI

(State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics and Center for Condensed Matter Physics,  
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

(Received 10 June 1999; revised manuscript received 22 July 1999)

### ABSTRACT

Abnormal longitudinal magnetoresistance (LMR) in self-doped silver telluride films at low temperature is investigated. In the  $\text{Ag}_{2.1}\text{Te}$  films, we observe the large negative LMR and the multi-peaks in magnetic resistivity  $\rho$  and LMR that strongly depend on doping concentration and temperature. The abnormal MR behavior, which might result from the complex structure and texture of the films, is explained by means of Toyozawa model.

**PACC:** 7220M; 6110