

钙钛矿锰氧化物  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 磁性和输运性质研究

王志国 向俊尤 徐宝 万素磊 鲁毅 张雪峰 赵建军

Magnetic and transport properties of perovskite manganites  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) polycrystalline samples

Wang Zhi-Guo Xiang Jun-You Xu Bao Wan Su-Lei Lu Yi Zhang Xue-Feng Zhao Jian-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 067501 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.067501

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.067501>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I6>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

双层钙钛矿  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x=0,0.05$ ) 的相分离

Phase separation of bilayered perovskite manganite  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x=0, 0.05$ )

物理学报.2014, 63(15): 157501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.157501>

钙钛矿锰氧化物  $(\text{La}_{1-x}\text{Eu}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x=0, 0.15$ ) 的磁性和电性研究

Magnetic and transport properties of layered perovskite manganites  $(\text{La}_{1-x}\text{Eu}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x=0, 0.15$ )

物理学报.2014, 63(14): 147503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.147503>

量子顺电  $\text{EuTiO}_3$  材料基态磁性的第一性原理研究

First-principles study of magnetic ground state of quantum paraelectric  $\text{EuTiO}_3$  material

物理学报.2014, 63(8): 087502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.087502>

钙钛矿锰氧化物  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{O}_3$  的结构与磁性研究

Structure and magnetic properties of perovskite manganites  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{O}_3$

物理学报.2014, 63(8): 087503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.087503>

Dy, Co 共掺杂对  $\text{BiFeO}_3$  陶瓷磁特性和磁相变温度  $T_c$  的影响

Effects of Dy and Co co-substitution on the magnetic properties and  $T_c$  of  $\text{BiFeO}_3$  ceramics

物理学报.2013, 62(9): 097502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.097502>

# 钙钛矿锰氧化物 $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ( $x = 0, 0.025$ ) 磁性和输运性质研究\*

王志国<sup>1)</sup> 向俊尤<sup>1)</sup> 徐宝<sup>1)</sup> 万素磊<sup>1)</sup> 鲁毅<sup>1)</sup> 张雪峰<sup>2)</sup> 赵建军<sup>1)†</sup>

1) (包头师范学院物理科学与技术学院, 磁学与磁性材料重点实验室, 包头 014030)

2) (内蒙古科技大学, 内蒙古自治区白云鄂博矿多金属资源综合利用重点实验室, 包头 014010)

(2014年8月30日收到; 2014年10月23日收到修改稿)

采用传统的高温固相烧结法制备了双层钙钛矿锰氧化物  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 多晶样品. 通过X射线衍射仪研究发现样品为  $\text{Sr}_3\text{Ti}_2\text{O}_7$  型四方结构, 空间群为  $I4/mmm$ ; 磁性测量表明,  $\text{Gd}^{3+}$  掺杂后的样品  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  的三维磁有序转变温度 ( $T_{\text{C}1}^{3\text{D}}$ )、磁化强度 ( $M$ ) 均降低, 这是由于  $\text{Gd}^{3+}$  的掺杂引起晶格的畸变, 从而使得晶格常数发生改变, 减弱了铁磁耦合而导致的; 通过电子自旋共振谱测量发现, 在  $T_{\text{C}1}^{3\text{D}} < T < 300$  K 温度范围内, 两样品在顺磁的基体上均有短程的铁磁团簇存在, 出现了相分离现象. 电性测量表明: 两样品分别在  $T_{\text{C}1}^{3\text{D}}$  ( $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  样品的三维磁有序转变温度,  $T_{\text{C}0}^{3\text{D}} < T < 300$  K 温度范围内均以三维变程跳跃的方式导电, 分析得出  $\text{Gd}^{3+}$  的掺杂使得载流子局域长度的减小. 这表明载流子需要吸收更多的能量才能克服晶格的束缚进行跳跃, 因此  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  样品的电阻较高.

关键词: 钙钛矿锰氧化物, 相分离, 双交换作用

PACS: 75.47.Lx, 75.50.Lk, 77.80.B-

DOI: 10.7498/aps.64.067501

## 1 引言

庞磁阻 (colossal magnetoresistance, CMR) 效应的发现, 使得钙钛矿锰氧化物成为电子强关联领域内的研究热点<sup>[1-5]</sup>. 一般泛指的锰氧化物是相对于钙钛矿结构而言, 通式可以写为:  $(RE, AE)_{n+1}\text{Mn}_n\text{O}_{3n+1}$  (其中  $RE$  为稀土元素,  $AE$  为碱土元素),  $(RE, AE)$  位通常称为 A 位, 而 Mn 位称为 B 位, 这类锰氧化物也被称为 Ruddlesden-Popper (RP) 相.  $n = 2$  的  $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$  是由两层  $\text{MnO}_6$  八面体和一层  $(\text{La}/\text{Sr}-\text{O})$  岩盐层的单元在  $c$  方向周期性排列组成. 由于其特殊的准二维结构可能引起窄带效应以及层间可能产生隧道效应, 使得它在钙钛矿锰氧化物的研究

中备受青睐<sup>[6-11]</sup>. 这类锰氧化物有两个磁有序转变温度: 即  $T_{\text{C}}^{3\text{D}}$  和  $T_{\text{C}}^{2\text{D}}$  ( $T_{\text{C}}^{3\text{D}}$  是三维磁有序转变温度, 此温度处常伴随有金属-绝缘转变;  $T_{\text{C}}^{2\text{D}}$  是二维磁有序转变温度);  $T_{\text{C}}^{3\text{D}}$  低于  $T_{\text{C}}^{2\text{D}}$ , 这是由于  $(\text{MnO}_2)_2$  层内 (2D) 的磁耦合要比双层间 (3D) 的磁耦合强<sup>[12]</sup> 而引起的. 近年来, 国内外研究人员对这类双层钙钛矿锰氧化物的磁性和电性开展了大量的研究工作. 例如, 2005年, Deisenhofer 等<sup>[13]</sup> 通过电子自旋共振 (electron spin resonance, ESR) 波谱仪在  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  体系中观察到了 Griffiths 相; 2008年, 赵建军等<sup>[14]</sup> 研究了  $(\text{La}_{0.8}\text{Eu}_{0.2})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  单晶样品在低温下的磁跳变现象; 2012年, Chattopadhyay 等<sup>[15]</sup> 的研究发现  $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  单晶样品在低温下存在自旋玻璃相, 并指出其与一级相变密切相关; 2014

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11164019, 11064008) 和包头科学技术局产学研合作项目 (批准号: 2014X1014-01) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: nmzhaojianjun@126.com

年, 何利民等<sup>[16,17]</sup>对  $(\text{La}_{1-x}\text{Eu}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.15$ ) 多晶样品做了研究, 指出 Eu 对 La 的掺杂会改变其磁、电性质.

由于  $\text{Gd}^{3+}$  比  $\text{La}^{3+}$  半径小得多, 根据容忍因子的定义  $t = (r_A + r_O)/[2^{1/2}(r_B + r_O)]$  可知: 在 A 位用稀土元素 Gd 替代 La 会使  $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  的晶格结构发生畸变, 进而会影响其磁性和导电性. 因此, 本文探究 Gd 掺杂的  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 多晶样品的磁性和输运性质, 并通过 ESR 波谱仪研究了样品的磁性.

## 2 实验

将原料  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MnCO}_3$  和  $\text{SrCO}_3$  通过固相反应法合成  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 多晶样品. 实验中所用的氧化物纯度都大于 99.9%. 按比例称量各组氧化物在玛瑙碾钵中充分混合研磨后在  $1000^\circ\text{C}$  下预烧 12 h; 然后再将预烧后的粉末研磨并在相同条件下进行第二次预烧; 最后, 将两次预烧后的粉末研磨、压片, 并将片状样品在  $1350^\circ\text{C}$  烧结 24 h 并随炉冷却; 最后得到外观平整、坚硬而无裂痕的圆形块状样品. 使用 X 射线衍射仪 (X-ray diffraction, XRD) 检查样品成相情况. 通过美国 Quantum Design 公司设计的物性测量系统 (physical property measurement system, PPMS-141) 测量样品的磁化强度与温度的关系 ( $M$ - $T$  曲线) 以及电阻率与温度的关系 ( $\rho$ - $T$  曲线), 使用的方法为直流四端法. ESR 的测量是在型号为 JES-FA200A 的电子自旋共振谱仪上完成, 其微波频率约为  $9.0\text{ GHz}$ .

## 3 结果与讨论

$(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 系列多晶样品的 XRD 如图 1 所示. 通过检查可知: 随着掺杂量的增加, 样品  $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  和  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  的结构无明显变化, 均为单相的  $\text{Sr}_3\text{Ti}_2\text{O}_7$  型四方结构, 空间群为  $I4/mmm$ .  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 的晶格参数  $a$  和  $c/a$  的比值如表 1 所列. 从表中可以看出,  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  样品的晶格参数  $a$  和晶胞体积比  $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  的要小, 而  $c/a$  的比值增大.

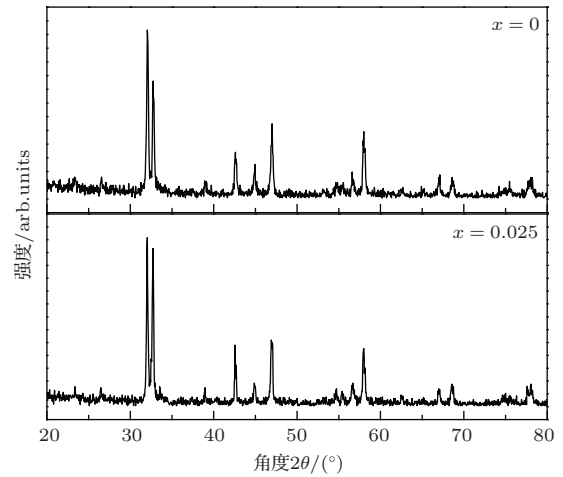


图 1 室温下  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 系列样品的 XRD 图

表 1  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 晶格参数和  $c/a$  的比值

$x$	$a/\text{nm}$	$c/\text{nm}$	$V/\text{nm}^3$	$c/a$
0	0.387855	2.007045	0.30192	5.1747
0.025	0.387017	2.01489	0.30179	5.2062

在  $0.1\text{ T}$  磁场下,  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 系列多晶样品零场冷却曲线 (ZFC) 和带场冷却曲线 (FC) 如图 2 所示. 由图中插图 (磁化强度对温度的导数  $dM/dT$  曲线) 可知: 在整个测量温度范围内, 两样品 ( $x = 0, 0.025$ ) 各自都表现出两个磁转变点. 样品  $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  的  $dM/dT$  的极小值对应的温度分别为  $T_{\text{C}0}^{3\text{D}} \approx 125\text{ K}$ ,  $T_{\text{C}0}^{2\text{D}} \approx 250\text{ K}$ ; 样品  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  的  $dM/dT$  的极小值对应的温度分别为  $T_{\text{C}1}^{3\text{D}} \approx 112\text{ K}$ ,  $T_{\text{C}1}^{2\text{D}} \approx 225\text{ K}$ . 同时可以看出: 在整个测量温区内,  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  样品的磁化强度较小, 这是由于  $\text{Gd}^{3+}$  半径小于  $\text{La}^{3+}$  半径<sup>[18]</sup>, 优先占据九配位的  $R$  位<sup>[19]</sup>, 局域晶格发生畸变, 使得  $\text{Mn}^{3+}-\text{O}^{2-}-\text{Mn}^{4+}$  键角减小, 其  $e_g$  能带宽度较窄, 减弱了双交换作用而导致的.

为了进一步研究样品的磁性, 在磁场扫描模式 ( $0-1.0\text{ T}$ ) 下测量 ESR 谱, 如图 3 和 4 所示. 图 3 给出了从  $77-385\text{ K}$  测量到的  $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  的 ESR 信号, 在  $77\text{ K} < T < T_{\text{C}0}^{3\text{D}}$  温区内, 可以观察到  $g > 2$  的铁磁 (FM) 共振峰 (左图中用箭头表示), 表明样品出现了 FM 相, 随着温度的升高这个峰变得越来越弱; 而在  $T_{\text{C}0}^{3\text{D}} < T < 385\text{ K}$  温区内,  $g \approx 2$

的顺磁 (PM) 共振峰<sup>[13]</sup>开始出现, 样品开始出现 PM 相 (如右图中直线所示位置); 同时注意到  $g > 2$  的 FM 共振峰在这个温区内一直存在 (右图中用箭头表示), 随着温度的升高, FM 信号逐渐减弱, 直到 385 K 时才消失, 表现为纯的顺磁态. 类似的

现象也在  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  样品中出现, 如图 4 所示. 这说明在超过  $T_{\text{C}0}^{3\text{D}}$  和  $T_{\text{C}1}^{3\text{D}}$  后两样品均不是纯的顺磁相, 而是处于一种铁磁-顺磁共存的状态, 这种现象在文献<sup>[20]</sup>中被称为相分离.

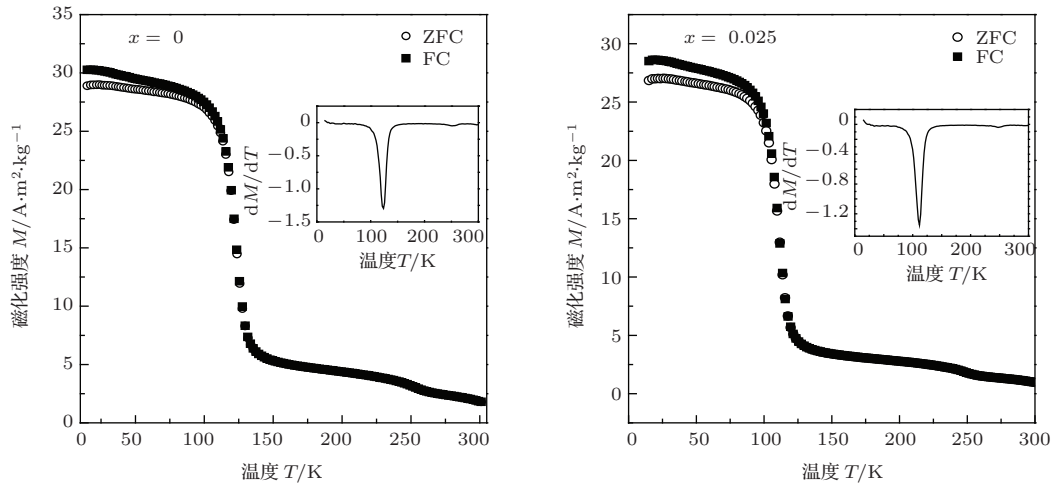


图 2  $H = 0.1 \text{ T}$  时,  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 的磁化强度随温度的变化 ZFC 和 FC 分别表示零场冷却和带场冷却, 插图为样品的  $dM/dT$  随温度的变化

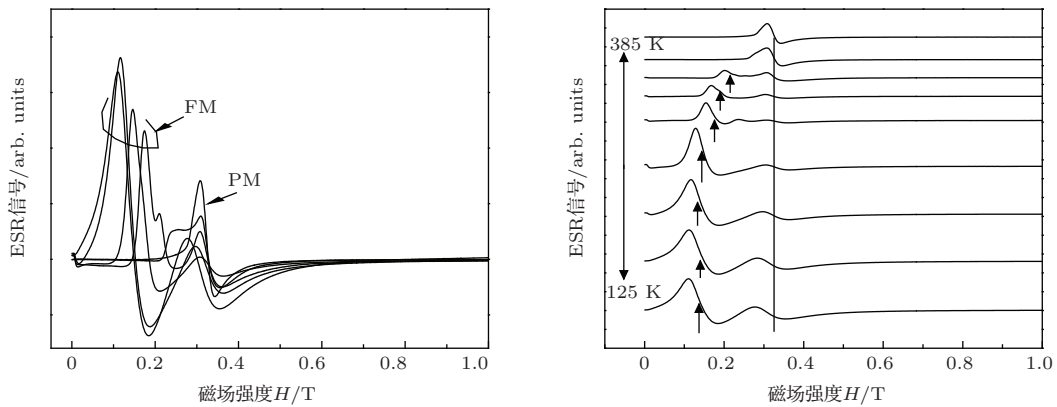


图 3  $\text{La}_{4/3}\text{Sr}_{3/5}\text{Mn}_2\text{O}_7$  样品的 ESR 谱

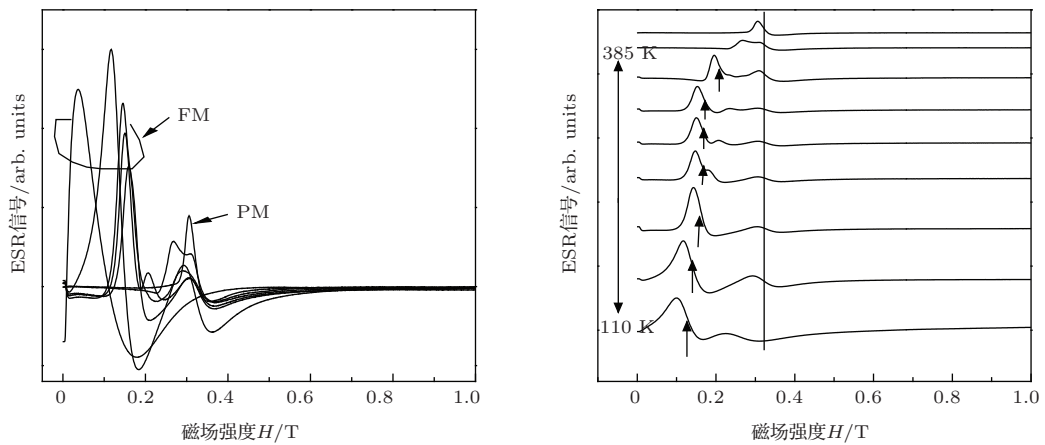


图 4  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{3/5}\text{Mn}_2\text{O}_7$  样品的 ESR 谱

(La<sub>1-x</sub>Gd<sub>x</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> ( $x = 0, 0.025$ ) 系列多晶样品在零场下电阻率与温度的关系如图5所示. 从图5中可以看出, 两样品分别在  $T_{C0}^{3D}$  和  $T_{C1}^{3D}$  附近出现了金属-绝缘体转变, 并且 (La<sub>0.975</sub>Gd<sub>0.025</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 样品的电阻率较大. 这是由于 A 位 (La, Sr 占据的晶位) 掺杂了半径较小的 Gd<sup>3+</sup> 离子, 使得 Mn<sup>3+</sup>-O<sup>2-</sup>-Mn<sup>4+</sup> 键角减小, (La<sub>0.975</sub>Gd<sub>0.025</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 中的锰离子和氧离子轨道重叠程度就小一些, 其 e<sub>g</sub> 能带宽度较窄, 这样 e<sub>g</sub> 在相邻 Mn 离子间较难移动, 使得 (La<sub>0.975</sub>Gd<sub>0.025</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 样品的导电性较差. 为了研究在  $T_{C0}^{3D}(T_{C1}^{3D}) < T < 300$  K 温区内的导电机理, 对高温区的实验数据以热激活模型 (电阻的对数与温度倒数的关系  $\ln R-1/T$ )、变程跳跃模型 (电阻的对数与温度  $n+1$  次方根倒数的关系  $\ln R-T^{-1/(n+1)}$ ) 及小极化子模型 (电阻与温度比值的对数与温度倒数的关系  $\ln(R/T)-1/T$ ) 的形式进行拟合, 结果如图6所示. 从图6中可以看出, 高温区的实验数据用变程跳跃机理拟合最好, 并且取  $n = 3$ . 由此说明样品在高温区均遵循三维变程跳跃的导电方式. 由 Mott 变程跳跃 (VRH) 模型可知: 电阻与温度的关系为  $R/R_0 = \exp(T_0/T)^{-1/4}$ , 其中  $R/R_0$  为归一化

电阻,  $T_0 \propto N(E_f)/l_0^3$ ,  $l_0$  为载流子局域化长度,  $N(E_f)$  是费米面处态密度. 由于掺杂并未引起系统中的载流子密度的改变, 因而态密度基本上不变, 所以掺杂只改变了载流子的局域状态. 通过拟合得到样品 La<sub>0.975</sub>Gd<sub>0.025</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 的参数  $T_0$  (75.01) 比样品 La<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 的参数  $T_0$  (70.37) 大. 由于  $T_0 \propto N(E_f)/l_0^3$ , 因此系统载流子局域化长度  $l_0$  随着掺杂离子半径减小而减小. 载流子局域化长度的变小表明载流子需要更多的能量才能克服晶格的束缚进行跳跃, 由此导致 (La<sub>0.975</sub>Gd<sub>0.025</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 样品的电阻增加.

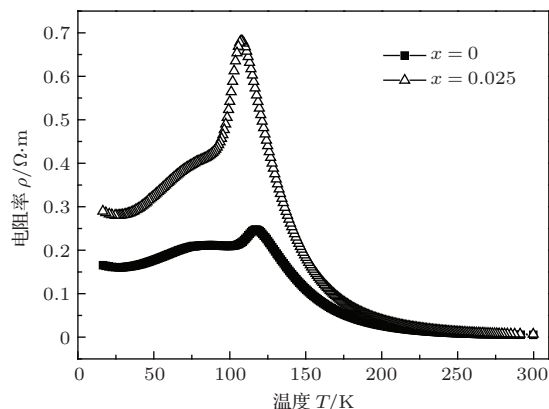


图5  $H = 0$  T 时, (La<sub>1-x</sub>Gd<sub>x</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> ( $x = 0, 0.025$ ) 样品电阻率与温度的关系

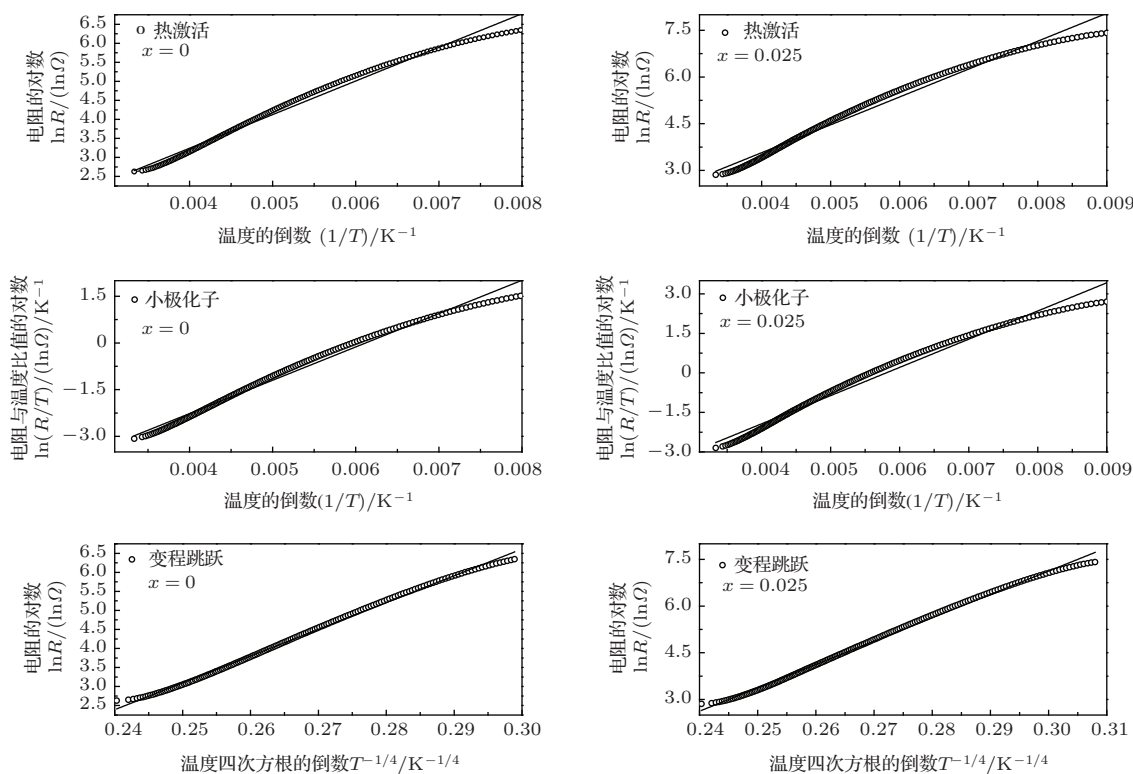


图6 (La<sub>1-x</sub>Gd<sub>x</sub>)<sub>4/3</sub>Sr<sub>5/3</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> ( $x = 0, 0.025$ ) 样品的  $\ln R-1/T$ ,  $\ln(R/T)-1/T$  和  $\ln R-T^{-1/4}$  曲线



## 4 结 论

对双层钙钛矿锰氧化物 $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) 的磁性和电性的分析表明: 由于 $\text{Gd}^{3+}$ 的掺杂使得 $\text{Mn}^{3+}-\text{O}^{2-}-\text{Mn}^{4+}$ 键角减小,  $e_g$ 能带宽度变窄, 减弱了双交换作用, 结果使得样品 $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$ 表现出较低的磁转变温度( $T_C^{3D}$ )和磁化强度. 在 $T_C^{3D} < T < 300$  K温度范围内, 两样品均出现了铁磁和顺磁共存的现象; 通过热激活、小极化子近邻跳跃及Mott变程跳跃模型对这一温区的 $R$ - $T$ 数据进行拟合发现: 两样品均以三维变程跳跃的方式导电, 并且得出 $\text{Gd}^{3+}$ 的掺杂使载流子局域长度减小. 这表明载流子要吸收更多的能量才能克服晶格的束缚进行跳跃, 因此样品 $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$ 在这一温区有较大的电阻值.

## 参考文献

- [1] Xiang J Y, Wang Z G, Xu B, Sun Y B, Wu H Y, Zhao J J, Lu Y 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 157501 (in Chinese) [向俊尤, 王志国, 徐宝, 孙运斌, 吴鸿业, 赵建军, 鲁毅 2014 物理学报 **63** 157501]
- [2] Han L A, Chen C L, Dong H Y, Wang J Y, Gao G M, Luo B C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 541 (in Chinese) [韩立安, 陈长乐, 董慧迎, 王建元, 高国棉, 罗炳成 2008 物理学报 **57** 541]
- [3] Mitchell J F, Argyriou D N, Jorgensen J D, Hinks D G, Potter C D, Bader S D 1997 *Phys. Rev. B* **55** 63
- [4] Yang R F, Sun Y, He W, Li Q A, Cheng Z H 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 032502
- [5] Liu L, Zhang L J, Niu L Y, Liu S, Xia Z C, Yuan S L 2005 *Mater. Sci. Eng. B* **117** 227
- [6] Kimura T, Tomioka Y, Kuwahara H, Asamitsu A, Tamura M, Tokura Y 1996 *Science* **274** 1698
- [7] Hirota K, Ishihara S, Fujioka H, Kubota M, Yoshizawa H, Moritomo Y, Endoh Y, Maekawa S 2002 *Phys. Rev. B* **65** 064414
- [8] Argyriou D N, Mitchell J F, Radaelli P G, Bordallo H N, Cox D E, Medarde M, Jorgensen J D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 8695
- [9] Moritomo Y, Asanutsy A, Kuwahara H, Tokura Y 1996 *Nature* **380** 141
- [10] Liu L, Xia Z C, Yuan S L 2006 *Mater. Sci. Eng. B* **127** 55
- [11] Zhou M, Wu H Y, Wang H J, Zheng L, Zhao J J, Xing R, Lu Y 2012 *Physica B* **407** 2219
- [12] Perring T G, Aeppli G, Moritomo Y, Tokura Y 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 3197
- [13] Deisenhofer J, Braak D, Krug von Nidda H A, Hemberger J, Eremina R M, Ivanshin V A, Balbashov A M, Jug G, Loidl A, Kimura T, Tokura Y 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 257202
- [14] Zhao J J, Lu Y, Haosi B Y, Xing R, Yang R F, Li Q A, Sun Y, Cheng Z H 2008 *Chin. Phys. B* **17** 2717
- [15] Chattopadhyay S, Giri S, Majumdar S 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 083915
- [16] He L M, Ji Y, Wu H Y, Xu B, Sun Y B, Zhang X F, Lu Y, Zhao J J 2014 *Chin. Phys. B* **23** 077601
- [17] He L M, Ji Y, Lu Y, Wu H Y, Zhang X F, Zhao J J 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 147503 (in Chinese) [何利民, 冀钰, 鲁毅, 吴鸿业, 张雪峰, 赵建军 2014 物理学报 **63** 147503]
- [18] Shannon R D, Prewitt C T 1976 *Acted Crystallogr.* **32** 751
- [19] Battle P D, Green M A, Laskey N S, Kasmir N, Millburn J E, Spring L E, Sullivan S P, Rosseinsky M J, Vente J F 1997 *Mater. Chem.* **7** 977
- [20] Goodenough J B, Zhou J S 1997 *Nature* **386** 229

# Magnetic and transport properties of perovskite manganites $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ( $x = 0, 0.025$ ) polycrystalline samples\*

Wang Zhi-Guo<sup>1)</sup> Xiang Jun-You<sup>1)</sup> Xu Bao<sup>1)</sup> Wan Su-Lei Lu Yi<sup>1)</sup> Zhang Xue-Feng<sup>2)</sup>  
Zhao Jian-Jun<sup>1)†</sup>

1) (Key Laboratory for Magnetism and Magnetic Materials of Inner Mongolia, Department of Physics, Baotou Normal University, Inner Mongolia University of Science and Technology, Baotou 014030, China)

2) (Inner Mongolia Key Laboratory for Utilization of Bayan Obo Multi-Metallic Resources, Elected State Key Laboratory, Inner Mongolia University of Science and Technology, Baotou 014010, China)

( Received 30 August 2014; revised manuscript received 23 October 2014 )

## Abstract

The polycrystalline samples of two-layered perovskite manganites  $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0, 0.025$ ) are prepared by traditional solid state reaction method. X-ray diffraction measurements show that both samples are of the  $\text{Sr}_3\text{Ti}_2\text{O}_7$ -type tetragonal phase (space groups  $I4/mmm$ ). Magnetic measurements show that  $\text{Gd}^{3+}$  doping reduces the magnetic transition temperature ( $T_C^{3D}$ ) and magnetization ( $M$ ) of the doped sample  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$ , which is because  $\text{Gd}^{3+}$  doping induces lattice distortion and change the lattice constant, and subsequently weakens the double exchange interactions. It is found from electron spin resonance measurements that short-range ferromagnetic clusters appear in the paramagnetic background of both samples at temperatures  $T_C^{3D} < T < 300$  K, and therefore phase-separations occur. Electrical transportation measurements show that the electronic conducting mechanism in the temperature range of  $T_C^{3D} < T < 300$  K is in accordance with three-dimensional variable-range hopping. It is found that the sample  $(\text{La}_{0.975}\text{Gd}_{0.025})_{4/3}\text{Sr}_{5/3}\text{Mn}_2\text{O}_7$  has a higher resistance. This is because  $\text{Gd}^{3+}$  doping reduces the localization length of carriers, and makes conducting carriers absorb more energy to overcome the bound potentials in the lattice.

**Keywords:** perovskite manganites, phase separation, double exchange

**PACS:** 75.47.Lx, 75.50.Lk, 77.80.B-

**DOI:** 10.7498/aps.64.067501

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11164019, 11064008) and the Science and Technology in Baotou Production-Study-Research Cooperation Projects, China (Grant No. 2014X1014-01).

† Corresponding author. E-mail: nmzhaojianjun@126.com