

低掺杂 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 巨磁电阻块材的低频内耗 *

李合琴 陈志宝

(合肥工业大学材料科学与工程学院, 合肥 230009)

方前锋

(中国科学院固体物理研究所内耗与固体缺陷实验室, 合肥 230031)

摘要 用低频扭摆法测试了低掺杂 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 巨磁电阻块材的内耗及弹性模量. 所测试的温度范围内, 在 276 和 154 K 存在两个内耗峰, 且在相应的温度, 模量有明显的变化. 结合电磁性能的测试结果, 认为高温峰起源于顺磁绝缘体斜方相向铁磁金属斜方相的转变. 低温峰则被解释为铁磁金属斜方相向铁磁金属正方相的转变.

关键词 内耗, 巨磁电阻, 电磁性能, 相变, $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$

中图分类号 TQ134.11, TG113.226 **文献标识码** A **文章编号** 0412-1961(2003)11-1170-03

LOW FREQUENCY INTERNAL FRICTION OF LOW DOPED $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ COLOSSAL MAGNETORESISTANCE BULK MATERIALS

LI Heqin, CHEN Zhibao

School of Materials Science & Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230000

FANG Qianfeng

Laboratory of Internal Friction and Defects in Solids, Institute of Solid State Physics, The Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031

Correspondent: LI Heqin, professor, Tel: (0551)2905951, Fax: (0551)2901362,

E-mail: hexiaoxiong@hfut.edu.cn

Supported by Anhui Province Natural Science Foundation (No.03044703)

Manuscript received 2003-07-09

ABSTRACT The low frequency internal friction and elastic modulus, together with the electrical and magnetic properties are measured for the $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ colossal magnetoresistance bulk materials. Two internal friction peaks and the corresponding softening of elastic modulus and two resistance peaks are observed around 276 and 154 K. The peaks at high temperature can be ascribed to the PIR to FMR transition, while the peaks at low temperature may be interpreted as a phase transition from FMR to FMO.

KEY WORDS internal friction, colossal magnetoresistance, electrical and magnetic property, phase transformation, $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$

钙钛矿结构锰氧化物巨磁电阻 (CMR) 材料由于其独特的电磁性能及其在磁存储和磁传感器方面的应用前景, 引起了人们的广泛兴趣, 其物理本质是目前研究的焦点之一. 目前对这类材料的通常研究方法是测试其电磁性能. 为了获得对 CMR 效应本质更深刻的认识, 根据热力学理论, 伴随着自发磁化的发生, 系统的自由能 will 发生变化. 内耗技术能很灵敏且无破坏性的反映材料内部微观

结构的变化, 已有利用超声衰减、声频内耗、强迫振动方法研究顺磁到铁磁或顺磁到电荷有序态的转变的报道^[1-4].

本工作通过采用低频扭摆法测试材料的温度 - 内耗谱, 并结合其电磁性能的测试结果来解释 CMR 现象. 所选用的低掺杂 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x < 1/6$) 材料, 除了因其具有较大的 CMR 效应, 且出现 CMR 效应的温度接近于室温以外, 还因为随着温度的降低, 低掺杂材料的磁性结构相当复杂, 同时存在结构和磁性转变, 很多物理机理目前尚不清楚.

1 实验方法

名义组分为 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 的多晶样品用标准的

* 安徽省自然科学基金资助项目 03044703

收稿日期: 2003-07-09

作者简介: 李合琴, 女, 1956 年生, 教授, 博士

固相反应法制备. 高纯度的 La_2O_3 , SrCO_3 , MnCO_3 经反复研磨预烧后, 最终在 1673 K 烧结而成. X 射线衍射结果表明, 该材料为较好的单相结构. 低频内耗和弹性模量是在多功能内耗仪上测量的. 用于低频内耗测量试样的尺寸为 $76 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 1.8 \text{ mm}$, 升温速率为 2 K/min , 应变振幅为 3×10^{-5} , 频率分别为 0.1, 0.3, 1.0 和 3.0 Hz, 温度为 100—300 K. 直流电阻采用标准的四端引线法测量, 从液氮温度到室温. 交流磁化率 χ 采用互感法测量, 从 50—300 K, 所加交流磁场为 $1.5 \times 10^{-5} \text{ T}$, 频率为 1000 Hz, 并定义 $d\chi/dT$ 的最大值所对应的温度为 Curie 温度 T_C .

2 实验结果与分析

采用 Phillips PW-1700 全自动 X 射线衍射仪 ($\text{CuK}\alpha$), 对 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 多晶样品的晶体结构进行了分析研究, 结果如图 1 所示. 表明样品为单相立方结构, $a \approx b = 0.560 \text{ nm}$, $c = 0.778 \text{ nm}$.

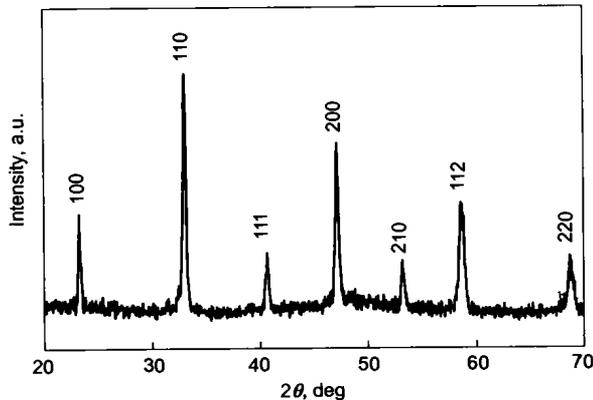


图 1 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 样品的 X 射线衍射图

Fig.1 XRD pattern of $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ sample ($\text{CuK}\alpha$)

$\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 样品的内耗 Q^{-1} 和动态弹性模量随温度的变化曲线如图 2 所示, 在所测温度范围内出现了两个内耗峰, 分别位于 276 和 154 K 左右. 为了研究其内耗特征, 选择了升温变频测量, 所用频率分别为 0.1, 0.3, 1.0 和 3.0 Hz, 温度从 100—300 K. 结果表明, 随着频率的变化, 内耗峰的峰位不变; 且频率愈高内耗峰值愈低. 并且在两个内耗峰处, 对应的弹性模量有极小值. 这些都是典型的相变峰的特征, 说明这两个内耗峰与某种相变过程有关.

为了揭示该材料的相变和电磁性能的关系, 本工作亦测试了 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 多晶样品的交流磁化率 χ 和电阻 R 与温度 T 的关系曲线, 结果如图 3 所示.

从图中可以看出, 其电阻-温度曲线存在着两个非常明显的峰, 分别用 T_{P_1} 和 T_{P_2} 标识高温与低温处两个电阻峰的温度 (其中 $T_{P_1} = 276 \text{ K}$, $T_{P_2} = 154 \text{ K}$). 交流磁化率-温度曲线 $\chi-T$ 的明显转折处对应着 Curie 温度 T_C

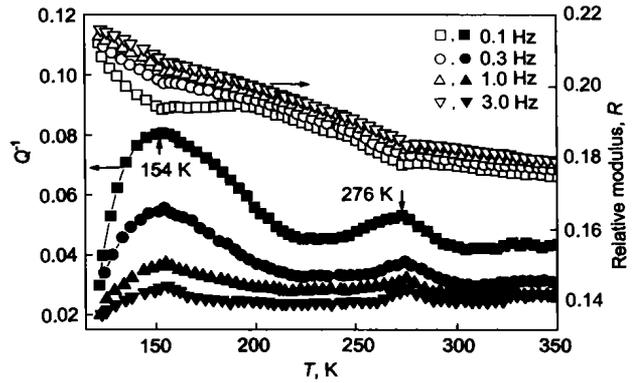


图 2 在不同频率下测量的 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 样品的内耗和弹性模量与温度的关系曲线

Fig.2 The temperature dependences of internal friction and elastic modulus measured at different frequencies for $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ sample

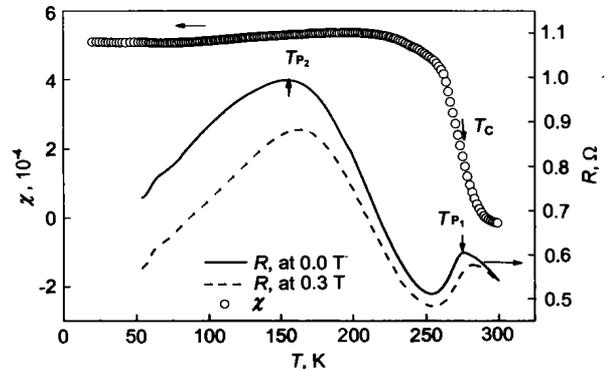


图 3 电阻和交流磁化率与温度的关系曲线

Fig.3 The temperature dependence of resistance and susceptibility of $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ sample

(= 276 K). 从图 3 还可以看出, 样品的高温电阻峰温 T_{P_1} 与 Curie 温度相对应, 即表明该材料在此温度附近, 发生顺磁绝缘体 (PI) 到铁磁金属 (FM) 的转变, 符合双交换机制^[5]. 然而, 在低温电阻峰 154 K 处, 对应的 $\chi-T$ 曲线没有明显的变化, 只是随着温度的降低, 交流磁化率 χ 略有下降.

对比图 2 和图 3, 两个内耗峰处模量均有明显的变化, 且分别与两个电阻峰位置对应得很好. 高温内耗峰出现的原因已经得到了很好的解释. 但是对于反常的低温内耗峰以及低温电阻峰出现的物理机制仍需要更进一步的讨论. 在某些 CMR 材料中, 变温电阻测试实验中也已经观察到了类似的低温电阻反常现象, 并且已经有了各种解释. 如在自掺杂 LaMnO_3 材料中, 低温电阻峰被解释为相分离^[6]; 在 Li 掺杂 LaMnO_3 材料中, 低温电阻峰被解释为磁的非均匀性^[7]; 也有研究对其解释为颗粒内和颗粒间的磁序不同所导致的隧穿效应^[8]; 并有报道认为在 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 薄膜中, 出现的低温电阻峰来自于晶界效应^[9]. 低温电阻峰产生的物理机制很复杂, 因为在低

于 Curie 温度的温区, 不能用双交换机制解释巨磁电阻现象; 但如果用晶界效应理论又不能解释在此位置低温内耗峰出现的原因, 因为在这样的低温下, 不可能出现晶界内耗峰.

低温内耗峰和低温电阻峰的共存, 表明低温峰可能与某种相变有关. 低掺杂 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ 材料的电子结构相图^[10]见图 4. 图中所示 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 的 Curie 温度 $T_C \approx 290$ K, 略高于本实验结果. 由图 4 可知, 随着温度的降低, 在 154 K 附近发生了由斜方相 (R) 到正方相 (O) 的转变, 如图中虚线所示. 这种结构相变导致了点阵畸变, 影响了 Mn^{3+} 和 Mn^{4+} 之间的双交换, 使得

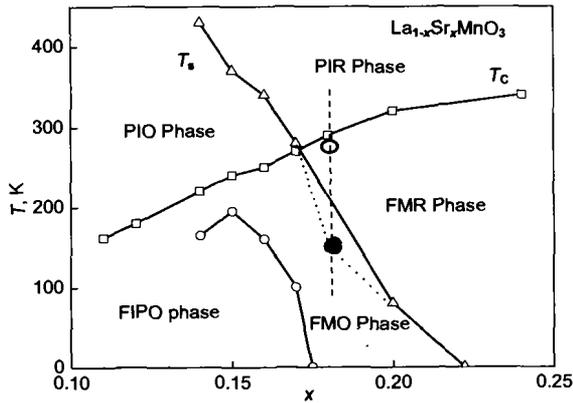


图 4 低掺杂 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 材料的电子结构相图^[10]

Fig.4 Electronic and structural phase diagram for $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ in the range of x from 0.10 to 0.25^[10] (The data points of T_C (○) denoting Curie temperature, T_s (●) the temperature of phase transition from this work)

电阻在低温下再次出现峰值.

3 结论

研究了低掺杂 $\text{La}_{0.82}\text{Sr}_{0.18}\text{MnO}_3$ 材料的内耗、动态弹性模量和电磁性能的关系. 在所测试的温度区间, 同时观察到两个内耗峰和两个电阻峰, 而且峰温的位置对应得较好.

根据实验结果以及该成分材料的电子结构相图, 本文作者认为: 高温峰起源于顺磁绝缘体斜方相向铁磁金属斜方相的转变; 低温峰则被解释为铁磁金属斜方相向铁磁金属正方相的转变.

参考文献

- [1] Li X G, Chen H, Zhu C F, Zhou H D, Zheng R K, Zhang J H. *Appl Phys Lett*, 2000; 76: 1173
- [2] Zhu C, Zheng R. *Phys Rev*, 1999; 59B: 11169
- [3] Zhu C, Zheng R, Su J, He J. *Appl Phys Lett*, 1999; 74: 3504
- [4] Li K B, Li X J, Liu C S, Zhu Z G, Du J J, Hou D L, Nie X F, Zhu J S, Zhang Y H. *Phys Rev*, 1997; 56B: 13662
- [5] Zener C. *Phys Rev*, 1950; 81: 440
Zener C. *Phys Rev*, 1951; 82: 403
- [6] Zheng L Q, Fang Q F. *J Phys: Condensed Matter*, 2001; 13: 3411
- [7] Ye S L, Song W H, Dai J M, Wang S G, Yuan C L, Sun Y P. *J Appl Phys*, 2000; 88: 5915
- [8] Zhang N, Zhang S, Ding W P, Zhong W, Du Y W. *Solid State Commun*, 1998; 107: 417
- [9] Steenbeck K, Eick T, Kirsch K, Schmidt H-G, Steinbei E. *Appl Phys Lett*, 1998; 73: 2506
- [10] Moritomo Y, Asamitsu A, Tokura Y. *Phys Rev*, 1997; 56B: 12190