

خواص الکتریکی و مغناطومقاومت بین دانه‌ای در منگنایت



علی رستم‌نژادی^۱ و مهدی صفا^۲

۱. مرکز تحقیقات الکتروسرام، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، شاهین‌شهر، اصفهان

۲. دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان، اصفهان

۳. گروه فیزیک، دانشگاه آزاد اسلامی نجف آباد، اصفهان

(دریافت مقاله: ۱۳۹۵/۱/۲۸؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۵/۸/۲۳)

چکیده

در این تحقیق منگنایت $\text{La}_{0.7}(\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x)_{0.3}\text{MnO}_3$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$) به صورت تک‌فاز و با اندازه بلورک‌های بین ۱۸ تا ۲۸ نانومتر به روش سل-ژل ساخته شده است. خواص ساختاری نمونه‌ها با اندازه‌گیری طیف پراش پرتوی ایکس همراه با تحلیل ریتولد آنها و تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی بررسی شده است. خواص مغناطیسی با اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی بر حسب دما و خواص الکتریکی با اندازه‌گیری مقاومت ویژه الکتریکی بر حسب دما و در حضور میدان‌های مغناطیسی تا ۲۰ kOe بررسی شده است. نتایج به دست آمده از پذیرفتاری مغناطیسی نشان می‌دهد که دمای کوری نمونه‌ها بالاتر از دمای اتاق است. اندازه‌گیری مقاومت الکتریکی نشان می‌دهد که دمای گذار فاز عایق-فلز در دو ترکیب $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ و $\text{La}_{0.7}(\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.2})\text{MnO}_3$ به دماهای پائین‌تر از دمای اتاق کاهش یافته است. با اعمال میدان مغناطیسی مقاومت الکتریکی این نمونه‌ها به شدت کاهش می‌یابد و در دماهای مختلف، مقدار مغناطومقاومت تقریباً به صورت خطی با افزایش میدان مغناطیسی افزایش می‌یابد. مقدار مغناطومقاومت در میدان اعمالی ۲۰ kOe در نمونه $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ در دمای ۲۷۵ کلوین، ۱۰٪ و در دمای ۲۰۰ کلوین ۱۴٪ است. این مقدار برای ترکیب $\text{La}_{0.7}(\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.2})\text{MnO}_3$ در دمای ۲۷۵ کلوین، ۱۳٪ و در دمای ۱۰۰ کلوین ۲۷٪ است. مقادیر به دست آمده برای مغناطومقاومت برای کاربرد در حسگرهای مغناطیسی مناسب هستند. تغییرات دیده شده در خواص الکتریکی منگنایت $\text{La}_{0.7}(\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x)_{0.3}\text{MnO}_3$ بر حسب پراکندگی اسپینی حامل‌های بار از مرز دانه‌ها و تونل‌زنی وابسته به اسپین آنها در بین دانه‌ها توصیف شده است.

واژه‌های کلیدی: منگنایت، مقاومت ویژه، مغناطومقاومت بین دانه‌ای، پراکندگی و تونل‌زنی اسپینی، پذیرفتاری مغناطیسی

۱. مقدمه

فوق‌العاده بزرگ^۱، CMR، در سال ۱۹۹۴ این ترکیبات مورد توجه فراوانی قرار گرفته‌اند [۱-۶]. علاوه بر فیزیک غنی، این ترکیبات خواص متنوع و کم‌نظیری از خود نشان می‌دهند

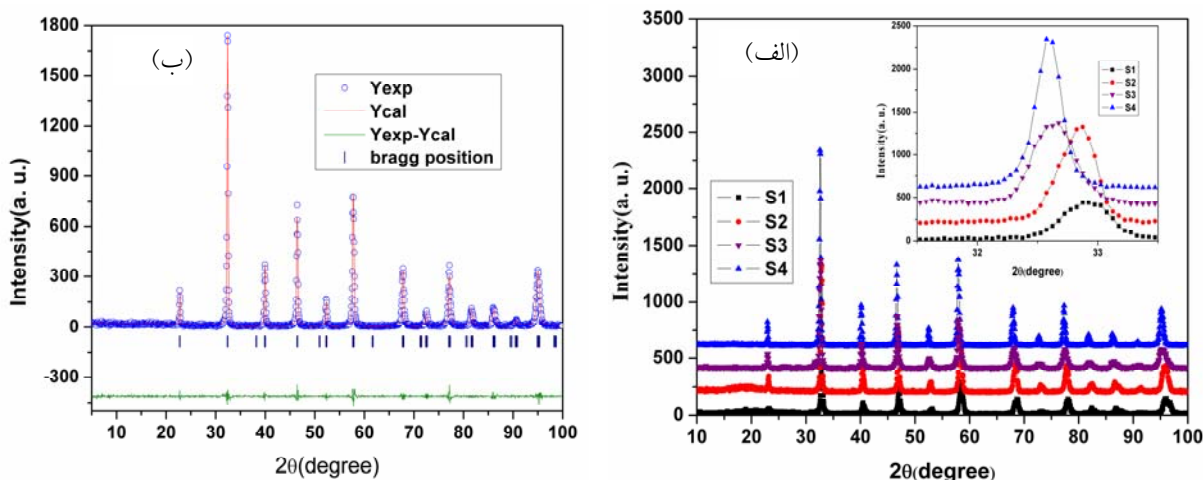
مطالعات اولیه در زمینه منگنایت‌های پروسکایتی^۱ به سال ۱۹۵۰ بر می‌گردد، اما بعد از کشف اثر مغناطومقاومت

ابرتبادلی و تبادلی دوگانه و تغییر در خواص الکتریکی و مغناطیسی منگنیت‌ها می‌شود [۲۳-۳۰]. به طور کلی در نانوساختارهای فرومغناطیسی، لایه سطحی به لحاظ مغناطیسی مرده محسوب می‌شود و باعث کاهش رسانش الکتریکی نیز می‌شوند. دو نوع مغناطومقاومت در منگنیت‌ها وجود دارد. یکی به اثر CMR معروف است که در دمای گذار فاز عایق-فلز دارای بیشترین مقدار است و در میدان‌های مغناطیسی از مرتبه چند تسلا دیده می‌شود که به لحاظ کاربردی در میدان‌های مغناطیسی قوی مناسب می‌باشد. دیگری مغناطومقاومت بین‌دانه‌ای است که در نمونه‌های بس بلور دیده می‌شود که با کاهش اندازه دانه‌ها تا مقیاس نانومتر دارای مقادیر بزرگی است [۱-۵]. این نوع مغناطومقاومت به خاطر این که در میدان‌های مغناطیسی نسبتاً کوچک ایجاد می‌شود، از لحاظ کاربردی دارای اهمیت است. منشأ این نوع مغناطومقاومت به خواص مغناطیسی نمونه از جمله پراکندگی اسپینی حامل‌های بار در مرزدانه‌ها و دیواره حوزہ‌های مغناطیسی و کاهش تونل‌زنی در بین دانه‌ها به خاطر قطبش اسپینی حامل‌های بار است. این نوع مغناطومقاومت در دماهای پائین‌تر از دمای گذار فاز و در میدان‌های مغناطیسی نسبتاً کوچک دیده می‌شود که کاربردهای مهمی در حسگرهای مغناطیسی، قطعات اسپینترونیک، درچه‌های اسپینی و حافظه‌های مغناطیسی دارد [۴، ۳۱-۳۵].

هدف از این تحقیق دستیابی به مغناطومقاومت بزرگ در میدان‌های مغناطیسی کوچک و در دماهای نزدیک به دمای اتاق و پائین‌تر از آن می‌باشد. به این منظور منگنیت $\text{La}_{0.7}(\text{Sr}_{0.3-x}\text{Ba}_x)\text{MnO}_3$ با اندازه دانه‌های کوچک به روش سل ژل ساخته شده است. خواص الکتریکی و مغناطومقاومت بین‌دانه‌ای نمونه‌ها با اندازه‌گیری مقاومت ویژه بر حسب دما و در حضور میدان مغناطیسی بررسی شده است. نتایج به دست آمده نشان‌دهنده تغییرات بزرگ در مقاومت الکتریکی نمونه‌ها با اعمال میدان مغناطیسی می‌باشد. خواص الکتریکی مشاهده شده بر حسب پراکندگی وابسته به اسپین حامل‌های بار از مرزدانه‌ها و تونل‌زنی اسپینی آن در بین دانه‌ها تحلیل شده است.

که زمینه‌های کاربردی فراوانی برای آنها فراهم می‌آورد. منگنیت‌ها که بر پایه اکسید منگنز هستند، از دسته مواد مغناطیسی با همبستگی الکترونی قوی هستند که در بین درجات آزادی آنها، یعنی بار، اسپین، شبکه و مدار برهم‌کنش‌هایی با مرتبه یکسان وجود دارد. این درجات آزادی باعث تنوع در شکل‌گیری فازهای ساختاری، الکتریکی و مغناطیسی زیادی شده است. مسئله جدایی فازها به طور گسترده در منگنیت‌ها دیده شده است. به این مفهوم است که در فازهای الکتریکی و یا مغناطیسی زمینه، فازهای الکتریکی و یا مغناطیسی دیگری در مقیاس نانومتر نیز وجود دارند که نشان دهنده برهم‌کنش‌های با نظم کوتاه‌برد هستند [۲، ۷ و ۸]. نانوساختارهای منگنیت‌ها اغلب خواص فیزیکی متفاوتی نسبت به نمونه‌های تک‌بلور و کپه‌ای خود دارند [۹-۱۸]. نانومنگنیت‌های با دمای کوری بالاتر از دمای اتاق، مانند ترکیب‌های $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{MnO}_3$ و $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ با دمای گذار قابل تنظیم در اطراف اطراف دمای اتاق، برای کاربردهای پزشکی مانند درمان سرطان و حسگرهای مغناطیسی مناسب می‌باشند. در این نانوساختارها پدیده‌های دیگری مانند اثر بایاس تبادلی دیده می‌شود که در قطعات اسپینترونیک کارایی دارند [۱۹ و ۲۰]. در نانوذرات منگنیت‌ها پدیده‌های ترمودینامیکی مهمی نیز دیده می‌شود. با کاهش اندازه ذرات، مرتبه گذار فازهای مغناطیسی تغییر می‌کند و یا گذار فاز مغناطیسی به کلی ناپدید می‌شود [۲۱ و ۲۲]. جابه‌جایی دمای گذار و پهن شدن آن یکی دیگر از پدیده‌های رایج در نانوساختارهای مغناطیسی است. تغییر مرتبه گذار فاز به کاهش پسماندهای گرمایی و مغناطیسی در آنها منجر می‌شود که در کاربرد آنها به عنوان سردکننده مغناطیسی بسیار مهم است [۲۱].

در نانوساختارهای مغناطیسی، به دلیل شکسته شدن پیوندهای اتمی در سطح، خواص الکتریکی و مغناطیسی در سطح آنها خیلی متفاوت از خواص قسمت داخلی آنها، هسته، می‌شود. آثار سطحی، تنش‌های داخلی و ناهمگنی‌های شیمیایی باعث برهم خوردن رقابت بین برهم‌کنش‌های



شکل ۱. (الف) طرح پراش پرتوی ایکس نمونه‌ها، شکل داخلی: جابه‌جایی قله‌ها با افزایش باریم (ب) طرح پراش پرتوی ایکس نمونه S4 همراه با تحلیل ریتولد آن.

می‌شود. قبل از کلوخه‌سازی یک عملیات تکلیس دیگر در دمای 1050°C و به مدت ۵ ساعت بر روی نمونه‌های پودری انجام می‌شود. پس از سایش پودرهای حاصل را با گلیسرین به مقدار ۸٪ وزنی مخلوط کرده و پرس می‌نماییم و در دمای 1100°C به مدت ۱۲ ساعت پخته می‌شوند. ساختار بلوری نمونه‌ها توسط طرح پراش پرتوی ایکس همراه با تحلیل ریتولد آنها بررسی شده است. از تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی برای تعیین اندازه و همگنی ذرات استفاده شده است. خواص الکترونی با اندازه‌گیری مقاومت ویژه الکتریکی بر حسب دما و در حضور میدان مغناطیسی به روش چهار میله‌ای و خواص مغناطیسی با اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی متناوب بر حسب دما بررسی شده است.

۳. نتایج و بحث

۱.۳. خواص ساختاری

برای بررسی خواص ساختاری نمونه‌ها از پراش پرتوی ایکس همراه با تحلیل ریتولد آن استفاده شده است [۳۷، ۳۸]. نام‌گذاری نمونه‌ها برای سادگی در ارجاع به آنها در جدول ۱ آورده شده است. در شکل ۱ (الف) طرح پراش پرتوی ایکس همه نمونه‌ها در دمای اتاق نشان داده شده است. از این شکل

۲. آزمایش

در این تحقیق از روش سل-ژل برای تهیه منگنیت $\text{LSBM}, \text{La}_{0.7}\text{V}(\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x)_{0.3}\text{MnO}_3$ با مقادیر آلیاژ $x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$ استفاده شده است. با این روش می‌توان محصولی با همگنی و خلوص بالا و اندازه‌دانه‌های کوچک تولید کرد. در این روش از نیترات‌های فلزی لانتانیم، منگنز، استرانسیم و باریم به عنوان مواد اولیه و از اسید سیتریک و اتیلن گلیکول به عنوان عامل های مخلوط ساز و پلیمرکننده استفاده شده است [۳۶]. نیترات‌های فلزی با خلوص بالای ۹۹٪ را با نسبت استوکیومتری مورد نیاز به نحوی که غلظت یون منگنز در آن 0.25 mol/lit باشد، در آب حل می‌کنیم. سپس به ازاء 100 ml از محلول نیترات‌ها، 50 gr اسیدسیتریک را با 12.5 ml اتیلن گلیکول مخلوط کرده و در 300 ml آب مقطر حل می‌نماییم. محلول‌های به دست آمده به طور جداگانه هم‌زده می‌شوند و سپس با هم مخلوط می‌شوند. محلول حاصل را در دمای 80°C و به مدت ۴۸ ساعت توسط هم‌زن مغناطیسی به هم می‌زنیم. در این مرحله مقداری از مواد فرار و آب خارج شده و یک محلول شفاف به دست می‌آید. محلول حاصله را در دمای 100°C حرارت داده تا به یک ژل زرد رنگ تبدیل شود. پس از خشک کردن ژل، عملیات تکلیس در دمای 450°C به مدت ۵ ساعت انجام

جدول ۱. نتایج ساختاری به دست آمده از تحلیل ریتولد نمونه‌های $\text{La}_{0.97}(\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x)_{0.03}\text{MnO}_3$ بر اساس گروه فضایی R $\bar{3}C$ و اندازه بلورک‌ها بر اساس رابطه شرر.

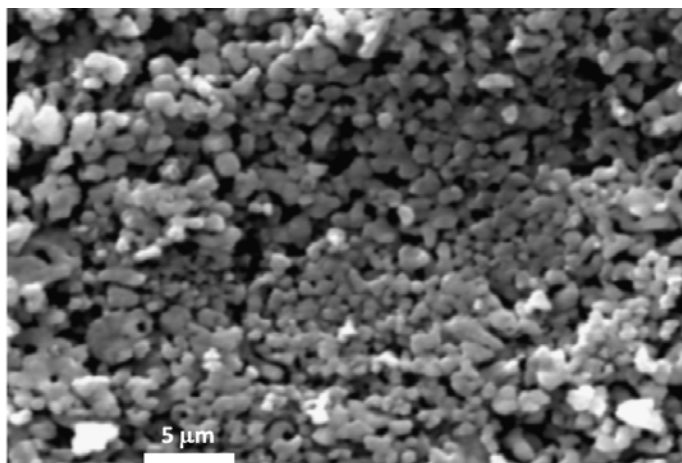
مقدار آرایش	$x=0$	$x=0/1$	$x=0/2$	$x=0/3$
نام نمونه	S1	S2	S3	S4
$a=b$ (Å)	۵,۴۸۳۸	۵,۴۹۴۶	۵,۵۲۷۴	۵,۵۲۷۴
c (Å)	۱۳,۵۰۸۲	۱۳,۵۲۸۰	۱۳,۵۶۰۶	۱۳,۵۶۰۹
V (Å) ^۳	۳۵۱,۷۹۱۱	۳۵۳,۷۰۸۱	۳۵۸,۷۹۷۷	۳۵۸,۸۰۰۲
χ^2	۱,۳	۱,۵۳	۵,۳۶	۱,۴۵
D (nm)	۱۸	۲۳	۲۵	۲۸

$$d = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (1)$$

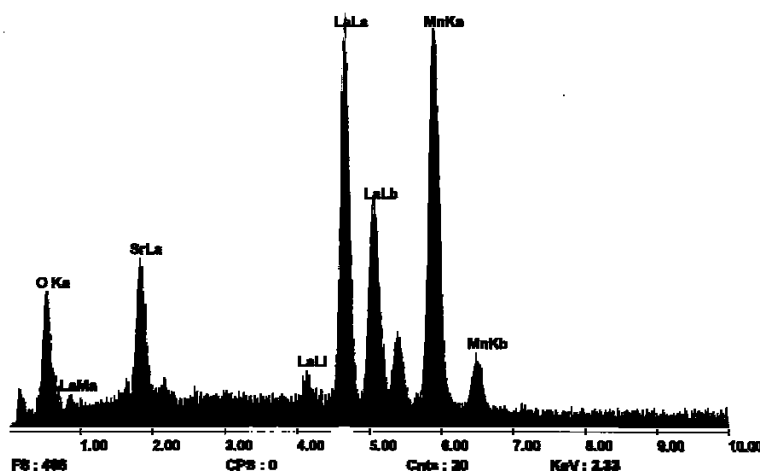
در این رابطه، d اندازه بلورک، λ طول موج پرتوی ایکس، k یک پارامتر وابسته به شکل ذرات است که برای ذرات کروی شکل ۰/۹ می‌باشد، β پهنای قله پراش بر حسب رادیان و θ زاویه پراش می‌باشد. اندازه بلورک‌های به دست آمده از این روش برای نمونه‌های مختلف بین ۱۸ تا ۲۸ نانومتر تخمین زده می‌شود. به نظر می‌رسد که به خاطر بزرگتر بودن شعاع یونی باریوم نسبت به استرانسیم، سرعت نفوذ این یون در ساختار پروسکایتی بیشتر از استرانسیم بیشتر باشد. در نتیجه، در این نمونه‌ها که با شرایط یکسان ساخته شده اند، اندازه بلورک‌ها با افزایش مقدار باریوم افزایش می‌یابد. خلاصه نتایج ساختاری در جدول ۱ آورده شده است. اخیراً افزایش اندازه دانه‌ها با افزایش مقدار آرایش باریوم در نمونه‌های کپه‌ای ترکیب $\text{La}_{0.97}(\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x)_{0.03}\text{MnO}_3$ با اندازه دانه از مرتبه میکرومتر نیز گزارش شده است [۴۰].

به منظور اطلاع از ریزساختار نمونه‌های کلوخه شده، از آنها تصاویر SEM گرفته شد. به وسیله این تصاویر می‌توان اطلاعاتی در باره همگن بودن، ابعاد، جهت‌گیری و میزان جفت‌شدگی دانه‌های موجود در نمونه‌ها به دست آورد. به عنوان نمونه، در شکل ۲ تصویر SEM مربوط به نمونه S4 نشان داده شده است. از این شکل دیده می‌شود که اندازه دانه‌ها زیر میکرون بوده و همگنی بالایی از جهت اندازه و شکل در بین دانه‌های آن وجود دارد.

دیده می‌شود که نمونه‌ها به صورت تک‌فاز و بدون وجود ناخالصی و یا فازهای بلوری ثانوی قابل مشاهده، تشکیل شده‌اند. از تحلیل ریتولد برای تعیین ساختار بلوری و همچنین تعیین پارامترهای شبکه نمونه‌ها استفاده شده است. از این تحلیل دیده شد که نمونه‌ها دارای ساختار لوزی‌وجه با گروه فضایی R $\bar{3}C$ می‌باشند. به عنوان نمونه در شکل ۱ (ب) طرح پراش پرتوی ایکس همراه با تحلیل ریتولد آن برای نمونه S4 آورده شده است. از شکل داخلی ۱ (الف) همچنین دیده می‌شود که با افزایش مقدار باریوم قله پراش به سمت زاویه‌های کوچک‌تر جابه‌جا می‌شود که نشان‌دهنده افزایش فاصله بین صفحات بلوری است. علاوه بر این با افزایش مقدار باریوم از پهنای قله‌ها نیز کاسته می‌شود که نشان‌دهنده افزایش اندازه بلورک‌ها است. در جدول ۱ نتایج مربوط به خواص ساختاری به دست آمده از تحلیل ریتولد نمونه‌ها ارائه شده است. همچنین از جدول ۱ دیده می‌شود که با افزایش مقدار باریوم، ثابت‌های شبکه دستگاه لوزی‌وجه و حجم یاخته آن افزایش می‌یابد. این افزایش با توجه به این که شعاع یونی لانتانیم، استرانسیم و باریوم به ترتیب ۱,۲۲، ۱,۳۱ و ۱,۴۷ آنگستروم است، شرح داده می‌شود [۱]. چون شعاع یونی باریوم بزرگتر از استرانسیم و لانتانیم است، با جایگزینی آن به جای استرانسیم، میانگین شعاع یون‌های موجود در شبکه بلوری افزایش می‌یابد که این امر باعث افزایش طول پیوند Mn-O و زاویه پیوندی Mn-O-Mn و همچنین افزایش ابعاد یاخته بلوری و واپیچش شبکه می‌شود. از رابطه شرر برای تخمین اندازه بلورک‌ها استفاده شده است [۳۹].



شکل ۲. تصویر SEM از سطح نمونه S۴.



شکل ۳. طیف EDX از سطح یک دانه از نمونه S۱.

تحلیل EDX در جدول ۲ آورده شده است. همان طور که انتظار می‌رود، از جدول ۲ دیده می‌شود که مقدار باریم و استرانسیم با افزایش مقدار آلایش، به ترتیب افزایش و کاهش می‌یابند.

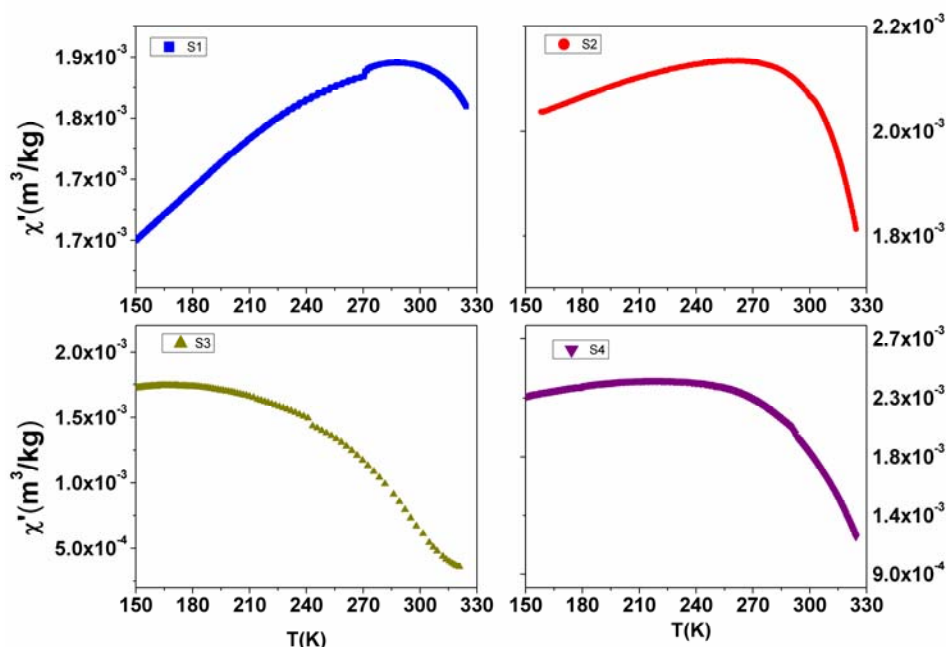
۲.۳. پذیرفتاری مغناطیسی

برهم‌کنش تبادلی تبادلی دوگانه و ابرتبادلی نیز نقش مهمی در تعیین خواص مغناطیسی و الکتریکی منگنیت‌ها دارند [۱-۳]. برهم‌کنش تبادلی دوگانه باعث ایجاد فاز فرومغناطیسی و برهم‌کنش ابرتبادلی باعث ایجاد نظم پادفرومغناطیسی می‌شود [۱، ۴۱]. رقابت بین این دو برهم‌کنش معمولاً فاز مغناطیسی منگنیت‌ها را تعیین می‌کند. بر اساس مدل تبادلی دوگانه، وجود

به وسیله تجزیه و تحلیل EDX می‌توان به طور نیمه کمی از عناصر موجود در سطح نمونه یا در یک نقطه خاص از سطح نمونه را بررسی کرد. در این تحقیق از سطح همه نمونه‌ها و از سطح یک دانه از هر نمونه تجزیه و تحلیل EDX به عمل آمد که به عنوان مثال در شکل ۳ نتایج مربوط به نمونه S۱ آورده شده است. بررسی نتایج تجزیه و تحلیل EDX نشان می‌دهد که عناصر ناخالصی در نمونه‌ها وجود ندارد و درصد عناصر موجود در سطح نمونه‌ها و در سطح یک دانه از هر نمونه تقریباً یکسان هستند. این موضوع نشان می‌دهد که در منگنیت LSBMO ساخته شده به روش سل-زل، همگنی بالایی از لحاظ ترکیبی وجود دارد. خلاصه نتایج مربوط به تجزیه و

جدول ۲. در صد عناصر موجود در نمونه‌ها که با استفاده از تجزیه و تحلیل EDX تعیین شده‌اند.

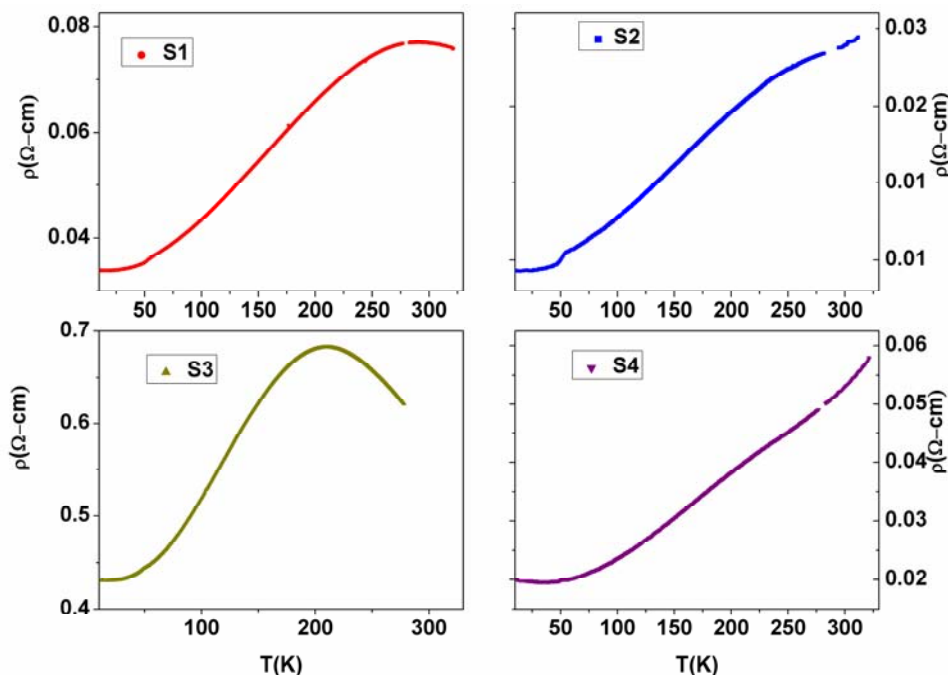
عناصر نمونه	درصد O K		درصد La M		درصد Sr L		درصد Ba L		درصد Mn K	
	وزنی	اتمی	وزنی	اتمی	وزنی	اتمی	وزنی	اتمی	وزنی	اتمی
S1	۱۶٫۲۲	۴۴٫۱۱	۱۱٫۱۰	۳٫۴۶	۱۷٫۵۲	۸٫۷	-	-	۵۵٫۲۱	۴۳٫۷۳
S2	۱۶٫۱	۴۵٫۹۵	۵٫۸۵	۱٫۹۳	۱۰٫۳۳	۵٫۳۹	۱۹٫۴۲	۶٫۴۷	۴۸٫۳۴	۴۰٫۲۶
S3	۱۳٫۱۹	۴۳٫۰۳	۵٫۷۱	۲٫۱۴	۶٫۳۴	۳٫۷۸	۳۵٫۰۱	۱۳٫۳۰	۳۹٫۷۶	۳۷٫۷۶
S4	۱۴٫۳۴	۴۶٫۶۱	۹٫۷۶	۳٫۶۵	۰٫۹۴	۰٫۵۶	۳۸٫۳۲	۱۴٫۵۱	۳۶٫۶۴	۳۴٫۶۸



شکل ۴. (رنگی در نسخه الکترونیکی) قسمت حقیقی پذیرفتاری مغناطیسی متناوب نمونه‌ها بر حسب دما.

پارامغناطیس - فرومغناطیس در همه نمونه‌ها به صورت پهن و در دماهای بالاتر از دمای اتاق رخ می‌دهد. بررسی منحنی‌های پذیرفتاری مغناطیسی نشان می‌دهد که همه نمونه‌ها در دماهای پایین‌تر از دمای اتاق در فاز فرومغناطیسی قرار دارند. از شکل ۴ دیده می‌شود که مقداری افت خیز در رفتار مغناطیسی نمونه‌ها به ویژه دمای کوری آنها مشاهده می‌شود. به طور کلی افت و خیز در دمای کوری منگنیت‌های پروسکایتی $A_{1-x}B_xMnO_3$ متأثر از عوامل مختلفی از قبیل میانگین شعاع یونی در جایگاه‌های A و B، مقدار اکسیژن و وجود تهی‌جا در ساختار بلوری است. علاوه بر این، در نانو ساختارهای منگنیت‌ها،

یون‌های Mn^{3+} و Mn^{4+} در ساختار بلوری باعث ایجاد رسانش الکتریکی و نظم فرومغناطیسی در منگنیت‌ها می‌شود. طبق نمودار فازی منگنیت‌ها، تک‌بلور ترکیب $La_{0.7}(Sr_{1-x}Ba_x)_{0.3}MnO_3$ در دمای اتاق دارای فاز فرومغناطیسی است [۱ و ۲]. خواص مغناطیسی نمونه‌ها با اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی متناوب بر حسب دما بررسی شده است. این اندازه‌گیری‌ها در فرکانس اعمالی ۱۱۱ Hz و دامنه میدان مغناطیسی متناوب $500 A/m$ انجام شده‌اند. در شکل ۴ قسمت حقیقی منحنی پذیرفتاری نمونه‌ها بر حسب دما نشان داده شده است. از شکل ۴ دیده می‌شود که گذار فاز



شکل ۵. (رنگی در نسخه الکترونیکی) مقاومت ویژه الکتریکی منگنیت LSBMO بر حسب دما.

که در بین منگنیت‌ها دارای بیشترین دمای گذار است [۱]. از شکل ۵ دیده می‌شود که دمای گذار فاز عایق-فلز برای نمونه S1 با ترکیب $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ حدود 290°C کلون می‌باشد که نسبت به نمونه تک‌بلور آن، حدود 80°C کلون کاهش یافته است. چنین رفتاری برای نمونه S3 با ترکیب $\text{La}_{0.7}(\text{Sr}_{0.1}\text{Ba}_{0.2})\text{MnO}_3$ نیز مشاهده می‌شود. از شکل ۵ همچنین دیده می‌شود که دمای گذار فاز عایق-فلز برای نمونه‌های S2 و S4 بالاتر از دمای 330°C کلون می‌باشد. از بررسی نتایج تجزیه و تحلیل ساختاری دیده شد که منگنیت LSBMO به صورت تک‌فاز و بدون ناخالصی تشکیل شده است. بنابراین کاهش و افت و خیز در دمای گذار و پهن شدن قله مقاومت به خاطر عوامل ناخالصی و یا چندفازی بودن ساختار بلوری نبوده، بلکه ممکن است ناشی از کوچک بودن اندازه دانه‌ها، آثار مرزدانه‌ای و متفاوت بودن اکسیژن در نمونه‌ها باشد. در نواحی مرزدانه‌ای ساختار بلوری کامل نیست و استوکیومتری شیمیایی در آنها تا حدودی متفاوت از نواحی داخل دانه‌ها می‌باشد. در این حالت مرز دانه‌ها مانند سد های

دمای کوری و مغناطش اشباع با کاهش اندازه ذرات، کاهش می‌یابند.

۳.۳. خواص الکتریکی

مقاومت ویژه الکتریکی نمونه‌های LSBMO بر حسب دما به روش چهار میله‌ای در دماهای بین 330°C تا 10°C کلون اندازه‌گیری شده است. نتایج دست آمده از این اندازه‌گیری در شکل ۵ نشان داده شده است. از شکل ۵ دیده می‌شود که مقدار مقاومت ویژه الکتریکی همه نمونه‌ها از $1\ \mu\text{m}$ - سانتی‌متر کمتر است و در دماهای پایین‌تر از دمای اتاق با کاهش دما، کاهش می‌یابد که نشان‌دهنده رفتار فلزگونه آنها است. دمای گذار فاز عایق-فلز در نمونه‌های تک‌بلور و کپه‌ای منگنیت‌ها بر دمای کوری آنها منطبق است، اما در دستگاه‌های دانه‌ای با ابعاد نانو، این دو گذار فاز از هم تفکیک می‌شوند و گذار فاز عایق-فلز در دماهای نسبتاً پایین‌تری اتفاق می‌افتد. دمای کوری و گذار فاز عایق-فلز در تک‌بلور ترکیب $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ و $\text{La}_{0.7}\text{Ba}_{0.2}\text{MnO}_3$ به ترتیب حدود 370°C و 360°C کلون است

در منگنایت‌های تک‌بلور سازوکار رسانش الکتریکی در دماهای بالاتر از دمای گذار و پایین‌تر از آن متفاوت هستند. به طور کلی رسانش الکتریکی در دماهای بالاتر از دمای کوری به صورت پولارون‌های کوچک و در پایین‌تر از آن به صورت پولارون‌های بزرگ هستند [۴۷، ۵۰-۵۴]. دمای یان-تلا در منگنایت‌ها معمولاً بالاتر از دمای کوری آنهاست [۵۵-۵۷]. بنابراین پولارون‌های شبکه‌ای نقش مهمی در دماهای نزدیک به دمای کوری خواهند داشت.

در نمونه‌های بس‌بلور علاوه بر سازوکارهای فوق، مرزدانه‌ها نیز به عنوان سدهای پتانسیل عمل می‌کنند و باعث جایگزینی حامل‌های بار می‌شوند [۴، ۵، ۳۳، ۳۴]. دو منشأ مغناطیسی تونل‌زنی وابسته به اسپینی در بین دانه‌ها و پراکندگی اسپینی در مرزدانه‌ها برای افزایش مقاومت ویژه وجود دارد [۴، ۵، ۳۵، ۵۸]. این دو سازوکار در منگنایت‌های نانو ساختار نقش اصلی در ایجاد مغناطومقاومت در میدان‌های کوچک را بر عهده دارند. در نتیجه مقدار مقاومت ویژه الکتریکی در منگنایت‌های نانو ساختار نسبت به نمونه‌های کپه‌ای و تک‌بلور آنها، در دماهای پائین‌تر از دمای گذار فاز عایق-فلز افزایش می‌یابد.

از شکل‌های ۴ و ۵ دیده شد که دمای کوری دو نمونه S1 و S3 بالاتر از دمای اتاق است و گذار فاز عایق-فلز آنها به صورت پهن و در دماهای پائین‌تر از دمای اتاق می‌باشد. این دو نمونه گزینه‌های مناسبی برای داشتن مغناطومقاومت بین‌دانه‌ای در دماهای کمتر از دمای گذار فاز عایق-فلز می‌باشند. به این منظور مقاومت ویژه الکتریکی آنها در حضور میدان‌های مغناطیسی بین صفر تا ۲۰ kOe بر حسب دما اندازه‌گیری شده است، که نتایج آنها در شکل ۶ نشان داده شده است. از شکل ۶ دیده می‌شود که با افزایش میدان مغناطیسی، مقدار مقاومت ویژه الکتریکی هر دو نمونه کاهش می‌یابد و با کاهش دما، میزان کاهش آن نیز بیشتر می‌باشد که نشان‌دهنده منشأ اسپینی آن است. تغییر در طول پیوندها و زوایای پیوندی قدرت برهم‌کنشی تبادل دوگانه و ابرتبادل را برهم‌زده و نظم مغناطیسی را می‌تواند تغییر دهد. تغییر نظم مغناطیسی در سطح نانو ذرات باعث افزایش پراکندگی اسپینی و کاهش احتمال

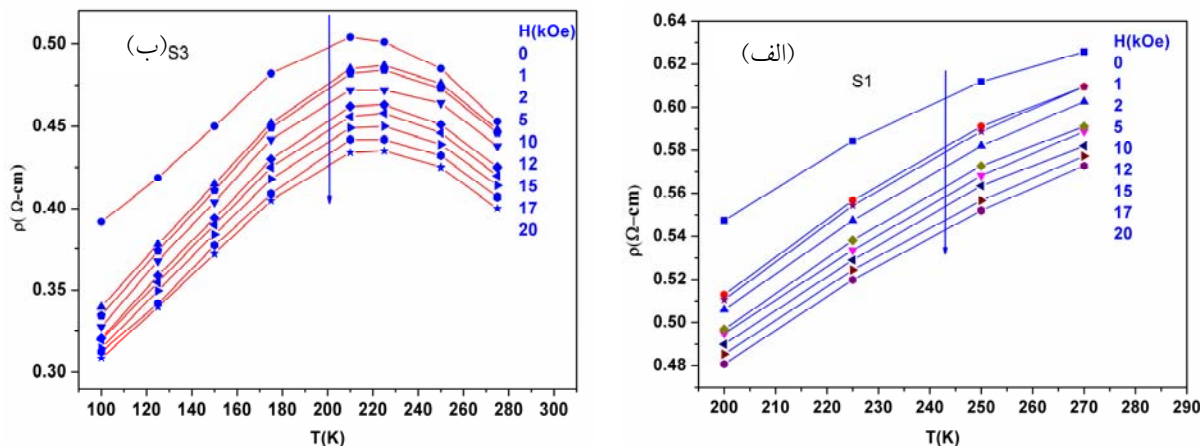
پتانسیلی عمل می‌کنند که حامل‌های بار را به صورت فونونی و مغناطیسی جایگزیده کرده و مقاومت الکتریکی را افزایش می‌دهند. این موضوع باعث کاهش دمای گذار عایق-فلز و پهن شدن آن می‌شود [۴۲].

در نمونه‌های تک‌بلور منگنایت‌ها عوامل مختلفی از قبیل جفت‌شدگی قوی الکترون-فونون، جایگزیدگی اندرسون و جایگزیدگی مغناطیسی^۱ در جایگزیده کردن حامل‌های بار و ایجاد مقاومت الکتریکی نقش دارند [۱، ۵، ۴۲-۴۵]. برهم‌کنش الکترون-فونون از واپیچش یان-تلا به دلیل وجود یون‌های Mn^{3+} ، واپیچش انبساطی-انقباضی^۲ ناشی از وجود حالت‌های با ظرفیت متفاوت Mn^{3+} و Mn^{4+} و واپیچش ناشی از عدم انطباق شعاع یونی کاتیون‌ها در جایگاه A ساختار پروسکیتی ناشی می‌شود. جایگزیدگی اندرسون ناشی از تغییرات فضایی پتانسیل کولنی به خاطر وجود یون‌های چند ظرفیتی مثل Mn^{3+} ، Mn^{4+} ، La^{3+} و Sr^{2+} در ساختار بلوری ایجاد می‌شود. وجود سازوکارهای ذکر شده برای جایگزیدگی حامل‌های بار باعث تشکیل پولارون‌های شبکه‌ای و مغناطیسی می‌شود. برهم‌کنش الکترون-فونون به ویژه اثر یان-تلا باعث تشکیل پولارون‌های شبکه‌ای^۳ در منگنایت‌ها می‌شود. جفت‌شدگی هوند بین الکترون‌های لایه e_g و الکترون‌های مغزه t_{2g} یون منگنز باعث می‌شود که جایگزیدگی مغناطیسی حامل‌های بار دارای اهمیت زیادی باشد [۱، ۲، ۵، ۷، ۴۴-۴۷]. این برهم‌کنش همچنین باعث ایجاد قطبش اسپینی حامل‌های بار با درجه بالا می‌شود. در فاز پارامغناطیسی به خاطر وجود بی‌نظمی اسپینی، حامل‌های بار در نواحی موضعی فرومغناطیسی در مقیاس ۱ nm گیر می‌افتند. این موضوع منجر به تشکیل پولارون‌های مغناطیسی می‌شود [۱، ۴۴، ۴۵، ۴۷-۴۹]. در فاز فرومغناطیسی نیز دیواره حوزه‌های مغناطیسی به خاطر بی‌نظمی اسپینی که در آنها وجود دارد، باعث گیر افتادن حامل‌های بار می‌شوند [۵، ۴۷].

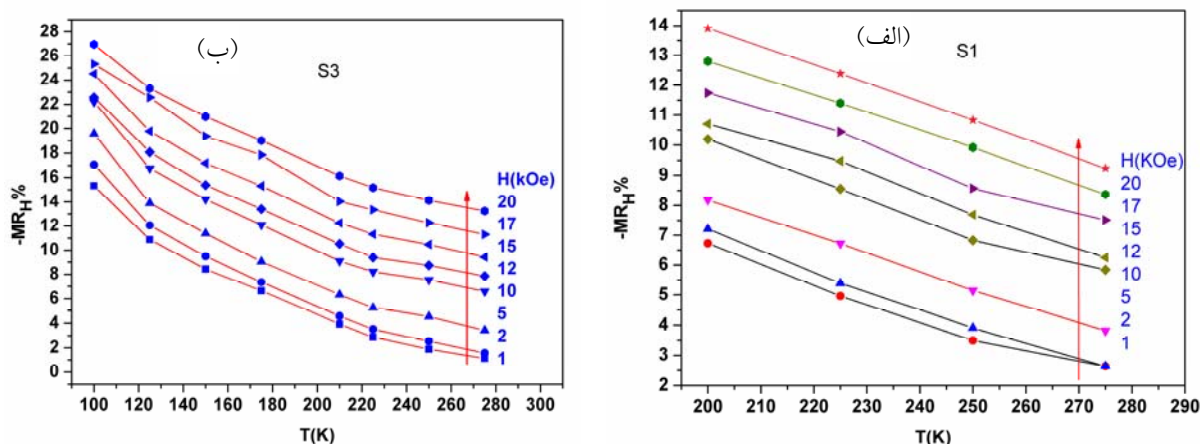
۱. Magnetic localization

۲. Breathing-type distortion

۳. Lattice polaron



شکل ۶. (رنگی در نسخه الکترونیکی) مقاومت ویژه الکتریکی بر حسب دما و در حضور میدان‌های مغناطیسی اعمالی (الف) نمونه S1 و (ب) نمونه S3.



شکل ۷. (رنگی در نسخه الکترونیکی) مغناطی مقاومت بر حسب دما و در حضور میدان‌های مغناطیسی اعمالی مختلف (الف) نمونه S1 و (ب) نمونه S3.

مثبت شدن آن به مفهوم افزایش مقاومت الکتریکی در حضور میدان مغناطیسی است.

در شکل ۷ مغناطی مقاومت دو نمونه S1 و S3 بر حسب دما و در میدان‌های مغناطیسی مختلف نشان داده شده است. از شکل ۷ دیده می‌شود که با افزایش میدان مغناطیسی اعمالی و یا کاهش دما، مقدار مغناطی مقاومت برای هر دو نمونه تقریباً به صورت خطی افزایش می‌یابد. مقدار مغناطی مقاومت نمونه S1 با افزایش میدان مغناطیسی از ۱ kOe به ۲۰ kOe، در دمای ۲۷۵ کلوین از ۰.۲۵٪ به بیش از ۱.۰٪ و در دمای ۲۰۰ کلوین، از ۰.۶٪ به ۱.۴٪ افزایش می‌یابد. چنین رفتاری برای مغناطی مقاومت در نمونه S3 ولی با مقادیر بیشتر نیز مشاهده می‌شود. مقدار

تونل زنی در بین دانه‌ها می‌شود و در دماهای پایین‌تر از دمای کوری که فاز فرومغناطیسی قوی‌تر می‌شود، سهم بزرگتری در افزایش مقاومت الکتریکی خواهند داشت.

مغناطی مقاومت (MR) به تغییر نسبی مقاومت ویژه الکتریکی بخاطر اعمال میدان مغناطیسی گفته می‌شود. مغناطی مقاومت به صورت درصدی و به شکل زیر تعریف می‌شود [۱، ۲].

$$MR = \frac{\rho(H) - \rho(0)}{\rho(H)} \times 100 \quad (2)$$

در این رابطه $\rho(H)$ و $\rho(0)$ به ترتیب مقاومت ویژه الکتریکی در غیاب و در حضور میدان مغناطیسی H می‌باشند. مغناطی مقاومت می‌تواند مثبت یا منفی باشد. از دیدگاه فیزیکی منفی شدن مغناطی مقاومت به مفهوم کاهش مقاومت الکتریکی و

مغناطومقاومت نیز بیشتر است.

۴. نتیجه‌گیری

در این تحقیق منگنیت تک‌فاز $\text{La}_{0.7}\text{(Sr}_{1-x}\text{Ba}_x)_{0.3}\text{MnO}_3$ با اندازه بلورک‌های بین ۱۸ تا ۲۸ نانومتر به روش سل ژل ساخته شده است. خواص ساختاری با تحلیل ریتولد طیف‌های پراش پرتوی ایکس بررسی شده است. خواص الکتریکی با اندازه‌گیری مقاومت ویژه بر حسب دما و میدان مغناطیسی بررسی شده است. نتایج به دست آمده نشان می‌دهد که نمونه‌ها دارای دمای کوری بالاتر از دمای اتاق هستند. در حالی که دمای گذار فاز عایق-فلز در دو نمونه S1 و S3 کاهش یافته و پائین‌تر از دمای اتاق می‌باشد. اعمال میدان مغناطیسی باعث کاهش شدید مقاومت الکتریکی در نمونه‌ها می‌شود و مقدار مغناطومقاومت تقریباً به صورت خطی با کاهش دما و یا افزایش میدان مغناطیسی، افزایش می‌یابد. در میدان اعمالی 20 kOe در نمونه S1 مقدار مغناطومقاومت در دمای 275 K کلین 10% و در دمای 200 K کلین 14% است. این مقدار برای نمونه S3 در دمای 275 K کلین 13% و در دمای 100 K کلین 27% می‌باشد. نتایج به دست آمده بر حسب پراکندگی اسپینی حامل‌های بار از مرزدهانه‌ها و تونل‌زنی وابسته به اسپین آنها در بین‌دانه‌ها توصیف شده است.

تشکر و قدردانی

آز آقایان دکتر هادی سلامتی، دکتر پرویز کاملی و دکتر محمد اخوان به خاطر فراهم آوردن امکانات آزمایشگاهی، راهنمایی و ارائه پیشنهادهای سازنده و همچنین از آقایان دکتر حسین احمدوند و دکتر حسین خسروآبادی به خاطر کمک در انجام برخی از اندازه‌گیری‌ها صمیمانه تشکر و قدردانی می‌نمائیم.

مغناطومقاومت نمونه S3 با افزایش میدان مغناطیسی از 1 kOe به 20 kOe ، در دمای 275 K کلین از 1% به 13% و در دمای 210 K کلین، از 3% به 16% و در دمای 100 K کلین از 15% به 27% افزایش می‌یابد. این مقادیر از مقادیر گزارش شده برای نمونه‌های کپه‌ای این منگنیت با اندازه دانه‌های میکرومتری بزرگتر است [۴۰]. مقادیر مناسب مغناطومقاومت برای استفاده در حسگرهای مغناطیسی حدود چند درصد است [۵۹-۶۱]. نتایج به دست آمده نشان می‌دهد که افزودن باریم به منگنیت LSMO باعث افزایش 3% و 10% در صدی مغناطومقاومت بین‌دانه‌ای در دماهای 275 K و 100 K کلین در آن می‌شود. نتایج به دست آمده در اینجا نشان می‌دهد که نانومنگنیت LSBMO گزینه مناسب است تا به عنوان حسگر مغناطیسی برای آشکار سازی میدان‌های مغناطیسی با مقادیر کوچک و میانی مورد استفاده قرار گیرد.

رفتار دیده شده برای مغناطومقاومت نمونه‌ها را می‌توان این گونه شرح داد: اعمال میدان مغناطیسی باعث موازی شدن مغناطش دانه‌ها و کاهش بی‌نظمی مغناطیسی در مرزدهانه‌ها می‌شود. در این شرایط تونل‌زنی وابسته به اسپین در بین‌دانه‌ها بهتر صورت می‌گیرد. علاوه بر این پراکندگی اسپینی در مرزدهانه‌ها نیز کاهش می‌یابد. بنابراین با اعمال میدان مغناطیسی عوامل ایجاد مقاومت الکتریکی از بین رفته و یا تضعیف می‌شوند. در نتیجه مقاومت الکتریکی کاهش یافته و مغناطومقاومت افزایش می‌یابد. به خاطر این که بخش بزرگی از مقاومت الکتریکی ایجاد شده به واسطه بی‌نظمی مغناطیسی است که با اعمال میدان‌های مغناطیسی کوچک برداشته می‌شوند، مغناطومقاومت در نمونه‌های بس بلور و در میدان‌های کوچک مقدار قابل توجهی دارد. هر چه دما پائین‌تر باشد، نظم مغناطیسی بیشتر است. در نتیجه میزان تغییر مقاومت الکتریکی با میدان مغناطیسی بیشتر بوده و

مراجع

Colossal Magnetoresistance: the Physics of Manganites and Related Compounds, Springer Verlag (2003).

1. J M D Coey, M Viret, and S Von Molnar, *Adv. Phys.* **58** (2009) 571.
2. E Dagotto, "Nanoscale Phase Separation and

22. A Rostamnejadi, M Venkatesan, P Kameli, H Salamati, and J Coey, *J. Magn. Magn. Mater.* **323** (2011) 2214.
23. M Bandyopadhyay and S Dattagupta, *Phys. Rev. B* **74** (2006) 214410.
24. R Bhowmik, A Poddar, R Ranganathan, and C Mazumdar, *J. Appl. Phys.* **105** (2009) 113909.
25. A Biswas, T Samanta, S Banerjee, and I Das, *Appl. Phys. Lett.* **92** (2008) 212502.
26. J Curiale, M Granada, H Troiani, R Sánchez, A Leyva, P Levy, and K Samwer, *App. Phys. Lett.* **95** (2009) 043106.
27. S Dong, F Gao, Z Wang, J M Liu, and Z Ren, *Appl. Phys. Lett.* **90** (2007) 082508.
28. J Dormann, D Fiorani, R Cherkaoui, E Tronc, F Lucari, F D'Orazio, L Spinu, M Nogues, H Kachkachi, and J Jolivet, *J. Magn. Magn. Mater.* **203** (1999) 23.
29. Z Jirak, E Hadov, O Kaman, K Knizek, M Marysko, E Pollert, M Dlouha, and S Vratislav, *Phys. Rev. B* **81** (2010) 024403.
30. P E Jönsson, *Adv. Chem. Phys.* **128** (2004).
31. S Cheng and J Lin, *J. Appl. Phys.* **98** (2005) 114318.
32. H Hwang, S W Cheong, and B Batlogg, *App. Phys. Lett.* **68** (1996) 3494.
33. X Li, A Gupta, G Xiao, and G Gong, *App. Phys. Lett.* **71** (1997) 1124.
34. N Mathur, G Burnell, S Isaac, T Jackson, B S Teo, J MacManus-Driscoll, L Cohen, J Evetts, and M Blamire, *Nature* **387** (1997) 266.
35. J Rivas, L Hueso, A Fondado, F Rivadulla, and M Lopez-Quintela, *J. Magn. Magn. Mater.* **221** (2000) 57.
36. A Rostamnejadi, H Salamati, P Kameli, and H Ahmadvand, *J. Magn. Magn. Mater.* **321** (2009) 3126.
37. J Rodríguez-Carvajal and T Roisnel, "Line Broadening Analysis Using FullPr of: Determination of Microstructural Properties", Trans. Tech. Publ. (2004) 123.
38. J Rodríguez-Carvajal, *Physica B: Cond. Matter*, **192** (1993) 55.
39. B D Cullity and S Stock, "Elements of X-ray Diffraction", Prentice Hall (2002).
40. Z Zainuddin, S Halim, K Lim, O Lee, C Walter, Z Talib, and Z Hishamuddin, "Structure, Magnetoresistance and Magnetism of La 0.67 (Sr 1-x
3. M B Salamon and M Jaime, *Rev. Mod. Phys.* **73** (2001) 583.
4. P Siwach, H Singh, and O Srivastava, *J. Phys. Cond. Matter* **20** (2008) 273201.
5. M Ziese, *Rep. Progr. Phys.* **65** (2002) 143.
۶. م حکیمی، پ کاملی، ه سلامتی، م اشراقی و آ اعظمی، مجله پژوهش فیزیک ایران **۸** (۲۰۰۸) ۷۹.
6. M Hakimi, P Kameli, H Salamati, M Eshraghi, and A Aezami, *Iranian Journal of Physics Research*, **8**, 2 (2008) 79.
7. E Dagotto, *New J. Phys.* **7** (2005) 67.
8. A Moreo, S Yunoki, and E Dagotto, *Science* **283** (1999) 2034.
9. M Ehsani, M Ghazi, P Kameli, and J Moradi, *J. Super. Nov. Magn.* **29** (2016) 2969.
10. A E -M A Mohamed, V Vega, M Ipatov, A Ahmed, and B Hernando, *J. Alloy Comp.* **657** (2016) 495.
11. A Shelke, G Ghodake, D -Y Kim, A Ghule, S Kaushik, C Lokhande, and N Deshpande, *Ceram. Intern.* **42** (2016) 12038.
12. Y Wu, X Ning, Z Wang, Q Wang, and Z Zhang, *J. Alloys Comp.* **667** (2016) 317.
13. K Das, P Dasgupta, A Poddar, and I Das, *Sci. Rep.* **6** (2016) 20351.
14. R Cortés-Gil, M L Ruiz-González, D González-Merchante, J M Alonso, A Hernando, S Trasobares, M Vallet-Regí, J M Rojo, and J M González-Calbet, *Nano Letters* **16** (2015) 760.
15. J Jeon, H Alagoz, J Jung, and K Chow, *App. Phys. Lett.* **107** (2015) 052402.
16. M Pēkała, K Pēkała, and V Drozd, *J. Appl. Phys.* **117** (2015) 175902.
17. M Romero, R Faccio, H Pardo, M A Tumelero, B Montenegro, C C P Cid, A A Pasa, and Á W Momburú, *J. Mater. Chem. C* **3**, 1 (2015) 12047.
18. Y Wang and H J Fan, *Appl. Phys. Lett.* **98** (2011) 142502.
19. S Giri, M Patra, and S Majumdar, *J. Phys. Cond. Matter* **23** (2011) 073201.
20. J Nogués, J Sort, V Langlais, V Skumryev, S Suriñach, J S Muñoz, and M D Baró, *Phys. Rep.* **422** (2005) 65.
21. A Rostamnejadi, M Venkatesan, J Alaria, M Boese, P Kameli, H Salamati, and J Coey, *J. Appl. Phys.* **110** (2011) 043905.

52. J Cohn, C Chiorescu, and J Neumeier, *Phys. Rev. B* **72** (2005) 024422.
53. M Quijada, Jerne, J Simpson, H Drew, K Ahn, A Millis, R Shreekala, R Ramesh, M Rajeswari, and T Venkatesan, *Phys. Rev. B* **58** (1998) 16093.
54. C Hartinger, F Mayr, A Loidl, and T Kopp, *Phys. Rev. B* **73** (2006) 024408.
55. P Wagner, I Gordon, S Mangin, V Moshchalkov, Y Bruynseraede, L Pinsard, and A Revcolevschi, *Phys. Rev. B* **61** (2000) 529.
56. M Pissas, and A Simopoulos, *J. Phys. : Cond. Matter.* **16** (2004) 7419.
57. J S Zhou, and J Goodenough, *Phys. Rev. B* **66** (2002) 052401.
58. X Wang, S Dou, H Liu, M Ionescu, and B Zeimetz, *App. Phys. Lett.* **73** (1998) 396.
59. Y Xu, V Dworak, A Drechsler, and U Hartmann, *App. Phys. Lett.* **74** (1999) 2513.
60. L Balcells, and A Carrillo, *J. Magn. Magn. Mater.* **221** (2000) 224.
61. P Ripka, “*Magnetic Sensors and Magnetometers*”, Artech House (2001).
- Ba x) 0.33 MnO 3 Perovskite*”, AIP Conference Proceedings 1017 (2008) 259.
41. J M D Coey, “*Magnetism and Magnetic Materials*”, Cambridge University Press (2010).
42. A Rostamnejadi and M Safa, *Iran. J. Phys. Res.* **5** (2005) 235.
43. M Viret, L Ranno, and J Coey, *Phys. Rev. B*, **55** (1997) 8067.
44. J M D Coey, M Viret, L Ranno, and K Ounadjela, *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 3910.
45. J M D Coey, *Phil. Trans. A* **356** (1998) 1519.
46. R Berger, J C Bissey, and J Kliava, *J. Phys. C: Cond. Matter* **12** (2000) 9347.
47. M Ziese and C Srinitiwawong, *Phys. Rev. B* **58** (1998) 11519.
48. H Meskine, T Saha-Dasgupta, and S Satpathy, *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 56401.
49. H Meskine and S Satpathy, *J. Phys. Cond. Matter.* **17** (2005) 1889.
50. G Zhao, V Smolyaninova, W Prellier, and H Keller, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 6086.
51. A Machida, Y Moritomo, and A Nakamura, *Phys. Rev. B* **58** (1998) 4281.