



STUDY THE RESISTIVITY CURVE IN THE MAGNETIZATION PROCESS OF THE DOPED PEROVSKITE MANGANITE

Nguyen Thi Kim Oanh¹, Vu Quang Tho²

¹ Electric Power University, Vietnam

² Tan Trao University, Vietnam

Email address: oanhnt@epu.edu.vn

DOI: <https://doi.org/10.51453/2354-1431/2022/745>

Article info

Received: 28/3/2022

Revised: 14/05/2022

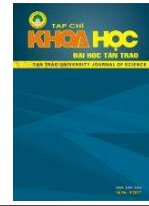
Accepted: 01/06/2022

Keywords:

magnetization plateau,
Ising model, the
competitive interaction,
first order magnetization
process

Abstract:

In this paper, we have studied the character of the resistivity curve through the spin Ising model containing the competition of ferromagnetic and antiferromagnetic interactions by using the mean-field analytic method for nearest-neighbor interactions. The results show that the plateaus emerge in the resistivity curve, and they have relatively significant similarities between the theoretical research and experiments of perovskite manganite $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Mn}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{O}_3$. Moreover, show that the properties of these plateaus as the number, position, and height significantly depend on the model's parameters: the number of nearest-neighbor interactions z , the probability p , and the fluctuation Δ .



KHẢO SÁT ĐƯỜNG CONG TỪ TRỞ TRONG QUÁ TRÌNH TỪ HÓA CỦA PEROVSKITE MANGAN PHA TẠP

Nguyễn Thị Kim Oanh¹, Vũ Quang Thọ²

¹Đại học Điện lực, Việt Nam

²Đại học Tân Trào, Việt Nam

Địa chỉ email: oanhnt@epu.edu.vn

DOI: <https://doi.org/10.51453/2354-1431/2022/745>

Thông tin bài viết

Ngày nhận bài: 28/3/2022

Ngày sửa bài: 14/05/2022

Ngày duyệt đăng: 01/06/2022

Từ khóa:

từ hóa loại I, bước nhảy từ, mô hình Ising, cạnh tranh tương tác...

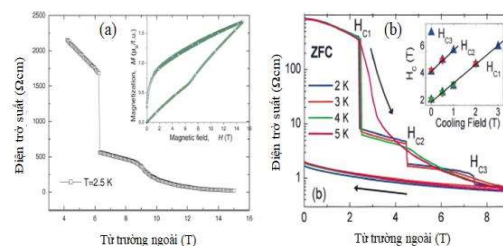
Tóm tắt

Trong nghiên cứu này, chúng tôi tiến hành khảo sát tính chất của đường cong từ trở trong mô hình Ising có cạnh tranh tương tác sắt từ và phản sắt từ bằng phương pháp giải tích trường trung bình tương quan gần. Kết quả cho thấy xuất hiện các bước nhảy trong đường cong từ trở và các bước nhảy này có dạng tương đồng với các bước nhảy xảy ra trong vật liệu Perovskite mangan pha tạp $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Mn}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{O}_3$. Bên cạnh đó, chúng tôi cũng nhận thấy số lượng các bước nhảy từ cũng như vị trí và độ cao của các bước nhảy phụ thuộc vào số tương tác lân cận gần nhất z , xác suất cạnh tranh giữa tương tác sắt từ - phản sắt từ p và độ thẳng giáng Δ .

1. Mở đầu

Quá trình từ hóa loại I là một quá trình là một hiện tượng thú vị xảy ra trong rất nhiều nhóm vật liệu từ. Quá trình này xảy ra dưới tác dụng của từ trường ngoài trong đó đường cong từ hóa xuất hiện các bước nhảy đột ngột ở một số giá trị từ trường tới hạn tương ứng với quá trình chuyển pha xảy ra từ trạng thái từ này sang trạng thái từ khác [2]. Hiện tượng độc đáo này đã được quan sát thấy trong nhóm vật liệu từ có chứa các đám nguyên tử cạnh tranh tương tác với nhau, ví dụ điển hình là các perovskite mangan pha tạp có công thức hóa học $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_3$ (trong đó M có thể là kim loại Co hoặc Ga...) [1,3]. Đây là nhóm vật liệu phân tách pha với rất nhiều loại tương tác cạnh tranh phức tạp. Đặc biệt ở dưới nhiệt độ phân tách pha, có hai loại tương tác cạnh tranh nổi bật là pha sắt từ và phản sắt từ. Các nghiên cứu lý thuyết trước đó chỉ ra rằng, tính chất từ của vật liệu này chủ yếu xuất phát từ tương tác giữa các ion (ion) Mangan [4]. Ion

Mangan có hai loại hóa trị là Mn^{3+} và Mn^{4+} phân bố ngẫu nhiên trong mạng tinh thể. Tương tác giữa các ion Mangan cùng hóa trị hình thành tương tác phản sắt từ (AF) trong khi đó tương tác trao đổi giữa các ion Mangan khác hóa trị hình thành tương tác sắt từ (FM). Chính sự cạnh tranh giữa hai loại tương tác này đã gây ra dạng bậc thang trong đường cong từ hóa và đường cong từ trở. Hình 1 dưới đây biểu diễn các bước nhảy từ xuất hiện trong đường cong từ trở của vật liệu đa tinh thể perovskite mangan pha tạp đo được từ thực nghiệm.



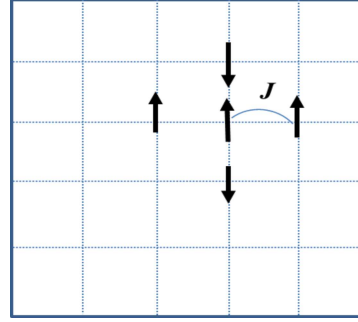
Hình 1: Đường cong từ trở trong một số vật liệu perovskite mangan (1a [1], 1b [3])

Trong nghiên cứu trước đây, chúng tôi đã đề xuất khảo sát mô hình Ising spin định xứ có cạnh tranh tương tác FM và AF và thấy rằng mô hình này mô tả được khá tốt cơ chế hình thành các bước nhảy trong đường cong từ hóa của một số vật liệu đa tinh thể perovskite mangan pha tạp [5]. Trong vật liệu, các ion Mangan ở lớp ngoài cùng 3d phân tách thành hai trạng thái là trạng thái định xứ t_{2g} và kích thích e_g . Các electron linh động e_g có thể nhảy sang các vị trí lân cận một cách dễ dàng. Tuy nhiên, trong giới hạn nghiên cứu này, chúng tôi khảo sát cho trường hợp năng lượng tương tác trao đổi Hund J_H giữa các spin ở trạng thái t_{2g} và e_g lớn hơn rất nhiều so với động năng nhảy các hạt electron e_g là t . Lúc này, các electron e_g sẽ định hướng song song theo hướng của spin định xứ t_{2g} và có thể dễ dàng quay theo hướng của từ trường ngoài đặt vào, làm phát sinh trạng thái sắt từ. Do tính chất từ trong vật liệu chủ yếu được quyết định bởi tương tác giữa các spin định xứ lân cận gần nhất do đó chúng tôi xây dựng khảo sát cho mô hình của các spin định xứ tính đến tương tác lân cận gần nhất. Ở đây, các spin định xứ trên mỗi nút mạng đóng vai trò giống với spin của các electron định xứ ở trạng thái t_{2g} của ion Mangan.

Mô hình spin Ising định xứ với các tương tác lân cận gần nhất không thể mô tả được đầy đủ, chính xác các tương tác xảy ra bên trong vật liệu đa tinh thể perovskite mangan pha tạp, tuy nhiên mô hình Ising đơn giản đã làm rõ được cơ chế hình thành lên các bước nhảy từ độ dao trong đường cong từ hóa. Phát triển tính toán cho mô hình này, trong bài báo này chúng tôi tiếp tục khảo sát ảnh hưởng của cạnh tranh tương tác lên đường cong từ trở. Chúng tôi cũng đã tìm thấy các bước nhảy từ xuất hiện trong đường cong từ trở và có dạng tương đồng với các bước nhảy từ đo được từ thực nghiệm của vật liệu $Pr_{0.5}Ca_{0.5}Mn_{0.97}Ga_{0.03}O_3$ [1]. Bên cạnh đó, chúng tôi cũng khảo sát ảnh hưởng của cường độ tương tác, xác suất cạnh tranh tương tác và độ thăng giáng lên vị trí các bước nhảy từ trong đường cong từ trở.

2. Mô hình và phương pháp giải tích trường trung bình

Mô hình Ising được phát minh bởi nhà vật lý học Wilhelm Lenz vào đầu thế kỷ 20 áp dụng khảo sát cho các chất sắt từ [6]. Hình 2 dưới đây mô tả mô hình mạng Ising hai chiều với tương tác giữa hai spin lân cận gần nhất có cường độ là J . Mỗi nút mạng bị chiếm giữ bởi một spin hướng lên (spin up) hoặc spin hướng xuống (spin down). Khi các spin sắp xếp theo hướng song song tương ứng với tương tác FM ($J > 0$), còn đối song song tương ứng là tương tác AF ($J < 0$).



Hình 2: Mô hình mạng vuông Ising với 4 tương tác lân cận gần nhất, J là cường độ tương tác giữa hai spin lân cận gần nhất, spin up và spin down được biểu diễn lần lượt bằng mũi tên hướng lên và hướng xuống.

Hamiltonian của mô hình Ising có cạnh tranh tương tác giữa pha sắt từ và phản sắt được biểu diễn như sau:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i \neq k} J_{ik} S_i S_k - h \sum_i S_i. \quad (1)$$

Trong đó số hạng thứ nhất trong Hamiltonian mô tả tương tác giữa hai nút lân cận gần nhất i, k , số hạng thứ hai mô tả tác dụng của từ trường đặt vào với cường độ h . Ở đây, S_i, S_k là các spin ở vị trí nút thứ i, k ; J_{ik} là tích phân trao đổi giữa hai nút mạng i, k và tuân theo quy luật phân bố như sau:

$$P(J_{ik}) = p \delta[J_{ik} - J_{FM}] + (1-p) \delta[J_{ik} - J_{AF}], \quad (2)$$

$$J_{FM} = J(1 + \Delta); J_{AF} = J(1 - \Delta) \quad (3)$$

Ở đây, J_{FM} và J_{AF} là giá trị trung bình của cường độ tương tác FM và AF với xác suất thăng giáng lần lượt là p và $1-p$; J là giá trị trung bình của tích phân trao đổi và để đơn giản chúng tôi chọn $J = 1$; Δ là độ thăng giáng của tích phân trao đổi và giá trị của Δ luôn được chọn lớn hơn 1.

Để giải quyết Hamiltonian (1), chúng tôi sử dụng phương pháp giải tích trường trung bình với khai triển hệ thức Callen [7]. Lời giải chi tiết đã được công bố trong bài báo trước đó, độc giả có thể xem lại trong tài liệu tham khảo [5]. Ở đây, chúng tôi chỉ nhắc lại công thức cuối cùng mà chúng tôi thu được.

Áp dụng khai triển hệ thức Callen cho biểu thức mômen từ tỷ đối trung bình trên mỗi nút mạng là $m = \langle \langle S_i \rangle \rangle_r$, chúng tôi thu được phương trình đại số của mômen từ tỷ đối trên mỗi nút mạng phụ thuộc vào khai triển nhị thức C_x^n và hệ số A_n có chứa các biến tham số là nhiệt độ τ ($\tau = k_B T / J$), xác suất phân bố cạnh tranh tương tác p , độ thăng giáng Δ , số lân cận gần nhất z và từ trường ngoài h như sau:

$$m = \sum_{n=0}^z C_z^n A_n(\tau, p, \Delta, z, h) m^n, \quad (4)$$

$$A_n = \int_0^{\infty} \frac{a^{z-n}(t)b^n(t)}{\sinh\left(\frac{\pi t}{2}\right)} \sin\left(\frac{ht}{\tau} + \frac{n\pi}{2}\right) dt \quad (5)$$

$$a = p \cos[\beta J(1+\Delta)t] + (1-p) \cos[\beta J(1-\Delta)t], \quad (6)$$

$$b = p \sin[\beta J(1+\Delta)t] + (1-p) \sin[\beta J(1-\Delta)t].$$

Kết quả của phương trình (4) được áp dụng để tính điện trở suất tỷ đối của hệ từ theo biểu thức liên hệ sau:

$$MR = \frac{\rho_h(\tau, h)}{\rho_0(\tau)} = \frac{1}{1 + P^2 m^2}, \quad (7)$$

Trong công thức (7) P là độ phân cực dẫn được ước lượng theo số hình chiếu spin up n_{\uparrow} và spin down n_{\downarrow} của điện tử e_g

$$P = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}} = \tanh\left[\frac{J_H}{J\tau}\left(S + \frac{1}{2}\right)\right] \quad (8)$$

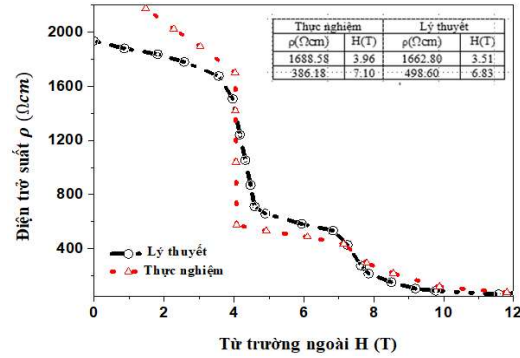
Nghiệm của phương trình (4) và (7) được chúng tôi giải bằng phương pháp tính toán số dựa trên phần mềm Matlab.

3. Kết quả và thảo luận

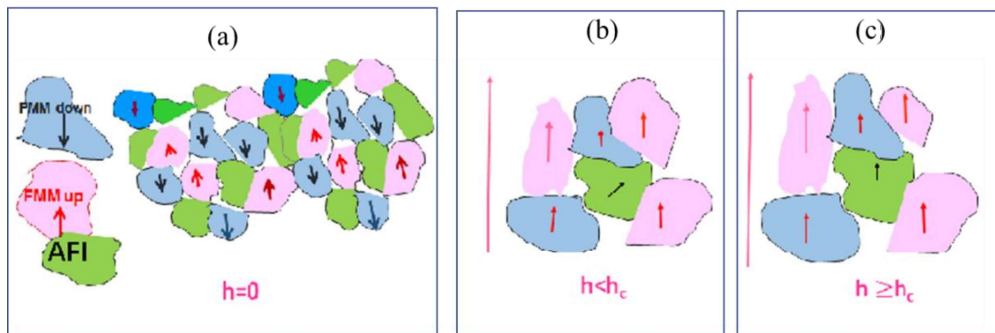
Thực nghiệm đã chứng minh các bước nhảy bậc tương ứng với quá trình từ hóa loại I của các vật liệu perovskite mangan pha tạp chỉ được quan sát thấy ở vùng nhiệt độ thấp [1,3]. Bài toán mô hình mà chúng tôi khảo sát cũng cho các kết quả tương tự [5]. Ngoài khảo sát quá trình từ hóa, thực nghiệm cũng đã tiến hành đo điện trở suất và thu được các bước nhảy tương ứng với các bước nhảy tương ứng với các bước nhảy trong đường cong từ hóa. Ở nhiệt

độ thấp, điện trở suất có xu hướng giảm mạnh khi từ trường ngoài đặt vào được tăng cường. Để đánh giá hiệu quả của lý thuyết mô hình Ising cạnh tranh tương tác, trong nghiên cứu này chúng tôi tiếp tục phát triển khảo sát điện trở suất của mô hình và so sánh với kết quả thực nghiệm cho vật liệu $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Mn}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{O}_3$. Các kết quả dưới đây đều được khảo sát ở nhiệt độ $T = 0.001$ (nhiệt độ không thứ nguyên).

Trước đó, chúng tôi đã khảo sát ảnh hưởng của các tham số lên các bước nhảy từ trong đường cong từ hóa [5], từ đó chúng tôi lựa chọn được các tham số phù hợp để khớp giữa kết quả lý thuyết và thực nghiệm cho đường từ trở. Hình 3 mô tả sự phù hợp giữa đường cong từ trở theo lý thuyết chúng tôi tính toán cho mô hình Ising có cạnh tranh tương tác FM và AF và so sánh với kết quả thực nghiệm của vật liệu $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Mn}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{O}_3$ [1]. Có thể thấy rằng, đường cong lý thuyết khá tương đồng với thực nghiệm về hình dạng cũng như vị trí của các bước



Hình 3: Đồ thị so sánh đường cong điện trở suất lý thuyết và thực nghiệm

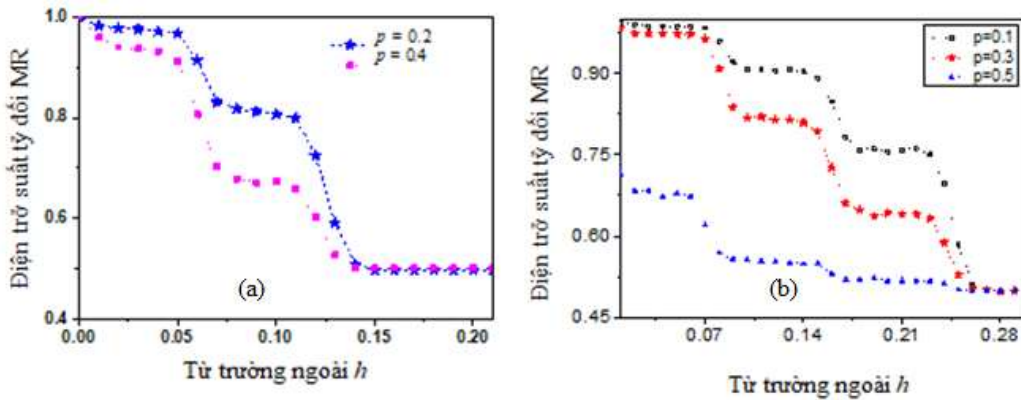


Hình 4: Hình ảnh mô tả cơ chế hình thành các bước nhảy trong từ trường ngoài. Mũi tên ngoài cùng bên trái trong hình (b) và (c) chỉ hướng của từ trường ngoài thẳng đứng theo trục z ; (a) Khi từ trường ngoài $h = 0$, hệ thống chứa đồng thời các nhóm tương tác FM và phân sắt từ cách điện AFI; (b) Khi có từ trường ngoài h đặt vào, một số cụm FM và AFI nhỏ bắt đầu quay theo hướng từ trường ngoài; (c) Khi từ trường lớn hơn từ trường tới hạn $h \geq h_c$, số lượng lớn các đám FM và AFI đột ngột quay theo hướng từ trường ngoài sinh ra bước nhảy từ.

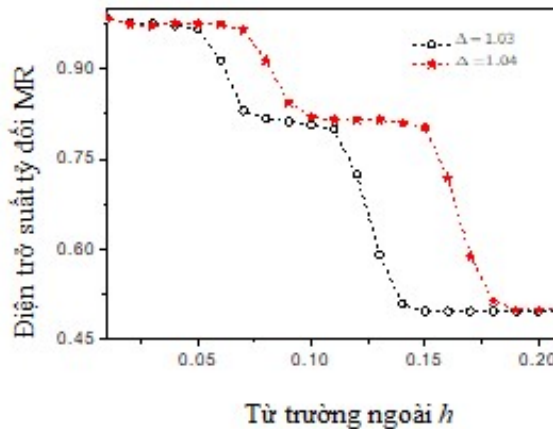
nhảy được thể hiện trong bảng đính kèm ở Hình 3. Sự hình thành bước nhảy trong đường cong từ trở hoàn toàn tương ứng với các bước nhảy từ trong đường cong từ hóa theo công thức (7) theo lý thuyết truyền đạn đạo Landauer và biến đổi Inoue – Maekawa [8] điện trở suất tỷ đối tỷ lệ nghịch với bình phương của mômen từ tỷ đối. Do đó, khi mômen từ tăng đột ngột trong từ trường ngoài thì điện trở suất cũng giảm đột ngột tại các giá trị xác định đó. Cơ chế hình thành các bước nhảy từ được biết đến xuất phát từ sự cạnh tranh tương tác tồn tại bên trong hệ thống ban đầu. Hệ thống chứa đồng thời các đám tương tác khác nhau là FM và AF, khi đến ngưỡng từ trường xác định, một số lượng lớn các đám AF lật theo hướng từ trường ngoài và tạo thành các bước nhảy đột ngột. Cơ chế này được mô tả như trong Hình 4.

Để làm rõ vai trò của các tham số trật tự trong mô hình spin Ising cạnh tranh tương tác tương ứng với tính chất tương tác trong vật liệu thực, phần tiếp theo chúng tôi khảo sát ảnh hưởng của phân bố xác suất và độ thăng giáng lên các bước nhảy từ trong

đường cong từ trở. Hình 5 mô tả điện trở suất là hàm giảm nhảy bậc của từ trường ngoài h (đơn vị đo theo thang năng lượng J) ở các giá trị phân bố xác suất khác nhau tương ứng với số tương tác lân cận gần nhất $z = 4$ và $z = 6$. Khi tăng cường tương tác lân cận tương ứng số bước nhảy tăng lên, cụ thể với $z = 4$ hình thành 2 bước nhảy trong khi $z = 6$ có 3 bước nhảy xuất hiện. Các bước nhảy xuất hiện ở các giá trị từ trường tới hạn giống nhau ở các giá trị phân bố khác nhau, tuy nhiên xảy ra sự khác biệt trong độ lớn của các bước nhảy từ. Khi xác suất p tăng, độ lớn điện trở suất ở các bước nhảy giảm, điều này là hoàn toàn hợp lý. Có thể thấy trong công thức (2), xác suất p đặc trưng cho số tương tác FM còn AF là $(1-p)$ tương ứng với tỷ lệ nồng độ ion Mn^{3+} và Mn^{4+} trong hệ thống thực. Khi p tăng có nghĩa là $(1-p)$ giảm hay số lượng tương tác AF giảm nên gặp từ trường tới hạn, sẽ có ít hơn cụm tương tác AF bị đảo hướng. Trong đồ thị so sánh giữa kết quả lý thuyết và thực nghiệm ở Hình 3, xác suất phân bố có giá trị $p = 0.47$ tức là hệ thống có tỉ lệ tương tác FM và AF tương ứng khoảng 47% và 53%. Kết quả này khá



Hình 5: Sự phụ thuộc của điện trở suất tỷ đối vào từ trường ngoài với phân bố xác suất khác nhau và số lân cận (a) $z = 4$; (b) $z = 6$.



Hình 6: Sự phụ thuộc của điện trở suất tỷ đối vào từ trường ngoài với độ thăng giáng

tương đồng với kết quả thực nghiệm của vật liệu $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Mn}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{O}_3$, nồng độ ion Mn^{3+} và Mn^{4+} trong vật liệu tương ứng bằng với nồng độ của Ca pha tạp với Pr là 0.5, có nghĩa là tỉ lệ tương tác FM và AF đều chiếm khoảng 50%. Trong tương tác giữa 4 spin lân cận gần nhất, tỉ lệ khoảng 50% tương tác FM và 50% AF sẽ có 2 spin đảo ngược trong từ trường tới hạn và sinh ra hai bước nhảy. Tương tự khi hệ thống có 6 spin lân cận gần nhất, khi tỉ lệ tương tác FM và AF là 50% thì sẽ có 3 spin bị đảo ngược sinh ra ba bước nhảy.

Theo công thức (3), thành phần tương tác sắt từ chỉ biểu hiện khi giá trị $D > 1$ và độ thẳng giáng D liên hệ với nồng độ pha tạp Ga trong vật liệu. Hình 6 biểu diễn sự thay đổi của các bước nhảy từ khi độ thẳng giáng D thay đổi. Chúng tôi đã khảo sát ảnh hưởng của độ thẳng giáng lên quá trình từ hóa với các giá trị giới hạn, cho nên trong khảo sát này chúng tôi chỉ hai giá trị của tham số D phù hợp sinh ra các bước nhảy từ, qua đó tìm hiểu độ thẳng giáng sẽ ảnh hưởng lên các bước nhảy từ trong đường cong từ trở như thế nào? Quan sát Hình 6 có thể thấy rằng độ thẳng giáng thay đổi làm ảnh hưởng đến vị trí của các bước nhảy trong từ trường. Khi D tăng từ 1.03 lên giá trị 1.04, bước nhảy dịch về phía từ trường lớn, cụ thể bước nhảy thứ nhất thay đổi từ $h = 0.05$ đến $h = 0.07$ và bước nhảy thứ hai tăng từ $h = 0.12$ lên đến $h = 0.16$. Nguyên nhân là do khi độ thẳng giáng tăng có nghĩa là cường độ tương tác FM lẫn AF cũng được tăng cường, khi đó sẽ tồn tại nhiều năng lượng hơn để các cụm tương tác AF đảo ngược theo hướng từ trường ngoài.

Như vậy, mô hình Ising có cạnh tranh tương tác đã làm nổi bật được cơ chế cốt lõi bên trong hình thành các bước nhảy từ trong đường cong từ trở và đường cong từ trở của các vật liệu perovskite mangan pha tạp. Nguyên nhân chính là do sự cạnh tranh giữa các cụm tương tác FM và AF cùng tồn tại trong hệ thống ở nhiệt độ thấp. Trong mỗi vật liệu perovskite mangan pha tạp các nguyên tố khác nhau cũng như nồng độ khác nhau sẽ làm thay đổi tương tác bên trong hệ thống, hình thành các bước nhảy từ khác nhau, rất khó để có được một mô hình chính xác. Mục đích của chúng tôi trong nghiên cứu này tập trung vào nguyên nhân chính của hiện tượng, đó chính là các yếu tố cạnh tranh tương tác. Về mặt hiện tượng luận, các tham số của mô hình Ising đơn giản là xác suất phân bố p và độ thẳng giáng D hay số tương tác lân cận gần nhất z có mối liên hệ tương quan mật thiết đến nồng độ pha tạp của các chất trong hệ thống thực. Tuy nhiên, để làm rõ mối quan hệ này về mặt định tính cần thiết phải thực hiện

những khảo sát sâu sắc và chi tiết hơn nữa. Vấn đề này chúng tôi đang tìm hiểu và có thể sẽ công bố trong các nghiên cứu sau.

4. Kết luận

[1] Wu Y. Y., Li H. N., Xia Z. C., Huang Y., Ouyang Z. W., Li L., Xiao L. X., Peng L. P., Huang J. W. and Zuo H. K. (2011), "Magnetic field-induced metamagnetic transitions of $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{Mn}_{0.97}\text{Ga}_{0.03}\text{O}_3$ ", J. Appl. Phys. 110, 013907

[2] Buschow K. H. J., Wohlfarth E. P. (1990), "A handbook on the properties of magnetically ordered substances", Ferromagnetic materials 5, North-Holland printer

[3] Mahendiran R., Maignan A., Hebert S., Martin C., Hervieu M., Raveau B., Mitchell J. F. and Schiffer P. (2002), "Ultrasharp Magnetization Steps in Perovskite Manganites", Phys. Rev. Lett. 89, 286602

[4] Elbio Dagotto (2002), "Nanoscale Phase Separation and Colossal Magnetoresistance", Springer 2003rd edition

[5] Giang H. Bach, Oanh K. T. Nguyen, Chinh V. Nguyen and Cong T. Bach (2015), "First Order Magnetization Process in Polycrystalline Perovskite Manganite", Materials Transactions 9, pp. 1320 – 1322.

[6] <https://www.intechopen.com/chapters/71210>

[7] Callen H. B. (1963), "Green Function Theory of Ferromagnetism", Phys. Rev. 130, p. 890.

[8] Inoue J. and Maekawa S. (1996), "Theory of tunneling magnetoresistance in granular magnetic films", Phys. Rev. B 53, R11927.