

## بررسی تأثیر اعمال میدان مغناطیسی در هنگام پرس، بر روی خواص ساختاری، مغناطیسی و مغناطومقاومت ترکیب $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$

مهین اشراقی<sup>۱</sup>، پرویز کاملی<sup>۲</sup>، هادی سلامتی<sup>۲</sup> و اسماعیل عبدالحسینی سارسی<sup>۲</sup>

۱. دانشگاه پیام نور، مرکز نجف آباد  
۲. دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان

(دریافت مقاله: ۸۶/۳/۱۶؛ دریافت نسخه نهایی: ۸۶/۱۱/۲۴)

### چکیده

در این مقاله، دو نمونه همسانگرد (پرس نمونه در غیاب میدان مغناطیسی) و ناهمسانگرد (پرس نمونه در حضور میدان مغناطیسی) از ترکیب  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  تهیه شده است. برای بررسی خواص ساختاری، مغناطیسی و مغناطومقاومت نمونه‌ها از آنالیزهای XRD، SEM، همچنین اندازه‌گیریهای پذیرفتاری مغناطیسی ac و مغناطومقاومت نمونه‌ها استفاده شد. نتایج آزمایشها نشان می‌دهد که خواص مغناطیسی در نمونه ناهمسانگرد بهبود پیدا کرده و مغناطومقاومت آن کمی تضعیف شده است.

واژه‌های کلیدی: همسانگرد، ناهمسانگرد، مغناطومقاومت، منگنیت،  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$

### ۱. مقدمه

در این زمینه در کل دنیا شروع شود و پژوهشگران امید دارند در آینده‌ای نزدیک، این دسته از مواد، جایگزین مغناطومقاومت‌های بزرگ، GMRها، شوند. از زمان کشف پدیده مغناطومقاومت بسیار بزرگ، CMR، در ترکیب  $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$  (A = Sr, Ca, Ba)، تحقیقات زیادی بر روی خواص مختلف این دسته از مواد انجام گرفته است [۱-۴]. این دسته از منگنیتها، همزمان با یک رفتار عایق‌گونه- فلز به لحاظ الکتریکی، دارای رفتار پارا- فرو از لحاظ مغناطیسی هستند که طبق مدل تبادل دوگانه قابل توجیه است [۵]. اما پدیده CMR در میدان‌های مغناطیسی حدود چند تسلا و در بازه دمایی محدودی مشاهده می‌شود. اخیراً تأثیر مرزانه‌ها در منگنیت‌های پروسکایتی مورد مطالعه قرار گرفته است. هوانگ و همکارانش [۶] نشان دادند، حضور مرزانه‌ها در نمونه‌های بس بلور منجر به یک مغناطومقاومت بزرگ در میدانهای ضعیف، LFMR، و

امروزه به لحاظ تکنولوژی، علاقه زیادی به پدیده مغناطومقاومت، MR، در میان پژوهشگران و صنعتگران وجود دارد. مغناطومقاومت بر حسب درصد به صورت  $MR\% = \frac{(\rho_{(0)} - \rho_{(H)})}{\rho_{(0)}} \times 100$  تعریف می‌شود که در آن  $\rho_{(0)}$  و  $\rho_{(H)}$  به ترتیب، مقاومت نمونه بدون اعمال میدان و مقاومت نمونه با اعمال میدان است. این اثر، اهمیت زیادی در نحوه کار ابزارهایی از قبیل محیطهای ضبط مغناطیسی، حسگرهای مغناطیسی و آشکارسازهای فرسوخ دارد. اخیراً دسته‌ای از مواد کشف شده‌اند که در آنها مقاومت الکتریکی به عنوان یک خاصیت ذاتی بستگی به نظم مغناطیسی اسپینها دارد و تحت عنوان مغناطومقاومت‌های فوق‌العاده بزرگ، CMR، معروف هستند [۱]. این پدیده باعث شده است که تحقیقات گسترده‌ای

قالب تا فشار ۱۰ تن فشرده شدند (ساخت نمونه ناهمسانگرد در جهت میدان اعمالی).

اگر یک ذره یا پودر مغناطیسی که دارای گشتاور مغناطیسی است، در معرض میدان مغناطیسی قرار بگیرد، از طرف میدان به آن ذره مغناطیسی یک گشتاور مغناطیسی وارد می‌شود. با توجه به اینکه پودرها در محلول آبی گلیسرین در حضور میدان قرار گرفتند، به آنها آزادی حرکت داده می‌شود که با میدان اعمال شده بچرخند و در جهت میدان قرار بگیرد. اگر پودرها در حالت خشک تحت تأثیر میدان قرار می‌گرفتند، شرایط لازم برای چرخش فراهم نمی‌شد.

برای ساخت دومین نمونه، پودرهای تکلیس شده به صورت خشک در داخل قالب ریخته شده و به کمک دستگاه پرس، بدون اعمال میدان مغناطیسی و با همان فشار ۳۰ تن پرس شدند (ساخت نمونه همسانگرد).

قرصهای پرس شده در بوت‌های مخصوص، از جنس آلومینا قرار داده شدند و در داخل کوره لوله‌ای قابل برنامه‌ریزی به مدت ۲۴ ساعت و در دمای ۱۳۰۰ درجه سانتی‌گراد قرار گرفتند و نهایتاً تا دمای ۵۰۰ درجه سانتی‌گراد خنک شدند. بدین شکل تأثیر ناهمسانگردی، بین دو قرص ساخته شده، مورد بررسی قرار می‌گیرد.

بررسی ساختاری نمونه‌های به دست آمده به وسیله دستگاه پراش پرتوی ایکس، XRD، ساخت کارخانه فیلیپس مدل، XPERT، انجام شده است. ریخت شناسی نمونه‌های فوق به وسیله دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی ساخت شرکت فیلیپس مدل XL-۳۰ انجام شده است. پذیرفتاری مغناطیسی نمونه‌های به دست آمده به وسیله دستگاه اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی، ساخت شرکت Lake - Shore، مدل ۷۰۰۰ انجام شد و مغناطومت نمونه‌ها نیز به روش ۴ میله و به وسیله دستگاه اندازه‌گیری مقاومت، توسط یخچال مدار بسته، ساخت شرکت Leybold و همچنین الکترومگنت مدل B-E ۱۰، ساخت شرکت Bruck، با حداکثر میدان مغناطیسی ۱۵۰۰۰ اورستد اندازه‌گیری شد.

در یک بازه وسیعی از دما زیر دمای کوری می‌شود. تلاشهای زیادی مبنی بر افزایش LFMR تاکنون صورت گرفته است که از جمله می‌توان تأثیر آلیاژی LSMO/CeO<sub>۲</sub> [۷]، LSMO/xTiO<sub>۲</sub> [۸] و اضافه کردن پلیمرهای عایق [۹] را نام برد.

هدف ما در این مقاله، بررسی تأثیر اعمال میدان مغناطیسی، در هنگام پرس، بر روی خواص ساختاری، مغناطیسی و مغناطومت نمونه La<sub>۰.۸</sub>Sr<sub>۰.۲</sub>MnO<sub>۳</sub> است.

در ابتدا شرح مختصری از آزمایشها انجام شده ارائه خواهیم کرد. سپس آزمایشات را مورد تحلیل قرار می‌دهیم و بعد از آن به نتیجه‌گیری خواهیم پرداخت.

## ۲. آزمایشها

برای ساخت نمونه‌های LSMO (La<sub>۰.۸</sub>Sr<sub>۰.۲</sub>MnO<sub>۳</sub>) از روش مرسوم واکنش حالت جامد، در مجاورت هوا استفاده کردیم. مواد اولیه مورد نیاز برای ساخت نمونه La<sub>۰.۸</sub>Sr<sub>۰.۲</sub>MnO<sub>۳</sub> عبارتند از: La<sub>۲</sub>O<sub>۳</sub>، MnO<sub>۲</sub> و SrCO<sub>۳</sub> که دارای درجه خلوص بیش از ۹۹٪ هستند. از آنجائی که پودر La<sub>۲</sub>O<sub>۳</sub> جاذب رطوبت است، جهت کم شدن خطا در استوکیومتری دقیق ترکیبات فوق، این پودر قبل از توزین، در داخل کوره مکعبی در دمای ۸۰۰ درجه سانتی‌گراد و به مدت ۷ ساعت قرار داده شده است. بعد از بیرون آوردن La<sub>۲</sub>O<sub>۳</sub> از کوره، بلافاصله عمل توزین انجام شد. سپس نمونه‌ها به وسیله آسیاب دستی صورت گرفت و نهایتاً یک پودر خاکستری رنگ به دست آمد. پودرهای به دست آمده در کروزه‌های آلومینا ریخته شده و در کوره‌های مکعبی برای مدت ۲۴ ساعت در دمای ۱۱۰۰ درجه سانتی‌گراد تکلیس شدند.

پس از اتمام مراحل تکلیس، از مخلوط به دست آمده، دو نمونه، با دو فرایند پرس متفاوت، تهیه شد. برای ساخت اولین نمونه، پودرهای تکلیس شده به صورت محلول آبی (گلیسرین) در داخل قالب ریخته شدند و با قرار دادن قالب در وسط پیچ‌هاوی جریان I و به کمک دستگاه پرس، ضمن اعمال میدان مغناطیسی به اندازه ۸۰۰۰ اورستد به موازات محور

### ۳. تحلیل و بررسی نتایج

برای حصول اطمینان از تشکیل فازهای مورد نظر و همچنین تعیین ساختار بلوری و محاسبه ثابت‌های شبکه در دمای اتاق، از پراش پرتوهای X استفاده می‌شود. در این تحقیق از پراش X با طول موج  $\lambda = 1/5406 \text{ \AA}$  استفاده شد. متأسفانه کارتهای استاندارد این دسته از ترکیبات کمیاب است، بنابراین سعی شده از تازه‌ترین اطلاعات موجود در مقاله‌ها برای تعیین سیستم بلوری و تعیین صفحات در طول پراش استفاده شود. فاصله بین صفحات موجود در طول پراش توسط نرم افزار دستگاه XRD قابل محاسبه است. پس از تعیین سیستم بلوری و دانستن فاصله بین صفحات، ثابت‌های شبکه را براساس روابط مربوط به هر سیستم بلوری محاسبه می‌کنیم. برای تعیین ساختار بلوری و محاسبه ثابتهای شبکه، طبق اطلاعات گزارش شده و نمودار فازی، منگنیت  $\text{La}_{0.8} \text{Sr}_{0.2} \text{MnO}_3$  دارای ساختار بلوری لوزی وجه است [۱۰]. برای تعیین ثابتهای شبکه این ترکیب، از تبدیل ساختاری لوزی وجه به شش گوشه، استفاده می‌کنیم [۱۱].

شکل ۱ الگوی پراش پرتوهای X را برای دو نمونه  $\text{La}_{0.8} \text{Sr}_{0.2} \text{MnO}_3$  (نمونه همسانگرد و ناهمسانگرد) نشان می‌دهد. تحلیل XRD نشان می‌دهد که هر دو نمونه ساختار لوزی وجه دارند.

همان‌طور که می‌دانیم، هر ذره از چندین دانه و هر دانه از چندین حوزه تشکیل شده است. با آنالیز XRD، اندازه دانه‌ها، Crystallites، و با آنالیز SEM، اندازه ذرات، به دست می‌آید. مشاهده می‌شود که شدت قله‌های XRD در نمونه ناهمسانگرد افزایش یافته و تیزتر از نمونه همسانگرد است. طبق معادله شرر [۱۱]، که به صورت  $D = \frac{0.9\lambda}{B \cos \theta_B}$  تعریف می‌شود،  $\lambda$  طول موج پرتوی فرودی، B عرض قله در نصف بیشینه،  $\theta_B$  زاویه براگ و D اندازه دانه‌ها است. مطابق با این معادله، هر چه قله‌های مربوط به XRD تیزتر باشد، اندازه دانه‌ها بزرگتر است. با استفاده از معادله شرر اندازه دانه‌های نمونه همسانگرد (حدود ۲۰ نانومتر) و اندازه دانه‌های نمونه ناهمسانگرد (حدود ۳۷

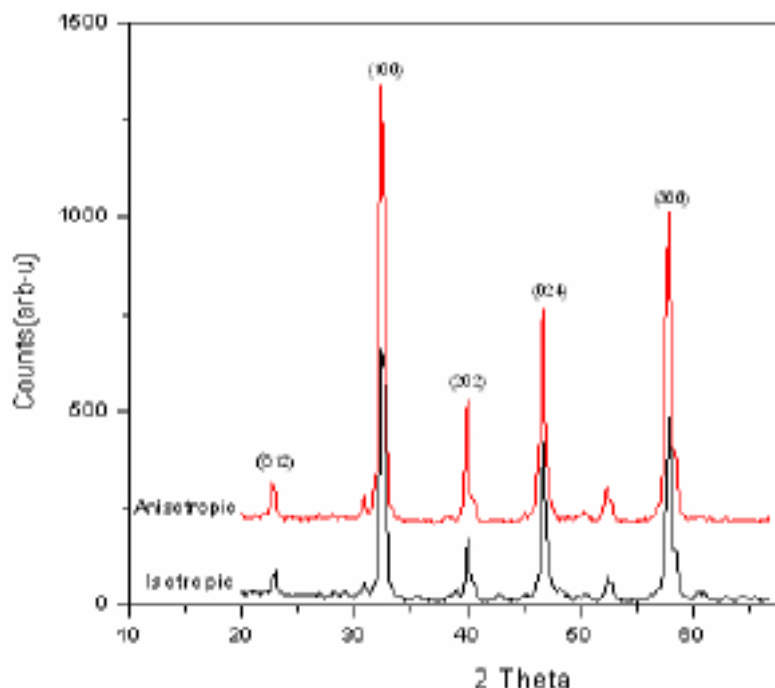
نانومتر) به دست آمده است.

شکل‌های ۲- الف و ۲- ب به ترتیب، تصاویر SEM مربوط به دو نمونه ناهمسانگرد و همسانگرد نمونه  $\text{La}_{0.8} \text{Sr}_{0.2} \text{MnO}_3$  هستند. همان‌طور که گفته شد، با آنالیز SEM، اندازه ذرات، به دست می‌آید. ملاحظه می‌شود که مرز بین ذرات در شکل ۲- الف نسبت به شکل ۲- ب با وضوح بیشتری دیده می‌شوند. با توجه به اینکه پرس در محیط آبی انجام شده است، به ذرات فرصت داده می‌شود که برای همراستا نمودن جهت بردار مغناطش با جهت میدان اعمالی، خود نیز بچرخند. بنابراین طبق شکل ۲- الف، ذرات  $\text{La}_{0.8} \text{Sr}_{0.2} \text{MnO}_3$  با نظم بیشتری نسبت به ذرات شکل ۲- ب قرار گرفته‌اند. همچنین چرخش ذرات و قرار گرفتن آنها در کنار هم به هنگام پرس، باعث شده که دانه‌ها سطح تماس بهتری با هم پیدا کنند و در هنگام کلوخه‌سازی بیشتر رشد کنند و بنابراین خلل و فرج کمتری داشته باشند. در واقع به نظر می‌رسد، پرس نمونه در حضور میدان بیشتر باعث رشد دانه‌ها شده است تا رشد ذرات.

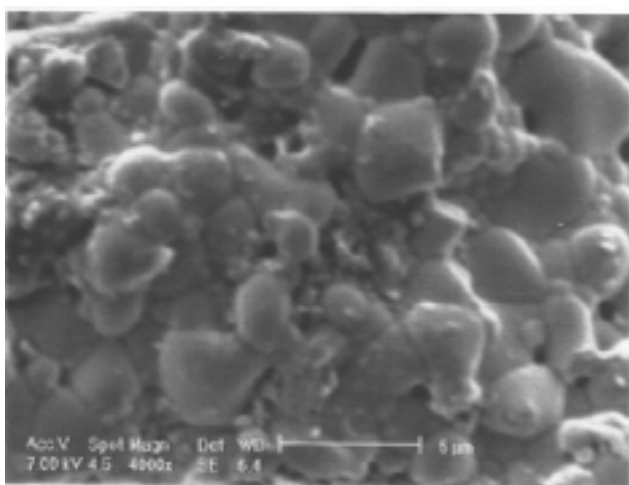
شکل ۳ تغییرات بخش حقیقی پذیرفتاری مغناطیسی ac نمونه‌های  $\text{La}_{0.8} \text{Sr}_{0.2} \text{MnO}_3$  را نسبت به دما در میدان ۶/۲۵ اورستد و با بسامد ۳۳۳Hz نشان می‌دهد. همان‌طور که ملاحظه می‌شود، در هر دو نمونه، گذار از حالت پارامغناطیس به فرومغناطیس رخ داده است. همچنین مشاهده می‌شود که مغناطش نمونه ناهمسانگرد بیشتر از نمونه همسانگرد است. دلیل آن را می‌توان به همراستا شدن مغناطش درون دانه‌ها و مرزانه‌های نمونه ناهمسانگرد مرتبط دانست.

همچنین رشد دانه‌ها در نمونه ناهمسانگرد در مقایسه با نمونه همسانگرد باعث می‌شود که اثرات مرزانه‌ای در نمونه ناهمسانگرد کمتر خودشان را نشان دهند. مرزانه‌ها از نظر اسپینی اغلب دارای بی‌نظمی هستند و بنابراین کاهش نسبت سطح به حجم آن در دانه‌های نمونه ناهمسانگرد، باعث بهبود مغناطش می‌شود. این نتیجه قبلاً از تصاویر SEM نیز استخراج شده بود.

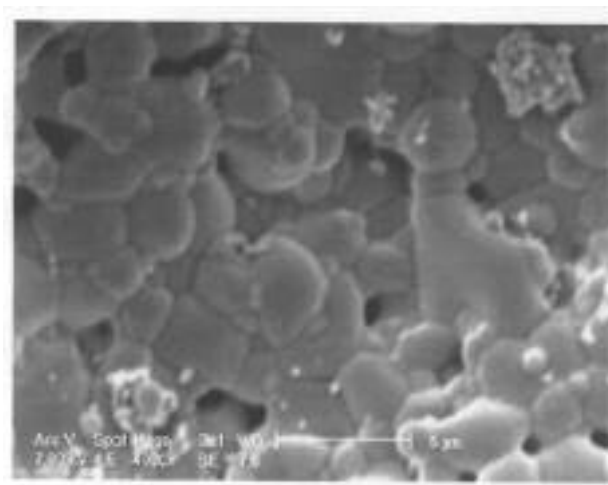
شکل ۴ تغییرات مغناطومقاومت نمونه‌های ساخته شده را در



شکل ۱. الگوی XRD از دو نمونه همسانگرد و ناهمسانگرد  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ .



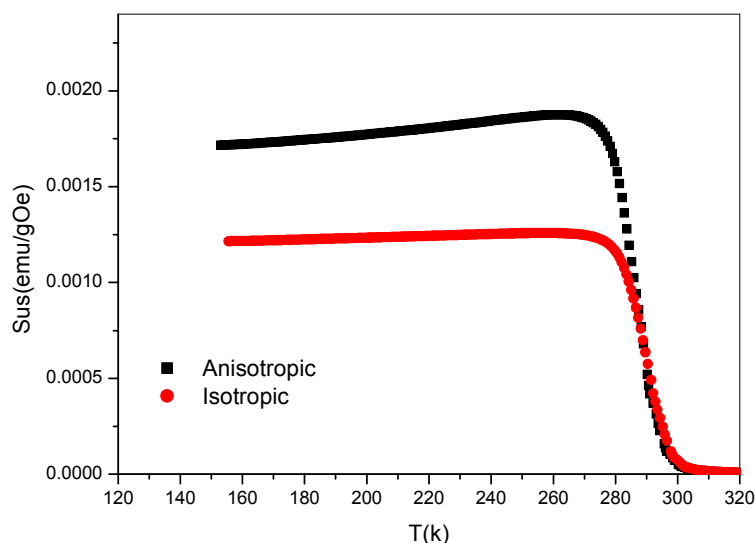
شکل ۲- ب. تصویر SEM از نمونه همسانگرد  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ .



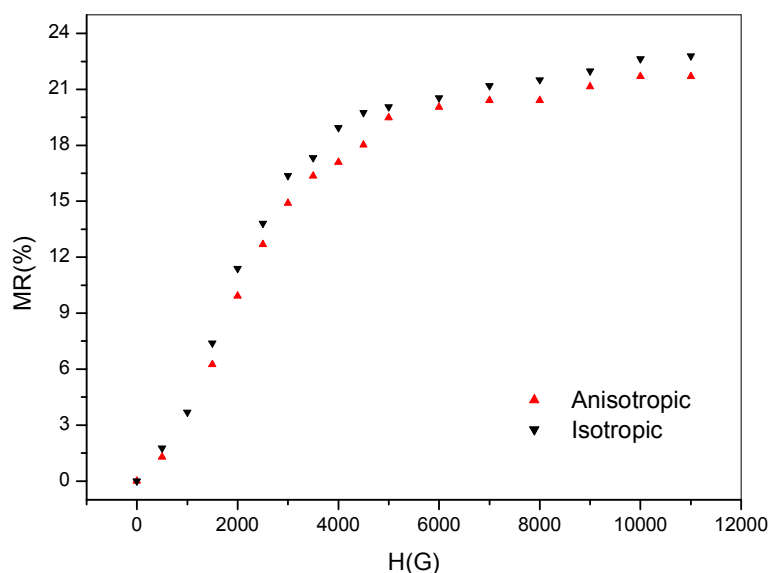
شکل ۲. الف. تصویر SEM از نمونه ناهمسانگرد  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ .

ناهمسانگرد کمی پایین تر از مغناطومقاومت نمونه همسانگرد شده است. رسانندگی در نمونه های بس بلور منگنیتها به دو طریق انجام می شود [۱۲ و ۱۳]، یکی رسانندگی درون دانه ای و دیگری بین دانه ای. اما هر دو سازو کار رسانندگی، وابستگی زیادی به نظم اسپینی دارد. هر چه نظم بیشتر باشد رسانندگی بیشتر است. به همین دلیل و به خاطر طبیعت نامنظم مرز دانه ها

میدانهای مغناطیسی  $0 - 110000$  اورستد و در دمای  $54$  درجه کلون نمایش می دهد. مغناطومقاومت نمونه ناهمسانگرد، در همان جهت اعمال میدان مغناطیسی اندازه گیری شده است. ملاحظه می شود که در هر دو نمونه، با افزایش میدان مغناطیسی از صفر به  $11000$  اورستد، مقدار مغناطومقاومت، MR، افزایش می یابد. همچنین مشاهده می شود که مغناطومقاومت نمونه



شکل ۳. منحنی تغییرات بخش حقیقی پذیرفتاری مغناطیسی ac بر حسب دما برای نمونه‌های همسانگرد و ناهمسانگرد  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  در میدان  $500$  آمپر بر متر و در بسامد  $333$  هرتز.



شکل ۴. مغناطومقاومت دو نمونه همسانگرد و ناهمسانگرد  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  در میدانهای  $0-11000$  اورستد و دمای  $54$  درجه کلونین.

نسبت به نمونه همسانگرد به این دلیل است که این نمونه دارای نظم اسپینی بیشتری در مرزدانه‌ها است و اعمال میدان مغناطیسی تأثیر کمتری بر این نمونه دارد. به همین خاطر مغناطومقاومت نمونه‌ای که در جهت اعمال میدان مغناطیسی دارای ناهمسانگردی است نسبت به نمونه همسانگرد کمی تضعیف شده است.

نسبت به درون دانه‌ها، مقاومت مرزدانه‌ها بیشتر از درون دانه‌هاست [۱۴] دلیل آن را می‌توان به خاطر پراکندگی وابسته به اسپینها دانست، یعنی هر چه اسپین دارای نظم کمتری باشد پراکندگی بیشتری را سبب می‌شود. بنابراین اعمال میدان مغناطیسی باعث افزایش نظم اسپینی شده و مقاومت را کاهش می‌دهد [۱۴]. در نتیجه مغناطومقاومت با افزایش میدان افزایش می‌یابد. اما کاهش نسبی مغناطومقاومت در نمونه ناهمسانگرد

## ۴- نتایج

اعمال شده است. نتایج اندازه‌گیری پذیرفتاری مغناطیسی نشان می‌دهد که مغناطش نمونه ناهمسانگرد افزایش پیدا کرده است که علت آن را می‌توان به افزایش نسبی نظم اسپینی در نمونه ناهمسانگرد نسبت داد. همچنین آزمایشها نشان داد، مغناطومقاومت نمونه ناهمسانگرد کمتر از نمونه همسانگرد است. بنابراین ناهمسانگردی ایجاد شده موجب تقویت بافت نمونه و تضعیف مغناطومقاومت شده است.

دو نمونه همسانگرد (پرس در غیاب میدان) و ناهمسانگرد (پرس در حضور میدان)  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$  با استفاده از روش واکنش حالت جامد تهیه شد. آزمایشها نشان داد که میدان مغناطیسی ۸۰۰۰ اورستد در هنگام پرس، موجب بهبود خواص ساختاری شده، به شکلی که اندازه دانه‌های نمونه ناهمسانگرد، طبق آنالیز XRD بزرگتر شده است. همچنین آنالیز SEM نشان‌دهنده چرخش ذرات مغناطیسی در جهت میدان

## مراجع

1. S Jin, T H Tiefel, M Mc Cormack, R A Fastnacht, R Ramesh and L H Chen, *Science* **264** (1994) 413.
2. Y Okimoto, Y Tomioka, Y Onose, Y Otsuka and Y Tokura, *Phys. Rev. B* **57** (1998) R 9377.
3. J B Goodenough, J S Zhou, *Nature*, **386** (1997) 229 .
4. T Terai, T Kakeshita, T Fukuda, T Saburi, N Takamoto, K Kindo and M Honda, *Phys. Rev. B* **58** (1998) 14908.
5. Haghiri- Gosnet and A M Renard, *J-P, Phys. D: Appl. Phys.* **36** (2003) R-127.
6. H-Y Hwang, S-W Cheong, Np ong and B Batlogg, *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 2041.
7. Ll Balcells, A E Carrillo, B Martinez and J Fontcuberta, *Appl, Phys. Lett.* **74** (1999) 4014.
8. P Kameli, H Salameti, M Eshraghi, M Mohammadzadeh, *J. Appl. Phys.* **98** (2005) 43908.
9. م اشراقی، ه سلامتی، پ کاملی، کنفرانس ماده چگال زنجان، مرکز تحصیلات تکمیلی در علوم پایه زنجان (۱۳۸۵).
۱۰. م اشراقی، ساخت و مطالعه اثر آلاینده‌ها بر خواص ساختاری، مغناطیسی و مغناطومقاومت منگناتهای پروسکایتی، دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان، رساله دکتری (۱۳۸۵).
11. D Cullity, *Elements of X-Ray diffraction* (1978).
12. J Mark Rubinsten, *J. Appl. Phys.* **87** 5019 (2000).
13. Das C M Srivastava, D Bahadur, A K Nigam and S K Malik, *J. Phys. Condens. Matte.* **16** 4089 (2004).
14. N Zhang, W Ding, D Xing and Y Du, *Phys. Rev. B* **56** (1997) 8138.