



مغناطومقاومت ناهمسانگرد در لایه‌های نازک $\text{La}_{x/4}\text{Pr}_{x/4}\text{Ca}_{x/4}\text{MnO}_3$

زهرا شاهزمانی و پرویز کاملی*

دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان، اصفهان

پست الکترونیکی: kameli@iut.ac.ir

(دریافت مقاله: ۱۴۰۲/۰۴/۲۵؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۴۰۲/۰۸/۲۲)

چکیده

در این مقاله، مغناطومقاومت (MR) و مغناطومقاومت ناهمسانگرد (AMR) لایه‌های نازک $\text{La}_{x/4}\text{Pr}_{x/4}\text{Ca}_{x/4}\text{MnO}_3$ (LPCMO) مورد بررسی قرار گرفته است. لایه‌های نازک LPCMO با استفاده از روش لیزر تپی (PLD) بر روی زیرلایه‌های $\text{LaO}(111)$ (LaO) و $\text{MgO}(100)$ (MGO) لایه نشانی شده‌اند. با ضخامت‌سنجی لایه‌های نازک به روش بازتاب سنجی پرتو ایکس (XRR) ضخامت لایه‌ها حدود ۹۰ نانومتر برآورد شد. نمونه LPCMO بر روی زیرلایه LAO به علت تنش تراکمی زیاد دمای گذار عایق-فلز پایین تری نسبت به نمونه لایه نشانی شده بر روی MGO دارد. همچنین مقدار MR در لایه‌های LPCMO/LAO و LPCMO/MGO به ترتیب ۵۷ و ۹۸ درصد به دست آمد. مقدار AMR بیشینه، در لایه LPCMO/MGO (۸۰ درصد) نسبت به نمونه LPCMO/LAO (۳۲ درصد) افزایش قابل ملاحظه‌ای دارد که به لحاظ پتانسیل کاربردی اهمیت زیادی دارد.

واژه‌های کلیدی: منگنیت، لایه نازک، مغناطومقاومت ناهمسانگرد

۱. مقدمه

یک ویژگی مهم در منگنیت‌ها پدیده مغناطومقاومت ناهمسانگرد (AMR)^۱ است. پژوهشگران معتقدند که AMR یک خاصیت ذاتی از منگنیت‌هاست که با جفت شدگی اسپین-مدار و مغناطوالاستیک مرتبط است ولی هنوز منشأ اصلی AMR به طور دقیق مشخص نشده است [۵]. بیشتر کاربرد منگنیت‌ها و به ویژه پدیده AMR مستلزم استفاده از لایه‌های نازک با خصوصیات الکتریکی و مغناطیسی خوب است. لایه‌های نازک خواص مغناطیسی متفاوتی نسبت به نمونه‌های تک بلور حجمی دارند. در لایه‌های نازک نواقص شبکه‌ای در حین لایه نشانی باعث افزایش انحراف یان-تله، جایگزیدگی حامل‌ها و همچنین افزایش انرژی فعالسازی برای حرکت حامل‌های بار می‌شود [۶]. همچنین تنش غیرذاتی ناشی از عدم

در سال‌های اخیر منگنیت‌ها با فرمول شیمیایی $A_{1-x}B_x\text{MnO}_3$ (که در آن A جایگاه یک کاتیون سه ظرفیتی از گروه فلزات خاکی نادر مانند La, Pr, Nd و B و Ca, Sr و Ba است)، به دلیل ویژگی‌های جالب و کاربردهای جایگاه یک کاتیون دو ظرفیتی از عناصر قلیایی خاکی مانند فراوان آن مورد توجه محققان قرار گرفته است [۱-۴]. از جمله کاربردهای آنها می‌توان به حافظه‌های مغناطیسی، حسگر دما، حسگر میدان و یخچال‌های مغناطیسی اشاره کرد. همچنین این مواد کاربردهای شیمیایی وسیعی در حسگرهای اکسیژن و الکترولیت‌های جامد در پیل‌های سوختی دارند.

^۱ Anisotropic Magnetoresistance

اگزایمر ($KrF(248nm)$) انجام شد. در این پژوهش از زیرلایه-های $LAO(111)$ و با ساختار مکعبی استفاده شده که از شرکت CrysTech تهیه شده‌اند. زیرلایه‌ها به نحوی انتخاب شده‌اند که نمونه‌ها تحت دو تنش متفاوت تراکمی (زیرلایه LAO) و کششی (زیرلایه $MgO(100)$) قرار گیرند. مقاومت نمونه‌ها بر حسب دما در بازه دمایی ۳۰۰ تا ۴۰۰ کلوین در حالت سرد و گرم شدن با استفاده از یخچال مدر بسته اندازه‌گیری شد. همچنین برای اندازه‌گیری مغناطومقاومت ناهمسانگرد (AMR) به لایه‌های نازک میدان مغناطیسی به اندازه یک تسلا در جهت عمودی و موازی بر جهت جریان عبوری از نمونه، اعمال شد.

۳. نتایج و بحث

ضخامت لایه‌ها که با استفاده از تحلیل $X\text{-Ray}$ (XRR) $reflectometry$ به دست آمد حدود ۹۰ نانومتر برآورد شد. برای بررسی ویژگی‌های ساختاری، از نمونه‌ها طیف پراش پرتو ایکس تهیه شد که نتایج مربوط به آنها در شکل ۱ نشان می‌دهد که لایه‌ها بر روی زیر لایه LAO در راستای (111) و بر روی زیرلایه MGO در راستای (200) رشد کرده‌اند. در لایه‌های رشد یافته بر روی زیرلایه LAO قله مربوط به لایه در زاویه کوچک‌تری از زیرلایه ظاهر شده که نشان دهنده این است که لایه تحت تنش تراکمی اعمال شده از طرف زیر لایه به دلیل کوچک‌تر بودن پارامتر شبکه زیرلایه LAO نسبت به ترکیب $LPCMO$ است (شکل ۱. الف). اما در لایه‌های با زیرلایه MGO قله مربوط به لایه در زاویه بزرگ‌تری از زیرلایه مشاهده می‌شود که نشان دهنده تنش کششی اعمال شده به لایه از طرف زیر لایه است که دلیل آن بزرگ‌تر بودن پارامتر شبکه MGO نسبت به ترکیب $LPCMO$ است (شکل ۱. ب). در ادامه خواهیم دید که نوع تنش وارد بر لایه از طرف زیر لایه بر رفتار الکتریکی تأثیر متفاوتی دارد. همچنین دو قله‌ای بودن قله زیرلایه MGO مربوط به تابش‌های $K\alpha$ و $K\beta$ است. تابش‌های $K\alpha$ بر اثر گذار الکترون لایه L به K و تابش $K\beta$ بر اثر گذار الکترون لایه M به K است که شدت کمتری نسبت به $K\alpha$ دارد.

تطابق ثابت‌های شبکه لایه و زیرلایه بر روی همزیستی فاز در لایه‌های نازک منگنیت‌ها اثر می‌گذارد [۷].

در سال‌های اخیر در میان خانواده منگنیت‌ها، ساختار $(La_{1-y}Pr_y)_yCa_{1-x}MnO_3$ ($LPCMO$) به خاطر وجود همزیستی فازهای مغناطیسی مورد توجه قرار گرفته است و مطالعات گسترده‌ای بر روی این ساختار انجام شده است، زیرا همزیستی فاز نقش بسیار مهمی در میزان مغناطومقاومت ناهمسانگرد ایفا می‌کند [۸]. معمولاً جدایی فاز در منگنیت‌ها در مقیاس نانومتر است اما برای ساختار $LPCMO$ این جدایی فاز در ابعاد میکرومتر دیده شده است [۹].

در واقع تنش ذاتی ایجادشده در اثر آرایش Pr با شعاع یونی متفاوت در جایگاه La ، منجر به انحراف شبکه‌ای خواهد شد. این تنش منجر به شکافتگی در ترازهای می‌شود و کشیدگی یا تراکم در هشت وجهی MnO_6 ایجاد می‌کند. بنابراین انحرافات یان-تلا بیشتر شده و در حقیقت جایگزیدگی الکترونی افزایش می‌یابد، نهایتاً فاز فرومغناطیس فلزی به پادفرومغناطیس عایق تبدیل شده و همزیستی فاز شکل می‌گیرد [۱۰]. این ترکیب به پارامترهای خارجی از جمله میدان مغناطیسی، جریان الکتریکی، نور و به‌ویژه تنش حساسیت زیادی نشان می‌دهد [۱۱].

در این پژوهش پدیده‌های مغناطومقاومت (MR) و AMR در لایه‌های نازک ترکیب $(La_{x/3}Pr_{y/3}Ca_{z/3}MnO_3)$ ($LPCMO$)، با فاز غالب فرومغناطیس که بر روی زیرلایه‌های تک بلور $(LaO)_3$ (LAO) و MgO (MGO) به ترتیب با جهت‌گیری‌های (۱۱۱) و (۱۰۰) برای کنترل نوع و میزان تنش، به روش لایه نشانی لیزر تپی تهیه شده‌اند، پرداخته می‌شود. لازم به ذکر است که تاکنون این نوع مطالعه بر روی زیرلایه‌های MgO انجام نشده است.

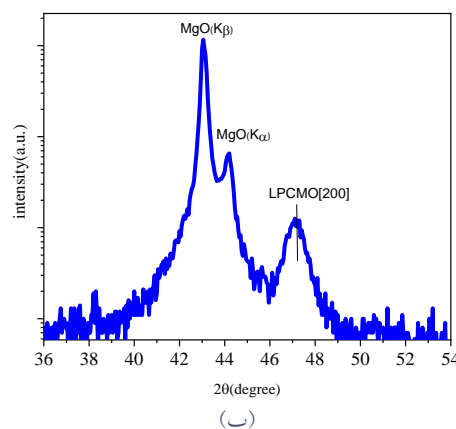
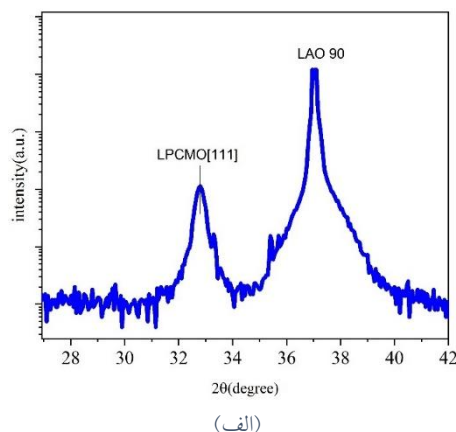
۲. مواد و روش‌ها

لایه‌های نازک $LPCMO$ با روش لایه نشانی لیزر تپی ساخته شدند. فرایند لایه نشانی در دمای زیرلایه 730° درجه سانتی‌گراد، خلأ اولیه 10^{-6} تور، انرژی لیزر $1/9$ ژول بر سانتی‌متر مربع و فشار اکسیژن 200 میلی‌تور با استفاده از لیزر

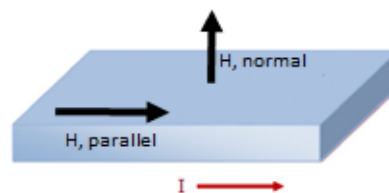
جهت‌گیری میدان مغناطیسی با جریان الکتریکی اعمالی بر نمونه را نشان می‌دهد.

مقاومت نمونه‌ها در سه حالت بدون اعمال میدان مغناطیسی (ρ_0)، اعمال میدان مغناطیسی به بزرگی یک تسلا به صورت عمود بر سطح لایه (ρ_{\perp}) و موازی با سطح لایه (ρ_{\parallel}) در حالت سرد و گرم شدن اندازه‌گیری شده است. شکل ۳ نتایج اندازه‌گیری را نشان می‌دهد. در حالت بدون اعمال میدان مغناطیسی ابتدا با کاهش دما مقاومت نمونه‌ها افزایش یافته، سپس با کاهش بیشتر دما، نمونه LAO در دمای ۱۱۲ کلوین و نمونه MGO در دمای ۱۳۲ کلوین به فاز فلزگونه گذار می‌کنند و مقاومت آن کاهش می‌یابد. این رفتار را می‌توان به این صورت توجیه کرد که در دمای اتاق نمونه در فاز پادفرومغناطیس-عایق است. با کاهش دما (کاهش انرژی گرمایی) نظم اسپین‌ها افزایش می‌یابد و منجر به تقویت اثر برهمکنش تبدیلی دوگانه می‌شود. با افزایش برهمکنش تبدیلی دوگانه، حوزه‌های فرومغناطیس-رسانا تشکیل می‌شود که کاهش شدید مقاومت را به دنبال دارد، و در نهایت نمونه در دماهای پایین با فاز فرومغناطیس-رسانا اشغال می‌شود [۱۳ و ۱۴]. نمونه LAO با این که ضخامت یکسانی با نمونه MGO دارد، ولی مقاومت بسیار بیشتر و دمای گذار کم‌تر نسبت به این نمونه دارد.

جهت‌گیری فضایی [001] و [111] زیرلایه تأثیر متفاوتی بر روی ساختار ترکیب LPCMO دارد. در جهت‌گیری [001] میزان کج شدگی هشت‌وجهی‌های MnO_6 در ساختار پروسکایتی نسبت به محور عمودی زیر لایه یکسان است. اما در مورد جهت‌گیری زیرلایه [111]، ساختار هشت‌وجهی نسبت به کناری در جهت مخالف محور عمودی کج می‌شود. در نتیجه تأثیر تنش درون صفحه‌ای در دو حالت بیان شده متفاوت است. از آنجایی که میزان و نحوه تنش بر طول و زاویه پیوند که تعیین‌کننده رفتار الکتریکی این ترکیبات است تأثیر زیادی دارد، بنابراین رفتار متفاوتی در مقاومت الکتریکی مشاهده می‌شود [۱۵]. وجود پسماند حرارتی در مقاومت نمونه‌ها به دلیل هم‌زیستی فازهای فرومغناطیس-رسانا و پادفرومغناطیس عایق در ترکیب LPCMO است [۱۳].



شکل ۱. طیف پراش پرتو ایکس لایه‌های نازک LPCMO بر زیرلایه‌های (الف) LAO و (ب) MGO.



شکل ۲. طرحواره‌ای از جهت جریان الکتریکی و میدان مغناطیسی اعمالی به نمونه لایه نازک.

فاصله بین قله‌های لایه و زیرلایه نشانگر میزان تنش وارد بر نمونه‌هاست [۱۲].

جهت بررسی اثرات زیرلایه و تنش، مقاومت وابسته به دما به روش چهار میله‌ای اندازه‌گیری شد. برای بررسی رفتار مغناطومقاومت ناهمسانگرد، به نمونه‌ها میدان یک تسلا در دو حالت موازی و عمود اعمال شد. در حالت موازی، جریان (I) و میدان مغناطیسی (H) در راستای صفحه اعمال شده است (ρ_{\parallel}) و در حالت عمود، میدان مغناطیسی در راستای عمود بر لایه به نمونه اعمال شده است (ρ_{\perp}). شکل ۲ طرحواره‌ای از

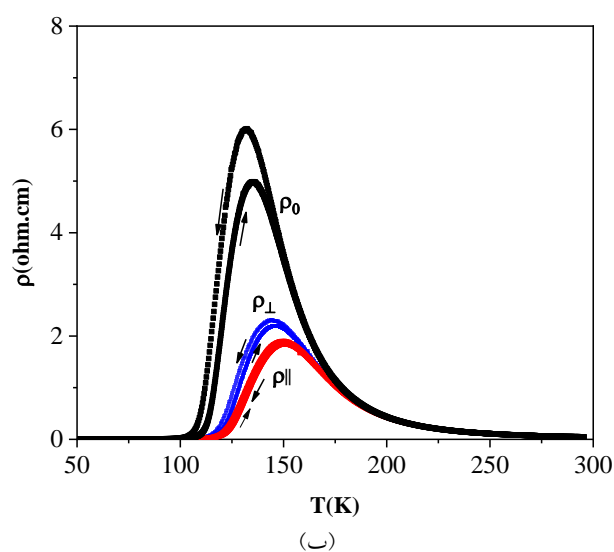
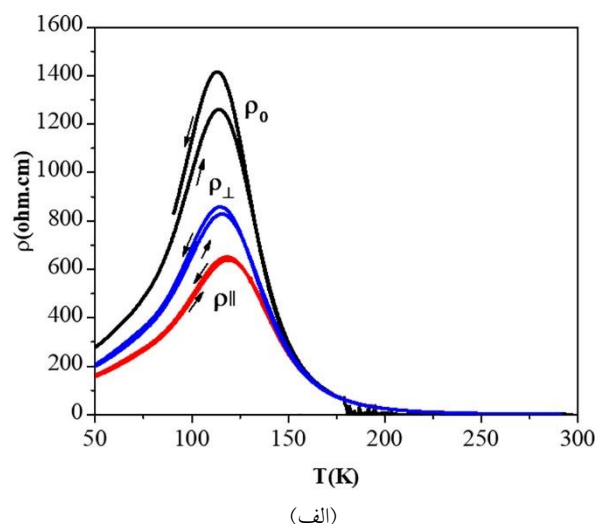
در پی دارد. دمای گذار عایق-فلز در حالت میدان عمود (ρ_{\perp})، به ترتیب برای نمونه LAO و MGO، ۱۱۴ و ۱۴۷ کلوین و در حالت میدان موازی (ρ_{\parallel})، ۱۱۸ و ۱۵۲ کلوین است. اثر میدان مغناطیسی در حالتی که میدان موازی با جریان است، بیشتر است؛ چون در این حالت اسپین‌ها همسویی بیشتری با میدان می‌کنند. نتیجه حوزه‌های فرومغناطیسی بزرگ‌تر شده و افزایش تراوش الکترون‌ها، مقاومت کمتری را ایجاد می‌کند.

اما با اعمال میدان مغناطیسی عمود بر صفحه لایه به دلیل برهمکنش قوی بین مدار و شبکه و همچنین برهمکنش اسپین-مدار، اسپین‌ها همسویی کمتری با میدان خواهند داشت. اختلاف دمای گذار عایق-فلز در حالت سرد و گرم شدن در هر دو حالت (ρ_{\perp} ، ρ_{\parallel}) ناچیز است که نشان دهنده پسماند حرارتی کم است. دلیل این رفتار تقویت برهمکنش تبدیلی دوگانه و افزایش فاز فرومغناطیس است [۱۶-۱۸].

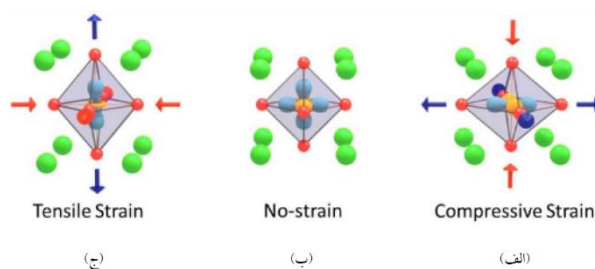
شکل ۴ طرحواره‌ای از انواع تنش اعمالی بر نمونه (هشت وجهی MnO_6) را نشان می‌دهد. ملاحظه می‌شود که تنش کششی و تراکمی تأثیر متفاوتی بر طول و زاویه پیوند در راستای موازی و عمود بر سطح لایه نازک دارند که منجر به رفتار الکتریکی متفاوت خواهد شد.

در ادامه به بررسی دو ویژگی الکتریکی مغناطومقاومت و مغناطومقاومت ناهمسانگرد نمونه‌ها پرداخته شده است. منشأ ایجاد MR و AMR متفاوت است. منشأ فیزیکی مغناطومقاومت، قطبیده شدن بیشتر اسپین‌های مغناطیسی در اثر اعمال میدان مغناطیسی است. قطبیده شدن اسپین‌ها طبق مدل تبادل دوگانه باعث افزایش انتقال حامل‌های بار می‌شود. از این رو مقاومت کاهش و دمای گذار افزایش پیدا می‌کند [۱۴ و ۱۹]. منشأ مغناطومقاومت ناهمسانگرد، جفت شدگی اسپین-مدار در اوربیتال‌های 3d یون منگنز است. به این صورت که با تغییر جهت میدان مغناطیسی خارجی اعمالی به نمونه، ابر الکترونی اطراف هسته تغییر می‌کند که باعث پراکندگی الکترون‌های رسانشی هنگام عبور از شبکه می‌شود [۲۰].

مقدار MR و AMR برای نمونه‌ها به ترتیب طبق رابطه‌های (۱) و (۲) و در میدان مغناطیسی یک تسلا محاسبه شد که در شکل ۵ و شکل ۶ نشان داده شده است.

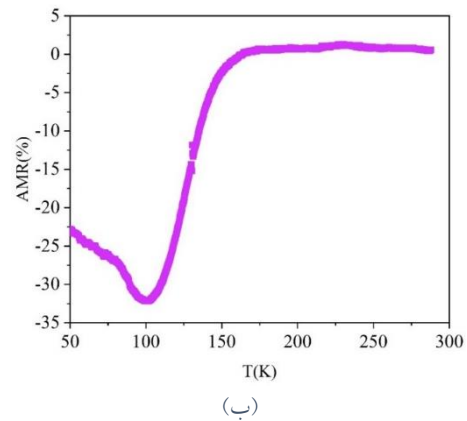
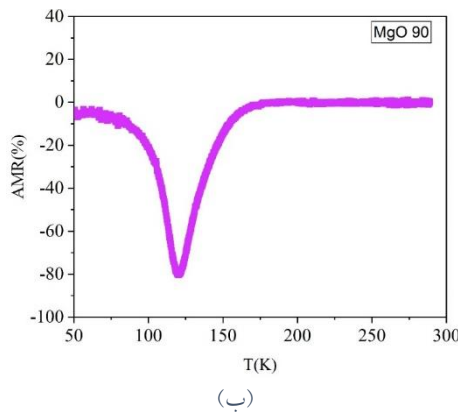
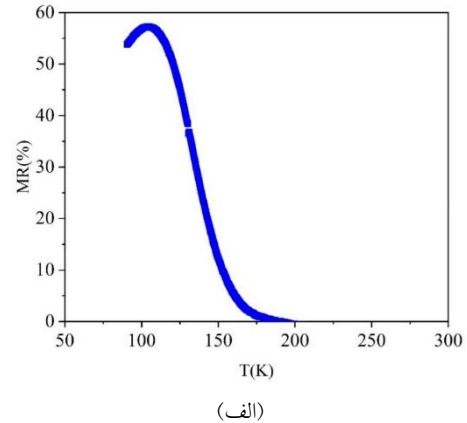
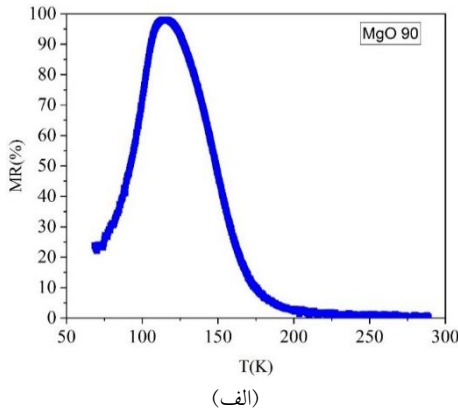


شکل ۳. تغییرات مقاومت بر حسب دمای لایه‌های نازک LPCMO بر زیرلایه‌های (الف) LAO و (ب) MGO.



شکل ۴. (الف) تنش کششی، (ب) بدون تنش و (ج) تنش تراکمی.

همچنین ملاحظه می‌شود که اعمال میدان مغناطیسی در هر دو راستا بر روی نمونه‌ها منجر به کاهش مقاومت و افزایش دمای گذار می‌شود، چون با اعمال میدان مغناطیسی اسپین‌ها منظم‌تر و هم‌خط می‌شوند و بر اساس مدل تبدیلی دوگانه، دامنه پُرش الکترون‌ها افزایش می‌یابد که افزایش رسانش و کاهش مقاومت را



شکل ۶. وابستگی دمایی MR و AMR لایه نازک LPCMO بر زیرلایه MgO در میدان مغناطیسی یک تسلا.

شکل ۵. وابستگی دمایی MR و AMR لایه نازک LPCMO بر زیرلایه LAO در میدان مغناطیسی یک تسلا.

تغییر رفتار اسپین الکترون نیست. لازم به ذکر است که تاکنون برای لایه نازک LPCMO بر روی زیرلایه MGO گزارشی در مقاله‌ها ارائه نشده است.

ملاحظه می‌شود که مقدار بیشینه AMR در لایه‌های MgO بیش از دو برابر لایه‌های LAO است. همچنین لازم به ذکر است که زیرلایه‌های MgO به لحاظ قیمت خیلی پایین‌تر از زیرلایه‌های دیگر مانند LAO و STO هستند. بنابراین این نتیجه به لحاظ پتانسیل کاربردی از اهمیت زیادی برخوردار است.

۴. نتیجه‌گیری

لایه‌های نازک LPCMO با استفاده از روش لایه نشانی لیزر تپی (PLD) بر روی زیرلایه‌های $LaAlO_3(111)$ (LAO) و $MgO(100)$ (MGO) تهیه شدند. نوع و جهت‌گیری بلوری زیرلایه‌ها از عوامل تأثیرگذار بر رفتار الکتریکی لایه‌های نازک می‌گنایند. مقدار MR و AMR برای نمونه LAO کمتر

$$MR = \frac{\rho(0) - \rho(H)}{\rho(0)} \times 100, \tag{1}$$

$$\rho_{av} = \left(\frac{1}{3}\right)\rho_{||} + \left(\frac{2}{3}\right)\rho_{\perp}, \tag{2}$$

مقادیر بیشینه MR و AMR برای نمونه LAO و MGO به ترتیب برابر ۵۷ و ۳۲ درصد و ۹۸ و ۸۰ درصد است که در حوالی دمای گذار عایق-فلز اتفاق می‌افتد. آلاگوز و همکارانش بیشینه AMR ترکیب $La_{x/4}Pr_{y/4}Ca_{z/4}MnO_3 / LAO$ را نیز ۳۲ درصد به دست آوردند [۶]. چن و همکارانش نیز به همین نتیجه دست یافتند [۲۱]. اما مقدار بیشینه AMR به دست آمده برای نمونه MGO در مقایسه با مقادیر گزارش شده افزایش قابل ملاحظه‌ای دارد.

در واقع پایین بودن مقدار AMR در نمونه LAO ناشی از تنش تراکمی زیاد در نمونه است که باعث می‌شود اثرات یان-تلر قوی‌تر و برهمکنش اسپین-مدار افزایش یابد [۲۲]. در نتیجه میدان مغناطیسی یک تسلا در حالت موازی و عمود قادر به

همدیگر نیست و بنابراین مقدار مغناطومقاومت ناهمسانگرد قابل توجه نیست.

از نمونه MGO دست آمد. در واقع تنش تراکمی زیاد در نمونه LAO در مقایسه با تنش کششی در نمونه MGO باعث افزایش اثر یان-تلا و برهمکنش اسپین-مدار می شود. در نتیجه میدان مغناطیسی یک تسلا در حالت موازی و عمود قادر به تغییر محسوس در رفتار اسپین الکترون در دو حالت نسبت به

مراجع

1. Y Tokura, *Reports Prog. Phys.* **69** (2006) 797.
2. Shuaizhao Jin, Xin Gu, Xiaohan Yu, Xiaoli Guan, Yixin Yan, Kaikai Wu, Liming Zhao, Yan Zhu, Shuhong Sun, Jinkun Liu, Jin Hu, Jun Zhao, Lingde Kong, Wenyun Yang, Qingming Chen, Parviz Kameli, and Xiang Liu, *Applied Surface Science*. **589** (2022) 152905.
3. V Agarwal, G Sharma, P Siwach, K Maurya, and H Singh, *Appl. Phys. A* **119** (2015) 899.
4. A Hossienzadeh, P Kameli, H Salamati, and B Aslibeiki, *Iranian Journal of Physics Research*. **12** (2012) 59.
5. L Hu et. al., *Phys. Rev. B.*, **97** (2018) 214428.
6. H S Alagoz, J Desomberg, M Taheri, F S. Razavi, K H Chow, and J Jung, *Appl. Phys. Lett.* **106** (2015) 082407.
7. M Zarifi, P Kameli, M H Ehsani, H Ahmadvand, and H Salamati, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **420** (2016) 33.
8. B Zhi et al., *J. Appl. Phys.* **113** (2013) 203701.
9. H Zhou, L Wang, Y Hou, Z Huang, Q Lu, and W Wu, *Nat. Commun.* **6** (2015) 8980.
10. M Uehara, S Mori, C Chen et al., *Nature*. **399** (1999) 560.
11. Y. Sun, Y Zhao, and R Wang, *Chin. Phys. B*. **26** (2017) 047103.
12. S Singh et al., *AIP Adv.* **5** (2015) 14.
13. K H Kim, M Uehara, C Hess, P A Sharma, and S -W Cheong, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 2961.
14. Rulaniya, M S, Kumari, N, Sarita et al., *Emergent Mater.* **6** (2023) 1631.
15. J F Wang, Y Zhou, D Cao, S J Yu, Z W Jiao, and J Gao, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48** (2015) 75302.
16. Y Y Zhao, *IEEE Trans. Magn.* **51** (2015) 1.
17. S Hu., *AIP Adv.* **4** (2014) 067109.
18. M Zarifi, P Kameli, A Ghotbi Varzaneh, H Nikmanesh, and H Ahmadvand, *Vacuum*. **192** (2021) 110437.
19. L M Kandpal, *J. Magn. Magn. Mater.* **408** (2016) 60.
20. N Kambhala and S Angappane, *Phys. Procedia*. **54** (2014) 164.
21. J Chen, *Appl. Phys. Lett.* **104** (2014) 18.
22. M K Srivastava, A Kaur, and H K Singh, *Appl. Phys. Lett.* **100** (2012) 222408.