

Lưu Tuấn Tài,  
 Nguyễn Minh Hồng,  
 Nguyễn Phú Thùy

## PHƯƠNG PHÁP MẪU BỘT ĐỊNH HƯỚNG TRONG NGHIÊN CỨU ĐỊNH HƯỚNG TỪ

### 1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Định hướng từ của vật liệu là một tính chất vật lý quan trọng trong hiểu biết về việc tạo các đô men từ, các quá trình từ hóa, các chuyển pha từ ... Đặc biệt, trong việc chế tạo các nam châm vĩnh cửu, bài toán nâng cao lực kháng từ liên quan trực tiếp đến việc nâng cao độ định hướng từ của vật liệu. Năng lượng định hướng từ tinh thể thường được biểu diễn thông qua các hằng số định hướng từ  $K_i$  ( $i = 1, 2, 3, \dots$ ). Đối với các tinh thể có cấu trúc lục giác hoặc tứ giác, năng lượng định hướng được trình bày trong các biểu thức (1) và (2) tương ứng:

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^6 \theta + K_4 \sin^8 \theta \cos^6 \phi$$

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^4 \theta \cos^4 \phi$$

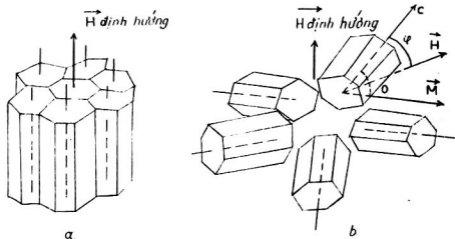
Ở đây  $\theta$  là góc giữa momen từ và trục  $C$ ,  $\phi$  là góc tạo với trục  $a$  của hình chiếu lên mặt phẳng đáy. Thành phần  $K_4$  trong (1) và  $K_3$  trong (2) quyết định định hướng từ trên mặt phẳng đáy. Trong nhiều trường hợp, các thành phần bậc cao trong (1) và (2) nhỏ hơn nhiều so với  $K_1$  và  $K_2$  nên có thể bỏ qua chúng (hơn nữa thông thường  $K_1 \geq K_2$ ).

Việc xác định chính xác các hằng số định hướng  $K_i$  thường được thực hiện trên các tinh thể thông qua các phép đo đường cong từ hóa theo phương dễ và phương khó. Tuy nhiên việc chế tạo các mẫu đơn tinh thể rất khó khăn, người ta thường sử dụng phương pháp định hướng (mẫu "giả đơn tinh thể"). Trong phương pháp này, vật liệu được tán thành các hạt nhỏ đến mức mỗi hạt là một tiểu tinh thể. Các hạt bột được định hướng trong từ trường và cố định nhờ chất kết dính. Với vật liệu có cấu trúc tinh thể lục giác hay tứ giác, có năng lượng định hướng:

1) Nếu định hướng từ tinh thể là định hướng đơn trục, cấu hình các hạt tiểu tinh thể từ tính như hình 1a.

2) Nếu định hướng từ tinh thể là định hướng mặt phẳng đáy, ta có cấu hình như ở hình 1b.

Thông thường người ta chỉ đánh giá hằng số định hướng từ  $K_1$ ,  $K_2$  trong trường hợp định hướng đơn trục như ở hình 1a. ngoài ra các mẫu bột định hướng chỉ được chế tạo ở nhiệt độ phòng.



Hình 1

Sự sắp xếp các tiểu tinh thể trong mẫu bột định hướng

a) Trường hợp định hướng đơn trục ( $K_1 > 0$ ), b) Trường hợp định hướng mặt phẳng ( $K_1 < 0$ )

Trong bài này chúng tôi giới thiệu các phương pháp chế tạo mẫu bột định hướng cả ở nhiệt độ thấp và nhiệt độ cao hơn nhiệt độ phòng. Phương pháp xác định dấu và độ lớn các hằng số định hướng từ từ đường cong từ hóa, đặc biệt trong cấu hình 1b được chỉ ra. Chúng tôi cũng giới thiệu tỉ mỉ các phương pháp chỉ thị hiện tượng tái định hướng spin dùng các mẫu bột định hướng.

## 2. PHƯƠNG PHÁP CHẾ TẠO MẪU BỘT ĐỊNH HƯỚNG

Các mẫu bột định hướng được chế tạo từ các bột có độ hạt cỡ  $25\mu\text{m}$  (đường kính hạt được đo nhờ kính hiển vi). Bột được trộn đều với chất kết dính (chẳng hạn Technovit) theo tỷ lệ bột, 50% chất kết dính. Hỗn hợp được nhồi vào khuôn teflon dạng vuông hoặc dạng ống trụ đặt vào vùng từ trường cỡ  $10 \div 20$  Koe và đợi cho đến khi bột hóa cứng. Ngoài việc chế tạo mẫu ở nhiệt độ phòng, chúng tôi còn chế tạo các mẫu ở nhiệt độ thấp và ở nhiệt độ cao hơn nhiệt độ phòng.

Để chế tạo mẫu bột định hướng ở nhiệt độ thấp, hỗn hợp bột - chất kết dính cùng với khuôn nhồi vào nitơ lỏng trước khi đưa vào vùng từ trường định hướng. Các mẫu bột định hướng cũng có thể chế tạo ở nhiệt độ cao hơn nhiệt độ phòng trong trường hợp cần thiết nhờ hơi không khí nóng trong quá trình hóa cứng chất kết dính. Việc chế tạo các mẫu ở các nhiệt độ cao hoặc thấp hơn nhiệt độ phòng đã cho phép chủ động lựa chọn cấu hình của các mẫu định hướng trong trường hợp vật liệu nghiên cứu có các chuyển pha tái định hướng spin (đã nêu các nghiên cứu sơ bộ khác) ở lân cận nhiệt độ phòng. Hơn nữa, với các mẫu có nhiệt độ thấp (các mẫu loại  $R_2Fe_{17}$  chẳng hạn) việc chế tạo mẫu bột định hướng ở nhiệt độ thấp là phương pháp duy nhất khi không có được mẫu đơn tinh thể.

### 3. XÁC ĐỊNH DẤU CỦA HẰNG SỐ ĐỊNH HƯỚNG

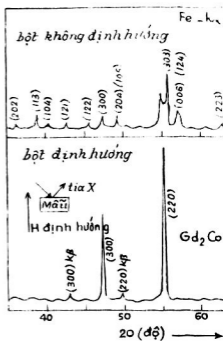
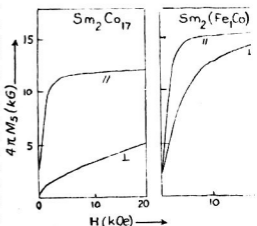
Khi thực hiện phép đo từ độ phụ thuộc từ trường  $M(H)$  ở một nhiệt độ xác định t phương: song song và vuông góc với phương định hướng của mẫu, trước hết nhìn vào d. cặp đường cong chúng ta có thể nhận biết được vật liệu đó là dị hướng đơn trục ( $K_1 > 0$ ) hướng mặt phẳng ( $K_1 < 0$ ) tại nhiệt độ đó.

Hình 2a [1] đưa ra hai cặp đường cong từ hóa của mẫu  $Sm_2Co_{17}$  và  $Sm_2(Co_{0,45}Fe_{0,55})_{17}$  tại  $25^\circ C$ , ở nhiệt độ này  $Sm_2Co_{17}$  có dị hướng đơn trục còn  $Sm_2(Co_{0,45}Fe_{0,55})_{17}$  có dị hướng mặt phẳng. Trường hợp dị hướng đơn trục, đường cong theo trục khó và trục dễ tách rời nhau rõ rệt ngay ở từ trường rất thấp. Trường hợp dị hướng mặt phẳng hai đường cong theo trục khó và dễ rất gần nhau và có xu hướng khó cắt nhau hontại từ trường cao. Thông tin chính xác hơn về trạng thái dị hướng có thể thu được trực tiếp từ việc so sánh phổ nhiễu xạ Ronghen thực hiện trên bột không định hướng và trên các mẫu bột định hướng. Cấu hình chụp mẫu bột định hướng và các giản đồ Ronghen so sánh giữa hai trường hợp được đưa ra trên hình 2b [2]. Theo cách chụp này, trong trường hợp mẫu có dị hướng đơn trục, trên giản đồ Ronghen của mẫu bột định hướng các đỉnh nhiễu xạ ứng với  $l \neq 0$  sẽ được tăng cường trong khi các đỉnh có  $l = 0$  sẽ bị suy giảm hoặc dập tắt. Nếu mẫu có dị hướng mặt phẳng, thì các đỉnh nhiễu xạ ứng với chỉ số  $h, k \neq 0$  và  $l = 0$  được tăng cường còn các cực đại có  $l = 0$  hoặc  $k = 0$  sẽ bị dập tắt. Chẳng hạn đối với mẫu  $Gd_2Co_{17}$  (hình 2b) đỉnh nhiễu xạ ứng với mặt phẳng (220), (300) được tăng cường rất mạnh còn (303), (006), (204), (113) tự biến mất hoàn toàn ở mẫu bột định hướng cho thấy tinh thể có mặt phẳng dễ từ hóa (001) hay vật liệu có dị hướng mặt phẳng đáy ( $K_1 < 0$ ).

### 4. XÁC ĐỊNH ĐỘ LỚN CÁC HẰNG SỐ ĐỊNH HƯỚNG

Bằng cách đo đường cong từ hóa  $M(H)$  theo phương khó và dễ ta có thể xác định được hằng số dị hướng  $K_1, K_2$  nhờ biểu thức Sucksmith - Thompson cho trường hợp dị hướng đơn trục của cấu hình 1a ( $K_1 > 0$ ) [3]:

$$\frac{H}{M} = \frac{2K_1}{M^2} + \left(\frac{4K_2}{M^3}\right) \cdot M^2 \quad (3)$$



Hình 2

- a) Đường cong từ hóa theo phương khó và dễ của các mẫu bột định hướng tại  $25^\circ C$   
 b) Giản đồ Ronghen của mẫu  $Gd_2Co_{17}$  ở nhiệt độ phòng (trong trường hợp bột không định hướng và trên mẫu bột định hướng)

dùng đường cong  $M(H)$  theo phương khó và dễ  $H/M$  theo  $M^2$  ta xác định được độ lớn từ trường với trục hoành và  $K_2$  từ hệ số góc của đường thẳng.

Xác định hằng số dị hướng từ đường cong từ hóa theo phương dễ và khó trong trường hình 1b, ta không thể áp dụng phương pháp Sucksmith - Thompson. Phần lớn các tác động tính toán định lượng hằng số dị hướng từ đường cong  $M(H)$  trong trường hợp này. Tuy nhiên, phương pháp xác định các hằng số dị hướng trong cấu hình 1b sẽ được nêu ra trên cơ sở định hướng của các tiểu tinh thể.

Thiết các tiểu tinh thể lục giác hoặc tứ giác có dị hướng mặt phẳng được sắp xếp sao cho chúng trong mỗi lớp mẫu trên mặt phẳng vuông góc với phương từ trường định hướng hỗn loạn. Xét một tiểu tinh thể bất kỳ có trục  $c$  tạo góc  $\varphi$  với từ trường ngoài  $H$  (hình 1g) lượng tổng cộng của hạt có dạng:

$$E = -M_S H \cos(\theta - \varphi) + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta \quad (4)$$

cực tiểu năng lượng  $\partial E / \partial \theta = 0$ , ta suy ra:

$$-M_S H \sin(\theta - \varphi) = (K_1 + 2K_2 \sin^2 \theta) \sin 2\theta$$

lượng từ hóa của tiểu tinh thể trong từ trường ngoài sẽ là:

$$\begin{aligned} \omega &= \int_{M_0}^{M_S} \vec{H} d\vec{M} = \int_{M_0}^{M_S} H \cdot M_S \sin(\varphi - \theta) d(\theta - \varphi) \\ &= \int_{\pi/2}^{\varphi} (K_1 + 2K_2 \sin^2 \theta) \sin 2\theta d\theta \end{aligned} \quad (5)$$

$$\omega = (K_1 \sin^2 \varphi + K_2 \sin^4 \varphi) - (K_1 + K_2) \quad (6)$$

giờ nếu xét các tiểu tinh thể với trục  $c$  phân bố hỗn loạn trên một lớp mẫu như trên năng lượng từ hóa theo phương khó (năng lượng dị hướng)  $W$  có dạng:

$$W = \int_0^{2\pi} F(\varphi) \omega d\varphi \quad (7)$$

hàm phân bố  $F(\varphi)$  thỏa mãn điều kiện chuẩn hóa là:

$$\int_0^{2\pi} F(\varphi) d\varphi = 1 \quad (8)$$

$$F(\varphi) = 1/2\pi \quad (9)$$

thay (9) vào (7) ta có:

$$W = \frac{1}{\pi} \int_0^{\pi} (K_1 \sin^2 \varphi + K_2 \sin^4 \varphi) d\varphi - (K_1 + K_2) \quad (10)$$

$$W = -\frac{1}{2}(K_1 + \frac{5}{4}K_2)$$

Nếu  $K_2$  đủ nhỏ thì ta có

$$W \approx -\frac{1}{2}(K_1 + K_2)$$

Như vậy năng lượng từ hóa theo phương khó của mẫu bột định hướng bằng từ đơn tinh thể. Rõ ràng năng lượng dị hướng và do đó các hằng số dị hướng có thể được bằng cách tính diện tích giới hạn giữa hai đường cong từ hóa theo phương khó và dễ (hình 1b).

## 5. XÁC ĐỊNH HIỆN TƯỢNG TÁI ĐỊNH HƯỚNG SPIN

Hiện tượng chuyển cấu hình spin từ dị hướng đơn trục sang mặt phẳng hoặc ngược lại, hay từ dị hướng đơn trục (hoặc mặt phẳng) sang cấu trúc góc khi nhiệt độ thay đổi có thể được phát hiện khi thực hiện phép đo từ độ trên mẫu bột định hướng theo nhiệt độ hay theo góc tạo bởi từ trường đo với phương định hướng mẫu.

Ta sẽ xem xét một vài kết quả cụ thể như những ví dụ minh họa. Hình 3a mô tả đường cong từ độ phụ thuộc nhiệt độ đo trên mẫu bột định hướng của mẫu  $Nd_2Fe_{14}B$  theo phương khó. Ta nhận thấy trên đường cong này xuất hiện một bước nhảy ở khoảng 140K, đây là dấu hiệu chỉ thị hiện tượng tái định hướng spin xảy ra trong vật liệu này tại khoảng nhiệt độ đó. Để xác định rõ hơn hiện tượng chuyển này (chuyển từ cấu hình nào sang cấu hình nào) chúng tôi đã tiến hành đo sự phụ thuộc của từ độ vào góc  $\theta$  (góc hợp bởi phương định hướng mẫu và phương từ trường ngoài) ở các nhiệt độ trên và dưới nhiệt độ xảy ra bước nhảy trên. Hình 3b là kết quả đo trên hai loại vật liệu có hiện tượng tái định hướng spin xảy ra trong khoảng nhiệt độ từ 77K đến 300K đại diện cho hai loại chuyển khác nhau. Đối với vật liệu  $YCo_4B$  [4] ta thấy rõ sự chuyển từ dị hướng đơn trục (trục c) sang dị hướng mặt phẳng khi giảm nhiệt độ từ 300K xuống 77K biểu hiện ở việc đổi chiều của các cực đại và cực tiểu trên hình 3b.

Hình 3

a) Đường cong từ độ phụ thuộc nhiệt độ của mẫu bột định hướng theo phương khó của  $Nd_2Fe_{14}B$  tại  $H = 1$  Koe

b) Đường cong từ độ phụ thuộc góc tại 77 và 300K của mẫu  $YCo_4B$  và  $Nd_2Fe_{14}B$



vật liệu  $Nd_2Fe_{14}B$  không có sự đổi chiều của các cực trị mà xuất hiện sự tõe ra của đỉnh  $i$ , đây chính là biểu hiện của sự chuyển từ cấu hình đơn trục (trục  $c$ ) ở nhiệt độ phòng sang nh tạo góc  $\theta$  với trục  $c$  của momen từ. Góc nghiêng  $\theta$  được xác định khá chính xác tương với sự tõe của đỉnh cực đại. Ở 77K góc nghiêng của momen từ trong vật liệu  $Nd_2Fe_{14}B$  là phù hợp khá tốt với kết quả đo trên đơn tinh thể của một số tác giả khác [5, 6].

## KẾT LUẬN

Phương pháp mẫu bột định hướng cho phép thu được khá nhiều thông tin về các tính chất của vật liệu có dị hướng, trong nhiều trường hợp, các thông tin là chính xác, không sai khác so với các thông tin thu được trên các mẫu đơn tinh thể. Đặc biệt sự xác định cấu hình của vật liệu theo nhiệt độ là rất thuận tiện và đơn giản. Trong nhiều trường hợp khi không được đơn tinh thể, phương pháp này là duy nhất để thu được các thông tin cần thiết về dị hướng của vật liệu.

## TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. J. Struat and A. E. Ray. Goldschmidt informiert ... **33**, 47 (1975).
2. Katayama and T. Shibata, J.M.M.M **23**, 173-182 (1981).
3. V. Sucksmith and J. E. Thompson, Proc. Roy. Soc. **225**, 362 (1954).
4. T. Dũng, N. P. Thùy, N. M. Hồng and T. Đ. Hiền, Phys. Sol. (a) **106**, 201 (1988).
5. K. Tokuhava, Y. Ohtsu, F. Ono, O. Yamada, M. Sagawa, and Matsuura Solid State Commun. **6**, 333 (1985).
6. M. Sagawa, S. Fujimura, H. Yamamoto, Y. Matsuura and S. Hirose, J. Appl. Phys. **57**(1), 094 (1985).

Tuan tai,  
Phan Minh Hong, Nguyen Phu Thuy

## ORIENTED POWDER SAMPLE METHOD FOR MAGNETIC ANISOTROPY RESEARCH

The oriented powder sample method for magnetic anisotropy research has been summarized. It is pointed out that by employing the oriented powder samples one is able to derive valuable informations relating to the magnetic anisotropy as well as to detect different kinds of spin reorientation phenomena in materials. Our method to prepare samples at temperatures lower and higher than room temperature and to calculate anisotropy constants in case of a basal plane anisotropy have been also shown.

Phòng thí nghiệm VLNDT - DHTH Hà Nội