

CẤU TRÚC TÍNH THỂ VÀ CẤU TRÚC PHA TRẬT TỰ TỪ TRONG $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$

Nguyễn Thành Nghiêm^{1,2}, Nguyễn Hoàng Yến^{3,4}, Lê Vũ Trường Sơn⁵, Trịnh Ngọc Đạt⁵,
Đinh Thanh Khấn^{4,*}, Đoàn Phan Thảo Tiên², Trần Ngọc^{6,7}, Trương Thị Hồng Vân^{6,7},
Hoàng Trọng Phúc^{6,7}, Nguyễn Trường Thọ^{1,*}

¹ Khoa Điện, Điện tử và Công nghệ vật liệu, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế

² Viện Hải dương học - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

³ Học viện Khoa học và Công nghệ - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

⁴ Trường ISchool Nha Trang, Khánh Hòa

⁵ Khoa Lý - Hóa, Trường Đại học Sư phạm, Đại học Đà Nẵng

⁶ Viện Nghiên cứu và Phát triển Công nghệ cao, Đại học Duy Tân

⁷ Khoa Môi trường và Khoa học Tự nhiên, Đại học Duy Tân

*Email: dtkhan@ued.udn.vn, ntthokh@hueuni.edu.vn

Ngày nhận bài: 14/8/2024; ngày hoàn thành phản biện: 22/8/2024; ngày duyệt đăng: 01/11/2024

TÓM TẮT

Hợp phức perovskite kép $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ thu hút sự quan tâm do tính chất từ đặc biệt và tiềm năng ứng dụng trong vật liệu đa chức năng. Trong nghiên cứu này, vật liệu được tổng hợp bằng phương pháp phản ứng pha rắn và được khảo sát đặc điểm cấu trúc, hình thái và từ tính. Kết quả phân tích nhiễu xạ tia X và neutron (phương pháp Rietveld) cho thấy vật liệu là pha đơn, có cấu trúc trục thoi $Pnma$, với sự phân bố ngẫu nhiên của các ion $\text{Fe}^{3+}/\text{Cr}^{3+}$ trên vị trí B. Tính chất từ được xác định là trật tự phản sắt từ loại G tầm xa được hình thành dưới $T_N = 240$ K.

Từ khóa: nhiễu xạ neutron, perovskite kép, phản sắt từ.

1. MỞ ĐẦU

Vật liệu đa pha điện từ là những vật liệu thể hiện đồng thời bất kỳ hai hoặc nhiều tính chất vật lý, chẳng hạn như tính sắt điện, tính sắt đàn hồi, tính sắt từ [1,2]. Trong số đó, vật liệu được nghiên cứu rộng rãi nhất là những vật liệu thể hiện đồng thời tính sắt điện và sắt từ dưới một nhiệt độ nhất định, và là ứng cử viên tiềm năng cho các công nghệ trong tương lai.

Cụ thể, oxit perovskite kép, có công thức chung là $\text{A}_2\text{BB}'\text{O}_6$ (A biểu diễn các ion kiềm hoặc đất hiếm, B và B' biểu diễn các ion kim loại chuyển tiếp) đã thu hút được sự chú ý lớn do các đặc tính nổi bật của chúng như liên kết từ điện môi đáng kể, điện trở từ mạnh, hằng số điện môi lớn, hiệu ứng từ nhiệt, tính sắt điện do spin thúc đẩy, độ lệch trao đổi khổng lồ và liên kết spin-phonon [3-7]. Các tính chất từ tính của các perovskite này có thể được kiểm soát bằng cách điều chỉnh tương tác giữa các ion B và B' [8].

Trong các hợp kim perovskite kép được sắp xếp hoàn hảo, trong đó sự khác biệt về trạng thái điện tích và bán kính của các ion B và B' là cần thiết, các cation B và B' xen kẽ tại các vị trí bát diện với tương tác siêu trao đổi B–O–B' đóng vai trò chủ đạo đối với các tính chất từ của chúng. Ngược lại, nếu B và B' có điện tích và/hoặc bán kính gần giống nhau, hệ sẽ xuất hiện hiện tượng hỗn loạn cation trong các hợp kim perovskite kép [8]. Trong pha hỗn loạn, sự hỗn loạn về mặt hóa học và/hoặc cấu trúc dẫn đến sự cùng tồn tại của nhiều tương tác siêu trao đổi cạnh tranh giữa các spin B và B' dẫn đến hành vi đa pha với các chuyển đổi từ tính đa dạng, sự bất thỏa từ spin, pha Griffiths, hiệu ứng kính spin và độ lệch trao đổi [9-12]. Trong số các vật liệu perovskite kép, tùy thuộc vào các phương pháp tổng hợp, $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ (PFCO) được biết là có hai dạng cấu trúc, một dạng kết tinh thành cấu trúc trực thoi mất trật tự cation, dạng còn lại là cấu trúc R-3c sắp xếp theo cation [8]. Các tính chất từ khối của hai dạng cấu trúc này là khác nhau. PFCO với độ ổn định cấu trúc cao lên đến 1500 K [8]. PFCO khối kết tinh thành pha trực thoi và là đa sắt từ loại I với trật tự từ tính quanh T_c khoảng 240 K và chuyển đổi sắt điện quanh T_c khoảng 453 K [8, 13]. Ngoài ra, Das và các cộng sự còn cho thấy ba vòng từ trễ riêng biệt, đối xứng và được hình thành tốt được ghi lại ở 300 K, 310 K và 320 K [13]. Tuy nhiên, hệ thống PFCO thuộc nhóm không gian Pbnm đối xứng tâm, không phù hợp với bản chất từ tính của hợp chất. Sự không nhất quán này có thể được giải quyết bằng cách định vị ngẫu nhiên các mạng con Fe và Cr trên hai vị trí tinh thể B và B' trong ô đơn vị perovskite. Mazumdar và Das sau đó đã cho thấy rằng từ hóa phụ thuộc nhiệt độ của hệ biểu hiện một trật tự phản sắt từ (AFM) nghiêng loại G của các ion $\text{Fe}^{3+}/\text{Cr}^{3+}$ tại nhiệt độ chuyển tiếp $T_N = 256$ K, trong đó có thành phần sắt từ yếu định hướng theo trục tinh thể c do tác động của tương tác Dzyaloshinski–Moriya (DM) [14]. Việc hạ nhiệt độ hơn nữa giúp định hướng lại liên tục các spin từ của các mạng con $\text{Fe}^{3+}/\text{Cr}^{3+}$ từ trục c sang trục a có nhiệt độ chuyển tiếp 143–173 K [14]. Vì vậy, trong khuôn khổ bài báo này, chúng tôi chế tạo và nghiên cứu sự ảnh hưởng của nhiệt độ lên cấu trúc tinh thể, thành phần hóa học và cấu trúc từ của vật liệu PFCO bằng phương pháp pha rắn.

2. THỰC NGHIỆM

Hợp chất PFCO được tổng hợp bằng phương pháp phản ứng pha rắn sử dụng các oxit ban đầu có độ tinh khiết cao, bao gồm Pr_2O_3 , Fe_2O_3 và Cr_2O_3 (Sigma-Aldrich)

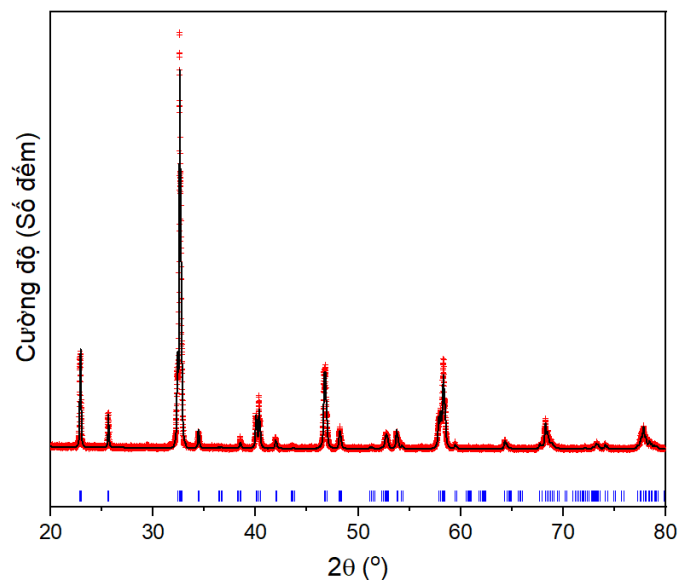
trộn theo tỷ lệ thành phần hóa học. Hỗn hợp được nung sơ bộ trong không khí ở 900°C 4 giờ và sau đó được nung thiêu kết ở 1150°C trong 4 giờ tiếp theo. Các vật liệu trung gian được nghiền mịn lại giữa mỗi giai đoạn nung.

Các phép đo nhiễu xạ neutron trên mẫu bột (NPD) được thực hiện tại máy nhiễu xạ DN-12 đặt tại lò phản ứng xung thông lượng cao IBR-2 (JINR, Nga) [15]. Dữ liệu đã được đo trong phạm vi nhiệt độ từ 10 đến 300 K, với thời gian thu thập dữ liệu là 2 giờ cho mỗi điểm nhiệt độ. Góc tán xạ là 90° và độ phân giải phổ là $\Delta d/d = 0,015$. Các phép đo nhiễu xạ tia X (XRD) được thực hiện bằng hệ đo D8 Advance Eco (Bruker) sử dụng nguồn Cu-K α ($\lambda = 1,54056$ Å) trong khoảng 2θ từ 10° đến 80°. Việc tinh chỉnh dữ liệu đã được thực hiện bằng cách sử dụng phần mềm Fullprof với phương pháp Rietveld. Ngoài ra, hình thái bề mặt và thành phần nguyên tố của mẫu được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM) kết hợp với phổ tán sắc năng lượng tia X (EDS) trên thiết bị JSM-IT2000, JOEL, Horiba.

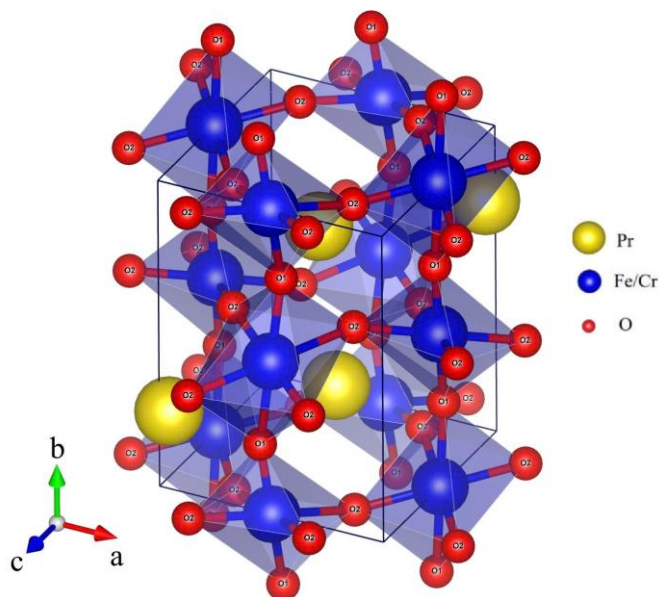
3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Cấu trúc tinh thể của Pr₂FeCrO₆ tại nhiệt độ phòng

Cấu trúc tinh thể của vật liệu perovskite kép PFCO tại nhiệt độ phòng được xác định bằng XRD. Giảm nhiễu xạ tia X và sự tinh chỉnh của nó bằng phương pháp tinh chỉnh Rietveld sử dụng phần mềm FullProf được mô tả ở hình 1. Kết quả tinh chỉnh cho thấy mẫu Pr₂FeCrO₆ tổng hợp được là đơn pha, kết tinh theo cấu trúc trực thoi với nhóm không gian Pnma và các hằng số mạng $a = 5,530$, $b = 7,754$, $c = 5,168$ Å [16]. Vị trí của các nguyên tử Pr 4c (0,014, 1/4, -0,072), Fe/Cr 4b (0, 0, 1/2), O1 4c (0,484, 1/4, -0,026) và O2 8d (0,274, -0,059, 0,708). Các chiều dài liên kết giữa các ion Fe/Cr và O là Fe/Cr–O1 = 1,947 Å, Fe/Cr–O2 = 2,019 Å. Các góc liên kết giữa các ion Fe/Cr và O là Fe/Cr–O1–Fe/Cr = 168,5°, Fe/Cr–O2–Fe/Cr = 148,8°. Cấu trúc tinh thể của Pr₂FeCrO₆ được mô tả ở hình 2.

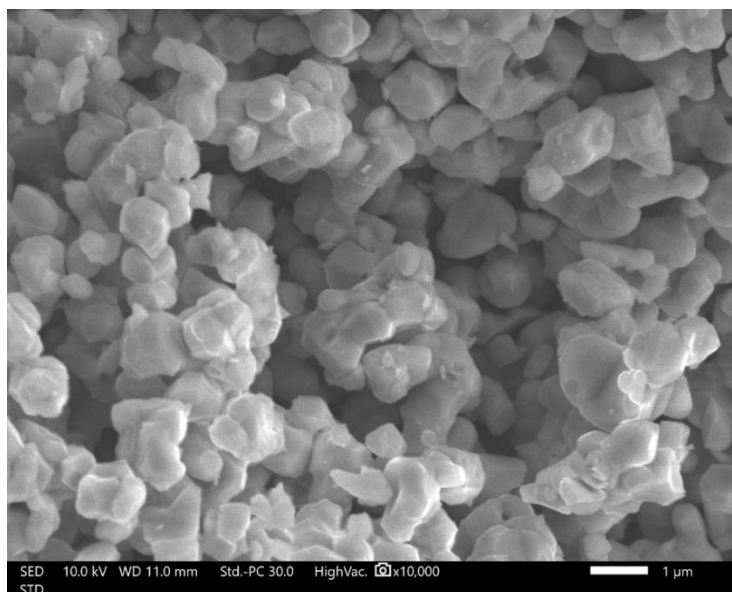


Hình 1. Giản đồ XRD của vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ ở nhiệt độ phòng. Các biểu tượng “+” là kết quả thực nghiệm. Đường cong là kết quả khớp hàm bằng phương pháp tinh chỉnh Rietveld trên phần mềm FullProf. Vị trí của các đỉnh cấu trúc được chỉ ra bằng các vạch thẳng đứng màu xanh ở dưới.



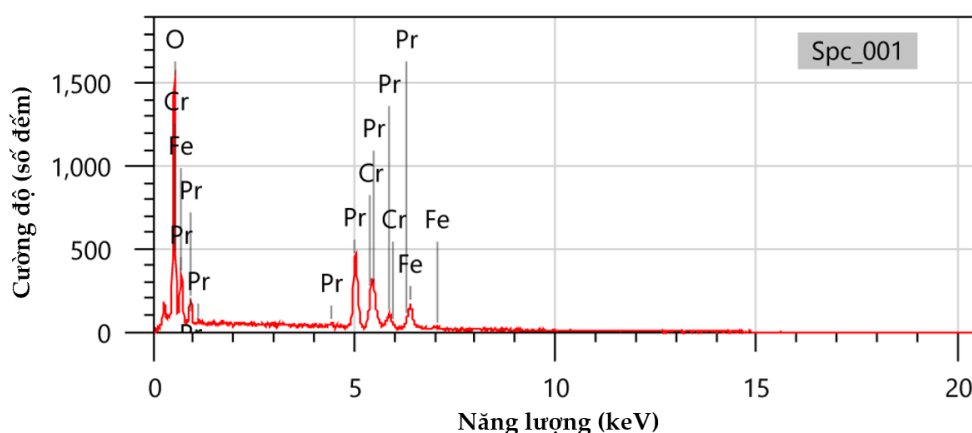
Hình 2. Cấu trúc tinh thể trực thoi thuộc nhóm đối xứng Pnma của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$.

3. 2. Hình thái bề mặt và thành phần hóa học



Hình 3. Hình thái bề mặt của vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử quét.

Hình thái bề mặt và thành phần nguyên tố của mẫu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ được khảo sát bằng SEM kết hợp EDS. Hình thái bề mặt của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ được mô tả ở hình 3. Như có thể thấy ở hình 3, mẫu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ kết tinh dưới dạng các hạt hình cầu với kích thước trung bình khoảng 1 μm . Phổ tán sắc năng lượng tia X của vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ được thể hiện ở hình 4. Từ phổ này, chúng ta không phát hiện thấy bất kỳ đỉnh lạ nào. Điều này khẳng định độ tinh khiết của mẫu tổng hợp được. Tỷ lệ nguyên tử của các nguyên tố như mô tả ở bảng 1 phù hợp với công thức hóa học của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$. Điều này cho thấy kết quả tương tự như nghiên cứu trước đây [17].

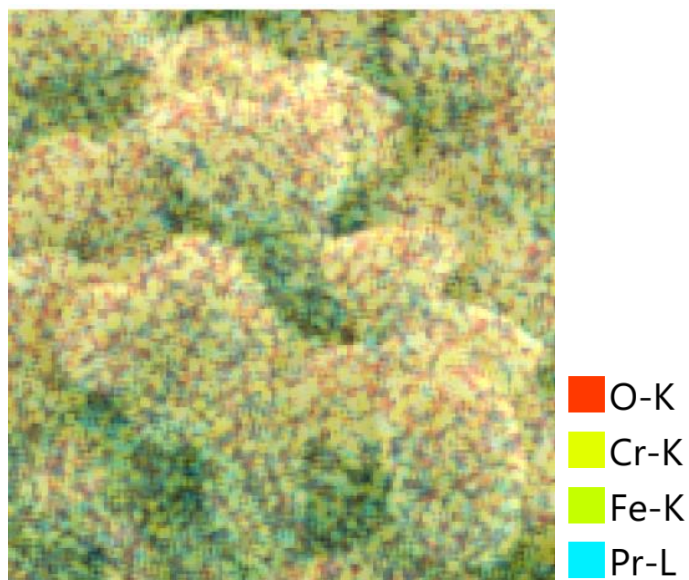


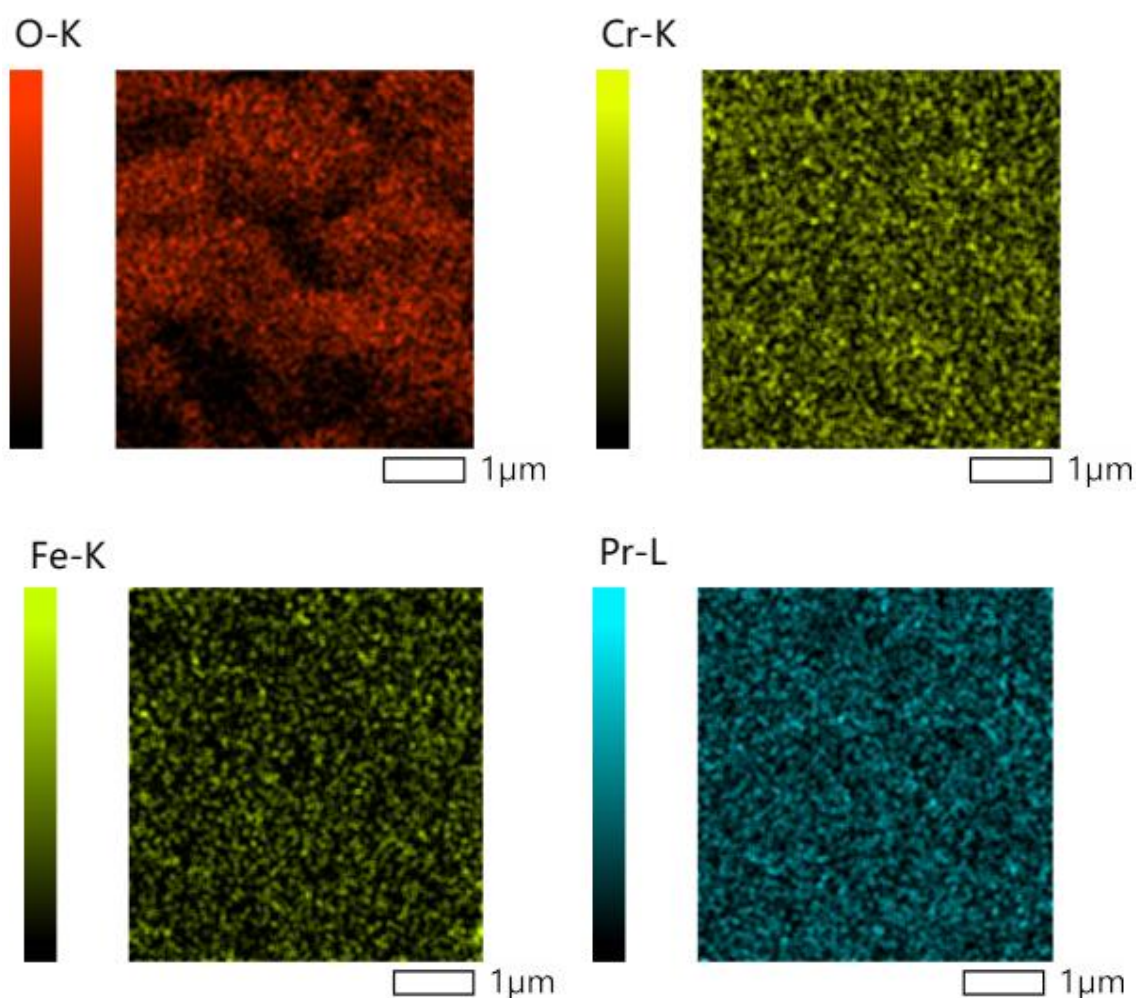
Hình 4. Phổ tán sắc năng lượng tia X của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$.

Bảng 1. Tỷ lệ phần trăm nguyên tử của các nguyên tố trong vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$

Nguyên tố	Đường	Phần trăm khối lượng (%)	Phần trăm nguyên tử (%)
O	K	$18,57 \pm 0,20$	$58,78 \pm 0,63$
Cr	K	$9,73 \pm 0,31$	$9,48 \pm 0,30$
Fe	K	$10,92 \pm 0,36$	$9,90 \pm 0,32$
Pr	L	$60,78 \pm 0,90$	$21,84 \pm 0,32$
Tổng cộng		100,00	100,00

Ngoài ra, để kiểm tra sự phân bố đều của các nguyên tố trong vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$, EDS mapping đã được thực hiện trên một vùng với diện tích khoảng $4 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ trên bề mặt của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ và kết quả được trình bày ở hình 5. Như có thể thấy ở hình 5, sự phân bố của các ion Pr, Fe, Cr và O là đồng đều trong toàn bộ bề mặt khảo sát [19].

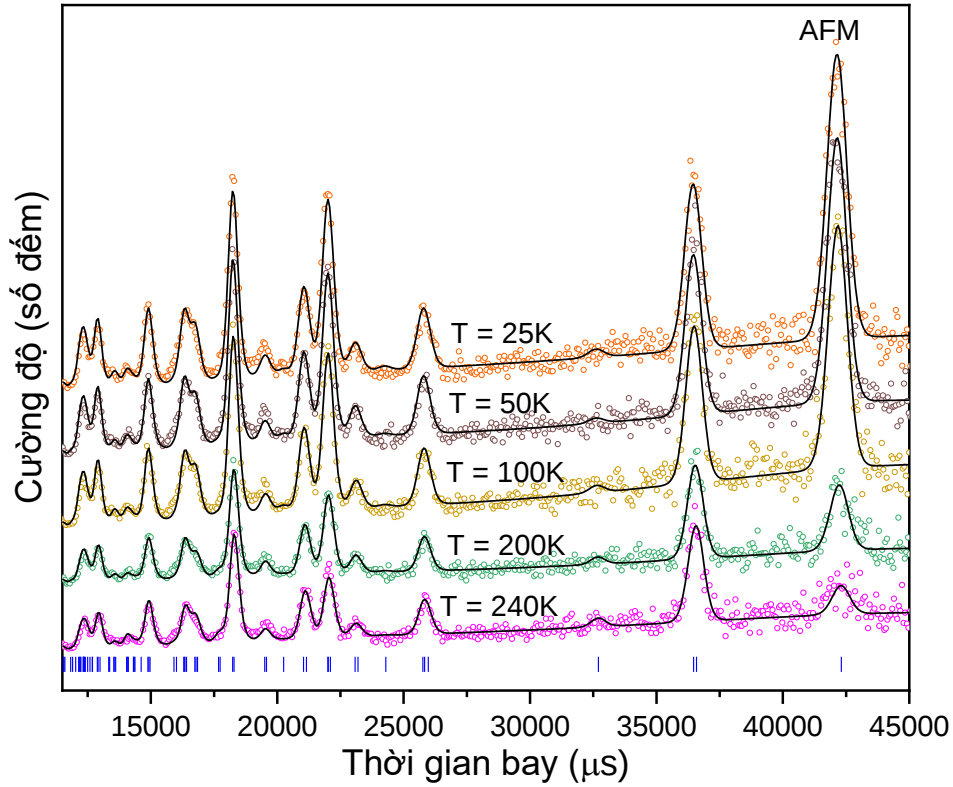




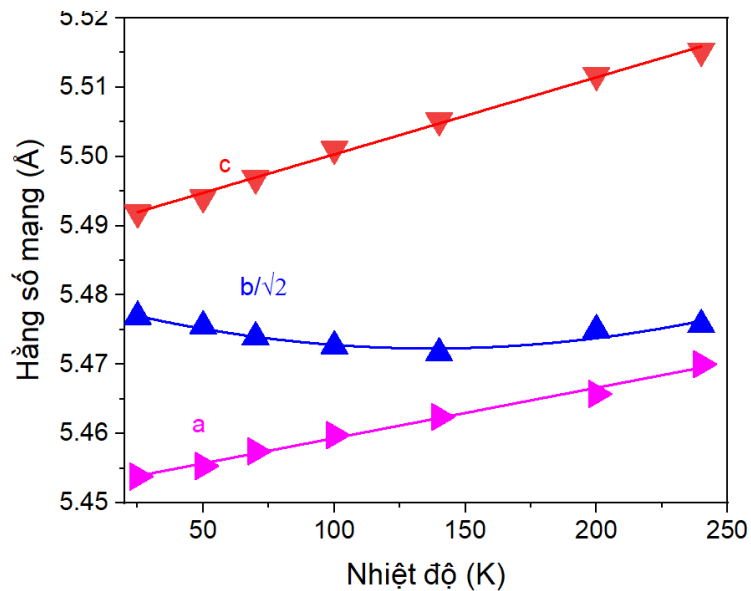
Hình 5. EDS mapping được thực hiện trên một vùng bề mặt đại diện của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$.

3.3. Sự phụ thuộc nhiệt độ của các đặc trưng cấu trúc và từ tính của vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$

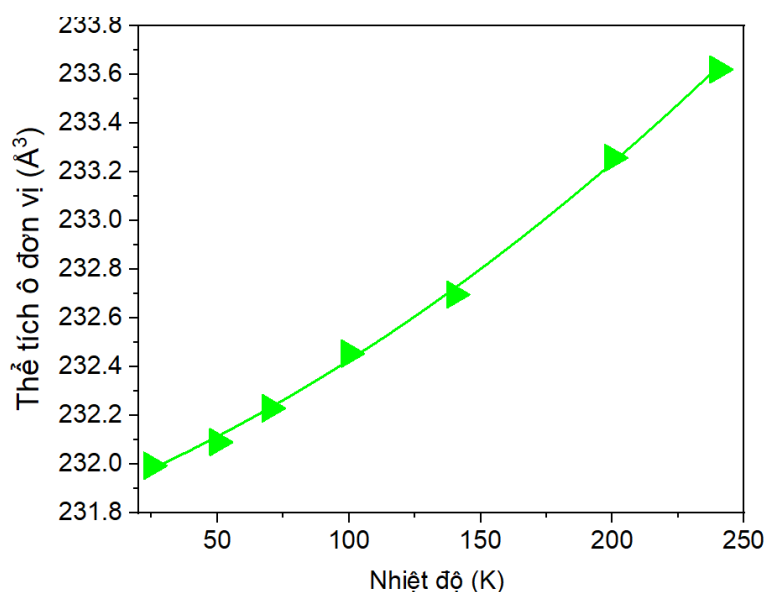
Các phép đo NPD được thực hiện ở nhiều nhiệt độ khác nhau nhằm khảo sát sự phụ thuộc của cấu trúc tinh thể và tính chất từ vào nhiệt độ của vật liệu perovskite kép $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$. Giản đồ NPD của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ được đo tại các nhiệt độ khác nhau từ 250 K đến 25 K và sự tinh chỉnh của chúng bằng phương pháp Rietveld sử dụng phần mềm FullProf được trình bày ở hình 6. Kết quả tinh chỉnh dữ liệu NPD cho thấy cấu trúc trục thoi Pnma của vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ không thay đổi trong toàn bộ phạm vi nhiệt độ đã nghiên cứu (xem bảng 2). Đáng chú ý là hàm lượng oxy đã được thử tinh chỉnh trong quá trình phân tích dữ liệu. Tuy nhiên, kết quả cho thấy rằng quá trình tinh chỉnh hàm lượng oxy không dẫn đến sự phù hợp tốt hơn đáng kể giữa dữ liệu tính toán và dữ liệu thực nghiệm.



Hình 6. Giản đồ NPD của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ tại các nhiệt độ khác nhau. Các biểu tượng tròn là kết quả thực nghiệm. Các đường cong là kết quả khớp hàm bằng phương pháp tinh chỉnh Rietveld trên phần mềm FullProf. Vị trí của các đỉnh cấu trúc được chỉ ra bằng các vạch thẳng đứng màu xanh ở dưới. Đỉnh đặc trưng của pha từ được ký hiệu là 'AFM'.



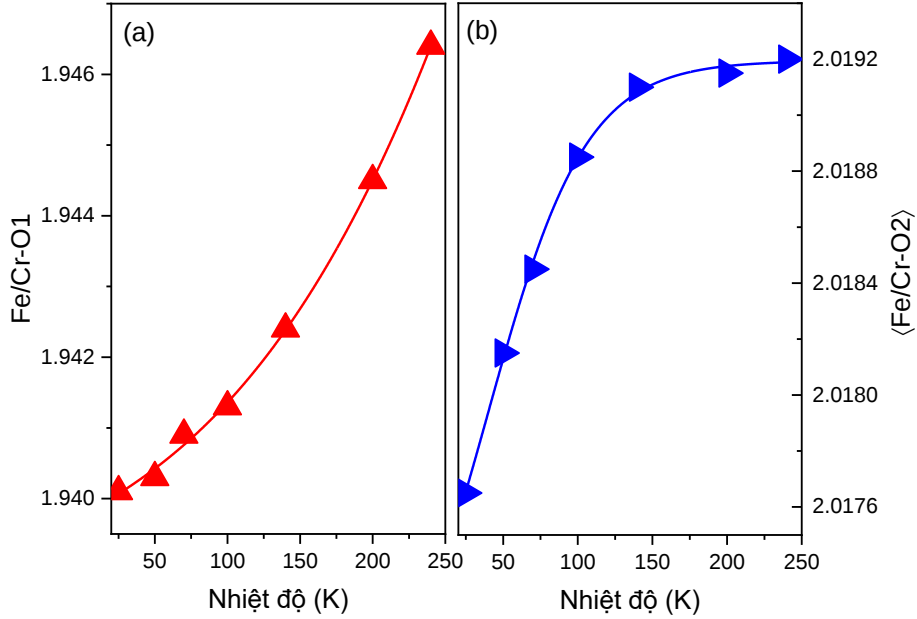
Hình 7. Sự phụ thuộc nhiệt độ của các hằng số mạng của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$.



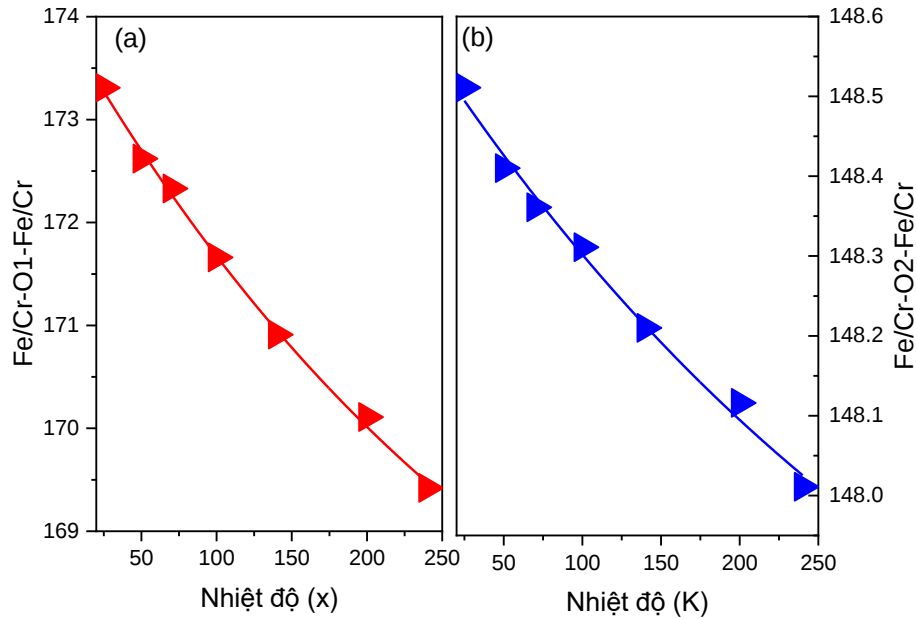
Hình 8. Sự thay đổi trong thể tích ô đơn vị của PFCO theo nhiệt độ.

Từ kết quả NPD, các hằng số mạng của cấu trúc trực thoi của PFCO được xác định. Hình 7 biểu diễn sự phụ thuộc vào nhiệt độ của các hằng số mạng này. Trong quá trình giảm nhiệt độ, các hằng số mạng a và c giảm trong khi hằng số mạng b thay đổi không đáng kể. Kết quả là thể tích ô đơn vị giảm khi giảm nhiệt độ được quan sát ở hình 8. Đây là hiện tượng giãn nở nhiệt của vật liệu. Tuy nhiên, sự thay đổi khác biệt theo nhiệt độ giữa các hằng số mạng phản ánh sự bất đẳng hướng của hiệu ứng giãn nở nhiệt của vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$. Kết quả này phù hợp với các phát hiện trong một báo cáo trước đây sử dụng phương pháp nhiễu xạ neutron [18].

Ngoài ra, sự thay đổi của các chiều dài liên kết và góc liên kết giữa các ion Fe/Cr và O theo nhiệt độ cũng được xác định dựa vào phân tích dữ liệu nhiễu xạ neutron. Kết quả được thể hiện ở hình 9 và hình 10. Do ảnh hưởng của sự co lại khi giảm nhiệt độ mẫu vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$, các chiều dài liên kết giữa các ion Fe/Cr và O cũng giảm. Tuy nhiên, sự co lại trong các khoảng cách liên kết tạo ra sự tăng trong các góc liên kết như thể hiện ở hình 10.



Hình 9. Sự phụ thuộc nhiệt độ của các chiều dài liên kết trong $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$.



Hình 10. Sự phụ thuộc nhiệt độ của các góc liên kết trong $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$.

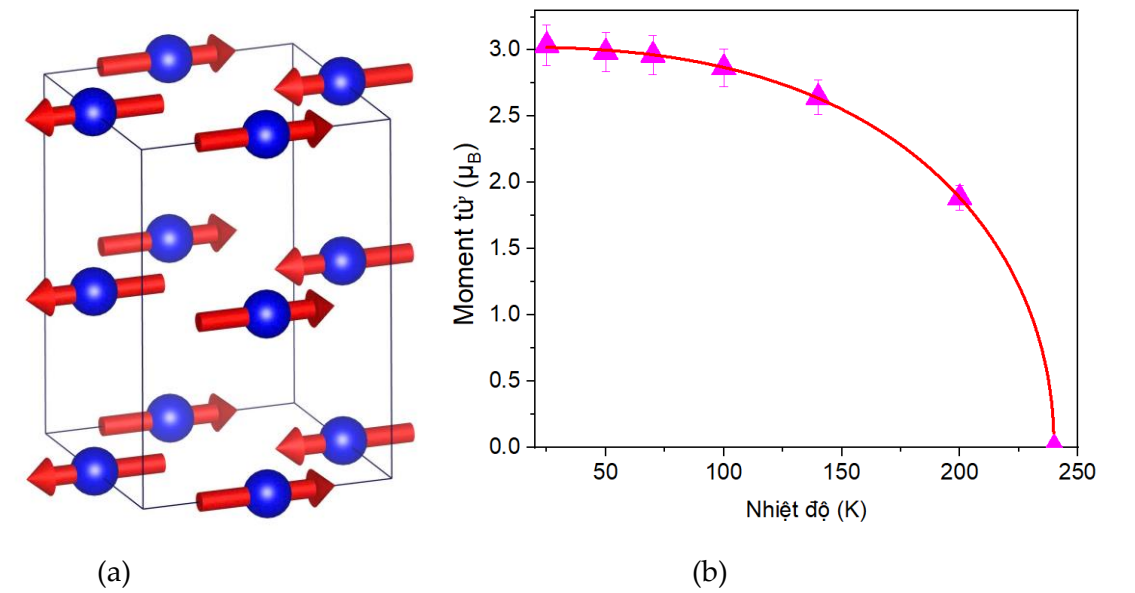
Từ nhiệt độ $T \leq T_N = 240$ K, ngoài các đỉnh cấu trúc, trong giản đồ NPD còn xuất hiện sự đóng góp từ tính vào cường độ phản xạ cấu trúc (011) tại $d_{hkl} = 4,48$ Å. Sự đóng góp của thành phần từ tính vào đỉnh nhiễu xạ tiếp tục tăng lên khi nhiệt độ tiếp tục giảm. Phân tích dữ liệu cho thấy đỉnh này tương ứng với sự hình thành của trật tự phản sắt từ loại G tầm xa, trong đó mỗi cặp spin lân cận gần nhất là phản song song như hình 11(a). Đáng lưu ý, không ghi nhận bất kỳ đóng góp nào từ trật tự sắt từ nào vào cường độ phản xạ cấu trúc (101)/(020) tại $d_{hkl} = 3,86$ Å. Điều này cho thấy sự vắng mặt của cả

pha trật tự sắt từ tầm gần cũng như tầm xa trong vật liệu $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$. Hình 11(b) mô tả sự phụ thuộc vào nhiệt độ của moment từ trung bình của pha phản sắt từ $\mu_{\text{AFM}}(T)$ và đường cong khớp của nó theo hàm [19]:

$$\mu_{\text{AFM}}(T) = \mu_{\text{AFM}0} \left(1 - \frac{T}{T_N}\right)^\beta$$

(1)

trong đó, $\mu_{\text{AFM}0}$ là moment từ trung bình của pha phản sắt từ tại $T = 0 \text{ K}$, T_N là nhiệt độ Néel và β là tham số khớp. Giá trị khớp của T_N và $\mu_{\text{AFM}0}$ lần lượt là 240 K và 0,48 μ_{B} . Giá trị T_N thu được trong nghiên cứu này gần với giá trị quan sát được đối với trật tự AFM loại G trong các nghiên cứu trước đó [17, 18].



Hình 11. (a) Trật tự phản sắt từ loại G của các spin tại vị trí $\text{Fe}^{3+}/\text{Cr}^{3+}$. (b) Moment từ trung bình của pha phản sắt từ loại G theo nhiệt độ.

Bảng 2. Các thông số cấu trúc và từ tính của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ thu được từ việc tinh chỉnh dữ liệu nhiễu xạ neutron theo phương pháp Rietveld. Vị trí của các ion trong cấu trúc trục thoi Pnma của $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$: La/Ca $4c (x, 1/4, z)$, Fe/Cr $4b (0, 0, 1/2)$, O1 $4c (x, 1/4, z)$, and O2 $8d (x, y, z)$.

T (K)	25	50	100	200	240
a (Å)	5,453(8)	5,455(3)	5,457(5)	5,459(8)	5,470(3)
b (Å)	7,745(5)	7,743(5)	7,741(3)	7,739(5)	7,743(8)
c (Å)	5,491(9)	5,494(1)	5,496(8)	5,501(1)	5,515(2)
La/Ca: x	0,013(1)	0,019(3)	0,018(1)	0,017(5)	0,015(4)
Z	-0,064(3)	-0,064(1)	-0,063(5)	-0,063(2)	-0,063(3)

T (K)	25	50	100	200	240
O1 : x	0,503(4)	0,501(5)	0,484(3)	0,500(3)	0,490(7)
Z	-0,020 (3)	-0,024(3)	-0,019(2)	-0,017(8)	-0,023(9)
O2: x	0,277(6)	0,282(3)	0,295(3)	0,277(9)	0,294(9)
Y	-0,061(3)	-0,059(1)	-0,059(8)	-0,061(6)	-0,062(8)
Z	0,701(1)	0,703(1)	0,702(1)	0,702(1)	0,705(1)
Fe/Cr-O1 (Å)	1,940(1)	1,940(3)	1,941(3)	1,944(5)	1,946(4)
Fe/Cr-O2 (Å)	2,017(7)	2,018(2)	2,018(9)	2,019(1)	2,019(2)
Mn/Fe-O1- Mn/Fe (°)	173,3(18)	172,6(2)	171,6(16)	170,1(1)	169,4 (2)
Mn/Fe-O2- Mn/Fe (°)	148,5(11)	148,4(1)	148,3(11)	148,1(16)	148,0(17)
μ_{AFM} (μ_B)	3,03(7)	2,98(6)	2,86(7)	1,88 (4)	—
R_p (%)	4,90	4,50	4,78	4,73	5,32
R_{wp} (%)	6,35	6,09	6,35	6,30	7,16
R_e (%)	3,57	3,65	3,61	3,63	4,72

4, KẾT LUẬN

Chúng tôi đã tổng hợp thành công vật liệu pevroskite kép $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ đơn pha bằng phương pháp phản ứng pha rắn. Các đặc điểm về cấu trúc tinh thể, hình thái học và tính chất từ của vật liệu đã được nghiên cứu một cách chi tiết. Kết quả phân tích cho thấy mẫu thu được có cấu trúc trực thoi với nhóm không gian Pnma , trong đó các ion Fe^{3+} và Cr^{3+} phân bố ngẫu nhiên trên các vị trí B. Đáng chú ý, kết quả nhiễu xạ neutron khẳng định sự xuất hiện của trật tự phản sắt từ (AFM) loại G tầm xa ở nhiệt độ chuyển pha Néel $T_N \approx 240$ K. Nhìn chung, các kết quả thu được nhấn mạnh vai trò quan trọng của sự phức tạp về cấu trúc và tương tác từ trong việc làm rõ các tính chất cơ bản của vật liệu này.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển khoa học và công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong đề tài mã số 103.02-2021.70.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. W. Eerenstein, N. D. Mathur, and J. F. Scott (2006). Multiferroic and magnetoelectric materials, *Nature*, Vol. 442, pp. 759–765.
- [2]. R. Ramesh, and N. A. Spaldin (2007). Multiferroics: progress and prospects in thin films, *Nature Material*, Vol. 6, pp. 21–29.
- [3]. K. Anand, A. Pal, A. G. Joshi, P. Pal, R. Singh, P. Yen, S. M. Huang, M. Alam, S. Kumari, V. Sathe, S. Chakravarty, A. Mohan, and S. Chatterjee (2022). Giant exchange bias in antiferromagnetic $\text{Pr}_2\text{CoFe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_6$: a structural and magnetic properties study, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 55, Issue 36, 365004.
- [4]. K M. Alam, L. Ghosh, S. Dixit, M. Jena, S. Kumari, S. V. Kumar, D. Kumar, A. Verma, A.K. Ghosh, S. Saha, R.J. Choudhary, and S. Chatterjee (2023). Giant dielectric constant, magnetocaloric effect and spin-phonon coupling in EuTbCoMnO_6 semiconductor, *Physica B: Condensed Matter*, Vol. 665, 415043.
- [5]. T. Saha-Dasgupta (2020). Double perovskites with 3d and 4d/5d transition metals: compounds with promises, *Materials Research Express*, Vol. 7, Issue 1, 014003.
- [6]. G. J. Kumar, E. S. Kumar, M. Navaneethan, and K. K. Bharathi (2022). Exchange bias, magnetic, and dielectric properties of $\text{La}_2\text{FeMnO}_6$ nanoparticles, *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, Vol. 33, pp. 8467–8472.
- [7]. T. Tiittanen, S. Vasala, and M. Karppinen (2019). Assessment of magnetic properties of $\text{A}_2\text{B}'\text{B}''\text{O}_6$ double perovskites by multivariate data analysis techniques, *Chemical Communications*, Vol. 55, Issue 12, pp. 1722–1725.
- [8]. S. Ravi (2018). Multiferroism in $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ perovskite, *Journal of Rare Earths*, Vol. 16, Issue 11, pp. 1175–1178.
- [9]. K. Anand, M. Alam, A. Pal, P. Singh, S. Kumari, A. G. Joshi, A. Das, A. Mohan, and S. Chatterjee (2021). Existence of Griffiths phase and unusual spin dynamics in double perovskite $\text{Tb}_2\text{CoMnO}_6$, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 528, 167697.
- [10]. T. A. Tran, T. P. Hoang, D. T. Khan, A. V. Rutkauskas, S. E. Kichanov, N. Q. Tuan, L. V. T. Son, N. T. Dang, T. L. Phan, T. T. Trang, A. S. Abiyev, S. H. Jabarov, A. S. Sklyarova, E. V. Bolotov, and V. S. Zakhvalinskii (2024). Anomalous magnetic and electrical properties of disordered double perovskite alloy LaCaMnFeO_6 , *Materials Research Express*, Vol. 11, Issue 7, 076101.
- [11]. R. C. Sahoo, Y. Takeuchi, A. Ohtomo, and Z. Hossain (2019). Exchange bias and spin glass states driven by antisite disorder in the double perovskite compound LaSrCoFeO_6 , *Physical Review B*, Vol. 100, Issue 11, 214436.
- [12]. C. Gauvin-Ndiaye, T. E. Baker, P. Karan, Massé, M. Balli, N. Brahiti, A. M. Eskandari, P. Fournier, A. M. S. Tremblay, and R. Nourafkan (2018). Electronic and magnetic properties of the candidate magnetocaloric-material double perovskites $\text{La}_2\text{MnCoO}_6$, $\text{La}_2\text{MnNiO}_6$, and $\text{La}_2\text{MnFeO}_6$, *Physical Review B*, Vol. 98, Issue 12, 125132.
- [13]. N. Das, S. Singh, A. G. Joshi, M. Thirumal, V. R. Reddy, L. C. Gupta, A.K. Ganguli (2017). $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$: A Type I Multiferroic, *Inorganic Chemistry*, Vol. 56, Issue 21, pp. 12712–12718.

- [14]. D. Mazumdar, and I. Das (2021), Structural, magnetic, and magnetocaloric properties of the multiferroic host double perovskite compound $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$, *Physical Chemistry Chemical Physics*, Vol. 23, Issue 9, pp. 5596–5606.
- [15]. V. Aksenov, A. Balagurov, V. Glazkov, D. Kozlenko, I. Naumov, B. Savenko, D. Sheptyakov, V. Somenkov, A. Bulkin, V. Kudryashev, and V. Trounov (1999). DN-12 time-of-flight high-pressure neutron spectrometer for investigation of microsamples, *Physica B-condensed Matter*, Vol. 265, Issue 1-4, pp. 258–262.
- [16]. F. Liu, J. Li, Q. Li, Y. Wang, X. Zhao, Y. Hua, C. Wang, and X. Liu (2014). High pressure synthesis, structure, and multiferroic properties of two perovskite compounds Y_2FeMnO_6 and Y_2CrMnO_6 , *Dalton Transactions*, Vol. 43, Issue 4, pp. 1691–1698.
- [17]. V. M. Gaikwad, M. Brahma, R. Borah, and S. Ravi (2019). Structural, optical and magnetic properties of $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ nanoparticles, *Journal of Solid State Chemistry*, Vol. 278, 120903.
- [18]. C. Wang, Y. Lian, E. Liu, A. J. Studer, W. T. Chen, and C. Du (2021). Magnetic structures and spin reorientation in the B-site disordered perovskite $\text{PrFe}_{0.5}\text{Cr}_{0.5}\text{O}_3$, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 538, 168273.
- [19]. D. P. Kozlenko, N. T. Dang, S. E. Kichanov, L. T. P. Thao, A. V. Rutkauskas, E. V. Lukin, B. N. Savenko, N. Tran, D. T. Khan, L. V. T. Son, L. H. Khiem, B. W. Lee, T. L. Phan, N. L. Phan, N. Truong-Tho, N. N. Hieu, T. A. Tran, and M. H. Phan (2022). High pressure enhanced magnetic ordering and magnetostructural coupling in the geometrically frustrated spinel Mn_3O_4 , *Physical Review B*, Vol. 105, Issue 9, 094430.

CRYSTAL STRUCTURE AND MAGNETIC ORDER IN $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$

Nguyen Thanh Nghiem^{1,2}, Nguyen Hoang Yen^{3,4}, Le Van Truong Son⁵, Trinh Ngoc Dat⁵,
Dinh Thanh Khan^{4,*}, Doan Phan Thao Tien², Tran Ngo^{6,7}, Hoang Trong Phuc^{6,7},
Nguyen Truong Tho^{1,*}

¹ Faculty of Electronics, Electrical Engineering and Material Technology,
University of Sciences, Hue University

² Institute of Oceanography, Vietnam Academy of Science and Technology

³ Graduate University of Science and Technology, Vietnam Academy of Science and Technology

⁴ School Nha Trang, Khanh Hoa

⁵ Faculty of Physics and Chemistry, University of Science and Education,
The University of Danang

⁶ Institute of Research and Development, Duy Tan University

⁷ Faculty of Environmental and Natural Sciences, Duy Tan University

*Email: dtkhan@ued.udn.vn, ntthokh@hueuni.edu.vn

ABSTRACT

The double perovskite compound $\text{Pr}_2\text{FeCrO}_6$ has attracted considerable attention due to its unique magnetic properties and potential applications in multifunctional materials. In this study, the material was synthesized via the solid-state reaction method and characterized in terms of its structural, morphological, and magnetic properties. X-ray and neutron diffraction analyses (Rietveld method) showed that the material is a single-phase compound with an orthorhombic Pnma structure, featuring a random distribution of Fe^{3+} and Cr^{3+} ions at the B-sites. The magnetic behavior is determined as long-range G-type antiferromagnetic ordering that formed below $T_N = 240$ K.

Keywords: antiferromagnetism, double perovskite, neutron diffraction.



Nguyễn Thành Nghiêm sinh ngày 29/10/1997 tại Khánh Hòa. Ông tốt nghiệp cử nhân ngành Sư phạm Vật lý tại trường Đại học Sư phạm, ĐH Huế năm 2021 và thạc sĩ chuyên ngành Vật lý nguyên tử và hạt nhân năm 2023 tại Học viện Khoa học và Công nghệ - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam. Ông là công tác tại phòng Vật lý ứng dụng tại Viện Hải Dương học – Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam từ năm 2024.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật liệu từ, Vật liệu đa chức năng, Vật lý chất rắn.



Nguyễn Hoàng Yến sinh ngày 15/11/1992 tại Khánh Hòa. Bà tốt nghiệp cử nhân chuyên ngành Sư phạm Vật lý năm 2014 tại trường Đại học Sư phạm TP Hồ Chí Minh. Bà công tác tại trường iSchool Nha Trang từ năm 2017.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật lý nguyên tử và hạt nhân.



Lê Vũ Trường Sơn sinh ngày 31/12/1994 tại Quảng Nam. Ông tốt nghiệp Cử nhân Vật lý tại trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng năm 2016. Năm 2019, ông tốt nghiệp thạc sĩ chuyên ngành Lý luận và phương pháp dạy bộ môn Vật lý tại trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng. Ông công tác tại Khoa Lý – Hóa, trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng từ năm 2020.

Lĩnh vực nghiên cứu: Khoa học Vật liệu.



Trinh Ngọc Đạt sinh ngày 03/11/1990 tại Đà Nẵng. Ông tốt nghiệp kỹ sư ngành Điện tử - Viễn thông năm 2013 và thạc sĩ chuyên ngành Kỹ thuật điện tử năm 2022 tại Trường Đại học Bách khoa – Đại học Đà Nẵng. Ông công tác tại Khoa Lý - Hóa, trường Đại học Sư phạm, ĐH Đà Nẵng từ năm 2014.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật liệu phát quang.



Dinh Thanh Khấn sinh ngày 00/03/1986 tại Quảng Nam. Ông nhận học vị Tiến sĩ ngành Vật lý tại Đại học Osaka – Nhật Bản năm 2014. Hiện ông là giảng viên tại trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng.

Lĩnh vực nghiên cứu: Khoa học Vật liệu.



Đoàn Phan Thảo Tiên sinh ngày 21/09/1984 tại Thừa Thiên Huế. Bà tốt nghiệp cử nhân ngành Vật lý năm 2006 tại Trường Đại học Đà Lạt, thạc sĩ chuyên ngành Vật lý kỹ thuật năm 2014 tại Trường Sư Phạm Hà Nội; nhận học vị tiến sĩ năm 2023 tại Trường Đại học Đà Lạt. Bà công tác tại Phòng Vật lý ứng dụng, Viện Hải dương học, Viện Hàn lâm khoa học và Công nghệ Việt Nam từ 2025.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật lý kỹ thuật và ứng dụng, Vật liệu nano.



Trần Ngọc sinh ngày 07/5/1990 tại Thừa Thiên Huế. Ông tốt nghiệp cử nhân chuyên ngành Sư phạm Vật lý tại trường Đại học Sư phạm, ĐH Đà Nẵng năm 2012, tốt nghiệp thạc sĩ và tiến sĩ Vật lý Chất rắn lần lượt các năm 2017 và 2020 tại trường Đại học Hankuk, Hàn Quốc. Ông công tác tại Đại học Duy Tân từ năm 2020.

Lĩnh vực nghiên cứu: Hấp thụ và che chắn sóng vi ba, Tính chất từ và cấu trúc của vật liệu đa sắt từ.



Trương Thị Hồng Vân sinh ngày 08/10/1986 tại Quảng Nam. Bà tốt nghiệp đại học ngành Sư phạm Vật lý tại Trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng năm 2009. Hiện nay, bà đang công tác tại Đại học Duy Tân.

Lĩnh vực nghiên cứu: Khoa học vật liệu.



Hoàng Trọng Phúc sinh ngày 06/07/1990 tại Thừa Thiên Huế. Ông tốt nghiệp cử nhân Sư phạm Vật lý năm 2012 tại Trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng, tốt nghiệp thạc sĩ chuyên ngành Vật lý chất rắn tại Trường Đại học Khoa học – Đại học Huế năm 2023. Ông đang công tác tại Trung tâm Thí nghiệm và Khoa Môi trường & Khoa học Tự nhiên, Đại học Duy Tân từ năm 2015

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật lý chất rắn.



Nguyễn Trường Thọ sinh ngày 26/08/1976 tại Thừa Thiên Huế. Ông tốt nghiệp cử nhân ngành Vật lý năm 1999 và thạc sĩ chuyên ngành Vật lý Chất rắn tại Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế vào năm 2003. Ông nhận học vị tiến sĩ năm 2010 tại Đại học Osaka, Nhật Bản. Hiện nay, ông công tác tại Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế.

Lĩnh vực nghiên cứu: Vật liệu sắt điện, áp điện dưới dạng màng mỏng và gốm.