



**UNIVERSITAS INDONESIA**

**STUDI KOMPUTASI SIFAT-SIFAT MAGNETORESISTIF  
DAN MAGNETOKALORIK BAHAN OKSIDA MANGAN**

**TESIS**

**Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar M. Si**

**MUHAMAD KHABIB JUNAINI  
0906576580**

**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
PROGRAM STUDI FISIKA  
KEKHUSUSAN FISIKA MURNI DAN TERAPAN  
DEPOK  
MEI 2012**

## HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

**Tesis ini adalah hasil karya saya sendiri,  
dan semua sumber baik yang dikutip maupun yang dirujuk  
telah saya nyatakan dengan benar.**

**Nama : Muhamad Khabib Junaini**  
**NPM : 0906576580**

**Tanda Tangan :**



**Tanggal : 29 Mei 2012**

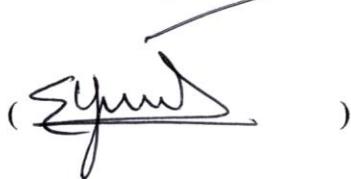


## HALAMAN PENGESAHAN

Tesis ini diajukan oleh :  
Nama : Muhamad Khabib Junaini  
NPM : 0906576580  
Program Studi : Fisika  
Judul Tesis : Studi Komputasi Sifat-Sifat Magnetoresistif dan Magnetokalorik Bahan Oksida Mangan

**Telah berhasil dipertahankan di hadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Magister Sains pada Program Studi Fisika Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia**

### DEWAN PENGUJI

Pembimbing I : Dr. Muhammad Aziz Majidi (  )  
Pembimbing II : Dr. Budhy Kurniawan (  )  
Penguji : Dr. Muhammad Hikam (  )  
Penguji : Dr. Efta Yudiarsah (  )  
Penguji : Dr. Dede DJuhana (  )

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 29 Mei 2012

## KATA PENGANTAR

Puji syukur saya panjatkan kepada Allah swt yang telah melimpahkan berkat dan karunia-Nya sehingga saya dapat menyelesaikan tesis ini. Penulisan ini dilakukan untuk memenuhi syarat dalam mencapai gelar Magister Sains pada Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Indonesia.

Saya menyadari bahwa bantuan dan dukungan dari semua pihak sangat berarti dalam penyelesaian tesis ini. Oleh karena itu, penulis mengucapkan terima kasih kepada :

1. Dr. Muhammad Aziz Majidi selaku dosen pembimbing I yang telah menyediakan waktu, tenaga, dan pikiran dalam rangka penyusunan tesis ini;
2. Dr. Budhy Kurniawan selaku dosen pembimbing II yang telah menyediakan waktu, tenaga, dan pikiran dalam rangka penyusunan tesis ini;
3. Dinas Pendidikan Provinsi Jambi atas dukungan dana selama masa kuliah;
4. Pemerintah Walikota Jambi dan Pemerintah Kabupaten Muaro Jambi atas izin belajar yang diberikan;
5. Istri tercinta Gobi Hemerli dan anak-anak (Ahmad Hasbi Ramadhan dan Irfan Fatih Maulana) atas bantuan, perhatian, dan motivasi yang diberikan;
6. Orang tua dan Keluarga saya atas doa dan dukungan yang diberikan;
7. Sahabat-Sahabat yang telah membantu dalam menyelesaikan tesis ini.

Saya berdoa semoga Allah swt memberikan pahala dan kebaikan kepada semua pihak atas segala yang telah dilakukan, dan semoga tesis ini memberikan manfaat bagi perkembangan ilmu pengetahuan.

Depok, Mei 2012

Penulis

**HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI  
TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS**

---

---

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan di bawah ini :

Nama : Muhamad Khabib Junaini  
NPM : 0906576580  
Program Studi : Fisika Murni dan Terapan  
Departemen : Fisika  
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Jenis Karya : Tesis

Demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif** (*Non-exclusive Royalty-Free Right*) atas karya ilmiah saya yang berjudul :

**Studi Komputasi Sifat-Sifat Magneto-resistif dan Magnetokalorik Bahan Oksida Mangan**

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/formatkan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (database), merawat, dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai Pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Depok

Pada Tanggal : 29 Mei 2012

Yang menyatakan



(Muhamad Khabib Junaini)

## ABSTRAK

Nama : Muhamad Khabib Junaini  
Program Studi : Fisika  
Judul : Studi Komputasi Sifat-Sifat Magnetoresistif dan Magnetokalorik Bahan Oksida Mangan

Tesis ini merupakan studi teoretik-komputasi tentang sifat-sifat magnetoresistif dan magnetokalorik bahan oksida mangan. Studi dimulai dengan memformulasikan model dalam Hamiltonian yang terdiri atas suku kinetik elektron yang diturunkan dari pendekatan *tight binding*, suku interaksi magnetik *Double Exchange (DE)* antara spin-spin elektron konduksi dengan momen-momen magnetik lokal ion-ion Mn, suku kinetik dan potensial fonon, serta suku interaksi elektron-fonon (*EP*) yang diformulasikan dengan pendekatan Holstein. Model ini diselesaikan dengan metode *Dynamical Mean Field Theory (DMFT)*. Secara khusus hasil-hasil studi ini dibandingkan dengan data-data eksperimental bahan kristal tunggal  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  (dengan  $x=0,3$ ). Hasil-hasil perhitungan *density of states (DOS)*, resistivitas, dan magnetisasi dengan variasi temperatur menunjukkan bahwa interaksi *DE* membentuk fase ferromagnetik-metal pada temperatur rendah, sedangkan interaksi *EP* bertendensi merusak keteraturan magnetik, yang mengakibatkan turunnya temperatur transisi magnetik, sekaligus melokalisasi elektron sehingga membentuk fase paramagnetik-insulator pada temperatur tinggi. Lebih lanjut, perbandingan perilaku resistivitas sebagai fungsi temperatur untuk berbagai nilai medan magnet luar antara hasil perhitungan teoretik dan data eksperimental menunjukkan bahwa efek magnetoresistansi kolosal bahan oksida mangan merupakan hasil dari keterkaitan peran (*interplay*) antara interaksi-interaksi *DE* dan *EP*. Investigasi terhadap magnetisasi dan perubahan entropi sebagai fungsi temperatur untuk berbagai nilai medan magnet luar menegaskan bahwa efek magnetokalorik timbul karena adanya transisi fase paramagnetik-ferromagnetik yang muncul sebagai akibat dari adanya interaksi *DE*. Interaksi *EP* tidak banyak mempengaruhi nilai perubahan entropi akibat pemberian medan magnet luar, tetapi menyebabkan turunnya temperatur transisi magnetik secara signifikan, sehingga menggeser daerah kerja aplikasinya untuk mesin pendingin magnetik ke arah temperatur yang lebih rendah. Untuk lebih memahami peran interaksi *EP* terhadap efek magnetokalorik, penelitian teoretik lebih lanjut masih perlu dilakukan mengingat masih adanya aspek-aspek magnetikalorik lainnya, seperti kapasitas panas ( $c_v$ ) sebagai fungsi temperatur, yang belum dieksplorasi secara teoretik untuk dibandingkan dengan data-data eksperimental yang sudah tersedia.

Kata kunci :

Oksida mangan, magnetoresistif, magnetokalorik, *double-exchange*, *electron-phonon*

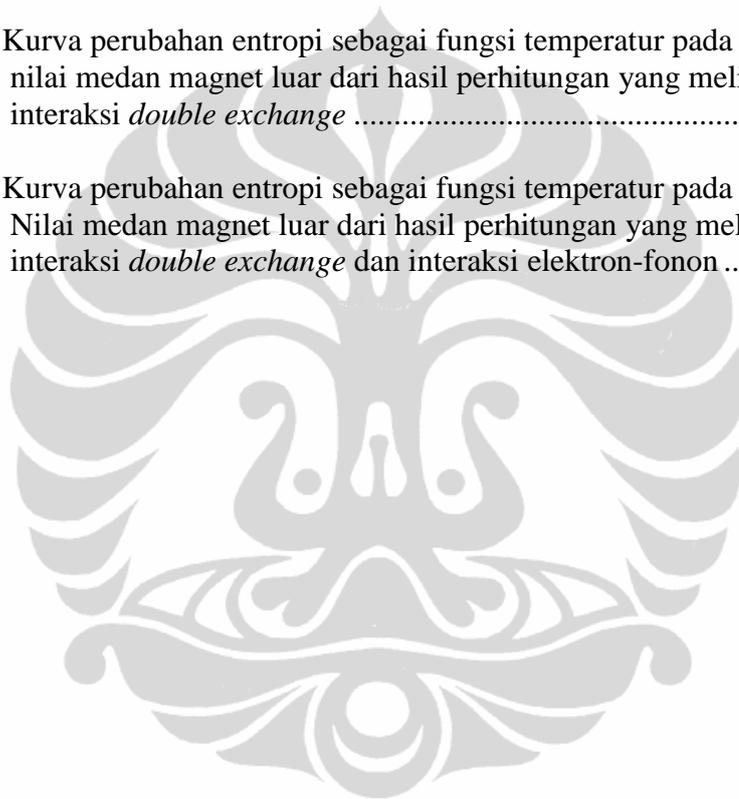
## DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL .....	i
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS .....	ii
HALAMAN PENGESAHAN .....	iii
KATA PENGANTAR .....	iv
HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS AKHIR .....	v
ABSTRAK .....	vi
DAFTAR ISI .....	vii
DAFTAR GAMBAR .....	viii
<b>1. PENDAHULUAN .....</b>	<b>1</b>
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Efek Magnetoresistif .....	3
1.3 Efek Magnetokalorik .....	5
1.4 Tujuan Penelitian .....	7
1.5 Sistematika Penulisan .....	8
<b>2. STUDI LITERATUR .....</b>	<b>9</b>
2.1 Oksida Mangan .....	9
2.2 <i>Double Exchange</i> .....	12
2.3 Model <i>Tight-Binding</i> .....	13
2.4 Pengaruh Fonon .....	14
<b>3. MODEL DAN ALGORITMA DYNAMICAL MEAN FIELD THEORY (DMFT) .....</b>	<b>16</b>
3.1 Model .....	16
3.2 Fungsi Green .....	17
3.3 Algoritma DMFT .....	18
3.4 Perhitungan Resistivitas .....	25
3.5 Perhitungan Perubahan Entropi .....	27
<b>4. HASIL DAN PEMBAHASAN .....</b>	<b>29</b>
4.1 Profil DOS .....	29
4.2 Magnetisasi .....	35
4.3 Resistivitas .....	37
4.4 Perubahan Entropi .....	41
<b>5. KESIMPULAN DAN SARAN .....</b>	<b>44</b>
5.1 Kesimpulan .....	44
5.2 Saran .....	45
<b>DAFTAR REFERENSI .....</b>	<b>46</b>

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 1.1	Hasil eksperimen pengukuran nilai resistivitas sebagai fungsi temperatur pada material LCMO dengan <i>doping</i> $x = 0.3$ .....	4
Gambar 1.2	Hasil eksperimen perubahan entropi sebagai fungsi temperatur material LCMO pada <i>doping</i> $x = 0.3$ .....	6
Gambar 2.1	Struktur <i>perovskite manganites</i> .....	9
Gambar 2.2.	<i>Splitting</i> Tingkat energi dan konfigurasi elektron di orbital 3d ion $Mn^{3+}$ dan $Mn^{4+}$ .....	10
Gambar 2.3.	Diagram fase LCMO .....	11
Gambar 2.4.	Ilustrasi mekanisme <i>double exchange</i> .....	12
Gambar 2.5.	Mode vibrasi Jahn-Teller .....	15
Gambar 3.1.	Ilustrasi pendekatan DMFT .....	18
Gambar 3.2	<i>Bare DOS simple cubic</i> .....	19
Gambar 3.3	Ilustrasi (a) Kisi Bethe, (b) <i>Bare DOS</i> analitik dari kisi Bethe ...	20
Gambar 3.4	Algoritma DMFT .....	23
Gambar 4.1	<i>Bare DOS</i> .....	29
Gambar 4.2	Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> .....	30
Gambar 4.3.	Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> pada berbagai temperatur .....	31
Gambar 4.4	Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> dan elektron-fonon .....	32
Gambar 4.5.	Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi-interaksi <i>double exchange</i> dan elektron-fonon pada $H = 0$ dan $H = 23$ T .....	33
Gambar 4.6.	Kurva magnetisasi sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> .....	35

Gambar 4.7.	Kurva magnetisasi sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> dan interaksi elektron-fonon .....	36
Gambar 4.8	Kurva resistivitas sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> .....	37
Gambar 4.9.	Kurva resistivitas sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> dan interaksi elektron-fonon .....	39
Gambar 4.10	Kurva perubahan entropi sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> .....	41
Gambar 4.11	Kurva perubahan entropi sebagai fungsi temperatur pada berbagai Nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi <i>double exchange</i> dan interaksi elektron-fonon .....	42



# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Dalam 1-2 dekade terakhir ini bahan oksida mangan telah menjadi salah satu jenis material yang banyak mendapat perhatian para peneliti dikarenakan sifat-sifat fisisnya yang tidak hanya menjanjikan untuk beberapa aplikasi teknologi, tetapi juga menarik dan menantang para ilmuwan untuk mengungkap mekanisme fisis di balik penampakan sifat-sifat fisis tersebut [1,2,3]. Di antara sifat-sifat material yang menarik tersebut, secara khusus sifat magnetoresistif dan magnetokalorik berpotensi untuk diterapkan dalam aplikasi teknologi. Efek magnetoresistif dapat diterapkan dalam teknologi *magneto-recording* dan sensor magnetik. Sedangkan efek magnetokalorik memiliki potensi untuk diterapkan dalam teknologi refrigerator magnetik.

Motivasi dalam studi ini adalah mempelajari mekanisme fisis yang mendasari munculnya efek-efek magnetoresistif dan magnetokalorik pada bahan oksida mangan. Meskipun kedua fenomena ini memiliki potensi dalam aplikasi teknologi, tetapi keduanya belum dapat diterapkan dalam produksi peralatan rumah tangga. Ini disebabkan karena peralatan rumah tangga bekerja pada temperatur kamar, sedangkan nilai maksimum efek magnetoresistif seperti yang ditunjukkan oleh  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LCMO) terjadi pada Temperatur Curie ( $T_c$ ) 260 K [4]. Demikian juga dengan efek magnetokalorik, seperti yang ditunjukkan oleh  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$  terjadi pada  $T_c$  370 K, dan pada suhu kamar efek ini justru menghilang [3]. Berkaitan dengan upaya optimasi sifat-sifat material tersebut agar dapat dimanfaatkan untuk kemajuan hidup manusia, diperlukan pemahaman yang lengkap tentang bagaimana efek magnetoresistif dan efek magnetokalorik itu muncul dan bagaimana pula kita mengontrolnya jika dimungkinkan. Untuk itulah penelitian ini dilakukan.

Beberapa model telah diajukan untuk menjelaskan beberapa fenomena yang ditunjukkan oleh bahan oksida mangan. Model yang cukup populer adalah model

*double exchange* yang diajukan oleh Zener (1951) [5]. Model *double exchange* dapat menjelaskan munculnya fase-fase magnetik bahan oksida mangan, seperti ferromagnetisme dan antiferromagnetisme, yang kemunculannya bergantung pada konsentrasi atom-atom *doping* yang menentukan banyaknya pembawa muatan dalam sistem. Meskipun dapat menjelaskan sifat-sifat kemagnetan bahan oksida mangan, akan tetapi model *double exchange* tidak dapat menjelaskan munculnya transisi insulator-metal pada material tersebut. Selanjutnya, Millis *et al.* (1995) mengajukan pentingnya pengaruh fonon dan interaksi elektron-fonon untuk menjelaskan terjadinya lokalisasi elektron yang mengakibatkan terbentuknya fase insulator pada temperatur tinggi [6]. Analisis serupa dengan model agak berbeda juga diberikan oleh Ramirez (1997) [7]. Pentingnya memasukkan interaksi elektron-fonon ini juga didukung oleh analisis teoretik yang dilakukan oleh Majidi *et al.* (2011) terhadap data eksperimental konduktivitas optis bahan LCMO [2].

Baru-baru ini telah dilakukan studi teoretik tentang fenomena transisi ferromagnetik-paramagnetik dan metal-insulator pada bahan  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  (LCMO), dengan menggunakan model yang meliputi interaksi *double exchange* (DE), pengaruh fonon, dan interaksi elektron-fonon (EP) [1]. Hasil studi ini telah mampu menunjukkan secara kasar efek dari keterkaitan peran (*interplay*) antara interaksi DE dan interaksi EP dalam membentuk fase ferromagnetik-metal pada temperatur rendah dan fase paramagnetik-insulator pada temperatur tinggi. Namun, kekurangan pada studi ini adalah bahwa seluruh perhitungan yang melibatkan interaksi DE dilakukan dalam pengaruh medan magnet luar yang relatif tinggi. Hal ini disebabkan oleh adanya kesulitan teknis dalam menjaga kestabilan tendensi konvergensi pada proses-proses iterasi jika stimulasi medan magnet luar dibuat relatif kecil atau dihilangkan sama-sekali. Akibat belum diperolehnya data teoretik yang menggambarkan perilaku magnetisasi sebagai fungsi temperatur untuk sistem tanpa pengaruh medan magnet luar, analisis terhadap sifat magnetoresistif sistem menjadi kurang lengkap dan kurang akurat. Di samping itu, studi tersebut juga belum menginvestigasi konsekuensi dari model terhadap sifat-sifat magnetokalorik sistem.

Salah satu sasaran dalam studi ini adalah perhitungan numerik *self-consistent* yang lebih sistematis untuk memperoleh data fungsi Green dan *self-energy* pada sistem dengan model yang sama dengan yang dilakukan pada Ref. [1], namun dengan medan magnet luar yang dapat dikontrol hingga sekecil mungkin bahkan dihilangkan tanpa merusak kestabilan iterasi. Selain itu, studi ini juga mengeksplorasi lebih lanjut konsekuensi dari model untuk memprediksi sifat-sifat magnetokalorik sistem. Material yang dijadikan sebagai objek studi adalah bahan LCMO dengan *doping*  $x = 0.3$ , di mana material menunjukkan efek magnetoresistif maksimum [8]. Pada tahap ini target studi adalah untuk memperoleh kesesuaian kualitatif antara hasil-hasil perhitungan model dengan trend yang tampak pada data-data eksperimental. Apabila kesesuaian kualitatif dianggap sudah cukup memuaskan, kesesuaian kuantitatif merupakan sasaran lebih lanjut yang diharapkan dapat dicapai dengan melakukan perhitungan yang lebih teliti dengan pemilihan harga-harga parameter model yang lebih representatif.

## 1.2 Efek Magnetoresistif

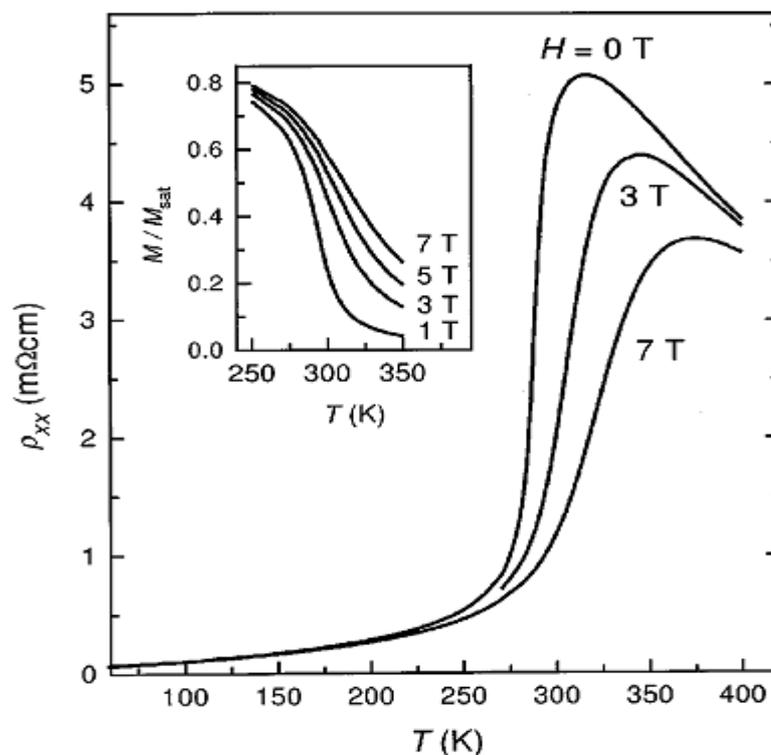
Efek magnetoresistif merupakan efek dari adanya medan magnet luar pada sifat transpor listrik suatu material atau bahan. Efek ini berupa penurunan resistivitas suatu material akibat adanya medan magnet luar yang dinyatakan dengan besaran magnetoresistansi (*magnetoresistance*). Besar magnetoresistansi suatu material merupakan rasio dari selisih resistivitas material tersebut ketika diberi medan magnet luar dengan resistivitas material ketika tidak ada medan magnet luar. Secara matematis besar magnetoresistif dapat dituliskan sebagai [7,9]:

$$MR_H = \frac{R(0) - R(H)}{R(0)} \quad (1.1)$$

dimana  $MR_H$  adalah magnetoresistansi,  $R(0)$  adalah resistivitas bahan ketika tidak ada medan magnet luar, dan  $R(H)$  adalah resistivitas bahan ketika diberi medan magnet luar  $H$ .

Efek magnetoresistif yang terjadi pada metal hanya beberapa persen saja untuk medan magnet luar sebesar 1 T. Pada tahun 1950, Jonker dan Van Santen [10] melaporkan hasil penelitiannya pada bahan LCMO, bahwa bahan ini bersifat

insulator pada nilai  $x = 0$  dan  $x = 1$ , dan dapat bersifat sebagai metal untuk nilai  $x$  diantara nol dan satu. Bahan LCMO ini menunjukkan efek magnetoresistif yang sangat besar [8]. Material ini diketahui sebagai material *Collosal Magnetoresistance* (CMR). Salah satu hasil eksperimen tentang efek magnetoresistif pada bahan LCMO dapat dilihat pada Gambar 1.1.



Gambar 1.1. Hasil eksperimen pengukuran nilai resistivitas sebagai fungsi temperatur pada material LCMO dengan *doping*  $x = 0.3$  [11].

Hal lain yang membuat efek magnetoresistif dari bahan oksida mangan menjadi menarik adalah bahwa nilai maksimum dari efek ini dapat dihasilkan pada temperatur mendekati temperatur kamar [12]. Tentu saja ini sangat menjanjikan untuk diaplikasikan dalam teknologi yang menghendaki adanya alat yang dapat bekerja pada temperatur di sekitar suhu kamar. Di sisi lain, perkembangan teknologi *recording* dan sensor saat ini menghendaki adanya alat yang berukuran lebih kecil dengan sensitivitas yang lebih besar, tentunya bahan oksida mangan ini merupakan salah satu material yang patut untuk dipertimbangkan sebagai kandidat pengganti.

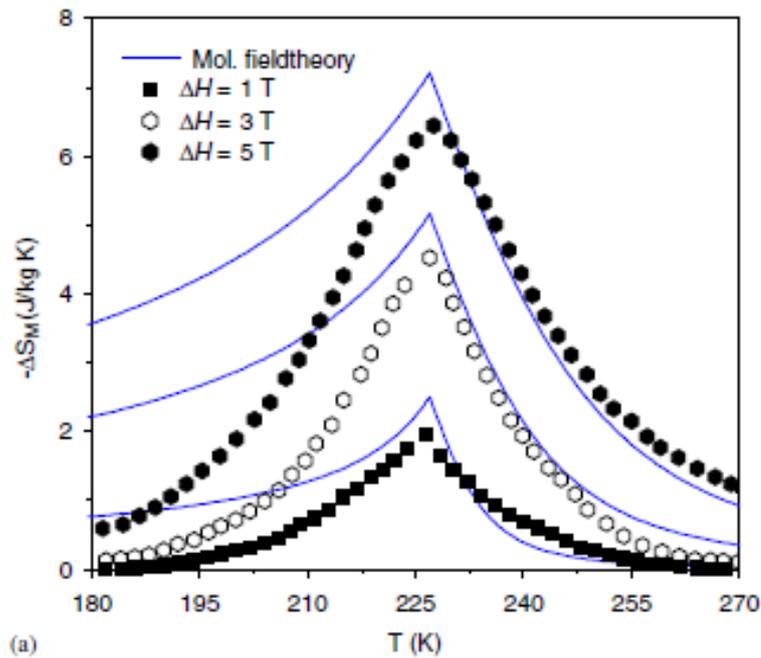
### 1.3 Efek Magnetokalorik

Momen magnetik dari atom-atom dalam material magnetik akan mengalami reorientasi bila material tersebut diberi medan magnet luar. Jika medan magnet luar ini diberikan secara adiabatik, maka temperatur material akan meningkat. Sebaliknya, ketika medan magnet luar ini dihilangkan, maka temperatur material turun kembali. Respon perubahan temperatur suatu material akibat dari medan magnet luar ini disebut sebagai efek magnetokalorik.

Efek magnetokalorik dengan ukuran yang sangat besar telah lama diketahui sebelum dilaporkannya efek magnetokalorik pada bahan oksida mangan, yaitu efek magnetokalorik yang terjadi pada material yang mengandung unsur Gadolinium [13]. Sedangkan studi yang melaporkan adanya efek magnetokalorik pada bahan oksida mangan dilaporkan oleh Morelli *et al.* (1996) [14], di mana material ini menunjukkan efek magnetokalorik yang besarnya mendekati nilai yang ditunjukkan oleh material Gadolinium.

Ada dua karakteristik yang menjadikan suatu bahan dikategorikan memiliki efek magnetokalorik, yang pertama bahan tersebut menunjukkan adanya magnetisasi spontan yang cukup besar, dan yang kedua bahan tersebut mengalami penurunan magnetisasi yang sangat tajam disekitar temperatur Curie ( $T_c$ ) [15]. Sedangkan besarnya efek magnetokalorik itu sendiri diukur dari dua besaran, yaitu perubahan entropi ( $\Delta S$ ) dan perubahan temperatur adiabatik ( $\Delta T$ ). Salah satu hasil eksperimen pengukuran perubahan entropi  $\Delta S$  pada material LCMO ditampilkan pada Gambar 1.2.

Efek magnetokalorik ini diaplikasikan dalam sistem refrigerator magnetik. Material yang dimanfaatkan untuk sistem refrigerator ini disebut sebagai *Active Magnetic Refrigerant* (AMR). Dari beberapa material AMR yang telah diketahui, pada umumnya termasuk dalam kelompok material dengan *First-Order Magnetic Transition* (FOMT) [13,15,16]. Perubahan entropi yang ditunjukkan oleh material FOMT kurang lebih tiga kali lebih besar dari perubahan entropi yang ditunjukkan oleh material-material yang tergolong sebagai material dengan *Second-Order Magnetic Transition* (SOMT) [15].



Gambar 1.2. Hasil eksperimen perubahan entropi sebagai fungsi temperatur material LCMO pada *doping*  $x = 0.3$  [15].

Gadolinium masih merupakan material yang menjadi “benchmark” dalam sistem refrigerator magnetik. Tetapi Gadolinium merupakan material langka, menyebabkan teknologi ini menjadi mahal, dan ini menjadi kelemahan dari material AMR yang mengandung unsur Gadolinium. Di sisi lain, bahan oksida mangan relatif lebih murah dan mudah didapat, sehingga material ini bisa dianggap lebih menjanjikan untuk dipakai sebagai material AMR, meskipun besar perubahan entropi yang ditunjukkan oleh oksida mangan polikristal tidak sebesar yang ditunjukkan oleh AMR yang mengandung unsur Gadolinium. Tetapi oksida mangan kristal tunggal memiliki sifat unggulan yang lain, di mana material ini memiliki perubahan entropi yang lebih merata (*uniform*) [15].

Refrigerator magnetik yang bekerja pada suhu ruang pertama kali dibuat oleh Brown pada tahun 1976, menggunakan Gadolinium sebagai AMR. Refrigerator magnetik merupakan alternatif dari refrigerator konvensional yang masih digunakan sampai saat ini. Refrigerator magnetik ini relevan dengan perkembangan teknologi efisiensi. Selain itu bila dikomparasi dengan refrigerator konvensional yang berbasis pada teknologi evaporasi gas, refrigerator ini tentu

saja lebih ramah lingkungan, sebab tidak menggunakan bahan-bahan yang dapat merusak lapisan ozon [17].

#### 1.4 Tujuan Penelitian

Studi ini dilakukan untuk menyelidiki sifat magnetoresistif dan magnetokalorik dari bahan oksida mangan. Studi terhadap sifat magnetoresistif dilakukan dengan menghitung resistivitas material, sedangkan studi sifat magnetokalorik dilakukan dengan menghitung besar perubahan entropi magnetik. Selain itu juga dilakukan eksplorasi pada berbagai hal yang berkaitan dengan sifat-sifat oksida mangan, di antaranya perhitungan *Density of State* (DOS), dan magnetisasi bahan.

Studi ini berupa studi komputasi, dimana perhitungan dilakukan dengan menggunakan metode *Dynamical Mean Field Theory* (DMFT), yang merupakan salah satu dari beberapa metode yang digunakan dalam *condensed matter physics*. Model yang digunakan terdiri atas suku kinetik elektron yang diturunkan dari pendekatan *tight-binding* (TB), suku kinetik dan potensial vibrasi atom (fonon), serta suku-suku interaksi yaitu interaksi *double exchange* (DE) dan interaksi elektron-fonon (EP).

Adapun langkah-langkah yang dilakukan dalam studi ini adalah sebagai berikut :

1. Perhitungan dilakukan dengan menggunakan model di mana suku interaksi yang diperhitungkan hanya interaksi *double exchange*. Pengaruh interaksi elektron-fonon tidak diperhitungkan. Hal ini dimaksudkan untuk melihat sejauh mana interaksi *double exchange* dapat menjelaskan sifat-sifat dari oksida mangan. Perhitungan dimulai dengan proses iterasi *self-consistency* untuk memperoleh fungsi Green, *self-energy*, dan magnetisasi. Selanjutnya, fungsi Green, *self-energy*, dan magnetisasi yang telah diperoleh digunakan untuk perhitungan-perhitungan lebih lanjut, yaitu perhitungan resistivitas dan perubahan entropi sistem.
2. Perhitungan dilakukan dengan menggunakan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon untuk mengetahui

pengaruh penambahan interaksi elektron-fonon pada efek magnetoresistif dan efek magnetokalorik bahan oksida mangan.

Hasil perhitungan yang diperoleh selanjutnya akan dibandingkan dengan hasil eksperimen LCMO dengan *doping* sebesar  $x = 0,3$  sebagai acuan. Hal ini dilakukan untuk mengetahui apakah model yang digunakan cukup relevan untuk menjelaskan efek magnetoresistif dan magnetokalorik dari bahan oksida mangan.

### 1.5 Sistematika Penulisan

Fokus studi ini adalah mempelajari sifat-sifat magnetoresistif dan magnetokalorik material. Tesis ini disusun dalam 5 bab, dengan sistematika sebagai berikut :

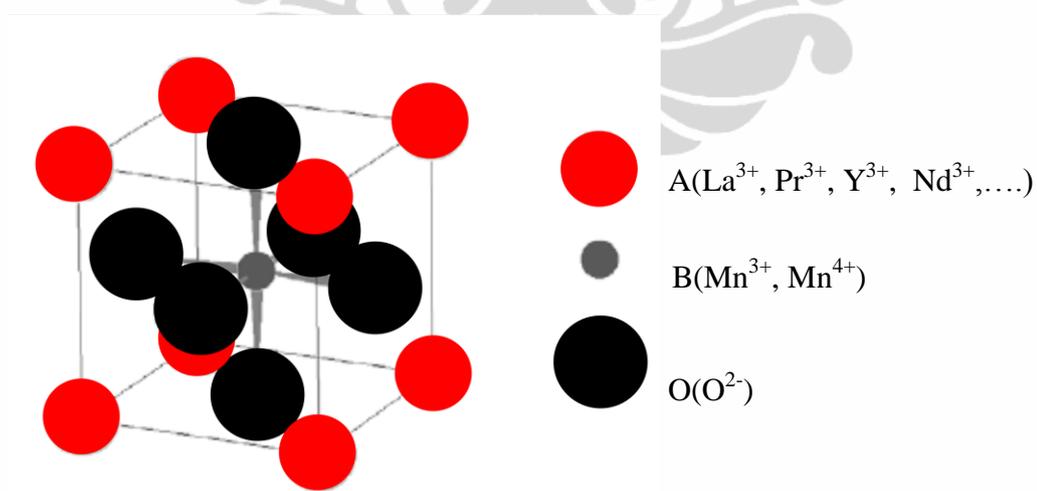
- Bab 1 membahas tentang sifat-sifat oksida mangan yang menjadi motivasi dilakukannya studi ini. Bab ini juga berisi hal-hal penting yang berkaitan dengan sifat-sifat oksida mangan, dan diakhiri dengan tujuan penelitian dan data-data apa saja yang akan dieksplorasi untuk digunakan dalam menjelaskan sifat-sifat magnetoresistif dan magnetokalorik.
- Bab 2 memuat penjelasan tentang struktur oksida mangan dan model-model yang diacu dalam penyusunan model dalam studi.
- Bab 3 menjelaskan tentang model yang digunakan dalam studi, metode, dan rumusan-rumusan yang digunakan untuk menghitung data-data yang dibutuhkan.
- Hasil-hasil perhitungan disampaikan dalam bab 4. Bab ini juga memuat tentang pembahasan hasil-hasil studi dikaitkan dengan sifat-sifat bahan oksida mangan.
- Bab 5 memuat kesimpulan dan saran.

## BAB II STUDI LITERATUR

### 2.1 Oksida Mangan

Material yang tergolong dalam keluarga oksida mangan dirumuskan sebagai  $R_{1-x}A_xMnO_3$ , dengan R merupakan atom yang berasal dari golongan rare-earth ( $La^{3+}$ ,  $Pr^{3+}$ ,  $Y^{3+}$ ,  $Nd^{3+}$ , ...), dan A adalah atom dari golongan alkali atau alkali tanah ( $Ca^{2+}$ ,  $Sr^{2+}$ ,  $Ba^{2+}$ ,  $Na^{2+}$ , ...). Material  $RMnO_3$  adalah insulator, tetapi dengan adanya substitusi atom A ke dalam material ini, material dapat berubah menjadi metal. Substitusi atom A ke dalam sistem, akan menyumbangkan *hole*, sehingga memungkinkan untuk terjadinya transpor elektron.

Oksida mangan juga sering disebut sebagai *mixed-valence manganites*. Penyebutan ini berkaitan dengan keberadaan atom Mn dalam material tersebut bisa dalam keadaan valensi yang berbeda. Dari segi struktur kristal, material ini juga disebut sebagai *perovskite manganites*, karena memiliki struktur yang sama dengan mineral *perovskite*. Gambar 2.1. adalah struktur *perovskite* oksida mangan.

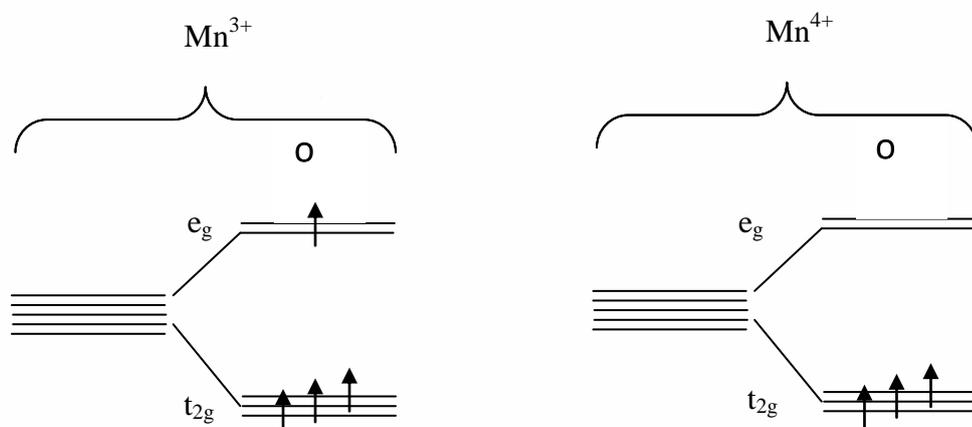


Gambar 2.1. Struktur *perovskite manganites* [3].

Pada bahan oksida mangan dengan *doping*, terdapat dua populasi ion Mn, yaitu ion  $Mn^{3+}$  dan ion  $Mn^{4+}$ . Dalam studi ini difokuskan pada bahan LCMO, populasi ion  $Mn^{3+}$  dalam LCMO proporsional dengan populasi ion  $La^{3+}$ , dan populasi ion  $Mn^{4+}$  proporsional dengan populasi ion  $Ca^{2+}$ . Keberadaan ion Mn dalam dua populasi ini berperan penting dalam sifat transpor dan sifat magnetik material LCMO.

Sifat yang ditunjukkan oleh bahan oksida mangan mengindikasikan adanya hubungan antara sifat transpor dengan magnetisasinya. Hal ini terlihat dari hasil eksperimen yang menunjukkan bahwa efek magnetoresistif dan efek magnetokalorik bernilai maksimum di sekitar  $T_c$ .

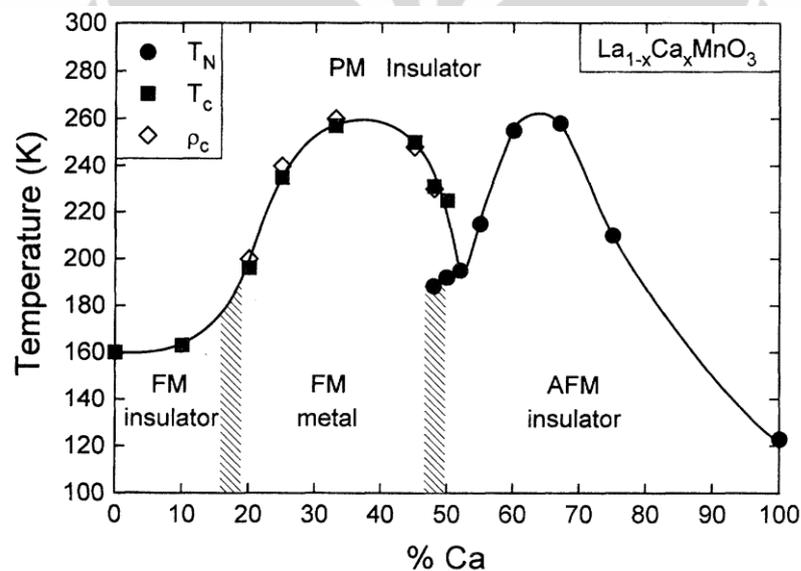
Orbital yang memainkan peranan dalam sifat elektronik bahan oksida mangan adalah orbital d dari ion Mn. Konfigurasi elektron ion Mn adalah  $3d^4$  untuk ion  $Mn^{3+}$ , dan  $3d^3$  untuk ion  $Mn^{4+}$ . Lima orbital d dari atom Mn masing-masing dapat ditempati satu elektron dengan spin *up* dan satu elektron dengan spin *down*. Setiap ion Mn dalam struktur oksida mangan, dikelilingi oleh enam atom oksigen. Lima orbital d ion Mn ini mengalami *splitting* ke dalam dua kelompok tingkat energi, tiga orbital terkelompok dalam energi rendah  $t_{2g}$ , dan dua orbital terkelompok dalam tingkat energi lebih tinggi  $e_g$ . Untuk lebih jelasnya, gambaran *splitting* tingkat energi dari elektron 3d dari ion  $Mn^{3+}$  dan  $Mn^{4+}$  ini dapat dilihat pada Gambar 2.2.



Gambar 2.2. *Splitting* Tingkat energi dan konfigurasi elektron di orbital 3d ion  $Mn^{3+}$  dan  $Mn^{4+}$  [3].

Tiga elektron terluar yang berada di orbital d dari setiap ion Mn, menempati tingkat energi  $t_{2g}$ , dan satu elektron menempati tingkat energi  $e_g$  pada atom  $Mn^{3+}$ . Dalam studi ini, elektron-elektron pada  $t_{2g}$  dianggap terkopel sangat kuat oleh *Hund's coupling* dan membentuk elektron *core* dengan spin total  $3/2$ , atau sering disebut sebagai *core spins* (spin ion).

Bahan oksida mangan dengan *doping* tertentu dapat mengalami transisi dari paramagnetik ke feromagnetik dalam proses pendinginan, diikuti dengan jatuhnya nilai resistivitas dari bahan. Bila medan magnet luar diberikan pada sistem, maka konduktivitasnya dapat diatur dengan cara mengubah besar medan magnet luar yang diberikan [18]. Adapun diagram fase sebagai fungsi temperatur dan *doping*  $x$  untuk bahan LCMO dapat dilihat pada Gambar 2.3.

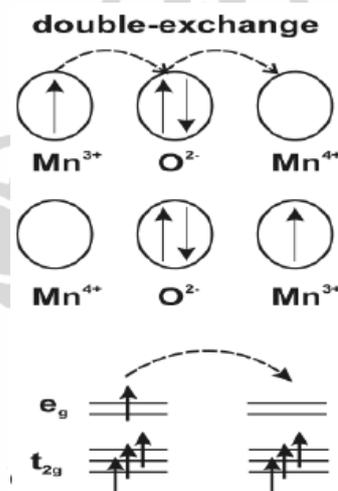


Gambar 2.3. Diagram fase LCMO [18].

Gambar di atas menunjukkan berbagai macam fase yang dapat dimiliki oleh LCMO. Studi ini difokuskan pada keadaan bahan dengan *doping*  $x = 0,3$  dimana dengan berubahnya temperatur, bahan dapat mengalami transisi dari paramagnetik ke feromagnetik dan dari insulator ke metal.

## 2.2 Double Exchange

Adanya transisi yang berlangsung secara simultan dari antiferromagnetik ke feromagnetik dan insulator ke metal pada bahan oksida mangan dengan *doping* tertentu, memerlukan adanya penjelasan tentang bagaimana fenomena ini terjadi. *Double exchange* menjelaskan perilaku metal dari bahan oksida mangan dan fase magnetiknya. Mekanisme perpindahan elektron menurut model ini adalah bahwa keberadaan ion  $\text{Mn}^{3+}$  dan ion  $\text{Mn}^{4+}$  memungkinkan elektron untuk berpindah dari  $\text{Mn}^{3+}$  ke  $\text{O}^{2-}$ , dan secara simultan dari  $\text{O}^{2-}$  berpindah ke ion  $\text{Mn}^{4+}$ . Ilustrasi mekanisme *double exchange* ini secara lebih jelas dapat dilihat pada Gambar 2.4. Adanya transpor elektron ini, mengakibatkan oksida mangan dengan *doping* tertentu dapat berkelakuan sebagai metal. Model *double exchange* ini mengasumsikan bahwa transfer elektron ini membawa memori spin, karenanya *hopping* elektron ini juga memediasi terjadinya fase feromagnetik atau antiferromagnetik material.



Gambar 2.4 Ilustrasi mekanisme *double exchange* [19].

Sudut antara spin ion Mn dengan spin ion Mn tetangga terdekatnya turut berpengaruh pada *double exchange* [20]. Energi sistem berada pada nilai terendah bila spin yang bertetangga saling sejajar atau paralel. Demikian juga dengan keadaan spin elektron, energi akan menjadi lebih rendah ketika spin elektron paralel dengan spin ion Mn [11].

Bentuk Hamiltonian model *double exchange* ini dituliskan sebagai :

$$H_{DE} = -\sum_i J_h \vec{S}_i \cdot \vec{s}_i \quad (2.1)$$

dimana  $H_{DE}$  adalah Hamiltonian *double exchange*,  $J_h$  adalah konstanta *coupling* interaksi spin,  $S_i$  spin ion Mn, dan  $s_i$  spin elektron.

### 2.3. Model *Tight-Binding*

Model *tight-binding* merupakan model yang telah dipakai untuk mendeskripsikan struktur elektronik pada molekul dan zat padat. Struktur pita energi dari elektron dikalkulasi dengan menggunakan kumpulan pendekatan dari fungsi gelombang berdasarkan superposisi dari fungsi-fungsi gelombang elektron yang terisolasi pada setiap atom.

Dalam model ini elektron diasumsikan terikat kuat pada atom dari mana elektron tersebut berasal. Interaksi yang dialami oleh elektron terbatas oleh potensial dari atom-atom disekitarnya. Akibatnya fungsi gelombang dari elektron akan mirip dengan orbital atom dari elektron pada atom bebas. Energi dari elektron ini juga berada dekat dengan energi ionisasi dari elektron yang berada pada atom bebas atau ion, karena interaksi dengan potensial-potensial dan keadaan-keadaan atom tetangga menjadi terbatas.

Hamiltonian model *tight-binding* ini dapat dituliskan sebagai:

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} (c_{i,\sigma}^+ c_{j,\sigma} + h.c.) \quad (2.2)$$

dimana :

$c_{i,\sigma}^+ (c_{i,\sigma})$  = operator kreasi (anihilasi) elektron

$t$  = parameter *hopping*

$i,j$  = indeks untuk tetangga terdekat

$\sigma$  = indeks spin

Parameter *hopping* merupakan transfer integral atau kemampuan elektron untuk berpindah atom. Bila  $t$  bernilai nol, maka itu berarti elektron terisolasi di *site*, dan tidak dapat melompat atau berpindah ke *site* tetangga terdekatnya, atau dapat dikatakan bahwa elektron terlokalisasi. Sedangkan untuk  $t$  tidak sama dengan nol, itu berarti elektron memiliki kemungkinan untuk dapat melakukan *hopping* ke *site* tetangga terdekatnya.

Sistem LCMO memiliki struktur kisi *simple cubic*. Hamiltonian dari model *tight-binding* dari sistem dengan struktur kisi *simple cubic* mengikuti bentuk berikut :

$$H_{el} = \sum_{\vec{k}\sigma} \epsilon(\vec{k}) c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} \quad (2.3)$$

dengan

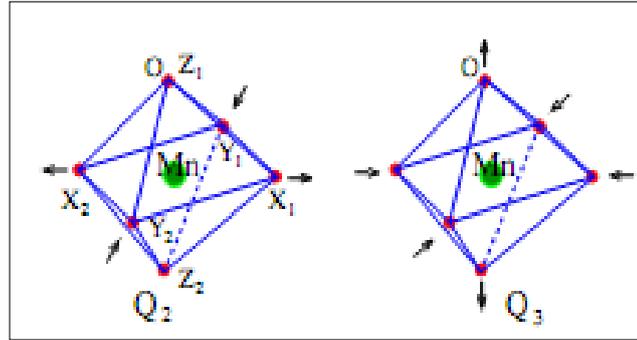
$$\epsilon(\vec{k}) = -2t(\cos(k_x a) + \cos(k_y a) + \cos(k_z a)) \quad (2.4)$$

di mana  $H_{el}$  adalah Hamiltonian elektron dari pendekatan *tight binding*,  $\epsilon(\vec{k})$  adalah dispersi energi elektron dalam ruang kisi balik, dan  $a$  adalah konstanta kisi.

#### 2.4 Pengaruh Fonon

Fonon merupakan kuantisasi dari vibrasi kisi. Dalam studi ini, keberadaan fonon turut diperhitungkan. Studi tentang pentingnya memasukkan pengaruh keberadaan fonon terhadap sifat-sifat yang dimunculkan oleh bahan oksida mangan telah dilakukan oleh Millis *et al.* (1995) [6] untuk menjelaskan transisi paramagnetik ke feromagnetik dan dari insulator ke metal.

Vibrasi pada oksida mangan berasal dari  $\text{MnO}_6$  oktahedra. Mode vibrasi ini dikenal dengan sebutan *Jahn-Teller distortion*. Mode vibrasi ini dapat diilustrasikan seperti pada Gambar 2.5.



Gambar 2.5. Mode vibrasi Jahn-Teller [21].

Untuk melakukan perhitungan yang melibatkan distorsi dinamik Jahn-Teller secara utuh dibutuhkan teknik komputasi yang agak rumit (*sophisticated*) dan *time consuming*. Untuk menghindari kesulitan teknis tersebut, pada penelitian ini mode vibrasi disederhanakan dengan mengacu pada model Holstein. Model ini mengasumsikan atom-atom bervibrasi sebagai osilator-osilator harmonik yang saling independen dengan frekuensi vibrasi yang sama. Secara matematis Hamiltonian-nya dapat dituliskan sebagai

$$H = H_{TB} + H_{ph} + H_{el-ph} \quad (2.5)$$

di mana  $H_{TB}$  adalah hamiltonian *tight-binding*,  $H_{ph}$  adalah hamiltonian fonon, dan  $H_{el-ph}$  adalah hamiltonian interaksi-elektron fonon.

$H_{ph}$  dan  $H_{el-ph}$  menyatakan pengaruh keberadaan fonon di dalam sistem. Bentuk persamaan untuk kedua hamiltonian dari pengaruh fonon tersebut adalah sebagai berikut :

$$H_{ph} = \sum_i \frac{p_i^2}{2M} + \frac{1}{2} M \omega^2 x_i^2 \quad (2.6)$$

$$H_{el-ph} = g \sum_i n_i x_i \quad (2.7)$$

dengan

$M$  = massa atom

$\omega$  = frekuensi karakteristik fonon (yang dianggap tak bergantung pada bilangan gelombang  $k$ )

$x$  = simpangan (dalam arah sembarang)

$n$  = bilangan okupasi elektron

$g$  = konstanta *coupling* elektron-fonon

### BAB III

## MODEL DAN ALGORITMA DYNAMICAL MEAN FIELD THEORY (DMFT)

### 3.1 Model

Sistem yang di dalamnya terdapat dinamika elektron yang kompleks akan menyulitkan bila semua bentuk interaksi yang ada di dalam sistem tersebut harus diperhitungkan. Untuk mempermudah dalam mengkaji sifat-sifat dari sistem yang kompleks ini, dilakukan pemodelan yang berpedoman pada berbagai asumsi.

Dalam studi ini, pemodelan dilakukan dengan mengacu pada beberapa model yang telah digunakan dalam studi sebelumnya dalam kaitan menjelaskan fenomena-fenomena yang ditunjukkan oleh bahan oksida mangan. Model yang digunakan untuk menggambarkan perilaku elektron dalam sistem digunakan model *tight-binding*, interaksi spin elektron dengan spin ion digambarkan dengan model *double exchange*, dan pengaruh fononnya diformulasikan dengan model Holstein.

Bentuk lengkap hamiltonian dari model di atas dituliskan sebagai

$$H = H_{TB} + H_{DE} + H_{ph} + H_{el-ph} \quad (3.1)$$

di mana :

- $H_{TB}$  = hamiltonian *tight-binding*
- $H_{DE}$  = hamiltonian *double exchange*
- $H_{ph}$  = hamiltonian fonon
- $H_{el-ph}$  = hamiltonian interaksi elektron-fonon

Hamiltonian yang telah dirumuskan dalam model di atas dapat ditulis sebagai

$$H = H_0 + H_1 \quad (3.2)$$

di mana  $H_0$  adalah suku kinetik elektron, dan  $H_1$  adalah suku interaksi yang dialami oleh elektron.

### 3.2 Fungsi Green

Fungsi Green (*Green function*) telah dikenal matematika sebagai metode yang sangat efektif dalam penyelesaian masalah persamaan diferensial. Dalam konteks penyelesaian masalah kuantum bagi sistem dengan banyak partikel yang saling berinteraksi, khususnya dengan pendekatan DMFT, selain sebagai alat matematis, fungsi Green juga dapat dikaitkan dengan besaran-besaran fisis yang akan dihitung.

Fungsi Green dari sistem yang di dalamnya terdapat berbagai macam interaksi, dapat ditulis sebagai sebuah matriks yang memenuhi persamaan Dyson :

$$[G(\vec{k}, z)] = [z - \varepsilon(k) - \Sigma(\vec{k}, z)]^{-1} \quad (3.3)$$

di mana  $z$  adalah frekuensi sebagai variabel kompleks. Perhitungan dalam studi ini dilakukan dalam dua domain frekuensi, yaitu domain frekuensi Matsubara dan domain frekuensi riil. Kedua domain frekuensi itu dirumuskan sebagai :

Frekuensi Matsubara :

$$z = i\omega_n + \mu \quad (3.4)$$

Frekuensi riil :

$$z = \omega + i0^+ \quad (3.5)$$

$\varepsilon(k)$  adalah dispersi energi sebagai fungsi  $k$ , seperti yang telah dituliskan di atas, bahwa LCMO memiliki struktur *simple cubic* dengan  $\varepsilon(k)$  seperti pada Pers. (2.4).

$\Sigma(\vec{k}, z)$  adalah *self energy*. Fungsi ini membawa informasi semua interaksi yang dialami elektron di dalam sistem, dalam studi ini interaksi yang diperhitungkan yaitu interaksi spin-spin elektron dengan spin-spin ion Mn (*double exchange*) dan interaksi elektron-fonon.

### 3.3 Algoritma DMFT

Metode yang digunakan dalam studi ini adalah metode DMFT, yang merupakan metode yang cukup reliabel untuk problem *many-body system* melalui pendekatan yang bersifat lokal dinamik [21]. Ide dasar dari metode ini adalah problem kompleks yang bisa juga dianggap sebagai problem kisi diaproksimasi sedemikian rupa sehingga menjadi problem satu *site*. Dalam hal ini derajat kebebasan dalam sebuah sistem tereduksi dalam sebuah “bath” efektif sehingga problem yang kompleks menjadi sangat sederhana [22]. Gambar 3.1 adalah ilustrasi dari pendekatan DMFT.



Gambar 3.1. Ilustrasi pendekatan DMFT [1].

Variabel  $k$  pada persamaan Dyson (3.3) di atas dapat ditransformasi ke dalam variabel dispersi energi  $\varepsilon$ , sehingga bentuk matrik fungsi Green dari model yang telah dirumuskan sebelumnya adalah sebagai berikut :

$$[G(\varepsilon, z)] = [z[I] - [H_0(\varepsilon)] - [\Sigma(\varepsilon, z)]]^{-1} \quad (3.6)$$

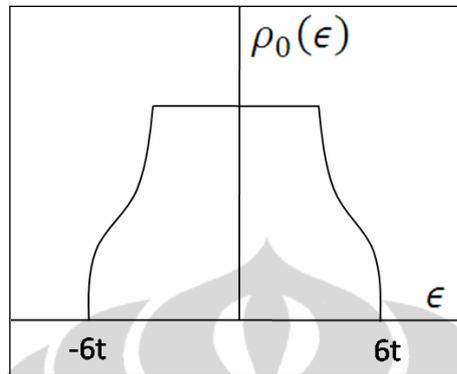
di mana  $[I]$  adalah matrik identitas dan  $H_0(\varepsilon)$  adalah suku kinetik elektron. Pada awal perhitungan nilai fungsi *self energy* belum diketahui sehingga dibutuhkan pemberian harga awal atau tebakan. Tebakan yang diberikan bisa bernilai nol atau nilai yang lain.

Matriks fungsi Green dari Pers. (3.6) selanjutnya dirata-ratakan (*coarsed grained*) terhadap seluruh keadaan  $k$  dalam ruang kisi balik menurut persamaan

$$[\overline{G(z)}] = \int d\varepsilon \rho_0(\varepsilon) [G(\varepsilon, z)] \quad (3.7)$$

$\rho_0(\varepsilon)$  adalah *bare DOS*, yakni DOS yang terasosiasi dengan bagian *non-interacting* atau bagian kinetik elektron dari Hamiltonian model, tidak melibatkan pengaruh interaksi yang dialami elektron. Untuk suku kinetik yang

diturunkan dari pendekatan *tight binding* untuk struktur *simple cubic*, sketsa kurva *bare DOS* ini ditunjukkan pada Gambar 3.2.

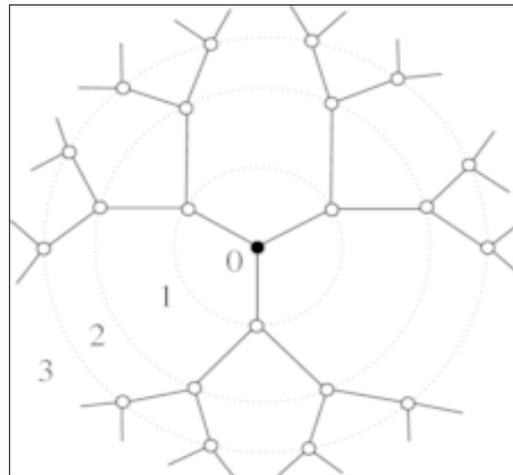


Gambar 3.2. *Bare DOS simple cubic* [1].

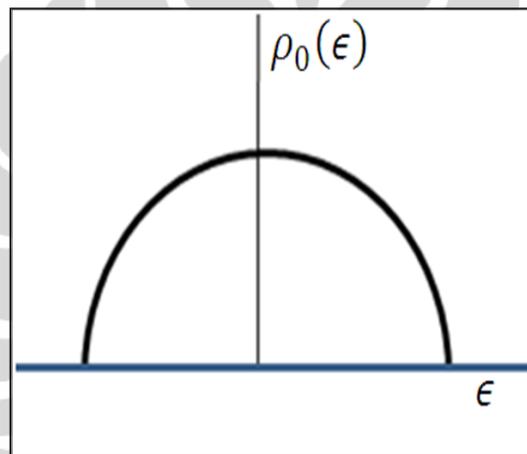
Tidak ada ekspresi analitik sederhana untuk mewakili nilai-nilai *bare DOS tight binding* bagi struktur *simple cubic*. Data nilai-nilai *bare DOS* tersebut hanya dapat diperoleh dalam bentuk numerik dengan melalui proses integrasi numerik terhadap variabel  $k$  dalam ruang Brillouin Zone tiga dimensi. Hal ini membuat perhitungan numerik menjadi lebih panjang. Padahal, untuk sasaran perhitungan yang tidak terlalu kuantitatif, struktur detail dari kurva *bare DOS* tidak terlalu esensial. Karena itu, untuk penyederhanaan perhitungan, dapat digunakan fungsi *bare DOS* hipotetik yang memiliki ekspresi analitik sederhana tetapi dengan profil mendekati *bare DOS simple cubic*. Untuk maksud ini dapat dipilih *bare DOS* dari kisi Bethe. Ilustrasi dari *bare DOS* analitik yang digunakan dalam studi ini adalah seperti Gambar 3.3.

Dengan menggunakan *DOS* analitik dari kisi Bethe, maka  $\rho_0(\epsilon)$  dapat didekati sebagai

$$\rho_0(\epsilon) = \frac{2}{\pi t} \sqrt{1 - \frac{\epsilon^2}{w^2}} \quad (3.8)$$



(a)



(b)

Gambar 3.3. (A) Kisi Bethe, (B) *Bare DOS* analitik dari kisi Bethe [1].

Setelah diperoleh *coarsed-grained Green function*, selanjutnya dihitung “*mean field*” *Green function*. Fungsi Green “*mean field*” adalah fungsi Green yang berperan sebagai fungsi Green “*non-interacting*” bagi suatu *site*, artinya pengaruh interaksi lokal pada *site* tersebut tidak ada. Tetapi, secara *self-consistent* fungsi Green “*mean-field*” telah membawa informasi interaksi yang dialami elektron pada *site-site* lainnya. Secara matematis pengekstrakan suku interaksi ini ditulis :

$$[G_{mf}] = \left[ \overline{[G(z)]}^{-1} + [\Sigma(z)] \right]^{-1} \quad (3.9)$$

Setelah didapatkan fungsi *Green mean field*, perhitungan difokuskan pada *interacting Green function* pada satu *site*. *Green function* ini disebut dengan *Green function local (locally interacting)* yang dihitung menurut persamaan :

$$[G_{loc}] = \left[ [G_{mf}]^{-1} - [\Sigma_{loc}(z, x_1, x_2, \dots)] \right]^{-1} \quad (3.10)$$

$\Sigma_{loc}(z, x_1, x_2, \dots)$  adalah *Self energy local*. *Self energy local* berisi seluruh interaksi yang dialami elektron secara lokal dalam satu *site*. Suku ini membawa informasi dari  $H_{local}$ . Dalam studi ini  $H_1$  mengandung interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon, atau dapat dituliskan sebagai :

$$H_{1loc} = H_{DE} + H_{el-ph} \quad (3.11)$$

Secara lebih rinci *self energy local* dirumuskan dengan :

$$\Sigma_{loc}(z, x, \theta) = \begin{bmatrix} gx - \frac{JhS}{2} \cos \theta & \frac{JhS}{2} \sin \theta \\ \frac{JhS}{2} \sin \theta & gx + \frac{JhS}{2} \cos \theta \end{bmatrix} \quad (3.12)$$

di mana :

- g = konstanta *coupling* elektron-fonon
- x = simpangan
- Jh = konstanta *coupling* interaksi spin
- S = spin ion, dan
- $\theta$  = sudut antara spin ion dengan spin elektron.

Dalam studi ini konstanta *coupling* g dirumuskan [23]:

$$g = \sqrt{\lambda k_B T} \quad (3.13)$$

dengan  $\lambda$  adalah parameter *coupling* elektron-fonon,  $k_B$  adalah konstanta Boltzmann, T adalah temperatur.

Dengan demikian  $[G_{loc}]$  dihitung menurut persamaan :

$$G_{loc}(z, x, \theta) = \begin{bmatrix} \frac{1}{G_{mf}(\uparrow, z)} - gx + \frac{JhS}{2} \cos \theta & \frac{JhS}{2} \sin \theta \\ \frac{JhS}{2} \sin \theta & \frac{1}{G_{mf}(\downarrow, z)} - gx - \frac{JhS}{2} \cos \theta \end{bmatrix} \quad (3.14)$$

Selanjutnya dilakukan perhitungan untuk mendapatkan *green function* yang mencerminkan pengaruh interaksi pada semua *site* dalam sistem secara rata-rata. Perhitungan dilakukan dengan merata-ratakan *green function local*. *Green function* hasil perata-rataan ini disebut sebagai *green function average*. Proses perata-rataannya dilakukan secara termodinamika dengan menggunakan pemberat Boltzman P yang diperoleh menurut persamaan :

$$P(x, \theta) = \frac{e^{-S_{eff}(x, \theta)}}{Z} \quad (3.15)$$

dengan  $S_{eff}$  adalah *effective action* dan Z adalah fungsi partisi.

Sampai pada perhitungan pemberat Boltzman, belum terlihat adanya pengaruh pemberian medan magnet luar terhadap sistem. Demikian juga dengan pengaruh energi potensial fonon. Pengaruh medan magnet luar dan potensial fonon, diperhitungkan dalam *effective action*. Perhitungan *effective action* dalam studi ini dirumuskan sebagai :

$$S_{eff}(x, \theta) = \frac{kx^2}{2k_B T} + \frac{HS \cos \theta}{k_B T} - \sum_n \ln \det[G_{loc}(i\omega_n, x, \theta)] e^{-i\omega_n 0^+} \quad (3.16)$$

Dengan k adalah konstanta pegas, H adalah medan magnet luar.

Fungsi partisi Z dirumuskan sebagai :

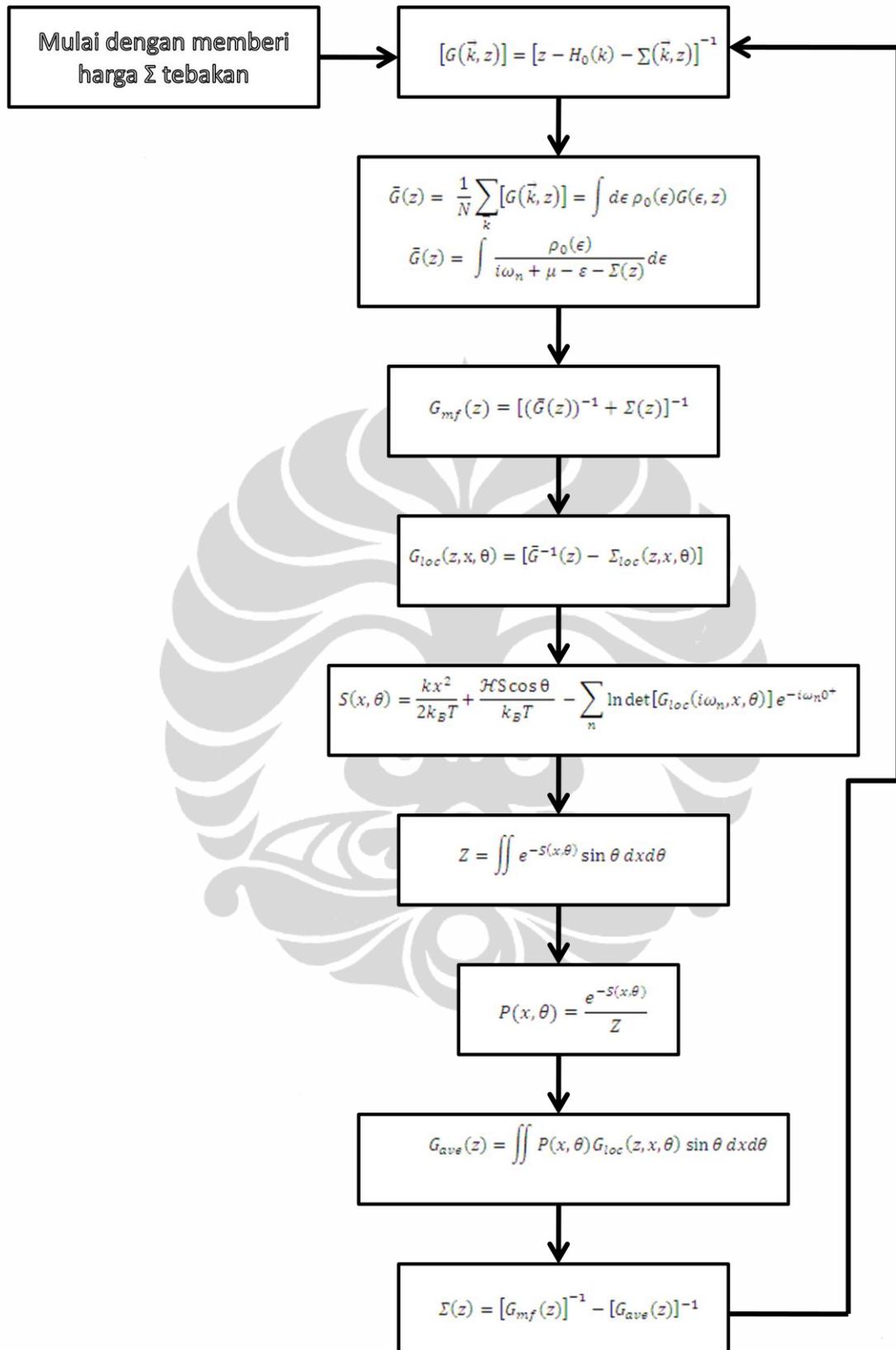
$$Z = \iint e^{-S_{eff}(x, \theta)} \sin \theta \, dx d\theta \quad (3.17)$$

$G_{ave}$  ditentukan menurut persamaan :

$$G_{ave}(z) = \iint P(x, \theta) G_{loc}(z, x, \theta) \sin \theta \, dx d\theta \quad (3.18)$$

Dengan diperoleh  $G_{ave}$  dapat dihitung nilai *self energy* yang baru dan merupakan *self energy* hasil perhitungan. Nilai *self energy* ini diperoleh dari persamaan :

$$\Sigma(z) = [G_{mf}(z)]^{-1} - [G_{ave}(z)]^{-1} \quad (3.19)$$



Gambar 3.4 Algoritma DMFT [1].

*Self energy* yang baru ini digunakan untuk menghitung kembali fungsi Green dengan mengikuti siklus yang sama seperti di atas, sampai diperoleh nilai *self energy* yang konsisten, yang ditandai dengan perhitungan yang konvergen. Untuk lebih jelasnya tentang siklus dari algoritma DMFT ini dapat dilihat pada Gambar 3.4.

Untuk mengetahui profil magnetisasi dari model perhitungan, dilakukan perhitungan magnetisasi menurut persamaan :

$$M = \iint P(x, \theta) \cos \theta \sin \theta dx d\theta \quad (3.20)$$

Sedangkan DOS hasil perhitungan dihitung dari *green function average* dengan rumus :

$$DOS(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{ImTr}[G_{ave,R}(\omega)] \quad (3.21)$$

Untuk mengetahui material dalam keadaan metal atau insulator, perlu diketahui keberadaan potensial kimia pada tampilan DOS yang diperoleh. Untuk itu diperlukan perhitungan potensial kimia. Untuk keperluan ini digunakan persamaan berikut ini :

$$b = 2(1 - y) = \int f(\epsilon) DOS(\epsilon) d\epsilon \quad (3.22)$$

$y$  adalah konsentrasi *doping* (pada bab-bab sebelumnya disimbolkan dengan  $x$ , pembedaan simbol dilakukan karena dalam bab ini simbol  $x$  bermakna koordinat), dan  $f(\epsilon)$  dihitung menurut persamaan :

$$f(\epsilon) = \frac{1}{e^{(\epsilon-\mu)/k_b T} + 1} \quad (3.23)$$

Dimana :

$b$  = *electron filling* (jumlah elektron per site)

$f(\epsilon)$  = fungsi distribusi *Fermi-Dirac*

$\mu$  = potensial kimia

$\epsilon$  = energi

$T$  = Temperatur

### 3.4 Perhitungan Resistivitas

Untuk menyelidiki sifat magnetoresistif material, diperlukan perhitungan resistivitas. Untuk perhitungan resistivitas dalam studi ini mengacu pada *linear response theory*. Perhitungan resistivitas dilakukan dengan terlebih dahulu menghitung konduktivitas material.

Menurut *linear response theory*, besarnya konduktivitas DC material dapat dihitung menurut persamaan :

$$\sigma(\omega = 0) = \frac{\pi e^2}{3\hbar a} \int_{-\infty}^{\infty} d\nu \frac{f(\nu)\{1-f(\nu)\}}{T} \sum_{\vec{k}} Tr \left[ (v_{\vec{k}}^z) \cdot (A_{\vec{k}}^-(\nu)) \cdot (v_{\vec{k}}^z) \cdot (A_{\vec{k}}^-(\nu)) \right] \quad (3.24)$$

Dimana :

- $\sigma$  = konduktivitas
- $e$  = muatan elektron
- $a$  = konstanta kisi
- $f(\nu)$  = fungsi distribusi Fermi-Dirac
- $A_{\vec{k}\uparrow}^-(\nu)$  = fungsi *spectral* untuk spin up
- $A_{\vec{k}\downarrow}^-(\nu)$  = fungsi *spectral* untuk spin down.

Bila *trace* dikerjakan, maka didapatkan :

$$\sigma = \frac{\pi e^2}{3\hbar a} \int_{-\infty}^{\infty} d\nu \frac{f(\nu)\{1-f(\nu)\}}{T} \sum_{\vec{k}} \left\{ \left( v_{\vec{k}\uparrow}^z A_{\vec{k}\uparrow}^-(\nu) \right)^2 + \left( v_{\vec{k}\downarrow}^z A_{\vec{k}\downarrow}^-(\nu) \right)^2 \right\} \quad (3.25)$$

Nilai *self energy* yang diperoleh dari perhitungan DMFT, digunakan untuk menghitung fungsi *spectral* dengan menggunakan persamaan :

$$A_{\vec{k}\uparrow}^-(\nu) = -\frac{1}{\pi} Im \left( \frac{1}{\nu + i\theta^+ + \varepsilon - \Sigma_{\uparrow}^-(\nu)} \right) \quad (3.26)$$

$$A_{\vec{k}\downarrow}^-(\nu) = -\frac{1}{\pi} Im \left( \frac{1}{\nu + i\theta^+ + \varepsilon - \Sigma_{\downarrow}^-(\nu)} \right) \quad (3.27)$$

Sedangkan  $v_{\vec{k}\uparrow/\downarrow}^z$  dapat ditentukan dari :

$$v_{\vec{k}}^z = \frac{\partial E(\vec{k})}{\partial k_z} \quad (3.28)$$

Dalam perhitungan  $v_{\vec{k}\uparrow/\downarrow}^z$  dilakukan pendekatan pada  $E(\vec{k})$ , pendekatan itu adalah dengan mengasumsikan  $E(\vec{k})$  menurut persamaan :

$$E(\vec{k}) = \frac{\vec{k}^2}{2m} \quad (3.29)$$

dengan  $\vec{k} = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2$  dengan  $k_x = k_y = k_z = k$ . Dengan pendekatan ini, maka diperoleh  $v_{\vec{k}}^z$  :

$$v_{\vec{k}}^z = \frac{k_z}{m} = \frac{k}{m} = \frac{\sqrt{\frac{2}{3}mE(\vec{k})}}{m} \quad (3.30)$$

Bila  $E(\vec{k})$  didiferensialkan dua kali akan diperoleh :

$$\frac{\partial^2 E(\vec{k})}{\partial^2 k_z} = \frac{1}{m} \quad (3.31)$$

Dengan mendiferensialkan sebanyak dua kali pada  $E(\vec{k})$  dari tight binding, akan diperoleh :

$$\frac{\partial^2 E(\vec{k})}{\partial^2 k_z} = 2ta^2 \cos(ka) \quad (3.32)$$

Bila nilai a diambil sama dengan satu dan k mendekati nol, maka diperoleh :

$$\frac{\partial^2 E(\vec{k})}{\partial^2 k_z} = 2t = \frac{1}{m} \quad (3.33)$$

Maka dapat diperoleh persamaan untuk  $v_{\vec{k}}^z$ , dengan mensubstitusi hasil di atas ke Pers. (3.34) :

$$v_{\vec{k}}^z = \frac{\sqrt{\frac{2}{3}mE(\vec{k})}}{m} = 2t \sqrt{\frac{1}{3t} E(\vec{k})} = \sqrt{\frac{4t}{3} E(\vec{k})} = 2 \sqrt{\frac{t\varepsilon}{3}} \quad (3.34)$$

Dengan memasukkan hasil ini ke persamaan konduktivitas (Pers. (3.25)), maka didapatkan :

$$\sigma = \frac{\pi e^2}{3\hbar a} \int_{-\infty}^{\infty} d\nu \frac{f(\nu)\{1-f(\nu)\}}{T} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \rho(\varepsilon) 2 \frac{t\varepsilon}{3} \left( (A_{\vec{k}\uparrow}(\nu))^2 + (A_{\vec{k}\downarrow}(\nu))^2 \right) \right\} \quad (3.35)$$

Dengan mendapatkan nilai konduktivitas material, dapat dihitung resistivitas material menurut persamaan :

$$\text{Resistivitas} = \frac{1}{\sigma} \quad (3.36)$$

### 3.5 Perhitungan Perubahan Entropi

Untuk menyelidiki sifat magnetokalorik, maka perlu dilakukan perhitungan perubahan entropi dari material ketika dikenai perubahan medan magnet luar. Perhitungan dilakukan dengan menggunakan termodinamika.

Menurut teori termodinamika klasik, besar perubahan entropi yang ditimbulkan oleh adanya perubahan medan magnet eksternal dari  $H = 0$  sampai  $H_0$  dapat dihitung menurut persamaan :

$$\Delta S_M(T, H_0) = S_M(T, H_0) - S_M(T, 0) \quad (3.37)$$

$$\Delta S_M(T, H_0) = \int_0^{H_0} \left( \frac{\partial S(T, H)}{\partial H} \right)_T dH \quad (3.38)$$

Dengan menggunakan relasi Maxwell :

$$\left( \frac{\partial M(T, H)}{\partial T} \right)_H = \left( \frac{\partial S(T, H)}{\partial H} \right)_T \quad (3.39)$$

Maka akan didapatkan :

$$\Delta S_M(T, H_0) = \int_0^{H_0} \left( \frac{\partial M(T, H)}{\partial T} \right)_H dH \quad (3.40)$$

Secara numerik dapat dilakukan pendekatan pada Pers. (3.40) dalam bentuk :

$$\Delta S_M = \sum_i \frac{M_i - M_{i+1}}{T_{i+1} - T_i} \Delta H_i \quad (3.41)$$

dimana :

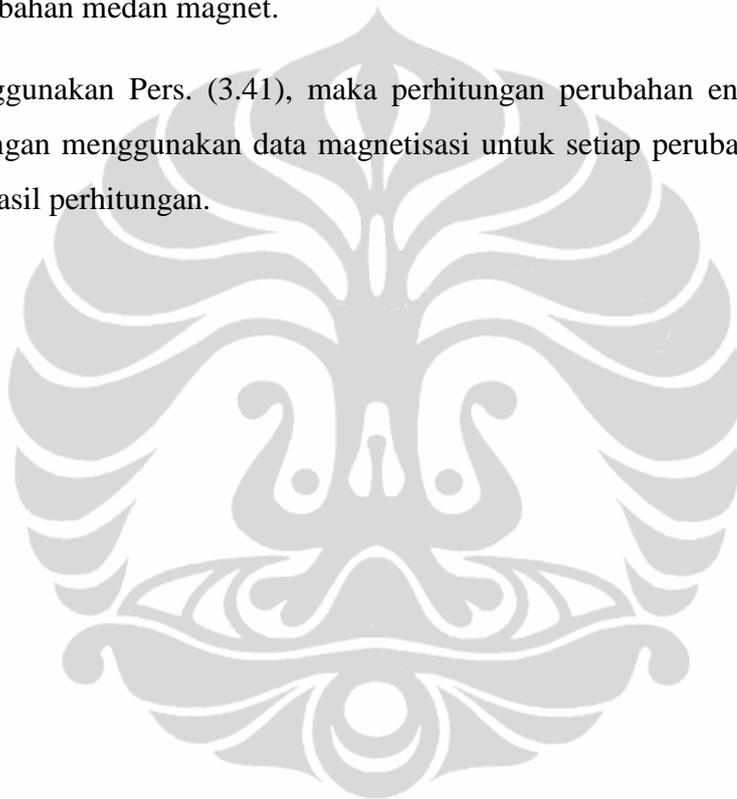
$\Delta S_M$  = perubahan entropi

M = magnetisasi

T = temperatur

$\Delta H$  = perubahan medan magnet.

Dengan menggunakan Pers. (3.41), maka perhitungan perubahan entropi dapat dilakukan dengan menggunakan data magnetisasi untuk setiap perubahan medan magnet luar hasil perhitungan.



## BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

Dalam bab ini akan disampaikan hasil-hasil perhitungan yang diperoleh dengan menggunakan metode DMFT pada bahan oksida mangan. Penyajian dimulai dengan hasil perhitungan DOS, dilanjutkan dengan penyajian hasil perhitungan magnetisasi, resistivitas, dan perubahan entropi. Masing-masing dihitung dengan menggunakan model yang hanya memperhitungkan pengaruh interaksi *double exchange*, dan model yang memperhitungkan pengaruh interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon.

### 4.1 Profil DOS

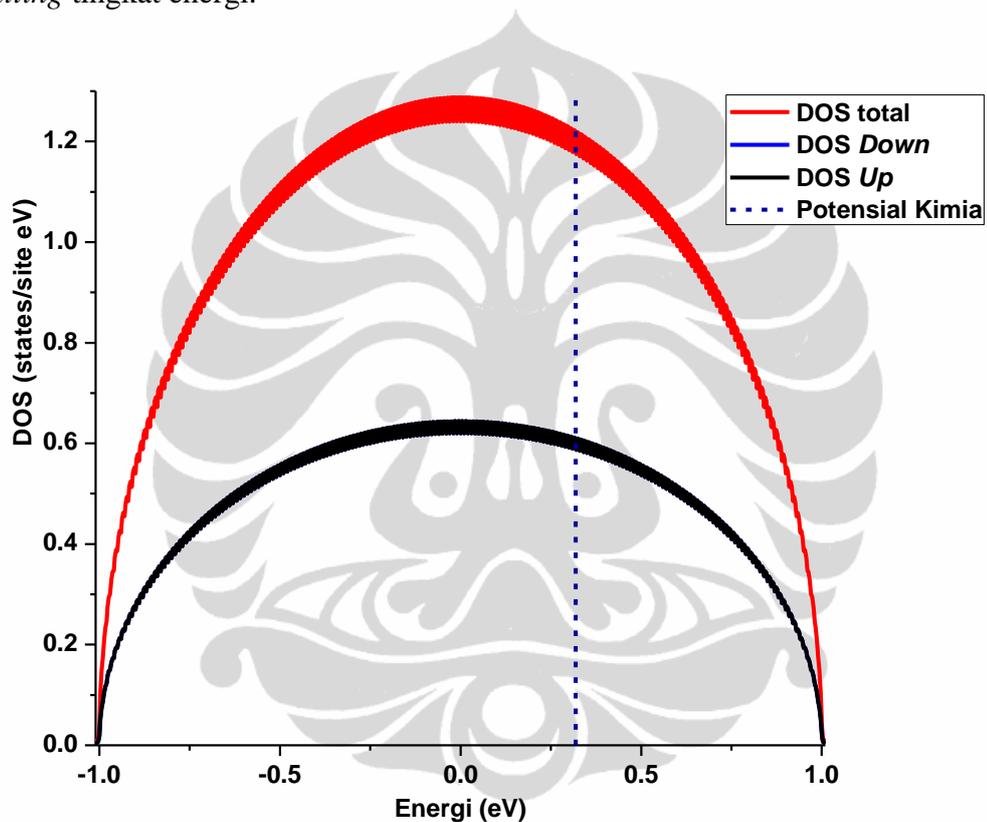
Dalam subbab ini akan ditampilkan beberapa profil DOS dari hasil perhitungan dengan berbagai variasi pada nilai parameter-parameter perhitungan. DOS yang disajikan antara lain : DOS sistem tanpa interaksi, di mana perhitungan dilakukan tanpa memasukkan pengaruh interaksi *double exchange* ( $J_h$  sama dengan nol) dan dan interaksi elektron-fonon ( $\lambda$  sama dengan nol), DOS dari pengaruh interaksi *double exchange* ( $J_h$  tidak nol,  $\lambda$  nol), dan DOS dari pengaruh interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon ( $J_h$  tidak nol dan  $\lambda$  tidak nol).

DOS yang ditampilkan dalam hal ini adalah DOS dari model yang telah dideskripsikan di muka. Gambaran DOS dari model ini dianggap mencerminkan profil DOS dari sistem  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  di sekitar potensial kimianya. Adapun DOS untuk keadaan energi yang lebih rendah dari  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  tidak diwakili dalam model ini karena DOS pada daerah energi tersebut terisi penuh. Demikian juga, model tidak mewakili DOS dari  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  untuk keadaan energi yang lebih tinggi (jauh di atas posisi potensial kimianya), mengingat bahwa DOS untuk daerah energi tersebut kosong. Kedua daerah energi dalam DOS dari sistem  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  riil (jauh di bawah maupun jauh di atas posisi potensial kimia) dianggap tidak memberikan kontribusi terhadap sifat-sifat magnetik dan elektrik sistem.

#### 4.1.1 DOS Sistem Tanpa Interaksi

Profil DOS hasil perhitungan untuk keadaan  $J_h = 0$  dan  $\lambda = 0$  ditampilkan pada Gambar 4.1. Dalam hal ini dianggap tidak ada interaksi yang dialami oleh elektron. Perhitungan dilakukan pada temperatur 11,6 K.

Profil DOS sistem tanpa interaksi ini menunjukkan bahwa DOS untuk spin *up* sama dengan DOS untuk spin *down*. Profil DOS ini tidak menunjukkan adanya *splitting* tingkat energi.

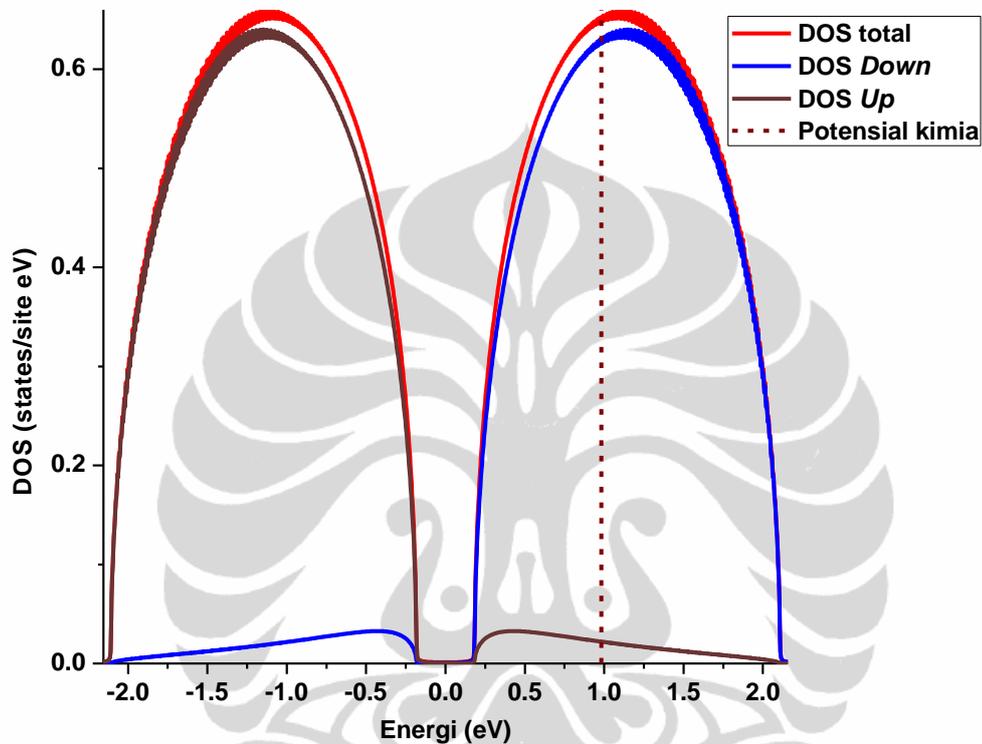


Gambar 4.1. *Bare* DOS.

Profil DOS pada Gambar 4.1. menggambarkan fase metal, di mana posisi potensial kimia menunjukkan bahwa tidak seluruh state terisi oleh elektron. Kekosongan daerah pada DOS di atas posisi potensial kimia diakibatkan oleh adanya *hole* yang disumbangkan oleh dopan Ca sebanyak  $y$  *hole* per *site*. Jumlah elektron yang mengisi DOS (dengan memperhitungkan spin) adalah  $2(1-y)$ .

#### 4.1.2 DOS Hasil Perhitungan yang Melibatkan Interaksi *Double Exchange*

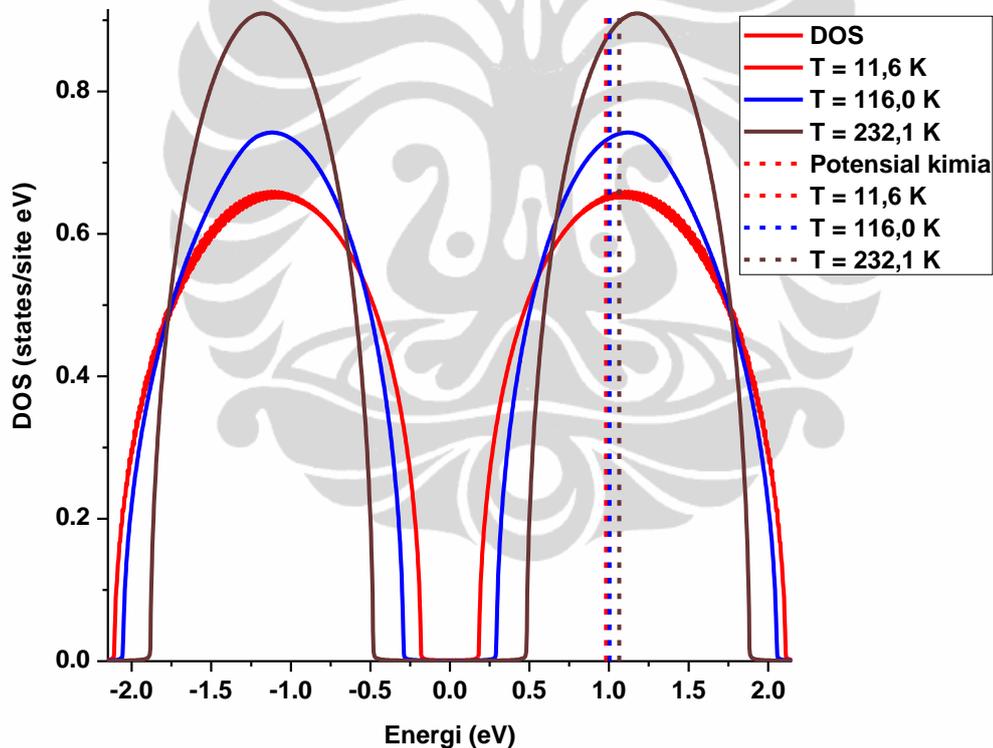
Profil DOS hasil perhitungan dengan menggunakan model yang hanya memperhitungkan interaksi *double exchange* dapat dilihat pada Gambar 4.2. Perhitungan dilakukan pada nilai  $J = 1.5$  pada temperatur 11,6 K.



Gambar 4.2. Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double exchange*.

Profil DOS *double exchange* ini menunjukkan bahwa dengan memperhitungkan adanya interaksi antara spin ion Mn dengan spin elektron konduksi menghasilkan profil DOS yang terpisah dalam dua keadaan, yaitu keadaan dengan energi lebih rendah, dan keadaan dengan energi lebih tinggi. Keadaan dengan energi lebih rendah lebih didominasi oleh keadaan untuk spin *up*, sedangkan keadaan dengan energi lebih tinggi lebih didominasi oleh spin *down*. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa adanya interaksi yang terjadi antara spin elektron dengan spin ion Mn menyebabkan adanya *splitting* tingkat energi, dalam hal ini elektron dengan spin *down* memiliki keadaan dengan energi lebih tinggi, dan elektron dengan spin *up* tingkat energinya menjadi lebih rendah.

Posisi celah energi (*gap*) yang diakibatkan oleh *magnetic splitting* karena interaksi *double exchange* tidak berkorelasi dengan posisi potensial kimia yang ditentukan oleh nilai *electron filling*. Dalam hal ini *gap* terbentuk tepat di tengah-tengah spektrum, sedangkan posisi potensial kimia berada di sisi kanan spektrum sedemikian hingga jumlah elektron yang mengisi DOS mencapai  $2(1-y)=1,4$  (dengan  $y = 0,3$ ), di mana luas *integrated DOS*, yang merepresentasikan jumlah keadaan elektron per *site* adalah 2. Dilihat dari posisi potensial kimia yang tidak berada pada posisi *gap*, menunjukkan bahwa bahan bersifat metal. Di samping itu, kenyataan bahwa DOS yang terisi elektron didominasi oleh salah satu arah spin saja, menunjukkan bahwa spin elektron terpolarisasi. Hal ini secara tidak langsung menggambarkan bahwa sistem juga dalam fase ferromagnetik.



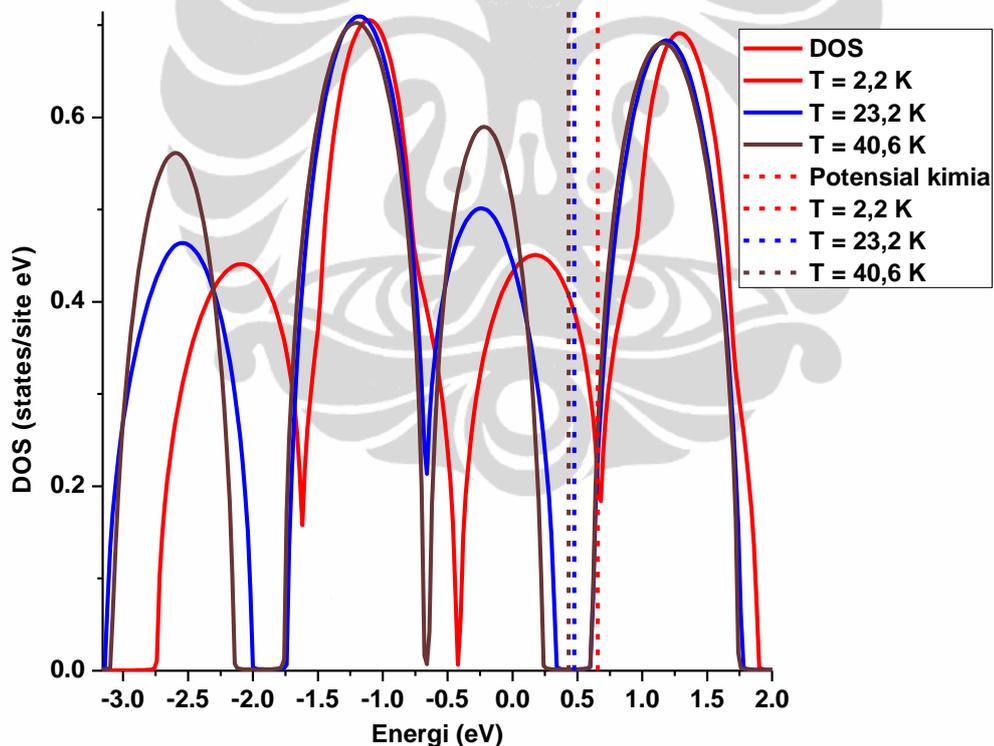
Gambar 4.3. Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double Exchange* pada berbagai temperatur.

Gambar 4.3. merupakan profil DOS *double exchange* yang dihitung pada nilai temperatur yang berbeda. Ketika temperatur dinaikkan dari 11,6 K menjadi 116,0 K, posisi potensial kimia tidak mengalami perubahan, demikian juga ketika temperatur dinaikkan lagi menjadi 232,1 K, posisi potensial kimia juga tidak

berubah. Artinya bahwa pada semua nilai temperatur tersebut, sistem berada dalam keadaan metal. Dapat diambil kesimpulan bahwa dengan hanya memperhitungkan adanya interaksi *double exchange* saja tidak dapat menjelaskan adanya transisi dari metal ke insulator. Hal ini sesuai dengan kajian literatur.

#### 4.1.3 DOS Hasil Perhitungan yang Melibatkan interaksi-Interaksi *Double exchange* dan Elektron-Fonon

Profil DOS dari hasil perhitungan dengan menggunakan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon ditampilkan pada Gambar 4.4. Profil DOS ini diperoleh dengan perhitungan pada nilai medan magnet luar 23 T dengan nilai temperatur yang divariasikan. Jh diambil pada nilai 1,5 dan  $\lambda = 1,55$ .

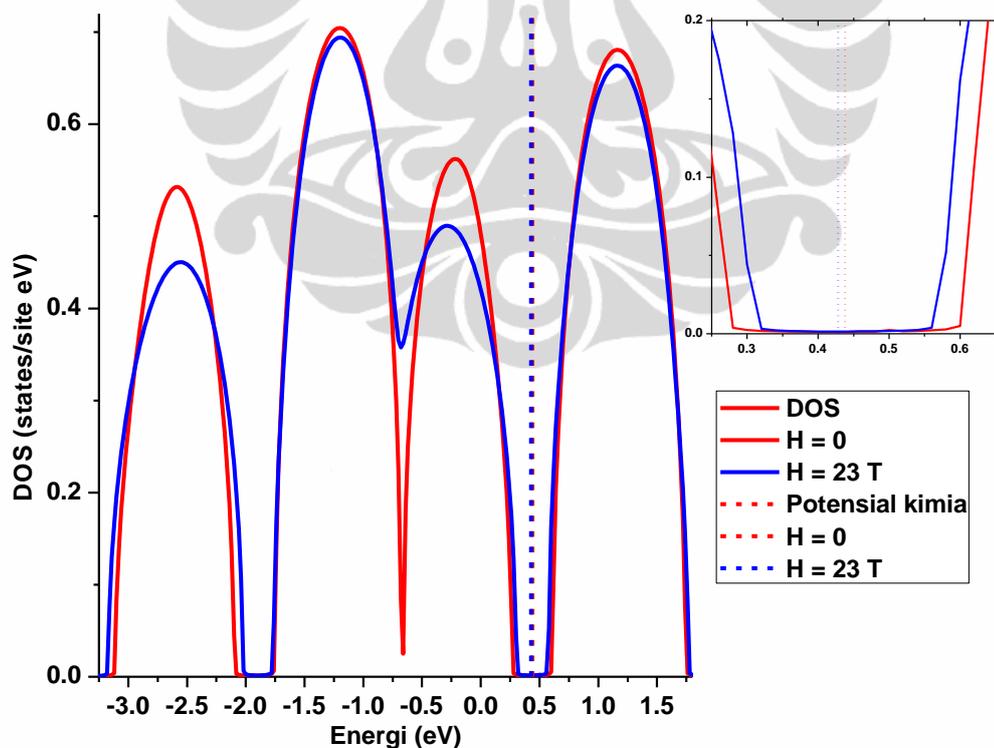


Gambar 4.4. Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi-interaksi *double exchange* dan elektron-fonon.

Dari profil DOS pada Gambar 4.4. terlihat bahwa terdapat pseudo gap atau gap yang berasal dari pengaruh *double exchange* dan interaksi elektron-fonon. DOS untuk temperatur 2,2 K menunjukkan terbentuknya pseudo gap akibat interaksi

elektron-fonon. Perhatikan bahwa pseudo gap yang terbentuk akibat interaksi elektron-fonon “memerangkap” potensial kimia sehingga jatuh ke dalam posisi pseudo gap tersebut. Hal ini memiliki arti fisis bahwa pada nilai kopling elektron-fonon yang bersesuaian, fonon mengikat gerak elektron sehingga elektron dengan energi tertinggi menjadi terlokalisasi. Hal ini berakibat menurunkan nilai konduktivitas sistem, dan menjadikan sistem mulai bertransformasi dari sifat metal ke sifat insulator.

Dengan menaikkan temperatur menjadi 23,2 K, *pseudo gap* berkembang menjadi *real gap*, dan real gap ini terus membesar bila suhu dinaikkan menjadi 40,6 K. Ini menunjukkan bahwa elektron semakin terlokalisasi, dan keadaan sistem berubah sepenuhnya menjadi insulator. Gambaran ini menunjukkan terjadinya transisi dari metal ke insulator. Dapat dikatakan bahwa dengan memperhitungkan pengaruh interaksi elektron-fonon dihasilkan data yang dapat digunakan untuk menjelaskan adanya transisi metal-insulator pada sistem LCMO.



Gambar 4.5. Profil DOS dan posisi potensial kimia hasil perhitungan yang melibatkan interaksi- interaksi *double exchange* dan elektron-fonon pada  $H=0$  dan  $H = 23$  T.

Gambar 4.5. menampilkan profil DOS yang dihitung pada temperatur yang sama pada keadaan tidak ada medan magnet luar ( $H = 0$ ) dan pada keadaan dengan medan magnet luar sebesar 23 T. Profil DOS ini dihasilkan dari perhitungan dengan  $J_h = 1,5$ ,  $\lambda = 1,55$ , dan  $T = 34,8$  K.

Dari tampilan DOS pada Gambar 4.5. terlihat bahwa DOS pada keadaan  $H = 0$  memiliki *real gap* yang lebih lebar dibandingkan dengan DOS pada keadaan  $H = 23$  T. Dapat dikatakan bahwa dengan diberi medan magnet luar energi gap menjadi lebih kecil sehingga konduktivitas elektron menjadi lebih besar. Bila hal ini dikaitkan dengan efek magnetoresistif, maka profil DOS pada Gambar 4.5. dapat menjelaskan sifat resistivitas sistem.

## 4.2 Magnetisasi

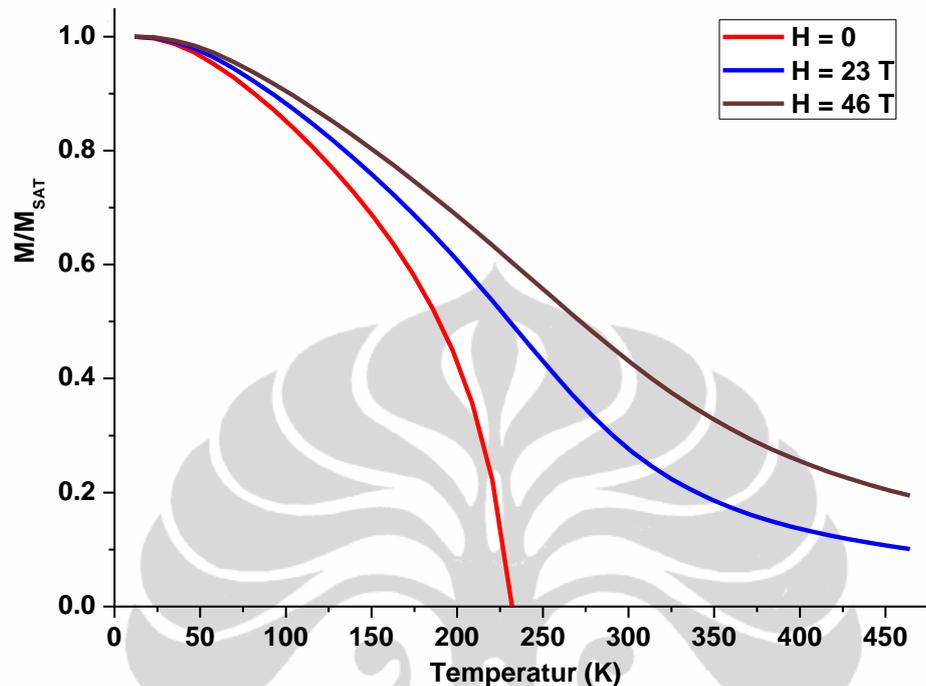
Dalam subbab ini akan ditampilkan plot magnetisasi versus temperatur dari hasil perhitungan. Perhitungan untuk magnetisasi dilakukan dengan menggunakan model yang hanya memperhitungkan interaksi *double exchange*, dan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon. Perhitungan juga dilakukan pada perhitungan magnetisasi pada berbagai variasi nilai medan magnet luar yang diberikan.

### 4.2.1 Magnetisasi Hasil Perhitungan yang Melibatkan Interaksi *Double Exchange*

Magnetisasi hasil perhitungan dengan menggunakan model yang hanya memperhitungkan interaksi *double exchange* ditampilkan dalam grafik magnetisasi versus temperatur pada Gambar 4.6. Grafik tersebut juga menampilkan magnetisasi hasil perhitungan yang dilakukan pada berbagai variasi medan magnet luar. Perhitungan ini dilakukan dengan nilai  $J_h = 1,5$ .

Grafik pada Gambar 4.6. memperlihatkan bahwa model *double exchange* dapat menjelaskan ferromagnetisme pada LCMO. Hasil perhitungan ini menghasilkan  $T_c$  sekitar 232,1 K ketika medan magnet luarnya nol. Adanya medan magnet luar memperbesar nilai magnetisasi untuk setiap nilai temperatur. Semakin besar

medan magnet luar yang diberikan, semakin besar nilai magnetisasi yang dihasilkan dari perhitungan.



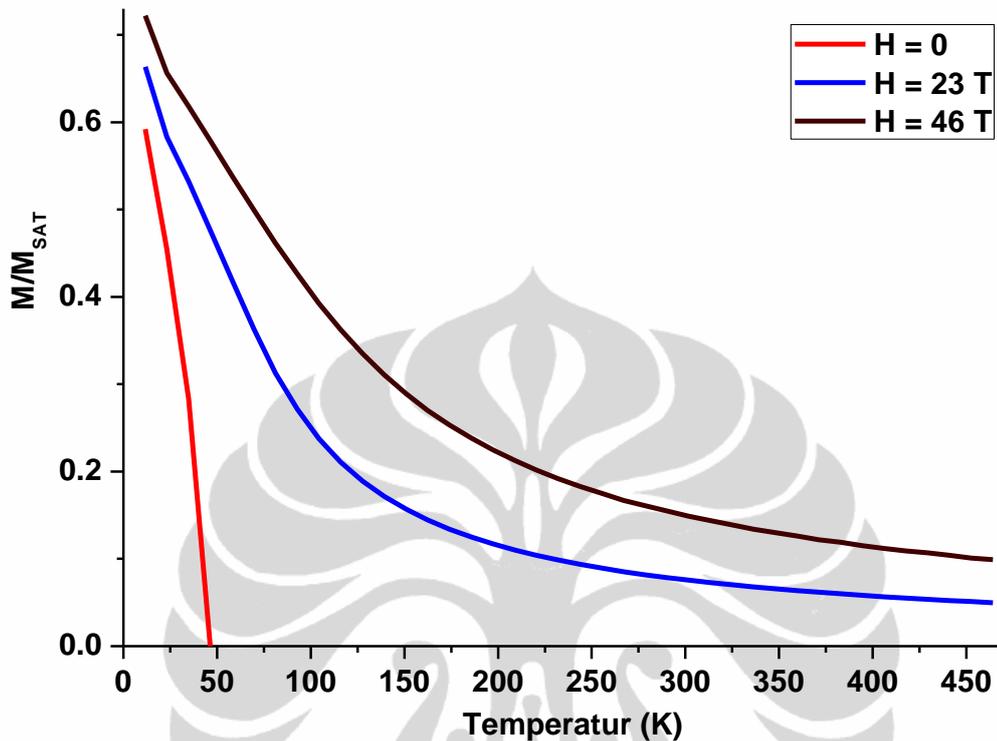
Gambar 4.6. Kurva magnetisasi sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double exchange*.

Dari hasil perhitungan ini dapat dikatakan bahwa adanya medan magnet luar akan meningkatkan  $T_c$  dari bahan. Hal ini sesuai dengan yang sudah dibahas pada studi literatur.

#### 4.2.2 Magnetisasi Hasil Perhitungan yang Melibatkan Interaksi-Interaksi *Double Exchange* dan Elektron-Fonon

Perhitungan magnetisasi dengan menggunakan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon ditampilkan dalam bentuk grafik magnetisasi versus temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar. Grafik dapat dilihat pada Gambar 4.7. Perhitungan ini dilakukan dengan menggunakan  $J_h = 1,5$  dan  $\lambda = 1,55$ . Dengan membandingkan nilai  $T_c$  (nilai temperatur di mana magnetisasi mulai menjadi nol pada keadaan tanpa

medan magnet luar) pada Gambar 4.6. dan 4.7., terlihat bahwa interaksi elektron-fonon mereduksi nilai  $T_c$  secara signifikan.



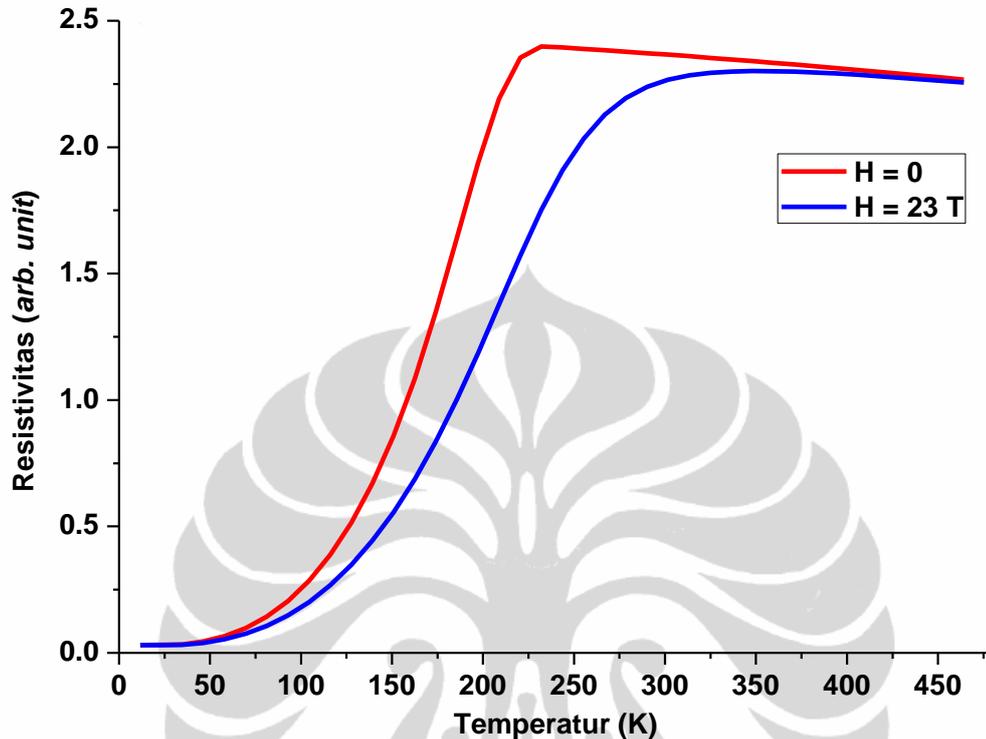
Gambar 4.7. Kurva magnetisasi sebagai fungsi temperatur hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon.

### 4.3 Resistivitas

Pada subbab ini ditampilkan hasil perhitungan resistivitas. Seperti halnya perhitungan magnetisasi, perhitungan resistivitas juga dilakukan dengan model yang hanya memperhitungkan interaksi *double exchange*, dan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon.

Perhitungan resistivitas ini dilakukan berkaitan dengan studi tentang magnetoresistif pada oksida mangan. Karena itu perhitungan resistivitas dilakukan pada berbagai variasi nilai medan magnet luar untuk mengetahui sejauh mana model dapat menggambarkan adanya efek magnetoresistif itu sendiri.

#### 4.3.1 Resistivitas Hasil Perhitungan yang Melibatkan Interaksi *Double Exchange*



Gambar 4.8. Kurva resistivitas sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double exchange*.

Gambar 4.8. menampilkan grafik resistivitas versus temperatur hasil perhitungan dengan menggunakan model yang hanya memperhitungkan interaksi *double exchange* pada berbagai nilai medan magnet luar. Perhitungan dilakukan dengan nilai  $J_h = 1,5$ .

Dari grafik yang dihasilkan dapat dikatakan bahwa hanya dengan memperhitungkan interaksi *double exchange* saja tidak menampilkan adanya penurunan nilai maksimum resistivitas yang cukup signifikan ketika medan magnet luar yang diberikan semakin besar. Ini berarti bahwa *double exchange* tidak dapat menjelaskan adanya efek magnetoresistif pada bahan oksida mangan.

Grafik ini juga menampilkan bahwa ketika temperatur dinaikkan maka resistivitas material juga naik, ini tidak lain adalah sifat metal. Tetapi grafik tidak menampilkan adanya penurunan yang signifikan pada nilai resistivitas sistem

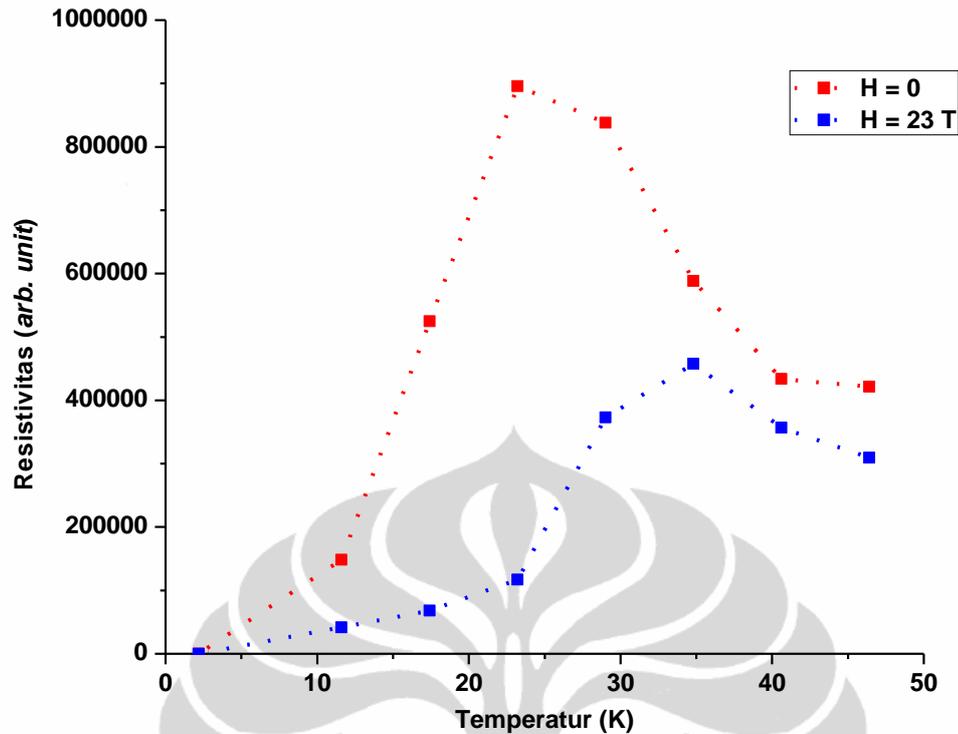
ketika temperatur dinaikkan lebih lanjut. Dengan demikian model *double exchange* saja tidak cukup untuk menjelaskan adanya transisi metal-insulator pada bahan oksida mangan.

#### **4.3.2 Resistivitas Hasil Perhitungan yang Melibatkan Interaksi-Interaksi *Double Exchange* dan Elektron-Fonon**

Gambar 4.9. menampilkan hasil perhitungan resistivitas sebagai fungsi temperatur dengan tidak ada medan magnet luar ( $H = 0$ ) dan ada medan magnet luar sebesar  $H = 23$  T. Perhitungan dilakukan dengan menggunakan nilai  $J_h = 1,5$  dan  $\lambda = 1,55$ .

Dari grafik ini cukup terlihat adanya penurunan yang signifikan nilai resistivitas maksimum ketika sistem diberi medan magnet luar sebesar 23 T. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa dengan memasukkan pengaruh keberadaan fonon dan interaksi elektron-fonon dapat menjelaskan adanya efek magnetoresistif pada oksida mangan.

Setiap kurva resistivitas pada Gambar 4.9. menunjukkan bahwa ketika temperatur dinaikkan dari 2,2 K (T) sampai temperatur tertentu (sebut saja  $T_{MI}$ ), di mana pada rentang  $T < T_{MI}$  resistivitas semakin besar, atau konduktivitas elektron menurun ketika temperatur dinaikkan, ini adalah sifat dari metal. Sedangkan ketika suhu dinaikkan dari  $T_{MI}$  ke  $T'$ , dimana  $T_{MI} < T'$ , resistivitas bahan semakin mengecil, artinya konduktivitas elektron semakin besar, dan ini adalah sifat insulator. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa grafik resistivitas ini juga menunjukkan adanya transisi metal insulator. Grafik ini juga memiliki profil yang mendekati profil grafik resistivitas versus temperatur dari hasil eksperimen LCMO seperti yang ditampilkan pada Gambar 1.1. Meskipun dalam hal ini nilai  $T_c$  tereduksi cukup besar.



Gambar 4.9 Grafik resistivitas sebagai fungsi temperatur pada medan magnet luar  $H = 0$  dan  $H = 23$  T dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon.

Terlepas dari kesesuaian trend profil kurva resistivitas vs temperatur di atas, terdapat beberapa hal yang perlu menjadi catatan. Antara lain, bahwa hasil interpolasi kubik dari titik-titik data yang jumlahnya tidak terlalu banyak tersebut, masih menunjukkan terdapatnya “liku-liku” tambahan pada kurva interpolasi yang tidak sesuai data eksperimen pada Gambar 1.1. Hal ini mengindikasikan bahwa jumlah titik data yang dihimpun untuk membentuk kurva resistivitas vs temperatur tersebut kurang cukup banyak untuk dapat diolah dengan baik dengan interpolasi kubik. Untuk itu diperlukan penambahan titik-titik data untuk beberapa nilai temperatur lagi. Jika kita coba interpretasikan kurva hasil interpolasi kubik tersebut, tampak bahwa nilai temperatur transisi Metal-Insulator ( $T_{MI}$ ) tampak berada di bawah nilai  $T_c$  ferromagnetic sistem. Hal ini belum sesuai dengan kenyataan hasil eksperimen pada Gambar 1.1., di mana  $T_{MI}$  justru sedikit lebih tinggi dari  $T_c$ . Selain itu, data eksperimen resistivitas vs temperatur pada daerah  $T < T_{MI}$  menunjukkan peningkatan nilai resistivitas terhadap temperatur yang berkarakter kurang-lebih eksponensial, sedangkan hasil perhitungan pada studi ini tidak begitu menunjukkan karakter tersebut. Kenyataan ini memberikan kami

motivasi untuk melakukan peninjauan lebih lanjut terhadap model yang digunakan pada studi ini untuk keperluan studi lebih lanjut, khususnya kemungkinan memodifikasi model agar memberikan efek ketergantungan terhadap temperatur yang lebih sesuai dengan data eksperimen.

#### **4.4 Perubahan Entropi**

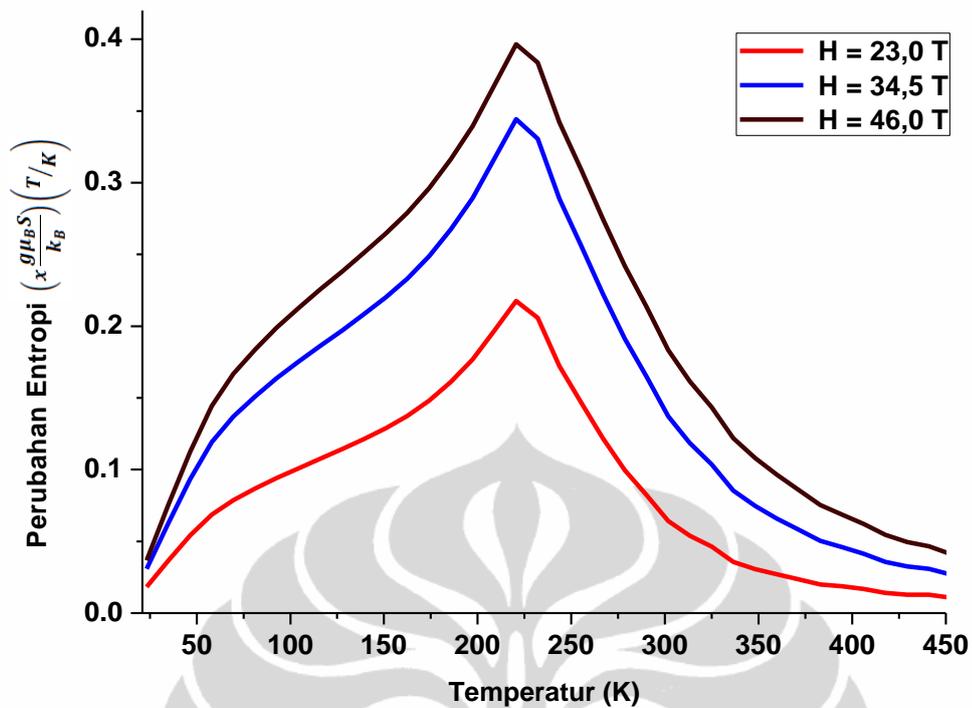
Perhitungan perubahan entropi  $\Delta S$  dilakukan berkaitan dengan studi efek magnetokalorik pada oksida mangan. Pada dasarnya ada dua besaran yang harus dieksplorasi untuk menyatakan efek magnetokalorik. Tetapi studi ini belum sampai menghitung perubahan temperatur adiabatik  $\Delta T$  dari oksida mangan.

Perhitungan dilakukan dengan menggunakan model yang hanya memperhitungkan interaksi *double exchange*, dan dengan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon. Perhitungan dilakukan pada rentang perubahan medan magnet luar  $\Delta H$  sebesar 10 T, 15 T, dan 20 T.

##### **4.4.1 Perubahan Entropi Dari Hasil Perhitungan yang Melibatkan Interaksi *Double Exchange***

Grafik perubahan entropi versus temperatur untuk berbagai nilai medan magnet dari hasil perhitungan dengan menggunakan model yang hanya memasukkan interaksi *double exchange* ditampilkan pada Gambar 4.10. Perhitungan dilakukan dengan nilai  $J_h = 1,5$ .

Dari grafik terlihat profil yang ditampilkan cukup mendekati hasil eksperimen, dimana hasil perhitungan menghasilkan nilai  $T_c$  sekitar 232,1 K seperti pada profil magnetisasi. Dengan pemberian medan magnet luar juga menghasilkan perubahan entropi yang lebih besar. Maka bila ditinjau dari perubahan entropi, model *double exchange* cukup representatif untuk menjelaskan adanya efek magnetokalorik pada material oksida mangan.

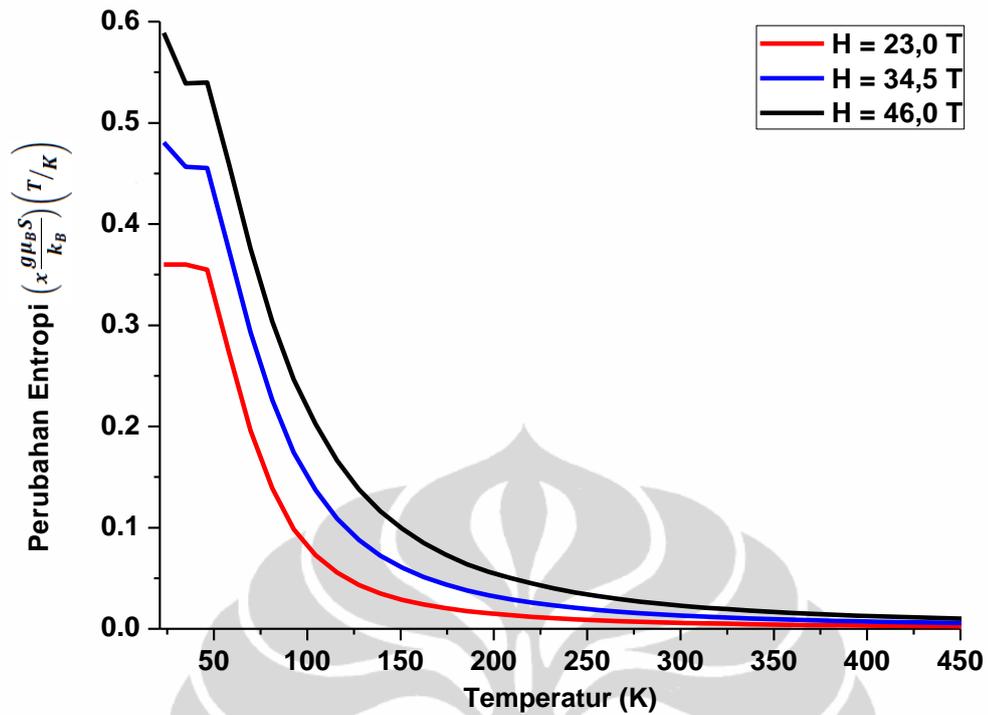


Gambar 4.10. Kurva perubahan entropi sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double exchange*.

#### 4.4.2 Perubahan Entropi Dari Hasil Perhitungan yang Melibatkan Interaksi-Interaksi *Double Exchange* dan Elektron-Fonon

Grafik perubahan entropi versus temperatur untuk berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan dengan menggunakan model yang memperhitungkan adanya interaksi *double exchange* dan interaksi antara elektron-fonon ditampilkan pada Gambar 4.11. Perhitungan dilakukan dengan nilai  $J_h = 1,5$ .

Dari grafik terlihat bahwa hasil perhitungan perubahan entropi dengan menggunakan model yang memasukkan interaksi elektron fonon kurang lengkap. Profil yang ditampilkan seolah-olah hanya nilai perubahan entropi untuk temperatur diatas  $T_c$ . Dari grafik ini tentu saja tidak dapat disimpulkan tentang pengaruh memasukkan pengaruh interaksi elektron-fonon terhadap perubahan entropi.



Gambar 4.11. Kurva perubahan entropi sebagai fungsi temperatur pada berbagai nilai medan magnet luar dari hasil perhitungan yang melibatkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon.

Data perubahan entropi untuk temperatur di bawah  $T_c$  tidak diperoleh mengingat nilai  $T_c$  itu sendiri sangat kecil akibat reduksi yang cukup signifikan akibat interaksi elektron-fonon. Akan tetapi pada grafik ini masih terlihat bahwa dengan pemberian medan magnet luar yang lebih besar, perubahan entropi yang dihasilkan juga lebih besar. Hal ini masih sejalan dengan hasil eksperimen.

## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1. Kesimpulan

Berdasarkan hasil yang diperoleh dari perhitungan dengan metode DMFT dengan menggunakan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon pada bahan oksida mangan, dapat ditarik beberapa kesimpulan antara lain:

1. Metode DMFT cukup efektif untuk dipakai dalam perhitungan meskipun dengan menggunakan model yang sederhana seperti dalam studi ini.
2. Dengan menggunakan model yang hanya memperhitungkan interaksi *double exchange* dalam studi ini dapat dihasilkan data yang bisa digunakan untuk menjelaskan sifat metal dan feromagnetisme dari bahan oksida mangan, dan juga perubahan entropi sistem.
3. Menggunakan model yang hanya melibatkan interaksi *double exchange* saja tidak cukup untuk menghasilkan data yang dapat dipakai untuk menjelaskan transisi metal-insulator dan efek magnetoresistif dari bahan oksida mangan.
4. Data yang dihasilkan dari perhitungan dengan menggunakan model yang memperhitungkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon, cukup representatif untuk digunakan dalam menjelaskan adanya transisi metal-insulator dan efek magnetoresistif dari bahan oksida mangan.
5. Dengan memasukkan pengaruh interaksi antara elektron dengan fonon dalam perhitungan mengakibatkan penurunan  $T_c$  yang cukup signifikan.
6. Dilihat dari data perubahan entropi yang dihasilkan dari perhitungan dengan menggunakan model yang melibatkan interaksi *double exchange* dan interaksi elektron-fonon, terlihat ada kecenderungan bahwa model ini dapat digunakan untuk menjelaskan efek magnetokalorik, meskipun butuh eksplorasi lebih lanjut untuk memastikannya.

## 5.2. Saran

Berdasarkan hasil perhitungan yang didapatkan dalam studi ini, ada beberapa hal yang perlu diperhatikan sebagai saran dalam studi selanjutnya, di antaranya adalah:

1. Khusus pada eksplorasi data yang merupakan fungsi temperatur, disarankan perhitungan dilakukan dengan interval temperatur yang lebih kecil. Hal ini dimaksudkan agar data yang dihasilkan lebih akurat dan grafik yang dihasilkan lebih baik.
2. Berkait dengan beberapa hal yang kurang sesuai antara data resistivitas interpolasi dan data eksperimen, yaitu berkaitan dengan posisi  $T_{MI}$  terhadap  $T_c$  dan karakter eksponensial pada kurva resistivitas pada  $T < T_{MI}$ , perlu dilakukan peninjauan lebih lanjut terhadap model yang dipakai saat ini, khususnya kemungkinan perlunya modifikasi model agar mampu menghasilkan karakteristik ketergantungan terhadap temperatur yang lebih sesuai dengan data eksperimen.
3. Berkaitan dengan studi efek magnetokalorik, disarankan juga dilakukan eksplorasi pada perubahan temperatur adiabatik sistem dan perhitungan kapasitas panas jenis ( $c_v$ ), agar data-data yang dihasilkan cukup kuat untuk menyimpulkan apakah model yang digunakan dapat menjelaskan efek magnetokalorik suatu material.

## DAFTAR REFERENSI

- [1] A. Z. Johannes, *Model double-exchange dan interaksi elektron-fonon untuk menjelaskan transisi isolator-metal dan fenomena magnetoresistance pada bahan manganites*, Tesis M.Si, Jurusan Fisika Universitas Indonesia, Depok (2011).
- [2] M. A. Majidi, H. Su, Y. P. Feng, M. Rübhausen, dan A. Rusydi, *Theory of high energy optical conductivity and the role of oxygens in manganites*, *Physical Review B*, **84**, 075136 (2011).
- [3] A. R. Dinesen, *Magnetocaloric and magnetoresistif properties of  $La_{0.67}Ca_{0.33-x}Sr_xMnO_3$* , Ph.D Thesis, Technical University of Denmark (2004).
- [4] Z. B. Guo, Y. W. Du, J. S. Zhu, H. Huang, W. P. Ding, dan D. Feng. *Large magnetic entropy change in perovskite-type manganese oxides*, *Physical Review Letters*, **78**, 1142 (1997).
- [5] C. Zener. *Interaction between the d-shell in the transition metals*, *Physical Review*, **81**, 440 (1951).
- [6] A. J. Millis, P. B. Littlewood, dan B.I. Shraiman, *Double exchange alone does not explain the resistivity of  $La_{1-x}Sr_xMnO_3$* , *Physical Review Letter*, **74**, 5114 (1995).
- [7] A. P. Ramirez. *Colossal magnetoresistance*, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **9**, 8171 (1997).
- [8] S. Jin, T. H. Tiefel, M. McCormack, R. A. Fastnacht, R. Ramesh, R. dan L. H. Chen, *Thousandfold change in resistivity in magnetoresistive La-Ca-Mn-O*, *Science*, **264**, 413 (1994).
- [9] J. M. D. Coey, M. Viret, dan L. Ranno, *Electron localization in mixed-valence manganites*, *Physical Review Letters*, **75**, 3910 (1995).
- [10] G. H. Jonker dan J. H. Van Santen, *Ferromagnetic Compounds of manganese with perovskite structure*, *Physica* **16**, 337 (1950).

- [11] M. B. Salamon dan M. Jaime, *The physics of manganites : structure and transport*, Review of Modern Physics, **73**, 58 (2001).
- [12] S. Jin, M. McCormack, T. H. Tiefel, dan R. Ramesh, *Colossal magnetoresistance in La-Ca-Mn-O ferromagnetic thin films*, Journal of Applied Physics, **76**, 6929 (1994).
- [13] V. K. Pecharsky dan K. A. Gschneidner, *Giant magnetocaloric effect in  $Gd_5(Si_2Ge_2)$* , Physical Review Letters, **78**, 4494 (1997).
- [14] D. T. Morelli, A. M. Mance, J. V. Mantese, dan A. L. Micheli. *Magnetocaloric properties of doped lanthanum manganite film*. Journal of Applied Physics, **79**, 373 (1996).
- [15] M. H. Phan, S. C. Yu, N. H. Hur, dan Y. H. Jeong, *Large magnetocaloric effect in  $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$  single crystal*, Journal of Applied Physics, **96**, 1154 (2004).
- [16] P. Sande, L. E. Hueso, D. R. Miguens, J. Rivas, F. Rivadulla, dan M. A. L. Quintela. *Large magnetocaloric effect in manganites with charge order*, Applied Physics Letters, **79**, 2040 (2001).
- [17] M. H. Phan dan S. C. Yu, *Review of magnetocaloric effect in manganite material*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **308**, 325 (2006).
- [18] P. Schiffer, A. P. Ramirez, W. Bao, dan S. W. Cheong, *Low temperature magnetoresistance and the magnetic phase diagram of  $La_{1-x}Ca_xMnO_3$* , Physical Review Letters, **75**, 3336 (1995).
- [19] E. Dagotto, T. Hotta, dan A. Moreo, *Colossal magnetoresistant material : the key role of phase transition*, Physics Reports, **344**, 27 (2001).
- [20] P. W. Anderson dan H. Hasegawa, *Considerations on double exchange*, Physical Review, **100**, 675 (1955).
- [21] Y. F. Yang, *Dynamical mean-field theory for manganites*, Ph.D Thesis, Fakultät Mathematik und Physik der Universität Stuttgart (2007).
- [22] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, dan M. J. Rozenberg, *Dynamical mean-field Theory of strongly correlated fermion systems and the limit of infinite dimensions*, Review of Modern Physics, **68**, 13 (1996).

- [23] A. J. Millis, B. I. Shraiman, dan R. Mueller, *Dynamic Jahn-Teller effect and colossal magnetoresistance in  $La_{1-x}Sr_xMnO_3$* , Physical Review Letters, **77**, 175 (1996).

