

## NGHIÊN CỨU TÍNH CHẤT ĐIỆN-TỪ CỦA HỆ VẬT LIỆU TỔ HỢP (1-x)La<sub>0,7</sub>Ca<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub> + xLa<sub>1,5</sub>Sr<sub>0,5</sub>NiO<sub>4</sub>

Trần Đăng Thành<sup>1,\*</sup>, Nguyễn Thị Hà<sup>2</sup>, Đỗ Hùng Mạnh<sup>1</sup>, Phạm Thanh Phong<sup>3</sup>,  
Vũ Đình Lãm<sup>1</sup>, Lê Văn Hồng<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Viện Khoa học vật liệu, Viện KHCNVN, 18 Hoàng Quốc Việt, Cầu Giấy, Hà Nội

<sup>2</sup>Khoa Vật lý, Trường Đại học Khoa học, Đại học Thái Nguyên, Thái Nguyên

<sup>3</sup>Trường Cao đẳng Sư phạm Nha Trang, Số 1 Nguyễn Chánh, Nha Trang

\*Email: thanhtd@ims.vast.ac.vn

Đến Tòa soạn: 22/06/2011; Chấp nhận đăng: 24/10/2012

### TÓM TẮT

Hệ vật liệu tổ hợp (1-x)La<sub>0,7</sub>Ca<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub> + xLa<sub>1,5</sub>Sr<sub>0,5</sub>NiO<sub>4</sub> (0 ≤ x ≤ 0,4) được chế tạo bằng phương pháp nghiền phản ứng kết hợp với ủ nhiệt. Khi tăng nồng độ pha điện môi La<sub>1,5</sub>Sr<sub>0,5</sub>NiO<sub>4</sub> trong mẫu, nhiệt độ chuyển pha sắt từ - thuận từ hầu như không đổi ( $T_C \sim 252$  K) trong khi đó nhiệt độ chuyển pha kim loại - điện môi giảm từ 251 K với x = 0,0 xuống 65 K với x = 0,2. Khi x ≥ 0,25, tính chất dẫn điện của vật liệu hoàn toàn thể hiện tính điện môi trong vùng nhiệt độ từ 30 K đến 300 K. Sự có mặt của pha điện môi La<sub>1,5</sub>Sr<sub>0,5</sub>NiO<sub>4</sub> đã làm giảm mạnh giá trị từ trở trong vùng lân cận  $T_C$  nhưng làm tăng đáng kể giá trị từ trở của hệ vật liệu (x ≤ 0,25) trong vùng nhiệt độ dưới  $T_C$ .

*Từ khóa:* multi-ferroic, nanocomposit, từ trở từ trường thấp, manganit

### 1. MỞ ĐẦU

Gần đây, các kết quả nghiên cứu về hiệu ứng từ trở từ trường thấp (Low Field Magnetoresistance: LFMR) đã khơi dậy mối quan tâm đặc biệt của nhiều nhà khoa học trên thế giới về vật liệu manganite. Hiệu ứng này đã trở thành tâm điểm nghiên cứu của nhiều phòng thí nghiệm về vật liệu và linh kiện điện tử. Nếu hiệu ứng từ trở (Magnetoresistance: MR) xảy ra tại lân cận nhiệt độ chuyển pha  $T_C$  có nguyên nhân từ tương tác trao đổi kép (Double Exchange: DE) xuất hiện trong từ trường lớn hơn 10 kOe, thì hiệu ứng LFMR lại xảy ra trong một dải nhiệt độ rộng thấp hơn nhiệt độ  $T_C$  và trong từ trường nhỏ. Từ trở ở vùng nhiệt độ thấp phụ thuộc mạnh vào độ dày và bản chất của lớp biên hạt. Điều này đã được khẳng định bởi các kết quả nghiên cứu về từ trở của vật liệu khối đơn tinh thể, đa tinh thể, màng đa tinh thể và màng epitaxi. Hiệu ứng từ trở hầu như không xảy ra trong vùng nhiệt độ thấp trên các màng mỏng epitaxi và vật liệu khối đơn tinh thể [1]. Nhưng hiệu ứng này lại có giá trị đáng kể trong các vật liệu đa tinh thể [2]. Để nâng cao giá trị LFMR, nhiều nhóm nghiên cứu đã tạo ra các vật liệu tổ hợp gồm manganite và vật liệu điện môi [3, 4]. Trong đó, vật liệu điện môi đóng vai trò như pha thứ hai bao quanh các hạt sắt từ, làm tăng cường độ cao hàng rào thế và điện trở suất của biên hạt. Do

đó điện trở suất của vật liệu tăng theo, kết quả là giá trị LFMR tăng lên đáng kể. Nguồn gốc của hiệu ứng LFMR là sự xuyên ngầm của hạt tải có spin phân cực và có liên quan đến sự tách pha trong vật liệu. Có hai giải pháp chính có thể làm tăng cường giá trị LFMR: (i) Một là làm giảm kích thước hạt tinh thể, đặc biệt là làm giảm kích thước hạt đến cỡ nanômét [5, 6]. Việc làm giảm kích thước hạt đồng nghĩa với việc tăng cường tỉ phần đóng góp của biên hạt. Bằng cách này, các tác giả không chỉ thu được giá trị LFMR cao mà còn quan sát thấy nhiều hiệu ứng vật lý thú vị khác như hiệu ứng khóa Culomb của điện trở suất trong vùng nhiệt độ dưới 50 K và hiệu ứng Bloch quan sát thấy trên đường đo từ nhiệt theo nhiệt độ  $M(T)$  ở vùng nhiệt độ thấp. (ii) Hai là chủ động đưa vào biên hạt các pha thứ cấp như vật liệu điện môi hoặc các polymer để tạo nên các vật liệu tổ hợp [3, 4, 7, 8, 9, 10]. Trong trường hợp này, pha thứ hai đã làm tăng cường hàng rào thế, do đó sự chênh lệch giá trị điện trở suất trong hai cấu hình đo có và không có từ trường đã làm tăng cường đáng kể giá trị của LFMR. Trong báo cáo này, chúng tôi chủ động đưa vào biên hạt pha thuận từ điện môi  $\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$  nhằm tạo ra hệ vật liệu tổ hợp  $(1-x)\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3 + x\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$  ( $0 \leq x \leq 0,4$ ) với mục đích nghiên cứu ảnh hưởng của lớp biên hạt điện môi  $\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$  lên tính chất điện, từ và hiệu ứng LFMR của hệ vật liệu tổ hợp này.

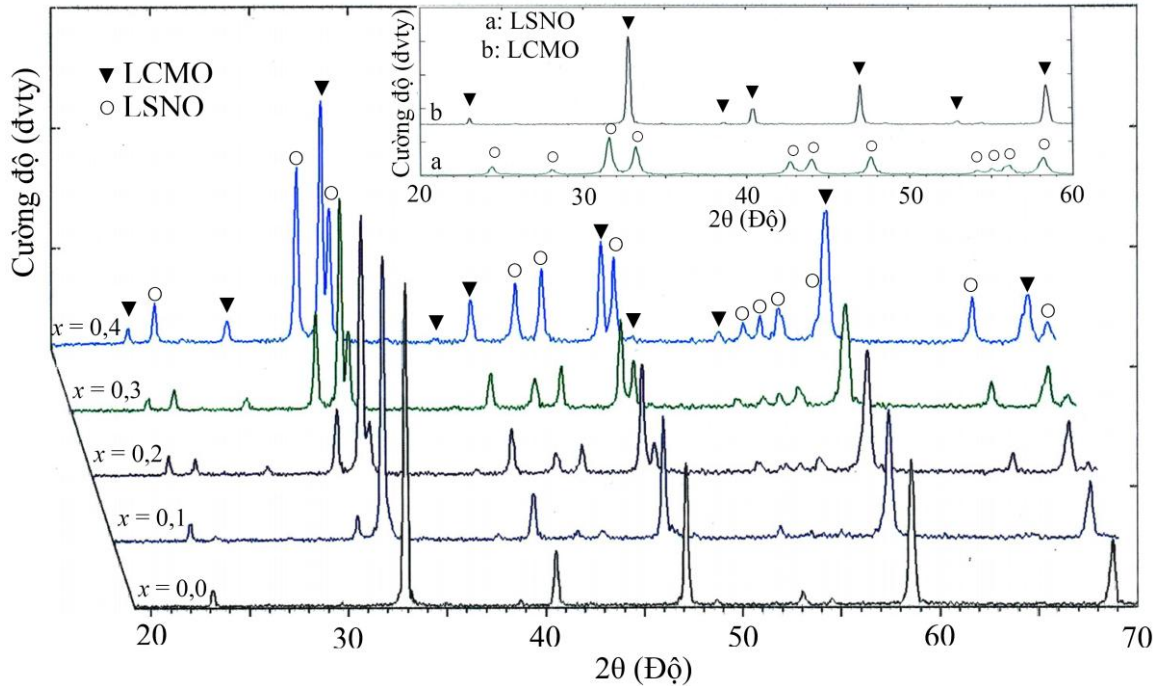
## 2. THỰC NGHIỆM

Hệ vật liệu tổ hợp  $(1-x)\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3 + x\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$  (LCMO-LSNO) với  $0 \leq x \leq 0,4$  được chế tạo bằng phương pháp nghiền phản ứng trên máy Spex 8000D kết hợp với ủ nhiệt. Quá trình chế tạo hệ vật liệu tổ hợp được tiến hành theo hai giai đoạn. Giai đoạn một, chế tạo các vật liệu nanô đơn pha tinh thể  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$  (LCMO) và  $\text{La}_{1,5}\text{Sr}_{0,5}\text{NiO}_4$  (LSNO). Vật liệu LCMO được chế tạo từ các ôxít  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$  và  $\text{Mn}_3\text{O}_4$  bằng cách nghiền phản ứng 8 giờ, sau đó ủ nhiệt 3 giờ tại  $900^\circ\text{C}$  trong không khí. Vật liệu nanô LSNO được chế tạo từ các ôxít  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrO}$  và  $\text{NiO}$  bằng cách nghiền phản ứng 6 giờ, sau đó ủ nhiệt 1 giờ tại  $700^\circ\text{C}$  trong không khí. Giai đoạn hai, trộn hai pha LCMO và LSNO theo tỉ lệ  $(1-x)\text{LCMO} + x\text{LSNO}$  với  $0 \leq x \leq 0,4$ , ép viên với áp lực  $3 \text{ tấn/cm}^2$ , cuối cùng sản phẩm được nung 3 giờ tại  $1000^\circ\text{C}$  trong không khí.

Giản đồ nhiễu xạ tia X mẫu bột của các mẫu đã chế tạo được đo trên nhiễu xạ kế tia X D5000 của hãng SIEMENS. Phép đo từ độ phụ thuộc nhiệt độ ở cả hai chế độ làm lạnh không có từ trường (Zero Field Cooling: ZFC) và làm lạnh có từ trường (Field Cooling: FC) được thực hiện trên hệ từ kế mẫu rung (VSM). Phép đo điện trở phụ thuộc nhiệt độ trong từ trường bằng 0 và 3 kOe thực hiện bằng kỹ thuật bốn mũi dò thẳng hàng trên hệ làm lạnh theo chu trình kín bằng heli lỏng trong dải nhiệt độ từ 30 - 300 K.

## 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

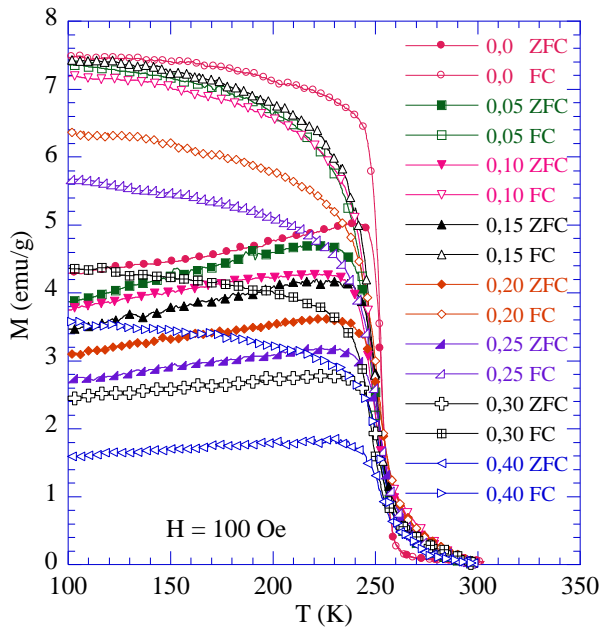
Hình nhỏ bên trong hình 1 trình bày giản đồ nhiễu xạ tia X của hai mẫu bột LSNO (a) và LCMO (b) sau khi chế tạo hoàn thiện ở giai đoạn một. Kết quả cho thấy cả hai mẫu này hoàn toàn đơn pha tinh thể. Giản đồ nhiễu xạ mẫu bột của hệ vật liệu tổ hợp LCMO-LSNO với nồng độ LSNO là  $0, 0 \leq x \leq 0,4$  được trình bày trên hình 1. Từ hình 1 ta thấy, ngoài các vạch nhiễu xạ đặc trưng cho hai pha LCMO và LSNO ra, ta không quan sát thấy bất kỳ vạch nhiễu xạ nào khác. Hơn nữa, ta không quan sát thấy sự tách hoặc dịch các vạch nhiễu xạ của hai pha tinh thể này. Những kết quả này cho thấy chế độ xử lý nhiệt tại  $1000^\circ\text{C}$  trong 3 giờ hoàn toàn chưa gây ra hiện tượng khuếch tán vào nhau giữa các pha tinh thể có trong mẫu. Vật liệu thu được tồn tại dưới dạng tổ hợp của hai pha LCMO và LSNO.



Hình 1. Giản đồ nhiễu xạ tia X mẫu bột của vật liệu tổ hợp LCMO-LSNO. Hình nhỏ bên trong trình bày giản đồ nhiễu xạ tia X của hai mẫu LCMO ủ nhiệt 900 °C trong 3 giờ và LSNO ủ nhiệt 700 °C trong 1 giờ.

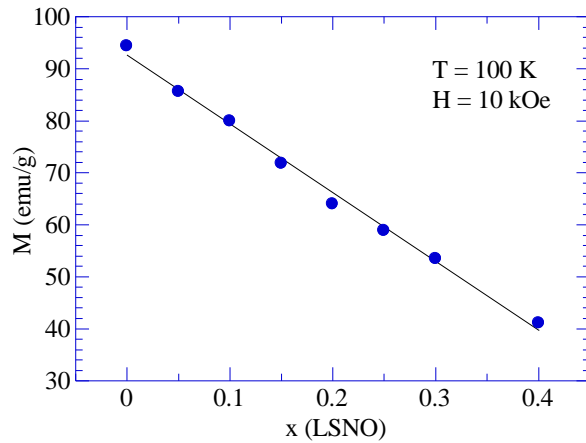
Đường cong từ độ phụ thuộc nhiệt độ trong từ trường 100 Oe của hệ vật liệu tổ hợp LCMO-LSNO với hai chế độ đo ZFC và FC được trình bày trong hình 2. Từ hình 2 ta thấy trong toàn dải nồng độ LSNO, các mẫu đều có một chuyển pha sắt từ - thuận từ tại nhiệt độ  $T_C \sim 252$  K. Giá trị này phù hợp với các kết quả nghiên cứu trước đây trên các mẫu LCMO có kích thước hạt nhỏ hơn 1  $\mu\text{m}$  [11, 12, 13]. Sự không thay đổi nhiệt độ  $T_C$  cho thấy không thể xảy ra sự thay thế các ion  $\text{Sr}^{2+}$  cho ion  $\text{La}^{3+}$  và  $\text{Ni}^{3+}$  cho  $\text{Mn}^{3+}$ . Điều này có nghĩa là không thể xảy ra sự khuếch tán của các ion trong hai pha LCMO và LSNO vào nhau. Kết quả thu được phù hợp với các trường hợp biên hạt là  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [4], ZnO [7], và polyme [8, 9, 10].

Với mẫu  $x = 0$ , chuyển pha sắt từ - thuận từ khá sắc nét, trong khi đó các mẫu có  $x > 0$ , chuyển pha sắt từ - thuận từ xảy ra trong một khoảng nhiệt độ rộng hơn.



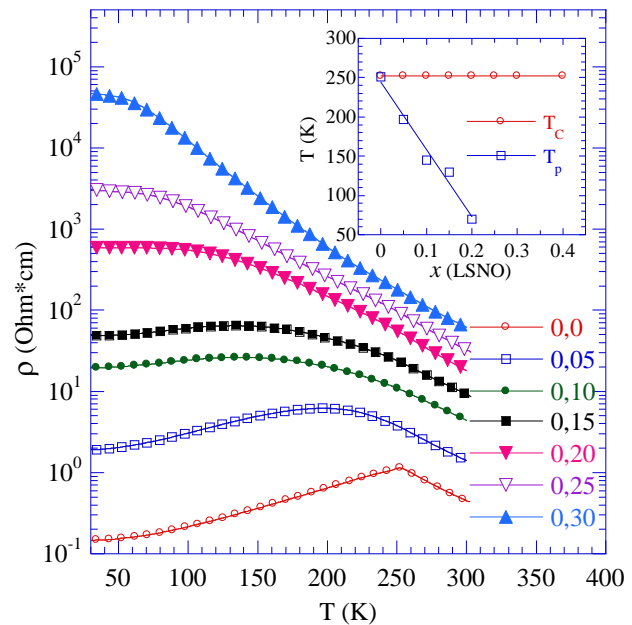
Hình 2. Đường cong từ độ phụ thuộc nhiệt độ trong từ trường 100 Oe của hệ vật liệu tổ hợp  $(1-x)\text{LCMO}-x\text{LSNO}$  đo hai chế độ ZFC và FC.

Trong vùng nhiệt độ  $T \geq T_C$ , tốc độ suy giảm về không của giá trị từ độ của các mẫu này chậm hơn so với mẫu  $x = 0$ . Đây là biểu hiện cho thấy có sự đóng góp ảnh hưởng của yếu tố biên hạt lên quá trình chuyển pha sắt từ - thuận từ của vật liệu. Khi nồng độ LSNO càng cao, trật tự sắt từ khoảng dài bị phá vỡ, các đám sắt từ càng bị cô lập ở vùng nhiệt độ dưới  $T_C$ . Nhằm đánh giá ảnh hưởng của nồng độ LSNO lên giá trị từ độ của mẫu, chúng tôi xác định giá trị từ độ tại 100 K trong từ trường 10 kOe của các mẫu với nồng độ LSNO khác nhau. Từ hình 3 ta nhận thấy giá trị từ độ của các mẫu hầu như giảm tuyến tính khi nồng độ LSNO tăng lên. Hiện tượng này là do sự tăng cường tỉ phần pha thuận từ điện môi LSNO trong mẫu đã làm giảm tỉ phần pha sắt từ được thiết lập trong mẫu LCMO ban đầu. Đồng thời sự xuất hiện của pha LSNO ở biên hạt càng làm tăng thêm sự bất trật tự từ tại biên hạt. Như vậy việc xuất hiện pha thuận từ điện môi LSNO tại biên đã làm suy giảm tương tác từ giữa các hạt sắt từ LCMO trong mẫu và kết quả là làm giảm giá trị từ độ của vật liệu.



Hình 3. Giá trị từ độ tại 100 K trong từ trường 10 kOe của vật liệu tổ hợp  $(1-x)\text{LCMO}-x\text{LSNO}$  với  $0 \leq x \leq 0,4$ .

Hình 4 trình bày sự phụ thuộc nhiệt độ của điện trở suất của các mẫu tổ hợp LCMO-LSNO có nồng độ LSNO khác nhau khi từ trường ngoài bằng không. Giá trị điện trở suất của các mẫu tăng rất nhanh khi nồng độ của LSNO tăng, đặc biệt là trong vùng  $T < T_C$ . Nhiệt độ chuyển pha kim loại - điện môi của vật liệu giảm từ 251 K với  $x = 0$  xuống 65 K với  $x = 0,2$ . Khi  $x \geq 0,25$ , trong toàn dải nhiệt độ khảo sát (30 ÷ 300 K), tính chất dẫn điện của vật liệu hoàn toàn thể hiện tính dẫn điện môi. Giá trị nhiệt độ chuyển pha kim loại - điện môi  $T_p$  của các mẫu này thấp hơn đáng kể so với nhiệt độ chuyển pha sắt từ - thuận từ  $T_C$  được xác định từ phép đo từ độ. Khoảng cách giữa hai nhiệt độ chuyển pha  $T_C$  và  $T_p$  tăng lên theo nồng độ của LSNO (hình nhỏ bên trong hình 4). Sự khác biệt khá xa giữa hai nhiệt độ chuyển pha điện và chuyển pha từ cho thấy các chuyển pha này không liên quan trực tiếp với nhau. Phải chăng sự tăng cường thành phần điện môi LSNO đã làm giảm tỉ phần pha sắt từ đồng thời làm yếu đi trật tự từ khoảng dài trong vật liệu. Có thể đây là những nguyên nhân chủ yếu gây giảm mạnh nhiệt độ  $T_p$ . Sự có mặt của



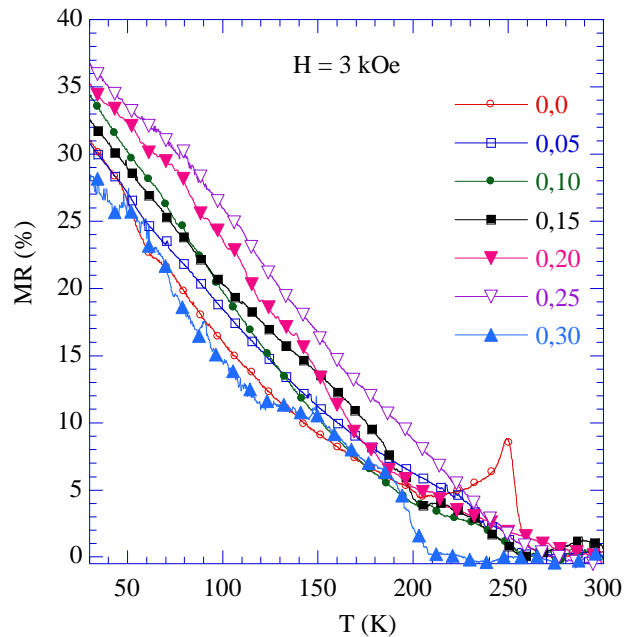
Hình 4 Điện trở suất phụ thuộc nhiệt độ của vật liệu tổ hợp  $(1-x)\text{LCMO}-x\text{LSNO}$  với  $0 \leq x \leq 0,3$ ; khi từ trường ngoài bằng không. Hình nhỏ bên trong trình bày sự thay đổi của  $T_C$  và  $T_p$  theo nồng độ LSNO.

pha điện môi LSNO tại biên hạt đã ngăn cách các đám sắt từ với nhau và tạo nên những tâm tán xạ mạnh, do đó đã làm tăng cường quá trình tán xạ điện tử, kết quả là điện trở suất của các mẫu tăng dần và nhiệt độ  $T_p$  dịch chuyển về phía nhiệt độ thấp hơn. Theo mô hình hai kênh dẫn trong các vật liệu tổ hợp manganite và điện môi của Rubinsten [14] và Das [15], chúng tôi cho rằng sự bất trật tự tại biên hạt và sự tăng cường pha điện môi của LSNO trong vật liệu LCMO-LSNO đã làm cho điện trở biên hạt lớn hơn điện trở nội hạt. Tại biên hạt, lớp điện môi LSNO đóng vai trò như một hàng rào thế và tạo thành một kênh dẫn mới song song với kênh dẫn của LCMO. Đồng thời lớp điện môi LSNO có vai trò làm cô lập các liên kết trực tiếp của các hạt LCMO với nhau, kết quả là điện trở suất của vật liệu tăng lên. Như vậy có thể kết luận rằng sự dịch chuyển nhiệt độ chuyển pha kim loại - điện môi về phía nhiệt độ thấp dưới  $T_C$  là hệ quả của quá trình cạnh tranh các vùng kim loại và điện môi và sự tương tác của chúng theo nhiệt độ. Khi nồng độ LSNO đủ lớn ( $x \geq 0,25$ ) làm cho khoảng cách giữa các đám sắt từ quá lớn, liên kết giữa các đám sắt từ ở vùng nhiệt độ thấp không được thiết lập, hệ có tính dẫn hoàn toàn điện môi giống như kết quả của Hueso [4] đã thu được trên hệ vật liệu LCMO pha tạp hơn 10 %  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Khi nồng độ LSNO tăng, tính dẫn điện môi của LSNO lấn át tính dẫn kim loại của LCMO, kết quả là đặc tính dẫn điện của vật liệu thể hiện là tính dẫn điện môi trong toàn dải nhiệt độ khảo sát.

Nhằm đánh giá sự ảnh hưởng của tỉ phần pha điện môi LSNO lên hiệu ứng từ trở của hệ vật liệu tổ hợp LCMO-LSNO, các phép đo điện trở phụ thuộc nhiệt độ ZFC trong từ trường  $H = 0$  và  $H = 3$  kOe đã được thực hiện trong dải nhiệt độ từ 30 đến 300 K. Qua đó, giá trị từ trở được xác định theo biểu thức sau:

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

trong đó  $\rho(T,0)$  và  $\rho(T,H)$  lần lượt là điện trở suất phụ thuộc nhiệt độ trong từ trường  $H = 0$  và  $H = 3$  kOe. Hình 5 trình bày sự phụ thuộc của từ trở vào nhiệt độ của vật liệu tổ hợp LCMO-LSNO trong từ trường 3 kOe. Tại vùng nhiệt độ lân cận  $T_C$ , từ trở của mẫu LCMO chưa pha tạp LSNO ( $x = 0$ ) xuất hiện một đỉnh cực đại ( $MR \sim 9\%$ ). Đây là hiệu ứng MR sinh ra do tương tác DE, nó là bản chất nội tại của vật liệu manganite [1]. Khi pha tạp LSNO với một lượng nhỏ ( $x \geq 0,05$ ), trong vùng nhiệt độ lân cận  $T_C$ , hiệu ứng này suy giảm mạnh và hầu như không quan sát thấy đỉnh MR, thậm chí giá trị MR giảm về bằng không với mẫu có  $x \geq 0,3$ . Kết quả này chứng tỏ sự có mặt của pha LSNO trong mẫu đã làm suy giảm trật tự từ khoảng dài, kết quả là tương tác DE bị suy giảm. Nhận định này phần nào đã được khẳng định qua việc so sánh giá trị từ độ của các mẫu có nồng độ LSNO khác nhau tại 100 K trong từ trường 10 kOe như đã trình bày



Hình 5. Từ trở phụ thuộc nhiệt độ của hệ vật liệu tổ hợp  $(1-x)\text{LCMO}-x\text{LSNO}$  với  $0 \leq x \leq 0,3$ ; từ trường ngoài  $H = 3$  kOe.

trong hình 3. Kết quả tương tự cũng đã được Xiong và các cộng sự [16] quan sát thấy trên hệ mẫu LCMO/ZnO, Karmakar và các cộng sự [17] cũng có công bố tương tự trong hệ mẫu LCMO/V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>. Từ hình 5, ta nhận thấy là từ trở ở vùng nhiệt độ thấp phụ thuộc rất mạnh vào nhiệt độ và tỉ phần pha LSNO trong mẫu. Giá trị LFMR trong từng mẫu tăng mạnh khi nhiệt độ giảm xa  $T_C$ . Điều thú vị là giá trị từ trở tại vùng nhiệt độ thấp lớn hơn rất nhiều so với giá trị từ trở của mẫu tại nhiệt độ lân cận  $T_C$ . Điều này cho thấy sự hiện diện của LSNO tại biên hạt đã đóng vai trò đáng kể vào hiệu ứng LFMR. Các tác giả trong công trình [2] cho rằng, từ trở ở các mẫu đa tinh thể tồn tại hai vùng rõ rệt với hai cơ chế khác nhau. Trong vùng từ trường thấp (dưới 1 Tesla) từ trở xuất hiện là do hiệu ứng xuyên ngầm phụ thuộc spin phân cực qua biên các hạt. Hiệu ứng này phụ thuộc rất mạnh vào sự thay đổi của từ trường ngoài. Trong khi đó, nguyên nhân chủ yếu gây ra từ trở ở vùng từ trường cao là do tương tác DE được tăng cường và đạt giá trị cực đại tại  $T_C$ . Các tác giả cho rằng biên hạt đóng vai trò quan trọng đối với từ trở ở vùng nhiệt độ thấp.

Từ hình 5 ta thấy, khi nồng độ LSNO tăng dần, giá trị LFMR tăng và đạt giá trị lớn nhất với  $x = 0,25$  (MR ~ 37 % tại 30 K). Hiệu ứng LFMR của mẫu có  $x = 0,3$  (MR ~ 28 % tại 30 K) giảm khá mạnh và giá trị của nó còn nhỏ hơn so với mẫu LCMO thuần túy ( $x = 0$ , MR ~ 31 % tại 30 K). Điều này có thể do độ dày của biên hạt tăng đến một giá trị nào đó đã làm giảm khả năng xuyên ngầm của hạt tải ngay cả trong vùng nhiệt độ thấp và có tác dụng của từ trường ngoài. Trong trường hợp này, giá trị ngưỡng thấm đối với hệ LCMO-LSNO là 25 % pha LSNO. Khi tỉ phần pha LSNO vượt qua giá trị ngưỡng thấm, các đám sắt từ - kim loại sẽ trở nên bị cô lập hoàn toàn. Do vậy vật liệu thể hiện tính dẫn điện môi như đã trình bày trên hình 4 đồng thời làm suy giảm giá trị từ trở do hiệu ứng biên hạt gây ra. Tuy nhiên các giá trị ngưỡng thấm của các hệ mẫu khác nhau lại không giống nhau. Chẳng hạn trong công trình [18, 19, 20] ngưỡng thấm được xác định là 20 % của pha thứ hai, trong khi đó theo công trình [21], giá trị ngưỡng thấm lại lên đến 40 %, ngược lại trong công trình [22], giá trị này chỉ đạt 5 %. Theo Hueso [4], sự khác nhau về giá trị ngưỡng thấm có thể do công nghệ chế tạo vật liệu, cấu trúc hóa học, kích thước hạt tinh thể và đặc trưng điện từ của pha thứ hai.

#### 4. KẾT LUẬN

Pha thuận từ điện môi LSNO trong vật liệu tổ hợp LCMO-LSNO có vai trò như một lớp biên điện môi nhân tạo. Mặc dù lớp biên điện môi này không gây ảnh hưởng đến nhiệt độ chuyển pha sắt từ - thuận từ nhưng đã làm tăng điện trở suất và giảm nhiệt độ chuyển pha kim loại - điện môi của vật liệu. Việc chủ động tăng cường tính phi từ và điện môi của biên hạt bằng LSNO, một vật liệu điện môi có hằng số điện môi không lồ đã làm thay đổi mạnh tính chất điện - từ, đặc biệt là cải thiện đáng kể hiệu ứng LFMR của hệ. Giá trị LFMR của hệ vật liệu tổ hợp (1 -  $x$ )LCMO- $x$ LSNO đạt giá trị lớn nhất khi  $x = 0,25$ . Giá trị ngưỡng thấm đối với hệ vật liệu này là 25 % pha LSNO.

*Lời cảm ơn.* Công trình này được thực hiện với sự hỗ trợ về kinh phí của đề tài NCCB thuộc Quỹ phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) 2010 mã số 103.02-2010.29. Một phần kết quả được thực hiện tại Phòng thí nghiệm Trọng điểm Vật liệu và Linh kiện Điện tử, Viện Khoa học Vật liệu.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Gupta A., Gong G. Q., Xiao Gang, Duncombe P. R., Lecoeur, Trouilloud P., Wang Y. Y., Dravid V. D., Sun J. Z. - Grain-boundary effects on the magnetoresistance properties of perovskites mangantite films, Phys. Rev. B **68** (1996) R15629-R15632.

2. Hwang H. Y., Cheong S.-W., Ong N. P., and Batlogg B. - Spin-Polarized Intergrain Tunneling in  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ , *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 2041-2044.
3. Hueso L.E., Rivas J., Rivadulla F., López-Quintela M.A. - Magnetoresistance in manganite/alumina nanocrystalline composites, *J. Appl. Phys.* **89** (2001) 1746-1749.
4. Thanh T. D., Phong P. T., Dai N. V., Manh D. H., Khiem N. V., Hong L. V., Phuc N. X. - Magneto-transport and magnetic properties of  $(1-x)\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3 + x\text{Al}_2\text{O}_3$  composites, *J. Magn. Magn. Matt.* **323** (2011) 180-185.
5. Manh D. H., Phong P. T., Thanh T. D., Hong L. V., Phuc N. X. -  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  perovskite synthesized by reactive milling method: The effect of particle size on the magnetic and electrical properties, *J. Alloys and Compounds* **491** (2010) 8-12.
6. Manh D. H., Phong P. T., Thanh T. D., Hong L. V., Phuc N. X. - Low-field magnetoresistance of  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  perovskite synthesized by reactive milling method, *J. Alloys and Compounds* **499** (2010) 131-134.
7. Xiong C. S., Zeng Y., Xiong Y. H., Zhang J., Pi Y. B., Zhang L., Xiong J., Cheng X. W., Wei F. F., Li L. J. - Low-field transport properties of  $(1-x)\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.2}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3 + x\text{ZnO}$  composites, *Physica B* **403** (2008) 3266-3270.
8. Gaur A., Varma G. D. - Improved magnetotransport in LCMO-Polymer (PPS) composite, *Solid State Communications* **144** (2007) 138-143.
9. Gil L. K., Baca E., Morán O., Quinayas C., Bolanõs G. - Electrical transport properties of sintered granular manganite/insulator systems, *Solid State Communications* **145** (2008) 66-71.
10. Kumar J., Singh Rajiv K., Siwach P. K., Singh H. K., Singh R., Srivastava O. N. - Low field magneto-transport in LBSMO-PMMA composite, *J. Magn. Magn. Matt.* **299** (2006) 155-160.
11. Sánchez R. D., Rivas J., Vázquez-Vázquez C., López-Quintela A., Causa M. T., Tovar M., Oseroff S. - Giant magnetoresistance in fine particle of  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  synthesized at low temperature, *Appl. Phys. Lett.* **68** (1995) 134-136.
12. Siwach P. K., Goutam U. K., Gaur A., Singh H. K., Varma G. D., Srivastava O. N. - Colossal magnetoresistance study in nanophasic  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  manganite, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** (2006) 14-20.
13. Siwach P. K., Prasad R., Srivastava P., Singh H. K., Tiwari R. S., Srivastava O. N. - Microstructure-magnetotransport correlation in  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ , *J. Alloys and Compounds* **443** (2007) 26-31.
14. Mark Rubinstein - Two-component model polaronic transport, *J. Appl. Phys.* **87** (2000) 5019-5021.
15. Das D., Srivastava C. M., Bahadur D., Nigam A. K., Malik S. K. -Magnetic and electrical transport properties of  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LCMO): $x\text{ZnO}$  composites, *J. Phys: Condens. Matter.* **16** (2004) 4089-4102.
16. Xiong Y. H., Li L.J., Huang W. H., Pi H. L., Zhang J., Ren Z. M., Sun C. L., Huang Q. P., Bao X.C., Xiong C.S. - Enhanced low-field magnetoresistance in  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3 + x\text{ZnO}$  composites, *J. Alloys and Compounds* **469** (2008) 552-557.

17. Karmakar S., Taran S., Chaudhuri B. K., Sakata H., Sun C. P., Huang C. L., Yang H. D. - Study of grain boundary contribution enhancement of magnetoresistance in  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{V}_2\text{O}_5$  composites, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38** (2005) 3757-3763.
18. Balcells L. I., Carrillo A. E., Martinez B., Fontcuberta J. - Enhanced field sensitivity close to percolation in magnetoresistive  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{CeO}_2$  composites, *Appl. Phys. Lett.* **74** (1999) 4014-4016.
19. Chun H. Y., Yun H. H., Xing C., Chun L., Zhe-Ming W. - Improvement of magnetoresistance over a wide temperature range in  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ /polymer composites, *J. Phys. D: Condens. Matter.* **14** (2002) 9607-9614.
20. Petrov D. K., Krusin-Elbaum L., Sun J. Z., C. Feild, Duncombe P. R. - Enhanced magnetoresistance in sintered granular manganite/insulator systems, *Appl. Phys. Lett.* **75** (1999) 995-997.
21. Bao X. H., Yi H. L., Ru Z. Z., Xiao Y., Cheng-jian W., Liang M. - Low-field MR behaviour in  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{ZrO}_2$  composite system, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36** (2003) 1923-1927.
22. O'Donnell J., Eckstein J. N., Rschowski M. S. - Temperature and magnetic field dependence transport anisotropies in  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  films, *Appl. Phys. Lett.* **74** (2000) 218-220.

### ABSTRACT

#### ELECTRICAL-MAGNETIC PROPERTIES OF $(1-x)\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3 + x\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_4$ NANOCOMPOSITES

Tran Dang Thanh<sup>1,\*</sup>, Nguyen Thi Ha<sup>2</sup>, Do Hung Manh<sup>1</sup>, Pham Thanh Phong<sup>3</sup>,  
Vu Dinh Lam<sup>1</sup>, Le Van Hong<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Institute of Materials Science, VAST, 18 Hoang Quoc Viet, Cau Giay, Hanoi, Vietnam*

<sup>2</sup>*Faculty of Physics, College of Science, Thai Nguyen University, Thai Nguyen, Vietnam*

<sup>3</sup>*Nha Trang College of Education, 1 Nguyen Chanh, Nha Trang*

\*Email: [thanhtd@ims.vast.ac.vn](mailto:thanhtd@ims.vast.ac.vn)

In this report, we present the synthesis and electrical-magnetic properties of  $(1-x)\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3 + x\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_4$  nanocomposites with  $0 \leq x \leq 0.4$ . The nanocomposites were synthesized by reactive milling method combining with a heat treatment. The Curie temperature is almost independent of  $x$ . The metal-insulator transition temperature shifts from 254 K for  $x = 0.0$  to 65 K for  $x = 0.2$ . For  $x \geq 0.25$ , the electrical conductivity of the nanocomposites is insulating in the temperature range from 30 K to 300 K. The resistivity of all the samples increases with increasing  $x$ . The presence of the dielectric phase  $\text{La}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{NiO}_4$  decreased the value of Magnetoresistance near  $T_C$  but increased the value of the Low Field Magnetoresistance below  $T_C$ .

*Keywords:* multiferroic, nanocomposites, low field magnetoresistance, manganite.