

## تأثیر آرایش اکسید نیکل (NiO) بر خواص ساختاری، مغناطیسی و تراپردی ترکیب

### La<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>MnO<sub>3</sub>

اشراقی، مهین؛ سلامتی، هادی؛ کاملی، پرویز

دانشکده ی فیزیک، دانشگاه صنعتی اصفهان

### چکیده

در این مقاله، تاثیر آرایش اکسید نیکل (NiO) بر خواص ساختاری، مغناطیسی و تراپردی ترکیب La<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>MnO<sub>3</sub> مورد بررسی قرار گرفته است. نمونه ها به روش واکنش حالت جامد تهیه شدند. نتایج نشان می دهند که با افزایش میزان آرایش بخشی از اکسید نیکل وارد ساختار شده که این منجر به تضعیف پدیده ی تبادل دو گانه می شود و باقیمانده به صورت یک فاز جداگانه در مرز دانه ها قرار می گیرد. حضور NiO در مرز دانه ها بی نظمی های مغناطیسی را در سطح دانه ها افزایش داده است، در نتیجه دمای گذار و مغناطش نمونه ها کاهش پیدا کرده و همزمان مقاومت نمونه ها افزایش می یابد. نتایج نشان می دهد آرایش NiO تاثیر زیادی در مقدار مغناطو مقاومت با میدان های ضعیف (LFMR) دارد. در میدان مغناطیسی ۵۰۰۰۰ اورستند، مغناطو مقاومت نمونه ی با آرایش x=3 w% بیشترین مقدار را دارا است.

## The effect of NiO doping on the structure, magnetic and magnetotransport properties of La<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>MnO<sub>3</sub> composite

Eshraghi, Mahin ; Salamati, Hadi; Kameli, Parviz

Physics Department, Isfahan University of Technology, Isfahan

### Abstract

The effect of NiO doping on the structure, magnetic and magnetotransport properties of La<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO)/x NiO has been investigated. LSMO/x NiO composites, were prepared by solid state reaction method. These studies show that some part of the NiO goes into the perovskite lattice substituting Mn in LSMO and remainder segregates as a separate phase at the grain boundaries and grain surfaces. The presence of NiO at the grain boundaries increases the disordered states at the surface of the grains and therefore decreases Curie temperature and magnetization and increases resistivity of samples. Results also show that the NiO doping has an important effect on a Low Field Magnetoresistance (LFMR). In the magnetic field of 5000 Oe magnetoresistance value was maximum for x=3 w%.

PACS No: 75.

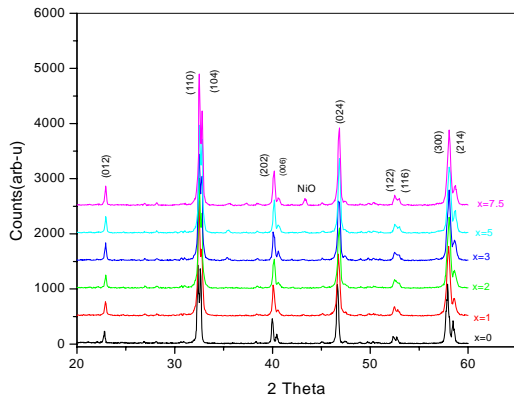
است. هوانگ و همکاران [۲] نشان دادند حضور مرز دانه ها در نمونه های بس بلور منجر به یک مغناطو مقاومت بسیار بزرگ در میدان های ضعیف (LFMR) و در یک بازه وسیعی از دما زیر دمای کوری می شود. تلاش های زیادی مبنی بر افزایش LFMR تا کنون صورت گرفته است که از جمله میتوان تاثیر آرایشی LSMO/xTiO<sub>2</sub> [۳] و اضافه کردن پلیمرهای عایق [۴] را نام برد. با اینکه اثر آرایش ناخالصی غیر مغناطیسی بر روی این ترکیبات به شکل های مختلف صورت گرفته است، اما تاثیر آرایش ناخالصی مغناطیسی بر روی این ترکیبات به ندرت

### مقدمه

از زمان کشف پدیده مغناطو مقاومت بسیار بزرگ (CMR) در ترکیب  $(A = Sr, Ca, Ba)La_{1-x}A_xMnO_3$  تحقیقات زیادی بر روی خواص مختلف این ترکیبات انجام گرفته است [۱]. پدیده ی CMR در منگنیت های پرو سکایتی با مدل پدیده تبادل دو گانه قابل توجیه است. اما این پدیده در میدان های مغناطیسی حدود چند تسلا و در بازه دمایی محدودی مشاهده می شود. اخیراً تاثیر مرز دانه ها در منگنیت های پرو سکایتی مورد مطالعه قرار گرفته

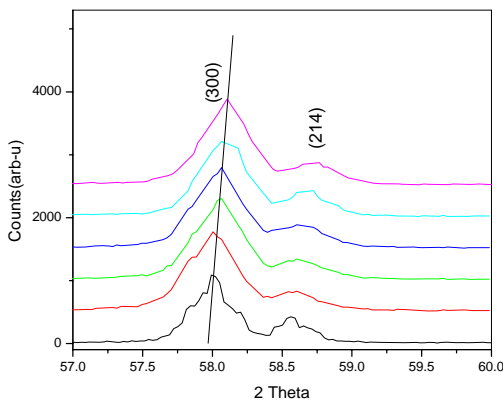
## نتایج و بحث

الگوی پراش اشعه ی ایکس در شکل (۱) نشان داده شده است.



شکل ۱: طیف XRD نمونه ها.

بررسی این طیف ها نشان می دهد که همه ی نمونه ها دارای ساختار رومبوهدرال هستند. همچنین ملاحظه می شود که با افزایش میزان آلیش قله ی اضافه در زاویه ی حدود ۴۳ درجه ظاهر می شود که مربوط به ناخالصی NiO می باشد. علاوه بر این با افزایش میزان آلیش جابجایی اندکی به سمت زوایای بالاتر در تمامی قله ها دیده می شود (شکل (۲)).



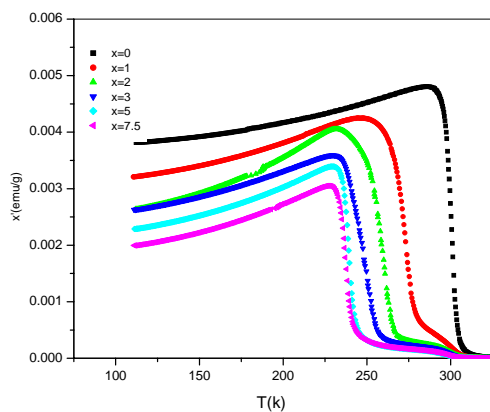
شکل ۲: طیف XRD نمونه ها در مقیاس کوچک.

این نتایج نشان دهنده ی کاهش پارامتر شبکه با افزایش میزان آلیش است. این بدان معناست که بخشی از NiO وارد ساختار شده و Ni جانشین Mn در ترکیب LSMO شده است. به دلیل کوچک بودن شعاع یونی  $Ni^{+2}$  در مقایسه با  $Mn^{+3}$ ، پارامتر شبکه کاهش پیدا کرده است.

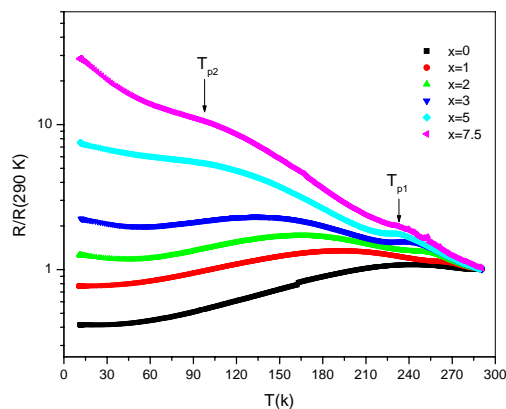
صورت گرفته است. در این کار تاثیر آلیش اکسید نیکل که یک ماده ی پاد فرو مغناطیس در دماهای زیر ۵۲۳ درجه ی کلون است بر خواص ساختاری، مغناطیسی و مقاومت ترکیبات  $(LSMO)/xNiO$  با درصد وزنی  $x=0,1,2,3,5,7.5$  w% مورد بررسی قرار گرفته است.

## آزمایشات

نمونه های  $LSMO/xNiO$  با  $x=0,1,2,3,5,7.5$  w% درصد وزنی طی دو مرحله آماده شدند. در مرحله اول پودرهای LSMO با روش حالت جامد تهیه شد. پودر های اولیه  $La_2O_3$  و  $MnO_2$  با خلوص بالا با یک استوکیومتری مناسب مخلوط شدند. سپس در دمای ۱۲۰۰ درجه سانتیگراد به مدت ۲۴ ساعت دو بار تکلیس شدند. برای داشتن نمونه های خیلی ریز و همگن پودرهای اولیه پس از مخلوط شدن به مدت یک ساعت توسط دستگاه آسیاب برقی، آسیاب شدند. در مرحله دوم نانو پودر های NiO تهیه شدند. بدین منظور پودر های NiO (از شرکت Merck) توسط دستگاه آسیاب برقی با سرعت ۴۰۰ دور بر دقیقه به مدت ۴۷ ساعت آسیاب شد. سپس مقادیر مناسب LSMO و NiO با یکدیگر مخلوط شده، در فشار  $10 MPa/cm^2$  پرس شدند و نهایتاً در دمای ۱۲۵۰ درجه ی سانتیگراد به مدت ۲۴ ساعت کلوخه سازی شدند. بررسی ساختاری نمونه های به دست آمده توسط دستگاه پراش پرتو ایکس (XRD) شرکت فیلیپس مدل XPERT انجام شده است. پذیرفتاری مغناطیسی نمونه های به دست آمده توسط دستگاه اندازه گیری پذیرفتاری مغناطیسی ساخت شرکت Lake Shore مدل ۷۰۰۰ انجام شد. اندازه گیری مقاومت الکتریکی توسط دستگاه یخچال مدار بسته انجام شد. ریز ساختار نمونه ها توسط دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) شرکت فیلیپس مدل XL مورد بررسی قرار گرفت.



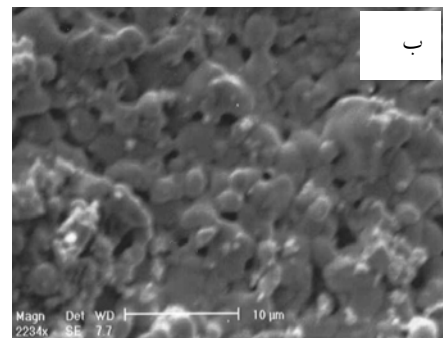
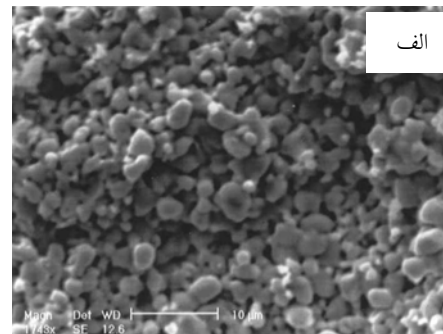
شکل ۳: وابستگی دمایی مغناطیسی نمونه ها.



شکل ۴- وابستگی دمایی مقاومت الکتریکی نمونه ها.

در شکل (۴) تغییرات مقاومت بر حسب دما در میدان صفر برای همه نمونه ها نشان داده شده است. همانطور که در شکل (۴) ملاحظه میشود یک قله ی کو چک در دمای  $T_{p1}$  که نزدیک دمای گذار  $T_c$  است و قله ی پهن دوم در دمای  $T_{p2}$  که خیلی پایین تر از دمای گذار  $T_c$  است وجود دارد. همانطور که دیده می شود  $T_{p1}$  و  $T_{p2}$  با افزایش میزان آلیش کاهش پیدا کرده است. همچنین مقاومت نمونه ها نیز افزایش یافته است. این رفتار را می توان توسط مدل ژانگ توجیه کرد [۶]. مطابق این مدل در ساختار های دانه ای، دانه را می توان به دو بخش مغزه و سطح تقسیم بندی کرد. قسمت مغزه دارای خواص مغناطیسی الکتریکی مشابه توده ی ماده است، اما بخش سطحی دارای دمای گذار و مغناطش پایین تری است که دلیل آن وجود بی نظمی های مغناطیسی در سطح دانه است. برخی از دلایل بی نظمی های مغناطیسی در سطح

این رفتار در نمونه های  $La_{0.7}Pb_{0.3}Mn_{1-x}Ni_xO_3$  که در آن نیکل جایگزین منگنز شده، دیده شده است [۵]. در شکل ۲ تصویر میکروسکوپ الکترونی نمونه های  $x=0$  و  $x=7.5$  نشان داده شده است. در نمونه خالص دانه ها و مرزدانه ها به وضوح دیده می شود در حالی که در نمونه آلائیده شده به دلیل حضور اکسید نیکل در سطح و مرزدانه ها، مرزدانه ها به وضوح دیده نمی شوند.



شکل ۲: تصویر میکروسکوپ الکترونی نمونه های (الف)  $x=0$  و (ب)  $x=7.5$ .

در شکل (۳) وابستگی دمایی پذیرفتاری مغناطیسی نمونه ها نشان داده شده است. ملاحظه می شود که با افزایش میزان آلیش، مغناطش و دمای گذار کاهش پیدا کرده است. این نتایج نشان می دهد که جایگزینی  $Ni^{2+}$  به جای  $Mn^{3+}$  باعث تضعیف برهم کنش تبدالی دو گانه شده و در نتیجه دمای گذار کوری ( $T_c$ ) و مغناطش کاهش یافته است. همچنین حضور NiO به عنوان یک ماده ی پاد فرومغناطیس در مرز دانه ها بی نظمی های مغناطیسی را در سطح دانه ها افزایش داده و به کاهش بیشتر مغناطش کمک کرده است.

های آرایش شده به دلیل افزایش حالت های بی نظمی در مرز دانه ها است. برای آرایش های بالاتر جانشینی بیش از حد Ni به جای Mn و همچنین افزایش ضخامت بیش از حد مرز دانه ها منجر به تضعیف پدیده تبادل دو گانه شده و مغناطومقاومت را کاهش داده است.

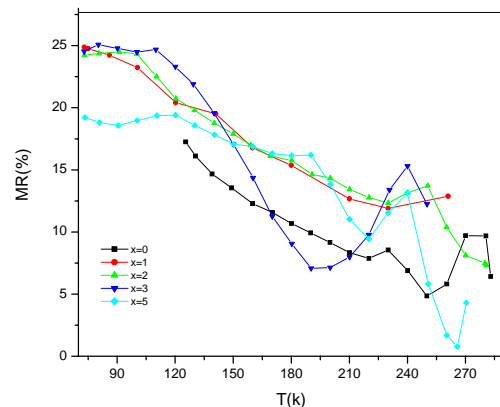
### نتیجه گیری

ترکیبات LSMO/xNiO با درصد وزنی  $x=0,1,2,3,5,7.5w\%$  به روش واکنش حالت جامد تهیه شدند. نتایج XRD نشان می دهد که همه ی نمونه ها دارای ساختار رومبوهدرال هستند و بخشی از NiO وارد ساختار شده و باقیمانده به عنوان یک فاز جداگانه در مرز دانه ها قرار گرفته است. نتایج اندازه گیری پذیرفتاری مغناطیسی و مقاومت الکتریکی نشان می دهد که افزایش میزان آرایش، منجر به کاهش دمای گذار کوری ( $T_C$ )، کاهش مغناطش و افزایش مقاومت نمونه ها شده است. مغناطومقاومت به ازای آرایش  $x=3$  درصد وزنی بیشترین مقدار را دارد. برای آرایش  $x \geq 5$ ، ضخامت بیش از حد مرز دانه ها و همچنین جانشینی Ni به جای Mn منجر به کاهش پدیده تبادل دو گانه شده و نهایتاً مغناطومقاومت کاهش می یابد.

### مرجع ها

- [۱] S. Jin, T.H. Tiefel, M. Mc Cormack, R. A. Fastnacht, Ramesh, and L. H. Chen, Science 264, 413 (1994).
- [۲] H. Hwang, S. – W Cheong, N. P. Ong, B. Batlogg, Phys. Rev. Lett 77(1996) 2041.
- [۳] P. Kameli, H. salamati, M. Eshraghi, M. R. Mohammadzadeh, J. Appl. Phys, 98 (2005)
- [۴] Yun-Hui Huang, et al, J. Appl. Phys. 91(2003) 111
- [۵] S. Pal, E. Bose, B. K. Chaudhuri, H. D. Yang, S. Neeleshwar, and Y. Y. Chen, J. Magn. Mater. 293(2005) 872.
- [۶] N. Zhang, W. Ding, W. Zhong, D. Xing, and Y. Du, Phys. Rev. B 56 (1997) 8138

عبارت اند از: کمبود اکسیژن، کامل نبودن ساختار کریستالی و ناکاملی ها. در این مدل  $T_{p1}$  نشان دهنده ی دمای گذار ذاتی عایق- فلز است و  $T_{p2}$  منعکس کننده ی تونل زنی بین دانه ای به دلیل اختلاف در نظم مغناطیسی سطح و مغزه است. مقاومت قسمت سطحی با افزایش دما هنگامی که در حالت پارامغناطیسی است بایستی کاهش پیدا کند. در حالی که قسمت مغزه در حالت فرو مغناطیس است، در نتیجه قله ی ظاهر شده در دمای  $T_{p2}$  تقریباً در دمای گذار کوری  $T_{CS}$  دیده می شود. همانطور که قبلاً اشاره شد بخشی از Ni جایگزین Mn در ساختار می شود که خود منجر به تضعیف پدیده ی تبادل دو گانه در این ترکیبات میشود. از آنجاییکه پدیده ی تبادل دو گانه عامل اصلی رسانش در این ترکیبات است، بنابراین تضعیف آن باعث افزایش مقاومت و کاهش دمای گذار  $T_{p1}$  می شود. همچنین حضور بخشی از اکسید نیکل پادفرومغناطیس در مرز دانه ها باعث افزایش بیشتر بی نظمی های مغناطیسی در سطح دانه ها شده و بنابر این  $T_{p2}$  کاهش یافته و مقاومت در دماهای پایین با شدت بیشتری افزایش پیدا می کند. شکل (۵) مغناطومقاومت ( $MR = \frac{\rho_0 - \rho_H}{\rho_0}$ ) همه نمونه ها در میدان  $5000 \text{ Oe}$  نشان داده شده است.



شکل ۵: تغییرات مغناطومقاومت نمونه ها بر حسب دما در میدان  $5000$  اورستند.

همانطور که ملاحظه می شود MR نمونه ها با افزایش میزان آرایش، افزایش یافته و به ازای  $x=3$  در صد وزنی مغناطومقاومت دارای بیشترین مقدار است. برای آرایش  $x \geq 5$ ، مغناطومقاومت کاهش می یابد. افزایش مغناطومقاومت در نمونه