

## ẢNH HƯỞNG CỦA TẠP CHẤT Mo LÊN CẤU TRÚC VÀ TÍNH CHẤT ĐIỆN TỬ CỦA VẬT LIỆU SPINEL $\text{CoFe}_2\text{O}_4$

Nguyễn Mạnh Hùng<sup>1,2</sup>, Nguyễn Thị Diệu Thu<sup>1</sup>, Đào Việt Thắng<sup>1,2</sup> và Nguyễn Cao Khang<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Bộ môn Vật lý, Trường Đại học Mở Địa chất*

<sup>2</sup>*Trung tâm Khoa học và Công nghệ Nano, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội*

**Tóm tắt.** Vật liệu nano spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  (CFO) pha tạp Mo được tổng hợp bằng phương pháp sol-gel kết hợp xử lý nhiệt. Nghiên cứu ảnh hưởng của tạp chất Mo lên cấu trúc và tính chất từ của  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  thông qua các phép đo nhiễu xạ tia X (XRD), tán sắc năng lượng (EDS), ảnh hiển vi điện tử quét (SEM), phổ tán xạ Raman, chu trình từ trễ (M-H), chu trình điện trở (P-E). Kết quả XRD cho thấy, vật liệu spinel CFO pha tạp Mo kết tinh đơn pha khi nồng độ Mo dưới 3 %mol. Khi nồng độ pha tạp Mo cao, có sự rã pha cấu trúc, ở đó tồn tại đồng thời pha spinel CFO và pha thứ cấp  $\text{CoMoO}_4$  được quan sát thấy trên giản đồ XRD. Kết quả này cũng được khẳng định thông qua phân tích các mode dao động trên phổ tán xạ Raman. Kết quả đo M-H cho thấy tất cả các mẫu thể hiện tính chất sắt từ. Kết quả phân tích chu trình điện trở cho thấy vật liệu spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pha tạp Mo thể hiện tính chất sắt điện. Nguồn gốc các đặc trưng sắt từ, sắt điện của vật liệu  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pha tạp Mo được phân tích và thảo luận trong bài báo này.

**Từ khóa:** Spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ , pha tạp Mo, sắt từ, sắt điện, sol-gel.

### 1. Mở đầu

Việc tạo ra vật liệu tồn tại đồng thời trật tự sắt điện và sắt từ đóng vai trò quan trọng trong việc chế tạo các vật liệu điện tử. Vì các trật tự sắt điện, sắt từ là các hiện tượng riêng biệt và có cơ chế khác nhau. Tính chất sắt từ có nguồn gốc từ các electron sắp xếp lấp đầy một phần trên các orbital  $d$  của kim loại chuyển tiếp sẽ tạo ra sự định xứ của các spins và các mômen từ. Trong khi đó, tính chất sắt điện đòi hỏi sự trống trên các orbital  $d$  của kim loại chuyển tiếp. Tính chất sắt điện, tính chất sắt từ cùng tồn tại trong vật liệu đa pha điện từ (multiferroic) mang đến khả năng tạo ra các thiết bị mới trong việc lưu giữ thông tin. Các kết quả nghiên cứu về vật liệu đa pha điện từ đã chỉ ra tính chất đa pha điện từ tồn tại ở nhiệt độ thấp và thấp hơn nhiệt độ phòng.

Cobalt ferrite ( $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ ) là một trong số các vật liệu trong nhóm vật liệu từ có cấu trúc spinel. Vật liệu  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  có nhiều ứng dụng trong thiết bị điện tử, chất lỏng từ, thiết bị và lưu trữ thông tin mật độ cao do nó có độ từ thẩm cao, từ độ bão hòa và điện trở tương đối lớn thích hợp cho hoạt động trong vùng tần số cao, giảm sự mất mát năng lượng gây bởi dòng Fuco, tăng tuổi thọ các thiết bị [1, 2]. Tính chất từ và điện của vật liệu ferrite nói chung phụ thuộc vào bản chất và vị trí của các cation  $\text{Fe}^{3+}$  trong tứ diện (vị trí  $A$ ) và bát diện (vị trí  $B$ ) trong cấu trúc lập phương [3].

---

Ngày nhận bài: 10/3/2020. Ngày sửa bài: 20/3/2020. Ngày nhận đăng: 27/3/2020.

Tác giả liên hệ: Nguyễn Mạnh Hùng. Địa chỉ e-mail: [nguyenmanhhung@humg.edu.vn](mailto:nguyenmanhhung@humg.edu.vn)

Các nghiên cứu trước đây chỉ ra rằng, khi pha tạp các nguyên tố Ti, Mo, Ho, Eu vào vật liệu spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  (CFO) làm cho vật liệu này thể hiện đồng thời tính chất sắt điện và sắt từ ở nhiệt độ phòng [3, 4]. Vật liệu CFO pha tạp Mo thể hiện tính chất sắt điện, đồng thời giảm tính chất sắt từ so với vật liệu CFO [3]. Tuy nhiên, nghiên cứu hệ thống ảnh hưởng của nồng độ Mo lên cấu trúc tinh thể, tính chất điện từ của vật liệu còn nhiều điểm cần được làm sáng tỏ.

Trong nghiên cứu này, chúng tôi pha tạp Mo vào mạng nền CFO bằng phương pháp sol-gel, nghiên cứu ảnh hưởng nồng độ pha tạp Mo lên cấu trúc tinh thể, hình thái bề mặt của vật liệu, tính chất sắt điện, sắt từ.

## 2. Nội dung nghiên cứu

### 2.1. Thực nghiệm

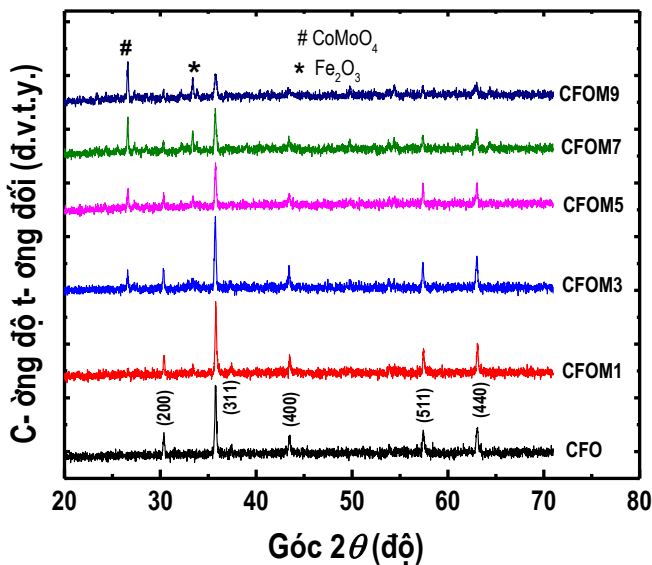
Vật liệu  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  và  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pha tạp Mo được chế tạo bằng phương pháp sol-gel. Đầu tiên, 5 g axit citric  $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7$  được hòa tan trong 30 ml nước cất ở nhiệt độ phòng. Tiếp đến, các hóa chất theo đúng tỉ phần được thêm vào, gồm:  $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ . Hỗn hợp được khuấy đều trong thời gian 30 phút, sau đó được đặt ở nhiệt độ  $80^\circ\text{C}$ . Khi dung dịch cạn còn khoảng 1/3 so với thể tích ban đầu, thêm vào 1 ml ethanol. Hệ tiếp tục được khuấy từ gia nhiệt đến gần cạn hết, đem sấy khô ở  $100^\circ\text{C}$ . Sản phẩm được nung ở  $900^\circ\text{C}$  trong môi trường không khí trong 5 giờ, thu được mẫu vật liệu.

*Bảng 1. Kí hiệu các mẫu vật liệu nghiên cứu*

Kí hiệu mẫu	CFO	CFOM1	CFOM3	CFOM5	CFOM7	CFOM9
$\text{CoFe}_2\text{O}_4$ pha tạp Mo	0%	1%	3%	5%	7%	9%

Các phép đo nhiễu xạ tia X, phổ tán xạ Raman, phổ tán sắc năng lượng, ảnh hiển vi điện tử quét, chu trình từ trễ, chu trình điện trễ được sử dụng để nghiên cứu ảnh hưởng của nồng độ pha tạp Mo lên cấu trúc, tính chất điện từ của hệ vật liệu.

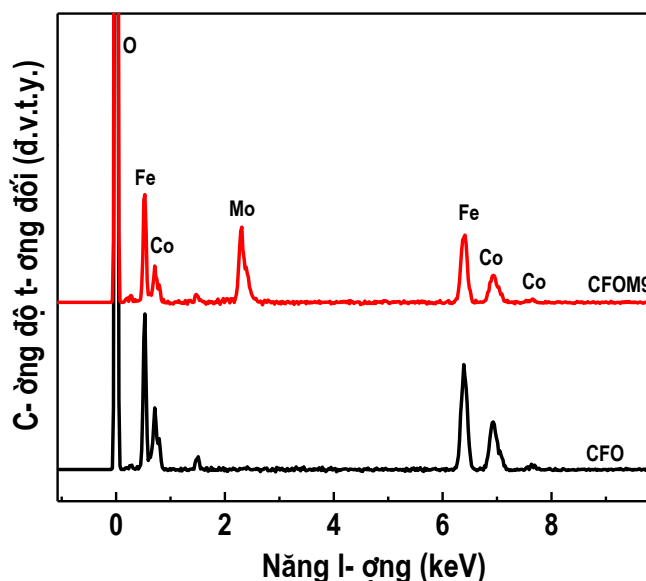
### 2.2. Kết quả và thảo luận



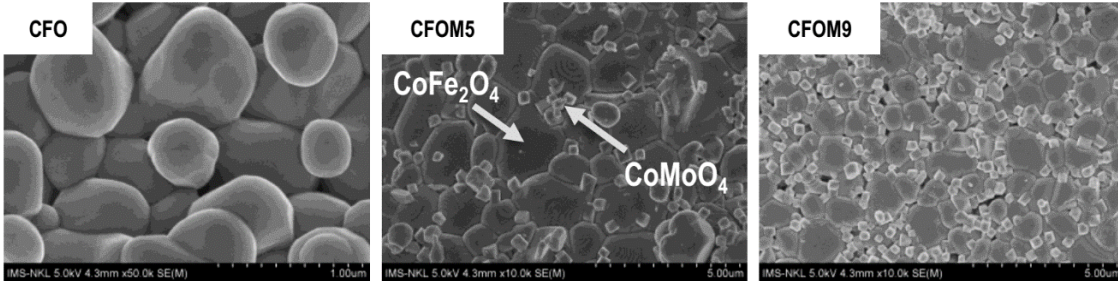
*Hình 1. Giải đồ nhiễu xạ của vật liệu spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_3$  pha tạp Mo với các nồng độ khác nhau*

Hình 1 là giản đồ nhiễu xạ tia X của vật liệu spinel CFO pha tạp Mo với các nồng độ khác nhau. Các mẫu vật liệu được kí hiệu CFO, CFOM1, CFOM3, CFOM5, CFOM7 và CFOM9 tương ứng với các nồng độ Mo là 0, 1, 3, 5, 7 và 9 %mol. Quan sát trên Hình 1, ta thấy mẫu CFO và CFOM1 kết tinh đơn pha cấu trúc mạng tinh thể dạng lập phương phù hợp với thể chuẩn JCPDS số 022-1086. Các mẫu CFOM3, CFOM5, CFOM7 và CFOM9 có sự rã pha cấu trúc, tồn tại đồng thời 2 pha cấu trúc  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  và  $\text{CoMoO}_4$ . Ngoài ra, các mẫu CFOM5, CFOM7 và CFOM9 còn xuất hiện đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của tạp chất  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (được đánh dấu \*) tại vị trí góc  $2\theta = 33,3^\circ$ . Kết quả này cho thấy giới hạn nồng độ pha tạp Mo vào trong mạng tinh thể CFO là 3 %mol. Hằng số mạng tinh thể của các mẫu vật liệu được xác định bằng phần mềm UnitCell. Kết quả cho thấy, vật liệu CFO có hằng số mạng  $a = 8,204 \text{ \AA}$ , hằng số mạng tinh thể của các mẫu vật liệu CFO pha tạp Mo giảm khi nồng độ pha tạp tăng. Nguyên nhân là do bán kính của  $\text{Mo}^{6+}$  (0,55  $\text{ \AA}$ ) nhỏ hơn bán kính ion của  $\text{Fe}^{3+}$  (0,645  $\text{ \AA}$ ) hoặc  $\text{Fe}^{2+}$  (0,77  $\text{ \AA}$ ). Khi  $\text{Mo}^{6+}$  thay thế vị trí của  $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$  trong mạng tinh thể dẫn tới sự co mạng tinh thể và giảm hằng số mạng [5]. Sự thay thế Mo vào vị trí Fe trong mạng nền CFO được kì vọng sẽ làm thay đổi các trật tự điện từ của vật liệu.

Để có thêm những bằng chứng cho thấy sự có mặt của Mo trong các mẫu pha tạp, chúng tôi đã lựa chọn hai mẫu vật liệu CFO và CFOM9 phân tích thành phần bằng phổ tán sắc năng lượng EDS. Hình 2 là phổ EDS của mẫu CFO và mẫu CFOM9. Quan sát trên Hình 2, ta thấy đối với mẫu CFO chỉ xuất hiện các đỉnh đặc trưng của các nguyên tố Co, Fe và O. Đối với mẫu CFOM9, ngoài các đỉnh đặc trưng của các nguyên tố Co, Fe, và O còn xuất hiện thêm đỉnh đặc trưng cho nguyên tố Mo. Như vậy, có thể thấy các mẫu chế tạo có thành phần các nguyên tố hóa học là phù hợp. Đây là một căn cứ để chúng tôi tiếp tục nghiên cứu ảnh hưởng của Mo lên tính chất của vật liệu CFO pha tạp Mo.

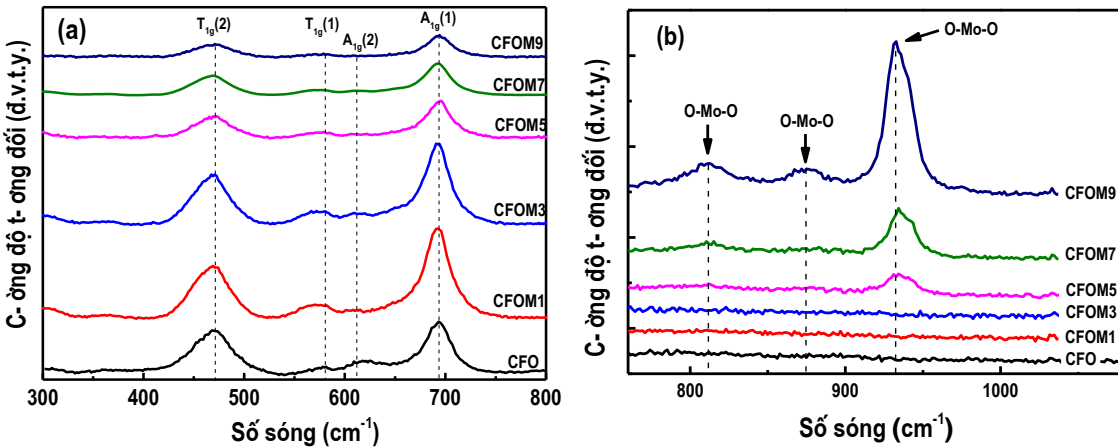


**Hình 2. Phổ EDS của các mẫu CFO và CFOM9.**



Hình 3. Ảnh SEM của các mẫu CFO, CFOM5 và CFOM9

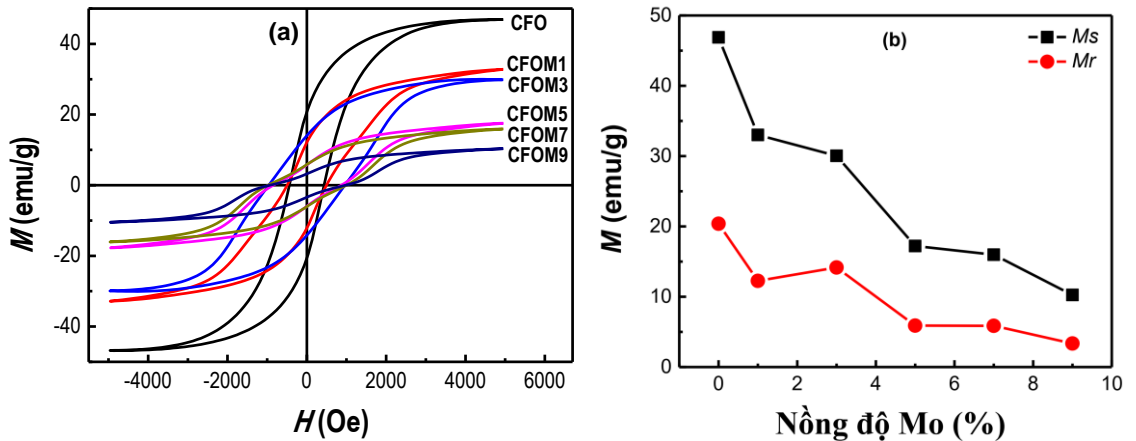
Sự thay đổi hình thái bề mặt của các mẫu vật liệu được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử quét. Hình 3 là ảnh SEM của các mẫu CFO, CFOM5 và CFOM9. Quan sát ảnh SEM của mẫu CFO cho thấy hình thái bề mặt của mẫu không đồng đều kích thước  $400 \div 800$  nm. Ảnh SEM của mẫu CFOM5 cho thấy ngoài các hạt CFO còn xuất hiện nhiều hạt  $\text{CoMoO}_4$  kích thước đồng đều có dạng lập phương xen kẽ các hạt CFO. Ảnh SEM của mẫu CFOM9 cho thấy số hạt  $\text{CoMoO}_4$  nhiều hơn so với mẫu CFOM5, các hạt  $\text{CoMoO}_4$  phân bố đều trên bề mặt của mẫu, xen kẽ các hạt CFO có kích thước lớn hơn. Kết quả này là phù hợp với kết quả XRD đã chỉ ra khi pha tạp Mo với nồng độ cao sẽ xuất hiện pha  $\text{CoMoO}_4$ . Sự xuất hiện pha cấu trúc  $\text{CoMoO}_4$  được dự đoán là sẽ ảnh hưởng tới tính chất điện từ của vật liệu.



Hình 4. Phổ tán xạ Raman của vật liệu spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pha tạp Mo với các nồng độ khác nhau

Hình 4 là phổ tán xạ Raman của vật liệu spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pha tạp Mo với các nồng độ khác nhau. Quan sát Hình 4a, ta thấy trong khoảng số sóng  $300 \div 800$   $\text{cm}^{-1}$  xuất hiện các đỉnh đặc trưng  $T_{2g}(2)$ ,  $T_{2g}(1)$ ,  $A_{1g}(2)$  và  $A_{1g}(1)$  của cấu trúc CFO tương ứng tại các vị trí số sóng 470, 581, 612 và 693  $\text{cm}^{-1}$  và không xuất hiện các đỉnh lạ [6]. Hình 4b cho thấy trong vùng số sóng cao  $750 \div 1050$   $\text{cm}^{-1}$ , mẫu CFO, CFOM1 và CFOM3 không quan sát thấy xuất hiện các đỉnh Raman trong khi đó các mẫu CFOM5, CFOM7 và CFOM9 xuất hiện đỉnh đặc trưng cho liên kết O-Mo-O của pha  $\text{CoMoO}_4$  tại vị trí số sóng 933  $\text{cm}^{-1}$  [7]. Ngoài ra, phổ tán xạ Raman của các mẫu CFOM7 và CFOM9 còn quan sát thấy sự xuất hiện các đỉnh đặc trưng cho liên kết O-Mo-O tại các vị trí số sóng 810 và 875  $\text{cm}^{-1}$ . Đỉnh đặc trưng cho liên kết O-Mo-O có cường độ tăng mạnh khi nồng độ pha tạp Mo tăng. Sự xuất hiện của đỉnh đặc trưng cho liên kết O-Mo-O cho thấy sự tồn tại của pha cấu trúc  $\text{CoMoO}_4$ . Kết quả phân tích phổ tán xạ Raman cùng với kết quả phân tích XRD và SEM đã khẳng định sự tồn tại của pha  $\text{CoMoO}_4$  khi pha tạp Mo với nồng độ cao.

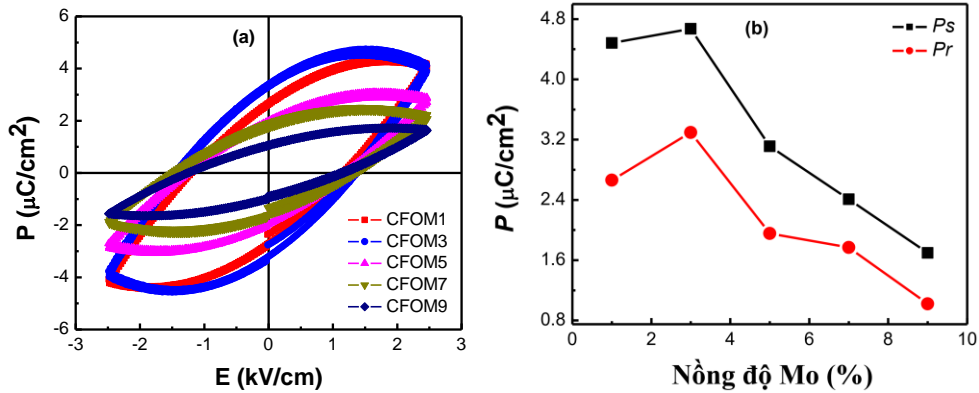
Hình 5a là chu trình từ trễ của vật liệu spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pha tạp Mo. Quan sát trên Hình 5a cho thấy tất cả các mẫu thể hiện trật tự sắt từ mềm, các đại lượng đặc trưng như từ độ bão hòa  $M_s$ , từ độ dư  $M_r$  và lực kháng từ  $H_c$  của các mẫu được xác định và chỉ ra trong Bảng 2. Đối với mẫu chưa pha tạp CFO có từ độ bão hòa  $M_s = 46,885$  emu/g, từ độ dư  $M_r = 20,382$  emu/g và lực kháng từ  $H_c = 436$  Oe. Giá trị  $M_s = 46,885$  emu/g là nhỏ hơn  $M_s$  của  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  dạng khối [8]. Các nghiên cứu trước đây chỉ ra tính chất từ của vật liệu CFO được đóng góp bởi các tương tác siêu trao đổi  $\text{Fe}_A^{3+} - \text{O}^{2-} - \text{Fe}_A^{3+}$ ,  $\text{Fe}_A^{3+} - \text{O}^{2-} - \text{Fe}_B^{3+}$  và  $\text{Fe}_B^{3+} - \text{O}^{2-} - \text{Fe}_B^{3+}$ , trong đó tương tác  $\text{Fe}_A^{3+} - \text{O}^{2-} - \text{Fe}_B^{3+}$  chiếm ưu thế hơn tương tác  $\text{Fe}_A^{3+} - \text{O}^{2-} - \text{Fe}_A^{3+}$  và  $\text{Fe}_B^{3+} - \text{O}^{2-} - \text{Fe}_B^{3+}$  [9]. Quan sát trên Bảng 2, ta thấy vật liệu CFO pha tạp với nồng độ 1 %mol có  $M_s$  và  $M_r$  giảm so với vật liệu nền CFO, lực kháng từ  $H_c$  thay đổi không đáng kể. Sự giảm từ độ của các mẫu pha tạp Mo có thể dự đoán được là do  $\text{Mo}^{6+}$  tồn tại các orbital  $d^0$  khi thay thế  $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$  sẽ làm giảm tương tác sắt từ và giảm mômen từ. Khi nồng độ pha tạp Mo tăng đến 3 %mol, từ độ của mẫu giảm lực kháng từ tăng mạnh. Nồng độ pha tạp Mo lớn hơn 3 %mol, từ độ của các mẫu giảm đồng thời lực kháng từ tăng. Sự phụ thuộc của từ độ bão hòa, từ độ dư của các mẫu theo nồng độ pha tạp được chỉ ra trên Hình 5b. Ngoài ra, khi phân tích chu trình từ trễ của các mẫu CFOM5, CFOM7 và CFOM9, chúng tôi nhận thấy chu trình từ trễ của các mẫu này ở vùng từ trường thấp bị gãy khúc bất thường. Điều này được lí giải là do khi nồng độ pha tạp lớn hơn 3 %mol có sự tồn tại của hai pha cấu trúc  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{CoMoO}_4$  và tạp chất  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  như đã thảo luận trong phần kết quả XRD và tán xạ Raman. Hai pha cấu trúc  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{CoMoO}_4$  và tạp chất  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  có đặc tính từ là khác nhau. Do đó, ở vùng từ trường thấp sự từ hóa của các pha này là khác nhau dẫn tới sự gãy khúc của chu trình từ trễ, như quan sát trên Hình 5.



Hình 5. (a) Chu trình từ trễ của vật liệu spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  pha tạp Mo; (b) Sự phụ thuộc của từ độ bão hòa ( $M_s$ ) và từ độ dư ( $M_r$ ) theo nồng độ Mo

Bảng 2. Giá trị từ độ bão hòa  $M_s$ , từ độ dư  $M_r$  và lực kháng từ  $H_c$

Mẫu	CFO	CFOM1	CFOM3	CFOM5	CFOM7	CFOM9
Nồng độ pha tạp Mo	0%	1%	3%	5%	7%	9%
$M_s$ (emu/g)	46,885	33,008	30,036	17,222	15,981	10,254
$M_r$ (emu/g)	20,382	12,257	14,167	5,897	5,873	3,358
$H_c$ (Oe)	434,22	498,48	955,53	962,78	968,255	956,55



**Hình 6. (a) Chu trình điện trễ của vật liệu spinel  $CoFe_2O_4$  pha tạp Mo; (b) Sự phụ thuộc của độ phân cực điện bão hòa ( $P_s$ ) và độ phân cực điện dư ( $P_r$ ) theo nồng độ Mo**

Như đã trình bày ở trên, vật liệu spinel CFO là vật liệu sắt từ. Các nghiên cứu trước đây đã chỉ ra rằng vật liệu CFO thể hiện trật tự sắt từ và không thể hiện tính chất sắt điện ở nhiệt độ phòng. Tuy nhiên, kết quả phân tích XRD, ảnh SEM và phổ tán xạ Raman cho thấy Mo đã thay thế vị trí Fe trong mạng nền CFO, điều này hứa hẹn khả năng tạo ra trật tự sắt điện của vật liệu. Hình 6a là chu trình điện trễ của vật liệu spinel  $CoFe_2O_4$  pha tạp Mo với các nồng độ khác nhau. Quan sát trên Hình 6a, ta thấy tất cả các mẫu thể hiện tính chất sắt điện yếu. Mẫu pha tạp Mo với nồng độ 1 %mol có độ phân cực điện bão hòa  $P_s = 4,484 \mu C/cm^2$ , độ phân cực điện dư  $P_r = 2,662 \mu C/cm^2$ . Mẫu pha tạp Mo với nồng độ là 3 %mol thể hiện tính chất sắt điện mạnh nhất với  $P_s = 4,671 \mu C/cm^2$ ,  $P_r = 3,294 \mu C/cm^2$ . Các mẫu pha tạp Mo với nồng độ > 3 %mol có giá trị  $P_s$  và  $P_r$  đều giảm khi nồng độ pha tạp tăng. Sự phụ thuộc của  $P_s$  và  $P_r$  theo nồng độ pha tạp Mo được chỉ ra trên Hình 6b. Nguồn gốc tính chất sắt điện trong vật liệu  $CoFe_2O_4$  pha tạp Mo được cho là đóng góp chính của các orbital  $d^0$  của  $Mo^{6+}$  [3]. Tuy nhiên, sự giảm của giá trị của  $P_s$ ,  $P_r$  của các mẫu pha tạp Mo với nồng độ > 3 %mol, nguyên nhân là do: (i) sự xuất hiện của pha cấu trúc  $CoMoO_4$  (dạng lập phương) làm giảm độ phân cực điện của mẫu; (ii) sự xuất hiện của tạp chất  $Fe_2O_3$  làm tăng độ dẫn điện của mẫu dẫn tới sự gia tăng của dòng rò làm giảm tính chất sắt điện của vật liệu. Từ kết quả phân tích tính chất từ và tính chất sắt điện cho thấy vật liệu CFO pha tạp Mo thể hiện đồng thời tính chất sắt từ và tính chất sắt điện. Điều này cho thấy vật liệu CFO pha tạp Mo có khả năng ứng dụng trong các thiết bị điện tử. Tuy nhiên, các kết quả chỉ ra cho thấy giới hạn của nồng độ pha tạp Mo vào vật liệu spinel CFO là 3%mol.

### 3. Kết luận

Vật liệu spinel  $CoFe_2O_4$  pha tạp Mo được chế tạo thành công bằng phương pháp sol-gel. Khi pha tạp Mo với nồng độ thấp (< 3 %mol), vật liệu có cấu trúc đơn pha dạng lập phương. Đối với các mẫu pha tạp với nồng độ Mo lớn hơn 3 %mol tồn tại đồng thời hai pha cấu trúc  $CoFe_2O_4$ ,  $CoMoO_4$  và tạp chất  $Fe_2O_3$ . Pha cấu trúc  $CoMoO_4$  và tạp chất  $Fe_2O_3$  có ảnh hưởng tới tính chất điện từ của vật liệu. Vật liệu CFO pha tạp Mo thể hiện đồng thời tính chất sắt điện và sắt từ ở nhiệt độ phòng. Các kết quả phân tích cho thấy giới hạn của nồng độ pha tạp Mo vào CFO là 3 %mol.

**Lời cảm ơn:** Bài báo được hỗ trợ kinh phí từ đề tài cơ sở của Trường Đại học Mở Địa chất mã số T19-04.

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] Lưu Tuấn Tài, 2008. *Giáo trình Vật liệu từ*. NXB Đại học Quốc gia Hà Nội.



- [2] Đỗ Danh Bích, Nguyễn Đăng Phú, Đinh Thị Hồng Tươi and Vũ Thị Mơ, 2014. Tính chất từ của hạt nano  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  được chế tạo bằng phương pháp hóa học có sự hỗ trợ của vi sóng. *Journal of Science of HNUE*, Vol. 59, Số 1A, tr. 80-84.
- [3] G. D. Dwivedi, K. F. Tseng, C. L. Chan, P. Shahi, J. Lourembam, B. Chatterjee, A. K. Ghosh, H. D. Yang and Sandip Chatterjee, 2010. Signature of ferroelectricity in magnetically ordered Mo-doped  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ . *Physical Review B*, Vol. 82, 13, pp. 134428.
- [4] G. D. Dwivedi, Amish G. Joshi, H. Kevin, P. Shahi, A. Kumar, A. K. Ghosh, H. D. Yang and Sandip Chatterjee, 2012. Existence of the multiferroic property at room temperature in Ti doped  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ . *Solid State Communications*, Vol. 152, 5, pp. 360-363.
- [5] Z. K. Heiba, Nasser Y. Mostafa and Omar H. Abd-Elkader, 2014. Structural and magnetic properties correlated with cation distribution of Mo-substituted cobalt ferrite nanoparticles. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 368, pp. 246-251.
- [6] Raghvendra Singh Yadav, Ivo Kuřitka, Jarmila Vilcakova, Jaromir Havlica, Jiri Masilko, Lukas Kalina, Jakub Tkacz, Jiří Švec, Vojtěch Enev and Miroslava Hajdúchová, 2017. Impact of grain size and structural changes on magnetic, dielectric, electrical, impedance and modulus spectroscopic characteristics of  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  nanoparticles synthesized by honey mediated sol-gel combustion method. *Advances in Natural Sciences: Nanoscience and Nanotechnology*, Vol. 8, 4, pp. 045002.
- [7] Zhanwei Xu, Zhi Li, Xuehai Tan, Chris M. B. Holt, Li Zhang, Babak, Shalchi Amirkhiz and David Mitlin, 2012. Supercapacitive carbon nanotube - cobalt molybdate nanocomposites prepared via solvent-free microwave synthesis. *RSC Advances*, Vol. 2, 7, pp. 2753-2755.
- [8] V. Pillai and D.O. Shah, 1996. Synthesis of high - coercivity cobalt ferrite particles using water-in-oil microemulsions. *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 163, pp. 243-248.
- [9] Aiman Zubair, Zahoor Ahmad, Azhar Mahmood, Weng-Chon Cheong, Irshad Ali, Muhammad Azhar Khan, Adeel Hussain Chughtai and Muhammad Naeem Ashiq, 2017. Structural, morphological and magnetic properties of Eu-doped  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  nano-ferrites. *Results in Physics*, Vol. 7, pp. 3203-3208.

## ABSTRACT

### Effect of Mo-doping on structural, magnetic and electrical properties of spinel $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ materials

Nguyen Manh Hung<sup>1,2</sup>, Nguyen Thi Dieu Thu<sup>1</sup>, Dao Viet Thang<sup>1,2</sup>, Nguyen Cao Khang<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Department of Physics, Hanoi University of Mining and Geology

<sup>2</sup>Center for Nano Science and Technology, Hanoi National University of Education

Mo-doped nano spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  (CFO) materials were synthesized by sol-gel method. The effect of Mo-doping on structural, magnetic and electrical properties was investigated using X-ray diffraction (XRD), energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS), scanning electron microscope (SEM), Raman scattering spectroscopy, magnetic hysteresis loops (M-H), and polarization vs. electric field hysteresis loops (P-E) measurement. A results analysis of XRD showed Mo-doped spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  materials crystalize in a single phase when the concentration of Mo is  $< 3$  % molar. For Mo-doped  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  with a concentration of Mo  $\geq 3$  % molar, samples exist in two structural phases,  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  and  $\text{CoMoO}_4$ , which showed in XRD. These results also showed under analysis by Raman scattering spectroscopy. Magnetic hysteresis loops indicated all samples present ferromagnetism behavior. Results analysis of (P-E) measurement showed Mo-doped spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  materials present ferroelectricity. The origin of ferromagnetism and ferroelectricity are discussed in this paper.

**Keywords:** spinel  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ , Mo-doped, ferromagnetism, ferroelectricity, sol-gel.