

## تأثیر جانمایی منیزیم و دمای تفجوشی بر ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی فریت منگنز-منیزیم

سید تقی محمدی بنهی\*، سهراب منوچهری و محمدحسن یوسفی

گروه فیزیک، مجتمع دانشگاهی علوم کاربردی، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، شاهین شهر، اصفهان

(دریافت مقاله: ۱۳۹۴/۰۲/۲۷ - دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۴/۱۱/۱۸)

**چکیده** - نانوپودرهای فریت منگنز-منیزیم  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  که  $x$  دارای مقادیر ۰ تا ۱ با گام‌های ۰/۲ است به روش هم‌رسوبی تهیه و سپس تحت فشار هیدرولیکی به قرص تبدیل شدند و سرانجام در دماهای ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد تفجوش شدند. میکروسکوپ تونلی روبشی اندازه ذرات پودرهای حاصل را در حدود ۱۷ نانومتر نشان داد. الگوهای پراش پرتو ایکس تشکیل ساختار اسپینل مکعبی تک‌فاز را برای نمونه‌های تفجوش شده در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد تأیید نمودند. در این نمونه‌ها با جانمایی یون  $Mg^{2+}$  به جای  $Mn^{2+}$ ، ثابت شبکه از مقدار ۸/۴۹ به ۸/۳۵ آنگستروم و مغناطش اشباع از مقدار ۷۴/۷ به ۲۱/۲ emu/g کاهش یافت. هم‌چنین نیروی وادارندگی از مقدار ۵ به ۲۳ Oe و دمای کوری از مقدار ۲۶۹ به ۳۹۲ درجه سانتی‌گراد افزایش یافت. نمونه‌های  $x$  برابر با ۰/۲، ۰/۴، ۰/۶، تفجوش شده در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد به دلیل ویژگی‌های مغناطیسی مناسب، برای کاربردهای هایپر ترمیا و جابجاگرهای فازی پیشنهاد می‌شوند.

واژگان کلیدی: نانوپودر، فریت منگنز-منیزیم، روش هم‌رسوبی، دمای تفجوشی، ویژگی‌های مغناطیسی

## The Effect of Magnesium Substitution and Sintering Temperature on the Structural and Magnetic Properties of Manganese- Magnesium Ferrite

S.T. Mohammadi Benehi\*, S. Manouchehri and M.H. Yousefi

Department of Physics, Faculty of Applied Science, Malek-Ashtar University, Shahin Shahr, Isfahan

**Abstract:** Magnesium-manganese ferrite nanopowders ( $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$ ,  $x=0.0$  up to 1 with step 0.2) were prepared by coprecipitation method. The as-prepared samples were pressed with hydrolic press to form a pellet and were sintered in 900, 1050 and 1250°C. Scanning Tunneling Microscope (STM) images showed the particle size of powders about 17 nm. The X-ray patterns confirmed the formation of cubic single phase spinel structure in samples sintered at 1250°C. Substituting  $Mg^{2+}$  with  $Mn^{2+}$

\* مسئول مکاتبات پست الکترونیکی: s.t.mohamadi@gmail.com

in these samples, the lattice parameter decreased from 8.49 to 8.35 Å and magnetization saturation decreased from 74.7 to 21.2 emu/g. Also, coercivity ( $H_c$ ) increased from 5 to 23 Oe and Curie temperature ( $T_c$ ) increased from 269 to 392 °C. Samples with  $x=0.2, 0.4, 0.6$  sintered at 1250 °C, because of their magnetic properties, can be recommended for hyperthermia applications and for phase shifters.

**Keywords:** Nanopowder, Mn-Mg ferrite, Coprecipitation method, Sintering temperature, Magnetic properties

## ۱- مقدمه

نانوذرات مغناطیسی به دلیل ویژگی‌های منحصر به فردشان هم از دیدگاه نظری و هم از دیدگاه آزمایشگاهی و صنعتی موضوع مورد علاقه پژوهشگران، دانشمندان و مهندسان هستند. در سال‌های اخیر ساخت و تولید نانوذرات فریت‌های اسپینلی به موجب کاربردهای وسیع آن‌ها در سیستم‌های ضبط مغناطیسی، فروشاره‌ها، دستگاه‌های عکس برداری و ادوات فرکانس بالا در حال توسعه است [۱ و ۲]

یاخته یکه ساختار اسپینلی از هشت یکای فرمولی  $MFe_2O_4$  تشکیل می‌شود و دارای فرمول کلی  $M_8Fe_{16}O_{32}$  است. یون‌های اکسیژن چارچوب اسپینلی را می‌سازند. در این ساختار یون‌های اکسیژن یک شبکه FCC به وجود می‌آورد و کاتیون‌های M و Fe به صورت بین‌نشینی در دو زیر شبکه چهاروجهی<sup>۱</sup> (جایگاه A) و هشت‌وجهی<sup>۲</sup> (جایگاه B) می‌نشینند [۳]. در صورتی که جایگاه‌های A با کاتیون‌های دو ظرفیتی و جایگاه‌های B با کاتیون‌های سه ظرفیتی اشغال شوند، فریت ساختار اسپینلی عادی<sup>۳</sup> دارد و اگر جایگاه‌های A با کاتیون‌های سه ظرفیتی و جایگاه‌های B با کاتیون‌های دو ظرفیتی اشغال شوند، فریت ساختار اسپینلی وارون<sup>۴</sup> دارد. اگر این جایگاه‌ها با مخلوطی از کاتیون‌های دو و سه ظرفیتی اشغال شوند، فریت اسپینل مخلوط<sup>۵</sup> داریم. ویژگی‌های مغناطیسی و الکتریکی فریت‌ها به شدت به نحوه توزیع کاتیون‌ها در جایگاه‌های چهار و هشت وجهی وابسته است. این توزیع با انتخاب نوع روش ساخت و عملیات حرارتی (دمای تفجوشی) تغییر می‌کند [۳].

فریت منگنز-منیزیم فریت مخلوط است و به شدت به پیش ماده و شیوه ساخت وابسته است که این موضوع به خوبی

در این پژوهش نشان داده شده است. این فریت به دلیل ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی مناسب مانند مقاومت الکتریکی بالا، نیروی وادارندگی<sup>۶</sup> پایین، دمای کوری<sup>۷</sup> بالا و اتلاف جریان‌های گردابی<sup>۸</sup> ناچیز کاربردهای زیادی در محدوده امواج مایکروویو دارد [۴] و می‌تواند به عنوان جابجاگرهای فازی<sup>۹</sup> [۷-۵]، جاذب امواج مایکروویو، سیرکولاتورها<sup>۱۰</sup> و ایزولاتورها<sup>۱۱</sup> [۶ و ۸] استفاده شود. هم‌چنین گزارش شده است که این نوع فریت به دلیل ویژگی‌های حلقه پسماند مربعی، برای کاربرد در سیستم‌های حافظه مغناطیسی و مدارهای سویچ کننده [۷-۵] و به دلیل نیروی وادارندگی پایین و مغناطش اشباع بالا برای کاربردهای هایپرترمی<sup>۱۲</sup> [۹ و ۱۰] بسیار مناسب است. هدف از این پژوهش تأثیر پیش ماده نانو بر ساختار فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  (که در آن x دارای مقادیر ۰/۰، ۰/۲، ۰/۴، ۰/۶، ۰/۸ و ۱/۰ است) و هم‌چنین تأثیر جانشانی یون منیزیم و دمای تفجوشی بر ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی قرص‌های تهیه شده از نانوذرات آن است. نانوذرات آن توسط میکروسکوپ تونلی روبشی<sup>۱۴</sup> اندازه‌گیری شدند و سپس تحت فشار  $360 \text{ kg/cm}^2$  به قرص‌هایی با قطر ۹ میلی‌متر تبدیل شدند. این قرص‌ها در سه دمای مختلف ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد به مدت سه ساعت تفجوش شدند و در نهایت ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی آن‌ها مورد بررسی قرار گرفتند.

## ۲- مواد و روش‌ها

از روش هم‌رسوبی به منظور تهیه فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  با  $x=0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0$  استفاده شد. مواد اولیه به کار

محاسبه شد [۱۲]:

$$a = d(h^2 + k^2 + l^2)^{1/2} \quad (3)$$

که در آن  $h$ ،  $k$  و  $l$  ضرایب میلر<sup>۱۸</sup> هستند. میانگین اندازه بلورکها<sup>۱۹</sup>،  $D_{XRD}$ ، از پهن شدگی قله (۳۱۱) نمونه‌ها و به کمک رابطه شرر<sup>۲۰</sup> محاسبه شد [۱۲]:

$$D_{XRD} = \frac{0.9\lambda}{\beta \cos\theta} \quad (4)$$

برای محاسبه  $\beta$  از رابطه ۵ استفاده شد [۱۳]:

$$\beta = (\beta_M^2 - \beta_S^2)^{1/2} \quad (5)$$

که در آن  $\beta_M$  تمام‌پهنا در نیم‌شدت بیشینه<sup>۲۱</sup> و  $\beta_S$  مربوط به پهن شدگی دستگاه<sup>۲۲</sup> است.

چون نمونه‌ها به صورت قرص هستند، چگالی تجربی با استفاده از رابطه ۶ تعیین شد:

$$\rho_{Bulk} = \frac{m}{V} = \frac{m}{\pi r^2 h} \quad (6)$$

که در آن  $m$  جرم،  $V$  حجم،  $r$  شعاع و  $h$  ارتفاع نمونه است. چگالی به دست آمده از پرتو ایکس، که به اختصار به آن چگالی پرتو ایکس گفته می‌شود، از رابطه ۷ محاسبه شد [۱۴]:

$$\rho_{X-ray} = \frac{8A}{N_A a^3} \quad (7)$$

که  $A$  وزن مولکولی نمونه و  $N_A$  عدد آووگادرو است. ضریب ۸ نشان‌دهنده این است که هر سلول واحد اسپینل، ۸ برابر واحد فرمول شیمیایی خود حاوی کاتیون و اکسیژن است.

طبق رابطه ۸ مغناطش خالص شبکه، از تفاضل بین مغناطش‌های دو زیر شبکه A و B به دست می‌آید [۷]:

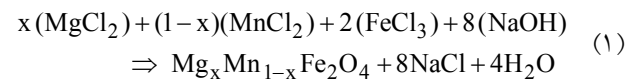
$$M = M_B - M_A \quad (8)$$

گشتاور دوقطبی مغناطیسی تجربی،  $m_B$  به کمک مغناطش اشباع،  $M_S$ ، نمونه از رابطه ۹ محاسبه می‌شود [۱۵]:

$$n_B = \frac{A \times M_S}{5585} \quad (9)$$

اندازه ذرات پودرهای به‌دست آمده از روش هم‌رسوبی، توسط تحلیل میکروسکوپ تونلی روبشی متعلق به دانشگاه صنعتی مالک اشتر اصفهان بررسی شدند. مشاهده رفتار

رفته شامل کلرید آهن ( $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ )، کلرید منیزیم ( $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ )، کلرید منگنز ( $\text{MnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) و هیدروکسید سدیم (NaOH) از شرکت مرک آلمان با درجه خلوص بیش از ۹۹٪ بودند. برای رسیدن به ترکیب مورد نظر از موازنه فرمول شیمیایی ترکیب استفاده می‌شود [۱۱]:



برای تهیه فریت منگنز-منیزیم  $\text{Mg}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ، ۱۳۰ میلی‌لیتر محلول ۰/۶۴ مولار هیدروکسید سدیم (سود) با pH حدود ۱۲ با آهنک ثابت در دمای ۸۰ درجه سانتی‌گراد هم زده شد. سپس در یک بشر،  $x$  ۱۰ میلی‌لیتر محلول ۰/۵ مولار کلرید منیزیم،  $(1-x)$  ۱۰ میلی‌لیتر محلول ۰/۵ مولار کلرید منگنز و ۲۰ میلی‌لیتر محلول ۰/۵ مولار کلرید آهن در دمای ۸۰ درجه سانتی‌گراد با یکدیگر مخلوط شدند. این مخلوط سپس به یک‌باره به محلول سود اضافه شد تا رسوب تشکیل شود. برای اطمینان از تشکیل فاز کامل و همگن فریت منگنز-منیزیم، کار هم زدن این رسوب به مدت یک ساعت ادامه داشت. رسوب به دست آمده از واکنش، چندین بار با آب مقطر شسته شد تا یون‌های آزاد کلر و سدیم زدوده شوند. سپس رسوب‌های حاصل در دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد کاملاً خشک و درون هاون ساییده شدند تا پودر همگن و یکنواختی به دست آید. پودرها تحت فشار هیدرولیکی  $360 \text{ kg/cm}^2$  به قرص‌هایی با قطر ۹ میلی‌متر و ضخامت ۴ میلی‌متر تبدیل و در سه دمای مختلف ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد به مدت سه ساعت در اتمسفر هوا تحت عملیات تفجوشی قرار گرفتند.

الگوی پراش سنج پرتو ایکس نمونه‌ها با پراش سنج پرتو ایکس<sup>۱۵</sup> فیلیپس با لامپ مسی و با طول موج  $1/5406$  آنگستروم متعلق به شرکت کفا در تهران به‌دست آمد. فاصله بین صفحه‌ای<sup>۱۶</sup>،  $d$ ، برای پراش مرتبه اول با رابطه براگ<sup>۱۷</sup> محاسبه شد [۱۲]:

$$2d \sin\theta = \lambda \quad (2)$$

که در آن  $\theta$  زاویه پراش براگ است. ثابت شبکه،  $a$ ، از رابطه ۳

ویژگی‌های ساختاری از قبیل میانگین اندازه بلورک‌ها، ثابت شبکه و چگالی برای نمونه‌ی  $Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$  در سه دمای تف‌جوشی به‌دست آمد و در جدول ۱ فهرست شد. از جدول ۱ دیده می‌شود که میانگین اندازه بلورک‌ها با دمای تف‌جوشی افزایش می‌یابد. رابطه اندازه دانه‌ها<sup>۲۴</sup> و دمای تف‌جوشی برابر است با [۱۷]:

$$D^n - D_0^n = K_0 t \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (10)$$

که در آن  $D$  میانگین اندازه دانه‌ها بعد از تف‌جوشی،  $D_0$  اندازه دانه‌های اولیه،  $n$  مرتبه رشد دانه‌ها،  $K_0$  مقدار ثابت،  $t$  مدت زمان تف‌جوشی،  $Q$  انرژی فعال‌سازی برای فرایند رشد دانه‌ها<sup>۲۵</sup>،  $R$  ثابت جهانی گازها و  $T$  دمای تف‌جوشی است. طبق رابطه ۱۰ می‌توان نتیجه گرفت که اگر ترکیب شیمیایی و شرایط آماده‌سازی نمونه‌ها یکسان باشد، با افزایش دمای تف‌جوشی، میانگین اندازه دانه‌ها نیز افزایش می‌یابد.

همان‌طور که از جدول ۱ دیده می‌شود چگالی پرتو ایکس با افزایش دمای تف‌جوشی از ۹۰۰ به ۱۰۵۰ درجه سانتی‌گراد افزایش دارد و با افزایش دمای تف‌جوشی از ۱۰۵۰ به ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد ثابت می‌ماند، اما چگالی تجربی افزایش می‌یابد. تغییرات چگالی پرتو ایکس می‌تواند بدان معنی باشد که با رسیدن به دمای ۱۰۵۰ درجه سانتی‌گراد یون‌ها در محل مناسب در شبکه بلوری خود قرار می‌گیرند و سپس با افزایش این دما به ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد، تغییری قابل ملاحظه در ساختار بلوری از نظر جایجایی یون‌ها و ثابت شبکه اتفاق نمی‌افتد. اما علت تغییرات در چگالی تجربی و افزایش آن می‌تواند حذف فازهای ثانویه و رسیدن به دمای تف‌جوشی مناسب باشد که سبب حذف تخلخل<sup>۲۶</sup> در نمونه و افزایش چگالی می‌شود.

برای بررسی ویژگی‌های ساختاری سایر نمونه‌ها، از نمونه‌های تف‌جوش شده در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد الگوی پراش پرتو ایکس تهیه شد که نتایج آن در شکل ۳ دیده می‌شود. الگوهای پراش، ساختار اسپینل مربعی تک فاز را برای تمام نمونه‌ها تأیید می‌کند و قله‌های الگوهای پراش پرتو ایکس همه نمونه‌ها با ساختار بلوری فریت منگنز

مغناطیسی نمونه‌ها توسط دستگاه مغناطیس‌سنج گرادیان نیروی متناوب<sup>۲۳</sup> با بیشینه میدان مغناطیسی کاربرستی ۹ kOe در دمای اتاق، در دانشگاه صنعتی مالک اشتر اصفهان انجام پذیرفت. برای اندازه‌گیری دمای کوری نیز از دستگاه سنجش دمای کوری متعلق به دانشگاه صنعتی مالک اشتر اصفهان استفاده شد.

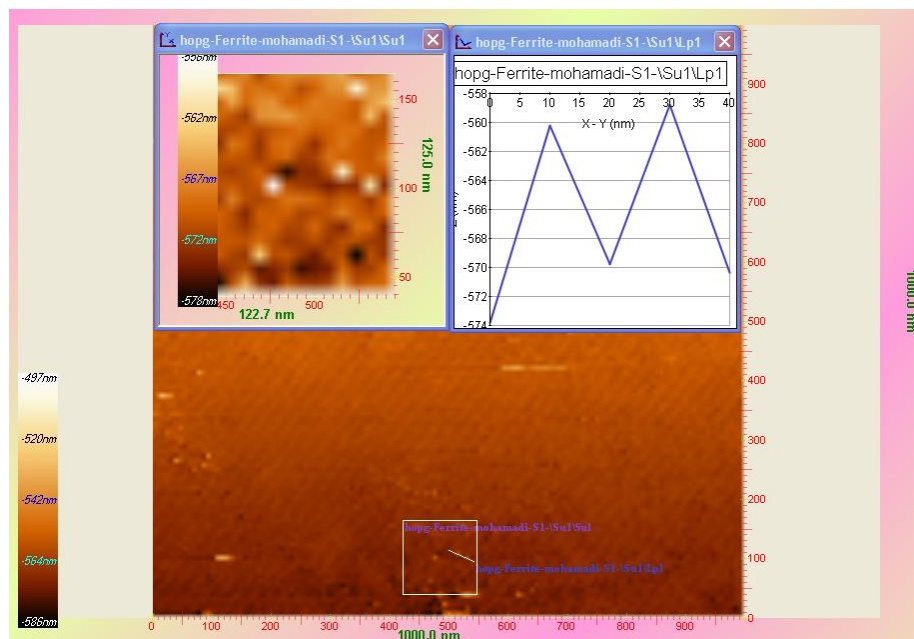
### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- بررسی‌های ساختاری

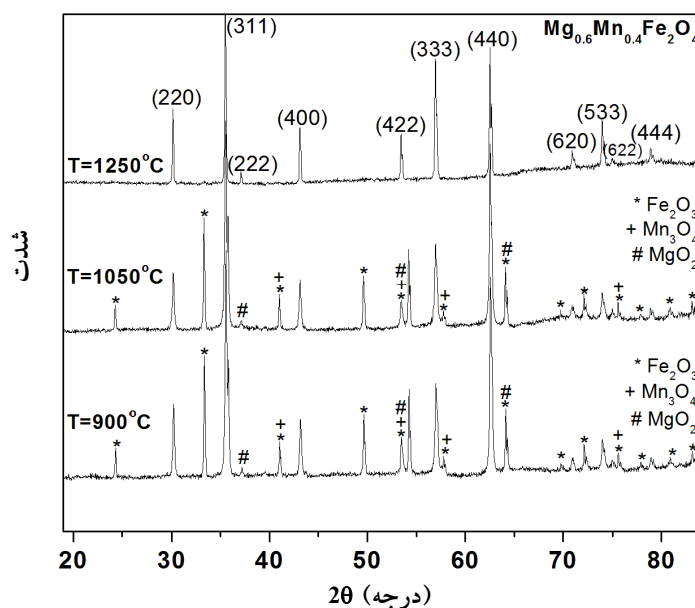
شکل ۱ تصویر میکروسکوپ تونلی روبشی از پودر به‌دست آمده برای نمونه‌ی  $Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$  را نشان می‌دهد. همان‌طور که دیده می‌شود اندازه ذرات پودرهای حاصل از روش هم‌رسوبی در حدود ۱۷ نانومتر است.

برای بررسی اثر پیش ماده نانو و تأثیر دمای تف‌جوشی برای تشکیل فاز اسپینلی، از نمونه‌ی  $Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$  در هر سه دمای تف‌جوشی ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد الگوی پراش پرتو ایکس تهیه شد که نتایج آن در شکل ۲ نمایش داده شده است. با توجه به شکل ۲ نمونه‌های تف‌جوش شده در دماهای ۹۰۰ و ۱۰۵۰ درجه سانتی‌گراد علاوه بر فاز فریت اسپینلی منگنز، مطابق با کارت اطلاعات استاندارد انجمن آزمون و مواد آمریکا (JCPDS file. 074-2403)، شامل فازهای ثانویه (JCPDS file. 073-2234)  $Fe_2O_3$  و (JCPDS file. 019-0771)  $MgO_2$  و (JCPDS file. 018-0791)  $Mn_2O_3$  نیز بودند. در این دو دما به علت پایین بودن دمای تف‌جوشی، فاز بلوری اسپینل به صورت کامل تشکیل نمی‌شود و فازهای ناخالص ثانویه وجود دارد. اما در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد این فازها از بین می‌رود و فاز اسپینل به‌صورت تک‌فاز تشکیل می‌شود. در حالی‌که برای تولید فریت اشاره شده به روش سرامیکی استاندارد و متداول، در دمای تف‌جوشی ۱۳۰۰ درجه سانتی‌گراد به ساختار تک‌فاز می‌رسند [۵، ۱۳ و ۱۶]. لذا استفاده از نانوپودرها موجب کاهش دمای تف‌جوشی به میزان ۵۰ درجه سانتی‌گراد خواهد شد.

با استفاده از الگوی پراش پرتو ایکس و روابط ۲ تا ۷، سایر



شکل ۱- (رنگی در نسخه الکترونیکی) تصویر میکروسکوپی تونلی روبشی از پودر به دست آمده برای نمونه  $Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$



شکل ۲- الگوی پراش پرتو ایکس فریت  $Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$  در سه دمای تفجوشی ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد

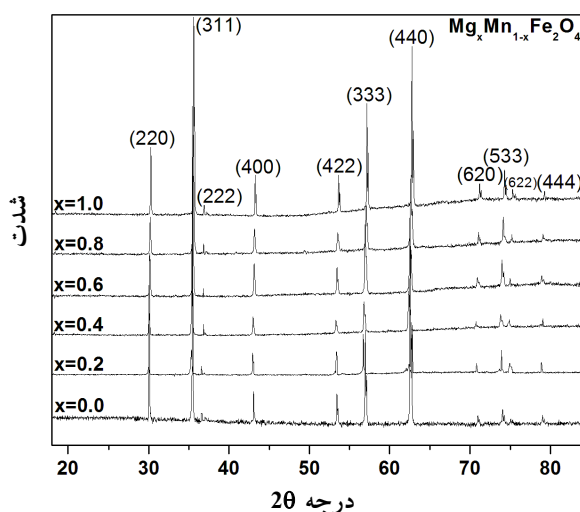
نمایش می‌دهد. با توجه به شکل، با افزایش مقدار  $x$ ، یعنی افزایش غلظت یون  $Mg^{2+}$  ثابت شبکه کاهش می‌یابد. این مسئله بخاطر اختلاف در شعاع یونی  $Mn^{2+}$  و  $Mg^{2+}$  است، زیرا با افزایش غلظت یون‌های  $Mg^{2+}$  با شعاع یونی ۰/۷۲ آنگستروم به جای یون‌های  $Mn^{2+}$  با شعاع یونی ۰/۸۲ آنگستروم شبکه

هم‌خوان است. در جدول ۲ (JCPDS file. 074-2403) اطلاعات ساختاری به دست آمده برای نمونه‌های فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد آورده شده است. شکل ۴ تغییرات ثابت شبکه بر حسب مقدار منیزیم را

جدول ۱. مقادیر میانگین اندازه بلورکها، ثابت شبکه و چگالی‌های محاسبه شده برای فریت

$Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$  در دماهای تفجوشی مختلف

چگالی تجربی ( $g/cm^3$ )	چگالی پرتو ایکس ( $g/cm^3$ )	ثابت شبکه ( $\text{\AA}$ )	میانگین اندازه بلورکها (nm)	دمای تفجوشی ( $^{\circ}C$ )
۳/۲۷	۴/۸۱	۸/۳۷	۴۳	۹۰۰
۳/۴۷	۴/۷۹	۸/۳۸	۴۵	۱۰۵۰
۴/۰۱	۴/۷۹	۸/۳۸	۶۵	۱۲۵۰



شکل ۳- الگوی پراش پرتو ایکس فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  در دمای تفجوشی  $1250^{\circ}$  درجه سانتی‌گراد

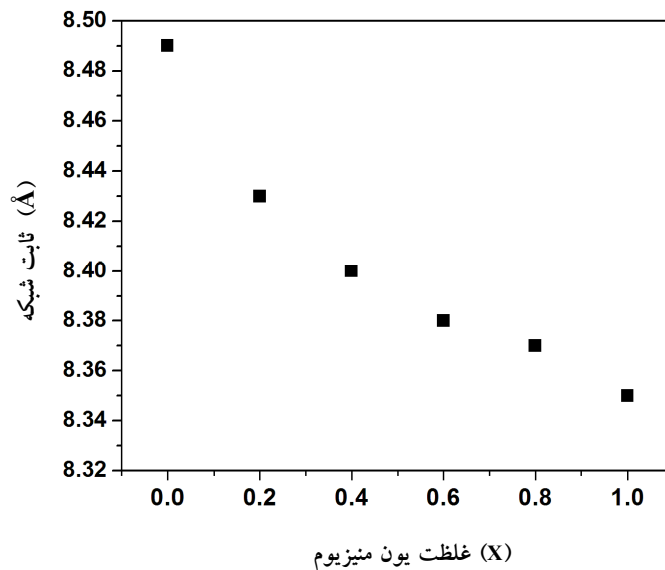
جدول ۲- مقادیر میانگین اندازه بلورکها، ثابت شبکه و چگالی نمونه‌های فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$

تفجوش شده در دمای  $1250^{\circ}$  درجه سانتی‌گراد

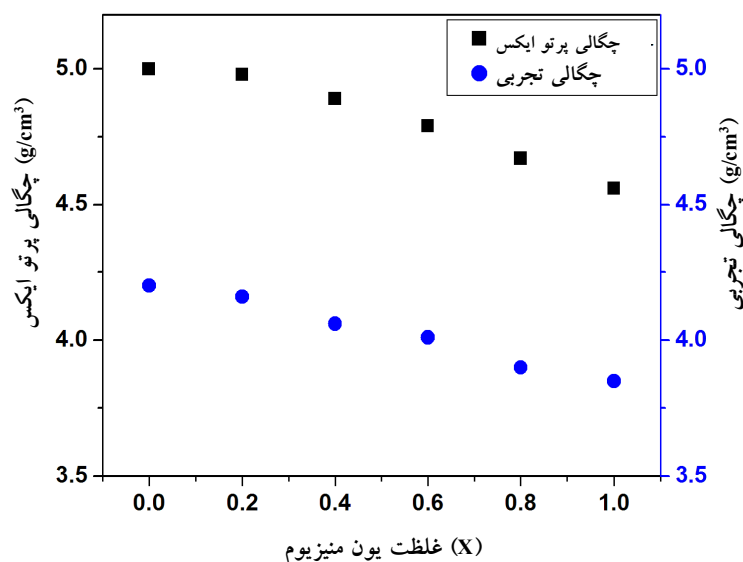
X	میانگین اندازه بلورکها (nm)	ثابت شبکه ( $\text{\AA}$ )	چگالی پرتو ایکس ( $g/cm^3$ )	چگالی تجربی ( $g/cm^3$ )
۰/۰	۷۸	۸/۴۹	۵/۰۰	۴/۲۰
۰/۲	۵۵	۸/۴۳	۴/۹۸	۴/۱۶
۰/۴	۷۵	۸/۴۰	۴/۸۹	۴/۰۶
۰/۶	۶۵	۸/۳۸	۴/۷۹	۴/۰۱
۰/۸	۶۵	۸/۳۷	۴/۶۷	۳/۹۰
۱/۰	۸۱	۸/۳۵	۴/۵۶	۳/۸۵

کاهش می‌یابند. این روند کاهش در شکل ۵ نمایش داده شده است. علت این کاهش، اختلاف فاحش بین جرم مولی یون‌های  $Mn^{2+}$  و  $Mg^{2+}$  است. جرم مولی یون  $Mn^{2+}$  برابر با

کوچک‌تر می‌شود و در نتیجه ثابت شبکه کاهش می‌یابد [۷]. چگالی‌های تجربی و پرتو ایکس نمونه‌های تفجوش شده در دمای  $1250^{\circ}$  درجه سانتی‌گراد هر دو با افزایش مقدار x،



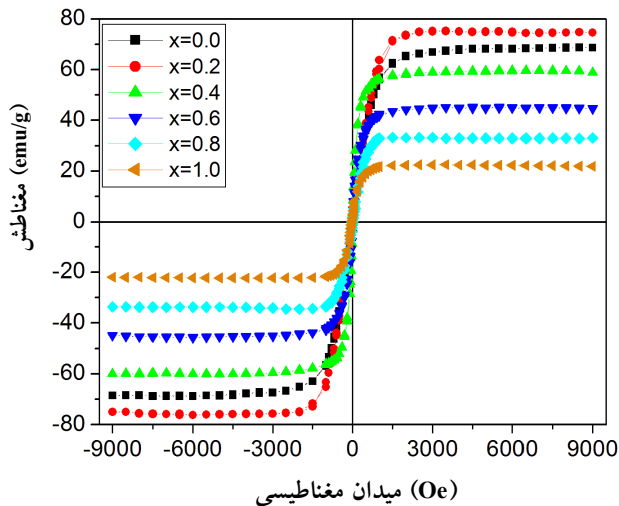
شکل ۴- نمودار تغییرات ثابت شبکه با جانشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دمای  $1250^\circ$  درجه سانتی گراد



شکل ۵- نمودار تغییرات چگالی تجربی و چگالی پرتو ایکس با جانشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دمای  $1250^\circ$  درجه سانتی گراد

دست آمده در این روش با استفاده از پیش ماده نانو، از مقادیر مشابه تولید شده به روش سرامیکی استاندارد و متداول، کم تر و تخلخل محاسبه شده بیش تر است [۵]. احتمال می رود که با مطالعه بر روی فشار مناسب، چگالی تجربی نمونه به چگالی پرتو ایکس نزدیک تر شود و تخلخل کاهش یابد. با توجه به مطالب فوق می توان نتیجه گرفت که با کنترل درصد جانشانی

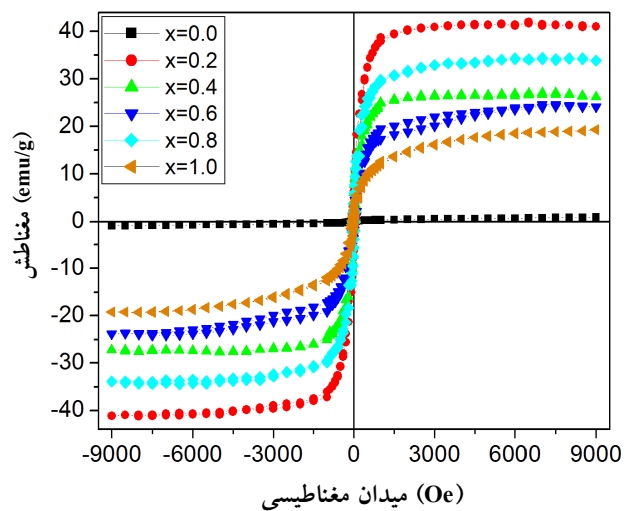
$Mg^{2+}$  برابری با  $54/938 \text{ g/mol}$  بوده در حالی که جرم مولی یون  $Mg^{2+}$  برابر با  $24/305 \text{ g/mol}$  است. لذا با افزایش یون های  $Mg^{2+}$  در شبکه، یعنی افزایش مقدار  $x$ ، چگالی ها کاهش می یابند [۷ و ۱۸]. دلیل کوچک تر بودن چگالی تجربی نسبت به چگالی پرتو ایکس، می تواند تشکیل تخلخل در حین فرایند آماده سازی و فرایند تفجوشی نمونه ها باشد [۱۹]. هم چنین چگالی های تجربی به



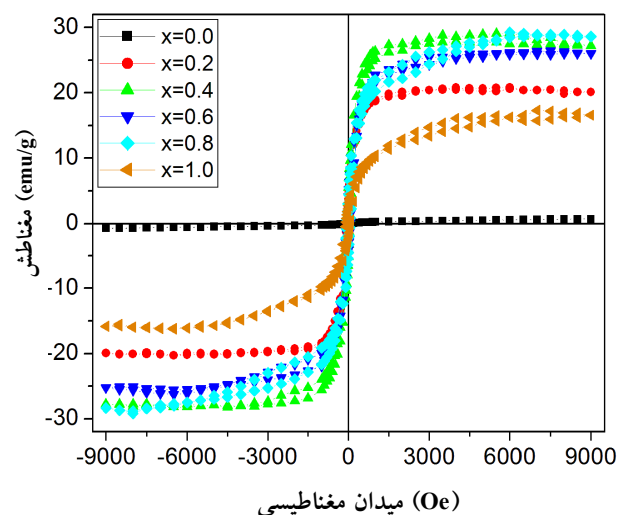
شکل ۸- نمودار تغییرات منحنی پسماند با جاننشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دمای  $1250^\circ$  درجه سانتی گراد

منحنی‌های پسماند بیانگر ویژگی مغناطیسی نرم نمونه‌ها است [۱۰، ۱۸ و ۱۹]. جدول ۳ ویژگی‌های مغناطیسی نمونه‌های فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دماهای  $900^\circ$ ،  $1050^\circ$  و  $1250^\circ$  درجه سانتی گراد را نشان می‌دهد که با استفاده از منحنی‌های پسماند آن‌ها به دست آمده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، نمونه‌های تفجوش شده در دمای  $1250^\circ$  درجه سانتی گراد مغناطش اشباع بیش تری نسبت به دو دمای تفجوشی دیگر دارند. دلیل پایین بودن مقادیر مغناطش اشباع برای نمونه  $x=0$  تفجوش شده در دماهای  $900^\circ$  و  $1050^\circ$  درجه سانتی گراد، عدم پایداری فریت  $MnFe_2O_4$  در هوا و اکسایش یون  $Mn^{2+}$  به  $Mn^{3+}$  روی سطح ذرات فریت است که منجر به تجزیه  $^{27}$  این فریت به فازهای دیگر می‌شود و خاصیت مغناطیسی و مغناطش اشباع آن به شدت کاهش خواهد یافت [۲۰].

شکل ۹ تغییرات مغناطش اشباع ترکیبات  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  بر حسب غلظت منیزیم در دمای تفجوشی  $1250^\circ$  درجه سانتی گراد را نمایش می‌دهد. برای این نمونه‌ها با افزایش غلظت منیزیم، ابتدا تا مقدار  $x=0/2$  مغناطش اشباع افزایش و سپس کاهش می‌یابد. علت این افزایش اولیه در مقدار مغناطش اشباع این است که برای مقادیر کم  $x$  تا مقدار  $0/2$ ، یون‌های  $Mg^{2+}$  ترجیحاً تمایل به اشغال جایگاه‌های A را دارند، لذا موجب



شکل ۶- نمودار تغییرات منحنی پسماند با جاننشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دمای  $900^\circ$  درجه سانتی گراد



شکل ۷- نمودار تغییرات منحنی پسماند با جاننشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دمای  $1050^\circ$  درجه سانتی گراد

یون‌های منیزیم و منگنز می‌توان ویژگی‌های ساختاری ترکیب را کنترل نمود.

### ۳-۲- بررسی منحنی پسماند مغناطیسی نمونه‌ها

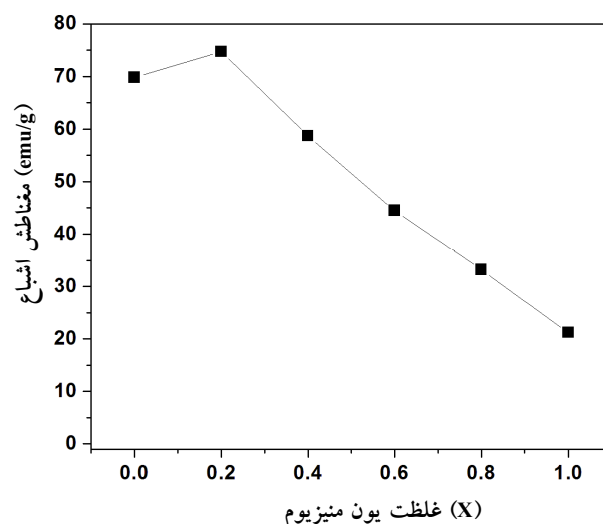
شکل‌های ۶ تا ۸ منحنی‌های پسماند نمونه‌های فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تفجوش شده در دماهای  $900^\circ$ ،  $1050^\circ$  و  $1250^\circ$  درجه سانتی گراد را نشان می‌دهند. باریک بودن



جدول ۳- ویژگی‌های مغناطیسی نمونه‌های فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  تف‌جوش شده در دماهای ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد

x	دمای تف‌جوشی (°C)	نیروی وادارندگی (Oe)	مغناطش باقی‌مانده (emu/g)	مغناطش اشباع (emu/g)	گشتاور دوقطبی مغناطیسی تجربی ( $\mu_B$ )
	۹۰۰	۳۱	۰/۰۷	۱/۳	۰/۰۵
۰/۰	۱۰۵۰	۴۵	۰/۰۴	۱/۰	۰/۰۴
	۱۲۵۰	۵	۰/۴۶	۶۹/۸	۲/۹۰
	۹۰۰	۴۷	۶/۳	۴۰/۲	۱/۶۲
۰/۲	۱۰۵۰	۵۸	۳/۷	۱۸/۹	۰/۷۶
	۱۲۵۰	۱۰	۰/۹	۷۴/۷	۳/۰۰
	۹۰۰	۵۱	۵/۶	۲۵/۸	۱/۰۰
۰/۴	۱۰۵۰	۵۲	۵/۳	۲۵/۱	۰/۹۸
	۱۲۵۰	۱۰	۳/۰	۵۸/۷	۲/۳۰
	۹۰۰	۵۸	۲/۷	۲۵/۶	۰/۹۷
۰/۶	۱۰۵۰	۵۷	۴/۰	۲۶/۲	۱/۰۰
	۱۲۵۰	۱۱	۱/۸	۴۴/۵	۱/۷۰
	۹۰۰	۶۰	۵/۸	۳۴/۰	۱/۲۵
۰/۸	۱۰۵۰	۶۸	۴/۴	۲۸/۸	۱/۰۶
	۱۲۵۰	۱۶	۱/۱	۳۳/۲	۱/۲۰
	۹۰۰	۶۳	۲/۳	۲۰/۶	۰/۷۴
۱/۰	۱۰۵۰	۸۵	۲/۳	۱۷/۶	۰/۶۳
	۱۲۵۰	۲۳	۱/۶	۲۱/۲	۰/۸۰

افزایش مقدار گشتاور دوقطبی مغناطیسی در جایگاه‌های B و کاهش آن در جایگاه‌های A می‌شود و در نتیجه گشتاور دوقطبی مغناطیسی شبکه، که از اختلاف گشتاور دوقطبی مغناطیسی دو جایگاه‌های A و B حاصل می‌شود، افزایش یافته و در نتیجه مغناطش اشباع نیز افزایش می‌یابد. اما هنگامی که غلظت یون‌های غیرمغناطیسی  $Mg^{2+}$  از x برابر با ۰/۲ بیش‌تر می‌شود، این یون‌ها تمایل به اشغال جایگاه‌های B را خواهند داشت که موجب کاهش گشتاور دوقطبی مغناطیسی شبکه و در نتیجه کاهش مغناطش اشباع می‌شوند [۵]. همان‌طور که می‌دانیم یون  $Mn^{2+}$  دارای گشتاور دوقطبی مغناطیسی  $5 \mu_B$  است در حالی که یون  $Mg^{2+}$  دارای گشتاور دوقطبی مغناطیسی صفر است. بنابراین با افزایش غلظت یون‌های  $Mg^{2+}$  در شبکه فریت، انتظار می‌رود خاصیت مغناطیسی و



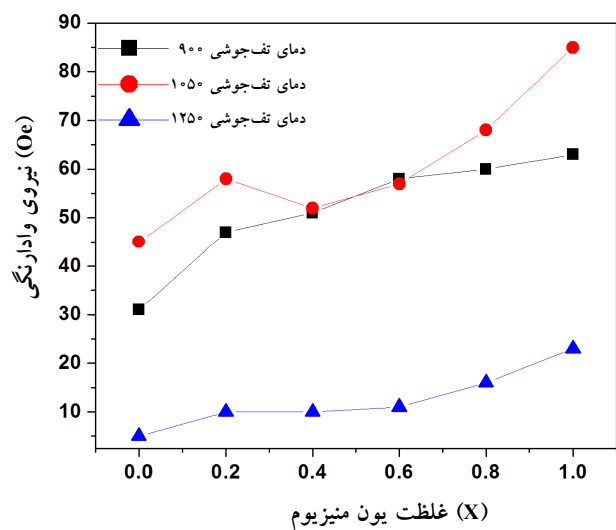
شکل ۹- منحنی تغییرات  $M_s$  با جانشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  در دمای تف‌جوشی ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد

با مشاهده دو شکل ۹ و ۱۰، نمونه‌هایی که در آن  $x$  دارای مقادیر ۰/۲، ۰/۴، ۰/۶ است و در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد تف‌جوش داده شدند، دارای کمترین نیروی وادارندگی و بیشترین مغناطش اشباع‌اند. لذا با توجه به گزارش‌های قبلی، این نمونه‌ها برای کاربردهای هایپرترمیا و ساخت جابجاگرهای فازی بسیار مناسب‌اند [۵-۷، ۹ و ۱۰]. برای درک بهتر این موضوع در شکل‌های ۱۱ تا ۱۳ مقایسه‌ای بین ویژگی‌های هر نمونه در دماهای متفاوت صورت گرفته است. در هر سه شکل مشاهده می‌شود که در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد نیروی وادارندگی نمونه‌ها به شدت افت می‌کند و به صفر نزدیک می‌شود و مغناطش اشباع نیز افزایش چشم‌گیری دارد.

با بررسی منحنی‌های پسماند و سایر منحنی‌های رسم شده مشاهده می‌شود که دمای بهینه برای تف‌جوشی نانوپودرهای فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد است و در این دما مغناطش اشباع برای همه نمونه‌ها بیشترین مقدار را داراست. با توجه به مطالب یاد شده در بالا می‌توان نتیجه گرفت که با کنترل درصد جانشانی یون‌های منیزیم و منگنز می‌توان ویژگی‌های مغناطیسی ترکیب را نیز کنترل نمود.

### ۳-۳- نتایج مربوط به دمای کوری

نقطه کوری دمایی است که در آن اثرات جفت‌شدگی اسپینی و برهم‌کنش‌های تبادلی، توسط اثر اختلالی حرکت گرمایی تصادفی<sup>۳</sup>، از بین می‌رود و فریت از حالت فرومغناطیس (فری‌مغناطیس) به حالت پارامغناطیس تغییر می‌کند. تغییرات دمای کوری ترکیبات فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  بر حسب غلظت منیزیم در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد با استفاده از تکنیک ترازوی فارادی<sup>۳۱</sup> به دست آمده و در شکل ۱۴ نشان داده شده است. همان‌طور که دیده می‌شود با افزایش غلظت یون منیزیم دمای کوری نمونه‌ها نیز افزایش می‌یابد. با افزایش غلظت یون منیزیم، که دارای شعاع یونی کوچک‌تر نسبت به یون منگنز است، فاصله‌های بین یونی در ساختار بلوری اسپینل نیز کاهش



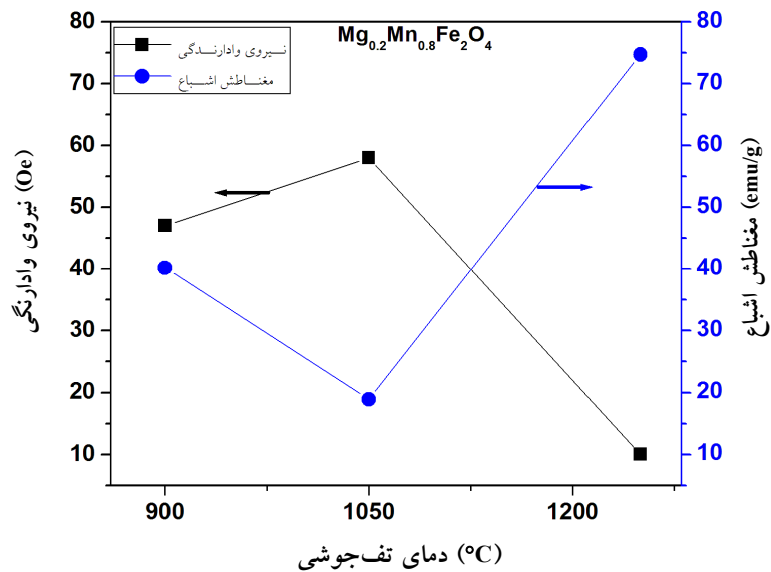
شکل ۱۰- منحنی تغییرات  $H_C$  با جانشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  در سه دمای تف‌جوشی ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد

مغناطش اشباع کاهش یابد [۲۱]. البته مغناطش اشباع به دست آمده در این روش با استفاده از پیش ماده نانو، در مقایسه با مغناطش اشباع نمونه‌های مشابه تولید شده به روش سرامیکی استاندارد و متداول، برای مقادیر  $x$  برابر با صفر و ۰/۲ بیش‌تر و برای سایر مقادیر کم‌تر است [۵].

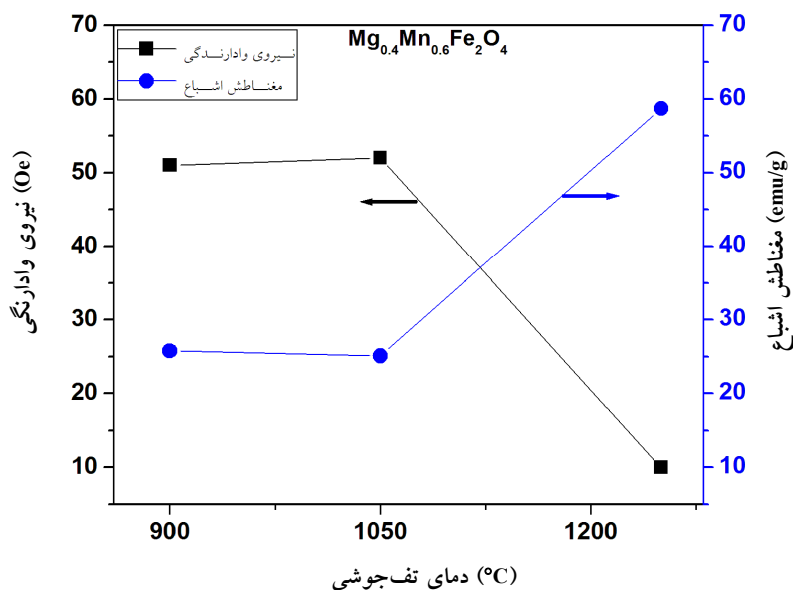
شکل ۱۰ منحنی تغییرات نیروی وادارندگی،  $H_C$ ، بر حسب  $x$  در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  را در سه دمای تف‌جوشی اشاره شده نمایش می‌دهد. از شکل ۱۰ به وضوح مشاهده می‌شود که برای ترکیبات با فرمول شیمیایی  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  با افزایش دمای تف‌جوشی به ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد نیروی وادارندگی به شدت کاهش می‌یابد و به صفر نزدیک می‌شود. از طرف دیگر با افزایش غلظت یون‌های  $Mg^{2+}$ ، نیروی وادارندگی نیز افزایش می‌یابد. افزایش نیروی وادارندگی بر خلاف کاهش مغناطش اشباع با افزایش غلظت یون منیزیم در دمای تف‌جوشی ۱۲۵۰ درجه سانتی‌گراد، تطابق خوبی با رابطه براون<sup>۲۸</sup> دارد [۲، ۱۷ و ۲۲]:

$$H_C = K_I(\mu_0 M_S)^{-1} \quad (11)$$

که در آن  $K_I$  ثابت ناهمسان‌گردی<sup>۲۹</sup> و  $\mu_0$  ضریب نفوذپذیری فضای آزاد است.



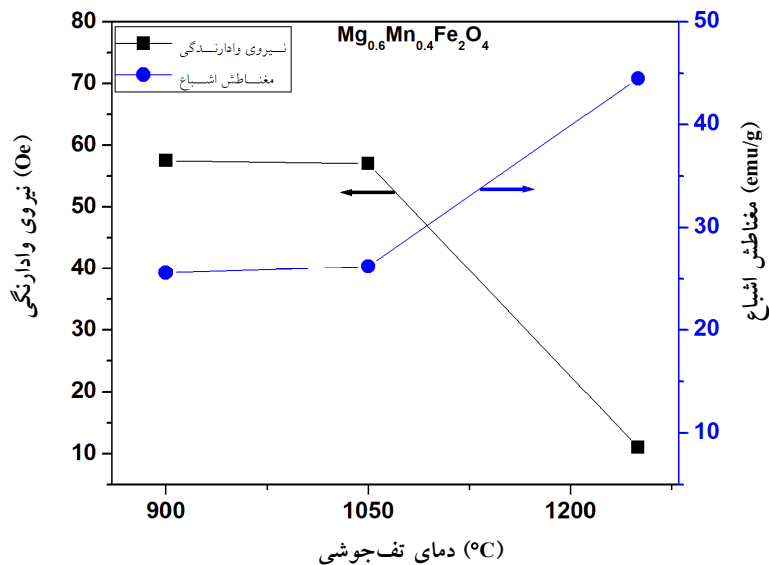
شکل ۱۱- روند تغییرات نیروی وادارندگی و مغناطش اشباع برای نمونه  $x=0/2$  در سه دمای تفجوشی ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی گراد



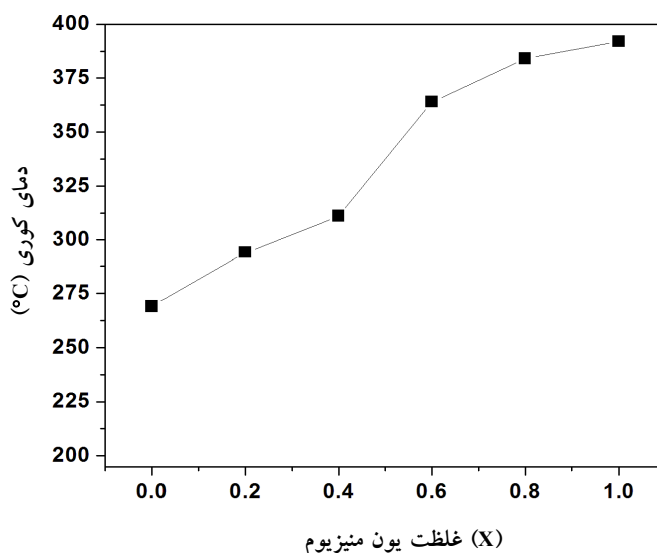
شکل ۱۲- روند تغییرات نیروی وادارندگی و مغناطش اشباع برای نمونه  $x=0/4$  در سه دمای تفجوشی ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی گراد

علت افزایش دمای کوری به خاطر افزایش یون‌های دیامغناطیسی  $Mg^{2+}$  در شبکه فریت است، زیرا افزایش غلظت یون‌های دیامغناطیسی مانند  $Mg^{2+}$ ، موجب تغییر جهت‌گیری اسپینی  $33$  از نوع یافت-کیتل  $34$  به نوع نیل  $35$  می‌شود و چون انرژی مورد نیاز برای برهم‌زدن جهت‌گیری اسپینی در نوع نیل بیش‌تر از انرژی مورد نیاز در نوع یافت-کیتل است لذا دمای

می‌یابد. لذا ثابت شبکه که به‌طور مستقیم متناسب با فاصله بین یونی است، کاهش می‌یابد. این کاهش موجب افزایش قدرت برهم‌کنش تبادل  $33$  بین جایگاه‌های A و B می‌شود [۲۳]. بنابراین انرژی گرمایی مورد نیاز برای برهم‌زدن هم‌جهتی و نظم‌گشتاورهای مغناطیسی شبکه فریت افزایش و در نتیجه دمای کوری افزایش خواهد یافت. از سوی دیگر



شکل ۱۳- روند تغییرات نیروی وادارندگی و مغناطش اشباع برای نمونه  $x = 0.6$  در سه دمای تفجوشی ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی گراد



شکل ۱۴- منحنی تغییرات دمای کوری با جانشانی منیزیم در فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  در دمای تفجوشی ۱۲۵۰ درجه سانتی گراد

نانومتر به دست آمد. سپس نانوپودرها تحت فشار هیدرولیکی به قرص تبدیل و درون کوره در دماهای ۹۰۰، ۱۰۵۰ و ۱۲۵۰ درجه سانتی گراد به مدت سه ساعت تفجوش شدند. الگوهای پراش پرتو ایکس برای نمونه  $Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$  نشان می دهد که ساختار اسپینلی تکفاز در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی گراد شکل می گیرد. با کنترل درصد جانشانی یون های منیزیم و منگنز می توان ویژگی های ساختاری و مغناطیسی ترکیب را کنترل

کوری افزایش می یابد [۵ و ۲۴].

#### ۴- نتیجه گیری

در این پژوهش نانوپودرهای فریت منگنز-منیزیم با فرمول ترکیبی  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  که در آن  $x$  از ۰ تا ۱ با گام های ۰/۲ تغییر می کند، به روش هم رسوبی ساخته شدند و اندازه نانوذرات از تصویر میکروسکوپ تونلی روبشی حدود ۱۷

دمای تفجوشی  $1250^\circ$  درجه سانتی‌گراد و ترکیبات  $Mg_{0.6}Mn_{0.4}Fe_2O_4$  و  $Mg_{0.4}Mn_{0.6}Fe_2O_4$ ،  $Mg_{0.2}Mn_{0.8}Fe_2O_4$  به علت دارا بودن نیروی وادارندگی کم و مغناطش اشباع بالا به صورت هم‌زمان، بهترین ویژگی‌های مغناطیسی را برای کاربردهای هایپرترمیا و ادوات مایکروویو مانند جابجاگرهای فازی و سیرکولاتورها فراهم می‌کنند.

نمود. برای ترکیبات فریت  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$ ، با افزایش دمای تفجوشی از  $900^\circ$  به  $1250^\circ$  درجه سانتی‌گراد نیروی وادارندگی Hc به شدت کاهش یافت و به صفر نزدیک شد و مغناطش اشباع  $M_s$  و نیز دمای کوری Tc افزایش پیدا کرد. هم‌چنین برای ترکیبات تفجوش شده در دمای  $1250^\circ$  درجه سانتی‌گراد، با افزایش غلظت منیزیم نیروی وادارندگی افزایش، مغناطش اشباع کاهش و دمای کوری افزایش یافت.

## واژه‌نامه

- |                             |   |                                    |
|-----------------------------|---|------------------------------------|
| 1. tetrahedral site         | 13. coprecipitation                         | 24. grain size                     |
| 2. octahedral site          | 14. scanning tunneling microscope           | 25. grain growth activation energy |
| 3. normal spinel structure  | 15. X-ray diffraction                       | 26. pores                          |
| 4. inverse spinel structure | 16. interplanar spacing                     | 27. dissociation                   |
| 5. mixed ferrite            | 17. Bragg's relation                        | 28. Brown's relation               |
| 6. coercivity               | 18. Miller indices                          | 29. anisotropy constant            |
| 7. Curie temperature        | 19. mean crystallite size                   | 30. random thermal motion          |
| 8. eddy current losses      | 20. Scherrer's equation                     | 31. Faraday balance technique      |
| 9. phase shifter            | 21. full width at half-maximum              | 32. exchange interaction           |
| 10. circulator              | 22. instrumental broadening                 | 33. spin ordering                  |
| 11. isolator                | 23. alternating force gradient magnetometer | 34. Yafet-Kittel                   |
| 12. hyperthermia            |   | 35. Neel                           |

## مراجع

- Baba, P.D., Gyorgy, E.M. and Schnettler, F.J., "Two-Phase Ferrites for High-Speed Switching", *Journal of Applied Physics*, Vol. 34, pp. 1125-1126, 1963.
- Venkataram, C., Sathishkumar, G. and Sivakumar, K., "Effect of Cation Distribution on the Structural and Magnetic Properties of Nickel Substituted Nanosized Mn-Zn Ferrites Prepared by Co-Precipitation Method", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 322, pp. 230-233, 2010.
- Cullity, B.D. and Graham, C.D., *Introduction to Magnetic Materials*, 2<sup>nd</sup> Edition ed., John Wiley & Sons Inc., Hoboken, New Jersey, 2009.
- Singh, M. and Sud, S.P., "Mg-Mn-Al Ferrites for High Frequency Applications", *Modern Physics Letters B*, Vol. 14, pp. 531-537, 2000.
- Singh, M., "A Comparative Study of the Electrical and the Magnetic Properties and Mössbauer Studies of Normal and Hot Pressed  $Mg_xMn_{1-x}Fe_2O_4$  Ferrites", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 299, pp. 397-403, 2006.
- Mansour, S.F. and Elkestawy, M.A., "A Comparative Study of Electric Properties of Nano-Structured and Bulk Mn-Mg Spinel Ferrite", *Ceramics International*, Vol. 37, pp. 1175-1180, 2011.
- Khot, V.M., Salunkhe, A.B., Phadate, M.R., Thorat, N.D. and Pawar, S.H., "Low-Temperature Synthesis of  $Mn_xMg_{1-x}Fe_2O_4$  ( $x=0-1$ ) Nanoparticles: Cation Distribution, Structural and Magnetic Properties", *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 46, pp. 055303, 2013.
- Pardavi-Horvath, M., "Microwave Applications of Soft Ferrites", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 215-216, pp. 171-183, 2000.
- Apostolov, A.T., Apostolova, I.N. and Wesselinova, J.M., "MO.Fe2O3 Nanoparticles for Self-Controlled Magnetic Hyperthermia", *Journal of Applied Physics*, Vol. 109, pp. 083939, 2011.
- Iftikhar, A., Islam, M.U., Awan, M.S., Ahmad, M., Naseem, S. and Asif Iqbal, M., "Synthesis of Super Paramagnetic Particles of  $Mn_{1-x}Mg_xFe_2O_4$  Ferrites for Hyperthermia Applications", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 601, pp. 116-119, 2014.
- Manouchehri, S., Yousefi, M.H., Mozaffari, M. and Amighian, J., "Preparation of Superparamagnetic of  $Co_{0.5}Zn_{0.5}Fe_2O_4$  at Room Temperature by Co-precipitation Method and Investigation of Its

- Physical Properties", *International Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, Vol. 6, pp. 15-22, 2010.
12. Cullity, B.D., *Elements Of X Ray Diffraction*, Addison-Wesley Publishing Company Inc, Massachusetts, 1956.
  13. Sharma, S.K., Kumar, R., Kumar, S., Siva Kumar, V.V., Knobel, M., Reddy, V.R., Banerjee, A. and Singh, M., "Magnetic Study of  $Mg_{0.95}Mn_{0.05}Fe_2O_4$  Ferrite Nanoparticles", *Solid State Communications*, Vol. 141, pp. 203-208, 2007.
  14. Smit, J. and Wijn, H.P.J., *Ferrites*, John Wiley, New York, 1959.
  15. Kumar, G., Kanthwal, M., Chauhan, B.S. and Singh, M., "Cation Distribution in Mixed Mg-Mn Ferrite Systems from X-ray Diffraction Technique and Saturation Magnetization", *Indian Journal of Pure & Applied Physics*, Vol. 44, pp. 930-934, 2006.
  16. Singh, M. and Sud, S.P., "Controlling the Properties of Magnesium-Manganese Ferrites", *Materials Science and Engineering: B*, Vol. 83, pp. 180-184, 2001.
  17. Li, L.-Z., Yu, Z., Lan, Z.-W., Sun, K. and Guo, R.-D., "Effects of Annealing Temperature on the Structure and Static Magnetic Properties of NiZnCo Ferrite Thin Films", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 368, pp. 8-11, 2014.
  18. Amer, M.A., Meaz, T.M., Attalah, S.S. and Ghoneim, A.I., "Structural and Magnetic Characterization of the  $Mg_{0.2-x}Sr_xMn_{0.8}Fe_2O_4$  Nanoparticles", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 363, pp. 60-65, 2014.
  19. Lodhi, M.Y., Mahmood, K., Mahmood, A., Malik, H., Warsi, M.F., Shakir, I., Asghar, M. and Khan, M.A., "New  $Mg_{0.5}Co_xZn_{0.5-x}Fe_2O_4$  Nano-Ferrites: Structural Elucidation and Electromagnetic Behavior Evaluation", *Current Applied Physics*, Vol. 14, pp. 716-720, 2014.
  20. Lungu, A., Malaescu, I., Marin, C.N., Vlazan, P. and Sfirloaga, P., "The Electrical Properties of Manganese Ferrite Powders Prepared by Two Different Methods", *Physica B: Condensed Matter*, Vol. 462, pp. 80-85, 2015.
  21. Mansour, S.F., "Structural and Magnetic Investigations of Sub-Nano Mn-Mg Ferrite Prepared by Wet Method", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 323, pp. 1735-1740, 2011.
  22. Ahmed, M.A., "The Effect of Urea-to-Nitrates Ratio on the Morphology and Magnetic Properties of  $Mn_{0.8}Mg_{0.2}Fe_2O_4$ ", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 322, pp. 763-766, 2010.
  23. Chougule, P.K., Kumbhar, S.S., Kolekar, Y.D. and Bhosale, C.H., "Enhancement in Curie Temperature of Nickel Substituted Co-Mn ferrite", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 372, pp. 181-186, 2014.
  24. Yafet, Y. and Kittel, C., "Antiferromagnetic Arrangements in Ferrites", *Physical Review*, Vol. 87, pp. 290-294, 1952.