

بررسی تشکیل فازها، خواص مغناطیسی و ریزساختار نانوذرات نیکل فریت

سنتز شده با سل - ژل خود احتراقی

سمیه اعلم الهدی*، سید محمد میر کاظمی، طاهره شاه جویی و نیلوفر بنویدی

دانشکده مهندسی مواد و متالورژی، دانشگاه علم و صنعت ایران

(دریافت مقاله: ۱۳۹۴/۰۳/۱۶ - دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۵/۰۷/۱۰)

چکیده - در این پژوهش نانوذرات نیکل فریت به روش سل-ژل خود احتراقی سنتز شدند و تأثیر دمای کلسیناسیون بر تشکیل فازها، خواص مغناطیسی و ریزساختار نانوذرات نیکل فریت سنتز شده با استفاده از پراش پرتو ایکس، مغناطومتر نمونه ار تعاشی و میکروسکوپ الکترونی روبشی بررسی شد. همچنین بر روی نتایج پراش پرتو ایکس آنالیز کمی صورت گرفت. بررسی های ریزساختاری و محاسبه اندازه بلورکها تشکیل نانوذرات را نشان داد. الگوهای پراش پرتو ایکس نشان داد که محصول احتراق شامل نیکل فریت، هماتیت، FeNi_3 ، NiO است. با انجام کلسیناسیون، FeNi_3 حذف شد و مقدار NiO و هماتیت با تغییر دمای کلسیناسیون تغییر کرد. مغناطش اشباع با کلسیناسیون در دمای ۶۰۰ درجه سانتی گراد از ۳۷emu/g به ۳۰emu/g کاهش یافت که به دلیل تجزیه فاز مغناطیسی FeNi_3 و افزایش مقدار فاز آنتی فرومغناطیسی هماتیت است. میدان پسماندزدا نیز افزایش پیدا کرد که می تواند به دلیل افزایش نسبی مقدار فاز نیکل فریت و حذف فاز FeNi_3 باشد. مقدار مغناطش اشباع در نمونه کلسینه شده در دمای ۱۰۰۰ درجه سانتی گراد به دلیل واکنش بین هماتیت و اکسید نیکل و افزایش درصد نیکل فریت به مقدار ۴۲emu/g افزایش یافت و نیروی پسماندزدا مغناطیسی تا ۱۲۷۰e کاهش یافت که می تواند به دلیل افزایش اندازه ذرات و ایجاد ذرات مغناطیسی چند سامان باشد.

واژه های کلیدی: خواص مغناطیسی، سل - ژل خود احتراقی، نیکل فریت.

Evaluating Phase Constituents, Magnetic Properties and Microstructure of Nickel Ferrite Nanoparticles Synthesized by Sol-Gel Auto-Combustion

S. Alamolhoda*, S. M. Mirkazemi, T. Shahjooyi and N. Benvidi

Department of Metallurgy and Materials Engineering, Iran University of Science & Technology (IUST), Tehran, Iran

Abstract: In this research, nickel ferrite nanoparticles were synthesized by sol-gel auto-combustion route, and the effect of calcination temperature on phase constituents, magnetic properties and microstructure of the synthesized nanoparticles was evaluated using X-ray Diffraction (XRD), Vibrating Sample Magnetometer (VSM) and Scanning Electron Microscopy (SEM). XRD results were submitted to quantitative analysis. Microstructural studies and crystallite size calculations showed formation of nanoparticles. XRD results showed that the combustion product consisted of NiFe_2O_4 , $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, NiO , and FeNi_3 phases. FeNi_3 was eliminated by calcination, and the amounts of NiO and $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ were modulated by changing in calcination temperature. Saturation magnetization changed from 37emu/g in combustion product to 30emu/g by calcination at 600°C, due to decomposition of FeNi_3 magnetic phase and formation of higher amount of antiferromagnetic hematite phase. Also, the

*: مسئول مکاتبات، پست الکترونیکی: alamolhoda@iust.ac.ir

coercivity values increased, that could be due to increasing the amount of nickel ferrite phase and eliminating FeNi₃ phase. Saturation magnetization reached to 43emu/g in calcinated sample at 1000°C due to the reaction between hematite and NiO phases that led to formation of higher amount of nickel ferrite to 43emu/g. Coercivity value dropped out to 127Oe by calcination at 1000°C, the reason of which could be increasing of particle size and formation of multi domain magnetic particles.

Keywords: *Magnetic Properties, Sol-Gel Auto-Combustion, Nickel Ferrite.*

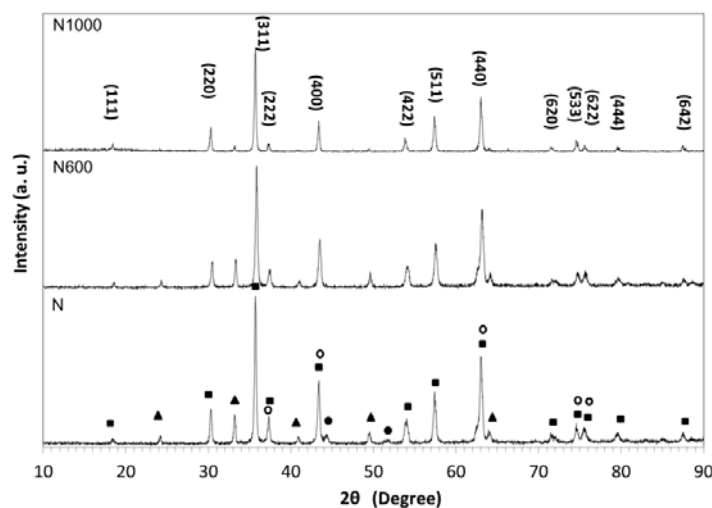
۱- مقدمه

نیکل فریت با ساختار اسپینلی معکوس یکی از فریت‌های مهم است که به‌عنوان ماده مغناطیسی نرم مورد استفاده قرار می‌گیرد. در این ماده اتم‌های اکسیژن یک ساختمان بلوری به هم پیوسته را تشکیل می‌دهند و کاتیون‌های Fe^{3+} در جایگاه‌های چهار وجهی هستند، در حالی که نیمی از جایگاه‌های هشت وجهی با یون‌های Ni^{2+} و نیم دیگر با یون‌های Fe^{3+} اشغال می‌شوند. به‌دلیل مقاومت الکتریکی بالای نیکل فریت، جریان‌های گردابی که با میدان‌های مغناطیسی متناوب همراه هستند، محدود می‌شوند و به همین دلیل این آلیاژ در کاربردهای فرکانس بالا قابل استفاده است [۱-۳]. به علاوه نانوذرات نیکل فریت در کاربردهای دیگری از جمله حسگرهای گاز و رطوبت، تصویربرداری تشدید مغناطیسی (MRI)، سرمایش مغناطیسی و ... قابل استفاده هستند [۴-۶]. از آنجا که خواص، اندازه ذرات، توزیع اندازه ذرات، مورفولوژی، خلوص و درجه بلورینگی نانوذرات به روش سنتز آنها بسیار وابسته است، روش فرآوری این مواد از اهمیت بسیاری برخوردار است [۱]. از روش‌هایی که برای تولید نانوذرات به‌کار می‌رود می‌توان به هم رسوبی، فرایند هیدروترمال، آسیاکاری، میکروامولسیون، سل-ژل و سل-ژل احتراقی اشاره کرد [۷-۱۲]. از مزایای روش سل-ژل احتراقی ارزان بودن، فرایند آماده‌سازی ساده و تولید ذراتی یکنواخت با ابعاد نانومتری است [۱]. تحقیقاتی در زمینه سنتز ذرات نیکل فریت به روش سل-ژل احتراقی وجود دارد که در آن تشکیل نانوذرات نیکل فریت مشاهده شده است. ترکیب فازها در محصول احتراق (با استفاده از نیترات‌های فلزی و سیتریک اسید به‌عنوان مواد اولیه) شامل فازهای هماتیت و نیکل فریت گزارش شده و با افزایش دما تا ۱۰۰۰ درجه سانتی‌گراد تشکیل نیکل فریت تک فاز گزارش شده است. البته به‌نظر

می‌رسد با توجه به کیفیت پایین الگوهای پراش پرتو ایکس در این گزارش‌ها احتمال مشاهده فازهای با درصدهای کم نبوده است [۱۳ و ۱۴]. در این تحقیقات تأثیر دمای کلسیناسیون بر مقادیر فازهای تشکیل شده همچنین خواص مغناطیسی محصول در دماهای مختلف بررسی نشده است. تحقیقات انجام شده اخیر حضور فازهای $FeNi_3$ و NiO را هم در کنار این فازها نشان داده است [۱۲ و ۱۵]. در تحقیقات گذشته تلاش بر این بوده که با تغییر درصد نسبت سیتریک اسید به نیترات‌های فلزی فازهای جانبی در محصول احتراق به حداقل برسند [۱۵]. همچنین تلاش‌هایی نیز برای حذف فازهای جانبی و کاهش اندازه ذرات به کمک سورفکتانت ستیل تری متیل آمونیوم بروماید^۱ (CTAB) صورت گرفت [۱۲]. بررسی‌ها نشان دارد که با تغییر این مقادیر هر چند فازهای جانبی حذف نمی‌شوند، ولی تا حدی مقادیر آنها تغییر می‌کند. همچنین اثر دمای کلسیناسیون بر روند تغییرات فازی و خواص مغناطیسی نمونه بررسی نشد. هدف از این پژوهش بررسی حضور ترکیب بین فلزی $FeNi_3$ و دیگر فازهای جانبی تشکیل شده در فرایند احتراق و مراحل بعدی کلسیناسیون و تأثیر آنها بر روی خواص مغناطیسی محصول نهایی بوده است. در این پژوهش سنتز نانوذرات نیکل فریت با روش سل-ژل خود احتراقی انجام شده و اثر دمای کلسیناسیون بر نوع و مقدار فازهای تشکیل شده و خواص غناطیسی محصول در دماهای مختلف مورد بحث و بررسی قرار گرفته است.

۲- مواد و روش تحقیق

برای سنتز نیکل فریت از مواد اولیه آهن نیترات $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ ، نیکل نیترات $Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ و سیتریک اسید $C_6H_8O_7$ با خلوص بالای ۹۹ درصد شرکت مرک آلمان استفاده شد. مقدار



شکل ۱- الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌های N، N۶۰۰ و N۱۰۰۰. (○: NiO، ●: FeNi₂، ▲: α-Fe₂O₃ و ■: NiFe₂O₄)

شد. الگوهای پراش پرتو ایکس با استفاده از روش ریتولد به کمک نرم افزار MAUD (material analysis using diffraction) [۱۶] آنالیز کمی شدند. اندازه متوسط بلورک‌ها در نمونه‌های کلسینه شده از رابطه شرر [۱۷] محاسبه شد:

$$D = K\lambda / h \sqrt{\cos \theta} \quad (1)$$

که در آن D اندازه متوسط بلورک‌ها، K ثابت شرر، λ طول موج پرتوی ایکس، h √ cos θ عرض پیک در نصف ارتفاع پیک برحسب رادیان و θ نصف زاویه محل پیک است [۱۷]. جهت بررسی خواص مغناطیسی از دستگاه VSM مغناطومتر نمونه ارتعاشی مدل MDK6 شرکت مغناطیس دقیق کویر استفاده شده است. اندازه‌گیری خواص مغناطیسی در دمای اتاق تحت میدان اعمالی ۱/۵ تسلا انجام شده است و برای بررسی ریزساختار (اندازه، شکل و توزیع اندازه ذرات) پودرهای تهیه شده از میکروسکوپ الکترونی روبشی مدل VEGAII TESCAN استفاده شد.

۳- نتایج و بحث

در شکل (۱) و جدول ۱ به ترتیب الگوی پراش پرتو ایکس نمونه‌ها و مقادیر تقریبی فازهای مختلف نشان داده شده است. در نمونه N فاز اسپینل مربوط به ساختار نیکل فریت، پیک‌های

۲/۶۵ گرم نیکل نیترات به همراه ۷/۳۵ گرم آهن نیترات و ۵/۲۵ گرم سیتریک اسید به ۵۰ میلی‌لیتر آب مقطر اضافه شد و به‌وسیله یک همزن مغناطیسی با سرعت متوسط ۳۰۰ دور بر دقیقه و تحت دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد هم زده شد و با افزودن آمونیاک pH محلول به ۷ رسانده شد. با حرارت دهی سل در دمای ۹۰ درجه سانتی‌گراد سل به ژل تبدیل شد. ژل به‌دست آمده با استفاده از یک گرمکن الکتریکی برای خروج آب باقی‌مانده و مواد فرار درون ژل حرارت داده شد و در نهایت پودر حاصل از احتراق خود پیش رونده به‌صورت خاکستر متخلخل باقی ماند. نمونه‌ها در دماهای ۶۰۰ درجه سانتی‌گراد و ۱۰۰۰ درجه سانتی‌گراد با نرخ حرارت دهی ۱۰ درجه سانتی‌گراد بر دقیقه به مدت دو ساعت کلسینه شدند. سپس فازهای تشکیل شده و خواص مغناطیسی و مورفولوژی نمونه‌ها قبل از کلسیناسیون (خاکستر احتراق) و بعد از آن بررسی شد. خاکستر حاصل از احتراق، N و نمونه‌های کلسینه شده در دماهای ۶۰۰ و ۱۰۰۰ درجه سانتی‌گراد به ترتیب N۶۰۰ و N۱۰۰۰ نام‌گذاری شدند. به‌منظور شناسایی فازهای موجود در نمونه‌های تهیه شده از دستگاه پراش پرتو ایکس مدل X-Pert Philips مجهز به تولید کننده پرتو Cu Ka دارای منوکروماتور با ولتاژ شتاب دهنده ۴۰ کیلوولت و جریان ۳۰ میلی‌آمپر استفاده

جدول ۱- مقادیر تقریبی فازهای مختلف محاسبه شده با نرم افزار MAUD

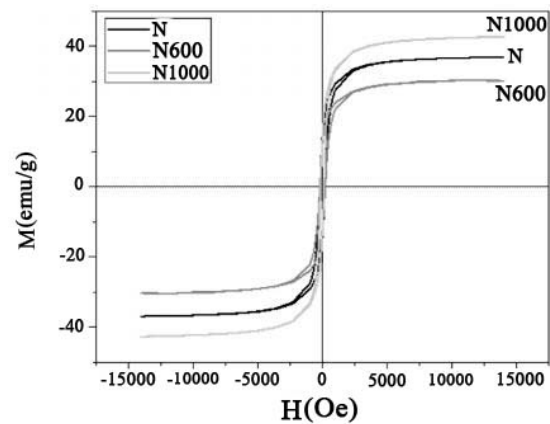
کد نمونه	NiFe ₂ O ₄ (درصد وزنی)	α-Fe ₂ O ₃ (درصد وزنی)	NiO (درصد وزنی)	FeNi ₃ (درصد وزنی)
N	۶۳/۶۵	۲۲/۴	۱۲/۱۴	۱/۷۸
N۶۰۰	۶۷/۲۴	۲۵/۰۱	۷/۰۲	-
N۱۰۰۰	۹۲/۳۷	۷/۰۵	۰/۵۷	-

جدول ۲- پارامترهای مغناطیسی نمونه‌ها

کد نمونه	مغناطش اشباع (emu/g)	نیروی پسماندزدای مغناطیسی (Oe)	مغناطش پسماند (emu/g)
N	۳۶/۹۶	۱۷۵/۵	۱۴/۵۶
N۶۰۰	۳۰/۴۸	۱۹۶/۹۱	۱۲/۳۴
N۱۰۰۰	۴۲/۷۱	۱۲۶/۷۳	۱۳/۷۱

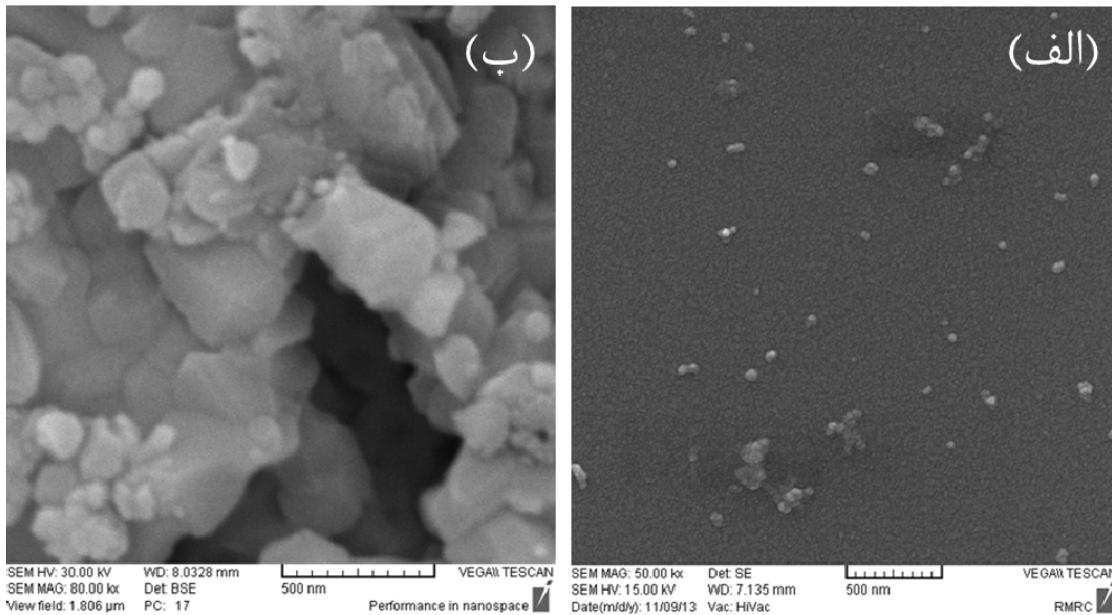
برای تشکیل این فاز می‌توان ذکر کرد، کمبود گرمای آزاد شده در طول فرایند احتراق و کافی نبودن آن برای تشکیل فاز نیکل فریت در ستنر دمای پایین فریت است. با افزایش دمای کلسیناسیون فرایند اکسیداسیون فاز FeNi₃ رخ می‌دهد که باعث حذف پیک‌های مربوط به این فاز در دمای ۶۰۰ درجه سانتی‌گراد می‌شود. محاسبات کمی انجام شده حاکی از کاهش مقدار نیکل اکسید و افزایش میزان نیکل فریت است. در واقع همزمان با تجزیه FeNi₃ میزان فاز نیکل فریت تشکیل شده نیز افزایش پیدا می‌کند. همچنین مقدار فاز هماتیت افزایش پیدا می‌کند. با کلسیناسیون نمونه در دمای ۱۰۰۰ درجه سانتی‌گراد هماتیت با اکسید نیکل واکنش داده و درصد نیکل فریت تشکیل شده افزایش پیدا می‌کند. متوسط اندازه بلورک‌ها در نمونه‌های مختلف که با رابطه شرر محاسبه شده است، در محدوده ۲۸ تا ۳۴ نانومتر است.

در شکل (۲) منحنی مغناطش نمونه‌های مختلف نشان داده شده است و مقادیر به دست آمده برای پارامترهای مغناطیسی نمونه‌ها از منحنی‌های مغناطش نیز در جدول ۲ ذکر شده است. مقدار مغناطش اشباع نانوذرات نیکل فریت برابر ۵۰/۴ و به دست آمده برای نمونه N برابر ۳۶/۹۶ emu/g است.



شکل ۲- منحنی مغناطش نمونه‌ها

مربوط به فاز هماتیت (α-Fe₂O₃) و مقادیر جزئی از فاز FeNi₃ مشاهده می‌شود. لازم به ذکر است که پیک‌های فاز نیکل فریت و اکسید نیکل در الگوی پراش پرتو ایکس با یکدیگر هم‌پوشانی دارند. نتایج طیف رامان دیگر تحقیقات مؤید حضور فاز NiO در نمونه‌های مذکور است [۷ و ۱۲]. محاسبات کمی نیز نشان‌دهنده تشکیل مقادیر قابل توجهی نیکل اکسید در خاکستر است. مصرف اکسیژن در فرایند احتراق به وسیله سیتریک اسید منجر به کمبود اکسیژن مورد نیاز برای اکسیداسیون یون‌های آهن و نیکل در مرحله احتراق می‌شود که موجب تشکیل FeNi₃ است [۱۸ و ۱۹]. احتمال دیگری که

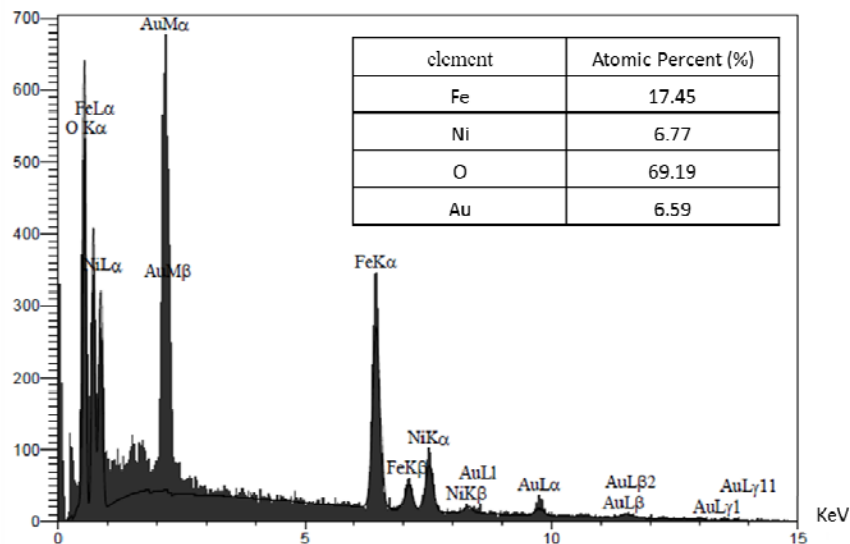


شکل ۳- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از نمونه‌های: الف) N (خاکستر احتراق) و ب) Ni_{1000} (نمونه کلسینه شده در دمای 1000°C درجه سانتی‌گراد)

به دلیل حذف فاز $FeNi_3$ باشد که سبب افزایش نسبی فاز نیکل فریت می‌شود. میدان پسماندزداى فاز $FeNi_3$ در مقایسه با فاز نیکل فریت ناچیز است [۲۳]؛ در نتیجه کاهش میزان این فاز سبب افزایش تأثیر فاز نیکل فریت و افزایش میدان پسماندزدا می‌شود. میدان پسماندزدا در نمونه Ni_{1000} نسبت به نمونه N کاهش یافته است. اندازه بحرانی ذرات نیکل فریت تک سامان^۲ برای تبدیل به چند سامان^۳ برابر ۲۱ نانومتر گزارش شده است [۲۴]، بنابراین به دلیل اینکه ذرات این فاز در منطقه چند سامان هستند، با افزایش دمای کلسیناسیون و در نتیجه آن افزایش اندازه ذرات، مقدار میدان پسماندزدا از ۱۷۵ Oe به ۱۲۷ Oe کاهش پیدا می‌کند.

شکل (۳) تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی در بزرگ‌نمایی متفاوت نمونه N و Ni_{1000} را نشان می‌دهند. تصاویر به دست آمده از میکروسکوپ الکترونی روبشی نشان‌دهنده مورفولوژی شبه کروی ذرات سنتز شده به روش سل-ژل خود احتراقی و اندازه ذراتی در مقیاس نانومتری است. با توجه به شکل (۳-الف) کلوخه شدن ذرات نانومتری

این عدد ناشی از خواص مغناطیسی فازهای تشکیل شده در نمونه است. فاز هماتیت دارای پیوند خطی $Fe^{3+}-O^{2-}-Fe^{3+}$ ساختار هگزاگونال است و با توجه به اینکه ممان‌های دو یون Fe^{3+} مخالف یکدیگر هستند در نتیجه هماتیت آنتی فرومغناطیس است [۱۸]. NiO نیز ماده‌ای آنتی فرومغناطیس است [۲۱]. وجود مقادیر قابل ملاحظه‌ای از فازهای آنتی فرومغناطیس باعث کاهش مغناطش اشباع می‌شود [۲۲]. از طرف دیگر حضور فاز $FeNi_3$ که دارای مغناطش اشباع برابر 110emu/g است [۲۳]، در افزایش مغناطش اشباع مؤثر است. مغناطش اشباع نمونه سنتز شده برآیند میزان آهنربایش فازهای مذکور است. با افزایش دمای کلسیناسیون تا 600°C درجه سانتی‌گراد به علت تجزیه فاز مغناطیسی $FeNi_3$ و همچنین افزایش مقدار فاز آنتی فرومغناطیسی هماتیت، مغناطش اشباع کاهش پیدا می‌کند. با کلسیناسیون نمونه در دمای 1000°C درجه سانتی‌گراد هماتیت با اکسید نیکل واکنش داده و به نیکل فریت تبدیل می‌شود که تأثیر قابل توجهی در افزایش مغناطش اشباع نمونه دارد. افزایش میدان پسماندزدا در نمونه Ni_{600} می‌تواند



شکل ۴- ارزیابی طیف سنجی با تفکیک انرژی (EDS) نمونه N (خاکستر حاصل از احتراق)

نیکل فریت، هماتیت، نیکل اکسید و FeNi_3 است، برابر 37emu/g و میدان پسماندزادی آن برابر 1750e به دست آمد. با کلسیناسیون نمونه اولیه در دمای 600°C درجه سانتی گراد فاز FeNi_3 حذف شد و به دو فاز اکسید نیکل و هماتیت تجزیه شد. در این مرحله مغناطش اشباع نسبت به مقدار اولیه کاهش یافت که به دلیل تجزیه فاز مغناطیسی FeNi_3 و افزایش مقدار فاز آنتی فرومغناطیسی هماتیت است. میدان پسماندزدا نیز افزایش پیدا کرد که می تواند به دلیل افزایش نسبی مقدار فاز نیکل فریت و حذف فاز FeNi_3 باشد. با افزایش دمای کلسیناسیون به 1000°C درجه سانتی گراد واکنش بین NiO و هماتیت منجر به تشکیل نیکل فریت شد. مقدار مغناطش اشباع در نمونه کلسینه شده در دمای 1000°C درجه سانتی گراد به دلیل واکنش بین هماتیت و اکسید نیکل و افزایش درصد نیکل فریت به مقدار 43emu/g افزایش یافت و نیروی پسماندزادی مغناطیسی تا 1270e کاهش یافت که می تواند به دلیل افزایش اندازه ذرات و ایجاد ذرات مغناطیسی چند سامان باشد.

علی رغم پخش شدن ذرات در اتانول هنگام آماده سازی جهت تصویربرداری مشاهده شد که ممکن است به دلیل سطح ویژه بالا و چسبندگی ذرات به هم باشد. نتایج ارزیابی EDS نانوذرات این نمونه در شکل (۴) نشان داده شده است که مؤید نتایج پراش پرتو ایکس در مورد تشکیل نیکل فریت است. در شکل (۳-ب) می توان رشد قابل ملاحظه اندازه ذرات و تجمع شدن آنها را که در اثر کلسیناسیون در دمای 1000°C درجه سانتی گراد رخ داده است، مشاهده کرد. اگر چه ذرات تجمع شده اند ولی همچنان ذراتی با اندازه نانومتری در تصویر قابل مشاهده است.

۴- نتیجه گیری

نانوذرات نیکل فریت به روش سل-ژل خود احتراقی با اندازه متوسط بلورک ۲۸ تا ۳۳ نانومتر تهیه شد. تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی نیز حاکی از تشکیل ذراتی با اندازه زیر 100 nm نانومتر است. مغناطش اشباع محصول احتراق که حاوی فازهای

واژه نامه

1. cetyl trimethyl ammonium bromide
2. single domain
3. multi domain

1. Yue, Z., Zhou, J., Wang, X., Gui, Z., and Li, L., "Preparation and Magnetic Properties of Titanium Substituted LiZn Ferrites via a Sol-Gel Auto-Combustion Process", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 23, pp. 189-193, 2003.
2. Sivakumar, P., Ramesh, R., Ramanand, A., Ponnusamy, S., and Muthamizhchelvan, C., "Synthesis, Studies and Growth Mechanism of Ferromagnetic NiFe₂O₄ Nanosheet", *Applied Surface Science*, Vol. 258, pp. 6648-6652, 2012.
3. George, M., John, A. M., Nair, S. S., Joy, P. A., and Anantharaman, M. R., "Finite Size Effects on the Structural and Magnetic Properties of Sol-Gel Synthesized NiFe₂O₄ Powders", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 302, pp. 190-195, 2006.
4. Satyanarayana, L., Reddy, K. M., and Manorama, S. V., "Nanosized Spinel NiFe₂O₄: A Novel Material for the Detection of Liquefied Petroleum Gas in Air", *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 82, pp. 21-26, 2003.
5. Manuel Perez, J., Joseph Simeone, F., Tsourkas, A., Josephson, L., and Weissleder, R., "Peroxidase Substrate Nanosensors for MR Imaging", *Nano Letters*, Vol. 4, pp. 119-122, 2004.
6. Sivakumar, P., Ramesh, R., Ramanand, A., Ponnusamy, S., and Muthamizhchelvan, C., "Structural, Thermal, Dielectric and Magnetic Properties of NiFe₂O₄ Nanoleaf", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 537, 203-207, 2012.
7. Maaz, K., Karim, S., Mumtaz, A., Hasanain, S. K., Liu, J., and Duan, J. L., "Synthesis and Magnetic Characterization of Nickel Ferrite Nanoparticles Prepared by Co-Precipitation Route", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 321, pp. 1838-1842, 2009.
8. Komarneni, S., D'Arrigo, M. C., Leonelli, C., Pellacani, G. C., and Katsuki, H., "Microwave-Hydrothermal Synthesis of Nanophase Ferrites", *Journal of the American Ceramic Society*, Vol. 81, pp. 3041-3043, 1998.
9. Liu, J. H., Wang, L., and Li, F. S., "Magnetic Properties and Mössbauer Studies of Nanosized NiFe₂O₄ Particles", *Journal of Materials Science*, Vol. 40, pp. 2573-2575, 2005.
10. Hirai, T., Kobayashi, J., and Komazawa, I., "Preparation of Acicular Ferrite Fine Particles using an Emulsion Liquid Membrane System", *Langmuir*, Vol. 15, pp. 6291-6298, 1999.
11. Liu, X., Fu, S., and Huang, C., "Magnetic Properties of Ni Ferrite Nanocrystals Dispersed in the Silica Matrix by Sol-Gel Technique", *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 281, pp. 234-239, 2004.
12. Alamolhoda, S., Mirkazemi, S. M., Shahjooyi, T., and Benvidi, N., "Effect of Cetyl Trimethylammonium Bromide (CTAB) Amount on Phase Constituents and Magnetic Properties of Nano-Sized NiFe₂O₄ Powders Synthesized by Sol-Gel Auto-Combustion Method", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 638, pp. 121-126, 2015.
13. Seyyed Ebrahimi, S. A., and Azadmanjiri, J., "Evaluation of NiFe₂O₄ Ferrite Nanocrystalline Powder Synthesized by a Sol-Gel Auto-Combustion Method", *Journal of Non-Crystalline Solids*, Vol. 353, pp. 802-804, 2007.
14. Azadmanjiri, J., Seyyed Ebrahimi, S. A., and Salehani, H. K., "Magnetic Properties of Nanosize NiFe₂O₄ Particles Synthesized by Sol-Gel Auto Combustion Method", *Ceramics International*, Vol. 33, pp. 1623-1625, 2007.
15. Alamolhoda, S., Mirkazemi, S. M., Benvidi, N., and Shahjooyi, T., "Effect of Fuel-to-Oxidant Ratio on Phase Constituents, Microstructure and Magnetic Properties of NiFe₂O₄-Based Composite Nanopowder Synthesized by Sol-Gel Auto-Combustion Method", *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, Vol. 77, pp. 534-541, 2016.
16. Rietveld, H. M., "A Profile Refinement Method for Nuclear and Magnetic Structures", *Journal of Applied Crystallography*, Vol. 2, pp. 65-71, 1969.
17. Cullity, B. D., *Elements of X-Ray Diffraction*, 2nd ed., Addison-Wesely Publishing Co., 1978.
18. O'Handley, R. C., *Modern Magnetic Materials Principles and Application*, John Wiley & Sons INC, 2000.
19. Zhu, J., Xiao, D., Li, J., Yang, X., and Wu, Y., "Characterization of FeNi₃ Alloy in Fe-Ni-O System Synthesized by Citric acid Combustion Method", *Scripta Materialia*, Vol. 54, pp. 109-113, 2006.
20. Sivakumar, P., Ramesh, R., Ramanand, A., Ponnusamy, S., and Muthamizhchelvan, C., "Preparation and Properties of Nickel Ferrite (NiFe₂O₄) Nanoparticles via Sol-Gel Auto-Combustion Method", *Materials Research Bulletin*, Vol. 46, pp. 2204-2207, 2011.
21. Tadic, M., Panjan, M., Markovic, D., Stanojevic, B., Jovanovic, D., Milosevic, I., and Spasojevic, V., "NiO Core-Shell Nanostructure with Ferromagnetic-Like Behavior at Room Temperature", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 586, pp. S322-S325, 2014.
22. Lin, C. S., Hwang, C. C., Huang, T. H., Wang, G. P., and Peng, C. H., "Fine Powders of SrFe₁₂O₁₉ with SrTiO₃ Additive Prepared via a Quasi-Dry Combustion Synthesis Route", *Materials Science and Engineering B*, Vol. 139, pp. 24-36, 2007.
23. Buschow, K. H. J., *Handbook of Magnetic Materials*, Elsevier Science, Amsterdam, 1995.
24. Gao, P. Z., Rebrov, E. V., Verhoeven, T. M.,

Schouten, J. C., and Kleismit, R., “Structural Investigations and Magnetic Properties of Sol-Gel $\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ Thin Films for Microwave Heating”,

Journal of Applied Physics, Vol. 107, PP. 044317, 2010.