

# تأثیر دمای تفجوشی و افزودنی مس بر خواص ساختاری و مغناطیسی فریت نیکل - روی

قادر احمدپور، علی قاسمی و ابراهیم پایمزد\*

دانشگاه صنعتی مالک اشتر - شاهین شهر اصفهان

(دریافت مقاله: ۱۳۹۰/۰۹/۲۳ - دریافت نسخه نهایی: ۱۳۹۱/۱۰/۱۷)

جکیده -  
°C  
EDS  
DTA TG  
VSM  
- ( / x= - / ) Ni<sub>0.6-x</sub>Cu<sub>x</sub>Zn<sub>0.4</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>  
واژگان کلیدی :

## The effect of sintering temperature and copper substitution on the structural and magnetic properties of nickel-zinc ferrite

G. Ahmadpour, A. Ghasemi and E. Paimozd

Malek Ashtar University of Technology- Shahin Shahr, Isfahan

**Abstract:** The particles of ferrite  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  (0-0.5 in step with 0.1) were prepared by the sol-gel method. Sintering process of powders was carried out at 600, 800 and 1000 °C. The effect of the sintering temperature and chemical composition on the structural and magnetic properties of the Cu substituted NiZn ferrite was investigated. EDS analysis and X-ray diffraction patterns confirmed a well defined of single crystal phase with spinel structure. The thermal behavior process and particle size of samples were investigated by thermal analysis TG, DTA techniques and scanning electron microscope, respectively. VSM curves reveal that the sintering temperature and copper content affect saturation magnetization. Mössbauer spectra displays that the

\* : مسئول مکاتبات، پست الکترونیکی: paimozd@gmail.com

*copper cations occupy the octahedral sites. With increasing of copper cations, the iron cations immigrate to tetrahedral site, consequently the saturation magnetization decrease.*

**Keywords:** Sol-gel, Structural and magnetic properties, Saturation magnetization, Magnetic exchange interaction, Mössbauer spectra.

|  |  |
|--|--|
| Q(S) برهمکنش چهارگانه<br>VSM مغناطومتر ارتعاشی | I(S) جابه‌جایی ایزومر<br>H میدان مغناطیسی خارجی (Orested)<br>M <sub>s</sub> مغناطش اشباع (emu/g) |
|--|--|

## ۱- مقدمه

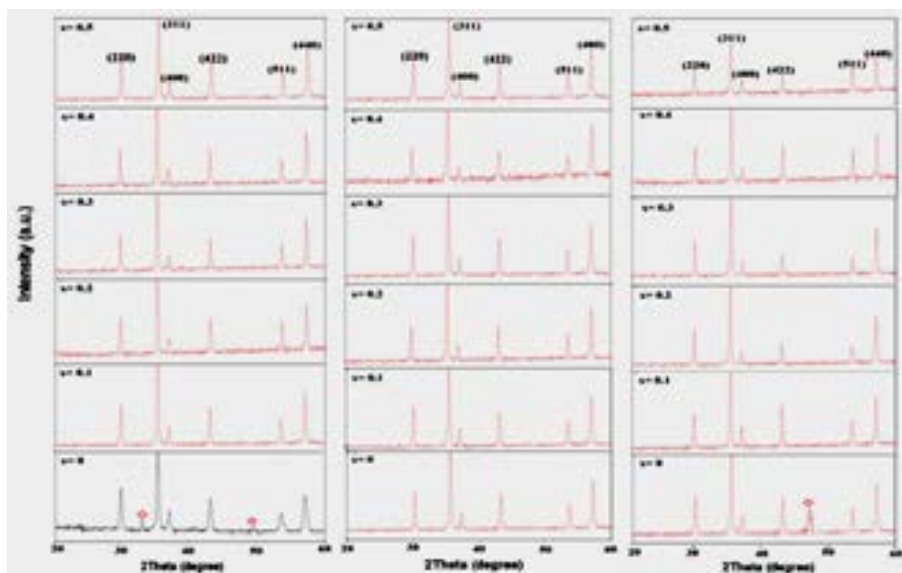
تا فازهای مورد نظر تشکیل شوند. از طرفی پودرهای تولید شده با این روش از نظر ترکیب شیمیایی ناهمگن و دارای اندازه ذرات درشت بوده و نیز ناخالصی‌های زیادی را شامل می‌شوند. در تحقیق حاضر فریت NiCuZn به روش سل-ژل تهیه شد. از امتیازات این روش نسبت به دیگر روش‌ها می‌توان به تولید پودرهایی با اندازه ذرات ریز و همگن اشاره کرد. از طرفی روش سل-ژل یک روش اقتصادی و ارزان بوده و کنترل فرایند در آن آسان است. پودرهایی که به روش سل-ژل تولید می‌شوند نیاز به تفجوشی دمای بالا ندارند [۷]. در این تحقیق اثر افزودنی مس و دمای تفجوشی روی خواص ساختاری و مغناطیسی فریت نیکل-روی بررسی شده است.

## ۲- مواد و روش‌ها

از روش سل-ژل به منظور تهیه فریت Ni<sub>0.6</sub>Cu<sub>x</sub>Zn<sub>0.4</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> با x=0,0 / 0,2, 0,3, 0,4, 0,5 استفاده شد. مواد اولیه به کار رفته شامل نیترات آهن (NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.9H<sub>2</sub>O، نیترات مس (Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.3H<sub>2</sub>O) نیترات روی (Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O)، نیترات نیکل (Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.6H<sub>2</sub>O)، اسید سیتریک (C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>)، آب مقطر و محلول آمونیاک با خلوص بالای ۹۹٪ است. مواد اولیه از شرکت مرک آلمان تهیه شد. محلول نیترات فلزات تهیه و اسید سیتریک برای انحلال آن‌ها به محلول اضافه شد. برای ایجاد یک سل همگن،

فریت نیکل-روی دارای ساختار اسپینل بوده که دارای خواص مغناطیسی و الکتریکی بسیار خوبی از جمله مغناطش اشباع و مقاومت الکتریکی بالاست [۱-۳]. فریت NiCuZnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> در ساخت تراشه‌های القاگر چند لایه که در صنایع الکترونیک به کار می‌رود مورد استفاده قرار می‌گیرد. این تراشه‌ها در وسایل الکترونیک مثل تلفن همراه، حافظه‌های مغناطیسی، آنتن، هدهای خواندن و نوشتن و قطعات الکترونیکی استفاده می‌شوند [۴]. در ساخت تراشه القاگر اغلب از نقره (با نقطه ذوب ۹۶۱°C) به عنوان الکتروود داخلی استفاده می‌شود، زیرا نقره نقطه ذوب پایین داشته و هزینه‌ی کمتری نسبت به فلزات نجیب مثل طلا و پلاتین دارد. فریت NiCuZn در مقایسه با فریت خالص NiZn دارای دمای تفجوشی پایین و خواص مغناطیسی بهتر در فرکانس‌های بالاست [۵]. در تراشه القاگر، لایه عایق فریت به همراه الکتروود به صورت همزمان پخت می‌شوند. برای جلوگیری از نفوذ الکتروود نقره به داخل لایه فریت، ساختار لایه‌ای تراشه القاگر چند لایه بایستی در دمای پایین‌تر از نقطه ذوب نقره، تفجوشی شود [۶].

برای تولید پودرهای فریت NiCuZn می‌توان از روش حالت جامد استفاده کرد. در این روش از اکسید یا کربنات فلزات مورد نظر استفاده می‌شود. در روش حالت جامد، پودرها باید در دمای بالا (۱۱۰۰-۱۲۰۰°C) تفجوشی شده



شکل ۱- الگوی پراش اشعه ایکس فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  در سه دمای (الف)  $600^\circ C$  (ب)  $800^\circ C$  (ج)  $1000^\circ C$ .

محلول به مدت ۳ ساعت در دمای  $80^\circ C$  روی همزن مغناطیسی قرار داده شد، سپس pH سل به کمک محلول آمونیاک در عدد ۷ تنظیم شد. سل، داخل خشک کن در دمای  $125^\circ C$  قرار داده شد تا یک ژل خشک شده ایجاد شود. ژل‌های خشک شده در سه دمای  $600^\circ C$ ،  $800^\circ C$  و  $1000^\circ C$  تحت عملیات تفجوشی قرار گرفتند.

رفتار حرارتی پودرهای فریت تولید شده، توسط تحلیل حرارتی TG و DTA در محدوده‌ی ۲۵ تا  $500^\circ C$  در اتمسفر هوا با نرخ حرارت دهی  $5^\circ C/min$  با دستگاه TGA/DTA/LF/1600/MT5/347 بررسی شد. شناسایی ساختار و فاز فریت توسط دستگاه دیفرکتومتر اشعه ایکس فیلیپس انجام شد. برای مطالعه ریز ساختار و مورفولوژی ذرات فریت تولید شده از میکروسکوپ الکترونی روبشی با مدل JSM- 7000F، JEOL استفاده شد. طیف‌های موزبائر<sup>۲</sup> برای تعیین موقعیت کاتیون‌ها در مکان‌های اکتاهدرال و تتراهدرال توسط دستگاه طیف سنج موزبائر مدل Cryovac

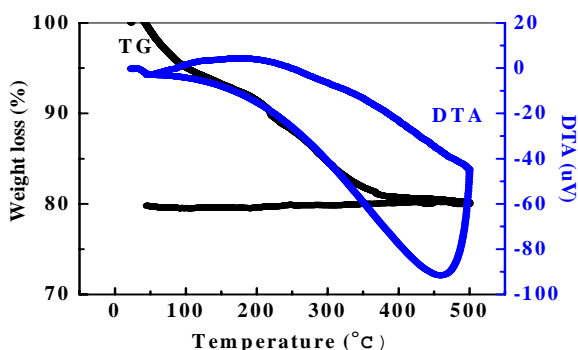
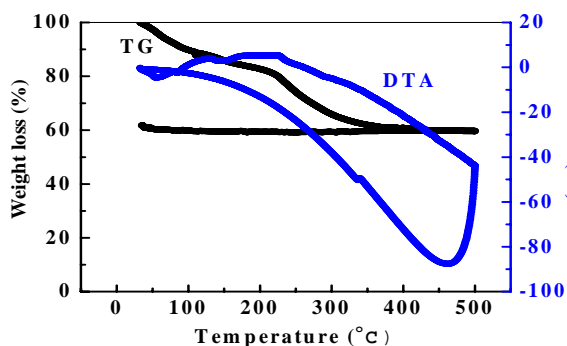
اسپکتروسکوپی موزبائر  $^{57}Fe$  در دمای اتاق، بدون اعمال میدان مغناطیسی در هندسه عبوری اشعه گاما انجام شد. به منظور اندازه‌گیری موزبائر  $^{57}Fe$  از  $^{57}Co/Rh$  به عنوان منبع تولید اشعه  $\gamma$  استفاده شد و سپس به کمک نرم افزار، بررسی‌های کمی صورت گرفت. با استفاده از هیستوگراف مدل Quantum Design MPMS-55 SQUID خواص مغناطیسی پودرهای فریت تولید شده اندازه‌گیری شد.

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- ساختار و ریزساختار

در شکل (۱) الگوی پراش پرتو X پودرهای فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  که در سه دمای مختلف تفجوش شده‌اند به ازای مقادیر  $x=0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$  مشاهده می‌شود. در فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$ ، پیک‌های به‌دست آمده برای هر سه دسته از ذرات سنتز شده مشابه بوده و با

۳



شکل ۲- نمودار TG و DTA مربوط به فریت (الف)  $Ni_{0.6}Zn_{0.4}Fe_2O_4$  (ب)  $Ni_{0.6}Cu_{0.5}Zn_{0.4}Fe_2O_4$

روی نمودار TG است و یک پیک پهن گرمازا در نمودار DTA در محدوده‌ی دمایی  $200^{\circ}C$  تا  $250^{\circ}C$  مشاهده می‌شود که مربوط به واکنش بین سیترات‌ها و نیترات‌ها و واکنش اکسیداسیون نیترات فلزی است. در این مرحله گرمای حاصل شده باعث تبخیر آب‌های ساختاری می‌شود. افت وزنی ناشی از این فرایند در روی نمودار TG برابر ۱۵٪ است. در شکل (۲)، دو پیک گرماگیر و یک پیک گرمازا مشاهده می‌شود. دو پیک گرماگیر در محدوده‌ی دمایی  $80^{\circ}C$  تا  $100^{\circ}C$  و  $125^{\circ}C$  تا  $170^{\circ}C$  که مربوط به آب‌های سطحی و آب‌های ساختاری بوده، به طوری که همراه با افت وزنی به ترتیب برابر ۱۲٪ و ۴٪ است. پیک گرمازا نیز مربوط به واکنش بین نیترات‌ها و سیترات‌ها می‌باشد و افت وزنی ناشی از این واکنش تقریباً برابر ۲۰٪ است. همان‌طور که مشخص است میزان افزودنی مس تاثیر چندانی بر رفتار حرارتی پودرهای سنتز شده ندارد [۱۱].

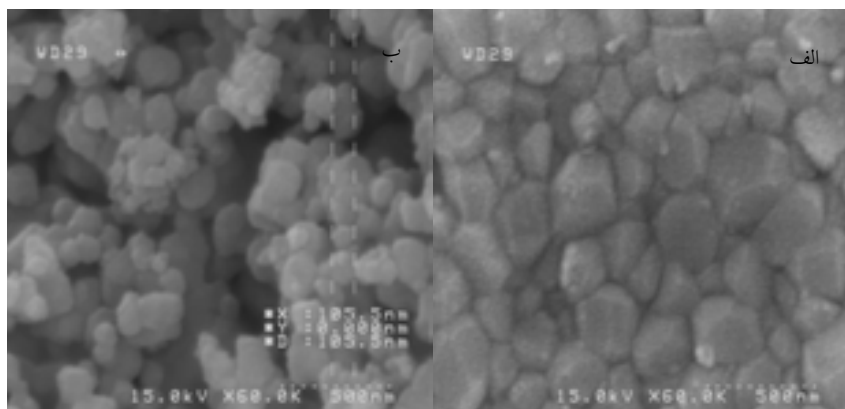
اطلاعات استاندارد انجمن آزمون و مواد آمریکا (JCPDS file. 10-325) به خوبی مطابقت دارد [۸]. در نمونه تفجوشی در دمای  $1000^{\circ}C$  به ازای  $x=0$  فاز ثانویه مشاهده می‌شود ولی در نمونه‌ای که در دمای  $800^{\circ}C$  تفجوشی شده هیچ نوع فاز ثانویه‌ای مشاهده نمی‌شود. چون دمای تفجوشی فریت NiCuZn در  $1000^{\circ}C$  زیاد است روی با نقطه ذوب پایین و فشار بخار بالا از ساختار کریستالی تبخیر می‌شود همچنین فاز مایع که توسط ذوب مس شکل می‌گیرد ضخیم می‌شود زیرا دمای تفجوشی افزایش یافته و این موضوع باعث کاهش حلالیت و نفوذ عناصر تشکیل دهنده پودر فریت شده و فاز ثانویه ایجاد می‌کند [۹]. در نمونه‌ای که در دمای  $600^{\circ}C$  تفجوشی شده نیز به علت پایین بودن دمای تفجوشی، فاز بلوری اسپینل به صورت کامل تشکیل نشده و فاز ثانویه وجود دارد [۱۰].

### ۲-۳- رفتار حرارتی پودرهای سنتز شده

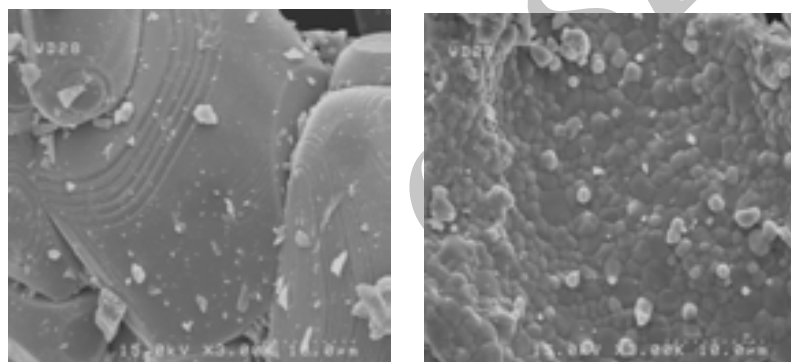
شکل (۲) مربوط به نمودارهای TG و DTA ذرات فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  به ازای مقادیر  $x=0$  و  $x=0.5$  با مقدار اسید سیتریک کم است. در  $x=0$  یک پیک گرماگیر در محدوده‌ی دمایی  $80^{\circ}C$  تا  $100^{\circ}C$  مشاهده می‌شود که مربوط به تبخیر آب‌های سطحی بوده که همراه با ۷٪ افت وزنی در

### ۳-۳- بررسی اندازه ذرات و مورفولوژی پودرها

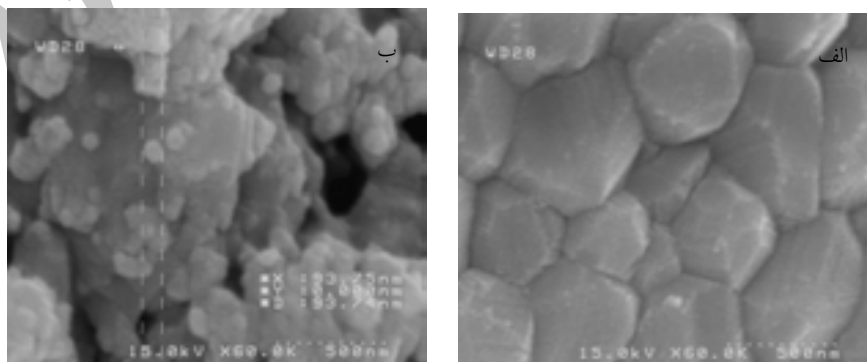
تصاویر میکروگراف SEM فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  در شکل‌های (۳) تا (۵) نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود با افزایش دمای تفجوشی و افزودن مس، ذرات درشت می‌شوند. گرمادهی پودر فریت در کمتر از نقطه



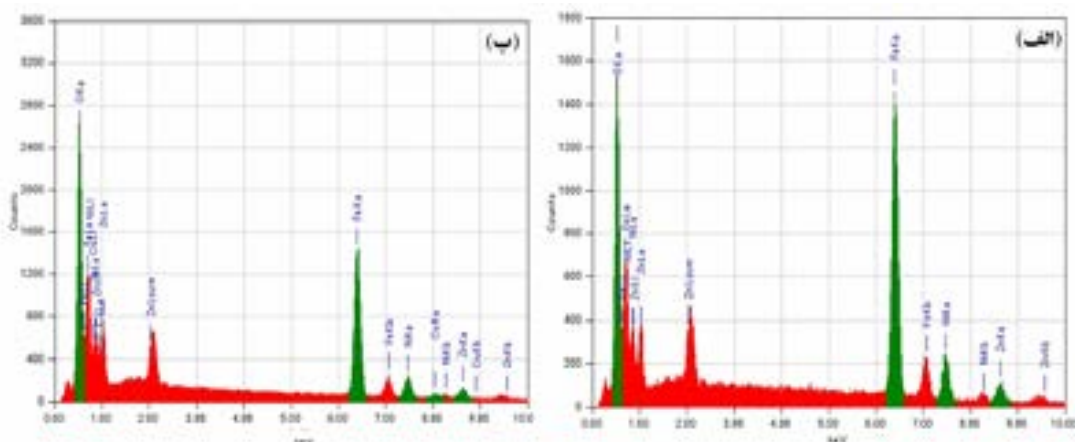
شکل ۳- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از مورفولوژی پودرهای تفجوشی شده در دمای  $600^{\circ}\text{C}$ .  
(الف) پودر بدون افزودنی مس و (ب) پودر با ۵/۰ مول مس.



شکل ۴- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از مورفولوژی پودرهای تفجوشی شده در دمای  $800^{\circ}\text{C}$ .  
(الف) پودر بدون افزودنی مس و (ب) پودر با ۵/۰ مول مس.



شکل ۵- تصاویر میکروسکوپی الکترونی روبشی از مورفولوژی پودرهای تفجوشی شده در دمای  $1000^{\circ}\text{C}$ .  
(الف) پودر بدون افزودنی مس و (ب) پودر با ۵/۰ مول مس.



شکل ۶- طیف‌های EDS پودر فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  (الف) بدون مس و (ب) با ۵٪ مول مس.

می‌دهد. پیک‌های حاصل در روی نمودار EDS نشان می‌دهد که نمونه‌ها از عناصر آهن، روی، نیکل، مس و اکسیژن تشکیل شده است به طوری که مقادیر آهن و اکسیژن دارای بیشترین مقدار هستند که مطابقت خوبی با درصد وزنی عناصر تشکیل دهنده دارند. در این طیف‌ها پیک‌های اضافی که نشان دهنده‌ی عناصر دیگری باشند، مشاهده نشد.

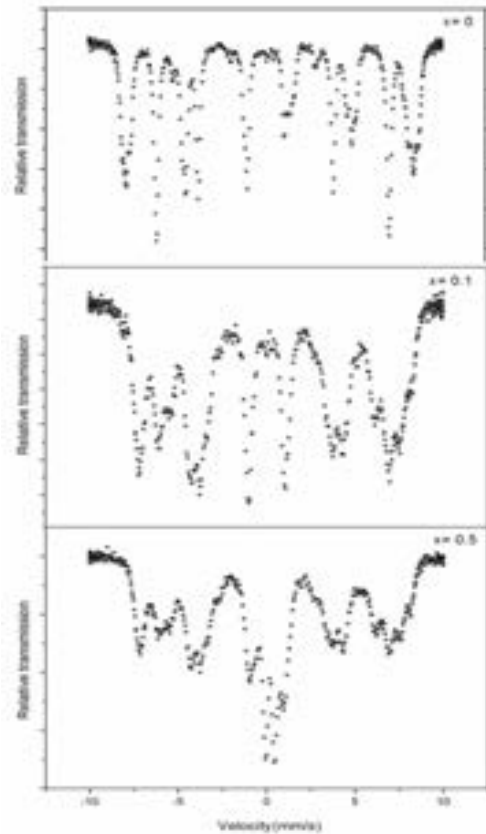
### ۳-۴- بررسی طیف‌های موزبائر

در فریت‌ها رفتار موزبائر متأثر از برهم کنش‌های مغناطیسی است. شکافتگی خطوط منحنی‌های موزبائر که در حالت فری مغناطیسی شکافتگی شش گانه و در حالت سوپر پارامغناطیسی شکافتگی دوگانه دارد نشان دهنده حضور میدان مغناطیسی اطراف هسته موزبائر است [۱۵]. شدت این میدان در دمای اتاق و دماهای پایین تر می‌تواند تا پنجاه تسلا باشد. یک نوع از این برهم کنش‌ها، برهم کنش چهارگانه<sup>۳</sup> اطراف هسته موزبائر است که نشان دهنده‌ی تقارن موضعی است. منظور از تقارن موضعی، توزیع متقارن ذرات باردار تحت اثر گرادیان میدان الکتریکی اطراف هسته است. باید در نظر داشت که در مورد یون آهن سه ظرفیتی  $Fe^{3+}$  که در فریت‌ها وجود دارد، برهم کنش، بیشتر تحت تاثیر توزیع ذرات باردار

ذوب آن سبب می‌شود که ذرات به یکدیگر جوش خورده و فضای خالی بین ذرات کاهش یابد و در نتیجه اندازه ذرات پودر فریت درشت می‌شود. از طرفی ذرات هنگام گرم شدن، سعی می‌کنند که انرژی آزاد سطحی را، با کاهش مساحت سطح کل خود، کم کنند. بنابراین ذرات پودر فریت به اجبار به یکدیگر می‌چسبند و باعث رشد ذرات می‌شوند.

وقتی به نمونه‌های پودری در همان دماهای ذکر شده مس افزوده می‌شود، در مقایسه با نمونه‌های بدون مس اندازه ذرات درشت‌تر شده که مطابق با یافته‌های سایر محققان است [۱۲ و ۱۳]. در حین فرایند تفجوشی، مس ذوب شده و یک فاز مایع را به وجود می‌آورد. فاز مایع مس با سرعت بیشتری به مرز دانه نسبت به مناطق درون دانه نفوذ می‌کند. از طرف دیگر دمای ذوب مس کمتر از فریت است، بنابراین مس افزوده شده به سمت مرز دانه حرکت کرده و با ایجاد فاز مایع و نیروی موینگی، باعث چسبیدن دانه‌ها به یکدیگر و رشد ذرات می‌شود. این رشد دانه و در ادامه حرکت تخلخل‌ها به سمت یکدیگر و از بین رفتن آنها، در نهایت سبب افزایش چگالی می‌شود [۱۴].

شکل (۶) تحلیل EDS نمونه‌های پودر فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  به ازای مقادیر ۰، ۵٪ x را نشان



شکل ۷- طیف‌های موزبائر فریت  $\text{Ni}_{0.6-x}\text{Cu}_x\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4$  به ازای  $x$  های مختلف که در دمای  $800^\circ\text{C}$  تفجوشی شده است.

(۱)  $I(A)/I(B) = f(A)/f(B) \times \lambda / (2 - \lambda)$   
 $I(A)$  و به  $I(B)$  ترتیب شدت پیک‌های فرعی طیف موزبائر،  
 $f(A)$  و  $f(B)$  بیانگر برهم کنش اتم‌های موجود در هر کدام  
از این مکان‌های کریستالی با اشعه  $\gamma$  است. در صورتی که  
رفتار فریت به صورت فری مغناطیسی باشد یا اندازه ذرات  
درشت باشند، شش پیک به ازای هر موقعیت کریستالی در  
طیف ایجاد می‌شود [۱۷].

در شکل (۷) طیف‌های نمونه‌های تولید شده با ابعاد  
میکرومتر مشاهده می‌شود. این نمونه‌ها در دمای  $800^\circ\text{C}$   
تفجوشی شده‌اند. در وسط طیف مربوط به نمونه بدون مس،  
یک پیک دوگانه وجود دارد که مربوط به جابه‌جایی

اطراف هسته است. از طرف دیگر جابه‌جایی ایزومر<sup>۴</sup>  
پارامتر مهم دیگری است که بیانگر چگالی الکترون‌های  
اطراف هسته است. با توجه به حساسیت بسیار زیاد تغییرات  
میدان مغناطیسی اطراف هسته، از این تکنیک می‌توان به  
منظور تشخیص رفتار سوپرپارامغناطیس استفاده کرد [۱۶].  
توزیع جهت کاتیون‌های آهن در شبکه کریستالی با توجه  
به شدت پیک‌های شش گانه موزبائر به راحتی قابل محاسبه  
است. در مورد فریت‌های نرم که موضوع بحث تحقیق حاضر  
است، با توجه به درجه انعکاس ( $\lambda$ ) می‌توان توزیع کاتیون‌ها  
را در موقعیت‌های تتراهدرال (A) و اکتاهدرال (B) طبق  
رابطه (۱) محاسبه کرد.

جدول ۱- مشخصات طیف‌های موزبائر مکان های تتراهدراال (A) و اکتاهدراال [B] فریت‌های آلایده شده با مس  $x=0/1$ .

| مکان‌های خالی           | جابه‌جایی ایزومر (mm/s) | میدان خارجی (T) |
|-------------------------|-------------------------|-----------------|
| مکان‌های تتراهدراال (A) | 0/13(4)                 | 48/45(8)        |
| مکان‌های اکتاهدراال [B] | 0/22(6)                 | 49/94(5)        |

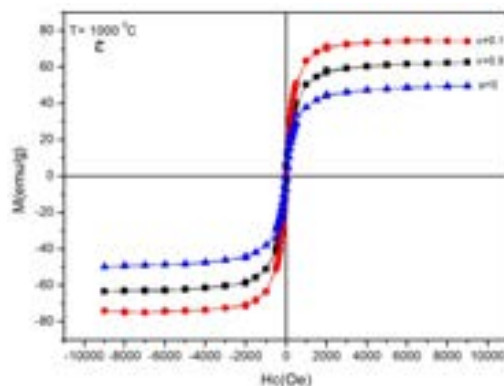
تتراهدراال و اکتاهدراال است. با توجه به شدت پیک‌ها در شکل (۷)،  $I(A)/I(B)=(34/12)/(46/78)$ ، نسبت یون آهن در مکان‌های تتراهدراال و اکتاهدراال برابر با  $\lambda=0/86(2)$  می‌باشد. لذا با افزودن  $x=0/1$  (نسبت مولی مس) به فریت نیکل - روی، درصد اشغال مکان‌های اکتاهدراال و تتراهدراال توسط این کاتیون را می‌توان به راحتی محاسبه کرد.

همان‌طور که می‌دانیم میزان مغناطش اشباع<sup>۵</sup> تحت تاثیر برهم کنش‌های تبادلی بین کاتیون‌های مغناطیسی در مکان‌های تتراهدراال و اکتاهدراال است. در دماهای پایین، کاتیون روی تمایل دارد که در مکان‌های تتراهدراال شبکه اسپینل قرار گیرد، در حالی که کاتیون نیکل در مکان اکتاهدراال جایگزین یون آهن می‌شود. کاتیون‌های آهن و مس نیز می‌توانند در هر دو مکان تتراهدراال و اکتاهدراال قرار گیرند ولی از نظر انرژی تمایل آنها به پرکردن مکان‌های اکتاهدراال بیشتر از تتراهدراال است. با توجه به این توضیحات می‌توان نتیجه گرفت که مغناطش در مکان‌های اکتاهدراال بیشتر از تتراهدراال است. با توجه به اینکه گشتاور مغناطیسی کاتیون : مس با مقدار  $1/3 \mu_B$  کمتر از کاتیون نیکل با مقدار  $2/3 \mu_B$  است. لذا جایگزینی نیکل با مس می‌تواند منجر به کاهش مغناطش اشباع شود. دلیل این موضوع را می‌توان به دمای بالای تفجوشی ربط داد. با توجه به اینکه در دمای  $800^\circ C$  فرایند نفوذ کاتیون‌ها با سرعت زیادی انجام می‌شود، لذا توزیع این یون‌ها در مکان‌های اکتاهدراال و تتراهدراال تغییر می‌کند. نتایج آزمون طیف سنجی موزبائر مشخص کرد که با افزایش میزان مس در فریت نیکل - روی، مقدار بیشتری از کاتیون های آهن از مکان اکتاهدراال به تتراهدراال مهاجرت می‌کنند و بنابراین این موقعیت فراهم می‌شود که تعداد بیشتری کاتیون مس به

ایزومر  $IS=0/19(6) \text{ mm/s}$  و شکافتگی چهار قطبی  $QS=34(8) \text{ mm/s}$  است. اعداد مذکور مشخص می‌کند که فقط یون  $Fe^{3+}$  در سیستم وجود دارد و اثری از  $Fe^{2+}$  یافت نمی‌شود. لازم به ذکر است که مقدار بسیار اندکی  $Fe_2O_3$  در این نمونه وجود دارد. این مقدار اندک توسط پراش پرتو ایکس شناخته نشد ولی دقت بسیار بالایی طیف سنجی موزبائر حضور این فاز ثانویه را تایید می‌کند. فاز ثانویه با مشخصات  $IS=0/23(5) \text{ mm/s}$  و  $QS=1/8(7) \text{ mm/s}$  در کنار فاز فریت نیکل - روی وجود دارد. حضور پیک دوگانه در وسط طیف موزبائر می‌تواند ناشی از عوامل متعدد باشد. یکی از این عوامل حضور فاز سوپرپارامغناطیس در سیستم است. از آنجایی که اندازه ذرات فریت در حد میکرومتر است، لذا حضور این فازها امکان پذیر نیست. با توجه به اینکه میدان اطراف هسته آهن در این نمونه  $H=51/28(5)T$  می‌باشد، لذا سیستم تهیه شده در شرایط فری مغناطیسی قرار دارد. یک عامل مهم دیگر در تولید این پیک‌های دوگانه، آلیاژهای رقیق مغناطیسی هستند که خاصیت نسبتاً ضعیف مغناطیسی دارند. حضور فاز  $Fe_2O_3$  که یک ماده با خاصیت مغناطیسی ضعیف است می‌تواند در تشکیل این پیک دوگانه نقش مهمی ایفا کند.

با افزودن مقدار مس در فریت نیکل روی، دو دسته پیک شش گانه در سیستم ایجاد می‌شود که به دلیل قرار گیری بسیاری از پیک‌های مربوط به مکان‌های خالی اکتاهدراال و تتراهدراال، تعدادی از این پیک‌ها قابل مشاهده نیست. مشخصات موزبائر مکان‌های تتراهدراال (A) و اکتاهدراال [B] در فریت‌های تهیه شده مطابق جدول (۱) است. این پارامترها مربوط به یون آهن سه ظرفیتی در مکان‌های





شکل ۸- منحنی پسماند اندازه‌گیری شده در دمای اتاق برای پودرهای فریت تفجوشی شده  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  در سه دمای (الف)  $600^\circ C$ ، (ب)  $800^\circ C$  و (ج)  $1000^\circ C$ .

جدول ۲- مغناطش اشباع فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  تفجوشی شده در دماهای  $600^\circ C$ ،  $800^\circ C$  و  $1000^\circ C$ .

| دمای تفجوشی ( $^\circ C$ ) |    | 600 |     |    | 800 |     |    | 1000 |     |
|----------------------------|----|-----|-----|----|-----|-----|----|------|-----|
| X                          | 0  | 0/1 | 0/5 | 0  | 0/1 | 0/5 | 0  | 0/1  | 0/5 |
| مغناطش اشباع (emu/gm)      | 60 | 80  | 74  | 64 | 83  | 68  | 58 | 75   | 65  |

محل‌های خالی اکتاهدرال نفوذ کنند [۱۸].

قرارگیری مس در مکان‌های اکتاهدرال که مکان‌های اسپین بالا هستند، باعث می‌شود که مغناطش در موقعیت تتراهدرال افزایش یابد. باید در نظر داشت که گشتاور مغناطیسی کاتیون آهن سه ظرفیتی  $5\mu_B$  است که به مراتب بیشتر از گشتاور مغناطیسی کاتیون مس است. همان‌گونه که در شکل (۷) مشاهده می‌شود با افزایش میزان مس در ترکیب فریت نیکل- روی از میزان حالت دوگانه در پیک موزبائر کاسته می‌شود و به مقدار فاز فری مغناطیسی افزوده می‌شود. با مقایسه شدت پیک‌ها و محاسبه سطح زیر منحنی پیک‌ها می‌توان نتیجه گرفت که در ترکیب  $x=0/1$ ، ۴۰٪ از کاتیون‌های مس در مکان اکتاهدرال و ۶۰٪ در مکان تتراهدرال قرار گرفته‌اند، در حالی که با افزایش میزان مس در ترکیب فریت تا  $x=0/5$ ، دقیقاً ۷۸٪ از کاتیون مس در مکان اکتاهدرال قرار می‌گیرد و لذا، مهاجرت کاتیون‌های آهن به مکان تتراهدرال زیاد می‌شود و مغناطش اشباع کم می‌شود. بنابراین

### ۳-۵ - بررسی منحنی پسماند مغناطیسی

منحنی پسماند نمونه‌های تولید شده به ازای مقادیر  $x=0$ ،  $0/1$  و  $0/5$  و دماهای تفجوشی مختلف در شکل (۸) مشاهده می‌شود. منحنی‌ها نشان می‌دهند که پودرهای فریت  $Ni_{0.6-x}Cu_xZn_{0.4}Fe_2O_4$  به ازای مقادیر مختلف  $x$  رفتار مغناطیسی فریت نرم دارند. چون تلفات هیستریزس و نیروی وادارندگی<sup>۷</sup> پایین و مغناطش بالایی دارند. تغییر مقدار مغناطش اشباع با ترکیب در دماهای تفجوشی مختلف در جدول (۲) مشاهده می‌شود. در همه نمونه‌ها مشاهده می‌شود که افزودن یون مس به فریت نیکل- روی سبب افزایش مقدار مغناطش اشباع شده، به طوری که مقدار مغناطش اشباع، به ازای  $x=0/1$  بیشترین مقدار را نسبت به سایر مقادیر نشان می‌دهد. اما به ازای  $x=0/5$  مغناطش اشباع نسبت به مقدار  $x=0/1$  کاهش می‌یابد. مغناطش تحت تاثیر دانسیته و

پودرهای فریت با جانشینی یون‌های مغناطیسی Ni با یون‌های مغناطیسی Cu است [۲۳]. از روی منحنی‌های پسماند مشاهده می‌شود که دمای بهینه برای تفجوشی ذرات فریت  $80^{\circ}\text{C}$  است چون در این دما مغناطش اشباع برای همه نمونه‌ها بیشترین مقدار را دارا است. بنابراین، این دما برای تفجوشی ذرات فریت  $\text{Ni}_{0.6-x}\text{Cu}_x\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4$  برای ساخت تراشه‌های القاگر چندلایه‌ای مناسب است.

#### ۴- نتیجه‌گیری

پودر فریت  $\text{Ni}_{0.6-x}\text{Cu}_x\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4$  به روش سل - ژل تهیه شد. از الگوی XRD مشاهده شد که فازهای ایجاد شده تحت تاثیر دمای تفجوشی اند. تصاویر میکروسکوپی الکترونی اثر افزودنی مس را بر ریزساختار به خوبی نشان داد. از طرفی مشاهده شد که افزودن مس تاثیر چندانی روی رفتار حرارتی فرایند ندارد. محل ترجیحی قرارگیری کاتیون‌های مس توسط طیف‌های موزبائر به دست آمد. دیده شد که با افزایش مقدار مول افزودنی مس، این کاتیون‌ها تمایل به قرار گیری در مکان‌های اکتاهدرال را دارند که این فرایند روی خواص مغناطیسی پودرها تولید شده تاثیر می‌گذارد. از روی منحنی‌های پسماند به خوبی تاثیر دما و افزودنی بر روی پودرهای تولید شده مشاهده شد. دمای  $80^{\circ}\text{C}$  و ترکیب  $\text{Ni}_{0.6-x}\text{Cu}_x\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4$  ( $x=0/1$ ) بهترین خواص مغناطیسی را فراهم کردند.

ریزساختار فریت‌ها تغییر می‌کند. با افزودن مس اندازه ذرات درشت شده و میزان تخلخل کاهش می‌یابد و مناطقی که باعث قفل شدن اسپین الکترون‌ها می‌شود کاهش می‌یابد و همچنین سبب افزایش دانسیته می‌شود. رشد ذرات می‌تواند سبب به وجود آمدن دیواره‌ی حوزه‌ها<sup>۱</sup> شده و مغناطش به علت حرکت دیواره‌ها تحت تاثیر میدان خارجی افزایش می‌یابد. این اثر به ازای  $x=0/1$  مشاهده می‌شود. اما با افزایش بیشتر مقدار مس، مغناطش اشباع کاهش می‌یابد. تغییر  $M_s$  با ترکیب می‌تواند با برهم کنش ابر تبادلی بین یون‌های موجود در مکان‌های تتراهدرال (A) و اکتاهدرال [B] توضیح داده شود. یون‌های Zn مکان (A) را اشغال می‌کنند در حالی که یون‌های Ni تمایل شدیدی به قرارگیری در مکان‌های [B] دارند. یون‌های Fe و Cu می‌توانند در هر دو مکان قرار گیرند. مغناطش نهایی از تفاوت بین مغناطش‌های  $M_B$  و  $M_A$  ناشی می‌شود. زیر شبکه [B] عموماً دارای مغناطش بالاتری نسبت به زیر شبکه‌ی (A) هستند. یون‌های Cu گشتاور مغناطیسی ( $1/3 \mu_B$ ) کمتری نسبت به یون‌های Ni ( $2/3 \mu_B$ ) دارند. بنابراین جانشین شدن یون‌های نیکل با یون‌های مس سبب کاهش مغناطش اشباع می‌شود [۲۰-۲۲]. این نتیجه را می‌توان از روی منحنی‌های پسماند به ازای  $x=0/5$  نیز مشاهده کرد در  $x=0/5$  انتظار می‌رفت که مغناطش اشباع افزایش پیدا کند ولی در مقایسه با نمونه‌های شامل  $0/1$  مول مس مغناطش اشباع کاهش پیدا کرده است. علت این پدیده همان‌طور که اشاره شد مربوط به کاهش گشتاور مغناطیسی

#### واژه‌نامه

- |                             |                             |                                     |
|-----------------------------|-----------------------------|-------------------------------------|
| 1. multilayer chip inductor | 4. isomer shift             | 6. magnetic moment cross validation |
| 2. mössbauer spectra        | 5. saturation magnetization | 7. Levenberg- Marquart              |
| 3. transformer magnets      |                             |                                     |

#### مراجع

1. Smit, J., and Wijn, H. P. J., *Ferrites*, 3<sup>rd</sup> ed, p. 110, John Wiley, Sons, New York, 1959.
2. Tebble, R. S., and Craik, D. J. *Magnetic Materials*, 2<sup>nd</sup> ed, p. 231, Wiley-Interscience, New York, 1969.
3. Azadmanjiri, J., "Structural and Electromagnetic Properties of Ni-Zn Ferrites Prepared by Sol-Gel

- Combustion Method," *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 109, pp.109–112, 2008.
4. Li, B., Yue, Z. X., Qi, X. W., Zhou, J., Gui, Z. L., and Li, L.T., "High Mn Content NiCuZn Ferrite for Multiplayer Chip Inductor Application," *Materials Science and Engineering*, Vol. B99, pp. 252-/254, 2003.
  5. Wang, Sh., Zhou, H., and Luo, L., "Sintering and Crystallization of Cordierite Glass Ceramics for High Frequency Multilayer Chip Inductors," *Materials Research Bulletin*, Vol. 38, pp. 1367–1374, 2003.
  6. Krishnaveni, T., Kanth, B. R., Raju, V. S. R., and Murthy, S.R., "Fabrication of Multilayer Chip Inductors Using Ni–Cu–Zn Ferrites," *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 414, pp. 282–286, 2006.
  7. Roy, P.K., and Bera, J., "Characterization of Nanocrystalline NiCuZn Ferrite Powders Synthesized by sol–gel Auto-Combustion Method," *Journal of materials processing technology*, Vol. 197, pp. 279-283, 2008.
  8. Deka, S., and Joy, P.A., "Characterization of Nanosized NiZn Ferrite powders Synthesized by an Auto-Combustion Method," *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 100, pp. 98 –101, 2006.
  9. Verma, A., and Chatterjee, R., "Effect of Zinc Concentration on the Structural, Electrical and Magnetic Properties of Mixed Mn–Zn and Ni–Zn Ferrites Synthesized by the citrate precursor Technique," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 306, pp. 313–320, 2006.
  10. Ai, L., and Jiang, J., "Influence of Annealing Temperature on the Formation, Microstructure and Magnetic Properties of Spinel Nanocrystalline Cobalt Ferrites," *Current Applied Physics*, Vol. 10, pp. 284–288, 2010.
  11. Yu, L., Cao, Sh., Liu, Y., Wang, J., Jing, Ch., and Zhang, J., "Thermal and Structural Analysis on the Nanocrystalline NiCuZn Ferrite Synthesis in Different Atmospheres," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 301, pp. 100–106, 2006.
  12. Dimri, M.C., Verma, A., Kashyap, S.C., Dube, D.C., Thakur, O.P., and Prakash, Ch., "Structural Dielectric and Magnetic Properties of NiCuZn Ferrite," *Materials Science and Engineering*, Vol. B 133, pp. 42–48, 2006.
  13. Kaiser, M., "Magnetic and Dielectric Properties of Low Vanadium Doped Nickel–Zinc–Copper Ferrite," *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, Vol 17, pp. 1451-1457, 2010.
  14. Hoque, S. M., Choudhury, M. A., and Islam, M. F., "Characterization of Ni–Cu Mixed Spinel Ferrite," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 251, pp. 292–303, 2002.
  15. Gabal, M.A., and Angari, Y.M.Al "Low Temperature Synthesis of Nanocrystalline NiCuZn Ferrite and the Effect of Cr Substitution on its Electrical Properties," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol.332, pp. 3159–3165, 2010.
  16. Malik, R., Annapoorni, S., Lamba, S., Reddy, V. R., Gupta, A., Sharma, P., and Inoue, A., "Mössbauer and Magnetic Studies in Nickel Ferrite Nanoparticles:Effect of Size Distribution," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 332, pp. 3742-3747, 2010.
  17. Lagaec, K., and Rancourt, D.G., Recoil Mössbauer Spectra Analysis Software for Windos, Version 1/02, Department of Physics, University of Ottawa, 1998.
  18. Gabal, M.A., Al Angari, Y.M., and Al Juaid, S.S., "A Study on Cu Substituted Ni–Cu–Zn Ferrites Synthesized Using Egg-White," *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 492, pp. 411-415, 2010.
  19. Slama, J., Gruskova, A., Usakova, M., Usak, E., and Dosoudil, R., "Contribution to Snalysis of Cu Substituted NiZn ferrites," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 321, pp. 3346–3351, 2009.
  20. Gabal, M.A., and Bayoumy, W.A., "Effect of Composition on Structural and Magnetic Properties of Nanocrystalline Ni<sub>0.8-x</sub>Zn<sub>0.2</sub>Mg<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> Ferrite," *Polyhedron*, Vol. 29, pp. 2569–2573, 2010.
  21. Gabal, M.A., "Effect of Mg Substitution on the Magnetic Properties of NiCuZn Ferrite Nanoparticles Prepared Through a Novel Method Using Egg White," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 321, pp. 3144–3148, 2009.
  22. Reddy, M. P., Madhuri, W., Ramana, M.V., Reddy, N.R., SivaKumar, K.V., Murthy, V.R.K., SivaKumar, K., and Reddy, R.R., "Effect of Sintering Temperature on Structural and Magnetic Properties of NiCuZn and MgCuZn Ferrites," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol. 322, pp. 2819–2823. 2010.
  23. Roy, P.K., and Bera, J., "Characterization of Nanocrystalline NiCuZn Ferrite Powders Synthesized by Sol–Gel Auto-Combustion Method," *journal of materials processing technology*, Vol. 197, pp. 279-283, 2008.