

ساخت نانوساختارهای مغناطیسی ترکیب اکسید جدید Ni-Fe-Pb-Co به روش سل-ژل در حضور گاز آرگون و بررسی ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی آن

سید ابراهیم موسوی قهفرخی^{*}، معصومه غریب‌پور، خدیجه حلفی

گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه شهید چمران اهواز، اهواز، ایران

(دریافت مقاله: ۱۴۰۳/۸/۲۰، نسخه نهایی: ۱۴۰۳/۱۰/۲۹)

چکیده: این پژوهش بر ساخت و بررسی ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی اکسید مغناطیسی با ترکیب جدید Ni-Fe-Pb-Co سنتز شده به روش سل-ژل در حضور گاز آرگون متمرکز است. در این روش از نیتрат نیکل، نیترات آهن، نیترات سرب و نیترات کبالت به عنوان پیش ماده و اسید سیتریک به عنوان یک عامل شلات ساز، استفاده شده است. پایداری گرمایی ترکیب اکسید جدید Ni-Fe-Pb-Co با گرما وزن‌سنجی (TGA) ارزیابی شد. ویژگی‌های ساختاری با پراش‌سنج پرتو ایکس (XRD) و میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) بررسی گردیدند. از طیف‌سنجی تبدیل فوریه فروسرخ (FT-IR) برای بررسی پیوندهای شیمیایی ماده استفاده شد. ویژگی‌های مغناطیسی با یک مغناطیس سنج نمونه ارتعاشی (VSM) مشخص شد. نتایج نشان داد که با افزودن کبالت تا مقدار ۰/۵ به سامانه Ni-Fe-Pb آماده (Ni-Fe_{0.5}-Co_{0.5}-Pb) به مغناطش اشباع بالا ۸۲ emu/g می‌رسد. طیف‌های XRD نمونه‌ها، تشکیل یک اکسید چندجزئی را آشکار می‌کنند. تصاویر FESEM توزیع یکنواخت ذرات با تمایل به انباشت در دمای ۹۰۰°C را نشان می‌دهد. دمای کوری اکسید مغناطیسی ترکیب Ni-Fe_{0.5}-Co_{0.5}-Pb ساخته شده در دمای ۹۰۰°C با ترازوی فاراده اندازه‌گیری شد. برابر با ۷۷۱ K بدست آمد که مقداری مطلوب است.

واژه‌های کلیدی: اکسید مغناطیسی ترکیب Ni-Fe-Pb-Co؛ روش سل-ژل؛ ویژگی‌های ساختاری؛ ویژگی‌های مغناطیسی.

مقدمه

هر دو عنصر به دلیل ویژگی‌های فرومغناطیسی خود که در تشکیل آلیاژها و ترکیب‌های مغناطیسی نقش اساسی دارند، مشهور هستند. نیکل و آهن هنگامی که در یک چارچوب اکسید جاسازی می‌شوند، می‌توانند قدرت مغناطیسی قابل توجهی را ایجاد کنند که مشخصه آن افزایش وادارندگی و اشباع مغناطیسی است. این ویژگی‌ها باعث می‌شود که این مواد برای کاربردهای حسگر مغناطیسی و فناوری‌های ذخیره‌سازی مغناطیسی با چگالی بالا بسیار مناسب باشند. اکسیدهای Ni-Fe به دلیل ویژگی مغناطیسی خود به طور گسترده بررسی شده‌اند [۱، ۲]. بر نقش نیکل و آهن در

اکسیدهای مغناطیسی، به ویژه آن‌های شامل فلزهای واسطه، توجه قابل ملاحظه‌ای را در علم مواد به خود جلب کرده‌اند. این امر از کاربردهای گسترده آنها در حوزه‌هایی چون اسپینترونیک، ذخیره‌سازی داده با چگالی بالا، کاتالیز و فناوری‌های زیستی و پزشکی ناشی می‌شود. تعامل فلزهای واسطه در یک زمینه اکسیدی بی‌مانند، می‌تواند ویژگی‌های فیزیکی و مغناطیسی ویژه‌ای را در اکسیدهای فلزی مخلوط منجر شود. در این زمینه، نیکل (Ni) و آهن (Fe) به دلیل ویژگی‌های مغناطیسی ذاتی مورد توجه ویژه‌ای قرار گرفته‌اند.

^{*}نویسنده مسئول، تلفن: ۰۶۱۳۳۳۳۱۰۴۰، پست الکترونیکی: musavi_ebrahim@yahoo.co.uk

افزایش قدرت مغناطیسی تاکید شده است و این اکسیدها را به مواد آرمانی برای کاربرد در حسگرها و محرک‌های مغناطیسی تبدیل می‌سازند.

روش‌های سنتز، از جمله سل-ژل، که امکان کنترل دقیق ریزساختار اکسید و در نتیجه ویژگی‌های مغناطیسی آن را فراهم می‌کند، نیز بررسی شده‌اند [۳، ۴]. وجود سرب (Pb) در این ترکیب، اگرچه مستقیم ویژگی‌های مغناطیسی را بهبود نمی‌دهد، اما اثر آن بر ساختار الکترونیکی اکسید می‌تواند عمیق باشد و رسانندگی الکتریکی و رفتار کاتالیزوری آن را تعدیل کند. افزون بر این، سرب به دلیل نقطه ذوب پایین نسبت به سایر مواد تشکیل دهنده این ترکیب، باعث کاهش دمای تشکیل فاز می‌شود. یک عنصر غیرمغناطیسی در یک شبکه مغناطیسی زمینه گسترده‌ای برای اصلاح ویژگی‌های کلی مواد ارائه می‌دهد. پژوهش‌های بابیکر و همکاران [۵] نشان می‌دهد که چگونه سرب می‌تواند بر ویژگی‌های مغناطیسی آلیاژهای مغناطیسی اثر بگذارد و کاربردهایی را در فن‌آوری‌های کاتالیز و باتری پیشنهاد می‌کند. این یافته‌ها نشان می‌دهد که اجزای غیر مغناطیسی در آلیاژهای مغناطیسی می‌توانند به طور قابل توجهی به عملکرد کلی مواد کمک کنند [۵-۷].

یکی دیگر از راه‌های افزایش پیچیدگی و توانایی بیشتر به این سامانه، افزودن کبالت (Co) است. کبالت که به دلیل ماهیت فرومغناطیسی قوی خود شناخته شده است، می‌تواند به طور هم‌افزایی ویژگی‌های مغناطیسی اکسید Ni-Fe-Pb را بهبود بخشد. توانایی آن برای داشتن حالت‌های اسپینی مختلف و تعامل با سایر عناصر می‌تواند منجر به بهبود قابل توجهی در عملکرد کلی مغناطیسی آن شود. بررسی‌ها نشان داده است که ورود Co می‌تواند به طور چشمگیری پاسخ مغناطیسی این مواد را بهبود بخشد. بررسی اکسیدهای مغناطیسی همچنین نشان می‌دهد که Co می‌تواند حالت‌های اسپینی مختلفی ایجاد کند، که نقش مهمی در تنظیم رفتار مغناطیسی اکسیدها دارند [۸، ۹]. برای تولید اکسید مغناطیسی سه جزئی Ni-Co-Fe روش‌های متعددی چون، روش‌های مکانیکی [۱۰]، هم‌رسوبی [۱۱] و سل-ژل [۱۲] وجود دارد که در این پژوهش برای تهیه نانوساختارهای اکسید مغناطیسی Ni-Co-Fe از روش سل-ژل در حضور گاز آرگون استفاده شد. سنتز این سامانه اکسیدی چندوجهی به طور چشمگیری با روش سل-ژل

تسهیل می‌شود. این روش که به دلیل پردازش در دمای پایین آن شناخته شده است، امکان آمیختگی پیش سازها در سطح مولکولی را فراهم کرده و توزیع یکنواخت یون‌های فلزی مختلف را تضمین می‌کند. توانایی روش سل-ژل برای تنظیم دقیق تناسب عنصری و ریزساختار به ویژه برای ایجاد اکسیدهای چند جزئی پیچیده مفید است، به طوری که قرارگیری دقیق هر عنصر می‌تواند به شدت بر ویژگی‌های کلی ماده اثر بگذارد. فرآیند سل-ژل، به دلیل سنتز در دمای پایین و توانایی دستیابی به آمیختگی همگن پیش سازها برای تهیه اکسیدهای چندفلزی بررسی شده است [۱۳].

اثر دمای بازپخت بر اندازه بلور و ویژگی‌های مغناطیسی بر وابستگی دمایی مشخصه‌های این اکسیدها تأکید می‌کند. از این رو، برای کاربردهایی که نیاز به کنترل دقیق رفتار مغناطیسی دارند، باید سنتز مواد مدیریت دمایی دقیق شود. تراکم مشاهده شده در دماهای بالاتر می‌تواند بر ویژگی‌های مغناطیسی آن اثر بگذارد. این امر بر اهمیت بهینه سازی پارامترهای سنتز برای دستیابی به ریخت‌شناسی مورد نظر تأکید می‌کند. یافته‌های این پژوهش به ویژه برای طراحی مواد با ویژگی‌های مغناطیسی مناسب، پیامدهای نظری و عملی قابل توجهی دارد. ویژگی‌های مغناطیسی پیشرفته سامانه اکسید مغناطیسی Ni-Fe-Pb-Co راه‌هایی را برای کاربرد آن در زمینه‌های مختلف، از ذخیره‌سازی داده‌های با چگالی بالا تا کاربردهای زیستی و پزشکی باز می‌کند. در حالی که نتایج این پژوهش به نسبت امیدوارکننده هستند، نیاز به بررسی‌های بیشتر در مورد پایداری بلندمدت و پایداری زیست محیطی این مواد است. پژوهش‌های آینده باید مقیاس پذیری فرآیند سنتز و آثار زیست محیطی تولید در مقیاس بزرگ را بررسی کند. به طور کلی، تجزیه و تحلیل دقیق سامانه اکسید مغناطیسی ترکیب Ni-Fe-Pb-Co بینش قابل توجهی در مورد برهم‌کنش‌های هم‌افزایی در اکسیدهای مغناطیسی چندجزئی ارائه می‌دهد. این یافته‌ها نه تنها به پیشرفت علم مواد کمک می‌کنند، بلکه طیف گسترده‌ای از کاربردهای فناوری را پیشنهاد داده و اهمیت پژوهش‌های چند رشته‌ای در زمینه مواد پیشرفته را نشان می‌دهند. بر این اساس، اکسید مغناطیسی ترکیب Ni-Fe-Pb-Co به روش سل-ژل ساخته و ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی آن بررسی شد [۲، ۱۴، ۱۵]. ساخت اکسید ترکیب

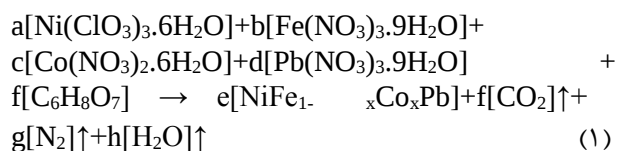
اسید سیتریک برای همه نمونه‌ها ثابت می‌ماند. این مقادیر در جدول ۱ ارائه شده است.

در این فرآیند، اسیدسیتریک به‌عنوان عامل کمپلکس‌کننده استفاده می‌گردد و نمونه‌ها با مقدار ۰/۸۸۸ گرم اسیدسیتریک و pH=۷ در دمای ۹۰۰°C در حضور گاز آرگون ساخته شدند. برای به‌دست آوردن ژل خیس از محلول تهیه شده، از یک حمام آب گرم در دمای ۸۰°C استفاده گردید. pH محلول نیز با افزودن آمونیاک برای همه نمونه‌ها در مقدار ۷ تنظیم شد. سپس ژل به‌دست آمده در کوره با دمای ۸۰°C قرار گرفت تا ژل مورد نظر خشک شود. سپس برای پخت نمونه‌های ساخته شده از کوره استوانه‌ای در حضور گاز آرگون استفاده شد و طرح‌واره‌ای از تهیه نمونه‌ها در شکل ۱ نشان داده شده است. پس از پخت نمونه‌ها در دمای ۹۰۰°C، ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی آن‌ها بررسی گردید (شکل ۲). وزن‌سنجی گرمای (TGA) با دستگاه Thermoanalyt STA 503/Bahr- انجام شد. ویژگی‌های ساختاری و ترکیب فازی آن‌ها با پراش‌سنج پرتوی ایکس (XRD) فیلیپس تعیین شد. طیف‌سنجی تبدیل فوریه - فروسرخ (FT-IR) با دستگاه BOMEN/MB102 برای تعیین ترکیب براساس نوع پیوندها، انجام شد. میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) مدل MIRA3 برای مشاهده ریختار و توزیع اندازه ذرات استفاده شد. ویژگی‌های مغناطیسی، از جمله مغناطش اشباع (M_s)، وادارندگی مغناطیسی (H_c)، مغناطش مانده (M_r) و ثابت ناهمسانگردی (k) با مغناطیس سنج نمونه ارتعاشی (VSM) در دمای اتاق اندازه‌گیری گردید. همچنین برای اندازه‌گیری دمای کوری از ترازوی فارادی استفاده شد.

Ni-Fe-Pb-Co در حضور گاز آرگون تاکنون انجام نشده است. به دلیل کنترل اکسیژن در فرآیند پخت توسط گاز آرگون، فازهایی چون اکسیدهای فلزی، آلیاژها و فریت‌های مغناطیسی تشکیل گردیده است. از آنجاکه آلیاژها و فریت‌های مغناطیسی مغناطش اشباع بالا (۸۲ emu/g) و دمای کوری مطلوب (۷۷۱ K) در مقایسه با اکسیدها دارند ترکیب‌های ساخته شده در این پژوهش دارای فازهای مغناطیسی می‌توانند در بیشتر صنایع از جمله الکترونیکی، مخابراتی و پزشکی کاربرد داشته باشند.

مواد و روش‌ها

برای تهیه نانوساختارهای اکسید مغناطیسی ترکیب جدید با مقادیر مختلف کبالت (۰/۱، ۰/۳، ۰/۵، ۰/۷، ۰/۹) به روش سل-ژل، از کلرید نیکل ۶ آبه ($\text{Ni}(\text{ClO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)، نیترات آهن ۹ آبه ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$)، نیترات کبالت ۶ آبه ($\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) و نیترات سرب ($\text{Pb}(\text{NO}_3)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) به عنوان مواد اولیه استفاده شد. مقادیر مواد اولیه لازم برای تولید یک گرم از فراورده پایانی براساس واکنش شیمیایی اصلی موازنه شده (رابطه ۱) محاسبه شدند (رابطه ۲).



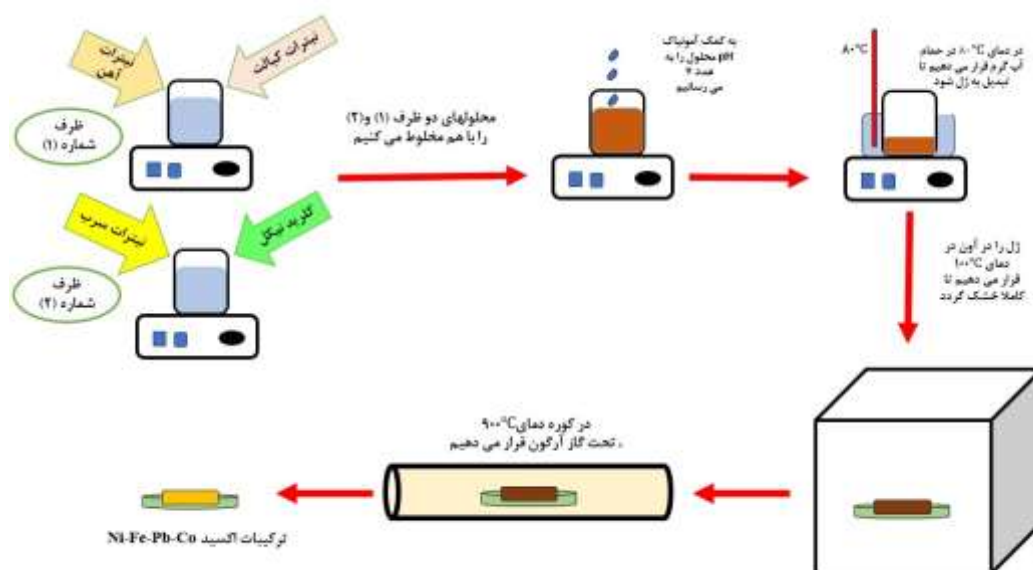
$$\text{ضریب در واکنش شیمیایی X جرم مولی ماده اولیه} = \frac{\text{مقدار ماده اولیه بر حسب گرم}}{\text{ضریب در واکنش شیمیایی X جرم مولی ماده محصول}} \quad (2)$$

(برای تهیه یک گرم محصول)

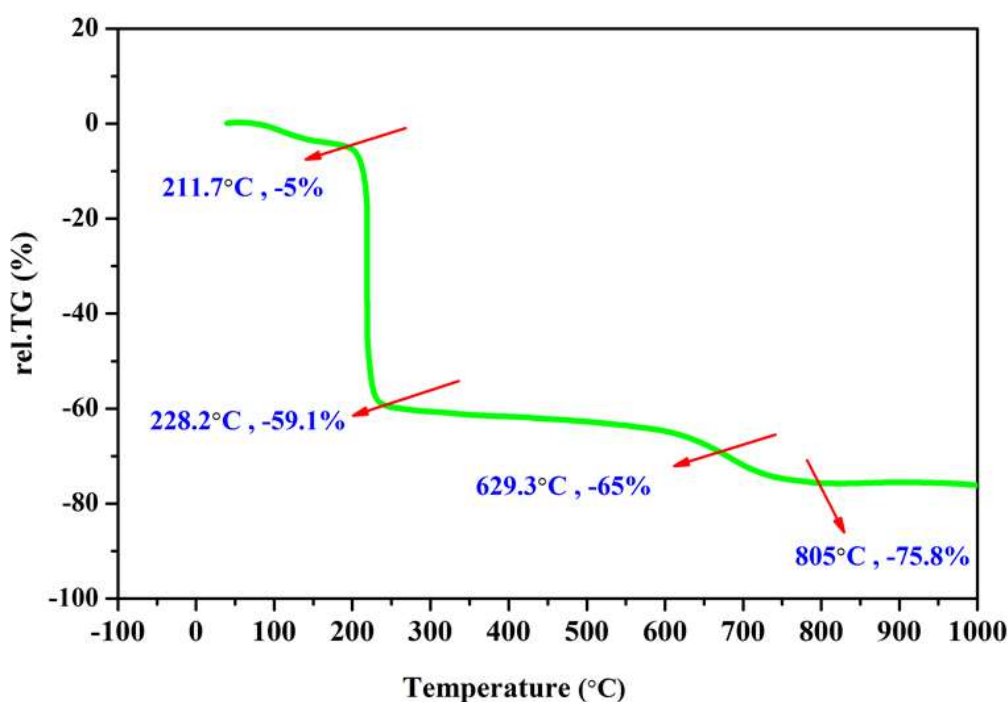
محاسبات نشان می‌دهند که با افزایش درصد کبالت در ترکیب، مقدار نیترات آهن به تدریج کاهش و مقدار نیترات کبالت افزایش می‌یابد، درحالی‌که مقادیر نیترات نیکل، نیترات سرب و

جدول ۱ مواد اولیه برای سنتز ۲ گرم از ترکیب‌های اکسید Ni-Fe-Pb-Co با مقادیر مختلف کبالت.

C ₆ H ₈ O ₇ (گرم)	Pb(NO ₃) ₂ ·9H ₂ O (گرم)	Co(NO ₃) ₂ ·6H ₂ O (گرم)	Fe(NO ₃) ₃ ·9H ₂ O (گرم)	Ni(ClO ₃) ₃ ·6H ₂ O (گرم)	(مقدار Co)
۰/۸	۰/۶۲۳	۰/۱۵۶	۰/۹۸۷	۰/۲۳۴	۰/۱
۰/۸	۰/۶۲۳	۰/۱۶۸	۰/۷۶۸	۰/۲۳۴	۰/۳
۰/۸	۰/۶۲۳	۰/۲۸۰	۰/۵۴۹	۰/۲۳۴	۰/۵
۰/۸	۰/۶۲۳	۰/۳۹۲	۰/۳۳۰	۰/۲۳۴	۰/۷
۰/۸	۰/۶۲۳	۰/۵۰۴	۰/۱۱۰	۰/۲۳۴	۰/۹



شکل ۱ طرح‌واره‌ای از مراحل ساخت ترکیب‌های اکسید Ni-Fe-Pb-Co.



شکل ۲ منحنی TGA ژل خشک ترکیب $\text{Ni-Fe}_{0.5} - \text{Co}_{0.5} - \text{Pb}$.

نتایج و بحث

شکل ۲ نمودار TGA ژل خشک اکسیدمغناطیسی ترکیب Ni-Fe-Pb-Co را نشان می‌دهد. منحنی آزمون توزین گرمایی نشانگر تغییرات دمایی جرم است و می‌توان براساس تغییرات جرم نسبت به دمای اعمال شده، به گستره دمایی مناسب برای پخت نمونه دست یافت و این رفتارهای گرمایی برای درک

پایداری مواد حیاتی هستند. دیده می‌شود که نخستین مرحله کاهش جرم در نزدیکی 100°C به دلیل از دست دادن آب است. دومین مرحله کاهش جرم در گستره دمایی 170°C تا 200°C ناشی از سوختن اسید سیتریک و ترکیب‌های آلی موجود در نمونه است. سومین مرحله کاهش در گستره دمایی 200°C تا 228°C ناشی از تجزیه کامل نیترات‌هاست. چهارمین

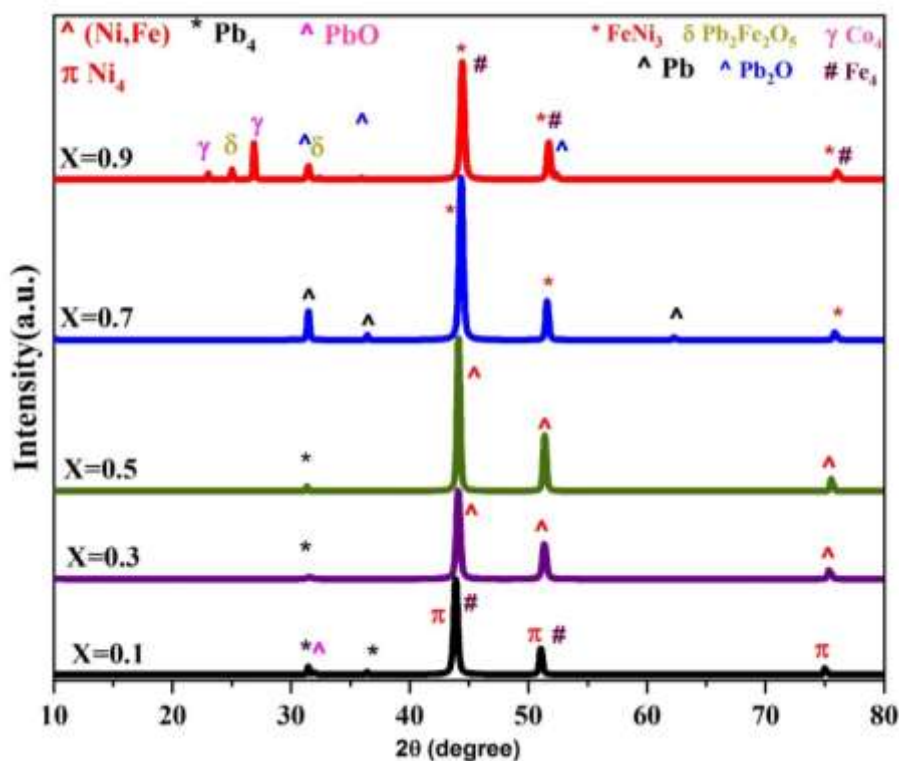
به FeNi_3 ، ۰۱-۰۸۷-۰۶۶۳ مربوط به Pb و ۰۰۷۳۶-۰۱۲-۰۰ مربوط به Ni, Fe همخوانی دارند.

الگوهای XRD با قله‌های مشخصه فازهایی را نشان می‌دهند که تشکیل یک اکسید چندجزئی را تأیید می‌کند. شدت این قله‌ها نشان‌دهنده درجه بالایی از بلورینگی است که با یافته‌های پژوهش‌های مشابه همخوانی دارد [۳، ۱۷]. همچنین بلورینگی در دمای بازپخت بالا نشان دهنده اثر گرمایی بر رشد بلوری است که با رفتار مشابه گزارش شده برای اکسیدهای مغناطیسی بر پایه سرب [۵] همخوانی دارد.

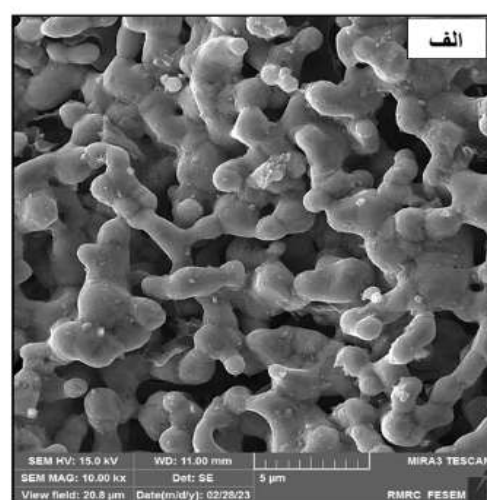
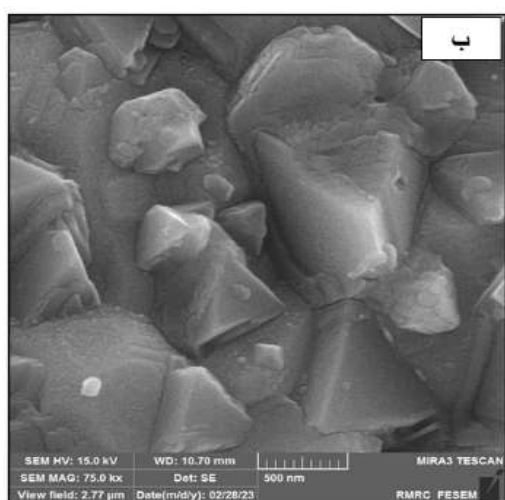
به منظور ریخت‌شناسی ترکیب‌های اکسید Ni-Fe-Pb-Co با مقادیر کبالت ۰٫۱، ۰٫۳، ۰٫۵، ۰٫۷ و ۰٫۹ تهیه شده در دمای پخت ۹۰۰ °C و با مقدار ۰٫۸۸۸ گرم اسید سیتریک، از میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی استفاده شد و تصاویر با مقیاس نانومتری و میکرومتری در شکل‌های ۴ تا ۸ نشان داده شده است.

مرحله کاهش از ۲۲۸ تا ۶۲۹°C با شیب ملایم، مربوط به شروع تشکیل بعضی از اکسیدها و فریت‌هاست و در پنجمین مرحله کاهش از ۶۲۹ تا ۸۰۵°C، برخی از عناصر از بین رفته-اند و آلیاژهای مغناطیسی در حال تشکیل هستند. از ۸۰۵°C به بعد، جرم تغییر محسوسی را تجربه نکرده و روند ثابتی را در پیش گرفته است. این ثابت بودن جرم نشان دهنده تشکیل فازهای اصلی از نانوذرات اکسیدمغناطیسی ترکیب Ni-Fe-Pb-Co است [۱۶].

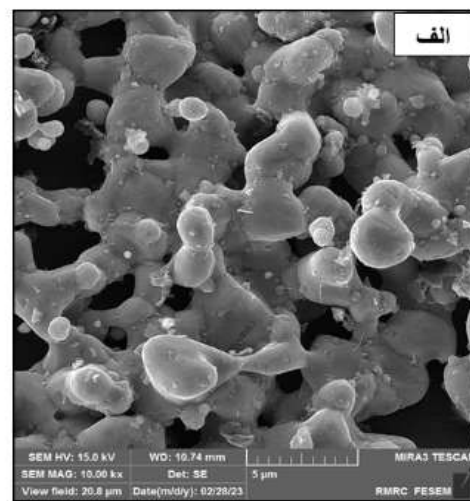
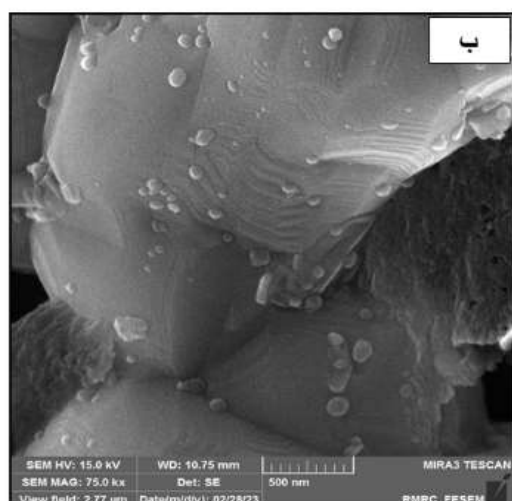
به منظور بررسی اثر افزودن کبالت به جای آهن با مقادیر ۰/۳، ۰/۵، ۰/۷ و ۰/۹ الگوهای XRD نمونه‌ها تهیه گردید که در شکل ۳ نشان داده شده اند. همه الگوها با کارت‌های استاندارد JCPDS با شماره‌های ۰۵۶۱-۰۰-۰۵ مربوط به PbO ، ۰۵۶۱-۰۰-۰۵ مربوط به Fe_4 ، ۲۵۳۱-۱۵۱-۹۶ مربوط به Pb_4 ، ۰۰-۰۹ مربوط به Ni ، ۰۴۸ مربوط به $\text{Pb}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$ ، ۰۸۰۶-۰۰-۱۵ مربوط به Co_4 ، ۰۷۹۰-۰۰-۲۲ مربوط به Pb_2O ، ۰۳۸-۰۰-۴۱۹ مربوط



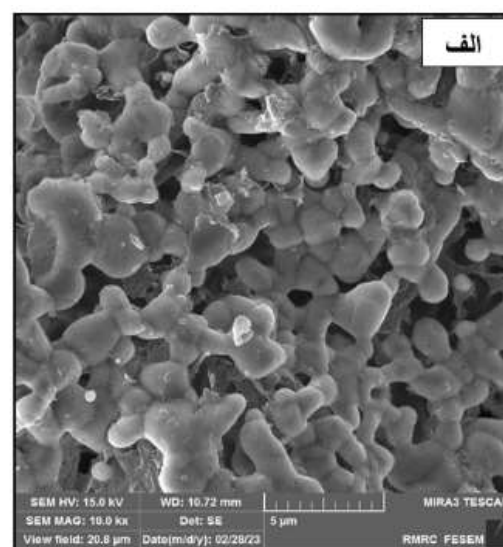
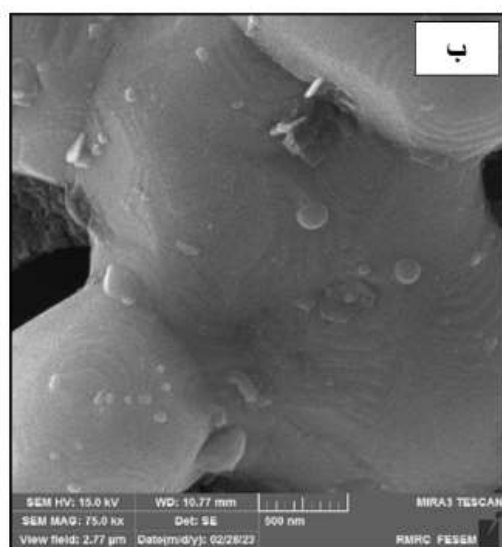
شکل ۳ گِوه‌های پیراش ترکیب اکسید Ni-Fe-Pb-Co آلاینش داده شده با مقادیر کبالت، ۰/۱، ۰/۳، ۰/۵، ۰/۷ و ۰/۹.



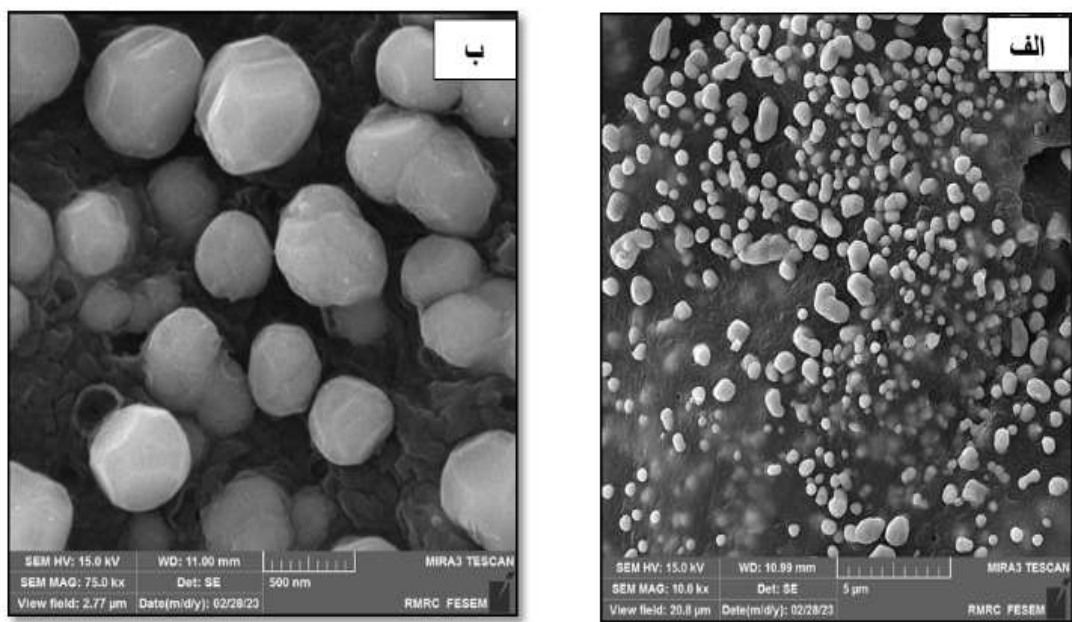
شکل ۴ تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی نمونه آرایش داده شده با ۰/۱ کبالت در مقیاس الف) میکرومتر و ب) نانومتر.



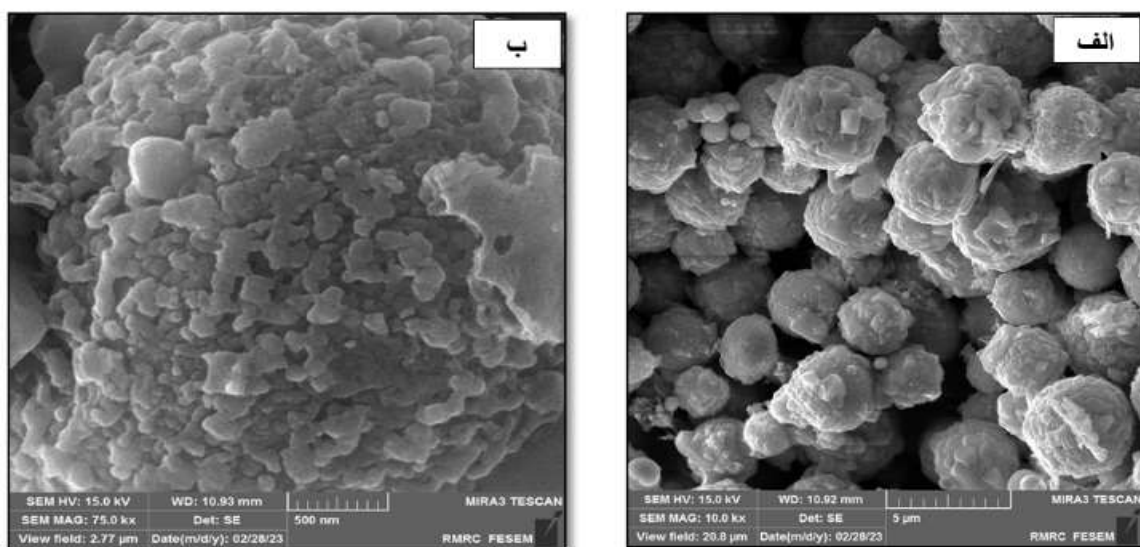
شکل ۵ تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی نمونه آرایش داده شده با ۰/۳ کبالت در مقیاس الف) میکرومتر و ب) نانومتر.



شکل ۶ تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی نمونه آرایش داده شده با ۰/۵ کبالت در مقیاس الف) میکرومتر و ب) نانومتر.



شکل ۷ تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی نمونه آلیش داده شده با ۰/۷ کبالت (الف) محدوده میکرومتر (ب) محدوده نانومتر.



شکل ۸ تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی نمونه آلیش داده شده با ۰/۹ کبالت در مقیاس (الف) میکرومتر و (ب) نانومتر.

بعضی از آن‌ها در گستره نانومتر و برخی در حد میکرون هستند. اندازه ذرات در نمونه با مقدار کبالت ۰/۵ بیشترین مقدار خود را دارد و حدود ۲ میکرون است.

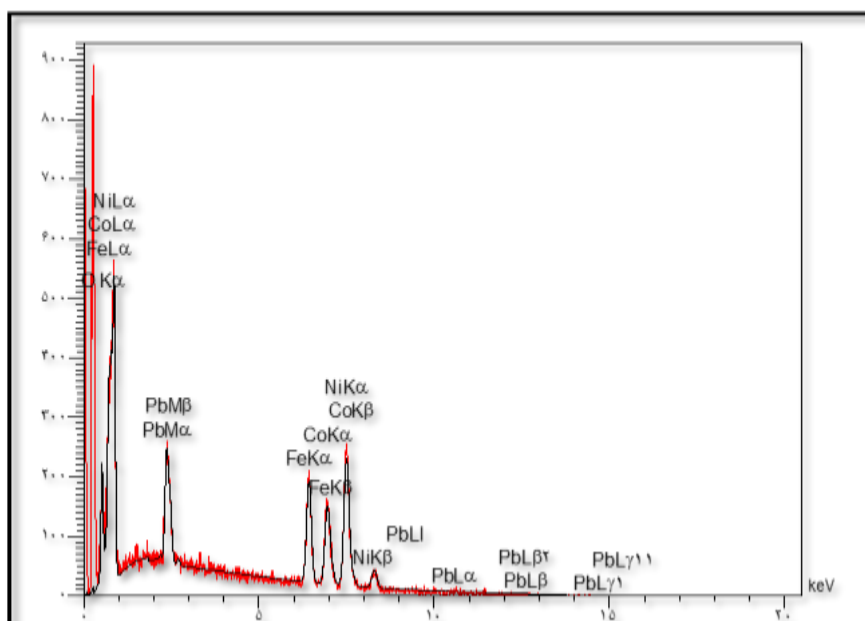
از طیف‌سنجی جرمی برای تشخیص این که آیا ناخالصی در ترکیب وارد شده یا نه استفاده شد. برای ترکیب $\text{Co}_{0.5} - \text{Pb}$ و $\text{Ni} - \text{Fe}_{0.5}$ ، تصاویر نگاشت تهیه گردید. درصد اتمی و وزنی عناصر موجود، طیف پراکندگی انرژی پرتوی EDX و تصاویر نگاشت ترکیب $\text{Ni} - \text{Fe}_{0.5} - \text{Co}_{0.5} - \text{Pb}$ با دمای پخت

از تصاویر FESEM دیده می‌شود که همه نمونه‌ها در این دما دچار ذوب‌شدگی جزئی شده‌اند و همچنین انباشت ذرات نمایان است. بر پایه تصاویر با مقیاس نانومتر، دانه‌ها دارای ساختاری چندوجهی هستند که می‌تواند به دلیل وجود نقص‌های ساختاری در دانه‌ها باشد. آلیش کبالت می‌تواند بر ریخت‌شناسی دانه‌ها اثر بگذارد که یکی از این آثار می‌تواند افزایش اندازه دانه‌ها باشد [۱۸]. از شکل‌های ۴ تا ۸ دیده می‌شود که اندازه ذرات بزرگ با ریخت‌شناسی متفاوت است که

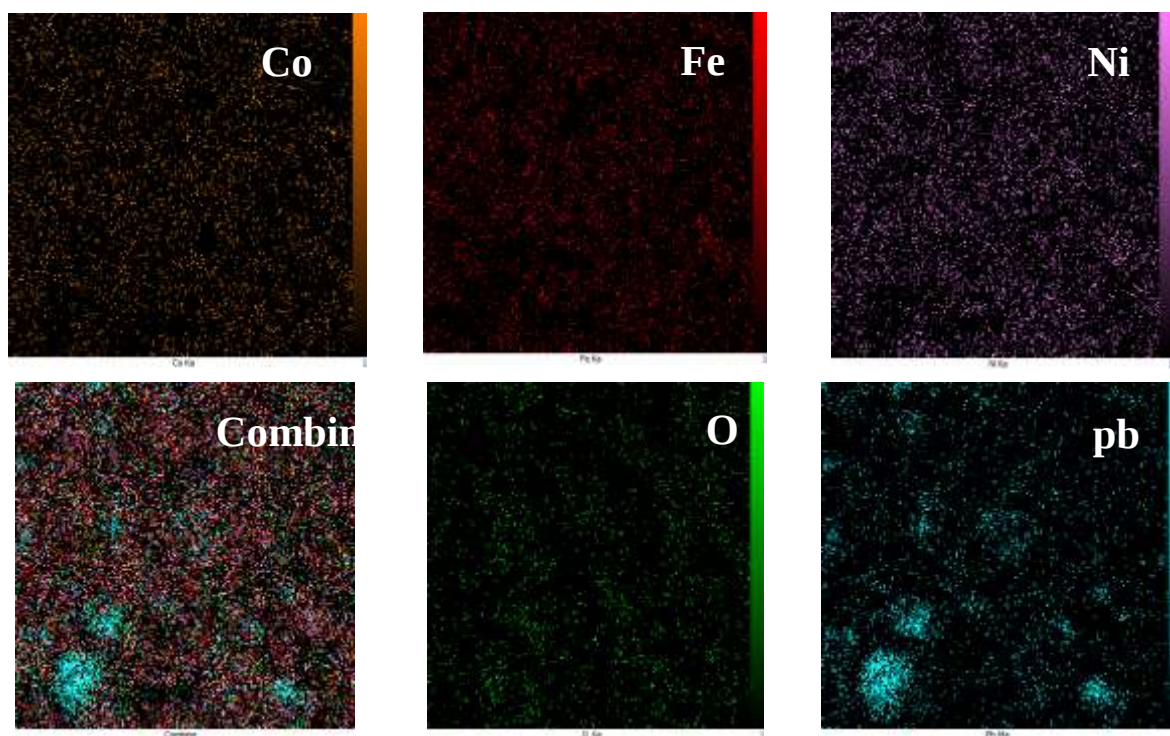
Pb و به‌طور مساوی بین ذرات ترکیب Ni-Fe-Pb-Co توزیع شده‌اند. در نگاشت نمونه‌ها دیده می‌شود که Co به‌طور یکنواخت در ترکیب Ni-Fe-Pb-Co توزیع شده است. توزیع همگن Co بین ذرات اکسید می‌تواند مربوط به ویژگی‌های شیمیایی و فیزیکی کبالت و آهن باشد.

۹۰۰°C و مقدار ۰/۸۸۸ گرم اسیدسیتریک به‌ترتیب در شکل-های ۹ و ۱۰ و جدول ۲ ارائه شده‌اند [۱۹].

از تصاویر نگاشت ترکیب Ni-Fe_{0.5} - Co_{0.5} - Pb (شکل ۱۰) دیده می‌شود که Co و Pb، Ni، Fe به‌صورت یکنواخت در کل نمونه توزیع شده‌اند. این امر نشان می‌دهد که Ni، Fe



شکل ۹ طیف EDx ترکیب Ni-Fe_{0.5} - Co_{0.5} - Pb.



شکل ۱۰ تصاویر نگاشت ترکیب Ni-Fe_{0.5} - Co_{0.5} - Pb.

جدول ۲ درصد اتمی و وزنی عناصر موجود در ترکیب $\text{Ni-Fe}_{0.5}\text{-Co}_{0.5}\text{-Pb}$.

عناصر	درصد اتمی	درصد وزنی
نیکل	۳۳٫۹	۳۹٫۸۹
آهن	۱۶٫۰۸	۱۷٫۹۹
کبالت	۱۵٫۷۶	۱۸٫۶۲
سرب	۳٫۲۷	۱۳٫۵۷
اکسیژن	۳۰٫۹۹	۹٫۹۳

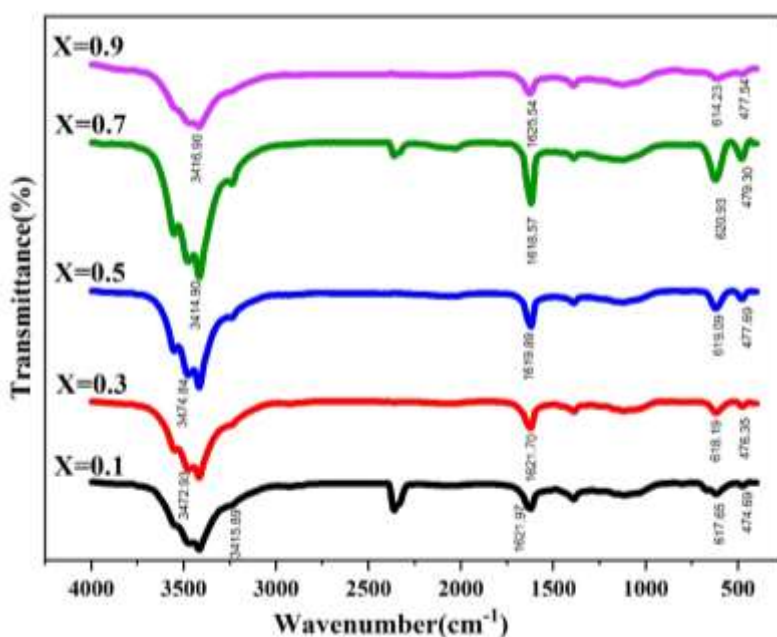
۱۵۰۰۰ Oe بررسی شد. رفتار فرومغناطیسی همه نمونه‌ها با این اندازه‌گیری‌ها تایید شد. شکل ۱۲ حلقه‌های پسماند نمونه‌ها با دمای پخت 900°C و 0.888 گرم اسید سیتریک را نشان می‌دهد. نتایج نشان دهنده بهبود مغناطش اشباع با افزودن Co است. مقادیر مغناطش اشباع (M_s)، مغناطش مانده (M_r)، وادارندگی مغناطیسی (H_c) از حلقه پسماند و مقدار ثابت ناهمسانگردی مغناطو بلورین (K) برای نانوساختارهای ترکیب Ni-Fe-Pb-Co با مقادیر مختلف کبالت تهیه‌شده با 0.888 گرم اسیدسیتریک و دمای پخت 900°C از رابطه زیر محاسبه شد و نتایج در جدول ۳ آورده شده است.

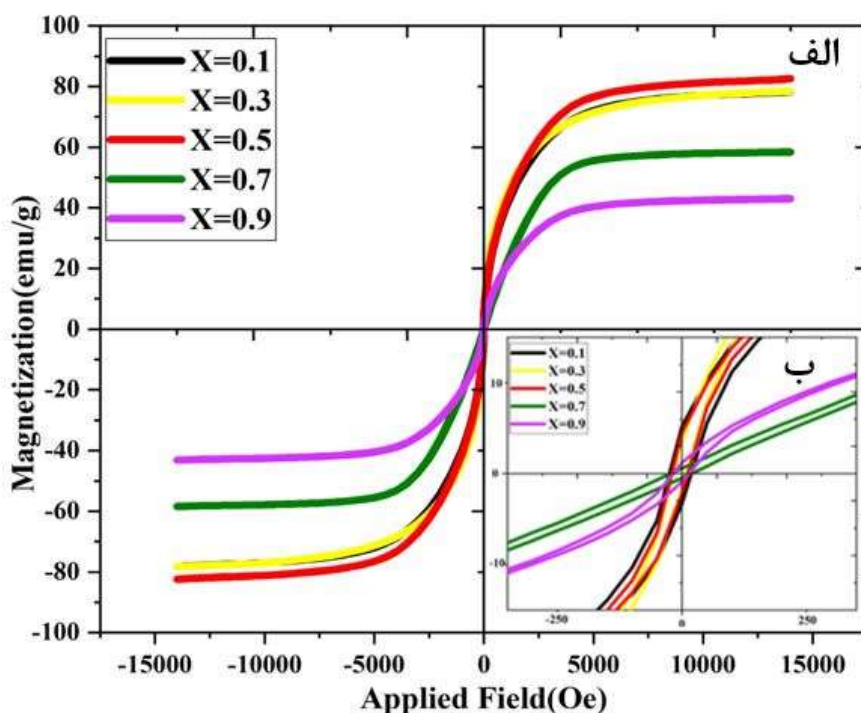
$$K = M_s \frac{\bar{H}_c}{0.96} \quad (3)$$

با توجه با مقادیر بالای مغناطش اشباع و مقادیر کم مغناطش مانده برای همه نمونه‌های آلایش یافته با کبالت در این پژوهش می‌توان نتیجه گرفت که این نمونه‌ها از مواد مغناطیسی نرم هستند که کاربردهای گسترده‌ای در فیزیک، علوم مهندسی، صنعت و فناوری و همچنین علوم پزشکی و داروسازی دارند [۲۲، ۲۳].

طیف‌سنجی FT-IR گروه‌های عاملی و نوع پیوند در مولکول را مشخص می‌کند. شکل ۱۱ طیف مربوط به ترکیب‌های اکسید Ni-Fe-Pb-Co برای مقادیر کبالت 0.1 ، 0.3 ، 0.5 ، 0.7 و 0.9 را در گستره عدد موج $4000 - 400 \text{ cm}^{-1}$ نشان می‌دهد. در فاصله $600 - 400 \text{ cm}^{-1}$ دو قله پهن اصلی پیوند اکسیژن-فلز در نمونه‌های تهیه شده دیده می‌شود که برای اعتبارسنجی ساختار شیمیایی اکسید بسیار مهم است. قله بزرگتر در منطقه 600 cm^{-1} مربوط به ارتعاش‌های کششی چاروجهی پیوند اکسیژن-فلز و قله کوچکتر در اعداد موج 477 ، 479 و 474 cm^{-1} مربوط به ارتعاش‌های جایگاه‌های هشت وجهی اکسیژن-فلز هستند. همچنین در این شکل ارتعاش‌های کششی مربوط به O-H در حدود 3400 cm^{-1} دیده می‌شود و قله ظاهرشده در حدود 1600 cm^{-1} مربوط به مد خمشی گروه‌های کربوکسیل است [۲۰، ۲۱].

ویژگی‌های مغناطیسی نانوساختارهای ترکیب اکسید جدید Ni-Fe-Pb-Co به طور گسترده با یک مغناطیس سنج نمونه ارتعاشی (VSM) در دمای اتاق، با میدان مغناطیسی اعمالی تا

شکل ۱۱ طیف FT-IR ترکیب‌های اکسید Ni-Fe-Pb-Co با مقادیر مختلف کبالت.



شکل ۱۲ الف) حلقه‌های پسماند ترکیب‌های اکسید Ni-Fe-Pb-Co با مقادیر کبالت ۰/۱، ۰/۳، ۰/۵، ۰/۷ و ۰/۹ (ب) بازرسیم حلقه‌های پسماند با مقیاس متفاوت به منظور تعیین مغناطش مانده و میدان واگردان.

جدول ۳ مشخصه‌های مغناطیسی ترکیب‌های اکسید Ni-Fe-Pb-Co با مقادیر کبالت ۰/۱، ۰/۳، ۰/۵، ۰/۷ و ۰/۹.

مقدار X	M_s (emu/g)	M_r (emu/g)	H_c (Oe)	K (emu/g)
۰/۱	۷۸	۵/۱۸	۵۰	۴۰۶۲/۵
۰/۳	۷۷	۳/۶۴	۵۰	۴۰۱۰/۵
۰/۵	۸۲	۴/۵	۵۰	۴۲۷۰/۸
۰/۷	۵۸	۱	۵۰	۳۰۲۰/۸
۰/۹	۴۲	۱/۲	۵۰	۲۱۸۷/۵

از فازهای با ویژگی‌های مغناطیسی قویتر باشد (نمونه با مقدار کبالت ۰/۵ در شکل ۱۳ را ببینید). عامل دیگر این است که کبالت می‌تواند منجر به افزایش اندازه دانه‌ها شود. ذرات بزرگتر دارای نسبت سطح به حجم کمتری هستند و از این رو اثر لایه مرده کمتری دارند. (لایه مرده یک لایه نازک از اتم‌های سطحی است که به دلیل ساختار نامنظم خود ویژگی‌های مغناطیسی متفاوتی نسبت به هسته ذره دارد). کاهش اثر لایه مرده منجر به افزایش M_s می‌شود. با توجه به درصد فازهای نمونه‌ی آرایش یافته با مقدار کبالت ۰/۵، برآمده از الگو پراش، درصد فازهای Ni، Fe و FNi_3 که مغناطش بیشتری دارند و بزرگ بودن

دیده می‌شود که با افزودن کبالت تا مقدار ۰/۵ مغناطش نمونه‌ها افزایش یافته است، ولی برای مقادیر بالاتر از ۰/۵ (نمونه با ۰/۹ کبالت) مغناطش نمونه‌ها دوباره کاهش یافته است. علت آن است که نخست با افزایش مقدار کبالت (نمونه با مقدار کبالت ۰/۵) بیشتر فازهای با مغناطش بالا چون آلیاژهای مغناطیسی Ni، Fe و $FeNi_3$ شکل گرفته‌اند و برای مقادیر بالاتر از ۰/۵ (نمونه با ۰/۹ کبالت) فازهای با مغناطش کمتر چون Pb، PbO_2 و $Pb_2Fe_2O_5$ تشکیل شده‌اند.

با توجه به جدول ۳، مغناطش اشباع (M_s) نمونه‌ها با افزایش آرایش کبالت تا ۰/۵ افزایش و سپس کاهش می‌یابد. این افزایش می‌تواند به دلیل وجود درصد بیشتری

این که مغناطش در نزدیکی دمای کوری به سرعت کاهش می‌یابد، بخش‌های گرمایی و سرمایی نمودار بر هم منطبق هستند [۲۶، ۲۷]. مواد مغناطیسی بر اساس قطر بحرانی خود به دو نوع تک حوزه و چند حوزه مغناطیسی تقسیم می‌شوند. قطر بحرانی (D_C) از رابطه زیر به دست می‌آید که

$$D_C = \frac{9\sigma_W}{2\pi M_S^2} \quad (۴)$$

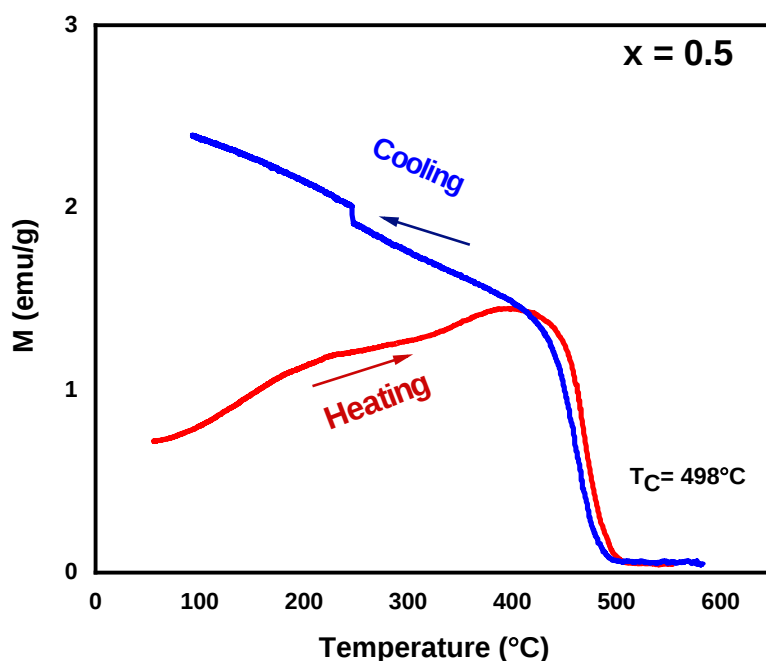
در این رابطه، σ_W انرژی دیواره حوزه است که براساس رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$\sigma_W = \left(\frac{2K_b T_C |K|}{a} \right)^{1/2} \quad (۵)$$

در رابطه بالا، K ثابت همسانگردی است که از رابطه (۳) به دست می‌آید، K_b ثابت بولتزمن، T_C دمای کوری بر حسب کلین است. همچنین a ثابت شبکه بوده که برای نمونه با مقدار کبالت ۰/۵ برابر با ۸/۳۴۰ آنگسترم است. اگر اندازه متوسط ذرات بزرگتر از قطر بحرانی باشد، ماده مغناطیسی چند حوزه‌ای است و اگر اندازه متوسط ذرات کمتر از قطر بحرانی باشد، ماده مغناطیسی تک حوزه است. از آنجا که اندازه متوسط ذرات و قطر بحرانی ترکیب $\text{Ni-Fe}_{0.5} - \text{Co}_{0.5} - \text{Pb}$ به ترتیب برابر با ۲ میکرون و ۲۵۰ نانو هستند، ترکیب $\text{Ni-Fe}_{0.5} - \text{Co}_{0.5} - \text{Pb}$ در این پژوهش یک ترکیب چندحوزه مغناطیسی است [۲۸، ۲۹].

اندازه ذرات مغناطش اشباع بیشتری نسبت به سایر نمونه‌ها دارد [۲۴، ۲۵].

از دیگر مشخصه‌های مهم اکسیدهای مغناطیسی، دمای کوری آن‌هاست. زیر این دما، مغناطش ماده غیر صفر است و با افزایش دمای ماده فرو (فری) مغناطیسی، انرژی گرمایی موجب افت و خیز دوقطبی‌های مغناطیسی پیرامون محور قطبش شده و در نتیجه مغناطش خالص شروع به کاهش می‌کند تا در دمای کوری مغناطش خالص صفر شود. به بیان دیگر، در دماهای بالای دمای کوری، مواد فرو و فری مغناطیس، مغناطش خودبه‌خودی نشان نمی‌دهند، اما از آنجا که دارای گشتاور مغناطیسی دائمی هستند، در حضور میدان‌های خارجی، ویژگی‌های پارامغناطیسی بروز می‌دهند. ماده مغناطیسی با دمای کوری پایین‌تر از دمای اتاق در عمل کاربرد چندانی در صنعت ندارد، به منظور احیای ویژگی مغناطیسی و افزایش دمای کوری، باید ماده را درون میدان مغناطیسی خارجی قرار داد. با استفاده از ترازوی فاراده دمای کوری ترکیب $\text{Ni-Fe}_{0.5} - \text{Co}_{0.5} - \text{Pb}$ اندازه‌گیری شد و نمودار آن در شکل ۱۳ نشان داده شده است. دیده می‌شود که بخش‌های گرمایی و سرمایی نمودار مغناطش نسبت به دما ($M-T$) بر هم منطبق نیستند. از این رو اکسیدهای مغناطیسی ساخته شده در این پژوهش از نوع ناپایدار هستند، زیرا در اکسیدهای مغناطیسی پایدار، افزون بر



شکل ۱۳ نمودار تغییرات دمایی مغناطش ترکیب $\text{Ni-Fe}_{0.5} - \text{Co}_{0.5} - \text{Pb}$.

برداشت

در این پژوهش، نانوساختارهای مغناطیسی ترکیب اکسید جدید Ni-Fe-Pb-Co با مقادیر کبالت ۰/۱، ۰/۳، ۰/۵، ۰/۷ و ۰/۹ به روش سل-ژل در حضور گاز آرگون ساخته و ویژگی‌های ساختاری و مغناطیسی آن‌ها بررسی شد. ویژگی‌های مغناطیسی آنها با یک مغناطیس سنج نمونه ارتعاشی (VSM) مشخص شد و نتایج نشان داد که با افزودن کبالت تا مقدار ۰/۵ به سامانه Ni-Fe-Pb مغناطش اشباع افزایش می‌یابد. تجزیه و تحلیل الگوهای پراش نمونه‌ها تشکیل یک اکسید چندجزئی را نشان دادند. تصاویر FESEM توزیع یکنواخت ذرات با تمایل به انباشت در دمای ۹۰۰°C را نشان دادند. دمای کوری نانوساختارهای اکسید مغناطیسی ترکیب Ni-Co_{0.5}-Pb-Fe_{0.5} ساخته شده در دمای ۹۰۰°C با استفاده از ترازوی فاراده حدود ۷۷۱ کلوین اندازه‌گیری گردید. براساس ویژگی‌های مغناطیسی، ترکیب Ni-Fe_{0.5}-Co_{0.5}-Pb با مغناطش اشباع ۸۲ emu/g چندحوزه مغناطیسی است. اکسیدهای مغناطیسی چندجزئی تهیه شده با این مقدار مغناطش اشباع و دمای کوری برای کاربردهای پیشرفته چون ذخیره‌سازی داده‌های مغناطیسی، حسگرها، کاربردهای زیستی و پزشکی و همچنین حوزه علم مواد کاربرد گسترده دارند.

قدردانی

این پژوهش به کمک دانشگاه شهید چمران اهواز، ایران (SCU.SP1403.130) پشتیبانی شده است.

مراجع

- Chem. C, 126 (2022) 9998–10006.(DIO: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.2c02738>)
- [4] Mousavi Ghahfarokhi S. E., Ahmadi M., Kazeminezhad I., “The effect of doping of Mn on structural and magnetic properties of the strontium hexaferrite nanoparticles”, Iranian Journal of Crystallography and Mineralogy, 27, (2019) 245-254.(DIO: 10.29252/ijcm.27.1.245)
- [5] Babiker S., Gao G., Yao KL., “First-Principle Calculation of Electronic Structures and Magnetic Properties of Heusler Alloys Co₂ZrPb and Zr₂MnBa”, Journal of Superconductivity and Novel Magnetism, 31 (2018) 905–913.(DIO: <https://doi.org/10.1007/s10948-017-4239-6>).
- [6] Rostami Z.A., Mousavi Ghahfarokhi S.E., Kazeminezhad I., “Effect of Fe/Pb molar ratio on the structure, magnetic and dielectric properties of PbFe₁₂O₁₉ nanoparticles”, Chinese Journal of Physics, 56 (2018) 760–769 . (DIO: <https://doi.org/10.1016/j.cjph.2018.01.005>Get rights and content)
- [7] Mousavi Ghahfarokhi S.E., Rostami Z. A., Kazeminezhad I., “Fabrication of PbFe₁₂O₁₉ nanoparticles and study of their structural, magnetic and dielectric properties”, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 39 (2016) 130–142. (DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.09.063>)
- [8] Mousavi Ghahfarokhi S.E., Ahmadi M., Kazeminezhad I., “Effects of Bi³⁺ substitution on structural, morphological and magnetic properties of Cobalt ferrite nanoparticles”, Journal of superconductivity and novel magnetism, 32 (2019) 3251-3263. (DIO: <https://doi.org/10.1007/s10948-019-5058-8>)
- [9] Abraham A.G., Manikandan A., Manikandan E., Vadivel S., Jaganathan S. K., Baykal A., Sri Renganathan P., “Enhanced magneto-optical and photo-catalytic properties of transition metal cobalt (Co²⁺ ions) doped spinel MgFe₂O₄ ferrite nanocomposites”, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 452 (2018) 380-388. (DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2018.01.001>)
- [10] Zargar Shoushtri M., Moradian E., Kazmininejad I., “Fabrication of Fe_{0.8}Ni_{0.2} alloy by mechanical alloying method and investigating the effect of alloying Cobalt on its structural and
- [1] Hashhash A., Kaiser M., “Influence of Ce-Substitution on Structural, Magnetic and Electrical Properties of Cobalt Ferrite nanoparticles”, Journal of Electronic materials, 45 (2016) 321-329. (DIO: <https://doi.org/10.1007/s11664-015-4125-6>)
- [2] Hochepiet J. F., Pileni M. P., “Magnetic properties of mixed cobalt-zinc ferrite nanoparticles”, J. Appl. Phys. 87 (2000) 2472-2478.(DIO: <https://doi.org/10.1063/1.372205>).
- [3] Wang Y., Jiang J., Wenbo M., “Half-Metals and Weyl Nodal Line Semimetals in Two-Dimensional Phthalocyanine-Based Metal Organic Frameworks with Ni-Fe Dual Metals”, J. Phys.

- [18] Sonia M.M.L., Anand S., Maria Vinose V., AsisiJanifer M., Pauline S., Manikandan A., "Effect of lattice strain on structure, morphology and magneto-dielectric properties of spinel $\text{NiGd}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$ ferrite nano-crystallites synthesized by sol-gel route", Journal of Magnetism and Magnetic Materials 466 (2018) 238-251.(DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2018.07.017>)
- [19] Mousavi Ghahfarokhi S.E., Toulabinezhad H., Kazeminezhad I., "Fabrication of $\text{CoMnFeO}_4/\text{PANI}$ nanocomposite electrode and its improved efficiency in supercapacitors", Journal of Energy Storage, 69 (2023) 107949.(DIO: <https://doi.org/10.1016/j.est.2023.107949>)
- [20] Helfi Kh., Mousavi Ghahfarokhi S.E., Zargar Shoushtari M., "Structural, magnetic, optical, and photocatalytic properties of $\text{Bi}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Fe}_{1-y}\text{Cr}_y\text{O}_3$ nanostructure synthesized by hydrothermal method", Applied Physics A (2023) 129:40.(DIO: <https://doi.org/10.1007/s00339-022-06290-6>)
- [21] Bosca M., Pop L., Borodi G., Pascuta P., Culea E., "XRD and FTIR structural investigations of erbium-doped bismuth-lead-silver glasses and glass ceramics", Journal of Alloys and Compounds, 479 (2009) 579-582.(DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2009.01.001>)
- [22] Amirabadizadeh A., Rasouli M. R., Sarhaddi R., "Structural and magnetic properties of $\text{Co}_{0.5}\text{Ni}_{0.5-x}\text{Mn}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x = 0, 0.15, 0.25, 0.35, 0.5$) ferrite nanoparticles prepared via sol-gel autocombustion method", Journal of Advances in Physics, 3 (2013) 267-271.(DIO: <https://doi.org/10.24297/jap.v3i3.2060>)
- [23] Manikandan A., Durka M., Selvi M. A., Antony S. A., "Sesamoideum Plant Extracted Microwave Combustion Synthesis and Opto-Magnetic Properties of Spinel $\text{Mn}_x\text{Co}_{1-x}\text{Al}_2\text{O}_4$ Nano-Catalysts", Journal of nanoscience and nanotechnology 16 (2016) 448-456.(DIO: <https://doi.org/10.1166/jnn.2016.10632>)
- [24] Zaki H.M., Saleh H., Hashhash A., "Effect of Al^{3+} ion addition on the magnetic properties of cobalt ferrite at moderate and low temperatures", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 401(2016) 1027-1032.(DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.11.021>)
- [25] Panda R K., Muduli R., Jayarao G., Sanyal D., Behera D., "Effect of Cr^{3+} substitution on electric morphological properties", Journal of Research on Many-body Systems, 4 (2014) 19-26. (DIO: 10.22055/jrmb.2017.11971.1034)
- [11] Mousavi Ghahfarokhi S.E., Hamalzadeh Ahmadi F., "Fabrication and comparison of the structural and magnetic properties of FeNi_3 nanoparticles made by hydrothermal and co-precipitation methods", Iranian Journal of Crystallography and Mineralogy, 30 (2022) 543-552. (DIO: 10.52547/ijcm.30.3.543)
- [12] Alirezaei Varnosfaderani N., Zargar Shoushtari M., Mousavi Ghahfarokhi S. E., "A study of lead ions absorption process from drinking water by $\text{SrCo}_2\text{Fe}_{16}\text{O}_{27}$ nanoparticles", Physica B, 638 (2022) 413859. (DIO: <https://doi.org/10.1016/j.physb.2022.413859>)
- [13] Danks A.E., Hall S.R., Schnepf Z., "The evolution of 'sol-gel' chemistry as a technique for materials synthesis", Materials Horizons, 3(2016) 91-112.(DOI: 10.1039/C5MH00260E)
- [14] Shirsath S.E., Kadam R.H., Gaikwad A.S., Ghasemi A., Morisako A., "Effect of sintering temperature and the particle size on the structural and magnetic properties of nanocrystalline $\text{Li}_{0.5}\text{Fe}_{2.5}\text{O}_4$ ", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 323 (2011) 3104-3108. (DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2011.06.065>)
- [15] Mousavi Ghahfarokhi S.E., Mohammadzadeh Shobegar E., Zargar Shoushtari M., "Effects of sintering temperature on structural, morphological and magnetic properties of strontium ferrite nanoparticles", Journal of Superconductivity and Novel Magnetism, 32 (2019) 1067-1076. (DIO: <https://doi.org/10.1007/s10948-018-4799-0>)
- [16] Bai Y., Zhou J., Guli Z., Li L., "Phase formation process, microstructure and magnetic properties of Y- type hexagonal ferrite prepared by citrate sol- gel auto- combustion method," materials chemistry and physics 98 (2006) 66-70. (DIO: <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2005.08.067>)
- [17] Mousavi Ghahfarokhi S. E., Ahmadi M., Kazeminezhad I., "Fabrication of the $\text{SrFe}_{11}\text{MnO}_{19}$ / $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ ferrite nanocomposite and investigation the properties of its microwave absorption in X-band", Physica B 594 (2020) 412290. (DIO: <https://doi.org/10.1016/j.physb.2020.412290>)

- 354 (2014), 119–124.(DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2013.10.039>)
- [28] Mousavi Ghahfarokhi S.E., Ahmadi M., Kazeminezhad I., “*Effect of the PANI content on Curie temperature and microwave absorption properties of $\text{SrFe}_{11}\text{MnO}_{19}$ / $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ nanocomposite*”, Applied Physics A 127 (2021) 401.(DIO: <https://doi.org/10.1007/s00339-021-04556-z>)
- [29] Goto K., Ito M., Sakurai T., “*Studies on magnetic domains of small particles of barium ferrite by colloid-SEM method*”, Jpn. J. Appl. Phys. 19 (1980) 1339–1346.(DIO: 10.1143/JJAP.19.1339).
- and magnetic properties of cobalt ferrite nanoparticles”, Journal of Alloys and Compounds, 669 (2016) 19–28.(DIO: <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2016.01.256>)
- [26] Henaish A.M.A., Ali M.M., El Refaay D.E., Weinstein I.A., Hemeda O.A., “*Synthesis, Electric and Magnetic Characterization of Nickel Ferrite/PANI Nano-Composite Prepared by Flash Auto Combustion Method*”, Journal of Inorganic and Organometallic Polymers and Materials 30 (2020) 44–49.(DIO: <https://doi.org/10.1007/s10904-020-01737-w>)
- [27] Mozaffari M., Hadadian Y., Aftabi A., Oveysy Moakhar M., “*The effect of cobalt substitution on magnetic hardening of magnetite*”, J.Magn Mater,