

С. Е. КУМЕКОВ<sup>1</sup>, К. С. МАРТИРОСЯН<sup>2</sup>, А. А. САУХИМОВ<sup>1,2</sup> \*

<sup>1</sup>Казахский национальный технический университет им. К. И. Сатпаева, Алматы, Казахстан,

<sup>2</sup>Департамент физики и астрономии Техасского университета в Браунсвилле

Штат Техас, г. Браунсвилл 78520 ул. Форт Браун 80,

\*- sauchimov@gmail.com)

## ПОЛУЧЕНИЕ НАНОЧАСТИЦ $Y_3Fe_5O_{12}$ МЕТОДОМ SOLUTION COMBUSTION SYNTHESIS И ИЗУЧЕНИЕ ИХ МАГНИТНЫХ СВОЙСТВ

**Аннотация.** Тройной оксид системы Y-Fe-O обладает уникальными магнитными свойствами, которые чувствительны к размеру кристаллических частиц. Основная проблема при получении данного материала в нанокристаллических формах связана с конгломерацией частиц при протекании реакции синтеза. В данной работе описывается получение полидисперсных порошков  $Y_3Fe_5O_{12}$  методом solution combustion synthesis (SCS) на основе нитрата иттрия, нитрата железа и различным добавлением глицина в виде горючего вещества. Нано порошки феррита иттрия получали с использованием трех различных концентраций глицина (3%, 6% и 10%) от суммарной массы. Магнитные свойства полученных материалов изучали с помощью криогенного магнитометра (PPMS). Магнитные свойства по кривым зависимостям магнитного момента (M) от температуры (T) в режиме охлаждения в нулевом магнитном поле (ZFC) и в режиме охлаждения в сильном магнитном поле (FC) показывают, что увеличение доли глицина при образовании  $Y_3Fe_5O_{12}$  приводит к росту размера частиц и увеличению полидисперсности порошка. Полученные результаты могут быть полезны при использовании в высокочастотных радиоустройствах.

**Ключевые слова:** феррит иттрия, solution combustion synthesis (SCS), температура блокировки, наночастицы, намагниченность.

**Тірек сөздер:** итрий ферриті, solution combustion synthesis (SCS), температураның бұғаттағышы, нанобөлшек, магниттік қанығу.

**Keywords:** Yttrium ferrite, solution combustion synthesis, blocking temperature, nanoparticles, magnetization.

**Введение.** В последнее время наблюдается значительный интерес к изучению магнитных материалов в наноразмерных системах, представляющих нанокристаллы с различными структурами кристаллической решетки. Общая формула указанных кристаллов позволяет образовывать большое количество композитных соединений, среди которых наиболее важным в практическом отношении являются ферриты с общей формулой  $A_xFe_yO_z$  (где A –  $Mg^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  и т.д.) [1]. Одним из представителей данного класса является феррит иттрия  $Y_3Fe_5O_{12}$ . Итрий - это редкоземельный элемент, который входит в семейство лантаноидов с проявлением подобных физических и химических свойств данной подгруппы [2]. Ферриты иттрия представляют собой сложные оксидные соединения, которые обладают магнитомягкими свойствами и могут быть использованы в электронных устройствах при высоких частотах [2,3]. Высокодисперсные порошки ферритов иттрия широко применяются в медицине, топливных элементах, газоанализаторах и т.д.

Магнитомягкие свойства ферритов иттрия зависят от размера частиц и от методов их получения. Анализ литературы [4–7] показывает, что аналогичные композиты  $A_xFe_yO_z$  были получены: механическим перемешиванием, химическим осаждением и термическим разложением. В настоящей работе приводятся результаты опытов по получению и исследованию магнитных свойств граната  $Y_3Fe_5O_{12}$  методом SCS [8-9].

Структурные и магнитные свойства нанокристаллических продуктов измерялись криогенным магнитометром PPMS (Physical Property Measurement System, PPMS, Quantum Design).

**Экспериментальная часть.** Образцы феррита  $Y_3Fe_5O_{12}$  получали предварительным механическим перемешиванием необходимого количества итрий пентагидрат нитрата 99,9%, феррум (III) нонагидрат нитрата 98% и глицина 99%. Далее был получен раствор для каждого образца с добавлением 3мл дистиллированной воды ( $H_2O$ ).

Получение нанопорошков SCS методом в виде наноструктурированного итриевого феррита выполнено для трех вариантов смеси, отличающихся лишь различным весовым содержанием глицина 3% (вариант А), 6% (вариант В) и 10 % (вариант С).

Далее смеси были нагреты в специальной печи (Hotplate stirrer) до 275°C, в результате были получены порошки светло коричневого цвета. Период реакции для каждого образца продолжался от 35 до 45 минут.

Магнитные характеристики полученных образцов были измерены с помощью криогенного магнитометра PPMS (Physical Property Measurement System). Намагниченность измерялась в интервале 4.2 К – 300 К в магнитных полях от 50 Э до 55 кЭ. Перед каждым измерением температурных зависимостей  $M(T)$  и полевых зависимостей намагниченности  $M(H)$  как в нулевом магнитном поле (ZFC), так и в сильном магнитном поле (FC) образец предварительно охлаждался до температуры 4.2 К.

**Результаты и обсуждение.** На рисунках 1–3 приведены зависимости намагниченности трех вариантов образцов от температуры для ZFC и FC режимов измерения.

Как показано в работах [10, 11], зависимости  $M(T)$ , измеренные в режимах FC и ZFC, характеризуются двумя значениями температур, называемых температурой блокировки  $T_b$  и температурой расхождения  $T_i$ . Температура  $T_b$  соответствует максимуму зависимости  $M(T)$ , измеренного в режиме ZFC. Температура  $T_i$  соответствует температуре, при которой происходит расхождение зависимостей  $M(T)$ , измеренных в режимах FC и ZFC.

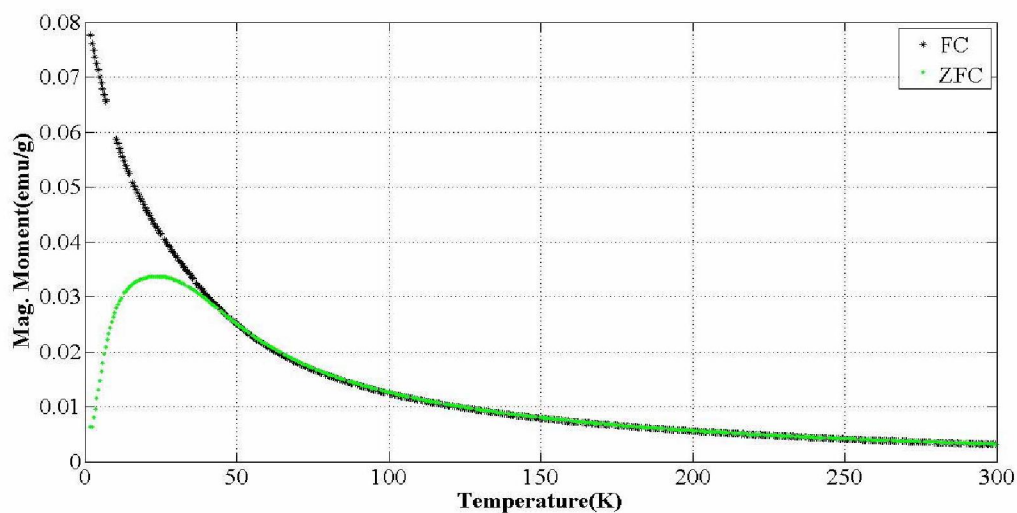


Рисунок 1 – Графики зависимости магнитной восприимчивости от температуры в режимах FC и ZFC для образца варианта А

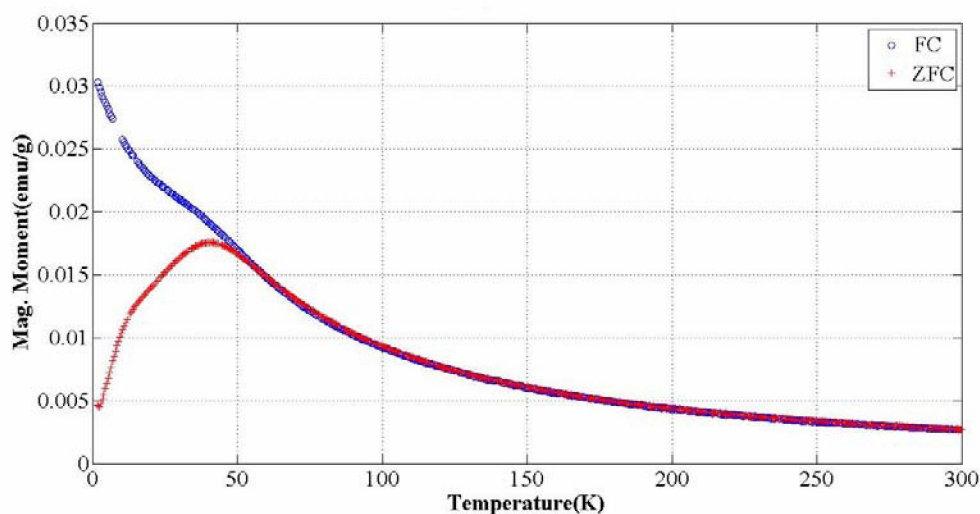


Рисунок 2 – Графики зависимости магнитной восприимчивости от температуры в режимах FC и ZFC для образца варианта В

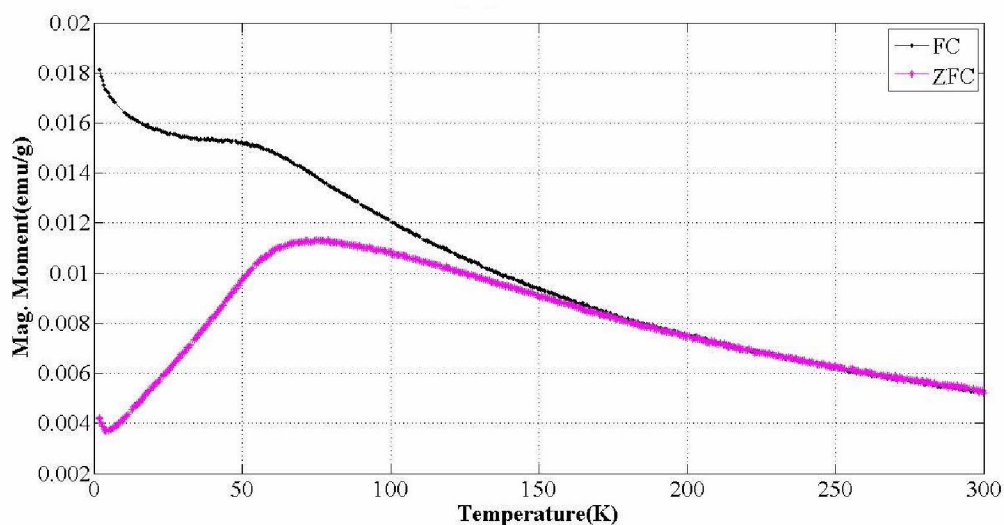


Рисунок 3 – Графики зависимости магнитной восприимчивости от температуры для режимов FC и ZFC для образца варианта С

В работе [1] было показано, что отличие температур  $T_b$  и  $T_i$  связано с дисперсией частиц порошка по размерам. Из анализа рисунков 1-3 следует, что значительной дисперсией частиц по размерам обладает порошок варианта С.

Температура  $T_b$  имеет прямую зависимость от объема частиц [1] согласно формулы:

$$T_b = \frac{K \cdot V}{25 \cdot k} \quad (1)$$

где  $K$  – константа магнитной анизотропии,  $V$  – объем частицы,  $k$  – константа Больцмана.

Пользуясь формулой (1), можно оценить среднее значение объемов наночастиц порошков для трех вариантов  $V_A$ ,  $V_B$ ,  $V_C$  соответственно. Значение  $K$  при разных температурах были найдены из аппроксимационной зависимости  $K(T)$ , построенной из справочных данных [12]. Простые вычисления дают:

$$V_A = 3,55 \cdot 10^{-18} \text{ см}^3, \quad V_B = 5,87 \cdot 10^{-18} \text{ см}^3, \quad V_C = 10,76 \cdot 10^{-18} \text{ см}^3.$$

Полагая, что частицы имеют сферическую форму, можно определить их диаметр согласно формулы:

$$D = \sqrt[3]{\frac{6 \cdot V}{\pi}} \quad (2)$$

В соответствии с вышеприведенной формулой диаметры частиц для трех вариантов измерений (А, В, С) равны:

$$D_A = 23 \text{ нм}, \quad D_B = 37 \text{ нм}, \quad D_C = 69 \text{ нм}.$$

**Заключение.** Таким образом, в настоящей работе впервые методом solution combustion synthesis получены порошки наночастиц граната  $Y_3Fe_5O_{12}$  из шихты с различным весовым содержанием глицина, измерены их магнитные характеристики, определена степень полидисперсности в зависимости от режима получения порошка и оценены средние размеры наночастиц. Полученные результаты могут быть полезны при конструировании высокочастотных радиоустройств.

#### ЛИТЕРАТУРА

- 1 А. А. Комлев, А. С. Семенова Магнитные характеристики  $MGFe_2O_4$ - содержащих нанопорошков, полученных гидротермальным методом // Наносистемы: физика, химия, математика, 2012, 3 (6), С. 105–111
- 2 M.I. Yanovskaya, T.V. Rogova, S.A. Ivanov, N.V. Kolganova, N.Ya. Turova, J. Mater. Sci. Lett. 6, 274, 1987.
- 3 A. Sztanislav, E. Sterk, L. Fetter, M. Farkas-Jahnke, J. Laba?r, J. Magn. Magn. Mater. 41, 75, 1984.
- 4 S. Nakayama, J. Mater. Sci. 36, 5643, 2001.
- 5 N. Pandya, P.G. Kulkarni, P.H. Parsania, Mater. Res. Bull. 25 (1990) 1073.

- 6 D.S. Todorovsky, R.V. Todorovska, St. Groudeva-Zotova, Mater. Lett. 55 (2002) 41.
- 7 Y.Horibe, K. Kishimoto, S. Mori. Structural Phase Transitions and dielectric Anomaly in  $YFe_2O_4$ - $\delta$  //Journal of the Korean Physical Society Vol.46, No.1 January 2005 pp192-194
- 8 K. Suresh, N. R. S. Kumar, K. C. Patil, A novel combustion synthesis of spinel ferrites, orthoferrites and garnets, Advanced Materials, 3, 3, 148–150, 1991.
- 9 K.S. Martirosyan, P.B. Avakyan and M.D. Nersesyan, Phase-formation during self-propagating high-temperature synthesis of ferrites, Inorgan. Mater, 38, 4, 489-492, 2002.
- 10 С.П. Губин., Ю.А.Кокшаров, Г.Б.Хомутов., Г.Ю. Юрков, Магнитные наночастицы: методы получения, строение и свойства // Успехи химии. – 2005. – Т.74. – С. 539–574.
- 11 Y. Ichiyanagi, M.Kubota, S. Moritake, Y. Kanazawa, T.Yamada, T. Uehashi. Magnetic properties of Mg-ferrite nanoparticles // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2007. – V.310. – P. 2378–2380.
- 12 С. Крупицка Физика ферритов и родственных им магнитных окислов. Том 2 // Издательство Мир Москва 1976 г.

## REFERENCE

- 1 A. A. Komelev, A. S. Semenova Magnetic characteristics of  $MgFe_2O_4$  contained nanoparticles obtained hydrothermal method // Nanosystems: physic, chemistry, mathematic, 2012, 3 (6), С. 105–111
- 2 M.I. Yanovskaya, T.V. Rogova, S.A. Ivanov, N.V. Kolganova, N.Ya. Turova, J. Mater. Sci. Lett. 6, 274, 1987.
- 3 A. Sztaniszlav, E. Sterk, L. Fetter, M. Farkas-Jahnke, J. Laba?r, J. Magn. Magn. Mater. 41, 75, 1984.
- 4 S. Nakayama, J. Mater. Sci. 36, 5643, 2001.
- 5 N. Pandya, P.G. Kulkarni, P.H. Parsania, Mater. Res. Bull. 25 (1990) 1073.
- 6 D.S. Todorovsky, R.V. Todorovska, St. Groudeva-Zotova, Mater. Lett. 55 (2002) 41.
- 7 Y.Horibe, K. Kishimoto, S. Mori. Structural Phase Transitions and dielectric Anomaly in  $YFe_2O_4$ - $\delta$  //Journal of the Korean Physical Society Vol.46, No.1 January 2005 pp192-194
- 8 K. Suresh, N. R. S. Kumar, K. C. Patil, A novel combustion synthesis of spinel ferrites, orthoferrites and garnets, Advanced Materials, 3, 3, 148–150, 1991.
- 9 K.S. Martirosyan, P.B. Avakyan and M.D. Nersesyan, Phase-formation during self-propagating high-temperature synthesis of ferrites, Inorgan. Mater, 38, 4, 489-492, 2002.
- 10 С.П. Губин, Ю.А.Кокшаров, Г.Б.Хомутов., Г.Ю. Юрков, Magnetic nanoparticles: obtained methods, structure and properties // Chemistry progress. – 2005. – Т.74. – С. 539–574.
- 11 Y. Ichiyanagi, M.Kubota, S. Moritake, Y. Kanazawa, T.Yamada, T. Uehashi. Magnetic properties of Mg-ferrite nanoparticles // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 2007. – V.310. – P. 2378–2380.
- 12 S. Krupichka Physic of ferrite and related its magnetic oxide. Part-2 // Publishing house, World, Moscow 1976 г.

## Резюме

С. Е. Көмеков<sup>1</sup>, К. С. Мартиросян<sup>2</sup>, А. А. Саухимов<sup>1,2</sup> \*

<sup>1</sup>Қ. И. Сәтбаев атындағы Қазақ ұлттық техникалық университеті, Алматы, Қазақстан,

<sup>2</sup> Браунсвилде Техас университеті, физика мен астрономия департаменті,

Техас штаты, Браунсвилл қ. 78520 Форт Браун көш. 80,

\* sauchimov@gmail.com)

SOLUTION COMBUSTION SYNTHESIS ӘДІСІМЕН  $Y_3Fe_5O_{12}$  НАНОБӨЛШЕКТЕРДІ АЛУ  
ЖӘНЕ ОЛАРДЫҢ МАГНИТТІК ҚАСИЕТТЕРІН ЗЕРТТЕУ

Y-Fe-O үштік тотық жүйесі кристалдық бөлшектер мөлшеріне сезімтал болып келетін, ерекше магниттік қасиеттерге ие. Аталған материалды нанокристалды формада алудағы басты мәселе синтездің реакциясы жүрген кезіндегі бөлшектердің конгломерациясына байланысты болады.

Осы жұмыста полидисперстік ұнтақтарды  $Y_3Fe_5O_{12}$  иттриум нитраты, темір нитраты негіздерінде және жанғыш зат түрінде әртүрлі глицин көлемін қосу арқылы solution combustion synthesis (SCS) әдісімен алу сипатталады. Иттрий ферриті наноұнтақтары глициннің қосынды массасынан үш түрлі концентрацияда (3%, 6% және 10%) алынды. Алынған материалдардың магниттік қасиеттерді криоген магнитометрмен (PPMS) зерттелінді. Магниттік қасиеттер магниттік моменттің (M) температурадан (T) тәуелділік қисықтары бойынша, яғни нөлдік магнит өрістегі салқындатылған режимінде (ZFC) және күшті магниттік өрістегі салқындатылған режимінде (FC)  $Y_3Fe_5O_{12}$  түзілуі кезінде глицин үлесінің өсуі бөлшек мөлшерінің өсуіне және ұнтақтардың полидисперстігінің артуына алып келеді. Алынған нәтижелерді жоғарыжиіліктік радиоқұрылғыларда қолдануға болады.

**Тірек сөздер:** иттрий ферриті, solution combustion synthesis (SCS), температураның бұғаттағышы, нанобөлшек, магниттік қанығу.

### Summary

*S. E. Kumekov<sup>1</sup> K. S. Martirosyan<sup>2</sup> A. A. Sauchimov<sup>1,2\*</sup>*

<sup>1</sup>Kazkh national technical university after K. I. Satpaev, Almaty, Kazakhstan,

<sup>2</sup>Department of Physics and Astronomy, University of Texas at Brownsville,

1 W University Blvd, Brownsville, Texas, USA, 78520

\* sauchimov@gmail.com)

#### FABRICATION OF NANOPARTICLES $Y_3Fe_5O_{12}$ BY SOLUTION COMBUSTION SYNTHESIS AND STUDY OF MAGNETIC PROPERTIES

The ternary oxide system Y-Fe-O presents fascinating magnetic properties that are sensitive to the crystalline size of particles. There is a major challenge to fabricate these materials in nano-crystalline forms due to particle conglomeration during nucleation and synthesis. In this paper we report the fabrication powder of nano sized crystalline yttrium ferrite  $Y_3Fe_5O_{12}$  by solution combustion synthesis (SCS) where yttrium and iron nitrates were used as metal precursors with glycine as a fuel. Yttrium ferrite nano-powder was obtained by using three concentration of glycine (3, 6 and 10 wt. %) in the initial exothermic mixture. The magnetic properties of yttrium ferrite were investigated by cryogenic magnetometry (PPMS, Quantum Design). Magnetization measurements on temperature zero-field-cooled and field-cooled show that increasing concentration of glycine leads to an increased blocking temperature and dispersion.

**Keywords:** Yttrium ferrite, solution combustion synthesis, blocking temperature, nanoparticles, magnetization.