



Uticaj parametara sinteze polaznog praha 50.0 wt% Fe, 47.0 wt% BaTiO₃, 33.0 wt% TiO₂ na magnetna svojstva sinterovanih uzoraka

Z. Vuković¹, O. Kosić¹, M. Luković¹, A. Maričić¹

¹Univerzitet u Kragujevcu, Fakultet tehničkih nauka, Svetog Save 65 Čačak, Srbija

Abstrakt: Polazni prah 50.0 wt% Fe, 47.0 wt% BaTiO₃, 3.0 wt% TiO₂ aktiviran je u planetarnom mlinu u intervalu od 0 do 220 min sa koracima od 20 min. XRD i SEM analizom aktiviranih prahova pokazano je da se sa povećanjem vremena aktivacije menja hemijski sastav praha. Istovremeno dimenzije čestica praha se smanjuju, a raste gustina defekata i mehaničkih mikronaprezanja u prahu. Jedan uzorak polaznog praha aktiviran je 10h, a potom kalcinisan na 1000°C u toku 4h. Kalcinisan prah presovan je u primenjenom magnetnom polju indukcije $B = 0,85T$. Pokazano je da uzorci presovani u magnetnom polju, nakon sinterovanja imaju povećanu magnetizaciju za oko 10% u odnosu na sinterovane uzorke koji nisu presovani u magnetnom polju. Presovanjem u magnetnom polju dobijen je polikristalni sinterovani orijentisani (anizotropni) uzorak.

Cljučne riječi: multiferioici, XLD Difraktogrami, magnetizacija

1 UVOD

Multiferioici spadaju u grupu multifunkcionalnih materijala koji imaju najmanje dva feroična svojstva kao što su feromagnetičnost, feroelektričnost, piezoelektričnost i piezomagnetičnost. Feroici kod kojih se polarizacija može generisati magnetnim poljem, a magnetizacija električnim poljem obično se nazivaju magnetoelektričnim multiferioicima [1]–[4]. Multiferioični materijali sa visokim multiferioičnim efektom na sobnoj temperaturi u prirodi su veoma retki. Zbog toga je zadnjih nekoliko godina veliki broj istraživača u svetu posvećen sintezi nanomaterijala sa velikom magnetoelektričnom spregom. Tako je recimo za materijal BaFe12O19 koji poseduje visoku stabilnost na koroziju i habanje, visoku jednoosnu magnetnu anizotropiju, visoku koercitivnost i male troškove proizvodnje, razvijeno nekoliko postupaka dobijanja: koprecipitacijskom metodom, sol-gel metodom, mikro-

emulzijom i kugličnim mlevenjem [5]–[9]. Od tih načina sinteze će zavisiti i njegova mikrostruktura, morfologija, električna i magnetna svojstva [5]–[16]. Tehnikom kugličnog mlevenja nastaju sitne čestice sa velikom kontaktnom površinom i velikom gustinom dislokacija na površini. Ova tehnika je dosta obećavajuća za proizvodnju širokog spektra nanostrukture i magnetnih materijala [7], [15]–[19]. Vreme mlevenja je bitno jer determiniše i morfologiju i mikrostrukturu dobijenih prahova, a time i njihova električna i magnetna svojstva [7], [10], [15]–[19]. Takođe, dielektrične i magnetne osobine mehanohemijски pripremljenog barijumovog heksaferita, prema najnovijim studijama, pokazala su da su se magnetne osobine poboljšale sa povećanim vremenom mlevenja, dok je dielektrična permitivnost pokazala malu promenu [8], [10].

Značajan napredak postignut je i u slojevitim multiferioicima na sobnoj temperaturi (Bi9Ti3Fe4O27,

Bi₆Ti₃Fe₂O₁₈, Bi₇Ti₃Fe₃O₂₁) [20], [21]. Njihova magnetoelektrična (ME) sprega je izrazito velika, za Bi₉Ti₃Fe₄O₂₇ iznosi 400 mVcm⁻¹Oe⁻¹ što je u odnosu na keramičke multiferoike, čija je ME sprega od 0,1 mVcm⁻¹Oe⁻¹ do 8,28 mVcm⁻¹Oe⁻¹, veliki napredak.

Savremene primene multiferoičnih materijala su zasnovane na mogućnosti skladištenja podataka magnetnom i električnom polarizacijom. U odnosu na konvencionalne feroelektrične i feromagnetne materijale, multiferoici obezbeđuju znatno veće mogućnosti pri dizajniranju elektronskih komponenti.

2 METODOLOGIJA RADA

Prahovi Fe (Aldrich, St. Louis, MO, p.a. 99,99 wt.%) BaTiO₃ (Aldrich, St. Louis, MO, p.a. 99 wt.%) i TiO₂ (Aldrich, St. Louis, MO, p.a. 99 wt.%) pomiješani su u 50:47:3 wt. omjeru i samleveni su u planetarnom kugličnom mlinu (Retsch PM 400) na vazduhu. Vreme mlevenja praha bilo je od 0 do 220 min u koracima od 20 min. Uzorci prahova su presovani na 500 MPa u obliku diska prečnika 8 mm i debljine 1,5 mm. Sinterovani su na vazduhu u laboratorijskoj komornoj peći (Electron) na 1200 °C tokom 2 h.

XRD Difraktogrami su dobijeni pomoću Bruker DM X-ray difrakcionog instrumenta (XRD) u Bragg-Brentano geometriji sa uglom upada od 0,5° pomoću CuKα₁ (λKα₁ = 15,405929 nm) i CuKα₂ (λKα₂ = 15,444274 nm) zračenja. Difrakcioni podaci dobijeni su preko ugla rasipanja 2θ od 10° do 90° s korakom od 0,05°. Tekstura pojedinih kristalnih faza, dobijena je pomoću jednačine [27]:

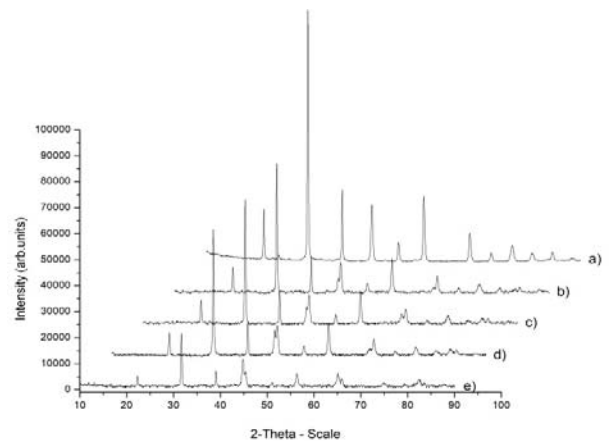
$$T_x = i \left(n^{-1} \sum i_i \right)^{-1} \quad (1)$$

gdje je: Tx – koeficijent teksture, i – intenzitet pojedine refleksije koja pripada određenoj kristalnoj ravni normalizovan na intenzitet te iste refleksije u referentnom uzorku, i n – ukupan broj refleksija pojedine razmatrane kristalne faze.

Magnetna merenja provedena su modifikovanom Faradajevom metodom koja se temelji na djelovanju nehomogenog magnetnog polja na prah. Merenja magnetne sile izvedena su sa osjetljivošću od 10⁻⁷ N u atmosferi argona.

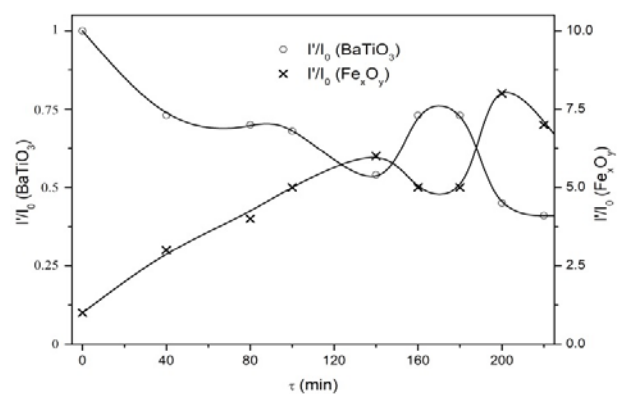
3 REZULTATI

Polazni prah 50.0 wt% Fe, 47.0 wt% BaTiO₃, 3.0 wt% TiO₂ aktiviran je u planetarnom mlinu u intervalu od 0 do 220 min u koracima od 20 min. Na dijagramu 1 prikazani su XRD difraktogrami polaznog i aktiviranih prahova.



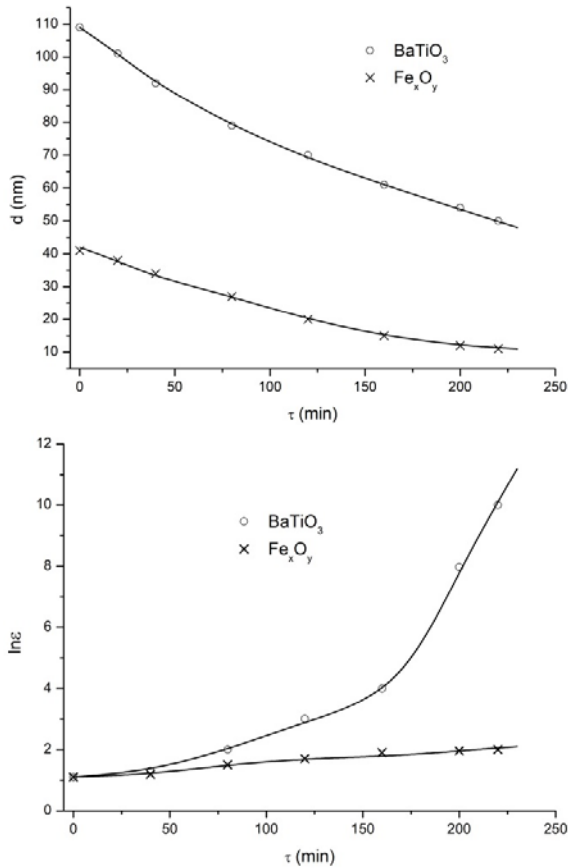
Slika 1 - XRD difraktogrami polaznog praha i aktiviranih prahova: a-0 min, b-60min, c-100min, d.180-min i e-220min.

Na prikazanim XRD difraktogramima na slici 1 javljaju se izraženi pikovi Fe i Fe_xO_y i BaTiO₃. Sa porastom vremena aktivacije intenziteti pikova BaTiO₃ opadaju a širine na polovini visine pikova rastu. Pikovi oksida gvožđa sa porastom vremena aktivacije karakteriše istovremeni porast visine i širine pika na poluvisinama. Zavisnost relativne promene pika BaTiO₃ i Fe_xO_y na 2θ = 65° od vremena aktivacije prikazani su na slici 2.



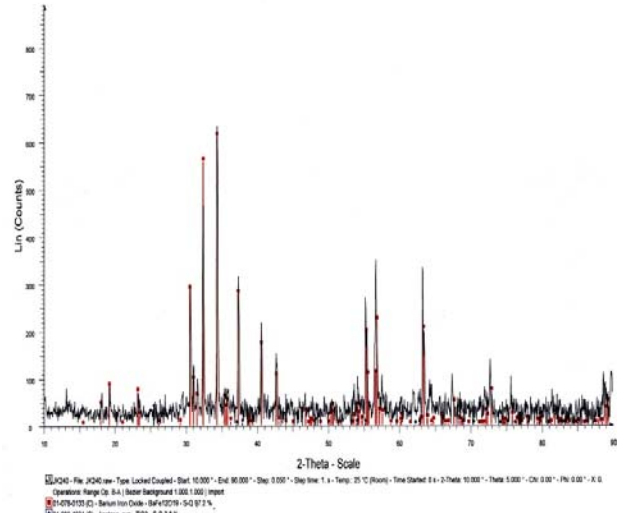
Slika 2 - Zavisnost relativne promene visine pikova BaTiO₃ oksida Fe_xO_y u blizini 2θ = 60° od vremena aktivacije: -o- BaTiO₃; -x- Fe_xO_y.

Porast širine pikova na difraktogramima sa porastom vremena aktivacije uzrokovan je usitnjavanjem kristala kako BaTiO₃ tako i Fe_xO_y. Istovremeno sa porastom vremena aktivacije povećava se gustina defekata i unutrašnjih mikronapreznja (slika 3).



Slika 3 - Zavisnost: a) srednje dimenzije kristala -o- BaTiO₃; -x- Fe_xO_y i b) unutrašnjih mikronapreznja -o- BaTiO₃; -x- Fe_xO_y od vremena aktivacije.

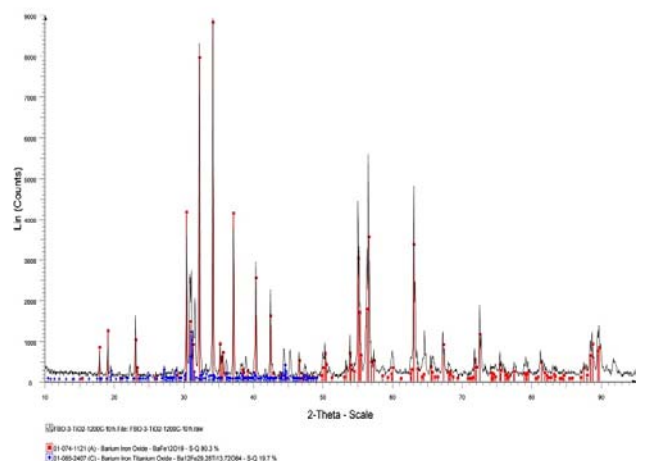
Za sinterovane na $t = 1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ u toku 2 h presovani su uzorci praha aktiviranog 220 min. i 10 h. Rendgenogrami ovih uzoraka prikazani su na slici 4 i slici 5.



Slika 4 - Rendgenogram sinterovanog uzorak dobijenog presovanjem praha aktiviranog 220 min.

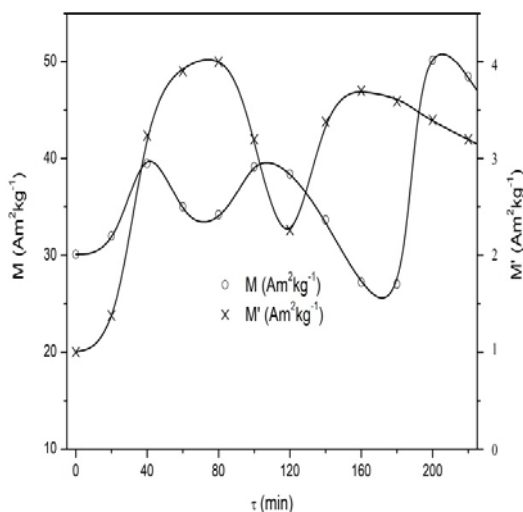
Mlevenjem praha u toku 220 min dobijene su dovoljno sitne čestice što obezbeđuje veliku kontaktnu površinu između čestica BaTiO₃ i čestica koje sadrže gvožđe i okside gvožđa. To obezbeđuje brzo formiranje nanokristala BaFe₁₂O₁₉ u toku 2 h na 1200 °C 97,2% i 2,8%TiO₂.

Rendgenogram sinterovanog uzorka dobijenog presovanjem praha aktiviranog u toku 10 h prikazan je na slici 5.



Slika 5 - Rendgenogram sinterovanog uzorak dobijenog presovanjem praha mlevenog 10 h.

Na rendgenogramu ovog uzorka za različite kristalne ravni jasno su izraženi intenziteti pikova za $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ 80,3%. Zbog još veće kontaktne površine među česticama uzorka aktiviranog 10 h formira se 19,7% masenih procenata faze $\text{Ba}_{12}\text{Fe}_{29,28}\text{Ti}_{13,72}$. Na difraktogramu slika 5 nisu izraženi pikovi ove faze što ukazuje da je ovaj oksid titana najverovatnije u amorfnom stanju. Sinterovani uzorci dobijeni od prahova mlevenih manje od 220 min imaju male intenzitete pikova. Kod ovih uzoraka zbog male kontaktne površine između relativno krupnijih čestica vreme sinterovanja od 2 h na 1200 °C nije dovoljno da se do kraja odvije reakcija formiranja $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ a pogotovu i oksida titana $\text{Ba}_{12}\text{Fe}_{29,28}\text{Ti}_{13,72}$. Magnetna svojstva prahova ispitivana su mlevenjem zavisnosti magnetizacije a) presovanih i b) presovanih pa sinterovanih prahova u zavisnosti od vremena mlevenja i temperature. Na slici 6 prikazana je zavisnost magnetizacije a) presovanih i b) presovanih i sinterovanih uzoraka.



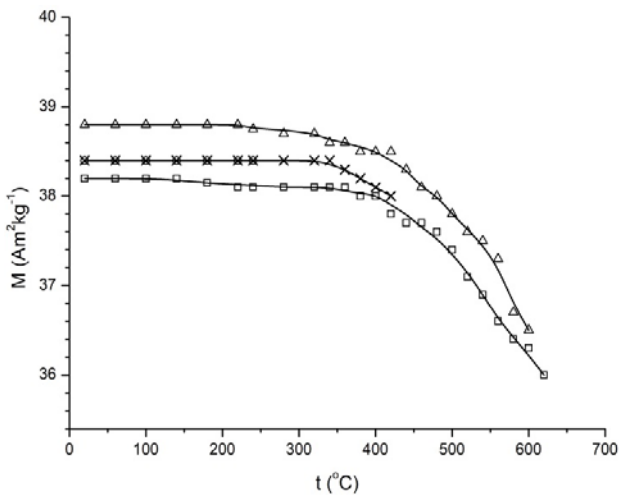
Slika 6 - Zavisnost magnetizacije od vremena aktivacije presovanih uzoraka: a) -o- pre sinterovanja; b) -x- posle sinterovanja.

Prikazani dijagrami pokazuju da najveću magnetizaciju pre sinterovanja kriva a) ima za uzorak koji je mleven 200 min. Strukturne promene praha tokom mlevenja uzrokuju promene magnetnih svojstava. Smanjenje dimenzija nanokristala uzrokuje povećanje magnetizacije. Istovremeno, povećanje gustine haotično raspoređenih dislokacija i porast unutrašnjih mikronaprezanja uzrokuje smanjenje

magnetizacije. Na smanjenje magnetizacije utiče smanjenje udela metalnog gvožđa i formiranje njegovih oksida. Analizom krive a) na slici 2 može se zaključiti da se vremenski interval mlevenja od 0 do 22 min može podeliti na 5 pointervalu. U prvom pod intervalu od 0 do 40 min dominantan uticaj na magnetizaciju ima usitnjavanje kristala gvožđa i magnetizacija uzorka raste. U drugom vremenskom intervalu ode 40 do 80 min na pad magnetizacije utiče formiranje FeO koje nije magnetično i porast gustine defekata u prahu. U trećem vremenskom intervalu od 80 do 120 min porast magnetizacije uzrokovan je daljim usitnjavanjem kristala i porast procenata Fe_2O_3 na račun oksida FeO i verovatno delimičnom anihilacijom defekata u prahu. U četvrtom vremenskom podintervalu pad magnetizacije uzrokovan je ponovnim generisanjem defekata i dalje formiranje oksida gvožđa FeO . U petom vremenskom podintervalu od 180 do 200 min u prahu ponovo dolazi do anihilacije defekata, daljeg usitnjavanja nanokristala i prelaza nemagnetičnog oksida FeO u magnetične okside Fe_2O_3 i Fe_3O_4 .

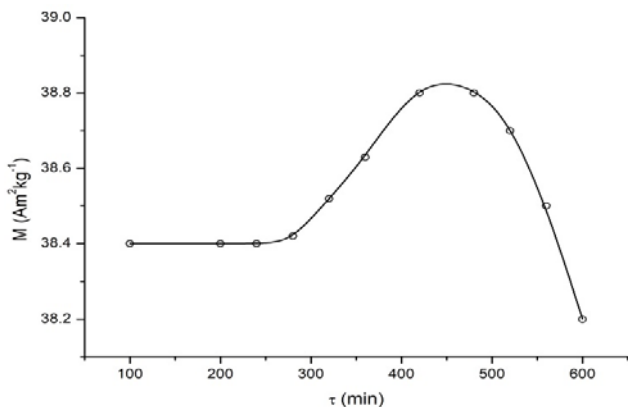
Za ispitivanje uticaja odgrevanja na magnetna svojstva presovanih uzoraka odabran je uzorak dobijen od praha aktiviranog 120 min. Ovaj uzorak je zagrevan uz simultano merenje magnetizacije, brzinom 20 °Cmin⁻¹ do određene temperature t_{max} . Na maksimalnoj temperaturi uzorak je zadržan 15 min. Nakon hlađenja do sobne temperature isti uzorak je još četiri puta ponovo odgrevan svaki naredni put na višoj temperaturi.

Zavisnost magnetizacije, tokom višestrukih zagrevanja istog uzorka od temperature, prikazane su na slici 7. Jačina primenjenog magnetnog polja pri svim merenjima iznosila je $H = 50 \text{ kAm}^{-1}$.



Slika 7 - Zavisnost magnetizacije od temperature tokom sukcesivnih zagrevanja istog uzorka: a) -o- do 240 °C; b) -x- do 420 °C; c) -Δ- 600 °C; d) -□- do 620 °C.

Zavisnost magnetizacije ohlađenog uzorka nakon svakog odgreivanja, prikazana je na slici 8.



Slika 8 - Zavisnost magnetizacije na $t = 20$ °C, presovanog uzorka dobijenog od praha aktiviranog 120 min, od temperature odgreivanja u toku 10 min.

Analizom rezultata prikazanih na slikama 7 i 8 može se zaključiti da se odgreivanjem uzorka na temperaturama nižim od 240 °C u uzorku ne dešavaju strukturne promene koje utiču na magnetna svojstva.

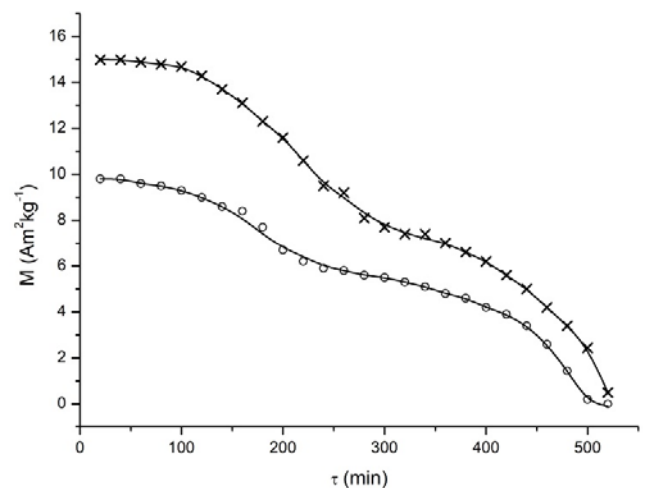
Nakon drugog odgreivanja na $t = 420$ °C magnetizacija ohlađenog uzorka se povećava za 1,4%. Povećanje magnetizacije posle ovog odgreivanja uzrokovano je procesom strukturne relaksacije. Tokom zagrevanja i odgreivanja na $t = 420$ °C pod uticajem toplotnog dejstva dolazi do finih međuatomskih pomeranja i anihilacije defekata generisanih tokom mlevenja i presovanja praha. Relaksiranu strukturu

karakteriše manja gustina haotično raspoređenih dislokacija i manja unutrašnja mikronaprezanja. Time je obezbeđeno lakše usmeravanje magnetnih domena u primenjenom magnetnom polju, veću pokretljivost zidova magnetnih domena i njihovo širenje. Porast magnetizacije u ovom temperaturnom intervalu uzrokovao je i postepenim prelazom oksida Fe_xO_y u nanokristalni Fe_2O_3 . Tokom zagrevanja uzorka u temperaturnom intervalu od 420 °C do 600 °C magnetizacija opada. Pod dejstvom toplotne energije formiraju se veća kristalna zrna a magnetni domeni usmereni na nižim temperaturama delimično sa porastom temperature sve više prelaze u haotično stanje.

Pad magnetizacije ohlađenog uzorka nakon odgreivanja na $t = 600$ °C u odnosu na magnetizaciju pre odgreivanja, za oko 0,5% uzrokovao je nastankom većih kristalnih zrna.

Uticaj dejstva toplotne energije u primenjenom magnetnom polju na magnetna svojstva sinterovanih uzoraka ispitivani su merenjem zavisnosti magnetizacije od temperature.

Na slici 9 prikazana je temperaturna zavisnost magnetizacije uzorka dobijenog presovanjem praha aktiviranog 200 min pa sinterovanog na temperaturi $t = 1200$ °C u toku 2h.



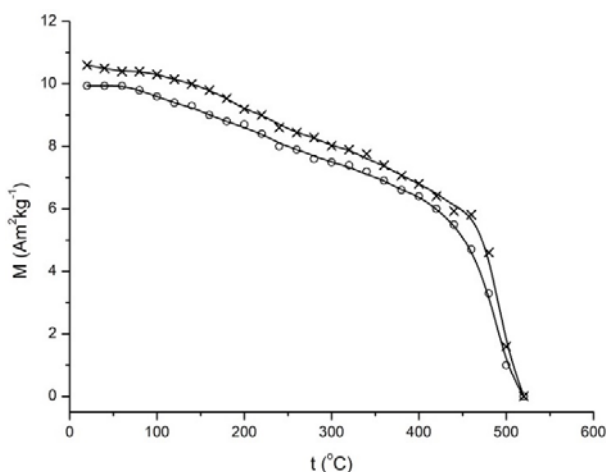
Slika 9 - Zavisnost magnetizacije od temperature uzorka dobijenog presovanjem praha mlevenog 200 min pa sinterovanog 2h na 1200 °C: a) -o- prvo zagrevanje; b) -x- drugo zagrevanje posle hlađenja uzorka u primenjenom magnetnom polju jačine $H = 50 \text{ kAm}^{-1}$.

Tokom prvog zagrevanja magnetizacija opada u celom temperaturnom intervalu od 20 °C do 500 °C. Sa porastom temperature dejstvo toplotne energije na magnetne domene se povećava pa njihova usmerenost u primenjenom magnetnom polju opada. Nagli pad magnetizacije iznad temperature $t = 460$ °C uzrokovan je blizinom Kiri temperature $t_k = 500$ °C.

Nakon hlađenja uzorka zagrevanog do Kiri temperature u primenjenom magnetnom polju jačine $H = 50$ kAm⁻¹ magnetizacija uzorka na $t = 20$ °C je veća za oko 53% od magnetizacije uzorka pre prvog zagrevanja. Tokom hlađenja uzorka u primenjenom magnetnom polju na usmeravanje magnetnih domena pored magnetnog polja utiče i toplotna energija.

U zagrejanom uzorku do Kiri temperature magnetni domeni nisu više u položaju minimuma potencijalne energije pa su znatno pokretljiviji. Tako pokretne magnetne domene primenjeno magnetno polje tokom hlađenja bolje usmerava i na taj način magnetizacija ohlađenog uzorka se povećava.

Nakon hlađenja uzorka zagrejanog do Kiri temperature bez prisustva magnetnog polja magnetizacija uzorka na $t = 20$ °C je ista kao pre prvog zagrevanja. Na slici 10 prikazana je temperaturna zavisnost magnetizacije sinterovanog uzorka dobijenog presovanjem praha u polju indukcije $B = 0,5$ T. Prah je aktiviran 10 h.



Slika 10 - Zavisnost magnetizacije od temperature uzorka praha mlevenog 10 h presovanog u magnetnom polju $B = 0,85$ T pa sinterovanog na 1200 °C u toku 2 h: -o- prvo zagrevanje; b) -x- drugo zagrevanje posle hlađenja uzorka u primenjenom magnetnom polju jačine $H = 50$ kAm⁻¹.

Zavisnost magnetizacije od temperature za ovaj uzorak sa slike 10 je slična kao i za uzorak sa slike 9. Nakon hlađenja uzorka u primenjenom magnetnom polju jačine $H = 50$ kAm⁻¹ njegova magnetizacija na 20 °C je za oko 6,6% veća od njegove magnetizacije pre prvog zagrevanja. Malo povećanje magnetizacije nakon hlađenja u primenjenom magnetnom polju uzrokovano je presovanjem praha u magnetnom polju. Magnetna sila u magnetnom polju indukcije $B = 0,85$ T je okrenula heksagonalna zrna u pravcu anizotropije pri presovanju. Nakon sinterovanja dobijen je polikristalni orijentisani tj. anisotropni uzorak. Zbog toga je domenska struktura ovog uzorka termički stabilnija a efekat toplotnog dejstva na usmeravanje domena tokom hlađenja u magnetnom polju mali.

4 ZAKLJUČAK

Pokazano je da parametri sinteze polaznog praha 50.0 wt% Fe, 47.0 wt% BaTiO₃, 3.0 wt% TiO₂ dominantno utiču na svojstva sinterovanih uzorka.

Metodom XRD analize pokazano je da sa porastom vremena aktivacije u vazdušnoj atmosferi dolazi do promene hemijskog sastava smeše, smanjenja srednjih dimenzija kristala i povećanja gustine defekata i unutrašnjih mikronaprezanja u prahu. Ove promene utiču na magnetna svojstva presovanih uzoraka pre i posle sinterovanja. Pokazano je da se tokom zagrevanja i izotermiskih odgrevanja u presovanim uzorcima praha odigrava proces strukturne relaksacije. Višestrukim odgrevanjem istog uzorka, pokazano je da se proces strukturne relaksacije odigrava u temperaturnom intervalu od 240 °C do 450 °C.

XRD analizom sinterovanih uzoraka utvrđeno je da vreme mlevenja polaznog praha kraće od 200 min nije dovoljno da se sinterovanjem presovanih uzoraka praha na temperaturi 1200°C u toku 2h u potpunosti završi reakcija formiranja barijumheksaferita BaFe₁₂O₁₉.

Uzorak polaznog praha aktiviranog 10h presovan je van primenjenog magnetnog polja i u primenjenom magnetnom polju indukcije $B = 0,85$ T. Pokazano je da uzorci presovani u primenjenom magnetnom polju posle sinterovanja imaju magnetizaciju veću za oko 10 % u

odnosu na iste uzorke koji nisu presovani u primjenom magnetnom polju.

5 LITERATURA

- [1] A. S. N., J. Onattu, and T. A.K, "Multiferroic Materials," in *Functional Materials*, 2012.
- [2] R. M. Thankachan and R. Balakrishnan, "Synthesis Strategies of Single-Phase and Composite Multiferroic Nanostructures," in *Synthesis of Inorganic Nanomaterials*, 2018.
- [3] M. Gich and Z. Ma, "Multiferroic oxide thin films," in *Encyclopedia of Interfacial Chemistry: Surface Science and Electrochemistry*, 2018.
- [4] A. J. C. Buurma, G. R. Blake, T. T. M. Palstra, and U. Adem, "Multiferroic Materials: Physics and Properties," in *Reference Module in Materials Science and Materials Engineering*, 2016.
- [5] V. V. Soman, V. M. Nanoti, and D. K. Kulkarni, "Dielectric and magnetic properties of Mg-Ti substituted barium hexaferrite," *Ceram. Int.*, vol. 39, no. 5, pp. 5713–5723, 2013, doi: 10.1016/j.ceramint.2012.12.089.
- [6] K. S. Martirosyan, E. Galstyan, S. M. Hossain, Y. J. Wang, and D. Litvinov, "Barium hexaferrite nanoparticles: Synthesis and magnetic properties," *Mater. Sci. Eng. B Solid-State Mater. Adv. Technol.*, vol. 176, no. 1, pp. 8–13, 2011, doi: 10.1016/j.mseb.2010.08.005.
- [7] D. Kosanović et al., "Influence of mechanical activation on functional properties of barium hexaferrite ceramics," *Ceram. Int.*, vol. 44, no. 6, pp. 6666–6672, 2018, doi: 10.1016/j.ceramint.2018.01.078.
- [8] W. S. Castro, R. R. Corrêa, P. I. P. Filho, J. M. R. Mercury, and A. A. Cabral, "Dielectric and magnetic characterization of Barium hexaferrite ceramics," *Ceram. Int.*, vol. 41, no. 1, pp. 241–246, 2015, doi: 10.1016/j.ceramint.2014.08.064.
- [9] V. Pillai, P. Kumar, and D. O. Shah, "Magnetic properties of barium ferrite synthesized using a microemulsion mediated process," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 116, no. 3, 1992, doi: 10.1016/0304-8853(92)90105-W.
- [10] Z. Ristanović, A. Kalezić – Glišović, N. Mitrović, S. Đukić, D. Kosanović, and A. Maričić, "The influence of mechanochemical activation and thermal treatment on magnetic properties of the BaTiO₃-FexOy powder mixture," *Sci. Sinter.*, vol. 47, no. 1, pp. 3–14, 2015, doi: 10.2298/SOS141121001R.
- [11] X. Zhang, Z. Yue, and Y. Zhang, "Structure characterization and magnetic properties of barium hexaferrite films deposited on 6H-SiC with random in-plane orientation," *Ceram. Int.*, vol. 43, no. 12, pp. 8611–8615, 2017, doi: 10.1016/j.ceramint.2017.03.169.
- [12] A. Rani, J. Kolte, S. S. Vadla, and P. Gopalan, "Structural, electrical, magnetic and magnetoelectric properties of Fe doped BaTiO₃ ceramics," *Ceram. Int.*, vol. 42, no. 7, pp. 8010–8016, 2016, doi: 10.1016/j.ceramint.2016.01.205.
- [13] S. Rajan, P. M. M. Gazzali, and G. Chandrasekaran, "Electrical and magnetic phase transition studies of Fe and Mn co-doped BaTiO₃," *J. Alloys Compd.*, vol. 656, pp. 98–109, 2016, doi: 10.1016/j.jallcom.2015.09.199.
- [14] K. Samuvel and K. Ramachandran, "Structure, electrical and magnetic property investigations on Fe-doped hexagonal BaTiO₃," *Optik (Stuttg.)*, vol. 127, no. 4, pp. 1781–1786, 2016, doi: 10.1016/j.ijleo.2015.10.240.
- [15] F. M. Silva Júnior and C. W. A. Paschoal, "Spin-phonon coupling in BaFe₁₂O₁₉ M-type hexaferrite," *J. Appl. Phys.*, vol. 116, no. 24, p. 244110, 2014, doi: 10.1063/1.4904062.
- [16] D. Kosanović et al., "The influence of mechanical activation on the morphological changes of Fe/BaTiO₃ powder," *Mater. Sci. Eng. B Solid-State Mater. Adv. Technol.*, vol. 212, pp. 89–95, 2016, doi: 10.1016/j.mseb.2016.07.016.
- [17] R. Arbain, M. Othman, and S. Palaniandy, "Preparation of iron oxide nanoparticles by mechanical milling," *Miner. Eng.*, vol. 24, no. 1, pp. 1–9, 2011, doi: 10.1016/j.mineng.2010.08.025.
- [18] S. Bid and S. K. Pradhan, "Preparation of zinc ferrite by high-energy ball-milling and microstructure characterization by Rietveld's analysis," *Mater. Chem. Phys.*, vol. 82, no. 1, pp. 27–37, 2003, doi: 10.1016/S0254-0584(03)00169-X.
- [19] C. Suryanarayana, E. Ivanov, and V. V. Boldyrev, "The science and technology of mechanical alloying," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 304–306, no. 1–2, pp. 151–158, 2001, doi: 10.1016/S0921-5093(00)01465-9.
- [20] A. C. Lima, N. Pereira, P. Martins, and S. Lanceros-Mendez, "Magnetic materials for magnetoelectric coupling: An unexpected journey," in *Handbook of Magnetic Materials*, vol. 29, 2020.
- [21] H. Zhao et al., "Aurivillius layer-structured multiferroic materials," in *Nanoscale Ferroelectric-Multiferroic Materials for Energy Harvesting Applications*, 2019.