

## ELECTRICAL, MAGNETIC AND OPTICAL PROPERTIES OF $\text{Ni}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4\text{-BaTiO}_3$ MULTIFERROIC NANOCOMPOSITES

Dao Son Lam<sup>1\*</sup>, Dinh Chi Linh<sup>1</sup>, Dang Duc Dung<sup>3</sup>, Nguyen Thi Dung<sup>2</sup>, Le Thi Giang<sup>4</sup>, Tran Dang Thanh<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Materials Science - VAST, <sup>2</sup>TNU - University of Science,

<sup>3</sup>Hanoi University of Science and Technology, <sup>4</sup>Hong Duc University

ARTICLE INFO	ABSTRACT
Received: 02/11/2021	Multiferroic nanocomposites materials with the composition $x\text{Ni}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4/(1-x)\text{BaTiO}_3$ ( $x = 0, 0.1, 0.3, 0.5$ ) ( $x\text{NZFO}/(1-x)$ BTO) with the particle size about 80-100 nm were prepared by high energy ball milling and thermal processing methods. The structural, ferromagnetic, ferroelectric and optical properties of these composites were investigated. The X-ray diffraction patterns show an existence of two phase, $\text{Ni}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4$ (NZFO) and $\text{BaTiO}_3$ (BTO) phases. At room temperature, in the range of the maximum electric field of 10 kV/cm, the values of the remnant polarization ( $P_r$ ), coercive field ( $E_c$ ), and saturation magnetization ( $M_s$ ) drastically increase in the ranges of 0.0055-0.0158 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ , 1.05 -3.2 kV/cm, and 0.6-31,2 emu/g, respectively, due to the effect of increasing ferromagnetism NZFO content from $x = 0$ to $x = 0.5$ . Besides, the influence of the NZFO content on the optical properties of nanocomposites was studied. When the NZFO content increases from $x = 0$ to $x = 0.5$ , the band gap energy of the material decreases from 3.2 to 2.65 eV.
Revised: 29/11/2021	
Published: 30/11/2021	
<b>KEYWORDS</b>	
Multiferroic	
Ferromagnetism	
Ferroelectric	
$\text{BaTiO}_3$	
Nanocomposites material	

## TÍNH CHẤT ĐIỆN, TỪ VÀ QUANG CỦA HỆ VẬT LIỆU NANO TỔ HỢP ĐA PHA ĐIỆN TỬ $\text{Ni}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4\text{-BaTiO}_3$

Đào Sơn Lâm<sup>1\*</sup>, Đinh Chí Linh<sup>1</sup>, Đặng Đức Dũng<sup>3</sup>, Nguyễn Thị Dung<sup>2</sup>, Lê Thị Giang<sup>4</sup>, Trần Đăng Thành<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Viện Khoa học vật liệu - Viện hàn lâm Khoa học và công nghệ Việt Nam,

<sup>2</sup>Trường Đại học Khoa học - ĐH Thái Nguyên,

<sup>3</sup>Trường Đại học Bách khoa Hà Nội, <sup>4</sup>Trường Đại học Hồng Đức

THÔNG TIN BÀI BÁO	TÓM TẮT
Ngày nhận bài: 02/11/2021	Vật liệu nano tổ hợp đa pha điện tử có công thức thành phần $x\text{Ni}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4/(1-x)\text{BaTiO}_3$ ( $x = 0; 0,1; 0,3; 0,5$ ) ( $x\text{NZFO}/(1-x)$ BTO) với kích thước hạt cỡ 80-100 nm được chế tạo bằng phương pháp nghiền cơ năng lượng cao kết hợp xử lý nhiệt. Các đặc trưng cấu trúc, tính chất điện, từ và quang đã được khảo sát. Giảm dần nhiều xạ tia X thể hiện vật liệu tồn tại hai pha độc lập của $\text{Ni}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4$ (NZFO) và $\text{BaTiO}_3$ (BTO). Ở nhiệt độ phòng, do ảnh hưởng của việc tăng hàm lượng của pha sắt từ NZFO từ $x = 0$ đến $x = 0,5$ , trong dải điện trường cực đại cỡ 10 kV/cm, giá trị của độ phân cực điện dư ( $P_r$ ), lực kháng điện ( $E_c$ ) và độ từ hóa bão hòa ( $M_s$ ) tăng mạnh, có giá trị tương ứng từ 0,0055-0,0158 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ , 1,05-3,2 kV/cm, và 0,6 - 31,2 emu/g. Bên cạnh đó, những ảnh hưởng của hàm lượng pha sắt từ NZFO đến tính chất quang của vật liệu đã được nghiên cứu hệ thống. Khi hàm lượng NZFO tăng từ $x = 0$ đến $x = 0,5$ , giá trị năng lượng vùng cấm của vật liệu đã suy giảm từ 3,2 xuống 2,65 eV.
Ngày hoàn thiện: 29/11/2021	
Ngày đăng: 30/11/2021	
<b>TỪ KHÓA</b>	
Đa pha điện tử	
Chất sắt từ	
Sắt điện	
$\text{BaTiO}_3$	
Vật liệu nano tổ hợp	

DOI: <https://doi.org/10.34238/tnu-jst.5225>

\* Corresponding author. Email: daosonlamln@gmail.com

## 1. Giới thiệu

Hiện nay, vật liệu đa pha điện từ đã và đang thu hút sự quan tâm nghiên cứu của nhiều nhà khoa học trên thế giới do chúng có nhiều ứng dụng trên các thiết bị điện tử hiện đại như: cảm biến vi cơ điện từ, lò vi sóng, bộ lọc sóng, thiết bị đọc và ghi từ, thiết bị đa chức năng, thiết bị thu và phát sóng siêu âm, thiết bị hoạt động dựa trên hiệu ứng quang điện [1]-[5]. Trong đó, một số vật liệu tổ hợp đa pha điện từ tiêu biểu như:  $\text{NiFe}_2\text{O}_4/\text{BaTiO}_3$  [4],  $\text{BiFeO}_3/\text{BaTiO}_3$  [6],  $\text{Co}_{0.5}\text{Mg}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4/\text{Ba}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{TiO}_3$  [7],  $(\text{NiZn})\text{Fe}_2\text{O}_4/\text{BaTiO}_3$  [8] và  $\text{BaSrTiO}_3/(\text{Ni,Zn})\text{Fe}_2\text{O}_4$  [9] đang được quan tâm nghiên cứu nhiều nhất. Vật liệu  $(\text{NiZn})\text{Fe}_2\text{O}_4$  có độ từ thẩm lớn, điện trở suất cao, độ bền cơ học lớn, giá thành hợp lý và có tính ổn định hóa học cao [10], [11] nên chúng trở thành đối tượng được nhiều người lựa chọn làm chất pha thêm vào nền  $\text{BaTiO}_3$  (BTO) nhằm cải thiện phẩm chất từ của vật liệu. Năm 2013, Sharma cùng cộng sự đã tổng hợp thành công vật liệu  $\text{Ni}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$  bằng phương pháp sol-gel kết hợp xử lý nhiệt [12]. Khi nồng độ  $\text{Zn}^{2+}$  tăng dần từ  $x = 0-1$ , điện trở suất của vật liệu giảm dần [8], [10], giá trị từ độ bão hòa  $M_s$  tăng từ 47,3 đến 73,8 emu/g, độ từ dư  $M_r$  tăng từ 0,62 đến 5,75 emu/g và độ rộng vùng cấm ( $E_g$ ) có xu hướng giảm mạnh [12]. Công bố của nhóm tác giả Mondal [8] cho thấy, khi chế tạo vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ  $(\text{BaSr})\text{TiO}_3/\text{Ni}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$  bằng phương pháp nghiền cơ năng lượng cao, các khuyết tật trong mạng tinh thể sẽ xuất hiện nhiều hơn, góp phần cải thiện độ phân cực điện dư, hệ số áp điện và hiệu ứng điện - từ của vật liệu [8]. Sự khác nhau về các tham số mạng tinh thể của vật liệu BTO và  $\text{Ni}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$  ứng với các tỷ lệ mol khác nhau sẽ làm thay đổi về tính chất điện, từ và tính chất quang trong vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ [13], [14]. Để hiểu rõ hơn về sự ảnh hưởng của hàm lượng pha sắt từ đến tính chất điện, từ và tính chất quang của vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ, chúng tôi đã nghiên cứu chế tạo và tính chất hệ vật liệu có công thức thành phần  $x\text{Ni}_{0,6}\text{Zn}_{0,4}\text{Fe}_2\text{O}_4/(1-x)\text{BaTiO}_3$  (viết tắt là NZFO/BTO) (với  $x = 0; 0,1; 0,3; 0,5$ ) bằng phương pháp nghiền cơ năng lượng cao kết hợp xử lý nhiệt.

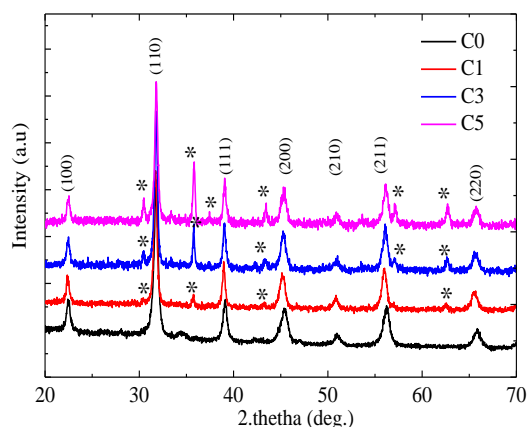
## 2. Phương pháp nghiên cứu

Hệ vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ  $x\text{Ni}_{0,6}\text{Zn}_{0,4}\text{Fe}_2\text{O}_4/(1-x)\text{BaTiO}_3$  (với  $x = 0; 0,1; 0,3; 0,5$ ) (kí hiệu tương ứng là C0, C1, C3, C5) được chế tạo từ các bột NiO, ZnO,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , BaO và  $\text{TiO}_2$  có độ tinh khiết cao (trên 99,9%) bằng phương pháp nghiền cơ năng lượng cao kết hợp xử lý nhiệt. Trước tiên, các hóa chất ban đầu được tính và cân theo công thức danh định nhằm tạo ra hai hợp chất NZFO và BTO riêng rẽ. Hỗn hợp bột của mỗi loại hợp chất được nạp vào các bình nghiền khác nhau với tỷ lệ khối lượng bi/bột là 4,8 và tiến hành nghiền cơ năng lượng cao trong 3 giờ trên thiết bị Spex 8000D. Bình và bi nghiền được chế tạo bằng thép tôi có độ cứng cao, quá trình nghiền được thực hiện trong môi trường không khí tại nhiệt độ phòng. Sản phẩm thu được sau khi nghiền được ép thành các viên dưới áp lực 7 tấn/cm<sup>2</sup>, đem ủ 5 giờ tại 700°C trong không khí. Các viên mẫu này sau đó được nghiền bằng tay trên cối mã nã để tạo thành dạng bột mịn. Tiếp theo, để chế tạo hệ vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ C0, C1, C3, C5, chúng tôi cân khối lượng các bột NZFO và BTO theo tỷ lệ mol  $x\text{NZFO}/(1-x)\text{BTO}$ , tiến hành nghiền và trộn đều các bột này bằng cối mã nã, sau đó ép thành các viên với áp lực 7 tấn/cm<sup>2</sup> và ủ 2 giờ tại 600°C nhằm tạo thành các viên mẫu rắn và chắc, phục vụ các nghiên cứu tiếp theo. Pha tinh thể và kích thước hạt của các mẫu được khảo sát bằng giản đồ nhiễu xạ tia X (XRD) sử dụng thiết bị Equinox 5000 (Thermo Scientific, bức xạ Cu-K $\alpha$ ,  $\lambda = 1,5406$  Å) và ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) chụp trên thiết bị Fe-SEM S4800 (Hitachi). Các tính chất điện và từ được khảo sát thông qua các phép đo đường cong điện trở trên thiết bị Precision LC II Model 609 và từ kế mẫu rung. Phổ hấp thụ UV-vis được đo trên thiết bị UV-vis-NIR Cary 5000. Các phép đo khảo sát đều được thực hiện tại nhiệt độ phòng.

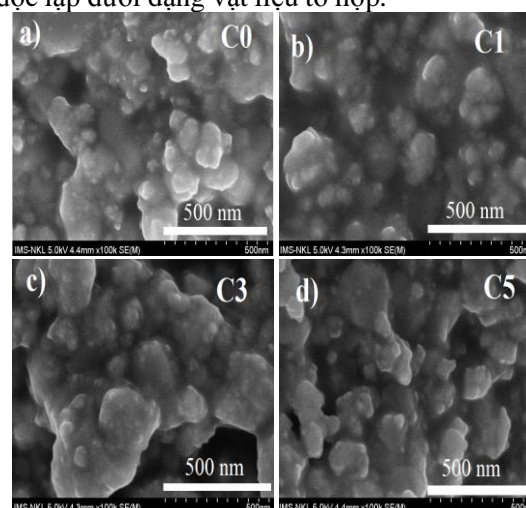
## 3. Kết quả và bàn luận

Hình 1 trình bày giản đồ XRD của các mẫu C0-C5 với các nồng độ NZFO khác nhau. Kết quả nghiên cứu chỉ ra rằng, mẫu C0 đơn pha tinh thể BTO, ký hiệu bằng bộ các chỉ số Miller (*hkl*).

Khi nồng độ NZFO tăng, trên các mẫu C1-C5 xuất hiện các vạch XRD đặc trưng cho pha tinh thể NZFO (ký hiệu \* trên giản đồ). Khi nồng độ  $x$  tăng, cường độ của các vạch XRD đặc trưng cho NZFO cũng tăng dần. Bên cạnh đó, chúng tôi không quan sát thấy sự biến dạng hay dịch vị trí của bất kỳ vạch XRD nào, chứng tỏ các pha BTO và NZFO tồn tại độc lập với nhau, không có sự khuếch tán hay phản ứng xảy ra giữa các pha NZFO và BTO. Điều này có nghĩa là trong các mẫu C1-C5 đồng tồn tại hai pha tinh thể NZFO và BTO độc lập dưới dạng vật liệu tổ hợp.



**Hình 1.** Giản đồ nhiễu xạ tia X của hệ vật liệu NZFO/BTO



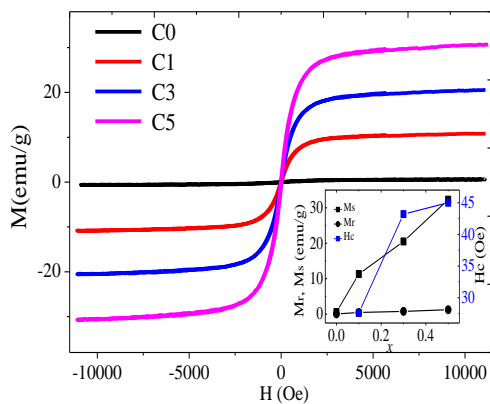
**Hình 2.** Ảnh SEM a) C0, b) C1, c) C3, d) C5 của hệ vật liệu NZFO/BTO

Ảnh SEM của các mẫu C0-C5 được thể hiện trong Hình 2. Quan sát ảnh SEM ta thấy vật liệu tồn tại dưới dạng các hạt nano, có kích thước khoảng 80-100 nm. Việc thay đổi hàm lượng NZFO trong mẫu không gây ảnh hưởng đến kích thước hạt thu được. Tuy nhiên, do các mẫu nghiên cứu đều thuộc loại dẫn điện kém nên việc thu được các ảnh SEM sắc nét là rất khó khăn. Biên hạt bị nhòe và khó phân tách ranh giới giữa các hạt. Nhiều hạt kết đám lại với nhau tạo thành các đám hạt có kích thước lớn cỡ vài trăm nm. Theo các nghiên cứu trước đây, vật liệu NZFO là một sắt từ mềm, có từ độ bão hòa khá cao (cỡ 63 emu/g) tại nhiệt độ phòng [5], [12]. Do vậy, việc pha thêm NZFO vào nền BTO sẽ giúp tăng cường từ độ của vật liệu tổ hợp.

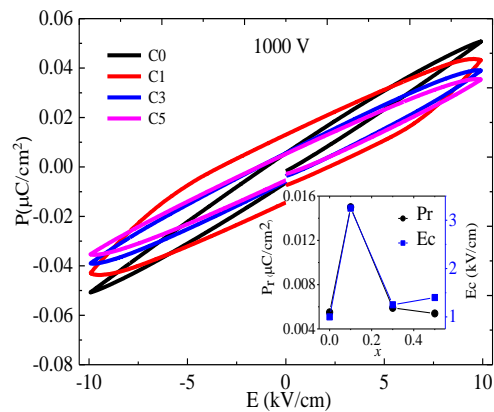
Đường cong từ trễ  $M(H)$  của các mẫu vật liệu tổ hợp C0-C5 được trình bày trong Hình 3. Từ Hình 3 ta thấy, khi chưa pha tạp ( $x = 0$ , tương ứng với mẫu C0), đường cong  $M(H)$  của vật liệu thể hiện đặc trưng của một chất thuận từ với giá trị từ độ rất nhỏ (từ độ tại 10 kOe đạt cỡ 1 emu/g). Trái lại, khi pha thêm NZFO vào nền BTO, các đường cong  $M(H)$  của vật liệu tổ hợp thể hiện đặc trưng sắt từ mềm với lực kháng từ  $H_c$  rất nhỏ (khoảng vài chục Oe). Từ độ của các mẫu này tiệm cận tới trạng thái bão hòa trong từ trường lớn hơn 2 kOe. Trật tự sắt từ trong các mẫu tổ hợp C1-C5 được cho là có nguồn gốc từ pha sắt từ NZFO. Khi hàm lượng NZFO tăng dần từ  $x = 0,1$  đến  $x = 0,5$ , giá trị độ từ dư ( $M_r$ ) tăng dần từ 0,47 đến 1,25 emu/g; giá trị từ độ bão hòa ( $M_s$ ) tăng dần từ 11,4 đến 31,2 emu/g, xem hình nhỏ lồng trong Hình 3. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với các nghiên cứu trước đây [5]. Như vậy, có thể nhận định rằng việc pha thêm NZFO vào nền BTO đã giúp cải thiện các đặc trưng từ của vật liệu, tạo ra trật tự sắt từ mềm với từ độ bão hòa khá cao trong vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ.

Tính chất sắt điện của hệ vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ NZFO/BTO được khảo sát thông qua đường cong điện trễ tại nhiệt độ phòng. Hình 4 trình bày các đường cong điện trễ  $P(E)$  của hệ vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ đo trong điện thế cực đại 1000 V. Từ Hình 4 ta thấy các đường cong  $P(E)$  của các mẫu đều thể hiện các đặc trưng của vật liệu sắt điện. Khi  $x$  tăng, các hạt NZFO đóng vai trò là các “tâm ghim tự phát” sẽ xuất hiện nhiều hơn trong vật liệu, ngăn cản sự định

hướng của các đô men sắt điện trong điện trường ngoài [4]. Do độ giá trị lực kháng điện ( $E_c$ ) tăng dần từ 1,05 đến 3,2 kV/cm và giá trị độ phân cực điện dư tăng dần từ 0,0055 đến 0,0158  $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ . Sự thay đổi của độ phân cực điện dư  $P_r$  và trường kháng điện  $E_c$  theo nồng độ NZFO ( $x$ ) được trình bày trong hình nhỏ lồng trong Hình 4. Ta nhận thấy, với hàm lượng của pha sắt từ NZFO trong vật liệu đạt cỡ  $x = 0,1$ , đặc trưng sắt điện của vật liệu tổ hợp là tốt nhất. Khả năng phân cực điện của vật liệu đã tăng mạnh góp phần làm cải thiện tính chất sắt điện của vật liệu. Tuy nhiên, khi hàm lượng pha sắt từ NZFO cao hơn ( $x \geq 0,3$ ), điện trở suất của hệ vật liệu NZFO/BTO có thể đã bị suy giảm [8], [10], làm giảm khả năng phân cực điện của vật liệu. Điều này thể hiện khi độ phân cực điện dư và độ phân cực điện cực đại của vật liệu bị suy giảm mạnh. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với các nghiên cứu trước đây về hệ vật liệu này [5], [7], [8], [10]. Từ các kết quả thu được về tính chất từ và tính chất điện của vật liệu, chúng tôi khẳng định rằng hệ vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ NZFO/BTO đã chế tạo được có các đặc trưng của vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ.



**Hình 3.** Đường cong từ trễ của hệ vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ C0 – C5. Hình nhỏ lồng bên trong trình bày sự thay đổi của  $M_r$ ,  $M_s$  và  $H_c$  theo nồng độ  $x$

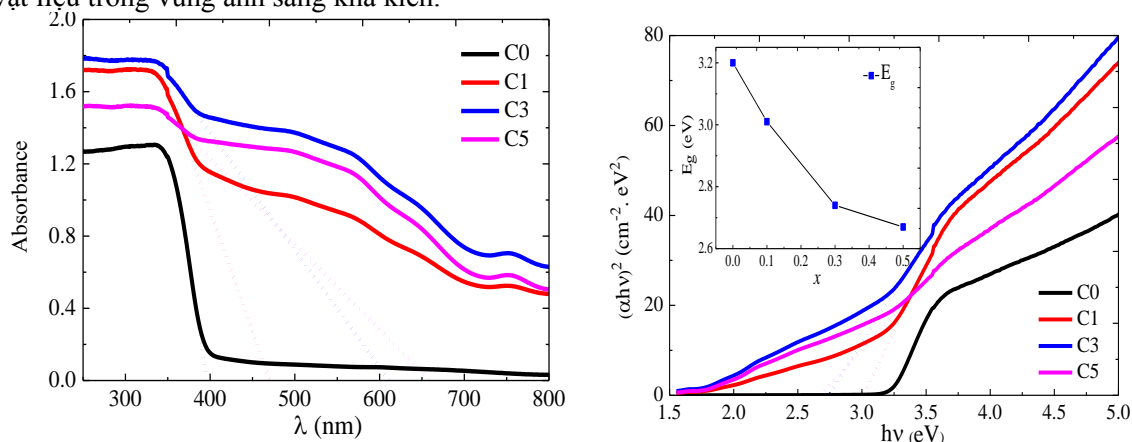


**Hình 4.** Đường cong điện trễ  $P(E)$  của các mẫu C0-C5 với điện áp cực đại 1000 V. Hình nhỏ lồng bên trong trình bày sự thay đổi của  $P_r$  và  $E_c$  theo nồng độ NZFO ( $x$ )

Hình 5 trình bày phổ hấp thụ theo bước sóng của vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ NZFO/BTO. Ta thấy mẫu C0 có bờ hấp thụ tại bước sóng khoảng 400 nm. Khi  $x$  tăng, bờ hấp thụ dịch dần về phía bước sóng dài, đồng thời cường độ hấp thụ trong vùng bước sóng dài cũng được tăng lên đáng kể. Giá trị của năng lượng vùng cấm ( $E_g$ ) có thể xác định được theo từ mối quan hệ  $(\alpha h\nu)^n = A(h\nu - E_g)$ , trong đó,  $\alpha$  là hệ số hấp thụ,  $\lambda$  là bước sóng,  $A$  là hằng số, số mũ  $n$  là hằng số,  $n = 2$  ứng với trường hợp bán dẫn có chuyển mức năng lượng thẳng (vùng cấm thẳng) và  $n = 1/2$  ứng với trường hợp chuyển mức năng lượng xiên (vùng cấm xiên). Từ số liệu thực nghiệm, chúng tôi nhận thấy hệ vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ NZFO/BTO phù hợp với  $n = 2$  hơn so với  $n = 1/2$ . Hình 6 biểu diễn mối quan hệ giữa  $(\alpha h\nu)^2$  và  $h\nu$  của vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ NZFO/BTO với các nồng độ NZFO khác nhau.

Hình 6 trình bày mối quan hệ  $(\alpha h\nu)^2$  theo  $h\nu$  của các mẫu C0-C5. Từ Hình 6, dựng các đường tiếp tuyến của đoạn tuyến tính nhất trên các đường cong  $(\alpha h\nu)^2$  theo  $h\nu$  và ngoại suy về giá trị  $(\alpha h\nu)^2 = 0$ , từ đó ta sẽ xác định được giá trị  $E_g$  của các mẫu tương ứng. Theo đó, giá trị  $E_g$  của các mẫu giảm dần từ 3,2 xuống 2,65 eV khi  $x$  tăng từ 0 đến 0,5. Kết quả này được biểu diễn bằng hình nhỏ lồng trong Hình 6. Sự thu hẹp vùng cấm của hệ BTO khi có pha thêm NZFO có thể được giải thích do sự có mặt của các electron  $3d$  của  $\text{Ni}^{2+}$  và  $\text{Fe}^{3+}$  phân bố trên các orbital  $t_{2g}$  và  $e_g$  đã tạo ra mức năng lượng mới trong vùng cấm của BTO. Ngoài ra, sự có mặt của  $\text{Zn}^{2+}$  sẽ góp phần ngăn cản sự tái kết hợp giữa electron và lỗ trống trong vật liệu, làm giá trị độ rộng vùng cấm sẽ bị suy giảm mạnh [12]. Do vậy, khi được kích thích, các electron dễ dàng chuyển lên các

trạng thái năng lượng mới [14]. Nhờ đó, có thể góp phần làm tăng cường hoạt tính xúc tác của vật liệu trong vùng ánh sáng khả kiến.



**Hình 5.** Phổ hấp thụ UV-VIS của các mẫu C0-C5

**Hình 6.** Mối quan hệ giữa  $(\alpha h\nu)^2$  và  $h\nu$ , hình nhỏ lồng bên trong biểu diễn sự phụ thuộc của  $E_g$  theo hàm lượng NZFO ( $x$ )

#### 4. Kết luận

Vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ NZFO/BTO có các đặc trưng đa pha điện từ được tổng hợp thành công bằng phương pháp nghiền cơ năng lượng cao kết hợp xử lý nhiệt. Kết quả đã chỉ ra trong mẫu có sự đồng tồn tại của hai pha riêng biệt NZFO và BTO với kích thước hạt khoảng 80-100 nm. Bằng việc pha thêm khoảng 10% mol NZFO ( $x = 0,1$ ) vào nền BTO, chúng ta có thể tạo ra vật liệu nano tổ hợp đa pha điện từ NZF/BTO với các đặc trưng sắt điện và sắt từ được cải thiện đáng kể so với vật liệu ban đầu (BTO). Bên cạnh đó, với nồng độ pha tạp này độ rộng vùng cấm đạt giá trị khoảng 2,65 eV, giúp vật liệu có tiềm năng cao hơn trong các nghiên cứu về tính chất quang xúc tác trong vùng ánh sáng khả kiến.

#### Lời cảm ơn

Công trình này được thực hiện với sự hỗ trợ về kinh phí của Đề tài hỗ trợ nghiên cứu cấp cơ sở dành cho cán bộ trẻ năm 2021 thuộc Viện Khoa học vật liệu, Viện hàn lâm Khoa học và công nghệ Việt Nam, mã số: HTCBT.07/21-21.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO/ REFERENCES

- [1] S. S. Choudhari, S. B. Shelke, K. M. Batoor, S. F. Adil, A. B. Kadam, A. Imran, M. Hadi, E. H. Raslan, S. E. Shirsath, and R. H. Kadam, "Mn<sub>0.7</sub>Zn<sub>0.3</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> + BaTiO<sub>3</sub> composites: structural, morphological, magnetic, M-E effect and dielectric properties," *Mater Sci: Mater Electron.*, vol. 32, pp. 10308-10319, 2021.
- [2] G. Elham, B. Shahia, D. Young, S. Bhalla, and G. Ruyan, "Modeling, simulation and synthesis of multiferroic magnetoelectric CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/BaTiO<sub>3</sub> composite nanoparticles," *Solid State Communications*, vol. 333, p. 114288, 2021.
- [3] M. Kumar, S. Shankar, A. Kumar, A. Anshul, M. Jayasimhadri, and O. P. Thakur, "Progress in multiferroic and magnetoelectric materials: applications, opportunities and challenges," *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, vol. 31, pp. 19487-19510, 2020.
- [4] B. Prakash and G. Venkataiah, "Structural, magnetic and electric properties of multiferroic NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-BaTiO<sub>3</sub> composites," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 477, pp. 350-355, 2019.
- [5] Q. Norman, R. Robert, F. Syrowatk, M. Steimecke, and G. E. Stefan, "Spin-coating and characterization of multiferroic MFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (M= Co, Ni)/BaTiO<sub>3</sub> bilayers," *Journal of Solid State Chemistry*, vol. 233, pp. 82-89, 2016.

- [6] S. G. Anil, E. S. Sagar, R. W. Santosh, R. H. Kadam, S. Jyoti, R. K. Kotnalad, and A. B. Kadam, "Magneto-electric coupling and improved dielectric constant of BaTiO<sub>3</sub> and Fe-rich (Co<sub>0.7</sub>Fe<sub>2.3</sub>O<sub>4</sub>) ferrite nano-composites," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 465, pp. 508-514, 2018.
- [7] A. C. Roy and D. Mohanta, "Structural and ferroelectric properties of solid-state derived carbonate-free barium titanate (BaTiO<sub>3</sub>) nanoscale particles," *Scripta Materialia*, vol. 61, pp. 891-894, 2009.
- [8] R. Mondal, B. Murty, and V. Murthy, "Dielectric, magnetic and enhanced magnetoelectric response in high energy ball milling assisted BST-NZF particulate composite," *Materials Chemistry and Physics*, vol. 167, pp. 338-346, 2015.
- [9] A. S. Dzunuzovic, M. M. Vijatovic Petrovic, J. D. Bobic, N. I. Ilic, M. Ivanov, R. Grigalaitis, J. Banys, and B. D. Stojanovic, "Magneto-electric properties of xNi<sub>0.7</sub>Zn<sub>0.3</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-(1-x) BaTiO<sub>3</sub> multiferroic composites," *Ceramics International*, vol. 44, pp. 683-694, 2018.
- [10] T. Jahanbin, M. Hashim, and K. A. Mantori, "Comparative studies on the structure and electromagnetic properties of Ni-Zn ferrites prepared via co-precipitation and conventional ceramic processing routes," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 322, pp. 2684-2689, 2010.
- [11] M. A. Gabal and W. A. Bayoumy, "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.
- [12] S. Rimi and S. Sonal, "Structural, magnetic and electrical properties of zinc doped nickel ferrite and their application in photo catalytic degradation of methylene blue," *Physic B*, vol. 414, pp. 83-90, 2013.
- [13] D. K. Pradhan, S. Kumari, and P. D. Rack, "Magnetoelectric Composites: Applications, Coupling Mechanisms, and Future Directions," *Nanomaterials*, vol. 10, pp. 2072-2094, 2020.
- [14] K. Sidra, H. Nudrat, N. Saba, R. Saira, A. Shahid, and N. Shahzad, "Simultaneous normal – Anomalous dielectric dispersion and room temperature ferroelectricity in CBD perovskite BaTiO<sub>3</sub> thin films," *Journal of Materials Research and Technology*, vol. 1, pp. 11439-11452, 2020.