

Sol-gel법에 의한 초미세 분말 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 의 결정학적 및 자기적 성질 연구

김우철 · 김삼진 · 김철성

국민대학교 자연과학대학 물리학과, 서울 성북구 정릉동 861, 136-702

이승화

충북대학교 공과대학 전기전자공학부, 청주시 흥덕구 개신동 산 48, 361-763

(1999년 7월 8일 받음, 1999년 8월 12일 최종수정본 받음)

Sol-gel법을 이용하여 초미세분말 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 의 소결온도에 따른 결정학적 및 자기적 성질을 x-선 회절기와 Mössbauer 분광기, 진동시료 자화율 측정기(VSM)를 이용하여 연구하였다. X-선 회절실험과 Mössbauer 분광실험으로부터 523 K 이상에서 소결한 분말이 cubic spinel 구조를 가지고 있음을 알 수 있었다. Mössbauer 분광실험으로부터 523, 723 K와 823 K에서 소결한 분말의 경우 실온에서 준강자성체와 초상자성으로 인한 상자성체의 성질을 동시에 가지고 있고, 923 K 이상에서 소결한 분말은 준강자성체의 단일상이 형성됨을 알 수 있었다. 923 K에서 소결한 분말의 경우 격자상수값은 $8.398 \pm 0.005 \text{ \AA}$ 이었고 실온에서 A, B 자리 초미세 자기장값은 $H_{\text{hf}}(\text{A}) = 479 \text{ kOe}$, $H_{\text{hf}}(\text{B}) = 502 \text{ kOe}$ 이며, 이 성질체 이동값의 결과 A, B 자리 모두 Fe^{3+} 를 나타냈다. 실온에서 소결온도에 따른 포화자화값은 소결온도가 증가할수록 증가하였으며 보자력은 923 K에서 소결한 시료가 1368 Oe로 최대값을 가졌다. 1123 K에서 소결한 분말의 경우 포화자화값은 실온에서 75 emu/g로 CoFe_2O_4 의 포화자화값 76 emu/g와 큰 차이를 나타내지 않았다.

I. 서 론

최근 모든 산업의 정보화로 고밀도와 고속의 정보 저장에 관한 기술이 더욱 더 요구되고 있으며, 이러한 요구의 충족을 위하여 근래에 정보 저장을 위한 고밀도의 초미세 자성분말에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다[1, 2]. 강자성물질인 CoFe_2O_4 와 $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ 를 습식법과 저온소결로 초미세 분말의 입자를 합성하여 그들의 자기적 특성에 관한 연구가 보고되고 있으며[3, 4] 이러한 초미세 분말 합성에 관한 연구는 이들 분말의 자기적 성질이 거대 분말의 자기적 성질과 다른 특성을 지니므로 이에 대한 연구는 학문적 연구로써 뿐만 아니라 고밀도 정보 저장을 위한 자성분말로 사용될 수 있기 때문에 그 연구의 중요성은 크다고 할 수 있다. 특히 Co 페라이트의 경우 높은 보자력(5400 Oe)과 적당한 크기의 포화자화(약 80 emu/g)를 가짐으로 고밀도 정보 저장용 테이프 기록 매체의 이용에 필요한 모든 자기적 특성을 지니고 있어, 이에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다[5-7]. 또한 자기적 특성과 광자기적 성질을 개선하기 위한 목적으로 자성이온인 Mn^{2+} 이온을 첨가한 $\text{CoFe}_{2-x}\text{Mn}_x\text{O}_4$ 와[8, 9] Curie 온도를 낮추기 위한 목적으로 비자성 이온인 Al^{3+} 와 Cr^{3+} 가 첨가된 $\text{CoFe}_{2-x}\text{Al}_x\text{O}_4$, $\text{CoFe}_{2-x}\text{Cr}_x\text{O}_4$ 계도[10, 11] 많은 연구가 되어 오고 있다. 한

편 최근에 microwave device 소자로 각광받고 있는 YIG($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$)에 Bi를 첨가한 시료의 경우 소자 이용으로의 큰 장점을 가지며 $\text{Bi}^{3+}\text{-O-Fe}^{3+}$ superexchange interaction이 더 강해져 Faraday rotation 효과가 증가한다고 알려져 있다[12, 13]. 이에 본 연구는 스피넬 구조를 가지는 CoFe_2O_4 에 Bi를 치환한 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 를 sol-gel법으로 제조하여 소결 온도에 따른 결정학적 특성과 자기적 성질을 x-선 회절기와 Mössbauer 분광기, 진동시료 자화율 측정기(VSM)를 이용하여 연구하고자 한다.

II. 실험사항

Sol-gel법에 의한 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 분말의 합성을 위한 실험공정도를 Fig. 1에 나타내었다.

99 % 이상 고순도의 시약 $\text{Co}(\text{CH}_3\text{CO}_2)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 와, $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 를 적정 당량비로 혼합한 후 10 cc의 증류수와 2-methoxyethanol(2-MOE)를 용매로 하여 초음파 세척기에서 30분간 희석한 후 약 343 K 온도에서 12시간 자석 교반기를 이용하여 용액을 반응시킨 후 희석된 용액을 373 K의 건조기에서 24시간 동안 물과 2-MOE를 제거하여 건조된 분말을 제조하였다. 건조된 분말은 유발을 이용하여 분쇄한 후 공기 중에서 여러

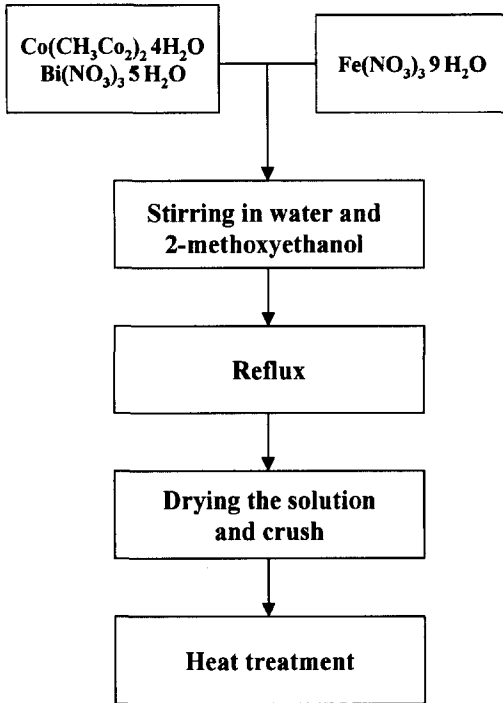


Fig. 1. Preparation process for the $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powder.

온도(423, 523, 723, 823, 923, 1023, 1123, 1273 K)로 6시간 동안 소결하여 spinel 페라이트 분말을 얻었다. 시료의 결정구조를 확인하기 위해 $\text{CuK}\alpha$ 선을 사용하는 Philips x-선 회절기를 이용하였다. Mössbauer 스펙트럼은 전기역학적 등가속도형[14] Mössbauer 분광기로 취하였으며, γ 선원은 Dupont 회사제품의 Rh 금속에 들어있는 실온상태의 30 mCi의 ^{57}Co 단일선을 사용하였다. 시료의 양은 60 mg으로 하였고 시료의 균일한 두께를 위해 직경이 1인치이고 두께가 0.005 인치의 Be 판을 양면에 막아서 사용하였다. VSM은 Lake Shore 7300을 이용하여 실온에서 외부자기장을 15 kOe 인가하여 자기모우멘트를 측정하였다.

III. 결과 및 논의

Sol-gel법으로 제조한 시료 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 를 소결 온도별로 x-선 회절도를 취하였으며 그 결과를 Fig. 2에 나타내었다.

산란각도 및 산란강도를 바탕으로 자세히 분석한 결과 523 K 이상의 소결온도에서 cubic spinel 구조가 형성되었음을 알 수 있었으며, 이는 sol-gel법으로 제조한 순수한

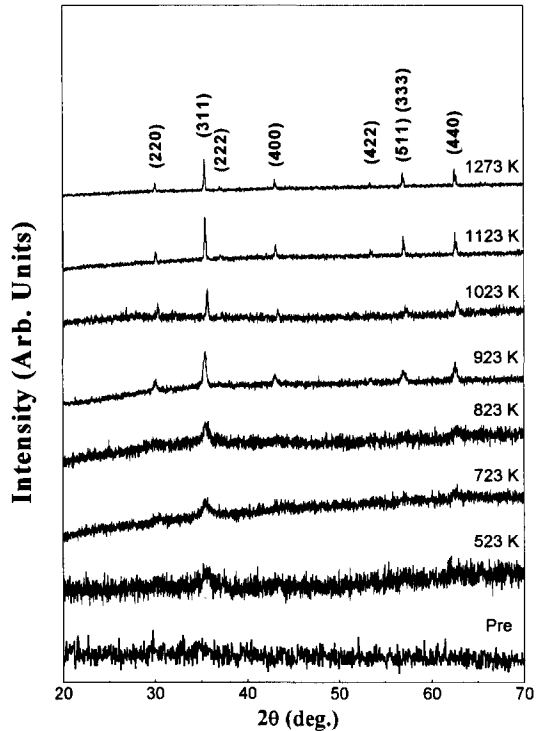


Fig. 2. The x-ray diffraction patterns of $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powders as a function of annealing temperature.

Co 페라이트(CoFe_2O_4)[6, 7]에 비해 100 K 이하, Co-Mn 페라이트 $\text{Co}_{0.9}\text{Mn}_{0.1}\text{Fe}_2\text{O}_4$ [8]에 비해 150 K 이하의 낮은 온도를 나타냈다. 소결되지 않은 분말(pre-heating material)의 x-선 회절도에서는 spinel 구조가 나타내는 peak를 관찰할 수 없었으며 이는 373 K의 건조과정에서 시료가 결정화되기에 충분히 온도가 높지 않아 비정질 상태로 존재하거나 입자크기가 매우 작기 때문으로 생각된다. 분말시료의 격자상수값을 구하기 위해 각각의 회절 선으로부터 얻은 격자상수 $a_0(\theta)$ 을 Nelson-Riley 함수에 의하여 그릴 때 나타나는 직선의 절편값 즉 Nelson-Riley 함수값[15]이 0이 되는 a_0 값을 computer에 의해 최소자승법으로 맞추어 구하였으며 923 K 소결온도에서 격자상수값은 $a_0 = 8.398 \pm 0.005 \text{ \AA}$ 를 나타내었다. 소결온도가 증가함에 따라 각 시료들의 XRD peak들의 선 폭은 좁아졌고 이로부터 spinel 페라이트의 입자가 점점 성장해 감을 알 수 있었다. 소결온도별 평균 입자크기를 구하기 위해 Fig. 2의 x-선 회절도로부터 Scherrer 공식[16]

$$t = \frac{0.9\lambda}{B \cos \theta_B} \quad (1)$$

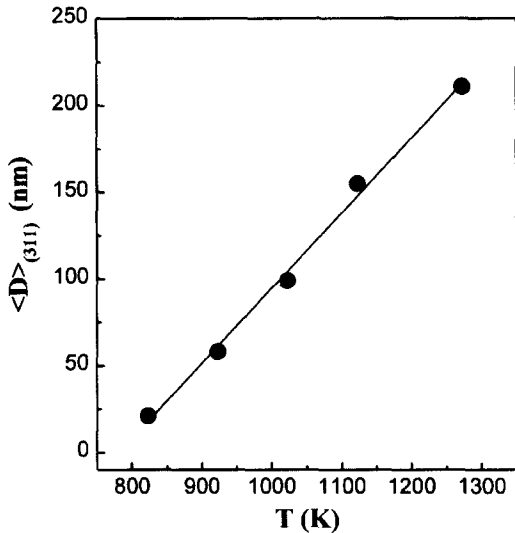


Fig. 3. Mean particle size of $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powders as a function of annealing temperature.

을 이용하여 입자크기를 구하였으며(여기서 t 는 결정립의 크기, λ 는 x-선 회절에 사용된 파장, B 는 주 peak(311)의 반치폭, θ_B 는 주 peak(311)의 각도를 나타낸다.) 그

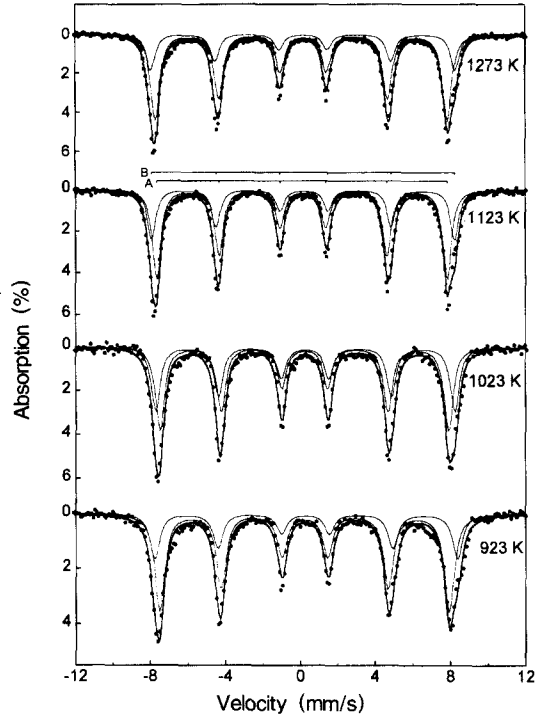


Fig. 5. Room-temperature Mössbauer spectra of $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powders at high annealing temperature.

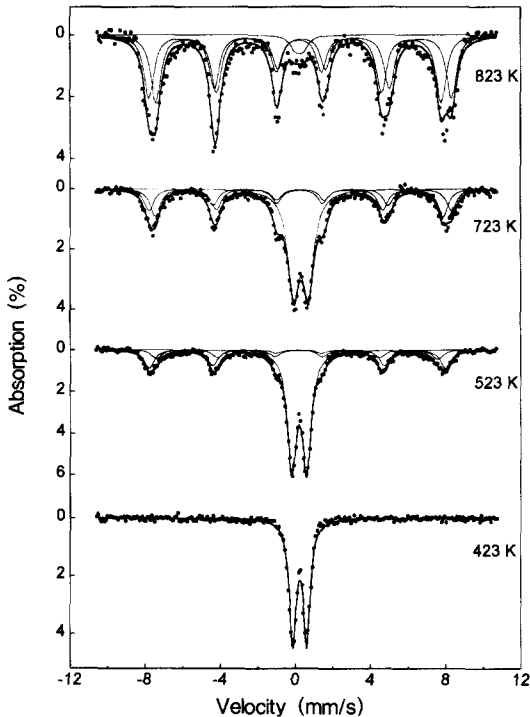


Fig. 4. Room-temperature Mössbauer spectra of $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powders at low annealing temperature.

결과를 Fig. 3에 나타내었다.

소결온도가 증가함에 따라 입자크기는 증가하였으며 923 K에서 소결한 시료의 입자크기는 대략 58 nm이고 1273 K에서 소결한 시료의 입자크기는 대략 211 nm를 나타냈다. 초미세 분말 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 의 소결온도에 따른 미세적인 자기적 성질을 연구하기 위해 실온에서 Mössbauer 분광실험을 수행하였으며 그 결과를 Fig. 4, 5에 나타내었다.

923 K 이상에서 소결한 시료는 6 line의 넓은 선 폭을 가진 Mössbauer 스펙트럼이 나타났고, 823, 723 K와 523 K에서 소결한 시료는 6 line과 2 line이 중첩된 스펙트럼이, 423 K에서 소결한 시료는 2 line의 Mössbauer 스펙트럼이 관찰되었다. 이는 소결온도가 증가함에 따라 입자크기가 증가하여 나타난 결과로 볼 수 있으며 6 line은 입자크기가 비교적 큰 준강자성체가 나타내는 스펙트럼이고 2 line은 입자크기가 비교적 작은 상자성체가 나타내는 스펙트럼이다. 이로부터 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 는 923 K 이상에서 소결한 시료가 준강자성체의 단일상을 가진 입자가 형성되었음을 알 수 있었다. 이는 CoFe_2O_4 [6, 7]에 비해 200 K 이상 $\text{Co}_{0.9}\text{Mn}_{0.1}\text{Fe}_2\text{O}_4$ [8]에 비해 150 K 이상

높은 온도이다. 이들 스펙트럼을 분석하기 위하여 computer를 사용하여 6개 또는 2개의 Lorentzian 선형으로 최소자승법을 이용하여 컴퓨터로 각 스펙트럼에 맞추었으며 6개 선의 위치로는 전기사중극자 상호작용이 초미세 자기장보다 상당히 약할 때 적용되는 식[17]을 사용하였다. 이 경우 전기사중극자 상호작용의 크기 ΔE_Q 는

$$\Delta E_Q = \frac{1}{8} e^2 q Q [3 \cos^2 \theta - 1 + \eta \sin^2 \theta (2\phi)] \quad (2)$$

와 같이 표시되며, 여기서 θ 와 ϕ 는 전기장기울기텐서의 세주축에 대한 초미세 자기장 벡터 방향의 극좌표 각이고 eq 와 η 는 전기장기울기텐서의 최대 주치와 비대칭 인자를 각각 나타낸다. Q 는 ^{57}Fe 의 14.4 KeV 준위의 전기사중극자 모멘트이다. Fitting에 의해 분석된 결과를 Table I에 수록하였다.

Table I의 523 K에서 소결한 시료의 A, B 자리의 초미세 자기장값은 $H_{hf}(A) = 465 \text{ kOe}$, $H_{hf}(B) = 491 \text{ kOe}$ 이고 1273 K에서 소결한 시료는 $H_{hf}(A) = 484 \text{ kOe}$, $H_{hf}(B) = 504 \text{ kOe}$ 로 소결온도가 증가함에 따라 A, B 자리 초미세 자기장값 모두 증가를 하였다. 523 K 이상에서 소결한 시료의 이성질체 이동값은 A 자리가 0.14 mm/s~0.24 mm/s, B 자리가 0.15 mm/s~0.32 mm/s 로 이 값은 A, B 자리 모두 Fe^{3+} 에 해당된다. Fig. 6은 소결온도에 따른 A, B 자리의 실온에서의 초미세 자기장값을 보여준다.

또한 소결온도별 이성질체 이동값은 A 자리값이 B 자리의 값보다 작게 나타났으며 이는 A 자리의 $\text{Fe}_A^{3+} - \text{O}^{2-}$ 결합이 B 자리의 $\text{Fe}_B^{3+} - \text{O}^{2-}$ 결합보다 Fe 이온들이 더 강한 공유결합에 참여하고 있다고 설명할 수 있다. 전기사중

Table I. Room-temperature Mössbauer parameters for $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ at various annealing temperatures. H_{hf} is the magnetic hyperfine field, ΔE_Q is the quadrupole splitting, and δ is the isomer shift relative to metallic iron at room temperature

T(K)	Mössbauer Parameters					
	H_{hf} (kOe)		ΔE_Q (mm/s)		δ (mm/s)	
	A	B	A	B	A	B
1273	484	504	-0.05	0.01	0.14	0.18
1123	482	502	-0.03	-0.01	0.14	0.20
1023	481	502	-0.01	0.01	0.24	0.28
923	479	502	-0.01	0.02	0.23	0.30
823	476	501	-0.01	-0.04	0.20	0.32
723	474	501	-0.02	-0.01	0.24	0.29
523	465	491	-0.04	-0.03	0.14	0.15

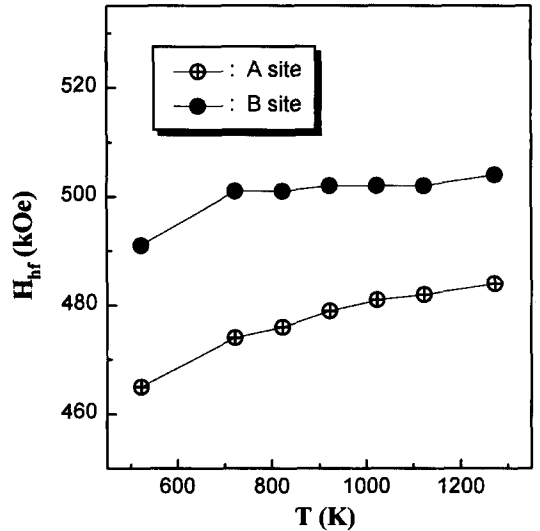


Fig. 6. Room-temperature hyperfine fields of $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powders as a function of annealing temperature.

극자 분열값은 A, B 자리 모두 매우 작은값(-0.05 mm/s ~ -0.02 mm/s)을 나타냈으며 이는 x-회절실험결과에서 볼 수 있듯이 결정구조가 cubic 대칭성을 가지는 것과 잘 일치한다.

한편 소결온도에 따른 Mössbauer 스펙트럼은 준강자성체 성질과 초상자성으로 인한 상자성체 성질이 공존함을 알았고, 이들 각각의 소결온도에 따른 Mössbauer 스펙트럼의 면적으로부터 준강자성체와 상자성체의 존재비율을

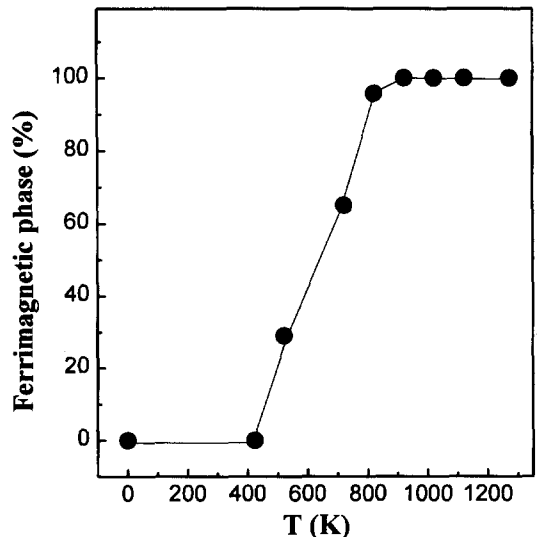


Fig. 7. Relative abundance of the ferrimagnetic phase for $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powders as a function of annealing temperature.

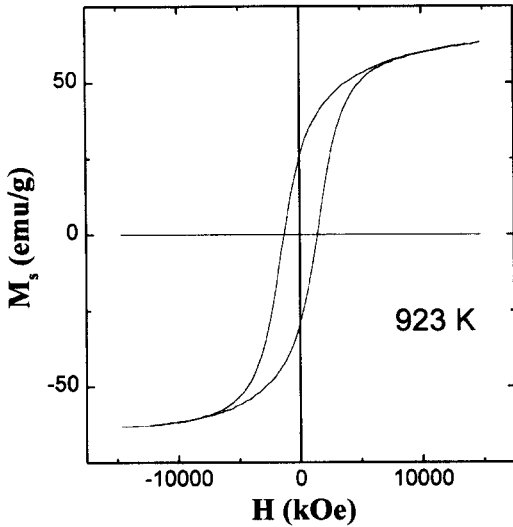


Fig. 8. Magnetization versus magnetic field for the sample fired at 923 K.

구하였으며 Fig. 7에 그 결과를 나타내었다. Fig. 7의 준강자성체 영역과 상자성체 영역의 백분율은 523 K에서 소결한 시료의 경우는 $29 \pm 0.5\%$ 와 $71 \pm 0.5\%$ 였고, 723 K에서 소결한 시료는 $65 \pm 0.5\%$ 와 $35 \pm 0.5\%$, 823 K에서 소결한 시료는 $96 \pm 0.5\%$ 와 $4 \pm 0.5\%$ 로 각각 분석되었다.

소결온도에 따른 포화자화값과 보자력을 구하기 위해 15 kOe의 외부자기장을 가하여 실온에서 자기이력곡선을 측정하였으며 이중 대표적인 것을 Fig. 8에 나타내었다.

Fig. 8의 923 K에서 소결한 시료의 자기이력곡선은 전형적인 강자성체를 보여주며 포화자화값과 보자력은 63 emu/g, 1368 Oe인 값을 나타냈다. Fig. 9는 소결온도에 따른 포화자화값과 보자력을 나타낸다.

523, 823 K와 1273 K에서 소결한 시료의 포화자화값은 각각 13, 46 emu/g와 76 emu/g로 소결온도가 증가할수록 포화자화값도 증가를 하였으며, 보자력은 523 K에서 소결한 시료는 412 Oe, 823 K에서 소결한 시료는 1195 Oe, 1273 K에서 소결한 시료는 226 Oe로 소결온도가 증가함에 따라 보자력이 점차 증가하여 923 K에서 소결한 시료에서 최대값에 이르고 소결온도가 더욱 증가하면 반대로 작아지는 결과를 나타냈다. 반면에 Co 페라이트(CoFe_2O_4)는 [6, 7] 623 K 소결온도 이상의 시료에서, Co-Mn 페라이트($\text{Co}_{0.9}\text{Mn}_{0.1}\text{Fe}_2\text{O}_4$)는 [8] 873 K 소결온도 이상의 시료에서 보자력이 감소하고 포화자화값이 증가하는 현상을 나타냈다. 최대보자력값은 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 이 1368 Oe로 순수한 Co 페라이트의 최대보자력값 2020 Oe [6, 7]

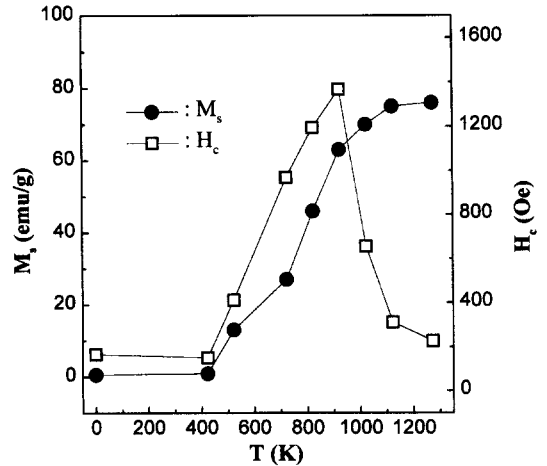


Fig. 9. Changes of saturation magnetization and coercivity for $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ powders as a function of annealing temperature.

보다 652 Oe 만큼 작은 값을 나타냈다. 이러한 소결온도에 따른 포화자화값과 보자력의 변화는 x-선 회절실험과 Mössbauer 분광실험 결과에서 볼 수 있었듯이 입자 크기의 증가에 따른 현상으로 볼 수 있다.

한편 1123 K에서 소결한 시료 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 의 포화자화값은 75 emu/g로 CoFe_2O_4 [6, 7]의 포화자화값 76 emu/g와 큰 차이를 나타내지 않았지만 $\text{Co}_{0.9}\text{Mn}_{0.1}\text{Fe}_2\text{O}_4$ [8]의 포화자화값 66 emu/g보다는 9 emu/g 만큼 큰 값을 나타냈다.

IV. 결 론

Sol-gel법을 이용하여 CoFe_2O_4 에 Bi를 치환한 초미세분말의 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 페라이트 입자를 성장시켰으며 x-선 회절실험과 Mössbauer 분광실험으로부터 CoFe_2O_4 는 623 K [6, 7]에서 $53 \pm 0.5\%$ 의 spinel 구조의 결정상이 보였으나 Bi를 치환한 초미세분말의 $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ 시료는 523 K에서 $29 \pm 0.5\%$ 의 spinel 결정상이 형성됨을 알 수 있었다. 또한 소결온도가 증가함에 따라 각 시료들의 XRD peak들의 선 폭이 넓어져 입자크기가 증가해감을 확인할 수 있었으며, 923~1273 K 소결온도 영역에서 입자 크기는 대략 58~211 nm를 가짐을 알 수 있었다. Mössbauer 분광실험결과 소결온도가 증가함에 따라 상자성체에서 준강자성체로 변해 감을 확인하였으며 523, 723 K와 823 K에서 소결한 시료의 경우 준강자성체 성질과 초상자성으로 인한 상자성체 성질이 공존하고 있음이 관찰

되었다. 준강자성체의 단일상을 가진 분말이 형성되는 소결온도는 순수한 Co 페라이트(CoFe_2O_4)의 723 K[6, 7]에 비해 200 K 높은 923 K 소결온도 이상에서 준강자성체가 형성됨을 알 수 있었다. VSM 실험결과 923 K 소결온도 이상의 시료에서 보자력이 감소하고 포화자화값이 증가하였으며 최대보자력(H_c)은 1368 Oe로 이는 순수한 Co 페라이트(CoFe_2O_4)에 비해 652 Oe 만큼 작은 값을 가짐을 알 수 있었다.

감사의 글

이 연구는 한국학술진흥재단 자유공모과제 연구비(1997-001-D00145)와 한국과학재단 연구비(97-0702-0401-5) 지원에 의한 것이며 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

[1] P. Wartewig, K. Melzer, M. Krause, and R. Tellgren, *J. Magn. Magn. Mater.*, **140-144**, 2101 (1995).
 [2] M. Pal, P. Brahma, D. Chakravorty, and D. C. Agrawal, *J. Magn. Magn. Mater.*, **147**, 208 (1995).
 [3] V. Blaskov, V. Petkov, V. Rusanov, L. M. Martinez, B. Martinez, J. S. Munoz, and M. Mikhov, *J. Magn. Magn.*

Mater., **162**, 331 (1996).
 [4] V. K. Sankaranarayana, Q. A. Pankhurst, D. P. E. Dickson, and C. E. Johnson, *J. Magn. Magn. Mater.*, **125**, 199 (1995).
 [5] E. S. Murdoch, *IEEE Trans. Magn.*, **28**, 3078 (1992).
 [6] J. G. Lee, H. M. Lee, C. S. Kim, and Y. J. Oh, *J. Magn. Magn. Mater.*, **177-181**, 900 (1998).
 [7] J. G. Lee, J. Y. Park, and C. S. Kim, *J. Mater. Sci.*, **33**, 3965 (1998).
 [8] C. S. Kim, Y. S. Yi, K. T. Park, H. Namgung, and J. G. Lee, *J. Appl. Phys.*, **85**, 5223 (1999).
 [9] I. Chassaing, J. P. Bonino, P. Tailhades, A. Rousset, and P. Mollard, *J. Magn. Magn. Mater.*, **120**, 274 (1993).
 [10] M. Abe and M. Gomi, *J. Appl. Phys.*, **53**, 8172 (1982).
 [11] W. L. Peeters and J. W. D. Martens, *J. Appl. Phys.*, **53**, 8178 (1982).
 [12] P. Hansen, W. Torksdorf, K. Willer, and J. M. Robertson, *IEEE Trans. Magn.*, **20**, 1099 (1984).
 [13] M. Gomi, T. Okazaki, and M. Abe, *IEEE Trans. Magn.*, **23**, 2967 (1987).
 [14] C. S. Kim, S. W. Lee, S. I. Park, J. Y. Park, and Y. J. Oh, *J. Appl. Phys.*, **79**, 5428 (1996).
 [15] J. B. Nelson and D. P. Riley, *Proc. Phys. Soc.*, **57**, 160 (1945).
 [16] B. D. Cullity, *Elements of X-Ray Diffraction*, Addison Wesley Co., (1978) p. 102.
 [17] C. S. Kim, H. M. Ko, W. H. Lee, and C. S. Lee, *J. Appl. Phys.*, **73**, 6298 (1993).

Crystallographic and Magnetic Properties of Ultrafine $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ Grown by Using a Sol-Gel Method

Woo Chul Kim, Sam Jin Kim and Chul Sung Kim

Department of Physics, Kookmin University, Seoul 136-702

Seung Wha Lee

School of Electrical and Electronics Engineering, Chungbuk National University, Cheongju 361-763

(Received 8 July 1999, in final form 12 August 1999)

Ultrafine $\text{CoFe}_{1.9}\text{Bi}_{0.1}\text{O}_4$ particles were fabricated by using a sol-gel method and their magnetic and structural properties were investigated with an x-ray diffractometer (XRD), a vibrating sample magnetometer (VSM), and a Mössbauer spectrometer. The result of x-ray diffraction and Mössbauer spectroscopy showed that the powders fired at and above 523 K had only cubic spinel structures. Mössbauer spectra measurements showed that the powders annealed at 523, 723, and 823 K possessed ferrimagnetic nature and paramagnetic nature due to superparamagnetism, simultaneously at room temperature and the powders annealed at and above 923 K behaved ferrimagnetically. In the case of the powder annealed at 923 K, the lattice constant was $a_0 = 8.398 \pm 0.005 \text{ \AA}$ and the hyperfine fields were $H_{\text{hf}}(\text{A}) = 479 \text{ kOe}$, $H_{\text{hf}}(\text{B}) = 502 \text{ kOe}$. The isomer shifts indicate that the iron ions are ferric at tetrahedral [A] and octahedral sites [B], respectively. The magnetization as a function of annealing temperature increased as increasing annealing temperature. The largest coercivity values were $H_c = 1368 \text{ Oe}$ at 923 K annealing temperature. In the case of the powder annealed at 1123 K, the magnetization value was $M_s = 75 \text{ emu/g}$ and this value was similar to that of CoFe_2O_4 .