

05,11

## Особенности доменной структуры гексаферрита $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ вблизи температуры Кюри

© А.А. Безлепкин, С.П. Кунцевич

Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина  
Харьков, Украина

E-mail: anatoij.a.bezlyepkin@karazin.ua

Поступила в Редакцию 24 февраля 2020 г.

В окончательной редакции 24 февраля 2020 г.

Принята к публикации 25 февраля 2020 г.

Изучены особенности структуры доменных стенок гексаферрита  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  вблизи температуры Кюри  $T_c = 724$  К. Исследования проведены на монокристаллических образцах в переменном магнитном поле с частотой 73 MHz и 71 MHz при постоянном магнитном поле в интервале 0–0.25 kOe. В  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  при температуре  $T_1 = 716$  К происходит изменение магнитной структуры доменных стенок — стенки Блоха переходят в линейные стенки при увеличении температуры. Величина  $\Delta T = T_c - T_1 \approx 8$  К.

Рассмотренный в работе физический механизм, обуславливающий различие интервала температур существования магнитоупорядоченного состояния и интервала температур существования доменных стенок Блоха, согласуется с экспериментальными результатами. Оценочный расчет критерия перехода доменной стенки Блоха в линейную стенку при  $T_1 = 716$  К соответствует полученным экспериментальным данным.

**Ключевые слова:** гексаферрит, доменная стенка Блоха, линейная доменная стенка, магнитная восприимчивость, температура Кюри.

DOI: 10.21883/FTT.2020.07.49470.040

### 1. Введение

В работе [1] при исследовании монокристаллов никеля и гексаферрита  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  (BaM) методом поляризованных нейтронов было обнаружено, что в BaM температура Кюри на  $\approx 3$  К больше температуры образования доменов и доменных стенок Блоха. Авторы работы экспериментально показали, что различие температур зависит от типа магнетика. Гексаферрит BaM является магнитоодноосным кристаллом, направление легкого намагничивания которого ориентировано вдоль гексагональной оси  $c$  [2]. При температурах меньше температуры Кюри образование доменов должно сопровождаться появлением переходных областей — доменных стенок Блоха [3]. Анализ результатов работ [4–7] позволяет рассмотреть физический механизм, обуславливающий различие температуры Кюри и температуры образования доменов с переходными областями — доменными стенками Блоха. Возникновение доменов и разделяющих их доменных стенок обусловлено уменьшением магнитостатической энергии кристалла [8]. При образовании доменных стенок из-за неоднородности намагниченности в них возрастает, по сравнению с доменами, обменная энергия. При этом вследствие отклонения намагниченности от направления легкого намагничивания, возрастает также и энергия магнитной кристаллографической анизотропии [2]. Максимальное увеличение энергии анизотропии происходит в середине доменной стенки и соответствует ориентации вектора намагниченности перпендикулярно гексагональной оси. Обменная энергия в доменных стенках может изменяться как за счет неоднородности

намагниченности, обусловленной не параллельностью магнитных моментов магнитоактивных ионов  $\text{Fe}^{+3}$ , так и за счет изменения расстояний между этими ионами [2]. В доменной стенке имеется возможность компенсации увеличения энергии анизотропии за счет изменения межионных расстояний между  $\text{Fe}^{+3}$  и соответствующего уменьшения обменного взаимодействия по сравнению с доменами. Поскольку в BaM величина обменной энергии гораздо больше энергии анизотропии [3], то небольшие изменения обменной энергии, обусловленные изменением межионных расстояний, могут мало отразиться на величине возрастания обменной энергии, обусловленной неоднородностью намагниченности в доменной стенке. Уменьшение обменной энергии в середине доменных стенок, по сравнению с доменами, приведет к тому, что при некоторой температуре  $T_1$ , меньше температуры Кюри  $T_c$ , энергия тепловых возбуждений станет равной обменной энергии и существование блоховских стенок при температурах  $T > T_1$  станет энергетически невыгодным. Это должно привести к изменению магнитной структуры феррита.

Рассмотренный физический механизм различия  $T_1$  и  $T_c$  согласуется с результатами работ [4–7]. В работах [4,5] показано, что в магнитоодноосном кристалле вследствие наличия энергии магнитной кристаллографической анизотропии ориентация намагниченности вдоль направления легкого намагничивания приводит к увеличению температуры Кюри, а ориентация перпендикулярно направлению легкого намагничивания к ее уменьшению. Этот вывод получил убедительное экспериментальное подтверждение в работе [6].

Распределение спиновой и электронной плотности в ВаМ задает локальные поля на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  ионов  $\text{Fe}^{3+}$  [9,10]. Это же распределение задает величину обменной энергии. В ВаМ ионы  $\text{Fe}^{3+}$  расположены в пяти кристаллографически неэквивалентных позициях, соответствующих пяти магнитным подрешеткам: a(12k), b(2a), c(4f1), d(4f2) e(2b) [11]. В работе [7] были определены изменения сверхтонких полей на ядрах  $^{57}\text{Fe}$   $\delta H_{hf}$  для ВаМ при температуре 77 К при изменении ориентации намагниченности от гексагональной оси  $c$  к базисной плоскости. Такое изменение ориентации намагниченности происходит в середине доменной стенки по отношению к ориентации намагниченности в доменах. Из работы [7] следует, что величины  $\delta H_{hf}$  для всех подрешеток имеют отрицательный знак. Максимальное значение  $|\delta H_{hf}| = 7.2 \text{ кОе}$  у подрешетки a(12k). Результаты измерений  $\delta H_{hf}$  указывают на изменение распределения спиновой и электронной плотности и величины обменного взаимодействия при переориентации намагниченности от оси  $c$  к направлению, перпендикулярному в середине доменных стенок.

В настоящей работе для гексаферрита ВаМ измерена температура Кюри и температура  $T_1$  исчезновения стенок Блоха при нагреве кристалла. Определено влияние внешнего поля на магнитную структуру при температуре  $T_1$ . Полученные экспериментальные результаты указывают на то, что при температуре  $T_1$  имеет место переход стенки Блоха в линейную стенку, у которой переход между доменами происходит путем изменения величины вектора намагниченности без его поворота, при этом направление вектора намагниченности меняется на противоположное при его прохождении через нуль [2,8].

## 2. Образцы и методики изменений

В качестве образцов использовались монокристаллы  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ , выращенные методом раствора в расплаве флюса  $\text{BaO} \cdot \text{V}_2\text{O}_5$ . Синтез производился на вращающейся заправке в интервале температур 1425–1320 К. Фазовый состав контролировался рентгенографическим методом. Постоянные кристаллической решетки при комнатной температуре:  $a = 0.589 \text{ нм}$ ,  $c = 2.319 \text{ нм}$ . Образцам придавалась форма, близкая к сферической, с диаметром  $\sim 5 \text{ мм}$ .

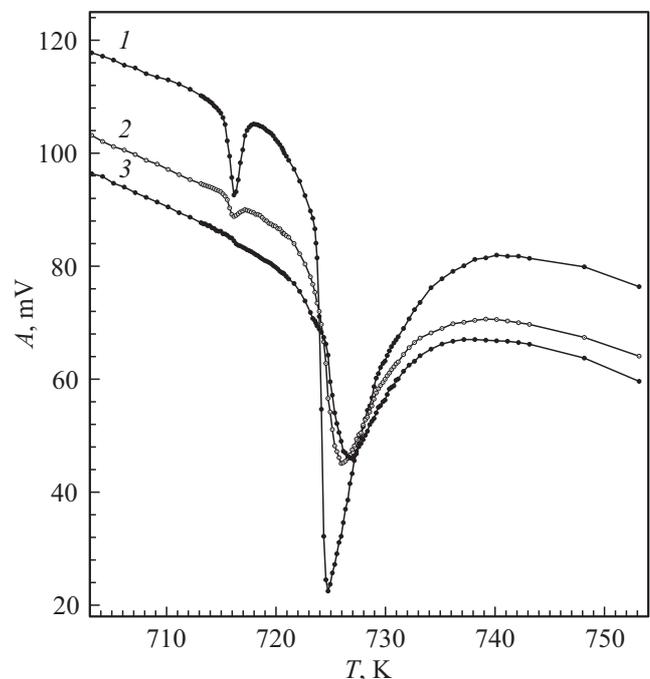
В работе [12] показано, что температура Кюри, определенная по максимуму мнимой части динамической магнитной восприимчивости совпадает со значением температуры, определенной нейтронографическим методом. Добротность LC контура, содержащего феррит в катушке индуктивности, зависит от  $\chi''$  [13]. При температуре Кюри максимуму  $\chi''$  будет соответствовать минимум добротности контура и, соответственно, минимум напряжения на нем.

Температура Кюри определялась по температурным зависимостям напряжения на LC контуре с исследуе-

мым образцом в катушке индуктивности. Для определения амплитудно-частотной характеристики контура использовался анализатор спектра СК4–59. Температура образца определялась по термоэдс дифференциальной термопары ПП-1 платиновой группы. Катушка индуктивности изготавливалась из платиновой проволоки и помещалась в электрическую печь, питание которой осуществлялось постоянным электрическим током. Нагреватель печи наматывался бифилярно на медную трубку, обеспечивающую однородность температуры в рабочем пространстве печи.

## 3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На частоте 73 МГц была исследована зависимость напряжения на резонансном LC контуре, в катушку индуктивности которого помещался исследуемый образец. Переменное магнитное поле, создаваемое в катушке, было перпендикулярно оси  $c$  образца. На рис. 1 (кривая 1) представлена зависимость напряжения на контуре в интервале температур 700–750 К. Пикообразное поведение напряжения на контуре наблюдается при температурах  $T_1 = 716 \text{ К}$  и  $T_C = 724 \text{ К}$ . Температуру  $T_C$  следует интерпретировать как температуру Кюри для областей однородной намагниченности в доменах. Ее значение мало отличается от значения температуры



**Рис. 1.** Температурные зависимости напряжения на контуре с образцом  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  на частоте 73 МГц при различных значениях постоянного магнитного поля параллельного направлению легкого намагничивания: 1 — 0, 2 — 100 Ое, 3 — 250 Ое. Переменное поле перпендикулярно оси легкого намагничивания образца.

Кюри 723 К для ВаМ, полученной в работе [1] методом рассеяния поляризованных нейтронов.

При интерпретации пика при температуре 716 К необходимо учесть следующее. Из рассмотрения, проведенного во введении, следует, что в середине доменной стенки возможно максимальное уменьшение обменной энергии, по сравнению с доменами. Поэтому при температуре  $T_1$  меньше  $T_C$  может быть достигнуто равенство обменной энергии и энергии тепловых возбуждений. При этом существование блоховских доменных стенок станет энергетически не выгодным и должна произойти перестройка доменной структуры, сопровождаемая ростом  $\chi$  и уменьшением напряжения на LC контуре. Поскольку объем доменных стенок существенно меньше объема доменов, то величина пика при температуре  $T_1$  значительно меньше, чем при температуре  $T_C$ . Внешнее постоянное магнитное поле может перевести образец в однодоменное состояние и тогда пик при  $T_1$  наблюдаться не будет. Были изучены зависимости напряжения на контуре от температуры, когда образец находился в постоянном поле, ориентированном параллельно оси легкого намагничивания. Эти результаты представлены на рис. 1, кривые 2 и 3.

При увеличении напряженности магнитного поля наблюдалось уменьшение величины пика при  $T_1$ . Как следует из рис. 1, пик при  $T_1 = 716$  К в поле 250 Ое исчезает. В поле  $H_s = 250$  Ое при температуре  $T_1$  возникает однодоменное состояние. Поэтому температуру  $T_1 = 716$  К следует интерпретировать как температуру, при которой в нулевом поле происходит перестройка магнитной структуры доменных границ феррита.

Величина  $\Delta T = T_C - T_1 = 8$  К качественно согласуется со значением 3 К, полученным в работе [1]. Для магнитноодноосных кристаллов в постоянном поле, ориентированном в направлении легкого намагничивания, техническое насыщение достигается при значении поля  $H_s$  [14]

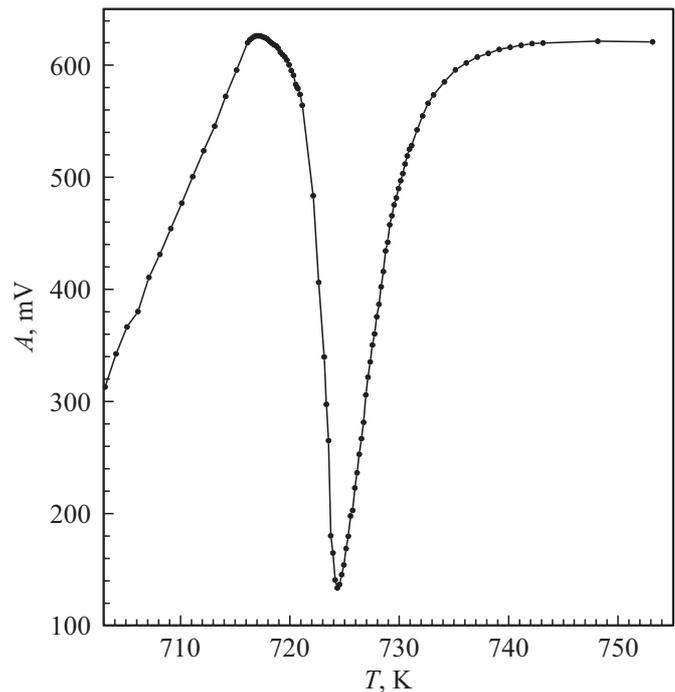
$$H_s = NI_s, \quad (1)$$

где  $I_s$  — намагниченность насыщения;  $N$  — размагничивающий коэффициент в направлении приложенного поля.

Для исследуемого кристалла  $N \approx 4.2$ . Из соотношения (1) при  $N = 4,2$  и  $H_s = 250$  Ое следует  $I_s \approx 60$  Г.

Уменьшение напряжения на LC контуре при  $T_1 = 716$  К удалось обнаружить только при ориентации переменного поля  $\tilde{h}$  перпендикулярно направлению легкого намагничивания. На рис. 2 представлена температурная зависимость напряжения на контуре с образцом ВаМ, ориентированным осью легкого намагничивания параллельно переменному полю. Из рисунка следует, что есть только один минимум напряжения при температуре Кюри.

Приведенные экспериментальные данные и результаты работы [15] указывает на следующий возможный физический механизм, объясняющий отсутствие пика при 716 К на рис. 2.



**Рис. 2.** Температурная зависимость напряжения на контуре с образцом  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  на резонансной частоте 71 МГц в нулевом магнитном поле. Переменное поле параллельно оси легкого намагничивания образца.

При температуре Кюри, когда энергия тепловых возбуждений равна обменной энергии, перестройка магнитной структуры для середины доменных стенок Блоха происходит через промежуточную фазу с нулевым значением намагниченности. В работе [15] показано, что критическая динамика в области температуры Кюри, сопровождаемая резким возрастанием  $\chi''$ , возникает только, если переменное магнитное поле параллельно равновесной спиновой ориентации. Это условие выполняется для некоторых участков середины доменных стенок Блоха при направлении переменного поля перпендикулярно оси  $c$ . При ориентации переменного поля вдоль оси  $c$  магнитные моменты ионов  $\text{Fe}^{3+}$  в середине доменных стенок всегда перпендикулярны этому полю, критическая динамика, всегда сопровождаемая резким ростом  $\chi''$ , не возникает и пик при температуре 716 К отсутствует.

Полученные экспериментальные результаты и рассмотренный во введении физический механизм перестройки магнитной структуры указывает на то, что преобразование стенок Блоха может произойти только в доменную стенку, не содержащую участков доменных границ, у которых вектор намагниченности перпендикулярен направлению легкого намагничивания. Это условие выполняется для линейной стенки [2,8]. В линейной стенке переход между доменами происходит при изменении величины вектора намагниченности без его поворота.

При этом направление вектора намагниченности меняется на противоположное при прохождении его величины через нуль. Вектор намагниченности остается параллельным направлению легкого намагничивания, совпадающего с осью  $c$ . В работе [2] приведен критерий, при выполнении которого существование линейной стенки по сравнению со стенкой Блоха является энергетически более выгодным

$$L = \frac{I_s^2}{8K_1\chi_p} < 1, \quad (2)$$

где  $I_s$  — намагниченность насыщения;  $K_1$  — константа энергии магнитной кристаллографической анизотропии;  $\chi_p$  — парамагнитная восприимчивость.

Для определения  $K_1$  при температуре 716 К была использована линейная аппроксимация и данные, приведенные в работе [3]. Получено приближенное значение  $K_1 = 7 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$ .

В литературных источниках отсутствуют сведения о величине  $\chi_p$  для ВаМ в области температуры Кюри. В работе [16] приведено значение  $\chi_p = 7 \cdot 10^{-3}$  для близкого по составу стронциевого гексаферрита, у которого часть ионов железа замещена ионами хрома, —  $SrFe_{10.4}Cr_{1.6}O_{19}$ . Воспользовавшись значениями  $\chi_p$ ,  $K_1$  и  $I_s$  получим, исходя из соотношения (2),  $L \approx 0.9$ .

Величина  $L$  удовлетворяет условию (2), при выполнении которого существование линейной доменной стенки является энергетически более выгодным по сравнению со стенкой Блоха. Рассмотренный физический механизм, полученные экспериментальные результаты и оценочный расчет указывают на то, что доменные стенки Блоха в ВаМ существуют при температурах ниже  $T_1$ . При температуре  $T_1 = 716 \text{ К}$  доменные стенки Блоха переходят в линейные доменные стенки. При наличии линейных доменных стенок в температурном интервале  $T_1 < T < T_C$  должны присутствовать области неоднородной намагниченности. Такие области были обнаружены вблизи температуры Кюри методом рассеяния поляризованных нейтронов в работе [1].

#### 4. Выводы

1. В гексаферрите  $BaFe_{12}O_{19}$  при температуре 716 К происходит изменение магнитной структуры — доменная стенка Блоха переходит в линейную доменную стенку при увеличении температуры.

2. Оценочный расчет критерия перехода доменной стенки Блоха в линейную стенку, а также рассмотренный в работе физический механизм, обуславливающий различие интервала температур существования магнитоупорядоченного состояния и интервала температур существования доменных стенок Блоха в магнитноодносных кристаллах согласуется с полученными экспериментальными результатами.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] Г.М. Драбкин, Е.Н. Зиберов, А.В. Ковалев. ЖЭТФ **69**, 5 (11), 1804 (1975).
- [2] А. Хуберт. Теория доменных стенок в упорядоченных средах. Мир, М. (1977). 308 с. A. Hubert. Theorie der Domänenwände in geordneten Medien. Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, N. Y., (1974).
- [3] Х. Смит, Я. Вейн. Ферриты. ИЛ, М. (1962). 504 с.
- [4] E.R. Callen. J. Appl. Phys. **32**, S221, (1961).
- [5] E.R. Callen. J. Appl. Phys. **124**, 1373, (1961).
- [6] Jason N. Armstrong, Susan Z. Hua, Harsh Deep Chopra. Phys. Status Solidi **B250**, 2, 387 (2013).
- [7] С.П. Кунцевич, А.А. Безлепкин, Ю.А. Попков. ЖЭТФ **88**, 5, 1820, (1985).
- [8] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. Наука, М. (1982). 307 с.
- [9] Е.А. Туров, М.П. Петров. Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках. Наука, М. (1969). 260 с.
- [10] Г.А. Смоленский, В.В. Леманов, Г.Н. Недлин, М.П. Петров, Р.В. Псарев. Физика магнитных диэлектриков. Наука, Л. (1974). 450 с.
- [11] W.D. Townes, J.H. Fang, A.J. Perrota. Z. Kristallogr. **B125**, 437 (1967).
- [12] Г.М. Драбкин, Я.А. Косман, В.В. Рудов. Письма в ЖЭТФ **15**, 379 (1972).
- [13] В.Н. Чечерников. Магнитные измерения. Изд. МГУ, М. (1977). 387 с.
- [14] Г.С. Кринчик. Физика магнитных явлений. Изд. МГУ, М. (1976). 367 с.
- [15] А.А. Безлепкин, С.П. Кунцевич. ФТТ, **60**, 1, 65 (2018).
- [16] К.П. Белов. Ферриты в сильных магнитных полях. Наука, М. (1972). 200 с.

Редактор Т.Н. Василевская