

## DISTRIBUCIÓN DE CAMPOS CRÍTICOS EN POLICRISTALES ISOTRÓPICOS DEL $Ba Fe_{12} O_{19}$

O. Arés, F. Calderón, A. de la Campa  
Dpto de Física de los Metales, U.H.

### RESUMEN

Se obtuvieron funciones de distribución de campos críticos para policristales isotrópicos de la ferrita  $Ba Fe_{12} O_{19}$  utilizando una técnica anisométrica que se describe en el trabajo. Los resultados permiten hacer su-

posiciones sobre los procesos de magnetización irreversible que ocurren obteniéndose evidencias de que no se produce rotación coherente, en ningún volumen de partículas de las muestras estudiadas.

#### ABSTRACT

Critical field distribution functions were obtained for isotropic polycrystals of  $Ba Fe_{12} O_{15}$  hexaferrite, using an anisotropic technique described below. Taking into account the experimental results, the irreversible magnetization processes were analyzed. We found no evidence of coherent rotation in any volume of particles of the samples.

#### INTRODUCCIÓN

La ferrita  $Ba Fe_{12} O_{15}$  (Ba-M) es ampliamente utilizada como imán permanente debido a sus buenas características y bajo costo. De acuerdo con el modelo de Stoner y Wohlfarth (1) y teniendo en cuenta las formas de las partículas del Ba-M (plaquetas), la fuerza coercitiva ( $H_c$ ) para un policristal isotrópico es de 6,700 Oe. En la práctica  $H_c$  oscila normalmente entre 3,000 y 3,500 Oe para imanes isotrópicos obtenidos por el método cerámico (2).

K. Haneda et al (3) obtuvo por el método químico de coprecipitación, una  $H_c$  en cerámicas isotrópicas de hasta 5,700 Oe y 6,000 Oe para polvos sueltos. Este resultado puede estar vinculado al hecho de que las partículas, en este caso, son unas 10 veces más pequeñas que las convencionales y más perfectas desde el punto de vista cristalográfico (3).

Normalmente, la desviación entre la  $H_c$  teórica y la experimental, es atribuida a la formación de núcleos de dominios invertidos durante el proceso de desmagnetización (4,5,6), a la existencia de dominios con paredes comunes a diferentes granos (7) y a procesos no coherentes de la rotación de la magnetización ( $M_s$ ) (8).

D. J. Craik et al (9) demostró teóricamente la posibilidad de la subdivisión de una partícula con diámetro ( $d$ ) menor o igual al crítico ( $d_c$ ), en dos dominios para campos invertidos respecto a  $M_s$ . El campo a partir del cual se produce la subdivisión, es mayor mientras menor sea  $d$  respecto a  $d_c$ . Por otra parte, A. Holz (6) demostró que para plaquetas del Ba-M, la rotación coherente (RC) es sólo, energéticamente favorable, para espesores ( $\delta$ ) de estas menor o igual que  $340 \text{ \AA}$ .

Los dos trabajos anteriores pueden dar una base teórica para explicar los valores de  $H_c$  que se obtienen por los diferentes métodos de obtención. Téngase en cuen-

ta, que por la vía cerámica en el mejor de los casos  $d = 1\mu$  y con una plaqueta que cumpla con  $\delta = \frac{1}{10}d$ ,  $\delta = 1000 \text{ \AA}$ , valor mayor que el predicho por A. Holz para RC. Sin embargo, por la vía química  $\delta = 100 \text{ \AA}$ .

Además de los factores geométricos (tamaño y forma de las partículas), en la disminución de  $H_c$  pueden influir los defectos como dislocaciones, variaciones de composición, defectos puntuales, poros, fronteras entre granos, otras fases, etc. Estos pueden variar localmente la constante de anisotropía ( $K_1$ ) y  $M_s$  dando facilidades para la formación de núcleos de dominios invertidos o rotaciones no coherentes.

A nuestro modo de ver, aún no está claro qué factores influyen más en  $H_c$ ; si los geométricos o de defectos, hecho que puede ser objeto de futuras investigaciones.

El objetivo del presente trabajo ha sido estudiar los procesos de magnetización que ocurren en policristales isotrópicos del Ba-M, mediante una técnica anisométrica que permite obtener la distribución de campos críticos para este tipo de muestras.

#### MÉTODO ANISOMÉTRICO DE MEDICIÓN

El método anisométrico desarrollado por N.I. Shpin-

kov (11) permite obtener la distribución de campos críticos ( $H_k$ ) para un policristal isotrópico. Esta distribución es caracterizada por una función  $[P_1(H)]_{\Delta\infty}$  definida como el volumen  $v_1$  de la muestra, que invierte su magnetización irreversiblemente para el campo  $H$ , sobre el volumen total  $V$  de la misma. El sub-índice  $\Delta\infty$  representa el sector angular analizado, lo que se explica a continuación:

Para obtener experimentalmente  $[P_1(H)]_{\Delta\infty}$ , se satura una muestra en forma de disco en una dirección inicial cualquiera. Se retira el campo de saturación y se rota la misma un ángulo  $\Delta\infty$  ( $5^\circ - 10^\circ$ ). En la dirección en que se aplicó el campo de saturación, se comienza entonces a aplicar campos crecientes  $H_1, H_2 \dots H_{sat}$ , hasta el máximo disponible y se miden los ángulos  $\delta_1, \delta_2, \delta_3 \dots$  que rota la magnetización de la muestra después de retirar cada campo  $H_i$  ( $i = 1, 2, 3, \dots$ ). Mediante los conjuntos  $\{H_i\}$  y  $\{\delta_i\}$ , se determina  $[P_1(H)]_{\Delta\infty}$  (11). En la figura 1, se muestra gráficamente la situación de medición experimental y el sector  $\Delta\infty$  de partículas que pueden rotar su magnetización irreversiblemente con los campos  $H_i$ .

En el supuesto de que las partículas inviertan su magnetización ( $M$ ) por RC, el  $H_k$  en el caso de forma esférica

rica coincide con el campo de anisotropía  $H_a = \frac{2k_1}{M_s}$ . Si consideramos el efecto de anisotropía de forma  $H_k = H_a + (N_d - N_f) M_s$ , donde  $N_d$  y  $N_f$  son los factores de desmagnetización de las partículas, según el eje difícil y fácil de desmagnetización, respectivamente.

Para el caso del Ba-M tomando  $H_a = 17\text{KOe}$ ,  $M_s = 350\text{ G}$  y  $|N_d - N_f| = 4\pi$  (correspondiente a la forma de plaqueta),  $H_k = 13\text{KOe}$ \*

En la práctica  $[P_1(H)] \neq \delta(H - H_k)$  debido a que siempre existe una distribución en los valores de  $H_a$ ,  $N_d$ ,  $N_f$  y  $M_s$  o en los procesos de magnetización que pueden diferir del de RC.

#### MUESTRAS UTILIZADAS

Los policristales isotropos utilizados fueron obtenidos por el método cerámico convencional, (2). Se prepararon tres muestras con  $H_c$  diferente, lo que se logró

\*Recuérdese que en este caso el eje de fácil magnetización es perpendicular al plano de la plaqueta.

variando el tiempo de sinterización desde unos minutos hasta varias horas. Las propiedades magnéticas obtenidas se muestran en la tabla 1, así como los diámetros medios de grano, revelados en las microestructuras.

Para las muestras  $M_2$  y  $M_3$ , los difractogramas obtenidos, así como las mediciones de magnetización, permiten suponer que se tiene más del 98% de fase Ba-M. En el caso de M las mismas mediciones arrojan alrededor de un 10% de fases no magnéticas afines con el  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ .

#### RESULTADOS EXPERIMENTALES Y DISCUSIÓN

Las funciones de distribución  $[P_1(H)]_{\Delta\alpha}$  obtenidas para  $M_1$ ,  $M_2$  y  $M_3$  se muestran en la figura 2. En  $M_1$  la mayoría del volumen presenta un  $H_k \approx 1\text{KOe}$ , lo que indica que este campo para el desplazamiento de la pared del dominio, es bastante inferior al proporcionado por RC en este tipo de policristal con  $d = 10\mu$ . Esta conclusión se basa en el hecho de que para tal distribución de tamaños de grano, se han observado estructuras de más de 8 dominios dentro de los mismos (11).

Como se vio en el punto del método anisométrico,  $H_k = 13\text{ KOe}$  para el M-Ba, por RC. En  $M_2$  y  $M_3$  se tienen

distribuciones anchas en  $H$ , pero que tienden a cero para  $H = 12$  KOe; lo que indica que no hay en estas muestras, volumen apreciable de partículas que roten su magnetización mediante RC pura, con  $H_a = 17$  KOe. Si  $|N_d - N_f| < 4\pi$ ,  $H_k = 13$  KOe y la conclusión anterior se refuerza.

En valor medio el  $H_k$  obtenido se separa aún más del correspondiente a RC. Para  $M_2$  el valor medio de  $H_k$ , calculado numéricamente, a partir de la función de distribución es de 6.8 KOe, que es, aproximadamente, la mitad del mencionado anteriormente para RC.

La población de partículas con  $H_k$  más cercanas al  $H$  para el que la función de distribución se anula (por la derecha), podría indicar la posibilidad de tener RC con un  $H_a$  inferior al del monocristal (ténganse en cuenta que los policristales son más defectuosos en general y pueden tener un  $K_1$  efectivo inferior). Con vistas a comprobar esta posibilidad, se realizó el siguiente experimento:

Se satura la muestra en una dirección y sentido dado. Se aplica cada campo  $H_1$  en una dirección, que forme un ángulo con la del campo de saturación de  $(90^\circ + \frac{\Delta\alpha}{2})$ . Se retira  $H_1$  y se aplica  $\frac{H_1}{2}$  en una nueva dirección que for-

ma un ángulo ahora de  $-(45^\circ + \frac{\Delta\alpha}{2})$  (el signo menos indica que la nueva dirección de  $H$  se obtiene rotando éste en sentido contrario al inicial) respecto a la dirección en que se aplicó el campo de saturación. Si la rotación correspondiente a  $H_1$  es RC, la magnetización de la muestra debe regresar a la orientación inicial (según la dirección en que se aplicó el campo de saturación), después de haber retirado  $\frac{H_1}{2}$  \*.

En el caso de  $M_2$  y  $M_3$  la magnetización no regresó a la orientación inicial para ningún  $H_1$ , lo que comprueba que no se tiene RC con  $K_1$  efectiva inferior a la del monocristal.

Queda entonces suponer, que los procesos irreversibles de la magnetización en estas muestras, son de dominio o rotaciones no coherentes. No existe en ningún caso la RC pura, aunque, resulta interesante el hecho, de que se tienen campos críticos bastante mayores que los que proporciona el desplazamiento de la pared, en estructuras multidominio como las de la muestra  $M_1$ . La explicación de este hecho podría buscarse en lo siguiente:

\* Esto se deduce de la dependencia angular de  $H_k$  para RC

Es conocido (12), que cuando se empieza a disminuir el tamaño de grano de un material la  $H_c$  comienza a aumentar aún en la zona en que  $d > d_c$ , lo que puede vincularse en este caso a barreras de potencial magnetostáticas elevadas para el movimiento de la pared del dominio. Por otra parte, D.J.Craik (14) obtuvo teóricamente campos críticos para el movimiento de la pared del dominio (en el  $B_a - M$ ), ubicada en una zona en la que la interacción de intercambio ( $A'$ ) está debilitada respecto al resto del cristal ( $A$ ). Utilizando este modelo teórico, pueden obtenerse en principio valores de  $H_k$  para el movimiento de la pared entre 1 y 12 KOe, con relaciones  $\frac{A'}{A}$  entre 0,3 y 0,1 respectivamente. Sin embargo, los dos modelos anteriores (12, 13) consideran procesos de dominio con paredes de  $180^\circ$  bien definidas, condición que no parece ser cumplida (para  $M_2$  y  $M_3$ ) por lo que se presenta a continuación:

En la figura 3 se compara la curva de desmagnetización de  $M_2$ , con las teóricas para RC y desplazamiento puro de la pared de  $180^\circ$ . En el último caso la curva teórica se normalizó en  $H_c$  a la experimental, ya que  $H_k$  para el movimiento de la pared, está determinado por las barreras de potencial que tenga ésta en el material (no tiene sentido

tomar por ej.  $H_k = \frac{0,2 K_1}{M_s}$  como se hace en los libros de texto). Se ve también que para  $H \in [0, -1500] \text{ Oe}$  coinciden la curva experimental con la de RC y a partir de 1,500 Oe comienza la desviación. Esto puede deberse a la nucleación y crecimiento de dominios a partir de este campo, aunque no existe coincidencia con la curva de desplazamiento puro de la pared del dominio.

De acuerdo con todo lo discutido hasta el momento, los procesos de magnetización que ocurren en  $M_2$  y  $M_3$  no son de RC, pero tampoco reflejan completamente las particularidades del correspondiente al desplazamiento de paredes de  $180^\circ$  bien definidas. Un posible mecanismo de magnetización podría ser el de una rotación no coherente, en la que no se lleguen a formar tales paredes. Pueden existir regiones (defectos, fronteras, aristas, etc.) en las que los espines tiendan a rotar irreversiblemente para campos inferiores a  $H_a$ , lo que conllevaría a la formación de paredes de dominio. Es posible que tales paredes tiendan a aumentar considerablemente la energía del cristal y los espines de las zonas más perfectas se vean "obligados" a rotar también, para un campo inferior a  $H_a$ . El resultado de este proceso, puede ser el de tener un  $H_k$  que

no llegue al correspondiente a RG, pero suficientemente grande como para explicar los obtenidos mediante las funciones de distribución.

#### CONCLUSIONES

En policristales isotrópicos de la ferrita  $B_a Fe_{12} O_{19}$  obtenida por el método cerámica, no se tiene ningún volumen de partículas que invierta irreversiblemente su magnetización por rotación coherente. De tenerse nucleación de dominio los campos críticos para desplazar la pared del núcleo, pueden ser grandes (de hasta 12 KOe) y mucho mayores que los correspondientes para muestras con cristales grandes ( $d = 10 d_0$ ).

#### AGRADECIMIENTOS

Agradecemos a Nikolai Ivanovich Shpinkov, colaborador científico de la facultad de Física de la Universidad Estatal de Moscú, el habernos proporcionado la poderosa e interesante técnica anisométrica utilizada en este trabajo.

#### BIBLIOGRAFÍA

- 1 Stoner E.C. and E. P. Wohlfarth.  
Nature 160, 650 (1947).
- 2 B.E. Levin. Y.D. Tretiakov u L.M. Letiok  
"Físico-química, fundamentos de obtención, propiedades y aplicaciones de las ferritas"  
Moscú, Metalurgia 1979. (En idioma ruso)
- 3 K. Haneda and H. Kojima  
J. Appl. Phys. Vol. 44 No. 8 August 1973
- 4 C. Koog  
U. Eiz. Phil. Rev. Rep 15. 7 (1960)
- 5 A. Aharoni  
Rev. Mod. Phys. 34, 227 (1962)
- 6 A. Holz  
J Appl. Phys. 41. 1095 (1970)
- 7 K. Haneda and H. Kojima  
Japanese J. of Appl. Phys. Vol 12 No. 3 (1973)
- 8 J.J. Becker, F.E. Luboroky, D. L. Martin  
I E E E Trans. on Magnetics Vol. MAG - 4, No. 2,  
1968.
- 9 D. J. Craik and D.A. Mc Inture  
Proc. Roy Soc. A 302, 99 - 112 (1967).

- 10 Shpinkov  
 "Método Anisométrico" Comunicación privada Universidad Estatal de Moscú".
- 11 D.J. Craik  
 "Magnetic Oxides" John Wiley and Sons. London. New York. Sydney. Toronto 1975
- 12 H. Amar  
 J. Appl. Phys. Suppl. Vol. 30 No. 4 (1959)
- 13 D.J. Craik and E. W. Hill  
 Journal of Physique Colloque CI, suppe No. 4. Tome 38 Abril 1977, page CI -39.

Recibido 16-3-82

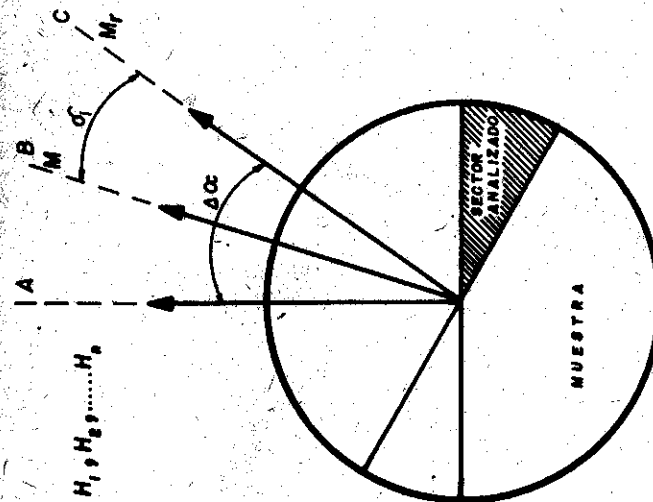


Fig 1 - REPRESENTACIÓN GRÁFICA DE LA MUESTRA EN SITUACIÓN DE MEDICIÓN EXPERIMENTAL. - LAS DIRECCIONES A, B y C, CORRESPONDEN RESPECTIVAMENTE A LAS DE APLICACIÓN DE LOS CAMPOS  $H_1$ , DE LA MAGNETIZACIÓN CORRESPONDIENTE A UN  $H_1$  Y DE LA MAGNETIZACIÓN REMANENTE ANTES DE APLICAR NINGÚN  $H_1$ .



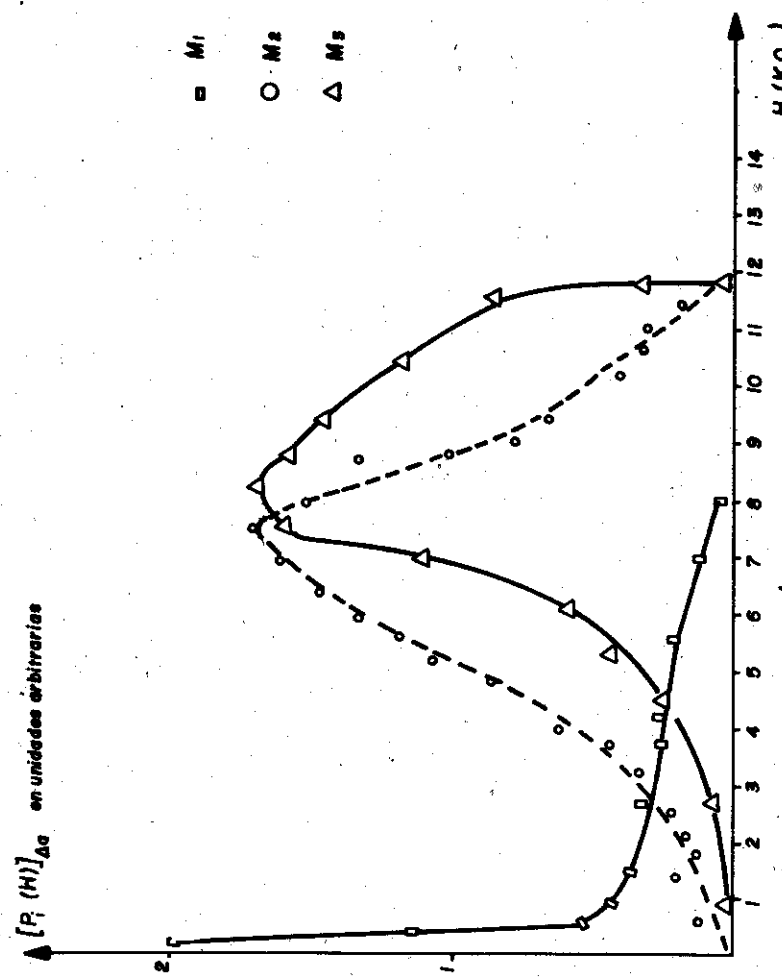


Fig. 2.- FUNCIONES DE DISTRIBUCION PARA MUESTRAS CON DIFERENTES COERCITIVIDADES.  $H_c = 200 O_e$ , PARA  $M_1$ ,  $3100 O_e$  PARA  $M_2$  Y  $3500 O_e$  PARA  $M_3$ .

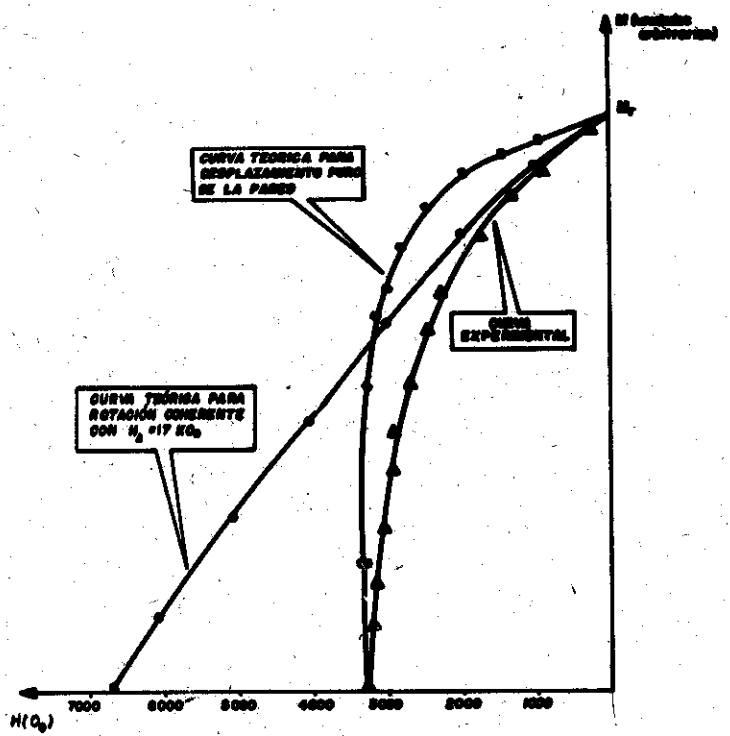


Fig. 3.- CURVA DE DESMAGNETIZACION DE LA MUESTRA  $M_2$  COMPARADA CON LA DE ROTACION COHERENTE Y DESPLAZAMIENTO PURO DE LA PARED DE DOMINIO.

TABLA I

**PROPIEDADES MAGNÉTICAS Y RADIO MEDIO APROXIMADO DE LAS PARTICULAS PARA LAS MUESTRAS ESTUDIADAS**

Muestra	H <sub>c</sub> (O <sub>e</sub> )	M <sub>s</sub> (G)	Tamaño promedio de grano
M <sub>1</sub>	200	300	> 10 μm
M <sub>2</sub>	3200	350	~ 2 μm
M <sub>3</sub>	3500	350	< 2 μm