

استخدام المواعمة لتحديد تمغنت الإشباع وثابت اللاتماثل المغناطيسي في الفرايت السداسي

د. بدر الأعرج*

د. ناصر اسماعيل**

(تاريخ الإيداع 2019/ 10/17. قَبْلُ للنشر في 2019/ 12 / 22)

□ ملخص □

جرى في هذا العمل تحضير الباريوم السداسي المشاب بالكوبالت والتيتانيوم $BaFe_{11.8}Co_{0.1}Ti_{0.1}O_{19}$ بطريقة تفاعلات الحالة الصلبة (الطريقة السيراميكية التقليدية)، وقد لَبِدَت العينة المحضرة عند الدرجة $1200^{\circ}C$ داخل المرمدة. درست الخصائص المغناطيسية للعينة بوساطة تقانة مقياس تمغنت اهتزاز العينة VSM حيث يعتمد تمغنت الإشباع M_s على عدد سببونات الإلكترونات غير المشبعة في ذرات أو أيونات العينة.

بناءً على حسابات المواعمة جرى تحديد تمغنت الإشباع، والبارامترات المغناطيسية اللاتماثلية، وعدد مغنطون بور نظرياً وعملياً.

الكلمات المفتاحية: فرايت الباريوم السداسي، VSM، البارامترات المغناطيسية، منحني البطاء المغناطيسي الابتدائي.

* أستاذ في قسم الفيزياء - كلية العلوم - جامعة تشرين - اللاذقية- سورية.

** أستاذ مساعد في قسم الفيزياء - كلية العلوم - جامعة تشرين-اللاذقية - سورية.

Using fitting process for determining saturation magnetization and magnetic anisotropic constants in BaM – hexaferrite.

DR. Badr AL-Aaraj*
DR. Nasser Ismail**

(Received 17/10 /2019. Accepted 22/12 /2019)

□ ABSTRACT □

Cobalt - titanium substituted BaM – hexaferrite

($BaFe_{12-2x}Co_xTi_{0.1}O_x$; $x = 0.1$) was prepared by solid state reaction method (classical ceramic method) and sintered at 1200 °C inside furnace. The magnetic properties of sample were studied by vibration sample magnetometer- VSM. The saturation magnetization M_s depends upon the number of uncompensated spin of electron in BaM-ferrite. Based on fitting process calculations, the M_s , magnetic anisotropic parameters were determined. In addition, the effective magneton Bohr value was found theoretically and experimentally.

Keywords: BaM- hexaferrite; VSM; initial hysteresis curve; magnetic parameters.

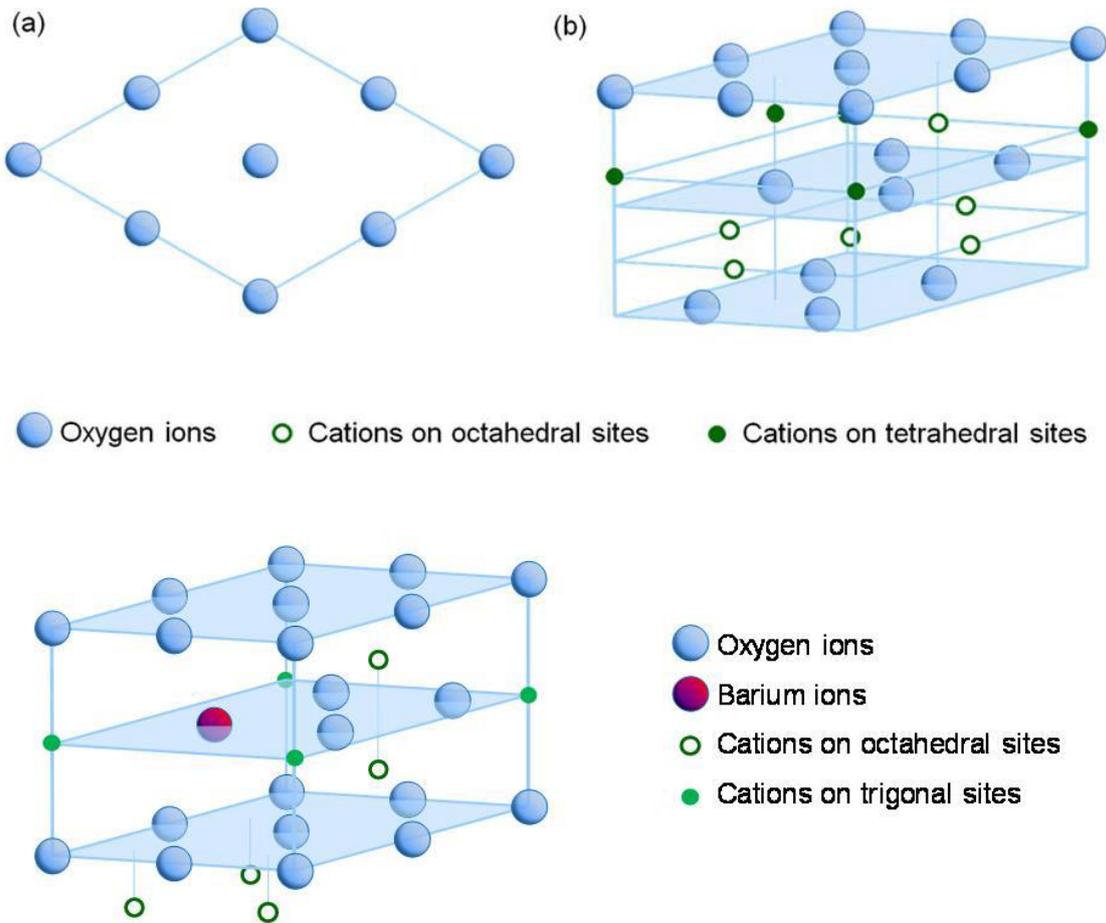
* Prof.at Department of Physics – Faculty of science – Tishreen University -Lattakia- Syria

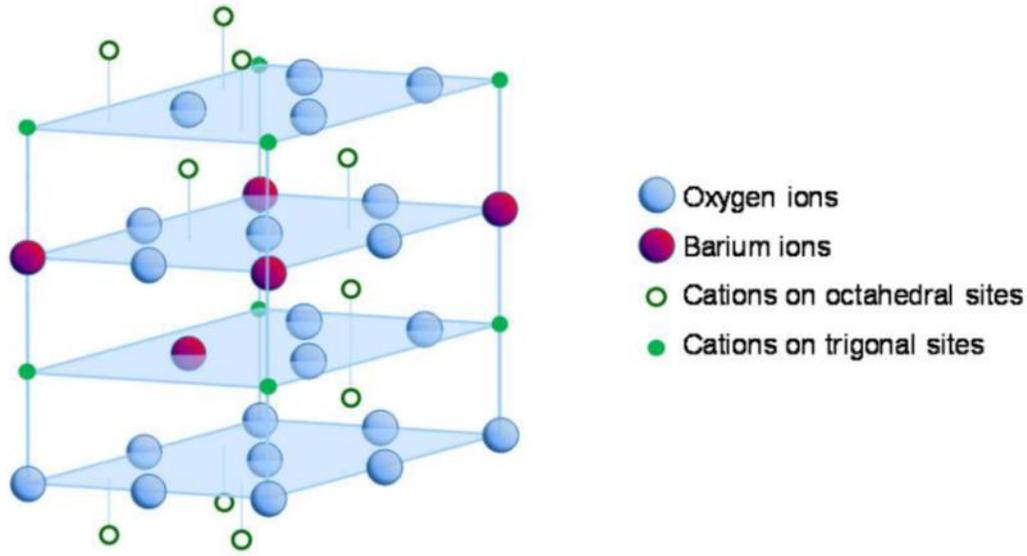
**Assistant Prof.at Department of Physics – Faculty of science – Tishreen University-Lattakia – Syria

مقدمة:

اكتُشف الفرايت السداسي عام 1950، وهو عبارة عن مواد سيراميكية مغناطيسية تقوم على أساس أكسيد الحديد. ويوجد في تصنيفات بنوية ومغناطيسية مختلفة مثل: الفرايت المكعبي، والسداسي، والمتعامد، و العقيقي [1]. ويتميز الفرايت السداسي بنقطة انصهار 1390°C ، وكثافة نظرية 5.39 g/cm^3 . تتألف وحدة الخلية في أطوار الفرايت السداسي من تكديس سلسلة متتالية من البلوكات S، R، و T. وتحتوي وحدة الخلية للفرايت السداسي جزيئيتين من $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ حيث بارامترات الشبكة $a = b = 5.89 \text{ \AA}$ ، $c = 23.17 \text{ \AA}$ ، $\alpha = \beta = 90^{\circ}$ ، $\gamma = 120^{\circ}$ [2].

ويتكوّن البناء البلوري للفرايت السداسي من سلسلة من طبقات الأوكسجين، وأيونات الباريوم التي تشغل جزئياً مواقع ايونات الأوكسجين في وحدة الخلية، لكن الايونات المعدنية تشغل الفراغ ما بين الطبقات الشكل (1). يتألف البلوك S من طبقتين من الأوكسجين، والبلوك R من ثلاث طبقات أوكسجين حيث يشغل أيون الباريوم الطبقة الوسطى، بينما يتألف البلوك T من أربع طبقات أوكسجين حيث تستبدل أيونات الأوكسجين بأيونات الباريوم في الطبقتين المتوسطتين، لكن يشغل كاتيون الحديد الثلاثي المواقع الفارغة ما بين الطبقات المختلفة [3].





الشكل (1): يوضح طبقات البلوك S ، R ، والبلوك T.

وتبيّن الجداول الآتية خصائص أطوار الفرايت السداسي؛ علماً أن صيغة السبينيل $S: Fe_6O_8$.

Hexa-ferrite phases	combination	Chem. formula	Stacking of blocks	Number of layers per unit cell	c- axes in Å
M	M	$BaFe_{12}O_{19}$	RSR^*S^*	10	23.2
Y	Y	$Ba_2Me_2Fe_{12}O_{22}$	$TST'S'T'S''$	3×6	3×14.5
W	M+S	$BaMe_2Fe_{16}O_{27}$	$SSRS^*S^*R^*$	14	32.8
X	M+2S	$Ba_2Me_2Fe_{28}O_{46}$	$SRS^*S^*R^*$	3×12	3×28.0
Z	M+Y	$Ba_3Me_2Fe_{24}O_{41}$	$STSRS^*T^*S^*R^*$	22	52.3
U	M+2Y	$Ba_4Me_2Fe_{36}O_{60}$	$SRS^*R^*S^*T$	16	38.1

جدول 1: يبين طبقات أطوار الفرايت السداسي [4].

يدل البلوك المشار إليه بنجمة إلى دورانه بمقدار 180° حول المحور c للبلورة السداسية، بينما تشير الفتحة والفتحتين إلى الدوران حول نفس المحور بمقدار 120° [1].

يبيّن الجدول 2 مواقع الشبكات الفرعية للبلوكات، واتجاهات السبين فيها.

block	sublattice	formula	coordin.	cation/site	spin
S	4f ₁	2(Fe ₃ O ₄)	tetrahedral	2	2↓
	2a		octahedral	1	1↑
R	4f ₂	BaFe ₆ O ₁₁	octahedral	2	2↓
	2b		Bi-pyramidal	1	1↑
(S + R) (R + S*)	12k	shared	octahedral	6	(3↑) (3↑)
S*	4f ₁	2(Fe ₃ O ₄)	tetrahedral	2	2↓
	2a		octahedral	1	1↑
R*	4f ₂	BaFe ₆ O ₁₁	octahedral	2	2↓
	2b		Bi-pyramidal	1	1↑
(S* + R*) (R* + S)	12k	shared	octahedral	6	(3↑) (3↑)

جدول 2: يظهر مواقع توزيع كاتيون الحديد، واتجاهات السبين في الفريت السداسي [4,5,6].

ويحتوي الجدول 3 كمية المولات من الأكاسيد المطلوبة لتحضير هذه الأطوار.

Hexa-ferrite phases	Molar oxides	Chem.. formula	Molecular weight	X – Ray density in g/cm ³
M	BaO · 6Fe ₂ O ₃	BaFe ₁₂ O ₁₉	1112	5.28
Y	2BaO · 2MeO · 6Fe ₂ O ₃	Ba ₂ Me ₂ Fe ₁₂ O ₂₂	1408	5.39
W	BaO · 2MeO · 8Fe ₂ O ₃	BaMe ₂ Fe ₁₆ O ₂₇	1575	5.31
X	2BaO · 2MeO · 14Fe ₂ O ₃	Ba ₂ Me ₂ Fe ₂₈ O ₄₆	2686	5.29
Z	3BaO · 2MeO · 12Fe ₂ O ₃	Ba ₃ Me ₂ Fe ₂₄ O ₄₁	2520	5.33
U	4BaO · 2MeO · 18Fe ₂ O ₃	Ba ₄ Me ₂ Fe ₃₆ O ₆₀	3622	5.31

جدول 3: يوضح النسب المولية للأكاسيد الداخلة في تركيب الفريت [4,7].

هدف البحث وأهميته:

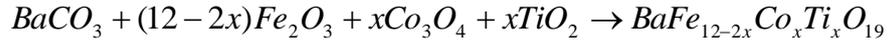
يهدف هذا البحث إلى عرض ميزات أطوار الفريت السداسي، ثم تحديد بارامترات علاقة التمعنط المعتمدة على تطبيق الحقل المغناطيسي الخارجي. وبعد ذلك إيجاد تمعنط الإشباع، والحقل المغناطيسي اللاتماثل في البلورة السداسية، وثابت اللاتماثل الأول، وطاقة اللاتماثل عند الزاوية $\theta=45^0$ بين اتجاه المحور C في البلورة السداسية والاتجاه السائد للتمعنط.

بالإضافة إلى ذلك، حساب التمعنط الكلي لوحدة الجريئة، وعدد مغنطون بور نظرياً وعملياً من الفريت

المدرّوس.

طرائق البحث ومواده:**(A) تحضير العينة**

حُضِرَ فرايت الباريوم السداسي $BaFe_{12-2x}Co_xTi_xO_{19}$ المشاب بالكوبالت والتيتانيوم، حيث $x=0.1$ النسبة الوزنية المأخوذة من كل أوكسيد داخل في تركيب العينة الفرايئية، وذلك باستخدام الطريقة السيراميكية من مساحيق أكاسيد عالية النقاوة تصل إلى 98% من شركة Merck الألمانية وفق التفاعل الآتي:



وعند تحضير 5g من العينة فإن الوزن اللازم من كل أوكسيد نحصل عليه من القاعدة الآتية [6,5,4]:
الوزن الجزيئي للأوكسيد مضروباً بنسبته الوزنية مضروباً بوزن

العينة المراد تحضيرها

= وزن الأوكسيد

مجموع الأوزان الجزيئية للأكاسيد المكوّنة للعينة بعد ضربها

بالنسب الوزنية الموافقة لكل أوكسيد

تخلط هذه الأكاسيد في بوتقة خاصة ثم تطحن إلى درجة عالية من النعومة. وبعد ذلك يضاف الماء المقطر لهذا الخليط، ومن ثم توضع البوتقة على خلاط مغناطيسي لمدة أربع ساعات خلط نحصل على خلطة متجانسة. بعد ذلك تجفف هذه الخلطة باستخدام سخان كهربائي وتطحن مرة ثانية، ويوضع المسحوق الناتج في مرمدة عند درجة حرارة $1200^{\circ}C$ لمدة أربع ساعات لكي نحصل على التبلور المتجانس ثم نتركه يبرد داخل الفرن إلى درجة حرارة الغرفة بمعدل تبريد $80^{\circ}C/h$. بعد ذلك تخرج العينة من الفرن وتصبح جاهزة للدراسة المطلوبة.

(B) قياسات التمغنط

تم الحصول على بيانات التمغنط باستخدام تقانة

(vibration sample magnetometer:VSM)

تعطى العلاقة بين التمغنط M والحقل المغناطيسي الخارجي المطبق H على المواد الفرو- والفريمغناطيسية

بالعلاقة الآتية [9,8]:

$$M = M_s \left(1 - \frac{a}{H} - \frac{b}{H^2} - \frac{c}{H^3}\right) = M_s - \frac{A}{H} - \frac{B}{H^2} - \frac{C}{H^3} \quad (1)$$

حيث K1 و K2 ثابتا اللاتماثل المغناطيسي الأول والثاني.

وعند تحقق الشرط $K_2 \ll K_1$ نجد علاقة الحقل اللاتماثلي:

$$\frac{b}{H^2} + \frac{c}{H^3} = \frac{1}{15} \frac{H_a^2}{H^2} + \frac{2}{105} \frac{H_a^3}{H^3} ; K_2 \ll K_1 \quad (2)$$

$$H_a = \frac{2K_1}{M_s}$$

$$E_a \approx K_1 \sin^2 \theta \quad (3)$$

حيث إن:

- M_s تمغنط الإشباع. a ، b ، c بارامترات المادة الفريمغناطيسية المدروسة. ويمثل الحد a/H حد اللاتجانس في البلورة، والحدان الثاني والثالث يرتبطان باللاتماثل المغناطيسي البلوري الذي يعطي حقلا مغناطيسيا لا تماثليا H_a ، طاقة اللاتماثل المغناطيسي E_a .

إن مفهوم طاقة اللاتماثل يأتي من الفرق بين الطاقة اللازمة لتمغنط الفرايت السداسي في الاتجاه السهل أي اتجاه المحور c ، والطاقة اللازمة للتمغنط في الاتجاهات القاسية [10].

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + \dots = \sum_n K_n \sin^{2n}(\theta) \quad (4)$$

حيث إن θ الزاوية بين متجه التمغنط والمحور c في البلورة السداسية. علاوة على ذلك، يرتبط عدد مغنطون بور الفعّال n_{eff} مع الوزن المولي للعينة M ، وتمغنط الإشباع عند الأخذ بعين الاعتبار فقط العزوم السبينية بوحدة عزم مغنطون بور μ_B ، وعامل لاندي g وفق العلاقة [11, 12].

$$n_{eff} = g\sqrt{S(S+1)}\mu_B \quad (5)$$

النتائج والمناقشة:

تم الحصول على البارامترات الذاتية لعلاقة التمغنط (1) من عملية المواعمة لـ $curve\ fitting\ custom$ equation باستخدام برنامج Matlab، وبعد تحديد قيم البارامترات (M_s ، c ، b ، a) نحصل على الحقل اللاتماثل المغناطيسي، ومن ثم نجد قيمة ثابت اللاتماثل الأول، وعدد مغنطون بور الفعّال بحسب الجدول الآتي؛ إذ جرى حساب التمغنط M (محصلة العزوم المغناطيسية في وحدة الحجم) بوساطة العلاقة:

$$M = M(12k + 2b + 2a) \uparrow - M(4f_1 + 4f_2) \downarrow \quad (6)$$

وحسب التوزع الإلكتروني لكاتيون الحديد الثلاثي، وكاتيون الكوبالت الثنائي اللذين يساهمان بالعزم المغناطيسي على الترتيب: $Co^{2+}(3\mu_B)$ ، $Fe^{3+}(5\mu_B)$ ، لكن لا يساهم كاتيون التيتانيوم الرباعي بالعزم المغناطيسي، أي $Ti^{4+}(0\mu_B)$.

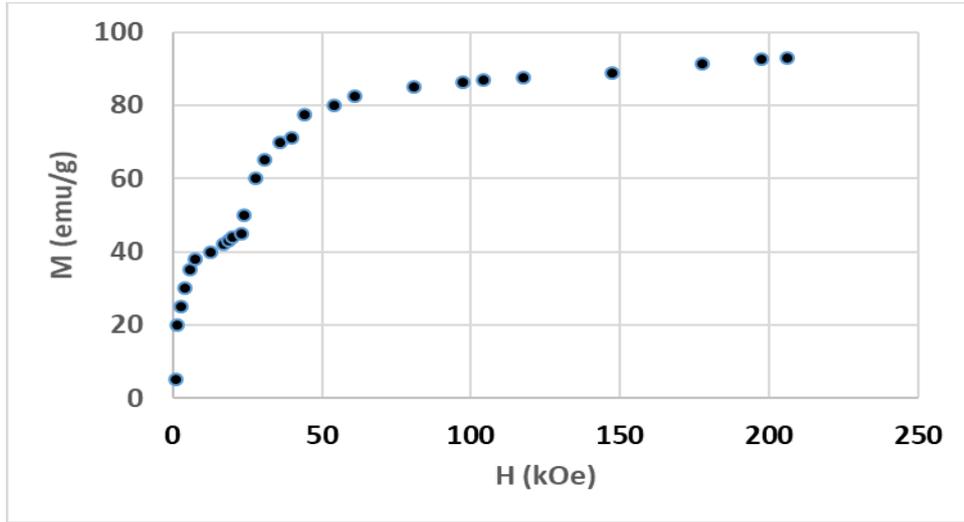
$$M_{(BaFe_{1.8}Co_{0.1}Ti_{0.1}O_{19})} = (6 \times 5\mu_B + 1 \times 5\mu_B + 1 \times 5\mu_B) - (1.9 \times 5\mu_B + 0.1 \times 3\mu_B + 1.9 \times 5\mu_B + 0.1 \times 0\mu_B) \approx 36\mu_B$$

وعند النظر إلى قيمة السبين الواحد، وعدد السبينات في المواقع المذكورة أعلاه حيث تحتوي وحدة الخلية السداسية صيغتين من الفرايت نجد $n_{eff}(theo)=7.16$ لكل صيغة:

Param.s	M_s (emu/g)	a	b	c	H_a (kOe)	K_1	n_{eff}	n_{eff} (theo)
values	74.77	167.00	-77.21	3.452	3.93	50.21	14.90	14.32

جدول 4: يحتوي البارامترات المغناطيسية المحسوبة من عملية المواعمة.

يبين الشكل (2) سلوك التمغنط الابتدائي بتابعة الحقل المغناطيسي الخارجي.



الشكل (2): علاقة التمغنط بتابعة شدة الحقل المغناطيسي الخارجي المطبق على العينة المدروسة.

الاستنتاجات والتوصيات:

نستنتج من هذا العمل النقاط الآتية:

- إن العينة المحضرة أبدت السلوك الفريمغناطيسي.
 - بلغت قيمة تمغنط الإشباع $M_s = 74.77$ emu/g عند درجة حرارة الغرفة.
 - تم تحديد ثابت اللاتجانس من المرتبة الأولى وبلغت قيمته 50.21 au، بينما بلغت قيمة الحقل المغناطيسي اللاتماثل $H_a = 3.93$ kOe.
 - جرى حساب عدد مغنطون بور حيث بلغت قيمته 14.90 .
 - نوصي بدراسة هذه الأنواع من العينات في درجات منخفضة من الحرارة.
- ولإجراء ذلك كُتِب الكود الآتي للبيانات:

- 1) Clc;close all;clear;
- 2) H=[0.05;0.5;1.66;3.33;5.0;6.5;12.0;16.0;18.0;19.0;22.0;23.0;27.0;30.0;35.0;39.0;43.25;53.25;60.0;79.9;96.5;103.2;116.5;146.52;176.5;196.47;205]; % Data of magnetic field H in kOe unit
- 3) h=1/H;
- 4) M=[5;20;25;30;35;38;40;42;43;44;45;50;60;65;70;71;77.5;80;82.5;85;86.25;86.87;87.5;88.75;91.25;92.5;93]; % magnetization data in emu/g unit
- 5) eq.=M_s-A*h-B*h.*h-C*h.*h.*h; % equation of polynomial in variable h
- 6) cftool % fitting using custom equation
- 7) enter % run

المراجع

- [1] YAZAN OSAMA MASWEDEH , *structural analysis of hexaferrite materials, Master degree of Physics University of Jordan,2014.*
- [2] MARINO P.M., LAPSHINSKY V.A., *obtaining and structural characterization of M- type hexaferrite doped with two cations in the Fe⁶⁺ sits* , conference paper, 2018.
- [3] ABDUL RAOUF AL DAIRY, LINA A. AL-HMOUD,HEBA A. KHATABEH, *magnetic and structural properties of barium hexaferrite nanoparticles doped with titanium*, 2019, Jordan,1-12.
- [4] SAIMA FAROOQ, *study of electrical and magnetic properties of Sr – Ba hexaferrite nano-material for potential technological applications*, Doctor Dissertation, Quaid-i-Azan University, Pakistan,2010.
- [5] Misbah-Ul-Islam,2001- *magnetic and electrical properties of ferrite*. A thesis submitted to Bahauddin Zakariya Uni., Pakistan,p.47.
- [6] Mazhar Uddin Rana,1998- *cation distribution and magnetic properties of ferrites*. A thesis submitted to Bahauddin Zakariya Uni., Pakistan,p.51.
- [7] بدر الأعرج، إبراهيم إبراهيم، رواء سليم، *دراسة الخواص النيبوية للمركب Ba_{0.9}Zr_{0.1}Fe₁₀CrAlO₁₉ وامتصاصه للأمواج المكروية*،مجلة جامعة طرطوس للبحوث والدراسات العلمية، المجلد الثالث، العدد الأول، 2019.
- [8] بدر الأعرج، *دراسة توزع الايونات الموجبة في الفريت Co_{0.6}Zn_{0.4}Fe₂O₄ باستخدام ESR*،مجلة جامعة تشرين للبحوث والدراسات العلمية، المجلد الثالث، العدد الأول، 2014.
- [9] BATLLE X.,OBRADORS X., RODRIGUEZ CARVAJAL J.,et., *cation distribution and intrinsic magnetic properties of Co-Ti doped M type barium ferrite*,Spain,1991, 1614-1623.
- [10] SMIT J., WIJN H. P. J.,*physical properties of ferromagnetic oxides in relation to their technical applications*, Philips technical library, 1959.
- [11] VIRENDER PRATAP SINGH, et., *A CURRENT REVIEW OF THE SYNTHESS AND MAGNETIC PROPERTIES OF m – TYPE HEXAFERRITE MATERIAL*, wjcmp , 2018,36 – 61.
- [12] SHIPLO M. N., KOSTISHYN V. G. , CHITANOV D.N., *the physical model of formation of hexagonal ferrites BaFe₁₂O₁₉*, Vol.7 No 4,2015, Russia,1-4.