# BaZn<sub>2</sub>(GeMn )<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>六角铁氧体的 磁晶各向异性\*

### 冯全源 任 朗

(西南交通大学电磁所,成都 610031) (1999年3月27日收到;1999年5月5日收到修改稿)

用标准陶瓷工艺制备了  $BaZn_{4}^{f}$  GeMn  $b_{0.2}Fe_{15.6}O_{27}$ 六角铁氧体. 假设  $Ge^{4+}$  取代了 4e 和  $4f_{IV}$ 中的  $Fe^{3+}$ ,能够很好 地解释实验结果.利用分子场理论和 H. B. Callen 单离子各向异性模型计算了  $BaZn_{4}^{f}$  GeMn  $b_{0.2}Fe_{15.6}O_{27}$ 次点阵之间 的交换参数和各次点阵对磁晶各向异性的贡献,并对实验结果进行了拟合. 结果表明, 12 k 和 2 d 次点阵对磁晶各向异性有较大的贡献.

**PACC**: 7530G; 7540M

## 1 引 言

随着通讯和电子对抗技术的发展,毫米波段的 重要性越来越明显.在进入毫米波段时,由于频率升 高,微波铁氧体器件所需外加磁场也随之增加.六角 铁氧体具有很高的磁晶各向异性场,在毫米波铁氧 体器件中使用该类材料,可以减轻器件的重量,缩小 器件的体积,因此,对六角铁氧体的磁晶各向异性的 研究有着重要的实际意义.

#### 2 实 验

以分析 纯的  $BaCO_3$ , ZnO,  $GeO_2$ ,  $MnCO_3$ 和  $Fe_2O_3$ 为原材料制备了分子式为  $BaZn_2$ (GeMn)<sub>0.2</sub>  $Fe_{15.6}O_{27}$ 多晶各向异性六角铁氧体. 纵向充磁磁场 约为 640 kA/m 压力约为  $3.9 \times 10^7$  Pa 烧结温度为

1200℃.用 Philp 公司生产的 ADP-15 型 X 射线衍射 仪,在室温对粉末样品进行了相成分分析,测量了晶 格常数.用提拉样品磁强计测出了饱和磁化强度和 磁晶各向异性常数同温度的变化关系.

#### 3 结果及讨论

X 射线衍射分析表明, BaZn<sub>2</sub>(GeMn)<sub>0.2</sub> Fe<sub>15.6</sub> O<sub>27</sub>为纯 W 型六角铁氧体. 其测试结果见表 1.

由文献 1 可得 W 型六角铁氧体的磁化强度为  $M_{s}(T) = 5 n_{12 k} m_{12 k}(T) + n_{6 g} m_{6 g}(T)$   $+ n_{4 f} m_{4 f}(T) + n_{2 d} m_{2 d}(T)$   $- n_{4 e} m_{4 g}(T) - n_{4 f} m_{4 f}(T)$  $- n_{4 f} m_{4 f}(T) ], (1)$ 

其中 *m<sub>i</sub>(T)*为归一化磁化强度 ,*n<sub>i</sub>* 是第*i* 次点的数 目.

表 1 BaZn<sub>2</sub>(GeMn)<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>六角铁氧体在 300 K 下的测试结果

样  品	$a/10^{-10}$ m	$c/10^{-10}$ m	$d/g \cdot cm^{-3}$	$dx/g \cdot cm^{-3}$	$T_{\rm c}$ /K	$H_a/kA\cdot m^{-1}$	$\sigma_{\rm s}/{\rm A}\cdot{\rm m}^2\cdot{\rm kg}^{-1}$
BaZn <sub>2</sub> ( GeMn ) <sub>0.2</sub> Fe <sub>15.6</sub> O <sub>27</sub>	5.8869	32.9588	4.955	5.358	655	790	74

 $Ge^{4+}$ 易形成共价键且有强烈的占据四面体位 趋势<sup>[2]</sup>.假设 BaZn<sub>2</sub>(GeMn )<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>中的 Ge<sup>4+</sup>, Mn<sup>2+</sup>取代四面体 4e 和 4f<sub>W</sub>中的 Fe<sup>3+</sup>,考虑到 Mn<sup>2+</sup> 的磁矩与 Fe<sup>3+</sup>的相同,根据(1)式可知 0 K 时的 BaZn<sub>2</sub>(GeMn )<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>六角铁氧体的饱和磁化强 度为 41  $\mu_{\rm B}$  相当于 143.5 Am<sup>2</sup>/kg. 而实验值为 35.7  $\mu_{\rm B}$  相当于 124.7 Am<sup>2</sup>/kg 我们用 1.5 K 时的值近似 表示 0 K 时的  $\sigma_{\rm s}$  值 ). 实验值比理论值低是因为四 面体位上的高浓度的非磁性离子 Zn<sup>2+</sup>和 Ge<sup>4+</sup>使得 S 块中的四面体位和八面体位上的 Fe<sup>3+</sup>离子的超

<sup>\*</sup>国家自然科学基金(批准号 69631010)资助的课题。

交换作用减弱, 导致6g和4f次点阵位的  $Fe^{3+}$ 离子 磁矩倾斜和自旋的局部翻转. X 射线分析表明, BaZn<sub>2</sub>(GeMn)<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>样品为纯 W 型六角铁氧 体. 由(1)式和 BaZn<sub>2</sub>(GeMn)<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>的磁化强 度(35.7  $\mu_B$ ),可认为次点阵 6g和 4 f 的  $Fe^{3+}$ 磁矩 平均倾斜角是 38°. 根据分子场理论, 可得各次点阵 的归一化磁化强度与温度的关系为

$$m = B_j [\alpha_i(T)]$$
  $i = 1 \ 2 \ \dots \ 7$  , (2)

$$\alpha_i(T) = \frac{1}{KT} g_J \overline{S}_i \overline{H}_{im} \mu_{\rm B} , \qquad (3)$$

$$\bar{H}_{im} = \sum_{m=1}^{l} \lambda_{im} \bar{M}_{m} (T), \qquad (4)$$

$$\lambda_{im} = 2N_{im}J_{im}/Ng_{J}^{2}\mu_{\rm B}^{2}$$
, (5)

$$\overline{S}_m = \overline{M}_m (0) \gamma N g_J \mu_{\rm B}. \tag{6}$$

这里 *K* 是玻尔兹曼常数 ;*J* 是总角量子数 ,对于 Fe<sup>3+</sup> ,由于其轨道角动量" 冻结 " ,因此 ,它等于自旋 量子数 ; $\overline{S}_i$  和 $\overline{S}_m$  是 *i* 和*m* 次点阵中 Fe<sup>3+</sup>的自旋矢 量 ,它的大小等于 Fe<sup>3+</sup>的自旋量子数 ,方向为磁化 强度的方向 ;*g*<sub>J</sub> 是朗德因子 ,在这里取 2 ; $\overline{H}_{im}$ 是分 子场 ; $\lambda_{im}$ 是分子场系数 ; $\overline{M}_m$ (*T*)是 *m* 次点阵的磁 化强度 ;*N<sub>im</sub>*是*m* 次点阵中 Fe<sup>3+</sup>的 *i* 次点阵磁性离 子配位数 ; $J_{im}$ 是 i 次点阵与 m 次点阵之间的交换参数 ;N 是单位体积中的磁性离子数.  $\varphi_{im}$ 是次点阵的磁矩平均倾斜角. 把(5)式代入(4)式,再把(4)式代入(3)式并利用(6)式可得

$$\alpha_i(T) = \frac{2}{KT} \sum_{m=1}^{7} \overline{S}_i \cdot \overline{S}_m J_{im} m_m(T) N_{im}. \quad (7)$$

由(1)式(2)式和(7)式可得

$$M_{4}(T) = 30m_{12k}(T) + 15m_{6g}(T) + 10m_{4}(T) + 5m_{2d}(T) - 4.5m_{4e}(T) - 4.5m_{4}(T) - 10m_{4}(T)], \qquad (8)$$

$$m_{i}(T) = \frac{6}{5} \operatorname{coth} \frac{6\alpha_{i}}{5} - \frac{1}{5} \operatorname{coth} \frac{\alpha_{i}}{5}$$
$$i \, \mathfrak{H} \, 12 \, \mathrm{k} \, \delta \, \mathrm{g} \, \dots \, \mathcal{A} \, \mathrm{f}_{\mathrm{VI}} \, , \qquad (9)$$

$$\alpha_{i}(T) = \frac{25}{2KT} \sum_{m=1}^{7} N_{im} J_{im} m_{m}(T) \cos \varphi_{im}$$

$$1 \ 2 \ r... \ 7 \ \forall \vec{D} \ 12 \ k \ \delta \ g \ r... \ A \ f_{\rm W}.$$
(10)

用(8)(9)(10)式和文献 1]中给出的配位数  $N_{im}$ 对 BaZn<sub>2</sub>(GeMn)<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>的 12 个  $\sigma_s$ (*T*)测量值 用最小二乘法进行计算机数值拟合. 拟合出的交换 参数  $J_{im}$  见表 2,各次点阵的归一化磁化强度  $m_s$ (*T*)见图 1.

表 2 计算机算出的交换参数  $J_{ij}(K/\mu_B^2)$ 

$J_{12k.12k}$	$J_{\rm 12k.4f}$	$J_{12\mathrm{k.4f}}$	$J_{\rm 12k.2d}$	$J_{ m 4e.6g}$	$J_{\rm 4e.4f}$	$J_{ m 4f.4f}$	$J_{12\mathrm{k.4f}}$	$J_{ m 4f,2d}$	$J_{\rm 6g.4f}$
-0.08	-2.29	0.09	7.82	-15.48	-14.17	-9.66	-11.3	-23.57	0.08

图 1 是计算出的各次点阵的  $m_i(T)$ 曲线和拟合的  $M_i(T)M_i(0)$ 曲线及测量值. 从图中可见, 拟合曲线和实验值吻合得较好.



图 1  $m_{i}(T)$ 和  $M_{i}(T)M_{i}(0)$ 同  $T/T_{c}$ 的关系

Callen 等用" 单离子模型 "得出,在各向异性能 比分子场低得多时,各向异性系数为<sup>[3]</sup>

$$\frac{k_{1}'(T)}{k_{1}'(0)} = \frac{I_{2}'(\alpha_{i})}{I_{1}(\alpha_{i})},$$
(11)

其中  $k_1^{(i)}$  (*T*)和  $k_1^{(i)}$  (0)分别为 *T*K 和 0K 时第 *i* 次 点阵的磁晶各向异性常数  $I_{12}(\alpha_i)$ 和  $I_{3/2}(\alpha_i)$ 是双 曲贝塞尔函数 , $\alpha_i$  由(3)式给出 ,假设 2 d 和 12 k 次 点阵的  $k_1^{(i)}$  (*T*)  $k_1^{(i)}$  (0)各占总的  $k_1$  (*T*)  $k_1$  (0)的 50% 可得拟合曲线图 2 ,从图 2 可知 ,12 k 和 2 d 次



图 2 k1(T)/k1(0)同温度 T 的关系

点阵对  $BaZn_2$ ( GeMn )).  $_2Fe_{15.6}O_{27}$ 的磁晶各向异性 贡献较大.

### 4 结 论

通过假设 Ge<sup>4+</sup>, Mn<sup>2+</sup>取代了 BaZn<sub>2</sub>(GeMn)<sub>0.2</sub> Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>六角铁氧体中的四面体 4e 和 4f<sub>IV</sub>中的 Fe<sup>3+</sup>离子所计算出来结果同实验结果相一致.对于 BaZn<sub>2</sub>(GeMn)<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub>六角铁氧体, 12k 和 2d 次

#### 点阵对磁晶各向异性有较大的贡献.

- [1] E. P. Wohlfarth *et al.*, Ferromagnetic Materials, 3(1982), 403.
- [2] 张有纲、黄永杰、罗迪民,磁性材料(成都电讯工程学院出版 社,成都,1988)[Y.G.Zhang,Y.J.Huang,D.M.Lou,Magnet-

ic Materials (Chengdu Electron Science and Technology University Chengdu 1988)].

[3] H. B. Callen, E. Callen, J. Phys. Chem. Solids ,27(1966), 1271.

# MAGNETOCRYSTALLINE ANISOTROPY OF BaZn<sub>2</sub>(GeMn )<sub>0.2</sub>Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub> HEXAFERRITES\*

FENG QUAN-YUAN REN LANG

(Institute of Electromagnetic Fields and Microwave Tech., Southwest Jiaotong Univesity, Chengdu 610031)
 (Received 27 March 1999; revised manuscript received 5 May 1999)

#### Abstract

Polycrystalline BaZn<sub>2</sub>(GeMn  $\lambda_{0.2}$  Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub> hexaferrites have been prepared by standard ceramic techniques. The results have been interpreted by assuming Ge<sup>4+</sup> ions to have replaced Fe<sup>3+</sup> ions in 4e and 4f<sub>N</sub> sublattice. The exchange interaction constants and the contributions to magnetocrystalline anisotropy for various sublattices in BaZn<sub>2</sub>(GeMn  $\lambda_{0.2}$ Fe<sub>15.6</sub>O<sub>27</sub> have been calculated based on the molecular field theory and H. B. Callen's single ion anisotropy model. The results show that the sublattices 12k and 2d have stronger contribution to magnetocrystalline anisotropy.

PACC: 7530G; 7540M

 $<sup>^{*}</sup>$  Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 69631010).