Procesos reversibles durante la inversión de la magnetización en la ferrita de cobalto

A. MEDINA-BOUDRI¹, D. R. CORNEJO², H. R. BERTORELLO², J. MATUTES-AQUINO¹

¹ Centro de Investigación en Materiales Avanzados, Miguel de Cervantes 120, Complejo Industrial Chihuahua, Chihuahua, Chih. México, CP 31109.

² FaMAF, Universidad Nacional de Córdoba, H. de la Torre y M. Allende, CP 5000, Córdoba, Argentina.

Se realizó un estudio del proceso de inversión de la magnetización a 300 K en un material de ferrita de cobalto co-precipitada. La evolución de las componentes reversible M_{rev} e irreversible M_{irr} de la magnetización se determinó por el Método de Magnetización Isotérmica Remanente (MIR) que consiste en medir un conjunto de curvas de retorno a partir de diferentes puntos de la curva de magnetización inicial y por el Método de Desmagnetización de Corriente Directa (DCD) que consiste en medir un conjunto de curvas de retorno a partir de diferentes puntos de la curva mayor de desmagnetización.

Estudios recientes han demostrado que existe una interrelación entre M_{rev} y M_{irr} expresada fenomenológicamente por la ecuación constitutiva $dM_{rev} = \chi^i dH + \eta dM_{irr}$, donde χ^i es la susceptibilidad intrínseca reversible, H_i es el campo interno y $\eta(H_i, M_{irr}) = (\partial M_{rev} / \partial M_{irr})_{H_i}$ es la denominada función de interrelación. En esta ecuación constitutiva el primer término se encuentra asociado con la rotación reversible del vector de magnetización y el segundo término se debe a cambios en la cantidad y el movimiento de las paredes de dominio. En este trabajo se realizó una determinación experimental completa del comportamiento de $M_{rev}(H_i, M_{irr})$ y $\eta(H_i, M_{irr})$. Las curvas $M_{rev}(H_i, M_{irr})$ para H_i constante muestran un máximo bien definido (mínimo) para la curva de desmagnetización característico del movimiento de las paredes de dominio dentro de los granos del material. Por otro lado, el comportamiento experimental de $R(H_i, M_{irr})$ sugiere que el mecanismo dominante para la inversión de la magnetización en este material es el movimiento de las paredes de los dominios sujetas a anclaje.

Palabras claves: ferrita de cobalto, inversión de la magnetización, magnetización reversible e irreversible, anclaje

Reversible processes in magnetization reversal of co-precipitated cobalt ferrite

A study of the magnetization reversal process at 300 K in a co-precipitated cobalt ferrite material was carried out. The evolution of the reversible M_{rev} and irreversible M_{irr} magnetization components were determined by measuring sets of recoil curves from different points on the initial magnetization curve and mayor demagnetization curve (Isothermal Remanent Magnetization and Direct Current Demagnetization Methods). The $M_{rev}(M_{irr}, H_i)$ curves at constant $H_i < H_c$, where H_c is the coercivity of the sample, exhibit a well-defined maximum (minimum) for the initial magnetization (demagnetization) process. This is characteristic of an increasing in the total domain wall area in the material during the processes of magnetization and demagnetization. This behavior for M_{rev} and the shape of the $\eta = (\partial M_{rev} / \partial M_{irr})_{H_i}$ function, suggest that domain wall movement subject to pinning is the dominant mechanism for the reversal magnetization process in this material.

Keywords: cobalt ferrite, magnetization reversal, reversible and irreversible magnetization, pinning.

1. INTRODUCCIÓN

La ferrita de cobalto es una ferrita cúbica espinela que exhibe propiedades interesantes tales como excelente estabilidad química, alta resistencia a la corrosión, anisotropía magnetocristalina, magnetoestricción y propiedades magneto-ópticas [1,2]. Sin embargo, todavía no han sido bien estudiados los mecanismos internos involucrados en los procesos de inversión de la magnetización. En investigaciones recientes sobre los procesos de desmagnetización en imanes permanentes, se ha demostrado que el comportamiento de la componente reversible de la magnetización puede ser utilizado como indicador del mecanismo principal que gobierna la inversión de la magnetización [3-5].

En los materiales magnéticos los cambios reversibles e irreversibles en el proceso de magnetización ocurren al mismo tiempo. Los cambios reversibles de la magnetización están asociados, en general, con la rotación de los momentos magnéticos, con el desplazamiento de las paredes de dominio en un pozo de potencial, o con la deformación de las paredes

de dominio en materiales que presenten un fuerte anclaje de dichas paredes. Por otra parte, la componente irreversible de la magnetización está asociada con el desanclaje de las paredes de dominio, la inversión de los momentos magnéticos en partículas monodominio y/o la nucleación de nuevos dominios.

En este trabajo se midieron las componentes reversibles e irreversibles de la magnetización usando los métodos IRM y DCD [6]. En estos métodos se ha considerado la magnetización total M_{tot} , como la suma de las componentes reversible M_{rev} e irreversible M_{irr} en cada valor de campo interno. El método experimental mediante el cual se determinan estas componentes, se ha publicado anteriormente [6,7] y se basa en la medida de curvas de retorno tomadas desde un punto de campo interno, que puede ser positivo o negativo, hasta campo interno cero $H_{int} = 0$. La magnetización remanente es la componente irreversible M_{irr} y por diferencia $M_{tot} - M_{irr}$ se

obtiene la componente reversible M_{rev} , para un valor determinado de campo magnético interno. De esta manera, se puede obtener información acerca de como varía la componente reversible de la magnetización M_{rev} a medida que cambia la componente irreversible M_{irr} .

En diversos materiales magnéticos se ha encontrado evidencia de una interrelación entre las componentes reversible e irreversible, lo cual ha sido expresado matemáticamente por Cammarano et al. [6] mediante la ecuación constitutiva $dM_{rev} = \chi_{rev}^i dH_i + \eta dM_{irr}$, donde χ_{rev}^i es la componente reversible de la susceptibilidad magnética, η es una función de interrelación dada por $\eta = (\partial M_{rev} / \partial M_{irr})_{H_i}$ y H_i es el campo interno determinado por $H_i = H_{ap} - DM_{tot}$ donde D es el factor de desmagnetización correspondiente a la geometría de la muestra. Crew et al. [3,4] han mostrado que a partir del análisis de las curvas de M_{rev} versus M_{irr} para valores de campos internos fijos, es decir $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$, se puede obtener información acerca del mecanismo involucrado en la inversión de la magnetización. En sistemas donde ocurre inversión de la magnetización debido a la rotación coherente de monodominios que no interactúan, se espera un comportamiento lineal en las curvas $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$. Por otro lado, si el mecanismo dominante en el proceso de inversión de la magnetización, es la nucleación de dominios invertidos seguida por el desanclaje de las paredes de dominio, se espera un mínimo en las curvas $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$.

2. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTALES

El método experimental de síntesis del polvo de ferrita de cobalto, con el estudio del tamaño y forma de las partículas ha sido publicado anteriormente [7,8]. Las partículas presentan geometría poliédrica con tamaños alrededor de 300 nm. El polvo se prensó en frío con una presión uniaxial de 1130 MPa. La muestra obtenida después del prensado se cortó en piezas y se cubrió con una resina para su protección durante el experimento. Las medidas de magnetización versus campo aplicado, fueron realizadas a temperatura ambiente usando un magnetómetro de muestra vibrante con un electroimán de 20kOe. Los valores de campo interno fueron calculados usando el factor de desmagnetización apropiado para la geometría de la muestra. A partir del estado desmagnetizado se construyeron 64 curvas de retorno desde un campo interno positivo fijo H_i hasta campo interno cero. A partir de la muestra en estado de saturación 15kOe, se construyeron 65 curvas de retorno desde un campo interno negativo fijo hasta campo interno cero.

3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

A partir de la medida del ciclo mayor de histéresis de esta muestra, se determinó el campo coercitivo $H_c = 396$ Oe, la magnetización remanente $4\pi M_R = 1800$ G y la magnetización de saturación $4\pi M_s = 3800$ G. En la figura 1 se muestran un conjunto de curvas M_{rev}/M_R versus M_{irr}/M_R para diferentes valores de campo interno, obtenidas a partir de las curvas de inversión durante el proceso inicial de magnetización (figura 1a) y durante el proceso de desmagnetización (figura 1b). De estas figuras se observa que el comportamiento general de las curvas $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$ es similar en ambos casos. Esto significa que los procesos de magnetización y desmagnetización en la ferrita de cobalto, ocurren a través de mecanismos similares. Durante el proceso inicial de magnetización y para valores de

Figura 1. Componente reversible M_{rev} como función de la componente irreversible M_{irr} de la magnetización, para diferentes valores de campos internos, durante el proceso inicial de magnetización a) y el proceso de desmagnetización b).

campo interno $H_i < H_c$, M_{rev} se incrementa hasta un máximo, mientras que durante el proceso de desmagnetización, las curvas $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$ exhiben un mínimo bien definido. Para valores de campo interno $H_i < H_c$ la componente reversible muestra un comportamiento monótonico que es de decrecimiento en el caso del proceso inicial de magnetización y crecimiento durante el proceso de desmagnetización. Puede observarse también, que los valores de M_{rev} durante el proceso de desmagnetización son ligeramente mayores que los correspondientes al proceso inicial de magnetización, para valores de campo interno similares.

Crew et al. [3] asociaron la forma de las curvas $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$ con el incremento del área de las paredes de dominio. Nuestro material es un sistema isotrópico de partículas magnéticas con tamaños de grano mayores que el tamaño crítico monodominio de la ferrita de cobalto, que es 70 nm [9]. Por lo tanto se espera un estado multidominio para cada partícula en estado desmagnetizado. En este caso, M_{rev} tendría tres contribuciones posibles: la primera es la rotación de los momentos magnéticos en las partículas monodominio, básicamente en campos internos altos cuando M_{irr} se aproxima a M_R . Las otras dos contribuciones provienen del libre movimiento de las paredes de dominio en las partículas entre dos posiciones energéticas estabilizadas por campos dipolares, y la deformación de las paredes de dominio debido a la presencia de sitios de anclaje [10].

Durante el proceso de desmagnetización, el mínimo que presentan las curvas $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$ (figura 1b), está asociado a un rápido incremento del área total de las paredes de dominio, debido a la formación de dominios invertidos y el posterior desplazamiento de las paredes hasta una posición estable o hasta algún sitio de anclaje [3].

La figura 2 muestra las componentes M_{rev} y M_{irr} como función del campo interno durante el proceso inicial de magnetización. Se puede observar en esta figura que $M_{rev}(H_i)$ se incrementa más rápidamente que $M_{irr}(H_i)$ y toma valores mayores hasta que se alcanza el campo coercitivo. A medida que el campo interno se incrementa, las paredes de dominio en la mayoría de las partículas se dirigen hacia los límites de grano siendo la rotación de los momentos magnéticos, la principal aportación a M_{rev} . En este caso las curvas $M_{rev}(H_i)$ y $M_{irr}(H_i)$ muestran un comportamiento lineal.

El incremento inicial de M_{rev} , a campos internos pequeños puede asociarse con un incremento del área de las paredes de dominio debido a la deformación de las paredes por la presencia de sitios de anclaje. El fenómeno de anclaje de las paredes de dominio en la ferrita de cobalto ha sido reportado anteriormente [9] y está asociado con la alta coercitividad que presenta esta ferrita. La alta anisotropía creada por el ión Co^{2+} [11], específicamente sobre defectos planares como fallas de apilamiento, provoca el anclaje de las paredes de dominio [10].

En la figura 3 se muestran los valores de la función de interrelación η en función del campo interno, durante el proceso inicial de magnetización (figura 3a) y desmagnetización (figura 3b). Estos valores fueron calculados como la pendiente de la curva $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$, en el punto en que M_{irr} toma el valor más pequeño durante el proceso inicial de magnetización, y en el punto en que M_{irr} toma el valor más grande durante el proceso de desmagnetización. De estas figuras puede observarse que η es inicialmente positivo y disminuye rápidamente, cuando el campo interno se aproxima al valor de campo coercitivo. Esto es consistente con la disminución del área total de la pared de dominio debido a la deformación de la pared en sitios de anclaje a medida que el campo interno se incrementa [3]. Durante el proceso inicial de magnetización los valores de η casi el doble que los valores correspondientes al proceso de desmagnetización. Esto puede deberse al hecho de que inicialmente las partículas en la muestra se encuentran en estado multidominio. Este estado provee más componente reversible que genera un incremento del área de las paredes de dominio debido a la deformación por el anclaje, en comparación con el estado remanente (estado inicial de desmagnetización).

Para valores de H_i mayores que el campo coercitivo, el comportamiento de η es más complejo. En la curva inicial de magnetización y para valores de campo interno $H_i < 2\text{kOe}$ aproximadamente, η permanece positivo. Esto es consistente con el hecho de que existe un porcentaje de sitios de fuerte anclaje en la muestra, por lo que se necesitan valores de campo interno mayores que el campo coercitivo para aproximar la componente irreversible M_{irr} a la remanencia. Por otro lado, durante el proceso de desmagnetización, η presenta un comportamiento oscilante cuando $H_i < H_c$, con tendencia hacia valores negativos. Estos valores negativos de η son consistentes con la rotación de los momentos magnéticos en partículas monodominios [3].

Figura 2. Componentes reversible M_{rev} e irreversible M_{irr} de la magnetización obtenidas por el método DCD, durante el proceso inicial de magnetización de la muestra.

Figura 3. Valores de η como función del campo interno para el proceso inicial de magnetización a) y el proceso de desmagnetización b).

4. CONCLUSIONES

La muestra estudiada posee un campo coercitivo $H_c=396\text{Oe}$ una magnetización remanente de 1800 G y una magnetización de saturación de 3800 G.

Los procesos de magnetización y desmagnetización en la ferrita de cobalto, ocurren a través de mecanismos similares, aunque los valores de M_{rev} durante el proceso de desmagnetización son ligeramente mayores que los correspondientes al proceso inicial de magnetización, para valores de campo interno similares.

La curva normalizada de $M_{rev}(M_{irr})_{H_i}$ del proceso de desmagnetización muestra un mínimo que corresponde con un rápido incremento del área total de las paredes de dominio al formarse los dominios invertidos que posteriormente se desplazan hasta posiciones estables o hasta sitios de anclaje.

El incremento inicial de M_{rev} a campos internos pequeños se asocia al incremento del área de las paredes de dominio debido a la deformación de las paredes por la presencia de sitios de anclaje. A medida que el campo interno se incrementa, las paredes de dominio en la mayoría de las partículas se dirigen hacia los límites de grano siendo la rotación de los momentos magnéticos, la principal aportación a M_{rev} y las curvas $M_{rev}(H_i)$ y $M_{irr}(H_i)$ muestran un comportamiento lineal.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al SECYT-UNC por el financiamiento brindado.

BIBLIOGRAFÍA

1. M. Grigorova, H. J. Blythe, V. Blaskov, V. Rusanov, V. Petkov, V. Masheva, D. Nihitanova, L. M. Martinez, J. S. Muñoz, M. Mikhov, *Magnetic properties and Mössbauer spectra of nanosized CoFe_2O_4 powders*, J. Magn. Mater., 183, (1998), 163-172.
2. Shino N. Okuno, Susumu Hashimoto, and Koichiro Inomata, *Preferred crystal orientation of cobalt ferrite thin films induced by ion bombardment during deposition*, J. Appl. Phys. 71, 12 (1992) 5926-5929.
3. D. C. Crew, P. G. McCormick, R. Street, *An investigation of reversible magnetization in NdFeB*. J. Appl. Phys. 86, 6, (1999), 3278-3284.
4. D. C. Crew, L. H. Lewis, *The effect of pinning and nucleation field distributions on reversible magnetization behavior*. J. Appl. Phys. 87, 9, (2000), 4783-4785.
5. M. Emura, D. R. Cornejo, F. P. Missell, *Reversible and Irreversible Magnetization in Hybrid Magnets*. J. Appl. Phys. 87, 3, (2000), 1387-1389.
6. R. Cammarano, P. G. McCormick, and R. Street, *The interrelation of reversible and irreversible magnetization*. J. Phys. D: Appl. Phys. 29 (1996) 2327-2331.
7. A. Medina Boudri, D. Bueno-Báques, L. Fuentes-Cobas, M. Miki-Yoshida and J. Matutes-Aquino *Study of reversible and irreversible magnetization processes of coprecipitated cobalt ferrite*, J. Appl. Phys. 87, 9, (2000), 6235-6237.
8. A. Medina-Boudri, D. Bueno-Báques, J. Matutes-Aquino, *Procesos de magnetización reversible-irreversible y propiedades de remanencia de ferrita de cobalto coprecipitada* Boletín de la Sociedad Española de Cerámica y Vidrio 40, 5(2001) 363-368.
9. A. E. Berkowitz and W. J. Schule, *Magnetic properties of some ferrite micropowders*. J. Appl. Phys. 4, 30 (1959) 1345-1355.
10. Robert C. O'Hardey, *Modern Magnetic Materials; Principles and Applications*, John Wiley & Sons, Inc. (2000), pag. 512.
11. S. Chikazumi, *Física del magnetismo*, Krieger Publishing Company (1964), pag. 156.

Recibido: 31.05.01

Aceptado: 10.12.01