

Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»

Салем Мохамед Мостафа Элшиштави

ФУНКЦИОНАЛЬНЫЕ МАГНИТНЫЕ МАТЕРИАЛЫ НА ОСНОВЕ СЛОЖНЫХ ОКСИДОВ
С УПРАВЛЯЕМЫМИ ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИМИ ХАРАКТЕРИСТИКАМИ

01.04.07 Физика конденсированного состояния

Автореферат диссертации
на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:	Панина Лариса Владимировна доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник кафедры Технология материалов электроники, НИТУ «МИСиС»
Научный консультант:	Труханов Алексей Валентинович кандидат физико-математических наук, научный сотрудник кафедры технология материалов электроники, НИТУ «МИСиС»

Москва - 2018

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Как правило, функциональными называются материалы, которые обладают несколькими функциями и перспективны для ряда приложений. Например, композитные материалы характеризуются повышенной прочностью, при этом могут иметь в своем составе компоненты, обеспечивающие сенсорные и радиопоглощающие свойства. Особое значение имеют материалы, многофункциональные свойства которых могут изменяться под действием внешних факторов. Материалы с управляемыми электромагнитными свойствами являются важным классом функциональных материалов, при этом особый интерес представляет возможность изменения электрических (магнитных) свойств посредством воздействия магнитных (электрических) полей. Такая ситуация реализуется в материалах с двойным типом упорядочения (магнитное и электрическое упорядочение) и сильными магнитоэлектрическими взаимодействиями между двумя подсистемами. Иначе такие материалы называют мультиферроидными материалами или мультиферроиками [1,2]. Существует несколько видов мультиферроидных материалов с сильной магнитоэлектрической связью: однофазные и композиционные материалы. В композиционных материалах, содержащих ферроэлектрические и ферро-(ферри)-магнитные фазы [3,4], а также в искусственных диэлектриках с ферромагнитными проводящими включениями [5,6] могут наблюдаться значительные по величине магнитоэлектрические эффекты за счет взаимного влияния нескольких фаз (магнитная и сегнетоэлектрическая) друг на друга. Композиционные материалы крайне интересны с практической точки зрения. Однако, с фундаментальной точки зрения, наибольший интерес представляют однофазные мультиферроики. В данном виде материалов сосуществование магнитного и электрического упорядочения может быть обусловлено несколькими механизмами: механизм спиновых токов (обратное взаимодействие Дзялошинского-Мория); спин-стрикционный механизм и механизм p-d-гибридизации.

Проведение комплексных исследований таких материалов с двойным типом упорядочения является крайне актуальной задачей, как с фундаментальной точки зрения, так и для практических приложений. Так, в материалах с мультиферроидными свойствами возможно контролировать магнитную поляризацию с помощью электрического поля и электрическую поляризацию с помощью магнитного поля. Это открывает широкие возможности для многочисленных применений, например, для создания новых технологий памяти [7-8]. Интересны перспективы использования мультиферроиков для высокочастотных приложений, например, для управляемого согласования импедансов и поглощения [9]. С

фундаментальной точки зрения, крайне актуальным является формулирование модели, объясняющей механизм формирования магнитоэлектрического взаимодействия в однофазных материалах и усиление мультиферроидных свойств в композиционных материалах.

Усиленная магнитоэлектрическая связь возможна в магнито-индуцированных мультиферроиках [10-12], а также в композитных материалах, включающих ферроэлектрическую и ферро –(ферри)-магнитную фазы, связь между которыми осуществляется стрикционными взаимодействиями [13,14]. Высокочастотная магнитоэлектрическая связь возможна при использовании ферромагнитных проводящих включений, индуцированный электрический дипольный момент которых зависит от локальной магнитной структуры.

Цель работы

Целью данной работы было разработка и исследование нескольких новых типов магнитоэлектрических функциональных материалов, с температурами упорядочения выше комнатной:

- поликристаллическое образцы гексаферритов бария М-типа (структура типа магнетоплюмбита) с диамагнитным замещением ионами Al^{3+} - $BaFe_{12-x}Al_xO_{19}$, в которых реализуются мультиферроидные свойства при комнатной температуре;
- композитные керамические материалы на основе двухкомпонентной системы, содержащей сегнетоэлектрическую ($BaTiO_3$) и ферримагнитную ($BaFe_{11,9}Al_{0,1}O_{19}$) фазы;
- аморфные микропровода $Co_{71}Fe_5B_{11}Si_{10}Cr_3$ с магнитострикционными свойствами.

Основные задачи:

В рамках диссертационной работы были решены следующие конкретные задачи:

1. Исследованы кристаллическая и магнитная структуры образцов гексаферрита бария $BaFe_{12-x}Al_xO_{19}$, где $x=0,1-1,2$ (в том числе методами дифракции нейтронов);
2. Исследованы электрические и магнитные свойства образцов гексаферрита бария $BaFe_{12-x}Al_xO_{19}$, где $x=0,1-1,2$, выявлена корреляция между степенью диамагнитного замещения ионами Al^{3+} и зависимостями электрических и магнитных свойств;
3. Определен механизм формирования ненулевого дипольного момента (спонтанная поляризация) в магнито-коллинеарных структурах замещенных гексаферритов, выявлена роль диамагнитного замещения;
4. Исследованы особенности структурных характеристик, электрических и магнитных свойств композитных мультиферроидных материалов, содержащих сегнетоэлектрическую ($BaTiO_3$) ферримагнитную ($BaFe_{11,9}Al_{0,1}O_{19}$) фазы.

5. Исследована корреляция между механическими напряжениями, изменениями магнитной структуры и гармонического спектра в образцах аморфных микропроводов $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$.

Научная новизна

Сложные неколлинеарные магнитные структуры способны индуцировать электрическую поляризацию согласно обратному взаимодействию Дзялошинского-Мория [15]. Как правило, сложная магнитная структура (отклонение от строгой коллинеарности в направлениях векторов магнитных моментов) возникает при низких температурах в материалах с фрустрированной магнитной структурой. Как правило, в многокомпонентных магнитных оксидах фрустрация магнитной структуры отмечена при замещении магнитных ионов на диамагнитные. Однако, в некоторых замещенных гексаферритах возможно реализовать мультиферроидное состояние (сосуществование магнитного и электрического порядка) и значительный магнитоэлектрический эффект при комнатных температурах [10,16-17], что вызвало огромный интерес к этим материалам. С другой стороны, спонтанная электрическая поляризация в однофазных гексаферритах, полученных по стандартной керамической технологии, была обнаружена в работах [18-19]. Более интенсивные мультиферроидные свойства и значительные магнитоэлектрические эффекты в подобных системах, но полученных с помощью модифицированной керамической технологии, были реализованы в работе [20]. Однако, результаты структурных исследований многих авторов показывают, что отклонения от строгой коллинеарности в направлениях векторов магнитных моментов в замещенных гексагональных ферритах М-типа не выявлено. Это подтверждает предположение, что формирование ненулевого дипольного момента в этих соединениях не является следствием реализации механизма обратного взаимодействия Дзялошинского-Мория, и их магнитная структура описывается коллинеарным упорядочением. В случае коллинеарных магнетиков, возможный механизм спонтанной электрической поляризации связан с симметричным обменом (или спин-стрикционный обмен). Это может приводить к изменению длин связей Fe-O в первой координационной сфере за счет нецентросимметричного смещения иона железа в анионных полиэдрах.

Однако, на сегодняшний день нет универсального ответа о природе формирования зарядового упорядочения (спонтанная поляризация) в этих составах. Для однозначного представления о природе формирования ненулевого дипольного момента на сегодняшний день нет достаточной структурной информации, т.к. с момента открытия гексагональных ферритов М-типа (50-е годы XX столетия) и до этого момента данный класс материалов описывается центросимметричной пространственной группой. Противоречие экспериментальных данных и теоретических предпосылок вызывает диссонанс у многих

ученых. Для однозначной интерпретации природы формирования двойного типа упорядочения в гексаферритах М-типа требуется проведение систематических исследований особенностей кристаллической структуры и их магнитных и электрических свойств.

Теоретически показано, что структурная релаксация в $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ может приводить к возникновению сегнетоэлектрической (FE) и антиферроэлектрической фаз (AFE) в более стабильных состояниях, чем centrosymmetric параэлектрическое состояние (PE) [21]. Исследования также предсказали, что FE и PE состояния в $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ имеют аналогичные ферромагнитные температуры Кюри. Однако состояние FE для незамещенного гексаферрита $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ стабильно только при низких температурах. Степень стабильности сегнетоэлектрического состояния может быть увеличена путем диамагнитного замещения (химическое замещение части ионов железа диамагнитными ионами), которое будет способствовать возникновению внутренних напряжений и увеличению локального искажения кислородных полиэдров. Так же было отмечено, что в настоящий момент нет модели, объясняющей взаимное влияние магнитной и сегнетоэлектрической фаз в композиционных материалах, в то время как получение двухфазных композитов «магнетик-сегнетоэлектрик» способно привести к увеличению функциональных свойств за счет синергетических эффектов межфазного взаимодействия.

В данной работе впервые продемонстрировано наличие локальных структурных искажений в Al-замещенных гексаферритах. Данные искажения обуславливают формирование спонтанной поляризации за счет неcentrosymmetric смещения ионов железа в кислородных октаэдрах позиции 12k. Проведены точные исследования кристаллической и магнитной структуры твердых растворов гексагональных ферритов бария М-типа с диамагнитным замещением $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$, где $x=0,1,2$ методом высокоразрешающей нейтроннографии. Была выявлена корреляция между уровнем концентрационного диамагнитного замещения и особенностями изменения кристаллической и магнитной структур.

Показано, что в композиционных материалах $(\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x}(\text{BaTiO}_3)_x$, где $x=0-1$, обе фазы обладают электрической спонтанной поляризацией. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости обнаруживают два пика, которые соответствуют двум структурным фазовым переходам в каждой фазе. Однако фазовый переход из сегнетоэлектрического состояния в параэлектрическое обусловлен различной природой. Исследования температурных зависимостей диэлектрической проницаемости позволили определить связь магнитного упорядочения и кристаллографических искажений для объяснения возникновения спонтанной поляризации в коллинеарных магнитных структурах.

В качестве перспективных материалов для формирования композиционных материалов с мультиферроидными свойствами были предложены аморфные микропровода $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$, которые имеют малую константу магнитострикции. Поскольку конкурирующее магнитокристаллическое взаимодействие отсутствует, магнитострикция определяет магнитную анизотропию, что обеспечивает сильную зависимость магнитной структуры от внутренних механических напряжений. Это контрастирует с классическими представлениями, что хорошие магнитострикционные материалы должны обладать высокими значениями константы магнитострикции. Например, известный магнитострикционный материал Terfenol-D ($\text{Tb}_x\text{Dy}_{1-x}\text{Fe}_{2-y}$, $x \approx 0.3, 0 < y < 0.2$) имеет константу магнитострикции на несколько порядков выше $\lambda \approx 1.6 \cdot 10^{-3}$ [21]. В данной диссертационной работе также проведены исследования влияния внешних механических напряжений на магнитные свойства аморфных микропроводов.

Практическая ценность работы

Функциональные материалы с двойным типом упорядочения при температурах выше комнатной имеют широкий спектр применений. Результаты исследования образцов гексаферрита бария $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$, где $x=0,1-1,2$, представляют интерес прежде всего для разработки сенсоров внешних магнитных/электрических полей с двойным типом контроля. Также результаты работы могут быть актуальны для создания элементов хранения информации с высокой плотностью записи. Замещенные гексаферриты и материалы на их основе, также могут быть использованы для формирования СВЧ-устройств. Композиционные материалы с ферромагнитными микропроводами могут найти применение как сенсорные материалы для реализации неразрушающего контроля и мониторинга.

Основные положения и результаты, выносимые на защиту:

1. Механизмом формирования сегнетоэлектрического состояния в коллинеарных гексаферритах $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ является сосуществование двух пространственных групп: centrosymmetrichnoy nepolyarnoy fazy с пространственной группой $R6_3/mmc$ и necentrosymmetrichnoy polyarnoy fazy с пространственной группой $R6_3mc$, что подтверждается нейтронографическими исследованиями.
2. Электрическая поляризация и магнитоэлектрический эффект замещенных гексаферритов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ возрастают с увеличением концентрации замещения, что объясняется увеличением степени поляризации локальных спинов Fe^{3+} при добавлении

в систему энергии электрического поля, при этом намагниченность насыщения уменьшается.

3. Температурная зависимость диэлектрической проницаемости композиционных материалов $(\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x} - (\text{BaTiO}_3)_x$ имеет два пика, которые соответствуют структурным переходам в неполярные фазы BaTiO_3 и $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$, при этом морфология и микроструктура композитов влияет на величины диэлектрической проницаемости и магнитной анизотропии.
4. Ферромагнитные аморфные микропровода с низкой константой магнитострикции обнаруживают резкое изменение типа магнитного гистерезиса, подвижности доменных границ и амплитуд гармонического спектра, что является перспективным для использования их как элементов магнитоэлектрических мультиферроидных композитных материалов с передаточным механизмом посредством пьезоэлектрического эффекта.

Достоверность результатов работы:

Результаты получены с использованием современного измерительного и аналитического оборудования. Структурные исследования выполнялись с помощью методов рентгеновской дифракции (Дрон-3М, $\text{Co-K}\alpha$ -излучение), нейтронной дифракции (Фурье-дифрактометр высокого разрешения), дифференциальной сканирующей калориметрией (DSC 204 F1 Netzsch). Микроструктура исследовалась с использованием сканирующего электронного микроскопа (Carl Zeiss ULTRA 55, FE-SEM), химический состав подтверждался методом энергодисперсионного рентгеновского анализа. Магнитные характеристики измерялись на вибрационном магнетометре (Liquid Helium Free High Field Measurement System, UK) в широком диапазоне внешних магнитных полей и температур. Электрические параметры измерялись с помощью LRC-meter (E7-20). Магнитный гистерезис, подвижность аксиальных доменных границ и магнитострикция микропроводов измерялись известными индуктивными методами (Sixtus–Tonks-метод, методика малого углового вращения намагниченности). Гармонический спектр измерялся с помощью селективного синхронного дифференциального усилителя (Signal Recovery 5210). Результаты работы опубликованы в международных рецензируемых журналах, а также прошли апробацию на Российских и Международных научных конференциях.

Личный вклад автора:

Автор непосредственно участвовал в процессах синтеза керамических образцов (замещенные гексагональные ферриты $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0,1 \leq x \leq 1,2$)) и композиционные

материалы $(\text{BaTiO}_3)_x - (\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1); в подготовке и проведении экспериментов по измерению электрических и магнитных свойств, а также магнитоэлектрических характеристик всех объектов исследований. Также являлся принципиальным участником при интерпретации экспериментальных результатов и подготовке научных публикаций по теме исследования.

Апробация работы

Результаты работы представлялись на следующих российских и международных конференциях: Шестая международная конференция- Кристаллофизика и деформационное поведение перспективных материалов 26 – 28 мая 2015 г. Москва; 20th International Conference on Magnetism (ICM2015) 6-10 July 2015 Barcelona, Spain; XII Международная научная конференция молодых ученых- Молодежь в науке, 1-4 декабря 2015 г. Минск, Беларусь; Young Eurasian Scientist Forum Minsk, 1-4 December 2015; Advances in Functional Materials -2016 ICC, 8-11 August 2016, Jeju Island, S. Korea; The 8th Joint European Magnetic Symposia (JEMS 2016) 21 – 26 August 2016, Glasgow, UK; Первый российский кристаллографический конгресс 21 – 26 ноября 2016 г. Москва; Международный симпозиум «Нанозфизика и нанозлектроника» 13– 16 марта 2017 г. Нижний Новгород; IEEE International Magnetism Conference INTERMAG Europe 2017, 24th-28th April 2017, Dublin, Ireland; Moscow International Symposium on Magnetism MISM-2017, 1 – 5 July, 2017, Moscow.

Публикации

По результатам диссертационной работы опубликовано 17 статей, из них 11 в изданиях, включенных в базу данных WOS и SCOPUS.

Структура и объем диссертации Диссертация состоит из введения, четырех глав, списка литературы из 168 наименований, и заключения. Работа представлена на 156 страниц, имеет 10 таблиц и 81 рисунок.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность темы диссертационного исследования, сформулированы цели работы, указаны основные положения, выносимые на защиту, а также описана структура диссертации.

В **первой главе** приводится литературный обзор результатов научных исследований в области функциональных материалов на основе гексаферрита бария, титаната бария и ферромагнитных микропроводов.

Значительное внимание уделено обсуждению кристаллической структуры, магнитных и электрических свойств гексагональных ферритов М-типа и твердых растворов на их основе. Бариевый гексаферрит изоструктурен магнетоплюмбиту $\text{PbO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$, структура которого хорошо известна (рисунок 1). Гексаферриты обладают довольно сложной кристаллической структурой, которая представляется в виде некоторой последовательности шпинельных и гексагональных блоков, чередующихся вдоль оси c и содержащих довольно большое число катионов железа.

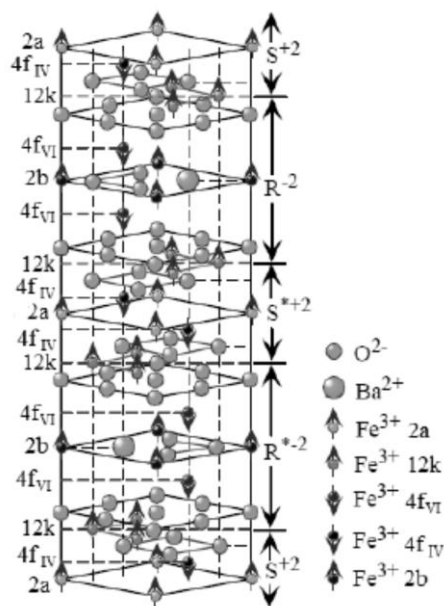


Рисунок 1 – Кристаллическая структура гексагонального феррита М-типа.

Твердые растворы на основе бариевых ферритов $\text{BaFe}_{12-x}\text{D}_x\text{O}_{19}$ (где D- диамагнитный трехвалентный ион) обладают уникальными физическими свойствами: значительной кристаллической и магнитной анизотропией, высокими значениями температуры фазового перехода ферри-парамагнетик (~ 740 K) [23, 24], относительно большими удельным электрическим сопротивлением ($\sim 10^5 \div 10^9$ Ом·см) и намагниченностью насыщения ($\sim 0,67$ Тл). Модель магнитной структуры бариевых гексаферритов М-типа, предложенная Гортером, предполагает, что для одной формульной единицы магнитоактивные катионы Fe^{3+} расположены в 5-и неэквивалентных кристаллографических позициях, которые имеют октаэдрическое ($\text{Fe1} - 2a$, $\text{Fe4} - 4f_{\text{VI}}$ и $\text{Fe5} - 12k$), пентаэдрическое (бипирамидальное) ($\text{Fe2} - 2b$) и тетраэдрическое ($\text{Fe3} - 4f_{\text{IV}}$) кислородное окружение (рисунок 2). Ниже температуры Кюри 740 K 12 катионов Fe^{3+} , образующие 5 магнитных подрешеток, упорядочиваются антипараллельно ($1^*\text{Fe1}\uparrow$, $2^*\text{Fe2}\downarrow$, $1^*\text{Fe3}\uparrow$, $2^*\text{Fe4}\downarrow$, $6^*\text{Fe5}\uparrow$) и при 0 K дают суммарный магнитный момент, равный 20 μ_B на одну формульную единицу.

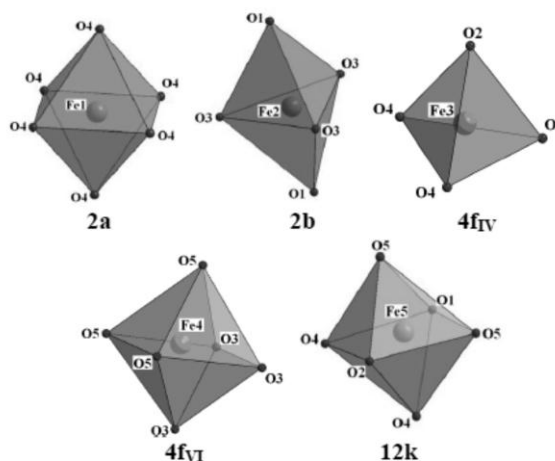


Рисунок 2 – Типы анионного окружения в гексаферритах:
 октаэдрической окружение (2a, 4f_{VI}, 12k), тетраэдрическое окружение (4f_{IV}),
 пентаэдрическое или бипирамидальное окружение (2b).

Гексаферриты широко применяются на практике как постоянные магниты и СВЧ-материалы. Однако в последнее время они привлекают значительное внимание как мультиферроики или сегнетомагнетики – материал, проявляющий существенную взаимосвязь магнитных и диэлектрических свойств.

Также был проведен литературный обзор магнитных свойств аморфных ферромагнитных микропроводов (АФМ) и влиянию механических напряжений на них. Особое внимание было уделено АФМ на основе Со с небольшой константой магнитострикции, в которых под действием растягивающего напряжения возможно изменение знака константы магнитострикции [25,26]. Это приводит к изменению типа магнитной анизотропии и создает условия для реализации значительной чувствительности импеданса (комплексное сопротивление). Магнитострикционные микропровода могут быть использованы как дополнительные включения в мультиферроидных композитах, а также для мониторинга целостности структуры композитных материалов.

На рисунке 3 представлена магнитная структура аморфных ферромагнитных микропроводов. Аморфные и нанокристаллические ферромагнитные микропровода обладают двумя характерными магнитными свойствами: наличием двух устойчивых состояний намагниченности (бистабильность) в проводах с аксиальной анизотропией (а) и гигантским магнитоимпедансом в проводах с циркулярной анизотропией (б). При осевой анизотропии изменение состояний намагниченности происходит быстрым распространением изолированных вытянутых доменов вдоль оси провода. Этот эффект наблюдается в проводах с положительным коэффициентом магнитострикции, который характерен для сплавов с содержанием железа выше 4.8%. Когда намагниченность таких проводов меняется под

действием аксиального магнитного поля, наблюдается почти прямоугольная петля гистерезиса.

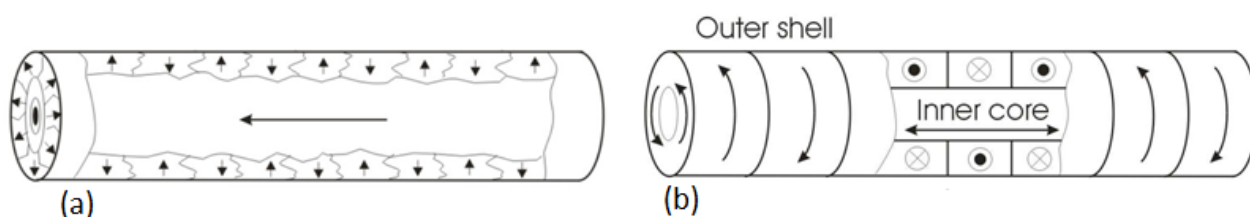
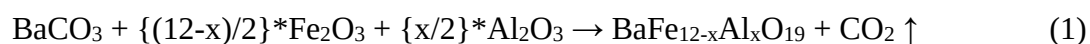


Рисунок 3. Магнитная структура аморфных ферромагнитных микропроводов: а) аксиальная и б) циркулярная анизотропия

При уменьшении содержания железа аморфные микропровода имеют отрицательную магнитострикцию и циркулярную анизотропию. Соответственно, они показывают наклонные кривые намагничивания с малым гистерезисом и высокой магнитной восприимчивостью. Поскольку магнитострикция зависит также от внутренних напряжений, возможен переход от осевого типа магнитной структуры к циркулярному под действием механических напряжений, что будет сопровождаться резким изменением магнитного гистерезиса.

Во второй главе обсуждаются технологические и экспериментальные методики.

Исследованные образцы замещенных гексаферритов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0,1 \leq x \leq 1,2$) и исходные компоненты композиционных материалов - BaTiO_3 (BT) и $\text{BaFe}_{11,9}\text{Al}_{0,1}\text{O}_{19}$ (BF), были получены методом двухступенчатого твердофазного синтеза из исходных компонентов (BaCO_3 , Fe_2O_3 , Al_2O_3 , TiO_2 , все квалификации ОСЧ), взятых в строго стехиометрическом соотношении. Смешанные с соблюдением стехиометрии порошки оксидов и карбоната подвергались мокрому помолу, прессованию и отжигу при 1200°C в течение 6 ч. А затем после промежуточного помола в течение 0,5 ч, образцы вновь компактировались и спекались при 1200°C в течение 3 ч. После спекания образцы медленно охлаждались со скоростью $\sim 100^\circ\text{C}/\text{ч}$. Процесс синтеза образцов можно представить в виде следующей реакции:



Керамические композиционные материалы - $(\text{BaTiO}_3)_x - (\text{BaFe}_{11,9}\text{Al}_{0,1}\text{O}_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0,25; 0,5; 0,75$ и 1). Исходные составы BaTiO_3 (BT) и $\text{BaFe}_{11,9}\text{Al}_{0,1}\text{O}_{19}$ (BF) с различными весовыми соотношениями ферромагнитной и сегнетоэлектрической фаз также были получены по обычной керамической технологии. Порошки BT и BF в требуемых соотношениях и измельчали в шаровой мельнице, прессовались и подвергались синтезирующему обжигу на воздухе при 1250°C в течение 2 ч при скоростях нагрева и охлаждения $5^\circ\text{C}/\text{мин}$. Все термические обработки были выполнены на воздухе.

Структурный и качественный фазовый анализ полученных образцов, был проведен при комнатной температуре на рентгеновском дифрактометре ДРОН-3М в $Cu - K\alpha$ излучении. Исследование эффекта Мессбауэра проводили на спектрометре Ms1104-Em. Химический состав образцов определяли с помощью энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDX-спектрометр Rigaku inc.). Детальное исследование кристаллической и магнитной структур замещенных гексаферритов было выполнено методом порошковой дифракции нейтронов в широком диапазоне температур от 4 до 760 К на Фурье дифрактометре высокого разрешения (ФДВР) на импульсном реакторе ИБР-2М в Дубне. Расчет экспериментальных нейтронограмм выполняли методом Ритвельда и с помощью программных пакетов MR1A и FullProf. Магнитные свойства измерялись на вибрационном магнитометре (Liquid Helium Free High Field Measurement System, UK) в широком температурном (300-800 К) и полей (+2 Тл) диапазоне. Измерение электрической поляризации замещенных гексаферритов проводилось конденсаторным методом (модифицированным методом Sawyer-Tower; схема показана на рисунке 4) с подачей биполярных импульсов во внешних электрических полях до 110 кВ/м. Электрические свойства композиционных материалов, были исследованы с использованием LRC-метра в широком температурном диапазоне (300-800 К) при различных частотах.

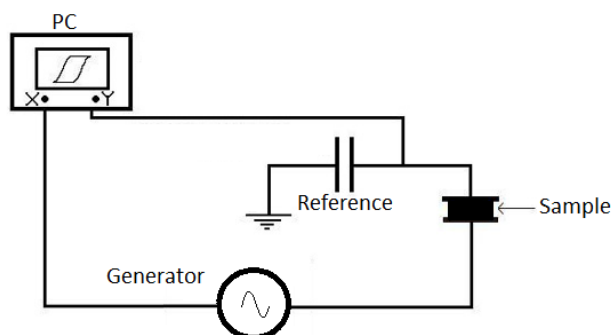


Рисунок 4. Схематическое изображение измерения электрической поляризации.

Измерения проводились при комнатной температуре. Магнитоэлектрический эффект определялся по магнитополевым зависимостям удельной намагниченности во внешнем электрическом поле (60 кВ/м) и в нулевом электрическом поле.

Были изучены аморфные провода со стеклянным покрытием состава $Co_{71}Fe_5B_{11}Si_{10}Cr_3$, имеющего низкое положительное значение константы магнитострикции (порядка 10^{-7}) с геометрическими размерами: общий диаметр – 29.5 мкм и диаметр металлической жилы 23.9 мкм. Провода были получены с помощью модифицированного метода Тейлора-Улитовского [28]. Структуру сплавов изучали на электронном сканирующем микроскопе TESCAN VEGA LMN с катодом LaB6 (СЭМ) и системой рентгеновского энергодисперсионного микроанализа Oxford Instruments Advanced AZtecEnergy. Также с помощью СЭМ были определены геометрические параметры образцов.

Структурные параметры проводов исследовались методом дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК) с использованием DSC 204 F1 Netzsch калориметра в атмосфере Ar, скорость нагрева была 10 К/мин.

Аморфное состояние образцов было также подтверждено с помощью рентгено-дифракционного анализа с использованием Bruker D8 Advance с монохроматическим излучением $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda = 1.54\text{\AA}$).

Высшие гармоники в индуцированном при перемагничивании сигнале напряжения детектировались с помощью селективного усилителя (Signal Recovery 5210) и функциональных генераторов.

Процессы намагничивания проводов под воздействием растягивающей нагрузки до 50 г (что соответствует механическому напряжению 693 МПа для диаметра проволоки около 30 мкм) были исследованы с использованием индукционного метода с двумя дифференциальными катушками, имеющими внутренний диаметр 3 мм. Частота тока возбуждающей катушки была 500 Гц, амплитуда намагничивающего поля составляла 1000 А/м. Нагрузка прикладывалась с одного конца микропровода. Для построения петли гистерезиса индуцированный электрический сигнал численно интегрировался как функция от магнитного поля.

Высокочастотные гармоники электрического сигнала, возникающего при перемагничивании, определялись численным методом с применением Фурье-преобразования измеряемого импульса напряжения в некотором временном интервале и с помощью блокировки усилителя (Signal Recovery 5210) и функциональных генераторов.

Динамика продольного домена исследовалась с помощью определения скорости передвижения доменной стенки (ДС) вдоль оси провода под действием магнитного поля и механических напряжений в установке с намагничивающим соленоидом и тремя приемными катушками [29], разделенных расстоянием $d = 27$ мм, как показано на рисунке 5. Скорость распространения ДС оценивается как: $v = d/\Delta t$, где Δt - разность во времени между импульсами индуцированного напряжения. Для измерения влияния механического напряжения на скорости распространения ДС, нагрузка прикладывалась к концу провода, который находился вне соленоида.

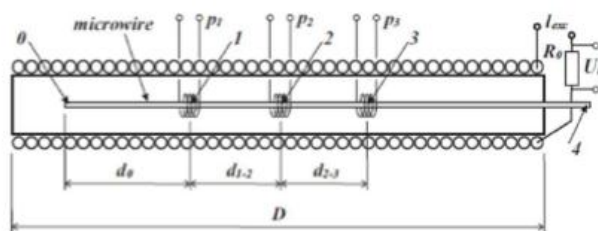


Рисунок 5. Схематическое изображение метода измерения скорости распространения доменной стенки.

Кроме того, часть провода, который помещался вне соленоида, использовался для того, чтобы всегда активировать распространение доменной стенки с заданного конца. В данном эксперименте использовались провода длиной в 10 сантиметров.

В третьей главе обсуждаются результаты исследований особенностей кристаллической и магнитной структуры, магнитных и электрических свойств твердых растворов гексаферритов бария с замещением ионами Al^{3+} : $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0,1; 0,3; 0,6; 0,9$ и $1,2$). Исследования структурных характеристик методами рентгеновской и нейтронной дифракции показали, что синтезированные образцы характеризуются высокой степенью однофазности (количество примесной фазы не превышает 1.4 мас.%). Основная фаза (фаза со структурой типа магнетоплюмбита или М-тип гексаферрита) удовлетворительно может быть описана пространственной группой $R\bar{6}_3/mmc$ (пр.гр. №194) с двумя молекулами в элементарной ячейке ($Z=2$). Показано, что примесная фаза представлена оксидом железа - гематитом (Fe_2O_3) с пространственной группой ($R\bar{3}c$) и шестью молекулами в элементарной ячейке ($Z = 6$). Появление примесной фазы может быть обусловлено незначительным растворением $\text{BaO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$ (с тетрагональной решеткой) в структуре гексаферрита М-типа. В результате обработки спектров дифракции установлено, что с ростом уровня концентрационного замещения ионами Al^{3+} параметры элементарной ячейки монотонно уменьшаются (рисунок 6).

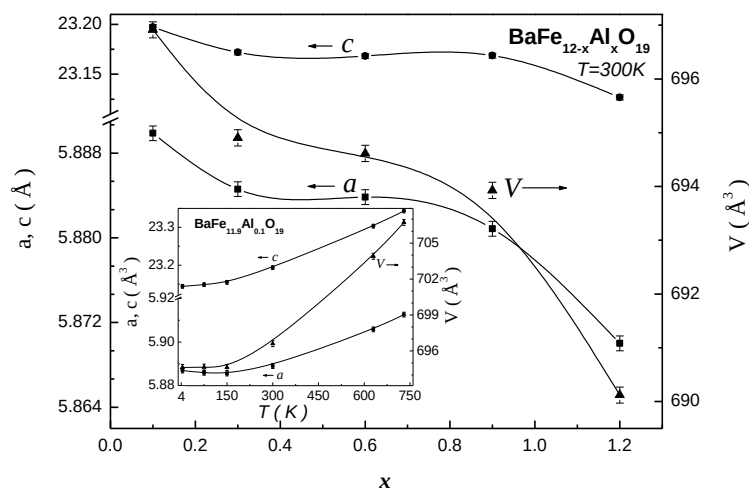


Рисунок 6 – Концентрационная зависимость параметров элементарной ячейки образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0,1 \leq x \leq 1,2$), полученная в результате обработки данных нейтронной дифракции при 300K.

Такое поведение объясняется замещением ионов Fe^{3+} с большим ионным радиусом ($r = 0.645 \text{ Å}$) ионами Al^{3+} , ионный радиус которых меньше ($r = 0.535 \text{ Å}$). Для определения влияния температуры на параметры кристаллической структуры были проведены

нейтронографические исследования в широком температурном диапазоне (4.2-730 K). Отмечено, что при повышении температуры параметры a и c , а также объем элементарной ячейки увеличиваются, что может быть объяснено термическим расширением (вставка к рисунку 6). В области низких температур от 150K до 4K был зафиксирован инварный эффект (отрицательный коэффициент температурного расширения). Отмечено, что при понижении температуры значения параметра c и объема элементарной ячейки снижаются, в то время как значение параметра a незначительно возрастает. Температурное расширение определяется структурным (решеточным), электронным и магнитным вкладами. Структурный вклад наиболее заметен при более высоких температурах. А в области низких температур лимитирующими являются электронный и магнитный вклады. Анализ нейтронных данных подтверждает отсутствие изменений магнитной структуры в отличие от инварных сплавов вблизи температуры фазового перехода. Это может означать, что инварный эффект в Al-замещенных гексаферритах может быть обусловлен ангармонизмом низкоэнергетической фононной моды.

Для определения характера распределения ионов-заместителей (Al^{3+}) в структуре гексаферрита и анализе влияния занятых диамагнитными ионами позиций на интенсивность обменных взаимодействий была использована Мессбауэровская спектроскопия. Незамещенный гексаферрит бария $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ имеет 5 секстетов в соответствии с позициями Fe^{3+} (координации кислорода): октаэдрические $12k$, $4f_2$, $2a$, тетраэдрический $4f_1$ и бипирамидальный $2b$. При замещении ионов железа ионами алюминия с малой концентрацией ($x = 0,1$) наблюдалось появление нового 6-го. Появление дополнительного секстета, обозначенного как $12k^I$, соответствует искаженному типу подрешетки $12k$. Можно предположить, что диамагнитные ионы алюминия при малых концентрациях распределяются в $2b$ -позиции, что приводит к ослаблению обменных связей $\text{Fe}^{3+}(2b)\text{-O-Fe}^{3+}(12k)$ и $\text{Fe}^{3+}(2b)\text{-O-Fe}^{3+}(2a)$ (за счет фрустрации магнитной структуры при ослаблении дальнего порядка обменных взаимодействий). В результате этого появляются неэквивалентные положения Fe^{3+} (для $12k$ -позиций) с более низким полем (B_{eff}) в ядрах Fe^{57} . Это соответствует секстету C6 в спектрах для Fe^{3+} ($12k_I$). Для образца с максимальной концентрацией $x = 1,2$ отмечено появление нового 7-го секстета. Можно предположить, что этот 7-й секстет следует отнести к формированию нового неэквивалентного положения $12k^2$ (также искаженной неэквивалентной подрешетки $12k$ с разной энергией связи). Это достаточно сложный случай для однозначной интерпретации распределения катионов, но, скорее всего можно предложить следующее объяснение. Для Al-замещенных образцов ($x = 1,2$) диамагнитные ионы предпочтительно занимают $2b$ - и $12k$ -положения, что приводит к ослаблению и даже разрыву обменных связей $\text{Fe}^{3+}(2b)\text{-O-Fe}^{3+}(12k)$ и $\text{Fe}^{3+}(2a)\text{-O-Fe}^{3+}(12k)$.

На нейтронограммах для всех образцов при температурах ниже температуры фазового перехода наблюдалось только увеличение интенсивности существующих ядерных рефлексов и отсутствие дополнительных (магнитных) рефлексов. Такая картина указывает на наличие коллинеарной магнитной структуры при комнатной температуре и соответствие модели Гортера. Следует особо отметить, что использование модели с неколлинеарной магнитной структурой не привело к уменьшению параметров соответствия по сравнению с коллинеарной моделью. На этом основании можно утверждать, что синтезированные образцы гексаферрита бария, замещенные катионами алюминия $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$), обладают коллинеарной магнитной структурой и отклонение от строгой коллинеарности не зафиксировано во всем температурном диапазоне исследований. Использование такого уникального метода как нейтронография позволило рассчитать значения эффективных магнитных моментов иона Fe^{3+} для каждой кислородной координации образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$). Результаты приведены в таблице 1.

Таблица 1 – Значения эффективного магнитного момента ионов Fe^{3+} в разных кристаллографических положениях: 2a, 2b, 4f_{IV}, 4f_{VI} и 12k образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0,1 \leq x \leq 1,2$) при комнатной температуре.

x	0.1	0.3	0.6	0.9	1.2
Fe1 (2a)	3.82	3.77	3.25(0.03)	3.36	2.16
Fe2 (2b)	4.08(0.13)	4.11(0.15)	3.09	3.74	2.18(0.19)
Fe3 (4f _{IV})	3.65(0.09)	3.68(0.10)	3.25(0.11)	3.60(0.18)	1.47(0.08)
Fe4 (4f _{VI})	4.09(0.09)	4.15(0.11)	3.75(0.03)	3.57(0.19)	1.25(0.09)
Fe5 (12k)	3.59	3.55(0.05)	3.25(0.03)	3.12(0.08)	2.07

На рисунке 7а показаны температурные зависимости удельной намагниченности для образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$), полученных методом вибрационной магнитометрии в диапазоне температур 300-800 К и внешнем магнитном поле 0,86 Тл. Вставка рисунка 7а демонстрирует концентрационные зависимости температуры Кюри для всех образцов. По данным магнитных исследований, температура фазового перехода «ферромагнетик-парамагнетик» или T_c для образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$) отмечена в диапазоне температур 705-670 К. Для незамещенного $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ температура Кюри равна 740К. По мере увеличения концентрации диамагнитных ионов Al в твердых растворах гексаферрита бария число соседних ионов железа уменьшается таким образом, что дальний магнитный порядок (косвенное обменное взаимодействие ионов железа через немагнитный лиганд) разрушается при более низких температурах.

На рисунке 7б представлены полевые зависимости удельной намагниченности для образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$). Увеличение концентрации ионов алюминия приводит к снижению удельной намагниченности с 49,6 эме/г ($x = 0,1$) до 32 эме/г ($x = 1,2$) при комнатной температуре. Снижение магнитных параметров (намагниченность насыщения, температура магнитного фазового перехода) при увеличении уровня концентрационного замещения можно объяснить фрустрацией магнитной структуры за счет обрыва магнитных связей Fe-O-Fe при дальнем порядке обменных взаимодействий.

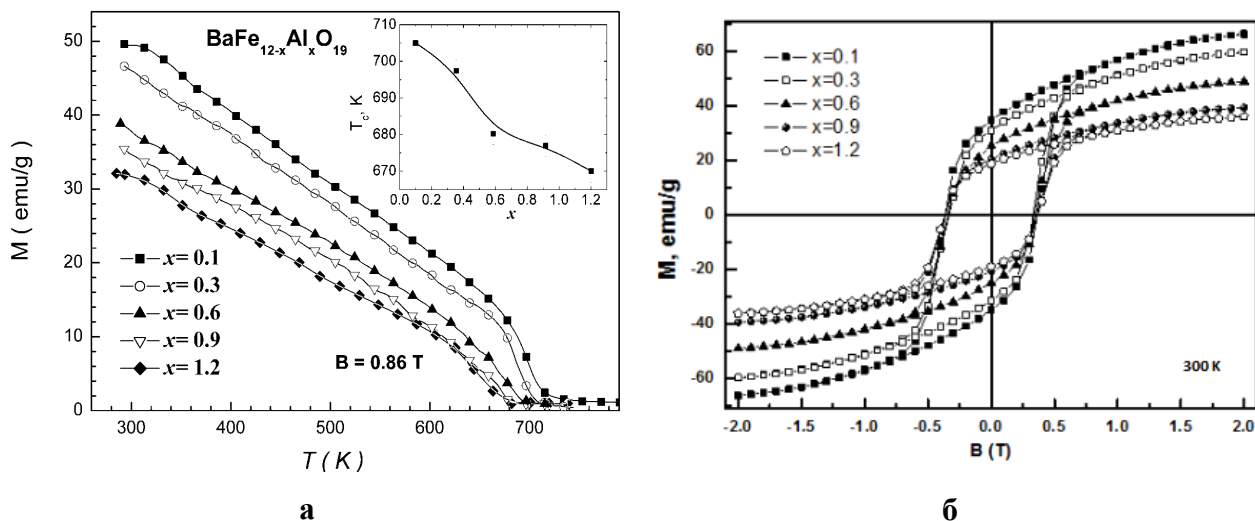


Рисунок 7 – Температурные (а) и полевые (б) зависимости удельной намагниченности для образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$)

Наличие двойных ферроидных свойств (сосуществование магнитного и диэлектрического упорядочения) подтверждается наличием поляризационных зависимостей в исследованных образцах. На рисунке 8 представлены петли электрического гистерезиса поляризации при комнатной температуре для образцов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($x = 0.1$ и 0.9). Максимальное значение электрического поля, которого удалось достичь без возникновения электрического пробоя, составило 110 кВ/м. В этом поле спонтанная поляризация для образца с $x = 0.9$ равнялась 5.8 мКл/м². В поле 110 кВ/м спонтанная поляризация для образца с $x = 0.1$ равнялась 5.1 мКл/м². С возрастанием уровня замещения x от 0.1 до 1.2 величина спонтанной поляризации увеличивалась приблизительно на 10 % (для образца с $x = 0.9$ равнялась 5.8 мКл/м²).

С увеличением концентрации замещения катионами алюминия спонтанная поляризация немного (до 10 %) возрастает. Это связано с возрастанием концентрации пустых d-оболочек и образованием сильных несимметричных ковалентных связей в кристаллографической позиции 12k. Кроме того, так как катион Al^{3+} имеет ионный радиус

меньше, чем катион Fe^{3+} , то увеличение концентрации замещения вызывает локальные искажения и микронапряжения кристаллической решетки. Это также способствует увеличению спонтанной поляризации.

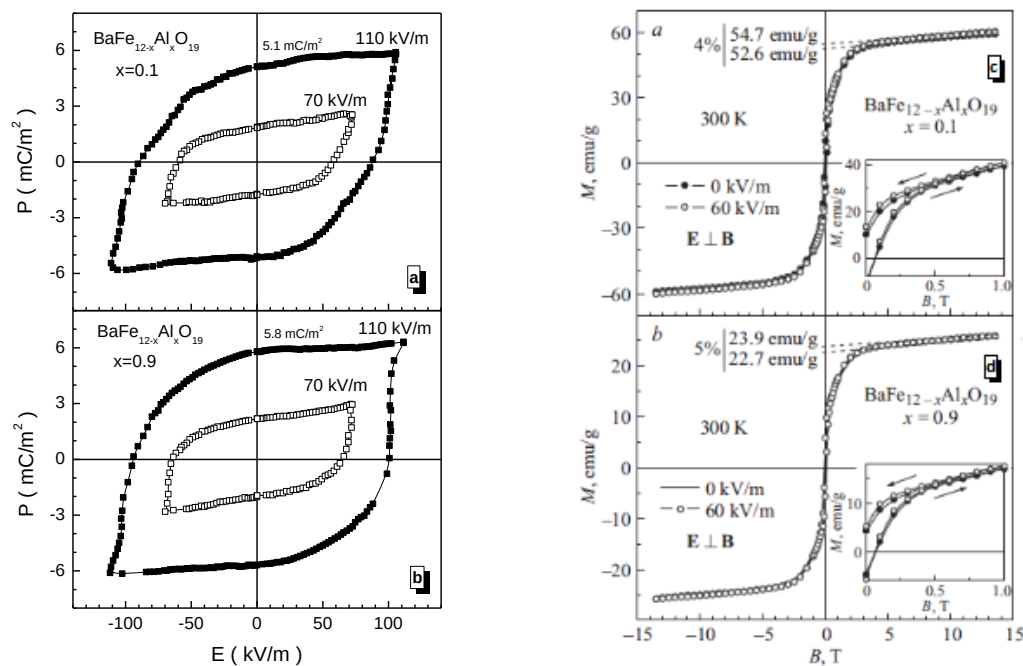


Рисунок 8 - Полевая зависимость диэлектрической поляризации, измеренная для различных максимальных значений электрического поля 70 кВ/м ($\square$) и 110 кВ/м ($\blacksquare$) при комнатной температуре (300 K) для гексаферрита $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ с $x = 0.1$ (a) и 0.9 (b).

Полевые зависимости удельной намагниченности, измеренные во внешнем электрическом поле 60 кВ/м и без поля при комнатной температуре (300K) для гексаферрита $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ с $x = 0.1$ (c) и 0.9 (d). Вставка демонстрирует изменение удельной намагниченности в увеличенном виде.

Были проведены измерения петель гистерезиса при воздействии взаимно перпендикулярных магнитного и электрического полей. Для образца с $x = 0.1$ спонтанная намагниченность составила 52.6 эме/г (без электрического поля), что соответствует спонтанному атомному магнитному моменту 10.4 $\mu\text{B}/\text{f.e.}$ Во внешнем электрическом поле 60 кВ/м спонтанная намагниченность возрастает примерно на 4 % до 54.7 эме/г (11.1 $\mu\text{B}/\text{f.e.}$). Для образца с $x = 0.9$ спонтанная намагниченность уменьшается до 22.7 эме/г (без электрического поля), что соответствует спонтанному атомному магнитному моменту 4.4 $\mu\text{B}/\text{f.e.}$ При воздействии внешнего электрического поля 60 кВ/м спонтанная намагниченность возрастает примерно на 5 % до 23.9 эме/г (4.8 $\mu\text{B}/\text{f.e.}$). Этот эффект может быть объяснен увеличением степени поляризации локальных спинов Fe^{3+} при добавлении в систему энергии электрического поля.

Концентрационная зависимость спонтанных поляризации и намагниченности, а также магнитоэлектрического коэффициента при комнатной температуре для образцов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$

$x\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$) представлена на рисунке 9. Видно, что с ростом уровня замещения катионами алюминия спонтанная поляризация и магнитоэлектрический коэффициент немного возрастают, в то время как спонтанная намагниченность уменьшается. Это можно объяснить возрастанием концентрации пустых d-оболочек и образованием сильных несимметричных ковалентных связей в кристаллографической позиции 12k.

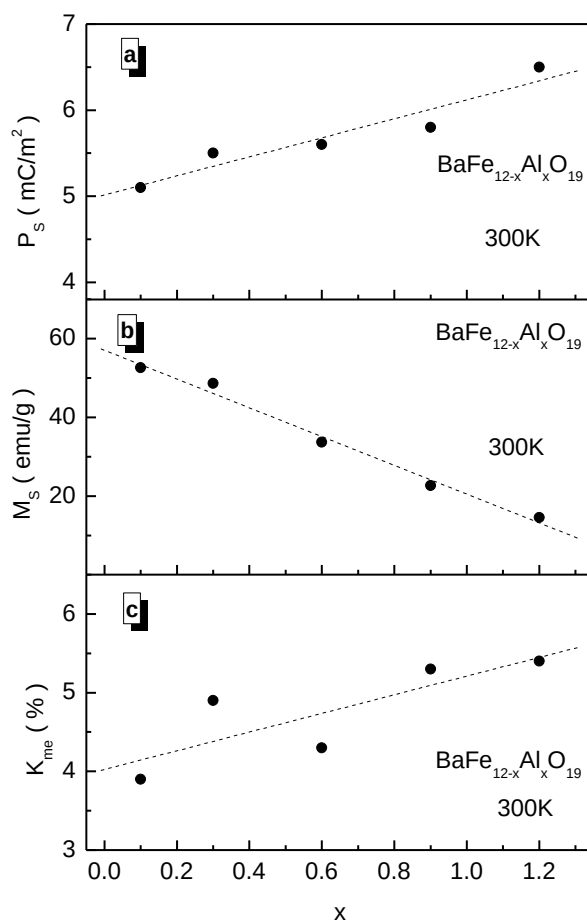


Рисунок 9 - Концентрационная зависимость спонтанной поляризации (а), спонтанной намагниченности (б) и магнитоэлектрического эффекта (с) при комнатной температуре (300 К) для образцов твердых растворов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$).

Объяснить механизм возникновения спонтанной поляризации в твердых растворах гексаферритов $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0.1 \leq x \leq 1.2$) в данном случае формированием неколлинеарной магнитной структуры невозможно. Такое объяснение следует искать в зарядовом упорядочении. Идеальный центросимметричный кислородный октаэдр с малым катионом железа в центре характеризуется нулевым вектором поляризации. Нецентросимметричное полярное искажение этого октаэдра, возникающее при смещении катиона железа к одному из анионов кислорода может быть причиной появления ненулевого дипольного электрического момента и формирования спонтанной поляризации (рисунок 10).

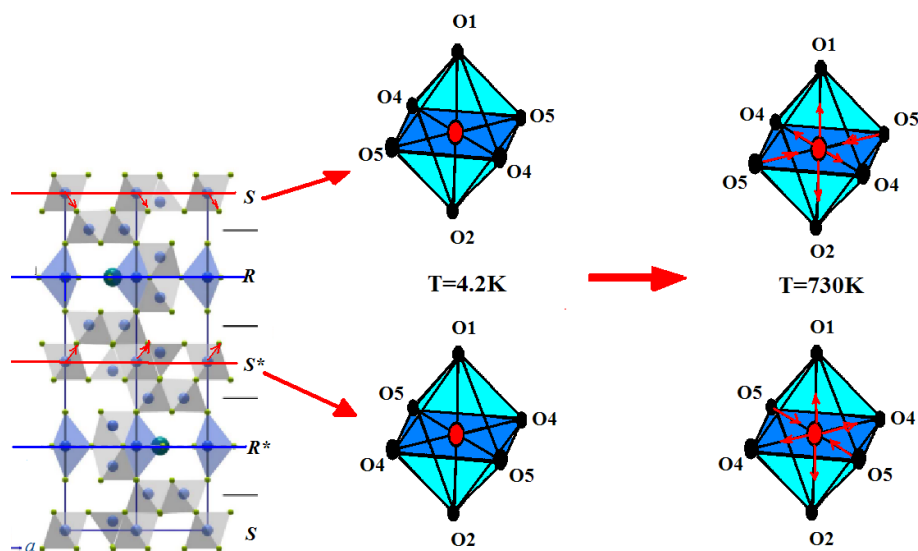


Рисунок 10 – Схематическое изображение нецентросимметричного смещения иона железа в кислородном октаэдре

На основании тщательного анализа изменения ближайших длин связи $Fe_i - O_j$ ($1 \leq i, j \leq 5$) в широком температурном интервале можно оценить изменение локальной кристаллической структуры на атомарном уровне. Данные анализа длин связей Fe-O позволяют подтвердить предположение о нецентросимметричном смещении ионов железа. Для большинства неэквивалентных кристаллографических позиций длины связи между катионами железа и анионами кислорода возрастают с увеличением температуры, что ожидаемо в связи с увеличением энергии теплового колебания ионов. Однако для тетраэдрической позиции $4f_{IV}$, пентаэдрической - $2b$ и октаэдрической - $12k$ было отмечено уменьшение некоторых длин связи. Причем, если для тетраэдрической позиции $4f_{IV}$ все длины связи уменьшаются с ростом температуры (позиция уплотняется), то для пентаэдрической - $2b$ и октаэдрической - $12k$ наблюдается разнонаправленный характер изменения длин связи. Это указывает на нецентросимметричное, полярное, искажение полиэдров. В случае нецентросимметричного смещения иона железа, существующая кристаллическая структура не может быть описана центросимметричной пространственной группой ($P6_3/mmc$ - пр.пр. №194). В результате обработки спектров нейтронной дифракции исследованных образцов твердых растворов методом Ритвельда в приближении нецентросимметричной полярной пр. гр. $P6_3mc$ - пр.пр. №186 была получена более лучшая статистика сходимости результатов подгонки (что подтверждается более низкими значениями факторов соответствия). Две вышеуказанные пространственные группы являются достаточно близкими по строению и описываются гексагональной сингонией. Отличие пр. гр. 186 от пр. гр. 194 заключается в том, что в первой из них отсутствует центр симметрии и она характеризуется в два раза меньшим

набором операторов симметрии. В рамках пр. гр. $R\bar{6}_3mc$ формирование ненулевого дипольного момента возможно и не противоречит теории. В связи с этим при уточнении особенностей кристаллической структуры замещенных гексаферритов бария и для объяснения их мультиферроидных свойств следует учитывать возможность двухфазного состояния (сосуществование двух фаз с пр. гр. 186 и пр. гр. 194) и взаимных фазовых превращений.

В четвертой главе исследованы магнитные и электрические свойства композитов $(BaTiO_3)_x - (BaFe_{11.9}Al_{0.1}O_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1), а также исследовано влияние механических напряжений на магнитные свойства аморфных микропроводов на основе Co . Эти материалы могут быть перспективны для использования в качестве ферромагнитной фазы в мультиферроидных материалах.

Результаты исследований кристаллической структуры и микроструктуры композиционных составов $(BaTiO_3)_x - (BaFe_{11.9}Al_{0.1}O_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1) по данным EDX и рентгеновской дифракции представлены в Таблице 2. FE-фаза (сегнетоэлектрическая фаза) - $BaTiO_3$ характеризуется тетрагональной структурой с пространственной группой $P4/mm$ (пр. гр. 99), а FM-фаза (магнитная фаза) $BaFe_{11.9}Al_{0.1}O_{19}$ характеризуется гексагональной с пространственной группой $R\bar{6}_3/mmc$ (пр. гр. 194). В главе 3 представлены результаты исследований, указывающих на возможность описания структуры замещенных гексагональных ферритов бария М-типа пр.пр. $R\bar{6}_3mc$ (№186)

Таблица 2 – Параметры кристаллической структуры и микроструктуры для композиционных составов $(BaTiO_3)_x - (BaFe_{11.9}Al_{0.1}O_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1)

Samples	Параметры кристаллической структуры							Параметры микроструктуры		
	$(1-x)BaFe_{11.9}Al_{0.1}O_{19}$			$(x)BaTiO_3$				D_b g/cm ³	D_x g/cm ³	Porosity %
	a Å ±Error	c Å ±Error	v Å ³ ±Error	a Å ±Error	c Å ±Error	c/a	v Å ³ ±Error			
$x=0$	5.8961 ±0.0195	23.2154 ±0.043	698.9345 ±0.00001	-	-	-	-	4.91	5.27	6.75
$x=0.25$	5.8963 ±0.0195	23.2151 ±0.043	698.9729 ±0.00001	3.9893 ±0.025	4.0184 ±0.024	1.009	63.95089 ±0.00002	5.20	5.47	4.84
$x=0.50$	5.8963 ±0.0195	23.2154 ±0.043	698.9819 ±0.00001	3.9881 ±0.025	4.0176 ±0.024	1.007	63.89969 ±0.00002	5.08	5.66	10.29
$x=0.75$	5.8968 ±0.0195	23.2133 ±0.043	699.0372 ±0.00001	3.9998 ±0.025	4.018 ±0.024	1.007	64.28157 ±0.00002	5.00	5.86	14.65
$x=1$	-	-	-	3.9832 ±0.025	4.0181 ±0.024	1.005	63.7507 ±0.00002	4.76	6.02	21.05

Температурная зависимость удельной намагниченности для композиционных составов $(BaTiO_3)_x - (BaFe_{11.9}Al_{0.1}O_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1) показана на рисунке 11а. Измерения проведены в магнитном поле 0,86 Тл в диапазоне температур 300-850К.

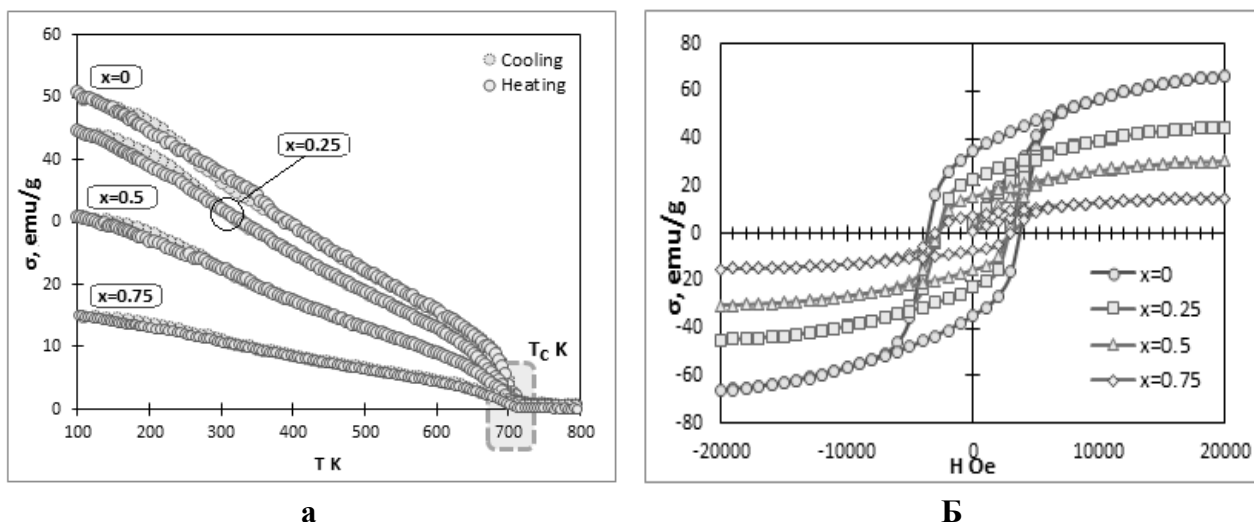


Рисунок 11 – Температурные (а) и полевые (б) зависимости удельной

намагниченности для композиционных составов $(\text{BaTiO}_3)_x - (\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1).

Для магнитной фазы $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$ температура магнитного фазового перехода - 705 К, что согласуется с данными, представленными в главе 3. Композиционные образцы представляют собой отдельные зерна $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$ и BaTiO_3 . Параметры микроструктуры (пористость и размер зерна) оказывает незначительное влияние на интенсивность обменных взаимодействий внутри зерен замещенного гексаферрита бария. Поэтому в основном магнитные параметры определяются количественным соотношением фаз. Причем температура магнитного фазового перехода практически не зависит от количественного соотношения фаз. В то время как величина удельной намагниченности (полевые зависимости удельной намагниченности – рисунок 11б) критически зависит от соотношения фаз. Петли магнитного гистерезиса для композиционных образцов $(\text{BaTiO}_3)_x - (\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$), измеренные при комнатной температуре (300 К), показаны на рисунке 11б. Петли гистерезиса типичны для магнитотвердых магнитных материалов. Намагниченность насыщения для образца $x=0$ составляет 67 эме/г и монотонно снижается с увеличением концентрации BaTiO_3 . Относительное уменьшение намагниченности насыщения превосходит 32% от величины $x=0$. Значение коэрцитивной силы резко снижается от 3,9 кЭ до 2,85 кЭ при увеличении x до 0.25. Снижение основных магнитных параметров можно объяснить снижением общей магнитной энергии (за счет изменения анизотропии формы, которая зависит от морфологии зерен).

На рисунке 12 представлены температурные зависимости действительной части диэлектрической проницаемости. На кривых температурных зависимостей $\varepsilon'(T)$ для незамещенного гексаферрита $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ и $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$ отмечены высокотемпературные пики вблизи температур магнитного фазового перехода.

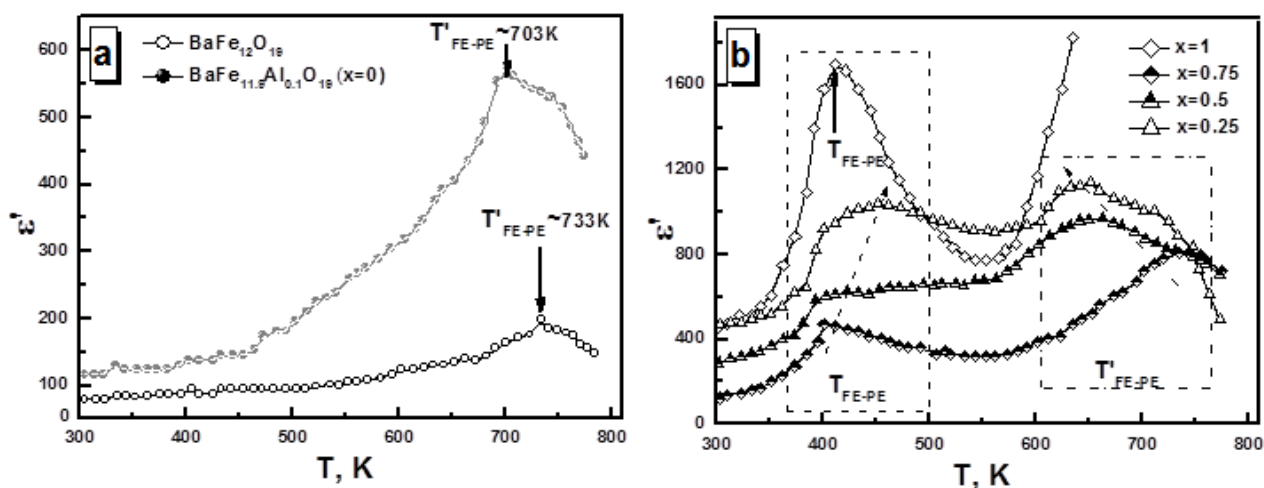


Рисунок 12 – Температурные зависимости действительной части диэлектрической проницаемости для гексаферритов $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ и $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$ (а) и композиционных материалов $(\text{BaTiO}_3)_x-(\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x}$ ($x=0.25; 0.5; 0.75$ и 1) (б).

Такое поведение (пики на температурных зависимостях диэлектрической проницаемости) указывает на возможный фазовый переход из полярной фазы в неполярную фазу (электрический фазовый переход) и на наличие сегнетоэлектрического состояния в замещенных гексаферритах ниже температуры электрического фазового перехода. Эти пики указывают на структурные преобразования и рассматриваются в качестве перехода сегнетоэлектрик- параэлектрик.

Температура этого перехода $T_{\text{FE-PE}}$ оценивается из условия $\frac{d\epsilon'}{dT} = 0$. Величина $T_{\text{FE-PE}}$ составляет 733K для $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ и 703K для $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$, в то время как соответствующие температуры магнитного фазового перехода (T_c) составляют 740K и 705K, соответственно. Объяснить формирование сегнетоэлектрического состояния в коллинеарных гексаферритах можно исходя из сосуществования двух пространственных групп: centrosymmetric неполярной фазы с пр. гр. $R\bar{6}_3/mmc$ и noncentrosymmetric полярной фазы пр. гр. $R\bar{6}_3mc$, что подтверждается нейтронографическими исследованиями. Тот факт, что значение $T_{\text{FE-PE}}$ немного ниже, чем T_c , подтверждает предположение, что за зарядовое и магнитное упорядочение отвечает одна подсистема – упорядочение ионов железа. Природа сегнетоэлектрического состояния в замещенных гексаферритах и композиционных материалах на их основе может быть объяснена нецентросимметричным смещением ионов Fe^{3+} из центров кислородных координаций, что обуславливает формирование ненулевого дипольного момента и, как следствие, спонтанной поляризации. Замещение ионами Al^{3+} в структуре гексаферрита способствует формированию полярных областей за счет привнесения локального искажения структуры.

Действительная часть диэлектрической проницаемости в исходной сегнетоэлектрической фазе BaTiO_3 ($x=1$ на рисунке 12б) также демонстрирует одиночный пик, характерный для фазового перехода сегнетоэлектрик-параэлектрик при температуре ~ 415 К. Ниже этой температуры образцы BaTiO_3 сохраняют тетрагональную перовскитоподобную структуру с пр. гр. $P4/\text{mm}$, а при $T_{\text{FE-PE}}$ происходит структурный переход в пр. гр. $\text{Pm}3\text{m}$ с кубической симметрией. Образцы композиционных материалов демонстрируют два пика на графиках $\epsilon'(T)$ при температурах T_{FE1} и T_{FE2} . Фазовый переход при более низких температурах T_{FE1} связан со структурным фазовым переходом в BaTiO_3 , а более высокотемпературный переход при T_{FE2} соответствует структурному преобразованию в $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$. Для образцов $x=0.75$ и 0.5 значение T_{FE1} почти такое же, как для BaTiO_3 , но для $x=0.25$ значение температуры перехода выше (около 460 К). В этом случае пик очень размыт, поэтому корректное определение T_{FE1} затруднительно. Второй переход также характеризуется довольно широкими пиками и T_{FE2} находится в диапазоне 640-745 К (745 К для $x=0,75$ и 640 К для $x=0,25$). То есть переход к слабой сегнетоэлектрической фазе можно наблюдать при температурах выше T_c . Это поведение требует точного анализа микроструктуры, которое представлено в главе 4.

Вторая часть Главы 4 посвящена исследованию магнитострикционных свойств аморфных микропроводов на основе Co . Они перспективны для использования в качестве компонентов мультиферроидных материалов, при этом связь электрических и магнитных характеристик осуществляется посредством механических напряжений. В этой части работы были исследованы аморфные провода в стеклянной оболочке с малой положительной магнитострикцией для контроля внутренних напряжений в композиционных материалах, действие которых основано на изменении гармонического спектра сигнала электрического напряжения, индуцированного при их перемагничивании.

Аморфная природа микропроводов в исходном виде характеризовалась с помощью дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК). Как видно из рисунка 13, кривая ДСК имеет два хорошо выраженных пика, которые соответствуют процессу кристаллизации. Это указывает, что исходный образец имел аморфное состояние без значительного присутствия кристаллических фаз. Перегиб кривой ДСК, соответствующий температуре Кюри, виден при $364,4^\circ \text{C}$, что характерно для аморфных сплавов на основе Co .

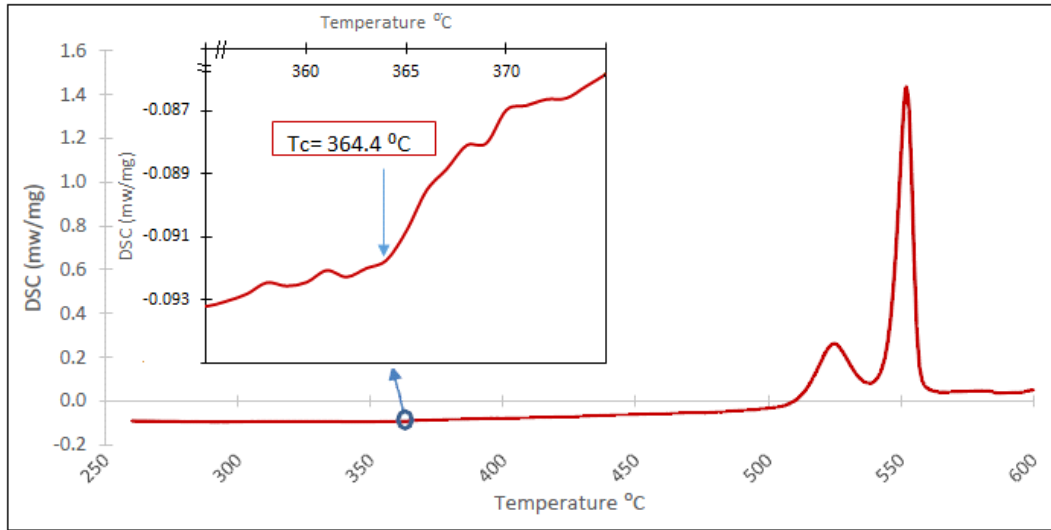


Рисунок 13: Кривая ДСК для исходного провода $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$. На вставке показана точка перегиба кривой ДСК, которая может использоваться для определения температуры Кюри.

Направление намагниченности внутри доменов определяется минимумом энергии (U):

$$U = -K (\mathbf{n}_K \cdot \mathbf{n}_m)^2 - \frac{3}{2} \lambda_s \sigma (\mathbf{n}_\sigma \cdot \mathbf{n}_m)^2 \quad (3)$$

В (3): K – величина усредненной локальной магнитной анизотропии, σ – величина механических напряжений, которая включает в себя остаточное внутреннее напряжение σ_i и внешнее механическое напряжение σ_{ex} , $\mathbf{n}_K$, $\mathbf{n}_m$, $\mathbf{n}_\sigma$ – единичные вектора вдоль оси анизотропии, намагниченности и механического напряжения, соответственно. Из уравнения (3) следует, что для положительных K, λ_s растягивающее напряжение вдоль провода будет усиливать осевую магнитную анизотропию. В этом случае, влияние внешнего механического напряжения не приведет к существенному изменению процесса намагничивания проводов. Ситуация изменяется, если λ_s зависит от σ_{ex} и может изменять знак с положительного на отрицательный при увеличении σ_{ex} , что приведет к резкому изменению кривой намагничивания из-за изменения легкой оси анизотропии: от почти осевой до циркулярной. Такая ситуация может реализоваться в аморфных сплавах на основе Co , имеющих малую константу магнитострикции порядка 10^{-8} . Зависимость магнитострикции от напряжения описывается линейной функцией

$$\lambda_s(\sigma_{ex}) = \lambda_s(0) - B \lambda_s(\sigma_{ex}) \quad (4)$$

где коэффициент B определяется параметрами ближнего порядка и находится в диапазоне $(1-6) \cdot 10^{-10}$ МПа $^{-1}$. Мы попытались измерить изменение магнитострикции насыщения при приложении растягивающего напряжения. Результат показан на рисунке 14.

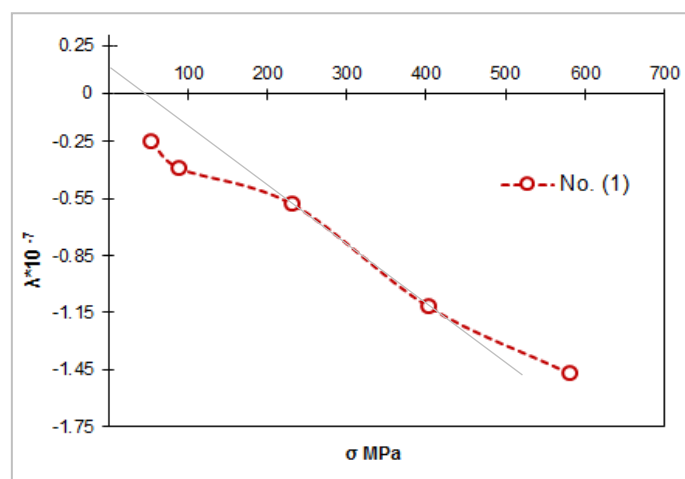


Рисунок 14: Магнитострикция насыщения в зависимости от приложенного напряжения растяжения для исходного провода $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$. Линейная экстраполяция дает λ_s положительную при $\sigma_{ex} = 0$.

Исследование процессов намагничивания показывают, что в исходном состоянии и в отсутствии внешних механических напряжений образец имеет почти прямоугольную петлю гистерезиса с маленькой коэрцитивностью порядка 25 А/м, что обусловлено осевой анизотропией, характерной для проводов с почти нулевым значением константы магнитострикции $\lambda_s > 0$. Под воздействием внешних механических напряжений (σ_{ex}) кривая намагниченности для образца резко меняется и становится наклонной, если $\sigma_{ex} > 300$ МПа (рисунок 15). Это можно объяснить изменением знака константы магнитострикции и изменением магнитной анизотропии с осевой на циркулярную.

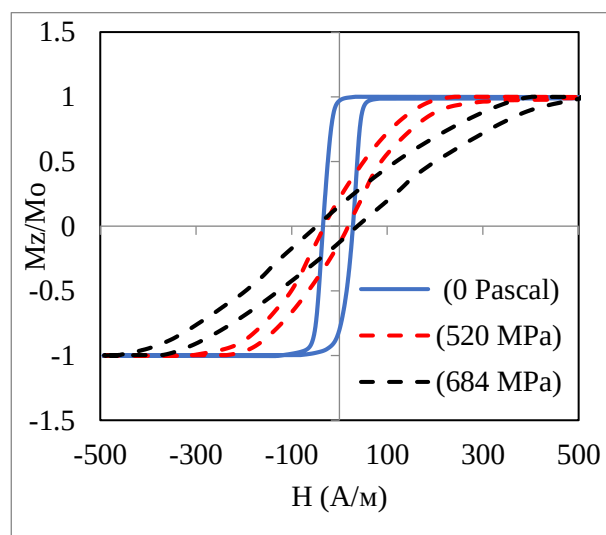


Рисунок 15: Влияние растягивающего напряжения на осевые петли гистерезиса аморфного $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$ микропровода.

Результаты исследования скорости распространения доменной стенки (ДС) вдоль провода также указывают на изменение магнитной анизотропии при приложении достаточно большого напряжения. Как показано на рисунке 16, подвижность доменной стенки первоначально

увеличивается с увеличением напряжения растяжения, что связано с уменьшением осевой анизотропии, вызванной магнитострикционным вкладом. Максимальная скорость, наблюдаемая в этом образце, составляла около 3,4 км/с с подвижностью ДС около $110 \text{ м}^2/\text{А} \cdot \text{с}$.

Когда достигается порог напряжения, который составляет около 255 МПа, анизотропия становится циркулярной, и осевая доменная структура исчезает. При этом напряжении распространение ДС не обнаруживается. Таким образом, продемонстрировано, что доменные процессы в микропроводах могут управляться механическими напряжениями. То есть, если использовать микропровода в составе композитного материала с сегнетоэлектрической фазой, то будет возможным изменять движение доменов электрическим полем посредством пьезоэлектрического эффекта.

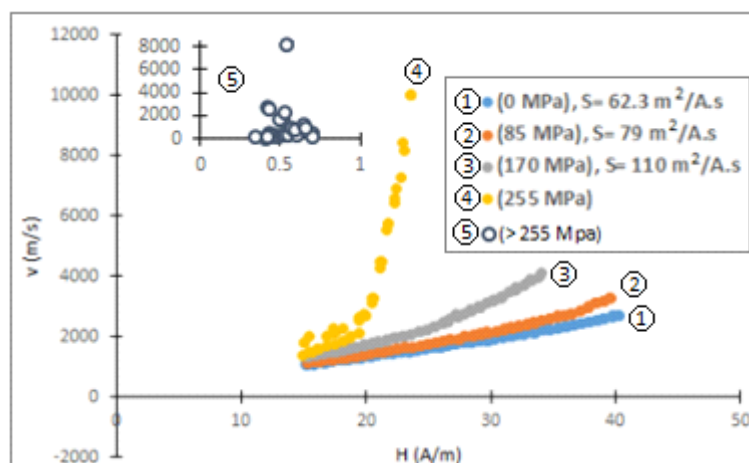


Рисунок 16: Зависимость скорости распространения ДС от магнитного поля $v(H)$ и расчетная подвижность ДС для аморфного $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$ микропровода при различных значениях растягивающего напряжения. График показывает нелинейную зависимость.

Бистабильный микропровод во время перемагничивания генерирует узкий сигнал электрического напряжения, который имеет в своем спектре гармоники высших порядков. Амплитуда этих гармоник зависит от степени нелинейности процессов перемагничивания. В исследуемом образце наблюдаются очень большие изменения в гармоническом спектре под действием механических напряжений, как показано на рисунке 17. Как видно из графика, под действием нагрузки в 485 МПа амплитуда 3-ей гармоники изменяется в 3 раза, амплитуда 5-ой гармоники - в 4 раза. Такое поведение обусловлено изменением типа кривых намагничивания при изменении знака магнитострикции.

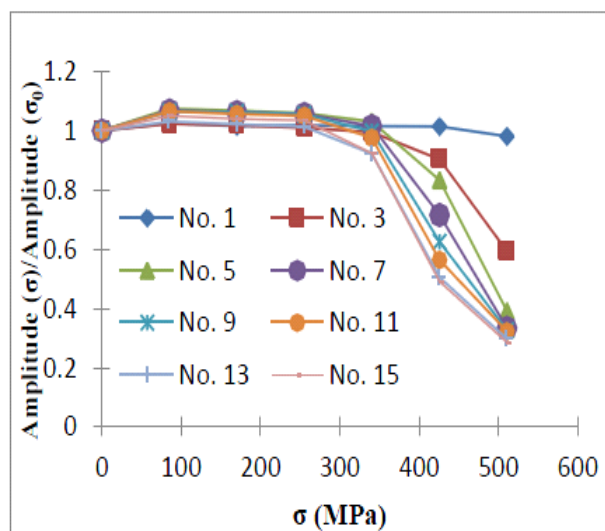


Рисунок 14. Зависимость амплитуда высших гармоник от приложенного растягивающего напряжения

Исследование влияние растягивающего напряжения на процессы намагничивания и генерация высоких гармоник в проводах состава $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$ показали, что амплитуды высших гармоник демонстрируют очень высокую чувствительность к механическим напряжениям из-за изменения преимущественных направлений магнитной анизотропии. Следовательно, подобные провода могут быть внедрены внутри композиционных материалов для контроля внутренних напряжений с дистанционным опросом.

Литература

1. N. Hill. Why are there so few magnetic ferroelectrics // J. Phys. Chem. B., 2000, v.104, p.6694-6709.
2. Y. Tokunaga, Y. Kaneko, D. Okuyama, S. Ishiwata, T. Arima, S. Wakimoto, K. Kakurai, Y. Taguchi, Y. Tokura. Multiferroic M-type hexaferrites with room- temperature conical state and magnetically controllable spin helicity // Phys. Rev. Lett., 2010, v.105, p.257201.
3. C. W. Nan, M. I. Bichurin, S. Dong, D. Viehland, and G. Srinivasan. Multiferroic magnetoelectric composites: Historical perspective, status, and future directions // J.Appl. Phys., 2008, v. 103, p.031101.
4. H. F. Zhang, S. W. Or, and H. L. W. Chan. Multiferroic properties of $\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4\text{--Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ ceramic composites // J. Appl. Phys., 2008, v.104, p.104109.
5. Makhnovskiy D.P., Panina L.V., Field dependent permittivity of composite materials containing ferromagnetic wires // J. Appl. Phys., 2003, v.93, p.4120.
6. D. Makhnovskiy, V. Zamorovskii, J. Summerscales. Embedded ferromagnetic microwires for monitoring tensile stress in polymeric materials // Composites A, 2014, v.61, p.216.
7. M. Bibes, A. Barthelemy. Multiferroics: Towards a magnetoelectric memory // Nat. Mater., 2008, v.7, p.425.
8. M. Bichurin, V. Petrov, S. Priya, A. Bhalla. Multiferroic Magnetoelectric Composites and Their Applications // Advances in Condensed Matter Physics 2012, Article ID 129794.

9. X Wang, Q Li, Z Su, W Gong, R Gong, Y Chen, VG Harris. Enhanced microwave absorption of multiferroic Co_2Z hexaferrite– BaTiO_3 composites with tunable impedance matching // *J. Alloys and Compounds*, 2015, v.643, p.111.
10. T. Kimura. Annu. Spiral Magnets as Magnetoelectrics // *Rev. Mater. Res.*, 2007, v.37, p.387.
11. P. Novák, K. Knizek. Magnetism in the magnetoelectric hexaferrite system $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ // *J. Rusz. Phys. Rev. B*, 2007, v.76, p.024432.
12. T. Kimura. Magnetoelectric Hexaferrites // *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 2012, v.3, p.93.
13. J. Ma, J. Hu, Z. Li, Ce-Wen Nan. Recent Progress in Multiferroic Magnetoelectric Composites: from Bulk to Thin Films // *Adv. Mater.*, 2011, v.23, p.1062.
14. D. V. Karpinsky, R. C. Pullar, Y. K. Fetisov, K. E. Kamentsev, A. L. Kholkin. Local probing of magnetoelectric coupling in multiferroic composites of $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ – BaTiO_3 // *J. Appl. Phys.*, 2010, v.108, p.042012.
15. H. Katsura, N. Nagaosa, A. V. Balatsky. Spin Current and Magnetoelectric Effect in Noncollinear Magnets // *Phys. Rev. Lett.*, 2005, v.95, p.057205.
16. S. Ishiwata, Y. Taguchi, H. Murakawa, Y. Onose, Y. Tokura. Low-magnetic-field control of electric polarization vector in a helimagnet // *Science*, 2008, v.319, p.1643.
17. Y. Kitagawa, Y. Hiraoka, T. Honda, T. Ishikura, H. Nakamura, T. Kimura. Low-field magnetoelectric effect at room temperature // *Nat. Mater.*, 2010, v.9, p.797-802.
18. G. Tan, X. Chen, Structure and multiferroic properties of barium hexaferrite ceramics // *J. Magn. Magn. Mater.*, 2013, v.327, p.87-90.
19. G.-L. Tan, W. Li, Ferroelectricity and ferromagnetism of M-type lead hexaferrite // *J. Am. Ceram. Soc.*, 2015, v.98, p.1812-1817.
20. V.G. Kostishyn, L.V. Panina, A.V. Timofeev, L.V. Kozhitov, A.N. Kovalev, A.K. Zyuzin, Dual ferroic properties of hexagonal ferrite ceramics $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ and $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ // *J. Magn. Magn. Mater.*, 2016, v.400, p.327-332.
21. Wang P., Xiang H., Room-Temperature Ferrimagnet with Frustrated Antiferroelectricity: Promising Candidate Toward Multiple-State Memory // *Phys. Rev.*, 2014, X4, p.011035.
22. D.C. Jiles, J.B. Thoenle. Theoretical modelling of the effects of anisotropy and stress on the magnetization and magnetostriction of $\text{Tb}_{0.3}\text{Dy}_{0.7}\text{Fe}_2$ // *J. Magn. Magn. Mat.*, 1994, v.134, p.143-160
23. T. Tsutaoka, N. Koga Magnetic phase transitions in substituted barium ferrites $\text{BaFe}_{12-x}(\text{Ti}_{0.5}\text{Co}_{0.5})_x\text{O}_{19}$ ($x=0-5$) // *J. Magn. Magn. Mat.*, 2013, v.325, p.36.
24. B.T. Shirk, W.R. Buessem, Temperature Dependence of M_s and K_1 of $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ and $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ Single Crystals // *J. Appl. Phys.*, 1969, v.40, p.1294.
25. G. Herzer, S. Flohrer, C. Polak, Effect of Stress Annealing on the Saturation Magnetostriction of Nanocrystalline $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$ // *IEEE Trans. Magn.*, 2010, v.46, No.2, p.341-344.
26. A. Zhukov, M. Churyukanova, S. Kaloshkin, V. Sudarchikova, S. Gudoshnikov, M. Ipatov, A. Talaat, J. M. Blanco, V. Zhukova, Magnetostriction of Co–Fe–Based Amorphous Soft Magnetic Microwires // *J. Electronic Materials*, 2016, v.45, No.1, P.226-234.
27. H.M. Rietveld, A profile refinement method for nuclear and magnetic structures // *Journal of Applied Crystallography*, 1969, v.2, p.65.
28. A.V. Ulitovskii, Author certification, USSR patent, No. 128427, (1950), 3.9.
29. A. Zhukov, J. Gonzalez, J. M. Blanco, M. J. Prieto, E. Pina, and M. Vázquez, Induced magnetic anisotropy in Co–Mn–Si–B amorphous microwires // *J. Appl. Phys.*, 2000, v.87, p.1402–1408.

ВЫВОДЫ

Представленная диссертационная работа развивает существующие представления о структурных, электрических и магнитных свойствах сложных оксидов на основе гексаферрита бария с точки зрения формирования мультиферроидных свойств- сосуществования электрического и магнитного порядков - и сильного взаимодействия между ними. В работе также исследуются магнитострикционные свойства аморфных микропроводов на основе Со, которые также могут использоваться в составе функциональных композитных материалов, в которых возможно управление магнитными свойствами с помощью электрического.

Основные результаты, полученные в работе, заключаются в следующем.

1. Проведены детальные структурные исследования керамических образцов гексаферрита бария с диамагнитным замещением $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ ($0,1 \leq x \leq 1,2$), полученные с помощью рентгеноструктурного и нейтронографического анализов, которые позволили определить температурные зависимости параметров кристаллической решетки и сделать вывод о возможности описания объектов исследований нецентросимметричной полярной пр. гр. $R\bar{6}_3mc$.
2. С помощью нейтронографических исследований было установлено, что формирование сегнетоэлектрического состояния в коллинеарных гексаферритах Ва обусловлено сосуществованием двух пространственных групп: центросимметричной неполярной фазы с пространственной группой $R\bar{6}_3/mmc$ и нецентросимметричной полярной фазы с пространственной группой $R\bar{6}_3mc$. Наличие полярной фазы обусловлено нецентросимметричным смещением ионов Fe^{3+} в кислородных октаэдрах - 12k, что было установлено с помощью расчетов длин связей Fe-O.
3. Магнитная структура исследовалась с помощью Мессбауэровской спектроскопии и было установлено, что диамагнитные ионы алюминия при малых концентрациях распределяются в 2b-позиции, что приводит к ослаблению обменных связей $\text{Fe}^{3+}(2b)\text{-O-Fe}^{3+}(12k)$ и $\text{Fe}^{3+}(2b)\text{-O-Fe}^{3+}(2a)$ за счет фрустрации магнитной структуры при ослаблении дальнего порядка обменных взаимодействий. При увеличении концентрации ионов алюминия отмечено распределение диамагнитных ионов в позиции 12k.
4. Было установлено, что электрическая поляризация в замещенных гексаферритах $\text{BaFe}_{12-x}\text{Al}_x\text{O}_{19}$ возрастает с увеличением концентрации катионов Al, а намагниченность насыщения- уменьшается. При этом происходит усиление магнитоэлектрического эффекта, что выражается в увеличении намагниченности насыщения и остаточной

намагниченности в присутствии электрического поля. Это объясняется увеличением степени поляризации локальных спинов Fe^{3+} при добавлении в систему энергии электрического поля.

5. Было исследовано температурное поведение диэлектрической проницаемости композиционных материалов $(\text{BaTiO}_3)_x - (\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1). Эта зависимость характеризуется двумя пиками, которые соответствуют структурным переходам в неполярные фазы. Пики при более низкой температуре (410-430 K) соответствуют структурному переходу фазы BaTiO_3 , а пики при высокой температуре (640-745 K) – $\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19}$.
6. Было продемонстрировано, что морфология и микроструктура композиционных материалов $(\text{BaTiO}_3)_x - (\text{BaFe}_{11.9}\text{Al}_{0.1}\text{O}_{19})_{1-x}$ ($x=0; 0.25; 0.5; 0.75$ и 1) влияют на величины диэлектрической проницаемости, коэрцитивности и магнитной анизотропии.
7. Было исследовано влияние механических напряжений на процессы намагничивания и динамику доменных границ в аморфных микропроводах состава $\text{Co}_{71}\text{Fe}_5\text{B}_{11}\text{Si}_{10}\text{Cr}_3$ с малой положительной константой магнитострикции. В таких системах возможно изменение знака магнитострикции под действием напряжений, в силу чего происходит резкое изменение типа магнитного гистерезиса (с прямоугольного на наклонный) и подвижности доменных границ. Амплитуды высших гармоник сигнала электрического напряжения, возникающего при перемагничивании микропроводов, оказываются также очень чувствительны к воздействию механических напряжений. Стресс-чувствительные ферромагнитные микропровода предложены для использования в качестве элементов магнитоэлектрических мультиферроидных композитных материалов с передаточным механизмом посредством пьезоэлектрического эффекта.

ПУБЛИКАЦИИ ПО ДИССЕРТАЦИОННОЙ РАБОТЕ

Публикации в изданиях, рекомендованных ВАК РФ и входящих в базу данных WOS

- 1- А.В. Труханов, С.В. Труханов, В.Г. Костишин, Л.В. Панина, **М.М. Салем**, И.С. Казакевич, В.А. Турченко, В.В. Кочервинский, Мультиферроидные свойства и структурные особенности ал-замещенных гексаферритов бария m-типа // Физика твердого тела, 2017, том 59, вып. 4, 721
- 2- M.M. Salem, M.G. Nematov, A. Uddin, L.V. Panina, M.N. Churyukanova and A. T. Marchenko. CoFe-microwires with stress-dependent magnetostriction as embedded sensing elements // IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. Series, 2017, v.903, p.012007.

- 3- A. V. Trukhanov, S. V. Trukhanov, V. G. Kostishin, L. V. Panina, **M. M. Salem**, I. S. Kazakevich, V. A. Turchenko, V. V. Kochervinskii, and D. A. Krivchenya, Multiferroic properties and structural features of m-type al-substituted barium hexaferrites// *Physics of the Solid State*, 2017, v.59, No.4, p.99–107.
- 4- A. V. Trukhanov, L. V. Panina, S. V. Trukhanov, V. O. Turchenko, I. S. Kazakevich, **M. M. Salem**, Features of crystal structure and magnetic properties of M-type Ba-hexaferrites with diamagnetic substitution// *International Journal of Materials Chemistry and Physics*, 2015, v.1, No.3, p. 286-294.
- 5- **Mohamed M. Salem**, Alexander T. Morchenko, Larissa V. Panina, Vladimir G. Kostishyn, Valery G. Andreev, Sergey B. Bibikov, and Alexey N. Nikolaev, Dielectric and magnetic properties of two-phase composite system: Mn-Zn or Ni-Zn ferrites in dielectric matrices // *Physics Procedia*, 2015, v.75, p.1360–1369.
- 6- Alex Trukhanov, Larisa Panina, Sergei Trukhanov, Vitalii Turchenko, **Mohamed Salem** Evolution of structure and physical properties in Al-substituted Ba-hexaferrites // *Chin. Phys. B*, 2016, v.25, No.1, p.016102.
- 7- A.V. Trukhanov, S.V. Trukhanov, L.V. Panina, V.G. Kostishyn, I.S. Kazakevich, An.V. Trukhanov, E.L. Trukhanova, V.O. Natarov, V.A. Turchenko, **M.M. Salem**, A.M. Balagurov. Evolution of structure and magnetic properties for BaFe_{11.9}Al_{0.1}O₁₉ hexaferrite in a wide temperature range // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2017, v.426, p.487–496.
- 8- O.M. Hemeda, K.R. Mahmoud, T. Sharshar, **M. Elsheshtawy**, Mahmoud A. Hamad, ESR, thermoelectrical and positron annihilation doppler broadening studies of CuZnFe₂O₄-BaTiO₃ composite // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2017, v.429, p.124–128.
- 9- Alex V. Trukhanov, Sergei V. Trukhanov, Larisa V. Panina, Vladimir G. Kostishyn, Denis N. Chitanov, Il'ya S. Kazakevich, Andrei V. Trukhanov, Vitalii A. Turchenko, **Mohamed M. Salem**, Strong correlation between magnetic and electrical subsystems in diamagnetically substituted hexaferrites ceramics // *Ceramics International*, 2017, v.43, p.5635–5641.
- 10- Trukhanov, S.V., Trukhanov, A. V., Turchenko, V.A., Trukhanov, An V., Trukhanova, E.L., Tishkevich, D.I., Ivanov, V.M., Zubar, T.I., **Salem, M.**, Kostishyn, V.G., Panina, L.V., Vinnik, D.A., Gudkova, S.A., Polarization origin and iron positions in indium doped barium hexaferrites // *Ceramics International*, 2018, v.44, p.290–300.

Публикации в других изданиях и сборниках трудов научных конференций

- 1- **Салем Мохамед Мостафа**, Нематов Максудшо Гайратович, Уддин Азим, Подгорная Светлана Владимировна, Панина Лариса Владимировна, Морченко Александр Тимофеевич, Использование аморфных ферромагнитных микропроводов в качестве встроенных сенсоров механических напряжений в функциональных материалах // *Известия Национальной академии наук Беларуси. Серия физико-технических наук*; 2016, № 3 ,p.98-104
- 2- **M. M. Salem**, M. G. Nematov, A. Uddin, L. V. Panina, A. T. Morchenko, Stress-sensitive magnetization process in amorphous glass-coated microwires for embedded sensor applications // *Advances in Functional Materials International Conference 2016 ICC*, Jeju Island, S. Korea from 8th to 11th August, 2016. Pages 61-62
- 3- **M.M. Salem**, M.G. Nematov, A. Uddin, M.N.Churyukanova, L.V. Panina and A. T. Marchenko, CoFe-microwires with stress-dependent magnetostriction as embedded sensing elements // *The 8th Joint European Magnetic Symposia (JEMS 2016)* 21 – 26 August 2016, Glasgow, UK. Page 549

- 4- Морченко А.Т., Костишин В.Г., Панина Л.В., **Салем М.М.Э.**, Андреев В.Г., Бибииков С.Б., Вергазов Р.М., Астахов В.А., Шакирзянов Р.И., Применение моделей эффективной среды к композиционным материалам на основе ферритовых порошков и диэлектриков: теория и эксперимент // Шестая Международная Конференция Кристаллофизика И Деформационное Поведение Перспективных МАТЕРИАЛОВ 26 – 28 мая 2015 г. Москва с. 218
- 5- **Salem Mohamed Mostafa**, Nematov Makhsudsho Gayratovich, Udin Azim, Podgornaya Svetlana Vladimirovna, Panina Larissa Vladimirovna, Morchenko Alexander Timofeevich
Magnetic amorphous microwires as embedded stress sensors in functional materials// XII Международной научной конференции молодых ученых Молодежь в науке 1-4 декабря - 2015 Page 29
- 6- А.В. Труханов, В.А. Турченко, **М.М. Салем**, Л.В. Панина, И.С. Казакевич., Гексаферриты $\text{BaFe}_{12-x}\text{D}_x\text{O}_{19}$ (D-диамагнитный ион) как перспективные материалы с мультиферроидными свойствами // Young Eurasian Scientist Forum Minsk, 1-4 December 2015 page 8.