



**ESTUDIO DE LA INFLUENCIA DE LA ANISOTROPÍA UNIAxIAL EN LAS CURVAS DE MAGNETIZACIÓN DEL  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$**

**F. Jiménez<sup>1</sup>, G. J. Bracho<sup>2</sup> y J. C. Garrido<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Universidad de Panamá, Escuela de Física. <sup>2</sup>Universidad de Panamá, Depto. de Física.

E-mail: fjspang@yahoo.com

**RESUMEN**

Se estudió la influencia que tiene la anisotropía uniaxial en las curvas de magnetización de la aleación  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  con ayuda de un modelo que toma en cuenta términos de corrección para la función de partición en el límite de alta anisotropía y granos alineados. El resultado es una suma de términos en los cuales el primero de ellos es la función de Brillouin del paramagnetismo cuántico. Se hace una comparación de nuestras curvas de magnetización ajustadas con otras, obtenidas en la literatura, en donde se considera la influencia de la distribución de momentos magnéticos y se observa una concordancia adecuada. Se llega a la conclusión de que la anisotropía uniaxial es lo suficientemente predominante como para considerar únicamente sus efectos sobre el sistema.

**PALABRAS CLAVES**

Superparamagnetismo, anisotropía uniaxial, ejes fáciles, aleación  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ .

**ABSTRACT**

We studied the influence of uniaxial anisotropy on the magnetization curves of a  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  alloy by means of a model that is developed taking into account correction terms for the partition function in the limit of large anisotropy and aligned grains. This result is a sum of terms where the first term is the Brillouin function of quantum paramagnetism. Fitting of our curves to the discussed model was compared with another model that considers the influence of the distribution of magnetic moments and we observe a good agreement. We show that the uniaxial anisotropy is enough to consider its effects on the system.

## KEYWORDS

Superparamagnetism, uniaxial anisotropy, easy axis, Co<sub>10</sub>Cu<sub>90</sub> alloy.

## INTRODUCCIÓN

La aleación de Co<sub>10</sub>Cu<sub>90</sub> ha atraído mucho la atención de investigadores en los últimos años debido a sus interesantes propiedades magnéticas (Williams et al., 1993; Miranda et al., 1998). Recientemente se presentó un estudio de la dependencia que tiene la magnetorresistencia de la magnetización utilizando un modelo que toma en cuenta únicamente la distribución de los granos magnéticos. Por otro lado, mediciones de resistividad eléctrica para el Co<sub>10</sub>Cu<sub>90</sub> (Miranda et al., 1998) mostraron claramente cambios estructurales dependientes del tratamiento térmico al cual fue sometida la aleación. Estos cambios estructurales están muy relacionados con la respuesta magnética de la aleación y por tanto con su magnetización. Lejos de realizar un estudio que tome en cuenta la influencia de la distribución de granos magnéticos, podemos estudiar el sistema considerando únicamente la influencia que tiene la anisotropía uniaxial.

En este trabajo consideramos un sistema lo suficientemente diluido como para ignorar cualquier interacción magnética entre las partículas. En este caso, el sistema se constituye de un gran número de nanopartículas idénticas cada una con un momento magnético  $\mu$ , volumen  $V$ , y con todos sus ejes de simetría alineados unos con otros. El tamaño de estas partículas depende del material en particular y del método de preparación. Usualmente partículas de tamaño del orden de los nanómetros consisten de monodominios.

Para tal sistema de partículas dispersadas en una matriz sólida no-magnética, la anisotropía magnética intrínseca determina las propiedades magnéticas de éstas, dado que en el estado sólido las partículas permanecen prácticamente “congeladas” en sus posiciones, mientras que los momentos magnéticos de éstas quedan totalmente libres. Esta anisotropía introduce, principalmente, una barrera de energía que el momento magnético de la partícula debe vencer para cambiar de un estado de equilibrio a otro. Si la barrera de energía es pequeña, las rotaciones del momento magnético están caracterizadas, térmicamente, por un tiempo de relajamiento  $\tau$ . Si  $\tau$  es mucho menor que el tiempo necesario para realizar una medición magnética,  $t_m$ , el sistema es superparamagnético.

Debido a que, por un lado, el momento magnético fluctúa muchas veces durante el tiempo de medición, por efecto de la energía térmica para pequeñas partículas; y por el otro, los momentos se encuentran en un estado “*bloqueado*” o estable debido a la barrera de energía de anisotropía para partículas mayores, es conveniente introducir una temperatura crítica llamada temperatura de bloqueo  $T_B$  entre estos estados, la cual depende de la constante de anisotropía  $K$ , el volumen de la partícula  $V$ , y el tiempo de medición  $t_m$ . Para un valor típico de  $t_m = 100$  s,  $T_B$  es  $KV/25k_B$ .

Las propiedades magnéticas en un sólido son dependientes de la distribución de ejes fáciles (Raikher 1983) del sistema. Si el sistema se enfría en ausencia de un campo magnético, se espera un alineamiento aleatorio de los ejes fáciles de las partículas (Mamiya & Nakatani 1998); en cambio, si el sistema es enfriado en presencia de un campo magnético, se espera un alineamiento preferencial de éstos.

Recientemente, P.J. Cregg y L. Besáis (Cregg & Bessais 1999) demostraron cómo la función de partición de un sistema superparamagnético con anisotropía uniaxial puede ser reducida a una única integral. En general, encuentran fórmulas analíticas de la función de partición que pueden ser utilizadas fácilmente para calcular la magnetización.

En este artículo estudiamos las curvas de magnetización (Miranda et al., 1998) de la aleación  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ , a temperaturas específicas, considerando únicamente la anisotropía uniaxial en el límite cuando  $\alpha = KV/k_B T \rightarrow \infty$  (donde  $K$  es la constante de anisotropía,  $V$  el volumen y  $k_B$  es la constante de Boltzmann) y ejes fáciles alineados, en la expresión para la función de partición obtenida en la literatura (Cregg & Bessais 1999) con algunos términos de corrección (Garanin 1996).

## **CURVAS DE MAGNETIZACIÓN Y MODELO**

Las muestras fueron producidas en el Instituto Elettrotecnico Nazionale Galileo Ferraris (Torino, Italia), utilizando una técnica llamada *melt spinning* en donde se derrite la muestra a una atmósfera controlada (de argón) y se dispara hacia una rueda giratoria a 2000 rpm. El material derretido se refresca rápidamente y se recoge en forma de cintas delgadas de aproximadamente 20  $\mu\text{m}$  de espesor. Las tasas de calentamiento de este proceso fueron del orden de  $10^6$  K/s. Estas muestras fueron parte de un estudio realizado por Baibich et al.(1999).

Las curvas de magnetización para el  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$  han sido estudiadas para altos campos en un estudio anterior (Baibich et al., 1999); y se observó que incluso para campos suficientemente elevados, aún las muestras indicaban claramente un comportamiento superparamagnético. En la Fig. 1 se observan las curvas medidas a temperatura ambiente, las cuales muestran un claro comportamiento superparamagnético.

El rango de temperatura de tratamiento térmico para las cuatro muestras (excepto la muestra **a**) estuvo entre  $400\text{ }^{\circ}\text{C}$  y  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ . La tasa de calentamiento fue distinta para cada muestra estudiada, y con una temperatura final diferente. De esta manera, las mediciones de resistividad (Miranda et al., 1998) muestran claramente cambios estructurales que, en primera instancia, son dependientes de la tasa de calentamiento. Las muestras se mantuvieron a la temperatura final correspondiente por espacio de una hora y luego se enfriaron en ausencia del campo magnético.

Al comparar la muestra sin tratamiento tomada como referencia (muestra **a**) con las demás, se observa que el tratamiento influye sobre la respuesta magnética del sistema. Por otro lado, las curvas **d** y **e** exhiben una tendencia a la saturación, producto de una aparente y pequeña contribución ferromagnética que puede tener como causa principal la tasa de calentamiento, más que una respuesta a las altas temperaturas.

Debido a la respuesta magnética observada en estas curvas, podemos asumir un alineamiento de los ejes fáciles de las partículas con el campo magnético.

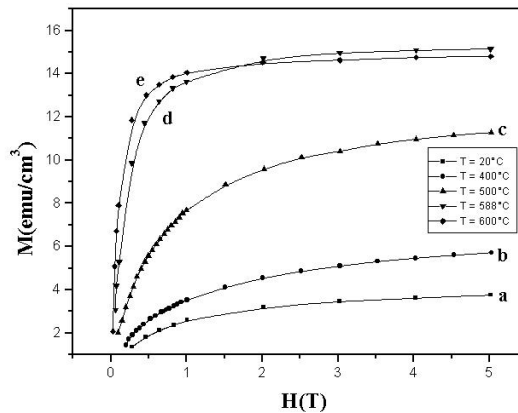


Fig. 1. Magnetización de las diferentes muestras con su correspondiente tasa de calentamiento  $\phi$  y temperatura final  $T$ . Las tasas de calentamiento fueron (desde la muestra **b** hasta la **e**):  $\phi = 7,9^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ;  $5,4^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ;  $5,7^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ;  $2,5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , respectivamente (Baibich et al., 1999).

Para un sistema superparamagnético con anisotropía uniaxial la función de partición puede ser expresada por una única integral de la forma (Cregg & Bessais 1999).

$$Z = \int_0^{\pi/2} \exp(-\alpha \sin^2 \vartheta) \cosh(\beta \cos \vartheta \cos \psi) I_0(\beta \sin \vartheta \sin \psi) \sin \vartheta d\vartheta \quad (1)$$

donde  $\beta = \mu H/k_B T$ ,  $\vartheta$  y  $\psi$  son los ángulos que forman el momento magnético y el campo magnético con el eje de magnetización fácil mostrado en la Fig. 2.

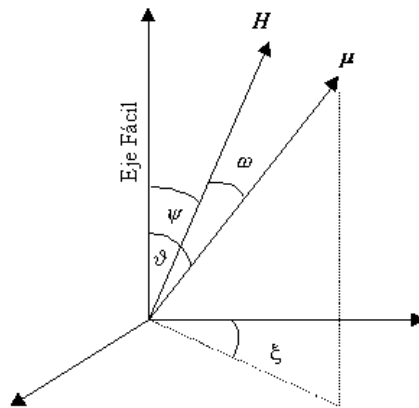


Fig. 2. Sistema coordenado utilizado para representar el campo  $H$  y el momento  $\mu$  de la partícula magnética (Chantrell et al., 1985).

Para ejes fáciles alineados con el campo tenemos que  $\psi = 0$ ,  $\cos \psi = 1$  y  $\sin \psi = 0$ , y la función de partición queda expresada por

$$Z = \int_0^{\pi/2} \exp(-\alpha \sin^2 \vartheta) \cosh(\beta \cos \vartheta) \sin \vartheta d\vartheta \quad (2)$$

En general, la magnetización puede ser calculada a partir del valor esperado del  $\cos \omega$ ,  $\langle \cos \omega \rangle$ , donde, en la Fig. 2,  $\omega$  representa el ángulo entre el momento de cada partícula  $\mu$  y el campo  $H$  (Cregg & Bessais 1999), es decir

$$\begin{aligned} M(\beta, \alpha, \varphi) &= M_s \langle \cos \omega \rangle \\ &= \frac{M_s}{Z} \frac{\partial Z}{\partial \beta}. \end{aligned} \quad (3)$$

En el límite cuando  $\alpha \rightarrow \infty$  y  $\psi = 0$ , la magnetización puede ser expresada hasta primer orden por (Cregg & Bessais 1999).

$$\frac{M(\beta, \alpha \rightarrow \infty)}{M_s} = \tanh \beta, \quad (4)$$

lo cual está de acuerdo con la función de Brillouin para el paramagnetismo cuántico (Chantrell et al., 1985). Esto concuerda claramente con el hecho de que al considerar alta anisotropía los momentos magnéticos tienden a permanecer alineados con sus ejes fáciles, y se espera un comportamiento discreto de los momentos magnéticos.

Por otro lado, se pueden añadir términos de corrección en la Ec. (4) considerando la función de partición como dos contribuciones debido a los pozos de potencial en la barrera de energía (Garanin 1996) esto es

$$\frac{M}{M_s} = \tanh \beta - \frac{1}{2\alpha} \left( \frac{\beta}{\cosh^2 \beta} + \tanh \beta \right) + \frac{\beta}{(2\alpha)^2}. \quad (5)$$

## RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Con el fin de ajustar las curvas de magnetización, la Ec. (5) se implementó en un programa elaborado en FORTRAN 90 utilizando el método para modelos no-lineales de Levenberg – Marquadt (Teukolsky et al., 1997).

Los parámetros de ajuste para las curvas fueron  $\alpha$  dado por la relación adimensional  $KV/k_B T$ , la magnetización de saturación  $M_s$ , el momento magnético promedio  $\langle \mu \rangle$  y el número de partículas magnéticas  $N$ .

En la Fig. 3 se muestra cómo el modelo utilizado se ajusta satisfactoriamente, principalmente para campos superiores.

En la Fig. 4 podemos observar como el momento magnético promedio  $\langle \mu \rangle$  disminuye en comparación a la muestra **a**. Es de esperarse un aumento en  $\langle \mu \rangle$ , pero en cambio se presenta lo contrario. Esto se puede deber a la rapidez con que se llegó a la temperatura final de la muestra. La formación de mayores dominios se ve inhibida por la rapidez de la tasa de calentamiento.

Se observa que se requiere un mayor campo para saturar la muestra a esta temperatura debido a la fuerte energía de anisotropía. La barrera de energía de anisotropía causa el fenómeno de bloqueo en los momentos, inhibiendo la saturación.

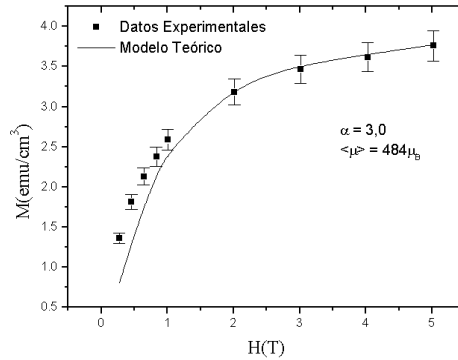


Fig. 3. Magnetización  $M$  versus el campo  $H$  para la muestra **a**. Ajustada según la relación (5). Las barras de error se calcularon a  $\pm 5\%$ .

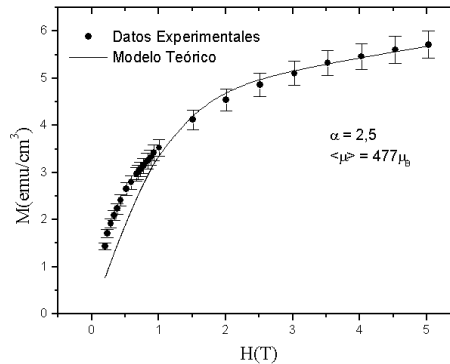


Fig. 4. Magnetización  $M$  versus el campo  $H$  para la muestra **b**. Ajustada según la relación (5). Las barras de error se calcularon a  $\pm 5\%$ .

En la Fig. 5 vemos un ligero aumento en  $\langle \mu \rangle$  lo que sugiere una mayor respuesta magnética del sistema. Se puede asumir que los ejes fáciles de las partículas tienden a alinearse con el campo provocando un aumento en  $\langle \mu \rangle$ . Al igual vemos un aumento en  $\alpha$  lo que se puede explicar observando que los ejes fáciles deben tender a alinearse con el campo para que se dé el aumento correspondiente en  $\langle \mu \rangle$ . La

anisotropía aumenta, pero el alineamiento de los ejes fáciles de las partículas contribuye, efectivamente, a que aumente el momento magnético.

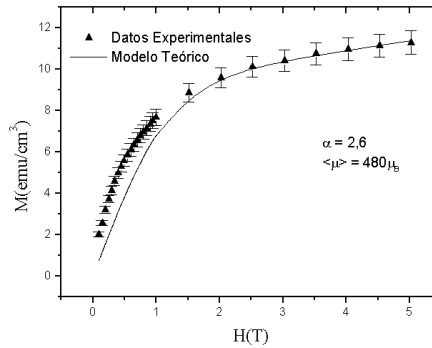


Fig. 5. Magnetización  $M$  versus el campo  $H$  para la muestra **c**. Ajustada según la relación (5). Las barras de error se calcularon a  $\pm 5\%$ .

Las curvas **d** y **e** en las Figs. 6 y 7 respectivamente, muestran un aumento significativo en su respuesta magnética que se revela en un incremento representativo tanto en el valor de  $\langle \mu \rangle$  como en  $\alpha$ .

Es interesante notar la tendencia de estas curvas a la saturación. Este comportamiento se justifica si se considera, por un lado, un aumento de los dominios y, por el otro, un alineamiento parcial de los ejes fáciles con el campo, lo que motiva que el sistema tenga cada vez una mayor respuesta magnética.

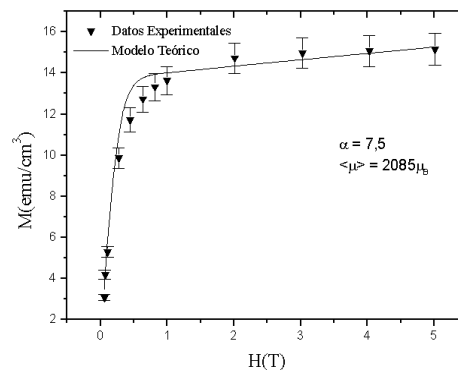


Fig. 6. Magnetización  $M$  versus el campo  $H$  para la muestra **d**. Ajustada según la relación (5). Las barras de error se calcularon a  $\pm 5\%$ .



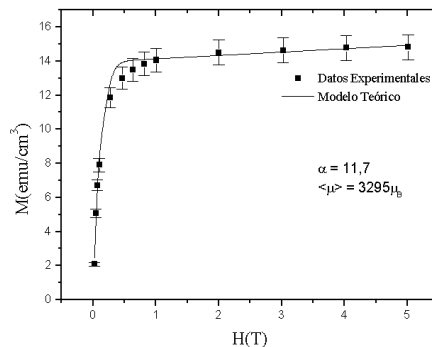


Fig. 7. Magnetización  $M$  versus el campo  $H$  para la muestra e. Ajustada según la relación (5). Las barras de error se calcularon a  $\pm 5\%$ .

Es de esperarse que un aumento en el parámetro  $\alpha$  cause el fenómeno de bloqueo de los momentos magnéticos de las partículas y que a la vez inhiba la saturación de las curvas, pero se observa todo lo contrario ya que al estar los ejes fáciles de las partículas alineados con el campo la respuesta magnética aumenta. En este caso la anisotropía favorece la saturación de las curvas.

Notamos que para las tres primeras curvas el modelo no se ajusta dentro del 5% de error con los datos experimentales a bajos campos. Se observa un ligero corrimiento horizontal en el ajuste guardando la misma forma de crecimiento. Esto puede deberse a efectos magnéticos de segundo orden que desaparecen a campos intensos.

Por otro lado, se aprecia que el modelo utilizado describe muy bien el comportamiento de estas curvas, lo que indica que la suposición de ejes fáciles alineados con el campo está de acuerdo con el aumento de anisotropía y los aumentos en la respuesta magnética del sistema.

En el Cuadro No. 1 comparamos nuestros resultados con los obtenidos de un estudio de la dependencia de la magneto-resistencia con la magnetización (Miranda et al., 1998) que contiene valores de  $\langle \mu \rangle$  y de  $M_s$  para las muestras **a**, **b** y **c** utilizando un modelo específico (Ferrari et al., 1997). Estos resultados se presentan a la izquierda de los obtenidos en nuestra investigación colocados a la derecha. Se observa una concordancia relativamente buena entre ambos bajo la consideración de temperaturas más bajas de cerca de 500 °C.

Cuadro No. 1. Parámetros calculados mediante la Ec. (5).  $\langle\mu\rangle$  es el momento magnético promedio,  $M_s$  es la magnetización de saturación y  $\alpha$  es un parámetro adimensional dado por  $KV/k_B T$ .

Muestras	$\alpha$	$\langle\mu\rangle(\mu_B)$		$M_s$ (emu/cm <sup>3</sup> )		$N$ (10 <sup>17</sup> /cm <sup>3</sup> )	
<b>a</b>	<b>3,0</b>	475	<b>484</b>	3,93	<b>3,81</b>	8,90	<b>8,50</b>
<b>b</b>	<b>2,5</b>	406	<b>477</b>	4,39	<b>5,56</b>	11,60	<b>12,58</b>
<b>c</b>	<b>2,6</b>	479	<b>480</b>	14,09	<b>11,21</b>	31,70	<b>25,20</b>
<b>d</b>	<b>7,5</b>	2992	<b>2085</b>	16,14	<b>14,68</b>	6,20	<b>7,60</b>
<b>e</b>	<b>11,7</b>	8760	<b>3295</b>	14,50	<b>14,54</b>	1,80	<b>4,76</b>

A fin de comprender los cambios ocurridos en las muestras estudiadas es conveniente analizar los parámetros presentados en el Cuadro No. 1. Se observa en la muestra **b** un aumento en el número de granos magnéticos, en comparación a la muestra de referencia **a**, que se debe al tratamiento térmico. Una ligera disminución en el momento magnético medio se debe a la tasa de calentamiento que actúa inhibiendo la formación de dominios mayores. Para la muestra **c** se observa un aumento representativo en el número de granos magnéticos, pero un momento magnético casi constante. Una apreciable diferencia de temperaturas entre las muestras **b** y **c** no altera en gran manera el momento magnético puesto que en estas dos etapas es más predominante la tasa de calentamiento. Al analizar la muestra **d** vemos un considerable aumento en el momento magnético y una correspondiente disminución en el número de granos. Concluimos que en esta etapa los dominios magnéticos aumentan de tamaño y de esta forma la respuesta magnética del sistema se hace mayor. Para la muestra **e**, una disminución en el número de granos magnéticos y un correspondiente aumento del momento magnético medio sugiere que se alcanza el límite de todos los átomos de cobalto que contribuyen a la magnetización.

Algunos autores (Ferrari et al., 1997) han presentado modelos de comportamiento del momento magnético promedio y de la magnetización versus la temperatura, pero que incluyen la distribución de tamaños y que podemos comparar con el utilizado por nosotros tal como lo hacemos en la Fig. 8. Se observa que en un amplio rango de temperatura más allá de los 500 °C existe una similitud bastante aceptable, lo que podría sugerir la influencia en los ajustes debido a los tamaños.

Para ilustrar mejor esta información, vemos en la Fig. 9 el comportamiento de la magnetización de saturación en función de la temperatura de tratamiento térmico para ambos modelos. En ella se indica un claro aumento de la respuesta magnética en función del tratamiento térmico a que fueron sometidas las muestras.

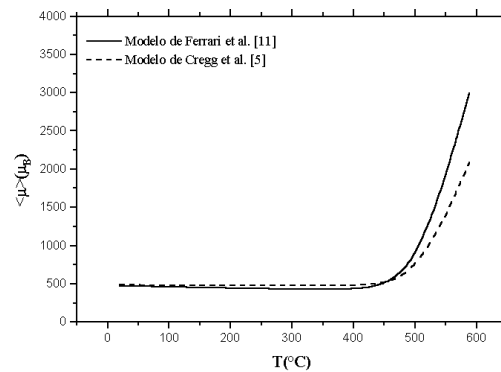


Fig. 8. Comparación del comportamiento del momento magnético medio en función de la temperatura de tratamiento térmico.

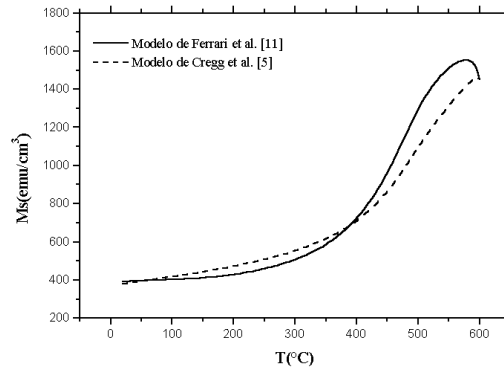


Fig. 9. Comparación del comportamiento de la magnetización de saturación en función de la temperatura de tratamiento térmico.

## CONCLUSIÓN

El análisis descrito en este artículo demuestra claramente que podemos asumir en el estudio de las curvas de magnetización del  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ , en el rango de temperaturas presentado, una gran influencia de la anisotropía uniaxial en la respuesta magnética del sistema. Esto sugiere que la corrección (5) para el límite cuando  $\alpha \rightarrow \infty$  en la expresión para la función de partición descrita en la Ec. (2) es aceptable sólo para altos campos. Está claro que para este tipo de partículas dispersadas en una matriz sólida no-magnética, la anisotropía uniaxial es dominante, y determina en gran manera las propiedades magnéticas de la aleación.

Vemos que tanto la magnetización de saturación  $M_s$  como el momento magnético  $\langle \mu \rangle$  aumentan con la temperatura de tratamiento térmico.

Por otro lado, la comparación de los resultados experimentales con otros modelos, indica una satisfactoria concordancia, a pesar de que ambos modelos describan el carácter superparamagnético de un sistema, particularmente el del  $\text{Co}_{10}\text{Cu}_{90}$ , considerando mecanismos de interacción diferentes.

El pequeño *corrimiento* que aparece como característica predominante en todas las curvas de magnetización a bajos campos descrito por el modelo de Cregg et al.(1999) puede ser debido a la presencia de algunos efectos competitivos de naturaleza magnética que son más significativos en esta región que a altos campos; estos efectos podrían ser tanto la anisotropía de forma, como la de tamaño.

## REFERENCIAS

Baibich, M. N., M. G. M. Miranda, G. J. Bracho, A. B. Antunes, H. Rakoto, N. Negre, M. Goiran, J. M. Broto, E. F. Ferrari, F. C. S. da Silva & M. Knobel. 1999. Magneto-transport in granular ribbons at high magnetic fields, *J. Magn. Magn. Mater.*, 196, 45-47.

Cregg, P. J. & L. Bessais. 1999. A single integral expression for the magnetisation of a textured superparamagnetic system, *J. Magn. Magn. Mater.*, 203, 265-267.

\_\_\_\_\_. 1999. Series expansions for the magnetisation of a solid superparamagnetic system of non-interacting particles with anisotropy, *Magn. Magn. Mater.*, 202, 554-564.

Cullity, B. D. 1972. *Introduction to Magnetic Materials*. Addison-Wesley Publishing Co., Reading, Massachusetts.

Chantrell, R. W., N. Y. Ayoub & J. Popplewell. 1985. The low field susceptibility of a textured superparamagnetic system, *J. Magn. Magn. Mater.*, 53, 199-207.

Ferrari, E. F., F. C. S. da Silva & M. Knobel. 1997. Influence of the distribution of magnetic moments on the magnetisation and magnetoresistance in granular alloys, *Phys. Rev. B*, 56 (10), 6086-6091.

Garanin, D. A. 1996. Integral relaxation time of single-domain ferromagnetic particle, *Phys. Rev. E*, 54 (4), 3250-3256.

Mamiya, H. & I. Nakatani. 1998. Magnetization curve for iron-nitride fine particle system with random anisotropy, *IEEE Trans. Magn.*, 34 (4), 1126-1128.

Miranda, M. G. M., G. J. Bracho, A. B. Antunes, M. N. Baibich, E. F. Ferrari, F. C. S. da Silva & M. Knobel. 1998. Transport and structure of Co<sub>10</sub>Cu<sub>90</sub> heterogeneous ribbons during annealing, *J. Magn. Magn. Mater.*, 185, 331-338.

Raikher, Yu. L. 1983. The Magnetization curve of a textured ferrofluid, *J. Magn. Magn. Mater.*, 39, 11-13.

Teukolsky, S. A., W. T. Vetterling & B. P. Flannery. 1997. *Numerical Recipes in FORTRAN: The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press.

Williams, H. D., K. O'Grady, M. El Hilo & R. W. Chantrell. 1993. Superparamagnetism in fine particle dispersions, *J. Magn. Magn. Mater.*, 122, 129-133.

*Recibido julio de 2004, aceptado diciembre de 2004.*