



**INSTITUTO POTOSINO DE INVESTIGACIÓN
CIENTÍFICA Y TECNOLÓGICA, A.C.**

POSGRADO EN NANOCIENCIAS Y MATERIALES

**Interacción dipolar en ensambles de partículas magnéticas:
fabricación de ensambles, cuantificación a partir de
asimetrías en los ciclos menores de magnetización y modelo
analítico de campo medio**

Tesis que presenta

Kevin Hintze Maldonado

Para obtener el grado de

Doctor en Nanociencias y Materiales

Director de la Tesis:

Dr. Armando Encinas Oropesa

San Luis Potosí, S.L.P., mes de octubre 2023



Constancia de aprobación de la tesis

La tesis **Interacción dipolar en ensambles de partículas magnéticas: fabricación de ensambles, cuantificación a partir de asimetrías en los ciclos menores de magnetización y modelo analítico de campo medio** presentada para obtener el Grado de Doctor en Nanociencias y Materiales fue elaborada por **Kevin Hintze Maldonado** y aprobada el **13 de octubre del 2023** por los suscritos, designados por el Colegio de Profesores de la División de Materiales Avanzados del Instituto Potosino de Investigación Científica y Tecnológica, A.C.

Dr. Armando Encinas Oropesa
(Director de la tesis)

Dr. Sergio Díaz Castañón
(Asesor de la tesis)

Dr. Emilio Muñoz Sandoval
(Asesor de la tesis)

Dra. Elizabeth Alvarado Gómez
(Asesor de la tesis)



Créditos Institucionales

Esta tesis fue elaborada en la División de Materiales Avanzados del Instituto Potosino de Investigación Científica y Tecnológica, A.C., bajo la dirección del Dr. Armando Encinas Oropesa.

Durante la realización del trabajo el autor recibió una beca académica del Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (931482) y del Instituto Potosino de Investigación Científica y Tecnológica, A. C.

(Página en Blanco que se va a utilizar para colocar la copia del acta de examen.)

Dedicatoria

A mi familia y seres queridos
que siempre me han apoyado
por conseguir mis metas. En es-
pecial a mi esposa e hijo.

A mis amigos por aligerar mi día
a día y hacerme más relajada la
vida..

A mi asesor por motivarme y te-
ner disposición, tiempo y apoyo
para mis trabajos.

Agradecimientos

Gracias al Comité Tutorial por el tiempo que han dedicado para revisar la tesis y sus valiosos comentarios.

Agradezco al Dr. Luc Piraux del Institute of Condensed Matter and Nanosciences de la Université catholique de Louvain, Bélgica quien facilitó las muestras de nanoalambres que se han usado en este trabajo. Al Dr. Juan Manuel Martínez Huerta del ITESM-Puebla por su importante colaboración en el presente trabajo.

Al Laboratorio Nacional de Investigaciones en Nanociencias y Nanotecnología (LINAN), por facilitar el acceso y uso de la infraestructura experimental. En particular, se agradece el apoyo técnico de la Dra. Gladis Judith Labrada y de la M. C. Ana Iris Peña Maldonado en el microscopio electrónico de barrido y a Beatriz Rivera Escoto en Rayos X. Se agradece también al Dr. Vicente Rodríguez González por brindarnos acceso al espectrómetro FTIR.

Proyecto SEP-CONACYT Ciencia Básica 286626, así como al CONAHCYT y al IPICYT.

Índice general

Constancia de aprobación de la tesis	III
Créditos Institucionales	V
Agradecimientos	XI
Resumen	XXXII
Abstract	XXXIII
Introducción	1
1. Marco teórico	6
1.1. Material magnético	6
1.2. Procesos y curvas de magnetización	9
1.3. Campo desmagnetizante	12
1.3.1. Relaciones generales del factor desmagnetizante	14

1.3.2.	Sesgo de la curva de histéresis	16
1.4.	Anisotropía magnética	18
1.4.1.	Anisotropía magneto cristalina	20
1.4.2.	Anisotropía de forma	22
1.5.	Partículas mono dominio	23
1.6.	Modelo de Stoner-Wohlfarth	25
1.7.	Partículas magnéticas biestables	29
1.7.1.	Ensamble de partículas biestables	30
1.7.2.	Ensamble de partículas ideales orientadas aleatoriamente y sin interacción	32
1.7.3.	Ensamble de partículas ideales	34
1.8.	Interacción dipolar en ensambles de partículas magnéticas	35
1.8.1.	Interacción dipolar dependiente de la configuración en la aproximación de campo medio	38
1.9.	Interacción dipolar y campo desmagnetizante efectivo en ensambles de partículas	40
1.10.	Mediciones de magnetometría	42
2.	Antecedentes	50
2.1.	La distribución intrínseca de campos de rotación y su determinación experimental	50

2.1.1.	Determinación experimental de la distribución intrínseca de campos de rotación	52
2.1.2.	Método de la corrección del sesgo de las curvas de magnetización .	53
2.1.3.	Método basado en la interacción promedio y la corrección del sesgo	54
2.1.4.	El método $\Delta H(M, \Delta M)$	55
2.1.5.	Diagramas FORC	58
2.1.6.	Conclusiones preliminares sobre los métodos para determinar la distribución intrínseca de campos de rotación	61
2.2.	Determinación experimental del campo de interacción	62
2.2.1.	La relación de Wohlfarth	63
2.2.2.	Métodos basados en la relación de Wohlfarth	66
2.2.3.	Métodos no-basados en la relación de Wohlfarth	74
2.2.4.	Conclusiones sobre los métodos para medir la interacción en ensambles de partículas	80
2.3.	Interacción más allá de la aproximación de campo medio	82
2.4.	Estructuras formadas por ensambles de partículas magnéticas	84
2.5.	Modelado de la interacción dipolo-dipolo en ensambles de partículas	87
2.6.	Conclusión de la revisión del tema	89
3.	Planteamiento del problema de estudio	92

3.1. Definición de los sistemas de interés	93
3.2. Suposiciones	94
3.3. Justificación, hipótesis y objetivos	96
4. Materiales y métodos	99
4.1. Síntesis de nanoalambres	99
4.2. Magnetometría de gradiente alternante	101
4.2.1. Magnetometría en redes de nanoalambres magnéticos	102
4.3. Simulación de curvas de magnetización	103
4.3.1. Proceso de simulación	104
5. Método de Áreas	107
5.1. Planteamiento del método	108
5.1.1. Diferencia de áreas	111
5.1.2. Campo magnético efectivo	113
5.2. Resultados	114
5.2.1. Distribución del coeficiente de interacción: simulaciones	114
5.2.2. Distribución del coeficiente de interacción: experimentos	116
5.2.3. Distribución del campo de rotación intrínseco: Muestras experimentales	120

5.3. Discusión y conclusión	121
6. Campo de interacción y distribución de campos de rotación a partir de la diferencia de campos necesarios para invertir el mismo número de partículas en el ciclo mayor y FORCs	124
6.1. Planteamiento del método	125
6.1.1. Método de punto fijo	126
6.1.2. Método de punto variable	128
6.2. Resultados	129
6.2.1. Distribución del campo de interacción: Simulaciones	130
6.2.2. Distribución del campo de interacción: Experimentos	132
6.2.3. Distribución intrínseca del campo de rotación: Experimentos	134
6.3. Discusión y Conclusiones	135
7. Aprovechamiento de las curvas FORC para obtener la distribución del campo de interacción y la distribución intrínseca de campos de rotación	138
7.1. Antecedentes y bases del método	138
7.2. Planteamiento del método	140
7.3. Resultados	144
7.3.1. Distribución del campo de interacción: Simulaciones	144
7.3.2. Distribución del campo de interacción: experimentos	147

7.3.3.	Distribución intrínseca de campos de rotación	153
7.4.	Discusión y Conclusiones	155
8.	Método de la distribución intrínseca a partir de la diferencia entre los campos de saturación y retorno de un ciclo menor	157
8.1.	Antecedentes: el método H_s^{menor}	158
8.2.	Planteamiento del método	160
8.3.	Resultados	162
8.3.1.	Validación del método	162
8.3.2.	Simulaciones	164
8.4.	Simulación	165
8.5.	Conclusión	167
9.	Efectos de la interacción dipolar en las propiedades magnéticas de ensambles de partículas	168
9.1.	Introducción	169
9.2.	Modelo para el campo desmagnetizante efectivo para ensambles de partículas	170
9.2.1.	Ensambls de partículas en estructuras cilíndricas	172
9.2.2.	Empaquetamientos no cilíndricos de partículas	178
9.3.	Ensambls macroscópicos de nanopartículas magnéticas	183

9.4. Metodología	184
9.5. Resultados y discusión	185
9.6. Conclusiones	190
10. Conclusiones y perspectivas	191
10.1. Conclusiones generales	191
10.2. Perspectivas	195

Índice de figuras

1.1. Esquema de material con momentos magnéticos atómicos $\vec{m}_0$ cuando (A) todos los momentos son paralelos y, (b) cuando no son paralelos.	7
1.2. Arreglo magnético de (a) átomos, (b) partículas y (c) dominios magnéticos.	8
1.3. Ciclo de histéresis y esquema de las configuraciones magnéticas representativas en el estado saturado, en el estado remanente y en el campo coercitivo.	10
1.4. Vectores de magnetización (M), campo aplicado (H_A), campo desmagnetizante (H_D) y cargas magnéticas superficiales respecto a un objeto cuya forma es no circular (esférica). La magnitud del vector de campo desmagnetizante depende de la distancia entre los polos lo cual depende de la forma del objeto, como se ilustra para los ejes (a) largo y (b) corto.	12
1.5. Curvas de magnetización para una elipse inicialmente desmagnetizada con el campo aplicado paralelo al eje largo de la elipse y a lo largo del eje corto.	16
1.6. Ciclos de histéresis sesgados por diferentes factores desmagnetizantes N . .	17
1.7. Dimensiones típicas donde se presentan los diferentes regímenes magnéticos en materiales ferromagnéticos.	24
1.8. Barrera de energía (ΔE) de una partícula con anisotropía magnética uniaxial efectiva K_{eff} para la cual el eje fácil está en el eje $0, \pi$, mientras que la dirección difícil está en el eje $\pi/2, 3\pi/2$	26
1.9. Ciclo de histéresis de una partícula ideal con el campo aplicado paralelo al eje fácil.	27

1.10. Curvas de histéresis simuladas para una partícula ideal con el campo aplicado a diferentes ángulos con respecto al eje fácil de magnetización.	28
1.11. Partícula biestable con dos estados estables para la magnetización ($M_s, -M_s$) y esquema del ciclo de histéresis no-ideal donde se muestran en color rojo los segmentos que caracterizan la desviación del comportamiento ideal y que se acostumbra a relacionar con rotaciones reversibles de la magnetización a la salida y llegada del estado saturado.	30
1.12. Partículas biestables con estados magnéticos binarios m_+ y m_- a lo largo del eje fácil y un estado magnético arbitrario en el que coexisten partículas en los estados m_+ y m_-	31
1.13. Ciclo de histéresis normalizado donde se muestran diferentes estados magnéticos descritos por la magnetización normalizada m	32
1.14. Curvas de magnetización para el esferoides prolato (curva continua) y oblatos (curva punteada) orientados aleatoriamente. Las curvas son para esferoides similares ya sea prolato u oblatos. $\overline{\cos\phi}$ es proporcional a la magnetización promedio por esferoide en la dirección positiva del campo.	33
1.15. Ciclo de histéresis a lo largo de la dirección fácil para el caso de (a) una partícula con campo coercitivo H_{c1} , (b) dos partículas con coercividades $H_{c1} < H_{c2}$, (c) tres partículas con campos coercitivos $H_{c1} < H_{c2} < H_{c3}$ y, (d) cuatro partículas con coercividades $H_{c1} < H_{c2} < H_{c3} < H_{c4}$	34
1.16. Fuerza magnética entre dos imanes cuando A: Imanes con polos colineales y, B: Imanes con polos paralelos.	36
1.17. Diagrama de dos partículas magnéticas con magnetizaciones m_1 y m_2 paralelas a lo largo del eje z y separadas por un vector r_{ij}	37
1.18. Representación de la configuración de momentos magnéticos, y energía asociada a cada uno de estos, donde se parte de la energía menor hasta la mayor.	37
1.19. Distribuciones superficiales de carga magnética σ_+, σ_- en un arreglo de partículas y los campos magnetostáticos asociados: desmagnetizante (H_D) al interior de la partícula y de interacción (H_{int}) entre partículas.	40

1.20. Ciclos de histéresis sesgados por diferentes factores desmagnetizantes N . . .	42
1.21. (a) ciclo mayor y primera curva o curva virgen la cual se obtiene luego de desmagnetizar el material, también se muestran los puntos correspondientes a la magnetización remanente m_{rem} y el campo coercitivo H_c . (b) Ciclos de histéresis medidos a lo largo de (i) el eje fácil y de (ii) el eje difícil. Mediciones realizadas en una red de nanoalambres de NiFe.	43
1.22. (a) ciclo mayor y un ciclo menor donde se muestran en diferente color la parte descendiente y ascendente y, (b) conjunto de varios ciclos menores. Mediciones realizadas en una red de nanoalambres de NiFe.	46
1.23. 180 curvas FORC medidas en una red de nanoalambres de Cobalto con el campo aplicado paralelo al eje de los cilindros.	47
1.24. Curvas IRM y DCD junto con el ciclo mayor medidas en una red de nanoalambres con el campo aplicado paralelo al eje de los alambres. Las flechas indican la dirección en que varía la magnitud del campo aplicado.	49
2.1. Descripción del método $\Delta H(M, \Delta M)$ para determinar la SFD. Del lado izquierdo, representación esquemática del ciclo mayor y una serie de ciclos menores con punto de retorno a una distancia ΔM_i ($i = 1, \dots, 5$) de la saturación. A la derecha, las correspondientes curvas $\Delta H(M, \Delta M)$	56
2.2. Ciclo de histéresis y ciclos menores donde se muestra el ciclo menor con campo de retorno igual al campo coercitivo (color rojo) y como se usa para obtener las diferencias de campo ΔH_{int} y el mismo ciclo desplazado horizontalmente para que el punto de retorno coincida con la saturación negativa (color azul) del cual se obtiene ΔH_{ext}	57
2.3. Diagramas FORC simulados para un sistema con (a) SFD ancha y $H_{int} = 0$, (b) SFD angosta y $H_{int} \neq 0$ y, (c) SFD ancha y $H_{int} \neq 0$	59
2.4. Diagramas FORC de un medio granular de grabado magnético con magnetización perpendicular al plano de CoCrPt (a) medido, (b) corregido con valor de prueba y (c) con la mejor corrección.	60

2.5. Diagramas FORC de redes de nanoalambres con empaquetamiento bajo ($P = 0.4\%$), diámetro y material de (a) 50 nm CoFe, (b) 71 nm NiFe, (c) 50 nm Ni, and (d) 71 nm CoFe. En (e) - (h) se muestran las correspondientes distribuciones CFD obtenida del diagrama FORC, la SFD (dM/dH) y la distribución construida usando microscopia de fuerza magnética (MFM). . .	61
2.6. Línea de tiempo que retoma el desarrollo cronológico del problema del análisis y medición del campo de interacción a partir de la publicación en 1958 de la relación de Wohlfarth (verde). En color naranja, los métodos que son cualitativos y en azul los cuantitativos.	63
2.7. (izquierda) curvas de remanencia m_d y m_r y, (derecha) gráfica de $m_r^* = 1 - 2m_r$ y m_d	64
2.8. Histerón ideal en función del campo aplicado H_A con coercividad H_{c1} y H_{c2} en el caso (a) simétrico y sin interacción ($ H_{c1} = H_{c2}$), (b) asimétrico corrido hacia la izquierda con interacción de tipo ferromagnética ($ H_{c1} > H_{c2}$) y, (c) asimétrico corrido hacia la derecha con interacción de tipo anti ferromagnética ($ H_{c1} < H_{c2}$).	66
2.9. Curvas Henkel para caso sin interacción que es una recta con pendiente -1 (línea punteada verde) y ejemplo de un sistema con interacción anti ferromagnética (curva continua roja).	67
2.10. Curvas Henkel para caso sin interacción que es una recta con pendiente -1 (línea punteada verde) y ejemplo de un sistema con interacción anti ferromagnética (curva continua roja).	68
2.11. (a) Curva ΔM y (b) curva $\Delta H = h_r - h_d$ para el mismo sistema el cual tiene interacción anti ferromagnética. En ambos casos se muestra la recta horizontal (punteada) de referencia que se espera si no hay interacción.	69
2.12. Gráfica de una recta y una curva donde se indica la distancia ortogonal d entre el punto P_1 con coordenadas (x_1, y_1) de la curva a la recta $Ax + By + C = 0$. 71	
2.13. (a) Curva ΔM y (b) curva $\Delta H = h_r - h_d$ para el mismo sistema el cual tiene interacción anti ferromagnética. En ambos casos se muestra la recta horizontal (punteada) de referencia que se espera si no hay interacción.	72
2.14. Curvas IRM y DCD para el caso (a) sin interacción y (b) con interacción. .	73

2.15. (a) Micrografía de MFM en una red de nanoalambres crecida en una membrana de aluminio anodizado y, (b) ciclo mayor, ciclo parcial medido por MFM y ciclo después de hacer la corrección del sesgo debido al campo de interacción.	76
2.16. (a) Esquemático de un ciclo mayor y uno menor, donde se muestran los puntos A^+ y A^- correspondientes a la mitad de la altura del ciclo menor. (b) distribución de campos de rotación P_2 y subconjunto P_1 que interviene en el ciclo menor. (c) ciclo mayor y menores en una muestra de nanoalambres donde en color azul y línea punteada se enfatiza un ciclo menor donde se indican los puntos a la altura media de este y (d) rectas la parte dependiente de la magnetización del factor desmagnetizante H_{eff}^D	78
2.17. Diagrama FORC graficado en el plano H_u y H_c , en el cual se miden tres cantidades: los anchos de las distribuciones a lo largo de los ejes principales Δ_{IFD} y Δ_{CFD} , respectivamente y el ancho total, ΔH_u a la mitad de la altura de la distribución que se obtiene haciendo el corte en el campo coercitivo de la muestra a lo largo del eje de la interacción.	80
2.18. Imágenes de (A) una cadena de partículas magnéticas obtenida de una bacteria magnetotáctica, (B) cadenas de una partícula obtenidas en laboratorio por ordenamiento inducido por campo y (C) imagen de holografía magnética donde podemos ver las líneas de campo en una cadena de partículas extraída de una bacteria magnetotáctica.	84
2.19. Imágenes de (A) Cadena de partículas magnéticas con un ancho de tres partículas y al lado las líneas de campo obtenidas por holografía magnética, (B) Barras planas de partículas magnéticas obtenidas por auto ensamblado inducido por gradientes de campo magnético.	85
2.20. Imágenes de ensambles de partículas magnéticas obtenidos mediante técnicas de litografía. (a) y (b) Barras paralelas de partículas magnéticas, (c)-(e) redes bidimensionales, cuadradas o hexagonales con agregados de partículas en forma de círculos, triángulos y cuadrados, (f) y (g) red rectangular de barras rectangulares hechas de partículas magnéticas.	86
2.21. (a) ciclos de histéresis paralelo y perpendicular al eje de los alambres medidas en el ensamble y, (b) ciclo de histéresis paralelo al eje medido en un solo alambre aislado y sin interacción.	90

4.1.	Esquema de electrodeposición de nanoalambres crecidos en poros paralelos.	100
4.2.	(a) ciclo mayor y curvas de remanencia IRM y DCD, (b) ciclo mayor y conjunto de ciclos menores.	103
4.3.	Simulación de a) ciclo mayor y ciclo menor para un sistema interactuante que se muestra de color negro y rojo respectivamente; por otra parte el sistema no interactuante se representa por líneas punteadas y color azul para el ciclo menor, b) SFD obtenida como la derivada para las curvas correspondientes a su ciclo en a).	104
4.4.	Gráficas representativas de los diferentes pasos de la simulación.	105
5.1.	Esquema de un histerón a) sin interacción ($A^- = A^+$) y b) con interacción ($A^- \neq A^+$), donde vemos los campos coercitivos medidos, (H_{c+}, H_{c-}), el campo de interacción (H_{int}) y el campo coercitivo intrínseco (H_{c0}). Para el caso sin interacción se cumple que $ H_{c0} = H_{c+} = H_{c-} $.	108
5.2.	Esquema donde se ilustra el área de un ciclo menor dividido en dos partes para un ciclo menor a) sin interacción y b) con interacción.	109
5.3.	Esquema del ciclo mayor y un ciclo menor para el cual se indican las áreas del lado negativo (A^-) y positivo (A^+) del campo. Se muestran también el punto de retorno (H_r, m_r) y el punto de saturación (H_s, m_s).	111
5.4.	Esquema del método utilizando la diferencia de áreas del ciclo menor con punto de retorno definido como H_r, m_r y el punto de saturación H_s, m_s . Donde la línea roja es cuando $H_A = 0$, esto separa el área negativa y positiva.	113
5.5.	Distribuciones del coeficiente de interacción para el caso de interacción constante ($\alpha = 400$), y el caso de interacción con dispersión ($\alpha = 400, \beta = 100$) para ambos métodos. El método de diferencia de áreas se representa con puntos negros y el método del campo efectivo con puntos rojos.	115
5.6.	Distribuciones del coeficiente de interacción para a) NiFe con $P = 0,2$ y $d = 100$ nm, b) NiFe con $P = 4,5$ y $d = 50$ nm y c) NiFe con $P = 10,4$ y $d = 35$ nm. La línea punteada representa el valor del coeficiente de interacción obtenido con las curvas IRM-DCD, las curvas roja y azules son el método de diferencia de áreas y el de campo efectivo respectivamente.	118

5.7.	iSFD de una muestra experimental de NiFe con $P = 0,2$ y $d = 100$ nm. La línea roja es la curva mayor original, y la línea punteada es la curva intrínseca tomando α_0 , y las líneas color negro son los ciclos menores tomando el método 1 como α	121
5.8.	Diferencia de áreas después de remover la interacción de la muestra experimental de nanoalambres de NiFe con $P = 4,5$ y $d = 50$ nm.	122
6.1.	Gráficas de la iSFD y la SFD, color azul y negro respectivamente. La SFD en este caso resulta del ensanchamiento de la iSFD que es inducido por el campo de interacción.	125
6.2.	Derivadas de magnetización en función del campo. La curva color rojo representa la parte ascendente del ciclo mayor, la curva color azul representa la parte descendente del ciclo mayor, las curvas color negro representan la parte ascendente de los ciclos menores y los puntos azules representan el campo magnético en el cuál rotan el mismo número de partículas en cada ciclo menor.	127
6.3.	Esquema del método de punto variable, la curva color rojo representa la parte ascendente del ciclo mayor, la curva color azul representa la parte descendente del ciclo mayor, las curvas color negro representan la parte ascendente de los ciclos menores y los puntos rojos representan el campo magnético donde se intersectan la curva descendente del ciclo mayor con cada una de la parte ascendente de los ciclos menores.	128
6.4.	La distribución de la interacción se muestra para el caso de interacción fija y con dispersión para ambos métodos, donde el método de punto fijo se identifica con el color rojo y el método de punto variable con color azul. . .	130
6.5.	Distribución intrínseca de campos de rotación (iSFD) calculada para cada ciclo menor en el caso que la interacción (a) es constante y, (b) fluctúa. Resultados obtenidos por simulación empleando una iSFD gaussiana.	131
6.6.	Distribución del campo de interacción para a) NiI0Ad40, b) NiNw70, c) Ni-FeH5, d) CFK4Aa, e) PySy18A1 y e) NiFeI9Ac con ambos métodos, el método de punto fijo en color negro y en color azul el método del punto variable.	133

6.7.	Comparación de las derivadas denominadas SFD, iSFD con método punto fijo y el obtenido por IRM-DCD para las muestras NiI0Ad40, NiNw70, y NiFeH5. La SFD está identificada por el color azul, la iSFD por el método de punto fijo es línea continua negra, y la línea punteada roja para la iSFD con el valor promedio obtenido por la metodología IRM-DCD.	136
7.1.	Ciclo mayor y ciclo menor donde se indica un punto en parte descendente y la posición de ese mismo punto en la parte ascendente.	139
7.2.	Ciclo mayor y dos retornos de ciclos menores, originales y recorridos, con magnetización de retorno m_{r1} y m_{r2} . Se indican los tres valores de campo para una misma magnetización, H_0 , H_1 y H_2	142
7.3.	FORCs transformados usando la ecuación (7.1) para el caso (a) sin interacción y (b) con una interacción constante de $\alpha = 500$ Oe. Todas las curvas son cuevas ascendentes y las flechas indican el sentido de la variación del campo y se incluye la parte ascendente del ciclo mayor como referencia.	145
7.4.	Distribución de la interacción para el caso de no interacción y el de interacción con un valor $\alpha = 500$ Oe.	146
7.5.	Distribución de la interacción para el caso simulado con interacción y dispersión en este valor.	146
7.6.	(a) Ciclo mayor, curvas FORC y curvas FORC recorridas (rojo), (b) Ciclo mayor, parte ascendente de ciclos menores y las curvas ascendentes recorridas (colores).	148
7.7.	Curvas de retorno recorridas y puntos para valores constantes de magnetización. Las curvas retenidas para el análisis se muestran en color, mientras que aquellas descartadas se muestran con líneas punteadas.	149
7.8.	(a) (b) Mediana y media del conjunto de valores del campo de interacción obtenido para cada valor de m y, (c) histograma de valores del campo de interacción usando los $n= 1,326$ valores obtenidos, para los cuales la mediana es de 199 Oe y el promedio (media) es de 215 Oe.	150

7.9.	Distribución de la interacción para las muestras experimentales a) de NiFe con un diámetro de 50 nm y $P=4.5\%$ y b) la muestra de NiFe de 100 nm de diámetro y $P=0.2\%$. Las líneas rojas punteadas corresponden al valor promedio del campo de interacción obtenido con las curvas de remanencia.	152
7.10.	La curva con línea continua color negro representa los FORCs sin interacción, los puntos rojos representan la iSFD reconstruida a partir del método. (a) Muestra con interacción constante y (b) muestra con interacción fluctuante.	154
7.11.	Comparativa de la distribución de campos de rotación para (a) la muestra de NiFe con un diámetro de 50 nm y $P=4.5\%$ y (b) la muestra de NiFe de 100 nm de diámetro y $P=0.2\%$ con la distribución intrínseca de campos de rotación obtenidos por las curvas de remanencia IRM-DCD	155
8.1.	Esquematzación de la rotación del último elemento que rota al llegar al campo de retorno así como a la saturación al final del ciclo menor, llamado el elemento de interés.	159
8.2.	(a) Gráfica de M_{ret} como función de H_s^{menor} , el inset muestra ciclo mayor y varios ciclos menores para ejemplificar la obtención de los puntos. En (b) muestran la SFD normalizada obtenida como la derivada de M_{ret} como función de H_s^{menor}	160
8.3.	Puntos iniciales y finales de algunos FORCs, el punto inicial se representa por H_r, m_r mientras que el final por H_s, m_s	163
8.4.	Curva reconstruida de la magnetización de retorno en función del campo de saturación obtenida de los ciclos menores. Los puntos a color son para asociar ese punto a los ciclos menores mostrados en la figura 8.3.	163
8.5.	En la figura a) se muestra la iSFD recorrida a la derecha por un factor constante de donde debería estar, b) se muestra como haciendo la corrección en campo magnético se sobrepone.	164
8.6.	Diferentes formas funcionales y las curvas iSFD para a) Gaussiana, b) Gaussiana asimétrica a la izquierda, c) Función Heaviside o escalón y d) Función triangular.	165

8.7.	Distribución del coeficiente de interacción (α_i) en función del respectivo valor de la magnetización de retorno. En este caso se han usado datos simulados con una iSFD gaussiana y una interacción constante de 700 Oe. Se muestra también (en azul) la curva que se obtiene de la diferencia de los campos de retorno y de saturación, $\delta H = H_r + H_s$	166
9.1.	(A) Esquema de un ensamble de partículas que forman una estructura tipo cilindro/tubo y sus principales parámetros. (B) Esquema del empaquetamiento de una partícula con volumen V_1 en un volumen V_2 para diferentes valores de la fracción de volumen P	171
9.2.	Factor desmagnetizante axial, N_z en función del cociente de aspecto τ , para diferentes valores de β	175
9.3.	Factor desmagnetizante axial, N_z en función del cociente de aspecto τ , para diferentes valores de β	176
9.4.	Esquema de un prisma cuadrado con dimensiones laterales a, a y altura h así como el de una barra rectangular ultra delgada de longitud L , ancho w y espesor t , donde $L \gg w \gg t$	179
9.5.	Anisotropía magnética efectiva de un prisma cuadrado en función del cociente de aspecto τ , para diferentes fracciones de llenado P	180
9.6.	Anisotropía magnética efectiva de un prisma rectangular plano en función del cociente de aspecto τ , para diferentes fracciones de llenado P	182
9.7.	(A) Vaso con solución de ácido esteárico con nanopartículas magnéticas en fase líquida, (B) Se introduce por inmersión el objeto a ser recubierto y (C) ejemplo de un cilindro y una superficie recubiertas con la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido.	184
9.8.	Fotografías de diversas muestras que han sido recubiertas con la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido, para cada caso se muestra la pieza antes y después de aplicar el recubrimiento (a), (b) manito de fibras de henequén, (c), (d) clip metálico, (e), (f) palillo de madera y (g), (h) limpia pipas.	185

9.9. Micrografías ESEM de fibras prístinas de henequén (a), (b), (c). Fibras de henequén con ácido esteárico (d), (e), (f) y fibras henequén con ácido esteárico y ferrofluido (g), (h), (i).	186
9.10. Espectro IR del polvo de ácido esteárico (SA), ferrofluido (FF), fibras de henequén prístinas (FB). fibras de henequén con ácido esteárico (FB-SA), y fibras de henequén con ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF).	187
9.11. XRD de polvo de ácido esteárico (SA), ferrofluido (FF), fibras de henequén prístinas (FB). fibras de henequén con ácido esteárico (FB-SA), y fibras de henequén con ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF).	188
9.12. Ciclo de histéresis medido a temperatura ambiente de fibras de henequén con ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF) y de ferrofluido seco (FF). El inset muestra el acercamiento de los ciclos de histéresis cerca de cero.	189

Resumen

En el presente trabajo se han planteado y validado cuatro métodos que permiten cuantificar el campo de interacción, tanto a nivel individual, así como en promedio en un ensamble de partículas. Posteriormente, estos resultados se usan para determinar la distribución intrínseca de campos de rotación (iSFD) del ensamble. Los métodos han sido validados usando simulaciones y datos experimentales obtenidos empleando magnetometría de gradiente alternante y redes de nanoalambres. Los métodos se basan en el uso de ciclos menores y en la asimetría en campo que induce el campo de interacción entre el segmento descendente y ascendente de estos ciclos. Las asimetrías que se han utilizado son (i) la diferencia entre las áreas contenidas en los ciclos menores del lado positivo y negativo del eje del campo magnético, (ii) las intersecciones de las derivadas (dM/dH) de las curvas descendentes y ascendentes de los ciclos menores, (iii) el corrimiento de los campos de rotación de cada punto contenido en un ciclo menor y (iv) la diferencia entre los campos de retorno y de saturación de un ciclo menor. Para cada uno de estos casos, se plantearon las expresiones que permiten relacionar el valor del campo de interacción con una diferencia de campos magnéticos relacionados con la asimetría en cuestión. Posteriormente, estos valores han sido empleados para calcular la iSFD a partir de la distribución de campos de rotación medida. Los resultados experimentales obtenidos han sido comparados con valores determinados por otros métodos independientes basados en curvas de remanencia, observando un excelente acuerdo entre los resultados obtenidos por los diferentes métodos, tanto para el campo de interacción promedio como para la iSFD que se obtiene. Finalmente se estudió el problema de la anisotropía magnética inducida por el campo de interacción en ensambles de partículas esféricas isotrópicas. Con este fin, se obtuvo un modelo analítico en la aproximación de campo medio. Con el modelo se ha mostrado para geometrías relevantes que la anisotropía de origen dipolar tiene la simetría del volumen que envuelve al ensamble y una amplitud proporcional a la fracción de volumen ocupado por éstas. Experimentalmente se estableció una metodología para obtener recubrimientos de ensambles de partículas magnéticas usando aglutinantes con bajo punto de fusión, con los cuales se han obtenido recubrimientos tubulares sobre fibras cilíndricas.

Palabras clave: interacción dipolo-dipolo, curvas de remanencia, ciclos menores, histerones, nanoalambres, nanoimanes biestables.

Abstract

This work has lead to the formulation and validation of four different methods that allow the quantification of the interaction field, both as a distribution or as an average value, as well as the determination of the intrinsic switching field distribution (iSFD) in systems of interacting magnetic particles. The different methods were validated using simulations as well as experimental results obtained using alternating gradient magnetometry on arrays of magnetic nanowires grown by electrodeposition into porous membranes. The methods are based on the use of minor loops and the field asymmetry between the descending and ascending parts of these loops that is induced by the interaction field. The assymetries used in the different methods are: (i) the difference between the areas enclosed in a minor loop on the positive and negative side of the magnetic fiel axis, (ii) the intersections between the derivatives (dM/dH) of the descending and ascending parts of the minor loops, (iii) the field shift of the switching fields of each point involved in a minor loop and, (iv) the difference between the values of the return field and saturation field. For each case, an expression relating the interaction field value to the field difference related to the asymmetry has been derived. Then, the calculated values were used to determine the iSFD from the measured switching field distribution (SFD). The experimental results have been compared with values obtained experimentally using a different and independent method based on the remanence curves, obtaining a very good agreement between the results provided by each of the different methods for both the interaction field value as well as for the iSFD. Finally, the magnetic anisotropy induced by the interaction field in assemblies of isotropic spherical particles was studied. To this end, an analytical model was derived in the mean-field approximation. Using the model, it has been demonstrated for relevant geometries that the anisotropy originating from dipolar interactions has the symmetry of the volume enclosing the assembly and an amplitude proportional to the fraction of volume occupied by them. Experimentally, a methodology was established to obtain coatings of assemblies of magnetic particles using binders with a low melting point. With these binders, tubular coatings have been obtained using cylindrical fibers.

Palabras clave: Magnetic dipole-dipole interaction, remanence curves, minor loops, hysteresis, nanowires, bistable nanomagnets.

Introducción

En el área del magnetismo y los materiales magnéticos se desarrolla actualmente una intensa investigación en sistemas formados por muchas partículas o componentes, que en lo siguiente llamaremos ensambles de partículas, y que también son conocidos como sistemas magnéticos discretos. Los ensambles que nos interesan se refieren a un conjunto de objetos discretos (partículas) iguales que pueden formar ensambles uni, bi o tridimensionales [1].

Dichos ensambles de partículas magnéticas han estado y están en el centro de atención debido a la variedad y complejidad de sus propiedades magnéticas y por el potencial tecnológico que poseen. En efecto, a partir de 2014 y posteriormente en 2017 y luego en 2020, paneles de expertos han publicado el trazado de ruta (Roadmap) 2014, 2017 y 2020 del Magnetismo, donde uno de los problemas considerados es el de ensambles de nanoestructuras interactuantes [2, 3, 4].

Este tipo de sistemas incluye ensambles de partículas micro y nanoscópicas [5, 6], películas granulares [7, 8], compósitos con partículas magnéticas dispersas en matrices no magnéticas [9], compósitos multiferróicos [10], películas delgadas y multicapas nanoestructuradas [11], cuyas aplicaciones incluyen materiales para grabado magnético [11, 12, 13], dispositivos microondas y magnónica [14, 15], resonancia de torca de espín [16], magnetismo en estructuras con curvatura [17], espintrónica [18, 19] esquirmiones [20], lógica magnética [21], vidrios de espín y sistemas frustrados [22, 23, 24, 25], nanomedicina [26] y refrigeración magnética [27].

Actualmente hay muchas áreas dentro del magnetismo en las cuales se estudian ensambles de partículas y donde en años recientes han sido el centro de interés tanto a nivel básico como aplicado. Dentro de estas temáticas, hay varias donde la interacción dipolar juega un papel relevante. Esto debido a que en estos sistemas las propiedades magnéticas del ensamble dependen de las propiedades magnéticas individuales de cada partícula y de la interacción entre ellas [28, 29].

Este tipo de estructuras ha sido recientemente muy estudiado para el desarrollo de vidrios

de espín artificiales con interacción dipolar [30]. En ensambles de nanopartículas superparamagnéticas se han reportado varios efectos relacionados con la interacción dipolar como son el corrimiento dipolar de la temperatura de bloqueo, la aparición de un orden ferromagnético a temperatura ambiente inducido por la interacción dipolar [31, 32, 33], la dependencia del coeficiente específico de absorción en la interacción dipolar para aplicaciones en hipertermia magnética [34], o incluso los valores medidos de anisotropía magnética en bacterias magneto tácticas [35]. Estructuras obtenidas con ensambles de nanoalambres han mostrado alcanzar valores altos del producto de energía, haciéndolos atractivos para desarrollar imanes permanentes y que también se ha relacionado con efectos del campo de interacción [36, 37]. Así mismo, la interacción dipolar en ensambles juega un papel importante para el diseño de autómatas celulares magnéticos [38, 39], medios de grabado magnético perpendicular [40, 13, 41], micro actuadores magnéticos con anisotropía programable [42], comportamiento colectivo superferromagnético,[43, 44, 45] así como en la eficiencia para la producción de calor en hipertermia magnética [34, 46, 47, 48, 49], entre otros.

Un problema genérico e importante, propio de todo ensamble de partículas magnéticas que interactúan entre si es que las propiedades magnéticas macroscópicas del ensamble difieren de las propiedades promedio intrínsecas o individuales de las componentes que forman el sistema. Esta diferencia entre las propiedades medidas en el ensamble y las esperadas a partir de las propiedades promedio de cada elemento sigue de dos efectos inherentes a los ensambles de partículas magnéticas. El primero es que todo ensamble posee una dispersión de propiedades intrínsecas, la cual se describe mediante una distribución de campos de rotación o SFD (del inglés Switching Field Distribution). Dependiendo de que tan ancha o compleja es la SFD es la diferencia entre los parámetros del ensamble y los intrínsecos *esperados*. El segundo efecto está relacionado con la interacción entre partículas (campo de interacción) que modifica la distribución intrínseca. Es decir que en un ensamble con interacción la distribución medida es diferente de la intrínseca, $SFD \neq iSFD$. Para obtener o identificar los parámetros o propiedades intrínsecas del sistema sería necesario conocer el campo de interacción para determinar cómo modifico la iSFD o al revés, para tratar de hacer la transformada inversa y obtener la iSFD a partir de la SFD. Esto es lo que se conoce como el problema inverso. Complementario al problema inverso, tenemos el problema hacia adelante (forward problem), en el cual se requiere conocer el campo de interacción de manera a producir una transformación conocida a la iSFD de manera que se obtenga una SFD deseada.

En este contexto, un problema o limitante para realizar esto es la caracterización experimental del campo de interacción ya que incluso si se tienen modelos para describirlo, es necesario que se pueda caracterizar o que responda a la manera esperada experimentalmente. La caracterización puede ser realizada a nivel individual (hay algunas técnicas que lo permiten) o medidas sobre el ensamble, mediciones macroscópicas. Cada una tiene ventajas y desventajas así como facilidades y dificultades. Las medidas sobre componentes individuales no son prácticas si el ensamble contiene un número grande de partículas. Por su parte, y como se indicó anteriormente, las mediciones sobre el ensamble tienen la dificultad de que se requiere conocer el campo de interacción para poder relacionar la SFD medida con la iSFD.

Al trabajar con un ensamble se requiere utilizar distribuciones y alguna medida de tendencia central, típicamente el promedio, para poder describir e interpretar las propiedades del sistema. Por otra parte, las mediciones experimentales pueden proporcionar uno o muchos valores de los observables medidos y es importante definir cuáles son utilizados y como se deben interpretar. En el caso del campo de interacción, prácticamente todos los métodos reportados para cuantificar el campo de interacción proporcionan un solo valor que se asume como el valor promedio. Esto resulta que a presente no hay métodos experimentales que proporcionen muchos valores del campo de interacción y elaborar así un análisis estadístico. Mientras que por otra parte, contar con métodos experimentales que proporcionan un solo valor promedio es práctico y conveniente ya que reduce el problema a un esquema de interpretación tipo campo medio.

El problema se puede enunciar diciendo que no se puede conocer la distribución intrínseca a partir de la distribución medida si no se conoce el campo de interacción. El enfoque que se suele seguir es de remover el campo de interacción de la SFD medida obteniendo así la iSFD. Sin embargo, la determinación del campo de interacción en ensambles de partículas es un problema difícil que ha permanecido abierto desde hace más de 100 años. A presente hay diversos métodos que han sido propuestos, de estos solo unos cuantos tienen la propiedad de ser cuantitativos y tienen la limitante de que la cuantificación se limita a un valor promedio del campo de interacción.

De lo anterior podemos ver que desarrollar métodos para cuantificar el campo de interacción sigue siendo un problema relevante y de actualidad para el estudio de ensambles de partículas magnéticas. En particular para poder realizar la identificación de la iSFD a partir de la SFD medida. Adicionalmente hace falta emplear nuevos enfoques para medir el campo de interacción, en particular basado en técnicas estándar de magnetometría y que vayan más allá de las curvas de remanencia. Así mismo, también es deseable desarrollar protocolos experimentales que permitan obtener el campo de interacción como un conjunto de valores así como con un solo valor promedio. Estas son las ideas centrales que han motivado y definido los problemas que han sido abordados en el presente trabajo.

La idea central que hemos seguido en el presente trabajo se enfoca en considerar que en ensamble con interacción hay una asimetría entre la parte descendente y ascendente de los ciclos menores inducida por la interacción. Sin interacción, la bajada y subida de un ciclo menor son simétricas. Por lo que nos enfocamos en identificar puntos que ponen en evidencia la asimetría y que además les podemos asociar una diferencia de campo magnético la cual debe ser cero en el caso sin interacción. Posteriormente se formula una expresión que incorpora los procesos físicos que generan la asimetría y con la cual se establece la relación entre la diferencia de campo medido y el campo de interacción. Posteriormente los campos de interacción medidos son usados para obtener la distribución intrínseca de campos de rotación.

Se han propuesto y validado cuatro métodos que permiten obtener el campo de inter-

acción y la distribución intrínseca del campo de rotación punto a punto en ensambles de nanoalambres magnéticos que emplean ciclos menores y propiedades de asimetría que se presentan cuando hay un campo de interacción. Estos métodos han sido validados usando simulaciones y datos experimentales y mostramos que proporcionan resultados muy favorables cuando se compara con los resultados del campo de interacción promedio y la iSFD obtenidas usando métodos basados en las curvas de remanencia. Los métodos se basan en cantidades que hemos podido relacionar directamente con asimetrías inducidas o que resultan del campo de interacción. De estos, las áreas contenidas en los ciclos menores del lado positivo y negativo del eje del campo. Los campos del ciclo menor necesarios para (i) invertir el mismo número de partículas que son invertidas en el estado remanente del ciclo mayor y, (ii) invertir el mismo número de partículas que se invierten en el ciclo mayor antes de alcanzar la remanencia. La asimetría de los campos de rotación de un punto en el ciclo menor durante el proceso de desmagnetización y de magnetización. Por último, la transformación de las curvas de retorno considerando la diferencia entre el campo de retorno y el campo de saturación del ciclo menor.

El otro problema relacionado a los ensambles de partículas magnéticas es el de la interacción dipolar entre partículas. Como se ha mencionado esta interacción tiene un papel muy importante en el problema de las distribuciones intrínseca y medida de los campos de rotación. Mientras que, por otra parte, induce también cambios en las propiedades magnéticas macroscópicas del sistema.

Con el fin de ahondar en el tema, nos hemos interesado en estudiar materiales formado por entidades magnéticas discretas, (polvos, partículas micro ó nano, etc.) y enfocarnos en el problema específico de los efectos que tiene la interacción dipolar entre las componentes en las propiedades magnéticas macroscópicas. En este sentido, nos colocamos en un escenario en el que suponemos partículas magnéticamente suaves, es decir, no poseen ninguna anisotropía magnética a parte de la de forma. Con esto, nos enfocamos en los efectos magnetostáticos del ensamble que incluyen la anisotropía de forma de cada partícula y la interacción dipolar entre ellas. En este caso, además de la forma y tamaño de las partículas, es importante que éstas formen un ensamble contenido en una geometría bien definida con una cierta densidad o fracción de llenado que determina la distancia promedio entre partículas.

Un enfoque simple para fabricar ensambles de partículas contenidas en geometrías bien definidas consiste en usar un material no magnético en el cual se dispersan las partículas magnéticas y posteriormente esta mezcla puede ser moldeada a una forma deseada. Ejemplos de este enfoque podría ser el de elastómeros magnéticos, partículas dispersas en parafina, o como se ha hecho recientemente en nuestro grupo, en plastilina. En todos estos casos, la matriz (y por lo tanto el compositor) es moldeable siguiendo algún proceso preestablecido que permite definir la forma, la cual posteriormente se mantiene indefinidamente.

En este trabajo se ha estudiado el problema de los efectos que tiene la interacción dipolar entre las partículas de un ensamble en las propiedades magnéticas macroscópicas del

compuesto. El estudio consistió en una parte de modelado usando un enfoque de campo medio para describir efectos magnetostáticos y la anisotropía magnética efectiva en ensambles de partículas isotrópicas que forman estructuras macroscópicas con geometrías simples. Mientras que, por otra parte, se realizó un estudio experimental orientado a la fabricación de ensambles de nanopartículas superparamagnéticas con geometrías macroscópicas controlables. Con este fin se desarrolló un compósito en el cual la matriz no magnética está hecha de ácido esteárico y las partículas magnéticas provienen de un ferrofluido comercial el cual es mezclado directamente para formar la mezcla. En el caso del modelo, se estudió el caso de ensambles formados por partículas esféricas isotrópicas ordenadas en diferentes geometrías macroscópicas. Lo más destacado es que se ha encontrado que al empaquetar este tipo de partículas isotrópicas, el ensamble presenta una anisotropía magnética que se origina en la interacción dipolar y cuya simetría esta dictada por la geometría del volumen que contiene a las partículas. Mientras que la amplitud de esta anisotropía es proporcional a la fracción de volumen que ocupan las partículas en el volumen que las contiene. En la parte experimental se ha validado el proceso de fabricación que permite obtener recubrimientos magnéticos sobre un objeto cuya forma sirve para definir la geometría del ensamble. El enfoque propuesto que se basa en mezclas de ácido esteárico y un ferrofluido comercial es un método simple y de bajo costo para obtener recubrimientos magnéticos. Sin embargo, a nivel macroscópico la medición de propiedades magnéticas es muy difícil ya que los sistemas de caracterización comúnmente utilizados, como sería el caso de un magnetómetro, limitan el tamaño de la muestra que se va a medir. Es decir, para medir una muestra se requiere cortar un volumen lo suficientemente pequeño a fin de que pueda ser acomodado en el equipo, pero esto implica (en nuestro caso) destruir el efecto de la geometría del volumen macroscópico del ensamble. A pesar de esto, los resultados son interesantes ya que validan un procedimiento general para producir de manera práctica y de bajo costo, recubrimientos que son a su vez hidrofóbicos y magnéticos, lo cual ha sido explotado dentro del mismo grupo de trabajo para producir sistemas de separación de aceites en agua.

El manuscrito se ha dividido en nueve capítulos seguidos de la conclusión general y las perspectivas. Se inicia con un primer capítulo en el que se propone un marco teórico básico el cual aporta el sustento formal del problema de estudio. A continuación se hace una revisión sobre el estado del arte del tema que nos ha servido para identificar avances y carencias así como áreas de oportunidad. Lo anterior proporciona los elementos para poder presentar en otro capítulo el planteamiento del problema de estudio, la hipótesis así como los objetivos y metas. Con el fin de presentar las herramientas empleadas, se dedica un capítulo para describir los materiales y métodos empleados en el trabajo. Siguen después cinco capítulos de resultados, uno para cada método que se ha propuesto y validado, en particular el método de la diferencia de áreas contenidas en los ciclos menores, seguido del método de las intersecciones en las derivadas de los ciclos menores, para posteriormente presentar el método del corrimiento de las curvas de retorno de primer orden, continuando con el método de la transformación que genera la distribución intrínseca de campos de rotación recorrida. Finalmente se presentan los primeros resultados obtenidos en la propuesta de elaboración de sistemas complejos a partir de formar estructuras macroscópicas que contienen nanopartículas magnéticas.

Capítulo 1

Marco teórico

En este trabajo nos hemos interesado en los ensambles de partículas magnéticas biestables. Estas son partículas que tienen un comportamiento casi ideal y cuando consideramos un ensamble aparecen efectos relacionados con la interacción dipolo-dipolo. La interacción tiene varios efectos en las propiedades de un ensamble y eso es parte de la problemática que nos ha interesado. Otra problemática relacionada es referente al desarrollo de metodologías que permitan medir el campo de interacción. En este capítulo se presentan la información básica que dan el sustento a los diferentes problemas estudiados, los resultados y su interpretación.

1.1. Material magnético

En este trabajo nos interesan sistemas formados por materiales magnéticos. En este caso nos referimos a materiales de tipo ferromagnéticos o ferrimagnéticos. Otras variantes como son diamagnéticos, paramagnéticos, anti ferromagnéticos y superparamagnéticos, no son de interés para el presente trabajo.

Para los materiales de interés iniciamos suponiendo que en un material cada átomo tiene un momento magnético atómico $\vec{m}_0$, como se ilustra de manera esquemática en la figura 1.1¹. Este momento atómico es característico de cada material y la magnetización total del material $\vec{M}_T$ es la suma de todos los momentos atómicos,

$$\vec{M}_T = \sum \vec{m}_0. \quad (1.1)$$

¹En lo siguiente consideramos el momento magnético resultante de los ferrimagnéticos como el equivalente al atómico aunque se trata de la suma resultante de dos momentos atómicos antiparalelos.

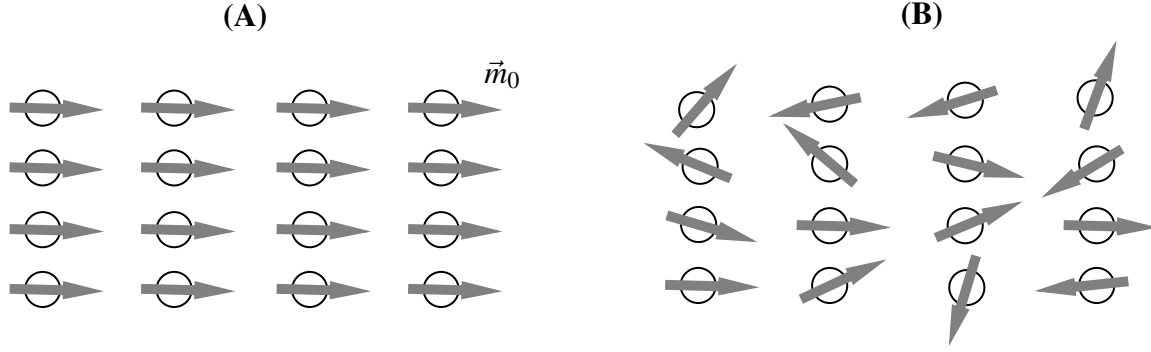


Figura 1.1: Esquema de material con momentos magnéticos atómicos $\vec{m}_0$ cuando (A) todos los momentos son paralelos y, (b) cuando no son paralelos.

Se usa la forma vectorial ya que los momentos magnéticos pueden o no estar orientados de manera ordenada. Por ejemplo, en la figura 1.1 (A) se ilustra el caso particular cuando todos los momentos son paralelos y en (B) un caso en el que no lo son. En ambos casos $\vec{M}_T \neq 0$ y nos referimos a diferentes configuraciones como diferentes estados magnéticos del sistema. Sin embargo, es claro que el valor máximo de $\vec{M}_T$ se obtiene cuando los momentos magnéticos son paralelos entre sí, como en la figura 1.1 (A). Dado que la magnetización total ya no puede aumentar, nos referimos a este estado como el estado saturado o estado de saturación magnética. Si todos los momentos magnéticos son paralelos, entonces la magnitud del vector de magnetización total es, según (1.1), $|\vec{M}_T| = n|\vec{m}_0|$, donde n es el número de átomos en el material. Esta magnetización máxima se le llama *magnetización de saturación* y se le asigna el símbolo $\vec{M}_s$. Cuando consideramos el material finito, podemos relacionar su densidad con

Cuadro 1.1: Magnetización de saturación de los elementos ferromagnéticos a temperatura ambiente, [50].

Material	emu/cm ³
Hierro	1710
Níquel	485
Cobalto	1431
Gadolinio	1090

el número de átomos, lo que nos permite escribir la magnetización de saturación como una densidad volumétrica o de masa. Estos valores son conocidos y se pueden encontrar en libros de texto. En la Tabla 1.1 se dan los valores de la magnetización de saturación de los elementos ferromagnéticos. Las unidades de M_s como densidad volumétrica en CGS se expresan en emu/cm³, donde el emu se corresponde a unidades electromagnéticas que son las unidades empleadas para la magnetización en el sistema CGS [50].

En general estamos interesados en la respuesta de los momentos magnéticos del material o de su vector de magnetización $\vec{M}$ a la acción de un campo aplicado $\vec{H}_A$. Es decir, asumimos que $\vec{M} = \vec{M}(\vec{H}_A)$.

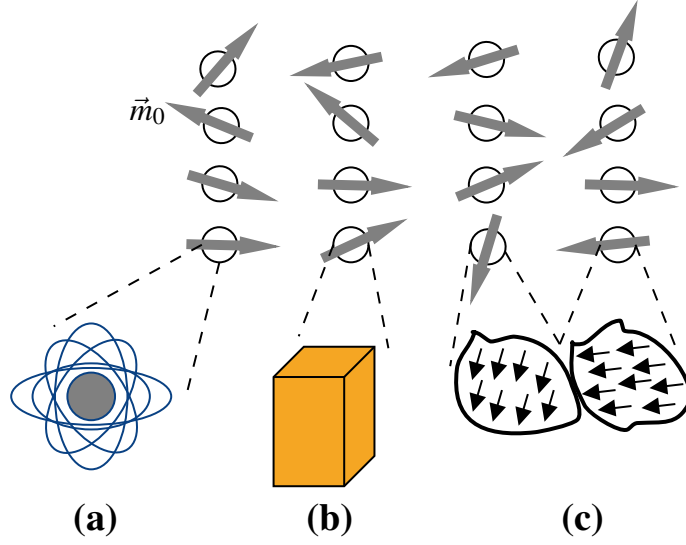


Figura 1.2: Arreglo magnético de (a) átomos, (b) partículas y (c) dominios magnéticos.

El problema relacionado al estudio de esta función $\vec{M} = \vec{M}(\vec{H}_A)$ es muy complejo y variado. Por ejemplo, la figura 1.1 muestra un esquema muy simplificado y el cual podemos imaginar para situaciones más complejas como se ilustra en la figura 1.2. Aquí se consideran tres casos que pueden ser representados con el mismo esquema, simplemente cada sitio es una entidad diferente. En el inciso (a) sería el caso en que cada sitio es un átomo con su respectivo momento atómico. El inciso (b) representa el caso en que cada sitio contiene una partícula magnética con su respectivo momento magnético y esquema total representa un ensamble de partículas. Mientras que en (c) se considera el caso de un material que tiene dominios magnéticos y cada nodo es un dominio, al interior del cual los momentos magnéticos son paralelos entre sí. Pero incluso, este inciso (c) podría igual representar granos en un material magnético policristalino. Es decir, hay muchos escenarios a los que aplica el esquema del arreglo de sitios con momento magnético.

La relación entre la situación ilustrada en la figura 1.2 y la función $\vec{M} = \vec{M}(\vec{H}_A)$ es estudiar cómo responde el material cuando se le aplica el campo externo tomando en cuenta las especificidades del sistema que se desea describir.

Cuando se aplica un campo magnético, los momentos magnéticos del material (ferro- o ferri- magnético)) buscan alinearse paralelamente a la dirección del campo. Decimos que el material se polariza bajo la acción del campo. Es decir, $\vec{M} = \vec{M}(\vec{H}_A)$. La relación causa-efecto entre campo magnético (causa) y el cambio o la respuesta que produce en un material (efecto) se expresa como [51, 52, 53, 54],

$$M = \chi H, \quad (1.2)$$

donde χ es la susceptibilidad magnética del material y expresa la facilidad o dificultad (o resistencia) con la que el material se polariza. La expresión anterior es una relación lineal. Esto supone que la susceptibilidad χ es constante, lo cual solo se cumple en ciertos casos

particulares. De manera más general χ no es constante y se define como [50, 52, 53],

$$\chi = \frac{dM}{dH}. \quad (1.3)$$

Cuando un material magnético se polariza, el mismo produce un campo magnético a su exterior. La máxima polarización que puede alcanzar el material es en su estado saturado y el mínimo sería cuando la polarización es cero, ya que se considera solo el valor absoluto. La ecuación constitutiva establece la relación entre el campo magnético (H), la inducción magnética (B) y la contribución de un medio material magnético. Esto es,

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}), \quad (1.4)$$

B tiene unidades de Tesla=[Wb m⁻²], mientras que H y M tienen unidades de [A m⁻¹] y $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ [Wb Am⁻¹m⁻¹]. Esta expresión nos dice que el campo de inducción magnética total en el espacio es la suma de los campos producidos por corrientes en conductores (H) y la polarización del material M al estar sujeto al campo aplicado H .

Si sustituimos la magnetización por la susceptibilidad usando la ec. (1.2),

$$\vec{B} = \mu_0(1 + \chi)H = \mu_0\mu_r H, \quad (1.5)$$

donde $\mu_r = 1 + \chi$ está definida como la permeabilidad relativa del material.

La ecuación (1.4) toma otra forma muy practica en el sistema CGS [52],

$$\vec{B}_{[Gauss]} = \vec{H}_{[Oe]} + 4\pi\vec{M}_{[emu/cm^3]}. \quad (1.6)$$

De esta ecuación vemos que la *respuesta* corresponde al segundo término del lado derecho de la ec. (1.6). Dicho de otra forma, ya que en la ausencia de un medio material $B = H$. Sigue que si $B \neq H$ es debido a la contribución del material. Esta respuesta se puede analizar como $\vec{M} = \vec{M}(\vec{H}_A)$ o bien en función de la susceptibilidad magnética del material χ .

1.2. Procesos y curvas de magnetización

Con el fin de estudiar o caracterizar como es la respuesta del material a la acción de un campo magnético aplicado, recordamos que $\vec{M} = \vec{M}(\vec{H}_A)$ y por otra parte, $M = \chi H$ que como se explicó nos dice la razón a la cual el material se polariza al aplicarle un campo magnético. Es decir, la magnetización es una función del campo aplicado y por lo tanto podemos graficar la respuesta como una gráfica o curva $M(H)$ en el plano $M - H$. A estas gráficas se les conoce como curvas de magnetización contra campo o simplemente curvas $M(H)$. Hay muchos tipos de curvas de magnetización, aquellas que son más relevantes para el trabajo serán discutidas en detalle en la sección 1.10.

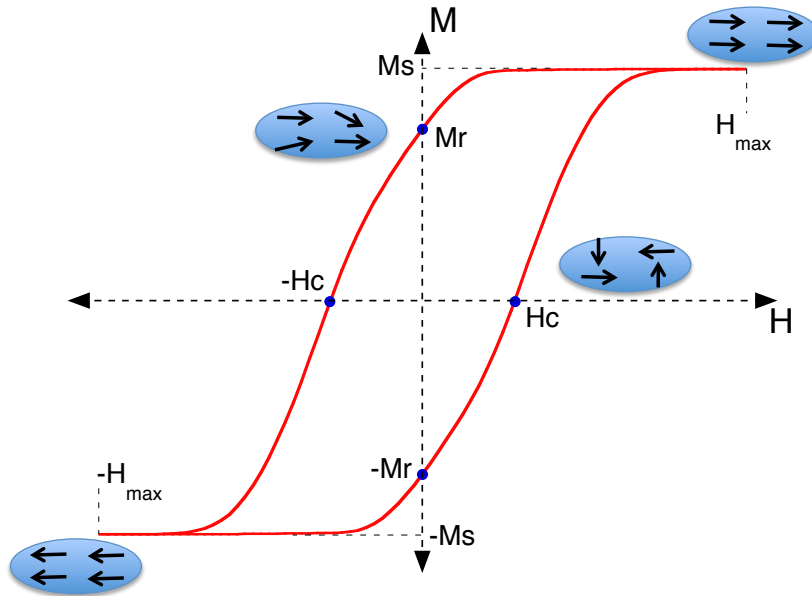


Figura 1.3: Ciclo de histéresis y esquema de las configuraciones magnéticas representativas en el estado saturado, en el estado remanente y en el campo coercitivo.

Como ya se mencionó, la respuesta del material a la acción del campo aplicado se analiza graficando la magnetización como función del campo: $M = M(H)$. Estas mediciones requieren la aplicación de un campo magnético homogéneo cuya dirección es fija y lo que se varía es su magnitud. Por su parte, lo que se mide y se grafica es la componente del vector de magnetización en la dirección del campo aplicado.

Para el caso de materiales ferro- y ferri-magnéticos, la curva de magnetización más común es el ciclo de histéresis. Los ciclos de histéresis constituyen la medición magnética más básica y aceptada. Proporcionan una gran cantidad de información sobre las propiedades magnéticas del sistema [50, 53, 54]. Los ciclos de histéresis pueden presentar formas muy variadas, sin embargo todos poseen ciertas propiedades y magnitudes características comunes que describiremos brevemente. La Figura 1.3 muestra un ciclo de histéresis típico, conocido como el ciclo mayor, la medición este ciclo inicia con la aplicación de un campo magnético positivo grande en una dirección determinada, el cual se denomina H_{max} . La magnitud, y únicamente la magnitud, de este campo es reducida, pasando por cero e invirtiendo su signo hasta llegar a un valor máximo negativo, $-H_{max}$. Esto corresponde a la mitad del ciclo, la segunda mitad consiste en hacer variar nuevamente el campo desde $-H_{max}$ hasta llegar nuevamente a H_{max} . Es común referirse a los dos segmentos o las dos partes del ciclo como la parte o el segmento decreciente para la mitad del ciclo que va de la saturación positiva a la negativa y la parte, o segmento, ascendente a la parte del retorno de la saturación negativa hacia la positiva.

Al iniciar el barrido de campo en H_{max} se busca un valor tal que el material se encuentre

en el estado de saturación magnética; es decir, que todos los momentos magnéticos atómicos del material estén orientados en la dirección del campo aplicado, como lo muestra el diagrama con flechas en la Figura 1.3. Este estado es muy importante, ya que sirve como el estado magnético de referencia y a partir del cual se analiza todo ciclo de histéresis. La importancia del estado saturado radica en que sirve para borrar toda la historia del material. Es también el valor máximo que alcanza la magnetización y que corresponde a la magnetización de saturación, M_s , como se indica en la Figura 1.3.

Al reducir la intensidad del campo, se llega a un valor en el cual la magnetización empieza a variar, disminuye su valor con respecto al estado saturado, el campo al que inicia esta variación se le conoce como la salida de la saturación. Conforme se reduce la magnitud del campo aplicado, el valor de la magnetización sigue disminuyendo. Cuando el campo aplicado llega a cero, se observa que la magnetización posee un valor, a este valor se le llama la magnetización remanente, M_{rem} , o simplemente remanencia, como se puede ver en la Figura 1.3. Esta cantidad se expresa siempre como una fracción o porcentaje respecto al valor medido en la saturación M_s . Este estado como se ilustra con el diagrama corresponde a una configuración no homogénea de la magnetización total del material, y su valor depende de la suma vectorial de todos los momentos magnéticos.

Al continuar variando el campo aplicado hacia valores negativos, se llega a un valor para el cual la magnetización pasa por cero, y que para valores de campo más negativos, la magnetización toma valores negativos. Al campo para el cual se anula la magnetización se conoce como campo coercitivo (H_c), el cual se indica en la Figura 1.3. Como lo muestra el diagrama, en este punto la configuración de la magnetización total del material es tal que su suma vectorial es igual a cero.

Cuando el campo aplicado negativo aumenta, la magnetización se acerca a su valor negativo de saturación, lo que se conoce como la llegada a la saturación. Cuando se alcanza el valor negativo del campo máximo, se llega al estado de saturación negativo, que es igual que el positivo pero con dirección contraria, como se muestra en el diagrama.

Al hacer la segunda parte del ciclo, el campo es barrido desde $-H_{max}$ hasta H_{max} y observamos el mismo comportamiento luego que la magnetización se inicia en la saturación negativa y rota hasta llegar a la saturación positiva. La parte ascendente del ciclo de histéresis [$M'(H')$] corresponde a la transformada de espejo de la parte descendiente [$M(H)$] en ambas cantidades: $M' = -M$ y $H' = -H$.

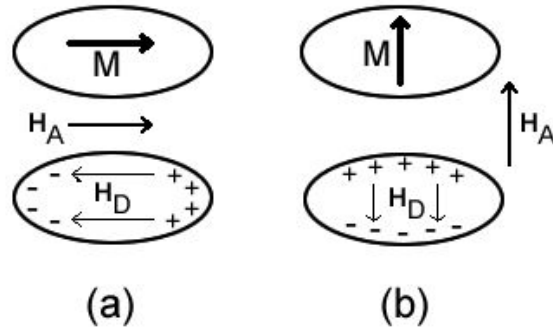


Figura 1.4: Vectores de magnetización (M), campo aplicado (H_A), campo desmagnetizante (H_D) y cargas magnéticas superficiales respecto a un objeto cuya forma es no circular (esférica). La magnitud del vector de campo desmagnetizante depende de la distancia entre los polos lo cual depende de la forma del objeto, como se ilustra para los ejes (a) largo y (b) corto.

1.3. Campo desmagnetizante

Cuando aplicamos un campo magnético, la respuesta del material es que su magnetización cambia. Resulta que esta respuesta depende de la forma y dimensiones del material, por lo que es necesario tomar en cuenta el hecho de que todo material es finito.

Para un material finito necesitamos considerar que la susceptibilidad magnética se debe definir considerando el volumen y la forma del material. Para entender esto, necesitamos introducir un nuevo campo magnético que se conoce como *campo desmagnetizante* (H_D) [50, 53]. Este campo aparece en cuerpos finitos cuando la magnetización del material es diferente de cero.

En electromagnetismo clásico, decimos que cuando la magnetización de un material es diferente de cero, se hacen "visibles" sus polos norte y sur, y esto se relaciona a un proceso de acumulación de polos magnéticos en la superficie del material. A esta densidad de polos se le conoce como densidad superficial de cargas magnéticas (σ) y está definida como [50, 53]

$$\sigma = \vec{m} \cdot \hat{n}, \quad (1.7)$$

donde $\hat{n}$ es el vector normal a la superficie.

Adoptemos la convención de identificar los polos magnéticos como positivo y negativo, como norte y sur respectivamente y que las líneas de campo emanan de los polos o cargas magnéticas positivas y convergen a los polos o cargas magnéticas negativas. La situación se ilustra en la figura 1.4.

Cuando un material se magnetiza en la dirección del campo aplicado la magnetización busca alinearse paralelamente al campo: $\vec{M} \parallel \vec{H}_A$. Al exterior del material vemos que aparecen líneas de campo cuya intensidad es proporcional a la cantidad de carga magnética acumulada en la superficie. Por convención también se adopta que en el polo norte las líneas emanen del material mientras que estas convergen o son entrantes en el polo sur. Como consecuencia, al interior del material vemos que debido a que hay líneas de campo que salen de las cargas positivas y convergen en las negativas, entonces al interior del material aparece un campo antiparalelo al campo aplicado y a la magnetización inducida. Este campo siempre es contrario (antiparalelo) a los campos $\vec{M}$ y $\vec{H}_A$ e intuitivamente vemos que su magnitud depende de la cantidad de carga magnética superficial acumulada. Si no hay cargas magnéticas acumuladas, este campo vale cero y su valor máximo se alcanza cuando se llega al estado saturado y la densidad superficial de cargas magnéticas se satura en su valor máximo. Este campo que aparece al interior del material cuando la magnetización es diferente de cero se le conoce como campo desmagnetizante (H_D). En nombre de *desmagnetizante* sigue de que al ser un campo opuesto a la magnetización inducida, su acción en el proceso de magnetización es dificultar que el material se magnetice o lo que es equivalente, busca desmagnetizar el material.

Mas aun, como es el campo que va de las cargas positivas a las negativas al interior del material, es claro que la intensidad de este campo depende de la distancia que separa a las cargas positivas de las negativas. Por lo anterior vemos que las propiedades del campo desmagnetizante dependen fuertemente de la forma y dimensiones del material, como se muestra en la figura 1.4.

El procedimiento para encontrar este campo es descrito en varios libros de texto, aquí nos basamos en la descripción hecha por A. Aharoni [55]. Consideramos que el material es continuo y entonces el problema se describe a partir de las ecuaciones de Maxwell. Si además no hay corrientes eléctricas o corrientes de desplazamiento, $\nabla \times \vec{H} = 0$ y $\nabla \cdot \vec{B} = 0$. En este caso el potencial magnético dentro del material es

$$U = \int \frac{-\nabla \cdot \vec{M}}{|r - r'|} dv' + \int \frac{\vec{M} \cdot \hat{n}}{|r - r'|} ds'. \quad (1.8)$$

Para un objeto uniformemente magnetizado, la densidad volumétrica de carga $\rho = \nabla \cdot \vec{M} = 0$. Tomando que $\vec{H} = -\nabla U$, se tiene que el campo dentro del material esta dado por,

$$\vec{H} = -\nabla \left(\vec{M} \cdot \int \frac{\hat{n}}{|r - r'|} ds' \right), \quad (1.9)$$

en este caso, $\vec{M}$ sale de la integral por que se ha supuesto que el material esta uniformemente magnetizado y por lo tanto las componentes de $\vec{M}$ son constantes. Eso quiere decir que cada componente de $\vec{H}$ es una función lineal de las componentes, M_x , M_y y M_z de $\vec{M}$. Mas aun, de la relación entre el campo y la energía, al suponer M constante, se tiene que,

$$E = -\frac{1}{2} \vec{M} \cdot \int \vec{H} dv, \quad (1.10)$$

donde nuevamente $\vec{M}$ sale de la integral. Con esto llegamos a la siguiente conclusión para un objeto uniformemente magnetizado: al combinar las dos últimas expresiones vemos que la energía magnetostática es una forma cuadrática de las componentes de $\vec{M}$, por lo que esta se puede escribir como,

$$E = \frac{1}{2}V(N_{11}M_x^2 + N_{12}M_xM_y + \dots), \quad (1.11)$$

donde N_{ij} son constantes que únicamente dependen de la forma del objeto. Estas N_{ij} se conocen como factores desmagnetizantes y reflejan como se distribuye la carga magnética en toda la superficie del material, es decir, nos proporcionan la información geométrica del material y están relacionadas con la integral que aparece en la Ec. (1.9). Por otro lado, el teorema de Brown-Morrish dice que, siempre es posible rotar el eje de coordenadas de tal manera que esta forma cuadrática sea diagonal [55, 56],

$$E = \frac{1}{2}V(N_xM_x^2 + N_yM_y^2 + N_zM_z^2), \quad (1.12)$$

además que en esta forma diagonal las tres componentes N_x , N_y y N_z son números no negativos cuya suma es 4π (CGS) o 1 (MKS).

La ecuación (1.11) es la forma más general de la energía magnetostática de un cuerpo ferromagnético *uniformemente magnetizado*, válida para cualquier forma que tenga el objeto.

1.3.1. Relaciones generales del factor desmagnetizante

El factor desmagnetizante N es un tensor de segundo orden. Por lo que el campo desmagnetizante se puede escribir como:

$$\vec{H}_D = -N \cdot \vec{M}, \quad (1.13)$$

donde el signo menos es porque este campo es opuesto al vector de magnetización. La energía magnetostática o la auto energía es

$$E_D = \frac{1}{2}\vec{M} \cdot N \cdot \vec{M}. \quad (1.14)$$

En su forma diagonal, el factor desmagnetizante se puede escribir como,

$$N = \begin{pmatrix} N_x & 0 & 0 \\ 0 & N_y & 0 \\ 0 & 0 & N_z \end{pmatrix}. \quad (1.15)$$

y adicionalmente se tiene que $\text{Tr}(N) = 4\pi$ (CGS).

A continuación se muestran los valores de los factores desmagnetizantes para las geometrías esférica, cilíndrica y elipsoidal.

Geometría	N_{xx}	N_{yy}	N_{zz}
Esfera	$4\pi/3$	$4\pi/3$	$4\pi/3$
Cilindro	2π	2π	0
Placa	0	0	4π

Cuadro 1.2: Factores desmagnetizantes para los casos límites de un elipsoide [50].

Por último, otra relación que es muy empleada en este trabajo es el caso particular de la ecuación (1.10), que relaciona la energía con el campo. Esto es importante porque permite pasar de una representación a otra sabiendo que a cada termino de energía le corresponde un campo y que experimentalmente lo que se miden son campos. La relación entre energía y campo es,

$$E = \frac{1}{2} M_s \hat{m} \cdot \vec{H}, \quad (1.16)$$

de donde podemos llegar a otra expresión importante que relaciona la energía magnetostática con el campo desmagnetizante,

$$E_D = \frac{1}{2} \vec{M} \cdot \vec{H}_D. \quad (1.17)$$

Estas expresiones son válidas para un solo objeto magnetizado uniformemente y como veremos son de gran importancia para este trabajo.

El campo interno es un concepto introducido ya desde la época de Maxwell [57] y simplemente tiene que ver con el hecho de que cuando un material es expuesto a un campo aplicado, este "siente o ve" también el campo producido por el mismo, es decir el campo desmagnetizante. La definición de este campo es

$$\vec{H}_i = \vec{H}_A - N \cdot \vec{M}. \quad (1.18)$$

Esta expresión, de acuerdo con lo discutido anteriormente, quiere decir que el campo total que experimenta la muestra no solo depende del campo aplicado sino también de su forma. Si además consideramos que el valor del campo desmagnetizante puede variar a lo largo de diferentes direcciones, entonces resulta que la medición de M en función de H_A será influenciada por la forma del material y esta influencia depende de la dirección en la que se aplica el campo con respecto a la muestra.

La manera más directa de ver eso, es considerando como una elipse como la que se muestra en la figura 1.4 es llevada del estado desmagnetizado a la saturación cuando el

campo se aplica paralelo al eje largo de la elipse y a lo largo del eje corto, así como se muestra en la figura 1.5.

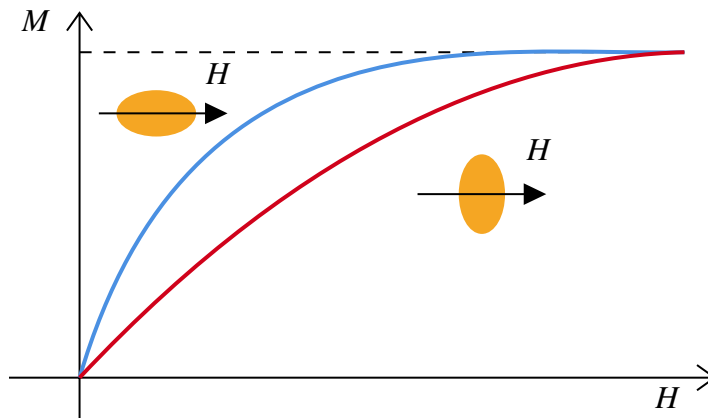


Figura 1.5: Curvas de magnetización para una elipse inicialmente desmagnetizada con el campo aplicado paralelo al eje largo de la elipse y a lo largo del eje corto.

Según lo discutido en las secciones anteriores, uno esperaría que el estado de saturación sea alcanzado a campos más bajos cuando el campo es aplicado paralelo al eje largo que cuando se aplica a lo largo del eje corto de la elipse ya que en el eje largo el campo desmagnetizante es menor que el correspondiente al eje corto. Por lo que las curvas de magnetización se verían como las mostradas en la figura 1.5, donde claramente se necesita aplicar un campo mayor a lo largo del eje corto de la elipse.

En este ejemplo sencillo podemos ver que a mayor campo desmagnetizante se requiere de mayor campo aplicado para llevar al material al estado de saturación, a pesar de que se trata del mismo material. Por esta razón el campo interno adquirió importancia. Este concepto fue introducido para poder restar el efecto del campo desmagnetizante de las mediciones y así poder acercarse a lo que son las propiedades intrínsecas del material. En efecto, podemos ver de la ecuación (1.18) que si conocemos el campo desmagnetizante, podemos restarlo del campo interno y eso en principio elimina los efectos de los polos y nos permite recuperar la curva que es intrínseca al material. Este se conoce como el problema de la compensación de los polos y se encuentra descrito en muchos libros de texto [50, 58] y que revisamos a continuación.

1.3.2. Sesgo de la curva de histéresis

El ejemplo anterior nos muestra que el campo desmagnetizante cambia la respuesta del material, es decir, la curva de magnetización medida depende de H_d y por lo tanto depende de la forma y dimensiones del material.

Estos efectos son tomados en cuenta por el campo interno. En particular, de la ecuación (1.18), vemos que el campo interno en un punto dado es diferente al valor del campo aplicado y la diferencia viene del campo desmagnetizante. Por su parte el campo desmagnetizante es proporcional a la magnetización y por lo tanto varía con el estado de magnetización del material. Mientras que el factor desmagnetizante depende de la forma y dimensiones del material. Esto implica que la curva de magnetización ya no es únicamente una función del campo aplicado, sino que es función del campo interno,

$$M(H_a) \longrightarrow M(H_a - NM). \quad (1.19)$$

La consecuencia de esto es que la curva medida sigue una transformación llamada de sesgo cuya magnitud depende del factor desmagnetizante. Esto se ilustra de manera esquemática en la figura 1.6.

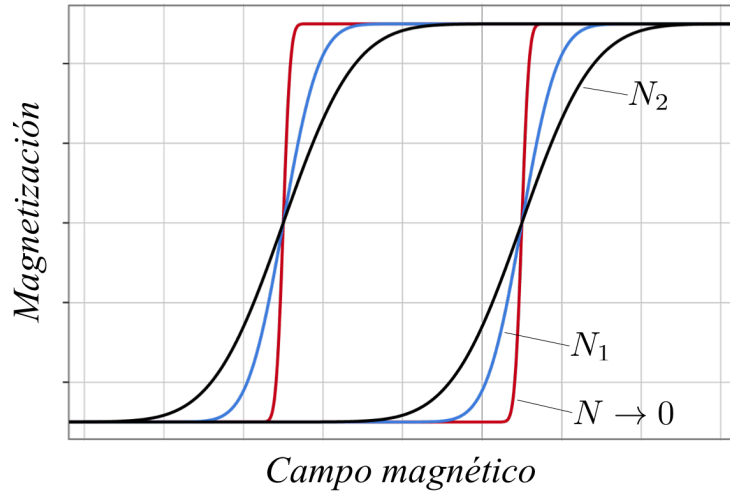


Figura 1.6: Ciclos de histéresis sesgados por diferentes factores desmagnetizantes N .

Este efecto del campo interno y del sesgo de las curvas $M(H)$ es muy fundamental ya que implica que:

1. un mismo material con diferente forma, cada una con su respectivo factor desmagnetizante, tendrá diferentes curvas de magnetización. Como se muestra en la figura 1.6, dependiendo del valor del factor desmagnetizante, cambia la pendiente en el campo coercitivo y por lo tanto está cambiando la susceptibilidad. Esto quiere decir que la susceptibilidad medida no necesariamente corresponde a la intrínseca y éstas serán diferentes si el material es finito ($N \neq 0$).
2. Según la forma y dimensiones que tenga un material, los factores desmagnetizantes a lo largo de los ejes principales son diferentes (salvo para la esfera) y por lo tanto los ciclos de histéresis correspondientes serán diferentes (la anisotropía de forma, siguientes secciones) como se ilustra en la figura 1.6.

Así pues, la curva original o intrínseca será deformada por una cantidad que depende de N . La corrección de este efecto desmagnetizante corresponde a realizar la operación necesaria para quitar la contribución NM . Esta corrección equivale a remover el sesgo y es el problema que ya mencionamos como el problema de la compensación de los polos [50, 57]. Para realizar la corrección notamos que el valor de M varía con el campo y del campo interno, ec. (1.18), se puede recalculer el campo aplicado como:

$$H_A = H_i + NM. \quad (1.20)$$

Estos efectos siguen directamente del hecho de que el material es finito. En ese momento los efectos desmagnetizantes son no-nulos y por lo tanto, las propiedades medidas e intrínsecas serán diferentes. La corrección del sesgo busca eliminar las contribuciones desmagnetizantes.

En efecto, de la ecuación (1.20) vemos que si hacemos el material infinito de manera que $N \rightarrow 0$, recuperamos $H_i = H_A$.

Para la susceptibilidad promedio (pendiente en el campo coercitivo) tenemos la susceptibilidad medida χ y la intrínseca χ_0 . Tomando $M = \chi H$ en la ec. (1.20), las susceptibilidades medida e intrínseca están relacionadas por,

$$\chi = \frac{\chi_0}{1 + \chi_0 N}. \quad (1.21)$$

Para un material magnético fuerte (M_s grande), $\chi_0 N \gg 1$ de manera que

$$\chi \approx \frac{1}{N}, \quad (1.22)$$

esto es, la pendiente de ciclo de histéresis en el campo coercitivo es inversamente proporcional al factor desmagnetizante, como se sugiere en la figura 1.6. A mayor factor desmagnetizante, se hace más difícil magnetizar el material y esto es consistente con una disminución en la pendiente. A revés, a menor campo desmagnetizante se hace más fácil magnetizar el material o se requiere de menos campo para magnetizarlo, lo que se manifiesta como un aumento en la pendiente.

1.4. Anisotropía magnética

La anisotropía magnética es una propiedad fundamental en todos los materiales magnéticos y se refiere al hecho de que la respuesta del material a la acción de un campo magnético externo depende de la dirección en la que se aplica dicho campo con respecto al material [50].

La anisotropía magnética se manifiesta de varias maneras y tiene como principal consecuencia que el momento magnético de un material posea una dirección preferencial en la ausencia de un campo aplicado. Experimentalmente, la anisotropía magnética se observa como la diferencia entre las curvas de histéresis medidas en diferentes orientaciones del campo aplicado con respecto a la muestra.

De manera general, al realizar un ciclo en campo para diferentes direcciones, se observa que cuando el material es anisotrópico siempre existe una dirección en la cual es más fácil magnetizar al material, esto es, requiere de menos energía para alcanzar el estado de saturación magnética. Así mismo, existe también una dirección para la cual la energía requerida para magnetizar completamente el material es máxima, es decir, es la dirección más difícil para polarizar el material.

En la terminología normal, estas direcciones son conocidas como la dirección fácil y la dirección difícil del material. Para cada una de estas direcciones se puede cuantificar la energía necesaria para saturar el material y la diferencia entre estas energías es lo que se conoce como la energía de anisotropía magnética K ,

$$K = E_{difícil} - E_{fácil}. \quad (1.23)$$

La anisotropía magnética puede tener diferentes orígenes, las más comunes son las siguientes [50]:

- Anisotropía magnética de forma
- Anisotropía magneto cristalina
- Anisotropía magneto elástica
- Anisotropías inducidas

donde las primeras tres son las más frecuentes debido a que suelen ser intrínsecas al material, a sus dimensiones y a su forma. Las anisotropías inducidas son por lo general poco utilizadas.

El problema central de la anisotropía magnética es que un material dado, puede presentar cualquiera de estas anisotropías o combinaciones de ellas, por lo que las mediciones de la energía de anisotropía generalmente reflejan la combinación de todas las diferentes anisotropías presentes en el material. Así pues, se habla de una anisotropía magnética efectiva, K_{EF} , y que ésta resulta de la superposición de las diferentes anisotropías presentes [59].

$$K_{EF} = \sum K_i. \quad (1.24)$$

Además de poder encontrar combinaciones de diferentes anisotropías magnéticas, cada una de ellas, en función de su origen, pueden presentar diferentes simetrías, es decir, diferentes

direcciones fáciles y difíciles. Por lo que es necesario incorporar una dependencia funcional de las anisotropías con respecto a un sistema de coordenadas.

De las tres anisotropías citadas anteriormente, la anisotropía de forma está asociada a la forma y geometría del material, por lo que su simetría está dictada por este parámetro. Por otra parte, las anisotropías magneto cristalina y magneto elástica tienen su origen en el acoplamiento espín-órbita que acopla el momento magnético de espín con el orbital. El momento orbital en un sólido posee la simetría impuesta por la estructura cristalográfica del material, por lo que dicha simetría es reflejada también en la anisotropía magnética.

En los metales de transición, a temperatura ambiente, se sabe que los efectos magneto elásticos son despreciables, por lo que generalmente el problema de la anisotropía magnética se reduce a considerar únicamente las anisotropías de forma y magneto cristalina, las cuales son descritas con más detalle a continuación.

1.4.1. Anisotropía magneto cristalina

El tipo de anisotropía más común es la anisotropía magneto cristalina, la cual resulta de la interacción espín-órbita de los electrones. La simetría de los orbitales electrónicos está dictada por la estructura cristalográfica y debido a su interacción con los espines hace que estos últimos prefieran alinearse a lo largo de direcciones cristalográficas bien definidas. Por lo tanto, existen direcciones en el espacio a lo largo de las cuales es más fácil magnetizar el material que con respecto a otras. La interacción espín-órbita puede ser evaluada teóricamente. Sin embargo, es más fácil utilizar expresiones fenomenológicas, en particular expansiones en serie que tomen en cuenta la simetría del cristal y tomando los coeficientes a partir de experimentos.

El acoplamiento orbital es también fuerte, esto se sigue del hecho de que el momento orbital magnético está minimizado. Existe también el acoplamiento entre el espín y el acoplamiento orbital de cada electrón. Cuando un campo externo trata de reorientar el espín de un electrón, la órbita del electrón también tiende a ser reorientada, pero debido a que esta orientación depende directamente de la red cristalina, intenta rotar el eje del espín. La energía requerida para rotar el sistema del espín de un dominio lejos de la dirección fácil es llamada energía de anisotropía y es justo la requerida para vencer el acoplamiento espín-órbita. Este acoplamiento es relativamente débil, porque campos de algunos cientos de Oersteds son suficientes para rotar los espines.

Comúnmente, la energía de anisotropía es tratada en base a un modelo fenomenológico. Para un cristal cúbico, la densidad de energía libre $f(\vec{m})$ puede expresarse como una serie de

los cosenos directores α_i ($i = 1, 2, 3$) del vector de magnetización $\vec{m} = \vec{M}/M_s$. Como solo las potencias pares son consistentes con la simetría y dado que el primer término cuadrático $\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 = 1$, es una constante y las combinaciones lineales que resultan de esta constante, tenemos entonces que la energía libre puede escribirse como

$$f_A(\vec{m}) = K_0 + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) + \dots, \quad (1.25)$$

donde $K_0, K_1, K_2, \dots$ son constantes de un material en particular en unidades de erg/cm³. Debido a que las potencias mayores a dos son despreciables, entonces es común truncar la serie hasta K_2 , sin embargo en algunos casos ésta constante también puede no contribuir significativamente a la energía. Además, dado que la energía cambia cuando la magnetización rota de una dirección a otra, entonces la constante K_0 generalmente es ignorada de la serie.

Cuando solo la contribución de K_1 es importante tenemos la presencia de anisotropía uniaxial, y cuando $K_1 > 0$ entonces $\langle 100 \rangle$ es la dirección fácil o de mínima energía y $\langle 111 \rangle$ es la dirección de máxima energía para $\vec{m}$. Pero cuando $K_1 < 0$, la dirección fácil es $\langle 111 \rangle$ y la dirección difícil es $\langle 100 \rangle$. Los materiales que se caracterizan por poseer anisotropías de este tipo son el hierro y el níquel cuando $K_1 > 0$ y $K_1 < 0$ respectivamente. Al tener $K_2 \neq 0$, la dirección de mínima energía es determinada por ambos valores de K_1 y K_2 .

Para las estructuras hexagonales compactas como las que se presentan en el cobalto, la dirección del eje fácil de magnetización es a lo largo del eje- c y la dirección de máxima energía para la magnetización es perpendicular a este eje. De esta manera, el cobalto presenta anisotropía uniaxial y por tanto la energía es invariante con respecto a rotaciones alrededor del eje de anisotropía, es decir, solo depende de la orientación relativa de $\vec{m}$ con respecto al eje fácil. Bajo estas condiciones la energía de anisotropía es una función par de la componente de magnetización $m_z = \cos\theta$

$$f_A(\vec{m}) = K'_0 + K'_1 \cos^2 \theta + K'_2 \cos^4 \theta + \dots. \quad (1.26)$$

Generalmente esta expansión es expresada en términos de $\sin\theta$ sustituyendo $\cos^2\theta$ por $1 - \sin^2\theta$ en la ecuación (1.26). De esta manera tenemos que la energía de anisotropía magneto cristalina para un cristal hcp es como sigue

$$f_A(\vec{m}) = K_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + \dots. \quad (1.27)$$

De la misma manera que para los cristales cúbicos, la constante K_0 puede ser ignorada

de la serie, y si K_2 es lo bastante pequeña, entonces sólo K_1 es importante y la dirección de mínima energía se da a lo largo del eje de anisotropía cuando $\theta = 0$ ó $\theta = \pi$ y la dirección difícil es perpendicular a ésta. Al ser K_2 significativa, el mínimo de energía se presenta a lo largo del eje fácil ($\theta = 0, \pi$) y perpendicular a éste cuando $K_1 > 0, K_2 > -K_1$ y cuando $K_1 < 0, K_2 < |K_1|/2$ respectivamente. Sin embargo, un mínimo estable existe (sólo a altas temperaturas) para $\theta = \sin^{-1}(-K_1/2K_2)^{1/2}$ cuando $K_1 < 0$ y $K_2 > |K_1|/2$.

En el cuadro 1.3, se dan los valores de las constantes de anisotropía K_1 y K_2 a temperatura ambiente para Ni, Fe y Co, así como su respectiva estructura cristalina.

Material	Estructura Cristalina	K_1 (10^5 erg/cm^3)	K_2 (10^5 erg/cm^3)
Ni	fcc	-0.5	-0.2
Fe	bcc	5	± 0.5
Co	hcp	50	15

Cuadro 1.3: Constantes de anisotropía magneto cristalina K_1 y K_2 a temperatura ambiente para Ni, Fe y Co [50].

1.4.2. Anisotropía de forma

La otra anisotropía que es muy fundamental es la llamada anisotropía de forma y que, como su nombre lo indica, está relacionada a la forma y dimensiones del material y sigue de los efectos desmagnetizantes descritos en las secciones anteriores.

En efecto, ya vimos que todo material finito va a generar un campo desmagnetizante en su interior cuando su magnetización es distinta de cero. Más aún, ya vimos también que este campo desmagnetizante puede variar en diferentes direcciones, como se discutió en torno a la figura 1.5. En este sentido, la anisotropía de forma corresponde a la energía desmagnetizante dependiente de la dirección.

Para tratar cuantitativamente este tipo de anisotropía, es preciso hallar una expresión que permita relacionar el campo desmagnetizante con la geometría del material. Mientras que, por otra parte, este campo estará asociado con la energía necesaria para mantener el material polarizado en una dirección dada.

Como se ha mencionado anteriormente, todo campo magnético está asociado a una energía [56], para el campo desmagnetizante, la energía desmagnetizante o magnetostática es:

$$E_{ms} = \frac{1}{2} \vec{M} \cdot \vec{H}_D. \quad (1.28)$$

El problema se reduce a encontrar el campo desmagnetizante, $\vec{H}_D$, el cual se escribe como

$$\vec{H}_D = 4\pi\vec{M} \cdot N, \quad (1.29)$$

donde N es el llamado factor desmagnetizante que ya se ha definido.

De acuerdo con la definición de energía de anisotropía, eq. (1.23), esto es la diferencia entre las energías de la dirección difícil y fácil, los factores desmagnetizantes mostrados en la tabla 1.2 son utilizados para calcular las energías asociadas a la anisotropía de forma. Para el caso de la esfera, los tres factores desmagnetizantes son idénticos y como es de esperarse, en términos de su forma, corresponde a un sistema isotrópico.

Para el caso del cilindro infinito, la anisotropía surge entre las direcciones paralelas y perpendiculares de su eje largo. En este caso tenemos que el eje fácil corresponde al eje del cilindro y la dirección difícil a la perpendicular.

$$\Delta E = \frac{1}{2}M^2 (N_{xx} - N_{zz}), \quad (1.30)$$

$$\Delta E = \frac{1}{2}M^2 (2\pi - 0), \quad (1.31)$$

$$\Delta E = \pi M^2. \quad (1.32)$$

En este caso, la energía de anisotropía es igual a $K = \pi M^2$. Haciendo el desarrollo correspondiente para la placa infinita, se obtiene que $K = 2\pi M^2$.

Para otros casos menos simples, se parte de la definición de la energía de anisotropía como la diferencia entre las energías de la dirección difícil y fácil. Sean N_{dif} y N_{fac} , los factores desmagnetizantes a lo largo de las direcciones difícil (eje más corto) y fácil (eje más largo) tal que,

$$K_f = \frac{1}{2}M^2 (N_{dif} - N_{fac}), \quad (1.33)$$

y los factores desmagnetizantes se pueden obtener a partir de la literatura ya sea mediante expresiones conocidas o bien datos tabulados [53].

1.5. Partículas mono dominio

En este trabajo nos interesamos en un tipo muy específico de materiales magnéticos, específicamente las denominadas partículas ideales mono dominio. Esta condición fue pre-dicha por Frenkel y Dorfman [60] y posteriormente verificada experimentalmente en 1950 por Kittel y colaboradores [61]. En la década de los 40s se desarrollaron los primeros modelos teóricos que explicaban los mecanismos físicos que dan lugar a este estado mono dominio y posteriormente como es el comportamiento magnético de dichos sistemas ideales[62, 59,

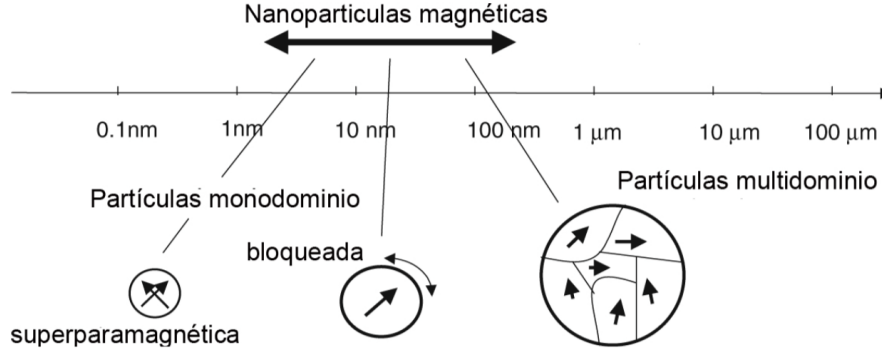


Figura 1.7: Dimensiones típicas donde se presentan los diferentes regímenes magnéticos en materiales ferromagnéticos, adaptada de [65].

[63, 64]. Como regla, se sabe que en función de sus dimensiones los materiales pueden o no presentar dominios magnéticos [50, 55, 56, 58], pero en todo caso, la propiedad fundamental que permite la existencia de dicho estado es la anisotropía magnética del sistema [64]. A dimensiones grandes, el bulto por ejemplo, una partícula presentará dominios en su estado remanente, mientras que al reducir el tamaño se alcanza un tamaño crítico por debajo del cual ya no hay dominios magnéticos y decimos que el sistema es mono dominio. Esta transición depende del tamaño, del tipo de material y de la forma de la partícula, sin embargo de manera general para la mayoría de los materiales magnéticos nanoestructurados de metales de transición 3d, las dimensiones características del material donde se presentan estos regímenes se ilustran en la figura 1.7.

Los modelos desarrollados por Kittel [62] y Stoner-Wohlfarth [59] demuestran que para que un material magnético pueda presentar un estado mono dominio estable es necesario que exista una barrera de energía que defina una dirección preferencial en la que la magnetización busque orientarse de manera espontánea. Esta dirección es la dirección de fácil magnetización y la barrera de energía corresponde a la energía de anisotropía efectiva o total de la partícula.

Definiendo la magnitud del momento magnético de una partícula como M , ésta es proporcional a su volumen (V). El radio crítico (r_c) por debajo del cual una partícula actúa como mono dominio está dado por[66]

$$r_c \approx 9 \frac{(AK_{eff})^{\frac{1}{2}}}{\mu_0 M_s^2}, \quad (1.34)$$

donde A es conocida como constante de intercambio y K_{eff} es la constante de anisotropía uniaxial efectiva, μ_0 es la permeabilidad del vacío y M_s la magnetización de saturación. Los valores típicos para r_c es de 15 nm para Fe, 35 nm para Co, 30 nm para γ -Fe₂O₃, mientras que para SmCo₅ es 750 nm [31].

Charles Kittel ha hecho un recuento más reciente sobre el surgimiento de los modelos

de partículas mono dominio [64]. Para el presente trabajo, nos basaremos en el modelo de Stoner-Wohlfarth para partículas mono dominio [59, 63].

1.6. Modelo de Stoner-Wohlfarth

El modelo de Stoner-Wohlfarth describe una partícula mono dominio con una energía de anisotropía magnética efectiva uniaxial. Este modelo fue inicialmente publicado en 1948 [59] y debido a su importancia, el mismo trabajo se volvió a publicar más recientemente en 1991 en la revista IEEE Transactions on Magnetics [63]. A continuación desarrollamos los puntos más relevantes de este modelo en el contexto del presente trabajo.

La restricción de que la partícula sea mono dominio implica que en todo momento todos los momentos magnéticos atómicos son paralelos entre sí. En este caso, la magnetización total de la partícula se toma como un solo vector $\vec{M}$ y en respuesta a un campo aplicado (H_A), la magnetización rota de tal forma que todos los momentos magnéticos rotan de manera unísona. En este caso, el problema se puede reducir a la rotación del vector de magnetización cuya magnitud es constante y el ángulo de este vector.

De forma general, diremos que la partícula posee una energía de anisotropía efectiva (K_{eff}) uniaxial. Como se muestra en la figura 1.8, se elige la dirección fácil a lo largo del eje $0 - \pi$ y por lo tanto la dirección difícil queda en $\pi/2 - 3\pi/2$. Como se puede ver, la barrera de energía $\Delta E = K_{eff}V$ es directamente proporcional a la energía de anisotropía efectiva. Esta anisotropía magnética efectiva corresponde a la que exhibe macroscópicamente la partícula, se le conoce también como anisotropía magnética total y esta puede contener diferentes contribuciones, las cuales se describen en este capítulo. Para el desarrollo del modelo basta con introducir la forma funcional de la energía de anisotropía efectiva uniaxial como $K_{eff} \sin^2 \theta$, la cual corresponde a la gráfica mostrada en la figura 1.8.

La densidad de energía de un sistema Stoner-Wohlfarth se puede describir considerando la anisotropía efectiva uniaxial y el campo aplicado como,

$$E = K_{eff} \sin^2 \theta - H_A M_s \cos(\theta - \phi). \quad (1.35)$$

El modelo de Stoner-Wohlfarth nos predice el comportamiento de la curva de histéresis de una sola partícula. Para fines del presente trabajo se determinará el caso del campo externo aplicado paralelo al eje fácil, es decir $\phi = 0$. En este caso la ecuación anterior se reduce a:

$$E = K_{eff} \sin^2 \theta - H_A M \cos \theta. \quad (1.36)$$

Para simplificar el análisis se reemplaza la anisotropía efectiva K_{eff} por el campo de anisotropía efectiva $H_K = 2K_{eff}/M_s$. Adicionalmente, normalizamos los campos por H_K e intro-

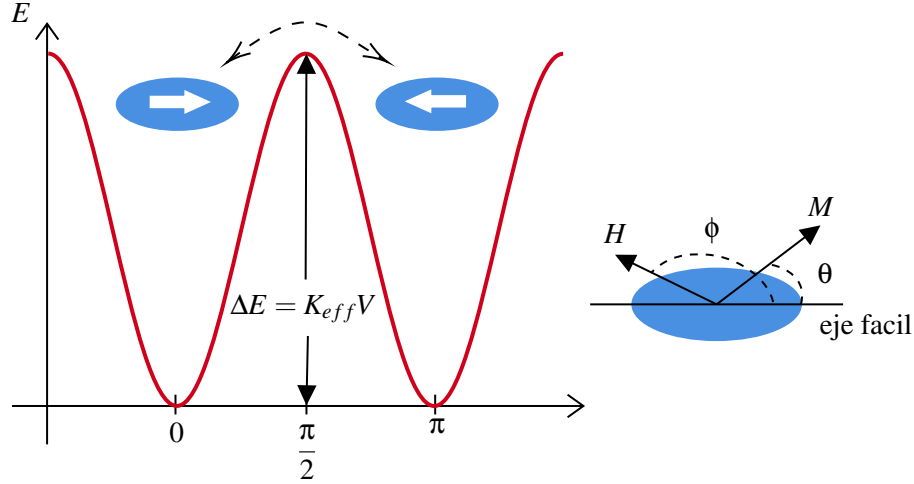


Figura 1.8: Barrera de energía (ΔE) de una partícula con anisotropía magnética uniaxial efectiva K_{eff} para la cual el eje fácil está en el eje $0, \pi$, mientras que la dirección difícil está en el eje $\pi/2, 3\pi/2$.

duciendo $h = H_A/H_K$. Al derivar obtenemos la condición de equilibrio

$$\sin \theta (h + \cos \theta) = 0, \quad (1.37)$$

de donde las soluciones de esta condición son $\theta = 0$, $\theta = \pi$ y $\cos \theta = -h$. La condición de equilibrio está dada por la segunda derivada por lo que

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} = h \cos \theta + (2 \cos^2 \theta - 1), \quad (1.38)$$

donde se determina que los estados para los cuales son estables son $\theta = 0$ y $\theta = \pi$ si y sólo si $H_A > -H_K$ y $H_A < H_K$ respectivamente. Por lo que la curva de magnetización correspondiente se ilustra en la figura 1.9 y se puede escribir como

$$M(H) = \begin{cases} M_s & \text{si } H_A > -H_K \\ -M_s & \text{si } H_A < H_K, \end{cases} \quad (1.39)$$

Como se observa en la figura 1.9, el ciclo de histéresis es rectangular y describe un sistema que solo tiene dos estados posibles: magnetizado en la dirección positiva ($\theta = 0$) o negativa ($\theta = \pi$) a lo largo del eje fácil. Aplicando un campo inicialmente a lo largo de la dirección positiva del eje fácil, la magnetización es alineada en esta dirección. Al relajar el campo aplicado hasta llegar a cero, la magnetización permanece a lo largo de la dirección inicial por lo que la remanencia es del 100%. Cuando el campo toma valores negativos, la magnetización permanecerá en la dirección positiva en tanto que $H_A > -H_K$, de acuerdo con la ecuación (1.39). Cuando $H_A = -H_K$, la dirección positiva deja de ser un mínimo de energía y la magnetización brinca de manera irreversible a la dirección antiparalela, o negativa $\theta = \pi$,

y permanece alineada en esa dirección para todo valor del campo aplicado tal que $H_A < -H_k$.

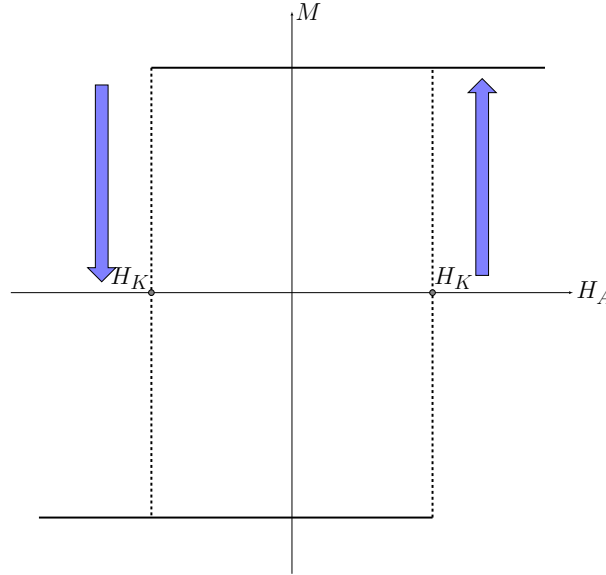


Figura 1.9: Ciclo de histéresis de una partícula ideal con el campo aplicado paralelo al eje fácil.

Cuando se lleva a cabo el retorno del ciclo, es decir se inicia con un campo aplicado negativo y se incrementa hasta cero y posteriormente hasta un valor elevado positivo. La magnetización sigue el mismo comportamiento, es decir, inicia orientada paralela al campo aplicado tal que $\theta = \pi$ y permanece en esa orientación siempre que se cumpla la condición $H_A < H_k$ como lo establece la ecuación (1.39). La magnetización rota de manera irreversible de $\theta = \pi$ a $\theta = 0$ cuando $H_A = H_k$ y permanece en esa dirección para todos los valores de campo aplicado tal que $H_A > H_k$. Claramente para el caso de una partícula mono dominio que sigue este modelo, el campo coercitivo (H_c) corresponde al campo de anisotropía efectivo o total: $H_c = H_K = 2K_{eff}/M_s$.

Para el presente trabajo, este resultado es muy importante ya que nos sirve para definir el material ideal de referencia que se usará en todo el trabajo. Una partícula ideal tipo Stoner-Wohlfarth con una anisotropía efectiva de tipo uniaxial posee un ciclo de histéresis binario en su dirección fácil. En este ciclo hay dos estados estables posibles que son a lo largo de la dirección positiva y negativa del eje fácil de magnetización. La estabilidad de estos estados implica que al fijar la dirección de la magnetización con un campo aplicado, la magnetización retiene su orientación una vez que se remueve el campo (remanencia de 100%) y que para invertir su dirección (o sacarla de su estado estable) es necesario aplicar un campo en dirección opuesta que exceda al valor de su campo coercitivo. Esta rotación de la magnetización es irreversible lo cual implica que para regresar al estado inicial se debe seguir la otra rama del ciclo de histéresis y exceder el valor del campo coercitivo.

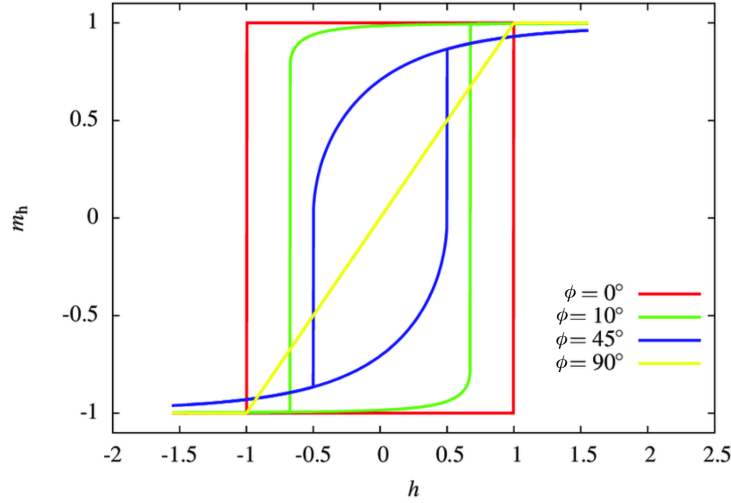


Figura 1.10: Curvas de histéresis simuladas para una partícula ideal con el campo aplicado a diferentes ángulos con respecto al eje fácil de magnetización [67].

En un ensamble de partículas ideales tipo SW (Stoner-Wohlfarth) cada partícula tiene un ciclo de histéresis binario. Al medir en un ensamble de partículas veremos el comportamiento combinado de un número de estos ciclos que son los elementos fundamentales para interpretar y explicar la histéresis en sistemas macroscópicos. Por tal razón, son de gran importancia y se les conoce como histeriones o histerión. Como se discute más adelante, también es necesario adecuar el concepto para casos más realistas cuyo comportamiento es muy parecido al ideal pero sin llegar a serlo del todo. Pero para poder hacer esta extensión de la definición debemos ver lo que dice el modelo de Stoner-Wohlfarth cuando el campo se aplica en otras direcciones.

El modelo de Stoner-Wohlfarth admite soluciones analíticas cuando el campo externo se aplica paralelo y perpendicular al eje fácil ($\phi = 0, \pi/2$), mientras que para otras direcciones el problema se debe resolver numéricamente. Para fines del presente trabajo, nos limitamos a revisar rápidamente lo más relevante y útil que sigue del modelo y que es de nuestro interés.

En la figura 1.10 se muestra la curva de histéresis de una partícula ideal para diferentes ángulos del campo aplicado con respecto al eje fácil.

El caso en que $\phi = 90^\circ$ corresponde a la dirección difícil de magnetización. En este caso el ciclo, como se puede ver en la figura, es una línea recta que pasa por el origen y que no presenta histéresis. En este caso, tenemos que para valores de campos elevados, $|h| > 1$, la magnetización es constante y apunta en la dirección del campo aplicado, en esta situación decimos que el sistema está en el estado saturado. Para valores de h tal que $|h| < 1$, la magnetización rota de manera reversible entre los estados saturados $h = \pm 1$ de manera que cuando el campo es cero, la magnetización (vector con magnitud constante) ha rotado para

orientarse totalmente a lo largo de la dirección fácil, lo cual explica que el ciclo pase por el origen, es decir, no presenta coercividad ni remanencia. Los valores extremos de este ciclo son cuando $h = \pm 1$, recordando que $h = H_A/H_K$, sigue entonces que el campo de saturación en la dirección difícil es igual al campo de anisotropía total H_K . Finalmente, la rotación reversible de la magnetización quiere decir que cuando el campo varía en un cierto intervalo desde un valor inicial a uno final, $\delta H = H_f - H_i$, la magnetización cambia en una cantidad δm . Si ahora variamos el campo en sentido contrario entre los mismos valores extremos, $\delta H' = -\delta H$ el cambio en la magnetización sería el negativo $-\delta m$.

Cuando el campo externo se aplica en otras direcciones, como se muestra en la figura 1.10, el ciclo de histéresis se compone de una parte reversible la cual se observa a campos más elevados justo cuando el sistema deja el estado saturado y esta rotación continúa hasta un cierto valor crítico en el cual se lleva a cabo la rotación irreversible de la magnetización. En este caso, se observa que los ciclos presentan histéresis. Otra característica importante es que la remanencia decrece desde 1 hasta 0, mientras que el campo coercitivo también lo hace desde H_K hasta cero, cuando el ángulo incrementa desde $\phi = 0$ hasta $\phi = \pi$.

1.7. Partículas magnéticas biestables

El caso ideal de un sistema biestable es cuando el material es mono dominio, tipo Stoner-Wohlfarth. Sin embargo, este límite es difícil de alcanzar en la práctica debido principalmente a la presencia de inhomogeneidades y defectos en el material que impiden alcanzar completamente este límite. Sin embargo, existen muchos casos en que el material presenta un comportamiento biestable a lo largo de su eje fácil aún y cuando no son perfectamente mono dominio y cuyos ciclos de histéresis retienen ciertas características similares respecto al caso ideal, como el mostrado en la figura 1.9. Este tipo de partículas *no tan ideales* son las que nos interesan en el presente trabajo y a continuación damos una definición más clara.

La biestabilidad implica que solo hay dos estados estables aunque en dichos estados pueda haber inhomogeneidades de la magnetización y que la rotación de la magnetización ocurre de manera abrupta entre estos dos estados. En un sistema biestable, la magnetización presenta únicamente dos estados que minimizan la energía, en ambos casos el momento magnético se encuentra a lo largo de una dirección preferencial, llamada la dirección de fácil magnetización, y los estados estables corresponden a la orientación positiva y negativa de la magnetización como se ilustra esquemáticamente en la figura 1.11. En estos sistemas la curva de histéresis a lo largo de su dirección preferencial siempre muestra un salto abrupto desde la dirección inicial de magnetización hacia la dirección antiparalela. El sistema sufre una rotación irreversible, la cual nos indica que, como vemos en la figura, al remover el campo, la magnetización se queda en la dirección en la que está, hasta que el campo aplicado sea igual al campo coercitivo para volver a su estado original. El sistema posee una alta remanencia. Es

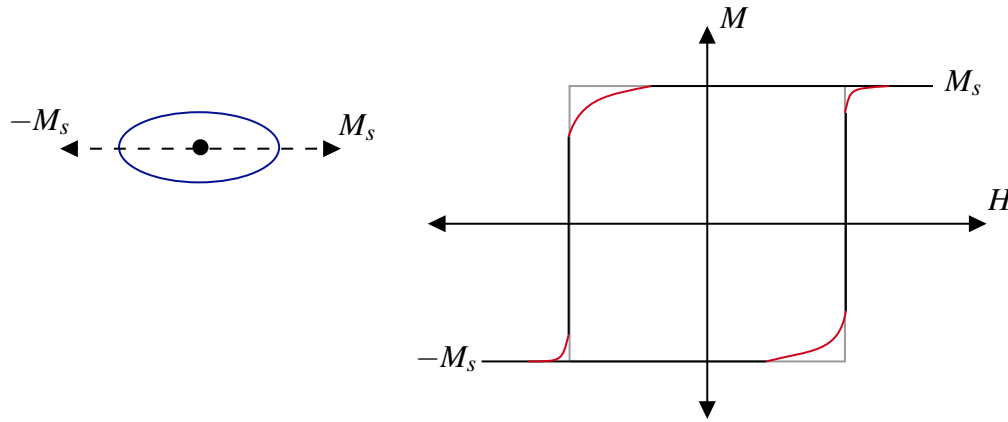


Figura 1.11: Partícula biestable con dos estados estables para la magnetización ($M_s, -M_s$) y esquema del ciclo de histéresis no-ideal donde se muestran en color rojo los segmentos que caracterizan la desviación del comportamiento ideal y que se acostumbra a relacionar con rotaciones reversibles de la magnetización a la salida y llegada del estado saturado.

decir, en el estado remanente, la magnetización siempre apunta en la dirección preferencial, a pesar incluso de que una fuerza externa (un campo) puede llevar a la magnetización a orientarse en cualquier dirección; al remover esta fuerza, la magnetización regresará siempre a cualquiera de las dos configuraciones remanentes estables. En este sentido, para un sistema magnéticamente biestable los valores binarios 1 y 0 puedan ser asignados a los dos estados magnéticos accesibles, el positivo y el negativo.

1.7.1. Ensamble de partículas biestables

Imaginemos ahora un ensamble formado por muchas partículas biestables, todas geométricamente iguales, que nominalmente poseen las mismas propiedades magnéticas y que están distribuidas en un arreglo espacial dado. Suponemos que las partículas están ordenadas de manera que sus ejes de fácil magnetización son idealmente paralelos entre sí, como se ilustra de manera esquemática en la figura 1.12.

Una característica importante de un ensamble es que si bien todas las partículas son nominalmente idénticas, en realidad hay pequeñas diferencias resultado de inhomogeneidades tanto en la macro como en la microestructura. Esto tiene como resultado que propiedades magnéticas como la coercividad presentan una distribución de valores alrededor del valor medio. Por lo que al medir la curva de histéresis sobre todo el ensamble lo que uno observa es una sucesión de estados o configuraciones obtenidas al rotar una tras otra la magnetización de cada partícula. De tal manera que en cada punto o configuración solamente hay partículas magnetizadas en la dirección positiva o negativa.

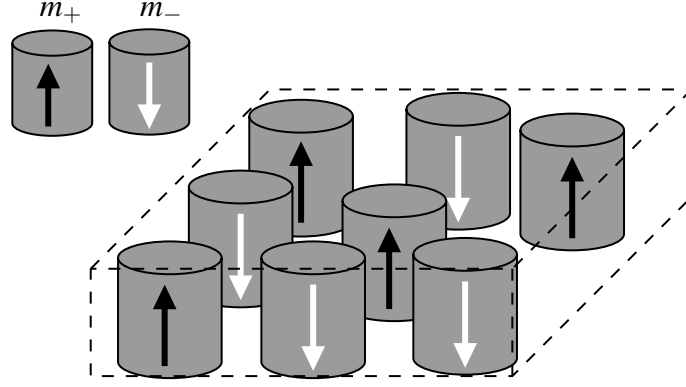


Figura 1.12: Partículas biestables con estados magnéticos binarios m_+ y m_- a lo largo del eje fácil y un estado magnético arbitrario en el que coexisten partículas en los estados m_+ y m_- .

Esto permite describir cualquier estado magnético del sistema utilizando variables que sirven como contadores. En la figura 1.13 se muestra a manera de ejemplo un ciclo de histéresis normalizado. El primer contador que se utiliza es justamente la magnetización normalizada m , esta variable es tal que $-1 \leq m \leq 1$. Como se puede ver en la figura 1.13, cada punto en el plano lo podemos indicar con un valor de m .

Por otra parte, sabemos que cada estado resulta de la combinación de partículas magnetizadas en la dirección positiva y negativa. Sean m_+ y m_- las fracciones de partículas en cada una de estas direcciones, por lo que el rango de estas variables es $0 \leq m_{\pm} \leq 1$. Entonces el estado magnético m corresponde a la resta de las fracciones de partículas positivas y negativas, esto es:

$$m = m_+ - m_-. \quad (1.40)$$

Adicionalmente el número de partículas se conserva, de tal manera que para cualquier estado se debe cumplir que $m_+ + m_- = 1$. De estas dos ecuaciones podemos encontrar la transformada inversa, es decir, encontrar $m_{\pm}$ a partir de m , combinando estas ecuaciones se llega a la siguiente expresión:

$$m_{\pm} = \frac{1 \pm m}{2}. \quad (1.41)$$

Así, por ejemplo, para cada punto mostrado en la figura 1.13 podemos encontrar las fracciones correspondientes de partículas magnetizadas en la dirección positiva y negativa. Por ejemplo, si $m = 0,3$ entonces $m_+ = 0,65$ y $m_- = 0,35$. Algunos valores importantes corresponden al estado saturado, donde $m = \pm 1$ en este caso solo una de las poblaciones está presentes. En la saturación positiva $m = 1$ por lo que $m_+ = 1$ y $m_- = 0$, y en la saturación negativa es lo inverso. El estado $m = 0$ corresponde a la configuración donde $m_+ = m_- = 0,5$.

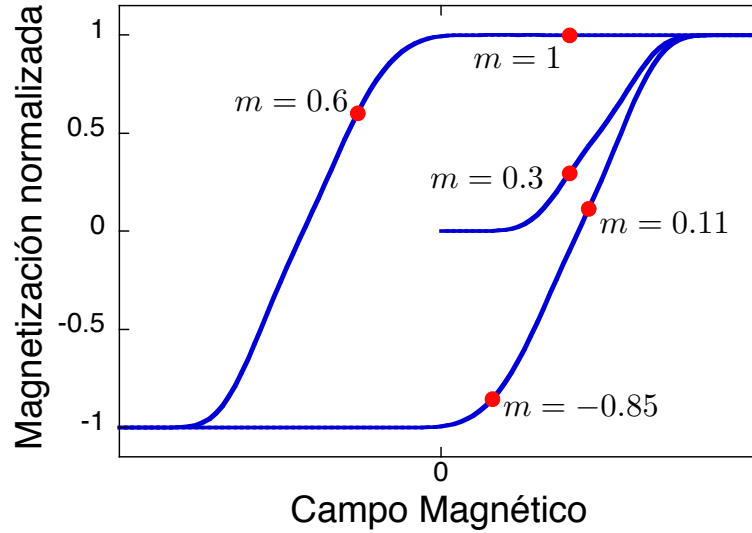


Figura 1.13: Ciclo de histéresis normalizado donde se muestran diferentes estados magnéticos descritos por la magnetización normalizada m .

1.7.2. Ensamble de partículas ideales orientadas aleatoriamente y sin interacción

En su artículo, Stoner y Wohlfarth ya analizan el caso límite de un ensamble de partículas ideales (tipo Stoner-Wohlfarth - SW -) sin interacción [59]. Este caso límite que justo evita el problema de tomar en cuenta la interacción sirve como la base y la referencia para cualquier consideración sobre ensambles interactuantes.

Ellos consideran un ensamble de partículas SW que son nominalmente (teóricamente) idénticas la distancia entre las partículas es lo suficientemente grande para asumir que la interacción entre ellas es nula y, lo más importante, suponen que los ejes fáciles de las partículas están distribuidos de manera uniforme en todas las direcciones.

De este cálculo se desprende que en la medición macroscópica que resulta de aplicar el campo en una dirección dada, cada partícula tiene un campo de rotación diferente y por lo tanto como todas las partículas tienen orientación diferente y campo de rotación observado (depende de la dirección del campo aplicado), el sistema posee una distribución de campos de rotación.

Este sistema idealizado nos permite identificar dos propiedades fundamentales de un ensamble de partículas que no interactúan: (a) cada partícula tiene un campo de rotación propio, el campo de rotación intrínseco y, (b) la distribución intrínseca de campos de rotación es la SFD, o iSFD, del ensamble no interactuante.

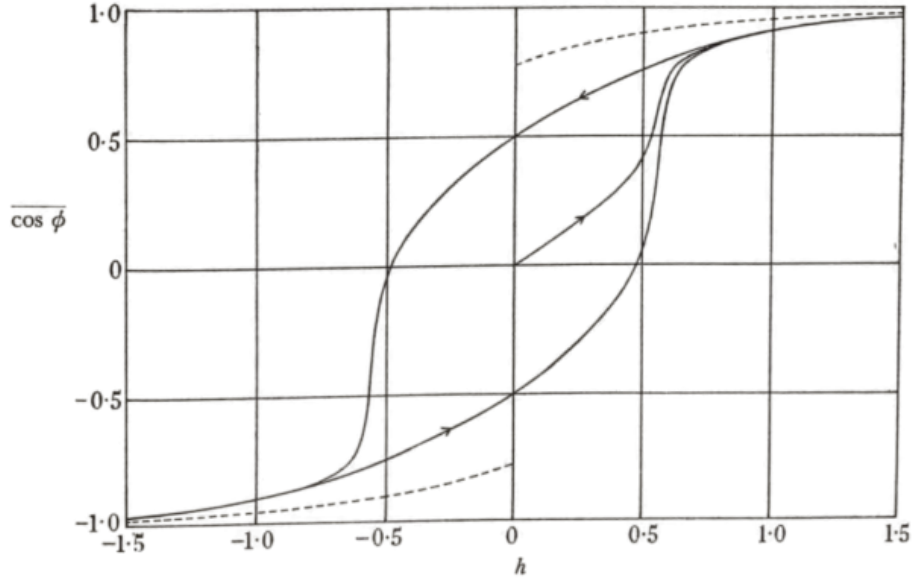


Figura 1.14: Curvas de magnetización para el esferoides prolato (curva continua) y oblatos (curva punteada) orientados aleatoriamente. Las curvas son para esferoides similares ya sea prolato u oblatos. $\overline{\cos \phi}$ es proporcional a la magnetización promedio por esferoide en la dirección positiva del campo, adaptada de [59].

Sea $\sigma(h)$ la distribución y $m(h)$ la curva medida, entonces si $\sigma = dm/dh$, podemos escribir:

$$m(h) = \int \sigma(h) dh, \quad (1.42)$$

esto nos dice que la curva $m(h)$ corresponde a la inversión de la magnetización inducida por el campo aplicado de acuerdo con la distribución σ . Esta distribución se le llama Switching Field Distribution o SFD. La ecuación anterior expresa la relación general que existe siempre entre $m(h)$ y σ . Esto implica que si conocemos una de las dos, a partir de esta podemos conocer o determinar la otra.

Una observación importante (y que después será útil) es que $\sigma(h)$ y $m(h)$ corresponden a la función de distribución de probabilidad y la función acumulativa de probabilidad, respectivamente.

Stoner y Wohlfarth calcularon el ciclo de histéresis para dicho ensamble, el cual se muestra en la figura 1.14. El cálculo predice que en este ensamble, la remanencia es de 0.5 mientras que el campo coercitivo normalizado ($H_c = H_{c0}/2K$) es $H_c = 0.479$.

1.7.3. Ensamble de partículas ideales

Del caso particular considerado por Stoner y Wohlfarth se desprende un ejemplo *teórico* de una SFD que resulta de la distribución de orientaciones de los ejes fáciles. Esto se ha aprovechado para definir la SFD y la iSFD. Además se ha identificado la relación entre la curva de magnetización y su derivada, una es la cumulativa y la otra es la distribución de probabilidad, respectivamente.

En estas líneas, consideramos ahora el caso idealizado de un conjunto finito de partículas biestables, pseudo Stoner-Wohlfarth, orientadas de manera que sus ejes de fácil magnetización son paralelos, pero donde cada partícula tiene diferente campo coercitivo. Estos campos los numeramos en orden creciente tal que $H_{c1} < H_{c2} < H_{c3} < \dots < H_{cn}$. Para fines de lo que se quiere mostrar, podemos suponer (sin pérdida de generalidad) que las partículas no interaccionan entre sí. La idea es analizar como esperamos que sean los ciclos de histéresis para diferente número de partículas. La figura 1.15 muestra los ciclos de histéresis a lo largo de la

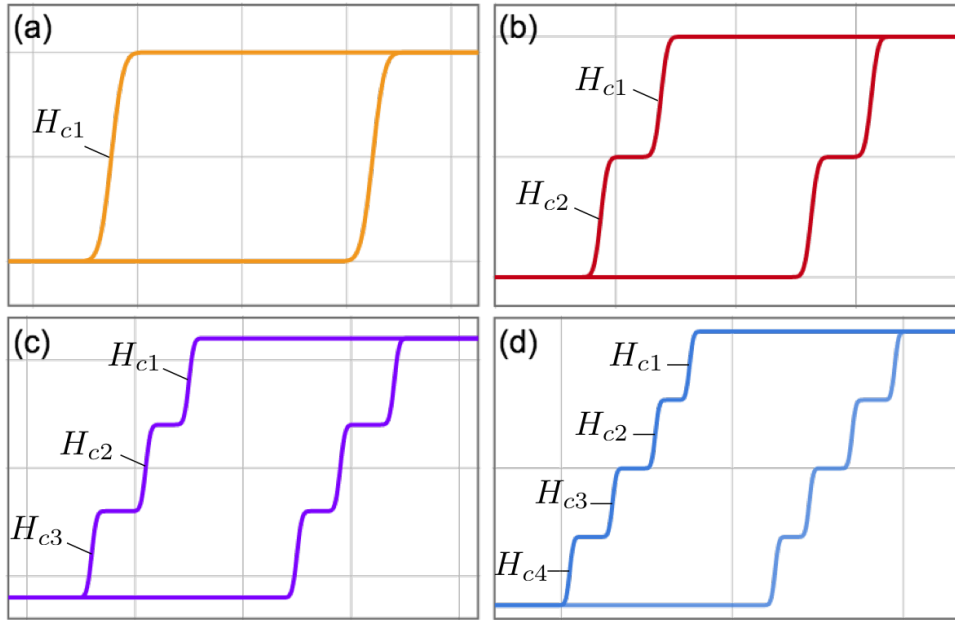


Figura 1.15: Ciclo de histéresis a lo largo de la dirección fácil para el caso de (a) una partícula con campo coercitivo H_{c1} , (b) dos partículas con coercividades $H_{c1} < H_{c2}$, (c) tres partículas con campos coercitivos $H_{c1} < H_{c2} < H_{c3}$ y, (d) cuatro partículas con coercividades $H_{c1} < H_{c2} < H_{c3} < H_{c4}$.

dirección fácil para el caso de (a) una partícula con campo coercitivo H_{c1} , (b) dos partículas con coercividades $H_{c1} < H_{c2}$, (c) tres partículas con campos coercitivos $H_{c1} < H_{c2} < H_{c3}$ y, (d) cuatro partículas con coercividades $H_{c1} < H_{c2} < H_{c3} < H_{c4}$.

Para el caso de una partícula, figura 1.15 (a) tenemos el ciclo binario de un sistema biestable. Para el caso de dos partículas, es claro que el ciclo debe mostrar dos saltos, uno para cada campo coercitivo, como se muestra en la figura 1.15 (b). Donde la primera partícula que rota es aquella que tiene menor campo coercitivo. Para el caso de tres o cuatro partículas, figura 1.15 (c) y (d), respectivamente; se espera algo similar. Tres saltos cuando hay tres partículas y cuatro para el caso de cuatro. Cada partícula rota cuando el campo aplicado es igual a su coercividad y por lo tanto las rotaciones se llevan a cabo de manera secuencial en orden creciente de campo coercitivo. Desde luego, en la parte de regreso del ciclo se debe ver lo mismo pero pasando de la saturación negativa a la positiva. Lo que se quiere destacar con este análisis es que dado un conjunto de partículas con diferentes campos coercitivos, el ciclo de histéresis se lleva a cabo mediante la rotación sucesiva de las magnetizaciones de cada partícula (biestable) de manera secuencial en orden creciente de campo coercitivo.

Si ahora imaginamos que tenemos un ensamble formado por un número muy grande de partículas y sus campos coercitivos siguen una distribución continua de valores, es decir, $H_{c(i+1)} = H_{ci} + dH$. En este caso las curvas de histéresis ya no mostrarán saltos abruptos, si no que dará la apariencia de una variación continua y suave de $M(H)$, como podemos ver en el ciclo de histéresis mostrado en la figura 1.13 para una red de nanoalambres que se comporta como un ensamble de partículas biestables. En este caso, el orden de rotación está dado o sigue la SFD del sistema.

1.8. Interacción dipolar en ensambles de partículas magnéticas

El problema central del presente trabajo tiene que ver con las interacciones magnéticas de tipo dipolo-dipolo entre las partículas que forman un ensamble o arreglo.

En la forma más simple, la interacción de un objeto con otro implica que las propiedades de un objeto dependen o son influenciadas por la presencia del otro objeto y viceversa. En el contexto de partículas magnéticas, la interacción entre partículas quiere decir que una partícula experimenta un campo adicional, el campo de interacción (H_i), debido a la presencia de la otra partícula.

Cuando se trabaja con un conjunto de partículas, se reconocen generalmente dos tipos de interacciones: las llamadas de intercambio y las dipolares. Las interacciones de intercambio se presentan cuando existe una o diversas zonas de contacto físico directo entre dos cuerpos magnéticos. En dichas zonas, la interacción de intercambio busca establecer un orden magnético en una zona de tamaño finito alrededor de la zona de contacto. En el presente trabajo, estas interacciones no son consideradas y solo nos interesaremos en ensambles de

partículas que no se tocan entre sí, de manera que siempre hay una distancia bien definida entre ellas y la única interacción que nos interesa y que estará presente, es la interacción dipolar magnética.

Si evocamos las fuerzas de atracción y repulsión que conocemos y que hemos experimentado usando imanes permanentes, podemos asociar configuraciones favorables y desfavorables según el tipo de fuerza que detectamos al probar diferentes configuraciones entre imanes. Esto se ilustra en la figura 1.16, donde vemos que según como alineamos los imanes, vertical (A) o horizontalmente (B), las fuerzas son atractivas o repulsivas de acuerdo con la orientación relativa entre los imanes. De manera cualitativa decimos que el caso atractivo es más favorable que el repulsivo, pero como vemos en la figura, esto depende de cómo se alinean los imanes entre sí.

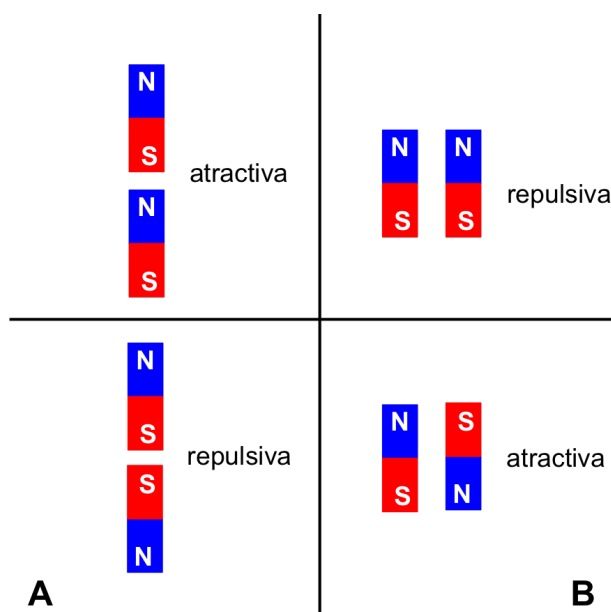


Figura 1.16: Fuerza magnética entre dos imanes cuando A: Imanes con polos colineales y, B: Imanes con polos paralelos.

Definimos entonces dos tipos de interacción, considerando el caso en que la fuerza atractiva corresponde a la configuración que resulta más favorable energéticamente:

Interacción de tipo ferromagnética: Magnetizaciones paralelas producen una fuerza atractiva. Esta configuración es la de mínima energía y el estado o configuración de máxima energía es cuando las magnetizaciones son antiparalelas. Esto corresponde al caso mostrado en la figura 1.16 A.

Interacción de tipo anti ferromagnética: Magnetizaciones antiparalelas producen una fuerza atractiva. Esta configuración es la de mínima energía y el estado o configuración de máxima energía es cuando las magnetizaciones son paralelas. Esto corresponde al caso mostrado en la figura 1.16 B.

De manera más formal, consideremos dos momentos magnéticos $\vec{m}_1$ y $\vec{m}_2$ separados por un vector distancia $\vec{r}$, como se muestra en la figura 1.17, la energía potencial dipolar está definida como [68]

$$E = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[\frac{\vec{m}_1 \cdot \vec{m}_2}{r^3} - 3 \frac{(\vec{m}_1 \cdot \vec{r})(\vec{m}_2 \cdot \vec{r})}{r^5} \right]. \quad (1.43)$$

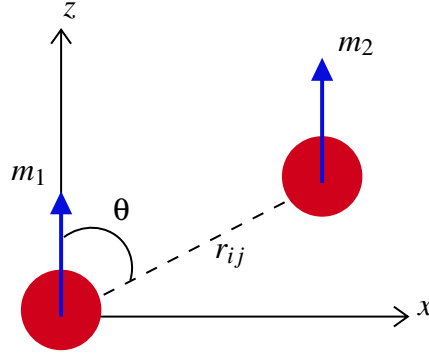


Figura 1.17: Diagrama de dos partículas magnéticas con magnetizaciones m_1 y m_2 paralelas a lo largo del eje z y separadas por un vector r_{ij} .

Esta es la expresión estándar para la interacción dipolar magnética entre dos dipolos. Es una interacción de largo alcance y fuertemente anisotrópica. De la ecuación (1.43), se observa que la fuerza de la interacción depende de la separación y del grado mutuo de alineamiento.

La interacción dipolar que puede existir en un ensamble de partículas puede ser ferromagnética o anti ferromagnética, que según como se vio anteriormente, depende de la alineación relativa entre los momentos magnéticos y su orientación. Esto se ilustra en la figura 1.18 y se deduce directamente de la ecuación (1.43).

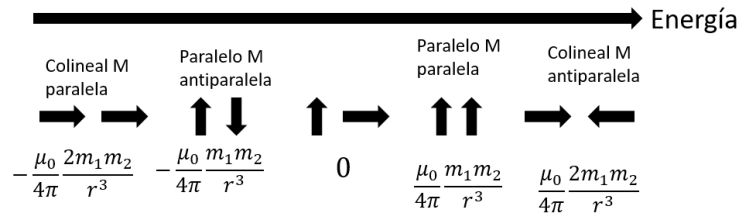


Figura 1.18: Representación de la configuración de momentos magnéticos, y energía asociada a cada uno de estos, donde se parte de la energía menor hasta la mayor.

1.8.1. Interacción dipolar dependiente de la configuración en la aproximación de campo medio

El problema de la interacción entre partículas en un ensamble es un problema complicado por el hecho de que los campos dipolares dependen de la configuración magnética de cada elemento, las cuales a su vez, dependen de los campos dipolares de los elementos adyacentes.

Esto lleva a que la descripción de estos fenómenos se realice por lo general en base a diferentes niveles y tipos de aproximaciones. Por un lado, estos efectos pueden y son considerados en base a simulaciones micro magnéticas o Montecarlo, las cuales de manera inherente calculan, según el tipo de aproximación utilizada, los efectos dipolares con diferentes grados de presunción. Desde luego, dichas simulaciones así como las aproximaciones utilizadas están restringidas por las necesidades de cómputo que requieran. Sin embargo, una gran desventaja de estos métodos es que no permiten obtener ninguna información o parámetro físico que permita describir los efectos de la interacción.

En este sentido, un enfoque diferente pero que a pesar de sobre simplificar el problema permite obtener algunos parámetros, es el de considerar la interacción entre partículas como un campo medio.

La relevancia y la necesidad de considerar efectos de campo medio debidos a efectos de la interacción dipolar en ensambles de partículas ha sido reconocida desde que se desarrollaron los modelos para ensambles de partículas [69].

Al hablar de campo medio, se define el campo total (H_{Tot}) que actúa sobre una partícula en el ensamble como la suma del campo aplicado (H_A) y el campo producido por el resto de las partículas del ensamble, denotado como el campo de interacción (H_{int}), esto es:

$$H_{Tot} = H_A + H_{int}, \quad (1.44)$$

y en general, todo el problema de este enfoque gira entorno a determinar, medir, calcular, deducir o encontrar alguna expresión para H_{int} .

En la aproximación de campo medio, el campo dipolar puede ser considerado de varias maneras, la más común es la que es utilizada en los modelos de Preisach y de Jiles-Atherton:

$$H_{int} = \alpha M, \quad (1.45)$$

donde α es un parámetro que debe ser ajustado. Esta ecuación fue introducida por Jiles y Atherton en su modelo para calcular curvas de histéresis [70]. En este trabajo, se adopta esta ecuación para poder escribir el campo efectivo que actúa sobre una entidad como la suma del campo aplicado y el de interacción:

$$H_{eff} = H_{AP} + \alpha M. \quad (1.46)$$

En otro trabajo, Atherton señala [69]: que de manera análoga al campo molecular de Weiss, este campo medio de interacción αM ofrece la posibilidad de tomar en cuenta las interacciones presentes en el sistema.

En otro trabajo de 1992, Che y Bertram [71] propusieron una expresión para la interacción que contiene términos hasta segundo orden para el campo efectivo de interacción $f(M)$

$$f(M) = \alpha M + \beta(1 - M^2), \quad (1.47)$$

donde α y β son parámetros fenomenológicos adimensionales, típicamente $\alpha, \beta \ll 1$. El primer término es una contribución de campo medio que depende en la magnetización global y la interacción local y el segundo termino es introducido para tomar en cuenta las fluctuaciones del campo de interacción [71].

De la misma manera, en la literatura se encuentran expresiones similares para tomar en cuenta los posibles efectos de interacción en la aproximación de campo medio. Así, por ejemplo, Bertotti [58](pgs. 341-342) discute la necesidad de considerar como cantidades distintas los campos externos y efectivo. Donde señala que en el caso de un sistema cuyas componentes interactúan, se puede intentar utilizar un enfoque de campo medio, en el cual el campo efectivo que actúa sobre un elemento se puede escribir como (eq. 10.64 en ref. [58]):

$$H = H_a + H_{MF}(M), \quad (1.48)$$

H_{MF} caracteriza el efecto promedio del resto del sistema en una unidad (o elemento) dada. H_{MF} se puede emplear para describir, en particular, efectos desmagnetizantes debidos a la geometría del espécimen. En este caso, $H_{MF} = -NM$, donde N es el factor desmagnetizante apropiado. De manera más general el campo efectivo se puede escribir como:

$$H = H_a + k_{MF}M, \quad (1.49)$$

siempre que los efectos de campo medio sean lineales con la magnetización. La constante k_{MF} contendrá los efectos desmagnetizantes así como otras formas de interacción (por ejemplo, de intercambio).

Posteriormente, al considerar la construcción del modelo de Preisach, Bertotti [58] reincide en los efectos y términos de campo medio (pags. 450-452), donde nuevamente al considerar efectos desmagnetizantes y efectos de interacción dipolar, se requiere de un término de campo medio de la forma

$$H_{MF} = N_{eff}M, \quad (1.50)$$

donde como dice Bertotti, N_{eff} es un parámetro fenomenológico. Comparando estas tres ecuaciones, se concluye que $N_{eff} = k_{MF}$.

Por otra parte, los trabajos reportados por van der Veerdonk [72, 73, 74], también consideran los efectos de campo medio escribiendo el campo total o efectivo como:

$$H_{tot} = H_{ext} - 4\pi NM, \quad (1.51)$$

donde H_{ext} es el campo externo aplicado normal a la superficie del plano, $0 \leq N \leq 1$ es el factor desmagnetizante, y M es la componente de la magnetización fuera del plano. En el caso de granos independientes (no interactuantes) la teoría de campo medio predice que $N = 1$. Experimentalmente se observa que este valor lleva a curvas de remanencia en forma de S al hacer la corrección de desmagnetización (deshearing). La solución tradicional a este problema es el de introducir un factor desmagnetizante *efectivo* $N_{eff} < 1$. Sin embargo, no existe un procedimiento consistente para obtener N_{eff} .

1.9. Interacción dipolar y campo desmagnetizante efectivo en ensambles de partículas

En el presente trabajo nos hemos enfocado al problema de la interacción (dipolar) en ensambles de partículas y en la problemática de las distribuciones de los campos de rotación intrínseca y medida.

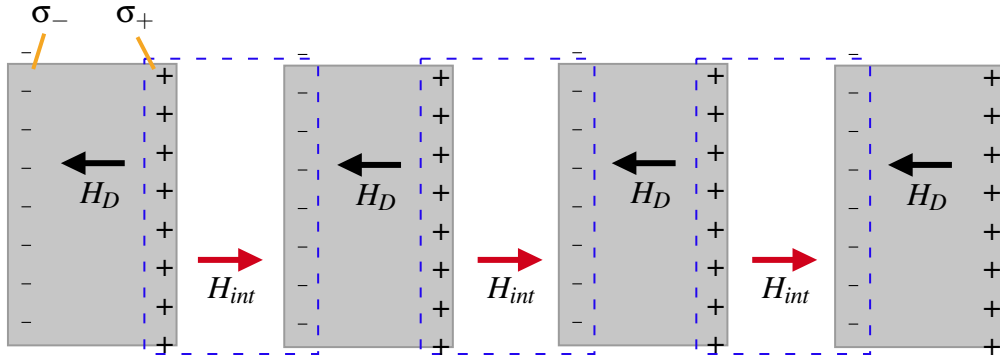


Figura 1.19: Distribuciones superficiales de carga magnética σ_+ , σ_- en un arreglo de partículas y los campos magnetostáticos asociados: desmagnetizante (H_D) al interior de la partícula y de interacción (H_{int}) entre partículas.

A continuación se discuten aspectos importantes para nuestro estudio y que extienden los conceptos magnetostáticos clásicos ya discutidos en el capítulo anterior al caso de ensambles de partículas.

Primeramente, nos interesamos en ensambles de partículas que no se tocan, tal que la interacción entre ellas es únicamente de tipo dipolo-dipolo. Para simplificar, suponemos que las partículas son nominalmente idénticas y forman un arreglo ordenado. Estas restricciones pueden ser relajadas en un análisis un poco más detallado.

La figura 1.19 muestra un arreglo de partículas polarizadas y las respectivas distribuciones superficiales de carga magnética σ_+, σ_- . A estas distribuciones de cargas se les asocian campos magnetostáticos: el campo desmagnetizante (H_D) al interior de la partícula y campo de interacción (H_{int}) entre partículas.

Lo que vale la pena enfatizar es que estos dos campos se originan de las mismas distribuciones de carga y no solo eso, estas distribuciones a su vez dependen de la forma y dimensiones del sistema, en este caso las dimensiones de las partículas y la separación entre ellas.

Físicamente, ambos campos deben describirse de manera similar y en este sentido, nuestro grupo ha desarrollado un modelo de campo medio para describir estos efectos magnetostáticos en ensambles de partículas [75].

En este modelo se propone que el campo de interacción se puede expresar también en función de un factor desmagnetizante ($N^\dagger$), el cual es independiente del factor desmagnetizante normal del (N) y que toma en cuenta la forma o geometría macroscópica del ensamble. Desde luego, la distancia entre partículas se debe incluir y eso se puede hacer usando la fracción de volumen P . En este sentido, se propone que ambos efectos (desmagnetizante y de interacción) se pueden tomar en cuenta mediante un factor desmagnetizante efectivo (N_{ef}), para el cual se propone la siguiente forma [75],

$$N_{ef} = N + (N^\dagger - N)P. \quad (1.52)$$

En esta última expresión podemos ver que si la fracción de volumen tiende a cero, $P \rightarrow 0$, $N_{ef} = N$, que corresponde a una sola partícula aislada y no interactuante, como era de esperarse. Por otro lado, si tomamos el límite contrario y $P \rightarrow 1$, podemos ver que esta expresión se reduce al factor desmagnetizante del volumen que contiene las partículas, $N_{ef} = N^\dagger$ tal y como se esperaba.

El primer término que es independiente del empaquetamiento corresponde a la autoenergía, o a la energía desmagnetizante propia de la partícula, mientras que el segundo término que depende de P corresponde al término de la interacción dipolar, entonces

$$N_{ef} = N_{auto} + N_{dip}. \quad (1.53)$$

Esta expresión para el factor desmagnetizante efectivo para un ensamble de partículas es general ya que no se han puesto restricciones sobre N y $N^\dagger$.

El campo desmagnetizante efectivo se obtiene a partir de la definición de este campo, ecuación (1.13), por lo que

$$\vec{H}_D^{ef} = N\vec{M} + (N^\dagger - N)\vec{M}P. \quad (1.54)$$

Esta expresión da, el campo desmagnetizante efectivo H_{Def} para un ensamble de partículas en el estado saturado.

Ahora vemos que el campo interno se puede escribir de manera más general como,

$$H_i = H_A + N_{\text{ef}}M, \quad (1.55)$$

donde ahora N_{ef} contiene dos contribuciones como vemos en la ec. (1.53). Sigue de aquí que el problema de sesgo de las curvas de magnetización inducido por el campo desmagnetizante, sección 1.3.2, se extiende ya que ahora puede contener dos contribuciones: la del campo desmagnetizante clásico y la del campo de interacción.

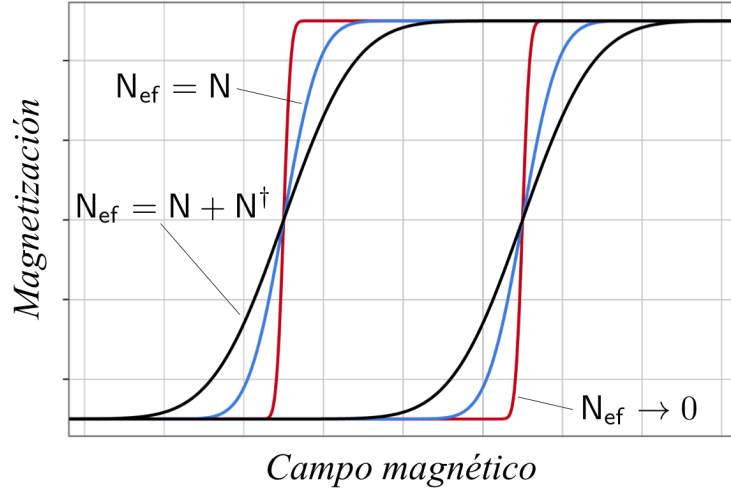


Figura 1.20: Ciclos de histéresis sesgados por diferentes factores desmagnetizantes N .

En particular, el sesgo introducido por la interacción dipolar es la responsable por el ensanchamiento de la SFD, mientras que el sesgo inducido por el campo desmagnetizante contribuye a la iSFD.

A manera de ejemplo, en la figura 1.20 retomamos la figura 1.6 la cual modificamos para N_{ef} . Lo que vemos en la figura es el caso en el que no hay efectos desmagnetizantes ni de interacción y por lo tanto $N_{\text{ef}} \approx 0$. Esta sería la curva intrínseca del material no acotado (infinito). Para una pieza o partícula de ese material, tenemos el campo desmagnetizante que depende de N_{auto} es decir, $N_{\text{ef}} = N$, que lleva al sesgo clásico de las curvas. Si ahora consideramos varias partículas que interaccionan, aparece un sesgo adicional $N_{\text{dip}} = N^{\dagger}$ y en este caso $N_{\text{ef}} = N + N^{\dagger}$.

1.10. Mediciones de magnetometría

Las mediciones de magnetometría implican la medición de la componente de la magnetización del material (M) en la dirección del campo aplicado (H_{Ap}). Este campo es homogéneo

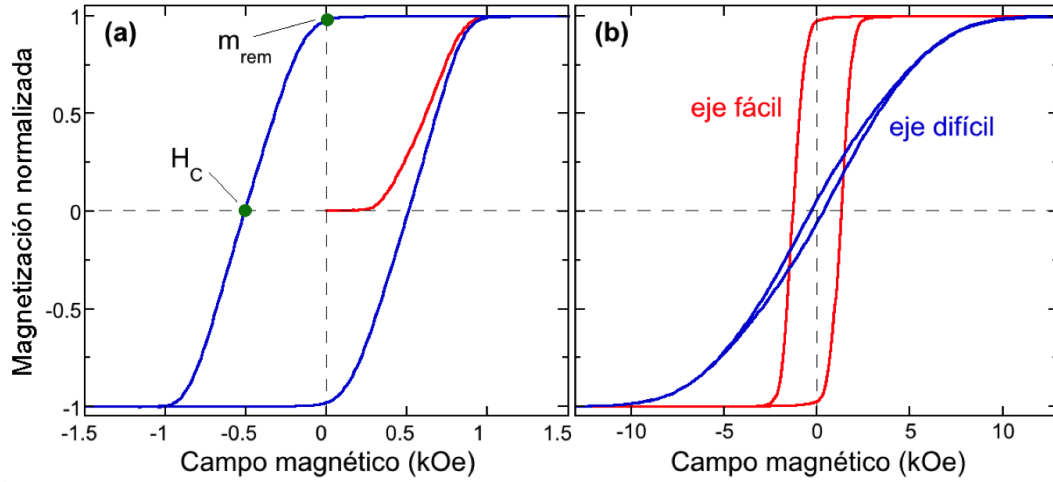


Figura 1.21: (a) ciclo mayor y primera curva o curva virgen la cual se obtiene luego de desmagnetizar el material, también se muestran los puntos correspondientes a la magnetización remanente m_{rem} y el campo coercitivo H_c . (b) Ciclos de histéresis medidos a lo largo de (i) el eje fácil y de (ii) el eje difícil. Mediciones realizadas en una red de nanoalambres de NiFe.

en un volumen lo suficientemente grande para asegurar que toda la muestra está sujeta a dicho campo homogéneo. Hay diferentes tipos de magnetómetros, en el capítulo de materiales y métodos se explica el magnetómetro de gradiente alternante que es el que se ha utilizado en este trabajo.

Ciclo mayor: El ciclo mayor, ya mencionado en la sección 1.3, se refiere a un ciclo que se realiza en dos tiempos entre valores de campo máximo, $\pm H_{max}$, lo suficientemente elevado para asegurar que el sistema alcanza el estado saturado. La figura 1.21 (a) muestra un ciclo mayor típico medido en redes de nanoalambres. El estado saturado es aquel en el cual el material alcanza el valor máximo de su magnetización, llamada la magnetización de saturación (M_s), que se obtiene cuando todos los momentos magnéticos del material están perfectamente alineados en la dirección del campo aplicado. Para todo material existe un umbral de campo magnético a partir del cual se alcanza este estado de saturación magnética y se le conoce como el campo de saturación, H_{sat} . Como ya se mencionó, el estado de saturación se utiliza por lo general como el estado de referencia para interpretar las mediciones de magnetización contra campo. Como se ha indicado, el ciclo mayor está formado por dos segmentos, en el primero el sistema es llevado del estado inicial de saturación positiva, $+M_s$, al estado final de saturación negativa, $-M_s$. Es decir, se parte de un estado inicial positivo y el sistema es llevado a un estado de magnetización menor mediante la reducción de la magnitud del campo cuya dirección se mantiene fija. En el segundo segmento, el sistema es llevado de una magnetización menor a una mayor por un campo cuya magnitud incrementa, en este caso los estados iniciales y finales del segmento son la saturación negativa y positiva, respectivamente. Al segmento en el que la magnetización decrece para ir del estado inicial al final se le llama parte descendiente del ciclo mayor. Por su parte, la parte ascendente del

ciclo mayor corresponde al segmento en el que la magnetización aumenta para ir del estado inicial al final. Esta nomenclatura es importante para el presente trabajo y se puede extender a todo ciclo ida-y-vuelta para el cual nos referimos a los segmentos como la parte ascendente y descendiente del ciclo.

A partir del ciclo mayor, o de alguno de sus segmentos, se obtienen los principales parámetros magnéticos del material/sistema. Estos parámetros son la magnetización de saturación, el campo de saturación, el campo coercitivo, la remanencia del ciclo mayor y la susceptibilidad diferencial $\chi_{dif} = dM/dH$ y que también corresponde a la distribución de campos de rotación SFD, del inglés Switching Field Distribution.

En el presente trabajo todas las curvas de magnetización se analizan normalizando la magnetización con respecto al valor de la magnetización de saturación. Con esta normalización las curvas de magnetización quedan confinadas el intervalo $[-1, 1]$ en el eje de la magnetización.

Magnetización de saturación M_s : Es el valor máximo, o saturado, del vector de magnetización, que se obtiene cuando todos los momentos magnéticos son paralelos a la dirección del campo aplicado. Una vez alcanzado el estado de saturación, la magnetización que ya alcanzó su saturación, ya no aumenta aún si se incrementa más la amplitud del campo aplicado. En este sentido, la magnetización máxima, M_{max} , que puede alcanzar el sistema corresponde a la magnetización de saturación $M_{max} = M_s$.

Campo de saturación H_{sat} : Es el valor de campo a partir del cual se alcanza el estado saturado. Para campos aplicados de intensidad mayor, la magnetización ya no cambia, y se mantiene constante en su valor de saturación M_s .

Campo coercitivo H_c : la coercitividad, también llamada campo o fuerza coercitivos es la intensidad del campo magnético que se debe aplicar a ese material para reducir su imanación a cero. Al referirse a este campo, se debe indicar la medición a la que corresponde, por ejemplo, dirección fácil o difícil en un sistema con anisótropo magnética, o bien otro ejemplo sería indicando si es paralelo o perpendicular al plano de una película. Es decir, se debe indicar la referencia empleada para la medición de la cual se obtiene este campo.

Magnetización remanente: La magnetización remanente o simplemente la remanencia, m_{rem} , corresponde a la magnetización que retiene el sistema en ausencia de un campo aplicado o bien después de aplicar y remover el campo aplicado. La magnetización que retiene el sistema, o su magnetización remanente, depende de la historia magnética del sistema y por lo tanto es necesario indicar como se obtuvo. En este sentido, definimos la remanencia del ciclo mayor como la magnetización que persiste a lo largo de la dirección del campo externo luego que el sistema fue inicialmente saturado. Se acostumbra a medir la remanencia como la fracción remanente con respecto al estado saturado: $m_{rem}^{sat} = M(H_{Ap} = 0)/M_s$.

Otros estados, puntos y procesos que son importantes o que se emplean frecuentemente son: los puntos (valores de campo) que denotan la salida y la llegada a la saturación, que por lo general son distintos valores de campo. Otro valor importante es la susceptibilidad efectiva que es la pendiente en el campo coercitivo, es decir $\chi_{ef} = dM/dH |_{H=H_c}$. La curva virgen o curva inicial, que es la curva medida a partir de $H = 0$ a la saturación, luego que el sistema ha sido inicialmente desmagnetizado. Es decir, el sistema se prepara para que su magnetización remanente sea cero y luego se mide como se magnetiza el sistema iniciando en ese estado.

Otro tipo de mediciones comúnmente realizadas son los ciclos de histéresis aplicando el campo externo en diferentes direcciones. Esto permite identificar la presencia de anisotropías magnéticas. A manera de ejemplo la figura 1.21 (b) muestra los ciclos de histéresis medidos a lo largo de la dirección de fácil y difícil magnetización correspondientes a una red de nanoalambres.

Ciclos menores: Los ciclos menores se refieren a un ciclo ida y vuelta pero que queda contenido dentro del ciclo mayor. Es decir, se realiza un ciclo partiendo del estado saturado y llegando hasta un punto con magnetización diferente a la saturación antiparalela como se hace para el ciclo mayor.

En un ciclo menor, se induce la inversión de la magnetización de un subconjunto del sistema o bien, se hace un proceso parcial de magnetización. Los límites del proceso son el estado saturado que se toma siempre como la referencia y el punto extremo que se alcanza y a partir del cual se realiza la parte de retorno del ciclo. A este punto se le conoce como punto de retorno y sus coordenadas son (H_r, m_r) . En la figura 1.22 (a) se muestra un ciclo menor donde se indica el punto de retorno. Al comparar con el ciclo mayor, es claro que el ciclo menor solo involucra un proceso de magnetización de una parte del sistema.

Dado que es un ciclo, también contiene una parte descendiente o de ida, que inicia en el estado saturado y termina en el punto de retorno. Mientras que la parte ascendente o de retorno, inicia en el punto de retorno y termina en el estado saturado. Tal y como se ilustra en la figura 1.22 (a), donde vemos el ciclo mayor y un ciclo menor para el cual se muestran en diferente color y con flechas la parte descendiente y ascendente. En la práctica, y como hemos hecho en el presente proyecto, se acostumbra a medir varios ciclos menores a fin de tener un conjunto de ellos, como se muestra en la figura 1.22 (b). Al hacer estas mediciones los ciclos menores son identificados por sus respectivos puntos de retorno $(H_r, m_r)_i$.

En el contexto del presente proyecto, donde nos interesamos en ensambles de partículas magnéticas biestables que siguen una distribución de campos de rotación, los ciclos menores son de gran interés. En efecto, para estos sistemas de interés, hemos dicho que cuando se lleva a cabo un proceso de magnetización las partículas biestables cambian su estado entre los dos

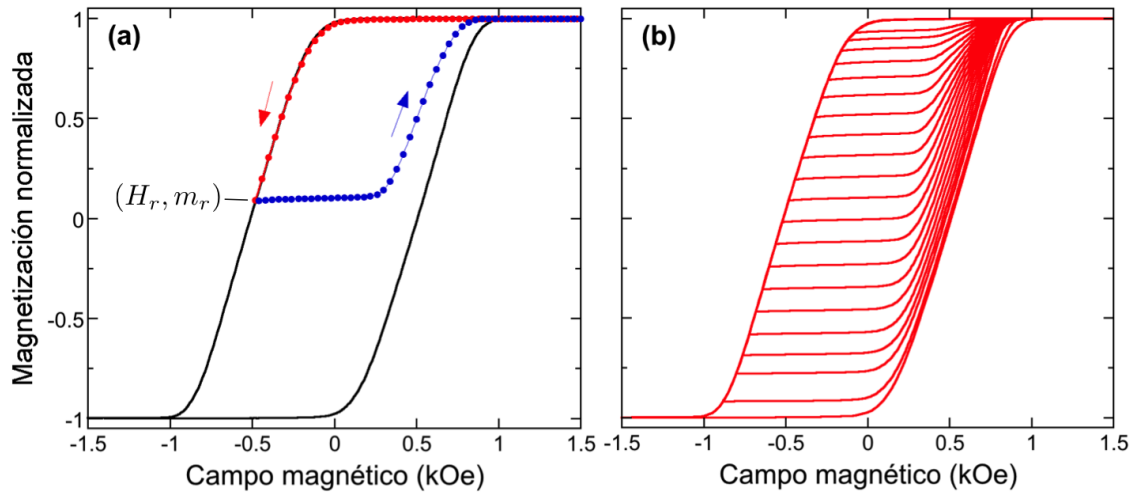


Figura 1.22: (a) ciclo mayor y un ciclo menor donde se muestran en diferente color la parte descendiente y ascendente y, (b) conjunto de varios ciclos menores. Mediciones realizadas en una red de nanoalambres de NiFe.

valores permitidos y las rotaciones se hacen en orden incremental de los campo coercitivos o de rotación que siguen la SFD. En este sentido, un ciclo menor es un proceso en el cual se explora un segmento de la SFD y por lo tanto, solo un subconjunto de las partículas del ensamble participa en el ciclo. En particular, si el campo de retorno es H_r , entonces todas las partículas con campo coercitivo tal que $H_{ci} \leq H_r$ participan en el ciclo menor, mientras que aquellas con coercividades tales que $H_{ci} > H_r$, no participan, es decir, su magnetización no cambia.

Curvas de retorno de primer orden: Estas curvas, también conocidas como curva FORC (o curvas FORC) del inglés First Order Reversal Curves, no son otra cosa que la parte ascendente o el retorno de un ciclo menor. Estas curvas han adquirido mucha popularidad debido a que se utilizan para elaborar los llamados diagramas FORC que es una curva de niveles que proporciona información sobre procesos de magnetización. En este trabajo no nos interesan y no se utilizan estos diagramas, pero si nos interesan y se han utilizado las curvas FORC. La figura 1.23 muestra 180 curvas FORC medidas en una red de nanoalambres de Cobalto con el campo aplicado paralelo al eje de los cilindros. En la figura se puede observar que no se cuenta con la parte descendiente del ciclo mayor, pero que el ensamble de todas las curvas FORC trazan la envolvente del ciclo mayor. De manera similar a un ciclo menor, el protocolo de medición de una curva FORC empieza por aplicar un campo grande de saturación positiva el cual es posteriormente reducido hasta llegar al punto de retorno con coordenadas (H_r, m_r) . Este punto marca el inicio de la curva de retorno, la cual se obtiene midiendo la magnetización mientras el campo incrementa su magnitud desde H_r hasta $H_{max} \geq H_{sat}$. Una vez que se termina la medición, se repite el mismo proceso para otro punto de retorno.

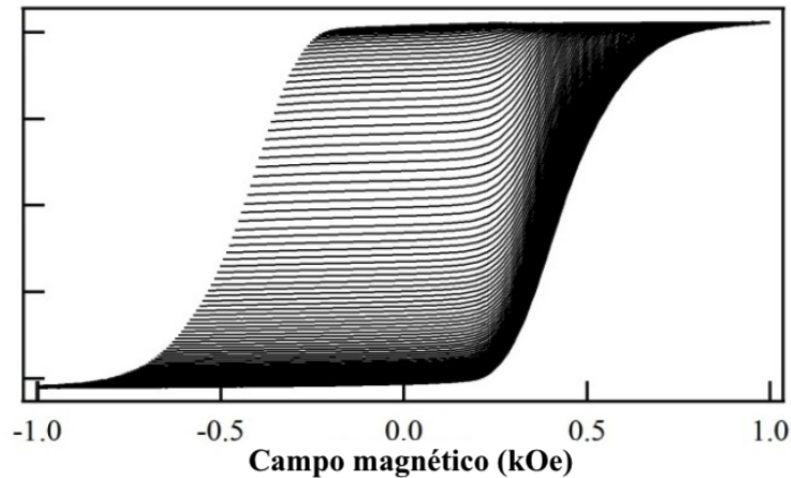


Figura 1.23: 180 curvas FORC medidas en una red de nanoalambres de Cobalto con el campo aplicado paralelo al eje de los cilindros.

Curvas de remanencia: Otro tipo de curvas o protocolos de medición que son útiles y que se usan con frecuencia con las llamadas curvas de remanencia y de éstas hay dos que son las que nos interesan más: la curva de adquisición de la Magnetización Remanente Isotérmica (IRM) y la curva de adquisición de la Desmagnetización Remanente DC (DCD). Estas curvas siguen un protocolo que está diseñado para medir los valores de la magnetización remanente que solo refleja cambios en la magnetización debido a rotaciones irreversibles. Es decir, estos protocolos filtran o distinguen los procesos de rotación reversibles e irreversibles de la magnetización. Con lo que se grafican únicamente los procesos de rotación irreversibles y dejando fuera, o descartando, los reversibles.

Las dos curvas de adquisición que nos interesan, IRM y DCD, siguen un mismo protocolo, pero con dos diferencias importantes: la IRM refleja un proceso de magnetización o ascendente, mientras que la DCD muestra un proceso de desmagnetización o descendente. Por lo que, la segunda diferencia es que tienen distintos puntos iniciales y finales. La curva IRM inicia en el estado desmagnetizado, con $m = 0$ y termina con la magnetización remanente máxima que posee el material, m_{rem}^{mx} . Por su parte la curva DCD inicia con el sistema en su magnetización remanente máxima positiva y termina en el estado con la magnetización remanente máxima negativa.

El estado inicial para la curva IRM se obtiene mediante un proceso de desmagnetización que utiliza un campo alternante con amplitud decreciente. Este es el proceso que se usa comúnmente para desmagnetizar el material cuando se quiere medir la curva virgen. Por su parte el estado inicial de la curva DCD se genera aplicando un campo para llevar al sistema al estado de saturación positiva y posteriormente reduciendo el campo a cero y dejando que el sistema llegue a su remanencia. Esto corresponde a la remanencia del ciclo mayor.

Para la adquisición IRM, se aplica una serie de campos cuya magnitud incrementa a un paso δH . Sea $H_1, H_2, \dots, H_n$ la serie de campos incremental, entonces se cumple que $H_{i+1} > H_i$ y $H_{i+1} - H_i = \delta H$. La medición se lleva a cabo incrementando el campo inicialmente hasta H_1 y posteriormente a $H = 0$ y se mide la magnetización remanente m_{r1} . El siguiente punto se mide subiendo el campo hasta H_2 y posteriormente a $H = 0$, para medir la nueva magnetización remanente que pasa de m_{r1} a m_{r2} . El proceso se repite incrementando cada vez el valor de campo máximo H_i , para luego cortarlo con lo que $H = 0$ y registrando el valor de la magnetización remanente m_{ri} . La adquisición termina cuando el valor del campo aplicado es mayor o igual a la magnetización de saturación del ciclo mayor, de tal manera que el estado final corresponde a la remanencia del ciclo mayor. La curva IRM es la gráfica de las coordenadas (H_i, m_{ri}) . El proceso se resume en la siguiente expresión:

$$m_0 = 0 \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ H_1 \end{smallmatrix} \right. m_1 \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ H_2 \end{smallmatrix} \right. m_2 \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ H_3 \end{smallmatrix} \right. m_3 \rightarrow \dots \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ H_{sat} \end{smallmatrix} \right. m_{rem}^{mx} \quad (1.56)$$

La curva de remanencia DCD sigue un proceso similar, solo que el campo decrece progresivamente su magnitud para ir desmagnetizando por pasos el material. En el primer paso, el sistema tiene su valor máximo de magnetización remanente m_{rem}^{mx} . Se aplica un campo negativo H_1 que después se remueve y se registra la magnetización remanente $m_{r1} < m_{rem}^{mx}$. En el segundo paso se aplica un campo H_2 más negativo que lleva al sistema de m_{r1} a m_{r2} . El proceso se repite hasta que se aplica un campo negativo cuya magnitud es igual o mayor al campo de saturación y para el cual la remanencia corresponde a la del ciclo mayor. El proceso se resume en la siguiente expresión:

$$m_0 = m_{rem}^{mx} \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ -H_1 \end{smallmatrix} \right. m_1 \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ -H_2 \end{smallmatrix} \right. m_2 \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ -H_3 \end{smallmatrix} \right. m_3 \rightarrow \dots \rightarrow \left| \begin{smallmatrix} 0 \\ -H_{sat} \end{smallmatrix} \right. -m_{rem}^{mx} \quad (1.57)$$

La figura 1.24 muestra las curvas IRM y DCD junto con el ciclo mayor medidas en una red de nanoalambres con el campo aplicado paralelo al eje de los alambres. Las flechas indican la dirección en que varía la magnitud del campo aplicado. Como podemos ver, la magnetización remanente máxima que posee el material, m_{rem}^{mx} , corresponde al valor de la remanencia del ciclo mayor. Otro punto importante para el presente trabajo es que, como se nota en la figura, la curva DCD se superpone a la parte descendente del ciclo mayor. Ya que en el ciclo mayor se grafican ambos procesos reversibles e irreversibles, el hecho que la curva DCD coincide con la parte correspondiente del ciclo mayor es un indicador de que los procesos de magnetización en las redes de nanoalambres (al menos en esta muestra) son irreversibles y los procesos reversibles son despreciables o nulos.

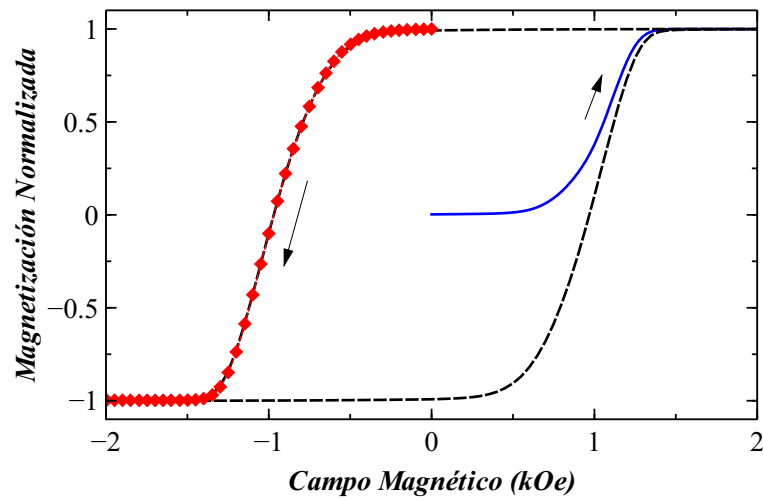


Figura 1.24: Curvas IRM y DCD junto con el ciclo mayor medidas en una red de nanoalambres con el campo aplicado paralelo al eje de los alambres. Las flechas indican la direcci3n en que varía la magnitud del campo aplicado.

Capítulo 2

Antecedentes

2.1. La distribución intrínseca de campos de rotación y su determinación experimental

Al trabajar con ensambles de partículas existe una propiedad que es de gran importancia tanto a nivel fundamental como aplicado y que es la distribución de campos de rotación, o SFD del inglés *Switching Field Distribution*, y en particular la llamada distribución intrínseca de campos de rotación o iSFD del inglés *intrinsic Switching Field Distribution*.

La distribución de campos de rotación es una propiedad de cualquier ensamble de partículas y refleja la dispersión de campos de rotación de las partículas individuales del ensamble. Esta es una propiedad que es de gran interés ya que proporciona la descripción estadística de los campos de rotación, los cuales están relacionados con las propiedades magnéticas y micro-estructurales de cada elemento del ensamble. Por lo que la SFD arroja información valiosa que sirve para elucidar mecanismos que intervienen o que son importantes en la rotación de las diferentes componentes del ensamble [41, 13, 76].

Todo ensamble de partículas muestra una distribución de campos de rotación. Esta distribución se obtiene al derivar la parte ascendente o descendente del ciclo mayor de histéresis. El origen de la distribución se relaciona con los diferentes tipos de in-homogeneidades que llevan a cambios (chicos o grandes) en los campos coercitivos individuales de las partículas.

Hay muchos problemas tecnológicos y fundamentales en los cuales la SFD es de gran importancia [41, 13, 76]. En el caso de lógica magnética basada en autómatas celulares, Csaba

y colaboradores [39] señalan que los dispositivos para lógica magnética usualmente se fabrican usando nanolitografía, y esos imanes individuales muestran una variación importante de campos de rotación de uno a otro. Esto ha limitado su aplicación ya que la variación de las propiedades magnéticas de un elemento a otro frustra el orden magnético y limitan la propagación de señales magnéticas. Aplicaciones como grabado magnético, MRAMs, Autómatas celulares, circuitos lógicos, filtros microondas y sensores de campo magnético requieren que al fabricar sistemas que incluyan un número dado de partículas, la dispersión de los campos de rotación sea lo más baja posible. Esto es equivalente a decir que la SFD sea angosta. Lo que se busca es que las partículas se comporten lo más parecido posible y que no haya variaciones importantes en sus campos de rotación. La posibilidad de introducir al mercado un producto está limitado por la capacidad de fabricar grandes cantidades de material (Medios de grabado, Bits para MRAMS, etc.) de manera controlada y reproducible.

Desde el punto de vista fundamental, el interés de la SFD tiene que ver que al medir alguna propiedad, ésta será afectada por la distribución. Es decir, se mide una distribución de la propiedad que se está midiendo. Esto lleva al problema de determinar propiedades individuales de las partículas a partir de una medición estadística. Existe también el problema inverso: como integrar un ensamble de partículas de tal manera que las propiedades del ensamble sean las que se buscan o necesitan. Este es el caso de materiales compósitos. Entonces de punto de vista fundamental, la SFD y su relación con las propiedades individuales da lugar a dos problemas importantes. Hay otros más elaborados, pero estos dos están relacionados únicamente con el problema de pasar (en ambas direcciones) de las propiedades individuales y la estadística propia del ensamble.

En el caso de sistemas formados por partículas magnéticas se presenta otro problema no trivial que dificulta el análisis e interpretación de la SFD o de la estadística. Este problema viene de la interacción magnética entre partículas. El análisis de la SFD en sistemas con interacción se complica por el hecho de que cada partícula en el sistema estará sujeta al campo de interacción, el cual produce un corrimiento desconocido de su campo de rotación. Adicionalmente, el campo de interacción total que siente una partícula depende de la magnetización total del sistema. Esto es, la suma de todos los momentos magnéticos. Esta suma cambia cada vez que cambia la configuración de las magnetizaciones en el sistema. Lo anterior resulta en un corrimiento variable de los campos de rotación medidos para cada partícula lo cual resulta en una SFD que es deformada por el campo de interacción. Esto hace necesario definir o distinguir entre la SFD medida y la SFD intrínseca (iSFD). La medida contiene y refleja los efectos del campo de interacción, mientras que la iSFD correspondería a la distribución real del sistema y que solo puede ser obtenida para el caso sin interacción o bien, el problema que nos interesa: poder obtener la iSFD a partir de la SFD medida.

2.1.1. Determinación experimental de la distribución intrínseca de campos de rotación

Como ya se mencionó, la SFD se obtiene por derivación directa de la curva $M(H)$, sea $\sigma(H)$ la SFD, entonces

$$\sigma = \frac{dM}{dH}. \quad (2.1)$$

Esta, sin embargo, corresponde a la SFD medida, la cual difiere de la intrínseca en un sistema con interacción ya que como se ha mencionado, la interacción; a primera aproximación, se suma al campo aplicado resultado en un campo total (campo medio):

$$H_T = H_A + H_{int}(m), \quad (2.2)$$

lo que quiere decir que la SFD es la versión deformada de la iSFD debido a la interacción. La interacción a su vez depende de la magnetización total del sistema y eso es el origen de las dificultades para determinar la iSFD en un ensamble de partículas.

De lo anterior podemos suponer que la SFD medida (σ) y la iSFD (σ_0) se relacionan por la Ec. (2.2), es decir,

$$\sigma(H_A) = \sigma_0(H_T). \quad (2.3)$$

Con esta expresión podemos identificar el problema. Notemos que la SFD medida se gráfica como función del campo aplicado ya que todas las mediciones del ciclo de histéresis y su derivada se grafican en función del campo aplicado, que es el parámetro externo controlado con el que exploramos al sistema. Sin embargo, debido al campo de interacción, las partículas ya no están sujetas al campo aplicado si no al campo total, por lo que la SFD medida corresponde a la iSFD del campo total pero graficada en función del campo aplicado, como lo expresa la ecuación (2.3). Por lo que la gráfica de la SFD en función del campo total debería corresponder a la iSFD. Es claro que si el campo de interacción es cero, $H_T = H_A$ y $\sigma(H_A) = \sigma_0(H_A)$.

De lo anterior sigue que: (a) en un sistema con interacción la SFD $\neq$ iSFD, (b) cuando no hay interacción SFD = iSFD, o lo que es igual, la iSFD es la SFD del sistema sin interacción y, (c) para encontrar la iSFD a partir de la SFD en un sistema con interacción, es necesario remover la deformación de la iSFD provocada por el campo de interacción.

Entonces, a pesar de que es directo obtener la SFD, no es ese el caso para encontrar la iSFD. Es claro también que para obtener la iSFD a partir de la SFD medida, es necesario conocer o hacer algún tipo de consideración sobre el campo de interacción y de cómo este deforma la iSFD.

Durante las últimas dos décadas se han visto esfuerzos en el desarrollo de metodologías encaminadas a encontrar o determinar la iSFD en ensambles de partículas interactuantes. A continuación, estos métodos son discutidos.

2.1.2. Método de la corrección del sesgo de las curvas de magnetización

Un de los primeros métodos propuestos fue introducido por Veerdonk y colaboradores [77], de Seagate uno de los principales fabricantes de discos duros a inicios de los 2000. El método parte de una suposición simple pero aproximada. En un ensamble de partículas la interacción induce una transformación de sesgo en las curvas de magnetización. Este es un efecto análogo al del sesgo inducido por el campo desmagnetizante clásico en el caso de un material homogéneo y continuo. Si pensamos en la curva inicial que no presenta el sesgo y en la curva transformada mediante el sesgo, es claro que sus derivadas (SFDs) son diferentes. En este caso, la derivada de la curva sesgada será más ancha que la que no presenta el sesgo.

La idea del sesgo, su relación con el ensanchamiento de la SFD, la interacción y la iSFD se puede enunciar como: la SFD medida corresponde a la iSFD que ha sufrido la transformación del sesgo debido al campo de interacción. Sea $\mathcal{S}$ la transformada del sesgo y $\mathcal{S}^{-1}$ la transformada inversa, entonces:

$$\sigma = \mathcal{S}(\sigma_0), \quad (2.4)$$

$$\sigma_0 = \mathcal{S}^{-1}(\sigma). \quad (2.5)$$

De esta última expresión sigue que la iSFD se puede obtener haciendo la corrección del sesgo (removiéndolo) de las curvas de magnetización.

El método propuesto por Veerdonk y cols., se basa en hacer la corrección del sesgo numéricamente y comparando el resultado con el campo desmagnetizante total del sistema, el cual puede ser experimentalmente medido por métodos conocidos. El sesgo del sistema se puede asociar a un factor desmagnetizante efectivo, por lo que al hacer la corrección se obtiene un nuevo campo desmagnetizante efectivo. En la práctica, se realiza la corrección de manera recursiva incrementando el factor de corrección y comparando con la referencia. Cuando se alcanza el valor de referencia se considera que se ha removido por completo el sesgo y la curva resultante corresponde a la curva intrínseca y sin interacción a partir de la cual se obtiene la iSFD.

La forma normal de tratar el problema del sesgo, siguiendo el caso clásico estudiado en magnetostática, es mediante el campo total,

$$H_T = H_A + N^\dagger M, \quad (2.6)$$

donde $N^\dagger$ es el factor desmagnetizante efectivo. Nótese la semejanza con la Eq. (2.2), donde ya vemos que hay una relación entre $N^\dagger M$ y $H_{int}(m)$.

Una crítica a este método es que supone $N^\dagger$ constante (no depende de la magnetización) que es equivalente a la aproximación de campo medio. Se ha cuestionado a que grado esta aproximación es correcta o válida y finalmente, en el artículo original ellos deben hacer suposiciones acerca de la forma de la SFD la cual no se conoce. En este sentido, el mismo grupo reporto en 2008 otro estudio en el que se enfocan mediante simulaciones micro magnéticas a evaluar la validez de la aproximación de campo medio [78].

Como se concluye en este reporte, cuando no hay interacciones de intercambio y solo hay interacción dipolar, los campos de interacción son independientes del entorno local lo que sugiere que es válido aplicar la aproximación de campo medio. Mas aun, encuentran que la dependencia del campo de interacción con la magnetización del sistema es bastante lineal si se desprecian fluctuaciones térmicas. Por otra parte, en casos con interacción de intercambio moderada, encuentran que la aproximación de campo medio es razonable cuando hay fluctuaciones térmicas, pero no así cuando estas fluctuaciones son eliminadas [78].

2.1.3. Método basado en la interacción promedio y la corrección del sesgo

Como ya se vio en la sección anterior, la forma más directa de visualizar el efecto de la interacción en la transformación de la iSFD a la SFD es mediante el sesgo de las curvas de magnetización. El método propuesto por Veerdonk y colaboradores [77] usa un método recursivo que corrige el sesgo para encontrar una solución que se adapta al resultado esperado. En ese sentido, el método evita por completo el problema de determinar el campo de interacción y su uso para corregir el sesgo. En este sentido, nuestro grupo reporto un método que permite encontrar el valor del campo de interacción promedio a partir de las curvas de remanencia IRM y DCD. Posteriormente, el campo de interacción es utilizado para remover punto a punto el valor de la interacción de la SFD medida, obteniendo así la iSFD [79].

Para obtener la iSFD se considera, como se explicó anteriormente, que en la curva medida cada punto corresponde a la coercividad k -ésima partícula medida para el campo total $H_{Tk} = H_A + \alpha m_k$, es decir, H_{Tk} es la coercividad sesgada, por lo que la coercividad intrínseca $H_{c(i)}$ se puede obtener de la medida H_c restándole el campo de interacción para el valor correspondiente de magnetización, esto es [79]

$$H_{c(i)} = H_c - \alpha m. \quad (2.7)$$

En el artículo se proporciona primeramente un método que permite determinar el coeficiente del campo de interacción promedio α . Conocido este valor, se procede determinar la iSFD

que no es otra cosa que graficar los mismos puntos de magnetización medidos, pero usando una nueva columna de valores de campo que corresponden a la coercividad intrínseca calculada punto a punto usando la ecuación (2.7). En este trabajo también se propone un método de verificación el cual consiste en realizar la corrección del sesgo a las curvas de remanencia IRM y DCD y usar las curvas corregidas con los métodos gráficos estándar empleados para identificar interacciones a partir de la relación de Wohlfarth. En particular, se muestra que las curvas Henkel, ΔH y ΔM obtenidas con las curvas corregidas son consistentes con el caso no interactuante y por lo tanto validan la correcta remoción del sesgo inducido por el campo de interacción.

Este método tiene la ventaja de que no requiere suponer la forma funcional de la SFD, sin embargo, se basa en la aproximación de campo medio y por lo tanto su validez o aplicabilidad queda limitada a casos en los que se puede usar esta aproximación. Finalmente, la iSFD se obtiene mediante la corrección del sesgo de la SFD medida.

2.1.4. El método $\Delta H(M, \Delta M)$

Uno de los métodos para determinar la iSFD que más auge tuvo fue el método propuesto por A. Berger conocido como el método $\Delta H(M, \Delta M)$ [80, 81].

Como explican en sus artículos [80, 81] este método es la generalización de la idea y método propuesto previamente por Tagawa y Nakamura [82].

En este método se requiere la medición del ciclo mayor y del ciclo menor con punto de retorno en el campo coercitivo donde $m = 0$. La diferencia de campo entre el ciclo mayor y el retorno del ciclo menor en el punto en que el ciclo menor llega a la mitad del valor de saturación es proporcional a la iSFD. Esta diferencia de campo ΔH corresponde a la diferencia entre los puntos que corresponden al 25 % y al 75 % de la distribución. Por lo que, si se asume que la iSFD es gaussiana, esta diferencia se relaciona con el ancho a la altura media o el FWHM de la gaussiana. Es de notar que al tratarse de puntos con el mismo valor de m , al realizar la resta se elimina la contribución del campo de interacción, asegurando que ΔH solo retiene información de la iSFD.

Tagawa y Nakamura van más lejos llegando a una expresión simple que relaciona la desviación estándar de la iSFD gaussiana con ΔH , en particular [82] :

$$\sigma_{int} = \frac{\Delta H}{1,35}. \quad (2.8)$$

La idea planteada por Berger y colaboradores es que no es necesario limitarse a un solo punto $\Delta H(m = 0,5)$ si no que se puede generalizar para cada punto en el retorno del ciclo menor y además se pueden incluir tantos ciclos menores como se quiera. Su idea es que

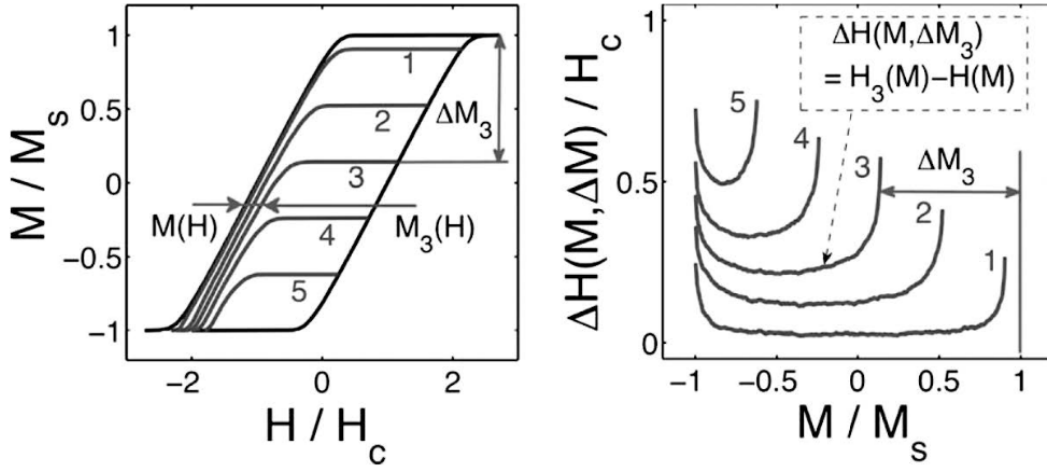


Figura 2.1: Descripción del método $\Delta H(M, \Delta M)$ para determinar la SFD. Del lado izquierdo, representación esquemática del ciclo mayor y una serie de ciclos menores con punto de retorno a una distancia ΔM_i ($i = 1, \dots, 5$) de la saturación. A la derecha, las correspondientes curvas $\Delta H(M, \Delta M)$, imagen adaptada de [83].

para un ciclo menor cualquiera, identificado por su magnetización de retorno (M_r) o bien por $\Delta M = M_r - M_s$ (M_s es la magnetización de saturación), se puede medir la diferencia de campo ΔH para cualquier valor de M en el retorno del ciclo menor y su contraparte en el ciclo mayor, de ahí la nomenclatura $\Delta H(M, \Delta M)$. La figura 2.1 muestra cómo se obtienen los datos del método. Aquí podemos ver el caso particular de un punto arbitrario en el ciclo menor 3, del lado izquierdo: $M_3(H)$ y su contraparte en el ciclo mayor $M(H)$. Para este punto se calcula $\Delta H = H_3(M) - H(M)$ como se muestra del lado derecho de la figura.

$$M = 1 - 2 \int_{-\infty}^{-[H_M + H_i(M)]} D(H_S) dH_S. \quad (2.9)$$

Sin embargo, el problema de esta formulación es la siguiente. El método requiere medir diferencias de campo ΔH para el mismo valor de la magnetización entre el ciclo mayor y el menor, con lo cual se elimina la contribución de las interacciones dejando así una diferencia de campo atribuible únicamente a la distribución intrínseca. Si bien el razonamiento que lleva a la eliminación de la contribución del campo de interacción es correcto, la forma de asociar la diferencia a la iSFD es la que no es clara o evidente.

Finalmente, este método requiere que se proponga la forma funcional de la iSFD y posteriormente se busca el mejor ajuste al conjunto de datos obtenidos del experimento.

En esta sección se han presentado el método $\Delta H(M, \Delta M)$ [80, 81] que es la generalización de un método propuesto anteriormente por Tagawa y Nakamura [82], el cual utiliza un solo punto del ciclo menor cuyo campo de retorno es el campo coercitivo. Sobre estos métodos, es importante mencionar que el método de Tagawa y Nakamura fue extendido por Nemoto y colaboradores [84] introduciendo otra diferencia de campo, ΔH_{ext} que complementa a la de Tagawa y Nakamura, que ellos llaman ΔH_{int} . La segunda diferencia de campo (ΔH_{ext}) se obtiene luego de desplazar el retorno del ciclo menor para que inicie en $M = -M_s$ y midiendo la diferencia de campo a la mitad de la altura del retorno del ciclo menor, como se muestra en la figura 2.2. Como discuten Weller y colaboradores [86], la parte intrínseca

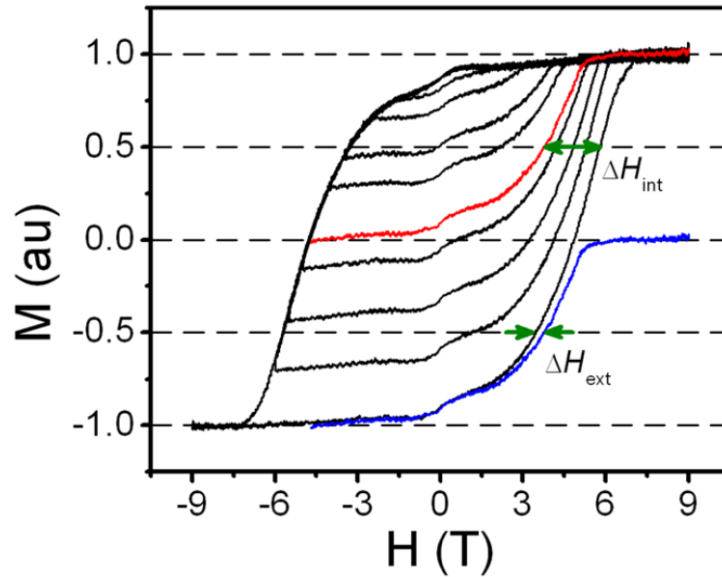


Figura 2.2: Ciclo de histéresis y ciclos menores donde se muestra el ciclo menor con campo de retorno igual al campo coercitivo (color rojo) y como se usa para obtener las diferencias de campo ΔH_{int} y el mismo ciclo desplazado horizontalmente para que el punto de retorno coincida con la saturación negativa (color azul) del cual se obtiene ΔH_{ext} , imagen adaptada de [85].

ΔH_{int} , está relacionada con factores que llevan a la dispersión de campos de rotación a nivel interno de cada partícula, como es la dispersión de anisotropía efectiva. Mientras que la parte externa ΔH_{ext} se relaciona con efectos del entorno, en particular efectos de interacción dipolar o de intercambio. La deducción del factor ΔH_{ext} no es muy clara, pero se ha establecido ya como una forma estándar de obtener una cantidad relacionada con el campo de interacción y que varios grupos han adoptado [85, 86, 87, 88, 89, 90, 91, 92]. Como nota, esta diferencia se obtiene de manera directa y clara como un caso particular de uno de los métodos que se han desarrollado y validado en el presente trabajo, con lo cual se proporciona (como se discutirá más adelante) una expresión que relaciona el coeficiente del campo de interacción promedio α con ΔH_{ext} .

2.1.5. Diagramas FORC

Los diagramas FORC son una construcción gráfica de una distribución tridimensional que se obtiene a partir de un conjunto de curvas de retorno de primer orden (First Order Reversal Curves - FORC), las cuales podemos imaginar como curvas de nivel en una gráfica 3D. Estas curvas corresponden a la parte ascendente o de retorno de un ciclo menor, pero para la construcción de dichos diagramas solo se miden los retornos y la distribución se construye mediante la siguiente transformación:

$$\rho(H_r, H) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2 M(H_r, H)}{\partial H_r \partial H}, \quad (2.10)$$

donde $\rho(H_r, H)$ es la distribución FORC y H_r es el campo de retorno que marca el inicio del FORC.

El caso de los diagramas FORC es interesante porque ha adquirido una gran popularidad en los últimos años y se ha argumentado que pueden proporcionar información más completa y detallada que otros métodos ya bien conocidos y usados [93]. Su relación con la SFD y en particular con la iSFD viene desde las ideas más básicas que fundamentan a estos diagramas: el modelo de Preisach de histéresis.

Uno de los primeros modelos propuestos para explicar y simular los procesos de histéresis en materiales magnéticos fue el que elaboro Preisach y el cual lleva su nombre. Sin entrar en detalle, la construcción o simulación de un ciclo de histéresis en este modelo requiere de la llamada distribución de Preisach, que no es otra que la iSFD del sistema. El modelo original o clásico de Preisach no toma en cuenta interacciones, por lo que se han desarrollado versiones enriquecidas del modelo para acomodar dichos efectos, tal es el caso del corrimiento en el modelo de Preisach. En una investigación que dio a dicho modelo de bases físicas y matemáticas más generales, Mayergoyz estableció una relación entre las curvas de retorno de primer orden y la distribución de Preisach del sistema, esta es en esencia la Ec. (2.10), sin embargo, es claro que hay diferencias entre un sistema real y el sistema idealizado del modelo de Preisach [94]. Por lo que Pike y Roberts introdujeron los diagramas FORC como una herramienta para obtener la llamada distribución FORC del sistema, dada por la Ec. (2.10), la cual difiere de la distribución de Preisach pero que se considera que está relacionada con la SFD del sistema [95].

En realidad, el uso de los diagramas FORC para obtener información detallada y precisa del sistema que no es proporcionada por otras técnicas (así es como lo anuncian los más fervientes usuarios) resulta ser más complicado de lo que parece y la obtención de información útil a partir de ellos no es fácil. De hecho, lo que se puede observar en la literatura es que la obtención de información relevante e interpretable por lo general requiere o se apoya en modelos o simulaciones micro magnéticas.

En este sentido, nos basamos en un trabajo del grupo de Pike en el que realizan simulaciones en un modelo simple de un sistema descrito por la SFD y una interacción moderada para evitar efectos colectivos [96].

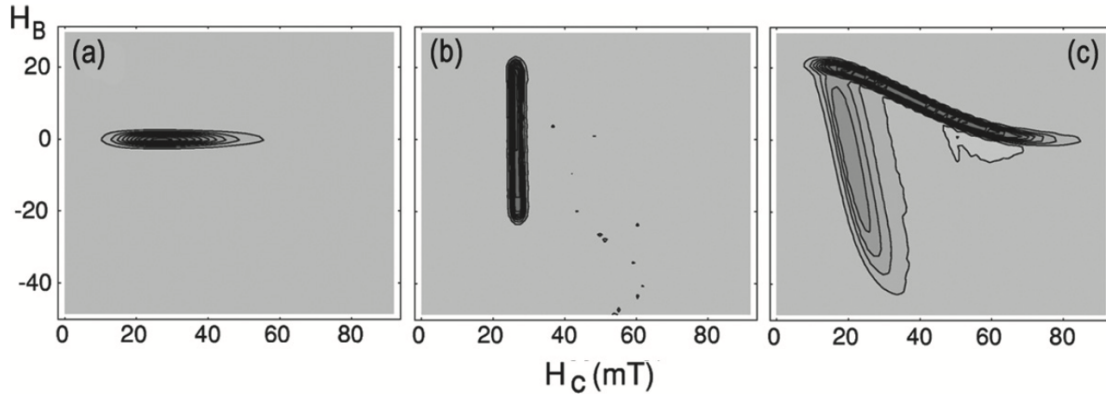


Figura 2.3: Diagramas FORC simulados para un sistema con (a) SFD ancha y $H_{int} = 0$, (b) SFD angosta y $H_{int} \neq 0$ y, (c) SFD ancha y $H_{int} \neq 0$, imagen adaptada de [96].

En la figura 2.3 se muestran los diagramas FORC simulados para un sistema con (a) SFD ancha y $H_{int} = 0$, (b) SFD angosta y $H_{int} \neq 0$ y, (c) SFD ancha y $H_{int} \neq 0$ [96]. Como podemos ver, cuando no hay interacción se obtiene un diagrama que se alarga en el eje H_c pero que es muy angosto a lo largo del eje de la interacción H_B (también se acostumbra a etiquetar como H_u). Por el contrario, como se puede ver en el inciso (b), cuando la interacción es dominante con respecto al ancho de la SFD, el diagrama es más alargado a lo largo del eje H_B y es estrecho a lo largo del eje H_c . Finalmente, como se muestran en (c) cuando ambos anchos de la SFD y magnitud de la interacción son comparables, el diagrama presenta extensiones a lo largo de ambos ejes. La idea central de este resultado es que podemos interpretar un diagrama FORC como la mezcla de dos distribuciones que son casi ortogonales entre sí, la SFD a lo largo del eje H_c y una distribución del campo de interacción que va a lo largo del eje de la interacción H_B .

Aquí lo importante es que del resultado mostrado en la figura 2.3 (a) se puede pensar que, si se realiza la corrección del sesgo en las mediciones, sería posible (en principio) obtener un diagrama FORC plano, es decir, sin componentes en el eje H_u , el cual debería corresponder al diagrama FORC de la SFD.

Esta idea fue explorada por Papusoi y colaboradores en 2011 [97]. La idea que siguieron fue que el sesgo en la SFD viene del término que contiene el factor $N^\dagger$, entonces se puede ir corrigiendo los diagramas FORC hasta llegar a la forma plana como la mostrada en la figura 2.3 (a). Al realizar la corrección, se puede obtener la iSFD a partir del diagrama FORC como el perfil del corte transversal a lo largo del eje H_c en $H_u = 0$. Ellos realizaron esta corrección en los diagramas FORC de un medio granular de grabado magnético con magnetización

perpendicular al plano de CoCrPt. La figura 2.4 muestra los cambios de un diagrama FORC donde se ven claramente las proyecciones en ambos ejes (a, b) y la forma final que se obtiene con la mejor corrección de sesgo que encontraron (c). Como se puede ver en el inciso (c),

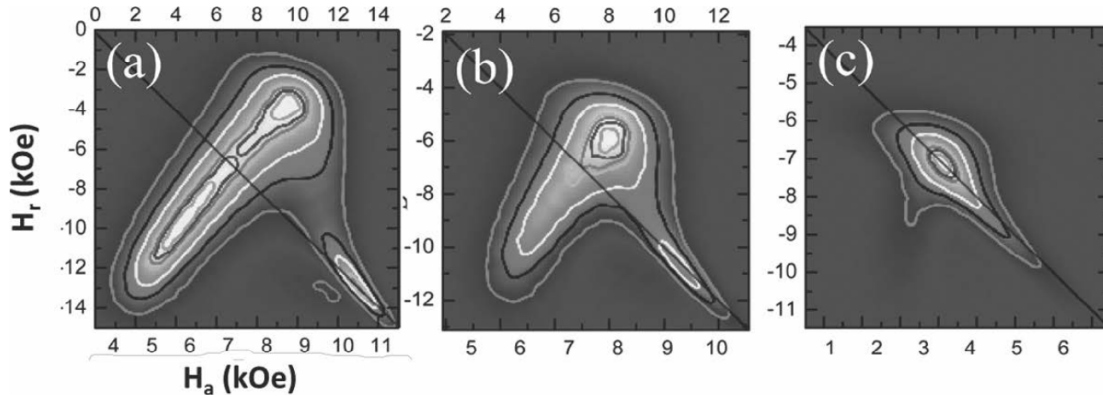


Figura 2.4: Diagramas FORC de un medio granular de grabado magnético con magnetización perpendicular al plano de CoCrPt (a) medido, (b) corregido con valor de prueba y (c) con la mejor corrección, imagen adaptada de [97].

se logra una reducción muy clara en la proyección del diagrama a lo largo del eje de la interacción, pero no se alcanza por completo el límite ideal como el mostrado en la figura 2.3 (a), lo cual implica que el método no arroja resultados ideales, pero da un estimado más o menos correcto. El problema del método es que ante esas desviaciones del caso ideal, no cuentan con otro medio de verificación o comparación que ayude a dar validez a los valores obtenidos de $N^{\dagger}$ o del campo de interacción.

En un estudio reciente realizado por nuestro grupo se reportó un estudio sistemático de los diagramas FORC en redes de nanoalambres [98]. En el cual se mostró que al diluir el sistema y llevar la interacción a valores casi nulos, la distribución que se obtiene seccionando transversalmente el diagrama FORC es básicamente igual a la SFD obtenida como dM/dH y a la distribución construida usando microscopia de fuerza magnética. Estas dos últimas corresponden claramente a la iSFD. Los resultados se muestran en la figura 2.5 para redes de nanoalambres con empaquetamiento bajo ($P = 0.4\%$), diámetro/material de (a) 50 nm/ CoFe, (b) 71 nm/ NiFe, (c) 50 nm/ Ni, and (d) 71 nm/ CoFe. Como se puede ver en la figura, es claro que cuando no hay interacción el corte transversal del diagrama FORC en $H_u = 0$ corresponde a la iSFD. Sin embargo, como se muestra en este trabajo, al aumentar la interacción la curva que se obtiene del corte transversal del diagrama FORC en $H_u = 0$ se deforma y ya no refleja la SFD. Sin embargo, el ancho de esta curva sigue o es prácticamente igual al ancho de la SFD (dM/dH) [98]. Esto coincide con los resultados de Papusoi y colaboradores que mencionamos anteriormente [97], en los cuales la corrección de sesgo no permite llegar de manera satisfactoria al resultado esperado del diagrama FORC del sistema sin interacción.

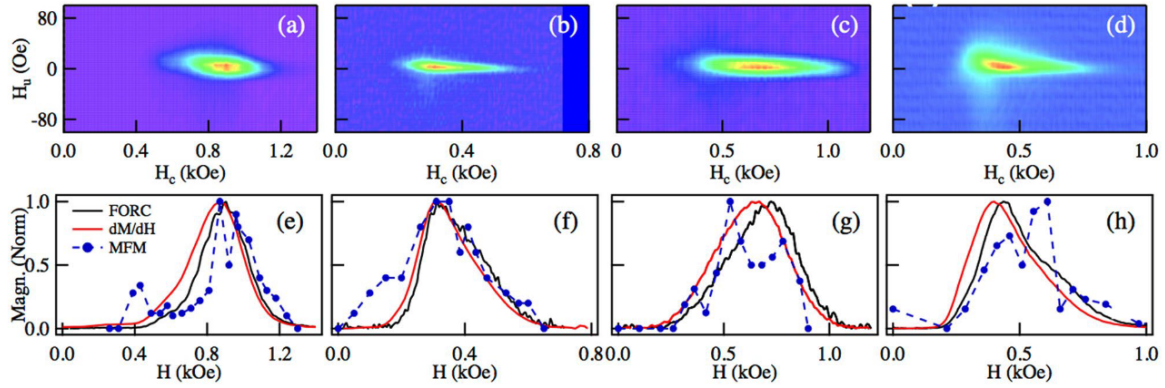


Figura 2.5: Diagramas FORC de redes de nanoalambres con empaquetamiento bajo ($P = 0.4\%$), diámetro y material de (a) 50 nm CoFe, (b) 71 nm NiFe, (c) 50 nm Ni, and (d) 71 nm CoFe. En (e) - (h) se muestran las correspondientes distribuciones CFD obtenida del diagrama FORC, la SFD (dM/dH) y la distribución construida usando microscopia de fuerza magnética (MFM), imagen adaptada de [98].

2.1.6. Conclusiones preliminares sobre los métodos para determinar la distribución intrínseca de campos de rotación

En las secciones anteriores se analizaron los diferentes métodos reportados para determinar la iSFD a partir de la SFD. Este es uno de los problemas centrales que han motivado el presente trabajo por lo que es relevante sacar algunas conclusiones y puntos de interés a partir de los métodos ya existentes.

Efectos colectivos, interacción de intercambio y sistemas puramente dipolares. Se cuestiona la validez de las expresiones del método propuesto por Berger ya que como se verá más adelante, hay un error en las ideas que sirven de base para formalizar el método, aunque los errores no son tan importantes.

Los métodos requieren suponer la forma funcional de la SFD.

El método de FORCs es la versión complicada de los métodos de Seagate y de nuestro grupo. Los tres métodos parten de que la iSFD se puede obtener al remover el sesgo introducido en las curvas de magnetización: curvas FORC, curvas de retorno de ciclos menores o curvas de remanencia IRM/DCD.

Los resultados obtenidos que emplean los diferentes métodos mencionados apuntan a que cuando no hay efectos colectivos las aproximaciones de campo medio y del campo total como la suma del campo aplicado y el de interacción son razonablemente validas, más si no

hay interacción de intercambio presente y la interacción es puramente dipolar [98, 47].

Lo que parece más importante a rescatar es que el sistema debe comportarse bien cuando solo hay interacción dipolar, es decir, se excluye la interacción de intercambio, y debe mantenerse relativamente baja para asegurar que no hay efectos colectivos. En estas condiciones se puede suponer como válida la ecuación del campo total como la suma (vectorial) del campo aplicado y el de interacción.

$$\vec{H}_T = \vec{H}_A + \vec{H}_{int}. \quad (2.11)$$

Siendo este enfoque válido, entonces el paso de la SFD medida a la iSFD se puede hacer mediante la corrección del sesgo o bien suponiendo la coercividad intrínseca. En particular, interpretando el campo aplicado H_A como la coercividad medida H_c y el campo total H_T como la coercividad intrínseca $H_{c(i)}$ tenemos que [79].

$$H_{c(i)} = H_c - H_{int}(m). \quad (2.12)$$

Como vemos, una vez que se conoce el campo de interacción al cual está sujeta la i -ésima partícula del ensamble, se puede calcular su coercividad intrínseca a partir de la medida, es decir, se calcula punto a punto la iSFD a partir de la SFD.

Hasta aquí se sigue suponiendo un campo de interacción promedio o en la aproximación de campo medio que considera que el campo de interacción que sienten todas las partículas es el mismo y por lo tanto es independiente del entorno local y no fluctúa. Esto desde luego no deja de ser una aproximación y lo deseable sería que se conociera el verdadero campo de interacción experimentado por cada partícula del ensamble. Esto permitiría usar la Ec. (2.12) para cada valor del campo de interacción y con este obtener la coercividad intrínseca correspondiente.

Esto, sin embargo, no está hecho ni resuelto, ya que a presente no hay métodos que permitan obtener el campo de interacción punto a punto, es decir ya no su valor promedio si no la curva o distribución del campo de interacción.

2.2. Determinación experimental del campo de interacción

Como se ha mencionado, el problema del campo de interacción en ensambles de partículas es un problema de mucho interés ya que se sabe que este campo se suma al campo interno de las partículas lo que modifica sus propiedades magnéticas, es decir, juega un papel similar al de otras contribuciones a la energía de las partículas. Por otra parte, este efecto induce el sesgo de las curvas de magnetización y eso lo hace relevante para el estudio de la SFD y de la determinación de la iSFD en ensambles de partículas magnéticas.

En este sentido, se presenta a continuación una revisión sobre las metodologías experimentales reportadas que permiten determinar o cuantificar el campo de interacción en ensambles de partículas magnéticas.

La medición del campo de interacción ha sido un problema abierto desde hace mucho tiempo. A presente se cuenta con diferentes enfoques para analizar y cuantificar el campo de interacción. Hay métodos que son cualitativos o cuantitativos, hay los que solo proporcionan un solo valor del campo de interacción (valor promedio) y más recientemente se han reportado métodos que proporcionan valores del campo de interacción para puntos específicos y por lo tanto permiten obtener una distribución de campos de interacción. Finalmente hay métodos que difieren por las técnicas de medición empleadas, siendo por mucho la magnetometría la que más se emplea y la que resulta ser más práctica y accesible. A continuación, hacemos

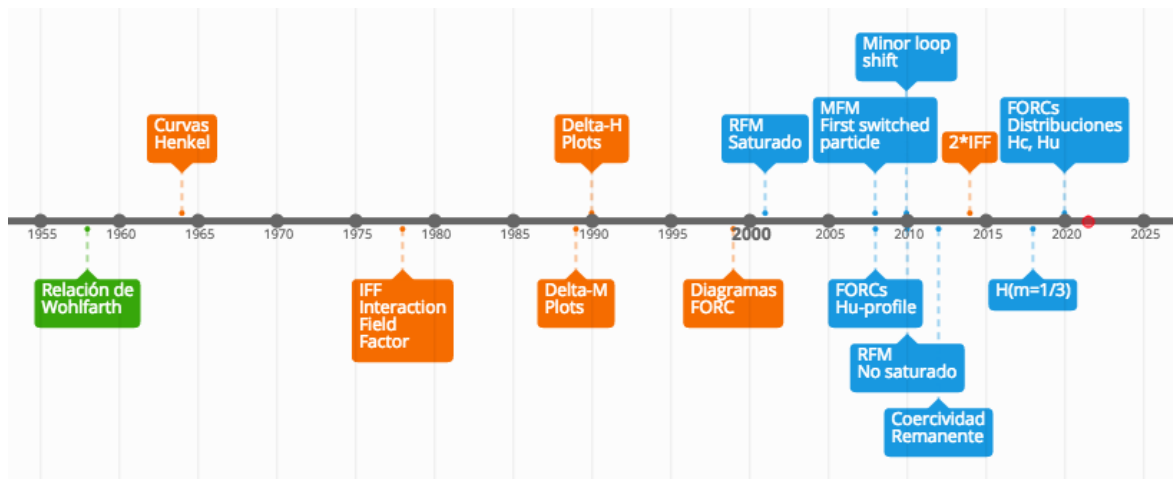


Figura 2.6: Línea de tiempo que retoma el desarrollo cronológico del problema del análisis y medición del campo de interacción a partir de la publicación en 1958 de la relación de Wohlfarth (verde). En color naranja, los métodos que son cualitativos y en azul los cuantitativos.

una revisión breve de los métodos reportados para el análisis cualitativo y cuantitativo del campo de interacción en ensambles de partículas. La figura 2.6 retoma estos métodos en una línea del tiempo y se han clasificado con colores, a partir de la publicación en 1958 de la relación de Wohlfarth (verde), en color naranja, los métodos que son cualitativos y en azul los cuantitativos.

2.2.1. La relación de Wohlfarth

Primero discutimos la relación de Wohlfarth, que como veremos, sirvió como la base para el desarrollo de métodos cualitativos y cuantitativos para el campo de interacción en ensambles de partículas e incluso para sistemas no discretos.

Históricamente, los primeros avances significativos para el estudio y análisis experimental de los efectos de la interacción en ensambles de partículas son de 1958 cuando Wohlfarth propone una relación que se debe observar entre las curvas de remanencia IRM y DCD en ensambles de partículas sin interacción. Esta se conoce como la relación de Wohlfarth y es la base para varios métodos cualitativos y cuantitativos que han sido implementados. Sean $m_r(H)$ y $m_d(H)$ las curvas de remanencia IRM y DCD, respectivamente. La relación de Wohlfarth establece que en un ensamble de partículas ideales (Stoner-Wohlfarth) sin interacción, estas curvas cumplen la siguiente relación:

$$m_d = 1 - 2m_r. \quad (2.13)$$

Si consideramos como se obtienen las curvas m_d y m_r , en particular el hecho de que m_d es una curva de desmagnetización mientras que m_r es una curva de magnetización. Entonces, como se muestra en la figura 2.7, esta ecuación nos dice que la curva $1 - 2m_r$ es igual a la curva m_d . Es claro que cuando hay interacciones las curvas m_r^* y m_d ya no se superponen.

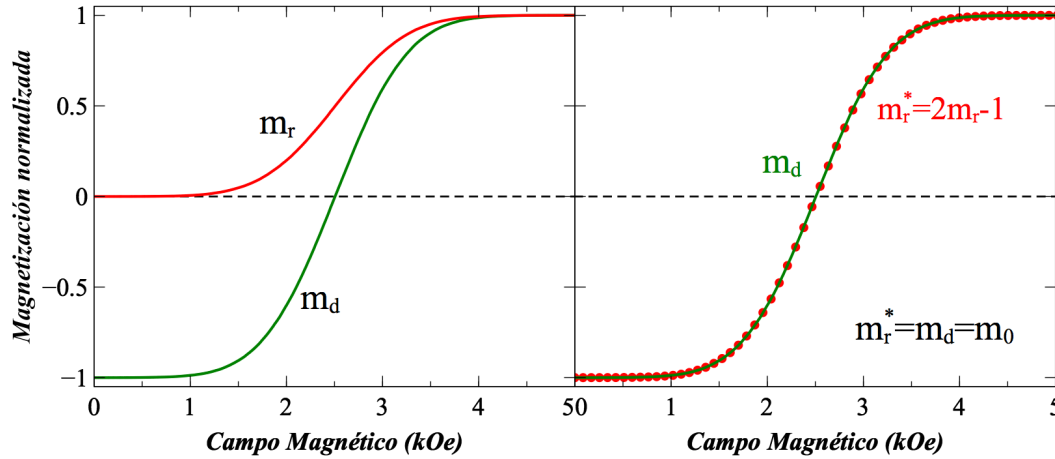


Figura 2.7: (izquierda) curvas de remanencia m_d y m_r y, (derecha) gráfica de $m_r^* = 1 - 2m_r$ y m_d .

Otra manera de enunciar lo anterior es que *en la ausencia de interacciones, los procesos de magnetización y de desmagnetización son equivalentes, y dejan de serlo cuando hay interacción*. Este enunciado, como veremos, es de gran importancia y de hecho es la base de las ideas y métodos que se han desarrollado en el presente trabajo.

Adicionalmente, esta relación entre m_d y m_r implica o es la prueba de existencia de una función SFD que es intrínseca al sistema, la iSFD. La SFD asociada a m_d y m_r es la distribución intrínseca, ya que si hay interacción la relación no se cumple. Si llamamos σ_d y σ_r a las SFDs de m_d y m_r , entonces tenemos que [99, 100]

$$m_d = -1 + 2 \int_0^\infty \sigma_r(h) dh, \quad (2.14)$$

de la misma manera se tiene que

$$m_r = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \int_0^\infty \sigma_d(h) dh. \quad (2.15)$$

Mas allá de poder demostrar rigurosamente, tenemos que si no hay interacción y en efecto se cumple la relación de Wohlfarth (RW) para ese caso, entonces $\sigma_r = \sigma_d = \sigma_0$, donde σ_0 es la iSFD asociada a la función m_0 mostrada en la figura 2.7.

En presencia de una interacción, la relación de Wohlfarth ya no se cumple y esto ha sido aprovechado para desarrollar metodologías de análisis que permiten evidenciar la existencia y el tipo de interacción.

Para establecer estas metodologías se observó que la interacción se debe suponer como del tipo ferromagnética o anti ferromagnética. La primera favorece (desfavorece) una configuración paralela (antiparalela) de las magnetizaciones. La segunda, de tipo anti ferromagnética, favorece (desfavorece) una configuración antiparalela (paralela) de las magnetizaciones. De manera indirecta, esto tiene la implicación que los campos de rotación de las partículas son asimétricos. Para una interacción de tipo ferromagnética, los campos de rotación se corren hacia valores más negativos de campo. Para el caso anti ferromagnético es al contrario, los campos de rotación se recorren hacia valores más positivos de campo.

Para visualizar el efecto que esto tiene pensemos en el ciclo idealizado, tipo histerón, de una partícula y en la simetría de sus campos de rotación, como se muestra de manera esquemática en la figura 2.8. Los campos de rotación (coercitivos en este caso) H_{c1} y H_{c2} , se comparan en base a su valor absoluto ya que corresponden a la magnitud del vector de campo magnético aplicado. El histerón refleja un sistema de dos estados (positivo y negativo) y se describe en base a sus dos campos de rotación. El campo de rotación de la desmagnetización (la magnetización pasa de positivo a negativo) y el de la magnetización (la magnetización pasa de negativo a positivo). Si no hay interacción estos campos son iguales y el histerón es simétrico, como se muestra en la figura 2.8 (a). Para una interacción ferromagnética, el campo de la desmagnetización es mayor que el de la magnetización y por lo tanto el histerón se corre hacia el eje negativo del campo, figura 2.8 (b), y en este caso $|H_{c1}| > H_{c2}$. Para el caso anti ferromagnético es lo opuesto, en este caso el campo de magnetización es mayor que el campo de desmagnetización por lo que el histerón se corre hacia valores positivos más grandes y $|H_{c1}| < H_{c2}$, figura 2.8 (c). Para el caso de un ensamble de partículas y pensando en curvas de magnetización y desmagnetización como son las curvas m_r y m_d , respectivamente, lo que se tiene es que:

- Cuando la interacción es ferromagnética, es más fácil magnetizar que desmagnetizar, por lo que a un valor dado de campo H_p , se invierten más momentos magnéticos en la

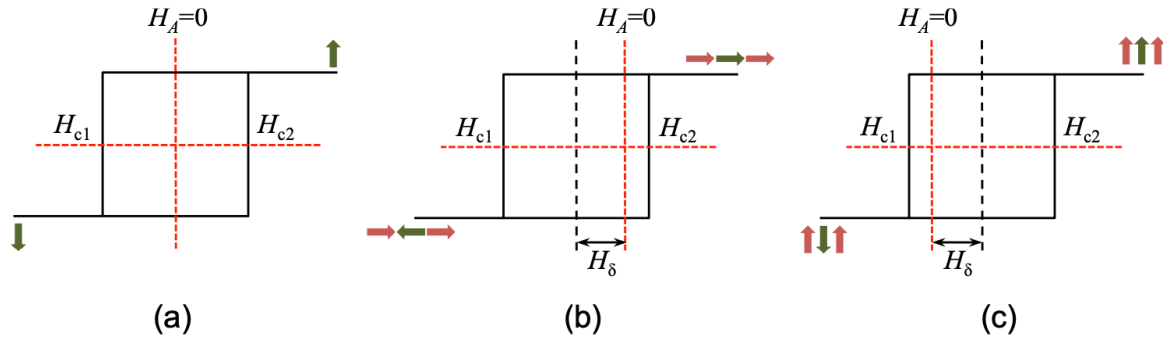


Figura 2.8: Histerón ideal en función del campo aplicado H_A con coercividad H_{c1} y H_{c2} en el caso (a) simétrico y sin interacción ($|H_{c1}| = H_{c2}$), (b) asimétrico corrido hacia la izquierda con interacción de tipo ferromagnética ($|H_{c1}| > H_{c2}$) y, (c) asimétrico corrido hacia la derecha con interacción de tipo anti ferromagnética ($|H_{c1}| < H_{c2}$).

magnetización m_r que en la desmagnetización m_d , tal que $m_r(H_p) > m_d(H_p)$ o $\delta m_p = m_d(H_p) - m_r(H_p) < 0$.

- Cuando la interacción es anti ferromagnética, es más fácil desmagnetizar que magnetizar, por lo que a un valor dado de campo H_p , se invierten más momentos magnéticos en la desmagnetización m_d que en la magnetización m_r , tal que $m_d(H_p) > m_r(H_p)$ o $\delta m_p = m_d(H_p) - m_r(H_p) > 0$.

De lo anterior, tenemos los elementos más importantes para entender cómo se han planteado los diferentes métodos que analizan o miden cualitativa o cuantitativamente el campo de interacción.

2.2.2. Métodos basados en la relación de Wohlfarth

Los métodos más importantes que han sido utilizados para el estudio de las interacciones se basan en la relación de Wohlfarth. La relación hace uso de curvas de magnetización que pueden ser medidas y nos dice como se comparan cuando no hay interacción. Por lo que al haber interacción la relación ya no se cumple y eso puede ser observado analizando y comparando las curvas m_d y m_r . Una forma de comparar y verificar si hay o no interacciones es mediante construcciones gráficas. En efecto, de la relación de Wohlfarth siguen tres métodos gráficos: las curvas de Henkel, las curvas ΔM y las curvas ΔH , que gozan de mucha popularidad (principalmente los dos primeros) y que son ampliamente utilizados.

Curvas Henkel: El primer método fue propuesto por O. Henkel en 1964 y es un método gráfico que consiste en graficar m_d función de m_r , para identificar la presencia de una interacción, así como el tipo o signo de esta (Ferro o Anti ferromagnética) y desde que este trabajo fue publicado, el método ha sido ampliamente utilizado y se conoce como las curvas de Henkel. De la Ec. (2.13) vemos que se trata de una recta $y = 1 - 2x$ con pendiente $m = -1$. La recta tiene dominio $[0, 1]$ y rango $[-1, 1]$, como se muestra en la figura 2.9 con una línea punteada verde. En la misma figura se muestra la curva (curva continua roja) que se obtiene

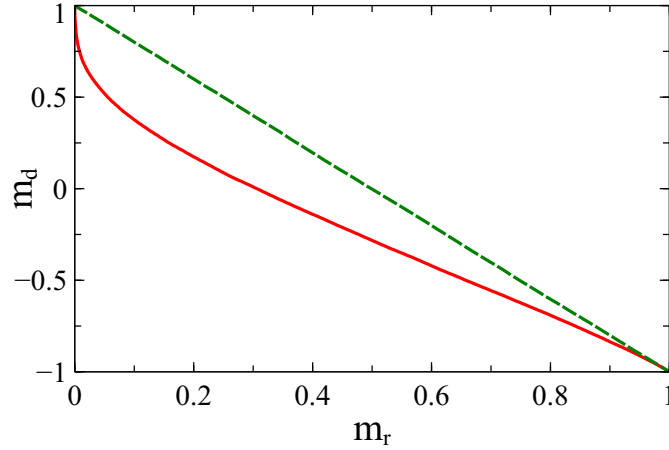


Figura 2.9: Curvas Henkel para caso sin interacción que es una recta con pendiente -1 (línea punteada verde) y ejemplo de un sistema con interacción anti ferromagnética (curva continua roja).

para un sistema con interacción anti ferromagnética. Como podemos ver, esta curva aparece por debajo de la curva ideal de referencia y esto viene de las diferencias para magnetizar y desmagnetizar que aparecen cuando hay interacción. Para el caso de una interacción ferromagnética, la curva estaría por arriba de la curva Henkel de referencia. Este método, es cualitativo ya que no permite cuantificar la interacción, sin embargo, permite identificar la presencia y el tipo de interacción.

El factor de campo de interacción: Este método conocido como el método IFF del inglés *Interaction Field Factor* es un valor numérico que se obtiene de las curvas IRM y DCD y la relación de Wohlfarth. Corradi y Wohlfarth [101] introducen este factor en 1978. Este factor lo definieron como la diferencia entre los campos donde la curva DCD es cero (H_d^0) y donde la curva IRM es 1/2 ($H_r^{0,5}$) normalizada por H_d^0 , los puntos se muestran en la figura 2.7. El factor queda definido como [101],

$$\text{IFF} = \frac{H_d^0 - H_r^{0,5}}{H_d^0}. \quad (2.16)$$

De la relación de Wohlfarth, ec. (2.13) vemos que $m_r = 1/2$ cuando hacemos $m_d = 0$, es decir que cuando no hay interacción, las curvas alcanzan estos valores en el mismo valor de

campo magnético y en ese caso sigue de la ec. (2.16) que $IFF=0$. Por otra parte, cuando hay una interacción estos campos ya no son iguales. El valor y signo del IFF proporcionan información cualitativa del campo de interacción, en particular su signo indica si la interacción es ferromagnética ($IFF>0$) o anti ferromagnética ($IFF<0$).

En principio el valor del IFF escala con la magnitud del campo de interacción, sin embargo, hay que notar que debido a la normalización con H_d^0 , esta cantidad es adimensional y por lo tanto no cuantifica el campo de interacción.

Aquí avanzamos un poco para mencionar que en un trabajo mucho más reciente (2014), Álvarez y colaboradores han propuesto una modificación a este factor argumentando que los valores obtenidos son mejores, dicha mejora es equivalente a $2 \times IFF$ [102]. Notando que al igual que el IFF esta cantidad no tiene dimensiones y por lo tanto es únicamente cualitativa. Este método se ha incluido en la figura 2.6 con la etiqueta "2*IFF".

Curvas ΔM y ΔH : Los siguientes avances importantes en el desarrollo de métodos para analizar el campo de interacción vinieron en 1989 y 1990 con dos métodos gráficos conocidos como curvas ΔM [103] y curvas ΔH [104, 105]. Por simplicidad los presentamos juntos, pero es importante aclarar que el método de la curva ΔM ha tenido mucho éxito y ha sido ampliamente utilizado y continúa siendo muy utilizado. No así para el método de la curva ΔH , el cual no solo no ha sido muy poco utilizado, sino que ha sido criticado. El método de

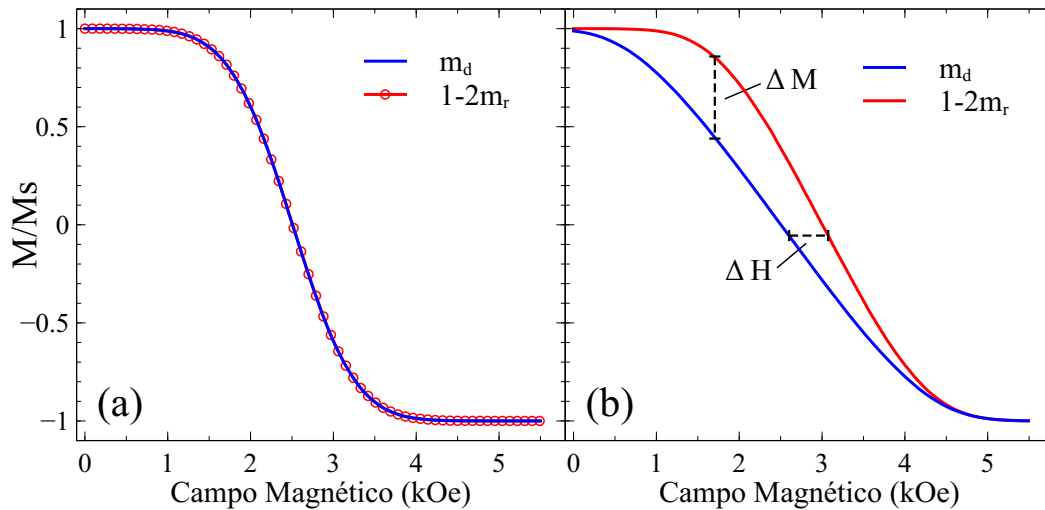


Figura 2.10: Curvas Henkel para caso sin interacción que es una recta con pendiente -1 (línea punteada verde) y ejemplo de un sistema con interacción anti ferromagnética (curva continua roja).

la curva ΔM fue introducido por Kelly y colaboradores en 1989 [103], y parte de reescribir

la relación de Wohlfarth, ec. (2.13), como

$$\Delta M = m_d - [1 - 2m_r]. \quad (2.17)$$

La idea es que cuando no hay interacción y se cumple la relación de Wohlfarth, tenemos que $\Delta M = 0$ y cuando hay una interacción $\Delta M \neq 0$. Esto se puede ver en la figura 2.10 donde se muestran las curvas m_d y $1 - 2m_r$ para el caso (a) sin interacción y (b) con interacción.

Para calcular ΔM se toma un mismo valor de campo y se calcula la diferencia tal y como se muestra en la figura 2.10. Donde es claro que cuando no hay interacción (a) las curvas se superponen y por lo tanto no hay diferencia y cuando hay interacción (b), las curvas ya no se superponen y $\Delta M \neq 0$. Lo mismo pasa si ahora medimos la diferencia de campo ΔH a un mismo valor de magnetización. Cuando no hay interacción $\Delta H = 0$ y cuando hay interacción $\Delta H \neq 0$. En el caso mostrado en la figura 2.10 (b) la interacción es anti ferromagnética por lo que la curva $1 - 2m_r$ está por arriba de la curva m_d . Para una interacción ferromagnética, sería lo inverso. Esto significa que el signo de ΔM así como de ΔH nos dicen que tipo de interacción se tiene.

Las curvas ΔM (ΔH) siguen de calcular todos los valores ΔM_i (ΔH_i) correspondientes a cada valor H_i (m_i) y graficando estos valores como función de H (m). La figura 2.11 muestra

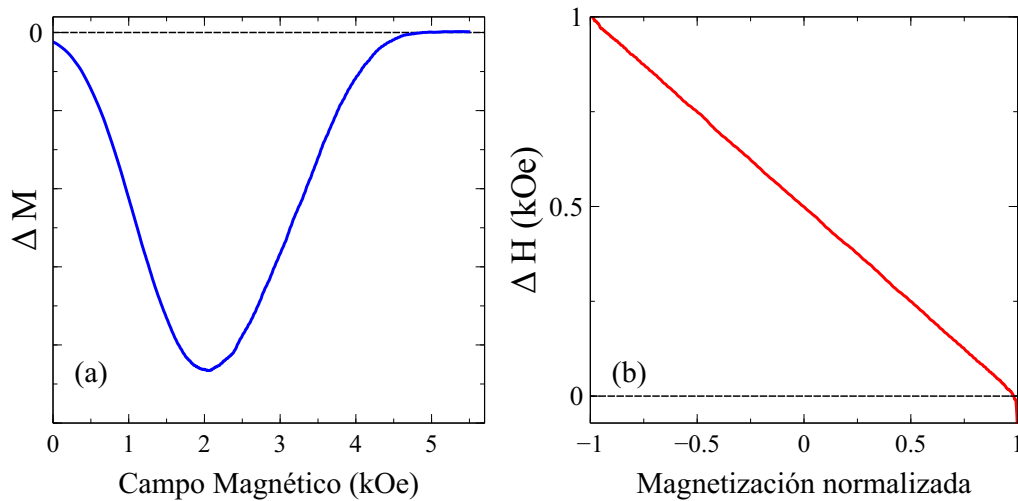


Figura 2.11: (a) Curva ΔM y (b) curva $\Delta H = h_r - h_d$ para el mismo sistema el cual tiene interacción anti ferromagnética. En ambos casos se muestra la recta horizontal (punteada) de referencia que se espera si no hay interacción.

(a) la curva ΔM y (b) la curva $\Delta H = h_r - h_d$ (se tomó arbitrariamente este orden para calcular la diferencia) a partir de las curvas mostradas en la figura 2.10 (b) que como se mencionó, tiene una interacción anti ferromagnética. En ambos casos se muestra la recta horizontal de referencia que se espera si no hay interacción.

En la figura 2.11 (a) vemos la curva ΔM que se asemeja a una curva de distribución que toma valores cercanos a cero al inicio, en $H = 0$ y al llegar a la saturación. En este caso, la curva se desvía hacia valores negativos lo cual indica que la interacción es de tipo anti ferromagnética.

Por su parte, en la figura 2.11 (b) vemos la correspondiente curva ΔH , la cual muestra una variación que parece seguir un comportamiento lineal. En este caso, las diferencias de campo se calcularon como $\Delta H = h_r - h_d$ dando así un ΔH positivo para el caso de la interacción anti ferromagnética y desde luego debe ser negativo para la interacción ferromagnética. Es importante indicar que se puede usar la diferencia inversa, es decir $\Delta H = h_d - h_r$, solo cambiarían los signos.

Nuevamente, estos dos métodos gráficos son cualitativos y nos dicen qué tipo de interacción está presente a partir del signo o de la desviación que presenta la curva con respecto al cero. Finalmente, hay un aspecto practico que probablemente contribuye mucho a que la curva ΔM sea mucho más empleada que la ΔH . Para calcular la curva ΔM se necesita como entrada los valores de las curvas m_r y m_d con los mismos valores de campo, lo cual corresponde a la forma en que se generan los datos experimentales de manera natural. Por el contrario, la construcción de la curva ΔH requiere de los datos o la función inversa, es decir, se requieren los valores h_r y h_d para un mismo valor de magnetización y eso no es la forma en la que se obtienen los datos experimentales, por lo que se requiere realizar un paso adicional para interpolar numéricamente los datos experimentales.

Curva Delta-Henkel Esta es una variante que es original de nuestro grupo y es otra construcción gráfica que únicamente proporciona información cuantitativa que hemos llamado la curva Delta-Henkel, ya que como veremos a continuación es una curva que se obtiene de la curva Henkel, es decir, es la curva de la curva.

En planteamiento es muy simple, la curva Henkel muestra la desviación con respecto al caso sin interacción que se obtiene al graficar las coordenadas (m_r, m_d) . Sabemos que la curva ideal de Henkel es la recta $m_d + 2m_r - 1 = 0$ y cuando hacemos la gráfica para un caso con interacción se obtiene una gráfica como la que muestra en la figura 2.9. La desviación con respecto a la curva ideal sugiere usar la distancia entre la curva medida y la referencia. El problema de la distancia entre un punto y una recta es un problema conocido en geometría y cuya solución es bien conocida. En efecto, en la figura 2.12 se muestran una recta y una curva que se asemeja a lo que se tiene cuando se hace una curva Henkel. En este caso, las gráficas están referidas a un plano xy arbitrario. La distancia d entre la recta $Ax + By + C = 0$ y un punto P_1 con coordenadas (x_1, y_1) esta dado por la expresión que se muestra en la figura. Interesa entonces ver que se obtiene al calcular esta distancia usando la fórmula que se muestra en la figura.

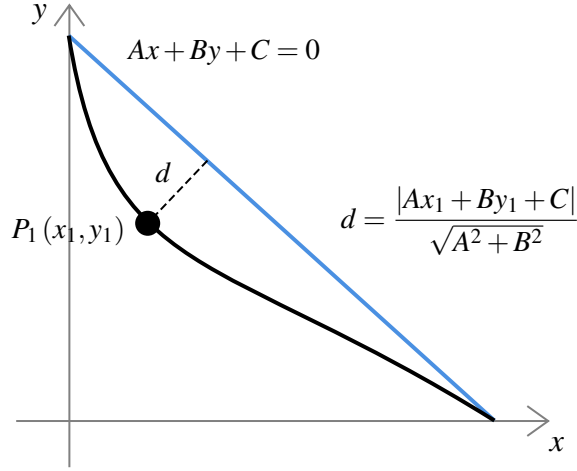


Figura 2.12: Gráfica de una recta y una curva donde se indica la distancia ortogonal d entre el punto P_1 con coordenadas (x_1, y_1) de la curva a la recta $Ax + By + C = 0$.

Si calculamos esta distancia entre la curva Henkel del caso con interacción con respecto al caso ideal, tendríamos lo siguiente,

$$d = \frac{|m_d + 2m_r - 1|}{\sqrt{3}}, \quad (2.18)$$

donde $A = 1$ y $B = 2$ en la ecuación de la recta. Recordando que los datos experimentales son tales que tenemos que para cada valor de campo magnético aplicado H_i conocemos los valores correspondientes de m_{di} y m_{ri} . De manera que para cada distancia d_i obtenida para el punto (m_{ri}, m_{di}) tenemos su correspondiente valor de H_i , es decir: (H_i, d_i) si graficamos estos puntos obtenemos una curva análoga a la curva ΔM .

Recordando que el signo de ΔM nos dice el tipo de interacción presente, es claro que necesitamos omitir el valor absoluto en la ec. (2.18) con el fin de no perder la información proporcionada por el signo. La figura 2.13 muestra la distancia calculada con la ecuación (2.18) y como comparación se muestra la curva ΔM de la misma muestra. En este caso se trata de la misma simulación que se utilizó para obtener las curvas Henkel y ΔM mostradas previamente en las figuras 2.9 y 2.11 (a), respectivamente. Como se puede ver, las curvas son similares y muestran una forma de campana con valores negativos en congruencia con una interacción anti ferromagnética. Sin embargo, podemos notar en la figura que las amplitudes no coinciden. En particular, la amplitud de la curva ΔM es claramente mayor que la de la curva obtenida a partir de la curva Henkel.

Si recordamos como se definió ΔM usando la ecuación (2.17), la cual reescribimos como

$$\Delta M = m_d + 2m_r - 1, \quad (2.19)$$

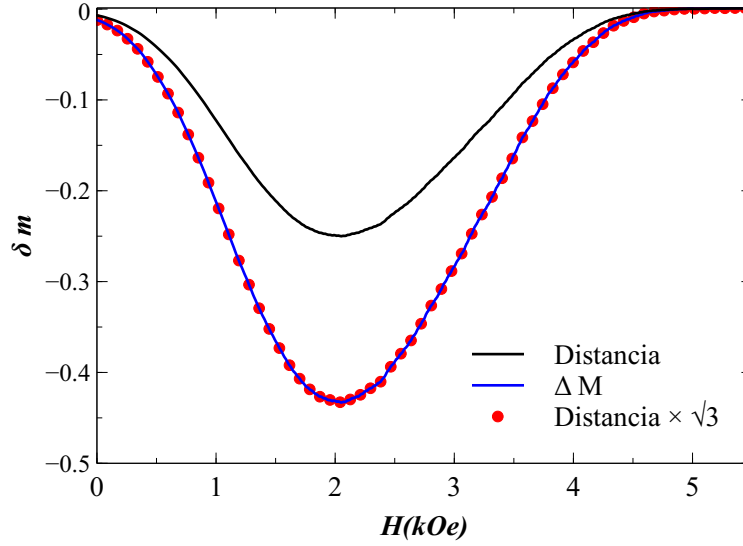


Figura 2.13: (a) Curva ΔM y (b) curva $\Delta H = h_r - h_d$ para el mismo sistema el cual tiene interacción anti ferromagnética. En ambos casos se muestra la recta horizontal (punteada) de referencia que se espera si no hay interacción.

y la comparamos con la ec. (2.18), vemos que

$$d = \frac{\Delta M}{\sqrt{3}}. \quad (2.20)$$

En la figura 2.13 se muestra (círculos) la curva obtenida al multiplicar la distancia por el factor $\sqrt{3}$, el cual como vemos coincide con la curva ΔM .

Como se puede ver, lo anterior muestra que ambas curvas Henkel y ΔM son esencialmente iguales.

Puntos de intersección de las curvas IRM y DCD: Todos los métodos discutidos anteriormente se basan en la relación de Wohlfarth, pero no permiten cuantificar el campo de interacción y por lo tanto solo son cualitativos. Nuestro grupo ha establecido dos métodos basados en la relación de Wohlfarth que permiten cuantificar el campo de interacción. Estos fueron reportados en 2012 [79] y en 2018 [106]. De manera similar a las curvas ΔH y ΔM , estos dos métodos tienen mucha similitud en sus planteamientos y los presentamos juntos en esta sección. En ambos casos, y como se explica en una de las publicaciones [106], el razonamiento para cuantificar el campo de interacción es que se requiere encontrar puntos de referencia que por la relación de Wohlfarth sabemos dónde se ubican cuando no hay interacción y que cuando hay interacción se mueven. Ese desplazamiento de los puntos se puede medir como una diferencia de campo, la cual se puede interpretar en términos del sesgo inducido por el campo de interacción. A partir de la interpretación se establece la relación entre el

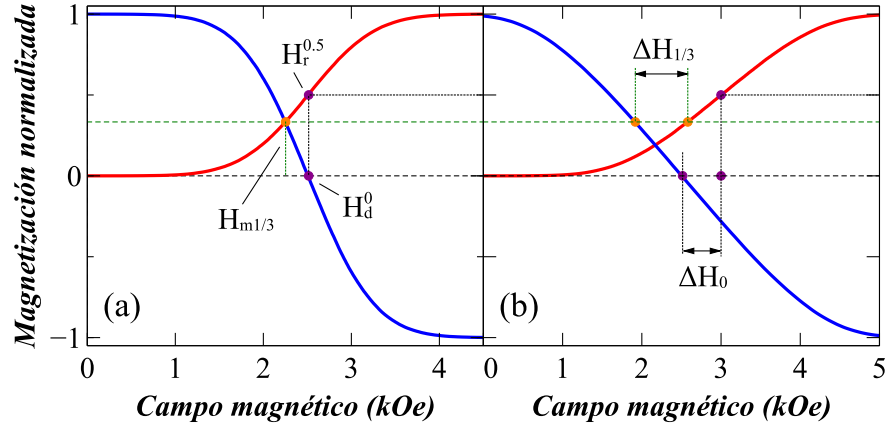


Figura 2.14: Curvas IRM y DCD para el caso (a) sin interacción y (b) con interacción.

campo de interacción y la diferencia de campo medida. Los métodos en cuestión aprovechan dos puntos que cumplen con lo anterior y corresponden a la diferencia de las coercividades remanentes [79] y a la diferencia entre las curvas IRM y DCD en $m = 1/3$ [106].

Para explicar el método de la diferencia de las coercividades remanentes [79] nos apoyamos en la figura 2.14, donde se muestran las curvas IRM y DCD para el caso (a) sin interacción y (b) con interacción. La coercividad remanente es un nombre introducido por Corradi y Wohlfarth [101], cuando desarrollaron el IFF discutido anteriormente. Estos son los puntos donde la curva DCD pasa por cero (H_d^0) y donde la curva IRM es $1/2$ ($H_r^{0.5}$). De la relación de Wohlfarth, ec. (2.13) vemos que $m_r = 1/2$ cuando hacemos $m_d = 0$, es decir que cuando no hay interacción, las curvas alcanzan estos valores en el mismo valor de campo magnético y en ese caso sigue que la diferencia entre ellos es cero, es decir $\Delta H_0 = H_r^{0.5} - H_d^0 = 0$, esto se puede ver en la figura 2.14 (a) para el caso sin interacción con ayuda de los puntos mostrados. Para el caso con interacción, tomamos la interacción como $H_{int} = \alpha m$ y como se muestra en la figura 2.14 (b), el valor de H_d^0 no se mueve y es el mismo que cuando no hay interacción y eso es porque en $m = 0$ $H_{int} = \alpha m = 0$. Esto no es así para $H_r^{0.5}$, que como podemos ver se desplaza hacia valores más grandes (interacción anti ferromagnética). Este corrimiento es debido al campo de interacción, que para $m = 1$ es $H_{int} = \alpha/2$. Por lo que vemos que $H_{int} = \alpha/2 = \Delta H_0$, con lo que llegamos a la siguiente relación para el coeficiente de interacción [79],

$$\alpha = 2(H_r^{0.5} - H_d^0). \quad (2.21)$$

Esta expresión relaciona el coeficiente del campo de interacción con puntos que se pueden medir de las curvas IRM y DCD. También es de notar que usando la ec. (2.16) podemos reescribir la ecuación como $\alpha = 2 \times IFF \times H_d^0$.

El método de la diferencia entre las curvas IRM y DCD en $m = 1/3$ es similar ya que de la relación de Wohlfarth, ec. (2.13), vemos que si $m_d = m_r = m^*$, se obtiene que $m^* = 1/3$.

Es decir que cuando no hay interacción las curvas IRM y DCD se intersectan en $m=1/3$ y $H = H_{m1/3}$, como se puede ver en la figura 2.14 (a). Cuando hay interacción, estos puntos se recorren por el efecto del sesgo. El corrimiento es de $H_{int} = \alpha/3$ hacia campos más grandes en el caso de la IRM y en el sentido opuesto para la curva DCD. De tal manera que la diferencia en campo entre los dos puntos en $m = 1/3$ es $\Delta H_{1/3} = 2(\alpha/3)$ y por lo tanto [106],

$$\alpha = \frac{3}{2}\Delta H_{1/3}. \quad (2.22)$$

Esta expresión relaciona el coeficiente del campo de interacción con la diferencia de campos entre las curvas IRM y DCD en $m = 1/3$ que es fácilmente medible.

Ambos métodos permiten obtener el campo de interacción del sistema a partir de las curvas IRM y DCD a partir de diferencias de campo, $\Delta H_0, \Delta H_{1/3}$ fácilmente medibles. Al obtenerse un solo valor del campo de interacción, se considera como el valor promedio y se interpreta como la magnitud del campo que siente cada particular, es decir, campo medio. En principio, el valor del campo de interacción que se obtiene en cada método debería ser iguales. En este sentido, se reporta que este es efectivamente el caso sujeto a que el material tenga una remanencia muy alta, validado para valores de 90% y más [106]. Para el caso de materiales con remanencias más bajas, los valores obtenidos ya no serán iguales y la diferencia aumentara mientras más baja sea la remanencia del ciclo mayor. Sin embargo, es importante notar que el uso de las curvas IRM y DCD en sistemas con baja remanencia es altamente cuestionable, sobre todo si se hace algún tipo de análisis o interpretación basado en dichas curvas.

2.2.3. Métodos no-basados en la relación de Wohlfarth

La sección anterior se enfocó en los diferentes métodos conocidos para analizar de manera cualitativa y que también tienen capacidad cuantitativa para determinar el campo de interacción. De manera alternativa hay otros métodos que han sido desarrollados durante los últimos 20 a 25 años que no se basan en la relación de Wohlfarth y que en algunos casos usan otras técnicas de caracterización que no son por magnetometría y que permiten cuantificar el campo de interacción en ensambles de partículas. A continuación, se hace una revisión breve de estos métodos.

Resonancia Ferromagnética: Un método no magnetométrico con el cual se reportó la cuantificación del campo de interacción en redes de nanoalambres es la resonancia ferromagnética (RFM). El primer reporte donde se valida el método es de 2001 y corresponde al caso del campo de interacción total en el estado saturado [107]. Posteriormente, en 2010; se extendió el método de la RFM a la cuantificación del campo de interacción en el estado no saturado o bien para el caso dependiente del estado magnético m [108, 109]. La FMR

se basa en el hecho de que una oscilación forzada de la magnetización lleva a efectos de resonancia, tal como ocurre para un oscilador clásico. En este caso, la excitación externa es un campo oscilante de baja intensidad con amplitud constante y frecuencia ajustable. Mientras que el equivalente a la constante del resorte del oscilador clásico es lo que llamamos el campo interno (magnético) del material, definido como (CGS), $H_{ef} = 2\mathcal{E}_{ef}/M_s$. Aquí $\mathcal{E}_{ef}$ es la densidad de energía magnética total, previamente discutida en el marco teórico, y que corresponde a la suma de todos los efectos magnéticos relevantes al sistema, como son las diferentes anisotropías e interacciones. En el caso de una red de nanoalambres, sin contribuciones de anisotropía magneto cristalina y magneto elástica, $\mathcal{E}_{ef}$ solo contiene la anisotropía de forma y la interacción dipolar entre alambres. En estas condiciones, la energía magnética total $\mathcal{E}_{ef} = \Delta\mathcal{E} = \mathcal{E}_x - \mathcal{E}_z$ que es la diferencia entre las energías asociadas a la dirección de difícil magnetización (perpendicular al eje del cilindro) y a la de fácil magnetización (paralela al eje del cilindro), tiene asociado el campo total;

$$H_{ef} = 2\pi M_s - 6\pi M_s P. \quad (2.23)$$

En esta expresión, el primer término corresponde al campo de anisotropía de forma de un alambre infinitamente alto, mientras que el segundo termino corresponde al campo de interacción, es decir, $H_{int} = 6\pi M_s P$, donde P es la fracción de volumen [107].

Posteriormente y para el caso de nanoalambres biestables, se reportó que en estados no saturados los espectros de FMR mostraban dos bandas de absorción, cada una relacionada con los alambres magnetizados en la dirección positiva y negativa. El estudio detallado de este efecto de doble resonancia permitió mostrar que el campo efectivo dependiente del estado magnético se debe escribir como $H_{int} = 6\pi M_s P(1 + m)/2$. Con lo que la ecuación (2.23) se reescribe como,

$$H_{ef} = 2\pi M_s - (3\pi M_s P + 3\pi M_s P m), \quad (2.24)$$

la cual es válida para $0 \leq m \leq 1$ y aplicable para $|m|$, es decir, para valores negativos de m y claramente para $m = 1$ se recupera la ec. (2.23).

La cuantificación del campo de interacción a partir del experimento sigue de la condición de resonancia clásica de Kittel, conocida también como el modo de precesión uniforme, que para el caso de una red 2D de nanoalambres con el campo externo aplicado paralelo al eje de los alambres es,

$$f = \gamma(H_{res} + H_{ef}), \quad (2.25)$$

donde f es la frecuencia de excitación, γ es el factor giro magnético que es característico de cada material, H_{res} es el campo de resonancia y H_{ef} es el campo efectivo.

De esta ecuación podemos ver que la relación de dispersión es lineal, por lo que el ajuste lineal de los datos experimentales lleva directamente a la determinación del campo efectivo. Para esto, se miden los espectros de RFM a frecuencia fija mientras se barre el campo aplicado y luego repitiendo para diferentes frecuencias. A cada frecuencia de excitación se

mide el campo de resonancia respectivo y posteriormente se hace la gráfica de la relación de dispersión de frecuencia en función del campo de resonancia.

En la práctica, lo más sencillo es obtener la relación de dispersión para el estado saturado y utilizar la ecuación (2.23) en la ec. (2.25) para escribir:

$$H_{int} = [H_{res} - f/\gamma] + 2\pi M_s, \quad (2.26)$$

donde se requiere conocer el valor de la magnetización de saturación del material (M_s) y adicionalmente este valor del campo de interacción se puede comprar con el valor teórico $H_{int} = 6\pi M_s P$ [107].

Microscopia de fuerza magnética con campo aplicado: En 2008 mediante el uso de la Microscopia de fuerza magnética con campo aplicado, que en inglés se conoce como in-field MFM se propuso un método para cuantificar el campo de interacción [110, 111, 112]. En este

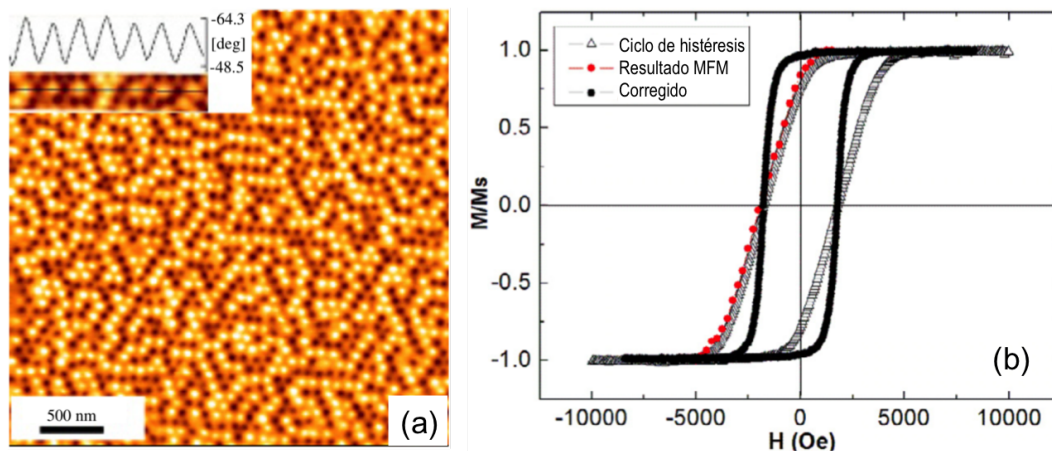


Figura 2.15: (a) Micrografía de MFM en una red de nanoalambres crecida en una membrana de aluminio anodizado y, (b) ciclo mayor, ciclo parcial medido por MFM y ciclo después de hacer la corrección del sesgo debido al campo de interacción, adaptadas de [110].

caso, la metodología propuesta es muy directa: se basa en identificar el primer alambre que invierte su magnetización con un campo inverso (negativo) habiendo iniciado en el estado saturado (positivo) y posteriormente midiendo el campo al que ese mismo alambre regresa al estado inicial con un campo positivo. Es decir, se miden los campos coercitivos del ciclo de histéresis del primer alambre que se invierte. En este caso, se tienen los campos de rotación del histerón tipo Preisach, como el ilustrado en la figura 2.8. Más aún, si tomamos el campo de interacción con la forma $H_{int} = \alpha m$, vemos que al tratarse del primer alambre que, rota, dejando el resto intacto, ese alambre está sujeto al campo máximo que se alcanza en el estado saturado ($m = 1$), por lo que,

$$\alpha = \frac{H_{\uparrow} - H_{\downarrow}}{2}. \quad (2.27)$$

En la práctica, la MFM con campo implica modular la magnitud del campo aplicado, iniciando en el estado saturado positivo, decreciendo su magnitud hasta llegar al estado saturado negativo. La magnitud del campo decrece en pasos y en cada paso se hace un barrido para hacer la imagen del estado magnético del sistema y a partir de los contrastes de color se cuentan el número de partículas magnetizadas en la dirección positiva (contraste claro) o negativa (contraste oscuro) como se muestra en la figura 2.15 (a) para un estado no saturado arbitrario. Una vez que se conoce el coeficiente del campo de interacción, se puede hacer la corrección del sesgo punto a punto como se ha discutido en las secciones anteriores. Wang y colaboradores han llevado a cabo esta corrección, la cual se muestra en la figura 2.15 (b) donde se comparan el ciclo mayor, el segmento descendiente del ciclo mayor medido mediante MFM y el ciclo corregido [110]. Como es de esperar, el ciclo corregido muestra una pendiente más alta, consistente con una interacción de tipo anti ferromagnética.

Es importante notar que el sistema de nanoalambres utilizado posee magnetización perpendicular al plano, lo cual facilita la caracterización MFM, como se puede ver a partir de la imagen mostrada en la figura 2.15 (a). Por otra parte, es claro que esta metodología tiene el inconveniente de no ser muy rápida ni muy practica ya que se basa en un proceso de análisis complejo de imágenes.

Corrimiento del ciclo menor: Este método guarda cierto parecido al método del histerón del primer elemento que rota su magnetización realizada usando MFM. En un reporte de 2010 empleando imanes permanentes granulados, se propone un método para medir la parte dependiente de la magnetización del factor desmagnetizante [113]. El método se basa en medir el corrimiento de los ciclos menores, sin embargo, en ese reporte nunca se menciona el campo de interacción de manera clara y no se relaciona dicho campo con el factor desmagnetizante que determinan experimentalmente.

Este trabajo fue la continuación o seguimiento de un reporte anterior del mismo grupo en el que se propone una expresión para el campo desmagnetizante efectivo en medios granulares duros y que se utilizó para realizar la corrección del sesgo [114]. Al tratarse del problema del sesgo, este trabajo, así como el que le siguió fueron tomados como enfoques para realizar la corrección del sesgo y esto se asoció con el problema de encontrar la distribución intrínseca de campos de rotación (iSFD). En efecto, como se discute por otros autores [13], el método para medir la parte dependiente de la magnetización del factor desmagnetizante a partir del corrimiento de los ciclos menores, es tomado como un método más para encontrar la iSFD, lo cual no es necesariamente cierto toda vez que la expresión introducida en 2009 no es del todo valida [114], y que no hay verificación de los resultados presentados en estos trabajos que demuestren de manera clara que ese término permite remover de manera correcta el sesgo debido al campo desmagnetizante efectivo [113, 114]. Al revisar estos trabajos [113, 114] y otros análisis [13] se percibe un problema en cuanto a la definición o lo que se entiende por el *campo desmagnetizante efectivo* y en particular el rol que tiene el campo de interacción y la manera en que este se debe tomar en cuenta al expresar el campo desmagne-

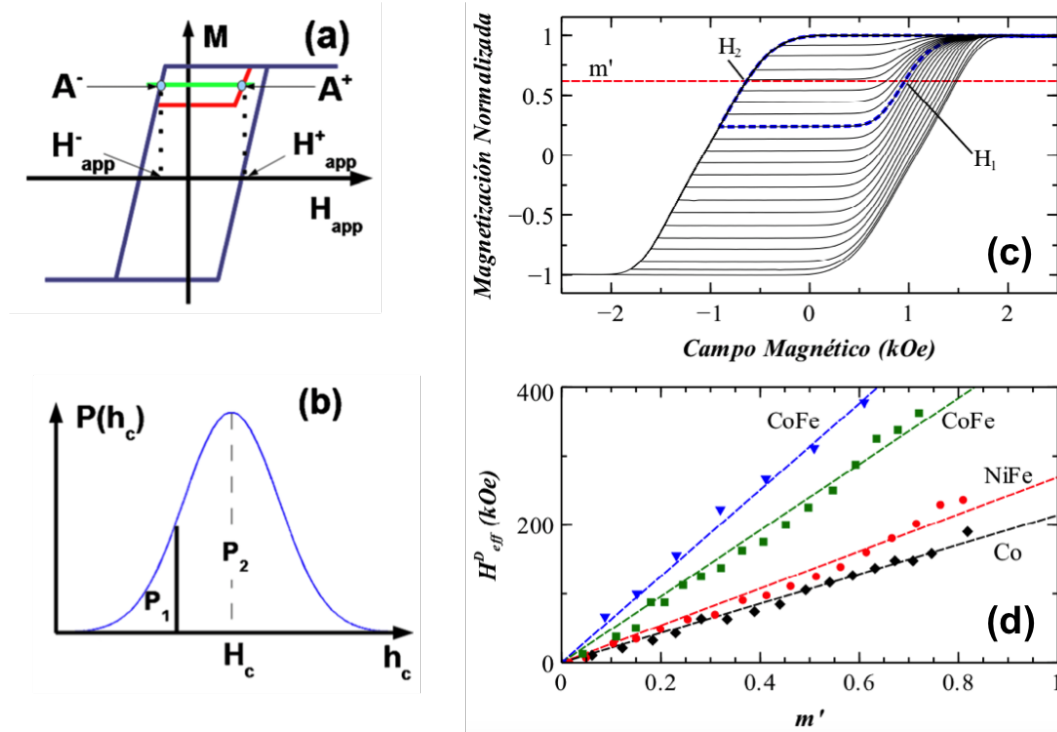


Figura 2.16: (a) Esquemático de un ciclo mayor y uno menor, donde se muestran los puntos A^+ y A^- correspondientes a la mitad de la altura del ciclo menor. (b) distribución de campos de rotación P_2 y subconjunto P_1 que interviene en el ciclo menor. (c) ciclo mayor y menores en una muestra de nanoalambres donde en color azul y línea punteada se enfatiza un ciclo menor donde se indican los puntos a la altura media de este y (d) rectas la parte dependiente de la magnetización del factor desmagnetizante H_{eff}^D , figuras (a) y (b) adaptadas de [113] y (c) y (d) de [115].

tizante efectivo. En los trabajos de Drobynin y colaboradores, no se hace mención explícita al campo de interacción y solamente se entiende que está incluido en el campo desmagnetizante efectivo [113, 114] y centran su interés en la parte dependiente de la magnetización del campo desmagnetizante efectivo, H_D^{eff} . Mientras que otros autores, retoman este mismo análisis y asocian el campo de interacción promedio a este factor desmagnetizante efectivo, $H_i(M) = -N_e M$.

En el trabajo de Drobynin y colaboradores [113] basan su deducción analizando los grupos de partículas que participan en la distribución total de campos de rotación, P_2 y aquellos que rotan cuando se hace un ciclo menor, P_1 ver la fig. 2.16 (b). Ellos consideran que en el punto que está a la mitad de la altura del ciclo menor, puntos A^- y A^+ en la figura 2.16 (a) la contribución de la parte dependiente de la magnetización se elimina por ser el mismo valor de magnetización en ambos puntos, de ahí ellos suponen que el corrimiento del ciclo menor es proporcional a H_D^{eff} .

En un análisis posterior realizado por nuestro grupo [115], se presentó una deducción más clara que solo supone que el corrimiento del punto medio del ciclo menor se puede interpretar como el corrimiento del histerón equivalente y por lo tanto conociendo los valores de campo, en este caso, H_1 y H_2 en la figura 2.16 (c) se puede obtener el coeficiente del campo de interacción, α como: $H_D^{eff} = \alpha m$. En particular,

$$H_D^{eff} = -\frac{(H_1 - H_2)}{2}. \quad (2.28)$$

Experimentalmente, se pueden medir un numero arbitrario de ciclos menores. De cada uno se obtienen los campos H_1 y H_2 y por consiguiente el respectivo valor de H_D^{eff} . La gráfica de los diferentes valores de H_D^{eff} en función del valor de la magnetización en el punto medio de cada ciclo menor m' es una línea recta cuyo ajuste línea arroja el valor del coeficiente del campo de interacción, α . Como ejemplo, la figura 2.16 (d) muestra los resultados obtenidos de cuatro muestras de nanoalambres, dos de CoFe, una de Co y otra de NiFe [115].

De lo anterior es importante destacar que el campo desmagnetizante efectivo dependiente de la magnetización corresponde a la componente axial del del campo de interacción dependiente de la magnetización. La aclaración es importante ya que de otra forma se puede hacer una interpretación errónea del valor medido.

Diagramas FORC: Cronológicamente, el siguiente método que fue presentado como un método con capacidades cuantitativas para determinar el campo de interacción fueron los diagramas FORC. Estos ya los mencionamos en la sección referente a la SFD/iSFD, por lo que en este apartado nos limitaremos a decir que a pesar de que se afirmó en el artículo inicial de Pike y Roberts que los diagramas FORC permitían medir el campo de interacción, fue evidente que no es directo el cuantificar el campo de interacción a partir de los diagramas y de hecho solo se logró hacer con la ayuda de modelos micro magnéticos. El diagrama por sí solo únicamente proporciona una imagen cualitativa del campo de interacción [116].

No fue sino hasta 2008 que se hizo un avance claro hacia la cuantificación del campo de interacción utilizando los diagramas FORC [117] y posteriormente en 2020 que se reportó un estudio sistemático en nanoalambres que mostraba la relación del campo de interacción con los anchos de las distribuciones de los diagramas FORC [98].

En este sentido, la figura 2.17 presenta un diagrama FORC típico obtenido en redes de nanoalambres en el que se indican las tres cantidades medibles en los diagramas. Los dos anchos relacionados con las distribuciones a lo largo de los ejes de interacción y de coercividad, Δ_{IFD} y Δ_{CFD} , respectivamente. Estas cantidades corresponden al ancho total del diagrama a lo largo de las dimensiones principales. Adicionalmente, se mide el ancho total,

ΔH_u a la mitad de la altura de la distribución que se obtiene haciendo el corte en el campo coercitivo de la muestra a lo largo del eje de la interacción.

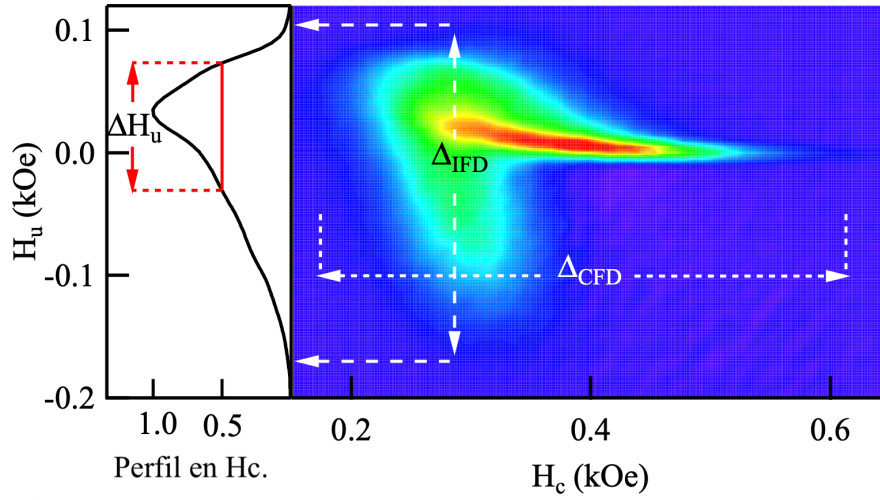


Figura 2.17: Diagrama FORC graficado en el plano H_u y H_c , en el cual se miden tres cantidades: los anchos de las distribuciones a lo largo de los ejes principales Δ_{IFD} y Δ_{CFD} , respectivamente y el ancho total, ΔH_u a la mitad de la altura de la distribución que se obtiene haciendo el corte en el campo coercitivo de la muestra a lo largo del eje de la interacción, figura adaptada de [98].

En el trabajo realizado por nuestro grupo [98], se mostraron las relaciones que hay entre el coeficiente del campo de interacción, α , y estas tres cantidades. En particular,

$$\alpha = \Delta H_u, \quad (2.29)$$

$$\alpha = \Delta_{IFD}/3, \quad (2.30)$$

$$\alpha = (\Delta_{CFD} - H_c)/2, \quad (2.31)$$

donde H_c es el campo coercitivo medido en el ciclo de histéresis. Con lo que se comprueba que los diagramas FORC pueden servir para cuantificar el campo de interacción promedio, simplemente y comparado con otros métodos, vemos que es menos practico y sobre todo el tiempo de medición es grande comparado con los métodos basados en la relación de Wohlfarth o incluso que el método del corrimiento de los ciclos menores, el cual puede proporcionar un buen resultado con menos mediciones.

2.2.4. Conclusiones sobre los métodos para medir la interacción en ensambles de partículas

Como se puede ver, la mayoría de los métodos se basan en técnicas de magnetometría ya que esta es la técnica más comúnmente empleada para la caracterización de materiales

magnéticos. Mientras que otras técnicas como son la resonancia ferromagnética o la microscopía de fuerza magnética proporcionan una alternativa, son técnicas menos comunes y que además requieren de protocolos de medición más elaborados.

Como se vio, hay métodos que son cualitativos y otros que son cuantitativos. Desde luego, para fines de medir el campo de interacción, los métodos cualitativos no sirven, sin embargo, han servido como base y fundamento para el desarrollo de los métodos cuantitativos.

Dentro de los cuantitativos, los diferentes métodos que se discutieron proporcionan un solo valor del campo de interacción que se asume como el valor promedio. Sin embargo, y como lo señalan Martínez-Huerta y colaboradores [118], hay diferentes formas para referirse o expresar el campo de interacción y lo mismo para las mediciones: se pueden medir diferentes expresiones o formas del campo de interacción. En particular, se tienen las componentes, $\vec{H}_i = [H_{ix}, H_{iy}, H_{iz}]$ y la magnitud del vector $|\vec{H}_i|$. Para cada una de estas se tienen expresiones diferentes para el estado saturado y el no-saturado. Mas aun, para el no saturado se tiene que indicar la parte dependiente de la magnetización. Lo anterior es importante porque al obtener el valor del campo de interacción a partir de una medición, es importante identificar correctamente que forma del campo de interacción se cuantifico.

En concreto, vimos que la resonancia ferromagnética, realizada en condiciones de saturación magnética, mide la magnitud del vector del campo de interacción en el estado saturado, que para redes de nanoalambres esto es $|\vec{H}_i| = 6\pi M_s$. Pero esta misma técnica realizada en configuraciones no saturadas, permite medir la magnitud del vector del campo de interacción dependiente de la magnetización ($3\pi M_s$). Por su parte, los métodos basados en la intersección de las curvas IRM y DCD así como el método del corrimiento de los ciclos menores arrojan el valor del coeficiente de la componente axial del campo de interacción dependiente de la magnetización, $\alpha_z = 2\pi M_s$. Por su parte, los diagramas FORC proporcionan estas dos formas del campo de interacción. En efecto, de la ec. (2.29) vimos que $\alpha_z = \Delta H_u$ y de la ec. (2.30) se tiene que $\Delta_{IFD} = 6\pi M_s$ [98].

Este problema de identificación del campo de interacción se puede ver en varias publicaciones. Empezando por el trabajo de Wang y colaboradores [110], donde miden α_z pero en su cálculo estiman magnitud del vector del campo de interacción dependiente de la magnetización, que son cantidades diferentes. Otro ejemplo es que varios grupos miden el campo de interacción usando $\alpha_z = \Delta H_u$ en diagramas FORC los cuales no coinciden con el valor teórico que proponen que es de $4\pi M_s$, el cual corresponde a la componente axial del campo de interacción en el estado saturado [119].

2.3. Interacción más allá de la aproximación de campo medio

Como se ha discutido anteriormente, en un ensamble de partículas magnéticas ideales y nominalmente idénticas, existen inhomogeneidades que contribuyen a la dispersión de campos de rotación de las partículas o bien, al ancho de la SFD. Como se ha señalado, estas inhomogeneidades pueden ser internas o individuales, lo que definiría a la iSFD, o bien de orden/desorden en la red. Estas, en una red de partículas que no se tocan, llevan a que el campo de interacción que siente una partícula ya no puede ser tratado como un valor constante, como supone la aproximación de campo medio. Por el contrario, dependerá de su entorno local y, por lo tanto, es de suponer que cada partícula está sujeta a un campo de interacción diferente. Tenemos entonces una distribución de campos de interacción en lugar de únicamente un valor promedio y constante.

Este problema es conocido, pero no hay a presente estudios que se enfoquen en ir más allá de la aproximación de campo medio y por lo general, algunos autores mencionan el problema, pero finalmente adoptan el enfoque de campo medio para trabajar.

Siguiendo el análisis de Egli [120, 121], de manera general se considera que el campo de interacción que siente una partícula contiene dos contribuciones: (a) desorden local y (b) campo medio. Que son: *the random and mean components of the interaction field* [120]. La componente aleatoria es diferente para cada partícula del sistema. De manera general, si la distancia típica entre granos mono dominio es mayor que su diámetro, entonces la componente aleatoria del campo de interacción puede ser razonablemente aproximada como la suma de los campos dipolares de todos los granos (aproximación de no efectos colectivos). Entonces el campo local (aleatorio) definido como el campo producido en el volumen ocupado por una partícula por el resto de las partículas. Egli escribe el campo de interacción (H_{int}) que actúa sobre una partícula como $H_{int} = H_z + H_d + H_m$, donde H_z y H_m son los campos de interacción aleatorio y promedio, respectivamente. Mientras que H_d es el campo desmagnetizante [120].

Otro enfoque basado en el modelo de Preisach móvil se considera que la interacción en el estado saturado ($H_{in,sat} = \alpha$) es,

$$H_{in,sat} = 2\sigma_{in} - \kappa, \quad (2.32)$$

donde σ_{in} y κ son los campos local y promedio, respectivamente [117].

En ambos casos, la idea es escribir el campo que siente una partícula considerando la contribución promedio, que corresponde al valor de campo-medio, y la contribución aleatoria que resulta del entorno local.

De acuerdo con lo discutido, lo razonable es buscar como determinar el campo de interacción local de la i -ésima partícula $H_{in,i}$, el cual suponemos diferente para cada partícula. Este campo contiene las dos contribuciones mencionadas anteriormente: el efecto aleatorio local y el efecto promedio. Lo anterior también puede tomarse en cuenta definiendo una distribución de campo de interacción (IFD - Interaction Field Distribution) caracterizado por un valor promedio (μ_α) y una desviación estándar (σ_α).

Para fines de la medición del campo individual que siente cada partícula, $H_{in,i}$, el valor es único y contiene ambas contribuciones. Por lo que, si se puede medir el campo para cada partícula, entonces ya no es tan importante diferenciar la parte aleatoria de la parte promedio. En todo caso, lo relevante sería determinar la distribución del campo de interacción. Y hay que considerar que la diferenciación del campo local y promedio viene de la necesidad de contar con un modelo o marco para interpretar y explicar el hecho de que los campos de interacción son variables de una partícula a otra, esto es: que el campo de interacción tiene una distribución.

En ecuaciones esto es como decir que el campo de interacción que siente la i -ésima partícula es de la forma;

$$H_{in,i} = \alpha_i m, \quad (2.33)$$

donde ahora el coeficiente de interacción (α) ya no se supone constante, si no que, al contrario, es diferente para cada partícula.

Si ahora revisamos las ecuaciones comúnmente empleadas para analizar los efectos del campo de interacción, tenemos en primer lugar el campo total que siente la i -ésima partícula,

$$H_{T,i} = H_A + \alpha_i m. \quad (2.34)$$

Donde ahora el valor del campo total ($H_{T,i}$) es específico para la i -ésima partícula. Recordando que estos campos los podemos asociar a las coercividades medida (H_c) e intrínseca (h_c), entonces la relación entre estas es,

$$H_{c,i} = h_{c,i} + \alpha_i m. \quad (2.35)$$

Es decir, para cada punto podemos conocer la coercividad intrínseca $h_{c,i}$ a partir de la medida $H_{c,i}$ y del campo total de interacción que siente la i -ésima partícula, α_i .

Debido a que el campo de interacción dipolar está relacionado con el campo desmagnetizante efectivo del sistema, sigue que suponer α_i diferente para cada partícula, implica que ya no se usa la restricción de N_{eff} constante. Se supone que el campo de interacción es cualquier función de la magnetización $H_{in}(M)$. Y de las ecuaciones anteriores la única suposición que va implícita es que las Ecs. (2.34) y (2.35) son válidas. Esto implica que el campo de interacción solo desplaza el campo coercitivo a lo largo del eje del campo y que las propiedades intrínsecas de las partículas no cambian con el campo de interacción (no collective effects). Esto es igual que en el modelo de Preisach donde los histeriones solamente son

desplazados por el campo de interacción haciéndolos asimétricos. La misma suposición es comúnmente empleada en los diagramas FORC. De hecho, Berger en el método $\Delta H(M, \Delta M)$ hace la misma suposición.[122]

2.4. Estructuras formadas por ensambles de partículas magnéticas

Nos interesamos en una clase de materiales magnéticos en los cuales se hace un empaquetamiento o comprimido de partículas individuales de manera que las partículas quedan contenidas en un volumen claramente definido e identificable.

Existen diversos ejemplos relevantes e importantes de esta clase de materiales. Como primer ejemplo mostramos la cadena de partículas y aquí dos ejemplos importantes, uno de ellos es el correspondiente a las bacterias magnetotácticas, como se muestra en la figura 2.18 (A). El segundo ejemplo sería el caso de una cadena de esferas fabricada en laboratorio, como se muestra en la figura 2.18 (B). Este tipo de cadenas han sido ampliamente estudiadas y de hecho son la base para un modelo muy conocido para explicar el campo coercitivo en partículas alargadas. Este es el modelo de Jacobs y Bean conocido como el modelo de la cadena de esferas publicado en 1955 [123].

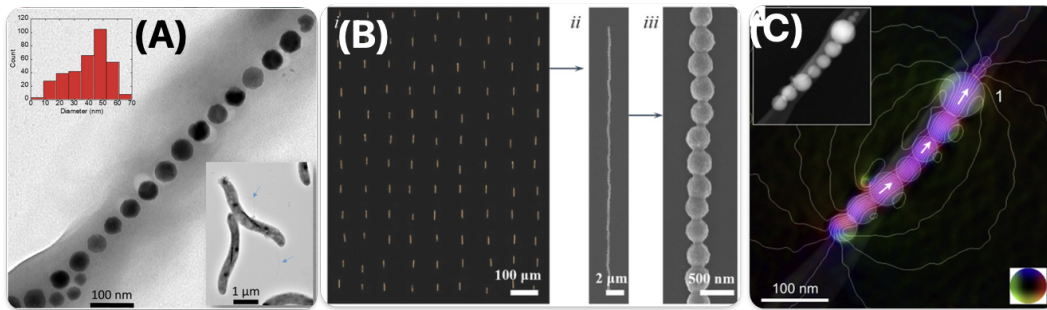


Figura 2.18: Imágenes de (A) una cadena de partículas magnéticas obtenida de una bacteria magnetotáctica, (B) cadenas de una partícula obtenidas en laboratorio por ordenamiento inducido por campo y (C) imagen de holografía magnética donde podemos ver las líneas de campo en una cadena de partículas extraída de una bacteria magnetotáctica. Imágenes adaptadas de las referencias [124, 125, 126], respectivamente.

La imagen que muestra las líneas de campo obtenidas por holografía magnética en una cadena de partículas extraída de una bacteria magnetotáctica. La figura 2.18 (C) ilustra justamente el hecho de que las líneas de campo de la cadena se asemejan mucho a las correspondientes a un cilindro magnético. De donde la idea de considerar el volumen o la geometría en la cual se encuentran confinadas las partículas.

El siguiente ejemplo incluye ensambles de partículas quasi 2D de partículas que corresponden a agregados largos de partículas, como los que se muestran en la figura 2.19.

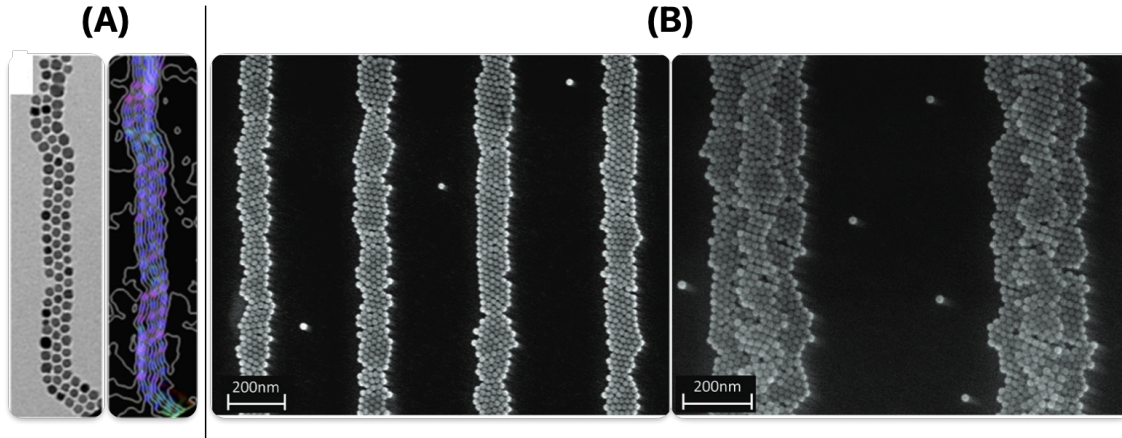


Figura 2.19: Imágenes de (A) Cadena de partículas magnéticas con un ancho de tres partículas y al lado las líneas de campo obtenidas por holografía magnética, (B) Barras planas de partículas magnéticas obtenidas por auto ensamblado inducido por gradientes de campo magnético. Imágenes adaptadas de las referencias [126, 127], respectivamente.

En la figura 2.19 (A) se presenta el caso de una sola barra o agregado de partículas mientras que en la figura 2.19 (B) se muestra el caso de varias barras paralelas. En este caso, el volumen que contiene a las partículas se asemeja a un barrote rectangular delgado. En la figura 2.19 (A) también se observa del mapa de líneas de campo obtenido por holografía magnética, y como se puede ver a partir de las líneas de campo es que las partículas interactúan entre si.

Otro enfoque que ha sido desarrollado se basa en el uso de técnicas litográficas para pre-estructurar substratos con pozos o canales de dimensiones bien definidas y posteriormente, mediante técnicas de autoensamblado en medio líquido éstos son llenados con partículas magnéticas. De esta manera es posible producir arreglos ordenados de ensambles de partículas con formas muy variadas y con la posibilidad adicional de poder variar su ordenamiento espacial. En la figura 2.20 se muestran varios ejemplos de estos tipos de ensambles de partículas magnéticas. En la Figura 2.20 (a) y (b) se muestra un ejemplo de barras paralelas de partículas magnéticas, adaptadas de [128], mientras que en (c)-(e) podemos ver redes bi-dimensionales, cuadradas o hexagonales con agregados de partículas en forma de círculos, triángulos y cuadrados, adaptadas de [129], y en la Figura 2.20 (f) y (g) se muestran dos ejemplos de redes rectangulares de barras rectangulares hechas de partículas magnéticas, adaptadas de [130, 131], respectivamente.

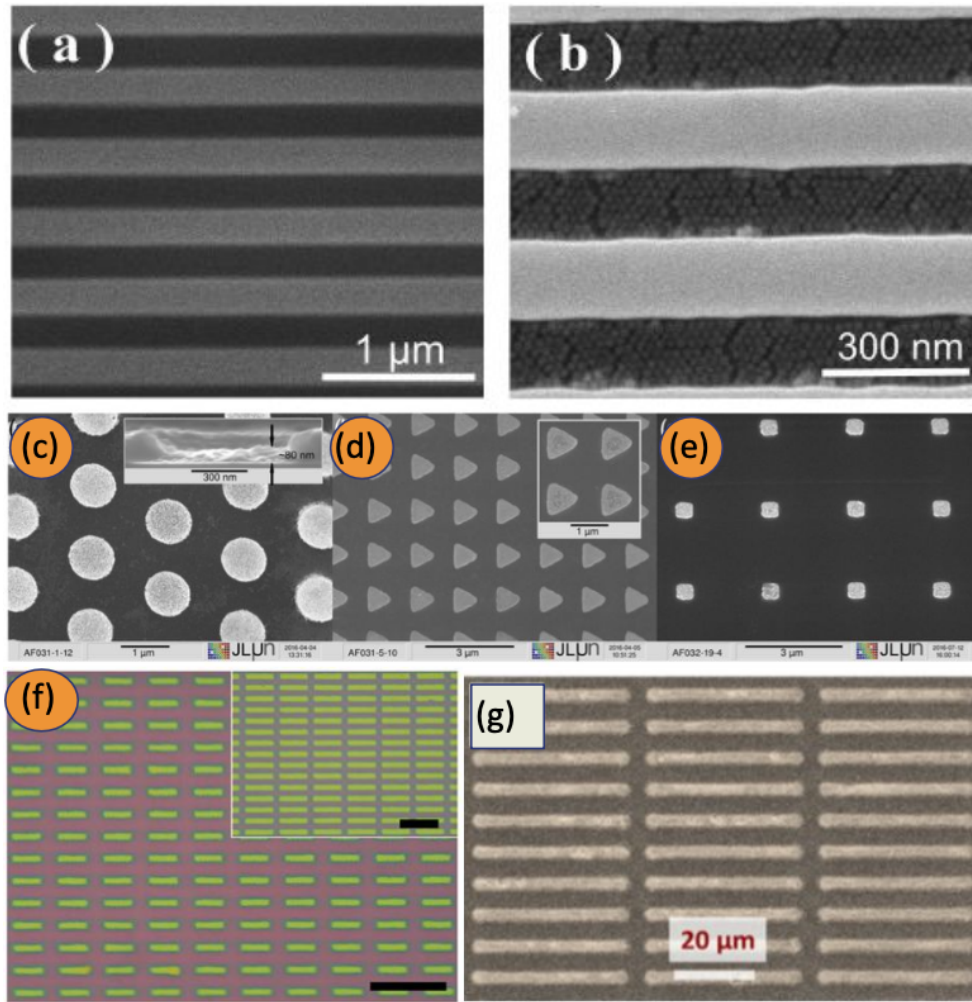


Figura 2.20: Imágenes de ensambles de partículas magnéticas obtenidos mediante técnicas de litografía. (a) y (b) Barras paralelas de partículas magnéticas, adaptadas de [128], (c)-(e) redes bidimensionales, cuadradas o hexagonales con agregados de partículas en forma de círculos, triángulos y cuadrados, adaptadas de [129], (f) y (g) red rectangular de barras rectangulares hechas de partículas magnéticas, adaptadas de [130, 131], respectivamente.

Los ejemplos anteriores son ensambles de partículas magnéticas que forman estructuras geométricas bien definidas, ya sea una sola o bien arreglos de la misma geometría. Este tipo de sistemas son los que nos han interesado ya que las propiedades magnéticas de estos ensambles dependen de manera importante de los efectos de la interacción dipolar entre las partículas. Los ejemplos mostrados incluyen casos donde el empaquetamiento de las partículas es muy elevado y un problema importante es poder variar el llenado a fin de modular la magnitud del campo de interacción.

Los materiales que nos interesan, para fines de poder realizar el modelado de las propie-

dades magnéticas, son tales que:

1. Todas las partículas son teóricamente iguales,
2. el sistema contiene un número muy grande de partículas,
3. las partículas únicamente interaccionan vía la interacción dipolo-dipolo y no hay efectos de intercambio. Esto equivale a suponer que las partículas no se tocan físicamente por lo que a lo más, habrá una separación mínima ϵ tal que $\epsilon \rightarrow 0$,
4. la geometría de las partículas así como del volumen que contiene al ensamble son tales que sus factores desmagnetizantes se pueden escribir en forma diagonal y,
5. es posible variar de manera continua la fracción de llenado tal que $0 \leq P \leq 1$.

2.5. Modelado de la interacción dipolo-dipolo en ensambles de partículas

El modelado de las interacciones dipolares en ensambles de partículas es un problema complicado por que se basa en una expresión de interacción de pares. Si bien para el caso de dipolos puntuales es posible obtener soluciones aproximadas. Sin embargo, al considerar volúmenes finitos esto se complica por que es necesario pasar de sumatorias de pares a integrales sobre cada volumen y entre todos los volúmenes, lo cual hace que el problema sea complejo y que requiera de esfuerzos grandes de computo.

Hay diversos enfoques que han sido empleados para modelar la interacción dipolar en sistemas de pocas y muchas partículas. De estos, se destaca por ejemplo los modelos de campo medio que simplifican el problema al suponer que cada partícula magnética experimenta un campo magnético promedio de todas las demás partículas y descarta las correlaciones entre los momentos individuales de las partículas. Otro método ampliamente utilizado se basa en las simulaciones de Monte Carlo, las cuales implican muestreo aleatorio para simular las fluctuaciones térmicas e interacciones entre partículas magnéticas individuales. Estas utilizan métodos probabilísticos para seguir los cambios en la magnetización con el tiempo [132]. Otro enfoque usado para estudiar interacciones se basa en la teoría del micromagnetismo. Las simulaciones micromagnéticas dividen el conjunto de partículas en pequeñas celdas, cada una representando un momento magnético. Utilizan la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert para calcular la dinámica de la magnetización, considerando las interacciones dipolares y la anisotropía. Sin embargo, al considerar sistemas de muchas partículas los requerimientos de computo aumentan demasiado por lo que este enfoque solo se ha utilizado para sistemas de pocas partículas [133, 134, 135].

En el contexto de los modelos de campo medio, se encuentran propuestas para el caso de ensambles de partículas esféricas. El primer trabajo es el de Bleaney y Hull publicado en 1941 [136]. En este caso, ellos propusieron un factor desmagnetizante efectivo para un empaquetado o comprimido aleatorio de partículas esféricas el cual puede escribirse como,

$$N_{eff} = \frac{1}{3} + P \left(N_t - \frac{1}{3} \right) \quad (2.36)$$

Donde N_t es el factor desmagnetizante de la forma geométrica del comprimido y P es la fracción de llenado. Esta expresión ha sido utilizada por diversos autores [137, 53, 138, 139]

En 1980 U. Netzelmann [140] publica un estudio sobre propiedades de resonancia ferromagnética en cintas magnéticas de audio, en el cual propone una expresión para la energía magnetostática total con la forma de una ley de mezclas,

$$F_N = \frac{1}{2\mu_0} (1 - P) \mathbf{M} \cdot \mathbf{N} \cdot \mathbf{M} + \frac{1}{2\mu_0} P \mathbf{M} \cdot \mathbf{N}_t \cdot \mathbf{M} \quad (2.37)$$

De aquí sigue que el factor desmagnetizante efectivo es,

$$N_{eff} = (1 - P)N + PN_t \quad (2.38)$$

Posteriormente, en 1996 Dubowik retomó esta forma del factor desmagnetizante y mostró la viabilidad de usar este esquema para diversas geometrías comunes [141, 142].

En 2001, el modelo se aplicó a redes de nanoalambres magnéticos con el fin de estudiar los efectos de la interacción dipolar en estos sistemas [107]. Este modelo ha sido verificado posteriormente mediante modelos más rigurosos de campo efectivo [143] o bien mediante simulaciones micromagnéticas [144]. Adicionalmente, varios estudios han retomado con éxito estos modelos en diferentes ensambles de partículas [145, 146].

En 2007 Skomsky y colaboradores, usan un enfoque de campo efectivo para obtener el factor desmagnetizante efectivo de una mezcla compleja de partículas el cual está dado por [147],

$$N_{eff} = N_1(1 - P_1) + N_2P_1(1 - P_2) + N_3P_1P_2. \quad (2.39)$$

Aquí las partículas son descritas por N_1 las cuales ocupan una fracción de llenado P_1 en un segundo volumen dado por N_2 . Ahora ese volumen N_2 se replica y ocupa una fracción de llenado P_2 en un volumen N_3 . Obviamente si solo consideramos un solo volumen N_2 , tenemos que $P_2 = 0$ y esta expresión se reduce a la Eq. (2.38).

En 2013 Martínez-Huerta, y cols., retomaron el modelo de Netzelmann y lo extendieron para el caso de partículas y volúmenes de geometrías arbitrarias así como para tratar el caso

de estados no saturados. El Factor desmagnetizante efectivo se reescribió de la siguiente manera [118],

$$N_{eff} = N + (N_t - N)P \left[\frac{1+m}{2} \right], \quad (2.40)$$

donde $0 \leq m \leq 1$ es el valor de la magnetización normalizada $m = M(H)/M_S$. Para el estado saturado $m = 1$ y a partir de la expresión para este caso ya es fácil interpretar que el primer término corresponde a la partícula aislada no interactuante, mientras que el segundo término corresponde a la interacción dipolar entre partículas. Esto es,

$$N_{eff} = N + (N_t - N)P. \quad (2.41)$$

A partir de esta cantidad se pueden obtener todas las cantidades magnéticas de interés: el campo desmagnetizante, la anisotropía magnética y la susceptibilidad magnética. Esta expresión corresponde a la Eq. (1.52) incluida en el capítulo de marco teórico y será la expresión que se usará de base para los cálculos que se han realizado. De esta ecuación vemos que para el caso de esferas, $N = 1/3$ y recuperamos la ecuación (2.36).

2.6. Conclusión de la revisión del tema

En este capítulo se han presentado los temas que han sido la motivación y la base para el problema de estudio del presente trabajo.

Tres puntos en los cuales hay oportunidad y necesidad de estudiar métodos para cuantificar el campo de interacción son: cuantificación del campo de interacción por otros métodos magnetométricos que no usen los diagramas FORC o las curvas de remanencia IRM/DCD. Métodos que arrojen valores del campo de interacción para diferentes estados magnéticos del sistema, es decir, pasar de un solo valor promedio a un conjunto de valores que puedan relacionarse a diversos puntos o estados del sistema. Tercero, que es extensión o consecuencia del anterior, medir u obtener de las mediciones la distribución del campo de interacción y con esto salir de la aproximación de campo medio para el análisis e interpretación del campo de interacción y sus efectos.

El factor común de los dos temas centrales es el sesgo inducido por el campo de interacción y su corrección. Como se ha mencionado, al tratar este problema es necesario hacer aproximaciones o bien consideraciones que simplifiquen el análisis.

Otro punto importante que está relacionado con esta problemática de la interacción, el sesgo y la relación entre la SFD y la iSFD, es el de la relación entre las propiedades macroscópicas que son medidas en el ensamble y las propiedades individuales de las partículas que lo forman. Cuando pasamos de una partícula al ensamble de partículas (nominalmente)

idénticas debemos considerar que (a) el campo de interacción modifica la barrera de energía local de cada partícula y, por lo tanto, el ciclo de histéresis individual cambia, y (b) existe una SFD debido a que las partículas no son (estrictamente) idénticas, esto hace variar al ancho de la SFD y por consiguiente el ciclo de histéresis medido en el ensamble también cambia. Para el caso de nanoalambres magnéticos, existen resultados que ejemplifican claramente el

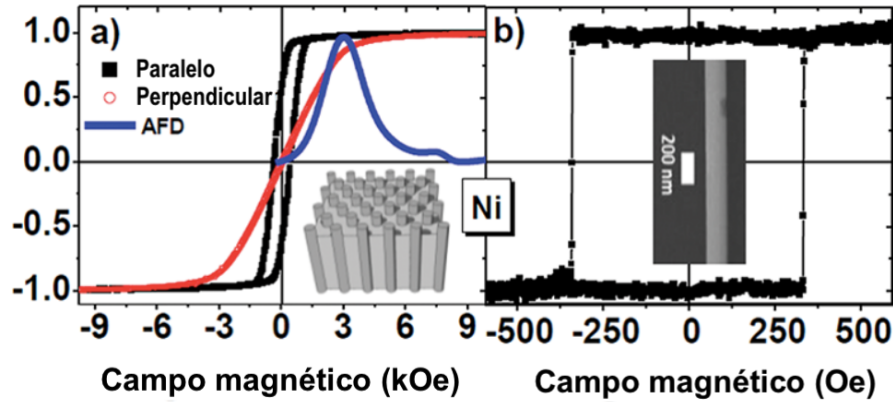


Figura 2.21: (a) ciclos de histéresis paralelo y perpendicular al eje de los alambres medidas en el ensamble y, (b) ciclo de histéresis paralelo al eje medido en un solo alambre aislado y sin interacción, figura adaptada de [148].

punto anterior. Un ejemplo es mostrado en la figura 2.21, donde se muestran los (a) ciclos de histéresis paralelo y perpendicular al eje de los alambres medidas en el ensamble y, (b) ciclo de histéresis paralelo al eje medido en un solo alambre aislado y sin interacción una vez que este fue removido de la membrana y aislado [148]. Como se puede ver al comparar el ciclo de histéresis paralelo medido en el ensamble y el ciclo paralelo medido en un solo alambre, es clara la diferencia. En el ensamble vemos que la remanencia es menor que 100%, el ciclo además presenta cierta curvatura cuando se sale o se llega hacia o del estado saturado y vemos que la curva tiene una pendiente positiva en el campo coercitivo. Esto contrasta con el caso de un solo alambre en el cual el ciclo es muy parecido al de un histerón o el de una partícula ideal Stoner-Wohlfarth con una remanencia del 100% y un brinco abrupto de la magnetización en el campo coercitivo, característico de un sistema biestable. Del ejemplo anterior podemos identificar otro problema fundamental: como se llega de un conjunto de ciclos individuales como el mostrado en la figura 2.21 (b) a la curva que exhibe el ensamble, figura 2.21 (a) y, lo inverso, como podemos a partir de la curva medida en el ensamble establecer como son las curvas o las propiedades individuales.

Por otra parte, hay interés en profundizar estudios relacionados con ensambles de partículas magnéticas. Como se mencionó, existen diversas metodologías que han permitido realizar con éxito la microestructuración de ensambles de partículas. Sin embargo, hay dos problemas que deben destacarse; el primero relacionado con la falta de modelos simples que permitan obtener de manera práctica parámetros y valores relevantes sobre el sistema y que incluyan de manera explícita la interacción dipolar entre partículas. El otro problema de interés tiene que ver con la necesidad de desarrollar metodologías que permitan fabricar ensambles de

partículas contenidos en geometrías bien definidas usando técnicas menos complejas que las técnicas litográficas y en particular que permitan obtener estructuras que no sean solamente planas. Adicionalmente se requiere que estas metodologías sean lo suficientemente sencillas como para poder variar cuanto material magnético se incluye en el ensamble e incluso, poder variar también el tipo de material magnético.

Capítulo 3

Planteamiento del problema de estudio

En base a lo discutido en el capítulo anterior y la revisión realizada, se han identificado varios problemas relevantes e interesantes relacionados con ensambles de partículas magnéticas interactuantes.

Por un lado, está la problemática del campo de interacción que como se mencionó versa sobre los siguientes puntos importantes:

- Mediciones basadas en magnetómetro que no se basen en la relación de Wohlfarth o diagramas FORC
- Mediciones que generen más de un punto correspondiente al valor promedio de la interacción y que en su lugar proporcionen valores para diferentes puntos del sistema.
- Ir más allá de la aproximación de campo medio obteniendo la distribución del campo de interacción.
- Contar con modelos simples que posean capacidades descriptivas y de predicción para el efecto de la interacción dipolar en ensambles de partículas.
- Contar con métodos de fabricación que permitan de manera práctica fabricar ensambles de partículas magnéticas en los que sea posible variar por diseño la geometría (factores desmagnetizantes) del volumen en el cual están contenidas las partículas.

Por otra parte, está el problema del cambio inducido por el campo de interacción en la distribución de campos de rotación medida, la SFD, con respecto a la distribución intrínseca, la iSFD.

3.1. Definición de los sistemas de interés

Hay muchos tipos de ensambles o redes de partículas que se pueden clasificar por el tipo de material o estructura de las componentes individuales, así como según su forma y/o tamaño, el tipo de ordenamiento que tienen las partículas en el ensamble, etc.

Para los problemas que se han identificado y mencionado en la sección anterior, es necesario acotar el tipo de sistemas que nos van a interesar. La principal razón y criterio utilizado para acotar y definir el sistema de estudio es que buscamos sistemas que sean fácil de modelar, que sigan con bastante fidelidad el comportamiento de un sistema ideal o modelo para que podamos evaluar o valorar los diferentes métodos que se van a proponer para estudiar el campo de interacción. La idea es que validando los métodos en un sistema que sabemos que es bien comportado, podemos identificar fortalezas y limitaciones, para posteriormente considerarlas en escenarios o sistemas menos bien comportados y poder así interpretar las diferencias y fallas.

Se requieren sistemas biestables con interacciones que pueden variar de partícula a partícula en torno a un valor promedio. La magnitud del campo de interacción debe a lo más ser moderada para asegurar que no hay efectos colectivos y que los mecanismos de inversión de la magnetización de las partículas no es modificado, es decir, el campo de interacción se suma o superpone, sin afectar nada más.

El caso ideal sería el de un sistema tipo Preisach en el cual tenemos n -histeriones, es decir, son partículas binarias. Este conjunto de histeriones tienen una iSFD y cuando se introduce la interacción no hay efectos colectivos por lo que los histeriones individuales pasan de ser simétricos a ser asimétricos. En este caso, la interacción modifica la iSFD tal que es diferente de la SFD medida.

Para poder elaborar un modelo analítico de campo medio que describa los efectos magnetostáticos en un ensamble de partículas, se requiere de geometrías simples para las cuales se tienen soluciones analíticas para sus respectivos factores desmagnetizantes. Además, para facilitar el modelado se debe limitar el análisis al caso en que el sistema esta en su estado saturado. Por otra parte, para desarrollar un método para fabricar ensambles de partículas magnéticas en los cuales sea fácil controlar o definir la geometría del volumen que contiene a las partículas necesitamos un material fácilmente moldeable, que pueda pasar de manera sencilla de su fase sólida a líquida y viceversa. Mientras que para las partículas magnéticas, idealmente se requiere que tengan una remanencia que tienda a cero para evitar problemas de agregación y que posean un recubrimiento que evite que las partículas entren en contacto físico directo entre ellas.

3.2. Suposiciones

En base a lo anterior, para el presente trabajo se han hecho las siguientes suposiciones y restricciones:

- a) El tipo de ensamble que nos interesa está formado por partículas que poseen una anisotropía y su ciclo de histéresis a lo largo de su dirección fácil es de tipo biestable, es decir, la rotación de la magnetización es principalmente irreversible. En este caso se consideran iguales el campo coercitivo y el de rotación, y se pueden utilizar indistintamente.
- b) Las partículas no se tocan entre sí, por lo que la interacción entre partículas está limitada y solo se da mediante la interacción dipolo-dipolo. En un sistema lo suficientemente diluido la interacción desaparece, quedando un conjunto de partículas aisladas o independientes.
- c) Las partículas en el ensamble se consideran alineadas de manera que sus direcciones fáciles sean en promedio paralelas entre sí. Aquí la restricción busca asegurar que, al medir con el campo aplicado a lo largo de la dirección fácil, que es la dirección que interesa medir, todos o aproximadamente todos los ciclos de histéresis sean los correspondientes al ciclo biestable.
- d) Las partículas al ser medidas a lo largo de la dirección fácil promedio, como se indica en el punto anterior, pueden no estar perfectamente alineadas y adicionalmente puede suceder que hay desorden en el sistema tanto a nivel de la microestructura individual, así como a nivel del ordenamiento. Consecuencia de este *desorden* el sistema muestra una distribución de campos de rotación (SFD).
- e) La rotación de la magnetización del ensamble a lo largo de la dirección fácil promedio ocurre mediante la rotación secuencial de las partículas individuales en orden creciente de sus respectivos campos coercitivos. La SFD corresponde a la distribución de los campos coercitivos o de rotación de todas las partículas en el ensamble.
- f) Suponemos que cuando hay interacción los ciclos de histéresis individuales pasan de ser simétricos en el eje del campo a ser asimétricos. Es decir, se recorren en el eje del campo debido al campo de interacción. Nos limitamos a ensambles donde la interacción no altera las propiedades o características del modo de rotación de la magnetización de las partículas, es decir, la interacción es un campo aditivo que se superpone al campo aplicado. Decimos que en este caso no hay efectos colectivos.
- g) Debido a que el campo de interacción hace que los ciclos de histéresis individuales se vuelvan asimétricos, la SFD se ve modificada y es diferente a la que se tiene cuando los ciclos no se han recorrido y son simétricos. Por lo que tenemos dos distribuciones de campo de rotación, la llamada intrínseca que corresponde al caso sin interacción y

la medida. La medida y la intrínseca coinciden cuando no hay interacción y son diferentes cuando hay interacción. Derivado que los ciclos son asimétricos cuando hay interacción, las curvas de magnetización del ensamble presentan la transformación de sesgo. Esta transformación, cuando no hay efectos colectivos, es la relación entre las distribuciones intrínseca y la medida. La medida se obtiene al realizar la transformación del sesgo sobre la intrínseca y viceversa, la intrínseca se obtiene al hacer la corrección del sesgo sobre la medida.

- h) Se ha considerado que el campo de interacción ya sea constante o bien fluctuante, es proporcional a la magnetización normalizada m y a un coeficiente que corresponde al valor del campo de interacción en el estado saturado, α , tal que $H_{int} = \alpha m$, donde $\alpha = \langle \alpha \rangle, \alpha_i$ para el caso constante o fluctuante, respectivamente.
- i) Con el fin de simplificar el sistema se desprecian contribuciones a la energía magnética individual que no sean magnetostáticas, como sería por ejemplo la anisotropía magnetocristalina o magneto-elástica. Así mismo, se descartan otros tipos de interacción entre partículas que no sean la interacción clásica dipolo-dipolo.
- j) Para el desarrollo del modelo, se ha considerado que las partículas están en todo momento saturadas en la misma dirección.
- k) Para desarrollar un método de fabricación de ensambles de partículas magnéticas, se ha utilizado un ferrofluido comercial ya que las partículas magnéticas están recubiertas (funcionalizadas) con ácido oleico el cual evita que las partículas se toquen físicamente entre si.
- l) Para lograr la dispersión de las partículas y tener la facilidad de moldear el sistema a diferentes formas, se ha usado el ácido esteárico el cual además de ser barato, es compatible con el ferrofluido (base aceite) y puede pasar fácilmente de sólido a líquido y viceversa.

En la práctica estas restricciones se cumplen para un gran número de sistemas de interés. En efecto, hay muchos ejemplos de ensambles de partículas biestables ordenadas de manera que sus ejes fáciles son (en promedio) paralelos, que no se tocan y por lo tanto la interacción entre ellas es puramente dipolar. Los sistemas reales exhiben siempre desorden microestructural y de orden, de manera que poseen una iSFD y una SFD. Más aún, en muchos sistemas de interés, las interacciones no alcanzan a inducir efectos colectivos ya que éstos limitan su aplicabilidad. Lo anterior asegura que otras restricciones se cumplen de manera aproximada pero satisfactoria: la interacción se reduce a la asimetría de los ciclos individuales, la rotación se hace de manera secuencial y en orden creciente de campo coercitivo y esto se observa macroscópicamente como la transformación de sesgo de las curvas de magnetización.

3.3. Justificación, hipótesis y objetivos

A partir de lo descrito anteriormente, es claro que el problema de la interacción dipolar en ensambles de partículas es fundamental y de gran importancia. Esto es válido tanto para su medición así como para modelos que lo describan y proporcionen capacidades descriptivas y predictivas. Así mismo, existe una necesidad de extender las opciones de métodos experimentales que permitan fabricar de manera simple y practica ensambles de partículas donde sea posible controlar principalmente la geometría macroscópica del ensamble.

De lo anterior nos enfocamos en analizar los ciclos menores y en particular, buscamos puntos o características que sabemos que poseen simetría cuando no hay interacción pero que son asimétricas cuando hay interacción.

La idea de centrarnos en los ciclos menores tiene varias razones. La primera es que se trata de una medición que involucra un proceso de desmagnetización y de magnetización, tiene parte decreciente y creciente. Esto es similar a las curvas de remanencia IRM y DCD, sin embargo los ciclos menores reflejan procesos reversibles e irreversibles.

Mas importante, si la suposición de que las partículas invierten su magnetización entre los estados $m_{\pm}$ de manera secuencial en orden creciente de campo coercitivo siguiendo la SFD, entonces como veremos a continuación las partes descendientes y ascendentes de un ciclo menor deben ser simétricas (asimétricas) si no hay (cuando hay) interacción. Esta propiedad es fundamental para identificar asimetrías y el campo magnético asociado a éstas.

Adicionalmente, es posible medir un número arbitrario de ciclos menores. En principio, de cada ciclo menor se pueden determinar campos de asimetría asociados al campo de interacción. Esto sugiere que de cada ciclo menor se puede obtener un valor del campo de interacción y de esta manera podríamos encontrar un conjunto de valores de este campo y no solo su valor promedio.

Por otra parte, también nos hemos enfocado en el problema de los efectos que tiene la interacción dipolar en las propiedades magnéticas macroscópicas de ensambles de partículas. En este sentido, suponemos partículas magnéticamente suaves, es decir, no poseen ninguna anisotropía magnética a parte de la de forma. Con esto, nos enfocamos en los efectos magnetostáticos del ensamble que incluyen la anisotropía de forma de cada partícula y la interacción dipolar entre ellas. Además de la forma y tamaño de las partículas, es importante que éstas formen un ensamble contenido en una geometría bien definida con una cierta densidad o fracción de llenado que determina la distancia promedio entre partículas. En este caso, se ha trabajado en dos direcciones: la primera en desarrollar y validar un modelo analítico que permita describir los efectos magnetostaticos de anisotropía de forma e interacción

dipolar para determinar las propiedades de anisotropía magnética efectiva en ensambles de partículas, mientras que por otra parte se plantea desarrollar un método experimental capaz de fabricar de manera simple y practica ensambles de partículas donde sea posible controlar principalmente la geometría macroscópica del ensamble.

Hipótesis: En un ensamble de partículas biestables cuyos campos de rotación siguen una función de distribución, la interacción dipolar induce una asimetría en los ciclos de magnetización individuales. A partir de valores o coordenadas específicas asociadas a un ciclo menor, esta asimetría se debe cuantificar como un campo magnético, el cual es cero para el caso simétrico y sin interacción, de manera que a partir de esta diferencia de campos se puede obtener el valor del campo de interacción correspondiente. Si estas asimetrías son específicas al punto de retorno del ciclo menor, entonces midiendo un mayor número de ciclos menores se puede obtener un conjunto de valores del campo de interacción y con esto su distribución. Si el campo de interacción es tal que no induce efectos colectivos que modifiquen los modos de rotación de la magnetización de las partículas, entonces es posible obtener la distribución intrínseca de campos de rotación mediante la transformación lineal de la corrección del sesgo de las curvas de magnetización. Por otro lado, es posible desarrollar un modelo analítico capaz de hacer una descripción en la aproximación de campo medio de los efectos magnetostáticos de anisotropía de forma e interacción dipolar en ensambles de partículas magnéticas el cual depende únicamente de las geometrías de las partículas, del volumen que las contiene y de la fracción que volumen que ocupan éstas. Así mismo, una forma viable de fabricar experimentalmente ensambles de partículas cuyo volumen macroscópico puede ser variado fácilmente es empleando una mezcla que puede pasar de sólido a líquido y viceversa la cual contiene dispersar a las partículas magnéticas y que puede ser aplicada como recubrimiento sobre objetos cuya forma servirá para definir el volumen macroscópico del ensamble.

Basándonos en esta hipótesis definimos nuestro

Objetivo general: Proponer y validar métodos que utilicen asimetrías en los ciclos menores o bien entre sus partes ascendentes y descendientes para cuantificar el campo de interacción asociado a uno o varios puntos de dichos ciclos y posteriormente utilizar la corrección del sesgo punto a punto, así como promedio, para obtener la distribución intrínseca de campos de rotación a partir de la distribución medida utilizando datos simulados y experimentales obtenidos en sistemas modelo. Adicionalmente, generar conocimientos nuevos sobre modelos para describir la interacción dipolar en ensambles de partículas magnéticas así como proponer y validar una metodología para producir recubrimientos que contengan partículas magnéticas que puedan ser moldeados a geometrías predefinidas al aplicarlos como recubrimientos sobre diferentes objetos.

Objetivos específicos:

1. Desarrollar programas que permitan simular las diferentes curvas de magnetización de interés para ensambles de entidades binarias, tipo histerón, con interacción fija o bien variable.
2. Experimentalmente, utilizar y caracterizar redes de nanoalambres magnéticos de diámetros reducidos y cocientes de aspecto elevado con densidades medias y bajas. Estos sistemas son biestables y no presentan efectos colectivos, por lo que son un sistema modelo para el estudio de interacción dipolar en ensambles de partículas magnéticas.
3. Analizar ciclos menores, sus partes descendentes y ascendentes así como sus derivadas con el fin de identificar coordenadas específicas o propiedades que reflejen una asimetría inducida por el campo de interacción. Encontrar expresiones que relacionen las asimetrías expresadas como una diferencia de campos con el campo de interacción.
4. Validar métodos obteniendo la distribución del campo de interacción y con estos calcular el valor promedio. Comparar el valor promedio que se obtiene con el valor promedio obtenido experimentalmente utilizando las curvas de remanencia que es una medición independiente.
5. Realizar la corrección del sesgo con los datos del campo de interacción punto a punto así como el promedio obtenido por los métodos propuestos y validar comparando con los resultados obtenidos por las curvas de remanencia y el método de campo medio de corrección del sesgo [79].
6. Desarrollar un modelo analítico de campo medio que permita describir los efectos magnetostáticos de anisotropía de forma e interacción dipolar de un ensamble de partículas asumiendo que las partículas individuales pueden tener a lo más una anisotropía de forma y despreciando cualquier otro tipo de anisotropía magnética.
7. Obtener las expresiones y calcular las propiedades de anisotropía magnética efectiva considerando diferentes geometrías macroscópicas para las cuales existen expresiones analíticas para sus respectivos factores desmagnetizantes.
8. Poner a punto y realizar la caracterización elemental de un compuesto a base de ácido esteárico y ferrofluido comercial.
9. Validar el proceso de aplicación de recubrimientos de este compuesto sobre objetos con diferentes geometrías y composiciones.

Capítulo 4

Materiales y métodos

Para el presente trabajo, la metodología se ha basado en parte en simulaciones numéricas de curvas de magnetización de ensambles de partículas ideales. Mientras que la parte experimental necesitó de una parte enfocada en la fabricación de redes de nanoalambres por métodos electroquímicos y posteriormente la caracterización de sus propiedades magnéticas por técnicas de magnetometría. A continuación se hace una descripción básica de cada tema.

4.1. Síntesis de nanoalambres

Se han fabricado redes 2D de nanoalambres magnéticos mediante la técnica de deposición electroquímica en templetes o moldes nanoporosos, como se ilustra de manera esquemática en la Fig. 4.1, que es una técnica muy bien establecida y que se conoce bien [149].

Los nanoalambres de Ni, NiFe y CoFe se fabricaron por electrodeposición a temperatura ambiente usando membranas de policarbonato de espesor de $21\ \mu\text{m}$, en la cual los poros son paralelos uno a otro con una distribución aleatoria y se caracteriza por sus fracción de empaquetamiento promedio (P) o porosidad que está definida como el producto de la densidad de poros (ρ) y el área de poro ($A = \pi\phi^2/4$) donde ϕ es el diámetro del poro. Se usó la configuración de tres electrodos empleando un electrodo de referencia de Ag/AgCl y un electrodo de trabajo de platino. Los depósitos se realizaron a voltaje constante.

La deposición por la técnica de electroquímica tiene principio en la migración de iones

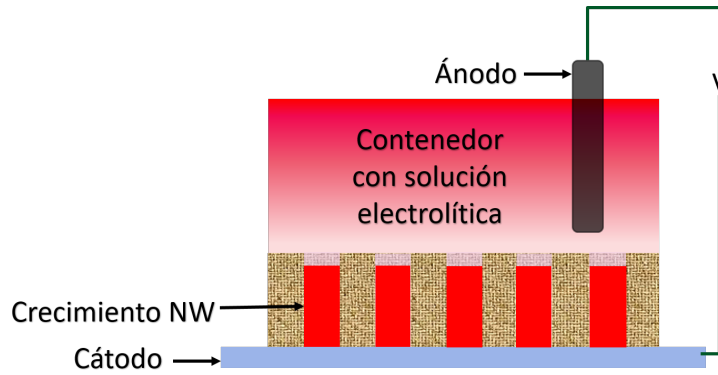


Figura 4.1: Esquema de electrodeposición de nanoalambres crecidos en poros paralelos.

metálicos en solución por el efecto de hacer fluir corriente eléctrica para que éstos sean cristalizados en la superficie colocada en la parte inferior de la solución utilizada. Para realizar la reducción se requiere aplicar una diferencia de potencial entre el ánodo y el cátodo lo suficiente para hacer que los iones en la solución se desplazan hacia el cátodo mediante una reacción del tipo[150]



donde M es la especie metálica en cuestión. La carga total depositada se expresa como [151]

$$Q = nmN_A e, \quad (4.2)$$

donde n es el número de moles que se reducen, m es la masa molar del elemento considerado a depositar, N_A es el número de Avogadro y e es la carga del electrón.

La electrodeposición se llevó a cabo con los parámetros que se muestran en la tabla (4.1)[75]

Compuesto	Fórmula química	Potencial
Ni	240 g/l NiSO ₄ + 30 g/l H ₃ BO ₃	-1.0 V
NiFe	5.56 g/l FeSO ₄ + 131.42 g/l NiSO ₄ + 30 g/l H ₃ BO ₃	-1.1 V
CoFe	40 g/l FeSO ₄ + 80g/l CoSO ₄ +30 g/l H ₃ BO ₃	-0.9 V

Cuadro 4.1: Composición de los eléctricos para Ni, NiFe, CoFe y el potencial usado para depositarse.

En el presente trabajo se utilizaron 6 muestras:

- La muestra de NiFe de 50 nm de diámetro y P=4.5 %
- La muestra de NiFe de 35 nm de diámetro y P=11.3 %

- La muestra de NiFe de 70 nm de diámetro y $P=10.4\%$
- La muestra de Ni de 70 nm de diámetro y $P=\simeq 1\%$
- La muestra de Ni de 40 nm de diámetro y $P=12\%$
- La muestra de CoFe de 35 nm de diámetro y $P=8.8\%$

4.2. Magnetometría de gradiente alternante

La obtención de los análisis de magnetometría de las muestras estudiadas se realizó por la técnica de magnetometría de gradiente alternante.

Los magnetómetros por gradiente alternante de campo (AGM por sus siglas en inglés, Alternating Gradient Magnetometry) son dispositivos los cuales cuentan con un funcionamiento sencillo, pero capaces de realizar mediciones con una pequeña porción de muestra, una precisión y rapidez grande. Es entonces una herramienta idónea para la caracterización magnética de nanopartículas, debido a sus características. Si bien existen otras técnicas para magnetometría, el fundamento de esta técnica nos permite llegar a sensibilidades mayores, momentos magnéticos de $1-5 \times 10^{-6}$ emu pueden ser alcanzados.

La muestra a analizar se magnetiza por el campo magnético estático que es producido por el electroimán, la muestra se hace oscilar por la influencia de un campo magnético alternante adicional, éste se genera por un sistema de bobinas que producen un gradiente. Las oscilaciones se detectan por un sensor de vibración que se acopla a un capilar de cuarzo. La componente de la fuerza es detectada a lo largo de la dirección del campo aplicado H_x y se expresa como

$$F_x = m_x \frac{H_x}{dx} = m_x - H_x \sin \omega t, \quad (4.3)$$

Si las bobinas que generan el gradiente producen un campo de forma sinusoidal, la forma que tiene la señal detectada es

$$V(t) = m_x S \omega V_0 \cos \omega t, \quad (4.4)$$

donde S es el factor de sensibilidad.

La frecuencia del campo alternante se selecciona tal que se ajuste a la frecuencia mecánica de vibración para obtener un factor de sensibilidad alto. Por lo que cada muestra que se quiera analizar debe ser previamente analizada para detectar esta frecuencia óptima de excitación. Al variar el valor del campo externo aplicado H_x , el material será magnetizado progresivamente a lo largo de la dirección y el gráfico H contra m_x es la curva de magnetización.

4.2.1. Magnetometría en redes de nanoalambres magnéticos

Las mediciones, protocolos y parámetros que han sido de interés para el presente trabajo han sido definidos y explicados en el capítulo de marco teórico (ver 1.10). A continuación solo se detallan las diferentes mediciones realizadas.

Todas las mediciones realizadas fueron hechas a temperatura ambiente y con el campo aplicado paralelo al eje largo de los alambres, es decir, perpendicular al plano de la muestra.

Para el presente trabajo, se han medido:

1. Ciclo mayor de histéresis.
2. Ciclos menores, lo que incluye curvas FORC.
3. Curvas de remanencia IRM y DCD.

Ejemplos de estas mediciones se muestran en la figura 4.2 (a) y (b).

Como parte del protocolo de análisis y procesamiento de datos, todas las mediciones fueron normalizadas al valor de la magnetización de saturación, de manera que las curvas se grafican como magnetización normalizada la cual varía entre $[-1,1]$. Así mismo, para obtener las SFDs correspondientes se realizó la derivada numérica de los datos, $SFD=dM/dH$. Finalmente, las derivadas numéricas de las curvas $M(H)$ suelen tener mucho ruido, el cual fue reducido numéricamente empleando funciones de suavizado incluidas en el graficador y se verificó que este proceso no modificara las curvas de manera observable.

Las curvas IRM y DCD han servido para determinar el coeficiente del campo de interacción, α , por un método independiente. En particular, el coeficiente de la componente axial dependiente de la magnetización del campo de interacción α se ha medido directamente de las curvas de remanencia IRM y DCD, donde los protocolos han sido previamente explicados, usando la ecuación [79]:

$$\alpha = 2(H_r^{0,5} - H_d^0), \quad (4.5)$$

donde $H_r^{0,5}$ es el valor de campo al cual la curva IRM normalizada es igual a 0.5, mientras H_d^0 es el valor de campo al cual la curva DCD es cero como se muestra en la figura (??). En todos los casos, las curvas de remanencia fueron normalizadas al valor máximo de la curva de remanencia IRM.

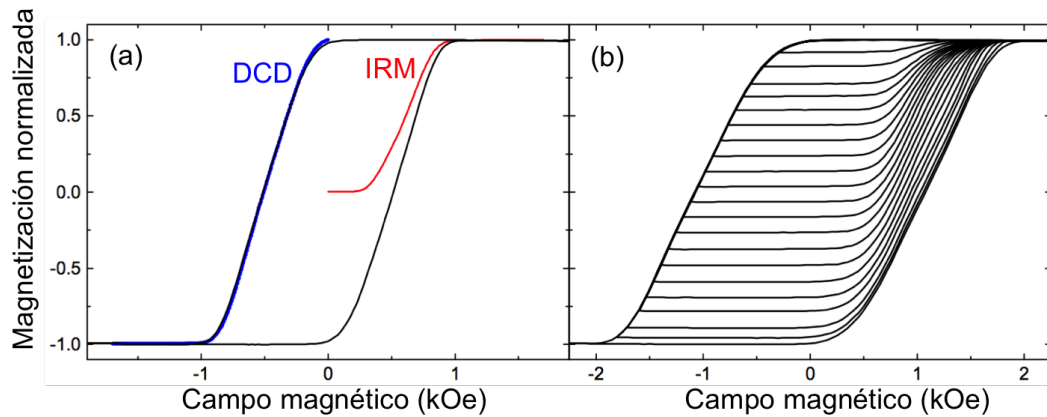


Figura 4.2: (a) ciclo mayor y curvas de remanencia IRM y DCD, (b) ciclo mayor y conjunto de ciclos menores.

4.3. Simulación de curvas de magnetización

Para el presente trabajo se realizaron simulaciones en base al modelo de Stoner-Wohlfarth. Dichas simulaciones se enfocaron en 3 situaciones particulares, como son:

- Sistemas sin interacción
- Sistemas con interacción fija
- Sistemas con interacción fluctuante

Se eligieron estos tres sistemas por sus características. Para el caso del sistema no interactuante, nos da la oportunidad de probar nuestros métodos, en el cual se busca que el valor de la interacción sea nula. Para el caso de un sistema con interacción fija, en este probamos que los métodos nos arrojen la información que uno introdujo al realizar la simulación. Por último el caso para sistemas con interacción fluctuante se refiere a que el valor de la interacción no es fijo, teniendo así algunas variaciones con respecto a un valor fijo. Este caso nos ayuda a ver las limitaciones del método.

En la figura 4.3 se presentan ciclos mayores para los tres sistemas, además se presentan algunos ciclos menores, esto con la finalidad de visualizar el efecto que tiene al agregar la interacción al sistema. Además de ello se agregaron las curvas denominadas SFD para estos casos para visualizar de una forma más sencilla el efecto que tiene la interacción.

Es importante ir definiendo las diferencias que se ven entre los 3 casos. Comparando un sistema que interactúa con uno que no, es evidente como en la figura 4.3 la curva azul se ve

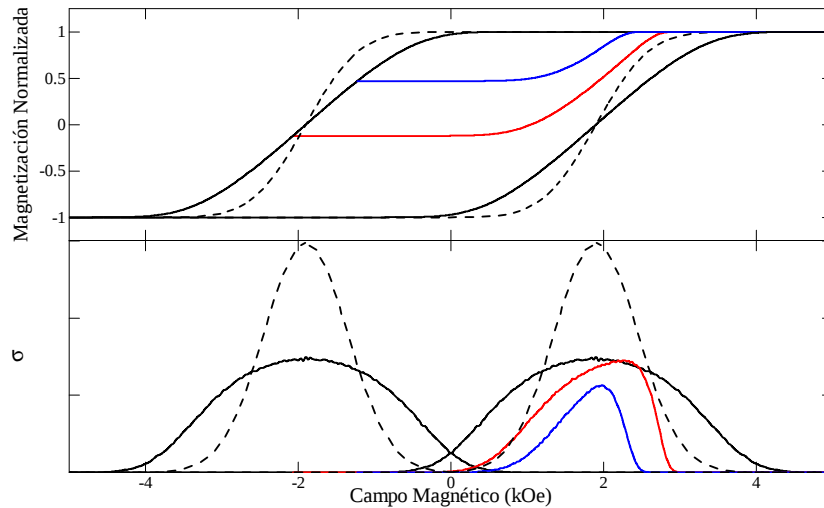


Figura 4.3: Simulación de a) ciclo mayor y ciclo menor para un sistema interactuante que se muestra de color negro y rojo respectivamente; por otra parte el sistema no interactuante se representa por líneas punteadas y color azul para el ciclo menor, b) SFD obtenida como la derivada para las curvas correspondientes a su ciclo en a).

recorrida con respecto a la curva punteada, esto es la forma más evidente para decir que hay interacción (siempre y cuando se tenga la curva intrínseca). De igual modo para visualizarlo de otra forma se tomaron las derivadas de estos sistemas. Para este caso se ve que la curva con interacción se ensanchó.

4.3.1. Proceso de simulación

Para poder realizar la simulación de las curvas de magnetización, se realizó el siguiente procedimiento, el cual se ilustra en la figura 4.4,

1. Definir la curva intrínseca.
2. Definir el paso en campo que se estará trabajando.
3. Determinar la suma total (energía) de la curva intrínseca en base al paso en campo.
4. Inicializar un estado de saturación (negativo=-1, positivo=1)
5. Realizar un barrido en campo con el paso designado.
6. Con cada paso en campo ir sumando/restando la energía atribuida a ese paso con la energía acumulada.

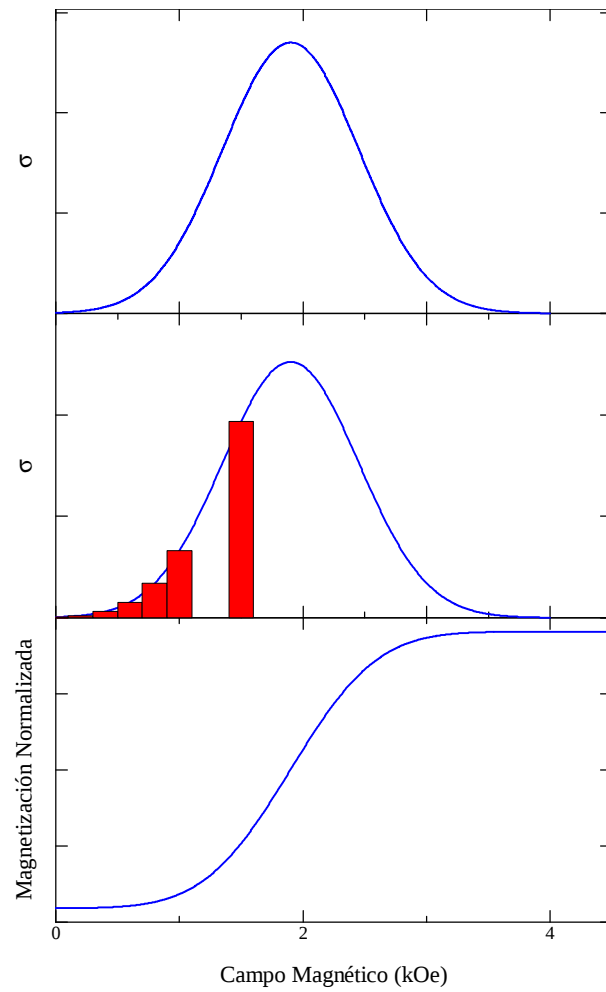


Figura 4.4: Gráficas representativas de los diferentes pasos de la simulación.

Para la simulación de ciclos menores el paso que cambia sería el de inicializar un estado de saturación por un estado intermedio. Cabe recalcar que para poder sumar/restar a la energía se debe seguir el modelo de Stoner-Wohlfarth. Recordando un poco para este trabajo se usará un ensamble de nanoalambres paralelos entre sí. Dado este sistema sabemos que si aplicamos campo magnético paralelo al eje de los nanoalambres lo que estaremos visualizando en la curva serán puramente procesos irreversibles. Dicho proceso nos dice que una vez rotado de un estado a otro, no podrán regresarse o rotar por el mismo camino, sino que tendrán que rotar con el negativo de su campo coercitivo.

Una vez que se tienen todas las curvas intrínsecas deseadas, podemos definir esto como las curvas intrínsecas, ya que hasta el momento no se le ha agregado el efecto de la interacción. Para agregar el efecto de la interacción se utilizó :

$$H_T = H_A + H_i, \quad (4.6)$$

donde H_T es el campo total, H_A es el campo aplicado, y H_i es el campo de interacción. Este campo de interacción se modeló como:

$$H_i = \alpha m, \quad (4.7)$$

donde α es el coeficiente de interacción, y m es la magnetización.

Capítulo 5

Campo de interacción y distribución de campos de rotación a partir de la diferencia entre las áreas acotadas por los ciclos menores del lado positivo y negativo del campo aplicado

En este capítulo se presenta un método que se basa en el uso de ciclos menores para determinar el valor del campo de interacción y el campo coercitivo intrínseco específicos al punto de retorno de dicho ciclo. El método explota la diferencia entre las áreas contenidas en cada ciclo menor en los lados positivo y negativo del eje del campo. Se proponen dos procedimientos para medir la diferencia en campo entre el caso simétrico (sin interacción) y el caso asimétrico (con interacción). El primer método se basa en calcular directamente la diferencia de las áreas contenidas en cada ciclo menor de lado positivo y negativo del campo. El segundo método se basa en la búsqueda del campo de corrimiento necesario para que las áreas sean iguales. En cada caso, se plantean las expresiones que permiten asociar ese campo al campo de interacción y a la coercividad intrínseca del punto de retorno de ese ciclo menor. Por lo que ambos procedimientos permiten obtener el campo de interacción y la coercividad intrínseca punto a punto. Para validar los métodos se han utilizado datos simulados y mediciones realizadas en redes de nanoalambres y los resultados se han comparado entre sí, así como con los valores obtenidos por un método independiente basado en las curvas de remanencia. Se muestra que ambos métodos permiten construir una curva de valores del campo de interacción y generar el segmento de la distribución intrínseca correspondiente a ese ciclo menor. El análisis muestra que ambos métodos proporcionan valores del campo de interacción y de la coercividad intrínseca que concuerdan bien con los valores promedio.

5.1. Planteamiento del método

Consideremos el caso de una partícula ideal mono dominio cuyo ciclo de histéresis es un histerión. Por definición el histerión es simétrico y los campos coercitivos positivo (H_{c+}) y negativo (H_{c-}) medidos son iguales, como se ilustra esquemáticamente en la figura 5.1 (a) y corresponden a la coercividad intrínseca (H_{c0}):

$$|H_{c0}| = |H_{c+}| = |H_{c-}|. \quad (5.1)$$

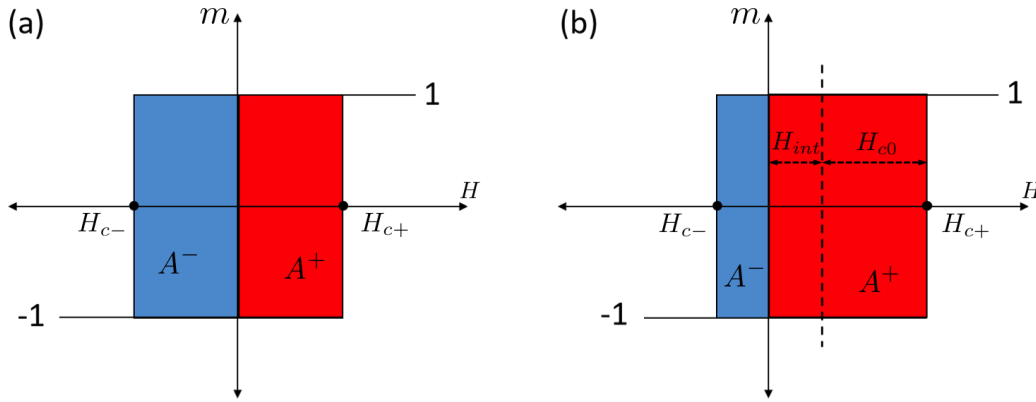


Figura 5.1: Esquema de un histerión a) sin interacción ($A^- = A^+$) y b) con interacción ($A^- \neq A^+$), donde vemos los campos coercitivos medidos, (H_{c+}, H_{c-}), el campo de interacción (H_{int}) y el campo coercitivo intrínseco (H_{c0}). Para el caso sin interacción se cumple que $|H_{c0}| = |H_{c+}| = |H_{c-}|$.

Como se mencionó anteriormente, al introducir un campo de interacción (H_{int}) actúa sobre el histerión, este se recorre en el eje del campo y deja de ser simétrico, como se ilustra en la figura 5.1 (b). Suponiendo que este campo es constante, entonces la relación entre los campos coercitivos medidos, (H_{c+}, H_{c-}), y la coercividad intrínseca siguen las expresiones bien conocidas del modelo de Preisach clásico.

$$H_{int} = -(H_{c-} + H_{c+})/2, \quad (5.2)$$

$$H_{c0} = (H_{c-} - H_{c+})/2. \quad (5.3)$$

Es claro, como se ilustra en la figura 5.1, que el histerión es simétrico cuando no hay interacción y cuando hay interacción este es asimétrico. A partir de la gráfica del histerión en el plano MH se puede inferir que es posible relacionar el campo de interacción con la diferencia de las áreas acotadas por el histerión de cada lado del eje del campo. Adicionalmente, y como se suele ilustrar en el modelo de Preisach, que el campo de corrimiento del histerión es justamente el campo de interacción, como se ilustra en la figura 5.1 (b).

Lo que proponemos a continuación es la extensión de estos dos enfoques para determinar el campo de interacción para el caso de ensamble de partículas ideales.

Para un ensamble de partículas consideramos que el conjunto de los histeriones individuales son descritos por la SFD. Como se explicó anteriormente, para el caso no interactuante, esta distribución es la distribución intrínseca (iSFD), y para el caso interactuante la llamamos simplemente SFD o la SFD medida. Desde luego, estas dos distribuciones están relacionadas y la relación entre ellas es uno de los problemas que nos interesan.

La simetría/asimetría de los histeriones tiene como consecuencia que en un ensamble de histeriones, los ciclos menores tienen esa misma propiedad: son simétricos para el caso sin interacción y asimétricos en el caso con interacción.

En efecto, recordemos que al definir las características de un ensamble de partículas ideales se explicó que al realizar un barrido en campo, la magnetización del ensamble cambia mediante la inversión de la magnetización de cada partícula siguiendo la SFD de manera secuencial.

Para el caso de un ciclo menor en un ensamble sin interacción, consideremos primero la parte descendente en la cual el sistema inicia en el estado saturado positivo y es llevado hasta el punto de retorno del ciclo menor en algún valor de campo negativo. En este caso, la primera partícula que rota es aquella con el menor campo coercitivo en la iSFD, seguida del segundo campo coercitivo y así sucesivamente hasta llegar al punto de retorno del ciclo menor. En el punto de retorno, la última partícula que rota es aquella con el mayor campo coercitivo dentro del conjunto de partículas que rotaron, sea H_{r0} el campo de retorno, donde el subíndice cero se refiere al caso sin interacción.

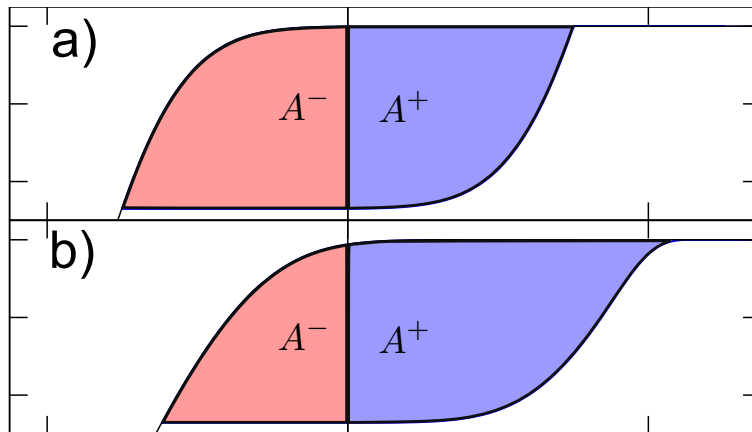


Figura 5.2: Esquema donde se ilustra el área de un ciclo menor dividido en dos partes para un ciclo menor a) sin interacción y b) con interacción.

Durante el retorno, todas las partículas cuya magnetización fue invertida en la bajada,

regresaran al estado positivo. La primera partícula que rota sería nuevamente aquella que tiene el campo coercitivo más chico, seguida por aquella con el segundo campo coercitivo más bajo y así sucesivamente en orden secuencial, de tal manera que la última partícula que rota es aquella que roto en el campo de retorno y que corresponde también a la que define el campo de saturación de ese ciclo menor. sea H_{s0} el campo de saturación, donde el subíndice cero se refiere al caso sin interacción. En este caso se cumple que:

$$H_{r0} = H_{s0}. \quad (5.4)$$

Como no hay interacción, los histeriones individuales son simétricos y se debe cumplir la relación (5.1) para la i -ésima partícula. Como consecuencia, el ciclo menor es simétrico como se ilustra en la figura 5.2 (a).

Para el caso con interacción, es necesario considerar que el campo efectivo (H_{Ef}) que actúa en una partícula es la suma del campo aplicado (H_A) y el campo de interacción ($H_{int} = \alpha m$). En la aproximación de campo medio esto es:

$$H_{Ef} = H_A + \alpha m. \quad (5.5)$$

En términos de las coercividades medidas e intrínseca [75], sigue que

$$H_c = H_{c0} + \alpha m. \quad (5.6)$$

Si analizamos el caso de la última partícula que rota al llegar al punto de retorno, tenemos que la coercividad medida en parte descendente corresponde al campo de retorno (H_r), esto es:

$$H_r = H_{c0} + \alpha m_r, \quad (5.7)$$

mientras que en el retorno, vimos que esta partícula es la que rota a su estado inicial positivo en el campo de saturación (H_{sat}), que corresponde a la coercividad medida, esto es:

$$H_{sat} = H_{c0} + \alpha m_{sat}. \quad (5.8)$$

Ya que $m_r \neq m_{sat}$, sigue que $H_r \neq H_{sat}$ lo que indica que el histerión es asimétrico. Al considerar otro punto o partícula cuya magnetización participa en el ciclo menor, se obtiene el mismo resultado. Por lo que se concluye que para un ensamble con interacción los ciclos menores son asimétricos, como se ilustra en la figura 5.2 (b).

Finalmente, vemos que si el campo de interacción es cero, $\alpha = 0$, entonces $H_r = H_{sat} = H_{c0}$, como se espera.

Como veremos en el capítulo 8, la asimetría entre los campos de retorno y de saturación para la última partícula que rota en la parte descendente del ciclo menor (la partícula con el mayor campo coercitivo en el subconjunto que participa en el ciclo menor), que se expresa con las ecuaciones (5.7) y (5.8) nos ha permitido desarrollar otro método para determinar la iSFD y el campo de interacción.

5.1.1. Diferencia de áreas

Habiendo establecido el marco para interpretar los ciclos menores como la rotación en orden incremental de coercividad de partículas individuales, pasamos a formalizar los métodos para determinar α y H_{c0} .

El primer método se basa en la diferencia de áreas: $\Delta A = A^+ - A^-$. Como se ha indicado, las áreas contenidas en el ciclo menor del lado positivo y negativo del eje del campo son diferentes cuando hay interacción y son iguales cuando no hay interacción.

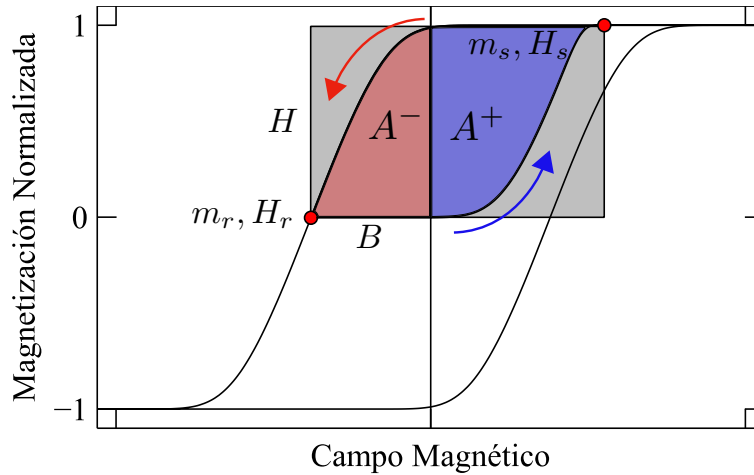


Figura 5.3: Esquema del ciclo mayor y un ciclo menor para el cual se indican las áreas del lado negativo (A^-) y positivo (A^+) del campo. Se muestran también el punto de retorno (H_r, m_r) y el punto de saturación (H_s, m_s).

En la figura 5.3 se muestra el ciclo mayor y un ciclo menor correspondientes al mismo sistema. El ciclo menor está definido por las coordenadas del punto de retorno (H_r, m_r) y las del punto de saturación (H_s, m_s). Como la magnetización está normalizada $m_s = 1$. El área

total contenida en el ciclo menor sigue de la suma del área negativa (A^-), definida desde el campo magnético de retorno H_r a $H = 0$, y el área positiva que inicia en $H = 0$ y termina en H_s . Las flechas en la figura indican que A^- sigue de la parte descendente del campo iniciando en $H_A = 0$, mientras que A^+ sigue de la parte ascendente.

Consideremos primero el caso de un sistema que no interactúa y como se ha explicado, ambas áreas son iguales. Para hacer referencia a este caso particular definimos $H_r \rightarrow H_{r0}$ y $H_s \rightarrow H_{s0}$.

Para calcular las áreas en base a las coordenadas de retorno y saturación, consideramos rectángulos de base B y altura H como se muestra en la figura 5.3. Un ciclo real no va a generar un área rectangular como se muestra en la figura. Sin embargo, la fracción del área del rectángulo HB que es ocupada por el ciclo menor, es la misma del lado negativo y positivo del campo. Sea δ la fracción de llenado y entonces el área del ciclo menor se puede escribir como:

$$A_T = \frac{H * B}{\delta} \delta, \quad (5.9)$$

$$A_T = \frac{(m_s - m_r)(H_{s0} - H_{r0})}{\delta},$$

Si separamos el área total en la parte negativa y positiva del eje del campo se obtiene:

$$A^- = (m_s - m_r)(0 - H_{r0}),$$

$$A^+ = (m_s - m_r)(H_{s0} - 0), \quad (5.10)$$

esto corresponde al caso sin interacción y dado que $H_{s0} = |H_{r0}|$, sigue que $A^- = A^+$. Para introducir el campo de interacción usamos la expresión del campo efectivo que incluye el efecto de la interacción dado por la ecuación (5.5). Si usamos esa ecuación para escribir los campos de retorno y de saturación como campos efectivos obtenemos:

$$A^+ = (m_s - m_r)(H_{s0} + \alpha m_s),$$

$$A^- = (m_s - m_r)(-|H_{r0}| + \alpha m_r). \quad (5.11)$$

Tomamos el valor absoluto de H_{r0} para evitar confusiones con el signo negativo. Realizando la resta entre las áreas se obtiene:

$$\frac{A^+ - A^-}{m_s - m_r} = H_{s0} + |H_{r0}| + \alpha(m_s - m_r), \quad (5.12)$$

$$\alpha = \frac{A^+ - A^-}{(m_s - m_r)(m_s + m_r)} - \frac{H_{s0} + H_{r0}}{m_s + m_r},$$

donde el segundo término se elimina ya que $H_{r0} = -H_{s0}$, ec. (5.4), por lo que el coeficiente de interacción se expresa como:

$$\alpha = \frac{A^+ - A^-}{1 - m_r^2}. \quad (5.13)$$

Esta ecuación establece el valor del coeficiente del campo de interacción como la diferencia de áreas del ciclo menor definido por su magnetización de retorno m_r . Esto quiere decir que para cada ciclo menor representado por su valor de la magnetización de retorno m_r , podemos encontrar el campo de interacción correspondiente al punto de retorno. De manera que si se miden más ciclos menores, se puede obtener una distribución del coeficiente de interacción $\alpha_i(A_i^+, A_i^-, m_{ri})$.

5.1.2. Campo magnético efectivo

El segundo método que se propone sigue del histerón de Preisach y consiste en buscar el campo de corrimiento o bien el campo que es necesario recorrer el ciclo menor para que ambas áreas sean iguales.

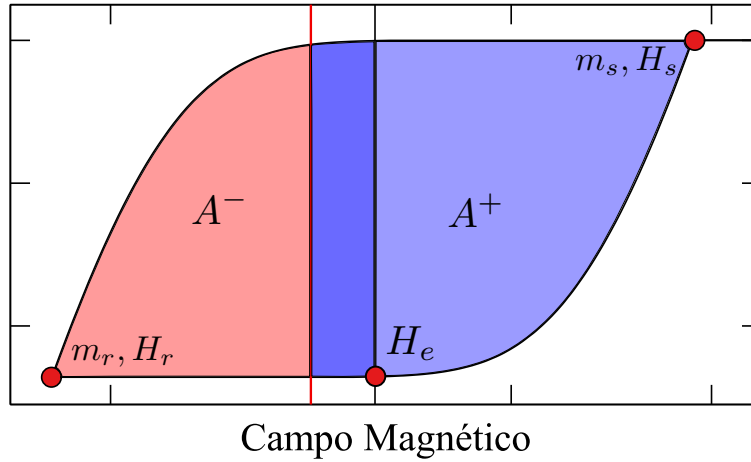


Figura 5.4: Esquema del método utilizando la diferencia de áreas del ciclo menor con punto de retorno definido como H_r, m_r y el punto de saturación H_s, m_s . Donde la línea roja es cuando $H_A = 0$, esto separa el área negativa y positiva.

Partimos de que la interacción entre partículas produce un corrimiento en el campo magnético (H_e) donde las áreas son iguales como se muestra en la figura 5.4, por lo que si tomamos este campo y lo introducimos en la ecuación 5.10, ésta se convierte en:

$$\begin{aligned} A^- &= (m_s - m_r)(H_e - H_{r0}) \\ A^+ &= (m_s - m_r)(H_{s0} - H_e), \end{aligned} \quad (5.14)$$

introduciendo la interacción en la ecuación 5.14 se obtiene:

$$\begin{aligned} A^- &= (m_s - m_r)(H_e - H_{r0} - \alpha m_s) \\ A^+ &= (m_s - m_r)(H_{s0} + \alpha m_r - H_e), \end{aligned} \quad (5.15)$$

de aquí se puede obtener α , igualamos las ecuaciones y reacomodando:

$$\alpha = \frac{-H_{s0} - H_{r0} + 2H_e}{(m_s + m_r)}. \quad (5.16)$$

Recordando la consideración que hicimos en un sistema sin interacción, $H_{r0} + H_{s0} = 0$ podemos simplificar la ecuación a:

$$\alpha = \frac{2H_e}{1 + m_r}. \quad (5.17)$$

La ecuación 5.17 nos relaciona el campo magnético que se recorre con el coeficiente de interacción. Este corrimiento está ligado a el punto de retorno de cada ciclo menor. Al igual que en el método que se presentó en la sección anterior, esta expresión proporciona el campo de interacción para el punto de retorno del ciclo menor. Por lo que si se miden más ciclos menores, se puede obtener una distribución del coeficiente de interacción $\alpha_i(A_i^+, A_i^-, m_{ri})$.

5.2. Resultados

Los resultados se separarán en la parte de simulaciones y en las muestras experimentales. Las simulaciones se realizaron para validar los métodos y ver los posibles factores que limitan la validez de estos.

5.2.1. Distribución del coeficiente de interacción: simulaciones

Para las simulaciones se han considerado tres casos modelo: (1) cuando no hay interacción, (2) interacción constante y, (3) interacción y dispersión del campo de interacción. La distribución intrínseca sigue una distribución normal. El campo de interacción es de $\alpha = 400$ Oe y amplitud de la dispersión del campo de interacción fue de $\beta = 100$ Oe.

Para el caso sin interacción, la simulación arrojó el resultado esperado para los dos métodos: $\Delta A = A^+ - A^- = 0$ y $H_e = 0$.

Para los casos con interacción los resultados de la distribución del coeficiente de interacción en función de la magnetización (de retorno) se muestran en la figura 5.5. Donde para el método ΔA los datos se muestran en color negro y en color rojo para el método H_e . Para cada método se muestran los resultados del caso con interacción constante (círculos) y el caso con dispersión de la interacción (triángulos y leyenda D_{100}).

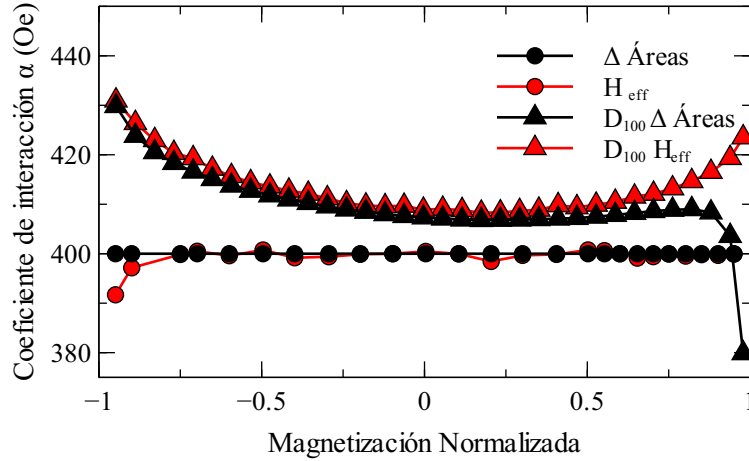


Figura 5.5: Distribuciones del coeficiente de interacción para el caso de interacción constante ($\alpha = 400$), y el caso de interacción con dispersión ($\alpha = 400$, $\beta = 100$) para ambos métodos. El método de diferencia de áreas se representa con puntos negros y el método del campo efectivo con puntos rojos.

Como se había mencionado, vemos que de cada ciclo menor se obtiene un valor del coeficiente de interacción. De manera que a partir de un conjunto de n ciclos menores se puede obtener la distribución del campo de interacción con n puntos.

El siguiente punto que notar es que para el caso de un campo de interacción constante (círculos), vemos que los resultados son una línea horizontal consistente con un valor constante para toda partícula del ensamble. En el caso del campo efectivo, si se nota una leve variación para los puntos muy cercanos a la saturación negativa. Esto se atribuye a que conforme el punto de retorno se acerca al estado saturado y el ciclo menor tiende al ciclo mayor, para el cual sabemos que hay simetría entre las partes descendentes y ascendentes, el campo efectivo es tal que $H_e \rightarrow 0$, lo que hace más difícil su determinación.

En la figura 5.5 también se muestran los resultados obtenidos para ambos métodos pero considerando la dispersión del campo de interacción (triángulos). Como podemos ver, los resultados son una curva para la distribución del campo de interacción y ya no una recta

horizontal. Esto es coherente con el hecho de que el campo de interacción fluctúa y como se vio anteriormente, sus efectos son más grandes a mayores valores de $|m|$. Sin embargo notamos que las curvas obtenidas para cada método son prácticamente iguales, con una ligera variación entre métodos. Sin embargo para el método de la diferencia de áreas si vemos que la curva varía de manera atípica cuando $m \approx 1$. Esto se atribuye a que para valores grandes de m (ceranos a la saturación), la parte descendente del ciclo es poco afectada por la dispersión del campo de interacción. En tanto que la llegada a la saturación de la parte ascendente si es más afectada por la dispersión, lo cual se traduce en un artefacto que incrementa el área positiva, introduciendo una fuente de error o incertidumbre. Esto es importante porque en un sistema real tendremos esta dispersión del campo de interacción y por lo tanto se deben esperar curvas no horizontales para la distribución del campo de interacción. En cuanto a los valores del campo de interacción vemos que en este caso con dispersión, los valores obtenidos son ligeramente mayores al valor promedio de 400 Oe. Sin embargo vemos que en general las diferencias difícilmente pasan del 5 % respecto al valor promedio, salvo cerca de $m \approx \pm 1$.

5.2.2. Distribución del coeficiente de interacción: experimentos

Para el estudio experimental se han utilizado tres muestras de redes 2D de nanoalambres paralelos de permalloy, que es una aleación $\text{Ni}_{81}\text{Ni}_{19}$, que en lo siguiente se denota NiFe. Las muestras tienen diámetro de alambre y fracción de llenado de (100 nm, 0.2 %), (50 nm, 4.5 %) y, (35 nm, 10.4 %). Para cada muestra se midieron un conjunto de ciclos menores con no menos de 20 ciclos y adicionalmente se midieron las curvas de remanencia IRM y DCD a partir de las cuales se determinó el valor promedio del campo de interacción (α_0). Todas las mediciones se realizaron aplicando el campo externo paralelo al eje largo de los alambres.

En la figura 5.6 se muestra la distribución del coeficiente de interacción. El método de diferencia de áreas y el método del campo efectivo están representados por puntos azules y rojos respectivamente. Como referencia se muestra con una línea punteada negra el respectivo valor del campo de interacción promedio obtenido a partir de las curvas de remanencia IRM y DCD.

Lo primero que hay que hacer notar es que en cada una de estas curvas (a)-(c), cada punto de la distribución se obtiene de un ciclo menor y el valor del coeficiente de interacción correspondiente está asociado al punto de retorno.

En la figura 5.6 (a) se exhibe un comportamiento casi horizontal o constante, con mínimas fluctuaciones cerca de los puntos de saturación en ambos métodos. Si comparamos con respecto al valor de campo-medio, las dos distribuciones arrojan valores que concuerdan muy bien con lo obtenido usando curvas de remanencia. En el caso de la figura 5.6 (b) muestra un

comportamiento con una clara curvatura, donde las variaciones son mayores y progresivas cuando los valores de la magnetización se acercan a la saturación. Por último en la figura 5.6 (c) muestra el mismo comportamiento con curvatura que se observó el inciso (b), pero en esta resalta que los resultados son muy parecidos en ambos métodos. También se observa que las fluctuaciones cerca de la saturación negativa son bajas, mientras que para la saturación positiva estas son mayores y crecientes. Mientras que los resultados en (C) muestran que ambos métodos basados en las áreas dan prácticamente los mismos valores, notamos que en (a) y (b) el método de la diferencia de áreas da valores mayores a los del método del campo efectivo. El origen de esto no es fácil de identificar, pero pensamos que se debe a la pequeña área extra o excedente que está presente en la llegada a la saturación asociada a la dispersión. Por último, en los tres casos mostrados, vemos que los resultados obtenidos muestran un buen acuerdo con los respectivos valores del campo de interacción promedio obtenido con las curvas de remanencia.

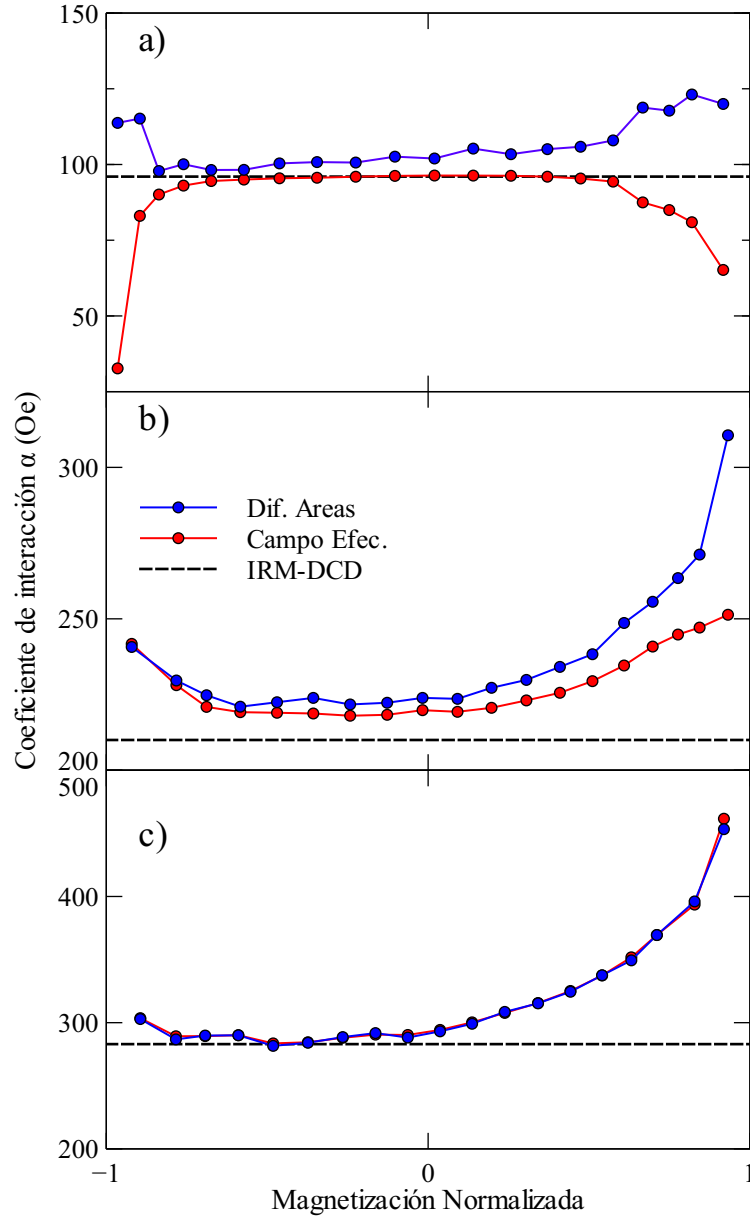


Figura 5.6: Distribuciones del coeficiente de interacción para a) NiFe con $P = 0,2$ y $d = 100$ nm, b) NiFe con $P = 4,5$ y $d = 50$ nm y c) NiFe con $P = 10,4$ y $d = 35$ nm. La línea punteada representa el valor del coeficiente de interacción obtenido con las curvas IRM-DCD, las curvas roja y azules son el método de diferencia de áreas y el de campo efectivo respectivamente.

Como se mencionó en capítulos anteriores, uno de los puntos de interés del presente trabajo con relación a la determinación del campo de interacción es el de obtener la distribución del campo de interacción. Para los dos métodos presentados, vemos que se genera esta distribución mediante la determinación del i -ésimo campo de interacción asociado al punto de retorno del i -ésimo ciclo menor, es decir, (α_i, m_{ri}) . Claramente, el número de puntos en la

distribución depende de cuantos ciclos menores se miden, lo cual es arbitrario, así que en principio no hay límite.

Además de la distribución, en la práctica es más conveniente usar un dato representativo, es decir una medida estadística de tendencia central, que ayuda a resumir en un solo valor a un conjunto de valores, en este caso el valor promedio. Por otra parte, las curvas de distribución del campo de interacción que hemos analizado, tanto simuladas (figura 5.5) así como experimentales (figura 5.6), tienen la característica de variar entre una curva aproximadamente horizontal y una con curvatura hacia arriba. Es decir, la tendencia es que la curva tiende a ser horizontal cuando la dispersión del campo de interacción se va a cero y queda un valor constante y esta curva se deforma dando lugar a la curvatura cuando la dispersión del campo de interacción es diferente de cero. Lo anterior nos hace suponer que el valor mínimo de la curva de distribución (cuando hay curvatura) correspondiente al caso particular en que $m_r = 0$, debe coincidir o tener un valor muy cercano al valor del campo de interacción promedio. En el caso ideal descrito por las simulaciones vemos que este es efectivamente el caso (figura 5.5), mientras que para el caso experimental, vemos un buen acuerdo con cierto grado de desviación, en algunos casos (figura 5.6).

Para tener una mejor comparativa entre diferentes valores representativos que podemos obtener de los dos métodos presentados, la tabla 5.1 muestra el valor promedio del campo de interacción, α , obtenido a partir de las curvas de remanencia (α_0), por el método de diferencia de áreas ($\langle\alpha_{M1}\rangle$), por método del campo efectivo ($\langle\alpha_{M2}\rangle$), así como los valores obtenidos en las respectivas curvas para $m_r = 0$ del método de la diferencia de áreas y del campo efectivo, α_0^{M1} y α_0^{M2} , respectivamente. Los resultados muestran un buen acuerdo entre ellos y con los valores obtenidos a partir de las curvas IRM-DCD, con variaciones contenidas en el 10 %.

Muestra	Interacción (Oe)				
	α_0	$\langle\alpha_{M1}\rangle$	$\langle\alpha_{M2}\rangle$	α_0^{M1}	α_0^{M2}
NiFe(100 nm, 0.2 %)	95	88(± 15)	108(± 8)	96	102
NiFe(50 nm, 4.5 %)	210	228(± 11)	234(± 15)	219	223
NiFe(35 nm, 10.4 %)	283	319(± 45)	318(± 46)	290	290

Cuadro 5.1: Comparación del valor promedio del campo de interacción, α , obtenido a partir de las curvas de remanencia (α_0), por el método de diferencia de áreas ($\langle\alpha_{M1}\rangle$), por método del campo efectivo ($\langle\alpha_{M2}\rangle$), así como los valores obtenidos en las respectivas curvas para $m_r = 0$ del método de la diferencia de áreas y del campo efectivo, α_0^{M1} y α_0^{M2} , respectivamente.

5.2.3. Distribución del campo de rotación intrínseco: Muestras experimentales

Una vez que se ha obtenido la distribución del coeficiente de interacción, se puede recuperar la iSFD usando la corrección del sesgo, para la cual usamos [79]:

$$H_{Ci} = H_{Cm} - \alpha m, \quad (5.18)$$

donde H_{Cm} es el campo coercitivo o de rotación medido y que son las coordenadas $M(H)$ de la curva de magnetización medida y H_{Ci} es el de rotación intrínseco.

Ya que el campo de interacción se obtiene como un conjunto de puntos (distribución) asociados a los ciclos menores individuales o bien como un valor promedio, la corrección del sesgo se puede hacer para cada punto o bien usando el promedio. En nuestro caso, hacemos la corrección para cada ciclo menor usando su respectivo valor del campo de interacción. Esto lleva a que los ciclos menores se corrigen individual e independientemente. Los resultados los comparamos con el resultado que se obtiene usando el valor promedio del campo de interacción obtenido con las curvas de remanencia, siguiendo el método reportado por Martínez-Huerta y cols. [79].

En la figura 5.7 se comparan los retornos (parte ascendente) del ciclo mayor medido, es decir sin corrección, (color rojo) y corregido usando el valor promedio obtenido con las curvas de remanencia (color azul) así como los ciclos menores corregidos individualmente usando su respectivo campo de interacción $\alpha_i(m_{ri})$ (color gris), para las tres muestras de nanoalambres de (a) NiFe(100 nm, 0.2 %), (b) NiFe(50 nm, 4.5 %) y, (c) NiFe(35 nm, 10.4 %). Mientras que en los incisos (d), (e) y (f) se muestran las correspondientes distribuciones obtenidas como las derivadas dM/dH .

Como se puede ver en la figura, al realizar la corrección del sesgo, el cambio en las curvas es muy visible. En este caso, la pendiente aumenta al hacer la corrección como se espera para una interacción tipo anti ferromagnética. En las curvas de magnetización así como en las respectivas derivadas podemos ver que los datos de los ciclos menores corregidos se ajustan bastante bien a la curva que se obtiene usando el valor promedio obtenido a partir de las curvas de remanencia. Esta curva, en color azul, se observa como envolvente. Al observar en las derivadas, vemos que si hay algunas diferencias entre las curvas individuales (gris) y la envolvente (azul) aunque son pequeñas. Una observación importante es que las curvas corregidas retienen las características principales de la curva medida. En particular, como vemos en los incisos (e) y (f), la SFD y la iSFD muestran una estructura bimodal. Esto es propio del sistema ya que se observa en la SFD, pero es de notar que el método preserva estas características y no se requiere ajustar o adivinar la forma de la iSFD.

La figura 5.7 muestra un iSFD simétrica. Para las muestras de NiFe con $P = 4,5$ y $d = 50$

nm y NiFe con $P = 10,4$ y $d = 35$ nm la iSFD muestra un comportamiento de gaussiana bimodal.

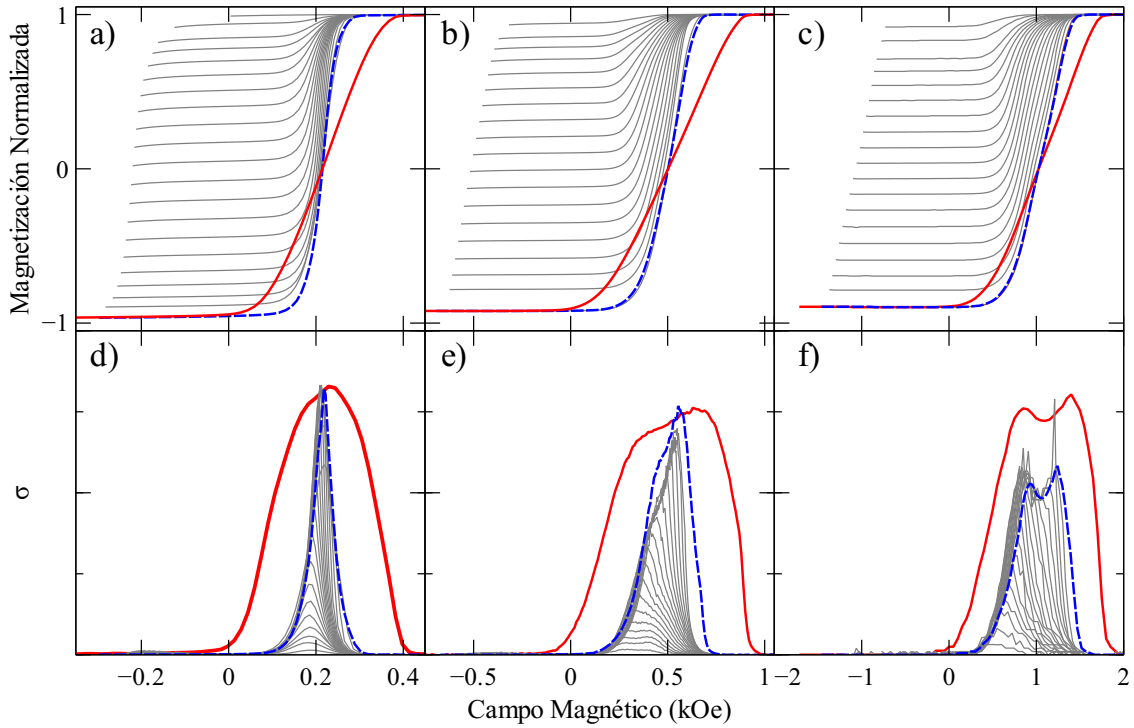


Figura 5.7: iSFD de una muestra experimental de NiFe con $P = 0,2$ y $d = 100$ nm. La línea roja es la curva mayor original, y la línea punteada es la curva intrínseca tomando α_0 , y las líneas color negro son los ciclos menores tomando el método 1 como α .

Finalmente y para mostrar la consistencia de la metodología y revisar si los resultados obtenidos, luego de la corrección del campo de interacción son consistentes con el caso intrínseco y sin interacción, se determinaron las áreas A^+ y A^- de los ciclos corregidos y se calculó la diferencia de áreas $\Delta A = A^+ - A^-$, la cual idealmente debe ser cero. La diferencia de áreas para los diferentes ciclos menores se muestra en la figura 5.8, donde observamos que la diferencia es muy chica comparada con el valor promedio de los métodos, como referencia el campo de interacción promedio de esta muestra es del orden de 200 Oe. Esta diferencia es menor al 5 %, lo cual nos dice que la corrección realizada al remover los efectos de la interacción lleva a un resultado confiable.

5.3. Discusión y conclusión

Se propusieron dos métodos para obtener el coeficiente de interacción: (i) con método de diferencia en áreas, y (ii) método de campo efectivo. Ambos métodos arrojan resultados similares en comparativa con los valores obtenidos con las curvas de remanencia IRM-DCD.

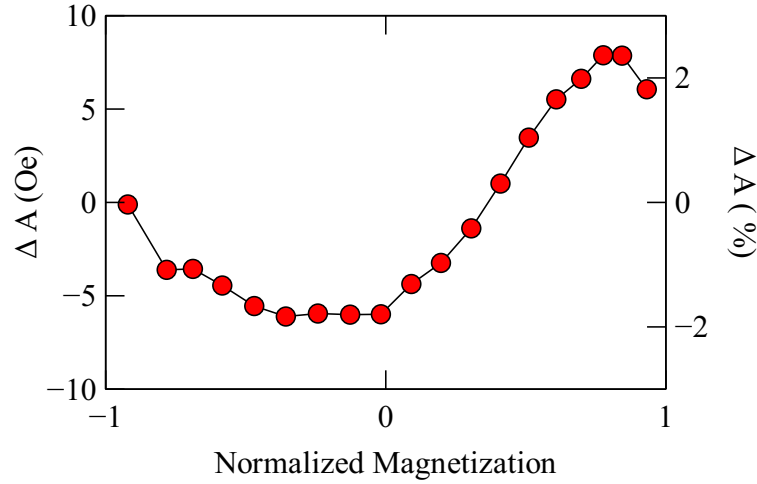


Figura 5.8: Diferencia de áreas después de remover la interacción de la muestra experimental de nanoalambres de NiFe con $P = 4,5$ y $d = 50$ nm.

La diferencia entre los métodos está entre 8-15 %, este espacio se reduce a 5-10 %, si se toma en cuenta los valores entre ± 0.9 . La curvatura de las distribuciones puede ser ocasionada principalmente por el efecto de dispersión, errores en el procesamiento u otras contribuciones que no se toman en cuenta para el modelo. Los efectos de dispersión vienen de la no constante distancia entre los nanoalambres dentro de la membrana, recordando que la fuerza de la interacción dipolar depende principalmente de la distancia. Los errores de procesamiento vienen del modelo analítico, cuando se acerca a los puntos de saturación la interacción es más sensible, debido a que el denominador en (5.13) y (5.17) tienden a cero, por lo que puede llevar a sobreestimaciones, también la precisión de las áreas cuando se acerca a la saturación positiva es sensible debido a que son áreas relativamente pequeñas.

En contraste con otros métodos propuestos donde solo un valor del coeficiente de interacción se mide, estos métodos nos dan una distribución de este parámetro. El número de puntos que se obtienen solo depende de cuantos ciclos menores se usen, en este trabajo se usaron $N \sim 20$. Sin embargo, los valores obtenidos por los métodos propuestos pueden ser vistos como campo-medio, ya que se obtiene un valor del coeficiente de interacción por cada ciclo menor. Estos métodos nos proporcionan una mejora en comparativa con el valor promedio de las curvas de remanencia.

Finalmente, los métodos para cuantificar el coeficiente de interacción en este trabajo se basan en mediciones que contienen información de procesos reversibles e irreversibles, en comparación con la IRM-DCD que solo tienen los procesos reversibles. Es importante enfatizar esta distinción entre las mediciones IRM-DCD las cuales nos da un solo valor mientras que nuestros métodos nos dan una distribución, la diferencia entre tomar el promedio de las distribuciones con el valor de IRM-DCD no es una buena aproximación, ya que estamos viendo diferentes estados en cada uno de los ciclos menores, para ajustar esto es mejor tomar el valor asociado del coeficiente de interacción con el ciclo menor con magnetización

de retorno $m_r = 0$. Esta comparativa ofrece una mejor aproximación ya que ambos procedimientos inician en un mismo estado. Para ver si esto es correcto, se requeriría un análisis más a fondo en las curvas de remanencia teniendo más mediciones fuera de IRM ($m_r = 0$).

La reconstrucción de la iSFD se realiza con diferentes puntos, no como usualmente se realizaba donde se hacía con un solo valor. Los métodos usados en este trabajo no requieren de consideraciones acerca de la forma de la SFD para reconstruir la iSFD, como es requerido en el trabajo de Van de Veerdonk y cols. [72] y Berger y cols. [152]. En estos dos trabajos se enfocan en encontrar los parámetros para que las simulaciones funcionen, y otra cosa es que solo encuentran la iSFD y no el campo de interacción.

En conclusión, se mostraron dos métodos auto consistentes que permiten encontrar la distribución del campo de interacción y la distribución intrínseca del campo de rotación de ciclos menores usando la diferencia entre las áreas. Los métodos son de suma relevancia ya que proveen una mejora en la información del sistema, introducen efectos de dispersión en el campo de interacción y van más allá del campo-medio.

Capítulo 6

Campo de interacción y distribución de campos de rotación a partir de la diferencia de campos necesarios para invertir el mismo número de partículas en el ciclo mayor y FORCs

En este capítulo se presenta un método que se basa en el uso de las derivadas de los ciclos menores en función del campo (dM/dH) para determinar el valor del campo de interacción y el campo coercitivo intrínseco específicos al punto de retorno de dicho ciclo. El método explota puntos de intersección de las derivadas con respecto al campo magnético de la parte descendente así como de la parte ascendente de los ciclos menores. Se proponen dos procedimientos para medir la diferencia en campo entre el caso simétrico (sin interacción) y el caso asimétrico (con interacción). El primer método se basa en el número de partículas que se han invertido al llegar al estado remanente en el ciclo mayor y la diferencia de campo necesaria para invertir el mismo número de partículas durante el retorno de un ciclo menor. El segundo método se basa en la búsqueda del campo magnético necesario para invertir el mismo número de partículas en la parte ascendente del ciclo menor y la parte descendente del ciclo mayor. En cada caso, se plantean las expresiones que permiten asociar esos campos de intersección al campo de interacción y a la coercividad intrínseca del punto de retorno para cada ciclo menor. Por lo que ambos procedimientos permiten obtener el campo de interacción y la coercividad intrínseca punto a punto. Esto es, para cada ciclo menor se determina un valor. Para validar los métodos se han utilizado datos simulados y mediciones realizadas en redes de nanoalambres y los resultados se han comparado entre sí así como con los valores obtenidos por un método independiente basado en las curvas de remanencia. Se muestra que ambos métodos permiten construir una curva de valores del campo de interacción y generar

el segmento de la distribución intrínseca correspondiente a ese ciclo menor. El análisis muestra que ambos métodos proporcionan valores del campo de interacción y de la coercividad intrínseca que concuerdan bien con los valores promedio.

6.1. Planteamiento del método

El estudio de las propiedades magnéticas de un ensamble de partículas emplea tradicionalmente las curvas de magnetización, como es el ciclo de histéresis o bien ciclos menores. Sin embargo, no siempre es fácil identificar cambios o variaciones sutiles de la magnetización ante cambios del campo aplicado, por lo que también es muy frecuente hacer uso de las curvas que se obtienen como las derivadas de la magnetización en función del campo (dM/dH). Estas derivadas se pueden emplear o interpretar de dos formas. La primera es como la susceptibilidad diferencial, lo cual sigue de la definición de la susceptibilidad magnética como $\chi = \delta M / \delta H$. La otra interpretación es para el caso del ciclo mayor de histéresis para el cual la derivada es la distribución de campos de rotación, o bien la SFD. En este caso, la derivada se interpreta como una función de distribución, por lo que su integral (la curva $M(H)$) es la función cumulativa. Por otro lado, las derivadas de un ciclo menor en el cual solo se explora un subconjunto del ensamble, es una SFD truncada.

Para el caso de un ensamble de partículas con interacción, las curvas de magnetización presentan el efecto del sesgo inducido por la interacción, el cual se manifiesta como el cambio en el ancho de la SFD. Por lo que la SFD medida difiere de la iSFD como se ilustra en la figura 6.1. Esto corresponde al problema que nos interesa en esta tesis relacionado a la distribución intrínseca, la iSFD, su relación con la SFD medida en sistemas con interacción y métodos para establecer la relación entre ellas.

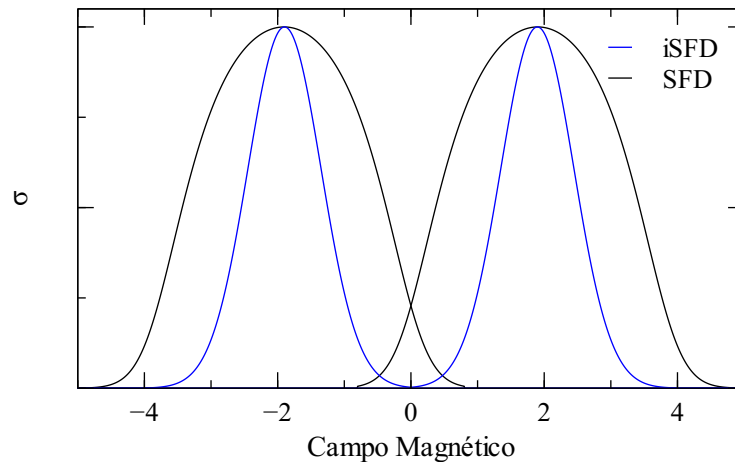


Figura 6.1: Gráficas de la iSFD y la SFD, color azul y negro respectivamente. La SFD en este caso resulta del ensanchamiento de la iSFD que es inducido por el campo de interacción.

Una característica importante es que todo ciclo (mayor o menor) posee una parte descendente y una ascendente, tal que al derivar se obtiene una curva SFD para cada segmento, como se puede observar en la figura 6.1 para el caso del ciclo mayor. Como se puede ver en la figura, al comparar las curvas que siguen de la parte descendente y ascendente, éstas son simétricas. Esta simetría es característica del ciclo mayor y sigue del hecho de que para este ciclo en particular, los puntos extremos son iguales y corresponden al estado saturado. Por el contrario, y como se verá en breve, para los ciclos menores ya no se tiene esa simetría ya que los puntos extremos (el retorno y la saturación) son diferentes. Esta propiedad es justamente la base para los métodos que se proponen a continuación. En particular se han identificado dos formas de aprovechar las asimetrías entre las derivadas de las partes descendentes y ascendentes del ciclo menor para obtener una diferencia de campo magnético que hemos podido relacionar con el campo de interacción y éste a su vez, con la coercividad intrínseca.

6.1.1. Método de punto fijo

Para el primer método, consideremos las derivadas del ciclo de histéresis (ciclo mayor) y las derivadas de la parte ascendente de ciclos menores, tal como se muestra en la figura 6.2 para el caso de datos simulados. En color azul y rojo se muestran las derivadas de la parte descendente (azul) y ascendente (rojo) del ciclo mayor. Como se puede ver, las dos curvas se cruzan en $H = 0$ que es el estado remanente. En términos de la gráficas de la SFD, este punto se relaciona con el número de partículas que han rotado su magnetización antes de llegar al estado remanente.

Sea σ_0 la SFD obtenida de cualquiera de los segmentos del ciclo mayor y σ_i la SFD truncada correspondiente a cualquiera de los segmentos de i -ésimo ciclo menor. Si tomamos como referencia el valor $\sigma_0(H = 0)$ del punto donde se intersectan en $H = 0$ las derivadas de los dos segmentos del ciclo mayor, vemos que las derivadas de la parte ascendente de los ciclos menores alcanzan ese valor para diferentes valores de campo, como lo muestran los círculos mostrados en la figura 6.2. Es decir, para cada ciclo menor se requiere un campo diferente para rotar el mismo número de partículas que las volteadas en el estado remanente del ciclo mayor o bien: $\sigma_0(H = 0) = \sigma_i(H_i)$. Como se puede ver en la figura 6.2, los valores de los campos H_i aumentan mientras más se aleja la magnetización de retorno m_r del valor de saturación $m_s = 1$.

Estas diferencias son resultado del efecto de la interacción y en particular debido a que el campo de interacción característico de cada ciclo menor está definido por $H_{int} = \alpha m_r$. Por lo anterior, vemos que la diferencia de campo magnético entre el punto donde se cruzan las derivadas del ciclo mayor, que como vimos es en $H = 0$; y el punto donde la derivada del retorno del ciclo menor alcanza la misma altura está relacionada con el campo de interacción. La interpretación de esta diferencia de campo es que éste corresponde al campo adicional que es necesario aplicar para invertir la magnetización del mismo número de partículas que

son invertidas cuando se inicia en el estado saturado, es decir, el caso particular en que $m_r = m_s = -1$.

A este método le llamamos el método del punto fijo, ya que las diferencias de campo se miden con respecto a un valor fijo que es la remanencia del ciclo mayor o $\sigma_0(H = 0)$.

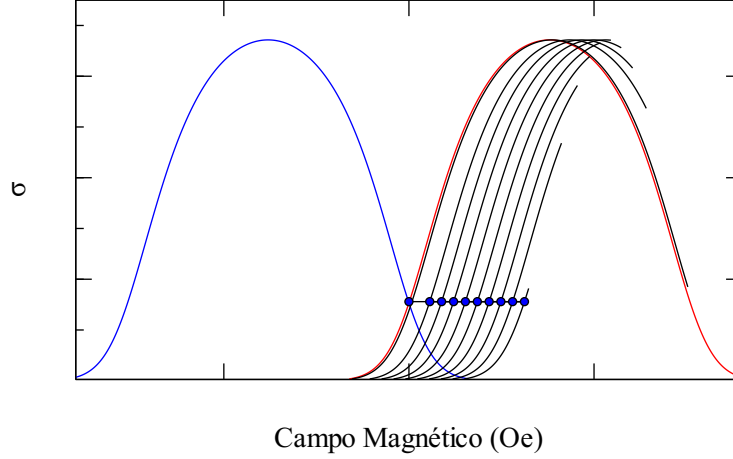


Figura 6.2: Derivadas de magnetización en función del campo. La curva color rojo representa la parte ascendente del ciclo mayor, la curva color azul representa la parte descendente del ciclo mayor, las curvas color negro representan la parte ascendente de los ciclos menores y los puntos azules representan el campo magnético en el cuál rotan el mismo número de partículas en cada ciclo menor.

Para determinar la interacción se definirá el campo total que siente cada partícula como:

$$H_T = H_A + \alpha m. \quad (6.1)$$

Tomando los campos totales para la curva del ciclo mayor y cualesquier otro ciclo menor la ecuación 6.1 se transforma en:

$$H_T^1 = H_A + \alpha m_s, \quad (6.2)$$

$$H_T^2 = H_A + \alpha m_r, \quad (6.3)$$

en donde para el caso del ciclo mayor $m_s = -1$ ya que se normaliza la magnetización. Para cuantificar la interacción se resta la ecuación 6.2 a 6.3 y obtenemos α como:

$$\alpha = \frac{H_T^2 - H_T^1}{1 + m_r}. \quad (6.4)$$

Para el caso particular que se analiza el campo magnético total $H_T^1 = 0$ ya que estamos justo en el punto de magnetización remanente por lo que la ecuación (6.4) se convierte en:

$$\alpha = \frac{H_T^2}{1 + m_r}. \quad (6.5)$$

6.1.2. Método de punto variable

Para este método se propone utilizar las intersecciones que existen de forma natural entre la curva descendente del ciclo mayor y las curvas de retorno (o ascendentes) de los ciclos menores como se ilustra en la figura 6.3. En esta figura, la curva roja representa la parte ascendente del ciclo mayor, la curva azul la parte descendente del ciclo mayor y las curvas negras la parte ascendente de los ciclos menores. Los puntos de intersección entre la parte descendente del ciclo mayor y la parte ascendente de los ciclos menores se identificaron con puntos circulares de color rojo. La intersección ocurre cuando el mismo número de partículas han invertido su magnetización. Podemos ver que la intersección se va moviendo en el eje del campo para los diferentes ciclos menores. Esto se va a relacionar nuevamente con el hecho de que el campo de interacción en la parte ascendente de los ciclos menores es diferente para cada uno ya que depende de m_r , esto es $H_{int} = \alpha m_r$.

Lo que se propone es que el valor del campo al que se da la intersección depende del campo de interacción y por lo tanto, podemos encontrar el valor de este campo.

Este método encuentra el valor del campo magnético para el cuál la cantidad de partículas que rotaron en la parte ascendente del ciclo menor es la misma con respecto a la parte descendente del ciclo mayor.

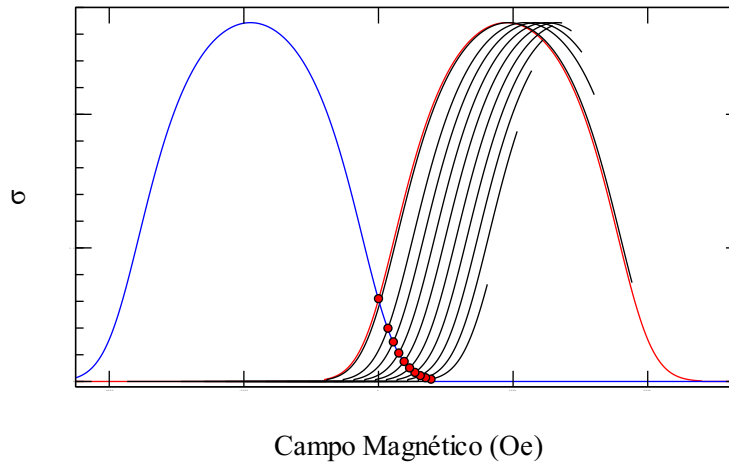


Figura 6.3: Esquema del método de punto variable, la curva color rojo representa la parte ascendente del ciclo mayor, la curva color azul representa la parte descendente del ciclo mayor, las curvas color negro representan la parte ascendente de los ciclos menores y los puntos rojos representan el campo magnético donde se intersecan la curva descendente del ciclo mayor con cada una de la parte ascendente de los ciclos menores.

La metodología a utilizar es igual, salvo que al definir el campo total del ciclo mayor

habrá que hacer una modificación. Definiendo el campo total para el ciclo mayor y cualesquier otro ciclo menor se tiene:

$$H_T^1 = H_A + \alpha m_s, \quad (6.6)$$

$$H_T^2 = H_A + \alpha m_r, \quad (6.7)$$

realizando el mismo procedimiento que en el método pasado se obtiene la ecuación 6.4:

$$\alpha = \frac{H_T^2 - H_T^1}{1 + m_r}, \quad (6.8)$$

la diferencia principal es que el campo $H_T^1 = -H_T^2$ debido a que en este método hacemos la intersección entre la curva descendente, y el análisis de las diferencias es con respecto a la curva ascendente, por lo que como son curvas similares, éstas se mapean como el negativo de la otra. Con esta justificación la ecuación que modela la interacción es:

$$\alpha = \frac{2H_T^2}{1 + m_r}. \quad (6.9)$$

Como vemos, el punto de intersección se va recorriendo para cada ciclo menor, por lo que a este método le hemos llamado el método de punto variable

Para ambos métodos, las intersecciones que empleamos para determinar el campo de interacción quedan definidas por la magnetización de retorno de cada ciclo menor m_{ri} por lo que para cada uno se obtiene un valor del coeficiente del campo de interacción α_i . Por otra parte, tenemos que para cada valor del coeficiente de interacción y el valor de la magnetización de retorno medida, vamos a poder calcular el valor intrínseco del campo coercitivo de la partícula que rota en el punto de retorno. Es decir, al igual que hicimos en el método de las áreas, utilizando los valores individuales del campo de interacción se hará la corrección del sesgo para obtener la iSFD. En efecto, si interpretamos el campo de retorno como el campo coercitivo medido de la partícula, su coercividad intrínseca se obtiene como [79]:

$$H_{c0i} = H_{ri} - \alpha_i m_{ri}. \quad (6.10)$$

6.2. Resultados

En esta sección se validarán los métodos propuestos. Presentamos separado los resultados obtenidos mediante las simulaciones y la parte experimental. Para el primer método

(campo requerido para invertir el mismo número de partículas que las invertidas en el estado remanente del ciclo mayor), la magnitud del campo de interacción sigue a partir de la ecuación (6.5). Para el segundo método (campo al que se invierten el mismo número de partículas) el valor del campo de interacción se obtiene usando la ecuación (6.9). En ambos casos, la distribución del campo de interacción corresponde a la curva $\alpha_i(m_{ri})$.

6.2.1. Distribución del campo de interacción: Simulaciones

Para las simulaciones se han considerado dos casos modelo o casos ideales; para validar la metodologías propuestas. Partiendo de una iSFD gaussiana, los casos fueron: (i) otra con interacción constante ($\alpha = 500$ Oe) y, (ii) el caso de un campo de interacción con dispersión ($\alpha = 700$ Oe, $\beta = 100$ Oe).

Los resultados de la distribución de la interacción para ambos métodos se presentan en la figura 6.4.

Como podemos ver en la figura, para el caso de campo medio, es decir, interacción constante ($\alpha = 500$ Oe), vemos que ambos métodos (M1-Punto Fijo y M2-Punto Variable) mostrados en rojo y azul respectivamente, dan el mismo valor del campo de interacción para todos los ciclos menores. Es decir, en el caso ideal en que el campo de interacción no fluctúa, todos los ciclos menores llevan al mismo valor y no hay diferencias entre los dos métodos. Como se esperaba.

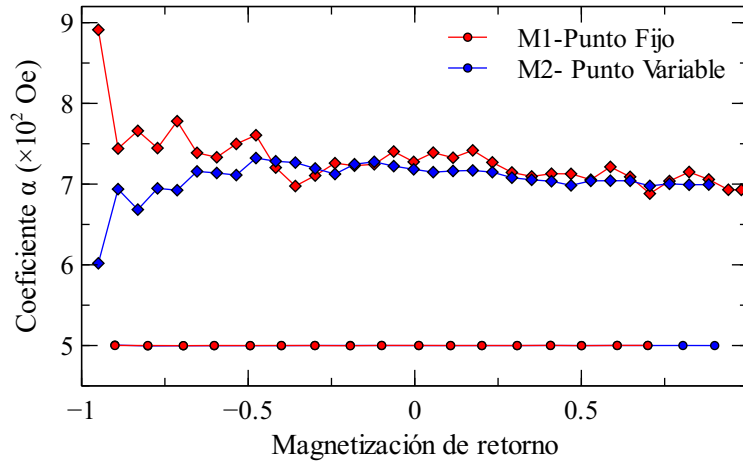


Figura 6.4: La distribución de la interacción se muestra para el caso de interacción fija y con dispersión para ambos métodos, donde el método de punto fijo se identifica con el color rojo y el método de punto variable con color azul.

Para el segundo caso considerado, en el cual se permite que el campo de interacción

fluctuó (ya no es constante), vemos que a diferencia del caso en el que es constante, la distribución obtenida ya no es constante. Claramente los valores obtenidos se mueven en torno al valor promedio (700 Oe) y las desviaciones se hacen más importantes cuando m_r se acerca a -1. Las desviaciones con respecto al valor promedio son diferentes para cada método, pero ninguno se desvía de manera importante salvo cerca de $m_r = -1$.

Las variaciones que resultan del hecho de que el campo de interacción no es constante y fluctuó para cada partícula en el ensamble son las responsables de que la distribución muestra fluctuaciones alrededor del valor promedio. Como ya se ha mencionado, los efectos de la dispersión o fluctuación del campo de interacción son más grandes y evidentes cerca de la saturación, en este caso, cuando m_r se acerca a -1. Esto explica por qué la curva de distribución del campo de interacción se desvía de manera más significativa del valor promedio cerca de $m_r = -1$. Adicionalmente, los campos H_T^2 que usamos para calcular α , ecs. (6.5) y (6.9), decrecen en magnitud conforme el campo de retorno se acerca al campo de interacción y desde luego, se hacen cero para el ciclo mayor. Esto puede llevar a un aumento en el error de medición.

Una vez obtenido el campo de interacción para cada punto m_{ri} se puede usar la ecuación (6.10) para calcular la coercividad intrínseca de ese punto. En la figura 6.5 se muestran las iSFD original (negro) y recalculadas (color) a partir de cada ciclo menor en el caso que la interacción (a) es constante y, (b) fluctúa. Como se puede ver, cada ciclo menor aporta un segmento de la iSFD ya que se trata al calcular las coercividades intrínsecas se obtiene la correspondiente iSFD truncada.

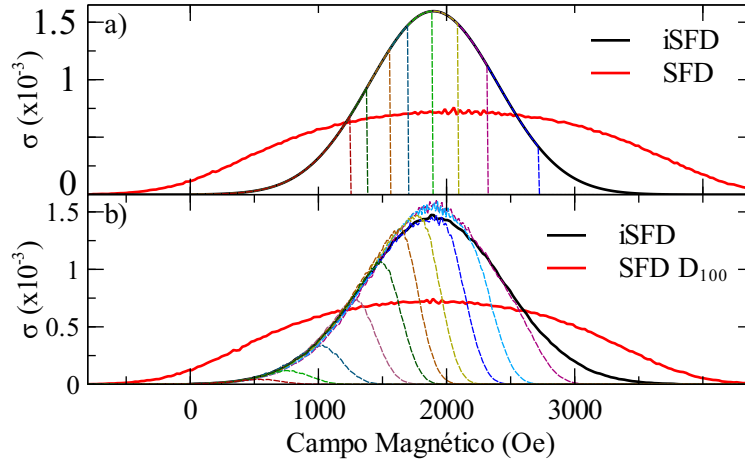


Figura 6.5: Distribución intrínseca de campos de rotación (iSFD) calculada para cada ciclo menor en el caso que la interacción (a) es constante y, (b) fluctúa. Resultados obtenidos por simulación empleando una iSFD gaussiana.

También notamos que al remover la interacción, las iSFDs truncadas se superponen a la iSFD original independientemente de valor del punto de retorno. Esto contrasta con el caso con interacción en el cual para cada curva de la SFD, ésta se desplaza en el eje del

campo y no se superpone a la curva del ciclo mayor, como se observa en la figura 6.3. Como se puede observar para el caso del sistema con interacción fija, el modelo funciona de forma perfecta, ya que las curvas se superponen a la iSFD, mientras que en el caso del sistema con interacción y dispersión el modelo exhibe diferencias muy notorias en la parte descendente pero, en general las curvas en su parte ascendente corresponden a superponerse con la iSFD. Esta diferencia era esperada ya que el modelo solo toma en consideración el campo de interacción mas no así esta fluctuación (dispersión) que es lo que origina que las curvas cierren mientras que el caso de interacción fija no lo hacen (para fines prácticos se dejó la línea que cierra la curva para ilustrar su superposición).

6.2.2. Distribución del campo de interacción: Experimentos

Para el caso de las pruebas experimentales se realizó el análisis en seis muestras y los resultados se muestran en la figura 6.6 para ambos métodos. El método de punto fijo en color negro y en color azul el método del punto variable.

A primera vista podemos notar que, a diferencia de los resultados de la simulación, las distribuciones de campo de interacción que arrojan los dos métodos difieren de manera clara entre sí. Tampoco se puede identificar una tendencia general, es decir, en algunos casos el método del punto fijo da sistemáticamente valores más grande, incisos (a), (b) y (c). Pero en otros casos, no es así. Con la excepción de los casos mostrados en los incisos (a) y (c) donde las dispersiones difieren de manera importante, vemos que en el resto de los casos, incisos (b),(d), (e) y (f), si hay diferencias pero no parecen ser tan significativas. También podemos observar que para todos los casos, las curvas distan de ser constantes (horizontales), pero tampoco se nota una forma o tendencia general de la forma de estas distribuciones. Estas diferencias en los valores que proporciona cada método, así como la notable diferencia en la forma de las curvas, no solo entre los métodos sino también entre distintas muestras, se atribuyen en parte que estos métodos usan (a) las derivadas (numéricas) que son más susceptibles y presentan más ruido y (b) las intersecciones en ambos métodos usan puntos donde las variaciones de m son relativamente bajas y entre más bajas, tiende a bajar la confiabilidad. Finalmente es de notar que con respecto al valor promedio del campo de interacción obtenido a partir de las curvas de remanencia (línea horizontal roja), vemos que prácticamente en todos los casos los resultados obtenidos por ambos métodos muestran un acuerdo razonable y en algunos casos, incisos (b), (d) y (e), el acuerdo es mejor.

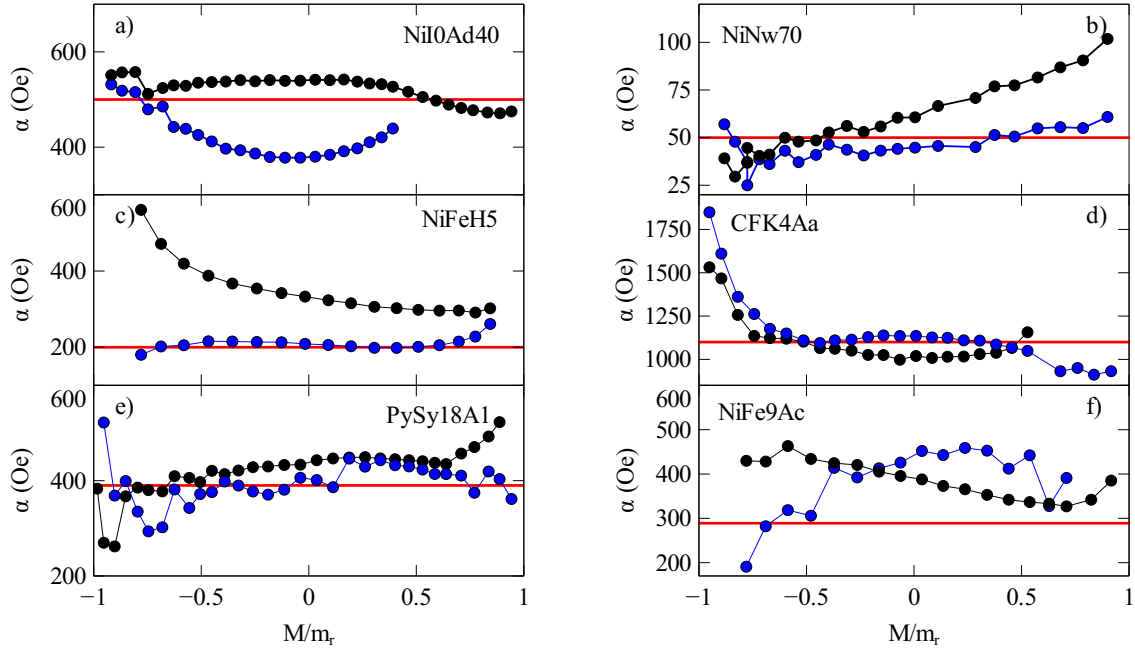


Figura 6.6: Distribución del campo de interacción para a) NiI0Ad40, b) NiNw70, c) NiFeH5, d) CFK4Aa, e) PySy18A1 y e) NiFe9Ac con ambos métodos, el método de punto fijo en color negro y en color azul el método del punto variable.

Uno de los puntos importantes que hay que destacar de estos métodos es que el campo de interacción, como ya se mencionó, corresponde al punto específico (al valor específico de m) del cruce de las curvas. Para el método del punto fijo es relativo al valor de m en la remanencia del ciclo mayor, mientras que en el método del punto variable es específico al punto para el cual se alcanza el mismo estado m . Esto difiere de otros métodos para los cuales el coeficiente de campo de interacción puntual o individual se relaciona con el punto de retorno m_r . Claramente, la distribución puede incluir más puntos si se miden más ciclos menores. Adicionalmente vemos que estos dos métodos permiten también usar el conjunto de datos correspondientes a las mediciones de las curvas FORC. En efecto, si la última curva FORC se aproxima de manera confiable a la curva del ciclo mayor, entonces es posible usar esa curva como su equivalente y de ahí se pueden obtener todos los puntos de intersección empleados en los dos métodos.

De manera adicional, y como se hizo en el capítulo anterior, aprovechamos el hecho de que se determinó la distribución del campo de interacción para sacar el valor promedio y su desviación estándar. El cuadro 6.1 compara los valores promedio del campo de interacción obtenido a partir de las curvas de remanencia, α_0 , por el método del punto fijo, $\langle\alpha_f\rangle$ y, por método del punto variable, $\langle\alpha_v\rangle$. También se incluye el promedio único de todos los puntos arrojados por ambos métodos, $\langle\alpha_{vf}\rangle$.

	Muestra	Interacción (Oe)			
		α_0	$\langle\alpha_f\rangle$	$\langle\alpha_v\rangle$	$\langle\alpha_{vf}\rangle$
1	Ni0Ad40	500	523(± 26)	426(± 49)	483(± 61)
2	NiNw70	50	60(± 19)	45(± 8)	48(± 16)
3	NiFeH5	210	351(± 73)	210(± 17)	280(± 89)
4	CFK4Aa	1100	1109(± 144)	1150(± 202)	1131(± 177)
5	PySy18A1	390	419.5(± 53)	399(± 44)	406(± 50)
6	NiFe9Ac	283	386(± 42)	382(± 76)	384(± 60)

Cuadro 6.1: Comparación del valor promedio del campo de interacción, α , obtenido a partir de las curvas de remanencia, α_0 , por el método del punto fijo, $\langle\alpha_f\rangle$ y, por método del punto variable, $\langle\alpha_v\rangle$. Así mismo se incluye el promedio único de todos los puntos arrojados por ambos métodos, $\langle\alpha_{vf}\rangle$.

Revisando los datos, vemos que para las muestras 1-3, incisos (a)-(c) si hay diferencias claras entre los valores promedio $\langle\alpha_f\rangle$ y $\langle\alpha_v\rangle$, pero estos valores quedan alrededor del valor obtenido a partir de las curvas de remanencia. Por el contrario, para las muestras 4-6, incisos (d)-(f), los valores de $\langle\alpha_f\rangle$ y $\langle\alpha_v\rangle$ son parecidos y estos a su vez coinciden bien con α_0 , salvo por la muestra 6. Cuando analizamos el promedio de todos los datos obtenidos con los dos métodos y el valor promedio obtenido con las curvas de remanencia, $\langle\alpha_{vf}\rangle$ y α_0 , vemos un muy buen acuerdo para las muestras 1,2, 4, y 5; mientras que para las muestras 3 y 6 el acuerdo es menos bueno. Este promedio combinado tiene la ventaja de incluir el total de los puntos.

6.2.3. Distribución intrínseca del campo de rotación: Experimentos

Una vez que se ha obtenido la distribución del campo de interacción y su(s) valor(es) promedio, estos datos se han utilizado para realizar la corrección del sesgo a fin de obtener la iSFD. Nuevamente, consideramos que en estos sistemas de nanoalambres no hay efectos colectivos y por lo tanto (i) el campo de interacción no modifica los modos de rotación de la magnetización y solo los corre en campo y por lo tanto, (b) la corrección del sesgo sigue la expresión en la que los campos aplicados y de interacción simplemente se superponen, en este caso la ecuación (6.10).

La corrección se ha realizado *punto a punto*, es decir, corrigiendo los ciclos menores uno a uno usando el valor del campo de interacción obtenido con ese ciclo. De manera adicional, comparamos con la envolvente o la curva total que se ha obtenido usando el valor promedio del campo de interacción obtenido usando las curvas de remanencia y los resultados se mues-

tran en la figura 6.7 para tres de las muestras analizadas (cuadro 6.1). La figura muestra las derivadas, es decir, las distribuciones de la SFD medida (azul), la iSFD (línea punteada roja) obtenida con la corrección del valor promedio (IRM-DCD) y las distribuciones obtenidas de los ciclos menores luego de realizar la corrección usando los datos del campo de interacción que se obtuvieron por el método del punto fijo (línea negra).

Como se puede ver en la figura 6.7, de manera general se observa que las derivadas de los ciclos menores corregidos presentan una evolución coherente y el conjunto va delimitando la iSFD. Salvo para el primer caso, muestra Ni0Ad40, donde la línea punteada roja está claramente recorrida con respecto al conjunto de curvas de los ciclos menores, para el resto vemos que la línea punteada envuelve bien a las curvas de los ciclos menores. Este es el comportamiento esperado. También para las muestras NiNw70 y NiFeH5, vemos como se reduce el ancho de la distribución entre la medida y la corregida. Para el caso de la muestra NiFeH5 vemos que la SFD medida es de manera clara bimodal y esto claramente persiste en la iSFD y en los ciclos menores. Nuevamente, esto es importante ya que a diferencia de otros métodos reportados para obtener la iSFD, se requiere adivinar o suponer la forma funcional de la distribución. Aquí, para nuestro método no es necesario hacer ninguna suposición sobre la iSFD.

6.3. Discusión y Conclusiones

Se han identificado y propuesto dos métodos que permiten obtener el campo de interacción en un ciclo menor. Los métodos que llamamos del punto fijo y del punto variable miden asimetrías en campo inducidas por el campo de interacción a partir de puntos de referencia que se definen como intersecciones de las derivadas del ciclo mayor y los ciclos menores. Se han propuesto las expresiones que relacionan el campo de interacción con campos medibles asociados a los puntos de cruce. Los métodos han sido validados usando simulaciones así como datos experimentales obtenidos en redes de nanoalambres. Los campos de interacción que se determinan están asociados a los puntos de intersección empleados y no al punto de retorno, lo cual es una variante con respecto a otros métodos y que da información complementaria para interpretar las distribuciones del campo de interacción. Con los valores del campo de interacción obtenidos por ambos métodos para un conjunto de ciclos menores se ha visto que los valores si difieren de un método a otro, a veces poco y otras veces de manera más importante. En promedio los valores obtenidos muestran un buen acuerdo con los obtenidos usando las curvas de remanencia. Es decir, los resultados son aceptables, pero es necesario usar todos los datos de ambos métodos para el análisis. Al realizar las correcciones del sesgo, también se han obtenidos resultados favorables para la iSFD obtenida.

Los métodos propuestos se validaron con simulaciones obteniendo la distribución de interacción y recuperando la iSFD. Una vez que se realiza las metodologías en muestras

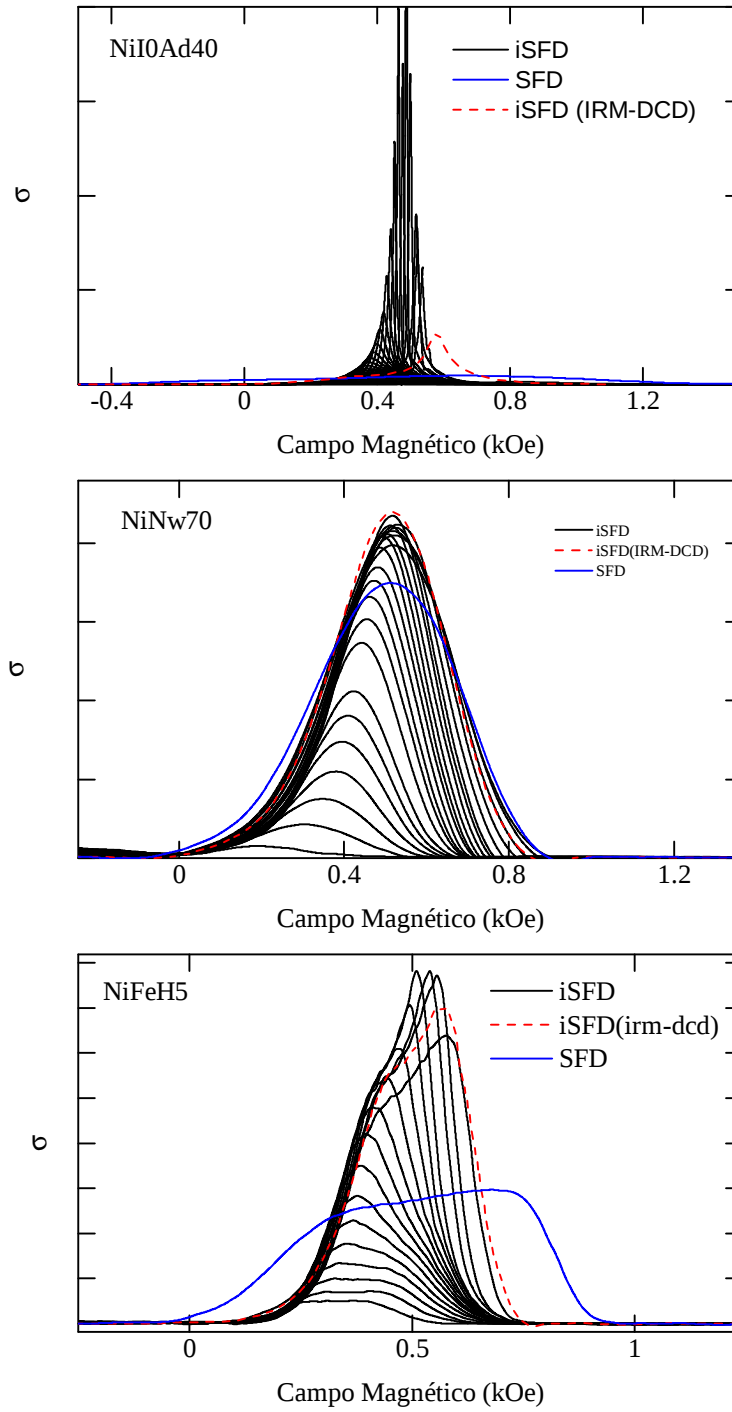


Figura 6.7: Comparación de las derivadas denominadas SFD, iSFD con método punto fijo y el obtenido por IRM-DCD para las muestras NiIOAd40, NiNw70, y NiFeH5. La SFD está identificada por el color azul, la iSFD por el método de punto fijo es línea continua negra, y la línea punteada roja para la iSFD con el valor promedio obtenido por la metodología IRM-DCD.

experimentales, se observa un poco las limitantes de cada método, por ejemplo para el caso del método de punto fijo se pierde información de ciertos ciclos menores que no alcanza su SFD a estar al valor que se requiere, por lo que dicho método es para muestras donde la remanencia sea muy alta; para el caso del método de punto variable éste problema no ocurre ya que se asegura que siempre habrá el cruce para cualesquier ciclo menor, pero ya que el valor en la SFD donde ocurren estos cruces es prácticamente en una zona donde el ruido es demasiado se dificulta la determinación de este cruce de forma precisa o certera, por lo que éste método es ideal para sistemas donde la remanencia no es tan alta.

El método del uso de derivadas es un método en el cual vamos más allá del campo medio pero sigue siendo discreto a comparación del método de FORCs, lo cual se podría resolver al aumentar el número de ciclos menores o FORCs pero no es altamente recomendable debido a la cercanía de las curvas y el ruido que se tenga en ellas podría ser caótico o problemático a la hora de implementar las intersecciones.

Capítulo 7

Aprovechamiento de las curvas FORC para obtener la distribución del campo de interacción y la distribución intrínseca de campos de rotación

En este capítulo presentamos un método que elimina la dependencia de los puntos de las curvas descendentes y por lo tanto puede emplear directamente los datos obtenidos del protocolo de medición de las curvas FORC. Es decir, el método usa solamente curvas de retorno para encontrar las distribuciones del campo de interacción así como la intrínseca de campos de rotación.

7.1. Antecedentes y bases del método

Como parte del proyecto de tesis de maestría se desarrolló un método que en su momento llamamos el *método de corrimiento*, del cual vamos a retomar aquí algunos puntos, la exposición completa del método y su validación se pueden consultar en el documento de la tesis.

El método explota la propiedad de rotación secuencial en orden creciente de campo de rotación para identificar los campos de rotación descendente y ascendente de cada punto que interviene en un ciclo menor. A partir de estos dos valores de campo que son medidos, se mostró que es posible obtener el campo de interacción y la coercividad intrínseca correspon-

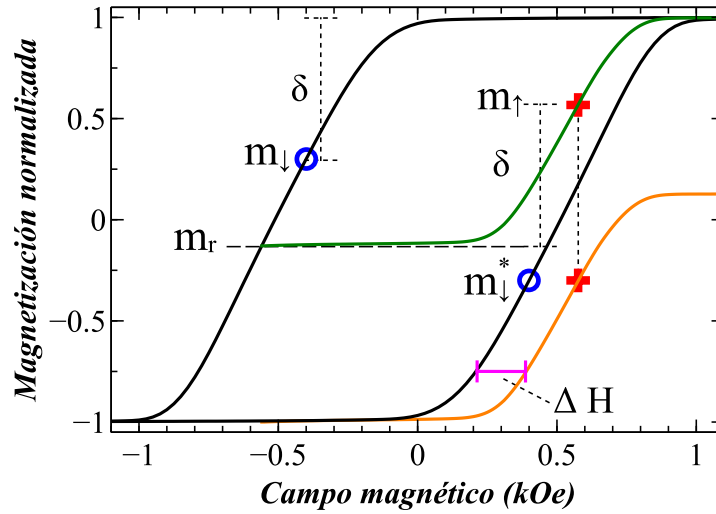


Figura 7.1: Ciclo mayor y ciclo menor donde se indica un punto en parte descendente y la posición de ese mismo punto en la parte ascendente.

diente a ese punto.

Consideremos el ciclo mayor y un ciclo menor, como el que se muestra a manera de ejemplo en la figura 7.1. El método se basa en tomar un punto arbitrario en la parte descendente del ciclo menor (que coincide con el ciclo mayor), al cual le corresponde una ordenada $m_{\downarrow}$ y el cual se muestra con un círculo azul en la figura. Para este punto se debe de ubicar su posición en el retorno del ciclo menor partiendo de la rotación secuencial en orden creciente de campo de rotación para identificar el punto, el cual se muestra con una cruz roja en la figura.

Es fácil ver que la distancia entre el estado saturado, $m_s = 1$, y el punto, $m_{\downarrow}$, es $\delta = 1 - m_{\downarrow}$. De manera que la ubicación de ese punto en el retorno del ciclo menor, $m_{\uparrow}$, está a una distancia δ a partir de m_r , como se indica en la figura 7.1. Los valores de campo asociados a estos puntos, $H_{\downarrow}$ y $H_{\uparrow}$ corresponden a los campos coercitivos del histerón asociado a ese punto. Por lo que estos dos valores de campo se pueden relacionar con el campo de interacción y la coercividad intrínseca el punto en cuestión.

El método que se había propuesto y validado anteriormente hace una transformación de corrimiento vertical del retorno del ciclo menor para hacer más fácil la identificación de puntos y la extracción de las coordenadas correspondientes. En particular, el retorno del ciclo menor es desplazado de manera que el punto de retorno coincida con la saturación negativa, esto equivale a recorrer verticalmente la curva por una cantidad $d_m = 1 + m_r$. En particular, si llamamos m_0 a la curva original (medida) y m a la curva recorrida, la transformación de corrimiento a realizar en cada curva FORC es,

$$m = m_0 - (1 + m_r). \quad (7.1)$$

Al hacer esta transformación, el retorno del ciclo menor parte de $m = -1$ y dado que la parte ascendente del ciclo mayor es simétrica con respecto a la parte descendente, vemos que ahora el i -ésimo punto que rota sobre el ciclo mayor corresponde al punto a la misma altura (m) en el retorno del ciclo menor recorrido. Estos puntos se muestran como el círculo azul etiquetado $m_{\downarrow}^*$ en el ciclo mayor y con una cruz roja en el retorno del ciclo menor recorrido. Entonces, para cualquier punto m podemos tirar una línea horizontal y el problema se reduce a los campos que definen el ΔH a ese valor de m , como se muestra en la figura 7.1.

A partir de aquí, el trabajo previo se centró en establecer las ecuaciones que permiten relacionar ΔH con el campo de interacción y la coercividad intrínseca. Sin embargo, una propiedad importante del método es que necesita la curva descendente, ya sea que sea del ciclo mayor o bien de los ciclos menores. Esto es porque se requiere para determinar el campo $H \downarrow$.

Para el presente trabajo nos planteamos el problema de buscar extender el método para establecer una variante que no requiera de ninguna curva descendente y que solo haga uso de las curvas de retorno o FORCs. La motivación para interesarnos en explorar esta idea es que actualmente los diagramas FORC son muy empleados y el protocolo de medición normalmente no incluye el registro de las curvas descendentes ni del ciclo mayor. Por lo que se presenta como una opción interesante el de contar con un método que aproveche las mediciones FORC para obtener las distribuciones de interacción y la iSFD.

7.2. Planteamiento del método

Empezamos por definir las coordenadas del i -ésimo punto que rota de positivo a negativo en la parte descendente es $(m_i^{\downarrow}, H_i^{\downarrow})$ y para la rotación de negativo a positivo en el retorno tenemos $(m_i^{\uparrow}, H_i^{\uparrow})$. Por otra parte, las coercividades intrínsecas en la parte descendente y ascendente son $h_i^{\downarrow}$ y $h_i^{\uparrow}$, respectivamente y que además cumplen que $h_i^{\downarrow} = -h_i^{\uparrow}$.

$$H_i^{\downarrow} = h_i^{\downarrow} + \alpha_i m_i^{\downarrow}, \quad (7.2)$$

$$H_i^{\uparrow} = h_i^{\uparrow} + \alpha_i m_i^{\uparrow}. \quad (7.3)$$

Sumando las ecuaciones y resolviendo para el campo de interacción y con $h_i^{\downarrow} = -h_i^{\uparrow}$, tenemos que,

$$\alpha_i = \frac{H_i^{\downarrow} + H_i^{\uparrow}}{m_i^{\downarrow} + m_i^{\uparrow}}. \quad (7.4)$$

Esta expresión requiere conocer los valores de $m_i^{\downarrow}$ y $m_i^{\uparrow}$. Todavía es posible hacer una sim-

plificación si nos fijamos en la figura 7.1 que:

$$m_i^\downarrow = 1 - \delta, \quad (7.5)$$

$$m_i^\uparrow = m_r + \delta, \quad (7.6)$$

sustituyendo, llegamos a la siguiente expresión para el coeficiente del campo de interacción que solo depende del valor de la magnetización de retorno m_r que define cada FORC,

$$\alpha_i = \frac{H_i^\downarrow + H_i^\uparrow}{1 + m_r}. \quad (7.7)$$

A partir de la ecuación (7.7) es posible determinar el i -ésimo valor del campo de interacción α_i para cada coordenada $(H_i^\downarrow, H_i^\uparrow)$.

Como se mencionó antes, la parte descendente del ciclo menor corresponde a al segmento del ciclo mayor que inicia en la saturación positiva y termina en el campo de retorno. Si llamamos H_{0i} la i -ésima coordenada en campo del ciclo mayor, entonces $H_i^\downarrow = H_{0i}$. Si observamos nuevamente en la figura 7.1, nos interesa utilizar los puntos en la parte ascendente del ciclo mayor en lugar de los puntos de la parte descendente. Es decir, queremos usar el punto $(m_{\downarrow i}^*, -H_{0i})$ en lugar del punto $(m_{\downarrow i}, H_{0i})$ con lo que la ec. (7.7) se puede escribir como:

$$\alpha_i = \frac{H_i^\uparrow - H_{0i}}{1 + m_r}, \quad (7.8)$$

donde ya se incorporó el cambio de signo en H_{0i} .

Habiendo establecido la expresión para calcular el campo de interacción α_i usando el ciclo menor recorrido a $m = -1$ y la parte ascendente del ciclo mayor, la idea es comparar horizontalmente, es decir, sobre el eje de campo, los campos H_i, H_j a los que rota una partícula (o el punto) arbitraria con magnetización m_k . Tenemos que para el elemento m_k tenemos asociadas las siguientes cantidades:

$$m_k \rightarrow \{H_0, H_k, \alpha_k, h_k\}_{m_r} \quad (7.9)$$

Esto es, a un valor dado en el eje M , digamos m_k podemos medir el campo H_0 sobre el ciclo mayor y el correspondiente campo H_k sobre el ciclo menor transformado. A partir de estos valores, se debe encontrar el campo de interacción que hizo asimétrico el ciclo menor (α_k), donde estamos suponiendo que para cada valor de m tenemos un α así como el coercitivo intrínseco de m_k (h_k). Y desde luego, esto es para un ciclo menor arbitrario caracterizado por el valor de la magnetización de retorno m_r .

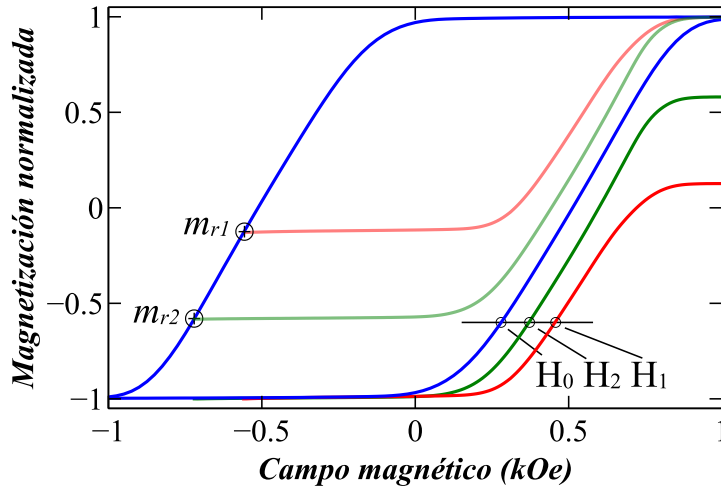


Figura 7.2: Ciclo mayor y dos retornos de ciclos menores, originales y recorridos, con magnetización de retorno m_{r1} y m_{r2} . Se indican los tres valores de campo para una misma magnetización, H_0, H_1 y H_2 .

Esto aplica para todo punto m_k para el cual se pueda trazar una recta horizontal y que intersectan a ambas curvas. Entonces para cada punto en el ciclo menor m_k se debe encontrar (α_k, h_k) y para un ciclo menor que contenga N puntos se debe obtener una matriz de puntos

$$\begin{pmatrix} m_1 & H_{01} & H_1 & \alpha_1 & h_1 \\ m_2 & H_{02} & H_2 & \alpha_2 & h_2 \\ m_3 & H_{03} & H_3 & \alpha_3 & h_3 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ m_N & H_{0N} & H_N & \alpha_N & h_N \end{pmatrix}_{m_r} \quad (7.10)$$

De esta matriz de datos obtenida para cada ciclo menor nos interesan las gráficas de α_i vs m_i así como m_i vs h_i . La primera corresponde a la distribución del campo de interacción contra magnetización y la segunda al fragmento del ciclo mayor intrínseco magnetización contra campo asociado al ciclo menor específico.

La idea es usar la Eq. (7.8) y eliminar la dependencia en el ciclo mayor, que en este caso corresponde a H_{0i} .

Consideremos el ciclo mayor y dos retornos de ciclos menores cualesquiera, como los mostrados en la figura 7.2. Nos fijamos en un valor de m y sea H_0 el campo del punto m sobre la parte ascendente del ciclo mayor y sean H_1 el campo correspondiente a ese valor de m en el retorno del ciclo menor que inicio en m_{r1} . Para el segundo ciclo menor, tenemos H_2

y m_{r2} . Escribimos la Eq. (7.8) para cada caso:

$$\alpha + \alpha m_{r1} = H_1 - H_0, \quad (7.11)$$

$$\alpha + \alpha m_{r2} = H_2 - H_0, \quad (7.12)$$

multiplicando la primera ecuación por -1 y sumando obtenemos:

$$\alpha = \frac{H_2 - H_1}{m_{r2} - m_{r1}}. \quad (7.13)$$

Aclarando que α es constante o es el mismo valor, para un valor dado de m . De un ciclo al otro lo que cambia es el factor $(1 - m_r)$ el valor del campo para m en el FORC.

Esta implica un par de ciclos menores, pero se vale para cualquier par, sean i, j este par, entonces

$$\alpha_k = \frac{H_j - H_i}{m_{rj} - m_{ri}}. \quad (7.14)$$

Nótese que esta expresión no depende del ciclo mayor y todos los datos provienen de los retornos de los ciclos menores, es decir de los FORCs. Como solo implica pares de curvas, entonces se pueden hacer todas las combinaciones de pares en el conjunto de FORCs disponibles. Si por ejemplo tenemos cuatro FORCs, 1, 2, 3 y 4, podemos usar la Eq. (7.8) usando combinaciones 1-2, 1-3, 1-4, 2-3, 2-4 y 3-4.

La ecuación (7.14) proporciona al valor de α_k asociado al punto m_k para dos FORC i, j .

Para obtener la coercividad intrínseca, usamos la corrección del sesgo en la aproximación sin efectos colectivos. Es este caso todos los campos se suman y podemos usar la ec. (7.3) para calcular la coercividad intrínseca asociada al punto m_k , es decir $h_k^\uparrow$, como

$$h_k^\uparrow = H_k^\uparrow - \alpha_k m_k. \quad (7.15)$$

Se debe notar que esta ecuación es válida para una curva de retorno, incluyendo el caso particular del ciclo mayor. Recordemos que cuando no hay interacción todas las curvas FORC deben coincidir con el ciclo mayor por la condición de simetría de los histeriones. Cuando hay interacción cada curva FORC se desplaza en una cantidad que es diferente ya que está directamente relacionada con el producto αm_r . Si nos fijamos en la línea horizontal y sus tres valores de campo (H_0, H_1, H_2) mostrados en la figura 7.2, estos deberían coincidir cuando no hay interacción. Es decir, todos los ciclos a un mismo valor de magnetización tienen el mismo campo coercitivo intrínseco.

Como se ha indicado, una vez que se tienen las curvas FORC recorridas a $m = -1$, la ecuación (7.14) puede proporcionar un valor de α_k a partir de cualquier par de FORCs

tomados al mismo valor de m_k . Por lo tanto, si contamos con n curvas FORC a un valor de m_k , el número de valores de α_k que se pueden obtener es igual al número de combinaciones de 2 tomados en n , es decir:

$$C_2^n = \frac{n!}{2(n-2)!} = \frac{n(n-1)}{2}. \quad (7.16)$$

Claramente esto lleva a un conjunto muy grande de datos. Si tenemos, por ejemplo, 20 FORCs esto genera 190 valores de α para cada valor de m . Si usamos 100 valores diferentes de m , tendríamos al final un total de 19000 valores de α .

A continuación presentamos los resultados obtenidos usando simulaciones así como datos experimentales obtenidos usando redes de nanoalambres.

7.3. Resultados

7.3.1. Distribución del campo de interacción: Simulaciones

Para validar la metodología propuesta se requiere analizar el caso ideal, por lo que se han utilizado datos simulados. La simulación considera el caso ideal de un ensamble de partículas biestables, tipo Stoner-Wohlfarth, cuya iSFD es una distribución normal.

Para ejemplificar cómo funciona el método empezamos por considerar el caso sin interacción y con un campo de interacción constante (campo medio) que no presenta dispersión. La figura 7.3 muestra la gráfica de los FORCs transformados usando la ecuación (7.1) para el caso (a) sin interacción y (b) con una interacción constante de $\alpha = 500$ Oe. Todas las curvas son curvas ascendentes y las flechas indican el sentido de la variación del campo y se incluye la parte ascendente del ciclo mayor como referencia.

Para el caso sin interacción, figura 7.3 (a), vemos que los FORCs transformados se superponen a una misma curva que corresponde al ciclo mayor. Es decir, al realizar la transformación todos los FORCs coinciden con el ciclo mayor. Esto es lo que se espera ya que, como se ha mencionado, al no haber interacción los ciclos menores deben ser simétricos. por lo que los recorridos de la parte ascendente deben coincidir con la parte descendente del ciclo mayor y de los correspondientes ciclos menores. Para el caso con interacción, figura 7.3 (b), se observa que ahora los FORCs recorridos ya no se superponen a una sola curva (el ciclo mayor) si no que cada FORC esta recorrido horizontalmente por una cantidad diferente. Este resultado muestra que al haber interacción los ciclos menores ya no son simétricos. La asimetría varía y es diferente para cada FORC ya que cada uno tiene diferente magnetización

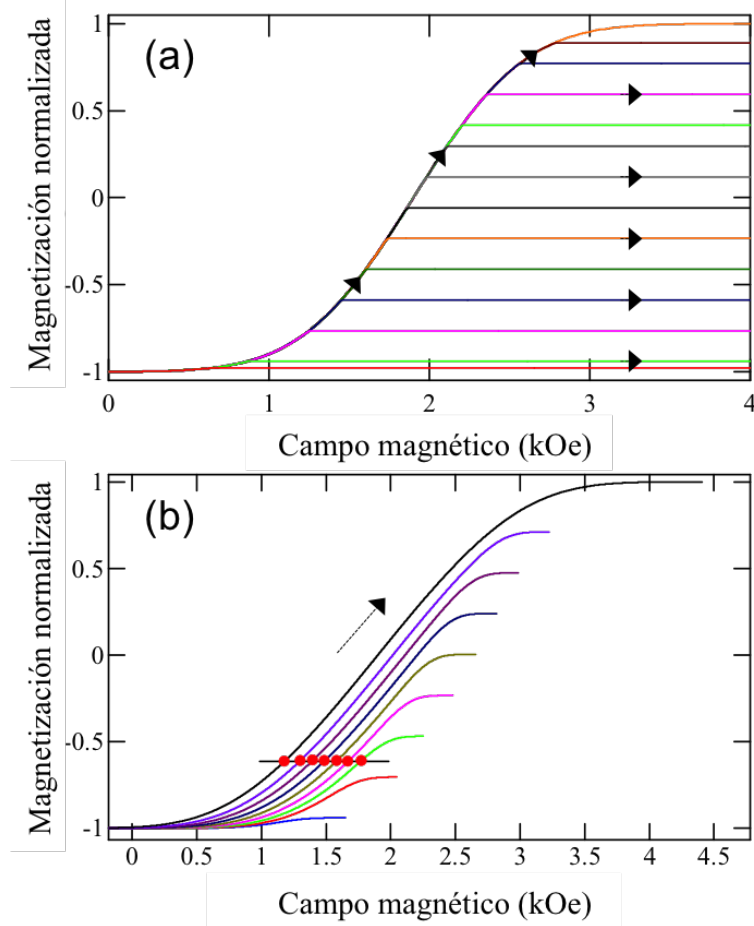


Figura 7.3: FORCs transformados usando la ecuación (7.1) para el caso (a) sin interacción y (b) con una interacción constante de $\alpha = 500$ Oe. Todas las curvas son cuevas ascendentes y las flechas indican el sentido de la variación del campo y se incluye la parte ascendente del ciclo mayor como referencia.

de retorno y campo de interacción, $H_{int} = \alpha m_r$. En la figura también se muestra un corte horizontal y los puntos de corte en cada FORC, a partir de donde se obtienen los valores de campo respectivos requeridos en la ecuación (7.14) para calcular α_k .

Como podemos ver para el caso sin interacción, figura 7.4, las curvas obtenidas coinciden con el valor esperado, en este caso cero. Se perciben algunos puntos que salen del cero, pero estos son artefactos numéricos de la simulación que se presentan en el primer y último punto del arreglo de datos. Por su parte, para el caso con interacción mostrado en la figura 7.4, el resultado es una recta horizontal centrada en el valor correspondiente del campo de interacción constante de $\alpha = 500$ Oe que se eligió. Aclaramos que para el cálculo se omitieron los datos correspondientes al ciclo mayor.

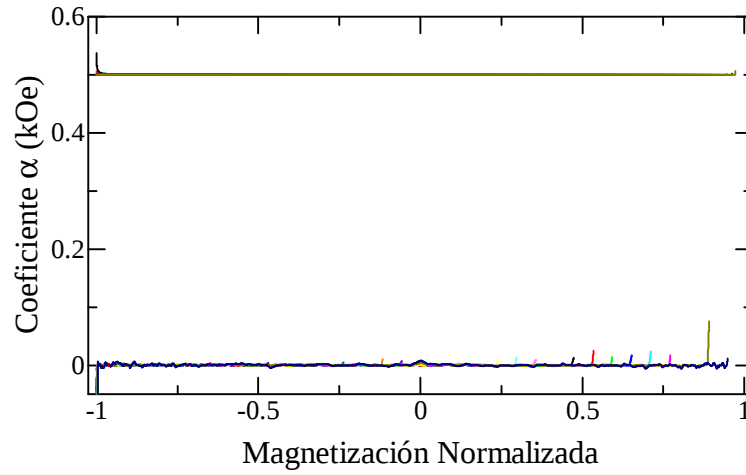


Figura 7.4: Distribución de la interacción para el caso de no interacción y el de interacción con un valor $\alpha = 500$ Oe.

A continuación, el tercer caso simulado se basa en la misma distribución intrínseca y se agrega la interacción pero permitiendo ahora que la magnitud del campo de interacción fluctúe alrededor de su valor promedio de 400 Oe; esto con el fin de tomar en cuenta la dispersión del campo de interacción. Teniendo en cuenta que el método funciona para el caso ideal es importante analizar el caso con interacción fluctuante o variable. El resultado obtenido se muestra en la figura 7.5, donde se observa que la distribución ya no es una horizontal si no que se obtiene una curva que fluctúa alrededor del valor fijo, que para este caso fue $\alpha = 400$. También podemos ver que para los puntos finales de las curvas, éstas divergen. Este efecto proviene de la curvatura que aparece en la llegada a la saturación debido a la dispersión del campo de interacción y por lo tanto, la magnitud de este efecto depende de que tan grandes son las fluctuaciones. Este punto será retomado a continuación cuando se discutan los datos experimentales.

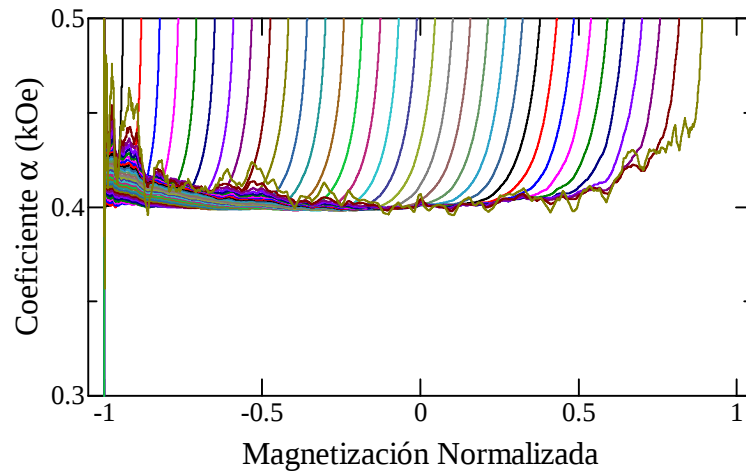


Figura 7.5: Distribución de la interacción para el caso simulado con interacción y dispersión en este valor.

7.3.2. Distribución del campo de interacción: experimentos

Una vez que el método ha sido probado con simulaciones y funcionando de una forma correcta, se pasa a analizar muestras experimentales.

Como primer punto es importante revisar como lucen los datos experimentales cuando se usan los datos obtenidos del protocolo FORC del magnetómetro y cuando se mide un conjunto de ciclos menores.

La figura 7.6 (a) muestra las curvas FORC obtenidas con el protocolo para medir curvas FORC que tiene el software de fabrica que controla el magnetómetro. Como referencia se ha incluido el ciclo mayor, que como se ha indicado se debe medir aparte ya que el protocolo de medición FORC no lo hace. Las curvas FORC han sido desplazadas usando la ec. (7.1) y los datos obtenidos se muestran en color rojo. Como podemos ver, el protocolo FORC incluye la medición de muchas curvas FORC individuales, en este caso del orden de 100. Por lo que se obtiene mucha información. Comparemos estos datos con los obtenidos midiendo un conjunto de n ciclos menores y utilizando las respectivas partes ascendentes para hacer la transformación de corrimiento. En la figura 7.6 (b) se muestran el ciclo mayor, la parte ascendente de 20 ciclos menores y las respectivas curvas ascendentes recorridas (colores variados). Como podemos ver hay similitudes y claras diferencias entre los datos que se generan entre un protocolo y otro. Ya que las curvas FORC y la parte ascendente de un ciclo menor corresponden a lo mismo, notamos que el protocolo FORC implica un mayor número de curvas. Pero esto es por factores incluidos en el software que hacen más prácticas algunas mediciones con respecto a otras. Sin embargo, la diferencia más notable es con los datos recorridos. Si comparamos los datos recorridos que se obtienen del protocolo FORC y de los ciclos menores, figura 7.6 (a) y (b) respectivamente, vemos que para el protocolo FORC los datos no tienen la misma extensión hacia campos altos (de saturación) y de hecho es claro que el campo máximo en cada curva de retorno es diferente. Esto no es el caso en los ciclos menores para los cuales vemos que el campo máximo en todas las curvas es el mismo. Otro detalle importante es que como se puede ver para los FORCs, los puntos recorridos no cubren todo el rango de magnetización normalizada. En efecto, como se puede ver, la nube de datos corregidos cubre desde $m = -1$ hasta algo cercano a $m = 0,6$, dejando toda una zona sin datos. Esto claramente no ocurre con los ciclos menores, figura 7.6 (b), donde vemos que se cubre todo el rango de m .

A partir de estas características vemos que los datos obtenidos por el protocolo de medición FORC si tienen detalles que se deben cuidar. Entre ellos el hecho de que no se cubre todo el rango de magnetización. Sin embargo, este detalle no acarrea consecuencias ya que se cuenta con un número muy elevado de curvas y por lo tanto de puntos que son útiles. Estas características de los datos obtenidos usando el protocolo FORC incluido en el software, resulta de hacer las mediciones menos tardadas y evitando incluir demasiados datos que no aportan mucha información en los diagramas FORC. En este sentido, la necesidad de variar

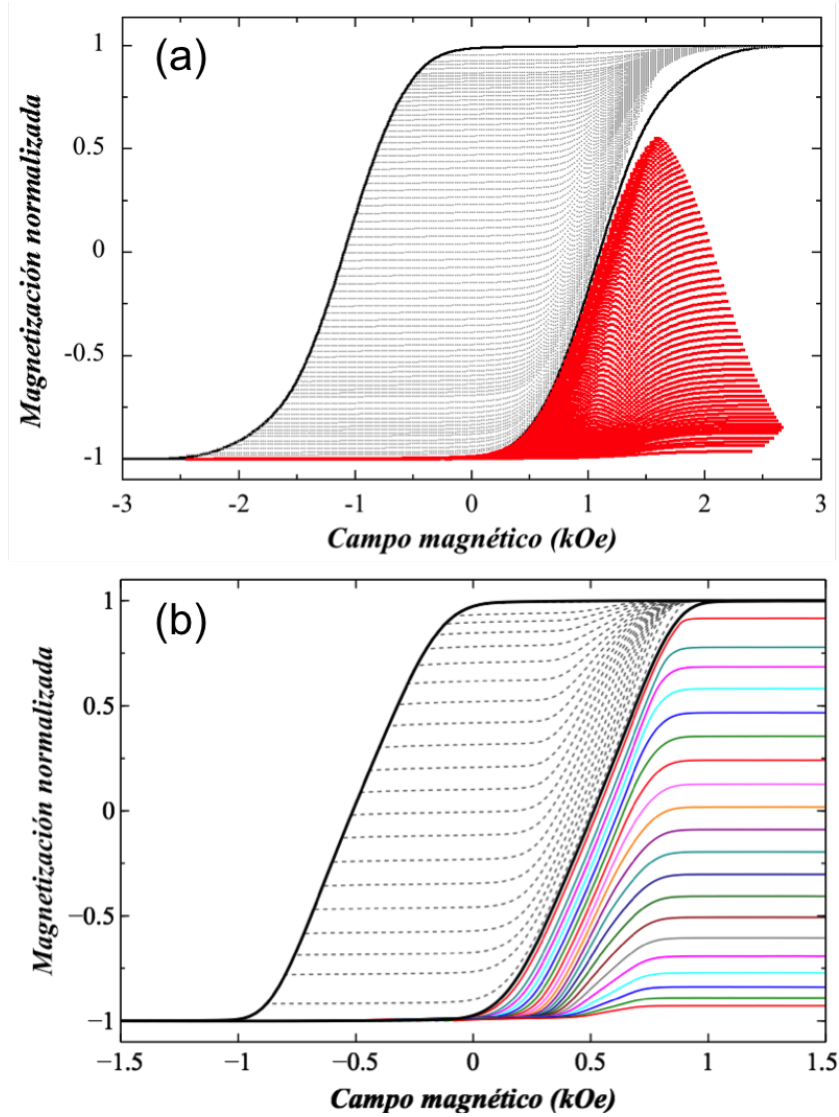


Figura 7.6: (a) Ciclo mayor, curvas FORC y curvas FORC recorridas (rojo), (b) Ciclo mayor, parte ascendente de ciclos menores y las curvas ascendentes recorridas (colores).

la densidad de datos medidos ha sido un tema discutido en la literatura [153, 154]. Por lo que se han establecido protocolos en los que para ahorrar tiempo y número de datos registrados, se hacen mediciones limitadas a ciertas zonas que se sabe son las que más información aportan a los diagramas FORC. Como consecuencia, vemos en la figura 7.6 (a) que la extensión en magnetización y campo de cada curva FORC varía. Pero es importante enfatizar que esto viene del protocolo implementado en el magnetómetro por el fabricante. Esto se puede evitar si se programa manualmente el protocolo, que es básicamente el caso que se muestra en la figura 7.6 (b) para los ciclos menores.

A continuación utilizamos las curvas de retorno mostradas en la figura 7.6 (b) para obtener manualmente los datos y mostrar el uso del método con un ejemplo específico. En la

figura 7.7 se muestran las curvas de retorno recorridas. Aquí vemos que las curvas obtenidas para valores de la magnetización de retorno cercanos a la saturación positiva no son útiles para usarse con el método. En efecto, como ‘podemos ver en la parte inferior derecha de la gráfica, estas curvas (líneas punteadas) no tienen segmentos que sean aprovechables, casi toda la curva contiene los dos segmentos con curvatura. Por lo anterior, estas curvas no se han utilizado y nos limitamos a un intervalo más reducido, en este caso y como se indica en la figura se usaron los retornos obtenidos en el intervalo $[-0.918, 0.405]$ para la magnetización de retorno. En la figura podemos ver las curvas que se han utilizado, adicionalmente se ha usado un mallado de 0.05 en el eje m para obtener los puntos de cruce, los cuales se muestran con círculos negros.

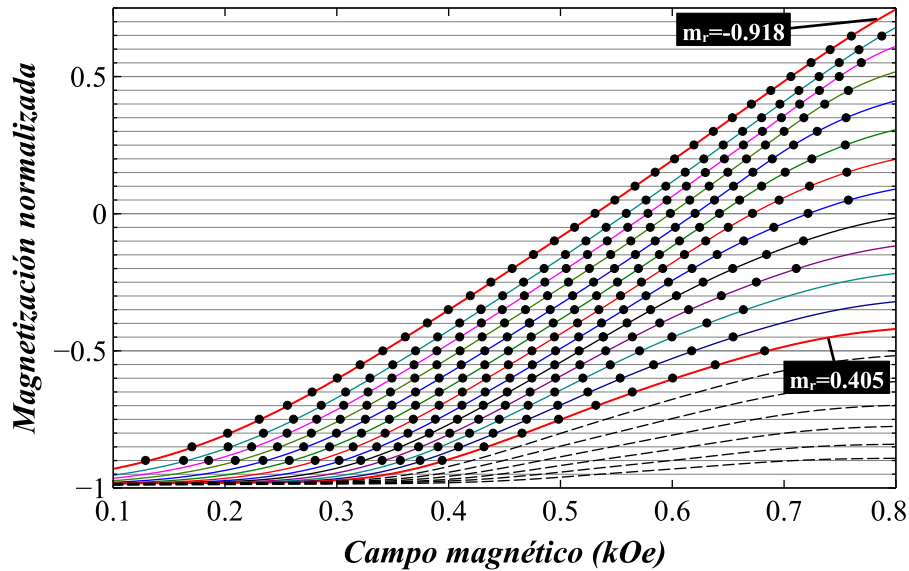


Figura 7.7: Curvas de retorno recorridas y puntos para valores constantes de magnetización. Las curvas retenidas para el análisis se muestran en color, mientras que aquellas descartadas se muestran con líneas punteadas.

Como se puede ver, para cada valor de m tenemos un conjunto de puntos de cruce asociados a cada curva de retorno. Con ayuda de un programa se obtuvieron las coordenadas de todas las intersecciones mostradas como puntos negros en la figura.

Para obtener los valores del campo de interacción usamos la ecuación (7.14) que relaciona los campos de dos curvas de retorno en el mismo valor de m y los valores de las magnetizaciones de retorno de las dos curvas en cuestión. En la práctica y como ya se ha mencionado, el método permite obtener un valor del campo de interacción para cada combinación de dos puntos. Entonces se ha procedido a calcular el valor del campo de interacción para todas las combinaciones de dos a partir de todos los puntos obtenidos para cada valor diferente de m . Así por ejemplo, en $m = 0,45$ tenemos 4 puntos que da un total de 6 combinaciones de 2, mientras que en $m = -0,9$ tenemos 13 puntos que da un total de 78 combinaciones diferentes

de 2. En total se obtuvieron 279 puntos de las curvas (puntos negros).

Agrupando estos 279 puntos en sus respectivos valores de m y calculando el campo de interacción para todas las combinaciones, se obtiene un conjunto de valores C_2^n (combinaciones de dos en n) para ese valor de m . Esto permite graficar todos los valores obtenidos del campo de interacción para cada valor diferente de m , tal y como se muestra en la figura 7.8 (a).

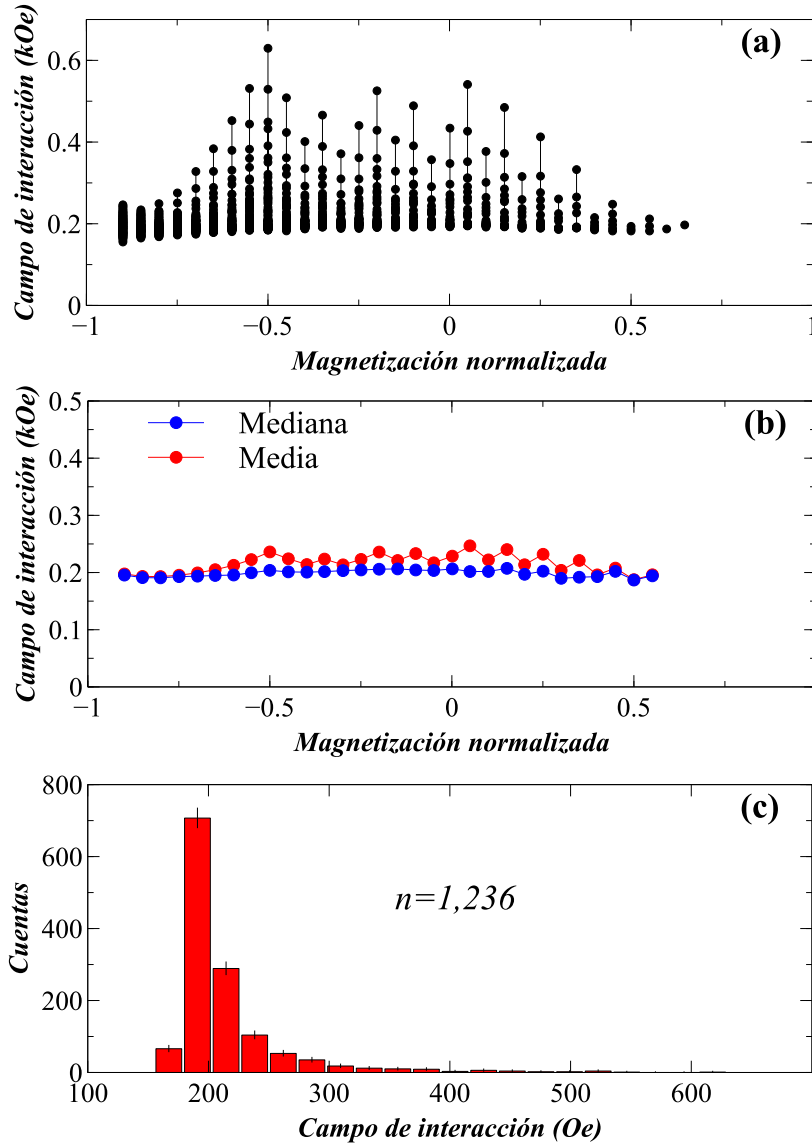


Figura 7.8: (a) (b) Mediana y media del conjunto de valores del campo de interacción obtenido para cada valor de m y, (c) histograma de valores del campo de interacción usando los $n= 1,326$ valores obtenidos, para los cuales la mediana es de 199 Oe y el promedio (media) es de 215 Oe.

Aquí podemos ver que para cada valor de m se obtiene un conjunto de valores, el cual como vemos es muy cerrado en unos casos y en otros es más abierto. Sin embargo vemos que las variaciones importantes siempre son hacia valores más altos y no para valores más bajos. De hecho la curva parece estar bien limitada o definida en su parte baja. El origen de estas variaciones hacia valores más altos está relacionadas con la curvatura de las curvas de retorno cuando tienden hacia su valor máximo de magnetización. En la figura 7.7 podemos notar claramente como en algunas curvas, los puntos de cruce en valores altos de campo magnético se distancian más de los puntos anteriores debido a la curvatura del FORC. La inclusión o exclusión de estos puntos es a criterio del usuario. Aquí se han dejado algunos puntos con el fin de mostrar este efecto. Más aun, esta curvatura depende de la dispersión del campo de interacción que es diferente para cada muestra.

Sin embargo, la ventaja de contar con tantos puntos es que se puede hacer la estadística. Como primer ejemplo, se ha calculado la mediana y la media para el conjunto de valores del campo de interacción obtenido para cada valor de m y los resultados se muestran en la figura 7.8 (b). Como podemos ver, los valores de mediana y media son muy parecidos. Sobre el total de puntos, vemos que la mediana tiene un comportamiento más constante, mientras que el promedio o la media, se mueve un poco más, pero sin presentar diferencias muy importantes. Más aún, vemos que los puntos donde la diferencia es mayor coinciden con los valores de m para los cuales el conjunto de datos presenta mayor variación (figura 7.8 (a)).

Finalmente, el conjunto de todas las combinaciones produjo un total de 1326 valores del campo de interacción a partir de 13 curvas FORC, para los cuales se ha elaborado su respectivo histograma, el cual se muestra en la figura 7.8 (c). Podemos ver que el grueso de los puntos está acumulados en la vecindad de 200 Oe. De hecho, la mediana de estos puntos es de 199 Oe y la media es de 215 Oe. Esto concuerda muy bien con los valores del campo de interacción promedio obtenidos usando los métodos de:

- las curvas IRM y DCD donde $\langle \alpha \rangle = 210$ Oe.
- las áreas del ciclo menor donde $\langle \alpha_{M1} \rangle = 228$ Oe y $\langle \alpha_{M2} \rangle = 234$ Oe.
- las intersecciones de las derivadas de los ciclos menores donde $\langle \alpha_f \rangle = 210$ Oe y $\langle \alpha_v \rangle = 280$ Oe.

Los resultados obtenidos sugieren que el método funciona bien y proporciona valores correctos para el campo de interacción. Aquí es necesario volver a enfatizar que los valores se han obtenido sin hacer uso de ninguna curva descendente de algún ciclo menor o del ciclo mayor, se han usado solamente puntos contenidos en las curvas FORC. También hay que aclarar que la cantidad o número de puntos obtenidos (valores de α) puede aumentar tomando más valores de m . Aquí y para el ejemplo que desarrollamos se ha tomado $\delta m = 0,05$, pero este intervalo puede ser menor para incluir más valores de m . Alternativamente, también se puede aumentar el número de curvas de retorno.

Un detalle importante y nada despreciable del método es que los datos que se buscan son valores de campo a un valor dado de magnetización. En efecto, esto se puede ver por ejemplo en las figuras 7.2 y 7.3 (b). El problema es que los datos experimentales se obtienen como valores medidos de magnetización en función del campo, es decir, se mide $m(H)$ pero necesitamos la función inversa, es decir $H(m) = [m(H)]^{-1}$.

En la práctica, y dado que son datos medidos y discretos, hay varias opciones para trabajar con los datos. La primera, y que se usó para desarrollar el ejemplo anterior, es usando un software que permita extraer coordenadas a partir de una imagen o gráfica. Otra alternativa más deseable es llevando a cabo un proceso de interpolación de los datos. Mediante algoritmos de interpolación se pueden generar de manera controlada arreglos de datos en la forma requerida y donde además se puede ajustar la cantidad de datos. Muchos graficadores incluyen la función para interpolar datos, pero se debe probar y verificar que funcionan correctamente y que no se introduzcan errores ni se pierda información. Alternativamente, pero no se ha hecho en el presente trabajo, se pueden desarrollar programas de procesamiento de imágenes para encontrar las coordenadas de las intersecciones. En cualquier caso, hay que prestar atención y probar con cuidado el procedimiento numérico que se elija, pues se trata de un conjunto grande de datos que va a generar como resultado otro conjunto con un número mayor de datos.

En nuestro caso, se ha realizado la interpolación de las curvas de retorno y a partir de estas se han obtenido las curvas de campo de interacción contra magnetización.

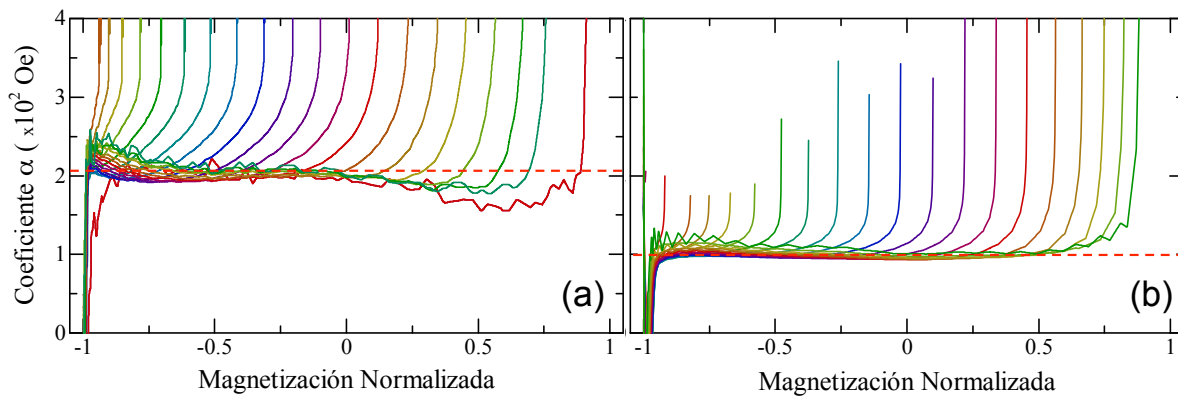


Figura 7.9: Distribución de la interacción para las muestras experimentales a) de NiFe con un diámetro de 50 nm y $P=4.5\%$ y b) la muestra de NiFe de 100 nm de diámetro y $P=0.2\%$. Las líneas rojas punteadas corresponden al valor promedio del campo de interacción obtenido con las curvas de remanencia.

La figura 7.9 muestra los resultados experimentales de las curvas de interacción obtenidas a partir del corrimiento de las curvas FORC en nanoalambres de NiFe (a) con diámetro de 50 nm y $P=4.5\%$ y b) con diámetro de 100 nm y $P=0.2\%$. En estos casos se usaron

mediciones de ciclos menores programados manualmente. Como referencia, las líneas rojas punteadas corresponden al valor promedio del campo de interacción obtenido con las curvas de remanencia IRM y DCD.

En ambas figuras podemos notar que las curvas presentan características generales comunes. Por ejemplo para cada ciclo menor la curva inicia sobre el valor esperado del campo de interacción y luego muestra un comportamiento divergente hacia la parte final de la curva y que corresponde a la llegada a la saturación donde la curvatura es importante. Esto es similar a lo que se ha indicado anteriormente. Según el punto de la magnetización de retorno, vemos que para aquellos valores cercanos a la saturación positiva, la curva aporta menos puntos ya que hay menos puntos que participan en el recorrido. Por el contrario, conforme la magnetización de retorno se acerca a la saturación negativa, las curvas obtenidas contienen más puntos. Claramente se puede ver que si quitamos las partes divergentes de las curvas, nos quedamos con curvas de interacción casi horizontales y que se van acumulando en promedio alrededor del valor del campo de interacción del sistema. En efecto, el caso mostrado en (a) es el mismo que se trató manualmente y cuyos resultados se muestran en las figuras 7.6 (b), 7.7 y 7.8. Para este caso vemos que las curvas de interacción se acumulan en la vecindad de los 200 Oe, lo que es consistente con los resultados obtenidos para esta muestra usando el enfoque manual así como con los valores que arrojan los otros métodos discutidos en los capítulos anteriores. Por su parte, el caso mostrado en el inciso (b) corresponde al mostrado en la figura 5.6 (a) y para el cual el valor del campo de interacción obtenido por el método de las áreas está en la vecindad del 100 Oe, mientras que el valor obtenido con las curvas IRM y DCD es de 95 Oe, que coinciden muy bien con los presentes resultados.

Es importante mencionar nuevamente que lo que se obtiene es el $\alpha_k(m_k)$. Es decir, el campo de interacción obtenido no está asociado al punto de retorno, si no al valor de m para el cual se determinaron los cruces y se calcularon los diferentes α . Queda para discutir en base a los resultados anteriores, si conviene más usar la mediana o la media como mejor valor de la tendencia central.

Finalmente, del ejemplo analizado es claro que solo un cierto número de curvas FORC, rangos de puntos de retorno y valores finales de cada FORC son de utilidad y es necesario descartar datos o segmentos que no aportan información o bien claramente aumentan la dispersión de los datos obtenidos.

7.3.3. Distribución intrínseca de campos de rotación

En la sección pasada se obtuvieron las distribuciones del campo de interacción tanto simuladas como experimentales. Ahora vamos a analizar la parte complementaria que corresponde a la reconstrucción de la iSFD a partir de las curvas medidas. Como ya se mencionó,

se usará el procedimiento normal de la corrección del sesgo que implica que no hay efectos colectivos. En ese caso, se usa la ecuación (7.15) para obtener la coercividad intrínseca punto a punto.

Empecemos por el caso simulado sin interacción y con interacción y el caso con dispersión, a partir de estos resultados se obtiene la distribución intrínseca de campo de rotación para cada caso, con la ecuación (7.15). Es importante remarcar que en el caso sin interacción la SFD corresponde a ser la iSFD.

Para ver si se puede determinar la distribución intrínseca de campos de rotación se utiliza la curva de histéresis del caso no interactuante, donde su distribución de campos de rotación corresponde a la iSFD, en la figura (7.10) se puede observar que los puntos de la SFD obtenida a partir del caso con interacción se sobrepone con la distribución intrínseca de campos de rotación por lo que de aquí se puede decir que es posible recuperar la curva intrínseca para el caso ideal.

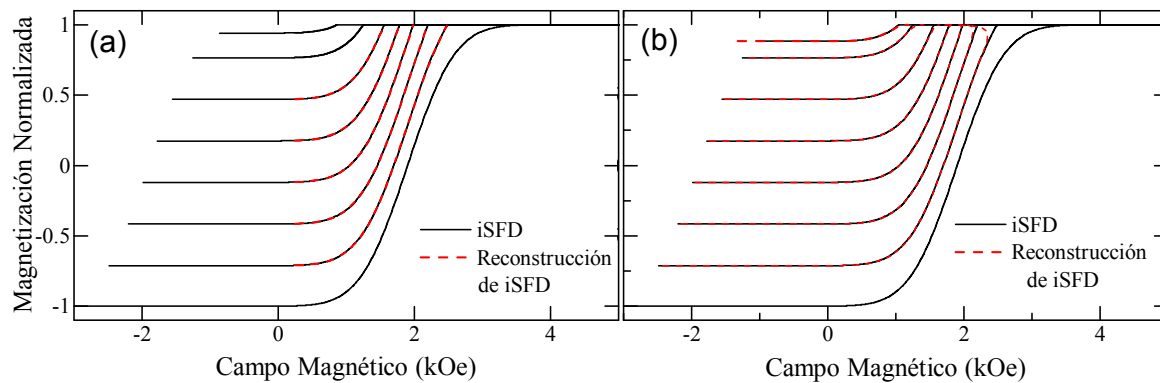


Figura 7.10: La curva con línea continua color negro representa los FORCs sin interacción, los puntos rojos representan la iSFD reconstruida a partir del método. (a) Muestra con interacción constante y (b) muestra con interacción fluctuante.

Como era de esperarse, vemos que los datos reconstruidos o las curvas con la corrección del sesgo, coinciden perfectamente con las curvas originales. El único detalle es que podemos ver en el caso en el que fluctúa el campo de interacción, figura 7.10 (b), se nota que la curva en su llegada a la saturación presenta una curvatura. Esto coincide con los efectos que resultan por la dispersión del campo de interacción cerca del estado saturado.

De manera complementaria se realizó el mismo análisis para dos muestras experimentales. La figura 7.11 muestra los resultados de las curvas de magnetización después de realizar la corrección del sesgo y (en rojo) como referencia se muestran curvas de magnetización medidas. Los datos corresponden a muestras de nanoalambres de NiFe (a) con diámetro de 50 nm y $P=4.5\%$ y b) con diámetro de 100 nm y $P=0.2\%$ y se han obtenido utilizando los datos del campo de interacción mostrados en la figura 7.9.

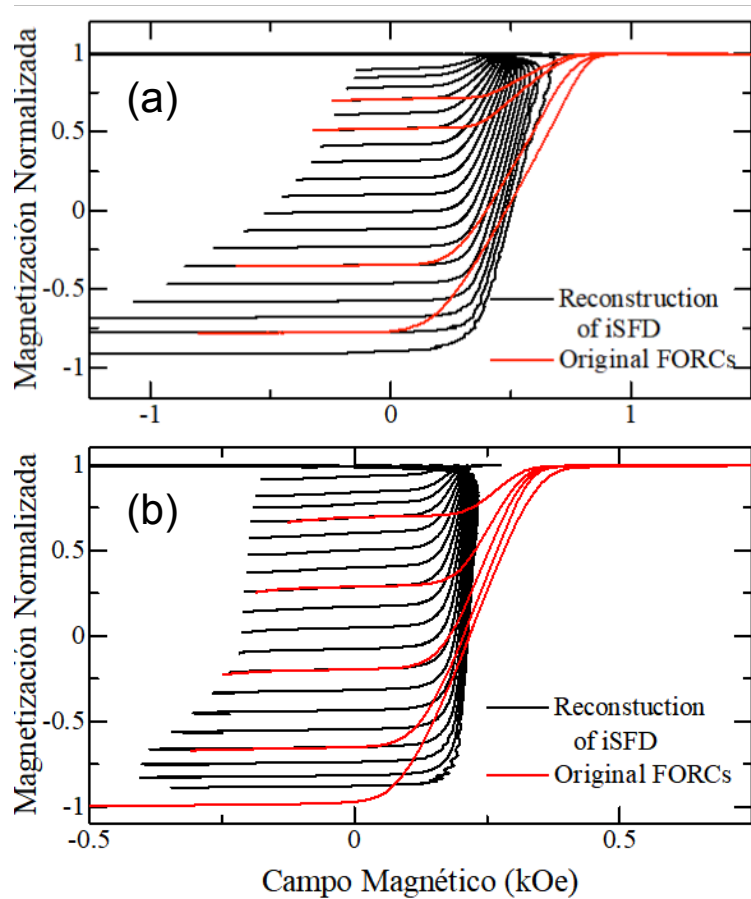


Figura 7.11: Comparativa de la distribución de campos de rotación para (a) la muestra de NiFe con un diámetro de 50 nm y $P=4.5\%$ y (b) la muestra de NiFe de 100 nm de diámetro y $P=0.2\%$ con la distribución intrínseca de campos de rotación obtenidos por las curvas de remanencia IRM-DCD

7.4. Discusión y Conclusiones

El método propuesto se validó utilizando simulaciones para tres casos como casos modelos, teniendo el caso sin interacción, el caso con interacción fija y el caso con interacción y dispersión. El primer y segundo caso se utilizaron como caso modelo, el cual no corresponde a lo que pasa en curvas experimentales pero nos indicó que el método tiene una buena aplicabilidad y los requerimientos para realizarlo son mínimos. El tercer caso, se asemeja más a mediciones experimentales, y con ello podemos observar similitudes al ver los resultados y poder inferir un poco más allá de solo la interacción. Si bien la diferencia radica en la curvatura que se observa en la zona cerca a la saturación, los resultados de la distribución del campo de interacción son muy diferentes solo por este pequeño cambio, además que con esto se puede comprobar que la interacción bajo la suposición que es mayoritariamente del tipo

dipolo-dipolo no es fija, sino que fluctúa o en ocasiones es mayor a la que se reporta con metodologías como las curvas de desmagnetización isotérmicas (IRM) y de desmagnetización (DCD).

Un aspecto a mencionar es que la metodología concuerda de forma excelente al recuperar la información intrínseca del sistema, en este caso la distribución intrínseca del campo de rotación para el caso de interacción fija. Una vez que existe dispersión el método empieza a presentar errores cerca de la zona de saturación como se observa en las figuras 7.10 y 7.11. Es importante mencionar que este error sólo se presenta en esta zona y en valores de magnetización normalizada menores a 0.8 la metodología concuerda muy bien.

Si bien el uso de FORCs es muy utilizado, no se tiene una metodología bien establecida para cuantificar de forma correcta el campo de interacción, con lo que con el presente trabajo se promueve el uso de una metodología sencilla y robusta en términos de que se encuentra una distribución del campo de interacción, y no solo un valor promedio como se ha trabajado hasta ahora.

Capítulo 8

Método de la distribución intrínseca a partir de la diferencia entre los campos de saturación y retorno de un ciclo menor

En este capítulo se presenta y valida un método que lleva a la determinación de la distribución intrínseca del campo de rotación así como del campo de interacción presente en el sistema utilizando los puntos extremos de un ciclo menor y que corresponden también a los puntos que limitan el inicio y término de la curva de retorno del ciclo menor. El método parte de una metodología planteada por Hinata y colaboradores [155] en el cual proponen que es posible determinar la SFD utilizando los valores de las coordenadas de retorno y saturación de un campo menor. En su trabajo, determinan una SFD que ellos llaman la SFD efectiva, la cual, como se muestra más adelante, no corresponde a la intrínseca. Adicionalmente, su método no considera determinar el valor del campo de interacción. Lo que llama la atención del método es que la SFD efectiva es una curva (o función) que se obtiene sin realizar una operación sobre la SFD medida, lo cual es diferente a todos los métodos que se han publicado y aquellos desarrollados en este trabajo. En particular, la función o curva SFD efectiva se obtiene como la gráfica de la magnetización de retorno en función del campo de saturación obtenidas en los diferentes ciclos menores. Es decir, solo requiere datos que se obtienen directamente de la medición, sin necesidad de realizar alguna transformación. Esta propiedad aunado al hecho de que en su publicación, Hinata y cols. [155] no identifican o proporcionan una interpretación de la SFD efectiva y su relación con el campo de interacción y con la iSFD intrínseca, ha motivado el presente estudio.

El método que se propone aquí toma la idea principal de enfoque empleado por Hinata y colaboradores [155] usando los puntos extremos de la curva de retorno del ciclo menor y considerando además que no hay efectos colectivos y que el campo de interacción es solo aditivo. Sobre esta base, se ha demostrado que la curva que Hinata y colaboradores [155]

llaman la SFD efectiva, corresponde a la distribución intrínseca desplazada en el eje del campo por el campo de interacción. Interpretando la diferencia entre los campos de retorno (su valor absoluto) y de saturación como resultado de la asimetría inducida por el campo de interacción, se ha podido establecer una metodología que permite determinar el campo de interacción y el campo coercitivo intrínseco específico al punto de retorno del ciclo menor. Por lo que el método permite obtener la interacción y la iSFD punto a punto. Finalmente es importante aclarar que el método original es para medio de grabado perpendicular en el cual no se puede descartar un campo de interacción tipo intercambio. En nuestro caso, aunque solo se han realizado simulaciones, se basa en un sistema modelo donde las partículas no se tocan y no hay interacciones de intercambio.

8.1. Antecedentes: el método H_s^{menor}

En un trabajo publicado por Hinata y col. inicialmente en 2011 [155] y posteriormente en 2012 [156], proponen una metodología para obtener la distribución efectiva del campo de rotación utilizando el campo de saturación de los ciclos menores. Por la importancia que tomará la nomenclatura más adelante, conviene ver el título de la publicación en inglés: *Effective switching field distribution evaluation using saturation field in minor loop* [155]. Lo que llama la atención es la llamada SFD efectiva, ya que como hemos visto se tienen bien identificadas y definidas las SFD medida e intrínseca. Por lo que la apelación de *efectiva* es claramente otra SFD.

En este trabajo los autores se enfocan en materiales para grabado magnético perpendicular. Estas son películas delgadas con estructura en columnas, donde idealmente las columnas están mayoritariamente aisladas y no tienen contacto entre ellas. Su motivación es la que ya se ha mencionado anteriormente: es necesario contar con métodos para medir el ancho de la SFD ya que este es una medida de la calidad del medio de grabado magnético. En su análisis ellos reconocen que la última partícula que rota su magnetización al llegar al punto de retorno del ciclo menor es también la última partícula que rota para llegar al estado saturado, como se ilustra en la figura 8.1. Partiendo de ahí, los autores realizan un análisis micro magnético en el cual buscan relacionar el campo de rotación intrínseco (H_{sw}^{int}) con lo que ellos llaman el campo interno que incluye efectos desmagnetizantes ($N_z M_s$), interacciones dipolares ($NM - N_z M_s$) y de intercambio (H_{ex}). En particular, ellos escriben para el punto de retorno (H_{ret}, M_{ret}):

$$-H_{sw}^{int} = -H_{ret} - N_z M_s - (NM_{ret} - N_z M_s) + H_{ex}. \quad (8.1)$$

Mientras que para el estado saturado escriben,

$$H_{sw}^{int} = H_s^{menor} - (4\pi M_s - N_z M_s) + N_z M_s + H_{ex}. \quad (8.2)$$

Ellos identifican el factor $4\pi M_s$ como el campo desmagnetizante de la película, el cual restan

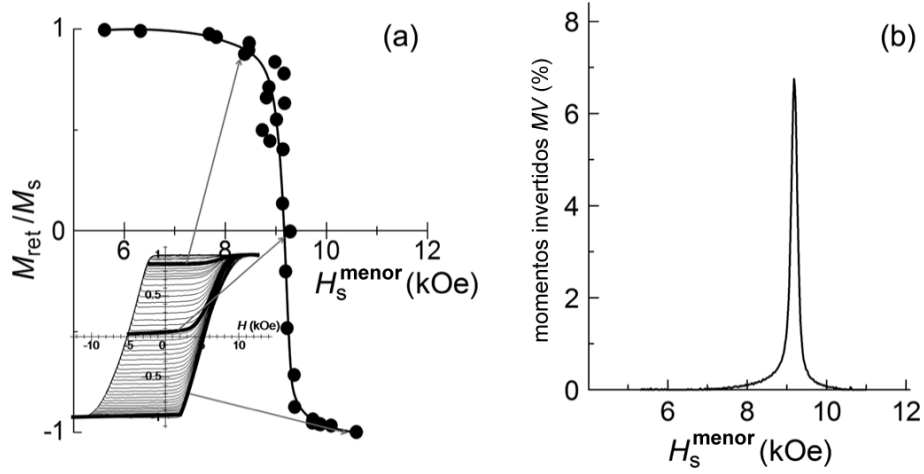


Figura 8.2: (a) Gráfica de M_{ret} como función de H_s^{menor} , el inset muestra ciclo mayor y varios ciclos menores para ejemplificar la obtención de los puntos. En (b) muestran la SFD normalizada obtenida como la derivada de M_{ret} como función de H_s^{menor} . Figura adaptada de [155].

8.2. Planteamiento del método

El método se basa en reconocer la relación entre el punto de retorno y la llegada a la saturación en el retorno de un ciclo menor.

Como ya se ha mencionado, al realizar un ciclo menor se induce la rotación de un subconjunto de partículas del ensamble. Estas rotaciones se llevan a cabo de manera secuencial siguiendo la SFD en orden incremental de campo coercitivo. Por definición, el punto de retorno (H_r, m_r) corresponde a la última partícula que rota y es aquella con el campo coercitivo máximo dentro del subconjunto que rota su magnetización. En consecuencia, al realizar el retorno al estado saturado, la última partícula que rotó en el punto de retorno es también la última que rota hacia el estado saturado (H_s, m_s).

De lo anterior se desprende que a cada punto de retorno en un ciclo menor se asocia una partícula y a esta le asociamos dos valores de campo, el de retorno y el de saturación cuyos valores difieren cuando hay interacción. En efecto, estos dos campos son los campos coercitivos medidos del histerón correspondiente a la partícula que rotó en el punto de retorno. Histerón que es asimétrico cuando hay interacción: $H_r \neq H_s$.

El campo de saturación depende directamente, o queda definido por el estado inicial del retorno del ciclo menor, es decir, el punto de retorno. En este sentido, podemos inferir que

$$H_s = H_s(m_r), \quad (8.4)$$

o de manera discreta, para la i -ésima partícula:

$$H_s^{(i)} = H_s^{(i)}(m_r^{(i)}). \quad (8.5)$$

El campo de saturación de la i -ésima partícula se puede escribir en función del respectivo campo coercitivo intrínseco $H_{c0}^{(i)}$ como,

$$H_s^{(i)} = H_{c0}^{(i)} + \alpha, \quad (8.6)$$

donde el segundo termino es αm_s , con $m_s = 1$.

Como se vio, el campo de saturación es función de m_r y es directo ver que la coercividad intrínseca también es función de m_r . Por su parte, el coeficiente del campo de interacción (α) es una constante aditiva. Si omitimos el índice del número de partícula y consideramos estos campos como funciones continuas de m_r , como en la eq. (8.4), tenemos:

$$H_s(m_r) = H_{c0}(m_r) + \alpha. \quad (8.7)$$

Esta ecuación se puede interpretar de la siguiente manera: para un valor dado de m_r , el campo de saturación medido del ciclo menor correspondiente es igual al campo coercitivo intrínseco de esa partícula recorrido en el eje del campo por una cantidad igual al campo de interacción.

Entonces, para cada ciclo menor se puede graficar m_r y su respectivo campo de saturación y la gráfica que resulta de las coordenadas obtenidas para N ciclos menores corresponde a una curva que es la iSFD recorrida por el campo de interacción α . Lo relevante es notar que la gráfica $m_r(H_s)$ es la iSFD recorrida por una constante en el eje del campo.

Claramente es necesario determinar el campo de interacción ya que de lo anterior sabemos que la ec. (8.7) arroja la iSFD desplazada a lo largo del eje del campo por el valor del campo de interacción. Si no se conoce el valor del campo de interacción, no hay manera directa que encontrar la posición correcta de la iSFD¹. Por otra parte, también es parte del problema de interés el determinar la distribución del campo de interacción del sistema.

Para encontrar el campo de interacción en un ciclo menor, procedemos considerando que la última partícula que rota al llegar al punto de retorno es también la última partícula que rota al llegar al estado saturado en la curva de retorno del ciclo menor. Sea $h_{c\downarrow}$ la coercividad intrínseca en la parte descendente y $h_{c\uparrow}$ en la parte ascendente. Usando estas coercividades intrínsecas, los campos extremos del ciclo menor, esto es, el campo de retorno (H_r) y el de saturación (H_s) se pueden escribir como campos totales ($H_T = H_A + \alpha m$),

$$H_r = h_{c\downarrow} + \alpha m_r, \quad (8.8)$$

$$H_s = h_{c\uparrow} + \alpha m_s, \quad (8.9)$$

¹Una opción es ubicando H_c en el ciclo mayor, que es el único punto no sesgado y luego ver donde esta ese punto en la iSFD recorrida (en la derivada), la diferencia es el campo de interacción.

notamos que, por definición, $h_{c\downarrow} = -h_{c\uparrow}$ y que $m_s = 1$, por lo que sumando directamente las ecuaciones anteriores y resolviendo para α tenemos que,

$$\alpha = \frac{H_r + H_s}{1 + m_r}. \quad (8.10)$$

Esta expresión proporciona al valor del campo de interacción a partir de los cuatro puntos de las dos coordenadas que definen los extremos de un ciclo menor: el punto de retorno (H_r, m_r) y el de saturación $(H_s, 1)$.

Es de notar que lo anterior implica que para cada ciclo menor se obtiene un valor del campo de interacción el cual corresponde al del punto de retorno: $H_{int} = \alpha m_r$. Como hemos visto en capítulos anteriores, dada una colección de ciclos menores, se puede obtener la curva de distribución del campo de interacción $\alpha_i = \alpha_i(m_{ri})$. Así mismo, como se conoce el campo de interacción correspondiente a cada ciclo menor, también se puede hacer uso de los valores individuales del campo de interacción para encontrar la iSFD correspondiente a ese punto. Retomando la Ec. (8.7), pero despejando para H_{c0} ,

$$H_{c0i}(m_{ri}) = H_{si}(m_{ri}) - \alpha_i. \quad (8.11)$$

Con esto vemos que siguiendo las ideas de método propuesto por Hinata y colaboradores del campo de saturación de los ciclos menores, H_s^{menor} , hemos llegado a complementar el método de manera que se pueden obtener punto a punto las coercividades intrínsecas H_{c0i} , o bien la iSFD, así como los campos de interacción $\alpha_i(m_i)$.

8.3. Resultados

A continuación se presentan los resultados. Para el desarrollo y validación de este método solo se han utilizado datos simulados ya que como se ha señalado en capítulos anteriores, la dispersión del campo de interacción provoca que la llegada a la saturación siga un comportamiento distinto al esperado en el caso ideal que las partículas son idóneamente biestables. Como este método requiere del valor del campo de saturación, en sistemas con curvatura de los ciclos en la llegada a la saturación este método deja de ser válido.

8.3.1. Validación del método

En la práctica, se pueden medir un número arbitrario de ciclos menores, como se ilustra en la figura 8.3 para un ciclo mayor y varios ciclos menores obtenidos por simulación. Para cada ciclo menor se debe conocer la coordenada del campo de retorno $(H_r, m_r)_i$, donde el

subíndice i se refiere al i -ésimo ciclo menor. Adicionalmente se debe determinar el campo de saturación del ciclo menor, $H_{s(i)}$.

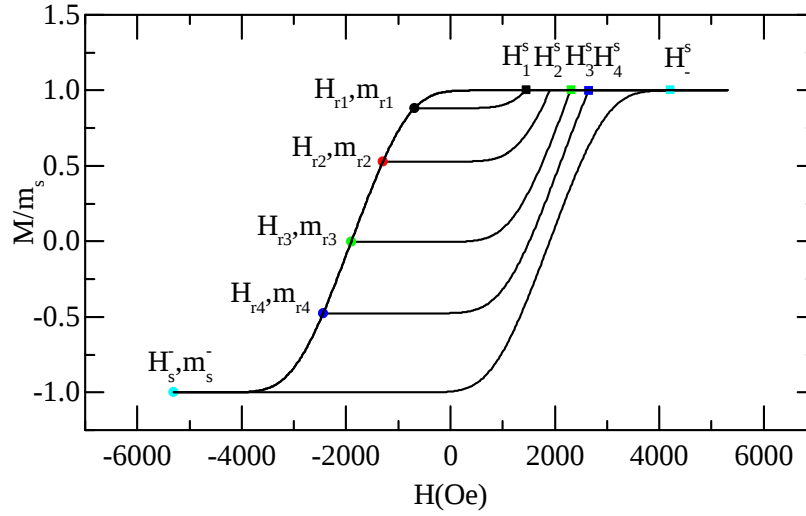


Figura 8.3: Puntos iniciales y finales de algunos FORCs, el punto inicial se representa por H_r, m_r mientras que el final por H_s, m_s .

Una vez que se tiene la colección de puntos, se procede a graficar las coordenadas (H_s, m_r) para obtener la iSFD recorrida, así como se muestra a manera de ejemplo en la figura 8.4 para los datos obtenidos de los ciclos menores mostrados en la figura 8.3. Esta curva corresponde a la cumulativa de la iSFD recorrida.

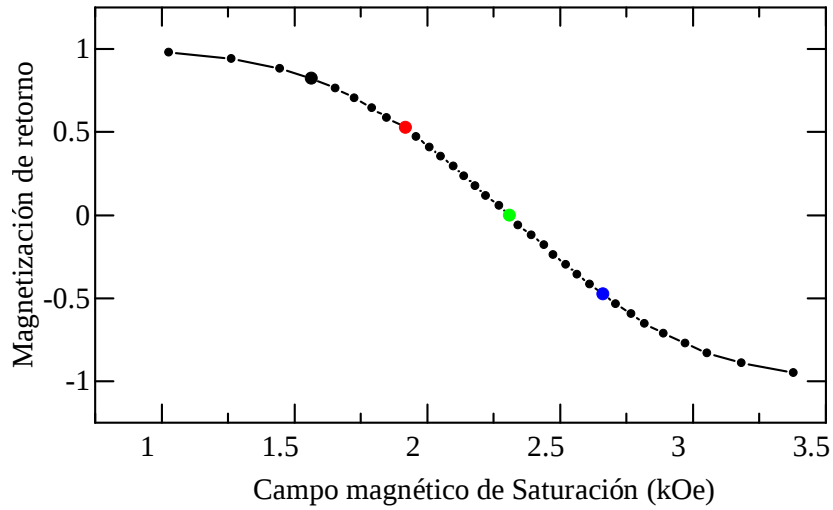


Figura 8.4: Curva reconstruida de la magnetización de retorno en función del campo de saturación obtenida de los ciclos menores. Los puntos a color son para asociar ese punto a los ciclos menores mostrados en la figura 8.3.

8.3.2. Distribución intrínseca del campo de rotación

Para validar la metodología se estudiaron dos casos, uno donde el sistema presenta interacción fija, y el otro donde presenta una interacción con dispersión. Los resultados se muestran en la figura 8.5.

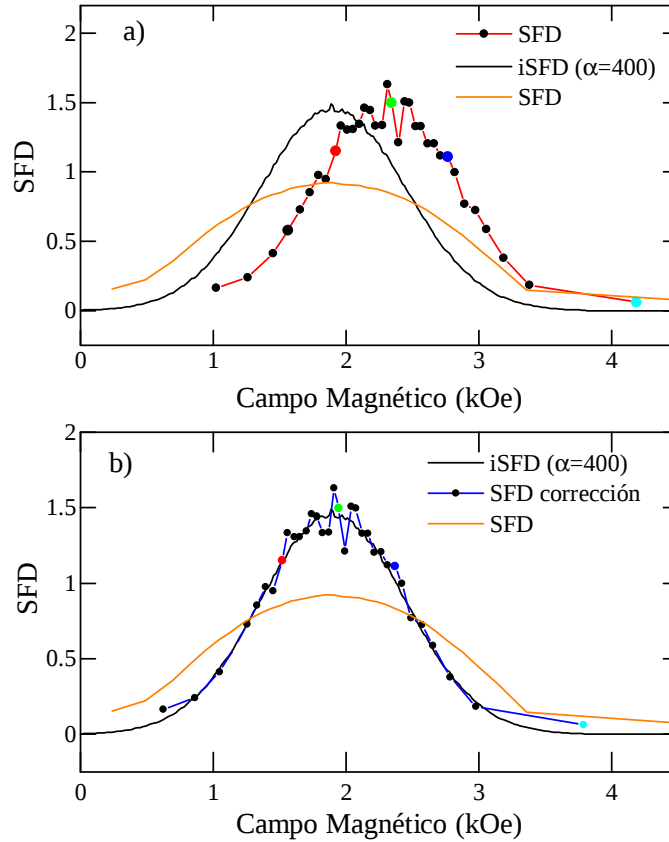


Figura 8.5: En la figura a) se muestra la iSFD recorrida a la derecha por un factor constante de donde debería estar, b) se muestra como haciendo la corrección en campo magnético se sobrepone.

Al comparar la iSFD que se introdujo en la simulación se observó que la SFD que obtuvimos tenía la misma forma funcional pero estaba recorrida. Al analizar la ecuación (8.11) nos damos cuenta de que justo está recorrida por el valor de la interacción α por lo que se removió dicho valor y las curvas se sobrepusieron una con otra como se muestra en la figura 8.5. Para observar que el método no depende de la forma funcional se realizaron diferentes formas como: forma triangular, forma Gaussiana asimétrica tanto a la derecha como izquierda y una forma Heaviside, los resultados demuestran que el método es indistinto para diferentes formas funcionales como se muestra en la figura 8.6.

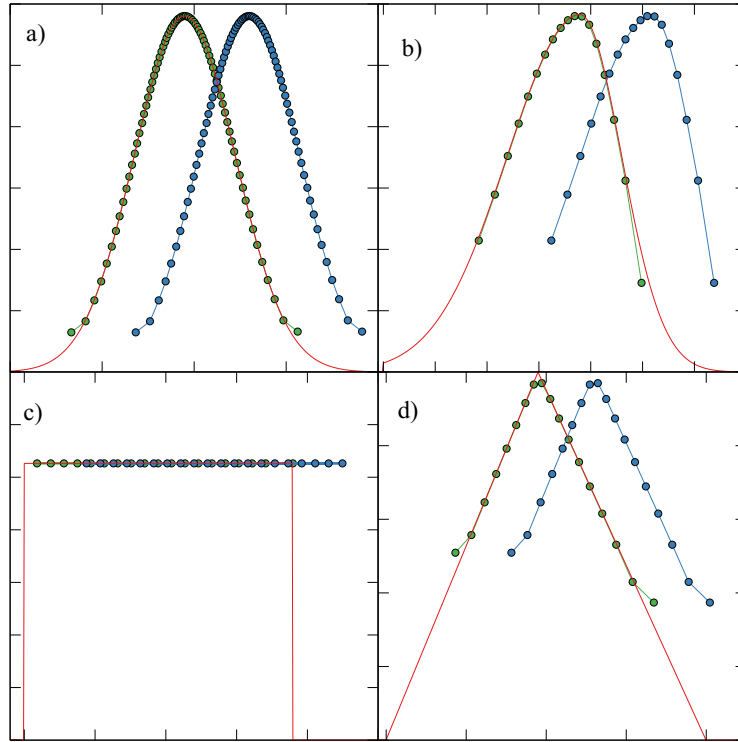


Figura 8.6: Diferentes formas funcionales y las curvas iSFD para a) Gaussiana, b) Gaussiana asimétrica a la izquierda, c) Función Heaviside o escalón y d) Función triangular.

8.4. Distribución del campo de interacción

En referencia al campo de interacción, mencionamos que es fundamental encontrar su distribución y valor promedio ya que la curva intrínseca $m_r(H_s)$ por sí sola no permite identificar el campo de corrimiento. Adicionalmente, y como se ha discutido en todo el presente trabajo, encontrar la distribución del campo de interacción es uno de los objetivos principales del trabajo.

Ya vimos que el campo de interacción asociado a la magnetización de retorno del i -ésimo ciclo menor esta dado por la ecuación (8.10), la cual requiere como datos de entrada las coordenadas del punto de retorno y el de la llegada a la saturación. Para validar esta expresión se ha realizado la simulación de un ensamble de partículas biestables que siguen una distribución intrínseca de campos de rotación gaussiana y un campo de interacción constante de $\alpha=700$ Oe. Se han simulado el ciclo mayor así como un conjunto de ciclos menores, de los cuales se han extraído los puntos extremos de cada ciclo menor. Con estos datos y la ec. (8.10) se ha calculado el coeficiente del campo de interacción para cada ciclo menor. La figura 8.7 muestra la distribución del coeficiente de interacción (α_i) en función del respectivo

valor de la magnetización de retorno, en color rojo. Se muestra también (en azul) la curva que se obtiene de la diferencia de los campos de retorno y de saturación, $\delta H = H_r + H_s$.

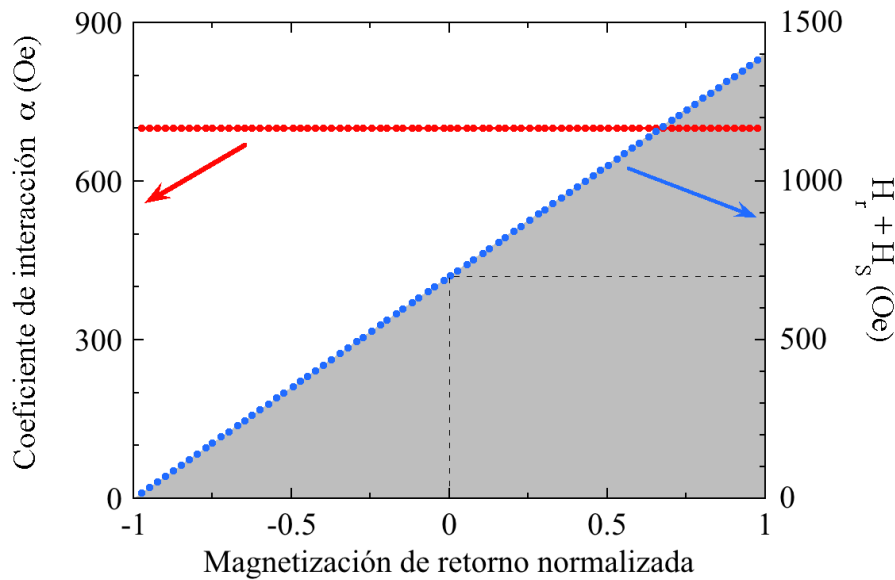


Figura 8.7: Distribución del coeficiente de interacción (α_i) en función del respectivo valor de la magnetización de retorno. En este caso se han usado datos simulados con una iSFD gaussiana y una interacción constante de 700 Oe. Se muestra también (en azul) la curva que se obtiene de la diferencia de los campos de retorno y de saturación, $\delta H = H_r + H_s$.

Como se puede observar en la figura 8.7, para la distribución del campo de interacción o del coeficiente del campo de interacción, α_i , vemos que para cada ciclo menor se obtiene un valor. Esto es lo que ya se había señalado: dado el punto de retorno (H_r, m_r) y el de saturación ($H_s, 1$) de cada ciclo menor se obtiene el valor de α correspondiente. En este caso, los datos simulados usan un valor constante del campo de interacción $\alpha = 700$ Oe y por lo tanto la curva de la distribución es una recta horizontal, tal y como se espera.

En la figura también se muestra (en color azul) la curva (recta) que se obtiene de la resta de los campos de retorno y saturación: $\delta H = H_r + H_s$. Como podemos ver, esta diferencia es tal que toma su valor máximo cuando $m_r \rightarrow 1$ y el mínimo cuando $m_r \rightarrow -1$. Esta diferencia simplemente refleja que tan grande es la diferencia entre esos dos campos. La diferencia va a desaparecer cuando el campo de retorno sea igual al de saturación, es decir, cuando se trata del ciclo mayor. La diferencia máxima se debe obtener teóricamente cuando la primera partícula deja el estado saturado y que sería el primer ciclo menor realizable.

Para la curva $\delta H = H_r + H_s$ vemos que cuando la abscisa es tal que $m_r = 0$, la ordenada corresponde al valor del campo de interacción, en efecto vemos que $\alpha(m_r = 0) = 700$ Oe, como se puede constatar con ayuda de las líneas punteadas. El ajuste lineal de esta curva

arroja que $\delta H = 700 + 700m_r$ o bien $\delta H = \alpha + \alpha m_r$, que no es otra cosa que la ec. (8.10). Finalmente, podemos ver en la figura 8.7 que el área bajo la curva $\delta H = H_r + H_s$ que se muestra sombreada se puede relacionar con el campo de interacción. En particular, si tomamos el área del triángulo como $(A = \text{base} \times \text{altura})/2$, vemos que $A = 2\alpha$.

De lo anterior vemos que a partir de las coordenadas de los puntos de retorno y de llegada a la saturación de un ciclo menor se puede obtener el campo de interacción asociado al punto de retorno. Realizando la medición de un número n de ciclos menores lleva a la obtención de la distribución del campo de interacción la cual contendrá n puntos. Estos se obtienen de la ec. (8.10) para cada ciclo menor. También vimos que a partir de la gráfica de $\delta H = H_r + H_s$ en función de la magnetización de retorno se puede obtener el valor promedio del campo de interacción.

8.5. Conclusión

Como hemos visto, el método propuesto por Hinata y colaboradores presenta los problemas de que nunca se define con claridad la distribución que ellos llaman la SFD efectiva, que a pesar de que la interpretan como una iSFD, la relación entre ellas nunca se establece. La deducción que ellos emplean evoca argumentos micro magnéticos que tampoco permiten llegar a una definición clara de la SFD efectiva. Nuestro trabajo ha permitido resolver estos problemas para llegar a una identificación clara y bien fundamentada que relaciona los puntos extremos de un ciclo menor, el punto de retorno y la llegada a la saturación, con la unicidad de la gráfica $M_r(H_s)$ y su relación con la iSFD: $M_r(H_s) = iSFD(H_A) + \alpha$. Así mismo se ha obtenido una expresión que proporciona al valor del campo de interacción a partir de las dos coordenadas que definen los extremos de un ciclo menor. El método y las expresiones obtenidas han sido validadas utilizando simulaciones para casos muy idealizados. Una limitante de este método es que requiere el valor del campo de saturación ideal, el cual en sistemas reales no se puede obtener. En efecto, como ya se ha mencionado, en un sistema real el retorno a la saturación es un proceso complejo que refleja la dispersión del campo de interacción y otros procesos que no pueden ser evitados relacionados con inhomogeneidades de la magnetización. Estos efectos mueven el campo de saturación observado haciendo imposible conocer el valor del campo de saturación ideal. Desde luego el método se puede aplicar a sistemas reales, pero con precaución y considerando que estos efectos pueden mover de manera importante los valores obtenidos. De igual manera y con ayuda de las simulaciones, los datos experimentales pueden ser analizados, comparados y contrastados con los datos proporcionados por este método para el caso ideal simulado.

Capítulo 9

Efectos de la interacción dipolar en las propiedades magnéticas de ensambles de partículas

Este capítulo presenta el trabajo realizado sobre el estudio del efecto de las interacciones en las propiedades magnéticas de un ensamble de partículas. Esto se desarrolló del punto de vista teórico y experimental. El modelo descrito a continuación para estructuras cilíndricas ha sido reportado como parte de un estudio más general sobre la interacción dipolar en ensambles de partículas esféricas y que ha sido publicado como:

Magnetostatic model for magnetic particle aggregates with cylindrical shapes

Victor Hugo Carrera-Escobedo, Kevin Hintze-Maldonado, Armando Encinas.

Revista Mexicana de Física **69**, 041605 (2023).

Mientras que la metodología para obtener recubrimientos de ensambles de partículas magnéticas usando aglutinantes con bajo punto de fusión y su uso para obtener recubrimientos tubulares sobre fibras cilíndricas ha sido publicado como:

Natural henequen fibers functionalized with magnetic nanoparticles and fatty acid mixture

Kevin Hintze, Jesus I. Tapia, Elizabeth Alvarado-Gomez, Armando Encinas,

Materials Letters **291**, 129580 (2021).

9.1. Introducción

El uso de partículas magnéticas como componentes elementales para construir estructuras más complejas es un enfoque bien conocido para fabricar materiales con propiedades magnéticas hechas bajo diseño. Una clase de este tipo de materiales que es muy conocida y ha sido ampliamente estudiada es la de los compósitos magnéticos suaves [157]. En los cuales el material magnético en polvo es compactado en la forma de un volumen macroscópico. Estos materiales son muy interesantes para su aplicación como materiales magnéticos suaves [158, 159].

Tales construcciones de partículas empaquetadas también han sido explorados usando nanopartículas magnéticas [138, 160, 161]. Otro ejemplo interesante fue reportado por Merk y colaboradores, donde encontraron que al utilizar madera como molde para confinar nanopartículas magnéticas, se pueden obtener compositos con anisotropía magnética, la cual sigue de la estructura jerárquica de la madera [162]. En otro reporte, se han impreso estructuras a base de partículas magnéticas con una impresora de tinta resultando en un material anisotrópico [163]. Estos reportes muestran que cuando las partículas son empaquetadas para formar una cierta geometría, el ensamble tiende a mostrar una anisotropía magnética que posee la misma simetría que el volumen macroscópico que contiene al ensamble [164, 165]. Es de notar que en algunos casos, estos efectos de anisotropía han sido observados con empaquetamientos de partículas que pueden ser consideradas como esféricas, es decir, isotrópicas. Por lo que esta anisotropía del ensamble resulta de los efectos magnetostáticos, específicamente de la interacción dipolar (magnetostática) entre las partículas. Más aún, hay evidencias que muestran que al cambiar la forma macroscópica del empaquetamiento de partículas así como formar arreglos mediante usando réplicas de estos empaquetamientos, se pueden obtener propiedades de anisotropía magnética novedosas que obedecen las propiedades de simetría de los ensambles y el tipo de empaquetamiento [138, 160, 162, 163, 166, 128].

Para el presente trabajo, nos interesan dos aspectos de este problema: el primero es referente al modelado de los efectos de interacción en ensambles de partículas, en particular partículas isotrópicas y en segundo, la fabricación de sistemas tipo compósito macroscópico empleando, o a partir de, nanopartículas magnéticas que puedan llevar a sistemas que presenten propiedades de anisotropía derivada de la forma del empaquetamiento.

Con respecto al modelado de los efectos de la interacción, es de notar que el calculo de las propiedades de anisotropía de este tipo de sistemas es complejo y requiere de programas (software) especializado así como de recursos de computo importantes [167].

En este sentido, se requieren de modelos que permitan hacer cálculos más simples que proporcionen una descripción clara y práctica de la relación entre las geometrías de los empaquetamientos y las propiedades magnéticas resultantes. En particular considerando que

actualmente se han realizado avances importantes en diversas técnicas de fabricación que permiten obtener una gran variedad de sistemas con diferentes grados de complejidad.

Como parte del presente trabajo, se ha propuesto y validado un modelo simple de campo medio para describir efectos magnetostáticos en ensambles de partículas. A partir de las contribuciones magnetostáticas de las partículas, el modelo permite predecir las propiedades del ensamble, en particular, las propiedades de anisotropía magnética total. Con el fin de poder acercar el modelo y sus predicciones a sistemas susceptibles de poder ser fabricados y probados en laboratorio, nos hemos enfocado principalmente al caso de empaquetamientos cilíndricos: tubos y alambres. Considerando después un par de casos particulares para prismas a fin de complementar el análisis. El modelo ha sido desarrollado para aquellos casos en los que ha sido posible obtener expresiones analíticas aproximadas, lo cual permite realizar los cálculos con mayor facilidad y sin requerimientos de infraestructura de cómputo especializada. El resultado más importante que se ha obtenido es que se demuestra que un empaquetamiento de partículas isotrópicas mostrará una anisotropía magnética que se origina en la interacción dipolar entre éstas, la cual posee la simetría del volumen macroscópico.

El segundo punto de interés para el presente trabajo se centró en la fabricación de sistemas tipo compuesto macroscópico empleando nanopartículas magnéticas que puedan tener propiedades magnéticas interesantes derivadas del efecto de empaquetamiento y la interacción dipolar entre partículas. Como ya se mencionó, existen varios enfoques para producir este tipo de empaquetamientos, por lo que aquí nos hemos planteado desarrollar un enfoque diferente. Con este fin se propuso la funcionalización de fibras naturales de henequén con una mezcla de ácido esteárico y ferrofluido comercial. La mezcla de ácido esteárico y ferrofluido permite recubrir la superficie de materiales, dotándola de propiedades magnéticas. El caso específico que nos interesó utiliza fibras naturales de henequén, que en este caso al ser recubiertas genera un material compuesto que de punto de vista magnético posee una estructura tipo tubo. El trabajo desarrollado se enfocó principalmente en la metodología de fabricación y la caracterización básica del material.

9.2. Modelo para el campo desmagnetizante efectivo para ensambles de partículas

Nos interesamos en ensambles de partículas magnéticas empaquetadas en una geometría bien definida y ocupando una cierta fracción de volumen dentro de ésta. Suponemos que las partículas son esféricas e isotrópicas y que no poseen anisotropía magnetocristalina o magneto-elástica. Para este tipo de sistemas existen resultados que muestran la existencia de una anisotropía magnética en ensambles. Dicha anisotropía, para el caso en que las partículas no se tocan directamente, se origina a partir de la interacción dipolar entre partículas.

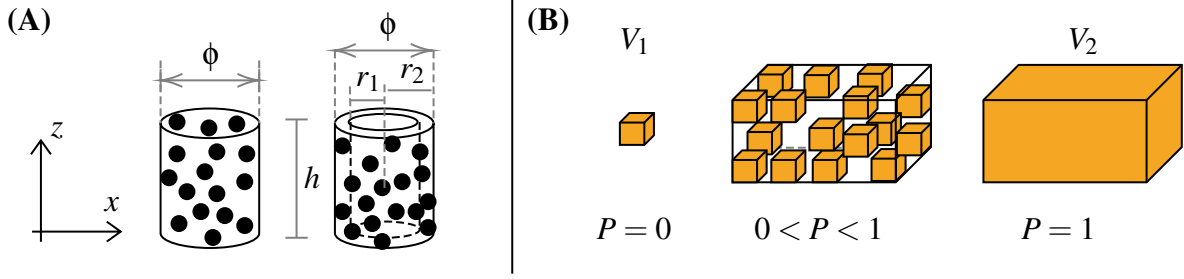


Figura 9.1: (A) Esquema de un ensamble de partículas que forman una estructura tipo cilindro/tubo y sus principales parámetros. (B) Esquema del empaquetamiento de una partícula con volumen V_1 en un volumen V_2 para diferentes valores de la fracción de volumen P .

La funcionalización de las fibras con partículas magnéticas se puede hacer de dos formas: la primera es infiltrando los precursores y hacer la reducción química con lo que se generan partículas distribuidas de manera aleatoria en el volumen de la fibra. La segunda es formando un recubrimiento de algún material adhesivo, el binder, en el cual tenemos dispersas partículas magnéticas.

Estos casos se ilustran de manera esquemática en la figura 9.1 (A), donde los cilindros se orientan tal que su eje largo coincide con el eje z . En el primer caso tenemos un cilindro circular de diámetro ϕ , altura h y cociente de aspecto $\tau = h/\phi$, en el cual tenemos partículas magnéticas esféricas con una fracción de volumen P_0 . En el segundo caso, tenemos un tubo circular para el cual es necesario usar los radios interno y externo, r_1 y r_2 , respectivamente. En este caso $\phi = 2r_2$ y el cociente entre los radios interno y externo es $\beta = r_1/r_2$. Nuevamente, la concentración de partículas se describe con la fracción de volumen P_0 . Adicionalmente, si tenemos varios cilindros/tubos, la distancia centro a centro es D y la distancia reducida es $d = D/\phi$.

Entonces, las construcciones que se obtienen al funcionalizar la fibra cilíndrica con las nanopartículas corresponden a un cilindro o a un tubo con partículas ocupando una cierta fracción de volumen.

De acuerdo a lo que se planteó sobre este problema, la idea es que al funcionalizar la fibra con partículas, deben existir condiciones que resulten en una anisotropía magnética. Dado que las partículas son isotrópicas, dicha anisotropía aparecerá al incrementar la fracción de volumen como consecuencia de la interacción dipolar.

Esta anisotropía magnética de origen dipolar, o inducida por la interacción dipolar, es bien conocida. Nosotros hemos retomado el modelo de campo medio para el campo desmagnetizante efectivo para ensambles de partículas propuesto por Martínez-Huerta y colaboradores [118], el cual se ha presentado en el capítulo de marco teórico.

El modelo considera el ensamble como una colección de partículas iguales acotadas por una geometría envolvente bien definida como se ilustra en la figura 9.1 (B). Esta partícula es el bloque elemental caracterizado por su volumen V_1 y factor desmagnetizante N_1 . Por su parte el volumen externo (la envolvente) tiene volumen V_2 y factor desmagnetizante N_2 . La cantidad, o densidad, de partículas en el ensamble se caracteriza con la fracción de volumen P que ocupan las partículas en el volumen externo.

Para este tipo de sistemas, el campo desmagnetizante efectivo (H_{Dt}), o bien el factor desmagnetizante efectivo o total ($N_{Dt} = H_{Dt}/\mu_0 M_s$) se escribe como, Ec. (1,52),

$$N_{Dt} = N_1 + (N_2 - N_1)P, \quad (9.1)$$

que físicamente corresponde a la suma de los efectos desmagnetizantes de la partícula aislada, N_1 , y los efectos de la interacción que resultan de tener un volumen acotado donde están contenidas las partículas ocupando una fracción de volumen P , $(N_2 - N_1)P$. Como se ilustra en la figura 9.1 (B), en el límite $P = 0$ la ecuación se reduce al caso de una partícula aislada y sin interacción ($N_{Dt} = N_1$). En el otro límite, $P = 1$, tenemos que el sistema evoluciona al volumen V_2 el cual forma un medio homogéneo y continuo ($N_{Dt} = N_2$).

La ecuación (9.1) nos dice que la anisotropía magnetostática total del ensamble resulta de la competencia entre las anisotropías magnéticas de forma de los volúmenes V_1 y V_2 , y dicha competencia es ponderada por la fracción de volumen. Por lo que, a fracciones de volumen bajas, domina la anisotropía de forma de la partícula y las direcciones fáciles y difíciles son las de la partícula individual. Por arriba de un valor crítico de la fracción de volumen, las direcciones fácil y difícil de la anisotropía del ensamble corresponderán a las del volumen externo V_2 .

Usando este modelo se han estudiado los casos con volúmenes externos correspondientes a cilindros y tubos en los cuales se introducen partículas esféricas, figura 9.1 (A). Estos casos son analizados a continuación.

9.2.1. Ensamblados de partículas en estructuras cilíndricas

Consideramos un ensamble de partículas magnéticas esféricas y que no poseen anisotropía magnetocristalina. El factor desmagnetizante para este volumen es $N_i = 1/3$, $i = x, y, z$. El volumen externo es un tubo cilíndrico tal que $\beta = r_1/r_2$, como se definió anteriormente y donde el caso particular del cilindro se obtiene cuando $r_1 = 0$ y $\beta = 0$. En lo siguiente se plantea el caso general del tubo cilíndrico el cual incluye el caso particular del cilindro sólido. El factor desmagnetizante del tubo es $N_2 = \{N_x, N_y, N_z\}$, donde $N_x = N_y$.

La anisotropía magnética de forma efectiva esta definida como $E_{Ft} = \mu_0 M_s^2 \Delta N_{Dt}$. Asu-

mimos que la dirección fácil del sistema es a lo largo del eje del cilindro, que corresponde al eje z (figura 9.1 (A)). Adicionalmente y por la simetría en el plano xy , $\Delta N_{Dt} = N_{Dt}^x - N_{Dt}^z$, por lo que, de (9.1), obtenemos

$$\Delta N_{Dt} = \Delta N_1 + (\Delta N_2 - \Delta N_1)P. \quad (9.2)$$

Notemos que ΔN_1 es la anisotropía de forma de la partícula individual y ΔN_2 es la anisotropía de forma del volumen externo.

Para el caso de interés, las partículas son esféricas y por lo tanto $\Delta N_1 = 0$. Por otra parte, aprovechando la simetría, tenemos que $2N_x + N_z = 1$ y por lo tanto $\Delta N_2 = (1 - 3N_z)/2$. De manera que la anisotropía de forma de un tubo cuya estructura contiene esferas con una fracción de volumen P es,

$$\Delta N_{Dt} = [1 - 3N_z] \frac{P}{2}. \quad (9.3)$$

Para N_z usamos la expresión aproximada para tubos propuesta por Nam y colaboradores [168], el cual relaciona el factor desmagnetizante del cilindro homogéneo N_{cz} con el del tubo

$$N_z = N_{cz}(1 - \beta^2), \quad (9.4)$$

mientras que para el factor desmagnetizante del eje largo de un cilindro circular de cociente de aspecto $\tau = h/\phi$ usamos la expresión aproximada propuesta por Sato y Ishii [169],

$$N_{cz} = \frac{1}{1 + \frac{4\tau}{\sqrt{\pi}}}. \quad (9.5)$$

Sustituyendo las ecuaciones (9.4) y (9.5) en (9.3) obtenemos la siguiente expresión analítica aproximada para la anisotropía de forma de un tubo que contiene partículas esféricas.

$$\Delta N_{Dt} = \left[1 - \frac{3(1 - \beta^2)}{1 + \frac{4\tau}{\sqrt{\pi}}} \right] \frac{P}{2}. \quad (9.6)$$

Como vemos, la anisotropía efectiva depende del cociente de aspecto del tubo, $\tau \geq 0$, así como del grosor de la pared del tubo (β) y de la fracción de volumen de las partículas, los cuales cumplen que $0 \leq \beta < 1$ y $0 \leq P \leq 1$.

Análisis de resultados

A partir de las ecuaciones obtenidas en la sección anterior, podemos hacer el análisis de las propiedades del campo desmagnetizante y de la anisotropía de forma efectiva del sistema.

Como primer punto, vemos que el sistema presenta siempre una anisotropía a pesar de que las partículas que lo constituyen son isotrópicas. En efecto, vemos que a pesar de que

$\Delta N_1 = 0$, $\Delta N_{Dt} \neq 0$ lo que implica que el sistema posee una anisotropía. Esta anisotropía proviene de la interacción dipolar y la podemos escribir de manera general usando la ec. (9.2) como,

$$\Delta N_{Dt} = \Delta N_2 P. \quad (9.7)$$

Podemos ver que si $P \rightarrow 0$ que corresponde al límite de una partícula sin interacción, que para una esfera es $\Delta N_{Dt} = 0$. Si $P \rightarrow 1$, la anisotropía se reduce a la del tubo homogéneo $\Delta N_{Dt} = \Delta N_2$.

De la ecuación (9.6) se pueden obtener de manera directa algunos valores límites de la anisotropía que son relevantes. Primeramente, vemos que si $\tau \rightarrow \infty$,

$$\Delta N_{Dt} = \frac{P}{2}, \quad (9.8)$$

donde en primer lugar, es claro que cuando $P = 1$ la anisotropía es $1/2$ que corresponde al valor de un cilindro infinitamente alto. Este valor se obtiene tanto para tubos como para cilindros homogéneos, así como para cualquier otra geometría para la cual $\tau \rightarrow \infty$ ya que en este caso $N_z = 0$. En el caso de sistemas con simetría circular en el plano xy , $2N_x - N_z = 1$ de donde $N_x = 1/2$. Por otra parte, este valor de $1/2$ es la cuota superior de la anisotropía ya que se alcanza para un llenado perfecto $P = 1$. En condiciones normales y tratándose de esferas, el empaquetamiento máximo que se puede alcanzar es menor.

Otra propiedad importante es el signo de ΔN_{Dt} ya que indica en que dirección esta el eje de fácil magnetización. En efecto, aquí se asumió que la dirección fácil es en el eje z que corresponde al eje largo del cilindro, por lo que $\Delta N_{Dt} = N_x - N_z$. Si la dirección fácil coincide con el eje z , entonces $N_x > N_z$, y si el eje fácil es en plano xy , entonces $N_z > N_x$. De donde sigue que cuando $\Delta N_{Dt} > 0$ implica que la dirección fácil es a lo largo del eje z y si $\Delta N_{Dt} < 0$, el eje fácil yace en el plano xy . Si analizamos la ecuación (9.3), vemos que el signo queda determinado por la cantidad que esta dentro del corchete. Igualando a cero $1 - 3N_z = 0$ vemos que si $N_z < 1/3$ entonces $\Delta N_{Dt} > 0$, si $N_z > 1/3$ entonces $\Delta N_{Dt} < 0$ y claramente tenemos que cuando $N_z = 1/3$ entonces $\Delta N_{Dt} = 0$ y el sistema es isotrópico. Esta condición isotrópica corresponde al caso de la esfera.

Para ilustrar esto, se han tomado las ecuaciones (9.4) y (9.5) para calcular N_z como función del cociente de aspecto τ , para diferentes valores de β , incluyendo el caso del cilindro homogéneo ($\beta = 0$). Los resultados se muestran en la figura 9.2.

En la figura podemos ver que las curvas tienen la misma variación general, alcanzando su valor máximo cuando τ va a cero y disminuyendo cuando el cociente de aspecto aumenta, tendiendo de manera asintótica a cero para valores grandes de τ . Para el caso particular del cilindro homogéneo ($\beta = 0$) se obtiene la curva bien conocida de N_z . Sin embargo, vemos que al incrementar el valor de β , las curvas se recorren hacia abajo, es decir, se obtienen valores más chicos de N_z a un mismo cociente de aspecto. Esto es característico de la geometría

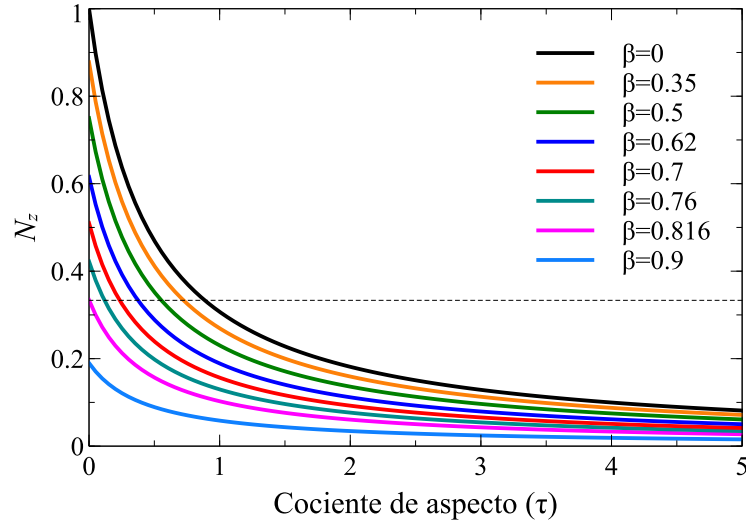


Figura 9.2: Factor desmagnetizante axial, N_z en función del cociente de aspecto τ , para diferentes valores de β .

tubular. En relación al signo de la anisotropía, vemos que N_z toma valores mayores y menores a $1/3$ pero esto depende también del valor de β . Como se puede ver en la figura, para valores de $\beta \geq 0,816$ N_z ya no toma valores mayores a $1/3$. Como será discutido en más detalle a continuación, esto implica que al hacer angosta la pared del tubo, $\beta \rightarrow 1$, el tubo ya no puede tener su eje fácil perpendicular al eje z , independientemente del valor del cociente de aspecto. En cuanto a la anisotropía del sistema, además de los efectos que siguen de la dependencia de N_z en τ y β , también entra en juego la fracción de volumen de las partículas.

Consideramos primero el caso límite cuando $P = 1$ y el material forma un tubo o cilindro homogéneo. Este caso nos sirve como referencia para comparar con resultados publicados en trabajos anteriores sobre redes de nanotubos [170]. La figura 9.3 (A) muestra la anisotropía magnetostática efectiva en función del cociente de aspecto, para diferentes valores del cociente de los radios (β) para el caso particular en que la fracción de volumen es $P = 1$. Como vemos en la figura, las curvas muestran un aumento de la anisotropía con el cociente de aspecto. Sin embargo, este crecimiento es más rápido conforme aumenta el valor de β , es decir, cuando la pared del tubo se hace mas delgada. El adelgazamiento del ancho de la pared favorece un aumento de la anisotropía magnética. En la figura también notamos que para valores chicos de β , la anisotropía cambia de signo a cocientes de aspecto chicos. Esta es la rotación del eje de fácil magnetización que ocurre por debajo de un cociente de aspecto crítico. Este cociente para el caso de un cilindro homogéneo es de $\tau = 0.906$ [170]. Como se puede ver, conforme aumenta β , el cociente de aspecto donde la anisotropía se hace cero se va recorriendo a valores más chicos y finalmente, para $\beta > 0.8$ ya no se logra invertir la dirección fácil. Los resultados son equivalentes a los de la figura 2 (a) de la referencia [170]. Lo importante es resaltar que nuestro modelo en el límite $P = 1$ arroja los mismos resultados que los obtenidos a partir del modelo para una red bidimensional de tubos homogéneos.

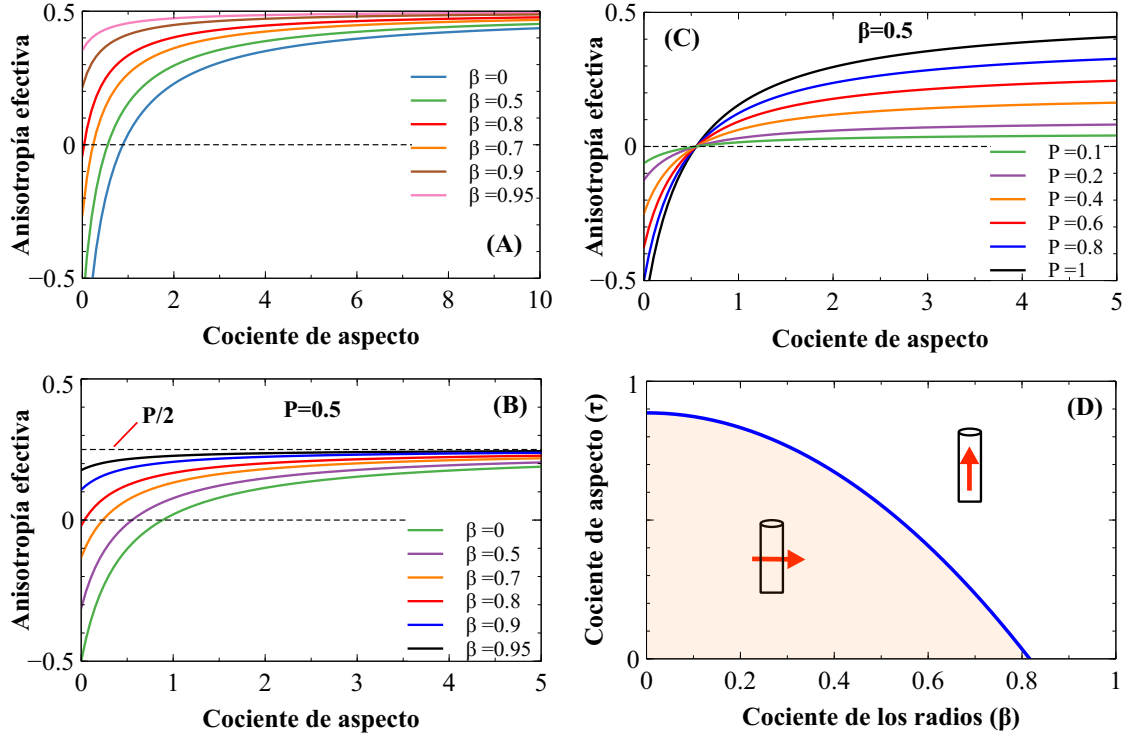


Figura 9.3: Factor desmagnetizante axial, N_z en función del cociente de aspecto τ , para diferentes valores de β .

Antes de analizar con más detalle este comportamiento para $\beta > 0.8$, veamos como es el efecto de variar la fracción de volumen. Como podemos ver en la ecuación (9.6), la fracción de volumen figura como un factor multiplicativo ($P/2$) y por lo tanto solamente modula la amplitud de la anisotropía efectiva. En efecto, ésta es cero para $P = 0$ que, como ya se mencionó, corresponde al caso isotrópico y tiene su valor máximo en $1/2$ cuando $P = 1$.

Para ver más claramente este efecto, la figura 9.3 (B) muestra la anisotropía magnetoestática efectiva en función del cociente de aspecto, para diferentes valores del cociente de los radios (β) para el caso en que la fracción de volumen es $P = 0.5$. Como podemos ver al comparar con la figura 9.3 (A), el comportamiento de las curvas de anisotropía sigue el mismo comportamiento, simplemente la amplitud se ha reducido. Como referencia se muestra una línea horizontal en $P/2$, gracias a la cual podemos ver que ese el valor al que converge la anisotropía al aumentar lo suficiente el cociente de aspecto independientemente del valor de β .

A continuación se procedió a dejar fijo el valor de β y variar la fracción de volumen para ver el efecto de éste último en la anisotropía total. Los resultados se muestran en la figura 9.3 (C), donde vemos como varía la anisotropía total en función del cociente de aspecto para un tubo con $\beta = 0.5$ y diferentes valores de fracción de volumen P . Como se puede apreciar en la figura, y en acuerdo con lo que se mencionó anteriormente, la fracción de volumen solo

modula la amplitud de la anisotropía total, por lo que al variar su valor el comportamiento general de las curvas no cambia. Podemos notar también que el punto donde las curvas pasan por cero, es el mismo independientemente del valor de P , lo cual indica que esta transición o rotación de la dirección fácil no depende de P y por lo tanto, de la ec. (9.6), solo depende de τ y β .

Para encontrar el punto isotrópico igualamos a cero la ecuación (9.6), y como ya vimos en la figura 9.3 (C), el cruce por cero viene de la cantidad en el corchete y es independiente de la fracción de volumen. Despejando el cociente de aspecto para encontrar su valor crítico, τ_c , obtenemos,

$$\tau_c = \frac{3\sqrt{\pi}}{4} \left(\frac{2}{3} - \beta^2 \right) \quad (9.9)$$

Esta expresión es igual a la ecuación (13) obtenida en la referencia [170], la cual corresponde a una dependencia cuadrática del cociente de aspecto con β . A partir de esta relación se puede hacer un diagrama de transición de la dirección fácil. Este se muestra en la figura 9.3 (D). Donde como se ha indicado, aquellos valores por encima de la curva resultan en una dirección fácil paralela al eje largo del tubo, $\Delta N_{Dl} > 0$, mientras que los valores contenidos debajo de la curva favorecen un eje fácil en el plano de simetría del tubo, $\Delta N_{Dl} < 0$. También podemos ver que en el eje β la curva corta el eje en $\beta \approx 0.8$. Esto indica que por arriba de ese valor, ΔN_{Dl} siempre es positiva independientemente del valor de cociente de aspecto. Este es el caso que se observó en los incisos (A) y (B) de la figura 9.3, cuando vimos que las curvas de anisotropía ya no tomaban valores negativos. Haciendo $\tau_c = 0$ en la ecuación (9.9), obtenemos el valor crítico del ancho de la pared, $\beta_c^2 = 2/3$ o $\beta_c = 0.82$.

Si bien, esta condición y la ecuación (9.9) ya ha sido identificada y discutida en un estudio previo sobre redes 2d de tubos [170], para el sistema que analizamos aquí, a saber: una red de partículas formando un tubo, este diagrama adquiere mayor importancia ya que es independiente de la fracción de volumen. Es decir, si se desea establecer a voluntad la dirección de fácil magnetización, solo es necesario ajustar τ y β según la ec. (9.9).

Validación con resultados experimentales

Con el fin de validar el modelo, a continuación se analizan resultados experimentales relevantes que han sido reportados en geometrías afines.

Existe algunos ejemplos de empaquetamientos de partículas en geometrías bien definidas y donde el confinamiento ha resultado en la observación de una anisotropía magnética.

En este sentido, se destacan dos trabajos. En el primero, Pal y colaboradores [171] rellenaron nanotubos de carbono con partículas magnéticas. En otro trabajo, Doung y colabora-

dores [160] crearon una película polimérica con un arreglo ordenado de huecos cilíndricos nanométricos orientados perpendicular al plano de la película y que posteriormente llenaron con partículas magnéticas. En estos dos estudios, la caracterización magnética mostró un incremento en el campo coercitivo al comprar las partículas confinadas contra las no-confinadas. Ambos estudios coinciden en que este aumento del campo coercitivo proviene de una anisotropía magnética y que dicha anisotropía se origina en la interacción dipolar entre las partículas del ensamble.

Otro enfoque reportado para fabricar empaquetamientos de nanopartículas magnéticas y que ha sido parte de la motivación para estudiar el problema en el presente trabajo, es el desarrollado por Merk y colaboradores [162], así como Segmehl, y colaboradores, [172], quienes han fijado nanopartículas magnéticas por reducción química en la estructura porosa y jerárquica de la madera.

Esta estructura es altamente anisotrópica con una geometría predominantemente cilíndrica, con cierta analogía a una red de poros cilíndricos paralelos entre sí. La síntesis in-situ de nanopartículas magnéticas a partir de precursores líquidos resulta en que una fracción mayoritaria de las partículas quedan fijas en las paredes de los poros. Esto resulta en una estructura magnética tubular, similar a la que se ilustra en la figura 9.1 (A).

En estos dos estudios, el análisis de las propiedades de la madera magnética muestra una anisotropía magnética que favorece una dirección fácil paralela al eje de simetría de los tubos y de los poros jerárquicos de la madera. En ambos estudios, la anisotropía magnética observada ha sido atribuida a la interacción dipolar entre las partículas confinadas en la geometría tubular.

En el contexto de nuestro modelo, esto sigue de las ecuaciones (9.3) o (9.6), donde es claro que aparece una anisotropía magnética finita debido a las interacciones dipolares entre las partículas. Más aún, de la ecuación (9.3) vemos que la anisotropía resultante es una función del cociente de aspecto del cilindro (N_z) y de la fracción de llenado (P). Para el caso más complejo que considera la interacción dipolar entre cilindros, estos estudios no exploran experimentalmente estos efectos, aunque sí reconocen su importancia.

9.2.2. Empaquetamientos no cilíndricos de partículas

En la sección anterior se desarrolló el caso de geometrías cilíndricas - circulares homogéneas y tubulares. Sin embargo, el formalismo empleado para el campo desmagnetizante efectivo, ecuación (9.1), es más general y permite trabajar con diferentes geometrías. En este caso, si continuamos considerando ensambles de partículas esféricas isotrópicas, podemos

variar la geometría envolvente.

Esto puede ser interesante para geometrías que son simples y que se utilizan con frecuencia. Adicionalmente y para fines de mantener la simplicidad, nos limitaremos a geometrías que posean expresiones analíticas simples para el factor desmagnetizante. Aclarando además que para geometrías mas complicadas, se pueden emplear los valores de los factores desmagnetizantes calculados numéricamente.

La anisotropía magnetostatica total esta dada por la ecuación (9.2). Conservando el mismo sistema de coordenadas, tomamos las diferencias $\Delta N = N_{x,y} - N_z$, es decir suponemos que el eje fácil coincide con el eje z y la dirección difícil yace en alguna dirección en el plano xy . Esta ecuación se simplifica considerando que para el caso de esferas $\Delta N_1=0$ con lo cual obtenemos que, $\Delta N_{Dt} = \Delta N_2 P$, que corresponde a la ecuación (9.7), la cual muestra que el ensamble de partículas tendrá una anisotropía magnética siempre que $\Delta N_2 \neq 0$ y $P > 0$. Esta anisotropía se origina de la interacción dipolar entre las partículas y depende de la anisotropía de la geometría envolvente y de la fracción de volumen que ocupan las partículas dentro de ésta. Adicionalmente, en la sección anterior vimos que si la geometría es tal que $N_x = N_y$, la expresión anterior se reduce a la ecuación (9.3), la cual depende únicamente del factor desmagnetizante N_z .

Por lo anterior vemos que para considerar diferentes geometrías requerimos únicamente las expresiones para los respectivos factores desmagnetizantes $N = \{N_x, N_y, N_z\}$. Los casos que hemos considerado son: (a) el prisma cuadrado, (b) placa rectangular ultra delgada, como los mostrados esquemáticamente en la figura 9.4.

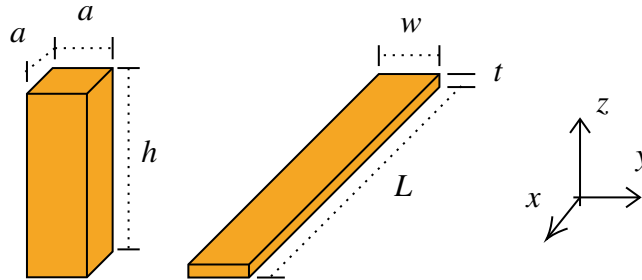


Figura 9.4: Esquema de un prisma cuadrado con dimensiones laterales a, a y altura h así como el de una barra rectangular ultra delgada de longitud L , ancho w y espesor t , donde $L \gg w \gg t$.

Para el caso del prisma cuadrado con lados de dimensión a , altura h y cociente de aspecto $\tau = h/a$, el factor desmagnetizante a lo largo del eje largo (eje z) es calculado con la expresión aproximada propuesta por Sato y Ishii [169]

$$N_z = \frac{1}{1 + 2\tau}. \quad (9.10)$$

Es de notar que esta expresión es muy parecida a la correspondiente al cilindro circular, ecuación (9.5).

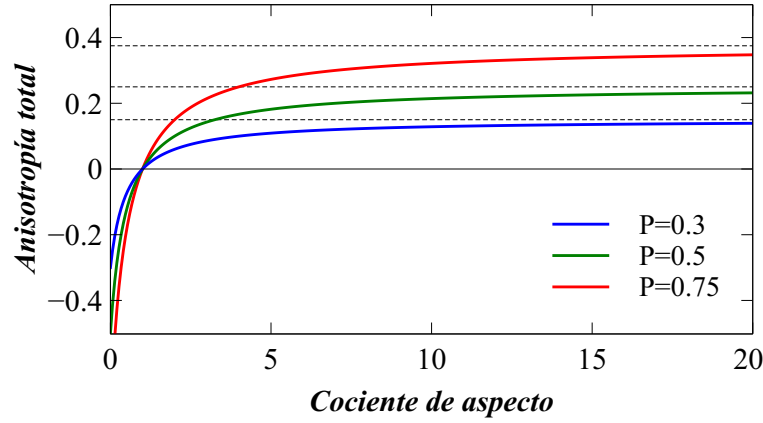


Figura 9.5: Anisotropía magnética efectiva de un prisma cuadrado en función del cociente de aspecto τ , para diferentes fracciones de llenado P .

Para el caso de la barra rectangular ultra delgada, usamos las expresiones aproximadas propuestas por Spong y colaboradores [173],

$$N_x = \frac{4tw}{L^2} \quad (9.11)$$

$$N_y = \frac{t}{w} \quad (9.12)$$

mientras que N_z en el límite ultra delgado, se obtiene una vez que se conocen los otros dos factores desmagnetizantes, $N_z = 1 - N_x - N_y$.

La anisotropía magnética efectiva para un ensamble de partículas que forman un prisma rectangular se obtiene a partir de las ecuaciones (9.3) y (9.10),

$$\Delta N_{Dt} = \left[1 - \frac{3}{1 + 2\tau} \right] \frac{P}{2}. \quad (9.13)$$

Como vemos, la anisotropía total solamente depende del cociente de aspecto del prisma y de la fracción de volumen que ocupan las partículas en su interior. Esta expresión es muy similar a la ecuación (9.6) para el caso del empaquetamiento cilíndrico, recordando que para el cilindro homogéneo $\beta = 0$.

La figura 9.5 muestra la variación de la anisotropía magnética efectiva de un prisma cuadrado en función del cociente de aspecto τ , para diferentes fracciones de llenado P . El comportamiento observado es muy parecido al descrito anteriormente para el caso de cilindros, como se puede apreciar en la figura 9.3 (C). La anisotropía toma valores negativos y positivos según el valor del cociente de aspecto. Para cocientes de aspecto chicos, el prisma es oblató y favorece un eje fácil en el plano xy y, al aumentar el cociente de aspecto, la dirección fácil pasa a favorecer una dirección fácil en el eje z . A partir de la figura podemos notar que ese valor crítico del cociente de aspecto para el cual la anisotropía total es cero,

es independiente del valor de la fracción de llenado. Esta característica ya fue interpretada para el caso de cilindros y refleja el hecho de que las partículas esféricas son isotrópicas, por lo que no juegan ningún papel en las propiedades de anisotropía del ensamble más allá de modular la amplitud. En efecto, como podemos ver en la figura, al variar P solo se modula la amplitud de la anisotropía total. Esto se puede ver en la ecuación (9.13) donde el empaquetamiento aparece solamente como un factor multiplicativo. Más aún, aparece como $P/2$, lo cual en la figura se muestra como las líneas punteadas horizontales. Se puede ver que este es el valor límite al cual tiende la anisotropía total de manera asintótica al aumentar el cociente de aspecto. Finalmente, el cociente de aspecto crítico para el cual se hace cero la anisotropía se puede obtener de la ecuación (9.13) y es $\tau = 1$.

Para la barra rectangular ultra delgada, la anisotropía total esta dada como,

$$\Delta N_{Dt} = \left[\frac{t}{w} - \frac{4tw}{L^2} \right] P. \quad (9.14)$$

Para llegar a esta expresión se ha considerado la anisotropía en el plano xy , ya que en una lamina delgada la magnetización debe estar contenida en dicho plano. Adicionalmente, se asume que la dirección difícil esta en la dirección y , mientras que la fácil esta a lo largo de x .

Para este tipo de geometrías, la anisotropía magnética es tal que la dirección fácil es paralela al eje largo y la difícil a esta a lo largo del ancho. Dada la restricción para los factores desmagnetizantes que $L \gg w \gg t$, el único punto de interés es el de analizar como varía la magnitud de la anisotropía al variar el cociente w/L que viene a hacer las veces del cociente de aspecto que se utilizó anteriormente para los cilindros.

Como primer punto, vemos que si llenamos por completo el volumen del prisma rectangular plano, es decir $P = 1$, se obtiene la expresión conocida para la anisotropía del caso continuo y homogéneo [173]. De manera similar a los casos tratados con anterioridad, la construcción de un volumen macroscópico empaquetando esferas lleva a una anisotropía magnética de forma dictada por dicho volumen pero cuya amplitud es modulada de manera proporcional por la fracción de llenado P . Si ahora consideramos el límite de una sola partícula, $P \rightarrow 0$, vemos que la anisotropía total también tiende a cero. Esto, como se ha visto en los casos anteriores, es el resultado esperado y refleja el hecho de que una esfera es isotrópica y por lo tanto su anisotropía de forma, o magnetostática, es cero. Esto también muestra que un empaquetamiento de partículas isotrópicas puede resultar en una anisotropía inducida por la interacción dipolar la cual posee la simetría de la anisotropía de forma del volumen que contiene a las partículas.

Para fines de realizar cálculos de la anisotropía magnética, podemos reescribir la ecuación (9.14) en función del cociente de aspecto, $\tau = L/w$, como:

$$\Delta N_{Dt} = \frac{t}{w} \left[1 - \frac{4}{\tau^2} \right] P. \quad (9.15)$$

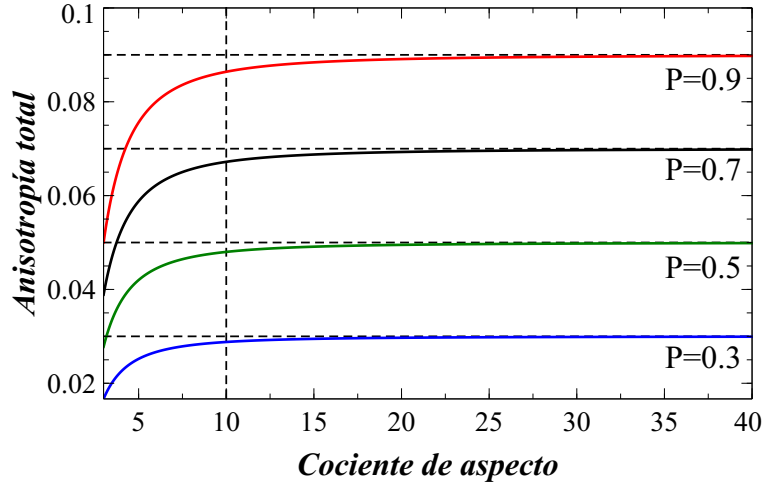


Figura 9.6: Anisotropía magnética efectiva de un prisma rectangular plano en función del cociente de aspecto τ , para diferentes fracciones de llenado P .

Dado que esta expresión solo es válida si $L \gg w \gg t$, entonces podemos considerar que el ancho es al menos 10 veces mayor que el espesor, es decir $t/w = 1/10$. De manera similar, aplicando el criterio de al menos 10 veces más grande para L y w , tenemos que $\tau \geq 10$. Es decir, al analizar el valor de la anisotropía en función del cociente de aspecto, solo interesa el caso $\tau \geq 10$. Adicionalmente, y con el fin de tener una referencia adicional, podemos ver de la ecuación (9.15) que $\Delta N_{Dr} = 0$ para $\tau = 2$. Por abajo de este valor la anisotropía sería negativa, indicando la inversión del eje fácil, mientras valores mayores a 2 del cociente de aspecto resultan en una anisotropía positiva.

En la figura 9.6 se muestra la variación de la anisotropía magnética efectiva de un prisma rectangular plano de dimensiones L, w, t con $w/t = 10$, como el mostrado en la figura 9.4 en función del cociente de aspecto $\tau = L/w$, para diferentes fracciones de llenado P . Para cada valor de P se muestra con una línea punteada horizontal el valor asintótico al cual converge cada curva. Se muestra también una línea vertical punteada en $\tau = 10$, que corresponde el valor de referencia por arriba del cual se considera válida la expresión para la anisotropía de la barra rectangular delgada.

Como se puede ver en la figura, la variación de la anisotropía para $\tau \geq 10$ es tal que aumenta muy poco y a partir de aproximadamente $\tau \approx 20$ se alcanza el valor límite máximo. A partir de analizar la ecuación (9.15), vemos que el valor límite corresponde a $P(t/w)$. Finalmente, dado que la anisotropía es proporcional a la fracción de volumen P , las curvas siempre son iguales y solo su amplitud es modulada al variar la cantidad de partículas.

Para concluir esta sección, hemos visto que empaquetamientos de esferas isotrópicas pueden resultar en una anisotropía magnética de origen magnetostático debida a la interacción dipolar entre partículas. A partir del modelo empleado, en particular la ecuación (9.2)

vemos que para esferas isotrópicas $\Delta N_1 = 0$, la anisotropía total es:

$$\Delta N_{Dt} = \Delta N_2 P, \quad (9.16)$$

que es un término enteramente relacionado a la interacción entre partículas y que depende solamente de la anisotropía de forma del volumen que contiene a las partículas (ΔN_2) y de la fracción de volumen que ocupan las partículas dentro de éste.

Para los diferentes casos que hemos considerado, se obtiene este mismo resultado general. Para el caso del tubo cilíndrico, tenemos la ecuación (9.6), para el prisma cuadrado la anisotropía esta dada por la ecuación (9.13) y para el caso de a placa rectangular delgada, es la ecuación (9.15).

9.3. Ensamblajes macroscópicos de nanopartículas magnéticas

Como parte de este trabajo, se propuso desarrollar una metodología que sirviera para fabricar ensamblajes de partículas magnéticas. El enfoque adoptado se basó en desarrollar un compuesto que consiste en una matriz no-magnética y que posee un punto de fusión bajo en el cual se dispersan las partículas magnéticas. Como matriz no magnéticas se probó el ácido esteárico, un ácido graso de origen animal y vegetal, biodegradable, de muy bajo costo y amigable con el medio ambiente. Como material magnético se optó por usar un ferrofluido comercial ya que es una opción de muy bajo costo para contar con cantidades grandes de partículas magnéticas funcionalizadas para poder dispersarse en medios grasos y donde además las partículas son superparamagnéticas.

Con ayuda de calor y un solvente, para controlar la viscosidad, el compuesto se lleva al estado líquido y una vez ahí, se aplica por inmersión para formar recubrimientos. Por lo que la geometría del ensamble que se obtiene esta definido por la geometría del objeto sobre el cual se aplica el recubrimiento. Con el fin de producir recubrimientos y por lo tanto ensamblajes de partículas con forma tubular, se usaron fibras circulares. Específicamente fibras de henequén. Estas fibras son interesantes como base de un material por su reusabilidad, porque es biodegradable y su abundancia [174]. Estas fibras tienen aplicaciones potenciales como biomateriales de campo responsivo, en el área de fabricación y textiles que pueden ser deformados por la aplicación de campos magnéticos externos [175, 176, 177].

9.4. Metodología

El método que se ha propuesto se basa en recubrir superficies usando el método de inmersión. El diagrama general del método propuesto se muestra en la figura 9.7.

La mezcla de ácido esteárico con ferrofluido se preparó considerando 2 % (w/v) de ácido esteárico. El peso correspondiente de ácido esteárico se agregó en un vaso con 50mL de etanol, el cual se calentó a 80°C por un tiempo de 45 minutos con agitación para asegurar que la mezcla fuera homogénea. Finalmente se agregaron 2.5 mL de ferrofluido a la solución de ácido esteárico y etanol para obtener la mezcla final, figura 9.7 (A). El ácido esteárico (SA) de grado industrial se compró en Wego Chemical Group y el ferrofluido de grado comercial es el FF-350 de Ferrotec Corporation. Como referencia, también se hicieron algunos recubrimientos usando únicamente ácido esteárico (sin partículas magnéticas).

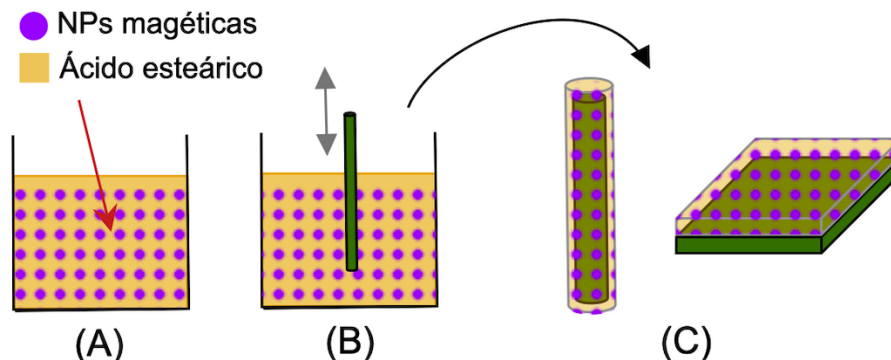


Figura 9.7: (A) Vaso con solución de ácido esteárico con nanopartículas magnéticas en fase líquida, (B) Se introduce por inmersión el objeto a ser recubierto y (C) ejemplo de un cilindro y una superficie recubiertas con la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido.

El material que se va a recubrir es inmerso en la mezcla, figura 9.7 (B). Para objetos sólidos, el tiempo de inmersión es de un par de minutos, mientras que para las fibras de henequén, éstas fueron sumergidas por 6 horas. Finalmente, el material recubierto fue secado en una placa de calor a 60 °C por 5 horas, figura 9.7 (C).

El método se probó usando diferentes materiales y realizando el mismo proceso de inmersión. En la figura 9.8 se muestran Fotografías de diversas muestras que han sido recubiertas con la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido, para cada caso se muestra la pieza antes y después de aplicar el recubrimiento (a), (b) manojos de fibras de henequén, (c),(d) clip metálico, (e), (f) palillo de madera y (g),(h) limpia pipas.

Para cada caso podemos ver según la naturaleza del material empleado, las características del recubrimiento obtenido varía. En el caso de las fibras de henequén, figura 9.8 (a) y (b), vemos un recubrimiento más homogéneo. Por su parte el clip metálico y el palo de madera

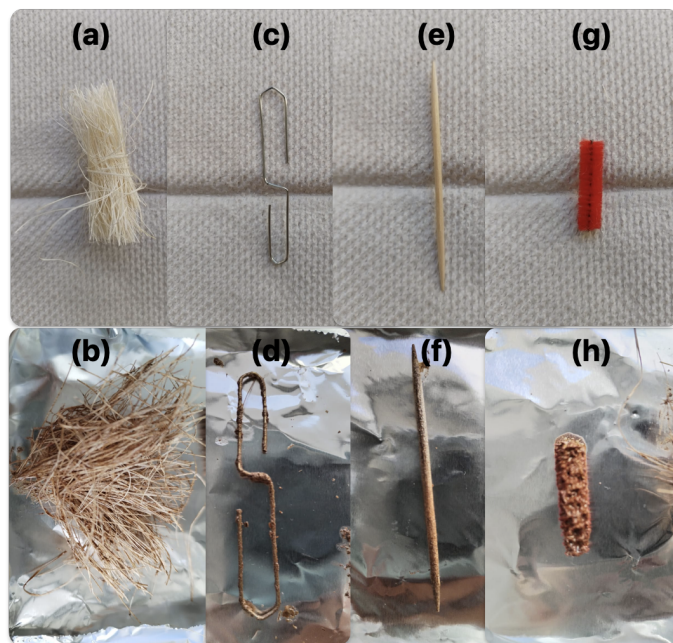


Figura 9.8: Fotografías de diversas muestras que han sido recubiertas con la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido, para cada caso se muestra la pieza antes y después de aplicar el recubrimiento (a), (b) manojo de fibras de henequén, (c),(d) clip metálico, (e), (f) palillo de madera y (g),(h) limpia pipas.

dejan ver un recubrimiento poco menos homogéneo, figura 9.8 (c)-(f). Por su parte el limpia pipas, figura 9.8 (g) y (h), por su naturaleza de fibras cortas radiales, posee mucho volumen disponible. Por lo que al aplicar el recubrimiento todo este volumen libre entre fibras es ocupado por la mezcla de ácido esteárico con ferrofluido, perdiendo casi por completo la estructura fibrosa. Lo anterior muestra que si bien el método propuesto hace factible la obtención de recubrimientos de ácido esteárico con ferrofluido sobre objetos con geometría arbitraria, la naturaleza de estos materiales si puede jugar un papel importante en la calidad y características del recubrimiento.

9.5. Resultados y discusión

En lo siguiente, el estudio se centró únicamente en los materiales obtenidos a partir de recubrir fibras de henequén. Las fibras de henequén (*Agave Fourcroydes*) se caracterizan por ser duras, fuertes y de largo similar a la fibra de sisal. Estas se obtienen de las hojas de plantas de agave y se utilizan principalmente para la fabricación de cuerdas, sogas, alfombras y cordeles. Cuando se comparan con otras fibras naturales, éstas son de bajo costo y baja densidad lo cual las hace ideales para biocompuestos. La celulosa es el principal componente de las fibras de henequén y la unidad primaria de una macromolécula de celulosa

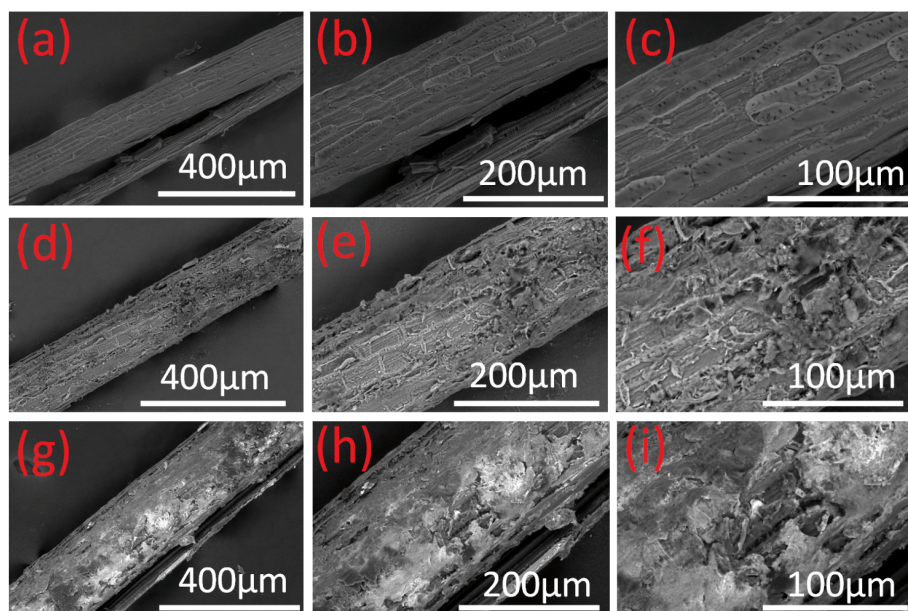


Figura 9.9: Micrografías ESEM de fibras prístinas de henequén (a), (b), (c). Fibras de henequén con ácido esteárico (d), (e), (f) y fibras henequén con ácido esteárico y ferrofluido (g), (h), (i).

es anhidro d-glucosa, que contiene tres grupos hidroxilo (OH). Estos grupos hidroxilo forman enlaces de hidrógeno dentro de la macromolécula en sí (intramolecular) y entre otras macromoléculas de celulosa (intermolecular).

La fibra de henequén tiene muy buenas características físicas-mecánicas por lo que ha recibido mucho interés para explorar si puede ser empleada como material de refuerzo en diferentes matrices poliméricas. En virtud del alto contenido de celulosa en las fibras de henequén se han realizado estudios sobre el aprovechamiento de la celulosa en la preparación de materiales compuestos.

La morfología de los materiales utilizados se estudió utilizando microscopio de barrido electrónico ambiental (ESEM, de sus siglas en inglés Environmental Scanning Electron Microscope), FEI SEM Quanta 200.

En la figura 9.9 se muestran las micrografías ESEM en diferentes magnificaciones de las fibras sin funcionalizar (FB) (a), (b), (c), las fibras recubiertas de ácido esteárico (FB-SA) (d), (e), (f) y las fibras con ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF) (g)(h)(i). Para las fibras FB, se pueden observar patrones de pequeños poros circulares a lo largo de la fibra, especialmente visible en la imagen (c)[178]. Mientras que en las fibras FB-SA presentan una capa de ácido esteárico que cubre casi todos los poros. Finalmente, en las imágenes (g)-(i) se muestra una capa muy similar a la anterior con algunos puntos brillantes, que es consistente con la presencia de hierro proveniente del ferrofluido. Topografías similares se pueden ver

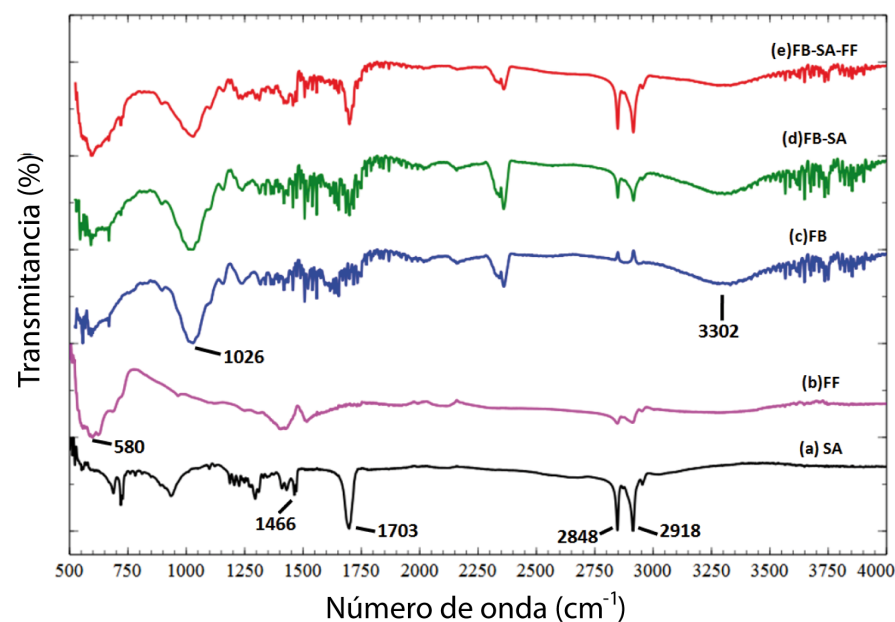


Figura 9.10: Espectro IR del polvo de ácido esteárico (SA), ferrofluido (FF), fibras de henequén prístinas (FB), fibras de henequén con ácido esteárico (FB-SA), y fibras de henequén con ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF).

otras especies de henequén estudiadas en otros trabajos [179].

La espectroscopia de infrarrojo se ha utilizado para elucidar posibles interacciones entre las componentes que forman el recubrimiento y el material sobre el cual se aplica. Para la espectrometría de infrarrojo con transformada de Fourier, en el presente estudio se usó un equipo Nicolet iS-10 con adquisición ATR. Los espectros se han medido entre 550 y hasta 4400 cm^{-1} con una resolución de 6 cm^{-1} .

En la figura 9.10 se comparan los espectros de FTIR de los materiales (a) SA, (b) FF, (c) FB, y las fibras recubiertas con ácido esteárico y (d) FB-SA con la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido (e) FB-SA-FF.

Los FTIR de SA presenta una señal de absorción en $2918, 2848$, y 1466 cm^{-1} , estas bandas están asociadas con el grupo metilo CH_2 [180, 181, 182], la señal en 1703 cm^{-1} resulta característico al ensanchamiento del carbonilo del ácido esteárico [181]. El espectro del ferrofluido (FF) muestra dos bandas en 2848 y 2951 cm^{-1} , ambos relacionados con la asimetría de la vibración de estrechamiento en CH_2 y a la simetría del estrechamiento del ácido oleico. La señal en 580 cm^{-1} está atribuida al enlace Fe-O [183]. El espectro de (c) FB presenta una banda de absorción en 3302 cm^{-1} indicativo al estrechamiento de O-H correspondiente a la celulosa [184], y otra banda en 1026 cm^{-1} correspondiente al estrechamiento del enlace C-O [185]. El FTIR de (d) FB-SA y (e) FB-SA-FF presentan bandas de absorción en $2918, 2848, 1703, 3302$, y 1026 cm^{-1} . La presencia de los picos característicos de la

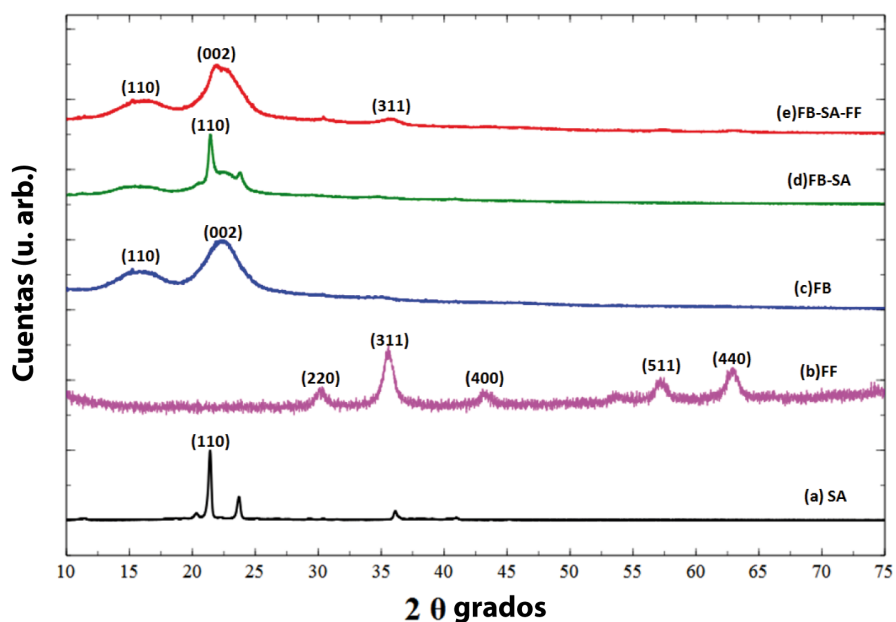


Figura 9.11: XRD de polvo de ácido esteárico (SA), ferrofluido (FF), fibras de henequén prístinas (FB), fibras de henequén con ácido esteárico (FB-SA), y fibras de henequén con ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF).

celulosa y el ácido esteárico superpuestos sugiere que no hay interacciones químicas.

Como parte de la caracterización elemental también se ha empleado la difracción de rayos X. Para estas mediciones se usó un equipo de espectrometría RIGAKU SmartLab usando la radiación de Cu $K\alpha$ con una velocidad de barrido de 1 grado/min sobre el rango de ángulo entre 10 y 90 (2θ) grados.

En la figura 9.11 se comparan los difractogramas de rayos-X de las muestras. El ácido esteárico (a) SA presenta dos picos característicos en $2\theta = 21,28^\circ$ y $2\theta = 23,70^\circ$ [180, 186]. Para la muestra polvo de ferrofluido (b) FF, los picos se encuentran en $30,17^\circ$, $35,5^\circ$, $43,10^\circ$, $57,22^\circ$ y $62,82^\circ$, y están atribuidos a la magnetita cúbica [183]. Las fibras de henequén prístinas (c) FB presentan dos picos intensos, el pico en $16,06^\circ$ indica la presencia de celulosa nativa, mientras que el pico en $22,45^\circ$ muestra la difracción de la celulosa cristalina [187, 188]. Los patrones de rayos-X en la muestra FB-SA presenta una combinación de los dos picos representativos del ácido esteárico y el henequén en $21,28^\circ$ y $16,06^\circ$ respectivamente, también hay un ensanchamiento aproximadamente en $22,45^\circ$ que resulta de la superposición del pico (002) de la celulosa cristalina en (c) y de los picos en $21,28^\circ$ y $23,70^\circ$ del ácido esteárico (a). Finalmente, el difractograma de la muestra FB-SA-FF indica una combinación de los picos asociados con el ferrofluido y de las fibras de henequén.

A continuación se realizó la caracterización de las propiedades magnéticas de las fibras de henequén recubiertas de la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido. Los ciclos de histéresis

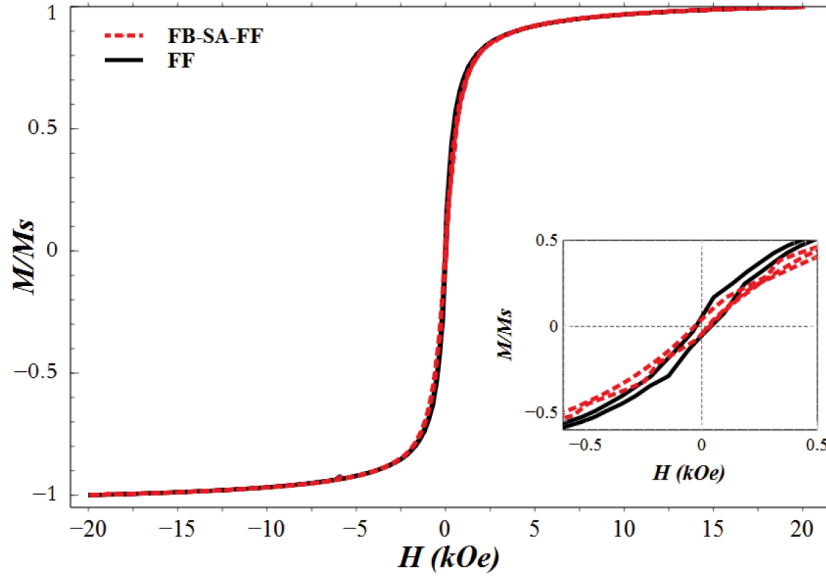


Figura 9.12: Ciclo de histéresis medido a temperatura ambiente de fibras de henequén con ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF) y de ferrofluido seco (FF). El inset muestra el acercamiento de los ciclos de histéresis cerca de cero.

sis fueron medidos a temperatura ambiente (300K) usando primeramente un magnetómetro Quantum Desing MPMS3-VSM.

En la figura 9.12 se comparan los ciclos de histéresis normalizados medidos a temperatura ambiente de las fibras recubiertas con la mezcla de ácido esteárico y ferrofluido (FB-SA-FF) y del ferrofluido secado (FF). Estos ciclos muestran un comportamiento superparamagnético, el cual no es del todo perfecto, como se ve en el acercamiento, ya que muestra una pequeña pero finita coercividad ($H_C = 30$ Oe) y una magnetización remanente ($M_r = 5\%$). Para la muestra FB-SA-FF la magnetización de saturación (M_S) fue de 1.9 emu/gr a 2 T. Esta coercividad finita se le atribuye al posible agrupación de nanopartículas magnéticas. Esta situación pasa cuando en su fase líquida ya no hay forma de moverse [189, 190].

Como se mencionó anteriormente, un enfoque reportado para fabricar empaquetamientos de nanopartículas magnéticas y que ha sido parte de la motivación para estudiar el problema en el presente trabajo, es el desarrollado por Merk y colaboradores [162], así como Segmehl, y colaboradores, [172], quienes han fijado nanopartículas magnéticas por reducción química en la estructura porosa y jerárquica de la madera. Si bien su enfoque difiere del nuestro, sirve como casi similar para comparar el uso de estructuras naturales como madera o bien fibras, para incorporar en ellas partículas magnéticas. Como podemos ver a partir de los ciclos de histéresis, no hay ninguna indicación de la presencia de una anisotropía magnética. Si bien este era uno de los puntos de interés del estudio, los resultados obtenidos muestran que para los casos considerados, no hay tal anisotropía. Una razón posible para explicar esto es que la concentración de partículas magnéticas necesita ser más elevada para realmente contar con efectos visibles y claros. En un trabajo reciente, Gan y colaboradores [191] repor-

tan la fabricación de madera magnética donde se han asegurado de remover la lignina a fin de permitir que los poros de la madera queden abiertos y las partículas magnéticas nucleen principalmente en su interior. Sus ciclos de histéresis muestran un comportamiento superparamagnético, consistente con la ausencia de algún tipo de anisotropía. Lo cual nuevamente se puede suponer que ocurre por las concentraciones bajas de partículas magnéticas.

Estas fibras han sido funcionalizadas usando un método simple, barato y escalable de inmersión, sin requerimiento de equipo especializado o procesos complejos, ya que ocupa materiales comunes. Al realizar los recubrimientos en las fibras prístinas e hidrofílicas, estos cambiaron las propiedades, haciendo las fibras hidrofóbicas y magnéticas. El recubrimiento es muy pequeño y por ende puede ser fácilmente removido cuando se flexiona la fibra. Por lo que estas fibras pueden ser usadas en aplicaciones de baja deformación como separación magnética e hidrofóbica en esponjas, mallas, y textiles para la remoción de aceite en superficies, en agua, o en compósitos para el apantallamiento de ondas electromagnéticas [192, 193, 194, 195, 196].

9.6. Conclusiones

Se ha propuesto y desarrollado un modelo de tipo campo medio para describir los efectos magnetostáticos de anisotropía de forma y de interacción dipolar en ensambles de partículas. El modelo consideró el caso sencillo de ensambles con un número muy grande de partículas, las cuales son consideradas idénticas, específicamente esféricas y sin ningún tipo de anisotropía magnetocristalina o magnetoelástica. Del modelo se obtiene que empaquetamientos de esferas isotrópicas pueden resultar en una anisotropía magnética de origen magnetostático debida a la interacción dipolar entre partículas. Dicha anisotropía tiene las mismas propiedades que tiene la anisotropía de forma asociada a la geometría envolvente. Por otra parte, se propuso un método de inmersión para producir recubrimientos de una mezcla de ácido esteárico y ferrofluido comercial. En este caso, un proceso simple de funcionalización basado en el método de inmersión ha sido propuesto y validado usando diferentes objetos. Posteriormente, centrándonos en recubrimientos realizados en fibras naturales de henequén se mostró que no hay interacciones químicas entre las fibras y el recubrimiento. Por otra parte, las fibras muestran ciclos de histéresis superparamagnéticos que está relacionado al estado nanoscópico de las partículas magnéticas del ferrofluido.

Capítulo 10

Conclusiones y perspectivas

10.1. Conclusiones generales

Como conclusión general del presente trabajo iniciamos por retomar las ideas que lo motivaron y que fueron la base para definir los objetivos. El trabajo se centró en (A) establecer metodologías para cuantificar el campo de interacción empleando ciclos menores y a partir de estas cuantificaciones obtener las distribuciones intrínsecas de campos de rotación. (B) Estudiar de manera teórica el problema de los efectos de la interacción dipolar en ensambles de partículas esféricas y (C) elaborar un método experimental que permita obtener de manera sencilla ensambles de partículas magnéticas de diferentes formas y dimensiones.

En el presente trabajo se han propuesto y validado cuatro métodos que nos han permitido obtener el campo de interacción y la distribución intrínseca de campos de rotación punto a punto y promedio.

El primer método explota la diferencia entre las áreas contenidas en los ciclos menores en los lados positivo y negativo del eje del campo magnético. Como se argumenta, en el caso particular sin interacción estas áreas son iguales y dejan de serlo cuando el campo de interacción es finito. Se han propuesto dos métodos que emplean la diferencia de áreas para cuantificar el campo de interacción asociado al punto de retorno del ciclo menor. Para cada ciclo menor se obtiene el campo de interacción y la coercividad intrínseca del punto de retorno del ciclo menor. Por lo que la medición de un número grande de ciclos menores aporta el número de puntos de las distribuciones de campo de interacción y de campos de rotación intrínsecos que son determinados. El método ha sido validado usando simulaciones y datos experimentales y proporciona resultados muy favorables cuando se compara con los

resultados del campo de interacción promedio y la iSFD obtenidas usando métodos basados en las curvas de remanencia. El método tiene la ventaja de ser simple y muy directo ya que no requiere de mucho procesamiento de datos. Es claro que se pierde la fiabilidad cuando la magnitud del campo de interacción es muy baja y adicionalmente los efectos de dispersión del campo de interacción cerca de la saturación reducen la precisión ya que de hecho este efecto hace que la diferencia entre las áreas no sea únicamente debida a un corrimiento por superposición de campos.

El segundo método usa dos puntos de intersección que aparecen al graficar las derivadas de la parte ascendente y descendente de un ciclo menor. Estas intersecciones corresponden a los campos en la parte ascendente del ciclo menor necesarios para (i) invertir el mismo número de partículas que son invertidas en el estado remanente en la parte descendente (o equivalente al ciclo mayor) e, (ii) invertir el mismo número de partículas que se invierten en la parte descendente (o equivalente al ciclo mayor) antes de alcanzar la remanencia.

El método ha sido validado usando simulaciones y datos experimentales y proporciona resultados muy favorables cuando se compara con los resultados del campo de interacción promedio y la iSFD obtenidas usando métodos basados en las curvas de remanencia. Lo que se observa es que las derivadas obtenidas de manera numérica sobre los datos experimentales introducen mucho ruido y por lo tanto se pierde precisión o bien la precisión resultante es un compromiso entre la magnitud del ruido propio que resulta de la muestra y medición y el procesamiento numérico de las derivadas y el ruido. Otra limitante de las dos variantes del método es que usan puntos que implican un número muy reducido de partículas del ensamble, esto quiere decir que el método es muy sensible al cociente señal/ruido de la medición. En este sentido, si bien el método en cualquiera de sus variantes nos proporciona un punto por ciclo menor o bien de cada ciclo menor obtenemos dos valores del campo de interacción. Sin embargo, los cambios en el eje del campo entre puntos de cruce son pequeños y por lo tanto hay un límite sobre el número de ciclos menores que resultan útiles.

El tercer método que explota asimetrías entre procesos de magnetización y desmagnetización emplea corrimientos de las curvas de retorno de primer orden (FORCs). En sus ideas principales, este es el método más directo y simple ya que en esencia encuentra el histerón correspondiente a cada punto medido en la desmagnetización y hecho esto, es directo la obtención del campo de interacción y la coercividad intrínseca. Sin embargo la aportación más significativa que se hizo en relación con este método es usar un esquema recursivo para eliminar la necesidad de contar con la medición del proceso de desmagnetización, en efecto, esta implementación permite obtener los campos de interacción y coercividades intrínsecas usando únicamente las curvas de magnetización o lo que son las curvas de retorno de primer orden. Lo valioso es que en esta forma, es posible usar como datos de entrada cualquier conjunto de curvas FORC previamente medidas y proporcionará información valiosa que complementa a la obtenida a partir de los diagramas FORC. El método ha sido validado usando simulaciones y datos experimentales y proporciona resultados muy favorables cuando se compara con los resultados del campo de interacción promedio y la iSFD obtenidas

usando métodos basados en las curvas de remanencia. La principal ventaja del método es que puede generar una gran cantidad de datos. En particular, dados n ciclos menores podemos obtener un valor del campo de interacción para cada combinación de pares entre dos valores iguales de magnetización en estos ciclos menores, esto es, se puede obtener un número k que es igual a la combinaciones de dos en un conjunto de n , lo cual equivale a $k = n(n - 1)/2$ tal que si tenemos 10 ciclos menores obtenemos 45 valores para el campo de interacción de ese valor de m , pero si tenemos 50 curvas FORC entonces se pueden obtener 1225 valores del campo de interacción para ese valor de m . Este es el método más flexible y que menos sufre de problemas de precisión ya que genera muchos puntos y es posible descartar o no incluir en el análisis puntos cercanos a la saturación o bien segmentos que presentan demasiado ruido, etc.

Los métodos anteriores se basan en determinar primero el campo de interacción punto a punto y con este valor se determina la iSFD como la colección de coercividades intrínsecas. En un enfoque opuesto, se replanteó el método propuesto por Hinata y cols., para establecer un método que permite obtener directamente la iSFD mediante una transformación simple de los ciclos menores que requiere solamente de los campos de retorno y de saturación correspondientes. Mediante esta transformación se obtiene la iSFD desplazada o recorrida en el eje del campo magnético por una cantidad igual al campo de interacción. Este método es simple, directo, robusto y los resultados son confiables. Sin embargo, como se ha mencionado, el método está fuertemente limitado en sistemas reales por la dispersión del campo de interacción que introduce mucha incertidumbre en la determinación de los campos de saturación, cosa que en la simulación puede ser evitado.

De manera general, los cuatro métodos que se han presentado funcionan bien dentro del rango en el que son aplicables, lo cual ya ha sido establecido para cada caso. Lo que se puede ver es que los métodos pueden funcionar de manera complementaria, es decir, se pueden usar juntos para obtener así una descripción más completa de la distribución del campo de interacción que involucre más puntos y que a su vez enriquezca la iSFD.

Como parte del trabajo, también se trabajó en el problema de la interacción dipolar en ensambles de partículas. El trabajo realizado se desarrolló desde la perspectiva de realizar el modelado de ensambles de partículas con énfasis en los efectos de la interacción entre partículas y desde la perspectiva de proponer y probar un método simple que permita obtener ensambles de partículas magnéticas como recubrimientos de diferentes objetos. En este sentido, se propuso y desarrolló un modelo de tipo campo medio para describir los efectos magnetostáticos de anisotropía de forma y de interacción dipolar en ensambles de partículas. El modelo consideró el caso de ensambles con un número muy grande de partículas, las cuales son consideradas idénticas, específicamente esféricas y sin ningún tipo de anisotropía magnetocristalina o magnetoelástica. Del modelo se obtiene que empaquetamientos de esferas isotrópicas pueden resultar en una anisotropía magnética de origen magnetostático debida a la interacción dipolar entre partículas. Dicha anisotropía tiene las mismas propiedades que tiene la anisotropía de forma asociada a la geometría envolvente. Por otra parte,

se propuso un método de inmersión para producir recubrimientos de una mezcla de ácido esteárico y ferrofluido comercial. En este caso, un proceso simple de funcionalización basado en el método de inmersión ha sido propuesto y validado usando diferentes objetos. Posteriormente, centrándonos en recubrimientos realizados en fibras naturales de henequén se mostró que no hay interacciones químicas entre las fibras y el recubrimiento. Por otra parte, las fibras muestran ciclos de histéresis superparamagnéticos que está relacionado al estado nanoscópico de las partículas magnéticas del ferrofluido.

10.2. Perspectivas

El presente trabajo cuenta con numerosas perspectivas para el estudio y desarrollo de diversos problemas básicos y aplicados que están relacionados con los efectos de interacción en ensambles de partículas magnéticas así como con las transformaciones para pasar de la SFD medida a la intrínseca.

Una extensión directa y muy importante es estudiando la validez de los diferentes métodos obtenidos en el presente trabajo para redes de nanoalambres, al extenderlos a otros sistemas biestables y posteriormente relajando esta condición de biestabilidad. Aquí existe un gran número de sistemas donde podría ser interesante buscar validar o entender cómo funcionan estos métodos ya que son sistemas donde la interacción es un problema importante. Este es el caso de los ensambles de nanopartículas que presentan muchos efectos que están relacionados con la amplitud de la barrera de energía y su competencia con efectos térmicos. Y como han mostrado muchos estudios en este tipo de sistemas, es posible obtener información valiosa sobre la barrera de energía de las partículas trabajando a bajas temperaturas. En base a esto, es común encontrar en publicaciones relacionadas con estos sistemas que se reportan curvas Delta-M o Henkel obtenidas a bajas temperaturas. Como hemos visto, las mediciones del campo de interacción en base a las curvas de remanencia solo proporcionan una imagen parcial de lo que ocurre en sistema ya que solo consideran los procesos irreversibles de rotación de la magnetización. Por lo que los métodos que se han desarrollado y validado en el presente trabajo basados en ciclos menores pueden ser de relevancia para poder realizar una descripción más completa de los fenómenos y procesos relacionados con los efectos de interacción entre partículas.

Así mismo, y como se mencionó en repetidas ocasiones a lo largo del trabajo, nuestro enfoque está limitado al caso en el que no hay efectos colectivos y por lo tanto los efectos de interacción pueden ser considerados de manera muy sencilla como un campo adicional que se superpone al resto de los campos presentes. Es claro que hay muchos sistemas formados por ensambles de partículas que presentan efectos colectivos y en este caso es importante y de gran interés validar procedimientos para determinar el campo de interacción ya sea en la aproximación de campo medio o bien como una distribución y posteriormente encontrar la respectiva iSFD.

Como ya se ha mencionado, todo ensamble de partículas presenta efectos de interacción entre partículas, incluyendo el caso particular de interacción nula. En estos casos tenemos que la interacción juega un papel central ya que (a) modifica la energía local de las partículas, es decir, las propiedades que exhibe el ensamble pueden ser modificadas por el campo de interacción y, (b) la interacción modifica la SFD de manera que la SFD medida no corresponde a la distribución intrínseca y para fines de poder diseñar las propiedades del material es necesario conocer la iSFD.

Estos dos puntos van de la mano y son determinantes en básicamente cualquier efecto que dependa de las propiedades o de la respuesta del material a la excitación de un campo magnético aplicado, ya sea su coercividad, su remanencia o bien su susceptibilidad. Por lo que al hablar de temas de gran importancia actual, estos efectos son subyacentes en su estudio y avance. Tal es el caso de temas como el nano magnetismo 3D, la lógica nano magnética.

De punto de vista fundamental, el presente trabajo incursionó en el problema de determinar experimentalmente y estudiar la distribución del campo de interacción. Como se mencionó en uno de los capítulos, mediante estos métodos es posible hacer la construcción de histogramas y distribuciones a partir de un conjunto muy grande de datos. En este sentido, una continuación en este problema sería la de elaborar modelos (analíticos, aproximados o simulaciones) que permitan explicar el origen y propiedades de esta distribución del campo de interacción relativa al sistema de estudio específico.

Otro punto que sigue directamente del trabajo realizado es el de combinar los diferentes métodos para determinar el campo de interacción y la iSFD para integrarlos en un solo protocolo de medición optimizado para evitar redundancia en la adquisición de datos y en la correcta construcción de la distribución del campo de interacción y en la transformación de la SFD medida para recuperar la iSFD. Así mismo sería interesante buscar diferentes esquemas para el procesamiento numérico de los datos medidos para la identificación y extracción de parámetros del campo de interacción y de la SFD.

Como se mencionó también para cada uno de los diferentes métodos propuestos, hay una limitante intrínseca en las mediciones que hemos llamado la dispersión del campo de interacción y que como se ha explicado, corresponde al comportamiento de las curvas de magnetización cuando el sistema se aproxima a la saturación. A nivel de la simulación se ha introducido este efecto suponiendo que el campo de interacción que actúa sobre la i -ésima partícula (α_i) se puede escribir como la suma del campo de interacción local (α_{0i}) y un campo que fluctúa aleatoriamente (δ_i), tal que:

$$\alpha_i = (\alpha_{0i} + \delta_i)m \quad (10.1)$$

En realidad, este efecto puede estar relacionado no solo o no únicamente con esta dispersión del campo de interacción, sino también con procesos de magnetización más complejos que se conocen y suelen aparecer en otros tipos de sistemas. Concretamente, la llegada a la saturación en mediciones típicas de ciclos de histéresis se caracteriza por un comportamiento asintótico al valor de la magnetización de saturación.

En todos los métodos presentados vimos que este efecto reduce la certidumbre y confiabilidad del método. Por lo que una perspectiva importante es la de ahondar en este problema para ver cómo podría ser integrado en el análisis a fin de reducir o eliminar su efecto negativo en lo referente a la cuantificación del campo de interacción a partir de la información contenida en los segmentos cercanos a la saturación de las mediciones $M(H)$.

Bibliografía

- [1] A. Fernández-Pacheco, R. Streubel, O. Fruchart, R. Hertel, P. Fischer, and R. P. Cowburn, “Three-dimensional nanomagnetism,” *Nature communications*, vol. 8, no. 1, pp. 1–14, 2017.
- [2] R. L. Stamps, S. Breitzkreutz, J. Åkerman, A. V. Chumak, Y. Otani, G. E. Bauer, J.-U. Thiele, M. Bowen, S. A. Majetich, M. Kläui, *et al.*, “The 2014 magnetism roadmap,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 47, no. 33, p. 333001, 2014.
- [3] D. Sander, S. O. Valenzuela, D. Makarov, C. Marrows, E. Fullerton, P. Fischer, J. McCord, P. Vavassori, S. Mangin, P. Pirro, *et al.*, “The 2017 magnetism roadmap,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 50, no. 36, p. 363001, 2017.
- [4] E. Y. Vedmedenko, R. K. Kawakami, D. D. Sheka, P. Gambardella, A. Kirilyuk, A. Hirohata, C. Binek, O. Chubykalo-Fesenko, S. Sanvito, B. J. Kirby, *et al.*, “The 2020 magnetism roadmap,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 53, no. 45, p. 453001, 2020.
- [5] W. Shi, R. Liang, S. Xu, Y. Wang, C. Luo, M. Darwish, and S. K. Smoukov, “Layer-by-layer self-assembly: Toward magnetic films with tunable anisotropy,” *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 119, no. 23, pp. 13215–13223, 2015.
- [6] G. Klughertz, G. Manfredi, P.-A. Hervieux, B. P. Pichon, and S. Begin-Colin, “Effect of disorder and dipolar interactions in two-dimensional assemblies of iron-oxide magnetic nanoparticles,” *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 120, no. 13, pp. 7381–7387, 2016.
- [7] S. Okamoto, N. Kikuchi, A. Hotta, M. Furuta, O. Kitakami, and T. Shimatsu, “Microwave assistance effect on magnetization switching in co-cr-pt granular film,” *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 20, p. 202405, 2013.
- [8] D. Kumar, S. Chaudhary, and D. K. Pandya, “Evolution of particle size and interparticle magnetic interactions with thickness in co-sputtered cu₇₉co₂₁ nanogranular thin films,” *Journal of Applied Physics*, vol. 114, no. 2, p. 023908, 2013.
- [9] J. Thevenot, H. Oliveira, O. Sandre, and S. Lecommandoux, “Magnetic responsive polymer composite materials,” *Chem. Soc. Rev.*, vol. 42, pp. 7099–7116, 2013.

- [10] S. Ojha, W. C. Nunes, N. M. Aimon, and C. A. Ross, “Magnetostatic interactions in self-assembled $\text{CoNi}_1\text{-xFe}_{2\text{O}_4}/\text{BiFeO}_3$ multiferroic nanocomposites,” *ACS Nano*, vol. 10, no. 8, pp. 7657–7664, 2016. PMID: 27434047.
- [11] T. R. Albrecht *et al.*, “Bit-patterned magnetic recording: Theory, media fabrication, and recording performance,” *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 51, pp. 1–42, 2015.
- [12] J. W. Lau and J. M. Shaw, “Magnetic nanostructures for advanced technologies: fabrication, metrology and challenges,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, no. 30, p. 303001, 2011.
- [13] G. Varvaro and F. Casoli, *Ultra-high-density magnetic recording: storage materials and media designs*. CRC Press, 2016.
- [14] L. P. Carignan, A. Yelon, D. Menard, and C. Caloz, “Ferromagnetic nanowire metamaterials: Theory and applications,” *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 59, pp. 2568–2586, Oct 2011.
- [15] A. Barman, G. Gubbiotti, S. Ladak, A. O. Adeyeye, M. Krawczyk, J. Gräfe, C. Adelman, S. Cotofana, A. Naeemi, V. I. Vasyuchka, *et al.*, “The 2021 magnonics roadmap,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 33, no. 41, p. 413001, 2021.
- [16] M. Schreier, T. Chiba, A. Niedermayr, J. Lotze, H. Huebl, S. Geprägs, S. Takahashi, G. E. W. Bauer, R. Gross, and S. T. B. Goennenwein, “Current-induced spin torque resonance of a magnetic insulator,” *Phys. Rev. B*, vol. 92, p. 144411, Oct 2015.
- [17] D. D. Sheka, “A perspective on curvilinear magnetism,” *Applied Physics Letters*, vol. 118, no. 23, p. 230502, 2021.
- [18] B. Dieny, I. L. Prejbeanu, K. Garello, P. Gambardella, P. Freitas, R. Lehndorff, W. Rabe, U. Ebels, S. O. Demokritov, J. Akerman, *et al.*, “Opportunities and challenges for spintronics in the microelectronics industry,” *Nature Electronics*, vol. 3, no. 8, pp. 446–459, 2020.
- [19] A. Hirohata, K. Yamada, Y. Nakatani, I.-L. Prejbeanu, B. Diény, P. Pirro, and B. Hillebrands, “Review on spintronics: Principles and device applications,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 509, p. 166711, 2020.
- [20] C. Back, V. Cros, H. Ebert, K. Everschor-Sitte, A. Fert, M. Garst, T. Ma, S. Mankovsky, T. Monchesky, M. Mostovoy, *et al.*, “The 2020 skyrmionics roadmap,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 53, no. 36, p. 363001, 2020.
- [21] P. Gypens, B. Van Waeyenberge, M. Di Ventra, J. Leliaert, and D. Pinna, “Nanomagnetic self-organizing logic gates,” *Physical Review Applied*, vol. 16, no. 2, p. 024055, 2021.
- [22] E. Östman, H. Stopfel, I.-A. Chioar, U. B. Arnalds, A. Stein, V. Kapaklis, and B. Hjörvarsson, “Interaction modifiers in artificial spin ices,” *Nature Physics*, vol. 14, no. 4, pp. 375–379, 2018.

- [23] P. Schiffer and C. Nisoli, “Artificial spin ice: Paths forward,” *Applied Physics Letters*, vol. 118, no. 11, p. 110501, 2021.
- [24] S. H. Skjærvø, C. H. Marrows, R. L. Stamps, and L. J. Heyderman, “Advances in artificial spin ice,” *Nature Reviews Physics*, vol. 2, no. 1, pp. 13–28, 2020.
- [25] L. J. Heyderman, “Spin ice devices from nanomagnets,” *Nature Nanotechnology*, pp. 1–2, 2022.
- [26] N. V. Long, Y. Yang, T. Teranishi, C. M. Thi, Y. Cao, and M. Nogami, “Biomedical applications of advanced multifunctional magnetic nanoparticles,” *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, vol. 15, no. 12, pp. 10091–10107, 2015.
- [27] R. Bjørk and C. R. H. Bahl, “Demagnetization factor for a powder of randomly packed spherical particles,” *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 10, p. 102403, 2013.
- [28] S. A. Majetich and M. Sachan, “Magnetostatic interactions in magnetic nanoparticle assemblies: energy, time and length scales,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 39, no. 21, p. R407, 2006.
- [29] M. Pardavi-Horvath, “Interaction effects in magnetic nanostructures,” *Physica Status Solidi (a)*, vol. 211, no. 5, pp. 1030–1040, 2014.
- [30] C. Nisoli, R. Moessner, and P. Schiffer, “Artificial spin ice: Designing and imaging magnetic frustration,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 85, pp. 1473–1490, Oct 2013.
- [31] S. Bedanta and W. Kleemann, “Supermagnetism,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 42, no. 1, p. 013001, 2008.
- [32] P. Normile, M. S. Andersson, R. Mathieu, S. Lee, G. Singh, and J. De Toro, “Demagnetization effects in dense nanoparticle assemblies,” *Applied Physics Letters*, vol. 109, no. 15, p. 152404, 2016.
- [33] M. Varón, M. Beleggia, T. Kasama, R. Harrison, R. E. Dunin-Borkowski, V. F. Puentes, and C. Frandsen, “Dipolar magnetism in ordered and disordered low-dimensional nanoparticle assemblies,” *Scientific reports*, vol. 3, no. 1, pp. 1–5, 2013.
- [34] G. T. Landi, “Role of dipolar interaction in magnetic hyperthermia,” *Physical Review B*, vol. 89, p. 014403, Jan 2014.
- [35] M. Charilaou, J. Kind, I. García-Rubio, D. Schüler, and A. U. Gehring, “Magnetic anisotropy of non-interacting collinear nanocrystal-chains,” *Applied Physics Letters*, vol. 104, no. 11, p. 112406, 2014.
- [36] T. Maurer, F. Zighem, W. Fang, F. Ott, G. Chaboussant, Y. Soumare, K. A. Atmane, J.-Y. Piquemal, and G. Viau, “Dipolar interactions in magnetic nanowire aggregates,” *Journal of Applied Physics*, vol. 110, no. 12, p. 123924, 2011.
- [37] K. Gandha, K. Elkins, N. Poudyal, X. Liu, and J. P. Liu, “High energy product developed from cobalt nanowires,” *Scientific reports*, vol. 4, no. 1, pp. 1–5, 2014.

- [38] A. Imre, G. Csaba, L. Ji, A. Orlov, G. Bernstein, and W. Porod, “Majority logic gate for magnetic quantum-dot cellular automata,” *Science*, vol. 311, no. 5758, pp. 205–208, 2006.
- [39] G. Csaba, P. Lugli, M. Becherer, D. Schmitt-Landsiedel, and W. Porod, “Field-coupled computing in magnetic multilayers,” *Journal of computational electronics*, vol. 7, no. 3, pp. 454–457, 2008.
- [40] J. W. Lau and J. M. Shaw, “Magnetic nanostructures for advanced technologies: fabrication, metrology and challenges,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, no. 30, p. 303001, 2011.
- [41] T. R. Albrecht, H. Arora, V. Ayanoor-Vitikkate, J.-M. Beaujour, D. Bedau, D. Berman, A. L. Bogdanov, Y.-A. Chapuis, J. Cushen, E. E. Dobisz, *et al.*, “Bit-patterned magnetic recording: Theory, media fabrication, and recording performance,” *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 51, no. 5, pp. 1–42, 2015.
- [42] J. Kim, S. E. Chung, S.-E. Choi, H. Lee, J. Kim, and S. Kwon, “Programming magnetic anisotropy in polymeric microactuators,” *Nature materials*, vol. 10, no. 10, pp. 747–752, 2011.
- [43] S. Bedanta and W. Kleemann, “Supermagnetism,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 42, no. 1, p. 013001, 2009.
- [44] A. Hillion, A. Tamion, F. Tournus, C. Albin, and V. Dupuis, “From vanishing interaction to superferromagnetic dimerization: Experimental determination of interaction lengths for embedded co clusters,” *Physical Review B*, vol. 95, p. 134446, 2017.
- [45] H. Saglam, A. Duzgun, A. Kargioti, N. Harle, X. Zhang, N. S. Bingham, Y. Lao, I. Gilbert, J. Sklenar, J. D. Watts, *et al.*, “Entropy-driven order in an array of nanomagnets,” *Nature Physics*, pp. 1–7, 2022.
- [46] G. Salas, J. Camarero, D. Cabrera, H. Takacs, M. Varela, R. Ludwig, H. Dähring, I. Hilger, R. Miranda, M. d. P. Morales, and F. J. Teran, “Modulation of magnetic heating via dipolar magnetic interactions in monodisperse and crystalline iron oxide nanoparticles,” *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 118, no. 34, pp. 19985–19994, 2014.
- [47] S. Ruta, R. Chantrell, and O. Hovorka, “Unified model of hyperthermia via hysteresis heating in systems of interacting magnetic nanoparticles,” *Scientific Reports*, vol. 5, pp. 9090 EP –, 03 2015.
- [48] D. F. Coral, P. Mendoza Zélis, M. Marciello, M. d. P. Morales, A. Craievich, F. H. Sánchez, and M. B. Fernández van Raap, “Effect of nanoclustering and dipolar interactions in heat generation for magnetic hyperthermia,” *Langmuir*, vol. 32, no. 5, pp. 1201–1213, 2016. PMID: 26751761.

- [49] J. M. Orozco-Henao, D. F. Coral, D. Muraca, O. Moscoso-Londoño, P. Mendoza Zélis, M. B. Fernandez van Raap, S. K. Sharma, K. R. Pirota, and M. Knobel, “Effects of nanostructure and dipolar interactions on magnetohyperthermia in iron oxide nanoparticles,” *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 120, no. 23, pp. 12796–12809, 2016.
- [50] B. D. Cullity and C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*. John Wiley & Sons, 2011.
- [51] E. M. Purcell, *Electricity and magnetism*, vol. 2 of *Berkeley physics course*. Mcgraw-hill, 1963.
- [52] K. M. Krishnan, *Fundamentals and applications of magnetic materials*. Oxford University Press, 2016.
- [53] J. M. Coey, *Magnetism and magnetic materials*. Cambridge university press, 2010.
- [54] S. Tumanski, *Handbook of magnetic measurements*. CRC press, 2016.
- [55] A. Aharoni *et al.*, *Introduction to the Theory of Ferromagnetism*, vol. 109. Clarendon Press, 2000.
- [56] W. F. Brown, *Magnetostatic principles in ferromagnetism*, vol. 1. North-Holland Publishing Company, 1962.
- [57] J. A. Ewing, *Magnetic induction in iron and other metals*. D. Van Nostrand Company, 1900.
- [58] G. Bertotti, *Hysteresis in magnetism: for physicists, materials scientists, and engineers*. Gulf Professional Publishing, 1998.
- [59] E. C. Stoner and E. Wohlfarth, “A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, vol. 240, no. 826, pp. 599–642, 1948.
- [60] J. Frenkel and J. Doefman, “Spontaneous and induced magnetisation in ferromagnetic bodies,” *Nature*, vol. 126, no. 3173, pp. 274–275, 1930.
- [61] C. Kittel, J. Galt, and W. Campbell, “Crucial experiment demonstrating single domain property of fine ferromagnetic powders,” *Physical Review*, vol. 77, no. 5, p. 725, 1950.
- [62] C. Kittel, “Theory of the structure of ferromagnetic domains in films and small particles,” *Physical Review*, vol. 70, no. 11-12, p. 965, 1946.
- [63] E. Stoner and E. Wohlfarth, “A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys,” *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 27, no. 4, pp. 3475–3518, 1991.
- [64] C. Kittel, “Fifty years of ferromagnetic single-domain theory,” *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol. 103, no. B12, pp. 30533–30536, 1998.

- [65] S. Odenbach, *Colloidal magnetic fluids: basics, development and application of ferrofluids*, vol. 763. Springer, 2009.
- [66] R. C. O’handley, *Modern magnetic materials: principles and applications*. Wiley, 2000.
- [67] J. De Clercq, *Modelling antiferromagnetic interfaces with MuMax3*. PhD thesis, Ghent University, 2017.
- [68] S. Blundell, “Magnetism in condensed matter,” *American Journal of Physics*, vol. 71, pp. 94–95, 2003.
- [69] D. L. Atherton and J. Beattie, “A mean field stoner-wohlfarth hysteresis model,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 26, no. 6, pp. 3059–3063, 1990.
- [70] D. C. Jiles and D. L. Atherton, “Theory of ferromagnetic hysteresis,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 61, no. 1-2, pp. 48–60, 1986.
- [71] X.-d. Che and H. N. Bertram, “Phenomenology of δm curves and magnetic interactions,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 116, no. 1-2, pp. 121–127, 1992.
- [72] R. J. van de Veerdonk, X. Wu, and D. Weller, “Switching field distributions and δm measurements for perpendicular media,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 38, no. 5, pp. 2450–2452, 2002.
- [73] R. J. van de Veerdonk, X. Wu, and D. Weller, “Determination of switching field distributions for perpendicular recording media,” *ieee transactions on magnetics*, vol. 39, no. 1, pp. 590–593, 2003.
- [74] X. Wu and R. J. van de Veerdonk, “Investigation on the mean field assumptions for switching field distribution measurements,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 44, no. 3, pp. 336–339, 2008.
- [75] J. M. Martinez-Huerta, J. D. L. T. Medina, L. Piraux, and A. Encinas, “Configuration dependent demagnetizing field in assemblies of interacting magnetic particles,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 25, no. 22, p. 226003, 2013.
- [76] H. Yang, Y. Chen, S. H. Leong, C. An, K. Ye, J. Zhang, and J. Hu, “Method for measurement of switching-field distribution of heat-assisted magnetic recording media,” *IEEE Magnetism Letters*, vol. 6, pp. 1–4, 2015.
- [77] R. J. van de Veerdonk, X. Wu, and D. Weller, “Determination of switching field distributions for perpendicular recording media,” *ieee transactions on magnetics*, vol. 39, no. 1, pp. 590–593, 2003.
- [78] X. Wu and R. J. van de Veerdonk, “Investigation on the mean field assumptions for switching field distribution measurements,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 44, no. 3, pp. 336–339, 2008.

- [79] J. M. Martínez Huerta, J. De La Torre Medina, L. Piraux, and A. Encinas, “Self consistent measurement and removal of the dipolar interaction field in magnetic particle assemblies and the determination of their intrinsic switching field distribution,” *Journal of Applied Physics*, vol. 111, no. 8, p. 083914, 2012.
- [80] A. Berger, Y. Xu, B. Lengsfeld, Y. Ikeda, and E. Fullerton, “ $\delta h(m, \delta m)$ method for the determination of intrinsic switching field distributions in perpendicular media,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 41, no. 10, pp. 3178–3180, 2005.
- [81] A. Berger, B. Lengsfeld, and Y. Ikeda, “Determination of intrinsic switching field distributions in perpendicular recording media,” *Journal of applied physics*, vol. 99, no. 8, p. 08E705, 2006.
- [82] I. Tagawa and Y. Nakamura, “Relationships between high density recording performance and particle coercivity distribution,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 27, no. 6, pp. 4975–4977, 1991.
- [83] O. Horkova, K. Dahmen, and A. Berger, “Simultaneous determination of intergranular interactions and intrinsic switching field distributions in magnetic materials,” *Applied Physics Letters*, vol. 95, p. 192504, 2009.
- [84] H. Nemoto, I. Takekuma, H. Nakagawa, T. Ichihara, R. Araki, and Y. Hosoe, “Designing magnetism of capped perpendicular media with minor-loop analysis,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 320, no. 22, pp. 3144–3150, 2008.
- [85] S. Pisana, O. Mosendz, G. Parker, J. Reiner, T. Santos, A. McCallum, H. Richter, and D. Weller, “Effects of grain microstructure on magnetic properties in feptag-c media for heat assisted magnetic recording,” *Journal of Applied Physics*, vol. 113, no. 4, p. 043910, 2013.
- [86] D. Weller, O. Mosendz, G. Parker, S. Pisana, and T. S. Santos, “L10 fe p t x-y media for heat-assisted magnetic recording,” *physica status solidi (a)*, vol. 210, no. 7, pp. 1245–1260, 2013.
- [87] J.-L. Tsai, S.-M. Weng, C. Dai, J.-Y. Chen, X.-C. Lu, and T.-W. Hsu, “Temperature dependence and microstructure effects on magnetic properties of fept (b, ag, c) film,” *Nanomaterials*, vol. 11, no. 2, p. 419, 2021.
- [88] J.-L. Tsai, C.-Y. Sun, J.-K. Lin, G.-J. Huang, K.-C. Liu, and H.-T. Tsai, “Switching field distribution in bn/feptcag/mgtn and feptcag/mgtiobn films,” *Nanomaterials*, vol. 12, no. 5, p. 874, 2022.
- [89] T. Hauet, L. Piraux, S. Srivastava, V. Antohe, D. Lacour, M. Hehn, F. Montaigne, J. Schwenk, M. Marioni, H. Hug, *et al.*, “Reversal mechanism, switching field distribution, and dipolar frustrations in co/pt bit pattern media based on auto-assembled anodic alumina hexagonal nanobump arrays,” *Physical Review B*, vol. 89, no. 17, p. 174421, 2014.

- [90] C. Papusoi, M. Desai, S. Ruta, and R. W. Chantrell, "Magnetic properties of granular 110 nm films for heat-assisted magnetic recording (HAMR) applications," in *Magnetic Measurement Techniques for Materials Characterization*, pp. 751–770, Springer, 2021.
- [91] C. Papusoi, S. Jain, H. Yuan, M. Desai, and R. Acharya, "Thermal stability and magnetization reversal mechanism in granular 110 nm thin films," *Journal of Applied Physics*, vol. 122, no. 12, p. 123906, 2017.
- [92] C. Papusoi, T. Le, P.-O. Jubert, D. Oswald, B. Ozdol, D. Tripathy, P. Dorsey, and M. Desai, "110 nm films with high t_c capping layer for heat assisted magnetic recording (HAMR)," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 483, pp. 249–265, 2019.
- [93] C.-I. Dobrotă and A. Stancu, "What does a first-order reversal curve diagram really mean? a study case: Array of ferromagnetic nanowires," *Journal of Applied Physics*, vol. 113, p. 043928, 2013.
- [94] I. D. Mayergoyz, *Mathematical models of hysteresis and their applications*. Academic press, 2003.
- [95] A. Stancu, C. Pike, L. Stoleriu, P. Postolache, and D. Cimpoesu, "Micromagnetic and Preisach analysis of the first order reversal curves (FORC) diagram," *Journal of Applied Physics*, vol. 93, no. 10, pp. 6620–6622, 2003.
- [96] R. Pike, C. Ross, R. Scalettar, and G. Zimanyi, "First-order reversal curve diagram analysis of a perpendicular nickel nanopillar array," *Physical Review B*, vol. 71, p. 134407, 2005.
- [97] C. Papusoi, K. Srinivasan, and R. Acharya, "Study of grain interactions in perpendicular magnetic recording media using first order reversal curve diagrams," *Journal of Applied Physics*, vol. 110, no. 8, p. 083908, 2011.
- [98] Y. Velazquez, A. Lobo-Gerrero, J. M. Martinez, E. Araujo, M. Tabasum, B. Nysten, L. Piroux, and A. Encinas, "Relation of the average interaction field with the coercive and interaction field distributions in first order reversal curve diagrams of nanowire arrays," *Scientific reports*, vol. 10, p. 21396, 2020.
- [99] R. Chantrell, "The magnetic properties of textured fine particle systems," *Textures and Microstructures*, vol. 11, p. 107, 1989.
- [100] I. Panagiotopoulos, W. Fang, K. Ait-Atmane, J.-Y. Piquemal, G. Viau, F. Dalmas, F. Boué, and F. Ott, "Low dipolar interactions in dense aggregates of aligned magnetic nanowires," *Journal of Applied Physics*, vol. 114, no. 23, p. 233909, 2013.
- [101] A. R. Corradi and E. P. Wohlfarth, "Influence of densification on the remanence, the coercivities and the interaction field of elongated γ -Fe₂O₃ powders," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 14, pp. 861–863, 1978.

- [102] N. Alvarez, E. Leva, R. Valente, M. Mansilla, J. Gomez, J. Milano, and A. Butera, "Correlation between magnetic interactions and domain structure in 11 nm ferromagnetic thin films," *Journal of Applied Physics*, vol. 115, p. 083907, 2014.
- [103] P. E. Kelly, K. O'Grady, P. I. Mayo, and R. W. Chantrell, "Switching mechanisms in cobalt-phosphorus thin films," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 25, no. 5, pp. 3881–3883, 1989.
- [104] R. J. Veitch, "Anhysteretic susceptibility and static magnetic properties of interacting small particles," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 26, no. 5, pp. 1876–1878, 1990.
- [105] J. W. Harrell, D. Richards, and M. R. Parker, "Delta-h plot evaluation of remanence behavior in barium ferrite tapes and disks," *Journal of Applied Physics*, vol. 73, no. 10, pp. 6722–6724, 1993.
- [106] E. Araujo, J. M. Martínez-Huerta, L. Piraux, and A. Encinas, "Quantification of the interaction field in arrays of magnetic nanowires from the remanence curves," *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, vol. 31, no. 12, pp. 3981–3987, 2018.
- [107] A. Encinas-Oropesa, M. Demand, L. Piraux, I. Huynen, and U. Ebels, "Dipolar interactions in arrays of nickel nanowires studied by ferromagnetic resonance," *Phys. Rev. B*, vol. 63, p. 104415, Feb 2001.
- [108] J. De La Torre Medina, L. Piraux, J. M. Olais Govea, and A. Encinas, "Double ferromagnetic resonance and configuration-dependent dipolar coupling in unsaturated arrays of bistable magnetic nanowires," *Phys. Rev. B*, vol. 81, p. 144411, Apr 2010.
- [109] J. De La Torre Medina, L. Piraux, and A. Encinas, "Tunable zero field ferromagnetic resonance in arrays of bistable magnetic nanowires," *Applied Physics Letters*, vol. 96, no. 4, p. 042504, 2010.
- [110] T. Wang, Y. Wang, Y. Fu, T. Hasegawa, H. Oshima, K. Itoh, K. Nishio, H. Masuda, F. S. Li, H. Saito, and S. Ishio, "Magnetic behavior in an ordered co nanorod array," *Nanotechnology*, vol. 19, no. 45, p. 455703, 2008.
- [111] J. Yuan, W. Pei, T. Hasagawa, T. Washiya, H. Saito, S. Ishio, H. Oshima, and K.-i. Itoh, "Study on magnetization reversal of cobalt nanowire arrays by magnetic force microscopy," *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 320, no. 5, pp. 736–741, 2008.
- [112] T. Wang, Y. Wang, Y. Fu, T. Hasegawa, T. Washiya, H. Saito, S. Ishio, F. Li, H. Oshima, K. Itoh, *et al.*, "In-field magnetic force microscope study of dipolar interaction in an ideally ordered co nanorod array fabricated using nanoimprint lithography," *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 19, p. 192504, 2008.
- [113] A. Dobrynin, T. Gao, N. Dempsey, and D. Givord, "Experimental determination of the magnetization dependent part of the demagnetizing field in hard magnetic materials," *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 19, p. 192506, 2010.

- [114] A. Dobrynin, V. Barthém, and D. Givord, “Revisiting magnetization processes in granular hard magnetic materials,” *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 5, p. 052511, 2009.
- [115] J. M. Martínez-Huerta, *Tesis de Doctorado*, Interacción dipolar y campo desmagnetizante efectivo en ensambles de partículas magnéticas bi-estables. Instituto de Física, Universidad Autónoma de San Luis Potosí, 2013.
- [116] C. R. Pike, A. P. Roberts, and K. L. Verosub, “Characterizing interactions in fine magnetic particle systems using first order reversal curves,” *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 9, pp. 6660–6667, 1999.
- [117] F. Béron, L. Clime, M. Ciureanu, D. Ménard, R. W. Cochrane, and A. Yelon, “Magnetostatic interactions and coercivities of ferromagnetic soft nanowires in uniform length arrays,” *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, vol. 8, no. 6, pp. 2944–2954, 2008.
- [118] J. M. Martínez-Huerta, J. D. L. T. Medina, L. Piroux, and A. Encinas, “Configuration dependent demagnetizing field in assemblies of interacting magnetic particles,” *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 25, no. 22, p. 226003, 2013.
- [119] C. Sousa, D. Leitao, M. Proenca, J. Ventura, A. Pereira, and J. Araujo, “Nanoporous alumina as templates for multifunctional applications,” *Applied Physics Reviews*, vol. 1, no. 3, p. 031102, 2014.
- [120] R. Egli, “Theoretical considerations on the anhysteretic remanent magnetization of interacting particles with uniaxial anisotropy,” *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol. 111, no. B12, 2006.
- [121] R. Egli, “Theoretical aspects of dipolar interactions and their appearance in first-order reversal curves of thermally activated single-domain particles,” *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, vol. 111, no. B12, 2006.
- [122] M. Winklhofer and G. T. Zimanyi, “Extracting the intrinsic switching field distribution in perpendicular media: A comparative analysis,” *Journal of Applied Physics*, vol. 99, no. 8, p. 08E710, 2006.
- [123] I. Jacobs and C. Bean, “An approach to elongated fine-particle magnets,” *Physical Review*, vol. 100, no. 4, p. 1060, 1955.
- [124] D. Gandia Aguado, L. Gandarias Albaina, I. Rodrigo Arrizabalaga, J. Robles García, R. Das, E. Garaio Urabaien, J. A. García Martínez, M. H. Phan, H. Srikanth, I. Orue Goikuria, *et al.*, “Unlocking the potential of magnetotactic bacteria as magnetic hyperthermia agents,” 2019.
- [125] M. Gao, M. Kuang, L. Li, M. Liu, L. Wang, and Y. Song, “Printing 1d assembly array of single particle resolution for magnetosensing,” *Small*, vol. 14, no. 19, p. 1800117, 2018.

- [126] A. Kovács and R. E. Dunin-Borkowski, “Magnetic imaging of nanostructures using off-axis electron holography,” in *Handbook of Magnetic Materials*, vol. 27, pp. 59–153, Elsevier, 2018.
- [127] A. R. Mohtasebzadeh, J. C. Davidson, K. L. Livesey, and T. M. Crawford, “Tunability and ordering in 2d arrays of magnetic nanoparticles assembled via extreme field gradients,” *Advanced Materials Interfaces*, vol. 9, no. 26, p. 2201056, 2022.
- [128] L.-M. Wang, A. Qdemat, O. Petravic, E. Kentzinger, U. Rücker, F. Zheng, P.-H. Lu, X.-K. Wei, R. E. Dunin-Borkowski, and T. Brückel, “Manipulation of dipolar magnetism in low-dimensional iron oxide nanoparticle assemblies,” *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 21, no. 11, pp. 6171–6177, 2019.
- [129] A. Fabian, M. T. Elm, D. M. Hofmann, and P. J. Klar, “Hierarchical structures of magnetic nanoparticles for controlling magnetic interactions on three different length scales,” *Journal of Applied Physics*, vol. 121, no. 22, 2017.
- [130] C. Jiang, D. Oshima, S. Iwata, P. W. Pong, and T. Kato, “Patterned arrays of assembled nanoparticles prepared by interfacial assembly and femtosecond laser fabrication,” *Journal of Nanoparticle Research*, vol. 22, pp. 1–12, 2020.
- [131] T. Wen, Y. Li, D. Zhang, Q. Zhan, Q. Wen, Y. Liao, Y. Xie, H. Zhang, C. Liu, L. Jin, *et al.*, “Manipulate the magnetic anisotropy of nanoparticle assemblies in arrays,” *Journal of colloid and interface science*, vol. 497, pp. 14–22, 2017.
- [132] M. El-Hilo, R. Chantrell, and K. O’grady, “A model of interaction effects in granular magnetic solids,” *Journal of applied physics*, vol. 84, no. 9, pp. 5114–5122, 1998.
- [133] C. Abert, “Micromagnetics and spintronics: models and numerical methods,” *The European Physical Journal B*, vol. 92, pp. 1–45, 2019.
- [134] J. Leliaert and J. Mulkers, “Tomorrow’s micromagnetic simulations,” *Journal of Applied Physics*, vol. 125, no. 18, 2019.
- [135] R. Bjørk, E. B. Poulsen, K. K. Nielsen, and A. R. Insinga, “Magtense: A micromagnetic framework using the analytical demagnetization tensor,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 535, p. 168057, 2021.
- [136] B. Bleaney and R. Hull, “The effective susceptibility of a paramagnetic powder,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, vol. 178, no. 972, pp. 86–92, 1941.
- [137] R. Skomski and J. Coey, *Permanent magnetism*. Routledge, 2019.
- [138] P. S. Normile, M. S. Andersson, R. Mathieu, S. S. Lee, G. Singh, and J. A. D. Toro, “Demagnetization effects in dense nanoparticle assemblies,” *Applied Physics Letters*, vol. 109, p. 152404, 2016.
- [139] R. Bjørk and C. R. Bahl, “Demagnetization factor for a powder of randomly packed spherical particles,” *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 10, 2013.

- [140] U. Netzelmann, “Ferromagnetic resonance of particulate magnetic recording tapes,” *Journal of applied physics*, vol. 68, no. 4, pp. 1800–1807, 1990.
- [141] J. Dubowik, “Shape anisotropy of magnetic heterostructures,” *Physical Review B*, vol. 54, no. 2, p. 1088, 1996.
- [142] J. Dubowik, “Erratum: Shape anisotropy of magnetic heterostructures [phys. rev. b 54, 1088 (1996)],” *Physical Review B*, vol. 62, no. 1, p. 727, 2000.
- [143] L.-P. Carignan, C. Lacroix, A. Ouimet, M. Ciureanu, A. Yelon, and D. Ménard, “Magnetic anisotropy in arrays of ni, cofeb, and ni/cu nanowires,” *Journal of applied physics*, vol. 102, no. 2, 2007.
- [144] F. Zighem, T. Maurer, F. Ott, and G. Chaboussant, “Dipolar interactions in arrays of ferromagnetic nanowires: A micromagnetic study,” *Journal of Applied Physics*, vol. 109, no. 1, 2011.
- [145] A. Thomas, R. Chantrell, M. El-Hilo, P. Haycock, and K. O’Grady, “Calculation of fmr in interacting fine particle systems,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 151, no. 1-2, pp. 54–58, 1995.
- [146] V. Ignatchenko, I. Edelman, and D. Petrov, “Magnetostatic fields in planar assemblies of magnetic nanoparticles,” *Physical Review B*, vol. 81, no. 5, p. 054419, 2010.
- [147] R. Skomski, G. C. Hadjipanayis, and D. J. Sellmyer, “Effective demagnetizing factors of complicated particle mixtures,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 43, no. 6, pp. 2956–2958, 2007.
- [148] V. Vega, T. Böhnert, S. Martens, M. Waleczek, J. M. Montero-Moreno, D. Görlitz, V. Prida, and K. Nielsch, “Tuning the magnetic anisotropy of co–ni nanowires: Comparison between single nanowires and nanowire arrays in hard-anodic aluminum oxide membranes,” *Nanotechnology*, vol. 23, no. 46, p. 465709, 2012.
- [149] L. Piroux, A. Encinas, L. Vila, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, M. Darques, F. Elhoussine, and S. Michotte, “Magnetic and superconducting nanowires,” *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, vol. 5, no. 3, pp. 372–389, 2005.
- [150] N. Lupu, *Electrodeposited nanowires and their applications*. BoD–Books on Demand, 2010.
- [151] D. A. Skoog, F. J. Holler, and T. A. Nieman, *Principios de análisis instrumental*. Cengage Learning México eD. FDF, 2008.
- [152] A. Berger, Y. Xu, B. Lengsfeld, Y. Ikeda, and E. Fullerton, “ ΔH (mT) method for the determination of intrinsic switching field distributions in perpendicular media,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 41, no. 10, pp. 3178–3180, 2005.

- [153] X. Zhao, D. Heslop, and A. P. Roberts, “A protocol for variable-resolution first-order reversal curve measurements,” *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, vol. 16, no. 5, pp. 1364–1377, 2015.
- [154] E. De Biasi, “Faster modified protocol for first order reversal curve measurements,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 439, pp. 259–268, 2017.
- [155] S. Hinata, S. Saito, N. Itagaki, and M. Takahashi, “Effective switching field distribution evaluation using saturation field in minor loop,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 47, no. 10, pp. 3951–3954, 2011.
- [156] S. Hinata, S. Saito, N. Itagaki, and M. Takahashi, “Effective switching field distribution evaluation using saturation field in minor loop,” *IEEE Transactions on Magnetism*, vol. 48, no. 3, pp. 1248–1251, 2012.
- [157] E. A. Périgo, B. Weidenfeller, P. Kollár, and J. Füzer, “Past, present, and future of soft magnetic composites,” *Appl. Phys. Rev.*, vol. 5, p. 031301, Sept. 2018.
- [158] O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Brück, C. H. Chen, S. G. Sankar, and J. P. Liu, “Magnetic Materials and Devices for the 21st Century: Stronger, Lighter, and More Energy Efficient,” *Adv. Mater.*, vol. 23, pp. 821–842, Feb. 2011.
- [159] J. M. Silveyra, E. Ferrara, D. L. Huber, and T. C. Monson, “Soft magnetic materials for a sustainable and electrified world,” *Science*, vol. 362, no. 6413, p. eaao0195, 2018.
- [160] B. Duong, H. Khurshid, P. Gangopadhyay, J. Devkota, K. Stojak, H. Srikanth, L. Tettard, R. A. Norwood, N. Peyghambarian, M.-H. Phan, and J. Thomas, “Enhanced magnetism in highly ordered magnetite nanoparticle-filled nanohole arrays,” *Small*, vol. 10, p. 2840, 2014.
- [161] Q. Li, C. W. Kartikowati, T. Iwaki, K. Okuyama, and T. Ogi, “Enhanced magnetic performance of aligned wires assembled from nanoparticles: from nanoscale to macroscale,” *R. Soc. Open Sci.*, vol. 7, p. 191656, Apr. 2020.
- [162] V. Merk, M. Chanana, N. Gierlinger, A. M. Hirt, and I. Burgert, “Hybrid Wood Materials with Magnetic Anisotropy Dictated by the Hierarchical Cell Structure,” *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 6, pp. 9760–9767, June 2014.
- [163] K. N. Al-Milaji, R. L. Hadimani, S. Gupta, V. K. Pecharsky, and H. Zhao, “Inkjet Printing of Magnetic Particles Toward Anisotropic Magnetic Properties,” *Sci. Rep.*, vol. 9, pp. 1–9, Nov. 2019.
- [164] K. Deng, Z. Luo, L. Tan, and Z. Quan, “Self-assembly of anisotropic nanoparticles into functional superstructures,” *Chem. Soc. Rev.*, vol. 49, pp. 6002–6038, Aug. 2020.
- [165] H. Gavilán, K. Simeonidis, E. Myrovali, E. Mazarío, O. Chubykalo-Fesenko, R. Chantrell, Ll. Balcells, M. Angelakeris, M. P. Morales, and D. Serantes, “How size, shape and assembly of magnetic nanoparticles give rise to different hyperthermia scenarios,” *Nanoscale*, vol. 13, no. 37, pp. 15631–15646, 2021.

- [166] E. H. Sánchez, M. Vasilakaki, S. S. Lee, P. S. Normile, M. S. Andersson, R. Mathieu, A. López-Ortega, B. P. Pichon, D. Peddis, C. Binns, P. Nordblad, K. Trohidou, J. Nogué, and J. A. De Toro, “Crossover From Individual to Collective Magnetism in Dense Nanoparticle Systems: Local Anisotropy Versus Dipolar Interactions,” *Small*, vol. 18, p. 2106762, July 2022.
- [167] S. Singh, Y. Mollet, and J. Gyselinck, “Numerical Modeling of the Soft Magnetic Composite Material,” in *2019 Electric Vehicles International Conference (EV)*, pp. 1–5, IEEE, Oct. 2019.
- [168] B. Nam, J. Kim, and K. Ki Hyeon, “Analysis of effective permeability behaviors of magnetic hollow fibers filled in composite,” *Journal of Applied Physics*, vol. 111, p. 07E347, 2012.
- [169] M. Sato and Y. Ishii, “Simple and approximate expressions of demagnetizing factors of uniformly magnetized rectangular rod and cylinder,” *Journal of Applied Physics*, vol. 66, p. 983, 1989.
- [170] Y. Velázquez-Galván and A. Encinas, “Analytical magnetostatic model for 2d arrays of interacting magnetic nanowires and nanotubes,” *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 22, no. 23, pp. 13320–13328, 2020.
- [171] S. Pal, S. Chandra, M.-H. Phan, P. Mukherjee, and H. Srikanth, “Carbon nanostraws: nanotubes filled with superparamagnetic nanoparticles,” *Nanotechnology*, vol. 20, no. 48, p. 485604, 2009.
- [172] J. S. Segmehl, A. Laromaine, T. Keplinger, A. May-Masnou, I. Burgert, and A. Roig, “Magnetic wood by in situ synthesis of iron oxide nanoparticles via a microwave-assisted route,” *J. Mater. Chem. C*, vol. 6, pp. 3395–3402, Mar. 2018.
- [173] J. K. Spong, R. Fontana, M. M. Dovek, T. Hylton, *et al.*, “Giant magnetoresistive spin valve bridge sensor,” *IEEE transactions on magnetics*, vol. 32, no. 2, pp. 366–371, 1996.
- [174] J. Cruz and R. Figueiro, “Surface modification of natural fibers: a review,” *Procedia Engineering*, vol. 155, pp. 285–288, 2016.
- [175] N. M. Noor, R. Othman, N. Mubarak, and E. C. Abdullah, “Agricultural biomass-derived magnetic adsorbents: Preparation and application for heavy metals removal,” *Journal of the Taiwan institute of chemical engineers*, vol. 78, pp. 168–177, 2017.
- [176] A. Mersani, O. Lotfi, and J.-M. Ribero, “Design of a textile antenna with artificial magnetic conductor for wearable applications,” *Microwave and Optical Technology Letters*, vol. 60, no. 6, pp. 1343–1349, 2018.
- [177] Y. Zhou, W. Zhu, L. Zhang, J. Gong, D. Zhao, M. Liu, L. Lin, Q. Meng, R. Thompson, and Y. Sun, “Magnetic properties of smart textile fabrics through a coating method with ndfeb flake-like microparticles,” *Journal of Engineered Fibers and Fabrics*, vol. 14, p. 1558925019865708, 2019.

- [178] H. S. Lee, D. Cho, and S. O. Han, "Effect of natural fiber surface treatments on the interfacial and mechanical properties of henequen/polypropylene biocomposites," *Macromolecular Research*, vol. 16, no. 5, pp. 411–417, 2008.
- [179] P. Herrera-Franco and A. Valadez-Gonzalez, "A study of the mechanical properties of short natural-fiber reinforced composites," *Composites Part B: Engineering*, vol. 36, no. 8, pp. 597–608, 2005.
- [180] J. Wang and Y. Zheng, "Oil/water mixtures and emulsions separation of stearic acid-functionalized sponge fabricated via a facile one-step coating method," *Separation and Purification Technology*, vol. 181, pp. 183–191, 2017.
- [181] Y. Chen, X. Zhang, B. Wang, M. Lv, Y. Zhu, and J. Gao, "Fabrication and characterization of novel shape-stabilized stearic acid composite phase change materials with tannic-acid-templated mesoporous silica nanoparticles for thermal energy storage," *RSC advances*, vol. 7, no. 26, pp. 15625–15631, 2017.
- [182] S. J. Charde, S. S. Sonawane, S. H. Sonawane, and S. Navin, "Influence of functionalized calcium carbonate nanofillers on the properties of melt-extruded polycarbonate composites," *Chemical Engineering Communications*, vol. 205, no. 4, pp. 492–505, 2018.
- [183] M. Imran, A. R. Ansari, A. H. Shaik, S. Hussain, A. Khan, M. R. Chandan, *et al.*, "Ferrofluid synthesis using oleic acid coated Fe_3O_4 nanoparticles dispersed in mineral oil for heat transfer applications," *Materials Research Express*, vol. 5, no. 3, p. 036108, 2018.
- [184] R. Mallampati, K. S. Tan, and S. Valiyaveetil, "Utilization of corn fibers and luffa peels for extraction of pollutants from water," *International Biodeterioration & Biodegradation*, vol. 103, pp. 8–15, 2015.
- [185] X. Li, Q. Yang, Y. Zhai, and H. Li, "An efficient ce-bioi/luffa photocatalyst with enhanced visible light photocatalytic activity for organic dyes degradation," *Materials Research Express*, vol. 6, no. 4, p. 045911, 2019.
- [186] G. Deschamps, H. Caruel, M.-E. Borredon, C. Bonnin, and C. Vignoles, "Oil removal from water by selective sorption on hydrophobic cotton fibers. 1. study of sorption properties and comparison with other cotton fiber-based sorbents," *Environmental science & technology*, vol. 37, no. 5, pp. 1013–1015, 2003.
- [187] D. Li, F. Z. Zhu, J. Y. Li, P. Na, and N. Wang, "Preparation and characterization of cellulose fibers from corn straw as natural oil sorbents," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 52, no. 1, pp. 516–524, 2013.
- [188] G. A. El-Din, A. Amer, G. Malsh, and M. Hussein, "Study on the use of banana peels for oil spill removal," *Alexandria engineering journal*, vol. 57, no. 3, pp. 2061–2068, 2018.

- [189] T. Q. Bui, S. N.-C. Ton, A. T. Duong, and H. T. Tran, “Size-dependent magnetic responsiveness of magnetite nanoparticles synthesised by co-precipitation and solvothermal methods,” *Journal of Science: Advanced Materials and Devices*, vol. 3, no. 1, pp. 107–112, 2018.
- [190] J. Sung Lee, J. Myung Cha, H. Young Yoon, J.-K. Lee, and Y. Keun Kim, “Magnetic multi-granule nanoclusters: A model system that exhibits universal size effect of magnetic coercivity,” *Scientific reports*, vol. 5, no. 1, pp. 1–7, 2015.
- [191] W. Gan, L. Gao, S. Xiao, W. Zhang, X. Zhan, and J. Li, “Transparent magnetic wood composites based on immobilizing Fe_3O_4 nanoparticles into a delignified wood template,” *Journal of materials science*, vol. 52, pp. 3321–3329, 2017.
- [192] Z. Lou, Y. Zhang, M. Zhou, H. Han, J. Cai, L. Yang, C. Yuan, and Y. Li, “Synthesis of magnetic wood fiber board and corresponding multi-layer magnetic composite board, with electromagnetic wave absorbing properties,” *Nanomaterials*, vol. 8, no. 6, p. 441, 2018.
- [193] H. Oka, K. Narita, H. Osada, and K. Seki, “Experimental results on indoor electromagnetic wave absorber using magnetic wood,” *Journal of Applied Physics*, vol. 91, no. 10, pp. 7008–7010, 2002.
- [194] H. Oka, A. Hojo, H. Osada, Y. Namizaki, and H. Taniuchi, “Manufacturing methods and magnetic characteristics of magnetic wood,” *Journal of magnetism and magnetic materials*, vol. 272, pp. 2332–2334, 2004.
- [195] H. Oka and H. Fujita, “Experimental study on magnetic and heating characteristics of magnetic wood,” *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 8, pp. 5732–5734, 1999.
- [196] H. Oka, A. Hojo, K. Seki, and T. Takashiba, “Wood construction and magnetic characteristics of impregnated type magnetic wood,” *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 239, no. 1-3, pp. 617–619, 2002.