

Raport științific intermediar

privind implementarea proiectului în anul 2015

pentru proiectul intitulat:

Modelarea teoretică a comportării magnetice a firelor submicronice și nanofirelor feromagnetice amorse obținute prin răcire rapidă

Theoretical Modeling of the Magnetic Behavior of Rapidly Solidified Ferromagnetic Amorphous Submicron Wires and Nanowires

Cod proiect: PN-II-ID-PCE-2012-4-0424

Contract nr. 46/2013

Cuprins

1. Obiectivele proiectului	3
2. Rezumatul activităților din primele două etape ale proiectului (anii 2013 și 2014)	3
2.1. Etapa a 1-a (2013)	3
2.2. Etapa a 2-a (2014)	5
3. Activități realizate în etapa a 3-a a proiectului (anul 2015)	10
3.1. Obiectivul etapei a 3-a (2015)	10
3.2. Simularea numerică a histerezisului magnetic în nanofire și fire submicronice cu magnetostricțiune aproape nulă ($\lambda \approx 0$). Dezvoltarea codului micromagnetic.	10
3.3. Simularea numerică a ciclurilor de histerezis în cazul nanofirelor amorfe și a firelor submicronice cu magnetostricțiune ridicată ($\lambda \gg 0$).	17
4. Concluzii. Diseminarea rezultatelor	22

1. Obiectivele proiectului

Obiectivul principal al acestui proiect îl constituie realizarea unui model complet pentru descrierea comportării magnetice a firelor submicronice și a nanofirelor amorfe acoperite cu sticlă obținute prin răcire rapidă din topitură. Acest obiectiv principal are în vedere două direcții majore:

(i) modelarea analitică a structurilor lor de domenii magnetice și a distribuțiilor de anizotropie magnetică; și

(ii) simularea numerică a ciclurilor de histerezis magnetic din firele submicronice și nanofirele amorfe obținute prin răcire rapidă.

Obiectivul asociat îl constituie verificarea experimentală a modelelor realizate.

2. Rezumatul activităților din primele două etape ale proiectului (anii 2013 și 2014)

2.1. Etapa a 1-a (2013)

În prima etapă a proiectului (septembrie – decembrie 2013), am finalizat lucrările la prima activitate prevăzută, cu titlul *„Calculul distribuției radiale a componentelor tensorului tensiunilor interne induse în timpul preparării firelor submicronice și a nanofirelor prin răcire rapidă având diferite dimensiuni (miezul metalic între 50 și 950 nm și grosimea sticlei între 1 și 20 micrometri)”. Această activitate a reprezentat un prim pas către atingerea primului obiectiv specific asumat, și anume calculul analitic al termenilor magnetostatic și magnetoelastic pentru eșantioane cu diferite compoziții și dimensiuni.*

Am calculat distribuțiile tensiunilor interne pentru fire magnetice amorfe preparate prin răcire rapidă din topitură, având diametre nanometrice și submicronice cuprinse în intervalul 50 – 950 nm. Pentru aceasta, am asimilat în primul rând procesul de preparare a eșantioanelor prin metoda răcirii rapide în capilar de sticlă (“glass-coated melt spinning”) cu două fenomene distincte în care se induc tensiuni mecanice intrinseci în fire: (i) solidificarea ultrarapidă a firului metalic propriu-zis de la temperatura de supraîncălzire a aliajului topit până la temperatura de tranziție vitroasă, și (ii) răcirea ulterioară a ansamblului metal-sticlă de la temperatura de tranziție vitroasă la temperatura camerei. Am descris matematic cele două fenomene distincte și am calculat separat tensiunile mecanice intrinseci induse, iar la final am obținut distribuțiile tensiunilor mecanice totale induse în timpul preparării microfiredelor. Calculele le-am realizat în coordonate cilindrice, dată fiind simetria problemei, iar tensiunile calculate au fost componentele diagonale ale tensorului tensiunilor mecanice de natură elastică, respectiv componenta radială, cea axială și cea circumferențială (azimutală). Am descris pe larg întregul formalism în Raportul științific privind implementarea

proiectului în perioada septembrie – decembrie 2013, care se află încărcat pe platforma uefiscdi-direct.ro.

Cu ajutorul acestei metode puse la punct în cadrul primei etape a proiectului, am reușit să calculăm distribuția radială a tensiunilor interne induse în timpul preparării nanofirelor și firelor submicronice având diametre ale firelor metalice propriu-zise cuprinse între 50 și 950 nm și grosimi ale învelișului de sticlă cuprinse între 1 și 20 μm , acoperind practic întreaga gamă de dimensiuni posibile pentru materialele investigate.

Aspectul general al distribuțiilor radiale a componentelor tensorului tensiunilor elastice este similar în toate cazurile calculate, componenta axială a tensorului tensiunilor interne fiind cea care predomină pe 80 până la 95% din valoarea razei nanofirelor, ceea ce, având în vedere caracterul lor tensorial, le conferă un rol preponderent și reprezentativ în distribuția radială a tensiunilor elastice, având cel mai mare impact asupra anizotropiei magnetice a nanofirelor și firelor submicronice amorfe analizate. Tensiunea axială are valori mult mai mari în nanofire comparativ cu firele submicronice.

Din dependența valorii maxime a componentei axiale a tensorului tensiunilor elastice interne de diametrul firului metalic propriu-zis, cu grosimea învelișului de sticlă ca parametru, am stabilit faptul că dimensiunile nanofirelor și firelor submicronice reprezintă un parametru esențial pentru mărimea tensiunilor elastice induse în timpul procesului lor de preparare. Pentru o grosime a învelișului de sticlă cuprinsă între 5 și 20 μm , influența acestuia asupra distribuției radiale a tensiunilor interne este practic neglijabilă. Pe de altă parte, atunci când grosimea sticlei scade sub 5 μm , influența învelișului asupra distribuției radiale a tensiunilor elastice devine semnificativă, fiind influențată și de valoarea diametrului nanofirelor/firelor submicronice. Aceste diferențe subliniază eficiența subțierii sau chiar a îndepărtării totale a învelișului de sticlă în ceea ce privește controlul tensiunilor elastice reziduale din firele submicronice și nanofirele amorfe obținute prin procedeul răcirii rapide, cu efecte asupra caracteristicilor lor magnetice.

Astfel, rezultatele obținute în cadrul primei etape au constituit un pas important în direcția înțelegerii și controlării comportării magnetice a nanofirelor și firelor submicronice amorfe obținute prin răcire rapidă din topitură, constituind totodată o bază solidă pentru activitățile din etapa a doua (2014).

Rezultatele calculelor distribuțiilor radiale a componentelor tensorului tensiunilor interne induse în timpul preparării firelor submicronice și a nanofirelor prin răcire rapidă din topitură având diferite dimensiuni au fost valorificate prin publicarea în revista *Journal of Applied Physics*, vol. 115, nr. 17, art. no. 17A329, în mai 2014, a articolului intitulat "Intrinsic domain wall pinning in rapidly solidified amorphous nanowires".

2.2. Etapa a 2-a (2014)

Obiectivul etapei 2014 a coincis cu primul obiectiv specific al proiectului (conform propunerii inițiale), acesta fiind: „*Calculul analitic al termenilor magnetoelastic și magnetostatic în fire submicronice (FS) și nanofire (NF) amorse obținute prin răcire rapidă din topitură având diferite dimensiuni și compoziții*”.

Activitățile prevăzute a fi realizate pentru atingerea acestui obiectiv au fost: (i) calculul distribuției radiale a densității de energie magnetoelastică pentru eșantioane la care am calculat distribuțiile de tensiuni mecanice intrinseci în etapa anterioară, și (ii) calculul energiei magnetoelastice (E_{me}) și a celei magnetostatice (E_{ms}), urmat de comparația celor doi termeni în cazurile analizate.

Astfel, am ales compoziții diferite, cu scopul de a avea valori ale constantei de magnetostricțiune diferite în nanofirele (NF) și firele submicronice (FS) studiate. În cadrul fiecărei game de compoziții am studiat evoluția termenilor magnetoelastic și magnetostatic pentru întreaga gamă de dimensiuni a nanofirelor și firelor submicronice. Compozițiile alese au fost: (i) $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$ – aliaj magnetostrictiv cu constanta de magnetostricțiune $\lambda = +25 \times 10^{-6}$, și (ii) $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ – aliaj cu magnetostricțiune aproape nulă ($\lambda \approx -1 \times 10^{-7}$).

Calculul termenului magnetoelastic l-am realizat pornind de la distribuțiile de tensiuni mecanice interne calculate în prima etapă (2013). Pentru orice nanofir amorf sau fir submicronic amorf considerat am mediat mai întâi componenta predominantă din distribuția tensiunilor interne, respectiv componenta axială τ_{zz} , și apoi am calculat densitatea medie de energie magnetoelastică ($\varepsilon_{me} = E_{me}/V$, V fiind volumul eșantionului):

$$\langle \varepsilon_{me} \rangle = \frac{3}{2} \cdot \lambda \cdot \langle \tau_{zz} \rangle \quad (1)$$

Am observat faptul că valorile mici ale grosimii învelișului de sticlă au ca rezultat în general valori relativ mici ale densității de energie magnetoelastică. Însă această regulă nu este valabilă în cazul nanofirelor foarte subțiri, cum ar fi spre exemplu un nanofir cu $\Phi = 90$ nm, care prezintă un maxim neașteptat în intervalul de valori mici ale grosimii sticlei. Originea acestui maxim nu este pe deplin clarificată nici în prezent, aceasta putând fi atribuită dependenței neliniare de grosimea sticlei a celor două tipuri de tensiuni mecanice induse la fabricarea firelor.

Calculul termenului magnetostatic din firele submicronice și nanofirele amorse cu compoziția $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$ obținute prin răcire rapidă din topitură l-am realizat în ipoteza că eșantioanele de acest tip sunt uniform magnetizate în lungul axei proprii, considerată a fi paralelă cu axa z . O astfel de ipoteză este în acord cu comportarea magnetică bistabilă a acestor materiale. În aceste condiții, câmpul mediu de demagnetizare pe direcția axială este:

$$\langle H_z \rangle = -\frac{M_z}{L} (L + R_m - \sqrt{R_m^2 + L^2}) \quad (2)$$

unde M_z este componenta axială a magnetizării eșantionului.

Având în vedere faptul că lungimea oricărui fir submicronic sau nanofir preparat prin răcire rapidă din topitură este mai mare decât raza sa ($L \gg R_m$), ecuația (2) devine:

$$\langle H_z \rangle = -M_z \cdot \frac{R_m}{L} \quad (3)$$

Astfel, densitatea medie de energie magnetostatică, $\langle \varepsilon_{ms} \rangle$, este:

$$\langle \varepsilon_{ms} \rangle = -\frac{\mu_0}{2} \cdot \langle H_z \rangle \cdot M_z = \frac{\mu_0}{2} \cdot M_s^2 \cdot \frac{R_m}{L} \quad (4)$$

cu condiția ca eșantionul să fie saturat pe direcția axială ($M_z \equiv M_s$). μ_0 reprezintă permeabilitatea magnetică a vidului ($4\pi \times 10^{-7} \text{ Hm}^{-1}$).

Am calculat densitatea medie de energie magnetostatică pentru eșantioane cu diferite lungimi și diametre.

Am determinat faptul că termenul magnetostatic are o contribuție importantă în cazul nanofirelor scurte și medii, valoarea sa fiind influențată în mod semnificativ atât de dimensiunea transversală, cât și de cea axială a eșantioanelor. Evident că, spre deosebire de cazul termenului magnetoelastic, în cazul celui magnetostatic, grosimea învelișului de sticlă nu este relevantă.

Rezultatele pe care le-am obținut în cadrul acestei activități au arătat faptul că termenul magnetoelastic, $\langle \varepsilon_{me} \rangle$, este întotdeauna mai mare decât cel magnetostatic, $\langle \varepsilon_{ms} \rangle$, în cazul nanofirelor și firelor submicronice amorse magnetostrictive. Acest lucru este valabil chiar și în cazul eșantioanelor cu diametre mai mari ale firului metalic propriu-zis și grosimi mai mici ale învelișului de sticlă, cum ar fi cel cu diametrul de 950 nm și grosimea sticlei de 100 nm, în care cei doi termeni au cele mai apropiate valori, adică $\langle \varepsilon_{ms} \rangle = 484,5 \text{ J/m}^3$ (pentru $L = L_{min}$) și respectiv $\langle \varepsilon_{me} \rangle = 26 \text{ kJ/m}^3$. Chiar și în acest caz, termenul magnetoelastic este cu două ordine mai mare decât cel magnetostatic. Prin urmare, formarea structurii de domenii magnetice este determinată de minimizarea termenului magnetoelastic în cazul nanofirelor și firelor submicronice amorse preparate prin răcire rapidă din topitură din aliaje cu magnetostricțiune ridicată.

Din același motiv, natura anizotropiei magnetice predominante din aceste fire este tot magnetoelastică. Totuși, având în vedere valoarea relativ mare a termenului magnetostatic în fire mai scurte și cu diametre mai mari, este evident faptul că efectele acesteia nu pot fi neglijate în totalitate.

Prin urmare, analiza termenilor magnetoelastic și magnetostatic în nanofire și fire submicronice amorse preparate prin răcire rapidă din topitură evidențiază un tablou complex al formării structurii magnetice și a distribuției și naturii anizotropiei magnetice, tablou în care ambii termeni joacă un rol important. Structura de domenii magnetice de tip monodomeniu cu anizotropie uniaxială în lungul axei firului este rezultatul minimizării termenului magnetoelastic în volumul firelor, în timp ce în regiunea de suprafață este rezultatul minimizării termenului magnetostatic. Valoarea câmpului de comutare este determinată de termenul preponderent, cel magnetoelastic.

Rezultatele calculate ne-au permis interpretarea și înțelegerea datelor experimentale, obținute prin măsurători ale ciclurilor de histerezis. Studiul efectuat ne-a permis înțelegerea fenomenelor care stau la baza comportării magnetice a firelor submicronice și nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune mare, obținute prin metoda răcirii rapide din topitură.

Dacă în cazul firelor magnetostrictive am găsit faptul că la originea bistabilității magnetice se află termenul magnetoelastic preponderent din volumul acestor materiale magnetice ultrasubțiri, în cazul firelor amorfe submicronice și nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune extrem de mică (practic de 250 ori mai mică în cazul firelor de $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ comparativ cu cele de $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$) a trebuit să recurgem din nou la o analiză detaliată a celor doi termeni importanți din energia liberă totală, respectiv termenii magnetoelastic și magnetostatic, pentru a înțelege originea bistabilității lor magnetice.

Calculul termenului magnetoelastic l-am realizat utilizând aceeași metodă ca la firele magnetostrictive, și anume pornind de la distribuțiile radiale ale componentelor diagonale ale tensorului tensiunilor mecanice interne induse în timpul procesului lor de preparare. După calculul distribuției de tensiuni, am mediat componenta diagonală dominantă a distribuției (dat fiind caracterul tensorial, doar componenta predominantă contează, aceasta cuplându-se cu magnetostricțiunea și dând naștere termenului magnetoelastic) și am calculat densitatea medie de energie magnetoelastică $\langle \varepsilon_{me} \rangle$:

$$\langle \varepsilon_{me} \rangle = \frac{3}{2} \cdot \lambda'(\tau) \cdot \langle \tau_{ii} \rangle \quad (5)$$

în care $\langle \tau_{ii} \rangle$ reprezintă valoarea medie a componentei diagonale predominante a tensorului tensiunilor mecanice interne (i putând fi r , θ sau z), iar $\lambda'(\tau)$ este constanta de magnetostricțiune modificată, dependentă de tensiunile mecanice. Acesta este în fapt diferența majoră față de calculul termenului magnetoelastic la nanofirele și firele submicronice amorfe magnetostrictive: în cazul celor cu magnetostricțiune aproape nulă, apare o dependență a constantei de magnetostricțiune de tensiunile mecanice aplicate, inclusiv de cele interne, care a fost pusă în evidență experimental prin măsurători de magneto-impedanță și de permeabilitate magnetică. Prin urmare, am luat în calcul o variație liniară a constantei de magnetostricțiune cu tensiunea axială de întindere medie, $\langle \tau_{zz} \rangle$, care este și în acest caz componenta diagonală dominantă pentru întregul interval de diametre al nanofirelor și firelor amorfe submicronice.

Ca și în cazul NF și FS magnetostrictive, și în acest caz o grosime mică a învelișului de sticlă conduce la valori reduse ale termenului magnetoelastic. Trebuie însă subliniat faptul că, în general, valorile densității de energie magnetoelastică în NF și FS cu magnetostricțiune aproape nulă sunt mult mai mici decât cele din eșantioanele magnetostrictive, după cum era și de așteptat, din cauza magnetostricțiunii mult mai mici.

Calculul termenului magnetostatic $\langle \varepsilon_{ms} \rangle$ l-am realizat într-un mod similar celui utilizat pentru cazul NF și FS cu magnetostricțiune mare.

Am observat că termenul magnetostatic este mai important în cazul eşantioanelor cu lungimi mici și diametre mari, valoarea sa fiind influențată de ambele aceste dimensiuni. Cel mai important lucru de remarcat este faptul că termenul magnetostatic este de același ordin de mărime cu termenul magnetoelastic, $\langle \varepsilon_{ms} \rangle \sim \langle \varepsilon_{me} \rangle$, această situație fiind specifică eşantioanelor cu magnetostricțiune aproape nulă, și neputându-se realiza în cazul celor magnetostrictive, în care termenul magnetoelastic este întotdeauna mai mare decât cel magnetostatic cu cel puțin două ordine de mărime.

Totodată, am observat că termenul magnetostatic predomină în toate cazurile, cu excepția cazurilor în care diametrul firului metalic propriu-zis este relativ mic (< 200 nm), iar grosimea învelișului de sticlă depășește $7,5 \mu\text{m}$. Însă, datorită faptului că orice structură de domenii magnetice complexă, diferită de cea monodomenică cu anizotropie uniaxială, și care s-ar forma ca rezultat al minimizării termenului magnetoelastic $\langle \varepsilon_{me} \rangle$ ar include și pereți de domenii magnetice, iar termenul magnetostatic $\langle \varepsilon_{ms} \rangle$ ar crește foarte mult, putem afirma că, în cazul firelor submicronice amorse și nanofirelor amorse cu magnetostricțiune aproape nulă preparate prin răcire rapidă din topitură, termenul magnetostatic este cel care joacă rolul predominant în formarea structurii de domenii magnetice.

În acest fel se explică și diferența importantă dintre valorile câmpului de comutare ale celor firelor submicronice și nanofirelor amorse preparate din cele două compoziții analizate: este vorba pe de o parte de rolul preponderent al termenului magnetoelastic și al anizotropiei magnetoelastice în cazul firelor magnetostrictive ($\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$) care determină valori foarte mari ale câmpului de comutare (mii de A/m), iar pe de altă parte de rolul predominant al termenului magnetostatic în cazul firelor submicronice și nanofirelor cu magnetostricțiune aproape nulă din $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, care are ca rezultat valori mult reduse ale câmpului de comutare ($100 - 500$ A/m), eşantioanele rezultate fiind mult mai moi din punct de vedere magnetic.

Analiza celor doi termeni importanți din energia liberă a nanofirelor amorse și firelor amorse submicronice obținute prin metoda răcirii rapide din topitură, respectiv termenul magnetoelastic și cel magnetostatic, ne-a permis înțelegerea cauzelor care stau la baza comportării lor magnetice (bistabilitate – ciclu de histerezis rectangular) și totodată înțelegerea unor aspecte fundamentale ale formării structurii lor de domenii magnetice, pe cele legate de natura anizotropiei magnetice, și totodată înțelegerea originii diferențelor care apar între valorile câmpului de comutare din fire magnetostrictive și nemagnetostrictive. Toate aceste aspecte sunt deosebit de importante pentru optimizarea proprietăților lor magnetice, pentru controlul lor și pentru dezvoltarea unor viitoare aplicații practice utilizând aceste materiale, de exemplu în noi micro și/sau nanosenzori magnetici sau în elemente de logică pe bază de pereți de domenii magnetice, având în vedere comportarea lor magnetică bistabilă, bazată pe propagarea unui perete interdomenic în lungul axei firului.

Astfel, toate activitățile prevăzute pentru primele două etape ale acestui proiect (2013 și 2014) au fost realizate în totalitate, în conformitate cu planul de realizare

corespunzător actului adițional din 2014, existând premisele favorabile continuării proiectului și atingerii obiectivelor acestuia (obiectivul principal și cel asociat – așa cum sunt acestea menționate în secțiunea 1 a prezentului raport).

În privința valorificării rezultatelor obținute, în primele două etape am publicat pe baza rezultatelor de la acest proiect în total patru articole, două în *Journal of Applied Physics* și două în *IEEE Transactions on Magnetism*:

1. T.-A. Óvári and H. Chiriac, Intrinsic domain wall pinning in rapidly solidified amorphous nanowires, *J. Appl. Phys.* 115 (2014) 17A329, DOI: 10.1063/1.4866551.
2. T.-A. Óvári, N. Lupu, S. Corodeanu, and H. Chiriac, Magnetostatic and magnetoelastic interactions in glass-coated magnetostrictive nanowires, *IEEE Trans. Magn.* 50 (2014) 2006904, DOI: 10.1109/TMAG.2014.2320301.
3. T.-A. Óvári and H. Chiriac, Origin of magnetic bistability in rapidly solidified (Co_{0.94}Fe_{0.06})_{72.5}Si_{12.5}B₁₅ nearly zero magnetostrictive amorphous nanowires, *J. Appl. Phys.* (2015) 17D502, DOI: 10.1063/1.4906298.
4. T.-A. Óvári, S. Corodeanu, C. Rotărescu and H. Chiriac, Magnetization reversal in zero-magnetostrictive rapidly solidified amorphous nanowires, *IEEE Trans. Magn.* (2014) 2007304, DOI: 10.1109/TMAG.2014.2325131.

În afară celor patru articole publicate, am mai finalizat un capitol de carte pentru prestigioasa editură Woodhead Publishing din Marea Britanie, editură care din 2013 aparține de grupul Elsevier, unul din cele mai recunoscute grupuri editoriale din lume în domeniul literaturii științifice, tehnice și medicale. Capitolul se intitulează "*Magnetic nanowires and submicron wires prepared by quenching and drawing technique*", fiind capitolul 7 (pag. 199-223) al volumului cu titlul "*Magnetic nano- and microwires: Design, synthesis, properties and applications*", editat de Prof. Manuel Vázquez Villalabeitia de la Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid ICMN-CSIC, din Spania, unul din cei mai recunoscuți specialiști din lume în domeniul micro și nanofirelor feromagnetice și al aplicațiilor acestora în senzori. Cartea a apărut în mai 2015 (ISBN 978-0-08-100164-6).

Rezultatele obținute în cadrul proiectului au fost pe larg diseminate prin prezentări la cele mai importante și recunoscute conferințe din domeniul magnetismului și materialelor magnetice. Astfel, rezultatele obținute în 2013 au fost prezentate la 58th Annual Magnetism & Magnetic Materials Conference MMM 2013 (1 lucrare), care a avut loc între 4 și 8 noiembrie 2013 la Denver, Colorado, S.U.A. Rezultatele obținute în 2014 au fost comunicate la Intermag Europe – The IEEE International Magnetism Conference, Dresda, Germania, 4 – 8 mai 2014 (2 lucrări), la 10th European Conference on Magnetic Sensors and Actuators EMSA 2014, care a avut loc în perioada 6 – 9 iulie 2014 la Viena, Austria (1 lucrare) și respectiv la 59th Annual Magnetism & Magnetic Materials Conference MMM 2014, care a avut loc în perioada 3 – 7 noiembrie 2014 la Honolulu, în S.U.A. (1 lucrare), aducând totalul comunicărilor legate de tematica acestui proiect la 5 lucrări prezentate la conferințe internaționale.

3. Activități realizate în etapa a 3-a a proiectului (anul 2015)

3.1. Obiectivul etapei a 3-a (2015)

Obiectivul etapei 2015 îl reprezintă simularea numerică a ciclurilor de histerezis magnetic în fire submicronice și nanofire obținute prin răcire rapidă având compoziții și dimensiuni corelate cu cele selectate pentru calculele analitice realizate anterior, respectiv în etapa din 2014 a proiectului.

Activitățile prevăzute a fi realizate pentru atingerea acestui obiectiv se referă la dezvoltarea unui cod micromagnetic pentru simularea histerezisului magnetic și a proceselor de magnetizare în aceste materiale noi.

Compozițiile nanofirelor și firelor submicronice selectate în vederea simulării ciclurilor de histerezis sunt identice cu cele utilizate în calculele analitice ale termenilor magnetoelastic și magnetostatic realizate în etapa de anul trecut, respectiv $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ – având constanta de magnetostricțiune aproape nulă ($\lambda \cong -1 \times 10^{-7}$) și $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$ – având constanta de magnetostricțiune mare și pozitivă ($\lambda \cong +25 \times 10^{-6}$).

3.2. Simularea numerică a histerezisului magnetic în nanofire și fire submicronice cu magnetostricțiune aproape nulă ($\lambda \cong 0$). Dezvoltarea codului micromagnetic.

În cazul nanofirelor și a firelor submicronice nemagnetostrictive sau cu magnetostricțiune aproape nulă, cum sunt cele având compoziția reprezentativă $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, am simulat ciclurile de histerezis axiale prin metoda diferențelor finite în cadrul aproximației micromagnetice. În acest scop, am realizat un cod micromagnetic „in-house” pentru rezolvarea numerică a ecuațiilor de echilibru a magnetizării și găsirea distribuției de echilibru a momentelor magnetice elementare corespunzătoare minimului energetic al sistemului la fiecare valoare a câmpului magnetic axial aplicat din exterior, H_{ext} .

Ecuția micromagnetică de echilibru, $\vec{M} \times \vec{H}_{ef} = 0$, în care $\vec{M}$ reprezintă vectorul magnetizare, iar $\vec{H}_{ef} = -\partial E / \partial \vec{M}$ reprezintă câmpul magnetic efectiv, E fiind energia totală a sistemului, am rezolvat-o cu ajutorul sistemului de ecuații algebrice neliniare în care aceasta se transformă ca urmare a discretizării nanofirelor studiate în celule elementare cu dimensiuni mai mici decât lungimea de schimb a fiecărui material considerat, $L_{sch} = \sqrt{2A/\mu_0 M_S^2}$, în care A este parametrul de schimb caracteristic materialului (aliajului), μ_0 este permeabilitatea magnetică a vidului, iar M_S este magnetizarea la saturație.

Fiecare celulă elementară are un moment magnetic elementar, astfel încât nanofirul poate fi considerat ca un sistem de momente magnetice elementare sau de dipoli elementari, $\vec{\mu}$. În cazul nanofirelor cu compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, am utilizat o dimensiune a celulei elementare de discretizare de 4 nm, care este

mai mică decât lungimea de schimb calculată pentru acest aliaj, respectiv $L_{sch} \cong 7$ nm.

Tehnica pe care am utilizat-o pentru simularea ciclurilor de histerezis a fost de a alinia în mod simultan și gradual toate momentele magnetice elementare $\vec{\mu}(i, j, k)$, corespunzătoare tuturor celulelor de discretizare dintr-un nanofir, cu direcția locală a câmpului magnetic efectiv, $\vec{H}_{ef}(i, j, k)$, tehnică cunoscută și sub numele de metoda Jacobi. Câmpul magnetic efectiv este dat de relația:

$$\vec{H}_{ef} = \vec{H}_{sch} + \vec{H}_{demag} + \vec{H}_{ext} \quad (6)$$

în care primul termen reprezintă interacțiunea de schimb, al doilea termen este dat de demagnetizare (interacțiunea magnetostatică), iar ultimul termen reprezintă interacțiunea cu câmpul exterior, numită și termen Zeeman.

Termenul corespunzător anizotropiei magnetoelastice l-am neglijat într-o primă aproximație, dată fiind valoarea extrem de redusă a constantei de magnetostricțiune (în acest caz putem considera $\lambda \cong 0$). Anizotropia magnetocristalină este nulă, dat fiind faptul că nanofirele studiate sunt amorfe.

Termenul corespunzător interacțiunii de schimb l-am calculat ținând cont doar de vecinii de ordinul întâi, cei mai apropiați, respectiv, în cazul momentului elementar $\vec{\mu}(i, j, k)$, cu momentele magnetice corespunzătoare celulelor elementare $i - 1$ și $i + 1$ pe axa x , cu cele corespunzătoare celulelor $j - 1$ și $j + 1$ pe axa y , și cu cele corespunzătoare celulelor $k - 1$ și $k + 1$ pe axa z .

Termenul de demagnetizare l-am calculat în aproximația dipolară, considerând interacțiunea dintre momentul magnetic corespunzător celulei curente, $\vec{\mu}(i, j, k)$, și momentele magnetice corespunzătoare tuturor celorlalte celule din sistem, respectiv $\sum_{i', j', k'} \vec{\mu}(i', j', k')$, cu $i \neq i'$, $j \neq j'$ și $k \neq k'$.

Sistemul de momente magnetice elementare este în echilibru atunci când:

$$|\vec{\mu} \times \vec{H}_{ef}| < \varepsilon \quad (7)$$

este suficient de mic în întregul sistem. Am ales valoarea optimă $\varepsilon = 10^{-5}$, pentru care criteriul de convergență dat de relația (7) este considerat a fi îndeplinit.

Am analizat dependența valorii câmpului coercitiv de dimensiunile nanofirelor, pentru a înțelege aspectele fundamentale ale proceselor de magnetizare din nanofirele cu magnetostricțiune aproape nulă preparate prin metoda răcirii rapide din topitură.

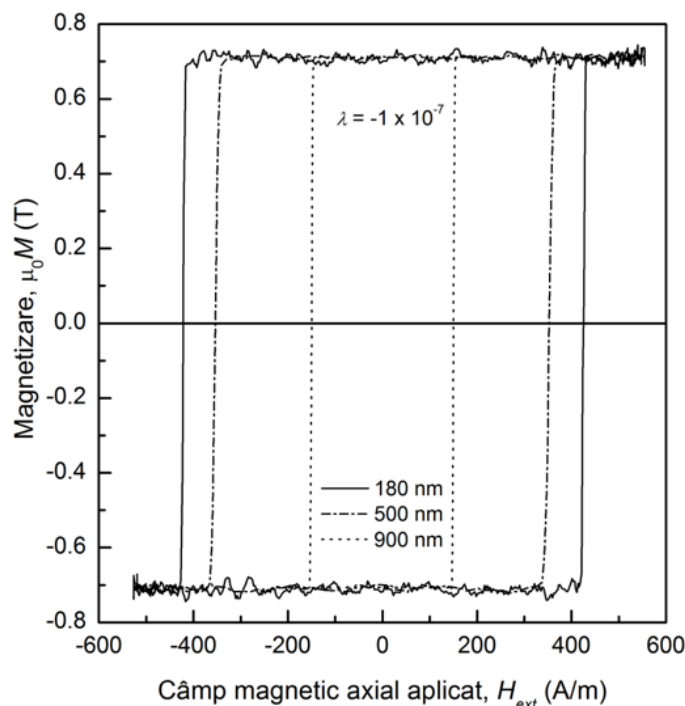


Figura 1. Cicluri de histerezis determinate experimental în cazul unor eşantioane sub formă de nanofire amorse având compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, preparate prin metoda răcirii rapide din topitură. Eşantioanele măsurate au diametrul de 180, 500 şi respectiv 900 nm.

În figura 1 sunt prezentate ciclurile de histerezis pe care le-am determinat experimental în cazul unor nanofire amorse cu compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, având diametrul firelor metalice propriu-zise de 180, 500 şi respectiv 900 nm. Observăm o scădere netă a valorii câmpului coercitiv odată cu creşterea diametrului eşantioanelor. Trebuie precizat faptul că nu am evidențiat nici o influență diamagnetică a învelișului de sticlă asupra răspunsului magnetic al nanofirelor în timpul experimentelor până la câmpul magnetic maxim aplicat de 600 A/m, motiv pentru care nu am inclus o asemenea contribuție nici în simulările micromagnetice.

Scăderea câmpului coercitiv cu creşterea diametrului firelor în cazul unor eşantioane cu magnetostricțiune ridicată, cum ar fi cazul microfirelor amorse acoperite cu sticlă având compoziții pe bază de Fe, a fost pusă pe seama unei scăderi importante a anizotropiei de natură magnetoelastică asociată cu reducerea nivelului tensiunilor mecanice interne datorită unor viteze mai mici de răcire la care se obțin firele mai groase.

În firele cu magnetostricțiune redusă, cum este și cazul nanofirelor cu magnetostricțiune aproape nulă studiate, acest mecanism nu are cum să joace un rol semnificativ, putând fi astfel neglijat. Acest lucru rămâne valabil chiar și în cazul în care constanta de magnetostricțiune și-ar schimba semnul, devenind ușor pozitivă din ușor negativă, așa cum am demonstrat prin simulările micromagnetice realizate în cadrul acestui proiect și cum vom arăta și în cele ce urmează.

Prin urmare, singura cale de explorat rămâne corelația dintre câmpul coercitiv și termenul magnetostatic.

În acest scop, am simulat micromagnetic, prin metoda descrisă mai sus, ciclurile de histerezis ale nanofirelor cu magnetostricțiune aproape nulă având diferite valori ale lungimii eșantioanelor. Am modificat lungimea nanofirelor tocmai pentru a determina modificarea energiei magnetoelastice în simulări, atunci când diametrul nanofirelor este constant. Am ales să păstrăm constantă valoarea razei nanofirului, R , atribuindu-i totodată o valoare relativ mică, pentru a avea durate de procesare rezonabile ale codului micromagnetic, fără a afecta precizia simulărilor.

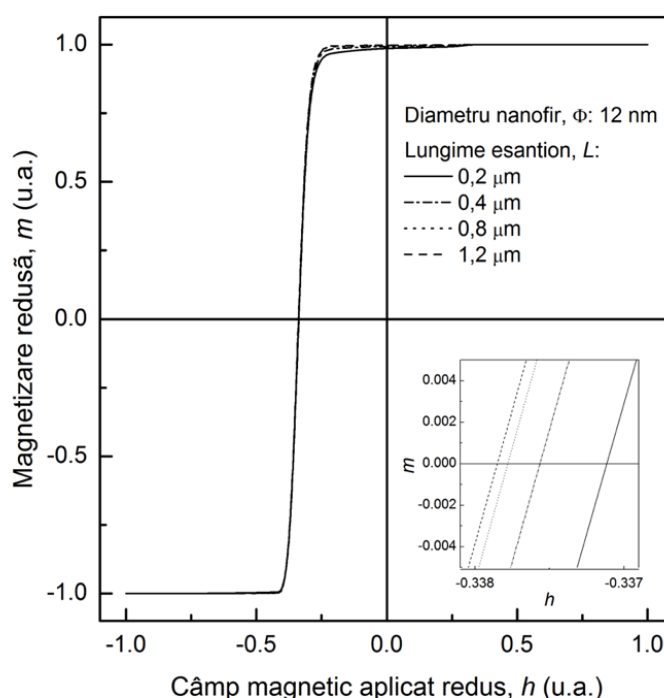


Figura 2. Cicluri de histerezis simulate numeric în cazul unor eșantioane sub formă de nanofire amorfе având compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, preparate prin metoda răcirii rapide din topitură. Eșantioanele simulate au diametrul de 12 nm și diferite lungimi cuprinse între 0,2 și 1,2 μm .

Ciclurile de histerezis pe care le-am obținut prin simulări micromagnetice în cazul nanofirelor amorfе acoperite cu sticlă cu compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ sunt prezentate în figura 2. Valorile câmpului coercitiv în cazul ciclurilor de histerezis calculate nu sunt relevante, fiind mai mari decât cele determinate experimental în cazul unor eșantioane cu diametre mai mari, cum sunt cele prezentate în figura 1. Aceasta este o consecință a condițiilor de simulare, în care, pentru simplitate, am presupus că magnetizarea nanofirelor în starea inițială este uniformă. Din acest motiv, pentru a inversa magnetizarea unui astfel de eșantion, este necesar ca, mai întâi să se nucleeze un domeniu cu magnetizare inversă, urmat de propagarea peretelui de domenii de 180° dintre acesta și restul magnetizării nanofirului, după cum este arătat schematic în figura 3. Câmpul magnetic necesar pentru a nuclea domeniul cu magnetizarea inversată, aplicat în

sens opus magnetizării nanofirului, trebuie să fie relativ mare, ceea ce conduce la valori mari ale câmpului de nucleere propriu-zis, H_N , și implicit ale câmpului coercitiv, a cărui valoare este strâns legată de valoarea câmpului de nucleere.

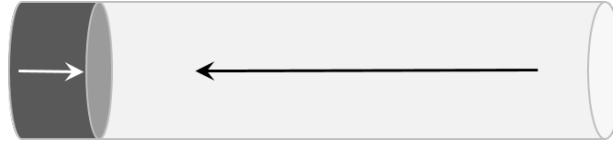


Figura 3. Nucleerea unui domeniu cu magnetizare inversă într-un nanofir.

Situația descrisă este diferită de cea din cazul ciclurilor de histerezis determinate inductiv. În cazul acestora, procesul de magnetizare axială a nanofirului este diferit, întrucât, la capetele lui există deja domenii cu magnetizare inversă datorită efectului de demagnetizare, ceea ce face ca valoarea câmpului aplicat axial care produce inversarea magnetizării eșantionului să fie mult mai mică, acesta trebuind doar să propage peretele de 180° preexistent, fără a avea de produs nucleerea unui domeniu nou cu magnetizare inversă. Din acest motiv, și câmpul coercitiv asociat acestor procese va avea valori mai mici, fiind determinat doar de câmpul de propagare, H_P , și fiind cunoscut faptul că $H_N \gg H_P$.

Prin urmare, întrucât valorile exacte ale coercitivității ciclurilor de histerezis simulate nu sunt relevante în sine, pentru a analiza rezultatele pe care le-am obținut prin calculele efectuate, am utilizat mărimile adimensionale $m = M/M_S$, pe care am numit-o magnetizarea redusă și respectiv $h = H_{ext}/H_{ext}^{max}$, pe care am denumit-o câmpul magnetic redus.

În detaliul figurii 2 am reprezentat zona din jurul câmpului coercitiv pentru ciclurile de histerezis simulate. Observăm o creștere clară a valorii câmpului coercitiv cu lungimea eșantioanelor simulate, L . O analiză detaliată a acestei dependențe a revelat rolul energiei magnetostatice și al anizotropiei magnetice de aceeași natură (anizotropiei de formă) în procesul de magnetizare al nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă. Astfel, creșterea lungimii L a eșantioanelor este echivalentă cu o scădere a energiei magnetostatice în cazul unor cilindri feromagnetici lungi și subțiri (cu diametre mici), pentru care putem scrie $L \gg R$, deoarece $|\vec{H}_{demag}| = H_{demag} \sim R/L$. Prin urmare, rezultatele prezentate în figura 2 arată faptul că valoarea câmpului coercitiv crește monoton cu scăderea termenului magnetostatic atunci când termenul magnetoelastic este nul. În consecință, este posibil să avem o creștere a coercitivității și ca urmare a unei simple scăderi a energiei magnetostatice. Variația câmpului coercitiv determinată prin simulările micromagnetice al căror rezultat l-am arătat în figura 2 este relativ redusă, dat fiind faptul că variația de energie magnetostatică care o determină, este la rândul ei mică. Variația energiei magnetostatice este mult mai mică în cazul ciclurilor de histerezis simulate, unde acest termen variază doar datorită modificărilor în lungimea eșantioanelor care au un diametru foarte mic și constant

($R = \text{const.}$), decât în cazul celor determinate experimental, la care termenul magnetostatic variază din cauza modificărilor în valoarea razei nanofirelor.

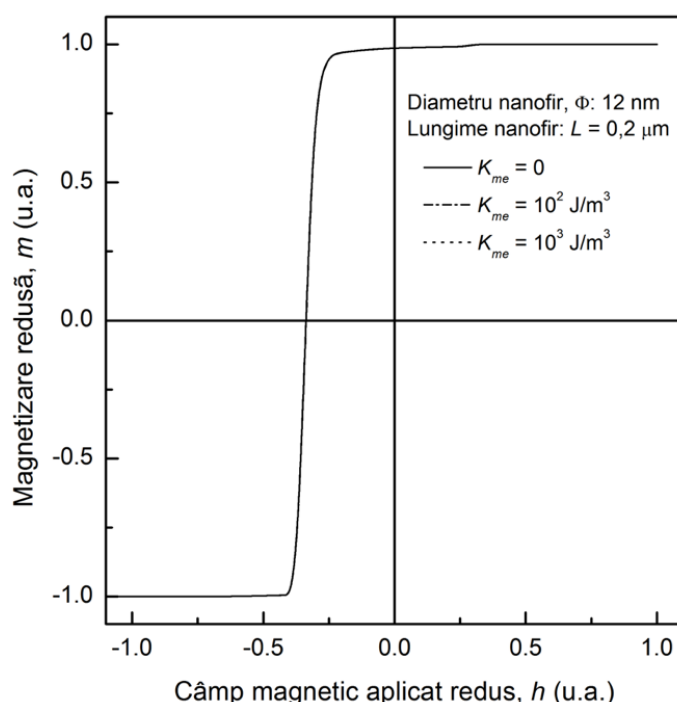


Figura 4. Cicluri de histerezis simulate numeric în cazul unor eșantioane sub formă de nanofire amorfe având compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, preparate prin metoda răcirii rapide din topitură. Eșantioanele simulate au diametrul de 12 nm și lungimea de 0,2 μm , având diferite valori ale constantei de anizotropie magnetoelastică.

Pentru a demonstra validitatea abordării pe care am ales-o și în același timp a ipotezelor formulate, am introdus în calcule și efectul unei eventuale anizotropii magnetoelastice, de valoare mică, pentru a studia efectul acesteia asupra ciclurilor de histerezis simulate în cazul nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă preparate prin metoda răcirii rapide din topitură. În figura 4 am reprezentat ciclurile de histerezis simulate în cazul unui nanofir cu diametrul de 12 nm și lungimea de 0,2 μm pentru diferite valori ale constantei de anizotropie magnetoelastică, K_{me} , respectiv 0, 10^2 și 10^3 J/m³. Întrucât $K_{me} = (3/2) \cdot \lambda \cdot \langle \sigma \rangle$, în care $\langle \sigma \rangle$ înseamnă valoarea medie a componentei principale a tensorului tensiunilor mecanice interne induse în timpul procesului de preparare prin răcire rapidă din topitură a nanofirului, am putut estima o serie de valori plauzibile ale constantei de anizotropie magnetoelastică. Astfel, pentru valori ale $\langle \sigma \rangle$ cuprinse între 0,6 și 6 GPa, valori care acoperă practic întregul interval de valori posibile ale tensiunii mecanice axiale medii indusă datorită procesului de obținere a nanofirelor, constanta de anizotropie magnetoelastică K_{me} poate lua valori între 10^2 și 10^3 J/m³, limitarea provenind practic din valoarea extrem de redusă a constantei de magnetostricțiune, λ . Pentru a rămâne cât mai aproape de condițiile reale în care am măsurat ciclurile de histerezis experimentale, am inclus și posibilitatea unei modificări a semnelor constantei de magnetostricțiune datorită efectului tensiunilor

mecanice interne de valori foarte mari, dar având totuși grijă ca valoarea absolută a acesteia să rămână suficient de mică, respectiv $\lambda \rightarrow +1 \times 10^{-7}$.

Observăm faptul că toate cele trei curbe rămân perfect suprapuse, fără ca anizotropia magnetoelastică considerată să aibă vreun efect asupra valorii coercitivității sau asupra raportului dintre magnetizarea remanentă și cea de saturație, M_R/M_S , raport care oferă o măsură a rectangularității ciclurilor de histerezis. Prin urmare, rezultatele prezentate în figura 2 sunt suficient de precise, chiar și în condițiile în care în calculele pe care le-am efectuat în vederea obținerii lor, am neglijat complet orice efect al anizotropiei magnetoelastice.

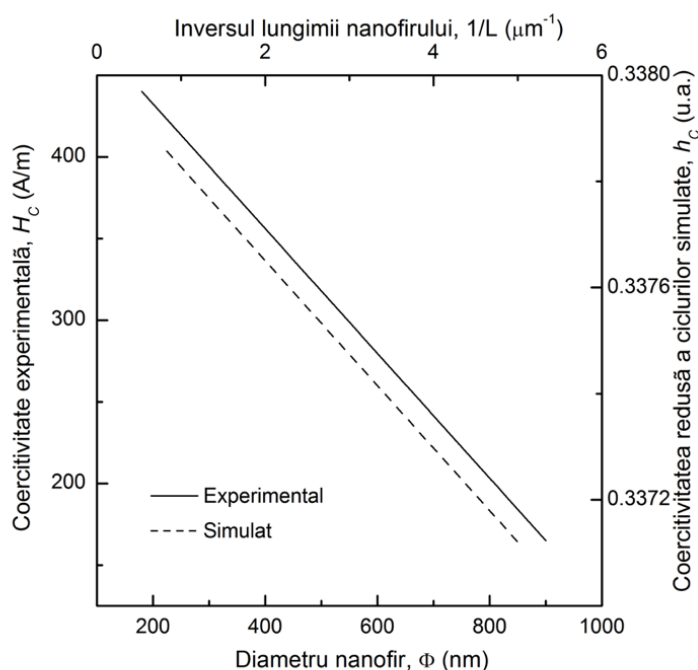


Figura 5. Dependența coercitivității experimentale H_C de diametrul nanofirelor și a celei calculate h_C de inversul lungimii acestora, pentru nanofirele amorfe cu compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ preparate prin metoda răcirii rapide din topitură.

În graficul din figura 5 am reprezentat atât variația cu diametrul firului a coercitivității determinate experimental, H_C , cât și variația coercitivității reduse, $h_C = H_C/H_{ext}^{max}$, cu inversul lungimii nanofirelor, $1/L$, pentru cazul ciclurilor calculate micromagnetic, în vederea realizării unei comparații între rezultatele experimentale și cele obținute prin simulare numerică. Observăm faptul că panta este identică în ambele cazuri, ceea ce conduce la ideea unei influențe de aceeași natură în ambele cazuri asupra valorii câmpului coercitiv.

Acest rezultat este în acord cu efectul pe care ambele mărimi – diametrul nanofirelor și inversul lungimii acestora – îl au asupra mărimii câmpului de demagnetizare $|\vec{H}_{demag}|$, acesta fiind direct proporțional cu ambele, după cum am menționat și mai sus. În fapt, explicitând, $H_{demag} \sim R/L = (1/2) \cdot \Phi \cdot (1/L)$, în care

cu Φ am notat diametrul nanofirelor, de unde rezultă în mod evident afirmația anterioară.

În cazul nanofirelor amorfe preparate prin metoda răcirii rapide din topitură pe care le-am analizat, având magnetostricțiune aproape nulă, variația termenului magnetostatic reprezintă în fapt o variație a anizotropiei de formă, care apare ca urmare a modificărilor dimensionale (diametru sau lungime), și, ceea ce este cel mai important, care poate să apară chiar și în absența oricărui alt tip de anizotropie magnetică, inclusiv în absența celei de natură magnetoelastică.

Acesta reprezintă și cel mai important rezultat al studiului pe care l-am realizat, deoarece demonstrează fără echivoc importanța anizotropiei de formă în cazul nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă fabricate prin metoda răcirii rapide din topitură.

Astfel, anizotropia de formă joacă un rol esențial în procesul de inversare a magnetizării nanofirelor amorfe în care contribuția magnetoelastică este redusă până la nivelul la care poate fi practic neglijată. Am arătat așadar faptul că, prezența unei anizotropii specifice puternice, cum este cea de natură magnetoelastică, nu este o condiție necesară pentru apariția fenomenului de bistabilitate magnetică, cum se credea, pornind de la precedentul creat de cazul microfiredelor magnetice amorfe acoperite cu sticlă.

Mai mult, raportul dintre magnetizarea remanentă și magnetizarea de saturație, M_R/M_S , oferă dovezi suplimentare în sprijinul rolului important jucat de anizotropia de formă în comportarea magnetică a nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă. Acest raport crește ușor cu lungimea L a eşantioanelor, arătând în mod clar faptul că reprezintă o consecință a faptului că $L \gg R$, deci a anizotropiei de formă.

În concluzie, am studiat procesele de magnetizare ale nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă, obținute prin metoda răcirii rapide din topitură, și am evidențiat prin simulări micromagnetice corelat cu măsurători experimentale ale ciclurilor lor de histerezis, faptul că bistabilitatea lor magnetică își are originea în anizotropia de formă, de natură magnetostatică, dovada fiind variația coercitivității lor cu dimensiunile nanofirelor, determinată atât teoretic, cât și experimental. Existența unor alte tipuri de interacțiuni magnetice sau magnetoelastice nu este o condiție necesară pentru a evidenția comportarea magnetică bistabilă.

3.3. Simularea numerică a ciclurilor de histerezis în cazul nanofirelor amorfe și a firelor submicronice cu magnetostricțiune ridicată ($\lambda \gg 0$).

Pentru cazul firelor submicronice și a nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune ridicată am ales compoziția reprezentativă $\text{Fe}_{77.5}\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$, cu constanta de magnetostricțiune $\lambda \cong +25 \times 10^{-6}$. Pentru calculul ciclurilor lor de histerezis am utilizat aceeași metodologie, descrisă în secțiunea anterioară, și implicit același tip de cod micromagnetic, cu precizarea că, de această dată, am ținut cont și de termenul de anizotropie, $\vec{H}_K$, în relația care dă câmpul efectiv:

$$\vec{H}_{ef} = \vec{H}_{sch} + \vec{H}_K + \vec{H}_{demag} + \vec{H}_{ext} \quad (8)$$

Termenul de anizotropie se referă strict la anizotropia de natură magnetoelastică, constanta respectivă, K_{me} , calculându-se după relația deja prezentată în secțiunea 3.2, cu mențiunea că ordinul de mărime al acesteia este acum mult mai mare, datorită valorii mult mai mari a magnetostricțiunii.

Pentru determinarea experimentală a ciclurilor de histerezis ale acestor fire ultrasubțiri, am preparat eșantioane având compoziția $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$, utilizând echipamentele aflate în dotarea INCDFI-IFT Iași, și am determinat ciclurile de histerezis prin metoda inductivă, utilizată și în cazul nanofirelor cu magnetostricțiune aproape nulă.

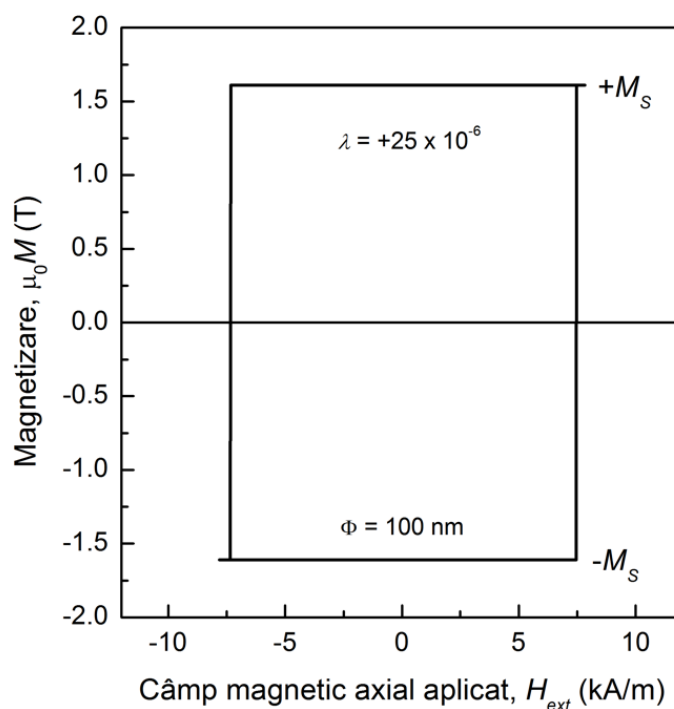


Figura 6. Ciclul de histerezis determinat experimental în cazul unui nanofir amorf având compoziția $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$ și diametrul de 100 nm, preparat prin metoda răcirii rapide din topitură.

În figura 6 am reprezentat un astfel de ciclu de histerezis rectangular, măsurat în cazul unui nanofir de $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$ cu diametrul de 100 nm. Prima diferență pe care o sesizăm în raport cu nanofirele cu compoziția $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$ este valoarea mult mai mare a coercitivității, care ajunge până la 7,5 kA/m. Această valoare indică o contribuție mult mai importantă a termenului de anizotropie în cazul nanofirelor amorse de $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$, comparativ cu cazul nanofirelor amorse de $(\text{Co}_{0,94}\text{Fe}_{0,06})_{72,5}\text{Si}_{12,5}\text{B}_{15}$, la care această contribuție este neglijabilă (v. figura 4).

Avem astfel situații semnificativ diferite în cazul celor două tipuri de nanofire preparate prin răcire rapidă din topitură, cele practic nemagnetostrictive, și cele puternic magnetostrictive. Dacă în primul caz am demonstrat în secțiunea anterioară faptul că bistabilitatea lor magnetică provine din anizotropia de formă, fără vreo contribuție a anizotropiei magnetoelastice, se pune problema dacă, în cel

de-al doilea caz, al nanofirelor puternic magnetostrictive, comportarea magnetică bistabilă, caracterizată de prezența unor cicluri de histerezis rectangulare ca cel ilustrat în figura 6, provine din anizotropia de formă sau din cea magnetoelastică, mult mai importantă în acest caz? Răspunsul la această întrebare este extrem de important pentru posibilitățile de control și ajustare a caracteristicilor magnetice a acestor materiale noi în vederea realizării de noi aplicații în micro- și nanosenzori magnetici, precum și în noi elemente de logică magnetică.

Pentru a elucida aceste aspecte, am recurs din nou la metoda simulărilor micromagnetice, care ne permite modificarea valorilor constantei de anizotropie magnetoelastică, K_{me} , precum și a dimensiunilor nanofirelor (Φ și L), în condițiile unor procese de magnetizare la câmpuri H_{ext} mari, pentru a vedea și efectul celor doi termeni de interes – $\vec{H}_K$ și $\vec{H}_{demag}$ – asupra câmpului de nucleere, H_N .

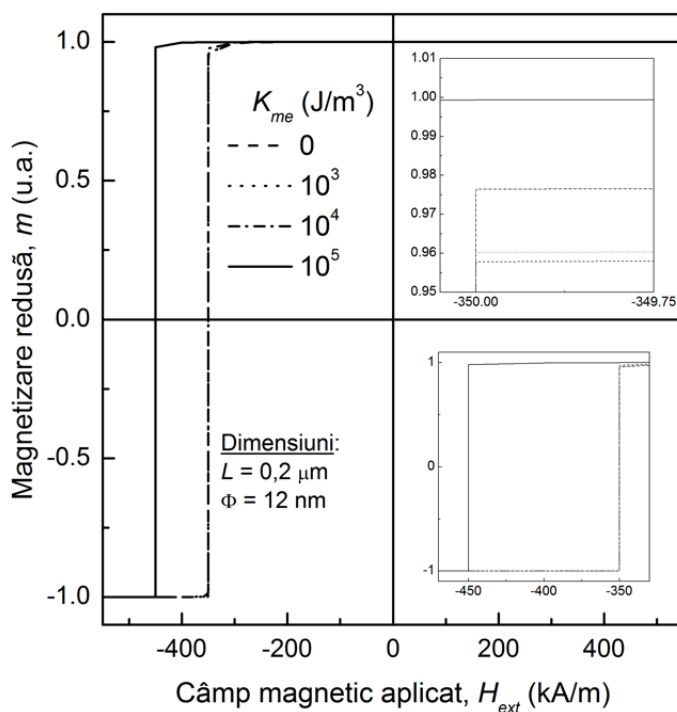


Figura 7. Cicluri de histerezis simulate numeric în cazul unui nanofir amorf cu compoziția $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$, preparat prin metoda răcirii rapide din topitură, și având diametrul de 12 nm și lungimea de 0,2 μm , cu valoarea constantei de anizotropie magnetoelastică ca parametru.

În figura 7 prezentăm ciclurile de histerezis simulate în cazul unor nanofire amorfe cu compoziția $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$ având valorile constantei de anizotropie magnetoelastică cuprinse în intervalul $0 \div 10^5 \text{ J/m}^3$. Acest interval include toate valorile posibile ale constantei K_{me} , limita superioară a intervalului permițând valori ale tensiunii axiale de întindere (componenta diagonală predominantă a tensorului tensiunilor mecanice induse în timpul preparării nanofirelor) de până la câțiva GPa, acesta fiind ordinul de mărime al celor mai mari tensiuni mecanice interne evidențiate în astfel de materiale. Observăm, inclusiv din detaliul inferior, faptul că

valori ale constantei de anizotropie magnetoelastică de până la 10^4 J/m^3 nu afectează valoarea câmpului coercitiv, acesta rămânând practic neschimbat, însă o valoare a K_{me} de 10^5 J/m^3 conduce la creșterea semnificativă a coercitivității, arătând rolul important al termenului magnetoelastic în procesele de magnetizare ce au loc la valori mari ale câmpului magnetic aplicat. În detaliul superior observăm influența termenului magnetoelastic asupra valorii raportului dintre magnetizarea remanentă și magnetizarea de saturație, M_R/M_S . Acesta crește monoton cu valoarea K_{me} . În cazul proceselor de magnetizare la câmpuri mari, raportul M_R/M_S constituie o măsură a gradului de ușurință a procesului de nucleere, respectiv cât de ușor se formează un domeniu cu magnetizarea inversă magnetizării principale a nanofirului, sub acțiunea unui câmp magnetic aplicat în sens opus acesteia. Prin urmare, cu ajutorul simulărilor micromagnetice am identificat o legătură directă între coercitivitate, prin câmpul de nucleere, și termenul magnetoelastic.

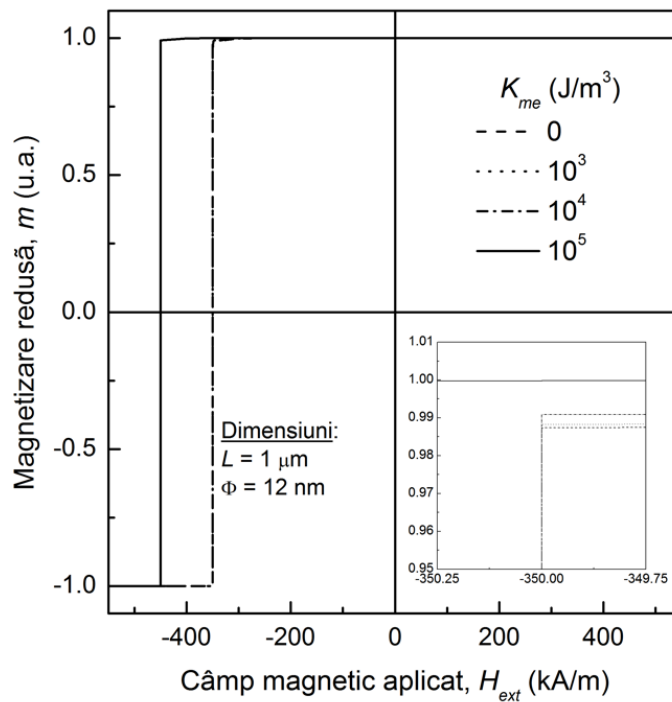


Figura 8. Cicluri de histerezis simulate numeric în cazul unui nanofir amorf cu compoziția $\text{Fe}_{77.5}\text{Si}_{7.5}\text{B}_{15}$, preparat prin metoda răcirii rapide din topitură, și având diametrul de 12 nm și lungimea de 1 μm , cu valoarea constantei de anizotropie magnetoelastică ca parametru.

Pentru a studia influența termenului magnetostatic, prin anizotropia de formă, asupra câmpului coercitiv, am modificat mai întâi lungimea eșantioanelor simulate, crescând L de la 0,2 μm la 1 μm . Rezultatele sunt prezentate în figura 8. Ulterior, am mărit și diametrul nanofirului de la 12 nm la 50 nm, păstrând lungimea de 1 μm . Rezultatele acestor simulări sunt prezentate în figura 9.

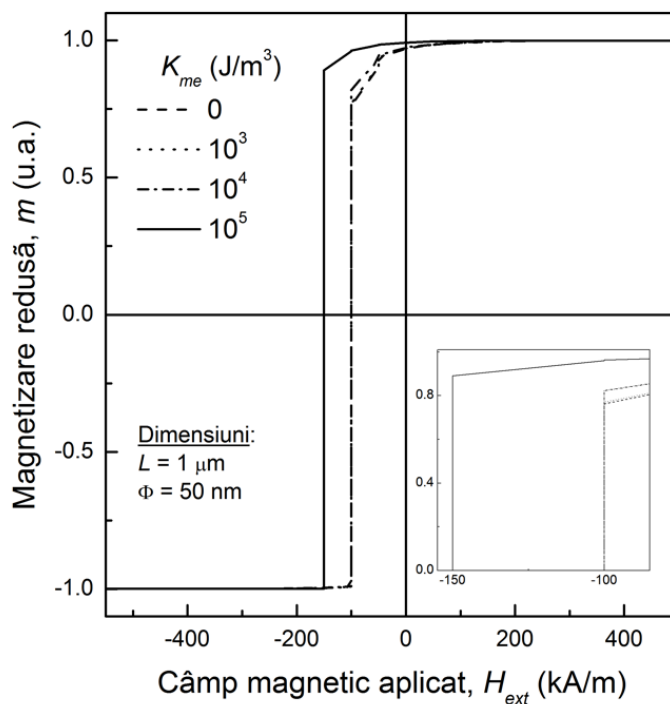


Figura 9. Cicluri de histerezis simulate numeric în cazul unui nanofir amorf cu compoziția $\text{Fe}_{77,5}\text{Si}_{7,5}\text{B}_{15}$, preparat prin metoda răcirii rapide din topitură, și având diametrul de 50 nm și lungimea de 1 μm , cu valoarea constantei de anizotropie magnetoelastică ca parametru.

Observăm faptul că simpla creștere a lungimii eșantionului simulat, chiar și de 5 ori, nu afectează valoarea câmpului coercitiv. Acest rezultat validează utilizarea unei lungimi a nanofirului de doar 0,2 μm pentru calculele inițiale. Pe de altă parte, avem o creștere a raportului M_R/M_S , ceea ce arată că o contribuție mai importantă a termenului magnetostatic (anizotropiei de formă), influențează câmpul de nucleere, ca și termenul magnetoelastic. Referitor la efectul termenului magnetoelastic, observăm că și în cazul eșantionului mai lung dependența raportului M_R/M_S de valoarea constantei K_{me} se păstrează, dar este mai puțin pronunțată decât în cazul eșantionului mai scurt, cu $L = 0,2 \mu\text{m}$.

În altă ordine de idei, conform rezultatelor prezentate în figura 9, creșterea diametrului nanofirului până la 50 nm conduce la o scădere semnificativă a câmpului coercitiv comparativ cu cazul în care eșantionul are diametrul de numai 12 nm. Aceasta indică faptul că este mult mai ușor de nucleat un domeniu cu magnetizare inversă în nanofirele mai groase și este în acord cu valorile raportului M_R/M_S , care sunt mai mici decât în cazul eșantioanelor mai subțiri. Pe de altă parte, valori ale constantei de anizotropie magnetoelastică de până la 10^4 J/m^3 tot nu afectează valoarea coercitivității.

Așadar, în cazul nanofirelor amorfe magnetostrictive, studiul proceselor de magnetizare prin simularea micromagnetică a ciclurilor de histerezis, coroborat cu determinarea experimentală a ciclurilor de histerezis arată că atât termenul magnetoelastic, cât și cel magnetostatic, afectează comportarea magnetică a acestora. Termenul magnetoelastic modifică valoarea câmpului coercitiv, indiferent de mecanismul prin care se produce inversarea magnetizării nanofirului, respectiv în cazul câmpurilor joase, valabil pentru ciclurile experimentale, în care există un

domeniu de capăt cu magnetizarea inversă datorită efectului demagnetizant, iar peretele dintre acest domeniu și restul magnetizării nanofirului se desprinde și se propagă până în celălalt capăt atunci când valoarea câmpului aplicat H_{ext} depășește o valoare de prag, respectiv câmpul de propagare H_p , sau în cazul câmpurilor mari, valabil pentru ciclurile simulate numeric, în care este necesară nucleerea unui domeniu cu magnetizarea inversă, iar peretele de domenii nou apărut se propagă imediat spre celălalt capăt al nanofirului atunci când câmpul aplicat depășește o altă valoare de prag, respectiv câmpul de nucleere, H_N . Termenul magnetostatic, pe de altă parte, prin intermediul anizotropiei de formă asociate, afectează valoarea câmpului de nucleere H_N .

Aceasta este, prin urmare, diferența dintre cazul nanofirelor slab magnetostrictive și al celor puternic magnetostrictive: în primul caz comportarea magnetică a eşantioanelor este guvernată doar de termenul magnetostatic, în timp ce în cel de-al doilea caz trebuie să ținem cont de ambele contribuții (magnetostatică și magnetoelastică) pentru a putea înțelege, controla și modifica caracteristicile magnetice în vederea dezvoltării unor aplicații pe baza acestor materiale. Anizotropia de formă poate fi modificată, în anumite limite, prin intermediul dimensiunilor eşantioanelor (diametru și lungime), în timp ce termenul magnetoelastic oferă și alte posibilități de ajustare, cum ar fi: (i) modificări în compoziție, cu efecte asupra valorii constantei de magnetostricțiune; (ii) diferite tratamente (termice, termo-magnetice, termo-mecano-magnetice, etc.); (iii) prelucrări post-producție, cum ar fi subțierea învelișului de sticlă sau îndepărtarea completă a acestuia.

4. Concluzii. Diseminarea rezultatelor

Am realizat un cod micromagnetic pentru simularea numerică a ciclurilor de histerezis magnetic din nanofire și fire submicronice amorfe obținute prin metoda răcirii rapide din topitură și descrierea proceselor de magnetizare din acestea. Codul este bazat pe metoda diferențelor finite și rezolvă ecuația micromagnetică de echilibru pentru fiecare valoare a câmpului efectiv, soluția fiind distribuția de echilibru a momentelor magnetice elementare într-o situație dată, descrisă de toate interacțiunile din materialul feromagnetic simulat – interacțiune de schimb, interacțiune Zeeman, interacțiune magnetostatică și contribuția anizotropiei magnetice, după caz.

Pe baza codului realizat, am simulat numeric ciclurile de histerezis din nanofire amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă ($\lambda \approx 0$) și din nanofire amorfe cu magnetostricțiune mare ($\lambda \gg 0$), variind principalii parametri care conduc la modificarea termenilor corespunzători anizotropiei și respectiv interacțiunii magnetostatice. Rezultatele simulărilor le-am corelat cu cele pe care le-am obținut din determinarea experimentală a ciclurilor de histerezis la câmpuri magnetice joase, pentru a înțelege efectul pe care modificările parametrilor geometrici (lungime și/sau diametru eşantion, grosime strat sticlă) sau mecanici (tensiuni interne induse în procesul de fabricație sau după, relaxări ale acestora ca urmare a tratamentelor specifice aplicate) le au asupra proceselor de magnetizare în

funcție de compoziția aliajului feromagnetic din care a fost preparat nanofirul (reflectat în valoarea constantei de magnetostricțiune λ).

În cazul nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă, obținute prin metoda răcirii rapide din topitură, am evidențiat faptul că bistabilitatea lor magnetică își are originea în anizotropia de formă, de natură magnetostatică, dovada fiind variația coercitivității lor cu dimensiunile nanofirelor, determinată atât teoretic, cât și experimental. Existența unor alte tipuri de interacțiuni magnetice sau magnetoelastice nu este o condiție necesară pentru a evidenția comportarea magnetică bistabilă.

În cazul nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune mare, am arătat că trebuie să ținem cont de ambele contribuții (magnetostatică și magnetoelastică) pentru a putea înțelege, controla și modifica caracteristicile magnetice în vederea dezvoltării unor aplicații pe baza acestor materiale.

Anizotropia de formă și termenul magnetostatic asociat, pot fi controlate atât pentru nanofirele cu $\lambda \approx 0$, cât și pentru cele cu $\lambda \gg 0$, în anumite limite, prin intermediul dimensiunilor eșantioanelor (diametru și lungime).

Termenul magnetoelastic oferă și alte posibilități de control și ajustare, cum ar fi: (i) modificări în compoziție, cu efecte asupra valorii constantei de magnetostricțiune λ ; (ii) diferite tratamente (termice, termo-magnetice, termo-mecano-magnetice, etc.); (iii) prelucrări post-producție, cum ar fi subțierea învelișului de sticlă sau îndepărtarea completă a acestuia.

Rezultatele pe care le-am obținut în cadrul acestei etape sunt foarte importante atât pentru înțelegerea aspectelor fundamentale ale comportării magnetice a nanofirelor amorfe obținute prin procesul de răcire rapidă din topitură, cât mai ales pentru utilizarea cunoștințelor dobândite în vederea controlului caracteristicilor lor magnetice aplicabile la realizarea de noi micro- și nanosenzori magnetici și totodată la realizarea de elemente de logică magnetică prin utilizarea acestor noi nanofire în locul celor obținute prin diferite tehnici de litografie, mult mai costisitoare decât răcirea rapidă.

Pe baza rezultatelor prezentate în acest raport, suntem în măsură să afirmăm că toate activitățile prevăzute în această etapă au fost realizate în totalitate, în conformitate cu ultimul plan de realizare. Totodată, considerăm că există toate premisele favorabile continuării proiectului și atingerii obiectivelor acestuia (obiectivul principal și cel asociat – așa cum sunt acestea descrise în prima secțiune a acestui raport).

În ceea ce privește valorificarea rezultatelor obținute în etapa din 2015, majoritatea acestora sunt cuprinse în două articole – unul acceptat pentru publicare în revista *Physica B* și altul în curs de evaluare pentru revista *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, ambele de la prestigioasa editură Elsevier:

1. C. Rotărescu, A. Atițoaie, L. Stoleriu, T.-A. Óvári, N. Lupu, H. Chiriac, „Shape anisotropy in zero-magnetostrictive rapidly solidified amorphous nanowires”, *Physica B* (acceptat – în curs de publicare);

2. T.-A. Óvári, C. Rotărescu, A. Atițoaie, S. Corodeanu, N. Lupu, and H. Chiriac, „Magnetic anisotropy in rapidly quenched amorphous glass-coated nanowires”, *J. Magn. Magn. Mater.*

Primul articol conține rezultatele referitoare la procesele de magnetizare și ciclurile de histerezis simulate numeric în cazul nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune aproape nulă, în timp ce cel de-al doilea cuprinde rezultatele cu privire la aceleași probleme în cazul nanofirelor amorfe cu magnetostricțiune mare.

Aceste două articole ridică numărul total de publicații realizate până în prezent la acest proiect la **6 articole** (2 în *Journal of Applied Physics*, 2 în *IEEE Transactions on Magnetism*, 1 în *Physica B* și 1 în *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*) și **un capitol de carte** publicat la prestigioasa editură Woodhead Publishing, care aparține de grupul Elsevier. Toate aceste publicații sunt strict legate de subiectul proiectului.

Rezultatele pe care le-am obținut în 2015 în cadrul acestui proiect le-am diseminat pe larg prin prezentări făcute la unele din cele mai importante manifestări științifice din domeniul magnetismului și materialelor magnetice ce au avut loc în cursul acestui an. Astfel, rezultatele le-am prezentat la:

- IEEE International Magnetism Conference – INTERMAG 2015, Beijing, China, 11 – 15 mai 2015 – 2 lucrări:
 - (FQ-13) Effect of magnetostriction on the low- and high-field magnetization reversal of rapidly solidified amorphous nanowires – T.-A. Óvári, C. Rotărescu, A. Atițoaie, H. Chiriac;
 - (HR-01) Anisotropy distribution in rapidly quenched amorphous glass-coated nanowires – T.-A. Óvári, S. Corodeanu, M. Lostun, G. Ababei, H. Chiriac.
- 20th International Conference on Magnetism – ICM 2015, Barcelona, Spania, 5 – 10 iulie 2015 – lucrarea:
 - (Mo.K-P30) Mechanism of magnetic switching in rapidly solidified amorphous nanowires – T.-A. Óvári, C. Rotărescu, A. Atițoaie, H. Chiriac.
- IOP (Institute of Physics) Magnetism 2015, Leeds, Marea Britanie, 30 – 31 martie 2015 – lucrarea:
 - (P.66) Amorphous glass-coated nanowires and submicron wires prepared by rapid quenching from the melt – M. Țibu, T.-A. Óvári, H. Chiriac.
- 10th International Symposium on Hysteresis Modeling and Micromagnetics – HMM 2015, Iași, România, 18 – 20 mai 2015 – lucrarea:
 - (P55) Shape anisotropy in zero-magnetostrictive rapidly solidified amorphous nanowires – C. Rotărescu, A. Atițoaie, L. Stoleriu, T.-A. Óvári, N. Lupu, H. Chiriac.
- 7th International Workshop on Amorphous and Nanostructured Magnetic Materials – ANMM'2015, Iași, România, 21 – 24 septembrie 2015 – 2 lucrări:

- (P.30) Micromagnetic simulations of cylindrical magnetic nanowires with zero magnetostriction – C. Rotărescu, T.-A. Óvári, N. Lupu, H. Chiriac;
- (P.35) Investigation of domain walls nucleation and motion in submicron wmmorphous wires – M. Țibu, M. Lostun, D.A. Allwood, N. Lupu, T.-A. Óvári, H. Chiriac.

Astfel, totalul comunicărilor legate de tematica acestui proiect în 2015 a fost de 7 lucrări prezentate la manifestări științifice internaționale.

Activitățile efectuate în cadrul proiectului au avut de asemenea rezultate importante în formarea celor cinci cercetători postdoctorali din echipa de cercetare a proiectului, patru dintre aceștia – Dr. Cristian Rotărescu, Dr. Sorin Corodeanu, Dr. Gabriel Ababei și Dr. Mihai Țibu – fiind coautori la lucrările trimise spre publicare sau prezentate la conferințele internaționale.

Avem rezultate foarte bune și în colaborările internaționale în tematica proiectului, acestea fiind sprijinite financiar printr-un proiect FP7 de tip REGPOT, în care colaborăm cu unul din grupurile renumite din Marea Britanie, grupul Prof. Dan Allwood de la University of Sheffield, grup cu rezultate remarcabile în domeniul dispozitivelor pe bază de logică de pereți de domenii magnetice.

Director de proiect,
CS I Dr. T.-A. Óvári