

Relaxação da permeabilidade magnética em fitas ferromagnéticas amorfas

R. Sato Turtelli

Instituto de Física, UNICAMP, Caixa Postal 6165, Campinas, 19081, SP, Brasil

F. Vinai

Instituto Elettrotecnico Nazionale "Galileo Ferraris", Corso Massimo D'Azeglio, 42 Torino, 10125, Itália

Recebido em 15 de Março de 1990; forma final em 19 de Junho de 1990

Resumo Foram feitas medidas de relaxação da permeabilidade magnética nas ligas ferromagnéticas amorfas para intervalos de tempos longos, entre 1 e 1200s, às temperaturas 4,2 K, 77 K e 300 K. Os resultados são analisados em termos de uma superposição de processos ativados individualmente com uma larga distribuição de constantes de tempo. A permeabilidade magnética ρ varia logaritmicamente com o tempo 1s após a desmagnetização impulsiva, somente para as baixas temperaturas. Para a temperatura ambiente, o comportamento $\rho(t)$ é quasi-logaritmica, sugerindo que a suposição da constância da distribuição de energias de ativação para a análise do *aftereffect*, não é inteiramente válida.

1. Introdução

O relaxamento da permeabilidade magnética inicial ρ de uma liga ferromagnética (o *aftereffect* da permeabilidade magnética) é a diminuição de ρ em função do tempo, que pode ser observado logo após a uma desmagnetização ou logo após um súbito rearranjo da estrutura de domínio magnético. O efeito está relacionado com a existência de um campo "viscoso" que dificulta o movimento oscilatório da parede de domínio submetido a um campo oscilante de pequena amplitude.

O *aftereffect* é observado tanto nos materiais cristalinos magnéticos como nos amorfos. O fenômeno é muito bem esclarecido para os cristalinos, entretanto para os amorfos existem muitos pontos que ainda devem ser esclarecidos. Em ambos

R. Sato Turtelli e F. Vinai

os casos, na escala microscópica, o *aftereffect* está relacionado com **rearranjos** estruturais e com vários processos de ordenamento de defeitos que interagem com a **magnetização** local. Podem ser considerados defeitos como as impurezas intersticiais, os pares de átomos de soluto, os grupos de átomos mais complexos, os “clusters”. Em cristais, tais defeitos devem ser átomos intersticiais, como átomos de C em alfa-Fe, ou pares de átomos, como o par Al-Al na solução sólida de Fe-Al. Seu ordenamento direcional ocorre através do processo de difusão numa matriz ordenada, portanto a energia de ativação do processo e a constante de tempo **relacionada** estão bem definidas. De um modo geral, pode-se dizer que, quando numa liga ferromagnética são formadas paredes novas de domínio, após a desmagnetização ou um rearranjo de estruturas de domínio, a distribuição dos eixos de anisotropia interna associados a defeitos fica fora de equilíbrio em relação à distribuição de magnetização correspondente à nova estrutura do domínio. Os defeitos, portanto, com a sua constante de tempo característica, procuram acomodar-se a esta nova distribuição. Durante este processo de reordenamento o valor da energia total de interação entre defeitos e magnetização é continuamente modificado. É facilmente mostrado que a amplitude das oscilações da parede de Bloch diminui em consequência de tal ordenamento, para campo aplicado de intensidade constante. Em primeira aproximação, o movimento da parede pode ser descrito como um oscilador forçado de massa efetiva desprezível: $\beta \dot{x} + a(t)x = 2M_s H_0 \sin \omega t$, onde M_s é a magnetização de saturação, β é o coeficiente de amortecimento relacionado à corrente induzida produzida pelo movimento da parede; este termo $\beta \dot{x}$ pode ser desprezado quando o movimento da parede é comparável com a sua espessura, isto é, no limite de pequenas velocidades de parede; $a(t)$ é o termo da força de restauração, que varia com o tempo devido à presença do campo de viscosidade.

Nos materiais cristalinos, o *aftereffect* da permeabilidade magnética é caracterizado por uma lei $\mu(t)$ praticamente exponencial na qual pode-se individuar uma ou pouquíssimas constantes de tempo τ , caracterizadas pelos processos difusivos bem precisos com energias de ativação bem definidas para os processos de ordenamento e portanto, nos cristais, a possibilidade de observar o fenômeno é

Relaxação da permeabilidade magnética em fitas...

somente num intervalo pequeno de temperatura¹. Entretanto, nos materiais amorfo, o *aftereffect* $\mu(t)$ apresenta um comportamento logaritmico com o tempo e é observado num intervalo grande de temperatura, no mínimo de 4,2 K até a temperatura de Curie^{2,3}, isto é, o fenômeno é observável para as temperaturas em que o material permaneça ferromagnético. Além disso o efeito é fortemente influenciado pelo grau de desordem estrutural e de reiaxamento estrutural que ocorre nas ligas amorfas⁴.

A lei logaritmica que descreve o decaimento da permeabilidade magnética nos materiais amorfo "as cast" não é sempre observada⁵. Para obter mais informações sobre o processo de relaxação magnética, foram efetuadas as medidas de $\Delta\mu/\mu$ para os intervalos de $t_1 = 1\text{ s}$ e $t_2 = 320$ e 1200 s, às temperaturas 4,2 K, 77 K e 300 K numa série de amostras tanto na base de cobalto como de base ferro preparadas pelo método de "melt spinning".

2. Aftereffect da permeabilidade magnética em fitas ferromagnéticas amorfas e o método de medida

Antes de discutirmos os modelos teóricos para explicar os fatos experimentais, é útil descrevermos primeiro as condições de medida de *aftereffect* nas fitas ferromagnéticas amorfas.

A estrutura de domínio nas fitas ferromagnéticas amorfas, de largura tipicamente de 5 mm, normalmente é composta por 4 a 5 paredes de 180° , às quais se sobrepõe uma estrutura mais complexa de domínios de fechamento causada pelas flutuações dos átomos congelados nos materiais. Sendo o material magnetostritivo, tais domínios podem desaparecer com uma simples aplicação de tensão de amplitude própria, deixando com uma estrutura simples de domínio de 180° e as paredes de Bloch podem oscilar independentemente uma das outras, quando se aplica um campo senoidal de pequena intensidade. Nestas condições, a permeabilidade magnética inicial $\mu = \chi = M/H$, assim como a indução $B = M$, fornecem uma medida do deslocamento médio da parede $\xi = dM/(2nM_s)$, uma vez que se conheça o número de paredes n , que pode ser obtido, por exemplo, através das técnicas de efeito Kerr.

O *aftereffect* da permeabilidade magnética é medido imediatamente após um súbito rearranjo da estrutura de domínio magnético causado por um pulso de um campo saturante. Uma nova estrutura magnética é gerada cerca de 10^{-5} s após a desmagnetização. As paredes de domínios nucleadas começam a oscilar devido à presença do campo e a permeabilidade magnética decresce uniformemente com o tempo. A figura 1 mostra as estruturas de domínios de uma amostra típica de fitas amorfas antes e depois de saturação. O comportamento $\mu(t)$ é esquematicamente mostrado.

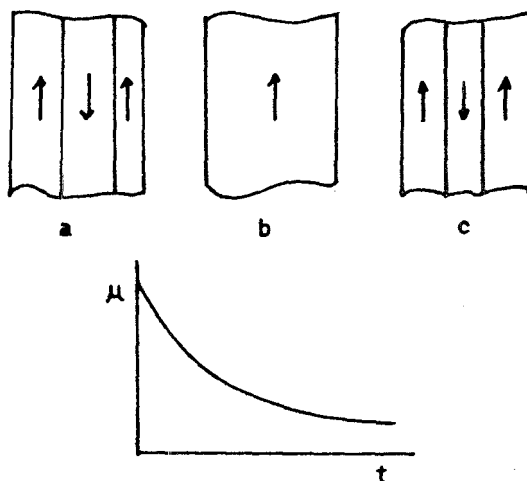


Fig. 1 - Estrutura do domínio de uma amostra típica de uma fita amorfa (a) antes e (c) depois de (b) saturação. O comportamento de μ em função do tempo é mostrado esquematicamente.

Devido a grande espectro de constante de tempo em jogo no *aftereffect* nos materiais amorfos, foi utilizada a técnica impulsiva que permite escolher o intervalo de medida de interesse a partir de tempo extremamente curto depois da desmagnetização (10^{-5} s).

O diagrama de bloco da figura 2 ilustra o sistema de medida para tempos $\geq 10^{-3}$ s. A largura do pulso de campo saturante é de 10^{-5} s e a sua intensidade é de

Relação da permeabilidade magnética em fitas..

$\approx 10A/m$. As medidas foram efetuadas para diversos valores de B de modo a obter para cada amostra a curva AB em função de B para determinar os valores máximos de AB. Neste ponto a amplitude da oscilação da parede corresponde a um máximo deslocamento de parede, cerca de um quarto de sua espessura $6(6 \approx 0,5\mu m)^6$.

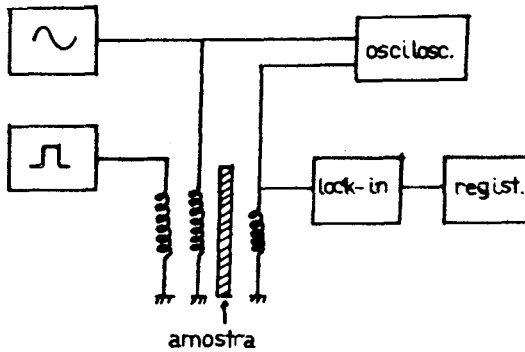


Fig. 2 - Diagrama de bloco da aparelhagem experimental.

As medidas de $\Delta\mu/\mu$ foram efetuadas às temperaturas 4,2; 77 e 300 K, numa série de amostras produzidas pelo resfriamento rápido englobando tanto ligas de base Fe como de base Co. As ligas estudadas nesta experiência com os respectivos valores de λ_s e a , são mostrados na tabela 1.

Recentemente foram propostos modelos que interpretam o *aftereffect* da permeabilidade magnética nos materiais amorfos^{3,7,8}. Dentre eles temos o "modelo estrutural" que interpreta a origem do *aftereffect* como resultante da interação magnetostrictiva entre magnetização local e defeitos estruturais que se movem entre dois postos energeticamente equivalentes e são descritos como sistemas clássicos de dois níveis não correlacionados (ver figura 3). As configurações equivalentes são separadas por uma barreira de potencial caracterizada por uma energia de ativação, que é diferente para cada sítio no matriz amorfo. O ponto básico de todos os modelos existentes é a suposição da independência destes processos difusivos, essencialmente caracterizados por um par de parâmetros, isto é, a altura da barreira e a assimetria do poço de potencial. O modelo estrutural é baseado na

R. Sato Turtelli e F. Vinai

descrição da estrutura do vidro metálico em termos da flutuação de tensão a nível atômico"). Os defeitos estruturais responsáveis pelo *aftereffect* são intrínsecos à estrutura. Sob a hipótese de que o *aftereffect* se origina do rearranjo atômico que ocorre para minimizar a energia magnetoelástica após uma instantânea variação da magnetização local, nós obtemos⁷ :

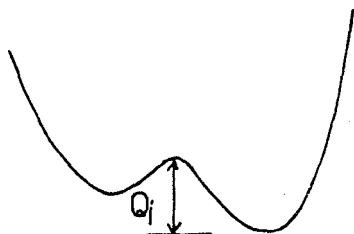


Fig. 3 - Um sistema clássico de dois níveis.
 Q_i é a energia de ativação do processo.

Tabela 1 - Valores experimentais para magnetostricção de saturação λ_s e magnetização de saturação a_s ,⁹.

| Material | $\lambda_s(10^{-6})$ | σ_s (Tesla) |
|--|----------------------|--------------------|
| $CO_{75}Si_{15}B_{10}$ | -3,5 | 0,71 |
| $CO_{70,4}Fe_{4,6}Si_{15}B_{10}$ | $\sim 0,0$ | 0,84 |
| $CO_{66,5}Fe_{8,5}Si_{15}B_{10}$ | 3,0 | 0,86 |
| $CO_{50}Fe_{25}Si_{15}B_{10}$ | 15,0 | 1,07 |
| $Fe_{40}Ni_{38}Mo_4B_{18}$ (2826 MB) | 18,2 | 0,92 |
| $Fe_{80}Nb_3B_{17}$ | 23,5 | 1,25 |
| $Fe_{80}Mn_3B_{17}$ | 30,7 | 1,34 |
| $Fe_{80}Zr_3B_{17}$ | 40,0 | 1,41 |
| $Fe_{81}B_{13,5}Si_{3,5}C_2$ (2605 SC) | 41,0 | 1,61 |
| $CO_{18}Fe_{67}B_{14}Si_1$ (2605 CO) | 41,0 | 1,78 |

$$\Delta\mu/\mu \propto \frac{N_T}{kT} \lambda_{\text{eff}}^2 \langle \tau^2 \rangle \quad (1)$$

Relação da permeabilidade magnética em fitas...

onde $\langle r^2 \rangle$ é o segundo momento das flutuações de tensão de cisalhamento, parâmetro relacionado a desordem estrutural, N_T é o número de defeitos ativos e λ_{eff}^2 é aproximadamente dado por:

$$\lambda_{\text{eff}}^2 = \lambda_s^2 + \langle m \rangle \lambda_g^2 \quad (2)$$

onde A , é a magnetostricção de saturação, λ_g está relacionado com o termo radial da anisotropia local, e $\langle m \rangle$ é um parâmetro que dá informação sobre o grau de distorção estrutural das "células" elementares.

A equação 1 pode ser escrita na forma:

$$\Delta\mu/\mu = A + B\lambda_s^2 \quad (3)$$

Uma relação semelhante foi obtida pelos autores da ref. 8, levando em conta as energias de interação magnética para reordenamento de pares atômicos. Nesta aproximação, as constantes A e B são dadas em termos de componentes de **tensores** das propriedades magnéticas. A eq. (3) permite explicar o *aftereffect* tanto para as ligas ricas em ferro como para aquelas ricas em cobalto⁸.

3. Existência de uma distribuição continua de energias de ativação

Mais informações sobre a forma da função de energia de ativação, $P(Q)$, e mais detalhes sobre a natureza dos defeitos responsáveis pelo *aftereffect* podem ser obtidos, em princípio, estendendo as medidas para intervalos de tempo mais longos após a desmagnetização às temperaturas 4,2 K, 77 K e 300 K.

Pelas considerações feitas que o *aftereffect* nos materiais amorfos será sempre presente para todas as temperaturas entre, no mínimo, hélio líquido e a temperatura de Curie e pelo comportamento do μ tipo logaritmico em função do tempo, surgiu a idéia de considerar a cinética do relaxamento da permeabilidade magnética como sendo devida à presença de uma distribuição de energia de ativação Q .

A cinética do processo, para uma dada temperatura, pode ser explicada através de uma distribuição de constantes de tempo τ , que está relacionada com Q pela equação $\tau = \tau_0 \exp(Q/kT)$, para os eventos elementares que reorientam, com uma apropriada função ponderada, $f(\tau)$. A aproximação canônica consiste em assumir

R. Sato *Turtelli* e F. *Vinai*

a existência de processos independentes com diferentes energias de ativação, descritas pela função ponderada de $p(Q)$. Se supusermos que a $p(Q)$ é uma constante num dado intervalo de energia, a $f(\tau)$ é proporcional a $1/\tau$, e a $\Delta\mu(t)$ definida como:

$$\Delta\mu(t) = \int_0^{\infty} f(\tau) \exp(-t/\tau) d\tau \quad (4)$$

é do tipo logarítmico (Fig. 4). O fato de que o *aftereffect* seja observável para todas as temperaturas abaixo da temperatura de Curie e para todos os tempos após a **nucleação** de um novo padrão de domínio, resulta no espectro muito largo de energias de ativação do processo contendo contribuições de energias tanto de valores muito baixos como também de valores muito altos.

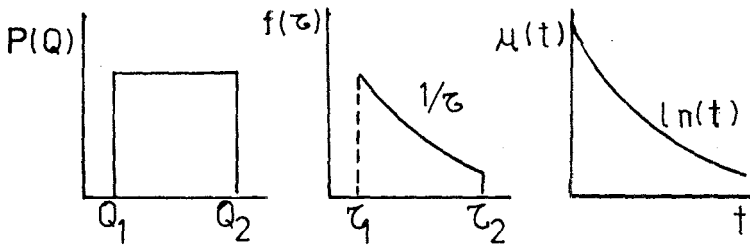


Fig. 4 - A distribuição quadrada de energias de ativação $p(Q)$ dá origem a uma distribuição $1/\tau$ de constante de tempo resultando numa lei logarítmica para os processos de relaxação.

Do ponto de vista experimental, aquilo que se faz é medir μ entre dois tempos fixos t_1 e t_2 definidos para a qual a medida simples seja descrita como uma **superposição** linear de decaimentos elementares do tipo $\exp(-t/\tau)$, ponderada pela **função** contínua $f(\tau)$ (Ver eq. 4) e supondo que o espectro de energia de ativação $p(Q)$ é uma constante entre os limites Q_1 e Q_2 . Nestas condições podemos escrever que:

$$P(Q) = 1/(Q_2 - Q_1) \quad Q_1 < Q < Q_2$$

Relaxação da permeabilidade magnética em fitas...

$$\begin{aligned}
 P(Q) &= 0 & Q > Q_2 \text{ e } Q < Q_1 \\
 f(\tau) &= [1/\ln(\tau_2/\tau_1)]1/\tau & \tau_1 < \tau < \tau_2 \\
 f(\tau) &= 0 & \tau > \tau_2 \text{ e } \tau < \tau_1
 \end{aligned}$$

A equação 4 pode ser escrita como:

$$\Delta\mu(t) = 1/\ln(\tau_2/\tau_1) \int_{\tau_1}^{\tau_2} \exp(-t/\tau)/\tau \, d\tau \quad (5)$$

A suposição da distribuição de energia de ativação como constante é apenas uma primeira aproximação. Tal aproximação é boa se o intervalo de tempo t_1 e t_2 é relativamente pequeno, como mostram os nossos resultados, de modo que o intervalo de constante de tempo seja limitado, assim como o intervalo de Q_1 e Q_2 para as energias de ativação.

A fig. 5 mostra o comportamento de $\mu(t)$ à temperatura ambiente para as ligas amorfas listadas na Tabela 1. O intervalo de medida é feito entre 1s e 1200s. Como se pode observar, com exceção para a liga 2605 CO, o comportamento neste intervalo de medida não é perfeitamente logaritmico. Isto se deve ao fato que para o intervalo de tempos considerados a distribuição $p(Q)$ não é uma constante, nem é estruturada. Se considerarmos um intervalo de tempo menor, por exemplo entre 1s e 10s, pode-se notar que o comportamento é praticamente logaritmico.

A figura 6 representa as medidas de $\mu(t)$ efetuadas num intervalo de tempo entre 1s e 320s a 77 K para algumas amostras listadas da Tabela 1. As amostras escolhidas são: uma de $\lambda_s < 0$, outra de $\lambda_s \simeq 0$ e as outras duas de $\lambda_s > 0$ sendo uma delas com $\lambda_s = 18,2 \times 10^{-6}$ e a outra, 41×10^{-6} . Observa-se que para esta temperatura, todas as curvas são perfeitamente logaritmicas. Este resultado indica que para as baixas temperaturas, pelo menos a partir de 77 K, o comportamento de $\mu(t)$ é sempre logaritmico, isto é, abaixo dessas temperaturas, para todas as ligas ferromagnéticas, pode-se considerar a distribuição da energia de ativação como constante. Para assegurar esta afirmação, foi efetuada medida para 2605 SC, à temperatura de He líquido (4.2 K), num intervalo de $t_1 = 1s$ e $t_2 = 320s$. Conforme esperado, a curva é perfeitamente logaritmica, como mostra a figura 7. Esta figura ilustra também as curvas obtidas à temperatura ambiente e à 77 K. Observa-se

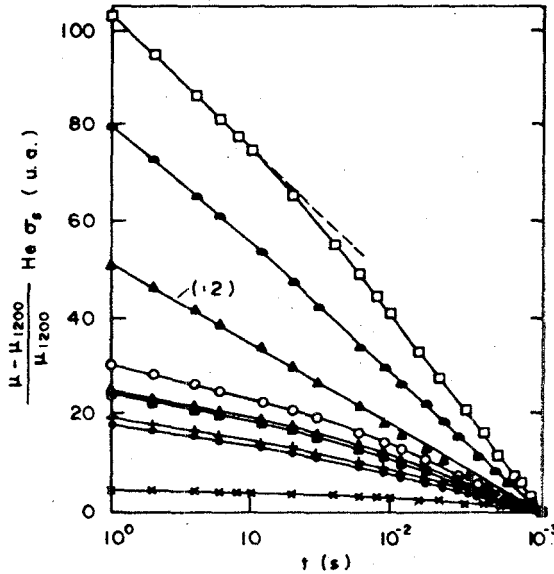


Fig. 5 - Relaxação da permeabilidade magnética à temperatura ambiente, entre 1 e 1200s após a desmagnetização nas fitas amorfas de O 2826 MB, □ 2605 SC; X $\text{CO}_{70,4}\text{Fe}_{4,6}\text{Si}_{15}\text{B}_{10} + \text{CO}_{66,5}\text{Fe}_{8,5}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$; • $\text{CO}_{50}\text{Fe}_{25}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$; ▲ 2605 CO; ● $\text{Fe}_{80}\text{Zr}_3\text{B}_{17}$; ■ $\text{Fe}_{80}\text{Mn}_3\text{B}_{17}$; △ $\text{Fe}_{80}\text{Nb}_3\text{B}_{17}$.

a nítida mudança de forma da $\mu(t)$ quando se passa da temperatura ambiente a temperatura de nitrogênio líquido. É interessante notar que a intensidade de *aftereffect* obtida a 4.2 K é maior que 77 K¹¹.

A análise de $\mu(t)$ para grande intervalo de tempo é equivalente ao estudo da intensidade do *aftereffect* entre dois tempos fixos em função da temperatura. Deste modo também é possível obter informações sobre a forma da distribuição de energias de ativação. Porém neste caso, deve se ter em mente que para as temperaturas maiores que 100°C pode haver a influência da relaxação estrutural, portanto, para às altas temperaturas, $\Delta\mu$ em função de T não seria um bom método para obter uma boa informação sobre $p(Q)$.

Relaxação da permeabilidade magnética em fitas...

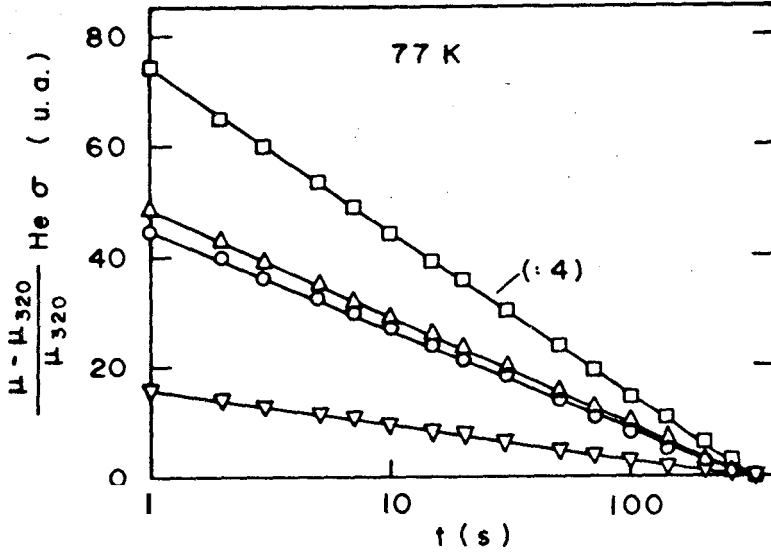


Fig. 6 - Relaxação de permeabilidade magnética entre 1 e 320 s após a desmagnetização nas fitas amorfas de O 2826 MB; \square 2605 SC; Δ $\text{CO}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ e $\text{CO}_{70,4}\text{Fe}_{4,6}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$.

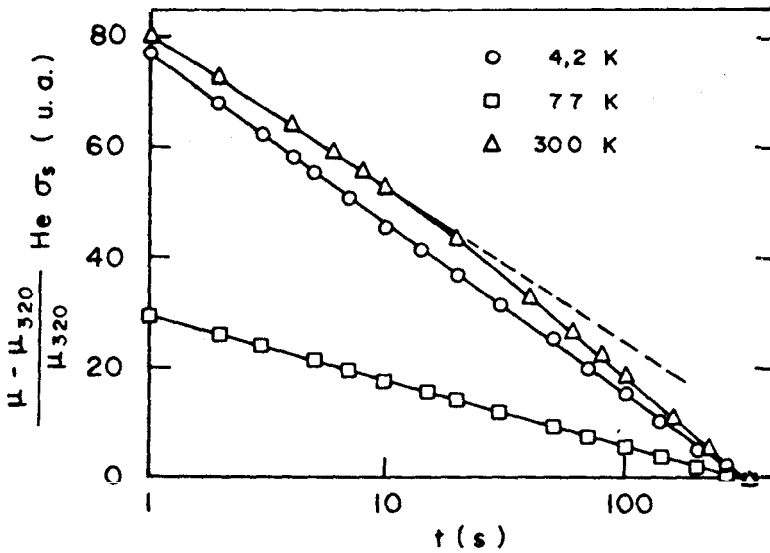


Fig. 7 - Relaxação da permeabilidade magnética entre 1 e 320 s após a desmagnetização na fita 2605 SC para as temperaturas 4,2 K, 77 K e 300 K.

R. Sato Turtelli e F. Vinai

4. Conclusão

Estudo da **relaxação** da permeabilidade magnética em fitas ferromagnéticas **amorfas** é uma técnica para investigar a natureza e o papel de defeitos estruturais nestes materiais.

O aftereffect é geralmente interpretado como sendo proveniente de uma superposição de processos difusivos independentes que são caracterizadas por uma **função** contínua de constantes de tempo. Supondo que a distribuição de energia de **ativação** seja constante num dado intervalo, então o comportamento da relaxação da permeabilidade magnética em função de tempo deverá ser sempre logaritmico. Nossos dados experimentais mostram que tal **suposição não** é válida para a temperatura ambiente quando a medida é feita num intervalo de tempo grande. Para as temperaturas baixas ($T \leq 77 \text{ K}$) o comportamento $p(t)$ é sempre logaritmico.

Referências

1. L. Neel, *J. Phys. Radium* 13, **245 (1952)**.
2. P. Allia, R. Sato Turtelli and F. Vinal, *IEEE Trans. on Magn. MAG* 23, **2542 (1987)**.
3. P. Allia and F. Vinai, *Phys. Rev. B* 26, **6141 (1982)**.
4. P. Allia, F. E. Lubonsky, R. Sato Turtelli, G. P. Soardo and F. Vinai, *IEEE Trans. on Magn. MAG* 17, **2615 (1981)**.
5. P. Allia, C. Beatrice, P. Mazzetti and F. Vinai, *J. Mag. Magn. Mat.* **54-57, 273 (1986)**.
6. P. Allia and F. Vinai, *IEEE Trans. Magn. MAG* 17, **1481 (1981)**.
7. P. Allia and F. Vinai, *Phys. Rev. B* **33, 422 (1986)**.
8. H. Kronmiiller, N. Moser and F. Rettenmeier, *IEE Trans. on Magn. MAG* 20, **1388 (1984)**.
9. A.T. Rezende, R. Sato Turtelli and F. P. Missel, *IEEE Trans. on Magn. MAG* **23, 2128 (1987)**.
10. T. Egami, K. Maeda and V. Vitek, *Philos. Mag.* 41, **883 (1980)**.
11. F. Vinai, P. Allia, A. T. de Rezende and R. Sato Turtelli, *Journal de Physique*, **C8, 12, C8-1309 (1988)**.

Relaxação da permeabilidade magnética em fitas...

Abstract

We have measure the aftereffect of the magnetic permeability on amorphous antiferromagnetic alloys for long time intervals, between **1** and **1200 s.**, at the temperatures **4.2 K**, **77 K** and **300 K**. Our results are analysed in terms of a superposition of individually activated processes with a broad distribution of time constants. The magnetic permeability μ varies logarithmically with time **1** sec after the demagnetisation, only for low temperatures. At room temperature, the behaviour $\mu(t)$ is quasi-logarithmic, suggesting that the assumption of a constant distribution of activation energies for the analysis of the aftereffect is not entirely valid.