

Magnetismo en aleaciones metálicas diluidas

Rixio Ernesto Parra y Aleida del Carmen González*

*Centro de Física, Instituto Venezolano de Investigaciones Científicas
Apartado 21827. Caracas 1020A, Venezuela*

Recibido:30-05-94 Aceptado:22-08-94

Resumen

En las aleaciones diluidas de los metales de transición, en donde la base es de paladio o de platino, se forman nubes de magnetización gigantes (varios magnetones de Bohr) que al interactuar entre ellas producen una transición de fase del paramagnetismo al ferromagnetismo. Estos momentos gigantes son medidos por difracción de neutrones y sus características son comparables con medidas de magnetización. En este trabajo se presentan las propiedades magnéticas de diversas aleaciones de momentos gigantes. Por medio de un modelo de momentos localizados se estudió la formación de las nubes de magnetización a baja temperatura y su transformación a medida que ésta aumenta. El modelo permitió calcular las temperaturas críticas del ferromagnetismo de estas aleaciones y compararlas con datos experimentales.

Palabras claves: Aleaciones magnéticas; ferromagnetismo.

Magnetism in dilute metal alloys

Abstract

In transition metal dilute alloys, where the matrix is palladium or platinum, giant magnetization clouds are formed (in the order of several Bohr magnetons) that interact with each other producing a phase transition from paramagnetism to ferromagnetism. These giant moments can be measured by neutron diffraction and their characteristics can be compared with magnetization measurements. In this work, we present the magnetic properties of several giant moment alloys. Using a local moment model, we studied the formation of magnetization clouds and their transformation as we increased the temperature. The model allowed to calculate the critical temperatures of ferromagnetism in these alloys and to compare them with experimental data.

Key words: Magnetic alloys; ferromagnetism.

Introducción

Los metales de transición con la banda d casi llena son paramagnéticos (como el paladio y platino) y presentan grandes perturbaciones en sus momentos cuando se incluyen impurezas [por ejemplo: cobalto en platino o hierro en paladio]. En el Pd y Pt se forman nubes gigantes de magnetización

cuando se introducen impurezas magnéticas como el Fe o Co. Un ejemplo típico es el momento magnético que se forma alrededor de una impureza de Fe en Pd; el momento total de la nube es de aproximadamente $10 \mu_B$ mientras que el momento del hierro es de aproximadamente $3,5 \mu_B$. Esto implica que el resto del momento ($6,5 \mu_B$) se encuentra distribuido entre los átomos de Pd. A

* Autor para la correspondencia.

estos momentos se les llaman gigantes porque abarcan varias capas de átomos; e.g., la dimensión de la nube en PdFe es de alrededor de 10 Å. En el Pt sucede algo análogo, aunque los momentos gigantes que se forman son más pequeños debido a una menor susceptibilidad del Pt con respecto al Pd. Estos momentos gigantes o nubes de magnetización se miden generalmente por medio de difracción de neutrones, aunque también es posible evaluarlos por medio de medidas de magnetización para diferentes concentraciones de la impureza. En este trabajo se estudia la formación de estos momentos a bajas temperaturas y, posteriormente, su transformación a altas temperaturas.

Formación de las nubes de magnetización

Explicamos la forma de las nubes de magnetización con el siguiente modelo fenomenológico (1). Asumimos que el momento de la impureza μ_i es constante mientras que el momento de los átomos de la matriz está dado por:

$$\mu_n = \chi_0 \left[b_n + J_{hh} \sum_{\delta}^{\text{matriz}} \mu_{n+\delta} + J_{hi} \sum_{\delta}^{\text{impur}} \mu_{n+\delta} \right], \quad [1]$$

donde δ corresponde a las posiciones de primeros vecinos, χ_0 es la susceptibilidad de átomo aislado, J es la constante de intercambio (el subíndice h corresponde a átomos de la matriz y el i a átomos de la impureza) y b_n es el campo externo. Las sumatorias se realizan sobre átomos de la matriz o de la impureza, tal como se indican.

Con una transformada de Fourier se obtiene la forma de la nube producida por una impureza aislada,

$$M(\underline{K}) = \sum_n e^{-i\underline{K} \cdot \underline{r}_n} \mu_n. \quad [2]$$

La función $M(\underline{K})$ se obtiene por medio de la dispersión difusa de neutrones en la aleación,

después de ser transformada al espacio en \underline{K} . Esta función nos da información sobre las nubes de magnetización. Sustituyendo [1] en [2] y realizando la transformación,

$$M(\underline{K}) = \frac{\alpha \mu_i}{\phi_0 (1 - \Gamma F_1(\underline{K}))} + (1 - \alpha) \mu_i, \quad [3]$$

donde:

$$\alpha = J_{hi} / J_{hh}; \quad \Gamma = \chi_0 J_{hh} Z_1, \quad [4]$$

$$F_1(\underline{K}) = \frac{1}{Z_1} \sum_{\delta} e^{i\underline{K} \cdot \underline{\delta}}; \quad \phi_0 = \frac{1}{V_c} \int d^3K \frac{1}{1 - \Gamma F_1(\underline{K})} \quad [5]$$

Las integrales se realizan sobre una celda unidad de la red recíproca, F es el factor de estructura de la primera capa de vecinos (Z_1 es el número de ellos), ϕ es la perturbación de los momentos magnéticos y Γ es un factor de realce magnético que relaciona a la susceptibilidad χ del material puro con la susceptibilidad no realizada χ_0 :

$$\chi = \frac{\chi_0}{1 - \Gamma}. \quad [6]$$

El factor Γ para Pd y para Pt fue determinado por Parra y Medina (2) como $\Gamma_{Pd} = 0.947 \pm 0.009$ y $\Gamma_{Pt} = 0.875 \pm 0.227$. La función $M(\underline{K})$ fue calculada para varias aleaciones y comparada con valores experimentales (3-5), sus gráficos aparecen en la Figura 1. Los valores del momento de la impureza y del tamaño de la nube de magnetización aparecen en la Tabla 1.

A baja temperatura en la aleación diluida, las nubes se comportan como momentos gigantes con una interacción tipo Heisenberg y con una transición ferromagnética. Para explicar este comportamiento introducimos una expresión de la energía asociada a la aparición de momentos en la matriz:

$$E = \sum_n^{\text{matriz}} \frac{1}{2} \chi_0^{-1} \mu_n^2 \left[b_n + \frac{1}{2} J_{hh} \sum_{\delta}^{\text{matriz}} \mu_{n+\delta} + J_{hi} \sum_{\delta}^{\text{impur}} \mu_{n+\delta} \right]. \quad [7]$$

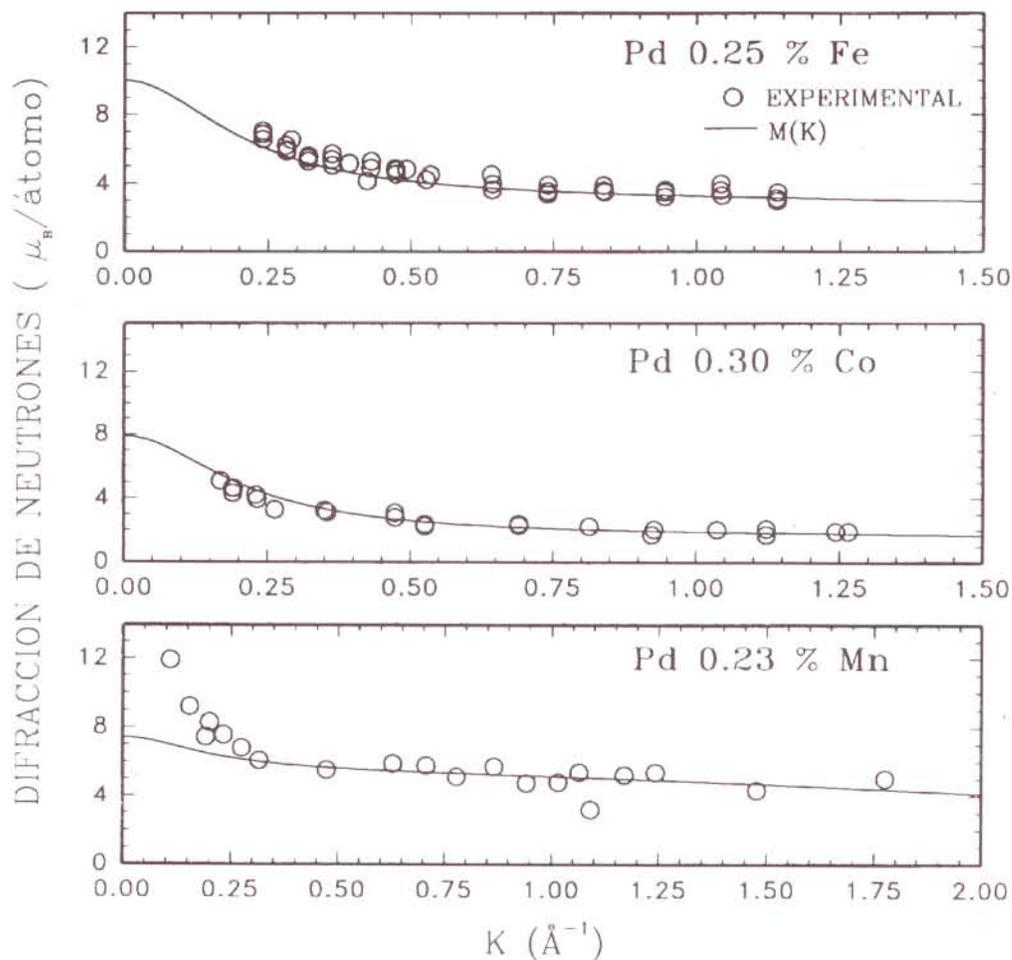


Figura 1. Promedio esférico de $M(K)$ usando el modelo (línea continua). Los puntos representan los valores experimentales tomados de las referencias (3-5).

Tabla 1
Valores del momento de la impureza y del tamaño de la nube de magnetización para diferentes aleaciones diluidas

	μ_i [$\mu_B/\text{átomo}$]	$M(0)$ [$\mu_B/\text{átomo}$]
PdFe	$3.5 \pm 0,4$	10,0
PdCo	$2,0 \pm 0,03$	7,92
PdMn	$5,5 \pm 0,5$	7,5
PtFe	$3,18 \pm 0,04$	4,9
PtCo	$2,08 \pm 0,04$	3,26

Esta expresión nos permite obtener la ecuación [1] por minimización y determinar además una expresión para la interacción de Heisenberg entre las nubes y cuyos parámetros α , μ_i , Γ y χ_0 se obtuvieron independientemente. Este modelo nos permite el cálculo de las temperaturas críticas del ferromagnetismo en aleaciones metálicas diluidas. Hemos realizado cálculos de Monte Carlo considerando un sistema de espines clásicos con interacción entre momentos gigantes en las posiciones i y j , que obedecen al siguiente Hamiltoniano:

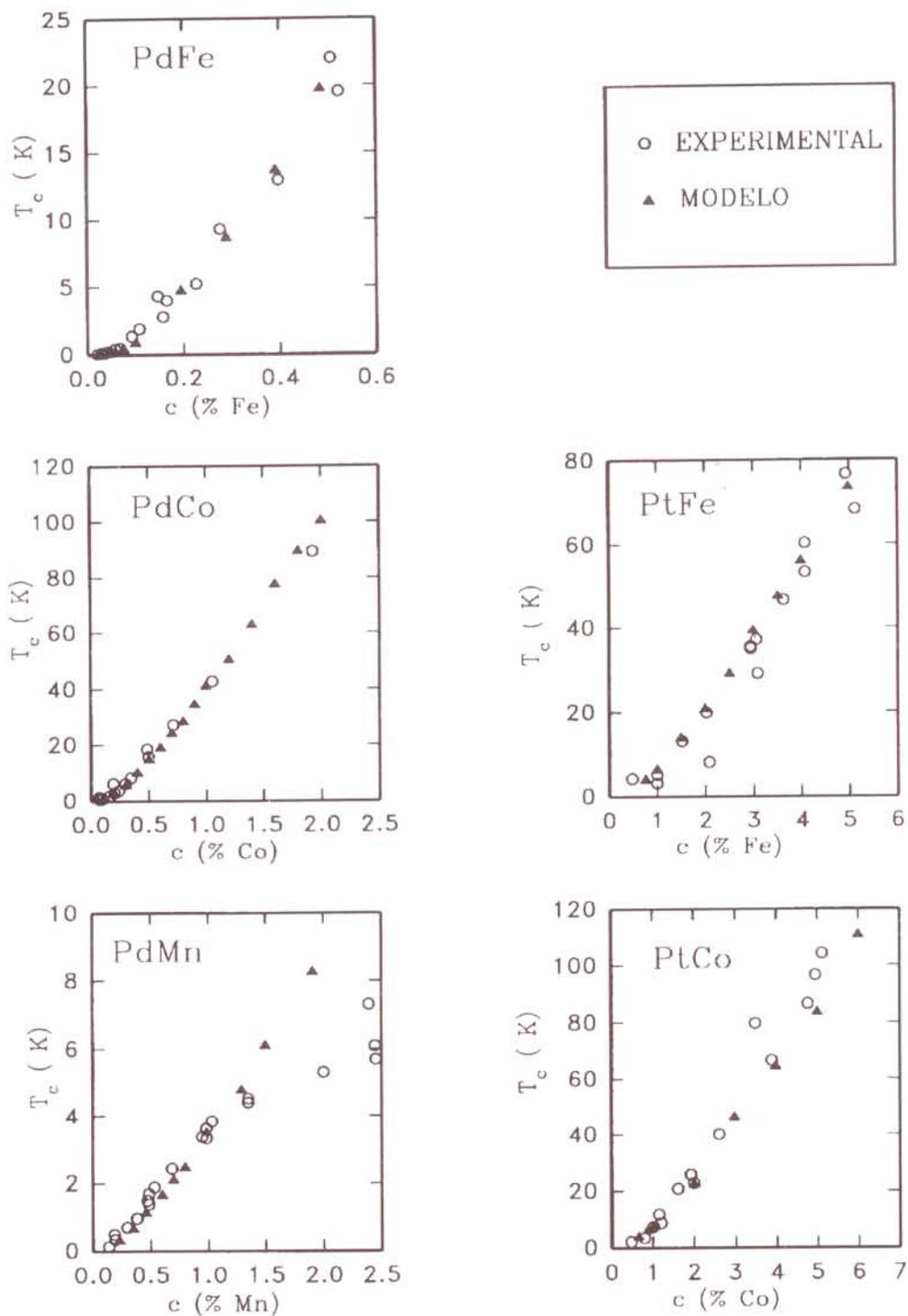


Figura 2. Comparación de las temperaturas críticas calculadas con las experimentales, tomadas de las referencias (6-11).

$$H = -\frac{1}{2} \sum J_{ij}(R_{ij}) \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad [8]$$

donde los valores de J_{ij} fueron calculados por Medina y Parra (1). Para cada concentración usamos muestras de 100 espines con 2000 pasos de Monte Carlo por espin. Para varias temperaturas calculamos una "susceptibilidad" $\tilde{\chi}$ que depende de la fluctuación de la magnitud del momento total y que es igual a χ para un sistema infinito. $\tilde{\chi}$ está dado por:

$$\tilde{\chi} = \frac{\langle (M - \langle M \rangle)^2 \rangle}{NkT} \quad [9]$$

donde N es el número de espines. Las temperaturas críticas fueron obtenidas del máximo de $\tilde{\chi}$ vs T.

Los valores calculados son comparados con los datos experimentales (6-11) para diversas aleaciones en la Figura 2. El acuerdo es bueno para todas las aleaciones diluidas estudiadas.

Dependencia de la magnetización con la temperatura

Estudiemos ahora qué sucede con las nubes de magnetización a altas temperaturas. Para determinar el comportamiento de cada nube al subir la temperatura introducimos una entropía asociada a los momentos de la matriz:

$$S \equiv \text{Const} - \frac{1}{2} K_B \lambda(T) \sum_n^{\text{matriz}} \mu_n^2, \quad [10]$$

donde la sumatoria es sobre los átomos de la matriz; λ es una función por ahora desconocida pero que debe ser constante a alta temperatura, dada la validez de teorías de campo medio. Varias propiedades pueden entonces obtenerse de la energía libre $F=E-TS$, pero substituyendo χ_o^{-1} por

$$\chi_o^{-1}(T) = \chi_o^{-1} + \lambda(T) k_B T. \quad [11]$$

En particular la fórmula de la transformada de la nube (ecuación [3]) es la misma pero substituyendo Γ por

$$\Gamma(T) = \chi_o(T) J_{hh} Z_1. \quad [12]$$

En el caso del material sin impurezas, la susceptibilidad es:

$$\chi^{-1} = \chi_o^{-1} - J_{hh} Z_1 + \lambda(T) k_B T. \quad [13]$$

A alta temperatura hay un comportamiento de Curie-Weiss, siendo λ una constante. A T=0,

$$\chi^{-1} = \chi_o^{-1} - J_{hh} Z_1. \quad [14]$$

Obtenemos entonces la predicción de que la constante $\chi_o^{-1} - J_{hh} Z_1$, que es la intersección de la recta de Curie-Weiss con el eje T=0, es también el valor exacto de χ^{-1} a T=0.

Se pueden además calcular $\lambda(T)$ y $\Gamma(T)$, usando los valores experimentales de χ (12,13). En la Figura 3 presentamos los resultados obtenidos para Pd y Pt.

Usando la ecuación [6] se puede obtener la energía libre total de una nube:

$$F = -\frac{1}{2} Z_1 J_{hi} \mu_i \mu_1, \quad [15]$$

donde μ_1 es el momento de los primeros vecinos de la impureza.

$$\mu_1 = \frac{\alpha \mu_i (\phi(\Gamma) - 1)}{\Gamma \phi_o(\Gamma)}. \quad [16]$$

Usando $\lambda(T)$ se obtuvo el calor específico de la nube:

$$C = -T \frac{\delta^2 F}{\delta T^2}. \quad [17]$$

En la Figura 4 aparece nuestro cálculo del calor específico de la nube para diferentes aleaciones. A altas temperaturas hay un

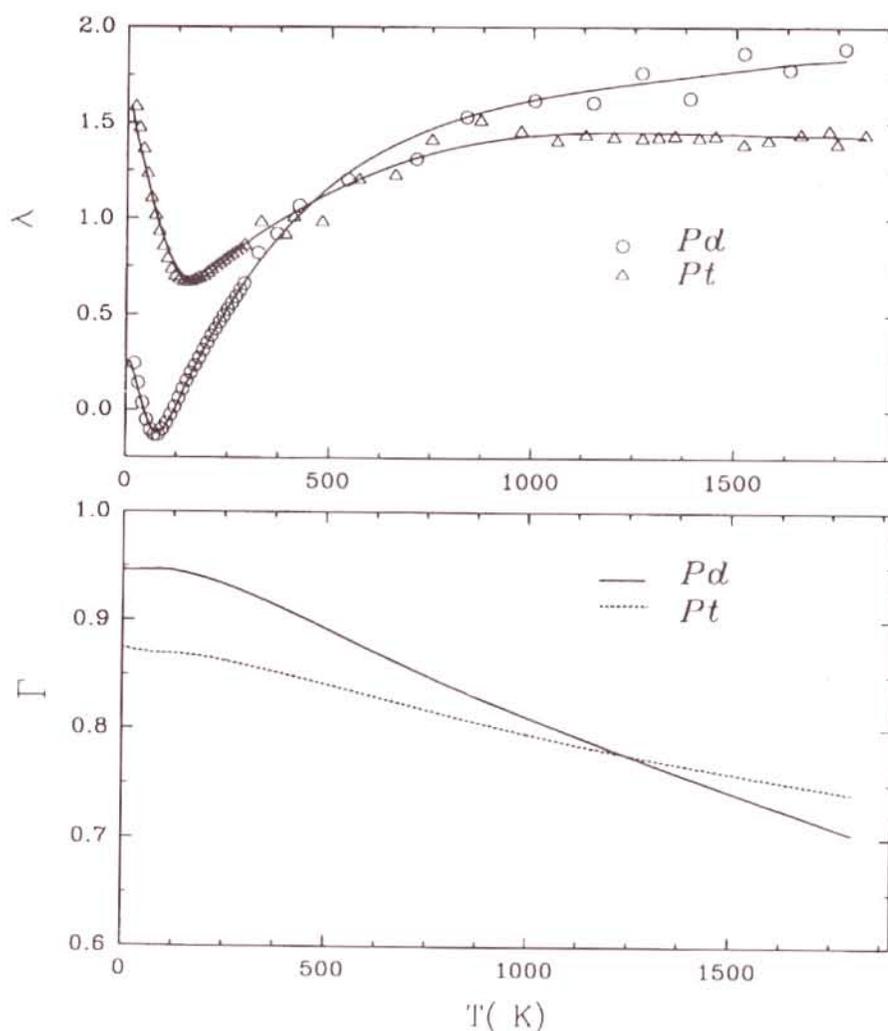


Figura 3. Valores calculados de $\Gamma(T)$ y $\lambda(T)$, usando los datos experimentales de las referencias (12,13).

máximo ancho que decae lentamente; este decaimiento está relacionado con la desaparición de las nubes de magnetización (14). Los valores negativos solamente reflejan la diferencia entre el calor específico del material con y sin impureza. La medición del calor específico de estas nubes sería una buena prueba de la validez del modelo.

Conclusión

En este artículo se han presentado diversas propiedades magnéticas de alea-

ciones metálicas diluidas. Se ha utilizado un modelo basado en las propiedades magnéticas del material puro a la temperatura $T=0$ que nos permite calcular el rango de las nubes de magnetización, su transformación con la temperatura, la interacción entre momentos gigantes y las temperaturas críticas del ferromagnetismo. Los resultados obtenidos se compararon con datos experimentales, obteniéndose una correlación adecuada.

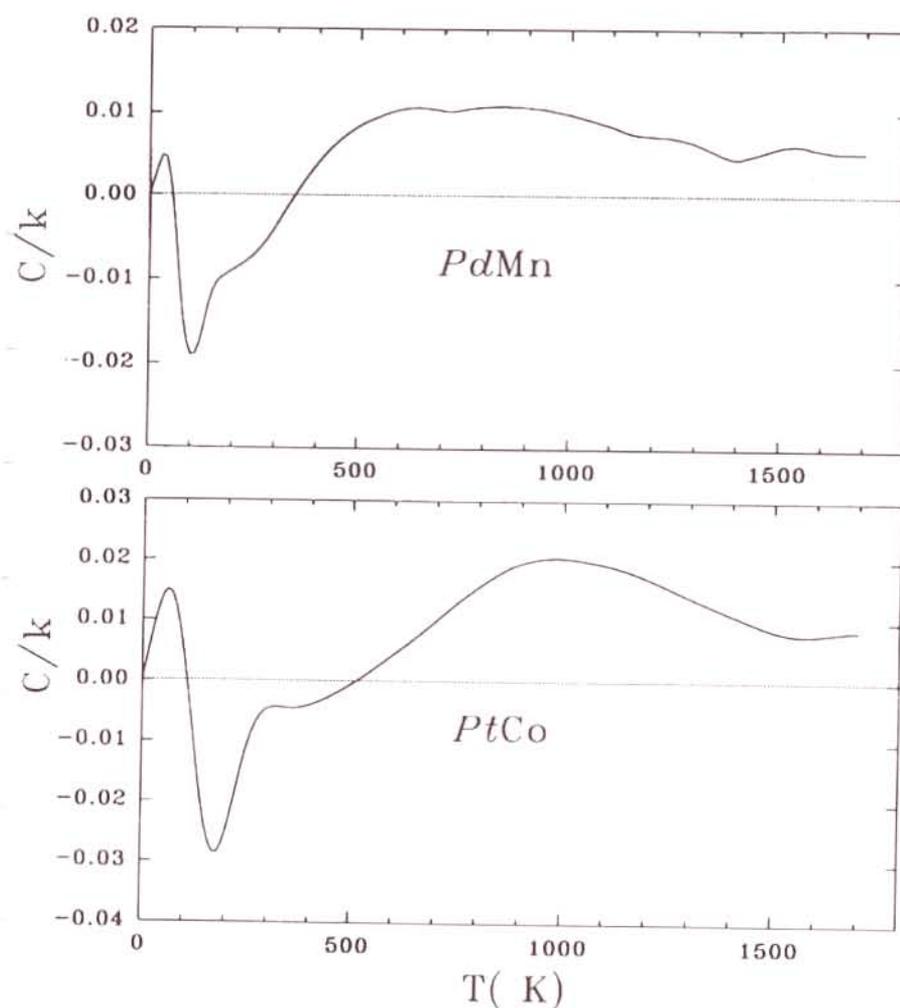


Figura 4. Cálculo del calor específico de las nubes de magnetización para diferentes aleaciones.

Referencias Bibliográficas

1. MEDINA R., PARRA R.E.: Model of localized moments for dilute PdFe alloys. *Phys Rev B*26:5187-5194, 1982.
2. PARRA R.E., MEDINA R.: Magnetic environment model of Ni-Pt and Ni-Pd alloys. *Phys Rev B*22: 5460-5470, 1980.
3. LOW G.G., HOLDEN T.M.: Distribution of the ferromagnetic polarization induced by iron and cobalt atoms in palladium. *Proc Phys Soc* 89:119-127, 1966.
4. DE PATER C.J., VAN DIJK C., NIEUWEN-
HUYNS G.J.: Diffuse neutron scattering of PdMn. *J Phys F: Met Phys* L5:58-63, 1975.
5. HICKS T.J., HOLDEN T.M., LOW G.G.: Distribution of the ferromagnetic polarization in a PdFe single crystal. *J Phys C*1:528-532, 1968.
6. CHOUTEAU G., TOURNIER R.: Magnetic properties of very dilute Pd-Fe alloys at very low temperature. *J Phys C*1 32:1002-1004, 1971.
7. STAR W.M., FONER S., MCNIFF E.J.: Giant moment and ferromagnetism in dilute

- Pd(Mn) alloys. *Phys Rev B* 12:2690-2709, 1975.
8. ODODO J.C.: Low field susceptibility of PtFe alloys. *J Phys F: Met Phys* 9:1441-1449, 1979.
 9. ODODO J.C.: Elastic diffuse neutron scattering from weakly ferromagnetic Pt alloys. *J Phys F: Met Phys* 12:1821-1840, 1982.
 10. TISSIER B., TOURNIER R.: Disappearance of giant moments in dilute Pt-Co alloys residual magnetism. *Solid State Commun* 11:895-898, 1972.
 11. ODODO J.C.: Percolation concentration and saturation of the Pd moment in ferromagnetic Pd alloys. *J Phys F: Met Phys* 13:1291-1309, 1983.
 12. BUDWORTH D.W., HOARE F.E., PRESTON J.: The thermal and magnetic properties of some transition metal alloys. *Proc Roy Soc A* 257:250-262, 1960.
 13. KOJIMA K., TEBBLE R.S., WILLIAMS D.E.: The variation with temperature of the magnetic susceptibility of some of the transition elements. *Proc Roy Soc A* 260:237-250, 1961.
 14. PARRA R.E., MEDINA R.: Temperature dependence magnetic-environment model for metals of the Ni group. *J Magn Magn Mat* 49:172-176, 1985.