

# Simulação de configurações magnéticas de nanopartículas de morfologias variadas e correlação com propriedades magnéticas

**Palavras-Chave:** nanopartículas magnéticas, simulação micromagnética, vórtice, zig-zag

**Autores:**

Gabriel Víctor de Oliveira, IFGW, UNICAMP  
Prof. Dr. Diego Muraca, IFGW, UNICAMP

## 1. INTRODUÇÃO

Nanopartículas magnéticas (NPMs) são objetos de estudo de milhares de pesquisadores em todo o mundo pois apresentam resposta magnética diferente de suas contrapartes macroscópicas. Diversas aplicações como medicina teranóstica, hipertermia e memória magnética se apresentam como consequência positiva do estudo do comportamento dessas NPMs. Em trabalho passado de IC do aluno (Gabriel Víctor de Oliveira - PIBIC - Quota 2024/2025), notou-se que nanopartículas de magnetita podem atingir configurações de vórtices magnéticos dada as condições adequadas. O presente trabalho é motivado por medidas experimentais em nanocubos (NCs) de  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  feitas por Orozco [6] e se propõe a analisar *ensembles* de NCs através de simulações micromagnéticas da equação de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) a fim de entender se o comportamento magnético da amostra é ditado por magnetização tipo vórtice, como hipotetizamos, ou por algum outro tipo de configuração de magnetização singular.

## 2. METODOLOGIA

Na primeira parte deste trabalho buscamos mostrar que a equação de LLG é válida para mo-

delar sistemas magnéticos e fazemos isso simulando a curva magnetização versus campo aplicado ( $M \times H$ ) de um cubo de aresta 6 nm sob campo magnético constante a fim de replicar os resultados de Stoner-Wohlfarth (SW) [7]. Os parâmetros utilizados são descrito na tabela 1:

Parâmetro	Valor
Aresta	6 nm
<i>Mesh</i>	$3 \times 3 \times 3 \text{ nm}^3$
$H_{\max}$	7000 Oe
$H_{\text{step}}$	100 Oe
Magnetização de saturação ( $M_s$ )	$4,8 \times 10^5 \text{ A/m}$
Anisotropia	$1,41 \times 10^4 \text{ J/m}^3$
Eixo de anisotropia	(0,0,1)
Constante de troca	$1,32 \times 10^{-11} \text{ J/m}$
Tempo de simulação por passo	10 ns
Temperatura	0 K

Tabela 1: Parâmetros usados para simulação do modelo tipo SW

Na segunda parte construímos 2 *ensembles*, nomeados Cadeia e Anel. Cada um deles contém 10 NCs dispostos de acordo com a figura 1:

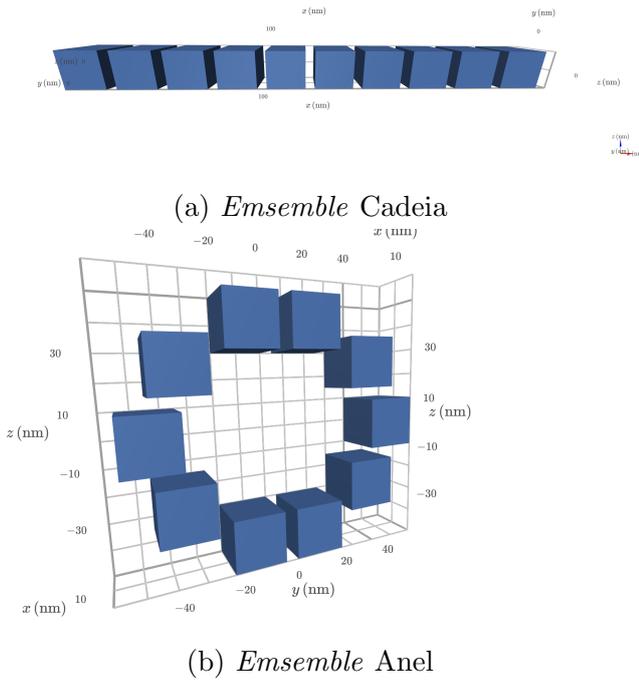


Figura 1

Os parâmetros usados na simulação são resumidos na tabela 2. As dimensões do *mesh* foram consideradas de maneira a garantir que sejam menores que o comprimento de troca da magnetita,  $l_{\text{ex}} \approx 9,5 \text{ nm}$ . O tempo de simulação foi escolhido como  $t = 10 \text{ ns}$  a fim de garantir que a influência da temperatura e do esquema de anisotropia fossem suavizados.

A densidade de energia do sistema é dada pela hamiltoniana abaixo:

$$\mathcal{H} = -\mathbf{A}\mathbf{m} \cdot \nabla^2 \mathbf{m} - K(\mathbf{m} \cdot \mathbf{u})^2 - \frac{1}{2} \mu_0 M_s \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_d - \mu_0 M_s \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}$$

A presença de um campo magnético externo  $\mathbf{H}$  dinamiza a magnetização que se comporta de acordo com a equação de LLG:

$$\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = -\frac{\gamma_0}{1 + \alpha^2} \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{\gamma_0 \alpha}{1 + \alpha^2} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}})$$

onde  $\gamma_0 = 2,211 \times 10^5 \text{ m/As}$  é a constante giromagnética e  $\alpha$  é a constante de amortecimento que foi escolhida como  $\alpha = 1$ , sem perda de gene-

ralidade, para minimizar o tempo de simulação.  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  é o campo efetivo gerado pela densidade de energia total do sistema, a qual é dada pela soma da contribuição de todas as energias. Cada passo de campo da curva MxH é evoluído por 10 ns, tempo suficiente para o sistema atingir estado de equilíbrio, ou seja, quando  $dE/dt \approx 0$ .

Parâmetro	Valor
Aresta	20 nm
Espaçamento entre NCs	5 nm
<i>Mesh</i>	$5 \times 5 \times 5 \text{ nm}^3$
$H_{\text{max}}$	2000 Oe
$H_{\text{step}}$	5 - 25 Oe
Magnetização de saturação	$4,8 \times 10^5 \text{ A/m}$
Anisotropia	$1,41 \times 10^4 \text{ J/m}^3$
Constante de troca	$1,32 \times 10^{-11} \text{ J/m}$
Tempo de simulação por passo	10 ns
Temperatura	300 K

Tabela 2: Parâmetros utilizados nas simulações micromagnéticas da Cadeia e do Anel.

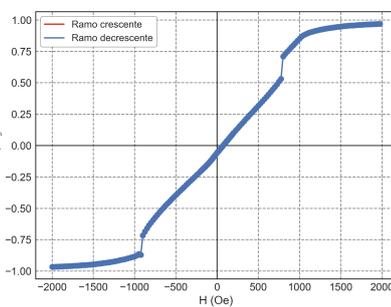
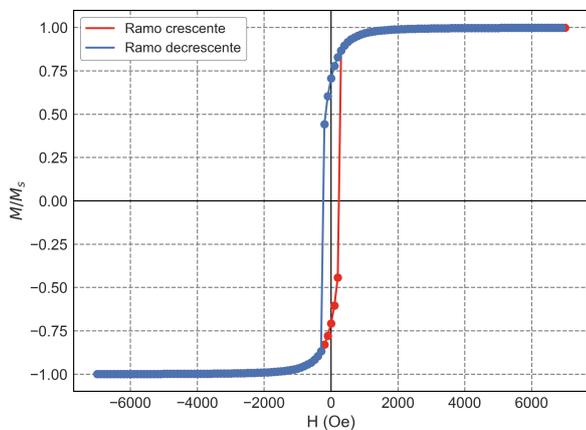
A implementação da temperatura no sistema foi feita usando uma versão estocástica da eq. de LLG usando o modelo de campo térmico descrito e implementado por O. Lemcke [3]. A anisotropia cúbica da magnetita tem naturalmente um eixo de fácil magnetização e o tempo de relaxação de Neel é menor que o tempo de relaxação de Brown, portanto um eixo de anisotropia uniaxial representando as anisotropias magnetocristalina, de forma e de superfície de cada NC foi escolhido aleatoriamente dentre as 8 diagonais do cubo, e uma constante de anisotropia efetiva foi fixada como  $K = 1,41 \times 10^4 \text{ J/m}^3$  [5], completando o modelo do nosso sistema. As simulações foram implementadas utilizando o simulador micromagnético OOMMF [2] e o pacote Ubermag [1] e suas dependências.

Ressaltamos que o modelo usado na nossa simulação é um modelo de contorno livre. Inicialmente, foram simulados apenas meios ciclos das curvas MxH, com o objetivo de analisar os campos críticos responsáveis pela nucleação de fases magnéticas, visto que essa abordagem reduz significativamente o tempo computacional

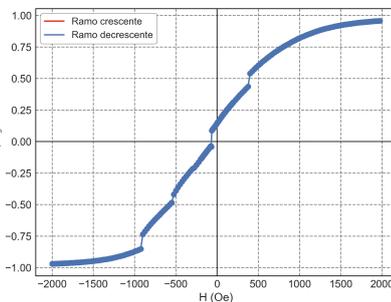
necessário. Para representar melhor o comportamento estatístico de uma amostra composta por múltiplos *ensembles*, foram selecionadas orientações de anisotropia pseudoaleatórias a partir de seeds distintas. Foram realizadas simulações para 20 valores diferentes de seed, resultando em 20 distribuições independentes de eixos de anisotropia para cada tipo de *ensemble*. A média dos resultados obtidos foi então calculada, fornecendo uma descrição mais realista da resposta magnética do sistema frente às variações estruturais presentes em amostras experimentais.

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os trabalhos publicados por SW, são documentados e validados teórica e experimentalmente pela literatura [4], portanto buscamos replicar esses resultados usando o formalismo da equação de LLG para garantir que os *ensembles* sejam consistentes com modelos mais simples, como o modelo de SW.



(a) Anel simulado com seed 03



(b) Anel simulado com seed 20

Figura 2: Curva de magnetização versus campo magnético aplicado

Foram feitas curvas MxH para vários ângulos diferentes e em todas as situações nossos resultados concordaram com o modelo de SW. A figura 2 é resultado de nossa simulação com a eq. de LLG para  $45^\circ$  entre o campo magnético e o eixo de anisotropia. Resultados da teoria de SW como campo coercitivo e campo de remanência são diferentes visto que os parâmetros do sistema usa-

dos pelos autores originais foram distintos dos nossos. Entretanto em todos os casos o perfil do ciclo de histerese simulado é o mesmo dos resultados de SW, indicando que o modelo de LLG é confiável.

Direcionamos nossa atenção para curvas com coercividade baixas, isso excluiu todas as simulações tipo Cadeia com campo magnético aplicado na direção  $\hat{x}$ , pois estas produziram coercividade de aproximadamente 400 Oe, muito maior que as encontradas por Orozco [6], em torno de 125 Oe.

Figura 3: Curvas MxH de duas amostras Anel simuladas com diferentes seeds e campo magnético aplicado em  $\hat{x}$

Percebemos que diferentes seeds, que são os objetos computacionais que selecionam aleatoriamente o vetor de anisotropia de cada NC, produzem resultados parecidos. Isso é ressaltado pela figura 3, o formato geral da curva é parecido para todas as 20 seeds diferentes simuladas indicando que interações magnetostáticas imperam sobre a anisotropia individual de cada sistema. A anisotropia, em geral, apenas altera o campo crítico

responsável pela mudança de fase, representadas pelos degraus na figura 3.

No caso do Anel as mudanças de fase essencialmente acessam 3 tipos de arranjo magnético: um tipo de vórtice, 4a, monodomínio com magnetização alinhada ao campo e em algumas ocasiões um estado de magnetização tipo cebola, 4c. Para o *ensemble* Cadeia com campo na direção  $\hat{z}$  especialmente temos configuração monodomínio para cada partícula ou uma configuração tipo zigzag, 4b, proveniente da interação entrepartícula.

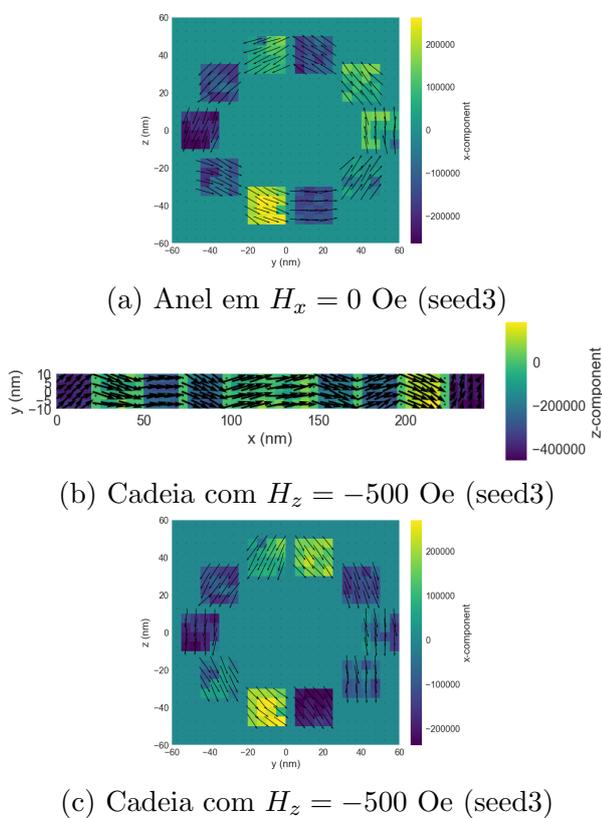


Figura 4: Diagramas da magnetização dos dois tipos de amostra simulados sob diferentes campos magnéticos aplicados

Não obtivemos o mesmo perfil de curva encontrado por Orozco [6], mas os valores de campo coercitivo simulados formam uma distribuição em torno do valor medido experimentalmente, tanto para as amostras Anel, quanto Cadeia. A exemplo na figura 5 é mostrado o campo coercitivo,  $H_c \approx 100$  Oe, claramente na região de 125 Oe em torno da origem analisada por Orozco [6].

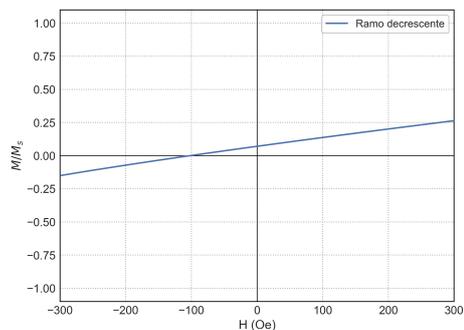


Figura 5: Campo coercitivo para uma Cadeia com campo magnético em  $\hat{z}$

Até o presente momento, foram geradas as curvas  $M \times H$  completas para as duas direções de campo  $H$  aplicadas no Anel. A média da magnetização das 20 seeds é apresentada na figura 6. Observa-se que a coercividade permanece em torno de 100 Oe e que o ciclo se fecha em aproximadamente  $0,8M_s$ , em concordância com os resultados experimentais de Orozco [6]. Embora o perfil geral da curva  $M \times H$  seja semelhante ao observado experimentalmente, nota-se uma diferença próxima à origem, o que indica possíveis limitações do modelo adotado, como seria esperado diante da consideração de contorno livre em contraste com as condições experimentais envolvendo NCs recobertos por OH.

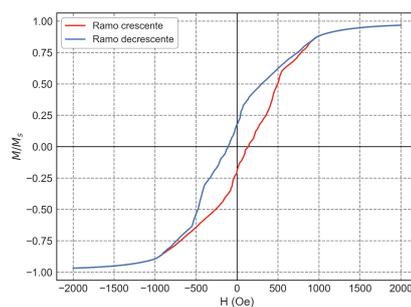


Figura 6: Média das curvas de magnetização para Anel com campos  $H$  em  $\hat{x}$  e  $\hat{z}$  para as 20 seeds simuladas

#### 4. CONCLUSÃO

Simulações micromagnéticas usando as ferramentas OOMMF e Ubermag se mostraram úteis como indicador do comportamento de sistemas

de muitas nanopartículas. Hipóteses simplificadoras foram utilizadas na modelagem e mesmo assim os resultados concordaram modestamente com as medidas experimentais, sugerindo que os arranjos de vórtice/cebola nos Aneis e de zigzag nas Cadenas são responsáveis pelo comportamento magnético dos NCs medidos experimentalmente. As simulações apresentam-se como indicador útil para esforços na área de microscopia a fim de elucidar o verdadeiro arranjo magnético dos *ensembles* simulados considerando que [6] não conduziu experimentos extensivos para revelar a configuração da magnetização em suas amostras.

## Referências

- [1] Marijan Beg, Martin Lang e Hans Fangohr. “Ubermag: Towards more effective micromagnetic workflows”. Em: *IEEE Transactions on Magnetics* 58.2 (2022), pp. 1–5. DOI: 10.1109/TMAG.2021.3078896.
- [2] Michael Joseph Donahue e Donald G Porter. *OOMMF User’s Guide: Version 1.0*. 1999.
- [3] Oliver Lemcke. *Implementation of temperature in micromagnetic simulations*. [http://www.nanoscience.de/group\\_r/stm-spstm/projects/temperature/download.shtml](http://www.nanoscience.de/group_r/stm-spstm/projects/temperature/download.shtml). Acesso em: 10/09/2024.
- [4] Scott A Mathews, Alexander C Ehrlich e Nicholas A Charipar. “Hysteresis branch crossing and the Stoner–Wohlfarth model”. Em: *Scientific reports* 10.1 (2020), p. 15141.
- [5] Juan Orozco Henao et al. “Palmitic acid-coated magnetite nanocubes with high-quality crystallinity and bulk-like magnetic features”. Em: *Journal of Physics D: Applied Physics* 53 (jul. de 2020). DOI: 10.1088/1361-6463/ab9264.
- [6] Juan Manuel Orozco Henao. “Nanocubos de magnetita de alta cristalinidad en medios líquidos y sólidos: propiedades magnéticas y el efecto de las interacciones dipolares en su desempeño como nanocalentadores”. Tese de dout. Universidad Nacional de La Plata, 2022, p. 181.
- [7] Edmund Clifton Stoner e Ernest P Wohlfarth. “A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys”. Em: *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 240.826 (1948), pp. 599–642.