



Interpretación Basada En El Método De Distribución Binomial De Las Distribuciones De Campo Hiperfino Magnético De La Aleación $\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.4}$

Interpretation Based On A Binomial Distribution Method Of The Hyperfine Magnetic Field Distributions Of $\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.4}$ Alloy

C. González ^{*a}, J. Restrepo ^b, G. A. Pérez Alcázar ^c, J. M. Greneche ^d

^a Grupo de Investigación en Materiales GIM. Departamento de Ciencias Básicas. Universidad Pontificia Seccional Bucaramanga. A.A.2932, Bucaramanga, Colombia.

^b Grupo de Magnetismo y simulación. Instituto de Física, Universidad de Antioquia, A.A. 122, Medellín, Colombia.

^c Grupo de Metalurgia Física y Teoría de Transiciones de Fase, Departamento de Física, Universidad del Valle, A. A. 25360, Cali, Colombia.

^d Laboratoire de Physique de L'Etat Condensé, UMR CNRS 6087, Université du Maine, 72085 Le Mans, Cedex 9, Francia.

Recibido 30.03.10; Aceptado 01.03.11; Publicado en línea 24.04.11.

Resumen

En ese trabajo se presenta un modelo local basado en el método de distribución binomial para interpretar las distribuciones de campo magnético hiperfino de la aleación desordenada $\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.4}$ en el rango de 4.2K a 330K. En el modelo, los átomos constituyentes se asumen distribuidos aleatoriamente en una red cristalina bcc de acuerdo con la estructura cristalina y el carácter desordenado de la muestra. Resultados obtenidos por espectroscopia Mössbauer muestran que el campo hiperfino medio aumenta de 6.1T a 6.9T para la primera distribución y de 17.5T a 25.2T para la segunda distribución, cuando disminuye la temperatura desde 330K a 4.2K respectivamente. Estos resultados son comparados con el método de distribución binomial.

Palabras clave: Distribución binomial; Sistema FeMnAl; Espectroscopia Mössbauer.

Abstract

By using the local model based on a binomial distribution method to give an interpretation of hyperfine magnetic field of $\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.4}$ disordered alloy in the range of temperature of 4.2K to 330K. In the model, the constituent atoms are assumed to be randomly distributed in a bcc lattice accordingly with the disordered character of the system and its crystalline structure. Experimental results obtained by Mössbauer spectroscopy show that the average hyperfine magnetic field increases from 6.1T to 6.9T for the first distribution and from 17.5T to 25.2T for the second distributions, as the temperature decreases for the distributions from 330K to 4.2K respectively. These results are compared with the binomial distribution method.

Keywords: Binomial distribution; Fe Mn Al system; Mössbauer spectroscopy.

PACS: 81.05.Bx; 75.20.En.

© 2010 Revista Colombiana de Física. Todos los derechos reservados.

1. Introducción

El método de distribución binomial es un método estadístico que permite contabilizar las probabilidades de un

evento dependiendo de la aleatoriedad de sus variables. De esta manera resulta ser un método eficaz para analizar los sistemas magnéticos desordenados como el sistema Fe Mn Al y específicamente la aleación desordenada

* claus_gon@yahoo.com

$Fe_{0.5}Mn_{0.1}Al_{0.4}$ en el rango de temperaturas de 4.2K a 330K. El desorden de dicha aleación ha sido inducido a través de un proceso experimental en donde se somete la aleación luego de ser fundida a un tratamiento térmico durante una semana a altas temperaturas y luego la muestra es sometida a un enfriamiento rápido [1,2]. El desorden inducido es de tipo atómico; de manera se obtiene una serie de configuraciones atómica más probables con sus correspondientes valores de campo magnético hiperfino $\langle H \rangle$.

El objetivo del presente trabajo es reportar los resultados de usar el método binomial para estudiar las propiedades magnéticas de la aleación desordenada $Fe_{0.5}Mn_{0.1}Al_{0.4}$ en el rango de temperaturas ya mencionado.

2. Proceso experimental

La muestra fue preparada mezclando polvos de alta pureza (99.9%) de Fe, Mn y Al de acuerdo con la estequiometría específica. Estos fueron prensados y luego fundidos en horno a arco en presencia de atmósfera de Argón, el peso aproximado de la muestra fue de 2gm. La muestra fundida fue encapsulada en un tubo de cuarzo a vacío y sometida a un tratamiento térmico de 1000°C durante una semana para obtener el estado “desordenado” de alta temperatura y garantizar su homogeneidad. Finalmente, se retuvo la fase de alta temperatura mediante un templado rápido en frío, utilizando para ello agua con hielo a 0°C. Luego se extrajeron polvos de la muestra con una lima de diamante, los cuales fueron caracterizados con difracción de rayos x a temperatura ambiente y espectroscopia Mössbauer en un rango de temperatura de 4.2K a 292K. Los espectros Mössbauer fueron ajustados usando el programa Normos [3], usando un singlete, un doblete y dos distribuciones de campo hiperfino.

3. Resultados y Discusión

3.1. Difracción de rayos X (DRX)

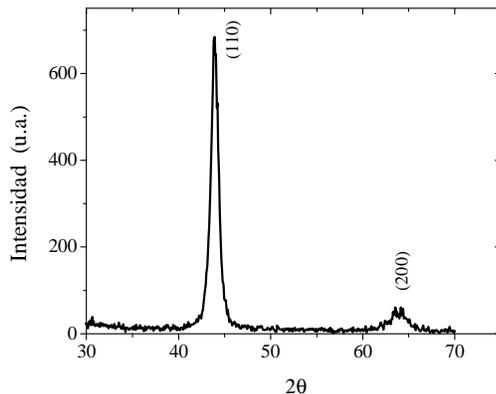


Fig. 1: Patrón de difracción de rayos X.

La figura 1, muestra el difractograma de r-x obtenido para la aleación. Se observan los picos de Bragg (110) y (200) picos correspondientes a una estructura tipo bcc. Observando el pico más intenso, puede notarse la presencia del desorden atómico de la muestra; dada la forma de la línea base, para la cual no se tiene una línea base delgada, sino una línea de base difusa y ancha típica del desorden. Estos resultados también son observados para aleaciones del mismo sistema Fe Mn Al [4]. El parámetro de red de la fase ternaria es calculado de la ley de Bragg [5] con un valor aproximado de $(2.92 \pm 0.05) \text{ \AA}$, valor mayor que el obtenido para el Fe puro debido a que el tamaño de los átomos de Al es mayor. El tamaño de grano obtenido fue $\approx (130.05 \pm 0.05) \text{ \AA}$,

3.2. Distribución binomial

Modelo

De acuerdo con el carácter desordenado de la muestra, el modelo asumido obedece la siguiente función de probabilidad:

$$P(n, m, u, v) = C_8^n C_6^m C_{8-n}^u C_{6-m}^v x^{m+n} q^{u+v} p^{(14-n-m-u-v)} \quad (1)$$

donde, $P(n, m, u, v)$ representa la probabilidad de tener una configuración con n átomos de Al ($0 \leq n \leq 8$) y u átomos de Mn ($0 \leq u \leq 8-n$) que sustituyen átomos de hierro en el primer vecindario y m átomos de Al ($0 \leq m \leq 6$) y v átomos de Mn ($0 \leq v \leq 6-m$) que sustituyen átomos de hierro en el segundo vecindario. (Para el caso de una estructura bcc, n corre desde 0 hasta 8; m desde 0 hasta 6). Los valores x , q y p representa la concentración fraccional de Al, Mn y Fe respectivamente. Los cuatro primeros términos de la expresión son los coeficientes binomiales dados por:

$$C_8^n = \frac{8!}{n!(8-n)!}; \quad C_6^m = \frac{6!}{m!(6-m)!}; \quad (2)$$

$$C_{8-n}^u = \frac{(8-n)!}{u!(8-n-u)!}; \quad C_{6-m}^v = \frac{(6-m)!}{v!(6-m-v)!}$$

Cada coeficiente C_k^l representa el número de posibles configuraciones para lo cual l átomos pueden ser localizados en k sitios variables. Para cada uno de estos arreglos, se atribuye un campo magnético hiperfino de acuerdo con la fórmula empírica [6]

$$H = H_0(1 - \alpha n - \beta m - \gamma u - \delta v)(1.0 - \eta(T - T_0)) \quad (3)$$

donde, $H_0 = 330 \text{ Oe}$ es el campo hiperfino para el Fe puro a temperatura ambiente, α y β son los factores que hacen decrecer el campo hiperfino del Fe debido a la sustitución de sitios de un átomo de Fe por uno de Al en el primer y segundo vecindario, respectivamente [7,8]. Análogamente, γ y δ dan la fracción de campo para cada átomo de Fe

sustituido por Mn en el primer y segundo vecindario. Y η es el parámetro que da cuenta de las contribuciones debidas al cambio de temperatura. T_0 es la temperatura ambiente 292K.

Las distribución de campo hiperfino está dada por un histograma $P(n,m,u,v)$ en función de $H(n,m,u,v)$. El promedio del campo hiperfino $\langle H \rangle$ ésta calculado de la suma dela suma de todas las contribuciones de los diferentes sitios de acuerdo a:

$$\langle H \rangle = \sum_n \sum_m \sum_u \sum_v P(n,m,u,v)H(n,m,u,v) \quad (4)$$

donde se obedece la condición de normalización:

$$\sum_{\{n,m,u,v\}} P(n,m,u,v) = 1$$

3.2 Resultados del Modelo

En la figura 2, se muestra, la probabilidad en función del campo hiperfino B_{hf} para las dos distribuciones con que se ajustaron los espectros Mössbauer una tomado cuenta de los sitios con campos hiperfinos bajos y la otra que toma cuenta de los sitios con campos hiperfinos altos para las $T = 292K, 160K, 55K$ y $4.2K$. Para las otras temperaturas no mostradas aquí, el comportamiento es similar. Las líneas y puntos negros son las distribuciones obtenidas de ajustar los espectros Mössbauer: ajuste experimental. Las líneas y puntos rojos son distribuciones obtenidas del método binomial: ajuste teórica. Se puede observar que en la distribución para campos bajos (izquierda en la figura), existe una discrepancia grande para campos $> 6T$ (Tesla) a 292 K, entre el ajuste teórico y el experimental; discrepancia que va siendo menor a medida que disminuye la temperatura. Para 4.2 K se observa una buena concordancia entre los dos ajustes. Para la segunda distribución (lado derecho de la figura), a 292 K, se observa también una buena concordancia para los campos por encima de 15 T y para campos menores ($< 15 T$) una discrepancia, ésta va disminuyendo también, a medida que disminuye la temperatura. Para 4.2 K la discrepancia es muy reducida. Estas discrepancia entre el ajuste experimental y el teórico tanto para campos bajos como para campos altos, podría deberse, a que en el modelo no se involucraron configuraciones que detecten clusters por debajo del tercer orden de coordinación, ni variaciones locales, ni desorden local del sistema. Sin embargo, el modelo como un modelo local predice las configuraciones más probables de $\langle H \rangle$. Así, para 292 K, las contribuciones con más probabilidad para campos altos son atribuidas a los sitios (n,m,u,v) de tipo $(3,3,0,1)$, $(3,4,1,0)$, $(4,2,1,1)$ para campos bajos son: (4233) , en la figura, se encuentran los sitios más probables para las otras temperaturas. En la figura 2, se puede observar también, que las distribuciones para campos altos, a medida que disminuye la temperatura tienen un corrimiento hacia mayores campos.

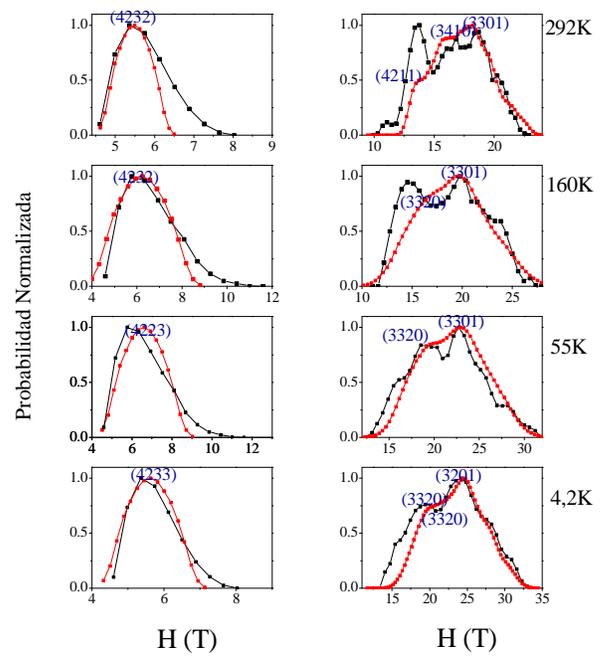


Fig. 2: Distribuciones de Campo Hiperfino para campos bajos y altos obtenidos del ajuste experimental (líneas y puntos negros) y de la distribución binomial (líneas y puntos rojos).

El ajuste con el método de distribución binomial para las dos distribuciones sugiere la ocurrencia de dos temperaturas críticas.

La dependencia del campo hiperfino medio en función de la temperatura para la primera distribución (campos bajos) se muestra; en la figura 3. En ella se observa, bien la discrepancia entre el ajuste experimental y el teórico, para temperaturas mayores a 210K. Y a medida que disminuye la temperatura la cercanía entre los puntos experimentales y los teóricos va siendo mayor, por debajo de los 30K los puntos coinciden.

La dependencia del campo hiperfino medio en función de la temperatura, tanto para el ajuste experimental y el teórico para la segunda distribución es mostrada en la figura 4. Se observa, para temperaturas $\geq 210K$ y $\leq 30K$ una gran cercanía de los puntos experimentales y teóricos y para temperaturas en el rango de 30K a 210 K discrepancia entre los dos puntos es mayor.

Estas temperaturas 30 K y 210K, señaladas en las figuras 3 y 4 con líneas a trazos, corresponden a las temperaturas de transición reportadas por C. González et al [9,10], la primera; corresponde a la transición de la fase vidrio de espín reentrante a la fase ferromagnética. Y la segunda temperatura (210K) a la transición de la fase superparamagnética reentrante a la fase ferromagnética, encontrada para esta aleación.

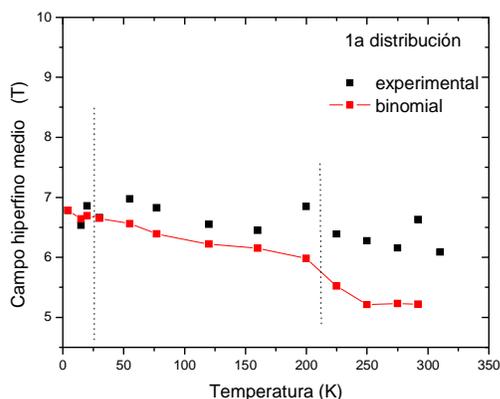


Fig. 3: Campo Hiperfino medio experimental y teórico (calculado por el método binomial) vs temperatura para la distribución con campos bajos. La línea es una guía visual.

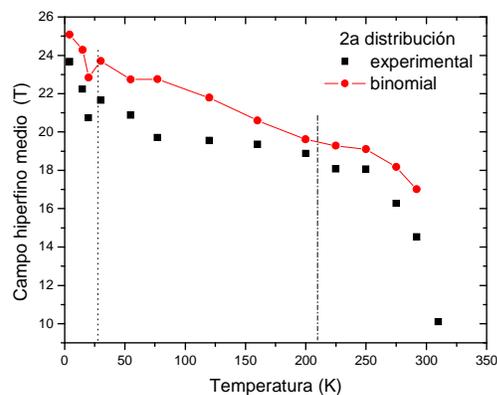


Fig. 4: Campo Hiperfino medio experimental y teórico (calculado por el método binomial) vs temperatura para la distribución con campos altos. La línea es una guía visual.

Para ajustar los datos experimentales y los del método binomial, los parámetros: α , β , γ , δ , y η de la Ec.(3) fueron seleccionados cuidadosamente para las dos distribuciones. Los valores de α oscilaron entre 0.087 y 0.090 y entre 0.045 y 0.040 y γ oscilaron entre 0.060 y 0.070 y entre 0.048 y 0.040 para la 1ª y 2ª distribución respectivamente. Los valores de α y γ en todo el rango de temperatura; corresponden a la reducción ($\Delta H/H_0$), H_0 referente al Fe puro (33T ó 330kOe). El valor de α implica la sustitución de un átomo de Fe por uno de Al en el primer vecindario, que origina una reducción de H_0 a ΔH de 2.9T. Análogamente, el valor de γ implica, sustitución por átomos de Mn, lo que origina una reducción de 1.5T. El parámetro β correspondiente a la sustitución por Al en el segundo vecindario, tienen valores de 0.035 y 0.015 para la 1ª y 2ª distribución, implica una reducción de 1.1T y δ correspondiente a sustituciones por Mn en el segundo vecindario valores de 0.005 y 0.008 para la 1ª y 2ª distribución que implica una reducción de 0.2T. Estos valores están cercanos a los reportados en la literatura por J. Restrepo et al [6] para este tipo de aleaciones.

Los valores de η fueron valores muy pequeños, y oscilaron entre -0.004 y -0.0052 para la distribución con campos bajos y para la distribución con campos altos los valores oscilaron entre 0.001 y 0.0015

Los resultados presentados aquí permiten ver que el método de distribución binomial es un método matemático apropiado para predecir el campo hiperfino promedio y determinar las configuraciones atómicas que dan las principales contribuciones al campo hiperfino. Los resultados muestran una buena concordancia con los ajustes experimentales.

4. Agradecimientos

Agradecimiento a la Universidad Pontificia Bolivariana Seccional Bucaramanga a través de la Dirección de Investigaciones por el soporte financiero del proyecto 003-0804 -9560.

Referencias

- [1] D.J. Chakrabarti, Metallurgical Trans. B 8 (1977) 121 (ISS)
- [2] H. Bremers, Ch. Jarais, J. Hesse, S. Chadjivasiliou, K.G. Efthimiadis, I. Tsoukalas, J. Magn. Magn. Mater, 140-144 (1995) 63
- [3] R.A. Brand, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B 28 (1987) 417
- [4] G. A. Pérez Alcázar, C. González and B. Cruz, Magnetic and Structural Properties of FeMnAl Alloys produced by Mechanical Alloying. Hyp Interactions 148/149 (2003) 295
- [5] B. D. Cullity, Elements of X-Ray Diffraction. Addison-Wesley. Reading MA. 1997
- [6] J. Restrepo, G.A. Pérez Alcázar, Interpretation base on a binomial method of the hyperfine field distributions of disordered $Fe_{0.9-x}Mn_{0.1}Al_x$ alloys. J. Magnetism and Magnetic Materials. 213 (2000) 135-142. (PII: S0304-8853(99)00541-7)
- [7] G. A. Pérez Alcázar, E. Galvão da Silva, J. Phys, F 17 (1987)2323
- [8] E.Fujita, in U. Gonser (Ed.), Mössbauer spectroscopy, Topics in Applied Physics. Vol 5, Springer, Berlin, 1975, P. 201
- [9] Claudia González, G.A. Pérez Alcázar, L.E. Zamora, J.A. Tabares, J.M. Greneche, J. Phys.: Condens. Matter 14 (2002) 6531(S0953-8984(02)32995-3).
- [10] Claudia González, G.A. Pérez Alcázar, L.E. Zamora, J.M. Greneche, J. J. Romero, E. Martin-Blanco, J. M. González, J. F. Marco. Comparative study between melted and mechanically alloyed samples of the $Fe_{50}Mn_{10}Al_{40}$ nanostructured system. Hyp Interactions. DOI 10.1007/s10751-008-9772-z.