



**UNIVERSIDAD
DE ANTIOQUIA**

1 8 0 3

Universidad de Antioquia
Facultad de Ciencias Exactas y Naturales
Instituto de Física
Grupo de Magnetismo y Simulación

**Efecto de la orientación del eje fácil de magnetización
en las propiedades magnéticas de una nanopartícula
monodominio**

TESIS DE MAESTRÍA

Nathaly Roa Motta

DIRECTOR DE TESIS:

PhD. Johans Restrepo Cárdenas

Medellín, 22 de noviembre de 2022

Agradecimientos

Agradezco al Dr. Johans Restrepo Cárdenas por brindarme la oportunidad de pertenecer al Grupo de investigación de Magnetismo y Simulación, por compartir conmigo todo su conocimiento y sabiduría contribuyendo siempre a mi formación personal y académica. A mis compañeros del Grupo de investigación de Magnetismo y Simulación de la Universidad de Antioquia quienes a través de las retroalimentaciones en las reuniones aportaron a mi proyecto de tesis de maestría. A mis revisores de tesis, por el tiempo tomado en la revisión de esta tesis, así como también por sus comentarios y sugerencias. A la Universidad de Antioquia por financiar los estudios de maestría a través del estímulo de Estudiante Instructor y al proyecto CODI-UdeA 2020-34211 Simulmag2 por financiar mi pasantía de investigación. Finalmente, a mis padres y esposo, quienes con amor apoyan mis sueños.

Resumen

Resaltando la importancia de las nanopartículas magnéticas (MNPs) en diversas aplicaciones biológicas como tratamientos de células cancerígenas por hipertermia magnética [1], el presente trabajo de tesis desarrolla una estrategia para mejorar la eficiencia de calentamiento de la nanopartícula. Esta estrategia tiene como base de estudio el efecto de la orientación del eje fácil de magnetización sobre la dinámica de magnetización. El sistema micromagnético referente en este trabajo consiste en una única nanopartícula de magnetita (Fe_3O_4) con geometría esférica, la cual se expone a un campo magnético oscilante con frecuencia fija de $f = 1MHz$ y una orientación del eje fácil de magnetización $\hat{u}(\phi, \theta)$ con un valor de ϕ fijo y diversos valores de θ . La dinámica de magnetización se obtiene con la solución de la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) para lo cual se realizan simulaciones micromagnéticas utilizando el paquete Ubermag [2] basado en el Marco Micromagnético Orientado a Objetos (OOMMF) [3]. Se demuestra el impacto de la orientación del eje fácil de magnetización de la nanopartícula sobre las propiedades magnéticas como la transición de fase dinámica, el tiempo de vida metaestable, las curvas de histéresis y la pérdida de potencia específica (SLP). Este hallazgo permite proponer que una estrategia para obtener mayor energía térmica del sistema micromagnético: orientar el eje fácil de la nanopartícula (el cual se encuentra fijo) a dirección casi paralela al campo magnético oscilante.

Palabras claves: Micromagnetismo, nanopartícula, magnetización, transición de fase dinámica, tiempo de vida metaestable.

Índice general

| | |
|--|-----------|
| 1. Introducción | 8 |
| 1.1. Estado del arte | 10 |
| 1.2. Objetivos | 11 |
| 2. Fundamentación teórica | 12 |
| 2.1. Momento dipolar magnético | 13 |
| 2.2. Materiales magnéticos | 15 |
| 2.2.1. Curvas de magnetización | 17 |
| 2.3. Modelo micromagnético | 19 |
| 2.4. Energías magnéticas | 20 |
| 2.4.1. Energía de desmagnetización | 20 |
| 2.4.2. Energía de intercambio | 21 |
| 2.4.3. Energía Zeeman | 22 |
| 2.4.4. Energía de anisotropía uniaxial magnetocristalina | 22 |
| 2.4.5. Energía total del sistema | 24 |
| 2.5. Tamaño de partículas y su comportamiento magnético | 26 |
| 2.6. Mecanismos de relajación | 28 |
| 2.6.1. Relajación de Néel | 29 |
| 2.6.2. Relajación de Brown | 29 |
| 2.7. Hipertermia magnética | 30 |
| 2.8. Dinámica de magnetización | 32 |
| 2.8.1. Ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert | 32 |
| 2.8.2. Fase dinámica de magnetización y tiempo de vida metaestable | 34 |
| 3. Modelo Computacional (Ubermag) | 37 |
| 3.1. discretisedfield | 37 |
| 3.2. micromagneticmodel | 40 |
| 3.3. oommfc | 40 |
| 4. Resultados y discusión | 42 |
| 4.1. Campo crítico para la transición de fase dinámica | 43 |
| 4.2. Tiempo de vida metaestable | 46 |
| 4.3. Curvas de histéresis | 48 |
| 4.4. Variación del SLP con la orientación del eje fácil | 51 |

| | |
|--|-----------|
| 5. Conclusiones y perspectivas | 54 |
| 6. Participación en Eventos Científicos | 56 |
| A. Anexos | 61 |
| A.1. Ecuación energía de intercambio | 61 |
| A.2. Ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert | 64 |
| A.3. Probabilidad condicionada | 68 |
| A.4. Ecuación de Fokker-Planck | 69 |

Índice de figuras

| | | |
|-------|--|----|
| 1.1. | Aplicaciones de las nanopartículas magnéticas (MNPs). | 8 |
| 2.1. | (a) y (b) imágenes (TEM) para las suspensiones de un ensamble de nanopartículas superparamagnéticas de maghemita ($\gamma - Fe_2O_3$) recubiertas con una capa gruesa de $20nm$ de sílice [26]. | 13 |
| 2.2. | Izquierda: El electrón tiene un movimiento orbital que puede contribuir al momento dipolar magnético. Derecha: El momento dipolar magnético es equivalente a la corriente circulante. | 13 |
| 2.3. | Representación del vector de magnetización $\mathbf{M}(\theta, \phi)$ y campo magnético $\mathbf{H}(\theta_H, \phi_H)$ en un sistema de coordenadas angulares esféricas (θ, ϕ) | 15 |
| 2.4. | Ilustración esquemática del ordenamiento de dipolos magnéticos para diferentes tipos de materiales magnéticos en ausencia y presencia de un campo magnético aplicado [27]. | 16 |
| 2.5. | Curvas de $\mathbf{M-H}$ de un material diamagnético, paramagnético, ferromagnético y superparamagnético. Aquí, M_S , M_R , H_c y χ son la magnetización de saturación, la magnetización remanente, el campo coercitivo y la susceptibilidad magnética del material [28]. | 17 |
| 2.6. | Izquierda: Proceso de desmagnetización en materiales duros y blandos a diferentes intensidades de campo magnético inverso \mathbf{H} . Derecha: Curvas de magnetización de un material ferromagnético duro (rojo), blando (azul) y duro/blando (negro) [30]. | 18 |
| 2.7. | Representación gráfica de los momentos magnéticos atómicos (círculo color gris) que se encuentran dentro de la MNP (círculo color azul). \mathbf{r} es la posición del respectivo momento magnético y V el volumen de la muestra. | 21 |
| 2.8. | Energía de anisotropía magnética (E_{an}) en función del ángulo θ entre el vector de magnetización \mathbf{M} y el eje de fácil magnetización $\hat{\mathbf{u}}$ de la partícula [43]. | 23 |
| 2.9. | Representación esquemática de las interacciones totales del sistema micromagnético. Interacción (a) dipolar, (b) de intercambio, (c) Zeeman y de (d) anisotropía magnetocristalina. | 24 |
| 2.10. | Representación gráfica de una muestra multidominio (izquierda) y dominio único (derecha) de magnetización. | 26 |
| 2.11. | (a) Ilustración cualitativa del comportamiento del campo coercitivo (H_c) en función del radio de la partícula con fina simetría. (b) Curvas de magnetización de un sistema de partículas en la región superparamagnético (Superparamagnético) (línea continua) y en la región ferromagnética (Ferromagnético) (línea discontinua) [48]. | 27 |

| | | |
|-------|--|----|
| 2.12. | Ilustración de los dos mecanismos por los cuales las partículas se relajan al estar en presencia de un campo magnético alterno \mathbf{H} | 28 |
| 2.13. | Esquema del mecanismo de relación de Néel de una partícula magnética. Se muestra de (a) hasta (d) el cambio de orientación del momento magnético al exponer la partícula al incremento del campo magnético externo. | 29 |
| 2.14. | Esquema del mecanismo de relación de Brown. Se muestra de (a) hasta (d) el cambio de orientación del momento magnético al exponer la partícula al incremento de un campo magnético externo considerando que la partícula realiza un movimiento de rotación. | 30 |
| 2.15. | Energía asociada con la curva de magnetización. El área sombreada representa la pérdida de energía por histéresis por ciclo. | 31 |
| 2.16. | Idea general del tratamiento de un ratón portador de tumores con hipertermia magnética [53]. | 31 |
| 2.17. | Visualización de las contribuciones a la dinámica de magnetización según lo descrito por la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG). (a) Movimiento de precesión alrededor del campo efectivo \mathbf{H}_{eff} . (b) Movimiento amortiguado de la magnetización hacia \mathbf{H}_{eff} . (c) Movimiento combinado de precesión y amortiguamiento como se describe en LLG. | 33 |
| 2.18. | (a-b) Magnetización dependiente del tiempo $m(t)$ (línea continua) de una nanopartícula expuesta a un campo magnético oscilante (línea discontinua). La respuesta magnética puede encontrarse en una fase dinámicamente (a) ordenada o (b) desordenada. (c-d) Curvas de magnetización respecto en la fase dinámicamente (c) ordenada y (d) desordenada. | 35 |
| 2.19. | Determinación del tiempo de vida metaestable τ | 35 |
| 3.1. | Representación gráfica de la muestra magnética y la celda de discretización de volumen V | 38 |
| 3.2. | (a) Campo de magnetización inicial en la intersección del plano \hat{x} observando las dimensiones \hat{z} y \hat{y} en los ejes horizontal y vertical, respectivamente. La barra de color representa la componente \hat{x} del campo. (b) Gráfico tridimensional del campo de magnetización inicial. (c) Valores de campo de magnetización inicial a lo largo de la longitud en el eje \hat{x} de la muestra. | 39 |
| 3.3. | Esquema de la arquitectura del simulador micromagnético Ubermag. | 41 |
| 4.1. | Malla de diferencias finitas para el cálculo de la magnetización en Ubermag. | 42 |
| 4.2. | Ilustración esquemática de la NPM expuesta a un campo magnético externo $H(t)$ en la dirección \hat{z} , con eje de anisotropía uniaxial $\hat{\mathbf{u}}(\theta, 90^\circ) = \hat{\mathbf{u}}_\theta$ | 43 |
| 4.3. | Representación gráfica de la evolución de la orientación de los momentos magnéticos en tres tiempos diferentes $t_0' > t_1' > t_2'$, cuando el sistema se encuentra en la fase dinámicamente (a) ordenada y (b) desordenada. La barra de color corresponde a la componente x de los momentos magnéticos. | 44 |
| 4.4. | Evolución temporal de la componente \hat{z} de la magnetización en la fase dinámicamente (a) ordenada y (b) desordenada para tres orientaciones del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$ | 45 |

| | |
|--|----|
| 4.5. Diagrama de transición de fase dinámica de magnetización de una MNP de magnetita de radio $R = 16nm$ y cuyas propiedades físicas se establecen en la Tabla 3.1 | 46 |
| 4.6. Tiempo de vida metaestable τ : tiempo del primer paso hasta la magnetización cero. Cálculo de τ para diferentes amplitudes de campo oscilante (a) $H_0 = 200mT$, (b) $H_0 = 400mT$ y (c) $H_0 = 800mT$ considerando tres orientaciones del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$ | 47 |
| 4.7. Logaritmo del tiempo de vida metaestable $\log(\tau)$ en función de la amplitud H_0 del campo magnético oscilante para $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$ | 47 |
| 4.8. Curvas del tiempo de vida metaestable τ en función del ángulo θ para tres amplitudes de campo magnético oscilante $H_0 = 200mT$, $H_0 = 400mT$ y $H_0 = 800mT$ | 48 |
| 4.9. Evolución temporal de la componente \hat{z} de la magnetización normalizada. | 49 |
| 4.10. Representación gráfica de la orientación de los momentos magnéticos a lo largo de diferentes puntos sobre la curva de histéresis magnética. | 50 |
| 4.11. Componente \hat{z} reducida de la magnetización en función del campo aplicado reducido, tomando como referencia un valor de amplitud del campo magnético oscilante $H_0 = 200mT$. Los círculos negros resaltan el cruce de ramas de histéresis. | 51 |
| 4.12. SLP para diferentes orientaciones del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_\theta$ | 53 |
| | |
| A.1. Visualización del vector de magnetización \mathbf{M} descrito en coordenadas esféricas por los ángulos θ y ϕ [36]. | 65 |
| A.2. Diagrama de Venn donde el evento \mathbf{A} corresponde a los síntomas del paciente, el evento \mathbf{B} , \mathbf{C} y \mathbf{D} corresponden a la enfermedad 1, 2 y 3 respectivamente en el espacio muestral \mathbf{s} | 68 |
| A.3. Representación de un disco que se mueve a las primeras celdas vecinas. | 69 |

Índice de abreviaturas

FP Ecuación de Fokker-Planck

LLG Ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert

MC Método de Monte Carlo

MNP Nanopartícula magnética

SAR Tasa de absorción específica

SLP Pérdida de potencia específica

TEM Microscopía electrónica de transmisión

Capítulo 1

Introducción

Las nanopartículas magnéticas (MNPs) hoy en día se encuentran a la vanguardia de la tecnología moderna y la innovación debido a sus numerosas aplicaciones (ver Figura 1.1), que van desde el campo de la ingeniería hasta aplicaciones biológicas, así como los medios de grabación magnética, refrigerantes magnéticos, resonancia magnética, hipertermia de fluido magnético, entre otros [1, 4]. Las aplicaciones de las MNPs se debe a que exhiben propiedades magnéticas únicas y atractivas que dependen del tamaño [5, 6], las cuales son diferentes en comparación con los materiales a granel. El estudio de las posibles aplicaciones en la ingeniería y la biomedicina de las MNPs se encuentra enfocado en sus propiedades magnéticas, las cuales son descritas por la dinámica de magnetización del sistema.

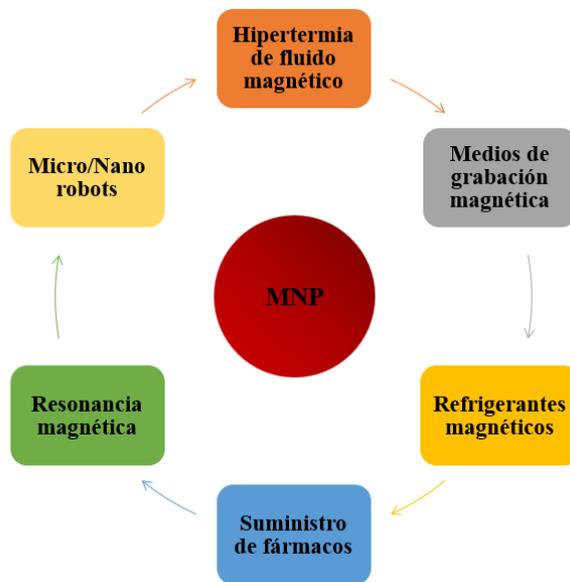
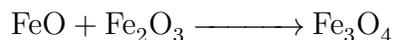


Figura 1.1: Aplicaciones de las nanopartículas magnéticas (MNPs).

Las nanopartículas de óxido de hierro, como la magnetita, son utilizadas en la mayoría de las aplicaciones biomédicas debido a sus altas propiedades magnéticas como la biocompatibilidad, magnetización de alta saturación, alta susceptibilidad magnética, estabilidad química e inocuidad. El término magnetita proviene de la ciudad de Magnesia en Asia Menor, debido

a que en ese lugar se descubrieron grandes cantidades de este elemento. Una reacción de síntesis típica de magnetita se ilustra a continuación [7]:



donde la magnetita (Fe_3O_4) se forma de la reacción de óxido ferroso (FeO) con óxido férrico (Fe_2O_3). La magnetita varía según el tipo de óxidos de hierro, ya sea trivalente o divalente, su estequiometría de $\text{Fe}^{2+}:\text{Fe}^{3+}$ es 1:2, donde los hierros divalentes pueden sustituirse total o parcialmente por otros iones divalentes. Debido a la transferencia de iones Fe^{2+} a iones Fe^{3+} la magnetita demuestra características eléctricas y magnéticas distintivas que la hacen ser muy llamativas en las aplicaciones biomédicas.

Al exponer un sistema de MNPs a un campo magnético oscilante, la respuesta de la dinámica de magnetización no será instantánea respecto al campo aplicado debido al retraso de relajación magnética. En esta dinámica de magnetización surgen dos escalas de tiempo que están en constante competencia, el tiempo de relajación del sistema o tiempo de vida metaestable (τ) y el periodo de tiempo (P) del campo magnético oscilante. El retraso en la respuesta dinámica y la competencia entre los tiempos τ y P dan lugar a un área en las curvas de magnetización en función del campo magnético, éste fenómeno se conoce como histéresis magnética. El término histéresis proviene de la palabra griega *husterein* que significa “estar detrás” y fue establecido por Ewing en el contexto de la magnetoelasticidad [8]. La respuesta dinámica de la magnetización a un campo magnético oscilante puede exhibir dos fases dinámicas [9-11]: una fase dinámicamente ordenada o fase dinámicamente desordenada. La fase dinámicamente ordenada se presenta cuando la magnetización \mathbf{M} se logra mantener cercana a su valor máximo de saturación (magnetización de saturación M_s) y no puede seguir al campo magnético \mathbf{H} . Para mantener la configuración de valores de magnetización cercanos a M_s , los momentos magnéticos tienden a estar orientados en la misma dirección, es decir, están orientados de manera ordenada. En la fase dinámicamente desordenada, la magnetización \mathbf{M} es capaz de seguir al campo \mathbf{H} y la magnetización promedio sobre un periodo es cero. Los momentos magnéticos están tienden a estar orientados en distintas direcciones, es decir, están orientados de manera desordenada.

El micromagnetismo [12, 13] es una teoría del continuo para el tratamiento de procesos de magnetización en un sistema magnético; la facilidad de su implementación y la estrecha correspondencia con datos experimentales reales disponibles en la literatura [14], hacen del micromagnetismo un modelo computacional formidable. La dinámica de los momentos magnéticos clásicos de un sistema micromagnético se modela utilizando la ecuación diferencial de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) [15], basada en el formalismo de la dinámica de Langevin [16]. Otra técnica que se implementa en el modelado micromagnético es el método de Monte Carlo (MC), ambos presentan algunas ventajas e inconvenientes [17]. El método de MC tienen la capacidad de modelar con precisión la dinámica de relajación de magnetización en el límite de una escala de tiempo prolongado [18], límite de tiempo en el cual el método de LLG difícilmente puede obtener solución. Por otra parte, el método MC tienen el inconveniente de tener su tiempo calibrado en pasos de MC, en lugar de unidades de tiempo físico real, cómo en el método de LLG. Es importante recalcar que la ecuación LLG no solamente puede ser estudiada desde el enfoque de la dinámica de Langevin, sino también desde el enfoque de la ecuación de Fokker-Planck (FP). El primer enfoque consiste en la integración numérica

directa de la ecuación LLG para encontrar el proceso de magnetización, mientras que el enfoque de la ecuación FP da cuenta de la evolución transitoria de la función de densidad de probabilidad de la magnetización [19].

1.1. Estado del arte

Se presenta la descripción de algunos trabajos de investigación disponibles en la literatura que estudian las propiedades magnéticas de un sistema de partículas a partir de la dinámica de magnetización utilizando diferentes métodos como la ecuación LLG, ecuación de FP y método de MC.

Korniss et. al. en 2000 [9] a través del método MC estudiaron el modelo cinético bidimensional de Ising por debajo de su temperatura crítica de equilibrio, sujeto a un campo externo oscilante de onda cuadrada. Encontraron que cuando el semiperíodo del campo es comparable al tiempo de vida metaestable, el sistema presenta una dinámica de transición de fase.

Scholz et. al. en 2001 [20] interpretan la ecuación de Landau-Lifshitz con el cálculo de Stratonovich para convertirla en una ecuación diferencial estocástica de tipo Langevin, modelaron los efectos de la activación térmica en pequeñas partículas ferromagnéticas cúbicas y esféricas. Demostraron que el enfoque de la dinámica de Langevin es un método adecuado para modelar los efectos de la activación térmica en materiales magnéticos.

Berger et. al. en 2013 [10] mediante el efecto Kerr magneto-óptico longitudinal midieron la magnetización de unas películas de cobalto uniaxiales para estudiar la dinámica de transición de fase en función del periodo de tiempo y el campo de Bias de un campo magnético oscilante. Demostraron que al usar y explorar la dependencia del campo de Bias en el parámetro de orden, se puede acceder a muchos más aspectos de la física que subyace a la fase dinámicamente ordenada.

Usov et. al. en 2017 [21] implementando el método de diferencias finitas proporcionaron una solución numérica a la ecuación de Fokker-Planck para un ensamble de nanopartículas con dominio único de magnetización. Describieron la dinámica de histéresis magnética para partículas con anisotropía magnética cúbica encontrando que la tasa de absorción específica (SAR) del sistema magnético expuesto a un campo magnético alterno se reduce significativamente con las fluctuaciones.

Usov et. al. en 2019 [22] a partir de la ecuación LLG obtuvieron los ciclos de histéresis de baja frecuencia en campos magnéticos alternos para un ensamble de nanopartículas magnetita que interactúan. Demostraron la dependencia sustancial de la tasa de absorción específica (SAR) con el diámetro medio de las nanopartículas.

Halgamuge y Song en 2020 [23] estudiaron la dependencia de la pérdida de potencia específica (SLP) con las características de las nanopartículas como el tamaño medio de las partículas, el número de partículas, la frecuencia y la amplitud del campo expuesto, el tiempo de relajación y la diferencia de volumen entre las partículas. Encontraron que una estrategia teórica para mejorar la eficiencia del calentamiento es emplear una acumulación de nanopartículas superparamagnéticas con forma de elipsoide en una bola con forma de esfera.

Chattopadhyay y Santra en 2021 [24] implementaron el modelo cinético de Ising bidi-

mensional para sistemas magnéticos que se encuentran bajo un campo magnético externo sinusoidal variable en el tiempo de un período de tiempo fijo y diferentes amplitudes. Muestran que los ciclos de histéresis son asimétricos en la fase dinámicamente ordenada mientras que son simétricos en la fase dinámicamente desordenada. Adicionalmente, indican que la fase dinámicamente desordenada se produce a una temperatura en la que el tiempo de vida metaestable se vuelve comparable al semiperíodo del campo oscilante.

Esta revisión bibliográfica permitió establecer el sistema micromagnético a estudiar a lo largo del presente proyecto de tesis de maestría, el cual corresponde a una nanopartícula de magnetita con geometría esférica debido a la importancia de las MNPs de magnetita en aplicaciones biológicas como tratamientos de hipertermia magnética. Enfocados en las aplicaciones de hipertermia magnética y teniendo en cuenta los diversos parámetros que se encuentran reportados en la literatura que indican una mejora en la eficiencia de calor a través del cálculo de la pérdida de potencia específica (SLP), por primera vez se presenta el efecto de la orientación del eje fácil de magnetización sobre algunas propiedades magnéticas como la histéresis magnética.

1.2. Objetivos

Objetivo General

Analizar el efecto de la orientación magnética de una nanopartícula que se encuentra sometida a la acción de un campo magnético oscilante sobre algunas propiedades magnéticas, como tiempos de vida metaestable, curvas de histéresis y pérdida de potencia específica (SLP).

Objetivo Específico

- Implementar el problema micromagnético de una nanopartícula de magnetita con geometría esférica en Ubermag.
- Solucionar la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert mediante la implementación de simulación micromagnética.
- Determinar las amplitudes del campo magnético oscilante para el cual el sistema realiza una transición de fase dinámica.
- Calcular algunas propiedades magnéticas como tiempos de vida metaestable, curvas de histéresis y SLP.

Capítulo 2

Fundamentación teórica

El magnetismo se origina de las cargas en movimiento, sin embargo, no existe una carga norte o positiva aislada o una carga sur o negativa aislada. El momento o dipolo magnético μ es el equivalente a dos cargas magnéticas que están muy próximas una a la otra (pero no coincidentes) y puede ser analizado por el campo magnético generado por esa estructura dipolar, el cual se conoce como campo dipolar magnético. Los dipolos magnéticos elementales pueden presentar orden magnético espontáneo, lo cual permite caracterizar los materiales magnéticos, por ejemplo, ferromagneto, antiferromagneto, vidrio de espín, esquirmiones, entre otros. Los materiales magnéticos se caracterizan por presentar anisotropía, lo cual significa que los fenómenos magnéticos no son iguales en diferentes dimensiones del espacio. Un material magnético ya sea por su estructura cristalina, por su forma, o por las interfases que presenta va a responder de manera anisotrópica a un estímulo de un campo externo, es decir, se va a magnetizar más o menos, y su magnetización se va a alinear más o menos con el campo externo según la dirección en la que fue magnetizado. Debido a que todos los cuerpos magnéticos tienen un tamaño finito existe una ruptura del orden magnético en la superficie, por lo tanto, la superficie es una fuente de fenómenos magnéticos. Si la partícula es grande la fracción de átomos o moléculas que están en la superficie S es despreciable frente a la fracción que se encuentra en el volumen del material V , pero a medida que se reduce el tamaño de un material la relación de superficie-volumen se incrementa notoriamente. Adicionalmente, otro aspecto importante que presentan todos los materiales magnéticos es que están sometidos a una interacción magneto-elástica (Capítulo 5.1 pp.174 [25]), esto se debe a que cuando se magnetiza un material se cambian sus dimensiones, hay materiales que se alargan o se acortan, y por conservación del volumen los materiales que se alargan se acortan en las direcciones transversales generando interacciones elásticas dentro de un material.

Las propiedades magnéticas de las MNPs las hacen atractivas al desarrollo tecnológico debido al hecho de que su tamaño se vuelve comparable a varias longitudes físicas características. La reducción de escala en los materiales genera cambios significativos en la estructura interna, que a su vez modifica las propiedades intrínsecas electrónicas y ópticas. Las MNPs son una clase de materiales de partículas con un tamaño menor a $100nm$ que pueden manipularse bajo la influencia de un campo magnético externo. Los elementos magnéticos que usualmente componen las MNPs son el hierro (Fe), níquel (Ni), cobalto (Co) y sus óxidos como la magnetita (Fe_3O_4), maghemita ($\gamma - Fe_2O_3$), óxido de cromo (CrO_2), ferrita de cobalto (Fe_2CoO_4), entre otros. En la Figura 2.1 se muestra una microfotografía utilizando

microscopía electrónica de transmisión de una nanopartícula (TEM) de maghemita la cual tiene una morfología núcleo/capa, es decir, está formado por un núcleo magnético (región oscura) y por una capa que rodea el núcleo (región clara).

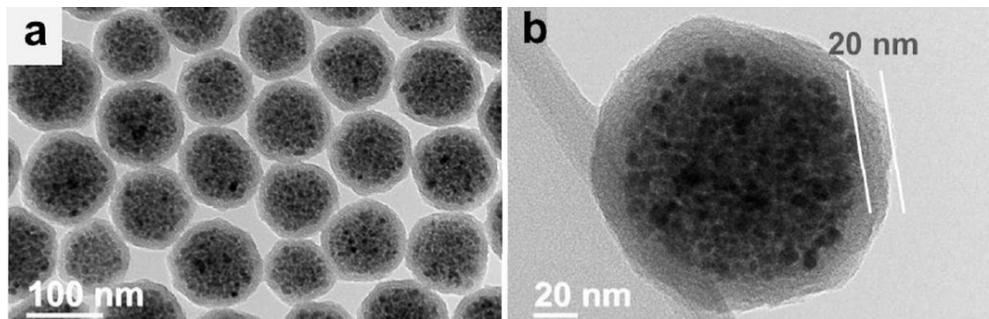


Figura 2.1: (a) y (b) imágenes (TEM) para las suspensiones de un ensamble de nanopartículas superparamagnéticas de maghemita ($\gamma - Fe_2O_3$) recubiertas con una capa gruesa de 20nm de sílice [26].

2.1. Momento dipolar magnético

Las corrientes eléctricas dan origen al magnetismo, estas corrientes en la mayoría de veces son corrientes electrónicas atómicas, es decir, corrientes dentro de un mismo átomo. El magnetismo orbital de un átomo es exactamente un electrón que en una visión clásica estaría recorriendo una órbita, cómo se muestra en imagen izquierda de la Figura 2.2.

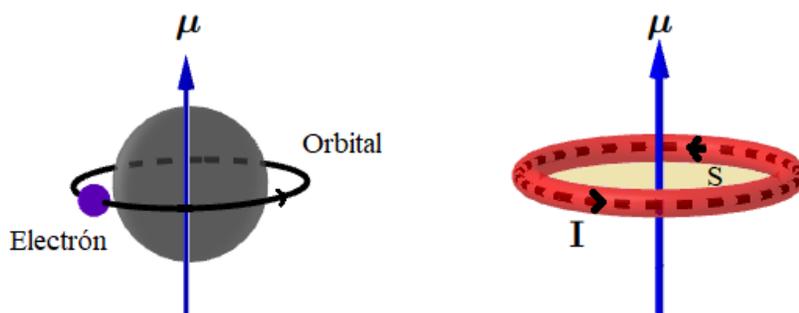


Figura 2.2: Izquierda: El electrón tiene un movimiento orbital que puede contribuir al momento dipolar magnético. Derecha: El momento dipolar magnético es equivalente a la corriente circulante.

Como se muestra en la imagen derecha de la Figura 2.2, el momento dipolar magnético se define como el producto de la corriente I por la superficie o área encerrada en el circuito que realiza la corriente S , tal que [25]

$$\mu = IS \quad (2.1)$$

La corriente \mathbf{I} se define como la variación de la carga q que se transporta en un tiempo t , luego

$$\|\boldsymbol{\mu}\| = \frac{dq}{dt} \pi R^2 = -\frac{eR}{2}v \quad (2.2)$$

siendo

$$\frac{dq}{dt} = -\frac{e}{T} = -\frac{e}{2\pi R}v$$

donde e es la carga del electrón, T el periodo orbital, R radio de la órbita, v rapidez del electrón en su órbita. En un dipolo atómico la corriente es del orden de $10^{-4}A$ y la superficie es muy pequeña porque el radio es del orden del radio de Bohr. El momento dipolar magnético $\boldsymbol{\mu}$ se puede escribir en términos de la cantidad de momento angular orbital \mathbf{L}

$$\boldsymbol{\mu} = -\frac{e}{2m_e}\mathbf{L} \quad (2.3)$$

Para el caso en que \mathbf{R} sea perpendicular a \mathbf{v} , el módulo del momento angular es $\mathbf{L} = \mathbf{R} \times m\mathbf{v}$, las unidades del momento angular orbital L y del momento dipolar magnético μ son $[L] = kgm^2/s$ y $[\mu] = Am^2$, respectivamente. En un desarrollo cuántico, el momento dipolar magnético es también proporcional al momento angular

$$\hat{\mu} = -\frac{e\hbar}{2m_e}\hat{L} = -g\mu_B\hat{L} \quad (2.4)$$

donde \hat{L} es una cantidad sin unidades, \hbar es la constante de Planck, g es el factor de Landé que para el momento angular vale 1 y $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} = 9,27 \times 10^{-24}Am^2$ es el magnetón de Bohr.

Los electrones en los átomos o iones presentan una configuración o estructura interna determinada, es una partícula fundamental y por tanto no se le puede asignar una forma ni un movimiento interno, el electrón tiene una propiedad intrínseca llamada momento angular de espín. El espín es un momento angular que no está asociado con un movimiento orbital, sin embargo, una forma que ayuda a entender la propiedad del espín es considerando que se debe a la rotación del electrón sobre su propio eje. El momento angular del átomo \hat{J} surge del acoplamiento del momento angular de espín \hat{S} y momento angular orbital \hat{L}

$$\hat{J} = \hat{L} + \hat{S} \quad (2.5)$$

El momento angular de espín está dado por

$$\hat{\mu}_S = -g\mu_B\hat{S} \quad (2.6)$$

con un factor de Landé $g = 2$.

El momento angular orbital está dado por

$$\hat{\mu}_L = -g\mu_B\hat{L} \quad (2.7)$$

con un factor de Landé $g = 1$. La expresión general del factor de Landé es

$$g = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$$

2.2. Materiales magnéticos

La magnetización $\mathbf{M}(\theta, \phi)$ de una partícula de volumen ν está determinada por el campo magnético externo $\mathbf{H}(\theta_H, \phi_H)$ y por las fuerzas internas, la energía libre por unidad de volumen está dada por $V(\theta, \phi)$, donde θ y ϕ son las coordenadas angulares las cuales permiten describir la orientación de $\mathbf{M}(\theta, \phi)$ como se muestra en la Figura 2.3. La magnetización \mathbf{M} , el momento dipolar magnético por unidad de volumen ν del material y el campo magnético externo \mathbf{H} se miden Am^{-1} .

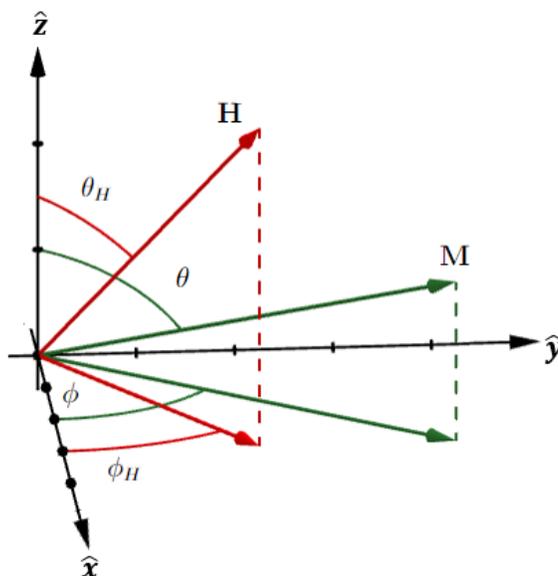


Figura 2.3: Representación del vector de magnetización $\mathbf{M}(\theta, \phi)$ y campo magnético $\mathbf{H}(\theta_H, \phi_H)$ en un sistema de coordenadas angulares esféricas (θ, ϕ) .

Una forma de caracterizar los tipos de materiales magnéticos es a través del orden que presentan las orientaciones de los momentos magnéticos, y como es su respuesta de magnetización al estar expuestos a un campo magnético externo (\mathbf{H}). La magnetización de un material corresponde a la suma de todos los momentos magnéticos de cada átomo que componen el material dividido por unidad de volumen donde están contenidos esos momentos. Cuando los materiales magnéticos monocristalinos son sometidos a un campo magnético aplicado el ordenamiento de sus momentos magnéticos puede ser alterado, cómo se observa en la Figura 2.4.

Un material **ferromagnético** se caracteriza porque a nivel de sus dominios, sus momentos magnéticos tienden a estar orientados paralelamente entre sí por debajo de su temperatura de Curie. Algunos ejemplos de materiales ferromagnéticos son el Hierro (Fe), Carbono (Co) y Níquel (Ni). Los momentos magnéticos del material ferromagnético tienden a alinearse en la dirección del campo \mathbf{H} , luego el material se magnetiza en la dirección al campo.

En un material **antiferromagnético** los momentos magnéticos idénticos forman dos subredes en el material, una subred ferromagnética orientados en una dirección y otra orientados en la dirección opuesta, por lo tanto, el momento magnético neto en el material es nulo. El Óxido de Magnesio (MnO), Sulfuro de Magnesio (MnS) y el Cobre (Cr) son algunos

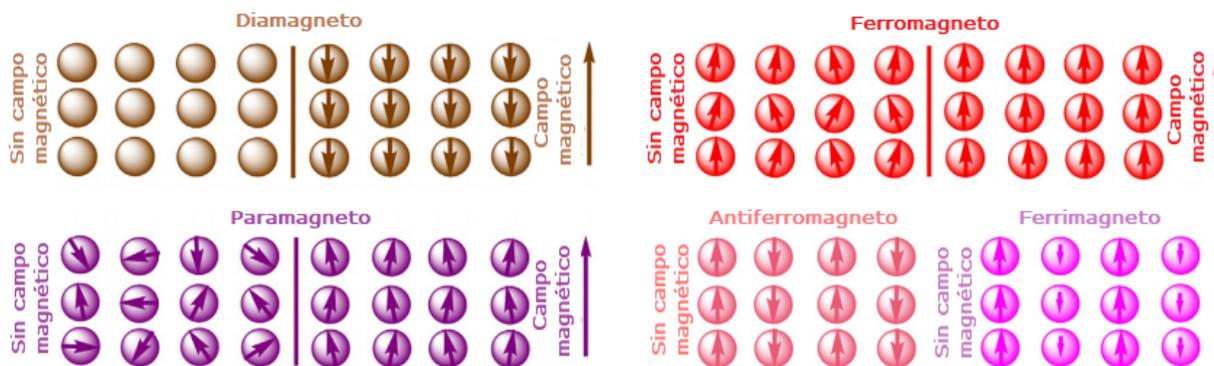


Figura 2.4: Ilustración esquemática del ordenamiento de dipolos magnéticos para diferentes tipos de materiales magnéticos en ausencia y presencia de un campo magnético aplicado [27].

ejemplos de elementos antiferromagnéticos. Un ordenamiento similar al antiferromagnético es el **ferrimagnético**, pero los iones del material presentan momentos magnéticos de diferentes tamaños. El ejemplo más familiar es la magnetita (Fe_3O_4). Si se aplica un campo \mathbf{H} en la dirección paralela a los momentos magnéticos del antiferromagnético o ferrimagnético, se obtiene una respuesta muy débil del materia. Se requieren campos magnéticos muy grandes para invertir los espines de la subred que tiene momentos magnéticos en la dirección antiparalela. Sin embargo, si campo el campo \mathbf{H} es aplicado en la dirección perpendicular a los momentos magnéticos ellos se inclinan en la dirección del campo aplicado.

Un material **paramagnético** se caracteriza por tener un desorden en las orientaciones del momento magnético, el cual ocurre porque no hay interacciones entre los momentos magnéticos del material. Ejemplos de materiales paramagnéticos son el Aluminio (Al), Titanio (Ti) y Óxido de hierro (Fe_2O_3). En un **vidrio de espín** se presenta también un desorden magnético, sin embargo éste desorden se debe a las interacciones, las cuales dependen de la posición y orientación que ocupan los momentos magnéticos en el material. Adicionalmente, su momento magnético neto es nulo. Al someter un material paramagnético o vidrio de espín a un campo \mathbf{H} , se favorece una orientación de la magnetización pero el efecto que se obtiene es débil. Un caso especial de materiales paramagnéticos son las partículas superparamagnéticas que se magnetizan en un campo magnético. Sin embargo, una vez que se elimina el campo externo, las partículas se vuelven a dispersar y se comportan como un material no magnético.

El material **diamagnético** no presenta un momento magnético permanente, pero si tiene corrientes electrónicas. Los materiales diamagnéticos generalmente son considerados por los no físicos como no magnéticos e incluyen agua, ADN, la mayoría de los compuestos orgánicos como el petróleo y el plástico, y muchos metales como el Oro (Au) y el Bismuto (Bi). En los diamagnético al aplicar un campo \mathbf{H} aparece un momento magnético y el material se magnetiza pero con dirección opuesta al campo aplicado, esto es un efecto del campo magnético sobre las corrientes electrónicas dentro del material.

2.2.1. Curvas de magnetización

Los materiales diamagnéticos y paramagnéticos al estar expuestos a un campo magnético externo \mathbf{H} presentan una respuesta de magnetización \mathbf{M} lineal, cómo se muestra en las curvas roja y azul de la Figura 2.5.

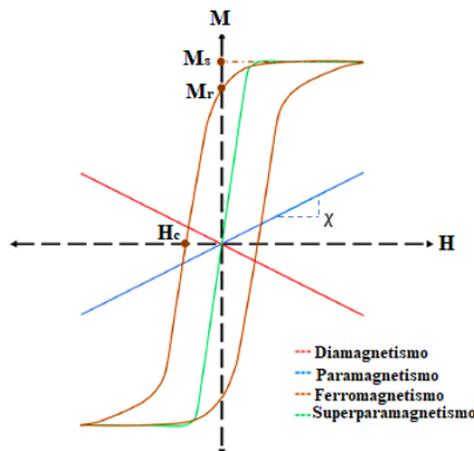


Figura 2.5: Curvas de \mathbf{M} - \mathbf{H} de un material diamagnético, paramagnético, ferromagnético y superparamagnético. Aquí, M_s , M_r , H_c y χ son la magnetización de saturación, la magnetización remanente, el campo coercitivo y la susceptibilidad magnética del material [28].

La relación lineal entre \mathbf{M} y \mathbf{H} en estos materiales está dada por [29]:

$$\mathbf{M} = \chi \mathbf{H} \quad (2.8)$$

donde χ es la susceptibilidad magnética la cual se define por la pendiente de la magnetización en función de los valores del campo magnético externo. Para el caso de un material paramagnético χ es positiva, contrario al material diamagnético que presenta un valor negativo en χ .

Los materiales ferromagnéticos presentan una llamativa manifestación de la magnetización al ser expuestos a un campo magnético externo. Contrario a los materiales diamagnéticos y paramagnéticos, la respuesta de \mathbf{M} en los materiales ferromagnéticos no es lineal. Los cambios de \mathbf{M} son irreversibles y como resultado de la aplicación de un campo \mathbf{H} , se obtiene un ciclo de histéresis [8], cómo se observa en la curva naranja de la Figura 2.5. La magnetización de saturación (M_s), la remanencia o magnetización remanente (M_r), el campo coercitivo (H_c) y la susceptibilidad magnética (χ) son algunos de los parámetros que pueden proporcionar información para describir la respuesta de magnetización del material. M_s es el valor límite al que tiende la curva dentro de la región de campo alto, y se alcanza cuando todos los momentos magnéticos en el material están alineados con el campo magnético externo. Al disminuir el campo, el material no recupera su estado magnetizado, reteniendo una cierta cantidad de magnetización a campo cero: M_r . H_c es una consecuencia del carácter irreversible de la histéresis magnética; representa el campo necesario para desmagnetizar completamente el material. El área encerrada en el ciclo de histéresis del material ferromagnético da cuenta de

la cantidad de energía magnética almacenada en el material magnético, el ancho del ciclo es una medida de cuán magnéticamente duro o blando es el material (ver Figura 2.6).

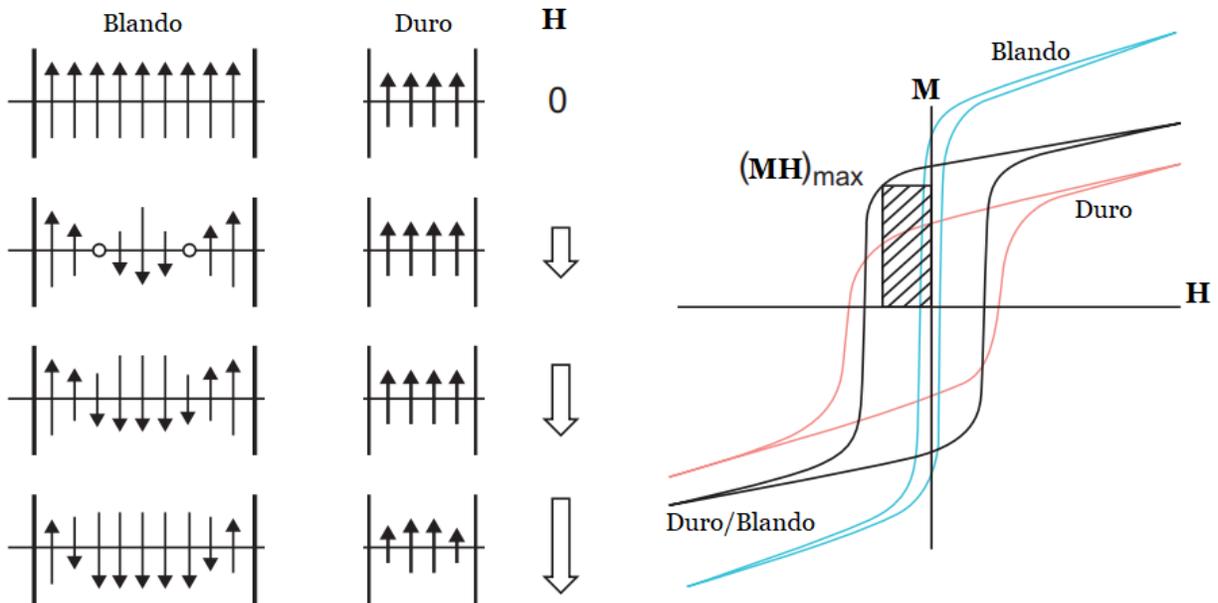


Figura 2.6: Izquierda: Proceso de desmagnetización en materiales duros y blandos a diferentes intensidades de campo magnético inverso H . Derecha: Curvas de magnetización de un material ferromagnético duro (rojo), blando (azul) y duro/blando (negro) [30].

Los materiales ferromagnéticos llamados duros tienen un ciclo histéresis bastante ancho que tiende a tener una geometría cuadrada, cómo se observa en la curva roja de la Figura 2.6; este comportamiento se debe a que los materiales duros tienen alta anisotropía y por tanto, un alto valor en el campo coercitivo. Este tipo de materiales son adecuados para aplicaciones de imanes permanentes debido a que cuando se retira el campo H permanecen en estado magnetizado. Para el caso de materiales blandos, los ciclos de histéresis son muy estrechos y alargados (ver curva azul de la Figura 2.6), lo cual implica que son difícilmente saturables y que al eliminar el campo H pierden fácilmente su magnetización. En el proceso de desmagnetización del ferromagnético duro al aplicar un campo magnético inverso suficientemente pequeño los momentos magnéticos no cambian de dirección debido a su alta anisotropía, mientras que en el ferromagnético blando algunos momentos magnéticos se invierten. Al apagar el campo magnético externo, los momentos magnéticos del ferromagnético blando regresan reversiblemente a su dirección original, contrario al ferromagnético duro el cual mantiene su dirección en los momentos magnéticos.

Los materiales superparamagnéticos no exhiben un comportamiento histerético, a medida que aumenta la intensidad del campo magnético aplicado la magnetización aumenta rápidamente y en ausencia de un campo H tienden a perder su magnetismo igual que los materiales paramagnéticos. El comportamiento magnético de un superparamagnético está

descrito por la función de Langevin $L(\zeta)$ [31] (curva verde de la Figura 2.5)

$$\begin{aligned}\mathbf{M}(H, T) &= M_s L(\zeta) \\ &= M_s \left(\coth(\zeta) - \frac{1}{\zeta} \right)\end{aligned}\quad (2.9)$$

donde M_s es la magnetización de saturación, ζ es el parámetro de Langevin función $L(\zeta)$ definida como $\zeta = mH/k_B T$, siendo m es el momento magnético total de la partícula, H es el campo magnético externo, k_B es la constante de Boltzmann, T es la temperatura. En los superparamagnéticos es característico un alto valor de la susceptibilidad magnética inicial, la saturación de la magnetización, mientras que la coercitividad y remanencia son insignificantes.

2.3. Modelo micromagnético

El modelo micromagnético fue desarrollado por Landau y Lifshitz [32], Brown [33, 34] y Kittel [35], es una herramienta que permite la descripción teórica de los procesos de magnetización en la escala de micras. El micromagnetismo es una teoría casi clásica debido a que los operadores de espín del modelo de Heisenberg se sustituyen por vectores clásicos. Sin embargo, el micromagnetismo integra efectos mecánicos cuánticos que son esenciales para el ferromagnetismo, como la interacción de intercambio, con una descripción clásica de campo continuo de la magnetización en el sentido de valores esperados. Los supuestos en los que se basa la teoría micromagnética [36] son:

- Para una densidad homogénea de espines momentos magnéticos, la distribución de los momentos magnéticos $\boldsymbol{\mu}_i(\mathbf{r})$ es discreta en todo el volumen V del sistema magnético y se aproxima mediante una densidad vectorial continua $\mathbf{M}(\mathbf{r}, t)$ tal que

$$\int_V \mathbf{M}(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} = \sum_{i \in V} \boldsymbol{\mu}_i(\mathbf{r}) \quad (2.10)$$

- El vector de magnetización $\mathbf{M}(\mathbf{r}, t)$ es continuo y diferenciable con respecto tanto al espacio \mathbf{r} como al tiempo t . Es decir, la rotación de los momentos magnéticos $\boldsymbol{\mu}(\mathbf{r})$ de la red de espines que contiene la partícula pueden cambiar solo en un pequeño ángulo de un punto de red al siguiente.
- Existen tres consideraciones que deben tenerse en cuenta respecto al vector magnetización \mathbf{M} : **(1)** La norma del vector magnetización \mathbf{M} es constante y de un valor bien definido a temperatura 0K, como es nuestro caso. **(2)** Se considera homogénea espacialmente en tanto que la densidad de momentos en la red también lo sea. **(3)** Además, se considera continua y analítica para que sus derivadas estén bien definidas. Así,

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}, t) = M_s \mathbf{m}(\mathbf{r}, t) \quad (2.11)$$

donde M_s es la magnetización de saturación, la norma del vector magnetización es $\|\mathbf{M}(\mathbf{r}, t)\| = M_s$ y la norma del vector unitario de magnetización es $\|\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)\| = m_x^2 + m_y^2 + m_z^2 = 1$

Con frecuencia en el modelo micromagnético se considera un sistema con temperatura cero o lo suficientemente pequeña donde las fluctuaciones termodinámicas son insignificantes y el valor de equilibrio termodinámico de la magnetización es M_s en todos los espines de la red son iguales. La dirección del vector de magnetización \mathbf{M} es generalmente no uniforme y su estado de equilibrio es determinado por la minimización de la energía libre del sistema. Las contribuciones más importantes de la energía libre son descritas en la siguiente sección.

2.4. Energías magnéticas

La histéresis magnética en los materiales ferromagnéticos es consecuencia directa de que el proceso de magnetización sea un proceso fuera de equilibrio. La histéresis es un fenómeno macroscópico derivado de la evolución microscópica de la estructura magnética y se desarrolla en obediencia a los principios generales de minimización de energía libre. En la teoría micromagnética la energía libre se expresa en la aproximación del continuo, donde la estructura atómica se promedia y la magnetización \mathbf{M} es una función que varía constantemente respecto a su dirección y presenta una magnitud constante (M_s).

De acuerdo a la teoría micromagnética en un sistema ferromagnético la energía total con respecto a su magnetización está compuesta por una serie de contribuciones que dependen de las propiedades del material [36]. Algunas de estas contribuciones son la energía dipolar, la energía de Zeeman, la energía de intercambio y la energía de anisotropía magnetocristalina. Las dos primeras energías pueden ser descritas por la magnetostática clásica, mientras que las otras contribuciones tienen un origen mecánico cuántico.

2.4.1. Energía de desmagnetización

La energía de desmagnetización o energía magnetostática, explica la interacción dipolo-dipolo de un sistema magnético, como se muestra en la Figura 2.7. Cada momento del sistema magnético crea un campo dipolar y cada momento está expuesto al campo magnético creado por todos los demás dipolos. Este campo tiene dirección contraria a la magnetización y se conoce como campo desmagnetizante \mathbf{H}_d . La energía desmagnetizante en términos del campo \mathbf{H}_d en el modelo continuo está dada por [37]

$$E_{demag} = -\frac{1}{2} \int_V \mu_0 \mathbf{H}_d \cdot \mathbf{M} dV \quad (2.12)$$

donde la integración se realiza sobre el volumen V de la muestra, $\mu_0 = 1,2566 \times 10^6 \text{ JA}^{-2} \text{ m}^{-1}$ es la permeabilidad del espacio libre y el factor 1/2 explica el hecho de que los momentos magnéticos son en sí mismos la fuente del campo con el que interactúan. El campo \mathbf{H}_d en términos está representado por el potencial escalar

$$\mathbf{H}_d = -\nabla\Phi(\mathbf{r}) \quad (2.13)$$

siendo

$$\Phi(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi} \left[-\int_V \frac{\nabla \cdot \mathbf{M}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} dV' + \int_S \frac{\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{M}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} dS' \right] \quad (2.14)$$

V es el volumen y S la superficie de la muestra, el término $-\nabla \cdot \mathbf{M}(\mathbf{r}')$ indica el volumen magnético, $\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{M}(\mathbf{r}')$ corresponde a las cargas superficiales, y $\hat{\mathbf{n}}$ denota un vector normal a la superficie de la muestra.

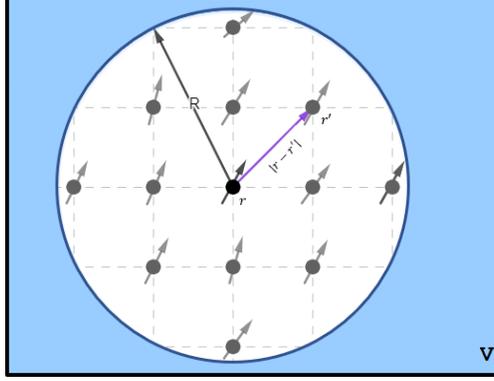


Figura 2.7: Representación gráfica de los momentos magnéticos atómicos (círculo color gris) que se encuentran dentro de la MNP (círculo color azul). \mathbf{r} es la posición del respectivo momento magnético y V el volumen de la muestra.

La energía de desmagnetización presenta una interacción de largo alcance debido al hecho de que cada momento magnético siente la presencia del campo magnético total de todos los momentos circundantes. En los sistemas magnéticos se favorece energéticamente los estados macroscópicamente desmagnetizados si están sujetos únicamente a la interacción dipolo-dipolo.

2.4.2. Energía de intercambio

Los espines de los materiales ferromagnéticos están sujetos a la interacción de intercambio la cual es de naturaleza mecánico cuántico. Para dos espines su interacción de intercambio favorece una alineación paralela sobre una antiparalela debido a que la energía electrostática en el estado paralelo es menor que la energía del estado antiparalelo. El origen de este comportamiento puede ser explicado mediante el principio de exclusión de Pauli y la interacción electrostática de Coulomb. Desde el principio de exclusión de Pauli se conoce que, si dos electrones tienen espines paralelos, los electrones tienden a separarse reduciendo así la repulsión de Coulomb. En el límite del continuo la energía de intercambio se define como [25]

$$E_{ex} = \int_V \frac{A}{M_s^2} (|\nabla M_x|^2 + |\nabla M_y|^2 + |\nabla M_z|^2) dV \quad (2.15)$$

donde A es la constante de intercambio y ∇ el operador nabla. Considerando la relación $|\nabla f|^2 = \nabla \cdot (f \nabla f) - f \nabla^2 f$, la ecuación 2.15 puede ser escrita como (ver Apéndice A.1)

$$E_{ex} = - \int_V \frac{A}{M_s^2} \mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) dV \quad (2.16)$$

Las interacciones de intercambio ferromagnético mantienen la magnetización uniforme. La competencia de la energía de intercambio E_{ex} respecto a la energía dipolar E_{demag} se caracteriza por la longitud de intercambio (L_{ex}) [38]:

$$L_{ex} = \sqrt{\frac{2A}{\mu_0 M_s^2}} \quad (2.17)$$

L_{ex} es la escala más corta en la que se puede invertir la magnetización para minimizar la interacción dipolar. Si se considera únicamente la energía E_{ex} en el sistema magnético magnetización permanecería uniforme. Pero como la energía E_{demag} está siempre presente, y su tendencia es reducir el momento neto de una muestra isotrópica a cero mediante la rotación continua de la magnetización.

En la teoría del micromagnetismo para obtener convergencia en las soluciones numéricas y resultados con mayor precisión, se requiere una discretización en la distribución continua del vector de magnetización. La longitud de las celdas de discretización micromagnéticas deben ser menor a la longitud de intercambio L_{ex} del material, como se afirma en algunos trabajos disponibles en la literatura [39-41].

2.4.3. Energía Zeeman

La energía de interacción de un cuerpo magnético con un campo magnético externo \mathbf{H} se denomina energía Zeeman o energía magnetostática del campo externo. En la aproximación del continuo la energía Zeeman en términos del vector de magnetización \mathbf{M} de una muestra magnética con volumen V se define como [42]

$$E_{Zeeman} = \mu_0 \int_V \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} dV \quad (2.18)$$

La interacción Zeeman tiende a alinear todos los momentos magnéticos de la muestra en la dirección del campo magnético externo \mathbf{H} . Se ha mencionado que una de las propiedades características de los materiales ferromagnéticos es su capacidad de tener una magnetización macroscópica incluso cuando se desvanece el campo externo. Para lograr la inversión de la magnetización, la energía Zeeman de la magnetización inversa en el núcleo debe ser mayor. Esto se puede lograr mediante un campo externo más grande.

2.4.4. Energía de anisotropía uniaxial magnetocristalina

Los materiales ferromagnéticos presentan propiedades magnéticas anisotrópicas, es decir, la magnetización alcanza el valor de saturación dependiendo de la orientación del campo magnético externo respecto a los ejes de simetría del material. La anisotropía magnetocristalina depende del acoplamiento de los momentos magnéticos del espín con los momentos angulares orbitales. Los momentos magnéticos del espín son los portadores de la magnetización a través de la interacción de intercambio y los momentos angulares orbitales no tienen libertad para asumir ninguna orientación debido a que están unidos a la red a través del campo cristalino. Debido a esto la anisotropía magnetocristalina no dependerá únicamente de la interacción espín órbita sino también de la interacción del momento angular orbital con el campo del cristal. Estas interacciones llevan a que la magnetización de un sistema se

encuentre naturalmente a lo largo de ciertas direcciones cristalográficas preferidas, las cuales son determinadas por las propiedades de simetría del campo cristalino. Se define las direcciones fáciles de magnetización a aquellas direcciones donde el sistema alcanza la magnetización de saturación a magnitudes de campo bajo, contrario se tiene las direcciones duras donde se requiere campos más altos para saturar la magnetización. Muchas estructuras cristalinas producen anisotropías uniaxiales, es decir, presenta una única dirección de preferencia de magnetización. Para este caso de un único eje fácil, la energía de anisotropía uniaxial está descrita por [36]

$$E_{an} = - \int_V \left[\frac{K_1}{M_s^2} (\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{u}})^2 + \frac{K_2}{M_s^4} (\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{u}})^4 + \mathbf{O}(M^6) \right] dV \quad (2.19)$$

donde K_1 y K_2 son constantes de anisotropía propia de un material magnético y se expresa en J/m^3 y $\hat{\mathbf{u}}$ es un vector unitario paralelo al eje fácil de magnetización. En muchos casos $K_1 \gg K_2$ y la ecuación (2.19) se simplifica a

$$E_{an} = - \int_V \left[\frac{K_1}{M_s^2} (\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{u}})^2 \right] dV \quad (2.20)$$

Cuando K_1 toma un valor positivo implica que la estructura cristalina prefiere un eje fácil de magnetización, mientras que si $K_1 < 0$ se prefiere un plano fácil de magnetización.

La energía de anisotropía E_{an} definida en la ecuación (2.20) depende del ángulo entre el vector de magnetización \mathbf{M} y el eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}$ el cual se denota con la letra θ , cómo se muestra en la Figura 2.8. Cuando \mathbf{M} se encuentra orientada paralela o antiparalela al eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}$ el sistema minimiza su energía de anisotropía, contrario, la energía de anisotropía es máxima cuando \mathbf{M} es perpendicular a $\hat{\mathbf{u}}$.

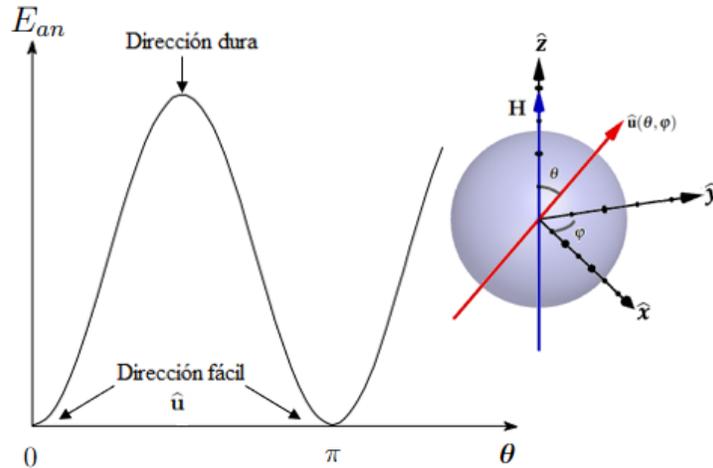


Figura 2.8: Energía de anisotropía magnética (E_{an}) en función del ángulo θ entre el vector de magnetización \mathbf{M} y el eje de fácil magnetización $\hat{\mathbf{u}}$ de la partícula [43].

2.4.5. Energía total del sistema

La energía libre magnética total de Gibbs corresponde a expresiones continuas que describen las interacciones de corto y largo alcance entre los espines, interacciones de los espines con el campo externo y la red cristalina de la muestra magnética y las interacciones de los espines unos con otros, las cuales se muestran en la Figura 2.9.

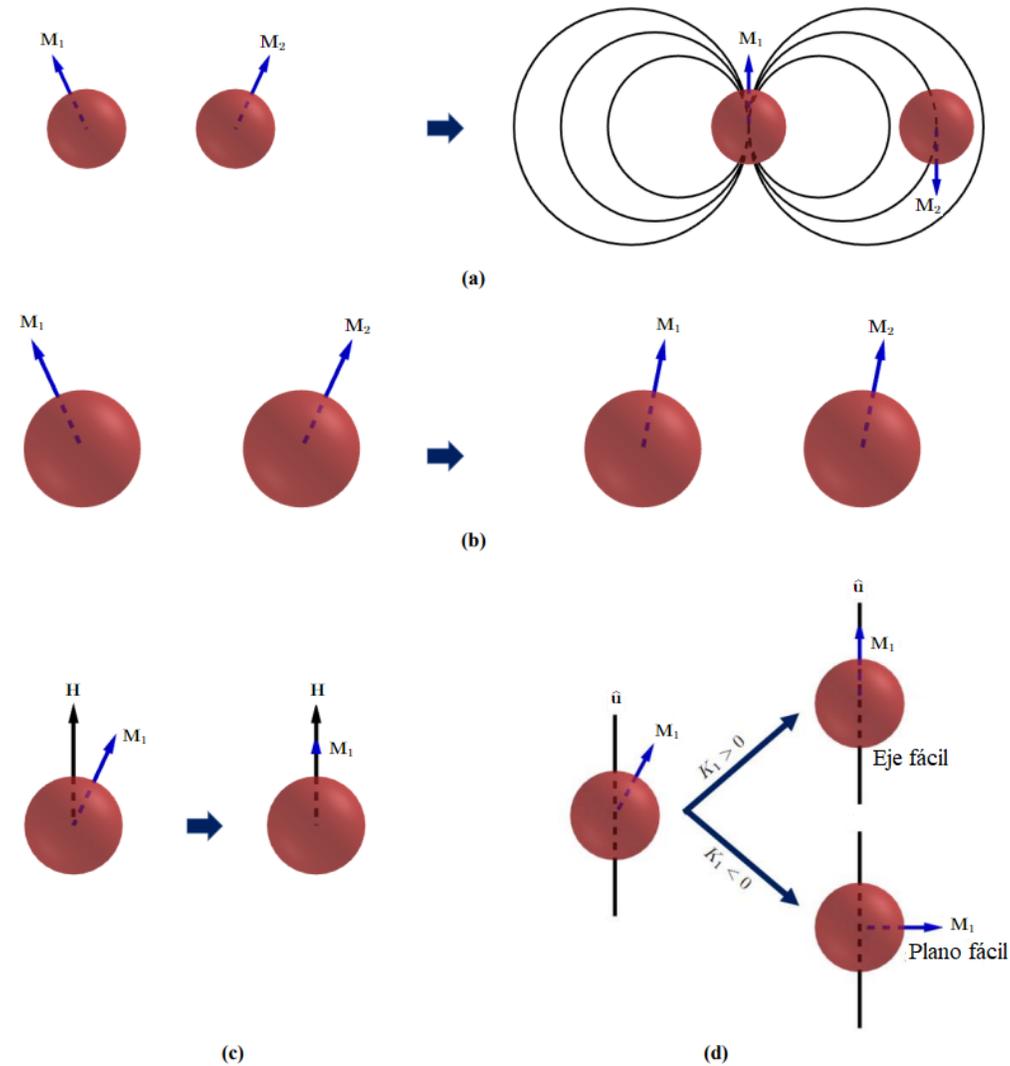


Figura 2.9: Representación esquemática de las interacciones totales del sistema micromagnético. Interacción (a) dipolar, (b) de intercambio, (c) Zeeman y de (d) anisotropía magnetocristalina.

La expresión de la energía libre magnética total de Gibbs escrita como una integral de

volumen sobre la muestra,

$$\begin{aligned}
E_{\text{Total}} &= E_{\text{demag}} + E_{\text{ex}} + E_{\text{Zeeman}} + E_{\text{an}} \\
&= \int_V \left[-\frac{1}{2} \mu_0 \mathbf{H}_d \cdot \mathbf{M} - \frac{A}{M_s^2} \mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) - \mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} - \frac{K_1}{M_s^2} (\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{u}})^2 \right] dV \\
&= \int_V w(\mathbf{M}) dV
\end{aligned} \tag{2.21}$$

siendo $w(\mathbf{M})$ es la densidad de energía total del sistema

$$w(\mathbf{M}) = -\frac{1}{2} \mu_0 \mathbf{H}_d \cdot \mathbf{M} - \frac{A}{M_s^2} \mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) - \mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} - \frac{K_1}{M_s^2} (\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{u}})^2 \tag{2.22}$$

donde cada término de energía ha sido analizado previamente. Los efectos de la competencia entre las diversas contribuciones de la energía micromagnética sobre la minimización determinan la distribución de equilibrio de la magnetización [44]. La minimización de la energía dipolar favorece la creación de dominios magnéticos dentro del material. La minimización de la energía de intercambio alinea los momentos magnéticos de forma paralela entre ellos. La minimización de la energía Zeeman favorece la rotación del vector de magnetización en dirección paralela al campo magnético externo aplicado. La minimización de la energía de anisotropía magnetocristalina uniaxial favorece la orientación del vector de magnetización con la red cristalina del material. Para encontrar la distribución de magnetización tenemos que minimizar la energía total del sistema. En cada punto del cuerpo magnético se define un campo efectivo \mathbf{H}_{eff} el cual corresponde a una derivada funcional de la densidad de energía volumétrica [45]:

$$\begin{aligned}
\mathbf{H}_{\text{eff}} &= -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_{\text{Total}}}{\partial \mathbf{M}} \\
&= \mathbf{H}_d - \frac{2A}{\mu_0 M_s} \left(\nabla^2 M_x + \nabla^2 M_y + \nabla^2 M_z \right) + \mathbf{H} - \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} (\mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{u}}) \hat{\mathbf{u}}
\end{aligned} \tag{2.23}$$

Una de las suposiciones del micromagnetismo clásico a bajas temperaturas, es que el vector de magnetización \mathbf{M} solo puede rotar y su magnitud permanece siempre constante con valor M_s . El momento de torsión $\boldsymbol{\tau}$ sobre el momento magnético $\mathbf{M}dV$ causado por el campo efectivo \mathbf{H}_{eff}

$$\boldsymbol{\tau} = \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \tag{2.24}$$

El sistema magnético está en equilibrio cuando el momento de torsión sobre el momento magnético $\mathbf{M}dV$ en cualquier elemento de volumen dV es cero

$$0 = \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \tag{2.25}$$

Esta ecuación corresponde a una condición de estabilidad para la magnetización \mathbf{M} sujeta a un campo efectivo \mathbf{H}_{eff} . Lo cual implica que en equilibrio la magnetización \mathbf{M} es paralela a \mathbf{H}_{eff} . Esta situación final implica un momento de torsión nulo ($\boldsymbol{\tau} = 0$) y se corresponde con la condición de mínima energía.

2.5. Tamaño de partículas y su comportamiento magnético

Los materiales ferromagnéticos en el estado de mínima energía interna tienden a dividirse espontáneamente en dominios magnéticos, los cuales son regiones que contiene momentos magnéticos orientados en la misma dirección. Cada dominio puede ser representado por un solo vector de magnetización que representa todo el conjunto de sus momentos magnéticos por unidad de volumen. Los dominios están separados entre sí por paredes de dominio, los cuales se originan por diversos factores cómo los energéticos, cristalográficos y defectos topológicos del material. El tamaño de la muestra magnética está relacionado con la formación de los dominios magnéticos, a mayor tamaño se puede tener una mayor aparición de los defectos topológicos lo cual aumenta la probabilidad de formación de dominios. Para el caso de muestras más pequeñas, como un sistema de nanopartículas pequeñas, existe una mayor estabilidad energética que disminuye considerablemente la formación de dominios. Una visión idealizada de los dominios magnéticos de una muestra magnética se muestra en la Figura 2.10, las flechas negras indican los momentos magnéticos, los cuales apuntan a una dirección del espacio.

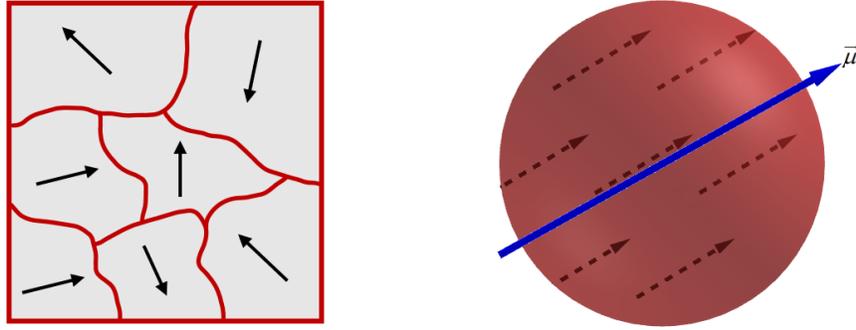


Figura 2.10: Representación gráfica de una muestra multidominio (izquierda) y dominio único (derecha) de magnetización.

El radio para el cual la configuración multidominio no es estable y por tanto el sistema muestra un comportamiento de dominio único de magnetización, se conoce cómo radio de dominio único (R_{SD}) [46]

$$R_{SD} = 36\kappa L_{ex} \quad (2.26)$$

donde L_{ex} es la longitud de intercambio definida en la ecuación (2.17), la cual mide la competencia entre las interacciones dipolares y de intercambio. κ es el parámetro de dureza adimensional

$$\kappa = \sqrt{\frac{2K_1}{\mu_0 M_s^2}} \quad (2.27)$$

donde K_1 es la constante de anisotropía magnetocristalina uniaxial. Este parámetro κ explica la importancia relativa de la anisotropía magnetocristalina y la interacción dipolar. Otro

parámetro de longitud importante es el parámetro de ancho de pared de dominio Δ [47]

$$\Delta = \sqrt{\frac{A}{K_1}} \quad (2.28)$$

la cual es una función que se expresa en términos de la constante de intercambio A y la constante de anisotropía magnetocristalina uniaxial K_1 . Por tanto, el ancho de la pared de dominio Δ crece con el aumento de la energía de intercambio y disminuye con el aumento de la energía de anisotropía magnetocristalina.

Otro comportamiento magnético derivado de la reducción de tamaño de una nanopartícula de un único dominio es el superparamagnetismo, caracterizado por el radio superparamagnético (R_{SPM}) a partir del cual una partícula de un solo dominio comenzará a sufrir fluctuaciones térmicas:

$$R_{SPM} = \sqrt[3]{\frac{6k_B T}{K_1}} \quad (2.29)$$

donde $k_B = 1,38 \times 10^{-23} JK^{-1}$ es la constante de Boltzmann y T la temperatura absoluta del sistema magnético. Cuando la partícula en ausencia de campo magnético se encuentra en el estado superparamagnético, la energía térmica superará la barrera de anisotropía generando fluctuaciones térmicas las cuales harán que, aunque la partícula está magnetizada ordenadamente, su momento magnético neto fluctúe entre las dos orientaciones posibles del eje fácil de magnetización.

Una de las propiedades magnéticas sensibles al tamaño del sistema de partículas es el campo coercitivo (H_c). Como se muestra en la Figura 2.11, el campo coercitivo de la partícula aumenta de manera gradual hasta un valor de radio R_{SD} en el cual la partícula en el estado multidominio magnético se convierte a un estado de dominio único.

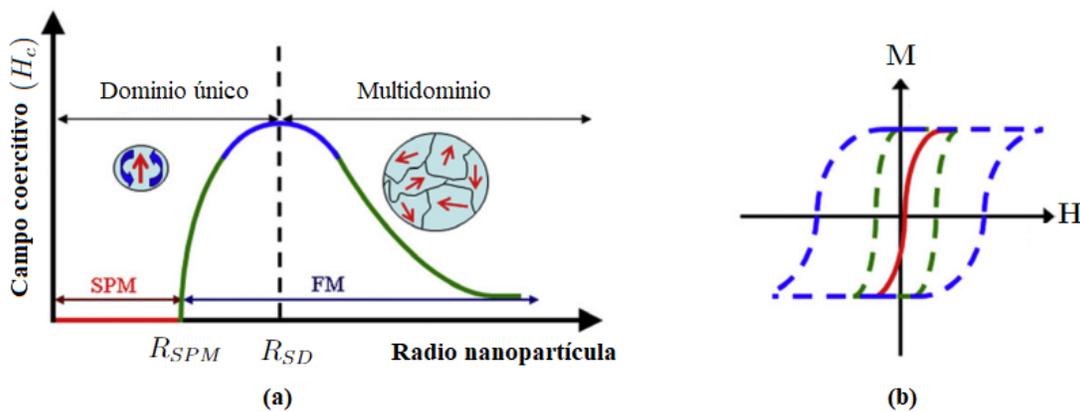


Figura 2.11: (a) Ilustración cualitativa del comportamiento del campo coercitivo (H_c) en función del radio de la partícula con fina simetría. (b) Curvas de magnetización de un sistema de partículas en la región superparamagnético (Superparamagnético) (línea continua) y en la región ferromagnética (Ferromagnético) (línea discontinua) [48].

Una partícula con dominio único de magnetización presenta un alto valor de H_c implicando una difícil reversión en su magnetización, por lo cual es necesario aplicar un campo magnético externo suficientemente grande. Para tamaños de partículas inferiores a R_{SD} se evidencia una disminución del H_c la cual se debe a la contribución de la energía térmica, ésta orienta la magnetización en una dirección del eje fácil de magnetización. Al disminuir aún más el tamaño de la partícula con valores inferiores a radio R_{SPM} , la energía térmica predomina el sistema haciendo que la magnetización neta fluctúe entre las dos orientaciones posibles del eje fácil de magnetización. En esta región superparamagnético el campo coercitivo se vuelve cero. Es importante recalcar que la transición de ferromagnético a superparamagnético en partículas finas se debe únicamente al efecto del tamaño.

En este trabajo se considerará una partícula con dominio único de magnetización, donde se desprecian los defectos de la partícula y el efecto de superficie. Esta partícula a muy bajas temperaturas se comporta como un pequeño imán con su polo sur, polo norte y sus líneas de campo.

2.6. Mecanismos de relajación

En la dinámica de magnetización los momentos magnéticos μ de la partícula tienden a orientarse de manera escalonada a una dirección donde alcancen la minimización de la energía. Este proceso en el cual la partícula vuelve al equilibrio termodinámico se denomina relajación magnética. Existen dos mecanismos de relajación magnética, los cuales se muestran en la Figura 2.12. El primer mecanismo es la relajación de Néel [49], asociado a una rotación interna del momento magnético y el segundo es la relajación de Brown [50] asociado a la rotación física de la partícula.

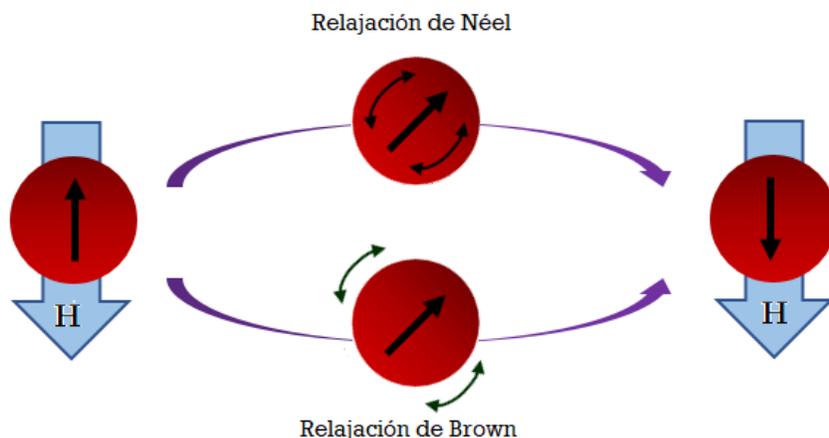


Figura 2.12: Ilustración de los dos mecanismos por los cuales las partículas se relajan al estar en presencia de un campo magnético alterno H .

2.6.1. Relajación de Néel

Al exponer una partícula a cantidades crecientes de campo magnético externos \mathbf{H} , los momentos magnéticos $\boldsymbol{\mu}$ tienden a alinearse en la dirección del campo magnético y así aumentar su magnetización \mathbf{M} . El incremento de la magnetización continúa hasta lograr su magnetización de saturación donde ya todos los momentos magnéticos se han alineado por completo al campo magnético. Una vez alcanzado la magnetización de saturación, la magnetización no seguirá aumentando con el aumento del campo magnético. En el mecanismo de relajación de Néel para invertir la dirección de magnetización, los momentos magnéticos rotan libremente dentro de la partícula entre las direcciones del eje fácil de magnetización.

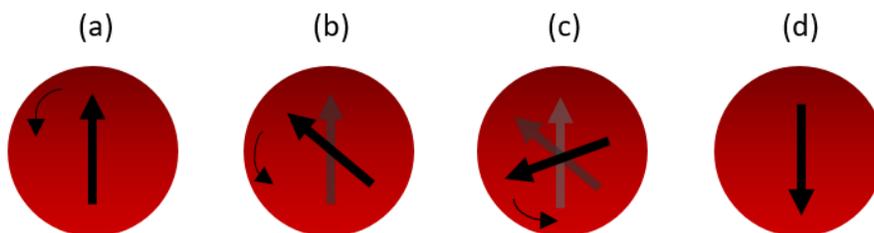


Figura 2.13: Esquema del mecanismo de relajación de Néel de una partícula magnética. Se muestra de (a) hasta (d) el cambio de orientación del momento magnético al exponer la partícula al incremento del campo magnético externo.

Se requieren dos condiciones para que en la partícula ocurra la relajación de Néel [1]:

- La energía térmica $k_B T$ ($k_B =$ Constante de Boltzmann y $T =$ Temperatura del sistema) debe ser mayor que la energía de anisotropía de una partícula con dominio único de magnetización con el fin de superar la barrera de energía dada por la energía de anisotropía magnetocristalina uniaxial $E = K_1 V$ donde K_1 es la constante de anisotropía magnetocristalina y V el volumen de la partícula. El campo magnético externo suministra al sistema energía y ayuda a los momentos magnéticos a superar la barrera de energía.
- La relajación de Néel es más favorable para partículas con diámetros pequeños [51].

La rotación del momento magnético dentro de la partícula genera calor, el cual puede ser implementado para uso clínico como agentes potenciadores de la hipertermia magnética.

2.6.2. Relajación de Brown

En el mecanismo de relajación de Brown el momento magnético está bloqueado a lo largo de una dirección de cristal dada, al someter al sistema a un campo magnético externo el torque en el momento magnético induce la rotación física de la partícula como un todo para orientarse en la dirección del campo. Esta rotación de la partícula crea y calienta por fricción el medio circundante, lo que provoca pérdidas de energía. Para un sistema de partículas magnéticas con alta anisotropía, la energía térmica $k_B T$ no es suficiente para

superar la barrera de energía anisotrópica $E = K_1V$ y, como consecuencia el sistema estará dominado por la relajación magnética de Brown.

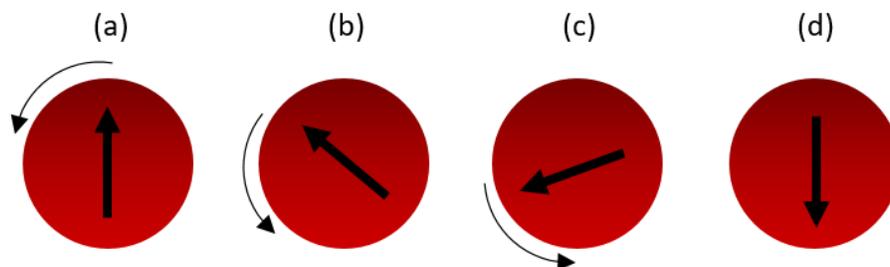


Figura 2.14: Esquema del mecanismo de relajación de Brown. Se muestra de (a) hasta (d) el cambio de orientación del momento magnético al exponer la partícula al incremento de un campo magnético externo considerando que la partícula realiza un movimiento de rotación.

2.7. Hipertermia magnética

El término hipertermia proviene de las palabras griegas “hiper” que significa aumento y “terma” que significa calor, y hace referencia al aumento de la temperatura en una zona determinada. Para comprender a mayor profundidad el concepto de hipertermia, considere un sistema de nanopartículas magnéticas suspendidas en un fluido las cuales se encuentran expuestas a un campo magnético alterno. Debido a la primera ley de la termodinámica se conoce que en los procesos de transformaciones de energía se pierde cierta cantidad de esa energía, la cual se disipa como energía térmica. La partícula magnética es mantenida en un estado dinámico por el campo magnético alterno, motivo por el cual disipa energía constantemente. El calor inducido por la inversión de la magnetización se describe como interacciones con pérdidas por ciclo de histéresis (ver Figura 2.15) y los mecanismos de relajación de Néel y Brown, donde las pérdidas por histéresis solo pueden ocurrir en partículas magnéticas multidominio ferromagnéticas.

A partir de 1970 se empezaron a realizar ensayos clínicos controlados sobre tratamientos del cáncer por hipertérmica debido a que durante el siglo *XIX* se observó que la fiebre puede generar una regresión del tumor [52]. La Figura 2.16 muestra un ratón portador de tumores el cual es sometido a un tratamiento de hipertermia magnética, en este tratamiento se inyecta en un tumor un fluido que contiene nanopartículas magnéticas (MNP_s), posteriormente se expone el tejido tumoral a un campo magnético alterno, lo que lleva a que las nanopartículas generen calor a través de histéresis o pérdidas por relajación, que pueden destruir o dañar las células cancerosas. Las partículas de óxido de hierro como la maghemita ($\gamma - Fe_2O_3$) y la magnetita (Fe_3O_4) son consideradas una de las mejores candidatas para las aplicaciones biomédicas, ya que exhiben efectos tóxicos mínimos.

La cantidad de calor o de energía que se convierte en energía térmica en un sistema de nanopartículas magnéticas expuestas a un campo magnético alterno, se cuantifica en términos de la potencia de pérdida específica (SLP). Existen muchos parámetros que determinan el

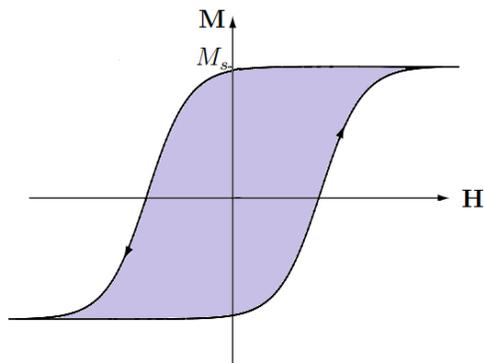


Figura 2.15: Energía asociada con la curva de magnetización. El área sombreada representa la pérdida de energía por histéresis por ciclo.

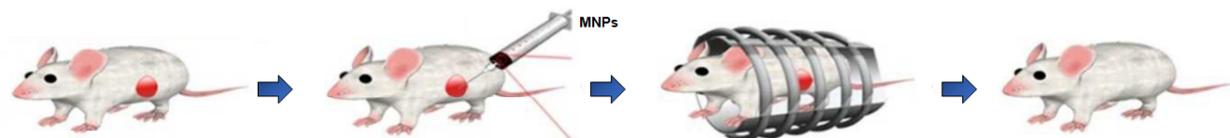


Figura 2.16: Idea general del tratamiento de un ratón portador de tumores con hipertermia magnética [53].

valor del SLP en un sistema magnético uno de ellos está asociado a aspectos propios de la partícula, como su tamaño, la forma, la naturaleza química, características de la superficie y la magnetización de saturación; otro parámetro está asociado a las características propias del campo magnético alterno, como su frecuencia y amplitud. Para encontrar el término de SLP considere un sistema de volumen de densidad constante, teniendo en cuenta la primera ley de la termodinámica se tiene que

$$dU = \delta Q + \delta W \quad (2.30)$$

donde U es la energía interna del sistema, Q es el calor agregado y W el trabajo magnético realizado sobre el sistema. Si el proceso es adiabático y no ocurren cambios físicos o químicos en las muestras, excepto el calentamiento, entonces $\delta Q = 0$; luego

$$dU = \delta W \quad (2.31)$$

El trabajo magnético diferencial por un campo magnético colineal es $\delta W = \mathbf{H} \cdot d\mathbf{H}$, siendo \mathbf{H} la intensidad del campo magnético en unidades de $A m^{-1}$, $\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M})$ la inducción magnética (T), \mathbf{M} el vector de magnetización ($A m^{-1}$) y μ_0 la permeabilidad del espacio libre ($J A^{-2} m^{-1}$). Por tanto,

$$\begin{aligned} dU &= \mathbf{H} \cdot d\mathbf{B} \\ &= \mathbf{H} \cdot \mu_0 d(\mathbf{H} + \mathbf{M}) \end{aligned} \quad (2.32)$$

Integrando la ecuación (2.32) se tiene

$$\Delta U = \mu_0 \left[\oint \mathbf{H} \cdot d\mathbf{H} + \oint \mathbf{H} \cdot d\mathbf{M} \right] \quad (2.33)$$

Considerando que los vectores \mathbf{H} y \mathbf{B} son colineales

$$\begin{aligned} \Delta U &= \mu_0 \left[\oint H dH + \oint H dM \right] \\ &= \mu_0 \oint H dM \end{aligned} \quad (2.34)$$

Empleando el método de integración por partes se obtiene el aumento cíclico de la energía interna

$$\begin{aligned} \Delta U &= \mu_0 \left[HM \Big|_o - \oint M dH \right] \\ &= -\mu_0 \oint M dH \end{aligned} \quad (2.35)$$

La disipación de potencia volumétrica está dada por [54]

$$P = f \Delta U \quad (2.36)$$

donde f es la frecuencia del campo magnético. La tasa de disipación de energía por unidad de masa de MNP, es decir, SLP se puede obtener en términos de P [55]

$$\begin{aligned} SLP &= \frac{1}{\rho} |P| \\ &= \frac{\mu_0 f}{\rho} \oint M dH \end{aligned} \quad (2.37)$$

De acuerdo con la ecuación (2.37), el SLP es proporcional al área bajo la curva de la magnetización en función del campo magnético aplicado, cómo se muestra en la Figura 2.15.

2.8. Dinámica de magnetización

2.8.1. Ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert

Los físicos Lev Davidovich Landáu y Evgeny Mikhailovich Lifshitz formularon por primera vez la ecuación de movimiento que describe la precesión de la magnetización alrededor de un campo efectivo \mathbf{H}_{eff} [32],

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \quad (2.38)$$

donde $\gamma_0 = \mu_0 \gamma$ es el término de precesión de LLG, $\gamma = 2,2128 \times 10^5 m A^{-1} s^{-1}$ es la razón giromagnética del espín del electrón, $\mu_0 = 1,2566 \times 10^6 J A^{-2} m^{-1}$ la permeabilidad del espacio libre y el campo efectivo \mathbf{H}_{eff} está definido en la ecuación (2.23). En la ecuación 2.38 la precesión no cambia con el aumento del amortiguamiento. El físico Thomas L. Gilbert en su artículo [56] desarrolló una teoría fenomenológica del amortiguamiento donde consideró que

el movimiento de precesión se ralentiza con un aumento de la constante de amortiguamiento α

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M_s} \left(\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) \quad (2.39)$$

la cual recibe el nombre de ecuación de Landau Lifshitz-Gilbert (LLG) y puede ser reescrita cómo (ver Apéndice A.2)

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\frac{\gamma_0}{(1 + \alpha^2)} \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{\alpha\gamma_0}{(1 + \alpha^2)M_s} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) \quad (2.40)$$

La ecuación LLG es una ecuación diferencial no lineal que describe la evolución temporal del vector de magnetización $\mathbf{M} = M_s \mathbf{m}$, donde el primer término del lado derecho de la ecuación (2.40) está asociado a un torque giromagnético representado en la Figura 2.17(a), el cual promueve una precesión uniforme de la magnetización alrededor del campo efectivo. El segundo término en el mismo lado es un torque de amortiguamiento fenomenológico, Figura 2.17(b), que permite la pérdida de energía y alcanzar el estado de equilibrio al reducir el radio de precesión de la magnetización alrededor del campo efectivo. La Figura 2.17(c) ilustra el movimiento de precesión amortiguado de la magnetización en un campo efectivo como se describe en la ecuación LLG.

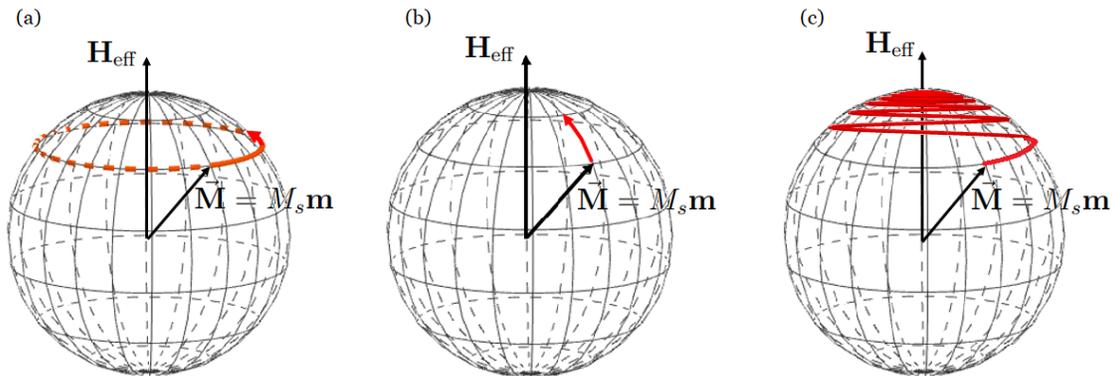


Figura 2.17: Visualización de las contribuciones a la dinámica de magnetización según lo descrito por la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG). (a) Movimiento de precesión alrededor del campo efectivo \mathbf{H}_{eff} . (b) Movimiento amortiguado de la magnetización hacia \mathbf{H}_{eff} . (c) Movimiento combinado de precesión y amortiguamiento como se describe en LLG.

El término de precesión es un término conservativo que describe el movimiento de precesión de la magnetización a lo largo de trayectorias de energía constante. El torque de amortiguamiento fenomenológico, introducido por Gilbert, es una descripción de los mecanismos disipativos que ralentizan la precesión y empujan a la magnetización hacia el campo magnético mientras se mantiene fija su magnitud M_s . La constante de amortiguamiento α tiene en cuenta varios mecanismos disipativos cómo el acoplamiento espín-órbita.

En el modelo micromagnético la dinámica de magnetización se describe a partir de la ecuación LLG, es por esta razón que se considera la ecuación central en este modelo. Se sabe

que uno de los supuestos del modelo micromagnético establece que la magnitud del vector magnetización \mathbf{M} es constante, para estar seguros que el sistema magnético cumple con esta condición se calcula el producto escalar (ver Apéndice A.2)

$$\mathbf{M} \cdot \frac{d\mathbf{M}}{dt} = 0 \quad (2.41)$$

Este resultado implica que el vector de magnetización \mathbf{M} es ortogonal a la variación temporal de \mathbf{M} descrito en el lado derecho de la ecuación (2.40), por lo tanto, la magnitud de \mathbf{M} no cambia pero si su orientación.

Finalmente, es importante resaltar en esta sección que la dinámica de magnetización no solamente es estudiada con el modelo de Landau-Lifshitz-Gilbert, existen otros métodos como el modelo de simulación numérico Monte-Carlo y la ecuación de Fokker-Planck (ver Apéndice A.2 y A.4). Una de las principales ventajas del modelo e Monte-Carlo es que en la transición de magnetización entre varios estados metaestables el tiempo de cálculo correspondiente no depende exponencialmente de la altura de la barrera de energía que separa estos estados; sin embargo, existe una dificultad para establecer una relación entre un paso de Monte-Carlo y un tiempo físico. La ecuación de Fokker-Planck es una ecuación diferencial para la evolución temporal de la distribución de probabilidad de magnetización en el espacio de fases.

2.8.2. Fase dinámica de magnetización y tiempo de vida metaestable

Considere un sistema de nanopartículas magnéticas (MNPs) expuestas a un campo magnético externo $\mathbf{H}(t)$ que oscila periódicamente, con una amplitud H_0 y período de oscilación P . La respuesta dinámica de magnetización del sistema puede mostrar dos posibles fases [57]: fase dinámicamente ordenada o fase dinámicamente desordenada, las cuales se muestran en la Figura 2.18 (a) y (b) respectivamente. Suponiendo que la magnetización está orientada en la dirección del campo externo, en la fase dinámicamente ordenada una inversión de la dirección del campo da como resultado un estado metaestable desde el cual el sistema trata de escapar teniendo los momentos magnéticos orientados en la misma dirección que el campo [11]. Como se observa en la 2.18(a), la magnetización del sistema oscila alrededor de un valor finito. Para el caso de la fase dinámicamente desordenada, el sistema magnético puede revertir su magnetización antes de que el campo cambie nuevamente. La magnetización en esta fase oscila alrededor de cero, como se muestra en la 2.18(b). En la fase dinámicamente ordenada, los momentos magnéticos no presentan grandes cambios en sus orientaciones debido a que la magnetización no puede seguir el campo magnético. La Figura 2.18(c) muestra las curvas de magnetización respecto al campo magnético oscilante, donde es evidente que el sistema magnético no logra invertir su magnetización. En régimen dinámicamente desordenado, los momentos magnéticos tienden a orientarse en la dirección de $\mathbf{H}(t)$ y la magnetización sigue al campo magnético aunque con un retardo dependiente de P . En la mayoría de veces en este régimen se produce un decaimiento completo de la fase metaestable en cada semiperíodo, lo que da como resultado una inversión de la magnetización y un ciclo de histéresis simétrico centrado en cero, como se muestra en la 2.18(d). Según los resultados obtenidos en [9-11, 57, 58] la transición de fase dinámica de magnetización depende de la frecuencia f del campo magnético oscilante y del tiempo de vida metaestable τ .

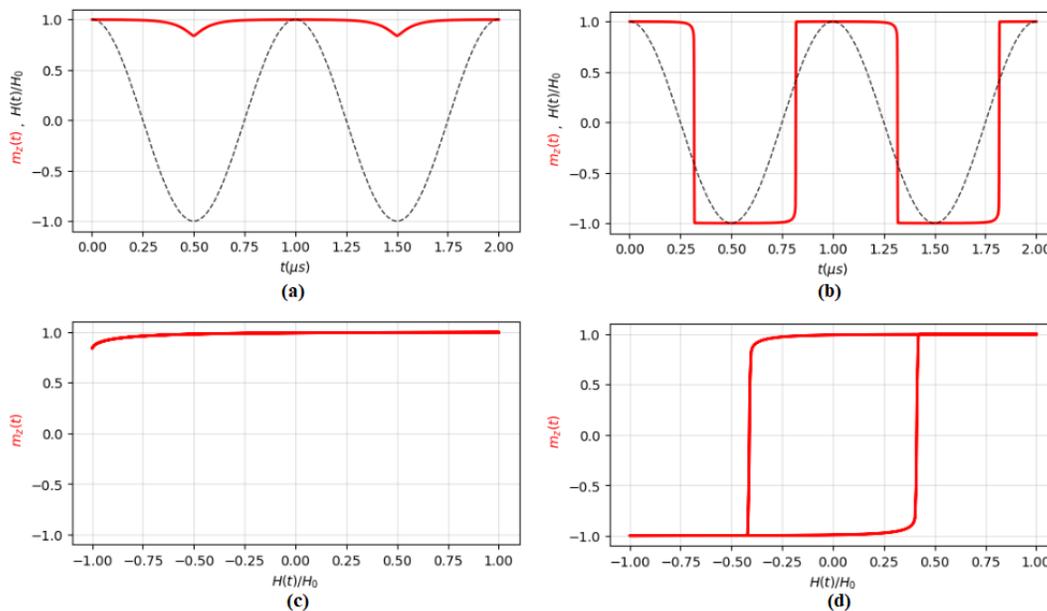


Figura 2.18: (a-b) Magnetización dependiente del tiempo $m(t)$ (línea continua) de una nanopartícula expuesta a un campo magnético oscilante (línea discontinua). La respuesta magnética puede encontrarse en una fase dinámicamente (a) ordenada o (b) desordenada. (c-d) Curvas de magnetización respecto en la fase dinámicamente (c) ordenada y (d) desordenada.

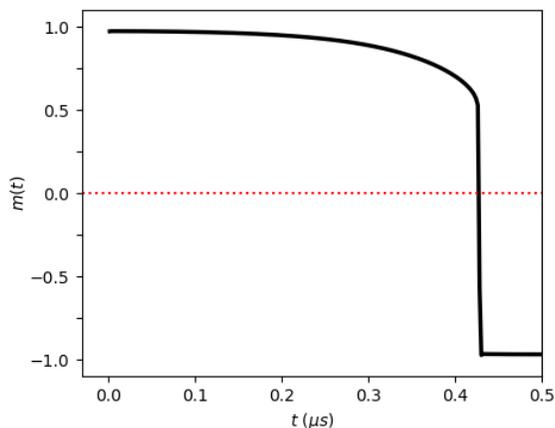


Figura 2.19: Determinación del tiempo de vida metaestable τ .

El tiempo de vida metaestable τ , es una medida del tiempo que tarda el sistema en escapar de la región metaestable del paisaje de energía libre. Para calcular su valor se debe preparar el sistema en un estado completamente ordenado, y posteriormente aplicar un campo magnético que logre invertir la magnetización. τ se define como el tiempo del primer paso de la magnetización por un valor de cero, como se ilustra en la Figura 2.19. El tiempo de vida metaestable depende de la temperatura T del sistema y de la amplitud del campo

oscilante H_0 [9, 59].

Capítulo 3

Modelo Computacional (Ubermag)

Para el modelamiento de estructuras de dominios magnéticos y la respuesta dinámica de magnetización del sistema micromagnético es conveniente utilizar paquetes de software micromagnético. Ubermag [2] es un entorno de simulación micromagnética que implementa algoritmos basados en las ecuaciones de Landau-Lifschitz-Gilbert (LLG). Este simulador micromagnético funciona en una interfaz basada en Jupyter-Notebook y usa calculadoras externas como Object Oriented MicroMagnetic Framework (OOMMF, por sus siglas en inglés) [3]. `discretisedfield`, `micromagneticmodel` y `oommfc` son algunas de las librerías de Python más importantes que incorpora Ubermag para la descripción del problema micromagnético, la resolución numérica y el análisis de datos de manera coherente.

3.1. `discretisedfield`

En el tratamiento numérico del modelo micromagnético se requiere una representación discreta de la distribución de magnetización continua en una computadora. La técnica de discretización en la cual se basa Ubermag es el método de diferencias finitas, considerada una poderosa herramienta para la solución numérica de ecuaciones diferenciales. Para implementar la técnica de discretización en Ubermag crea a partir de la definición de una malla de diferencias finitas y su discretización, como se muestra en la Figura 3.1, con la clase `discretisedfield.Mesh`. La muestra magnética es un cuboide que se extiende entre los puntos de coordenadas p_1 y p_2 , el cual se divide en pequeños cuboides que corresponde a la celda de discretización con longitud `cell`.

```
1 import discretisedfield as df
2
3 #Geometry mesh and discretisation cell
4 p1 = (-18.0e-9, -18.0e-9, -18.0e-9)
5 p2 = (18.0e-9, 18.0e-9, 18.0e-9)
6 cell = 2.0e-9 #Discretization cell size(m)
7 mesh = df.Mesh(p1=p1, p2=p2, cell=cell)
```

La celda de discretización contiene una celda unitaria de celosía donde en cada vértice se encuentra un momento magnético μ_i , tal que el vector de magnetización \mathbf{M} de la celda de

discretización corresponde a

$$\mathbf{M} = \frac{1}{V} \sum_{i \in V} \boldsymbol{\mu}_i \quad (3.1)$$

donde V es el volumen de la celda de discretización.

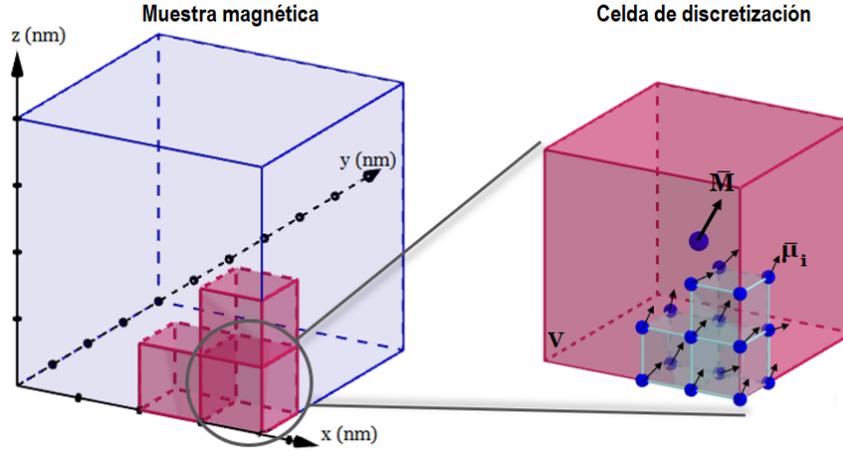


Figura 3.1: Representación gráfica de la muestra magnética y la celda de discretización de volumen V .

En las simulaciones micromagnéticas para describir el problema micromagnético se requiere conocer parámetros propios del material como la constante de anisotropía K_1 , constante de intercambio A , magnetización de saturación M_s y densidad ρ . Otro parámetro a tener en cuenta es el tipo de geometría, en nuestro caso la muestra magnética a considerar corresponde a una nanopartícula magnética de magnetita con geometría esférica con radio $R = 16\text{nm}$, cuyos parámetros se muestran en la siguiente tabla

| Formula química | M_s (Am^{-1}) | K_1 (Jm^{-3}) | A (Jm^{-1}) | ρ (kgm^{-3}) |
|-------------------------|----------------------------|----------------------------|--------------------------|------------------------------|
| Fe_3O_4 | $4,46 \times 10^5$ | $2,5 \times 10^4$ | $7,0 \times 10^{-12}$ | 5240 |

Tabla 3.1: Propiedades físicas de la magnetita. [25, 60]

Con la clase `discretisedfield.Field` se asigna un valor a cada celda de discretización de la malla, este corresponde a un campo con dimensión `dim`, valor `value` con valor de la magnetización de saturación y magnitud `norm`. En este caso el campo es un vector tridimensional `dim= 3`, y la muestra inicialmente se encuentra con todos sus momentos magnéticos orientados en la dirección \hat{z} `value= (0, 0, 1)`. Como la muestra magnética considerada es una nanopartícula con geometría esférica a cada celda de discretización se asigna una magnitud de campo `norm= M_s` para las celdas que se encuentran dentro de la partícula y `norm= 0` para celdas que se encuentran fuera de ella, como se muestra en Figura 3.2(a-b). La Figura 3.2(c) muestra las componentes del valor de campo de magnetización inicial a lo largo de la longitud en el eje \hat{x} .

```

8 #Geometry and sample definition
9 R = 16.0e-9 # Magnetite nanoparticle radius (m)
10 Ms_core = 4.46e5 # Magnetite saturation magnetization (A/m).
11 A_ex = 7e-12 # Magnetite exchange energy constant (J/m).
12 K_an = 2.5e4 # Magnetite uniaxial anisotropy constant (J/m3).
13
14 #Initial magnetisation field state
15 def Ms_norm(pos):
16     x, y, z = pos
17     if ((x**2 + y**2 + z**2) <= R**2):
18         return Ms_core
19     else:
20         return 0
21 Field = = df.Field(mesh, dim=3, value=(0,0,1), norm=Ms_norm)

```

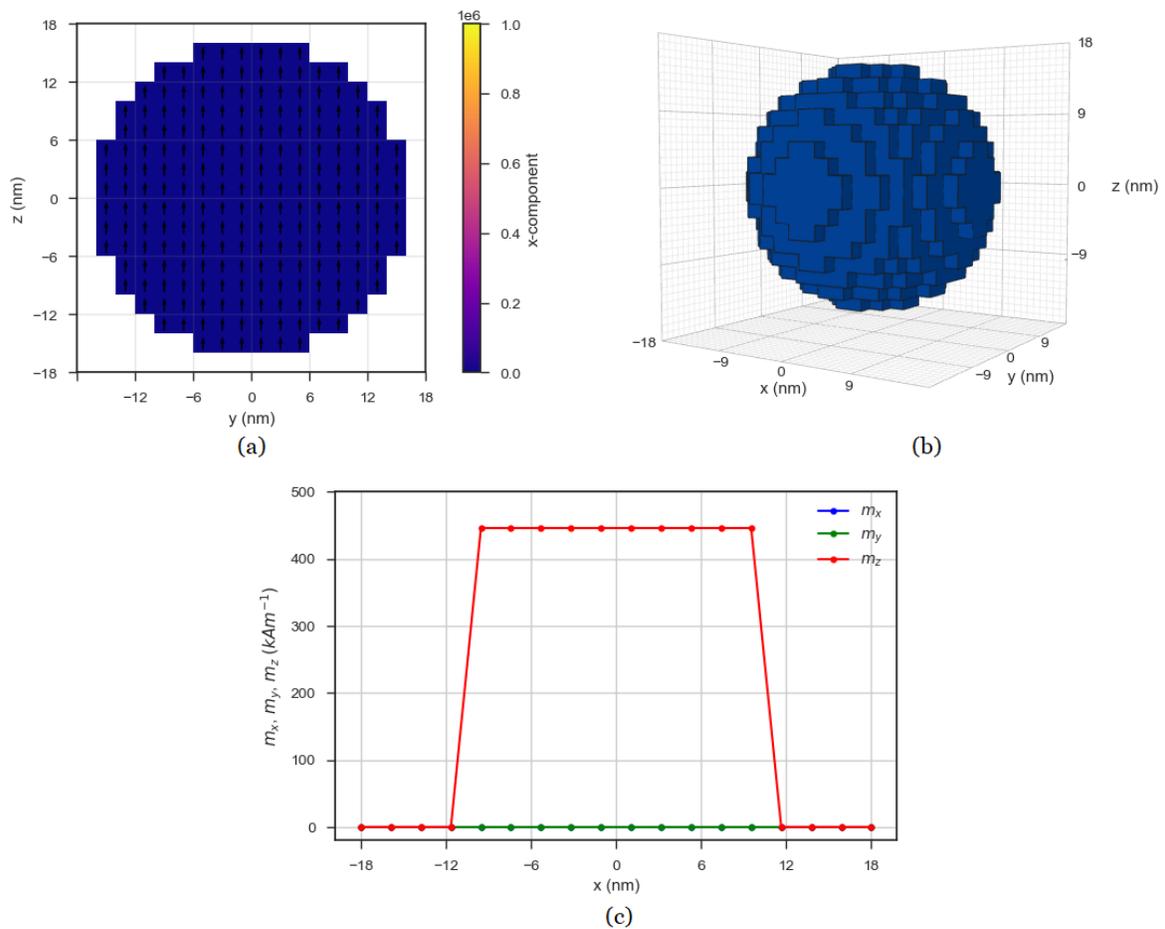


Figura 3.2: (a) Campo de magnetización inicial en la intersección del plano \hat{x} observando las dimensiones \hat{z} y \hat{y} en los ejes horizontal y vertical, respectivamente. La barra de color representa la componente \hat{x} del campo. (b) Gráfico tridimensional del campo de magnetización inicial. (c) Valores de campo de magnetización inicial a lo largo de la longitud en el eje \hat{x} de la muestra.

3.2. micromagneticmodel

Para complementar la descripción del problema micromagnético considere las circunstancias particulares en la cual se encuentra el sistema, por ejemplo, interacciones del sistema, tipo de campo magnético externo, entre otras. Con la librería `micromagneticmodel` de Python se describe la física del problema micromagnético, inicialmente se describe los términos de la densidad de energía a considerar: dipolar `mm.Demag()`, intercambio `mm.Exchange(A)`, Zeeman `mm.Zeeman(H)` y anisotropía uniaxial `mm.UniaxialAnisotropy(K, u)`. El campo magnético externo $H(t)$ corresponde a una onda sinusoidal con amplitud H_0 , frecuencia f , periodo P y un desplazamiento inicial t_0 , tal que $H(t) = H_0 \sin[2\pi f(t - t_0)]$.

```

22 import micromagneticmodel as mm
23
24 # External magnetic field
25 f = 1.0e6 # frequency (1/s)
26 P= 1/(f) # Period (s)
27 H0 = (1.0)/mm.consts.mu0 # amplitude (A/m)
28
29 u = (1/2, 1/2 , (1/2)*np.sqrt(2)) # uniaxial anisotropy axis |u|=1
30 # Energy equation
31 Energy = (mm.Demag() + mm.Exchange(A=A_ex) +
32           mm.Zeeman(H=(0, 0, H0), wave='sin', f=f, t0=-0.25/f) +
33           mm.UniaxialAnisotropy(K=K_an, u=u))

```

En el modelo micromagnético la dinámica de magnetización se describe con la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG), la cual corresponde a la suma del término de precesión `mm.Precession(gamma0)` y el de amortiguación `mm.Damping(alpha)`, donde el término de precesión LLG es $\gamma_0 = \text{gamma0}$ y la constante de amortiguamiento $\alpha = \text{alpha}$. La librería `micromagneticmodel` cuenta con el paquete `consts` el cual contiene algunas constantes fundamentales como el término de precesión LLG γ_0 y la permeabilidad magnética μ_0 .

```

34 # Dynamics equation
35 Dynamics = mm.Precession(gamma0=mm.consts.gamma0) + mm.Damping(alpha=0.07)

```

Usando los anteriores parámetros se puede ensamblar el objeto del sistema `system`.

```

36 #micromagnetic system object
37 System = mm.System(energy=Energy, dynamics=Dynamics, m=Field, name='
    Magnetite_ACfield')

```

3.3. oommfc

Se ha descrito en Ubermag el problema micromagnético, sin embargo, es necesario saber cómo funciona el simulador micromagnético. Para facilitar su comprensión observe el esquema de la Figura 3.3, inicialmente con la librería `discretisedfield` se discretiza el vector unitario de magnetización inicial \mathbf{m} , con este valor y con la librería `micromagneticmodel` se define la densidad de energía $w(\mathbf{m})$ con la cual es posible calcular la energía del sistema E y el campo efectivo \mathbf{H}_{eff} . Conociendo \mathbf{H}_{eff} y \mathbf{m} el simulador micromagnético procede a calcular la dinámica de magnetización $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ (ecuación LLG). Ahora, se requiere dejar evolucionar temporalmente el sistema y minimizar la energía; para lo cual Ubermag cuenta con la librería

`oommfc`. Como se mencionó anteriormente la librería `oommfc` emplea la calculadora externa de OOMMF.

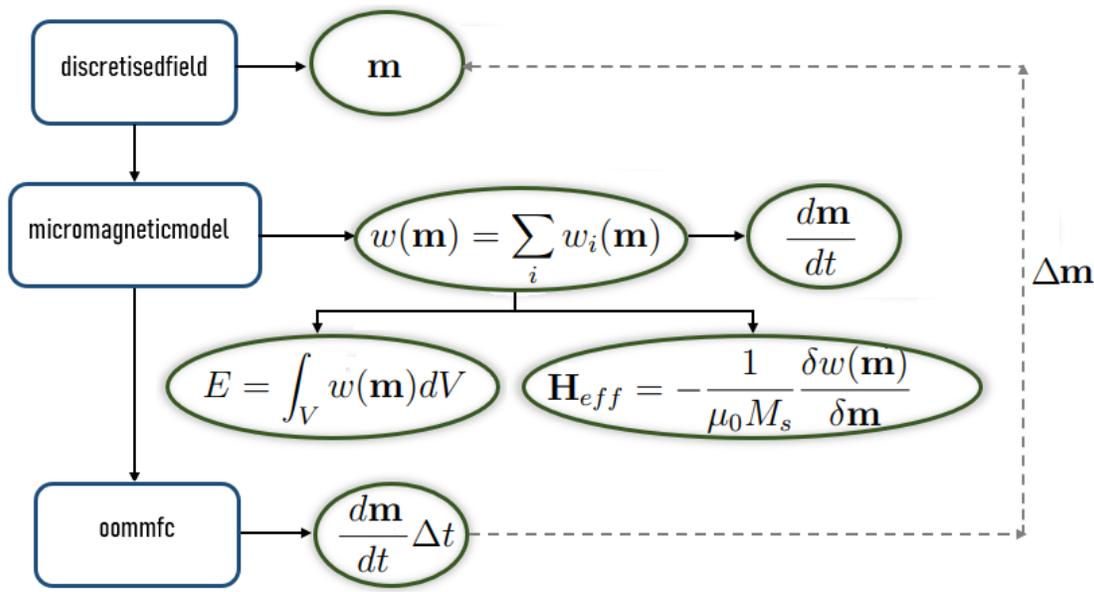


Figura 3.3: Esquema de la arquitectura del simulador micromagnético Ubermag.

`Evolvers` y `Drivers` [61] son dos categorías de OOMMF que se encuentran fuertemente relacionadas. `Evolvers` es el responsable de actualizar la configuración de magnetización de un paso al siguiente. Hay dos tipos de `Evolvers`, `time evolvers`, que siguen la dinámica de LLG, y `minimization evolvers`, que localizan mínimos locales en la superficie de energía a través de técnicas de minimización directa. `Drivers` coordina la acción del `Evolvers` en la simulación como un todo, agrupando los pasos en tareas, etapas y ejecuciones. Las tareas son pequeños grupos de pasos que se pueden completar sin afectar negativamente la capacidad de respuesta de la interfaz de usuario. Las etapas son unidades más grandes especificadas por la descripción del problema del formato de entrada micromagnético. La ejecución es la secuencia completa de etapas, desde el principio hasta el final del problema. `TimeDriver` es un `Driver` evolutivo de tiempo.

Así, el problema micromagnético evolucionará temporalmente con `TimeDriver` para un tiempo t y la configuración de magnetización se guardará en n pasos. Para cada paso de tiempo el simulador micromagnético calculará \mathbf{m} y se detendrá cuando la magnetización se encuentre en un estado de relajación, es decir, $\frac{d\mathbf{m}}{dt} = 0$.

```

39 import oommfc as mc # micromagnetic calculator
40
41 td = mc.TimeDriver()
42 td.drive(system, t=2.0*P, n=2000)

```

Capítulo 4

Resultados y discusión

Considere una nanopartícula magnética (MNP) de magnetita con geometría esférica de radio $R = 16nm$ la cual presenta las siguientes interacciones: intercambio, Zeeman y anisotropía magnetocristalina uniaxial. Las propiedades físicas de la nanopartícula se muestran en la Tabla 3.1. Como se mencionó en el Capítulo 3, el simulador micromagnético empleado es Ubermag, la muestra micromagnética es un cuboide de longitud $36 nm$ y celda de discretización de longitud $cell = 2 nm$, como se muestra en la Figura 4.1. Este tamaño de celda se seleccionó teniendo en cuenta uno de los criterios del micromagnético el cual indica que $cell \ll L_{ex}$, del cálculo de L_{ex} definida en la ecuación (2.17) se encontró que para la magnetita $L_{ex} = 7,48nm$, en concordancia con lo encontrado por [60]. Es importante mencionar que las simulaciones micromagnéticas se realizaron en un computador portátil convencional.

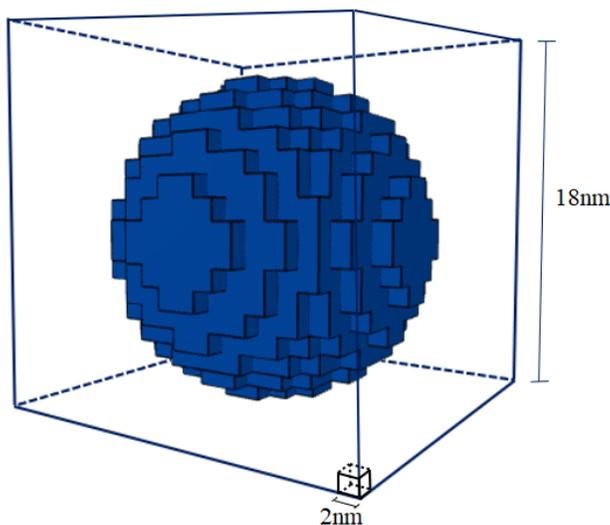


Figura 4.1: Malla de diferencias finitas para el cálculo de la magnetización en Ubermag.

La configuración inicial del sistema magnético se muestra en la Figura 3.2(a), donde la magnetización está orientada en la dirección \hat{z} . La MNP se expone a un campo magnético externo sinusoidal $H(t) = H_0 \sin[2\pi f(t-t_0)]$ aplicado en la dirección del eje \hat{z} , con frecuencia

$f = 1,0 \times 10^6 s^{-1}$ y desplazamiento inicial $t_0 = -\frac{1}{4f}$. En este trabajo se consideran diferentes orientaciones del eje de anisotropía $\hat{\mathbf{u}}$ con el fin de analizar el efecto de $\hat{\mathbf{u}}$ sobre las propiedades magnéticas. En coordenadas cartesianas el vector $\hat{\mathbf{u}}$ se define como

$$\hat{\mathbf{u}}(\theta, \varphi) = \sin(\theta)\cos(\varphi)\hat{x} + \sin(\theta)\sin(\varphi)\hat{y} + \cos(\theta)\hat{z} \quad (4.1)$$

donde $\|\hat{\mathbf{u}}(\theta, \varphi)\| = 1$. El ángulo φ se considera fijo con un valor de 90° y el ángulo θ se varía con valores entre 2.5° a 87.5° con un tamaño de paso de 2.5° . La Figura 4.2 muestra algunas de las orientaciones de \mathbf{u} consideradas en este trabajo.

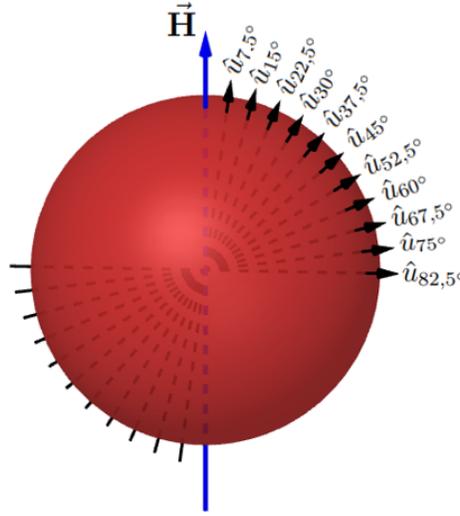


Figura 4.2: Ilustración esquemática de la NPM expuesta a un campo magnético externo $H(t)$ en la dirección \hat{z} , con eje de anisotropía uniaxial $\hat{\mathbf{u}}(\theta, 90^\circ) = \hat{\mathbf{u}}_\theta$.

En las siguientes secciones analizaremos el efecto de la orientación del eje fácil de magnetización sobre las transiciones de fase dinámicas, el tiempo de vida metaestable, los ciclos de histéresis y la potencia de pérdida específica (SLP).

4.1. Campo crítico para la transición de fase dinámica

De la Sección 2.8.2 se conoce que la respuesta dinámica de magnetización del sistema magnético puede mostrar dos posibles fases: dinámicamente ordenada y dinámicamente desordenada. Una representación gráfica de lo que sucede en las fases dinámicas a lo largo del tiempo ($t_0' > t_1' > t_2'$) respecto a las orientaciones de los momentos magnéticos de la nanopartícula se muestra en la Figura 4.3. En t_0' se muestra la configuración inicial de la nanopartícula, donde todos los momentos magnéticos están orientados de manera ordenada en la dirección \hat{z} ; debido a la presencia del campo magnético oscilante en t_1' y t_2' , los momentos magnéticos empiezan a rotar a través del mecanismo de rotación de Néel. En la fase dinámicamente ordenada, Figura 4.3(a), se observa en t_1' y t_2' que aunque los momentos magnéticos rotan no logran invertir su dirección, contrario a la fase dinámicamente

desordenada, Figura 4.3(b). Analicemos cómo influye este comportamiento de los momentos magnéticos en la dinámica de magnetización.

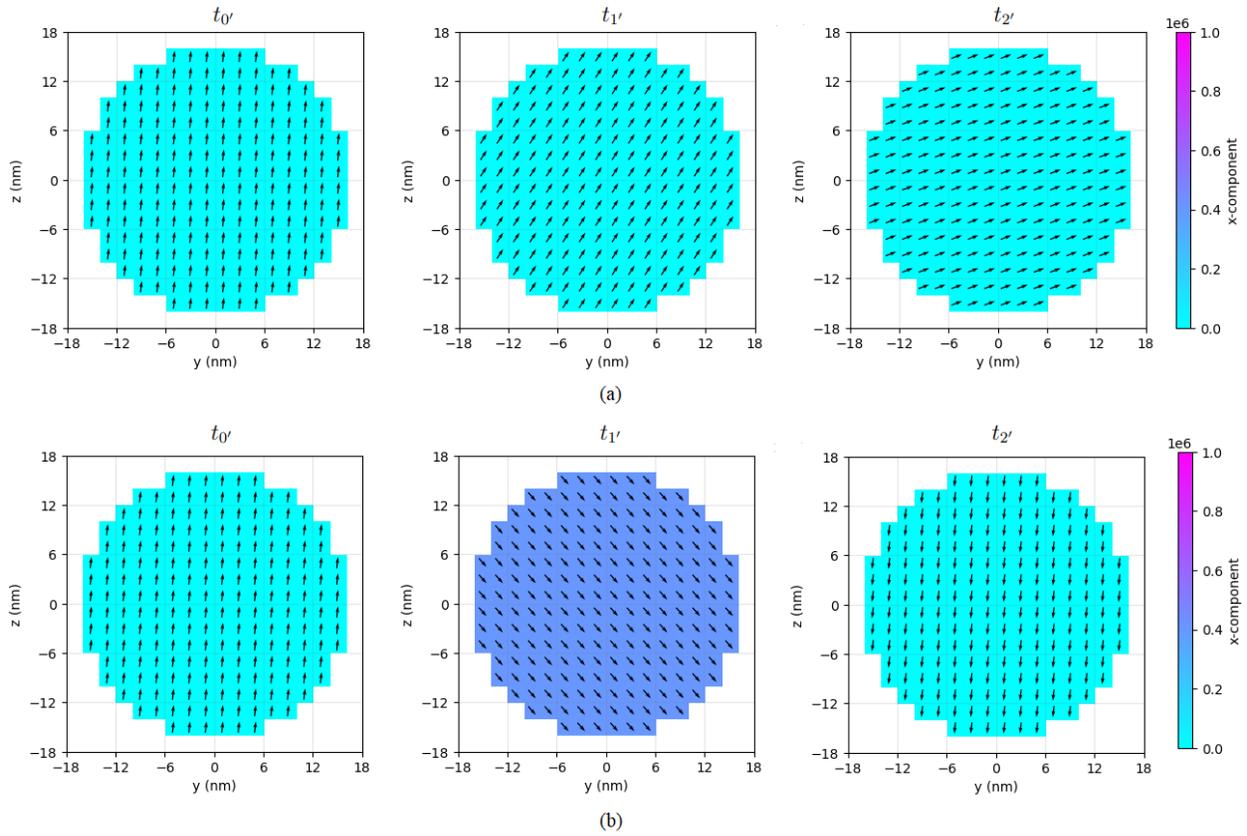


Figura 4.3: Representación gráfica de la evolución de la orientación de los momentos magnéticos en tres tiempos diferentes $t_0' > t_1' > t_2'$, cuando el sistema se encuentra en la fase dinámicamente (a) ordenada y (b) desordenada. La barra de color corresponde a la componente x de los momentos magnéticos.

En la Figura 4.4 se muestra la evolución temporal de la componente z de magnetización para diferentes orientaciones de $\hat{\mathbf{u}}$. La fila (a) representa la fase dinámicamente ordenada mientras que la fila (b) la fase dinámicamente desordenada. Se observa que para valores de θ grandes la magnetización trata de seguir al campo magnético, sin embargo, no logra invertir su magnetización. En las tres orientaciones consideradas $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$ la magnetización oscila alrededor de cero en la fase dinámicamente desordenada. Mientras que en la fase dinámicamente desordenada la magnetización oscila alrededor de un valor fijo de $m_z = 0.97$, $m_z = 0.64$ y $m_z = 0.13$ para $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$, respectivamente. Adicionalmente, la Figura 4.4 muestra que los mecanismos de la inversión de la magnetización son sensibles a la orientación espacial del eje fácil \mathbf{u} de la MNP respecto a la dirección principal del campo \mathbf{H} . Mientras que para $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$ la inversión ocurre de manera colectiva y abrupta, para $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$ la inversión tiene lugar de manera gradual, es decir, no todas las celdas de la muestra caracterizada por momentos magnéticos se invierten (ocurre por zonas).

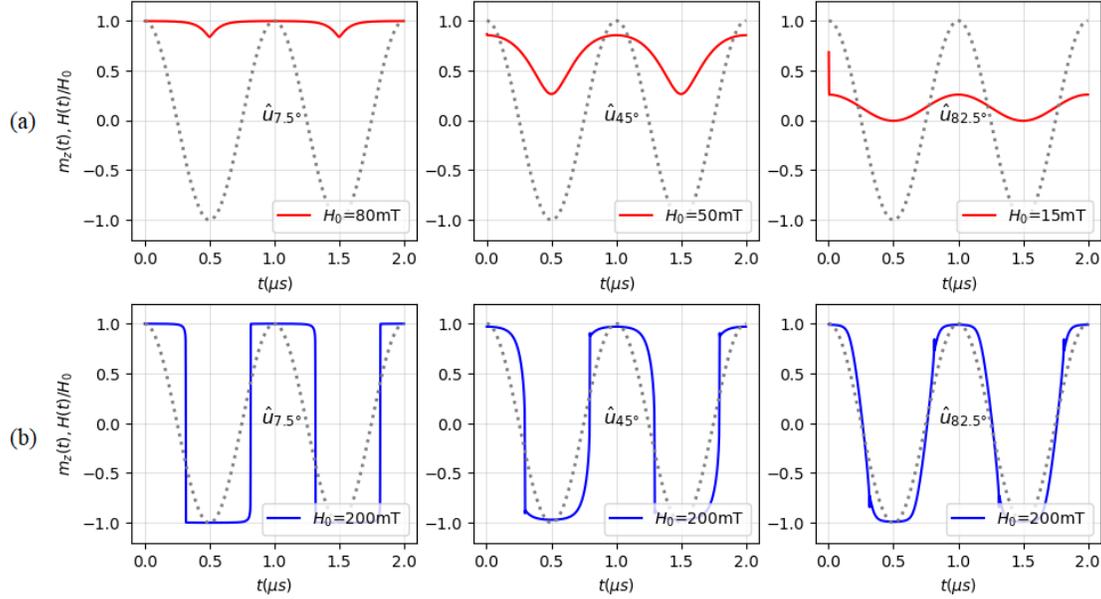


Figura 4.4: Evolución temporal de la componente \hat{z} de la magnetización en la fase dinámicamente (a) ordenada y (b) desordenada para tres orientaciones del eje fácil de magnetización $\hat{u}_{7.5^\circ}$, \hat{u}_{45° y $\hat{u}_{82.5^\circ}$.

Continuamente, se calcula la amplitud crítica del campo magnético oscilante, que llamaremos H_{crit} , para el cual se produce una transición de fase entre una fase dinámicamente ordenada a una fase dinámicamente desordenada. La Figura 4.5 muestra esta transición de fase, donde la región rosa representa la fase dinámicamente ordenada y la región azul indica la fase dinámicamente desordenada. Se observa que para cualquier amplitud de campo H_0 dentro del rango de valores considerados, es posible evidenciar una transición de fase dinámica dependiendo del valor del ángulo θ . En la figura inferior izquierda se observa que en la fase dinámicamente ordenada la magnetización no logra seguir al campo magnético oscilante, mientras que la fase dinámicamente desordenada, figura superior derecha, la magnetización si logra seguir al campo magnético oscilante aunque con un retraso en el tiempo.

En la Figura 4.5 también se observa que el valor de H_{crit} depende de la orientación del eje fácil de anisotropía magnetocristalina \hat{u}_θ , siendo θ el ángulo entre el vector \hat{u} y \mathbf{H} . Para valores pequeños θ , es decir cuando $\hat{u} \parallel \mathbf{H}$, el sistema magnético tiene un valor de H_{crit} mucho mayor comparado cuando θ es más grande, es decir cuando $\hat{u} \perp \mathbf{H}$. Lo cual implica que a medida en que \hat{u} se orienta en dirección paralela a \mathbf{H} el sistema se vuelve más rígido, y por tanto requiere un valor de H_0 más grande para que la magnetización logre seguir al campo. Este resultado es completamente novedoso debido a que en la literatura [9-11, 58] se ha mostrado únicamente que la fase dinámica de magnetización depende de la frecuencia f del campo magnético oscilante y del tiempo de vida metaestable τ . Por lo cual podemos aportar que no solamente la fase dinámica de magnetización depende de f y de τ , sino también de la orientación del eje fácil \hat{u} de la nanopartícula.

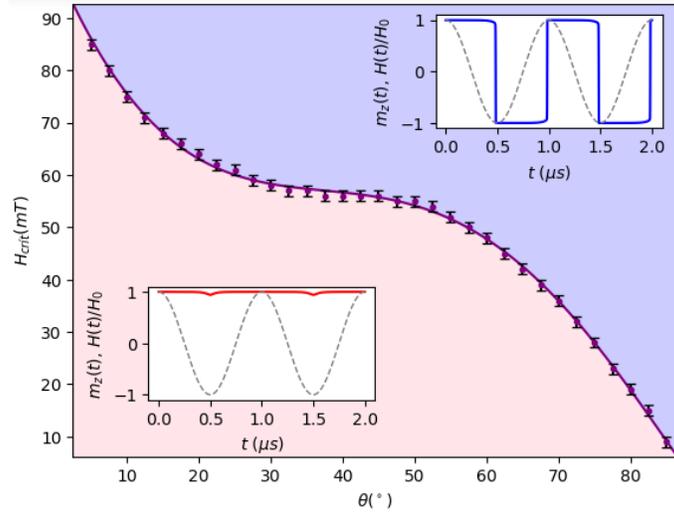


Figura 4.5: Diagrama de transición de fase dinámica de magnetización de una MNP de magnetita de radio $R = 16nm$ y cuyas propiedades físicas se establecen en la Tabla 3.1

4.2. Tiempo de vida metaestable

Conociendo la amplitud crítica H_{crit} del campo magnético oscilante para el cual el sistema magnético hace una transición de fase dinámica de magnetización, se procede a calcular el tiempo de vida metaestable τ . Se considera que el sistema magnético se encuentra en un estado completamente ordenado con un valor fijo en la orientación del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_\theta$, como se muestra en la Figura 4.3 para t_0 . El sistema se somete a amplitudes de campo H_0 mayores que H_{crit} , con la finalidad de garantizar que el sistema transite a la fase dinámicamente desordenada. Para calcular τ tenemos en cuenta su definición, la cual se estudió en la Sección 2.8.2. En la Figura 4.6 se determina el tiempo de vida metaestable τ considerando tres orientaciones del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$ y tres amplitudes de campo oscilante $H_0 = 200mT$, $H_0 = 400mT$ y $H_0 = 800mT$.

Se evidencia una clara dependencia de τ con H_0 del campo oscilante y la orientación de eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_\theta$. Con este resultado podemos aportar que el tiempo de vida metaestable depende de H_0 , como se muestra en [9, 59], pero también depende de la orientación del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}$ de la nanopartícula magnética. Teniendo en cuenta este resultado, primero se analiza la relación entre τ y H_0 del campo magnético oscilante, como puede verse en la Figura 4.7. Se consideró valores de $H_0 = (H_{crit}, 100] \cup [100, 800]mT$, con un tamaño de paso de $10mT$ y $100mT$ para el primer y segundo dominio, respectivamente. Se encuentra que en las tres orientaciones $\hat{\mathbf{u}}_\theta$ el tiempo τ decae exponencialmente a medida en que se aumenta H_0 , implicando que para valores de $H_0 \gg H_{crit}$ el sistema magnético logra invertir rápidamente su magnetización. Las curvas exponenciales de τ que se muestran en la parte superior derecha de la Figura 4.7, corresponde a un ajuste de mínimos cuadrados realizado con la función de Python `scipy.optimize.curve_fit`. Al calcular el $\log(\tau)$ se evidencia su comportamiento lineal respecto a H_0 , donde el valor de la pendiente está asociado a la rapidez con la que decae τ en función de H_0 , la cual al mismo tiempo depende de la

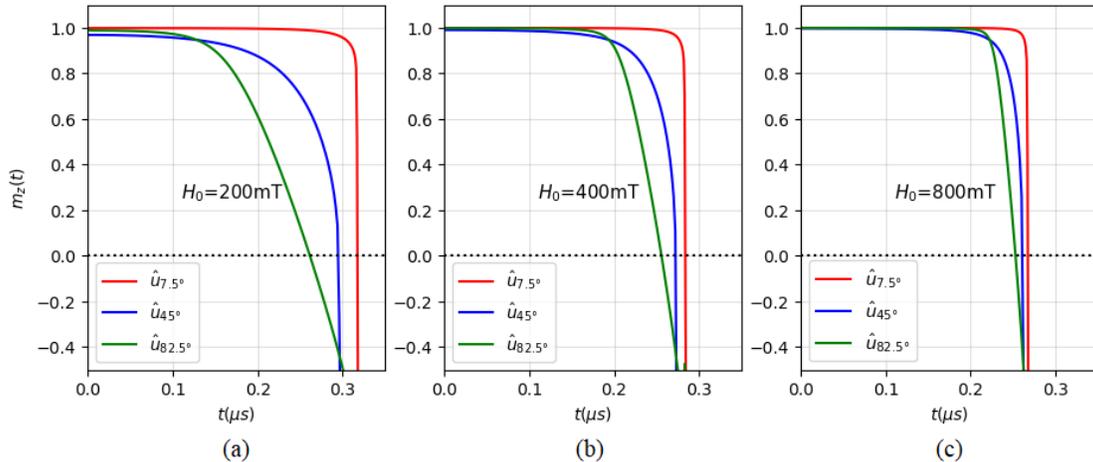


Figura 4.6: Tiempo de vida metaestable τ : tiempo del primer paso hasta la magnetización cero. Cálculo de τ para diferentes amplitudes de campo oscilante (a) $H_0 = 200mT$, (b) $H_0 = 400mT$ y (c) $H_0 = 800mT$ considerando tres orientaciones del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$.

orientación $\hat{\mathbf{u}}_\theta$.

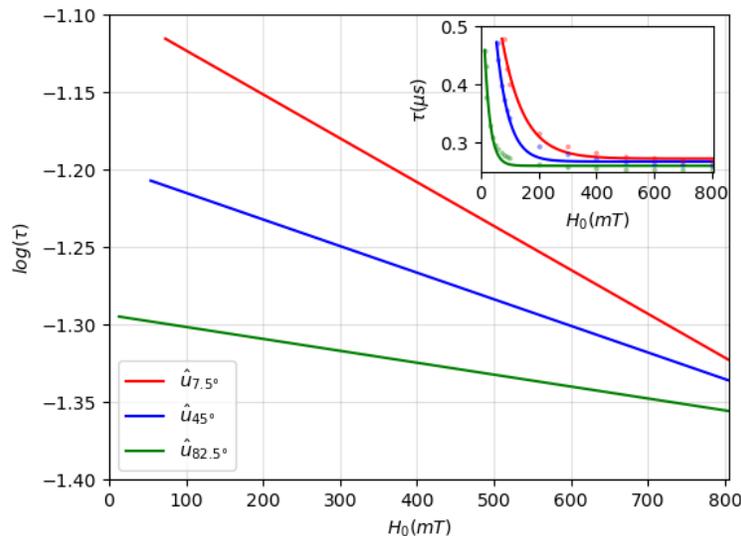


Figura 4.7: Logaritmo del tiempo de vida metaestable $\log(\tau)$ en función de la amplitud H_0 del campo magnético oscilante para $\hat{\mathbf{u}}_{7.5^\circ}$, $\hat{\mathbf{u}}_{45^\circ}$ y $\hat{\mathbf{u}}_{82.5^\circ}$.

Ahora, se analiza la dependencia del tiempo τ con la orientación del eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}_\theta$ de la nanopartícula magnética, dependencia que se evidenció en las Figuras 4.6 y 4.7. El comportamiento de τ en función de θ se puede ver en la Figura 4.8, donde las curvas corresponden a un ajuste de mínimos cuadrados de un polinomio de grado 5 el cual se realizó con la función de Python `scipy.optimize.curve_fit`. Nuevamente, las amplitudes

de campo oscilante de referencia son $H_0 = 200mT$, $H_0 = 400mT$ y $H_0 = 800mT$ y el dominio de ángulos considerados son $\theta=[2.5^\circ, 87.5^\circ]$ con un tamaño de paso de 2.5° . Se observa para

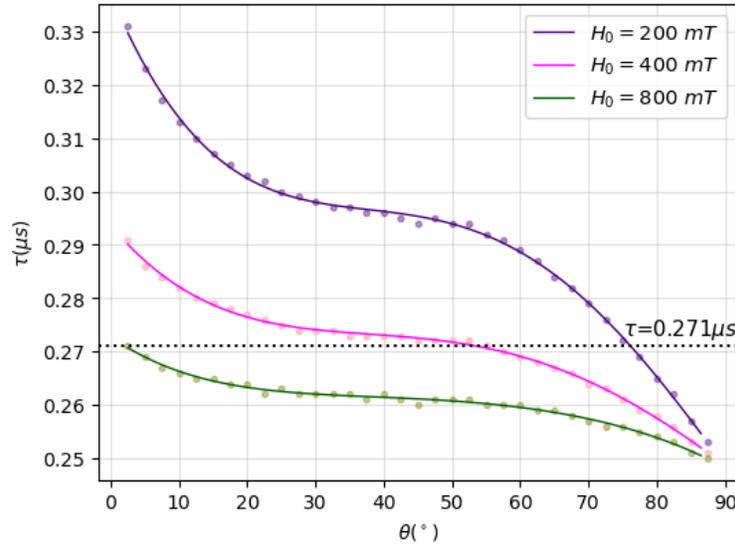


Figura 4.8: Curvas del tiempo de vida metaestable τ en función del ángulo θ para tres amplitudes de campo magnético oscilante $H_0 = 200mT$, $H_0 = 400mT$ y $H_0 = 800mT$.

los tres valores de H_0 considerados, que el sistema magnético gasta más tiempo en invertir su magnetización cuando el valor de θ es pequeño, es decir cuando $\hat{\mathbf{u}} \parallel \mathbf{H}$. En estos valores de θ pequeños se encuentra que $\tau_{H_0=800mT} < \tau_{H_0=400mT} < \tau_{H_0=200mT}$, sin embargo, a medida que en $\hat{\mathbf{u}}$ se orienta de manera perpendicular a \mathbf{H} el tiempo $\tau_{H_0=800mT} \approx \tau_{H_0=400mT} \approx \tau_{H_0=200mT}$. Lo cual permite evidenciar que cuando $\theta \approx 90^\circ$ el sistema magnético es menos rígido y responde rápidamente a la presencia del campo magnético oscilante. La Figura 4.8 muestra una línea punteada color negro sobre un valor de tiempo $\tau = 0,271\mu s$, observe que en tres configuraciones se obtiene este valor de tiempo de vida metaestable. La primera configuración corresponde a $\hat{\mathbf{u}}_{75^\circ}$ con $H_0 = 200mT$, la segunda $\hat{\mathbf{u}}_{55^\circ}$ con $H_0 = 400mT$ y la tercera $\hat{\mathbf{u}}_{2,5^\circ}$ con $H_0 = 800mT$, las cuales se pueden ver en la Figura 4.9

En esta figura se resalta que, aunque τ es el mismo para estas tres configuraciones, las curvas de evolución de magnetización como función del tiempo son diferentes. Desde el punto de vista del costo computacional es más eficiente realizar la simulación micromagnética para $\hat{\mathbf{u}}_{75}$ con $H_0 = 200mT$, debido a que cuando $\hat{\mathbf{u}}_\theta$ se orienta de manera perpendicular a \mathbf{H} el sistema magnético es menos rígido.

4.3. Curvas de histéresis

En la Sección 2.7 se estudió la potencia de pérdida específica (SLP) y se mostró que esta cantidad es proporcional al área bajo la curva de la magnetización en función del campo magnético aplicado. Por tanto, en esta sección se analiza las curvas de histéresis teniendo en cuenta nuevamente el eje fácil de magnetización $\hat{\mathbf{u}}$ de la nanopartícula magnética y la

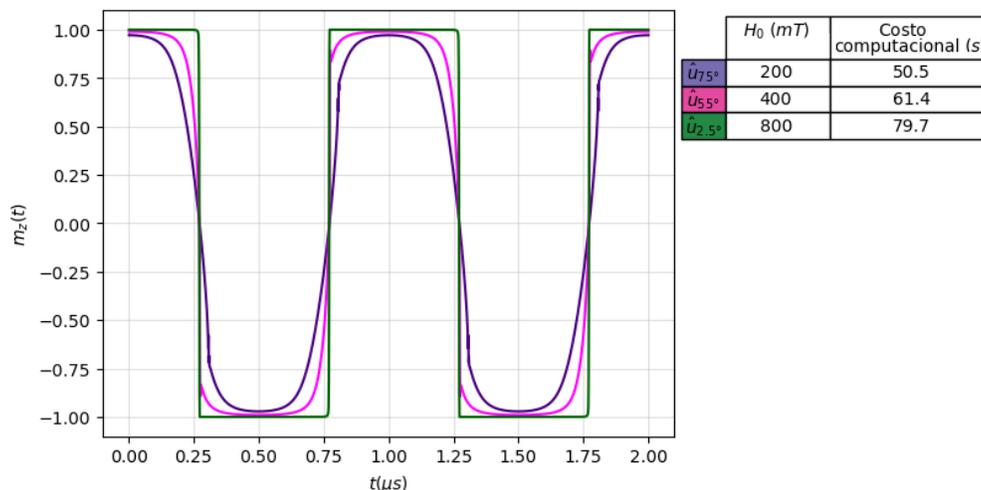


Figura 4.9: Evoluación temporal de la componente \hat{z} de la magnetización normalizada.

amplitud H_0 del campo magnético oscilante. La Figura 4.10 corresponde un ejemplo de una curva de histéresis, donde se muestra la proyección de la componente \hat{z} de la magnetización en función de la intensidad normalizada del campo magnético aplicado.

En la curva de histéresis se han seleccionado 9 puntos con el objetivo de conocer la rotación de los momentos magnéticos de la nanopartícula debido al cambio del campo magnético. Inicialmente, en el punto 1 se aplica un campo magnético positivo en la dirección \hat{z} suficientemente fuerte, tal que, los momentos magnéticos se alinean con el campo magnético y la normalización de la magnetización exhibe así su estado de saturación con valor $M_s = 1$. Posteriormente, se disminuye el campo magnético (punto 1-2) hasta cero donde la magnetización aún muestra un valor positivo en el campo aplicado cero. Al disminuir el campo magnético se disminuye la energía Zeeman provocando que los momentos magnéticos dejen de preferir la orientación en la dirección del campo y por tanto empiezan a rotar con una rotación de Néel. En los puntos 2-6 se invierte la dirección del campo, la magnetización mantiene un valor positivo en 3 y 4, se observa que se necesita un campo negativo para llevar a un valor de cero la magnetización. En los puntos 5-6 la magnetización tiene un valor negativo, en 6 los momentos magnéticos se orientan en dirección opuesta al campo magnético haciendo que la nanopartícula queda nuevamente saturada, pero en dirección opuesta. Del punto 6 al 9, se aumenta el valor del campo magnético hasta que en el punto 1 la nanopartícula queda en estado de saturación. Adicionalmente, con la representación gráfica de la rotación de los momentos magnéticos a lo largo de la curva de histéresis se evidencia que la nanopartícula magnética no presenta formación de multidominios magnéticos.

Ahora que se conoce la rotación de los momentos magnéticos cuando se disminuye e incrementa el campo magnético oscilante, se analiza el efecto del eje fácil de magnetización y la amplitud del campo magnético oscilante en las curvas de histéresis magnéticas. La Figura 4.11 muestra la variación de la dinámica de magnetización cuando el eje fácil de magnetización cambia de dirección. Se demuestra cómo el aumento del ángulo θ afecta fuertemente la inversión de la magnetización. La coercitividad se reduce significativamente cuando el eje fácil de magnetización tiende a orientarse perpendicularmente al campo magnético aplicado.

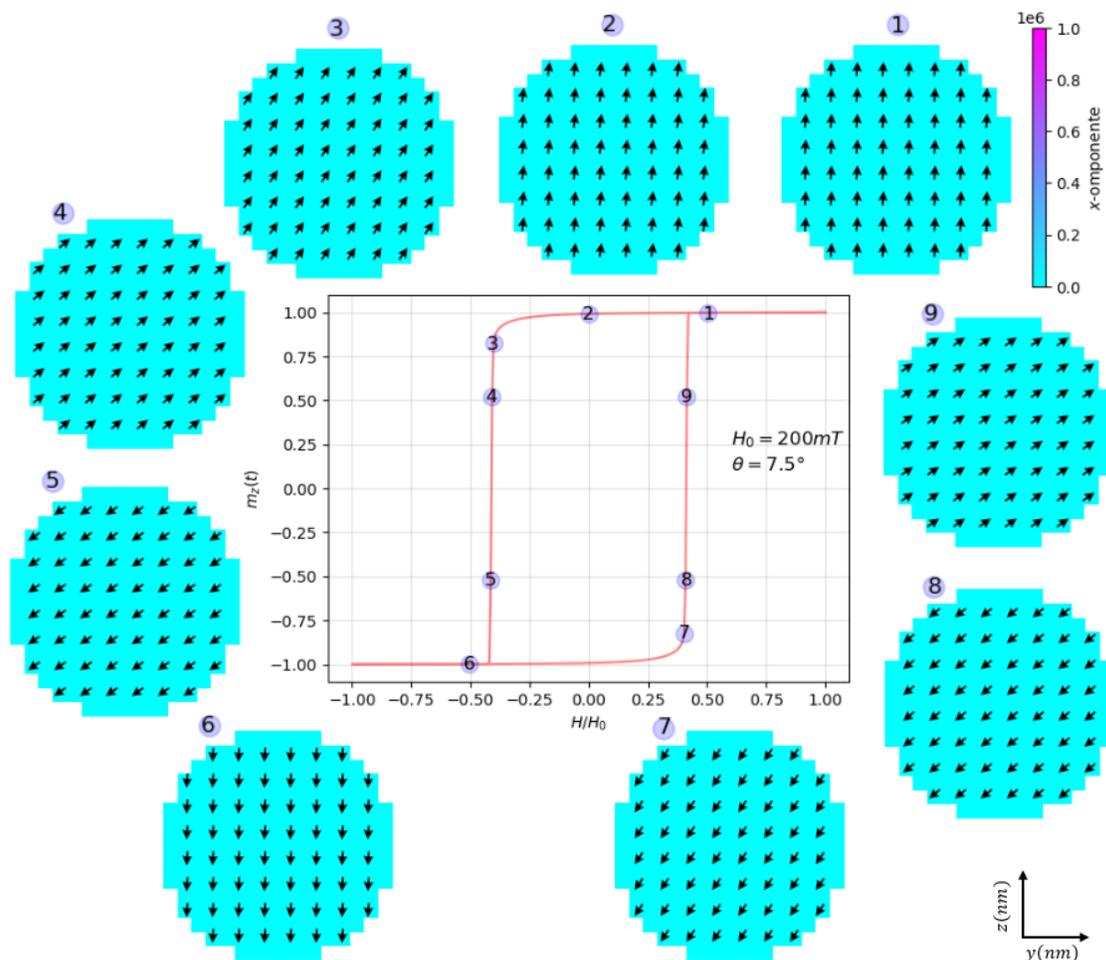


Figura 4.10: Representación gráfica de la orientación de los momentos magnéticos a lo largo de diferentes puntos sobre la curva de histéresis magnética.

Esto se explica por el hecho de que aplicar el campo externo de esa manera hace que sea más fácil "sacar" la magnetización fuera de la dirección fácil de anisotropía, ya que existe una fuerte interacción que surge de todos los momentos magnéticos con el eje. Sobre las curvas azul y verde de la Figura 4.11, se indican unos círculos negros que resalta un cruce de rama de histéresis cuando el campo aplicado está lejos del eje fácil de magnetización. El fenómeno de cruce de rama de histéresis es estudiado en [62], donde encuentran que en las curvas de histéresis se hace más visible el cruce de rama cuando la temperatura del sistema es lo suficientemente baja. Nuestro sistema micromagnético al encontrarse expuesto a una temperatura cero exhibe este fenómeno de cruce de rama de histéresis.

Adicionalmente, teniendo en cuenta que a medida en que se aumenta el ángulo θ el sistema magnético requiere un campo magnético más alto para saturar la muestra, se plantea que a un valor de $\theta \approx 90^\circ$ la nanopartícula presenta un eje duro de magnetización. Esta hipótesis se verificó realizando simulaciones micromagnéticas con valores de amplitudes de campo oscilante $H_0 > 800\text{mT}$, donde no se logró saturar la muestra y el tiempo de simulación

aumentó ostensiblemente.

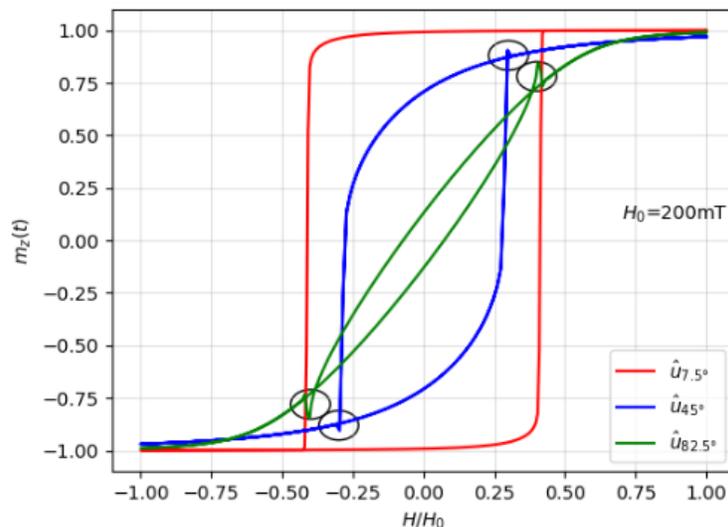


Figura 4.11: Componente \hat{z} reducida de la magnetización en función del campo aplicado reducido, tomando como referencia un valor de amplitud del campo magnético oscilante $H_0 = 200 \text{ mT}$. Los círculos negros resaltan el cruce de ramas de histéresis.

Nuestros resultados acerca del efecto de la orientación del eje fácil de la nanopartícula sobre las curvas de histéresis, concuerdan con los resultados experimentales reportado por M. Quintana et. al. [63]. En ambos trabajos de investigación se observa para valores de ángulo θ pequeños el ciclo de histéresis muestra solo un cambio brusco de magnetización, lo que lleva a una apariencia de ciclo de histéresis en forma de cuadrado. Para otros valores de θ más grandes, se puede observar una flexión débil de los ciclos antes de que ocurra un cambio brusco de magnetización. Esta característica específica en los ciclos de histéresis proviene del hecho de que cuando el eje fácil de la nanopartícula no está alineado con la dirección del campo, la dirección de magnetización resultante se define por una interacción entre la energía de anisotropía y la energía de Zeeman, lo que conduce a una alineación de la magnetización a lo largo del eje fácil de la nanopartícula para intensidades de campo suficientemente bajas. Es importante resaltar que el sistema magnético tratado en [63] corresponde a películas delgadas de epitaxiales de Co y $CoRu$, a diferencia de este trabajo de investigación que corresponde a una nanopartícula esférica de Fe_3O_4 .

4.4. Variación del SLP con la orientación del eje fácil

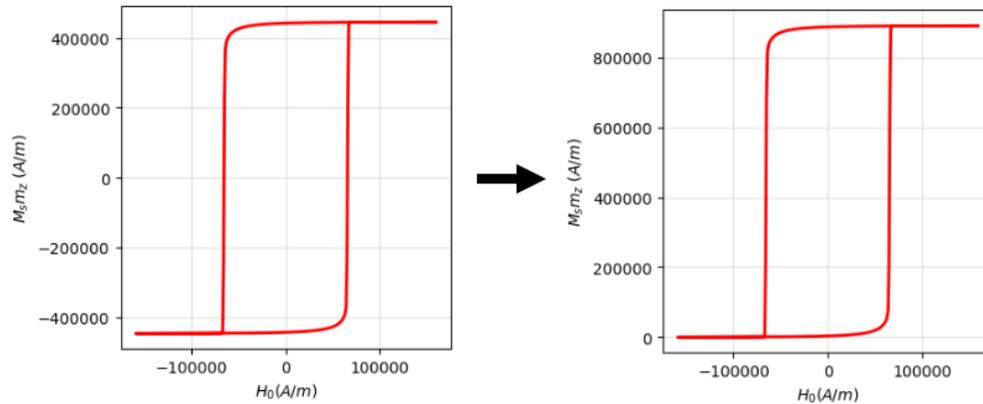
Generadas las curvas de histéresis se procede a calcular el SLP, quien es proporcional al área encerrada de la curva de magnetización en función del campo magnético durante un periodo de tiempo. Para calcular el área de la curva de histéresis se debe:

- Realizar conversión de unidades

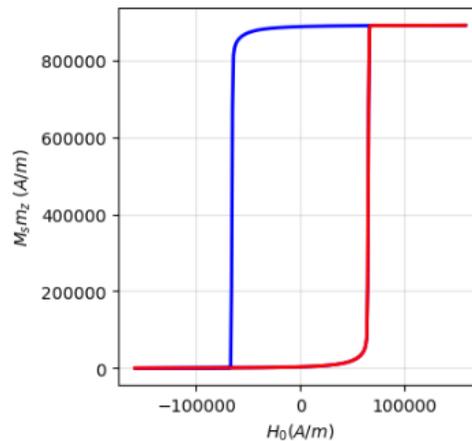
$$m_z \text{ (adimensional)} \rightarrow M_s m_z \text{ (A/m)}$$

$$H_0 \text{ (mT)} \rightarrow 1 \times 10^{-3} \mu_0^{-1} H_0 \text{ (A/m)}$$

- Cambiar el ciclo solo a valores positivos

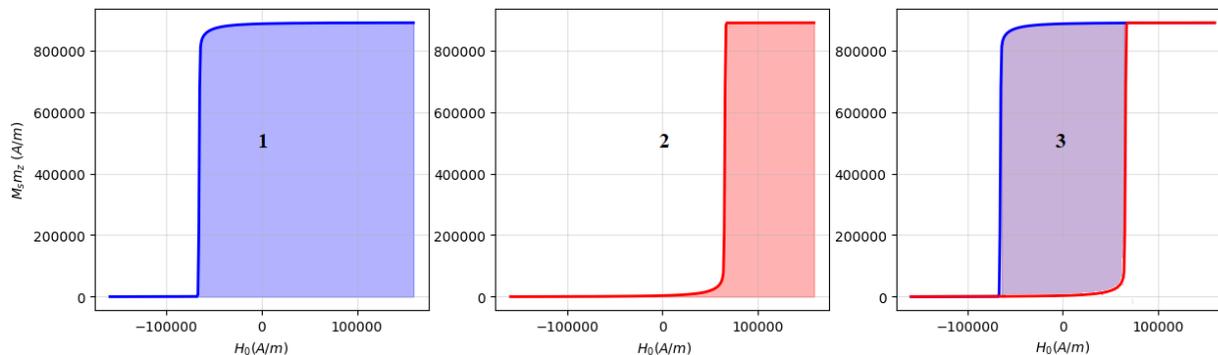


- Identificar dos ramas en la curva de histéresis, la primera asociada al decrecimiento (curva azul) y la segunda al crecimiento (curva roja) de la intensidad del campo magnético.



- Calcular (1) el área bajo la curva roja y (2) el área bajo la curva azul. Posteriormente, para obtener el área encerrada se (3) resta el área bajo la curva roja al área bajo la curva azul.

El cálculo del área bajo la curva se realizó con la regla trapezoidal compuesta implementando la librería de Python `numpy.trapz()`.



Con el valor del área, se calcula el SLP definido en la ecuación (2.37). Tomando como referencia una amplitud $H_0 = 200mT$ de campo oscilante, en la Figura 4.12 se puede ver la variación del SLP en función del ángulo θ . Se observa una clara dependencia del SLP con la orientación del eje fácil de magnetización. Este es un resultado novedoso, debido a que en la literatura se conoce que el SLP depende de parámetros como el tamaño de las partículas, la frecuencia y amplitud del campo magnético oscilante [23]. El valor de SLP se maximiza cuando se aplica el campo magnético en una orientación casi paralela al eje fácil de magnetización, es decir para valores de ángulos θ pequeños se obtiene mayor eficiencia en el calentamiento de la nanopartícula magnética por lo cual se plantea que la orientación del eje fácil de magnetización es un parámetro óptimo para la hipertermia magnética aplicado a tratamientos biomédicos como el cáncer.

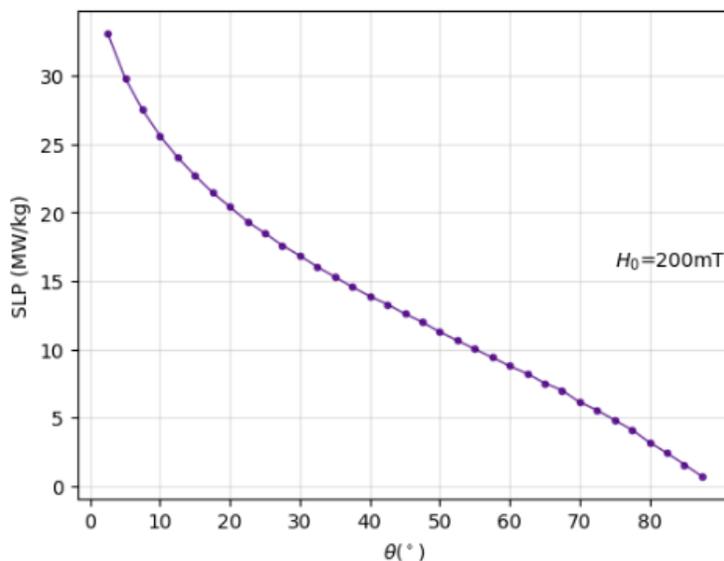


Figura 4.12: SLP para diferentes orientaciones del eje fácil de magnetización \hat{u}_θ .

Capítulo 5

Conclusiones y perspectivas

Las nanopartículas magnéticas (MNPs) sirven como iniciadores de la conversión de energía del campo magnético oscilante en calor y surgieron como un enfoque eficiente para aplicaciones biomédicas que utilizan la técnica de hipertermia. El presente proyecto de tesis de maestría utiliza simulaciones micromagnéticas a través del modelamiento en Ubermag de una nanopartícula de magnetita con geometría esférica, con el objetivo de dar solución a la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) y conocer la dinámica de magnetización. Teniendo en cuenta que no se encontró en la literatura un estudio sobre el efecto de la orientación del eje fácil de magnetización de la nanopartícula monodominio sobre la dinámica de magnetización, se decide enfocar el proyecto en conocer la variación de algunas propiedades magnéticas como la transición de fase dinámica, tiempo de vida metaestable, curvas de histéresis y pérdida de potencia específica (SLP) cuando se varía en la nanoestructura magnética la orientación del eje fácil de magnetización. Se encuentra que la orientación del eje fácil de magnetización se comporta como un parámetro de rigidez el cual permite que el sistema magnético logre una transición de fase dinámica a determinado valor de amplitud de campo oscilante de acuerdo a la orientación del eje fácil. A medida en que el eje fácil de magnetización se orienta en una dirección casi perpendicular al campo magnético oscilante, el sistema se vuelve menos rígido y requiere menor amplitud de campo oscilante para transitar de la fase dinámicamente ordenada a la fase dinámicamente desordenada.

Al encontrarse el sistema micromagnético en una fase dinámicamente desordenada, se observa que la magnetización logra seguir al campo magnético oscilante con un retraso en la respuesta dinámica. El tiempo que tarda el sistema en invertir su magnetización se conoce como tiempo de vida metaestable y se encuentra que depende de la orientación del eje fácil de magnetización. Se observa que la influencia de la orientación del eje fácil de magnetización demuestra que el tiempo de vida metaestable disminuye al aumentar el ángulo θ de la orientación del eje fácil. Este hallazgo es novedoso debido a que en la literatura se encuentra reportado que el parámetro de tiempo de vida metaestable depende de la amplitud y periodo del campo magnético oscilante, y la temperatura del sistema.

Las propiedades de histéresis del sistema micromagnético también se ve fuertemente afectado por la orientación del eje fácil de magnetización, la coercitividad se reduce significativamente cuando el eje fácil de magnetización tiende a orientarse en dirección casi perpendicularmente al campo magnético oscilante. Este estudio muestra que una estrategia para obtener mayor energía térmica del sistema micromagnético y así optimizar las terapias

con hipertermia magnética, es orientar el eje fácil de magnetización de la nanopartícula a dirección casi paralela al campo magnético oscilante. Encontrando por primera vez que el SLP depende de la orientación del eje fácil de magnetización, debido a que en la literatura se encuentra reportado que el SLP depende de parámetros como el tamaño de las partículas, la frecuencia y amplitud del campo magnético oscilante.

Para futuras investigaciones se buscará realizar las simulaciones micromagnéticas en un Clúster de la Universidad de Antioquia para obtener un costo computacional más bajo y poder considerar otro tipo de interacciones como la desmagnetizante. Otro aspecto que se quiere tener en cuenta es considerar que los momentos magnéticos de la nanopartícula roten a través del mecanismo de rotación de Brown, para esto el eje fácil de magnetización deberá cambiarse de una función constante, como lo fue en el presente proyecto, a una función variable en el tiempo. Teniendo en cuenta la revisión bibliográfica en el estado del arte, otra perspectiva importante de investigación es incorporar los efectos de temperatura finita a nuestro sistema micromagnético, lo cual puede ser implementado en Ubermag con el paquete `oommfc.UHH_ThetaEvolver()`.

Capítulo 6

Participación en Eventos Científicos

- 17th edition of SIMAFE, International Seminar on Condensed Matter Physics and Statistical Physics.
- XXIX Congreso Nacional de Física

Influence of Amplitude and Frequency of the Oscillating Magnetic Field in Metastable Lifetime of a single-domain Nanoparticle

Nathaly Roa Motta¹ Johans Restrepo Cárdenas²
Group of Magnetism and Simulation. University of Antioquia, A.A. 1226, Medellín, Colombia
Correspondence: ¹nathaly.roam@udea.edu.co; ²johans.restrepo@udea.edu.co



Effect of the Orientation of the Easy Axis of Magnetization on the Dynamic Phase Transition of a Single-Domain Nanoparticle in an Alternating Field

Nathaly Roa Motta¹ Johans Restrepo Cárdenas²
Group of Magnetism and Simulation. University of Antioquia, A.A. 1226, Medellín, Colombia
Correspondence: ¹nathaly.roam@udea.edu.co; ²johans.restrepo@udea.edu.co



Bibliografía

1. Caizer, C. y Rai, M. *Magnetic Nanoparticles in Human Health and Medicine: Current Medical Applications and Alternative Therapy of Cancer* (John Wiley & Sons, 2021).
2. Beg, M. *et al. Ubermag: Meta package for Ubermag project* 2021.
3. Beg, M., Pepper, R. A. y Fangohr, H. User interfaces for computational science: A domain specific language for OOMMF embedded in Python. *AIP Advances* **7**, 056025 (2017).
4. Baki, A., Wiekhorst, F. y Bleul, R. Advances in Magnetic Nanoparticles Engineering for Biomedical Applications—A Review. *Bioengineering* **8**, 134 (2021).
5. Tong, S., Quinto, C. A., Zhang, L., Mohindra, P. y Bao, G. Size-dependent heating of magnetic iron oxide nanoparticles. *ACS nano* **11**, 6808-6816 (2017).
6. Patsula, V., Moskvina, M., Dutz, S. y Horák, D. Size-dependent magnetic properties of iron oxide nanoparticles. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **88**, 24-30 (2016).
7. Ganapathe, L. S., Mohamed, M. A., Mohamad Yunus, R. y Berhanuddin, D. D. Magnetite (Fe₃O₄) nanoparticles in biomedical application: From synthesis to surface functionalisation. *Magnetochemistry* **6**, 68 (2020).
8. Ewing, J. A. On the Production of Transient Electric Currents in Iron and Steel Conductors by Twisting Them When Magnetised, or by Magnetising Them When Twisted. *Proceedings of the Royal Society of London* **36**, 117-135. ISSN: 03701662. <http://www.jstor.org/stable/114422> (1883).
9. Korniss, G., White, C., Rikvold, P. y Novotny, M. Dynamic phase transition, universality, and finite-size scaling in the two-dimensional kinetic Ising model in an oscillating field. *Physical Review E* **63**, 016120 (2000).
10. Berger, A., Idigoras, O. y Vavassori, P. Transient behavior of the dynamically ordered phase in uniaxial cobalt films. *Physical Review Letters* **111**, 190602 (2013).
11. Park, H. y Pleimling, M. Dynamic phase transition in the three-dimensional kinetic Ising model in an oscillating field. *Physical Review E* **87**, 032145 (2013).
12. Schrefl, T. Finite elements in numerical micromagnetics: part I: granular hard magnets. *Journal of magnetism and magnetic materials* **207**, 45-65 (1999).
13. Fidler, J. y Schrefl, T. Micromagnetic modelling—the current state of the art. *Journal of Physics D: Applied Physics* **33**, R135 (2000).

14. Coffey, W. *et al.* Thermally activated relaxation time of a single domain ferromagnetic particle subjected to a uniform field at an oblique angle to the easy axis: Comparison with experimental observations. *Physical review letters* **80**, 5655 (1998).
15. Gilbert, T. L. A phenomenological theory of damping in ferromagnetic materials. *IEEE transactions on magnetics* **40**, 3443-3449 (2004).
16. Oppenheim, I. *The Langevin equation with applications in physics, chemistry and electrical engineering* 1997.
17. Cheng, X., Jalil, M., Lee, H. K. y Okabe, Y. Mapping the Monte Carlo scheme to Langevin dynamics: a Fokker-Planck approach. *Physical review letters* **96**, 067208 (2006).
18. Lee, H. K., Okabe, Y., Cheng, X. y Jalil, M. B. A. Solving the master equation for extremely long time scale calculations. *Comput. Phys. Commun.* **168**, 159-164 (2005).
19. Ragusa, C. *et al.* Full Micromagnetic Numerical Simulations of Thermal Fluctuations. *IEEE Transactions on Magnetism* **45**, 3919-3922 (2009).
20. Scholz, W., Schrefl, T. y Fidler, J. Micromagnetic simulation of thermally activated switching in fine particles. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **233**, 296-304 (2001).
21. Usov, N., Serebryakova, O. y Tarasov, V. Interaction effects in assembly of magnetic nanoparticles. *Nanoscale research letters* **12**, 1-8 (2017).
22. Usov, N. A., Nesmeyanov, M. S., Gubanova, E. M. y Epshtein, N. B. Heating ability of magnetic nanoparticles with cubic and combined anisotropy. *Beilstein Journal of Nanotechnology* **10**, 305-314 (2019).
23. Halgamuge, M. N. y Song, T. Optimizing heating efficiency of hyperthermia: specific loss power of magnetic sphere composed of superparamagnetic nanoparticles. *Progress In Electromagnetics Research B* **87**, 1-17 (2020).
24. Chattopadhyay, S. y Santra, S. B. Kinetic Ising model under sinusoidal oscillating external magnetic field: hysteresis and dynamic phase transition. *The European Physical Journal B: Condensed Matter and Complex Systems* **94**, 1-11. https://ideas.repec.org/a/spr/eurphb/v94y2021i3d10.1140_epjb_s10051-021-00081-3.html (mar. de 2021).
25. Coey, J. M. *Magnetism and magnetic materials* (Cambridge university press, 2010).
26. Kralj, S. y Makovec, D. Magnetic assembly of superparamagnetic iron oxide nanoparticle clusters into nanochains and nanobundles. *ACS nano* **9**, 9700-9707 (2015).
27. Ciofani, G. *Smart nanoparticles for biomedicine* (Elsevier, 2018).
28. Chung, E. J., Leon, L. y Rinaldi, C. *Nanoparticles for biomedical applications: fundamental concepts, biological interactions and clinical applications* (Elsevier, 2019).
29. Haus, H. A. y Melcher, J. R. *Electromagnetic fields and energy* (Prentice Hall Englewood Cliffs, 1989).
30. Binns, C. *Nanomagnetism: fundamentals and applications* (Newnes, 2014).

31. Coffey, W. y Kalmykov, Y. P. *The Langevin equation: with applications to stochastic problems in physics, chemistry and electrical engineering* (World Scientific, 2012).
32. Landau, L. y Lifshitz, E. en *Perspectives in Theoretical Physics* 51-65 (Elsevier, 1992).
33. Brown Jr, W. F. Theory of the approach to magnetic saturation. *Physical Review* **58**, 736 (1940).
34. Brown, W. F. *Micromagnetics* **18** (interscience publishers, 1963).
35. Kittel, C. Physical theory of ferromagnetic domains. *Reviews of modern Physics* **21**, 541 (1949).
36. Abert, C. Micromagnetics and spintronics: models and numerical methods. *The European Physical Journal B* **92**, 1-45 (2019).
37. Fabian, K. *et al.* Three-dimensional micromagnetic calculations for magnetite using FFT. *Geophysical Journal International* **124**, 89-104 (1996).
38. Abo, G. S. *et al.* Definition of magnetic exchange length. *IEEE Transactions on Magnetics* **49**, 4937-4939 (2013).
39. Rave, W., Ramstöck, K. y Hubert, A. Corners and nucleation in micromagnetics. *Journal of magnetism and magnetic materials* **183**, 329-333 (1998).
40. Tsiantos, V., Scholz, W., Suess, D., Schrefl, T. y Fidler, J. The effect of the cell size in Langevin micromagnetic simulations. *Journal of magnetism and magnetic materials* **242**, 999-1001 (2002).
41. Wang, S., Wei, D. y Gao, K.-Z. Limits of discretization in computational micromagnetics. *IEEE transactions on magnetics* **47**, 3813-3816 (2011).
42. Coey, J. M. y Parkin, S. S. *Handbook of Magnetism and Magnetic Materials* (Springer, 2021).
43. Bychkova, A., Sorokina, O., Rosenfeld, M. y Kovarski, A. Multifunctional biocompatible coatings on magnetic nanoparticles. *Russian Chemical Reviews* **81**, 1026 (2012).
44. Mayergoyz, I. D. *The Science of Hysteresis: 3-volume Set* (Academic press, 2005).
45. Kronmuller, H. y Parkin, S. *Handbook of magnetism and advanced magnetic materials* (Wiley, 2007).
46. Guimarães, A. P. y Guimaraes, A. P. *Principles of nanomagnetism* (Springer, 2009).
47. Thanh, N. T. *Magnetic nanoparticles: from fabrication to clinical applications* (2012).
48. Mehrmohammadi, M., Yoon, K., Qu, M., Johnston, K. y Emelianov, S. Enhanced pulsed magneto-motive ultrasound imaging using superparamagnetic nanoclusters. *Nanotechnology* **22**, 045502 (2010).
49. Néel, L. Théorie du trainage magnétique des ferromagnétiques en grains fins avec applications aux terres cuites. *Ann. géophys.* **5**, 99-136 (1949).
50. Brown, W. F. Thermal Fluctuations of a Single-Domain Particle. *Phys. Rev.* **130**, 1677-1686. <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.130.1677> (5 jun. de 1963).

51. Dutz, S. y Hergt, R. Magnetic nanoparticle heating and heat transfer on a microscale: Basic principles, realities and physical limitations of hyperthermia for tumour therapy. *International Journal of Hyperthermia* **29**, 790-800 (2013).
52. Moyer, H. R. y Delman, K. A. The role of hyperthermia in optimizing tumor response to regional therapy. *International Journal of Hyperthermia* **24**, 251-261 (2008).
53. Soleymani, M., Edrissi, M. y Alizadeh, A. M. Tailoring $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($0.25 < x < 0.35$) nanoparticles for self-regulating magnetic hyperthermia therapy: an in vivo study. *Journal of Materials Chemistry B* **5**, 4705-4712 (2017).
54. Rosensweig, R. E. Heating magnetic fluid with alternating magnetic field. *Journal of magnetism and magnetic materials* **252**, 370-374 (2002).
55. Murase, K. Specific Loss Power in Magnetic Hyperthermia Comparison of Monodispersion and Polydispersion. *SSRG International Journal of Applied Physics* (2017).
56. Gilbert, T. L. A Lagrangian formulation of the gyromagnetic equation of the magnetization field. *Phys. Rev.* **100**, 1243 (1955).
57. Idigoras, O., Vavassori, P. y Berger, A. Mean field theory of dynamic phase transitions in ferromagnets. *Physica B: Condensed Matter* **407**, 1377-1380 (2012).
58. Park, H. y Pleimling, M. Surface criticality at a dynamic phase transition. *Physical Review Letters* **109**, 175703 (2012).
59. Korniss, G., Rikvold, P. y Novotny, M. Absence of first-order transition and tricritical point in the dynamic phase diagram of a spatially extended bistable system in an oscillating field. *Physical Review E* **66**, 056127 (2002).
60. Dubowik, J. y Gościańska, I. Micromagnetic approach to exchange bias-A new look at an old problem. *arXiv preprint arXiv:1306.5988* (2013).
61. Donahue, M. *OOMMF User's Guide, Version 1.0* en. 1999-09-01 de 1999.
62. Mathews, S. A., Ehrlich, A. C. y Charipar, N. A. Hysteresis branch crossing and the Stoner–Wohlfarth model. *Scientific reports* **10**, 1-7 (2020).
63. Quintana, M., Oblak, E., Ramirez, J. M. y Berger, A. Experimental exploration of the vector nature of the dynamic order parameter near dynamic magnetic phase transitions. *Physical Review B* **102**, 094436 (2020).
64. Ibe, O. *Markov processes for stochastic modeling* (Newnes, 2013).

Apéndice A

Anexos

A.1. Ecuación energía de intercambio

En el límite del continuo la energía de intercambio se define como [25]

$$E_{ex} = \int_V \frac{A}{M_s^2} (|\nabla M_x|^2 + |\nabla M_y|^2 + |\nabla M_z|^2) dV \quad (\text{A.1})$$

donde A es la constante de intercambio y ∇ el operador nabla. Teniendo en cuenta la relación $|\nabla f|^2 = \nabla \cdot (f \nabla f) - f \nabla^2 f$ se calcula el término $|\nabla M_x|^2$ de la ecuación 2.15

$$\begin{aligned} |\nabla M_x|^2 &= \nabla \cdot (M_x \nabla M_x) - M_x \nabla^2 M_x \\ &= M_x \nabla \cdot (\nabla M_x) + (\nabla M_x) \cdot (\nabla M_x) - M_x \nabla^2 M_x \\ &= M_x \left(\frac{\partial}{\partial x} \hat{x} + \frac{\partial}{\partial y} \hat{y} + \frac{\partial}{\partial z} \hat{z} \right) \cdot \left(\frac{\partial M_x}{\partial x} \hat{x} + \frac{\partial M_x}{\partial y} \hat{y} + \frac{\partial M_x}{\partial z} \hat{z} \right) + \nabla M_x \cdot \nabla M_x - M_x \nabla^2 M_x \\ &= M_x \left(\frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} \right) + \nabla M_x \cdot \nabla M_x - M_x \nabla^2 M_x \\ &= M_x \left(\frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} \right) + \left(\frac{\partial M_x}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial M_x}{\partial y} \right)^2 + \left(\frac{\partial M_x}{\partial z} \right)^2 - M_x \nabla^2 M_x \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Realizando el mismo procedimiento, se calcula $|\nabla M_y|^2$ y $|\nabla M_z|^2$

$$|\nabla M_y|^2 = M_y \left(\frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 M_y}{\partial z^2} \right) + \left(\frac{\partial M_y}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial M_y}{\partial y} \right)^2 + \left(\frac{\partial M_y}{\partial z} \right)^2 - M_y \nabla^2 M_y \quad (\text{A.3})$$

$$|\nabla M_z|^2 = M_z \left(\frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_z}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 M_z}{\partial z^2} \right) + \left(\frac{\partial M_z}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial M_z}{\partial y} \right)^2 + \left(\frac{\partial M_z}{\partial z} \right)^2 - M_z \nabla^2 M_z \quad (\text{A.4})$$

Sumando las ecuaciones A.2-A.4 se tiene

$$\begin{aligned}
|\nabla M_x|^2 + |\nabla M_y|^2 + |\nabla M_z|^2 &= M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} + \left(\frac{\partial M_x}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial M_x}{\partial y}\right)^2 + \\
&\quad \left(\frac{\partial M_x}{\partial z}\right)^2 - M_x \nabla^2 M_x + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial z^2} + \\
&\quad \left(\frac{\partial M_y}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial M_y}{\partial y}\right)^2 + \left(\frac{\partial M_y}{\partial z}\right)^2 - M_y \nabla^2 M_y + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} + \\
&\quad M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial y^2} + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial z^2} + \left(\frac{\partial M_z}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial M_z}{\partial y}\right)^2 + \left(\frac{\partial M_z}{\partial z}\right)^2 - \\
&\quad M_z \nabla^2 M_z \\
&= \left[M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + \left(\frac{\partial M_x}{\partial x}\right)^2 + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} + \left(\frac{\partial M_y}{\partial x}\right)^2 + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} + \right. \\
&\quad \left. \left(\frac{\partial M_z}{\partial x}\right)^2 \right] + \left[M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + \left(\frac{\partial M_x}{\partial y}\right)^2 + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} + \left(\frac{\partial M_y}{\partial y}\right)^2 + \right. \\
&\quad \left. M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial y^2} + \left(\frac{\partial M_z}{\partial y}\right)^2 \right] + \left[M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} + \left(\frac{\partial M_x}{\partial z}\right)^2 + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial z^2} + \right. \\
&\quad \left. \left(\frac{\partial M_y}{\partial z}\right)^2 + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial z^2} + \left(\frac{\partial M_z}{\partial z}\right)^2 \right] - M_x \nabla^2 M_x - M_y \nabla^2 M_y - \\
&\quad M_z \nabla^2 M_z
\end{aligned} \tag{A.5}$$

Del modelo micromagnético se conoce que $\mathbf{M} = M_s \mathbf{m}$, siendo \mathbf{m} es el vector unitario de magnetización. Se calcula $\frac{\partial^2}{\partial x^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}]$, para lo cual

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial x} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}] &= \frac{\partial}{\partial x} [M_s \mathbf{m} \cdot M_s \mathbf{m}] \\
\frac{\partial}{\partial x} [(M_x \hat{x} + M_y \hat{y} + M_z \hat{z}) \cdot (M_x \hat{x} + M_y \hat{y} + M_z \hat{z})] &= \frac{\partial}{\partial x} [M_s^2 \mathbf{m} \cdot \mathbf{m}] \\
\frac{\partial}{\partial x} [M_x^2 + M_y^2 + M_z^2] &= \frac{\partial}{\partial x} [M_s^2] \\
2M_x \frac{\partial M_x}{\partial x} + 2M_y \frac{\partial M_y}{\partial x} + 2M_z \frac{\partial M_z}{\partial x} &= 0 \\
M_x \frac{\partial M_x}{\partial x} + M_y \frac{\partial M_y}{\partial x} + M_z \frac{\partial M_z}{\partial x} &= 0
\end{aligned} \tag{A.6}$$

Se deriva nuevamente

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial x} \left(M_x \frac{\partial M_x}{\partial x} + M_y \frac{\partial M_y}{\partial x} + M_z \frac{\partial M_z}{\partial x} \right) &= 0 \\
M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + \left(\frac{\partial M_x}{\partial x}\right)^2 + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} + \left(\frac{\partial M_y}{\partial x}\right)^2 + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} + \left(\frac{\partial M_z}{\partial x}\right)^2 &= 0
\end{aligned} \tag{A.7}$$

Realizando el mismo procedimiento se obtiene $\frac{\partial^2}{\partial y^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}]$ y $\frac{\partial^2}{\partial z^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}]$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2}{\partial y^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}] &= \frac{\partial^2}{\partial y^2} [M_s \mathbf{m} \cdot M_s \mathbf{m}] \\ M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + \left(\frac{\partial M_x}{\partial y} \right)^2 + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} + \left(\frac{\partial M_y}{\partial y} \right)^2 + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial y^2} + \left(\frac{\partial M_z}{\partial y} \right)^2 &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

y

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2}{\partial z^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}] &= \frac{\partial^2}{\partial z^2} [M_s \mathbf{m} \cdot M_s \mathbf{m}] \\ M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} + \left(\frac{\partial M_x}{\partial z} \right)^2 + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial z^2} + \left(\frac{\partial M_y}{\partial z} \right)^2 + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial z^2} + \left(\frac{\partial M_z}{\partial z} \right)^2 &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Reemplazando las ecuaciones A.7-A.9 en la ecuación A.5, se tiene

$$\begin{aligned} |\nabla M_x|^2 + |\nabla M_y|^2 + |\nabla M_z|^2 &= \frac{\partial^2}{\partial z^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}] + \frac{\partial^2}{\partial z^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}] + \frac{\partial^2}{\partial z^2} [\mathbf{M} \cdot \mathbf{M}] - \\ &\quad M_x \nabla^2 M_x - M_y \nabla^2 M_y - M_z \nabla^2 M_z \\ &= -M_x \nabla^2 M_x - M_y \nabla^2 M_y - M_z \nabla^2 M_z \\ &= -\left(M_x \nabla^2 M_x + M_y \nabla^2 M_y + M_z \nabla^2 M_z \right) \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Ahora se calcula

$$\mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) = \mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \quad (\text{A.11})$$

donde

$$\begin{aligned} \mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} &= (M_x \hat{x} + M_y \hat{y} + M_z \hat{z}) \cdot \left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} (M_x \hat{x} + M_y \hat{y} + M_z \hat{z}) \right] \\ &= (M_x \hat{x} + M_y \hat{y} + M_z \hat{z}) \cdot \left[\frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} \hat{x} + \frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} \hat{y} + \frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} \hat{z} \right] \\ &= M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

Con el mismo procedimiento se obtiene $\mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2}$ y $\mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2}$

$$\mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} = M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial y^2} \quad (\text{A.13})$$

y

$$\mathbf{M} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} = M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial z^2} + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial z^2} \quad (\text{A.14})$$

Reemplazando las ecuaciones A.12-A.14 en la ecuación A.11, se tiene

$$\begin{aligned}
\mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) &= M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} + \\
&M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial y^2} + \\
&M_x \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} + M_y \frac{\partial^2 M_y}{\partial z^2} + M_z \frac{\partial^2 M_z}{\partial z^2} \\
&= M_x \left[\frac{\partial^2 M_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 M_x}{\partial z^2} \right] + \\
&M_y \left[\frac{\partial^2 M_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_y}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 M_y}{\partial z^2} \right] + \\
&M_z \left[\frac{\partial^2 M_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 M_z}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 M_z}{\partial z^2} \right]
\end{aligned} \tag{A.15}$$

Considerando en la ecuación A.15 la definición del operador Laplaciano aplicado a una función $\nabla^2 f = \frac{\partial^2 f}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 f}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 f}{\partial z^2}$,

$$\mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) = M_x \nabla^2 M_x + M_y \nabla^2 M_y + M_z \nabla^2 M_z \tag{A.16}$$

Comparando la ecuación A.10 con la ecuación A.16, se encuentra que

$$|\nabla M_x|^2 + |\nabla M_y|^2 + |\nabla M_z|^2 = -\mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) \tag{A.17}$$

A partir de esta relación, la ecuación 2.15 puede ser escrita como

$$E_{ex} = - \int_V \frac{A}{M_s^2} \mathbf{M} \cdot \left(\frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{M}}{\partial z^2} \right) dV \tag{A.18}$$

A.2. Ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert

Para derivar la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG), considere la ecuación de movimiento rotacional de un cuerpo rígido en la mecánica clásica

$$\frac{d\mathbf{L}}{dt} = \boldsymbol{\tau} \tag{A.19}$$

donde \mathbf{L} es el momento angular de un cuerpo el cual está definido por $\mathbf{L} = \mathbf{I} \cdot \boldsymbol{\omega}$, \mathbf{I} es el tensor inercial, $\boldsymbol{\omega}$ es la velocidad angular del sólido y $\boldsymbol{\tau}$ es el torque que actúa sobre el cuerpo. Para la mecánica cuántica, la ecuación (A.19) sigue siendo válida siempre y cuando \mathbf{L} y $\boldsymbol{\tau}$ sean considerados como operadores cuánticos definidos en el espacio de Hilbert, para sistemas de espín el momento angular \mathbf{L} puede ser reemplazado por el momento angular asociado al espín \mathbf{S} , por lo tanto la ecuación de movimiento rotacional corresponde a

$$\frac{d\mathbf{S}}{dt} = \boldsymbol{\tau} \tag{A.20}$$

se puede usar la ecuación (A.20) para desarrollar una teoría clásica de un sistema de espín, sin embargo, presenta problemas cuando la formulación Lagrangiana de las ecuaciones clásicas se usa para introducir un término de amortiguación. Este problema se debe a que el Lagrangiano clásico introduce variables dinámicas que no están definidas para un operador de espín mecánico cuántico.

Para evitar este problema se implementa un campo de magnetización no amortiguado, por lo tanto, en la ecuación (A.20) la única variable dinámica es el momento magnético del electrón \mathbf{M}

$$\mathbf{M} = \gamma_0 \mathbf{S} \quad (\text{A.21})$$

donde $\gamma_0 = \mu_0 \gamma$ es el término de precesión de LLG, γ es la razón giromagnética del espín del electrón y μ_0 la permeabilidad del espacio libre. El torque ejercido en un momento magnético \mathbf{M} por un campo efectivo \mathbf{H}_{eff} está dado por

$$\boldsymbol{\tau} = \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \quad (\text{A.22})$$

Uno de los supuestos del modelo micromagnético indica que una partícula individual tiene magnetización vectorial uniforme \mathbf{M} donde su magnitud es constante $\|\mathbf{M}\| = M_s$ y está determinada por la temperatura T . Por tanto, el vector de magnetización \mathbf{M} (ver Figura A.1) se puede describir mediante coordenadas esféricas como

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} M_x \\ M_y \\ M_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_s \sin(\theta) \cos(\phi) \\ M_s \sin(\theta) \sin(\phi) \\ M_s \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad (\text{A.23})$$

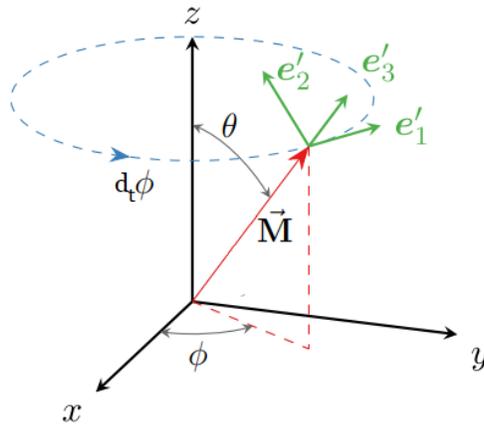


Figura A.1: Visualización del vector de magnetización \mathbf{M} descrito en coordenadas esféricas por los ángulos θ y ϕ [36].

siendo el ángulo polar θ y azimutal ϕ .

Para obtener la ecuación de movimiento para el momento magnético de un espín del electrón, se multiplica la ecuación (A.20) por γ_0

$$\frac{d}{dt}(\gamma_0 \mathbf{S}) = \gamma_0 \boldsymbol{\tau}$$

Se reemplaza la ecuación (A.21) y (A.22)

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \quad (\text{A.24})$$

donde el campo magnético efectivo (independiente de la temperatura y de la intensidad del campo externo)

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\text{eff}} &= - \left[\frac{\partial E_{\text{Total}}(\mathbf{M})}{\partial M_x} \hat{\mathbf{i}} + \frac{\partial E_{\text{Total}}(\mathbf{M})}{\partial M_y} \hat{\mathbf{j}} + \frac{\partial E_{\text{Total}}(\mathbf{M})}{\partial M_z} \hat{\mathbf{k}} \right] \\ &= - \frac{\partial E_{\text{Total}}(\mathbf{M})}{\partial \mathbf{M}} \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

siendo $E_{\text{Total}}(\mathbf{M})$ la energía potencial del sistema con respecto al trabajo realizado al rotar el momento magnético contra cualquier fuerza presente. Considere una partícula con red cristalina en la cual dentro de la celda reticular se encuentra ubicado un electrón con un espín no apareado, formando así un conjunto discreto de momentos magnéticos continuos \mathbf{M}_i , $i = 1, 2, \dots, n$. Las ecuaciones de movimiento para \mathbf{M}_i con un campo efectivo $\mathbf{H}_{\text{eff},i}$ que actúa en el i -ésimo momento magnético del sistema, están dadas por

$$\frac{d\mathbf{M}_i}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{M}_i \times \mathbf{H}_{\text{eff},i} \quad (\text{A.26})$$

$$\mathbf{H}_{\text{eff},i} = - \frac{\partial E_{\text{Total}}(\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2, \dots, \mathbf{M}_n)}{\partial \mathbf{M}} \quad (\text{A.27})$$

donde $E_{\text{Total}}(\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2, \dots, \mathbf{M}_n)$ es una energía potencial que tiene en cuenta todas las interacciones que ejercen torque en los momentos individuales. Al introducir en las ecuaciones (A.26) y (A.27) un campo continuo $\mathbf{M}(\mathbf{r})$ y configuraciones $\mathbf{M}(\mathbf{r}_i) = \frac{\mathbf{M}_i}{\Delta \mathbf{r}_i}$, donde \mathbf{r}_i es la ubicación de la celda reticular y $\Delta \mathbf{r}_i$ es el volumen de la celda reticular. Por lo tanto, la ecuación de movimiento para un campo de magnetización continuo sin amortiguar está dado por:

$$\frac{\partial \mathbf{M}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\gamma_0 \mathbf{M}(\mathbf{r}, t) \times \mathbf{H}_{\text{eff}}(\mathbf{r}, t) \quad (\text{A.28})$$

Esta ecuación da cuenta de un movimiento de precesión de \mathbf{M} respecto a \mathbf{H}_{eff} . Ahora, considere un sistema físico donde \mathbf{M} no solamente precesa respecto a \mathbf{H}_{eff} sino que también presenta amortiguación. En este sistema la amortiguación se acompaña de una desaceleración en el movimiento macroscópico y de una transferencia de energía cinética del movimiento térmico microscópico (energía interna). Para un campo de magnetización, la amortiguación se evidencia en la transferencia directa de la energía del movimiento térmico microscópico en ondas de espines o por transferencia de energía macroscópica del campo de magnetización a otros campos a los que está acoplado. Para estos sistemas es necesario introducir un término de amortiguamiento en la ecuación de movimiento clásica definida por la ecuación (A.28), este término debe depender de la velocidad y se derivada de una función cuadrática de las derivadas del tiempo de las variables dinámicas llamada función de disipación de Rayleigh [15]. Una partícula, para la cual las variables dinámicas son las componentes del campo de

magnetización $\mathbf{M}(\mathbf{r}, t)$ el término adicional es $-\eta' \frac{\partial \mathbf{M}(\mathbf{r}, t)}{\partial t}$, donde η' es el parámetro de amortiguamiento el cual es característico de cada material. Por lo tanto, la ecuación de movimiento de magnetización se puede escribir cómo

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \left(\mathbf{H}_{\text{eff}} - \eta' \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right) \quad (\text{A.29})$$

donde γ_0 proporciona la relación entre el momento magnético y el momento angular, y η' es la constante de disipación o amortiguamiento. En la ecuación (A.29), $\mathbf{H}_{\text{eff}} = -\frac{\partial V}{\partial \mathbf{M}}$ representa la parte conservativa y $\eta' \frac{d\mathbf{M}}{dt}$ representa la parte disipativa de un campo efectivo. Teniendo en cuenta $\mathbf{M} = M_s \mathbf{m}$, siendo \mathbf{m} el vector unitario de magnetización

$$M_s \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 M_s \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \gamma_0 \eta' M_s^2 \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (\text{A.30})$$

Definiendo $\alpha = \gamma_0 \eta' M_s$ como el parámetro de amortiguamiento adimensional

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (\text{A.31})$$

Multiplicando por $\mathbf{m} \cdot$ a ambos lados de la ecuación (A.29), se obtiene

$$\mathbf{m} \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{m} \cdot (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \alpha \mathbf{m} \cdot \left(\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (\text{A.32})$$

empleando la propiedad de producto mixto de vectores $A \cdot (B \times C) = (A \times B) \cdot C$ se obtiene

$$\mathbf{m} \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} = 0 \quad (\text{A.33})$$

Ahora, multiplicando por $\mathbf{m} \times$ en la ecuación (A.31)

$$\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{m} \times \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \mathbf{m} \times \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (\text{A.34})$$

implementando la propiedad del triple producto vectorial $A \times (B \times C) = B(A \cdot C) - C(A \cdot B)$ se tiene

$$\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \alpha \left[\mathbf{m} \left(\mathbf{m} \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) - \frac{d\mathbf{m}}{dt} (\mathbf{m} \cdot \mathbf{m}) \right] \quad (\text{A.35})$$

reemplazando la ecuación (A.33) y teniendo en cuenta que $\|\mathbf{m}\| = 1$, se obtiene

$$\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (\text{A.36})$$

reemplazando la ecuación (A.36) en la ecuación (A.31)

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma_0 \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \left[-\gamma_0 \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right] \quad (\text{A.37})$$

Factorizando el termino $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ se tiene

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\frac{\gamma_0}{(1 + \alpha^2)} \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{\alpha \gamma_0}{(1 + \alpha^2)} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) \quad (\text{A.38})$$

esta ecuación recibe el nombre de Landau-Lifshitz-Gilbert.

A.3. Probabilidad condicionada

Para introducir al tema de probabilidad condicional, considere como ejemplo práctico una situación en la que un paciente consulta a un médico por algún malestar que presenta y el médico basado en los síntomas diagnostica la enfermedad más probable que presenta el paciente. La Figura A.2 muestra la representación en diagrama de Veen de la situación planteada.

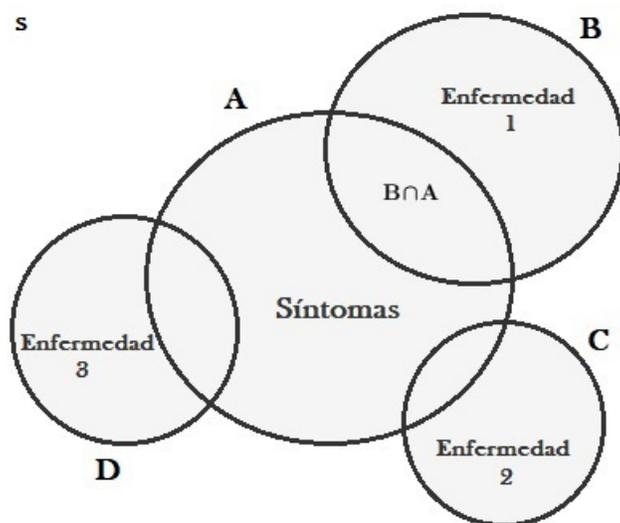


Figura A.2: Diagrama de Venn donde el evento A corresponde a los síntomas del paciente, el evento B , C y D corresponden a la enfermedad 1, 2 y 3 respectivamente en el espacio muestral s .

Se observa en la Figura A.2 que de acuerdo a los síntomas el diagnóstico más probable que presenta el paciente es la enfermedad 1 dado por el evento B , por lo tanto el diagnóstico de la enfermedad está condicionada al síntoma del paciente y esto es lo que se conoce como probabilidad condicionada. Así la probabilidad de que el paciente tenga la enfermedad 1 (evento B), teniendo en cuenta los síntomas (evento A) se denota por $P(B | A)$. El nuevo espacio muestral será el evento que ya sucedió A .

Por otro lado, del concepto de probabilidad para un resultado dado $P(X)$, podemos escribir:

$$P(X) = \frac{\text{Número de casos favorables de } X}{\text{Número total de casos posibles}} \quad (\text{A.39})$$

El número de casos favorables del evento B corresponde a la probabilidad de que ocurra del evento B y el evento A al mismo tiempo, y el número total de casos posibles corresponde a la probabilidad de que ocurra el evento A . Por lo tanto, la probabilidad de que ocurra el evento B condicionado al evento A corresponde a:

$$P(B|A) = \frac{P(B \cap A)}{P(A)} \quad (\text{A.40})$$

donde $P(\mathbf{A})$ es la probabilidad del evento \mathbf{A} y $P(\mathbf{B} \cap \mathbf{A})$ es la probabilidad del evento de intersección del evento \mathbf{A} y \mathbf{B} .

Consideremos muchos eventos \mathbf{B}_i para $i = 1, 2, \dots, k$ los cuales son estadísticamente independientes y de los cuales el sistema puede partir para llegar al evento \mathbf{A} . La probabilidad del evento \mathbf{A} estará representada por una serie de eventos o conjuntos disyuntos, por la tanto se usa la noción de función de conjunto con aditividad finita sobre la que está basado el concepto de probabilidad. Entonces, $P(\mathbf{A})$ dado un espacio muestral S está dada:

$$P(\mathbf{A}) = \sum_{i=1}^k P(\mathbf{B}_i)P(\mathbf{A}|\mathbf{B}_i) \quad (\text{A.41})$$

donde la dimensión de las posibles transiciones $\mathbf{B}_i \rightarrow \mathbf{A}$ está dado por el límite de la sumatoria en (k) .

La probabilidad de que ocurra un evento \mathbf{B}_i dado un evento \mathbf{A} se conoce cómo el teorema de Bayes, el cual establece que:

$$P(\mathbf{B}_i|\mathbf{A}) = \frac{P(\mathbf{B}_i \cap \mathbf{A})}{\sum_{i=1}^k P(\mathbf{B}_i)P(\mathbf{A}|\mathbf{B}_i)} \quad (\text{A.42})$$

de la probabilidad condicional establecida en (A.40) el teorema de Bayes se puede escribir cómo

$$P(\mathbf{B}_i|\mathbf{A}) = \frac{P(\mathbf{B}_i)P(\mathbf{A}|\mathbf{B}_i)}{\sum_{i=1}^k P(\mathbf{B}_i)P(\mathbf{A}|\mathbf{B}_i)} \quad (\text{A.43})$$

El teorema de Bayes busca tiene en cuenta las probabilidades de las causas por las que puede tener en cuenta un evento observable.

A.4. Ecuación de Fokker-Planck

Para introducir a las ecuaciones de Fokker-Planck, considere un sistema representado por una malla dividida en tres columnas y tres filas, y un disco el cual a lo largo de un tiempo t se mueve entre las posiciones generalizadas y_i ($i = 1, 2, 3$) de las divisiones de la malla cómo se muestra en la Figura A.3.

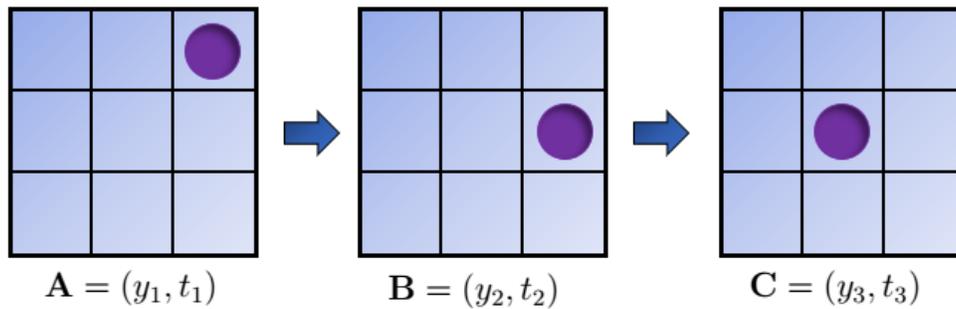


Figura A.3: Representación de un disco que se mueve a las primeras celdas vecinas.

Supongamos que el movimiento del disco está limitado a las celdas o divisiones más próximas (primeros vecinos). Consideremos el movimiento del disco cómo un proceso estocástico denotado por la variable aleatoria $\xi(t)$ en la cual se toma un conjunto de instantes de tiempo $t_1 \leq t \leq t_3$. Las características para cada configuración son:

- Configuración **A**: El disco en el instante de tiempo t_1 se encuentra en la posición $\xi(t_1) = y_1$ en el cual se supone que t_1 y y_1 son fijos.
- Configuración **B**: El disco en el instante de tiempo t_2 tiene una posición $\xi(t_2) = y_2$.
- Configuración **C**: El disco en el instante de tiempo t_3 se encuentra en $\xi(t_3) = y_3$.

A partir de la ecuación (A.40) se obtienen las probabilidades condicionadas de una configuración a otra

$$P(\mathbf{A}|\mathbf{B}) = \frac{P(\mathbf{A} \cap \mathbf{B})}{P(\mathbf{B})} \quad (\text{A.44})$$

donde $P(\mathbf{A}|\mathbf{B})$ es la probabilidad del evento **A** sobre el evento **B**.

$$P(\mathbf{B}|\mathbf{A}) = \frac{P(\mathbf{B} \cap \mathbf{A})}{P(\mathbf{A})} \quad (\text{A.45})$$

donde $P(\mathbf{B}|\mathbf{A})$ es la probabilidad del evento **B** sobre el evento **A**.

$$P(\mathbf{B}|\mathbf{C}) = \frac{P(\mathbf{B} \cap \mathbf{C})}{P(\mathbf{C})} \quad (\text{A.46})$$

donde $P(\mathbf{B}|\mathbf{C})$ es la probabilidad del evento **B** sobre el evento **C**.

$$P(\mathbf{C}|\mathbf{B}) = \frac{P(\mathbf{C} \cap \mathbf{B})}{P(\mathbf{B})} \quad (\text{A.47})$$

donde $P(\mathbf{C}|\mathbf{B})$ es la probabilidad del evento **C** sobre el evento **B**. Teniendo en cuenta la propiedad de intersección de conjuntos en la cual se cumple el hecho que $\mathbf{A} \cap \mathbf{B} = \mathbf{B} \cap \mathbf{A}$ y $\mathbf{B} \cap \mathbf{C} = \mathbf{C} \cap \mathbf{B}$, y combinando la ecuación (A.44) con la ecuación (A.45) y la ecuación (A.46) con la ecuación (A.47), se tiene:

$$P(\mathbf{A}|\mathbf{B}) = P(\mathbf{B}|\mathbf{A}) \frac{P(\mathbf{A})}{P(\mathbf{B})} \quad (\text{A.48})$$

$$P(\mathbf{B}|\mathbf{C}) = P(\mathbf{C}|\mathbf{B}) \frac{P(\mathbf{B})}{P(\mathbf{C})} \quad (\text{A.49})$$

Multiplicando la ecuación (A.48) con la ecuación (A.49)

$$P(\mathbf{A}|\mathbf{B})P(\mathbf{B}|\mathbf{C}) = P(\mathbf{B}|\mathbf{A})P(\mathbf{C}|\mathbf{B}) \frac{P(\mathbf{A})}{P(\mathbf{C})} \quad (\text{A.50})$$

Teniendo en cuenta el álgebra Brooleana entre conjuntos se define

$$\mathbf{C} \cap \mathbf{B} \cap \mathbf{A} = \mathbf{C} \cap (\mathbf{B} \cap \mathbf{A}) = \mathbf{C} \cap (\mathbf{A} \cap \mathbf{B}) \quad (\text{A.51})$$

Calculando la probabilidad condicionada $P(\mathbf{C}|\tilde{\mathbf{A}})$ a partir de la ecuación (A.40)

$$P(\mathbf{C}|\tilde{\mathbf{A}}) = P(\mathbf{C}|\mathbf{B} \cap \mathbf{A}) = \frac{P(\mathbf{C} \cap \mathbf{B} \cap \mathbf{A})}{P(\mathbf{B} \cap \mathbf{A})} \quad (\text{A.52})$$

se ha llamado $\tilde{\mathbf{A}} = \mathbf{B} \cap \mathbf{A}$. Realizando un cambio de notación $\mathbf{A} = (y_1, t_1)$, $\mathbf{B} = (y_2, t_2)$, $\mathbf{C} = (y_3, t_3)$ y cambiando el signo intersección \cap por un punto y coma ";", se tiene

$$P(y_3, t_3 | y_2, t_2; y_1, t_1) = \frac{W_3(y_3, t_3; y_2, t_2; y_1, t_1)}{W_2(y_2, t_2; y_1, t_1)} \quad (\text{A.53})$$

donde si se considera a las variables aleatorias $\xi(t)$ como variables continuas, se puede decir que $W_3(y_3, t_3; y_2, t_2; y_1, t_1)$ representa la probabilidad de que la variable aleatoria $\xi(t_3)$ se encuentre, en el tiempo t_3 , comprendida entre y_3 y $y_3 + dy_3$, que la variable aleatoria $\xi(t_2)$ se encuentre, en el tiempo t_2 , comprendida entre y_2 y $y_2 + dy_2$; y que la variable aleatoria $\xi(t_1)$ se encuentre comprendida, en el tiempo t_1 , entre y_1 y $y_1 + dy_1$. $W_2(y_2, t_2; y_1, t_1)$ es la probabilidad de que la variable aleatoria $\xi(t_2)$ se encuentre, en el tiempo t_2 , comprendida entre y_2 y $y_2 + dy_2$, que la variable aleatoria $\xi(t_1)$ se encuentre, en el tiempo t_1 , comprendida entre y_1 y $y_1 + dy_1$. Implementando el cambio de notación en la ecuación (A.45), se obtiene:

$$P(y_2, t_2 | y_1, t_1) = \frac{W_2(y_2, t_2; y_1, t_1)}{W_1(y_1, t_1)} \quad (\text{A.54})$$

donde $W_1(y_1, t_1)$ es la probabilidad de que la variable aleatoria $\xi(t_1)$ se encuentre, en el tiempo t_1 , comprendida entre y_1 y $y_1 + dy_1$.

Multiplicando las probabilidades de condición establecidas en las ecuaciones (A.53) y (A.54)

$$P(y_3, t_3 | y_2, t_2; y_1, t_1)P(y_2, t_2 | y_1, t_1) = \frac{W_3(y_3, t_3; y_2, t_2; y_1, t_1)}{W_2(y_2, t_2; y_1, t_1)} \frac{W_2(y_2, t_2; y_1, t_1)}{W_1(y_1, t_1)} \quad (\text{A.55})$$

$$W_3(y_3, t_3; y_2, t_2; y_1, t_1) = P(y_3, t_3 | y_2, t_2; y_1, t_1)P(y_2, t_2 | y_1, t_1)W_1(y_1, t_1) \quad (\text{A.56})$$

Integrando la ecuación (A.56) con respecto a dy_2

$$\int W_3(y_3, t_3; y_2, t_2; y_1, t_1)dy_2 = \int P(y_3, t_3 | y_2, t_2; y_1, t_1)P(y_2, t_2 | y_1, t_1)W_1(y_1, t_1)dy_2 \quad (\text{A.57})$$

Teniendo en cuenta que si se integra una probabilidad de orden 3 (3 pares de argumentos) tal como W_3 sobre la variable y_2 , se obtiene una probabilidad de orden 2, es decir una W_2 que dependerá de aquellas variables sobre las que no se integra, por lo tanto, se tiene

$$W_2(y_3, t_3; y_1, t_1) = \int W_3(y_3, t_3; y_2, t_2; y_1, t_1)dy_2 \quad (\text{A.58})$$

combinando la ecuación (A.57) y (A.58)

$$W_2(y_3, t_3; y_1, t_1) = W_1(y_1, t_1) \int P(y_3, t_3 | y_2, t_2; y_1, t_1)P(y_2, t_2 | y_1, t_1)dy_2 \quad (\text{A.59})$$

donde $W_2(y_3, t_3; y_1, t_1)$ se expresa en términos de la probabilidad condicional dada por la ecuación (A.54), por lo tanto la ecuación (A.59) se convierte en

$$P(y_3, t_3 | y_1, t_1) = \int P(y_3, t_3 | y_2, t_2; y_1, t_1) P(y_2, t_2 | y_1, t_1) dy_2 \quad (\text{A.60})$$

Esta ecuación se conoce cómo la ecuación de Chapman-Kolmogorov [31]. Un proceso estocástico descrito por las variables aleatorias $\xi(t)$ es Markoviano es llamado proceso de Markov [64] si para algún tiempo $t_0 < t_1 < \dots < t_n$, la distribución de probabilidad condicional de $\xi(t_n)$ para valores dados $\xi(t_0), \xi(t_1), \dots, \xi(t_{n-1})$ depende únicamente de $\xi(t_{n-1})$, entonces

$$P(\xi(t_n) \leq \xi_n | \xi(t_{n-1}) = \xi_{n-1}, \xi(t_{n-2}) = \xi_{n-2}, \dots, \xi(t_0) = \xi_0) = P(\xi(t_n) \leq \xi_n | \xi(t_{n-1}) = \xi_{n-1}) \quad (\text{A.61})$$

Esto significa que, es un proceso aleatorio en el que solo el estado presente influye en los próximos estados futuros. Por lo tanto, la distribución de los estados futuros depende solo del estado actual y no de cómo el sistema llegó al estado actual.

Para un proceso de Markov definido por la ecuación (A.61), la ecuación (A.60) se puede escribir de la forma

$$P(y_3, t_3 | y_1, t_1) = \int P(y_2, t_2 | y_1, t_1) P(y_3, t_3 | y_2, t_2) dy_2 \quad (\text{A.62})$$

Esta ecuación recibe el nombre de ecuación integral de Smoluchowski [31]. Considerando un sistema de coordenadas temporales tal que $t_1 = 0$ y realizando un cambio de notación donde $P = W$, $y_3 = y$, $y_2 = z$, $y_1 = x$, $t_2 = t$ y $t_3 = t + \Delta t$

$$W(y, t + \Delta t | x) = \int W(z, t | x) W(y, t + \Delta t | z, t) dz \quad (\text{A.63})$$

Para reducir escritura en la ecuación (A.63) reescriba $W(y, t + \Delta t | z, t) = W(y, \Delta t | z)$, por lo tanto

$$W(y, t + \Delta t | x) = \int W(z, t | x) W(y, \Delta t | z) dz \quad (\text{A.64})$$

Se desea obtener una ecuación diferencial parcial para la probabilidad de transición $W(y, t | x)$, para esto consideremos

$$\int R(y) \frac{\partial W(y, t | x)}{\partial t} dz = \int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dz \quad (\text{A.65})$$

donde $R(y)$ es una función arbitraria la cual satisface las siguientes condiciones

$$\lim_{y \rightarrow \pm\infty} R(y) = 0 \quad R^n(y) \text{ existe en } y = \pm\infty \quad (\text{A.66})$$

donde n hace referencia a la n -ésima derivada. Aplicando en la ecuación (A.65) la definición de derivada parcial

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy = \int R(y) \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \left[\frac{W(y, t + \Delta t | x) - W(y, t | x)}{\Delta t} \right] dy \quad (\text{A.67})$$

Intercambiando el orden del límite y la integral, y reemplazando la ecuación (A.63) en la ecuación (A.67)

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} \left[\int R(y) \int W(z, t | x) W(y, \Delta t | z) dz dy - \int R(y) W(y, t | x) dy \right] \quad (\text{A.68})$$

Para la segunda integral considere la sustitución $\int R(y) W(y, t | x) dy = \int R(z) W(z, t | x) dz$ donde z es una variable arbitraria

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} \left[\int W(z, t | x) \int R(y) W(y, \Delta t | z) dy dz - \int R(z) W(z, t | x) dz \right] \quad (\text{A.69})$$

Expandiendo $R(y)$ en series de Taylor en el punto $y = z$, de tal forma que $R(y) \simeq R(z) + (y - z)R'(z) + \frac{1}{2}(y - z)^2 R''(z) + \dots$, obteniendo:

$$\begin{aligned} \int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy &= \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} \left[\int R(z) W(z, t | x) \left(\int W(y, \Delta t | z) dy \right) dz + \int W(z, t | x) \right. \\ &\left. \int \left((y - z)R'(z) + \frac{1}{2}(y - z)^2 R''(z) + \dots \right) W(y, \Delta t | z) dy dz - \int R(z) W(z, t | x) dz \right] \quad (\text{A.70}) \end{aligned}$$

donde $\int W(y, \Delta t | z) dy = 1$, luego

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} \left[\int W(z, t | x) \int \left((y - z)R'(z) + \frac{1}{2}(y - z)^2 R''(z) + \dots \right) W(y, \Delta t | z) dy dz \right] \quad (\text{A.71})$$

Definiendo el coeficiente

$$a_n(z, \Delta t) = \int (y - z)^n W(y, \Delta t | z) dy \quad (\text{A.72})$$

Combinando la ecuación (A.72) en la ecuación (A.71), así que

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} \left[\int W(z, t | x) \left(a_1(z, \Delta t) R'(z) + \frac{1}{2} a_2(z, \Delta t) R''(z) + \dots \right) dz \right] \quad (\text{A.73})$$

Intercambiando el orden del límite y la integral, y suponiendo que se pueden despreciar los términos para orden superior, $n > 2$, para una vecindad alrededor de z , obteniendo

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy = \int W(z, t | x) \left(\lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} a_1(z, \Delta t) R'(z) + \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{2 \Delta t} a_2(z, \Delta t) R''(z) \right) dz \quad (\text{A.74})$$

Definiendo los coeficientes

$$D^{(1)}(z, t) = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} a_1(z, \Delta t) \quad D^{(2)}(z, t) = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta t} a_2(z, \Delta t) \quad (\text{A.75})$$

Combinando los coeficientes dados por la ecuación (A.75) en la ecuación (A.74)

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial t} dy = \int W(z, t | x) D^{(1)}(z, t) R'(z) dz + \frac{1}{2} \int W(z, t | x) D^{(2)}(z, t) R''(z) dz \quad (\text{A.76})$$

Para la primera integral de la ecuación (A.76) se resuelve por el método de integración por partes, así que

$$\int W(z, t | x) D^{(1)}(z, t) R'(z) dz = W(z, t | x) D^{(1)}(z, t) R(z) \Big| - \int R(z) \frac{\partial}{\partial z} [W(z, t | x) D^{(1)}(z, t)] dz \quad (\text{A.77})$$

El primer término es igual a cero debido a la condición establecida por la ecuación (A.66)

$$\int W(z, t | x) D^{(1)}(z, t) R'(z) dz = - \int R(z) \frac{\partial}{\partial z} [W(z, t | x) D^{(1)}(z, t)] dz \quad (\text{A.78})$$

El mismo procedimiento se desarrollada para calcular segunda integral de la ecuación (A.76), por lo tanto, se tiene

$$\int W(z, t | x) D^{(2)}(z, t) R''(z) dz = \int R(z) \frac{\partial^2}{\partial z^2} [W(z, t | x) D^{(2)}(z, t)] dz \quad (\text{A.79})$$

Reemplazando la ecuación (A.78) y (A.79) en la ecuación (A.76) se obtiene

$$\int R(y) \frac{\partial W}{\partial z} dy = \int R(z) \left[- \frac{\partial}{\partial z} [W(z, t | x) D^{(1)}(z, t)] + \frac{\partial^2}{\partial z^2} [W(z, t | x) D^{(2)}(z, t)] \right] dz \quad (\text{A.80})$$

Teniendo en cuenta que z es una variable arbitraria se hace $z = y$, obteniendo

$$\int R(y) \left[\frac{\partial W(y, t | x)}{\partial y} dy + \frac{\partial}{\partial t} [W(y, t | x) D^{(1)}(y, t)] - \frac{\partial^2}{\partial y^2} [W(y, t | x) D^{(2)}(y, t)] \right] dy = 0 \quad (\text{A.81})$$

donde $W = W(y, t | x)$. Para que se cumpla la condición de la ecuación (A.81) se establece que

$$\frac{\partial W(y, t | x)}{\partial t} dy = - \frac{\partial}{\partial y} [W(y, t | x) D^{(1)}(y, t)] + \frac{\partial^2}{\partial y^2} [W(y, t | x) D^{(2)}(y, t)] \quad (\text{A.82})$$

La ecuación (A.82) recibe el nombre de ecuación de Fokker-Planck (FP) para un proceso de Markov unidimensional gobernado por la variable aleatoria $\xi(t)$. $D^{(1)}(y, t)$ está definido por

$$D^{(1)}(y, t) = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{[\xi(t + \Delta t) - y(y)]}{\Delta t} \quad (\text{A.83})$$

corresponde al coeficiente de deriva y $D^{(2)}(y, t)$ es el coeficiente de difusión

$$D^{(2)}(y, t) = \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{[\xi(t + \Delta t) - y(y)]^2}{\Delta t} \quad (\text{A.84})$$