

TESIS DE  
DOCTORADO EN FÍSICA

**Films y multicapas con  
nanoestructuras artificiales**

Javier E. Gómez

Director: Dr. Alejandro Butera

Instituto Balseiro  
Centro Atómico Bariloche, CNEA.  
S.C. de Bariloche, Julio 2008.

*a Ana Laura*

# Resumen

En este trabajo hemos estudiado las propiedades magnéticas de diversas multicapas en donde se combinan capas ferromagnéticas continuas y films granulares. La idea central fue observar cómo un espaciador granular media la interacción entre dos capas ferromagnéticas continuas y cómo es afectado el superparamagnetismo de nanopartículas inmersas en un film granular al entrar en contacto con un film ferromagnético continuo.

En primer lugar, y a fin estudiar la interacción entre films separados por un espaciador granular de Fe-SiO<sub>2</sub>, se crecieron dos series de muestras: una simétrica de la forma Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Fe, y otra asimétrica de Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>. En estas series se varió tanto la concentración volumétrica de Fe ( $x$ ) como el espesor ( $t$ ) del espaciador granular.

En segunda instancia se fabricaron muestras de la forma Fe-SiO<sub>2</sub>|Co|Ru|Co|Fe-SiO<sub>2</sub> para observar los efectos que las capas continuas de Co ejercen sobre el superparamagnetismo de las partículas de Fe de las capas granulares.

El estudio se llevó a cabo principalmente con mediciones de resonancia ferromagnética (FMR), realizadas tanto en banda X ( $\nu_r = 9.5$  GHz) como en banda Q ( $\nu_r = 34$  GHz), y mediciones de magnetización DC.

En las dos primeras series de muestras se encontró que el acople es siempre ferromagnético y que el campo de interacción  $H_E$  aumenta al disminuir el espesor del espaciador granular  $t$ . En este tipo de sistemas es posible sintonizar en forma precisa el campo  $H_E$  variando la concentración  $x$ .

Para describir las mediciones de FMR se desarrolló un modelo fenomenológico original con el cual fue posible explicar el comportamiento de los diferentes modos de absorción en función de la concentración  $x$ , el espesor  $t$  y las distintas frecuencias de trabajo  $\nu_r$ , además de obtener una estimación del campo de interacción en las distintas muestras. Los valores del campo de interacción encontrados están en el rango  $\sim 500$  Oe  $< H_E < \sim 3000$  Oe para la serie simétrica y menores a 300 Oe para las muestras asimétricas.

En la serie de muestras Fe-SiO<sub>2</sub>|Co|Ru|Co|Fe-SiO<sub>2</sub> no ha sido posible crecer muestras con la suficiente simetría como para observar los efectos que las capas de Co tienen sobre las nanopartículas de Fe. Sin embargo hemos estudiado en profundidad al sistema Co|Ru|Co encontrándose las condiciones óptimas de crecimiento y los espesores adecuados para obtener un acople antiferromagnético entre las capas de Co. Se estudiaron los efectos que la asimetría entre las capas de Co tiene en estos sistemas y aplicamos un modelo fenomenológico para

describir los resultados observados.

***Palabras claves:*** Multicapas, films granulares, resonancia ferromagnética, sistemas acoplados, campo de intercambio, magnetismo.

# Abstract

In this work we have studied the magnetic properties of several multilayers in which we have combined continuous ferromagnetic and granular films. The main idea of our research was to observe how a granular layer mediates the interaction between two continuous ferromagnetic films and how the superparamagnetism of nanoparticles embedded in a granular film is affected by a continuous ferromagnetic layer.

In order to study the interaction between two films separated by a granular spacer of Fe-SiO<sub>2</sub>, we have grown two series of samples: a symmetric multilayer Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Fe and an asymmetric system Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>. In both series we have varied the Fe volume concentration ( $x$ ) and the thickness ( $t$ ) of the granular spacer.

We have also grown samples of the form Fe-SiO<sub>2</sub>|Co|Ru|Co|Fe-SiO<sub>2</sub> in order to study how the continuous Co layers affect the superparamagnetism of Fe nanoparticles present in the granular layers.

Measurements were made mainly using the ferromagnetic resonance technique (FMR), performed at X band ( $\nu_r = 9.5$  GHz) and Q band ( $\nu_r = 34$  GHz), and DC magnetization experiments.

In the first two series of samples we have found ferromagnetic coupling between the continuous layers. The magnitude of the coupling increases when the spacer thickness  $t$  decreases. In this kind of systems it is possible to tune precisely the magnitude of the exchange field  $H_E$  by varying the value of the concentration  $x$ .

We have developed an original phenomenological model in order to explain the FMR measurements. With the proposed model we were able to describe the behavior of the different absorption modes as a function of the concentration  $x$ , the thickness  $t$  and the frequency  $\nu_r$ . We also could estimate the exchange field  $H_E$  for the different samples. The magnitude of exchange field are in the range  $\sim 500$  Oe  $< H_E < \sim 3000$  Oe for the symmetric series and less than 300 Oe for the asymmetric samples.

In the series of samples Fe-SiO<sub>2</sub>|Co|Ru|Co|Fe-SiO<sub>2</sub> it was not possible to grow samples with enough symmetry so as to observe the effects of the Co layers on the superparamagnetism of the Fe nanoparticles. Despite that, we have widely studied the Co|Ru|Co system finding the optimal growing conditions and spacer thicknesses in order to obtain an antiferromagnetic coupling between the Co layers. We have studied the effects that the asymmetry in the Co layers has on this system and applied a phenomenological theoretical model to

explain the observed results.

**Keywords:** Multilayers, granular films, ferromagnetic resonance, coupled systems, exchange field, magnetism.

# Índice general

<b>Índice general</b>	<b>5</b>
<b>Prólogo</b>	<b>8</b>
<b>1. Introducción general</b>	<b>10</b>
1.1. Sistemas granulares ferromagnéticos . . . . .	10
1.1.1. Arreglos de partículas monodominios . . . . .	11
1.1.2. Superparamagnetismo . . . . .	12
1.1.3. Films granulares ferromagnéticos . . . . .	14
1.2. Films granulares y capas FM continuas . . . . .	16
<b>2. Técnicas de fabricación y caracterización</b>	<b>20</b>
2.1. Técnicas de fabricación . . . . .	20
2.1.1. Magnetron Sputtering DC . . . . .	20
2.1.2. Magnetron Sputtering RF . . . . .	21
Crecimiento de films granulares . . . . .	22
2.2. Caracterización: AES, XPS, XEDS/EDS y TEM . . . . .	24
2.2.1. Espectroscopía de electrones Auger, AES . . . . .	24
2.2.2. Espectroscopía de fotoelectrones, XPS . . . . .	26
2.2.3. Análisis dispersivo en energía de rayos X, XEDS/EDS . . . . .	27
2.2.4. Microscopía de electrones de transmisión, TEM . . . . .	29
2.3. Mediciones de propiedades magnéticas . . . . .	30
2.3.1. Resonancia ferromagnética . . . . .	30
2.3.2. Magnetómetro VSM . . . . .	33
2.3.3. Magnetómetro SQUID . . . . .	34

<b>3. Modelo y aspectos generales</b>	<b>35</b>
3.1. Acople entre dos capas ferromagnéticas . . . . .	35
3.1.1. Energía libre para un sistema de dos capas acopladas . . . . .	36
3.1.2. Ecuación de movimiento . . . . .	37
3.2. Modos de resonancia en sistemas simétricos . . . . .	38
3.2.1. Acople ferromagnético ( $J > 0$ ) . . . . .	39
3.2.2. Acople antiferromagnético ( $J < 0$ ) . . . . .	41
3.3. Modos de resonancia en sistemas asimétricos . . . . .	45
3.3.1. Acople ferromagnético ( $J > 0$ ) . . . . .	45
Susceptibilidad escalar e intensidad de los modos . . . . .	47
Campos de resonancia y relación de intensidades . . . . .	50
3.3.2. Acople antiferromagnético ( $J < 0$ ) . . . . .	54
3.4. Modelo para tricapas . . . . .	55
3.4.1. FM Granular fuertemente acoplado . . . . .	55
3.4.2. Qué se espera a partir del modelo . . . . .	57
Número de modos de resonancia . . . . .	58
Dependencia con los parámetros $t$ y $x$ . . . . .	59
Acople entre $M_{eff}^{(1)}$ y $M_{eff}^{(2)}$ ( $H_E \neq 0$ ) . . . . .	61
<b>4. Fe Fe-SiO<sub>2</sub> Fe (<math>J &gt; 0</math>) caso simétrico</b>	<b>62</b>
4.1. Fabricación y caracterización . . . . .	62
4.2. Magnetización DC . . . . .	65
4.3. Estudio de resonancia ferromagnética . . . . .	69
4.3.1. Variación angular dentro del plano . . . . .	69
4.3.2. Modos ópticos y acústicos . . . . .	70
4.3.3. Aporte del espaciador granular a la señal magnética . . . . .	78
4.4. Conclusiones . . . . .	81
<b>5. Fe Fe-SiO<sub>2</sub> Py (<math>J &gt; 0</math>) caso asimétrico</b>	<b>84</b>
5.1. Fabricación y caracterización . . . . .	84
5.2. Magnetización DC . . . . .	85
5.3. Estudio de resonancia ferromagnética . . . . .	88
5.3.1. Dependencia con los parámetros $t$ y $x$ . . . . .	90

ÍNDICE GENERAL	7
5.3.2. Dependencia con la frecuencia $\nu_r$ . . . . .	92
5.3.3. Relación de intensidades y campo de interacción $H_E$ . . . . .	94
5.3.4. Variaciones angulares . . . . .	98
5.4. Conclusiones . . . . .	98
<b>6. Co Ru Co (<math>J &lt; 0</math>) caso simétrico</b>	<b>101</b>
6.1. Fabricación y caracterización . . . . .	102
6.2. Magnetización DC en el sistema Co Ru Co . . . . .	104
6.3. FMR en el sistema Co Ru Co . . . . .	106
6.3.1. Efectos de la asimetría sobre las mediciones de FMR . . . . .	112
6.4. SAF Granular . . . . .	114
6.5. Conclusiones . . . . .	117
<b>7. Conclusiones generales</b>	<b>119</b>
7.1. Interacción entre capas FM continuas separadas por un espaciador granular	119
7.1.1. Muestras simétricas de Fe Fe-SiO <sub>2</sub>  Fe . . . . .	120
7.1.2. Muestras asimétricas de Fe Fe-SiO <sub>2</sub>  Ni <sub>80</sub> Fe <sub>20</sub> . . . . .	120
7.2. Antiferromagneto sintético y capas granulares . . . . .	121
7.3. Perspectivas . . . . .	121
<b>A. Campo demagnetizante y anisotropías</b>	<b>123</b>
A.1. Campo demagnetizante . . . . .	123
A.2. Anisotropía uniaxial . . . . .	125
A.3. Interacción de intercambio . . . . .	125
<b>B. Tensor susceptibilidad</b>	<b>126</b>
<b>C. Sobre la orientación de la microonda</b>	<b>128</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>130</b>
<b>Publicaciones</b>	<b>133</b>
<b>Agradecimientos</b>	<b>135</b>

# Prólogo

A lo largo de la historia de los materiales magnéticos sus propiedades han resultado útiles, no sólo por su facultad de interactuar a distancia con ciertos objetos, sino por las diferentes aplicaciones que se fueron desarrollando con el paso del tiempo.

Desde la construcción de la brújula aproximadamente 2400 años antes de Cristo en China, hasta el descubrimiento de la magnetorresistencia gigante (premio Nóbel de física 2007), innumerables aplicaciones en distintas áreas como ser electrónica, medicina, computación y la industria en general han sido registradas. Estas aplicaciones, junto a la investigación básica, han proporcionado cuantiosos avances en la comprensión de las propiedades magnéticas en estos materiales.

Debido al surgimiento de nuevas tecnologías que dieron la posibilidad de fabricar, manipular y caracterizar materiales de dimensiones nanométricas ( $1 \text{ nm} = 10^{-9} \text{ m}$ ), en las últimas dos décadas ha nacido un gran interés en el estudio de sistemas donde se combinan el magnetismo y las nanoestructuras. Esto ha dado paso a una gran diversidad de nanoestructuras magnéticas artificiales como ser nanohilos, nanotubos, films y multicapas, nanopartículas, entre otras, cuyas propiedades y aplicaciones están aún siendo estudiadas y desarrolladas [1].

Entre las particularidades de confinar las dimensiones en materiales magnéticos, con la finalidad de desarrollar un sistema nanoestructurado se tienen:

- **Aumento de la relación superficie/volumen**

Una característica de las nanoestructuras es su alta relación superficie/volumen, jugando muchas veces los efectos superficiales un papel importante en el comportamiento magnético de la muestra [2, 3].

- **División en dominios no favorables**

La división en dominios magnéticos con la finalidad de reducir la energía magnetoestática a expensas de la creación de paredes de dominios no resulta favorable por debajo de cierto tamaño crítico (el cual depende del material y de las anisotropías presentes, pero es alrededor de unas pocas decenas de nanómetros [4]).

- **Efectos cuánticos**

A escalas nanométricas algunos efectos regidos por la mecánica cuántica pueden ser apreciados y medidos. Entre los más relevantes podemos mencionar el *tunneling* cuántico del momento magnético [5] y la interacción RKKY en tricapas FM|M|FM [6], donde

FM es un material ferromagnético y M un metal no magnético. En la actualidad están siendo muy estudiadas las junturas túneles magnéticas, dispositivos que sirven para generar corrientes eléctricas polarizadas en espín, con aplicaciones en la construcción de memorias de acceso aleatorio no volátiles (MRAM) [7].

Estas características, entre otras, son responsables de que las propiedades magnéticas en los sistemas nanoestructurados no sean las mismas que en los materiales macizos.

Los sistemas granulares, en particular, actualmente son de amplia utilidad en la fabricación de medios de grabación magnética [8], y sistemas multicapas son empleados como sensores de campo, aprovechando el fenómeno de magnetorresistencia gigante [9]. La constante búsqueda en la optimización de las propiedades deseadas en estas nanoestructuras, hacen de ellas un atractivo para la investigación aplicada, además del desafío en la comprensión desde el punto de vista de la ciencia básica que tienen estos sistemas.

Motivados por la diversidad de fenómenos físicos que pueden observarse en estas nanoestructuras, en este trabajo nos dedicamos a fabricar, caracterizar y explorar las propiedades magnéticas en sistemas de multicapas donde intervienen capas granulares. Nuestro objetivo fue fabricar muestras en las cuales fuera posible medir la respuesta magnética, estática y dinámica, con la finalidad de caracterizar el comportamiento magnético de las mismas.

# Capítulo 1

## Introducción general

La nanociencia es un área multidisciplinaria que puede agrupar distintas ramas de la física, biología, química o medicina, por mencionar algunas de las tantas disciplinas que pueden enmarcarse en este contexto. El estudio de las propiedades magnéticas en nanoestructuras no es ajena a esta corriente de investigación y los estudios han dado numerosos aportes para la utilización y la comprensión de tales sistemas. En particular las multicapas magnéticas y los sistemas granulares (partículas de tamaño nanométrico dispersas en una matriz inmisible) han sido ampliamente estudiados por distintos investigadores. Uno de los pioneros en la investigación de sistemas granulares fue B. Abeles [10] quien estudió en detalle la relación entre la microestructura, el magnetismo y el transporte eléctrico en estos sistemas. Hoy en día, dos films granulares acoplados antiferromagnéticamente a través de un espaciador de Ru conforman el componente físico en donde se guarda la información en los medios de almacenamiento magnético que utilizan las computadoras personales [8]. Otro ejemplo de nanoestructuras en multicapas lo podemos encontrar en los sistemas que presentan magnetorresistencia. Dentro de esta área de investigación las válvulas de espín se usan actualmente como transductores de lectura en los cabezales de discos duros [8]. Por otra parte las multicapas con espaciadores aislantes han despertado grandes expectativas en cuanto a sus posibles aplicaciones en memorias no volátiles de acceso aleatorio (MRAM) [7]. Así la combinación de films continuos y granulares permiten construir artificialmente sistemas que ofrecen mucho interés debido a sus singulares propiedades magnéticas y de transporte eléctrico.

### 1.1. Sistemas granulares ferromagnéticos

Los materiales granulares ferromagnéticos consisten en partículas ferromagnéticas (FM) de tamaño nanométrico dispersas en una matriz inmisible, la cual puede ser aislante o metálica. El atractivo en estos sistemas radica en su particular nanoestructura y en las propiedades magnéticas que pueden ser alteradas cambiando la concentración de granos presentes en la muestra o el diámetro de los mismos, pudiéndose pasar paulatinamente de una situación con granos poco interactuantes a otra de granos fuertemente acoplados.

En un caso ideal, donde los granos tienen el mismo diámetro, el parámetro que gobierna esta propiedad es la fracción volumétrica de material FM ( $x$ ) presente en la muestra [11]. Como es sabido, los materiales ferromagnéticos macizos como ser el Fe, Co o Ni presentan divisiones en dominios los cuales cierran las líneas de campo dentro del material, reduciendo la energía magnetoestática a expensas de la creación de paredes de dominios [12]. En los materiales granulares el tamaño de la nanopartícula impide la formación de dominios dentro de los granos debido a lo reducido de su tamaño, conformándose partículas monodominios con un momento magnético grande  $\vec{\mu}$  (una partícula de Fe de 5 nm de diámetro puede tener hasta  $|\vec{\mu}| = 11500 \mu_B$ ). Estos granos monodominio interactúan fuerte o débilmente entre sí dependiendo del valor de  $x$ , siendo esto consecuencia de la nanoestructura que cambia dramáticamente las propiedades magnéticas respecto de los materiales macizos. La orientación del vector  $\vec{\mu}$  de cada partícula, en ausencia del campo externo, queda definida por la anisotropía  $K$  del grano que puede ser magnetocristalina, de forma, superficial, inducida por tensiones o de algún otro origen (ver Apéndice A).

### 1.1.1. Arreglos de partículas monodominios

En un sistema granular cuando la concentración  $x$  es pequeña, se tiene una colección de partículas monodominio poco interactuantes entre sí, con sus ejes de anisotropía generalmente distribuidos al azar. En estas condiciones y en ausencia del campo externo,  $\vec{\mu}_i$  (el momento de la partícula  $i$ ) puede estar en uno u otro sentido del eje de fácil magnetización ya que ambos son energéticamente equivalentes, pero separados por una barrera de energía  $KV$ , donde  $V$  es el volumen de la nanopartícula, ver Fig. 1.1. Debido a que la partícula permanece fija en el espacio anclada a la matriz, sólo el vector  $\vec{\mu}_i$  puede rotar en presencia del campo magnético externo.

En la Fig. 1.2 se observa un gráfico teórico de magnetización en función del campo  $H$  para el sistema recién descrito de nanopartículas monodominio no interactuantes con los ejes de anisotropía distribuidos al azar. Al inicio de la curva, cuando  $H$  es cero, se tiene un valor nulo de  $M$ . Este valor es debido a que los momentos magnéticos están orientados sobre los ejes fáciles con igual probabilidad en un sentido u otro, lo que genera que la magnetización promedie cero en esta situación. La saturación  $M_s$  se logra cuando el campo es suficientemente grande como para orientar el momento de las partículas en la dirección de éste. El valor de la magnetización remanente es exactamente  $M_r = M_s/2$  debido a que el sentido de los momentos ya no es arbitrario, sino que está en el hemisferio más cercano al sentido del campo que previamente saturó la magnetización. En un sistema de este tipo se espera que el campo coercitivo ( $H_c$ ) sea mayor que en un sistema masivo ya que la coercitividad está relacionada con la barrera de energía  $KV$  que debe ser vencida por el campo  $H$ . En casos en que las partículas tengan un tamaño suficiente como para tener divisiones en dominios magnéticos, el campo coercitivo disminuye debido a la presencia de otros mecanismos de inversión de la magnetización [13].

Una vez lograda la saturación del sistema, la curva virgen no es recuperada sino hasta que la muestra es desmagnetizada, por ejemplo calentándola hasta llegar al régimen super-

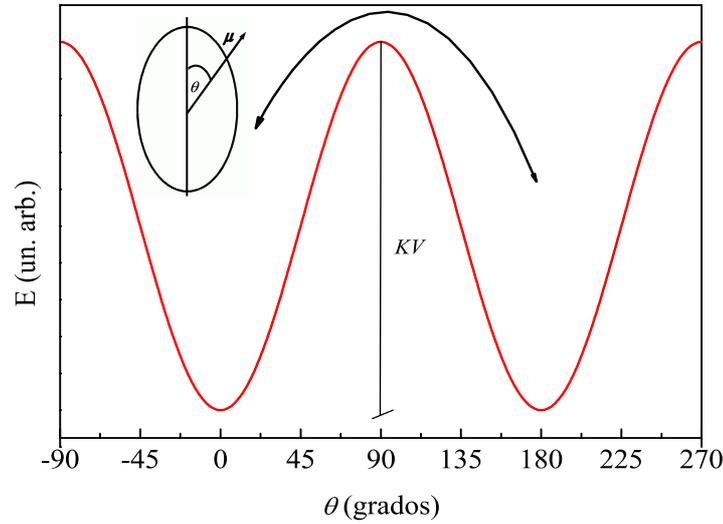


Figura 1.1: Esquema de una partícula con momento magnético  $\vec{\mu}$ , anisotropía  $K$  y volumen  $V$  (inset) junto a su correspondiente gráfico angular de energía de anisotropía para el caso en que el campo externo es nulo ( $H = 0$ ).

paramagnético el cual describimos a continuación.

### 1.1.2. Superparamagnetismo

A temperaturas suficientemente altas, la barrera energética de una partícula monodominio ( $KV$ ) puede ser superada por la agitación térmica. En consecuencia los momentos magnéticos internos de la nanopartícula rotan coherente y rápidamente en uno y otro sentido del eje fácil. Este régimen es conocido como superparamagnético por el parecido con el estado paramagnético. Para describir el tiempo de relajación superparamagnético se utiliza una ley experimental similar a la ley de Arrhenius [14].

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{KV}{k_B T}}, \quad (1.1)$$

donde  $\tau$  es el tiempo de relajación del momento magnético,  $\tau_0$  es un tiempo característico ( $\tau_0 \sim 10^{-9}$  seg. [14]),  $k_B$  la constante de Boltzman y  $T$  la temperatura absoluta. De esta manera si en un experimento para determinar alguna propiedad magnética, el tiempo de medición experimental  $\tau_m$  es menor que  $\tau$ , el experimento detectará el estado ferromagnético de las nanopartículas donde la agitación térmica no tiene suficiente tiempo para vencer la barrera energética  $KV$  y así fluctuar la orientación de los vectores  $\vec{\mu}_i$ . En este caso se observa un estado congelado del sistema que se lo denomina *régimen bloqueado*.

Por el contrario si  $\tau_m$  es mayor que  $\tau$  el experimento detecta las fluctuaciones magnéticas

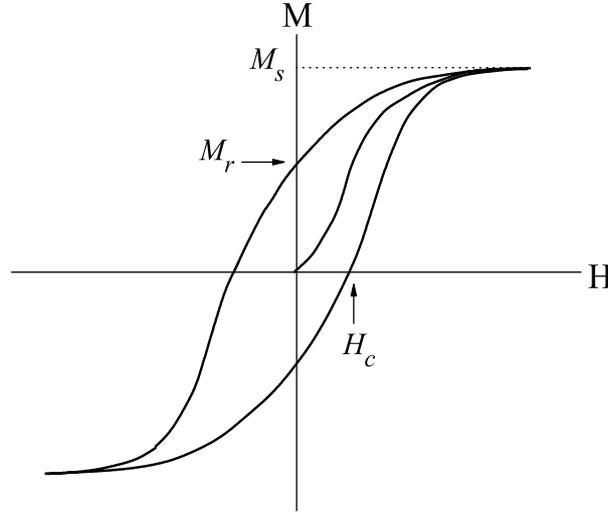


Figura 1.2: Ciclo de histéresis esperado para un arreglo de partículas monodominio con los ejes fáciles orientados al azar (figura adaptada de la referencia [11]).

en las partículas generadas por la energía térmica. A esta situación se la denomina *régimen superparamagnético*.

Fijado el tiempo de medición de un instrumento se puede definir la temperatura de bloqueo como

$$T_B = \frac{KV}{k_B \ln(\frac{\tau_m}{\tau_0})}. \quad (1.2)$$

Así para un determinado instrumento de medición cuando  $T < T_B$  se detecta el régimen bloqueado, como en el ejemplo de la sección anterior para un arreglo de partículas monodominio no interactuantes. En cambio cuando  $T > T_B$  se está en presencia del régimen superparamagnético.

Dentro del régimen superparamagnético la magnetización del sistema en función del campo responde a una función de Langevin [11]

$$\frac{M(H)}{M_0} = \coth\left(\frac{\mu H}{k_B T}\right) - \frac{k_B T}{\mu H}, \quad (1.3)$$

donde  $M_0$  es la magnetización de saturación y  $\mu$  el momento magnético de los granos monodominio (suponiendo que todas las partículas son del mismo tamaño). Esta función corresponde a una curva con remanencia y campo coercitivo nulos.

En la Fig 1.3 se observa un conjunto de curvas de magnetización en función de  $H/T$ , realizadas sobre una misma muestra de nanopartículas de  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  a diferentes temperaturas.

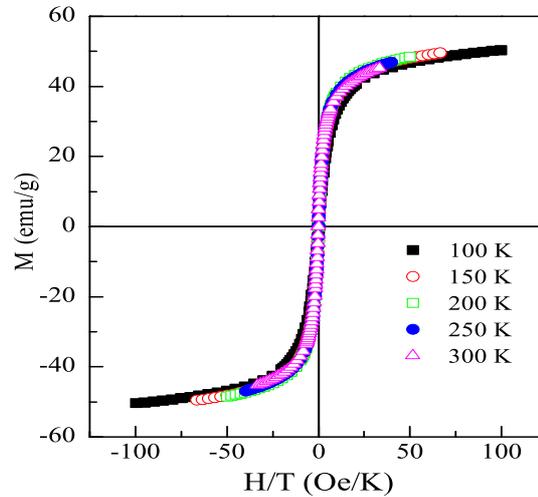


Figura 1.3: Curvas de magnetización en función de  $H/T$  de un sistema de nanopartículas no interactuantes de  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Las partículas tienen aproximadamente 6 nm de diámetro con una dispersión de 0.22 nm y fueron diluidas de tal manera que están separadas por  $\sim 40$  nm [15].

Tal como es predicho por la Ec. 1.3 y se observa en la figura, las mediciones colapsan en una curva universal en función de esta variable ( $H/T$ ) [15].

Cuando crece la concentración del material ferromagnético en un film granular, las interacciones entre partículas juegan un papel importante. En primer lugar debido a la presencia de interacciones dipolares y a concentraciones mayores por las interacciones de intercambio. En estas situaciones la teoría del superparamagnetismo debe ampliarse ya que no sólo el campo de anisotropía de la nanopartícula afecta la orientación de su momento magnético, sino que las interacciones con otras partículas también tienen un aporte significativo. Esta es una situación mucho más compleja y ha sido estudiada por diferentes autores [16].

### 1.1.3. Films granulares ferromagnéticos

Los films granulares ferromagnéticos consisten en un conjunto de partículas FM acomodadas en un plano y diluidas en una matriz inmisible no magnética. Anteriormente a este trabajo hemos investigado en detalle films granulares con espesores menores a 100 nm de  $\text{Fe-SiO}_2$  y  $\text{Co-SiO}_2$  [2, 3]. Estos sistemas presentan la posibilidad, dependiendo del valor de  $x$ , de estudiar desde un arreglo de granos poco interactuantes acomodados en un plano hasta un film continuo de Fe (o Co), así como el cruce desde una situación a la otra. En otras palabras se puede estudiar el cambio paulatino de un sistema de baja dimensionalidad (0D) a otro bidimensional (2D). Los parámetros que caracterizan a este sistema son la concentración

volumétrica de Fe  $x$  y el espesor del film  $t$ .

Como fue mencionado anteriormente la anisotropía de forma influye sobre la orientación de la magnetización. En particular para un film de magnetización  $M$  se tiene un plano fácil con campo demagnetizante igual a  $4\pi M$  (ver apéndice A, Ec. A.5). Sin embargo en films granulares, por ejemplo de  $\text{Co}(x)\text{-SiO}_2(1-x)$ , se tiene que la magnetización de saturación por unidad de volumen es  $xM_{\text{Co}}$ , diferente a la del Co la cual es  $M_{\text{Co}} = 1400 \frac{\text{emu}}{\text{cm}^3}$ .

Si bien no está completamente claro cual es el valor del campo demagnetizante en estos sistemas experimentalmente, a partir de mediciones de FMR, se obtiene que éste se aproxima a  $4\pi xM_{\text{Co}}$ , por lo menos en la región en que  $x$  es mayor que  $x_p$ , siendo  $x_p$  la concentración de percolación magnética a partir de la cual empieza a dominar la interacción de intercambio entre los granos y el film granular muestra un comportamiento de film continuo. Por el contrario en la región  $x < x_p$  el campo demagnetizante tiende paulatinamente a cero anulándose a una concentración cercana a  $x = 0.18$  [3], en esta región de concentración se esperan interacciones dipolares entre los granos, cuya magnitud disminuya al bajar  $x$ .

La presencia del campo demagnetizante tiende a llevar la magnetización al plano del film, así los espectros de un experimento de resonancia con el campo aplicado en el plano difieren de aquellos en los que el campo se aplica en la dirección perpendicular. En la Fig 1.4 se presentan los campos de resonancia medidos en las configuraciones paralela y perpendicular al plano, realizados en films granulares de  $\text{Co-SiO}_2$  de 100 nm de espesor en función de la concentración  $x$ . En la misma se observa que para valores bajos de  $x$  prácticamente no existe diferencia entre aplicar el campo paralelo o perpendicular debido a que los granos, distribuidos al azar, están muy dispersos e interactúan poco entre sí, sin llegar a definir un plano. Cuando la concentración crece, en la región  $x < x_p \sim 0.37$ , la interacción dipolar genera un efecto de campo demagnetizante el cual tiende a llevar la magnetización al plano. A partir de  $x = x_p$  los campos de resonancia son similares a los esperados para un film con magnetización igual a  $xM_{\text{Co}}$ .

Es interesante la región próxima a la concentración de percolación, tanto en muestras de  $\text{Co-SiO}_2$  como en muestras de  $\text{Fe-SiO}_2$ , debido a la aparición de modos de resonancia adicionales en las medidas de FMR. Estas líneas adicionales corresponden a modos de precesión no uniformes de la magnetización. En particular en las muestras de  $\text{Fe-SiO}_2$  se observan ondas estacionarias de espín mientras que en las muestras de  $\text{Co-SiO}_2$  se ven modos superficiales, ver Fig. 1.5. Ambos fenómenos están asociados a efectos superficiales propios de la naturaleza nanoestructurada del film, habiendo un paulatino aumento de estos efectos a medida que el valor de  $x$  crece respecto de  $x_p$  [2, 3].

Por otra parte los ciclos de magnetización muestran dos comportamientos bien diferenciados dependiendo del valor de la concentración  $x$ . Para concentraciones mayores a la de percolación, los ciclos son relativamente cuadrados y presentan histéresis con campos coercitivos mayores a los esperados en un film simple de Co, ver Fig. 1.6 a). Cuando la concentración es menor a la de percolación los ciclos corresponden a un sistema de nanopartículas en el régimen superparamagnético con campo coercitivo y remanencia igual a cero (Fig. 1.6 b)).

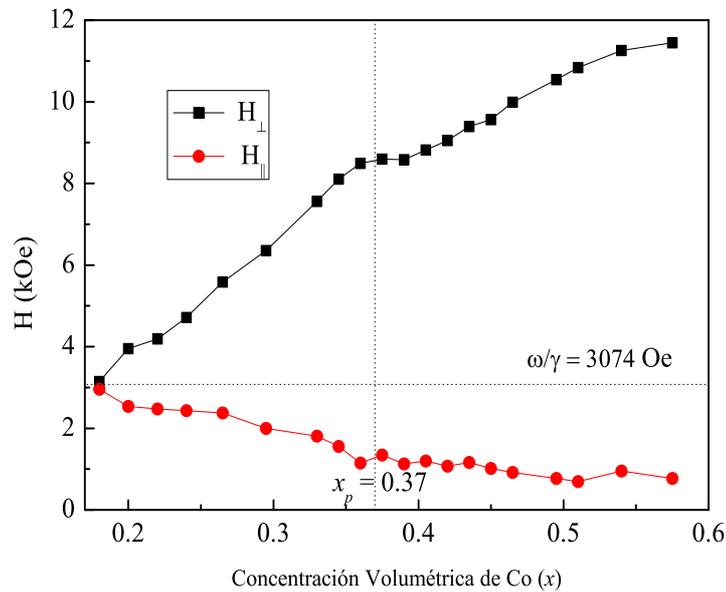


Figura 1.4: Campos de resonancia en función de la concentración volumétrica de Co. Para realizar estas mediciones el campo externo fue aplicado paralelo y perpendicular al plano del film. En línea de trazos se muestra el valor del campo de resonancia esperado para un arreglo de partículas monodominios no interactuantes y además se señala la concentración de percolación magnética del sistema [3].

## 1.2. Films granulares y capas FM continuas

La interacción entre dos capas ferromagnéticas continuas separadas por diferentes espaciadores ha sido estudiada por numerosos autores [17, 18] y en los últimos años han estado en boga una serie de multicapas cuyas propiedades, relacionadas con el acoplamiento, resultan por demás novedosas. Un ejemplo muy reciente de estas propiedades es la transferencia de momento de espín que produce una corriente polarizada sobre la magnetización de una capa ferromagnética conductora. Para observar estos efectos se construyen junturas túnel o válvulas de espín por las que se hace circular una corriente en la dirección perpendicular al plano definido por las capas, tal como es esquematizado en la Fig. 1.7 a). La primera capa ferromagnética polariza la corriente y esta ejerce un torque sobre la magnetización de la segunda capa ferromagnética. Dependiendo de la intensidad de esta corriente, el torque puede ser mayor o menor que los mecanismos de relajación (*damping*) propios de la magnetización.

En particular cuando la transferencia de momento se produce en presencia de un campo magnético estático es posible excitar ondas coherentes de espines en la capa sobre la que actúa el torque. La frecuencia de estas ondas están en el rango de 1-20 GHz y depende de la magnitud de la corriente inyectada. Este fenómeno va acompañado de la emisión

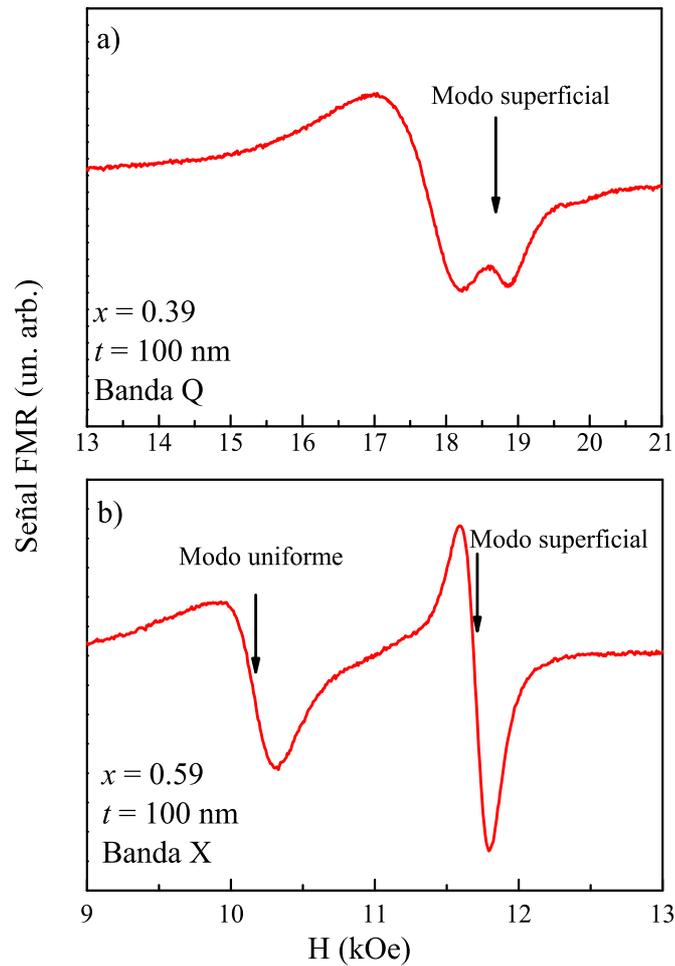


Figura 1.5: Espectros de resonancia donde se observan los modos superficiales en muestras de Co-SiO<sub>2</sub>. Entre los paneles a) y b) se puede apreciar el aumento en la relación de intensidad respecto del modo uniforme al incrementarse el valor de  $x$  respecto de la concentración de percolación  $x_p = 0.37$  [3].

monocromática de microondas generadas por estas ondas de espines. En la Fig. 1.7 b) se muestra un gráfico de la amplitud de la señal de microonda irradiada en función de la frecuencia. En la misma se indican las magnitudes de la corriente inyectada que generan los distintos picos. Los detalles de este sistema emisor de microondas y otros fenómenos similares, junto a sus potenciales aplicaciones se encuentran explicados en las referencias [7, 19, 20].

En este trabajo nos dedicamos a estudiar sistemas multicapas donde intervienen capas granulares, ya que los sistemas granulares utilizados como espaciador no han sido muy investigados, siendo sus resultados aún no muy conocidos. Varias expectativas surgen de estos

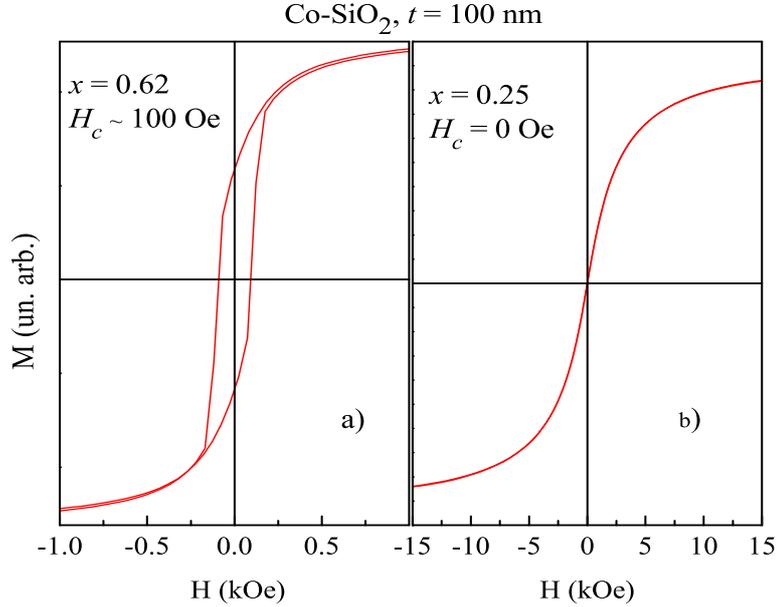


Figura 1.6: Ciclos de magnetización DC para dos films granulares de 100 nm de espesor. La medición a) corresponde a una muestra con concentración  $x = 0.62$  y la b) a otra con  $x = 0.25$ . Notar la diferencia en las escalas de campo magnético.

sistemas tanto en función de la concentración volumétrica  $x$ , como del espesor  $t$  del espaciador granular, expectativas en cuanto a cómo las capas ferromagnéticas continuas puedan afectar al superparamagnetismo de los granos (en la región  $x < x_p$ ) y en cómo la capa granular media la interacción entre las capas continuas (en la región  $x > x_p$ ).

Tres clases de multicapas fueron fabricadas para estudiar estos efectos

- Fe | Fe-SiO<sub>2</sub> | Fe
- Fe | Fe-SiO<sub>2</sub> | Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>
- Fe-SiO<sub>2</sub> | Co | Ru | Co | Fe-SiO<sub>2</sub>

Las dos primeras clases de muestras fueron crecidas para estudiar la interacción entre las capas continuas a través del granular, se crecieron series en donde se varió tanto la concentración de Fe como el espesor del espaciador granular, siempre con una concentración de Fe superior a la de percolación.

La última serie fue crecida para observar el efecto que ocasiona la capa ferromagnética continua de Co sobre la capa granular. En este caso la concentración de Fe de la capa granular es inferior a la de percolación, para poder observar los efectos sobre el superparamagnetismo de las partículas.

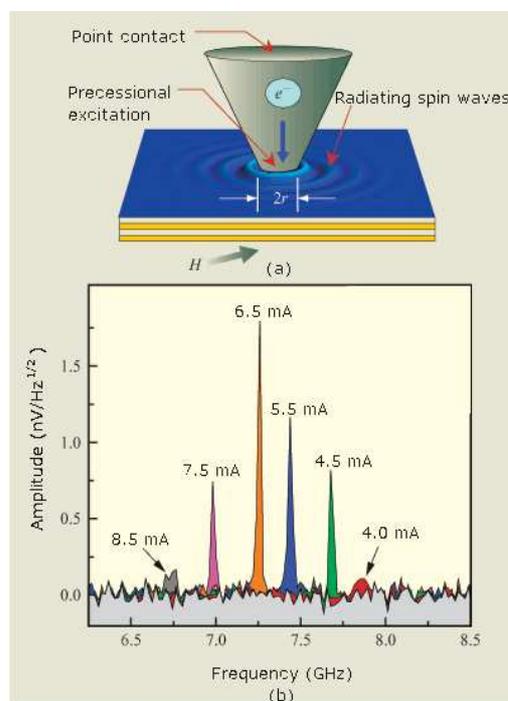


Figura 1.7: a) Configuración experimental de un sistema multicapa emisor de microondas. b) Amplitud de la señal de microonda generadas a través de ondas de espines. La figura fue adaptada de la referencia [7].

# Capítulo 2

## Técnicas de fabricación y caracterización

La tarea de este trabajo consistió en la fabricación, caracterización, medición, análisis e interpretación de los resultados sobre las distintas muestras de interés. A continuación realizamos una descripción de las técnicas empleadas para la fabricación, la caracterización y las mediciones de las propiedades magnéticas.

### 2.1. Técnicas de fabricación

La fabricación de nanoestructuras magnéticas es un punto de crucial importancia debido a que de ésta depende la calidad de la muestra, así como también la posibilidad o no de controlar el tamaño de las dimensiones confinadas. Los films y multicapas estudiadas en este trabajo fueron crecidas por pulverización catódica con campos magnéticos confinantes (*magnetron sputtering*). Esta técnica es ampliamente utilizada tanto en la fabricación de muestras para investigación como para fines comerciales en microelectrónica, vidrios arquitectónicos, discos de grabación magnéticos y la industria de los semiconductores, entre muchas otras. La simplicidad del proceso, la baja rugosidad en los films obtenidos, la posibilidad de crecer con altos ritmos de deposición, junto con un razonable control en el espesor del film, son algunas de las ventajas que han favorecido la amplia utilización de este método frente a otros como ser evaporación por calentamiento térmico o electrodeposición. Sin embargo, aparecen complicaciones al momento de crecer monocapas atómicas en forma controlada o al intentar realizar *in situ* algún tipo de estudio o control del film crecido, existiendo métodos más adecuados como MBE (molecular beam epitaxy) para tales fines.

#### 2.1.1. Magnetron Sputtering DC

El proceso de sputtering consiste en un bombardeo iónico, que consigue el desprendimiento de material desde un blanco para depositarlo en un sustrato, en nuestro caso ubicado a

aproximadamente 5 cm por encima del blanco. El fenómeno de sputtering fue observado por primera vez a mediados del siglo XIX, pero recién alrededor de 1940 cobró cierta importancia en el ambiente científico y se popularizó su utilización a mediados de la década del 70, debido a la aparición del magnetron sputtering.

En esta técnica un plasma de iones de argón es acelerado hacia el blanco mediante un campo eléctrico. La diferencia de potencial establece una corriente eléctrica entre el cátodo y el ánodo constituida por iones y electrones. El voltaje se establece entre el blanco (cátodo) y el ánodo provocando que los iones de argón golpeen al blanco con energía suficiente para arrancar átomos de la superficie mediante un proceso de transferencia de momento. Cuando el ion golpea a la superficie del material, transfiere parte de su energía a los átomos que lo forman produciendo una colisión en cascada. Las múltiples colisiones hacen posible que algunos átomos del material adquieran la suficiente energía para abandonar la superficie, alcanzar el sustrato y adherirse a él para formar una película. El proceso de colisión también genera electrones secundarios que a la vez pueden ionizar más átomos de argón. Además muchos iones de argón pueden recombinarse con electrones, neutralizándose y emitiendo una luz de color azulada característica de este proceso. Parte de la energía proporcionada por los iones incidentes se transforma en calor, siendo éste disipado mediante un circuito de refrigeración que evita el sobrecalentamiento de los componentes presentes en el proceso.

Para aumentar el ritmo de deposición es necesario aumentar la cantidad de iones de argón en las cercanías del blanco. Esto se consigue mediante la aplicación de campos magnéticos perpendiculares al campo eléctrico que genera la descarga. De esta forma los electrones generados quedan confinados en una región cercana a la superficie del cátodo y son forzados a recorrer trayectorias helicoidales, paralelas a la superficie del cátodo, consiguiendo así ionizar a su paso una mayor proporción de átomos de argón en la cercanía del blanco con el consiguiente aumento del ritmo de deposición. El campo magnético está creado por imanes situados en línea por debajo del cuerpo del cátodo. Esta configuración recibe el nombre de *Magnetron Sputtering DC* [21], ver esquema en la Fig. 2.1.

Entre las ventajas podemos decir que permite el crecimiento a presiones de argón relativamente bajas ( $\sim 3$  mTorr), aumenta notablemente la eficiencia del bombardeo iónico sobre el blanco (aumentando el ritmo de deposición) y permite usar tensiones de trabajo relativamente bajas (del orden de 300 V).

Una desventaja del magnetron sputtering es que la erosión del blanco no es uniforme, existiendo una gran porción de éste que no es aprovechado. Esto es debido a que el sputtering es más intenso donde las líneas de campo magnético son paralelas a la superficie del cátodo, el resultado visible es que el blanco se erosiona en forma de círculo.

### 2.1.2. Magnetron Sputtering RF

Cuando el blanco es un material no conductor no es posible establecer una corriente entre el ánodo y el cátodo, debido a que el blanco es aislante, por este motivo una configuración de sputtering DC no funcionaría. La solución a este problema se consigue utilizando una tensión

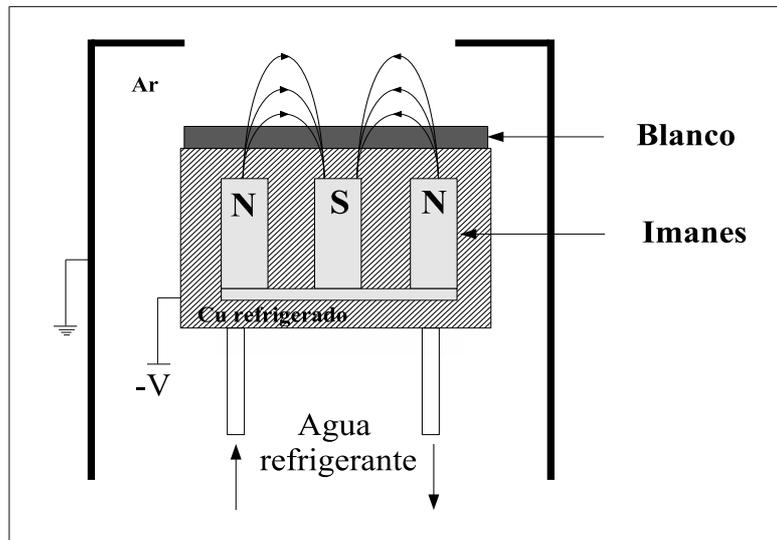


Figura 2.1: Esquema del sistema de magnetron sputtering. La diferencia de potencial produce iones de argón que son acelerados hacia el blanco de donde levanta partículas para ser depositadas en un sustrato. La configuración de imanes hace más efectiva la ionización del argón en las cercanías del blanco.

alterna ( $\sim 13.5$  MHz en nuestro caso) la cual define la técnica de *magnetron sputtering RF* que fue diseñada para permitir el sputtering de materiales dieléctricos y con la ventaja de poder usarse también con blancos metálicos.

Distintos factores, que se detallan en la referencia [21], ocasionan que los iones de argón colisionen contra el blanco provocando el desprendimiento de material del mismo. Además, esta técnica RF requiere de la adaptación de impedancias para asegurar que la potencia entregada se absorba en el plasma, agregando un extra al costo y complejidad del equipo.

### Crecimiento de films granulares

Para crecer los films granulares se utilizó la técnica de sputtering RF usando un blanco circular de  $\text{SiO}_2$  de 20 cm de diámetro cubierto por una lámina semicircular de Fe. Esta disposición de blanco mixto permite crecer partículas de Fe de unos pocos nanómetros de diámetro embebidas en una matriz de  $\text{SiO}_2$ . El film depositado sobre la parte del sustrato enfrentada a la lámina de Fe contiene abundante cantidad de granos de Fe, mientras que el otro extremo es rico en  $\text{SiO}_2$  (Ver esquema en la Fig. 2.2). De esta manera se consigue un cambio de composición en la capa granular de aproximadamente 0.5 % por mm. Del sustrato se cortan pequeñas muestras cuadradas (de algunos mm de lado) dentro de las cuales el valor de la concentración volumétrica de Fe  $x$  cambia muy poco. Así se asigna a cada muestra un valor nominal de  $x$  y este valor aumenta en muestras extraídas de zonas con alto valor de  $z$  (Fig. 2.2).

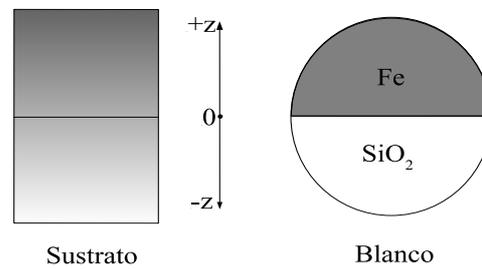


Figura 2.2: Esquema del blanco mixto utilizado para la producción de films granulares. La zona del sustrato enfrentada a la lámina de Fe contiene mayor cantidad de granos de Fe mientras que la zona opuesta es rica en  $\text{SiO}_2$ .

La producción de films granulares utilizando blancos mixto es una técnica bien conocida, lográndose una distribución relativamente uniforme de granos y valores muy bajos en la rugosidad del film. En la (Fig. 2.3) se muestra una imagen obtenida en el microscopio electrónico de transmisión donde se aprecia una distribución homogénea de granos de aproximadamente 5 nm de diámetro de forma irregular<sup>1</sup>.

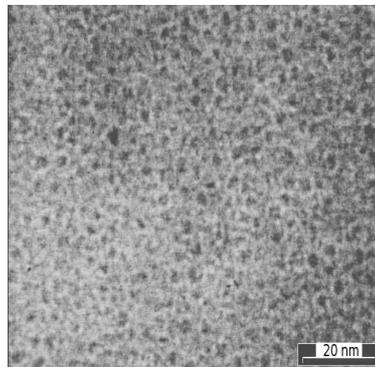


Figura 2.3: Fotografía de microscopía electrónica de transmisión de una muestra granular de  $\text{Fe-SiO}_2$ , las zonas oscuras corresponden a la especie ferromagnética mientras que las más claras a la matriz de  $\text{SiO}_2$ . Se puede apreciar una distribución relativamente uniforme de granos con aproximadamente 5 nm de diámetro.

Sin embargo debido a la diferencia en el ritmo de deposición entre el  $\text{SiO}_2$  y el Fe, suele presentarse una diferencia en el espesor del film granular entre las zonas con bajo valor de  $x$  respecto de las que tienen un valor más alto. Así el espesor de las muestras que están

<sup>1</sup>El tamaño de los granos difiere con el espesor del film granular.

enfrentadas al centro del target mixto pueden ser hasta un 20 % más gruesas que las extraídas del extremo rico en SiO<sub>2</sub> y un 20 % más delgadas que aquellas ubicadas en el otro extremo.

## 2.2. Caracterización: AES, XPS, XEDS/EDS y TEM

La caracterización es una parte integral del proceso de investigación de las nanoestructuras. Debido a las dimensiones reducidas que se manipulan en esta clase de sistemas, el equipo de caracterización debe ser adecuado para brindar información a estas escalas de tamaño. A continuación describimos algunas de las técnicas disponibles, las cuales fueron utilizadas en el estudio de nuestros sistemas granulares y multicapas.

### 2.2.1. Espectroscopía de electrones Auger, AES

Cuando electrones con suficiente energía cinética colisionan con un átomo, existe una gran probabilidad de que un electrón de niveles internos cercanos al núcleo sea arrancado dejando una vacancia.

La relajación de esta vacancia puede implicar dos procesos que compiten entre sí: la emisión de rayos X característicos o la emisión de un electrón del mismo átomo con energía cinética también característica.

En las emisiones Auger el mecanismo por el cual este átomo ionizado relaja a un estado de menor energía es a través de otro electrón del mismo átomo, pero de un nivel más externo, el cual llena la vacancia mientras que otro electrón es emitido (ver Fig. 2.4), este último recibe el nombre de electrón Auger.

Para identificar una transición Auger se emplean 3 distintivos, el primero corresponde al estado inicial y los otros dos al estado final doblemente ionizado, así la transición mostrada en la Fig.2.4 se identifica como  $KL_1L_2$ .

La energía cinética ( $K_E$ ) que lleva el electrón Auger es [22]

$$K_E(KL_1L_2) = E_{N-1}(K) - E_{N-2}(L_1, L_2), \quad (2.1)$$

esta no depende de la energía de los electrones incidentes sino de la diferencia de energía de los niveles iniciales ( $E_{N-1}(K)$ ) y finales ( $E_{N-2}(L_1, L_2)$ ). Los índices ( $N - i$ ) indican el grado de ionización del átomo, de esta manera la transición es característica de cada elemento. Si el electrón Auger proviene de la banda de valencia de un sólido se emplea el distintivo  $V$  para identificar la transición.

El proceso de emisión de un electrón Auger puede ser inducido tanto por el bombardeo con electrones como por fotones de rayos X, en general se utilizan electrones porque son más fáciles de manipular que los rayos X. Para distinguir estas dos situaciones, se llama XAES cuando el bombardeo se realiza con rayos X.

En resumen, el proceso de emisión de un electrón Auger depende de varios factores

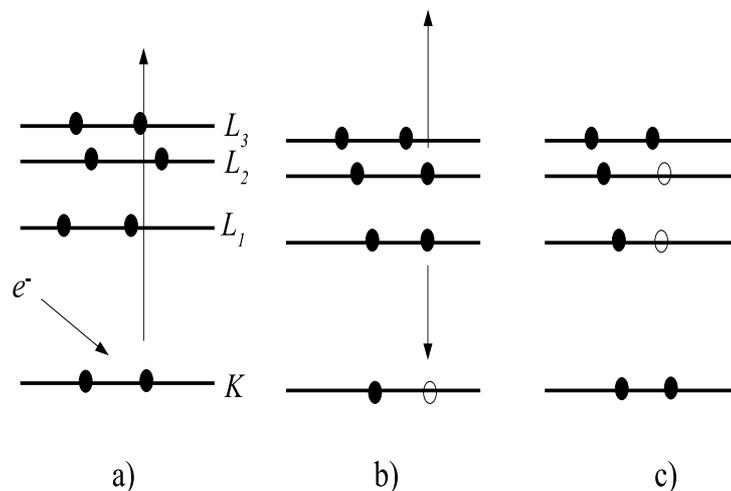


Figura 2.4: Ilustración simplificada de un proceso Auger. a) Un electrón provoca la ionización de un átomo arrancando un electrón de la capa  $K$ . b) La relajación a un estado de menor energía se produce al promover un electrón de la capa  $L_1$  a la capa  $K$  y emitir un electrón  $L_2$  al exterior del material. c) El estado final es el átomo doblemente ionizado.

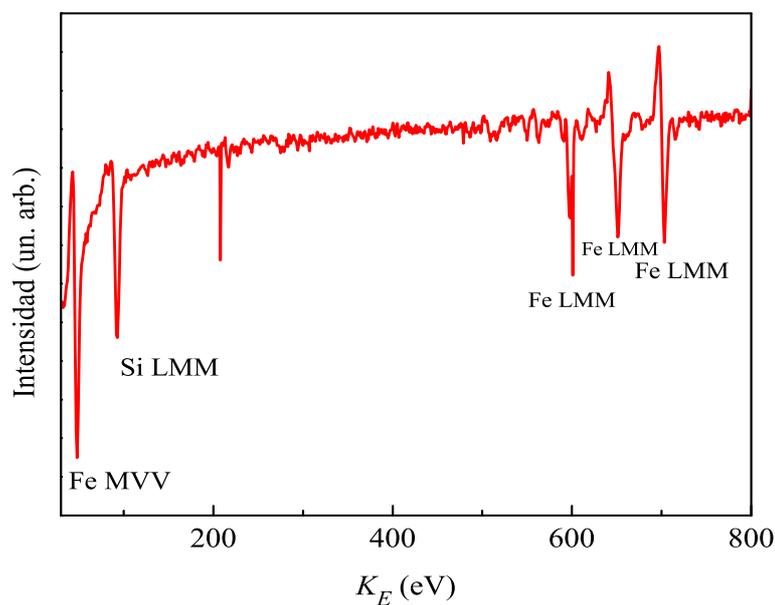


Figura 2.5: Espectro AES de un compuesto de FeSi. Figura tomada de la referencia [23].

- El elemento químico que participa.

- El nivel de energía del cual el primer electrón es arrancado.
- El nivel de energía del electrón que llena esa vacancia.
- El nivel de energía inicial del electrón que se transforma en el electrón Auger.

En la técnica de espectroscopía de electrones Auger se mide la cantidad de electrones que llegan desde la muestra con una determinada energía cinética obteniéndose espectros de intensidad vs. energía cinética. Este espectro da la siguiente información sobre la muestra sometida a la experiencia

- Los elementos que integran la muestra.
- La cantidad relativa de cada elemento.
- El estado químico del elemento presente (sólo si se mide con resolución suficiente).

En la Fig. 2.5 se muestra un espectro medido sobre una muestra de FeSi con los picos indexados de acuerdo a valores tabulados para estos elementos químicos.

Esta técnica es una técnica superficial ( $\lesssim 30 \text{ \AA}$ ) ya que los electrones Auger originados por debajo de este espesor son reabsorbidos en la muestra. Para realizar una correcta medida de un film es preciso hacer una limpieza de la superficie, generalmente este proceso se realiza con un bombardeo de iones de argón para lograr erosionar la superficie hasta llegar a la región donde no exista contaminación superficial. Por los dos motivos arriba mencionados esta técnica es realizada en ultra alto vacío.

### 2.2.2. Espectroscopía de fotoelectrones, XPS

Un experimento de XPS consiste en irradiar la muestra de interés con rayos X monocromáticos y analizar la energía de los electrones emitidos. Usualmente se utilizan las líneas Mg- $K_\alpha$  o Al- $K_\alpha$  ( $h\nu = 1253.6$  y  $1486.6$  eV respectivamente) como fuente de rayos X, pero últimamente se está popularizando el uso de radiación proveniente de un sincrotrón. En cualquier caso la energía del fotón debe ser suficiente para emitir fotoelectrones (electrones arrancados por la incidencia de un fotón) desde la banda de valencia o de niveles más cercanos al núcleo. Los electrones emitidos desde niveles internos no sólo permiten identificar los elementos presentes en la muestra, sino también en muchos casos, distinguir átomos de la misma especie posicionados en entornos químicos diferentes. La energía cinética del fotoelectrón responde a la ecuación

$$K_E = h\nu - E_B, \quad (2.2)$$

donde  $K_E$  es la energía cinética del fotoelectrón,  $E_B$  la energía de ligadura del electrón arrancado y  $h\nu$  la energía del fotón incidente (Ver Fig 2.6).

Midiendo el número de fotoelectrones que llegan al detector con determinada energía es posible calcular su energía de ligadura ( $E_B$ ). Esta energía de ligadura proporciona los siguientes datos sobre la muestra investigada

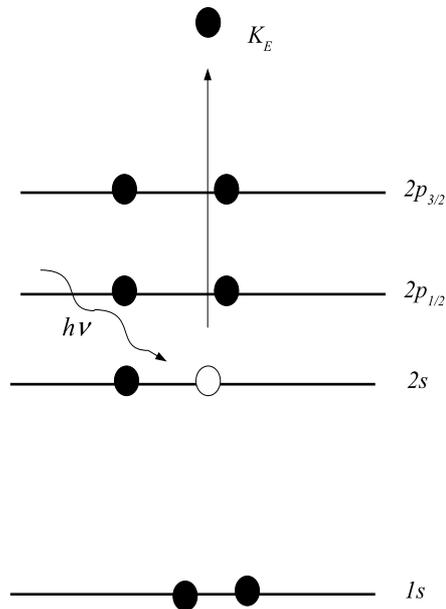


Figura 2.6: Esquema del proceso de emisión de un fotoelectrón. Un fotón entrega suficiente energía para arrancar un electrón de capas internas, este electrón es expulsado con una energía cinética  $K_E$ .

- Los elementos que forman la muestra.
- La cantidad relativa de cada elemento presente.
- El estado químico del elemento.

En la Fig. 2.7 se muestra un espectro tomado sobre una muestra de FeSi, los picos están indexados de acuerdo a valores tabulados para esos elementos químicos y para la frecuencia de radiación utilizada. También puede apreciarse en la figura los picos correspondientes a los electrones Auger. Estos picos no dependen de la energía de los fotones incidentes a diferencia de los picos correspondientes a los fotoelectrones.

Al igual que en la espectroscopía Auger, ésta es una técnica superficial que requiere de limpieza previa a la medición con iones de argón y es realizada en ultra alto vacío.

### 2.2.3. Análisis dispersivo en energía de rayos X, XEDS/EDS

En esta técnica se focaliza un haz de electrones sobre la muestra que interactúa con los átomos de la misma. El haz electrónico desplaza electrones de los átomos de la muestra quedando éstos en estado ionizado. Para volver el átomo ionizado a su estado normal, un electrón de capas más externas llena la vacante, este llenado implica la pérdida de energía en

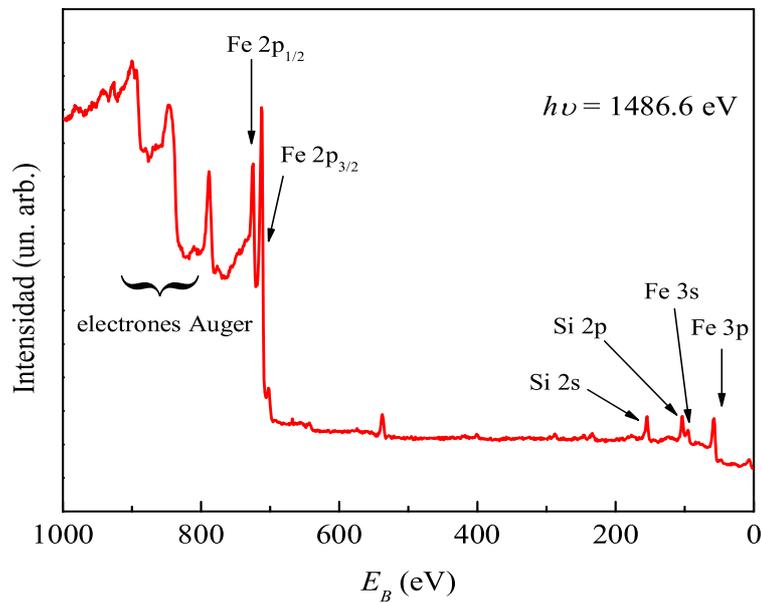


Figura 2.7: Espectro XPS de un compuesto de FeSi. Figura tomada de la referencia [23].

una cantidad específica (la diferencia de energía entre el nivel vacante y el nivel que aporta el nuevo electrón). Uno de los procesos de relajación implica que esta energía abandone el átomo en forma de radiación electromagnética, que en algunos casos corresponden a frecuencias de rayos X. Ya que los niveles electrónicos de cada elemento son diferentes, los rayos X detectados, son característicos de los elementos que conforman la muestra.

En la técnica de XEDS se utiliza un sistema de detección para medir la energía de los rayos X característicos generados en la muestra y se realiza un conteo de tales fotones para poder cuantificar la composición química de la muestra.

Si bien ésta no es una técnica superficial (el haz de electrones penetra entre 1 y 1.5  $\mu\text{m}$  en la muestra) puede ser utilizada para caracterizar films, si éste es lo suficientemente grueso ( $\sim 100$  nm) y está crecido sobre un sustrato cuyos rayos X característicos tengan una energía alejada de aquellos que son característicos de los elementos que forman el film.

De igual manera que ocurre con las mediciones de AES y XPS, existe un error considerable ( $\sim 10\%$ ) al estimar las concentraciones atómicas de los elementos a partir de los picos obtenidos en los espectros.

### 2.2.4. Microscopía de electrones de transmisión, TEM

En un microscopio electrónico de transmisión una fuente emite un haz de electrones ( $> 100$  kV) los cuales viajan a través de la columna de alto vacío del microscopio. Lentes electromagnéticas focalizan un muy fino haz en la muestra a estudiar (ver esquema en la Fig. 2.8). Este haz incide en la muestra y dependiendo de sus características, algunos electrones son dispersados elástica o inelásticamente, algunos son absorbidos y otros la atraviesan. La imagen formada aporta información sobre la morfología y cristalografía de la muestra así como también permite estudiar defectos, campos de tensiones o composición química, dependiendo de las facilidades del microscopio.

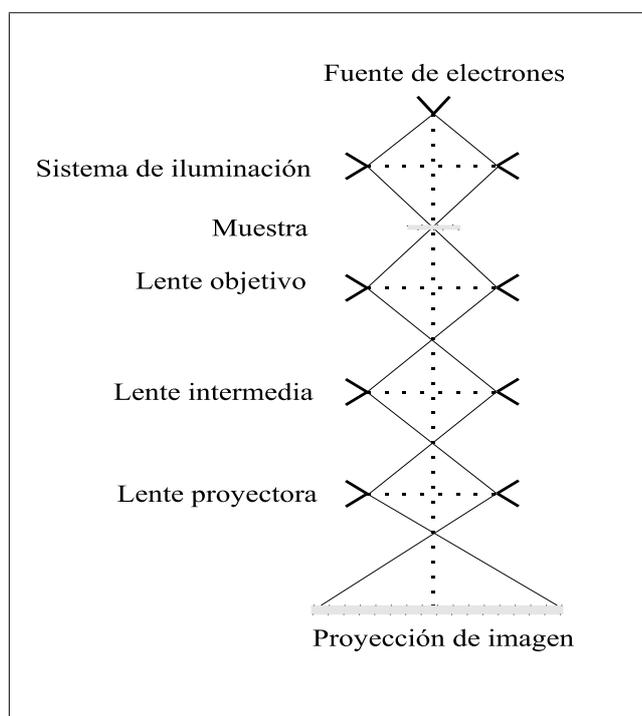


Figura 2.8: Esquema simplificado del microscopio electrónico de transmisión.

La preparación de la muestra a ser sometida a esta microscopía es de crucial importancia, ya que debe ser lo suficientemente delgada como para que sea atravesada por el haz de electrones y homogénea para que la información obtenida sea representativa de toda la muestra.

En la Fig. 2.9 se observa la imagen de una nanopartícula de Fe en una matriz inmisible y amorfa de  $\text{SiO}_2$ . Esta muestra fue crecida por magnetron sputtering RF sobre una grilla de Cu (300 *mesh*) y es de 10 nm de espesor. En la imagen no sólo se puede apreciar el tamaño de la partícula sino también los planos cristalográficos que indican la estructura monocristalina de la misma.

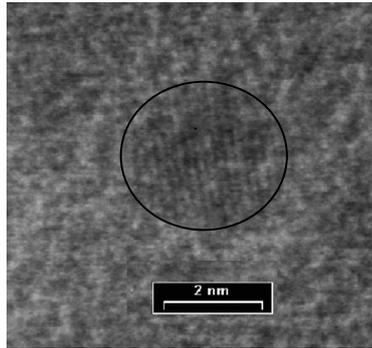


Figura 2.9: Fotografía TEM de alta resolución de una nanopartícula de Fe inmersa en una matriz de SiO<sub>2</sub>. Se pueden visualizar una serie de líneas oscuras paralelas entre sí, debido a que la partícula es monocristalina.

## 2.3. Mediciones de propiedades magnéticas

El estudio de las propiedades magnéticas en los diferentes sistemas fue realizado a partir de mediciones de resonancia ferromagnética (FMR) y de magnetización DC. Como en general hemos realizado distintos tipos de variaciones angulares para medir las anisotropías de los films, es importante definir correctamente el sistema de ejes coordenados a utilizar. Para el presente estudio hemos usado el sistema de referencia mostrado en la Fig. 2.10.

### 2.3.1. Resonancia ferromagnética

La técnica consiste en hacer incidir un campo magnético estático  $\mathbf{H}$  sobre la muestra en estudio. Además se aplica, en forma simultánea, un campo magnético perturbativo de la forma  $\mathbf{h} = \mathbf{h}_0 e^{i\omega_r t}$ , perpendicular a  $\mathbf{H}$  como se esquematiza en la Fig. 2.11.

La interacción de la magnetización  $\mathbf{M}$  con los campos magnéticos aplicados queda descrita por la ecuación de movimiento<sup>2</sup>

$$\dot{\mathbf{M}} = -\gamma \mathbf{M} \times (\mathbf{H} + \mathbf{h}), \quad (2.3)$$

donde  $\gamma$  es el factor giromagnético,  $\gamma = g\mu_B/\hbar$ ,  $g$  se denomina factor  $g$ ,  $\mu_B$  es el magnetón de Bohr y  $\hbar$  es la constante de Planck dividida por  $2\pi$ .

El campo  $\mathbf{H}$  provoca la precesión de  $\mathbf{M}$  con una frecuencia angular  $\omega$ , esta frecuencia de precesión depende del valor de  $H$ . Cuando el valor de  $H$  es tal que  $\omega$  iguala a  $\omega_r$  el sistema absorbe energía del campo  $\mathbf{h}$  produciéndose el fenómeno de resonancia ferromagnética. Conociendo la potencia entregada al sistema a través del campo perturbativo y observando la potencia reflejada, se puede saber en qué valor de  $H$  se produce la resonancia.

<sup>2</sup>En general para describir un sistema real debe considerarse el campo total que actúa sobre la magnetización, este campo total contempla no sólo el campo externo sino que también las anisotropías y las interacciones.

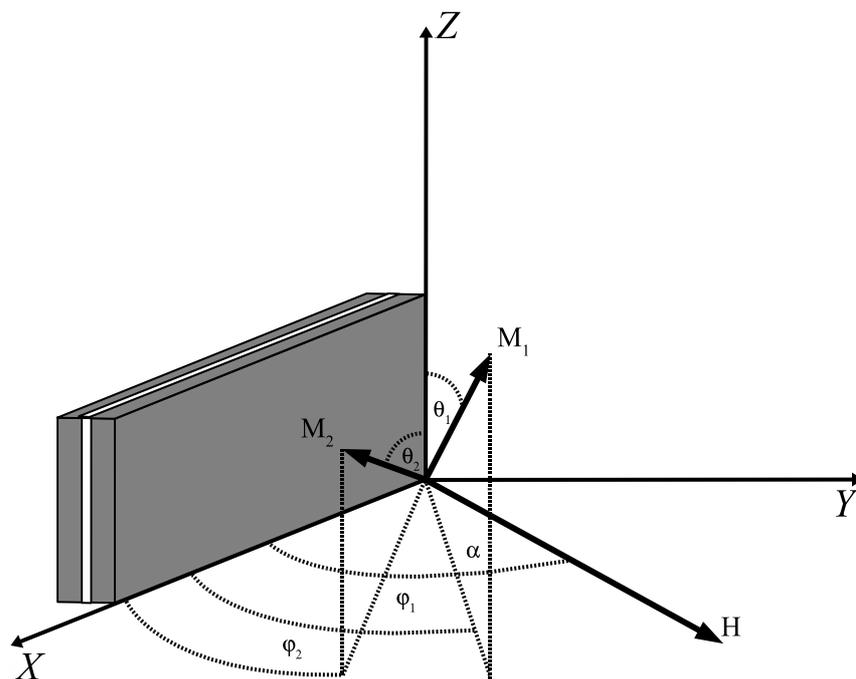


Figura 2.10: Esquema del sistema de ejes coordenados y disposición angular utilizados para realizar el estudio de las mediciones de FMR. El film es situado en el plano XZ y el ángulo del campo magnético externo es variado dentro del plano XY (salvo se especifique otra configuración angular).

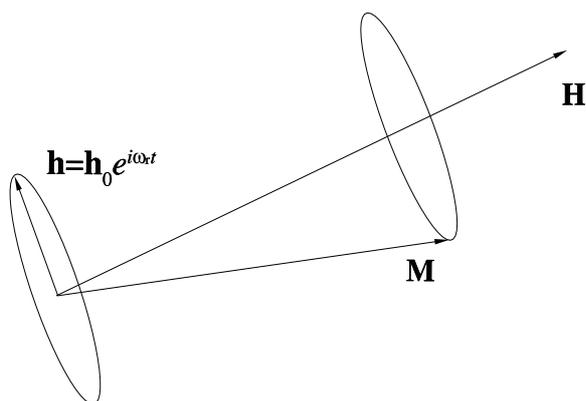


Figura 2.11: Esquema de los campos aplicados en un experimento de resonancia ferromagnética.

En la Fig. 2.12 presentamos un esquema del equipo de medición. La muestra a estudiar es situada en el centro de la cavidad resonante donde está presente el campo perturbativo  $h$ , creado a partir de una microonda proveniente desde el generador y trasladada a través

de la guía de ondas hasta la cavidad. Para mejorar la detección de la absorción, el campo magnético externo, generado por los electroimanes ubicados a ambos lados de la cavidad, es modulado con una señal alterna de  $\sim 100$  kHz de frecuencia y hasta 20 Oe de amplitud. De esta manera el sistema de detección mide la derivada respecto de  $H$  de la potencia absorbida, obteniéndose espectros similares a los mostrados en la Fig. 2.13.

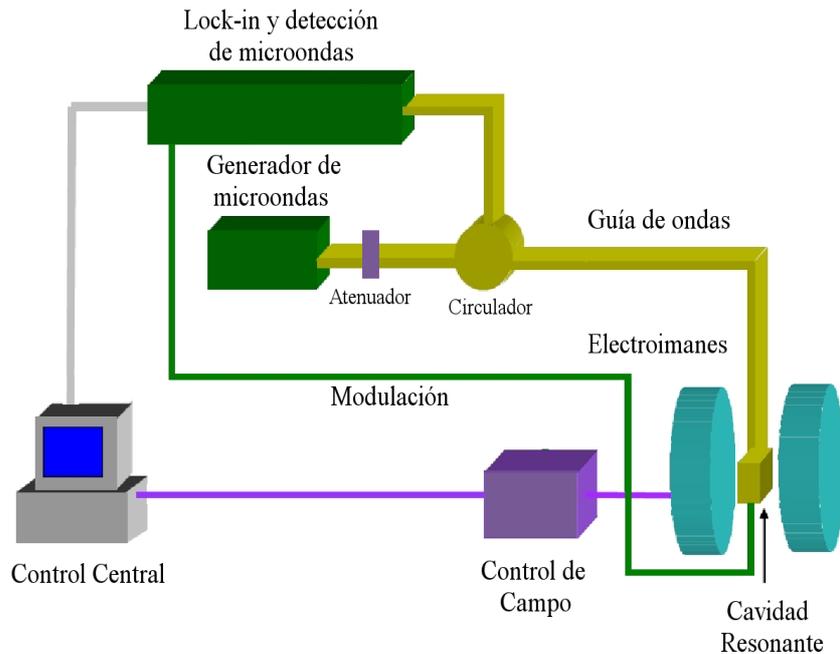


Figura 2.12: Esquema del dispositivo experimental utilizado para realizar las mediciones de resonancia ferromagnética.

Al campo de máxima absorción se lo denomina campo de resonancia  $H_r$  (corresponde al cruce por cero de la derivada de la absorción). Al ancho característico se lo llama ancho de línea o  $\Delta H$  y queda definido por la diferencia entre el campo máximo y mínimo de la derivada, tal como se muestra en la Fig. 2.13. La doble integral del espectro es la intensidad  $I$  la cual depende, entre otros factores, del número total de momentos magnéticos que participan en la resonancia.

Este tipo de resonancia se denomina electrónica, ya que es la interacción del campo con los momentos electrónicos los que están en juego. Los valores de frecuencia ( $\nu = \frac{\omega}{2\pi}$ ) para la resonancia electrónica utilizando campos magnéticos típicos de laboratorio ( $< 50000$  Oe) son del orden de las microondas ( $\nu$  entre 1 y 100 GHz). El manejo de campos perturbativos con esos valores de frecuencia es complicado e implica la utilización de guías de ondas y cavidades resonantes adecuadas. Esto hace que sólo se disponga de algunos valores de  $\nu_r$ ; en nuestro laboratorio disponemos de las siguientes frecuencias: 1.76 GHz (Banda L), 9.4 GHz (Banda X) y 34 GHz (Banda Q).

El equipo experimental de trabajo es un espectrómetro Bruker ESP 300 que permite un

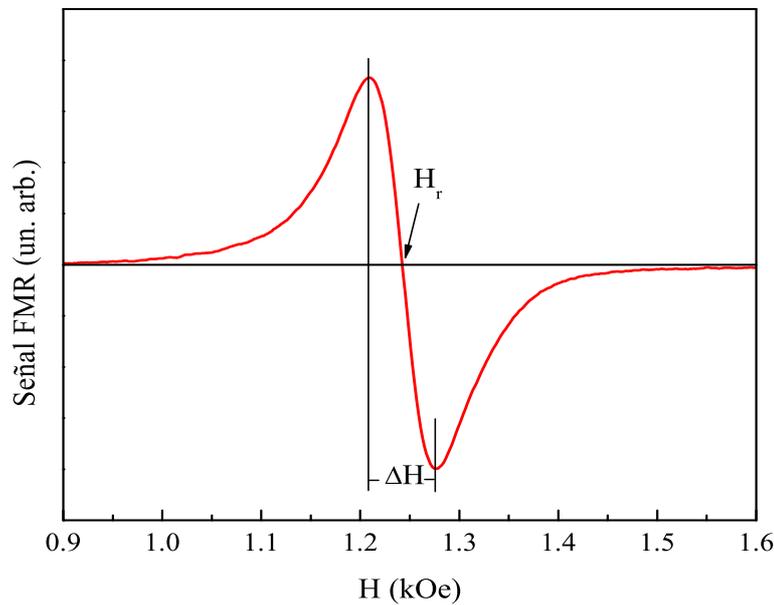


Figura 2.13: Espectro típico de resonancia. Se indican el campo de resonancia y el ancho de línea correspondiente. La intensidad se obtiene integrando dos veces la curva experimental.

barrido en campo desde 0 a 22000 Oe, teniendo la facilidad de realizar variaciones angulares y mediciones en función de temperatura desde 4 hasta 500 K.

En este trabajo realizamos mediciones en banda X y banda Q. La cavidad resonante para banda X es rectangular con modo de absorción TE102 y la de banda Q es una cavidad cilíndrica con modo de absorción TM110.

### 2.3.2. Magnetómetro VSM

Para las mediciones de magnetización DC se utilizó un magnetómetro de muestra vibrante VSM LakeShore Modelo 7307 con disponibilidad de campo magnético hasta 18000 Oe. Además este equipo permite realizar variaciones angulares tanto dentro del plano del film como saliendo de éste y mediciones en función de temperatura desde temperatura de He líquido hasta muy por encima de temperatura ambiente ( $T \sim 500$  K). La sensibilidad del sistema de detección en condiciones usuales de trabajo es de  $10^{-5}$  emu.

El concepto del funcionamiento de este equipo es el siguiente: se aplica un campo magnético estático  $\mathbf{H}$  sobre la muestra provocando una respuesta en la magnetización. A su vez la muestra está unida a una varilla que vibra con una frecuencia de aproximadamente 80 Hz y algunos milímetros de amplitud. La muestra está centrada en un conjunto de bobinas en las que induce una señal eléctrica que luego se traduce en valores de momento magnético,

a partir de su comparación con una muestra de calibración. El sistema de detección de bobinas está configurado de tal manera de medir la componente de la magnetización paralela al campo estático aplicado. Además el equipo dispone de una configuración alternativa de bobinas detectoras que permite medir la componente del vector magnetización perpendicular al campo aplicado.

### 2.3.3. Magnetómetro SQUID

Un SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) es un dispositivo que puede detectar campo magnético con mucha sensibilidad. El funcionamiento de un magnetómetro SQUID está basado en este dispositivo. El equipo utilizado es un magnetómetro SQUID MPMS de *Quantum Design*, el cual permite un barrido en campo de 0 a 50 kOe generados por bobinados superconductores y variaciones en temperatura desde 2 K hasta 400 K.

Este equipo es de gran utilidad cuando se necesitan campos magnéticos altos o la señal de la muestra a estudiar es muy baja ya que la sensibilidad del sistema de detección SQUID permite medir señales de hasta  $10^{-7}$  emu.

# Capítulo 3

## Modelo y aspectos generales

El problema de dos capas ferromagnéticas acopladas a través de un espaciador o en contacto directo, ha sido amplia y detalladamente estudiado por varios autores [17, 18] y frecuentemente se han reportado nuevos e interesantes fenómenos. Como ejemplo, cuando dos films FM están separados por ciertos metales no magnéticos, se observa un cambio en el signo del acople dependiendo del espesor del espaciador, esta interacción se denomina tipo RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida) [6]. Otros materiales como ser aislantes [24], semiconductores [25], antiferromagnetos [26] o ferromagnetos [27] también han sido utilizados como espaciadores en los cuales usualmente se han registrado novedosos resultados. La interacción entre capas puede ser de origen diverso. En la interacción RKKY los electrones de conducción del espaciador no magnético median la interacción entre las capas FM siendo necesario un análisis de hibridación entre las diferentes bandas de los materiales que componen el sistema para comprender el acople. Pueden existir otros tipos de acoplamiento entre dos capas ferromagnéticas, como ser intercambio directo, indirecto, acople dipolar, entre otros, cada uno de ellos con sus propias particularidades.

### 3.1. Acople entre dos capas ferromagnéticas

En este trabajo aplicamos un modelo fenomenológico siguiendo el formalismo de Smit y Beljers [28] en el que, a partir de la expresión de la energía libre y la ecuación de movimiento de la magnetización, se calculan las frecuencias de resonancia ferromagnética. En este modelo se asume que la magnetización dentro de cada capa magnética está saturada y presenta pequeños desplazamientos alrededor de las posiciones de equilibrio. Se describe la evolución dinámica de  $\mathbf{M}$ , permitiendo estudiar las mediciones de resonancia ferromagnética y la proyección de la magnetización en la dirección del campo.

### 3.1.1. Energía libre para un sistema de dos capas acopladas

Cuando la magnetización es uniforme dentro de cada capa (de espesores  $d_1$  y  $d_2$  respectivamente) es posible definir la energía libre por unidad de área como:

$$F_a = \sum_{i=1}^2 \left( -d_i \mathbf{M}_i \cdot \mathbf{H} + \frac{d_i}{2} \mathbf{M}_i \underline{\mathbf{N}}_i \mathbf{M}_i - d_i K_n^{(i)} \frac{(\hat{\mathbf{e}}_\perp \cdot \mathbf{M}_i)^2}{|\mathbf{M}_i|^2} \right) - J \frac{\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2}{|\mathbf{M}_2| |\mathbf{M}_1|}, \quad (3.1)$$

el primer término en esta expresión corresponde a la energía de Zeeman, la cual tiende a alinear el vector magnetización  $\mathbf{M}$  en la dirección del campo magnético externo  $\mathbf{H}$ . El segundo término corresponde a la energía demagnetizante y tiene origen en la forma de la muestra. Las componentes del tensor demagnetizante  $\underline{\mathbf{N}}_i$  pueden considerarse iguales a cero, salvo la componente perpendicular al plano que toma el valor<sup>1</sup>  $4\pi$  (ver apéndice A). El tercer término es una contribución anisotrópica la cual tiende a alinear el vector  $\mathbf{M}$  en la dirección perpendicular al plano del film.  $K_n^{(i)}$  es la constante de anisotropía perpendicular y  $\hat{\mathbf{e}}$  es un versor normal al plano del film. El origen de esta anisotropía puede deberse a tensiones en la superficie, rugosidad o cualquier otra clase de imperfección que ayude al vector  $\mathbf{M}$  a orientarse en la dirección normal al film. Debido a que el término demagnetizante y el correspondiente a la anisotropía perpendicular tienen la misma dependencia angular, es usual agrupar estos términos en un campo demagnetizante efectivo  $H_D$  definido como:

$$H_D^{(i)} = 4\pi M_i - \frac{2K_n^{(i)}}{M_i} = 4\pi M_i - H_n^{(i)}, \quad (3.2)$$

donde  $H_n^{(i)} = \frac{2K_n^{(i)}}{M_i}$  es el campo de anisotropía perpendicular. El subíndice  $i$  indica que los tres primeros términos de la Ec. 3.1 aparecen independientemente en cada capa magnética. La interacción entre las capas de magnitud  $J$  es incluida a través del término bilineal en la energía libre. Este acoplamiento tiende a alinear a las magnetizaciones en la misma dirección y pueden darse dos situaciones:  $J$  positivo lo cual favorece que las magnetizaciones se alineen paralelas entre sí o  $J$  negativo con lo cual las magnetizaciones tienden a alinearse antiparalelas entre sí. El primer caso es llamado acople ferromagnético y el segundo acople antiferromagnético. Si bien el valor de  $J$  indica una interacción entre los films a través de la interfaz, esta cantidad puede ser expresada en unidades de campo magnético a partir de la Ec. 3.3 [30], la cual define el campo de intercambio  $H_E$ , entre las capas.

$$H_E = J \left( \frac{1}{d_1 |\mathbf{M}_1|} + \frac{1}{d_2 |\mathbf{M}_2|} \right), \quad (3.3)$$

esta expresión es válida si la magnetización dentro del film responde como un todo, es decir para espesores  $d_i$  muy grandes puede que los efectos de la interfaz no se propaguen a la totalidad del film anulándose en este caso la efectividad de esta fórmula.

La ecuación para la energía libre 3.1 permite hallar los ángulos de equilibrio de la magnetización minimizando la expresión respecto de las variables angulares y además obtener

<sup>1</sup>En films granulares diluidos el campo demagnetizante difiere al de un film continuo [29].

una expresión vectorial del campo interno estático ( $\mathbf{H}_{int}^{(i)}$ ) que actúa sobre la magnetización  $\mathbf{M}_i$  a partir de la ecuación

$$\mathbf{H}_{int}^{(i)} = -\frac{1}{d_i} \frac{\partial F_a}{\partial \mathbf{M}_i}. \quad (3.4)$$

Con los términos expuestos en la Ec. 3.1 es posible explicar razonablemente bien las medidas experimentales y en general no fue necesario considerar otras contribuciones, como ser términos de interacción bicuadrático o anisotropía dentro del plano del film.

### 3.1.2. Ecuación de movimiento

A partir de la ecuación de movimiento de la magnetización, también llamada ecuación de Landau-Lifshitz (Ec. 3.5), es posible describir la evolución dinámica del vector  $\mathbf{M}$  de cada capa ferromagnética.

$$\dot{\mathbf{M}}_i = \gamma \mathbf{M}_i \times \left( \frac{1}{d_i} \frac{\partial F_a}{\partial \mathbf{M}_i} - \frac{\alpha_i}{\gamma} \frac{\dot{\mathbf{M}}_i}{|\mathbf{M}_i|} - \mathbf{h} \right), \quad (3.5)$$

donde  $\mathbf{M}_i = \mathbf{M}_{0i} + \mathbf{m}_i e^{i\omega t}$  es la magnetización total (radial más transversal) de la capa  $i$  con  $|\mathbf{M}_{0i}| \gg |\mathbf{m}_i|$ ,  $\gamma = g\mu_B/\hbar$  es el factor giromagnético,  $\alpha_i$  es el parámetro de damping de Gilbert y  $\mathbf{h}$  es el campo magnético perturbativo de frecuencia angular  $\omega_r$ , el cual es aplicado perpendicular al campo  $\mathbf{H}$ , (ver Fig. 2.11). Debido al pequeño valor que tiene  $|\mathbf{h}|$  la magnetización transversal también es muy pequeña, por este motivo en este formalismo se asume que  $|\mathbf{M}_i| = M_i \approx |\mathbf{M}_{0i}|$  (aproximación lineal).

El primer término en la Ec. 3.5 representa el torque generado por el campo interno que actúa sobre la magnetización, este campo incluye al campo estático externo, los campos de anisotropía y el de intercambio. Este término vincula directamente a la energía libre con la ecuación de movimiento.

Los dos últimos términos corresponden a la relajación o damping y al torque provocado por el campo perturbativo respectivamente. Ambos son usualmente despreciados si sólo se quiere estimar la posición de los campos de resonancia [17]. Pero si se requiere la forma completa de la absorción entonces deben ser considerados para así obtener una expresión del tensor susceptibilidad y calcular la magnetización transversal, ya que la absorción es proporcional a la proyección de  $\mathbf{m}$  sobre  $\mathbf{h}$ . En general, para observar una absorción en un experimento de FMR deben cumplirse dos condiciones: que las magnetizaciones precesionen a la misma frecuencia que la del campo perturbativo y que exista una componente no nula de la magnetización transversal que se acople con el campo  $\mathbf{h}$ .

Además, la Ec. 3.5 permite obtener las frecuencias propias de precesión de las magnetizaciones en función de los diferentes parámetros que intervienen en esta ecuación. Estas frecuencias expresadas en función del campo externo ( $\omega = \omega(H)$ ) reciben el nombre de relación de dispersión y resultan de mucha utilidad al momento de predecir cuántas veces el sistema se encuentra en condición de resonancia o, en otras palabras, para saber cuántas veces  $\omega$  toma el valor de la frecuencia del campo perturbativo  $\omega_r$ .

El resultado obtenido al resolver la ecuación de movimiento de la magnetización (Ec. 3.5), en sistemas de dos capas acopladas puede ser organizado dentro de los siguientes casos:

- Caso simétrico (  $|\mathbf{M}_1| = |\mathbf{M}_2|$  y anisotropías iguales)
  - $J > 0$  (acople ferromagnético entre las capas)
  - $J < 0$  (acople antiferromagnético entre las capas)
- Caso asimétrico (  $|\mathbf{M}_1| \neq |\mathbf{M}_2|$  ó anisotropías diferentes)
  - $J > 0$  (acople ferromagnético entre las capas)
  - $J < 0$  (acople antiferromagnético entre las capas)

La relación de dispersión en cada una de las situaciones descritas, puede obtenerse en forma analítica sólo en casos especiales. En general es necesario realizar un cálculo numérico para obtener los campos de resonancia, los anchos de línea y las intensidades de las absorciones.

## 3.2. Modos de resonancia en sistemas simétricos

Por sistemas simétricos entendemos que la capa 1 es idéntica a la capa 2. Las magnetizaciones y las anisotropías que intervienen tienen los mismos valores en cada una de ellas.

En presencia del campo externo y a partir de la ecuación de movimiento (Ec. 3.5), se obtiene que los sistemas simétricos y acoplados ( $J \neq 0$ ) presentan dos modos normales de precesión de las magnetizaciones. Un modo de precesión en fase (modo acústico) y otro de precesión en contra fase (modo óptico). En la Fig. 3.1 se muestra un esquema de estas soluciones.

La intensidad de la microonda absorbida en un experimento de resonancia, como fue mencionado más arriba y se explicará en detalle más adelante, depende fuertemente de la magnetización transversal total y del ángulo que ésta forma con el campo  $\mathbf{h}$  de excitación. De esta manera si las capas son perfectamente iguales, el modo óptico debería tener intensidad nula, ya que las magnetizaciones transversales se compensarían entre sí. Sólo el modo acústico sería perceptible ya que las mismas se sumarían. En el apéndice C se discute con más detalle esta situación.

La expresión del campo de interacción en los sistemas simétricos, obtenido a partir de la Ec. 3.3 es  $H_E = \frac{2J}{dM}$ .

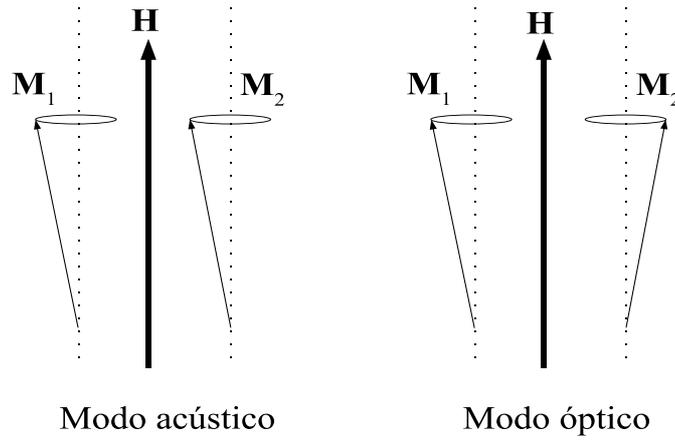


Figura 3.1: Esquema de los modos de precesión en sistemas simétricos y acoplados. El modo acústico corresponde a la precesión en fase de la magnetización de cada capa, mientras que el modo óptico a la precesión en contra fase de las magnetizaciones.

### 3.2.1. Acople ferromagnético ( $J > 0$ )

Cuando la interacción entre los films favorece que las magnetizaciones se orienten paralelas entre sí, se dice estar frente a un acople ferromagnético. Es posible encontrar en la bibliografía, numerosos estudios de sistemas con este tipo de acople [24, 27].

Para una situación simétrica y con acople ferromagnético se obtiene que los ángulos de equilibrio de las magnetizaciones cumplen las relaciones (recordando que el campo  $\mathbf{H}$  está aplicado en el plano  $XY$ ):  $\theta_1 = \theta_2 = \frac{\pi}{2}$  y  $\varphi_1 = \varphi_2 = \varphi$ , donde el valor de equilibrio del ángulo azimutal  $\varphi$  satisface la ecuación

$$H \sin(\alpha - \varphi) = H_D \cos \varphi \sin \varphi. \quad (3.6)$$

Por otra parte, la ecuación de movimiento da las frecuencias de precesión de las magnetizaciones en función del campo externo (relaciones de dispersión). En la Fig. 3.2 presentamos estas curvas para dos casos particulares,  $\alpha = 0^\circ$  ( $H \parallel$  al plano del film) y  $\alpha = 90^\circ$  ( $H \perp$  al plano del film). Una característica destacable de estas relaciones de dispersión es que el modo óptico siempre se encuentra a energías (frecuencias de precesión) mayores que las correspondiente al modo acústico. La razón de este comportamiento es que en el modo óptico las magnetizaciones forman un pequeño ángulo entre sí, involucrando mayores energías que en el modo acústico debido a que el acople ( $J > 0$ ) tiende a orientarlas paralelas. A diferencia de la rama acústica, el modo óptico presenta una frecuencia de precesión distinta de cero cuando el campo es nulo y se utiliza el término *gap* para describir esta situación. Así un valor de  $H_E$  distinto de cero abre un gap, cuyo valor es  $\nu_0 = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_E(H_E + H_D)}$ , en la relación de dispersión. Este gap muchas veces es responsable de que con algunas frecuencias de trabajo sólo se sintonice el modo acústico, mientras que al elevarla es posible sintonizar ambos modos de precesión.

Modo acústico		Modo óptico
$\alpha = 0$		
$\forall H$	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H(H + H_D)}$	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H + H_E)(H + H_E + H_D)}$
$\alpha = 90^\circ$		
$H < H_D$	0	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_E^2 + \frac{H_E}{H_D}(H_D^2 - H^2)}$
$H > H_D$	$\frac{\gamma}{2\pi} (H - H_D)$	$\frac{\gamma}{2\pi} (H - H_D + H_E)$

Tabla 3.1: Expresiones analíticas de las relaciones de dispersión mostradas en la Fig. 3.2. Las soluciones expuestas en la tabla representan los valores de  $\nu$ , para los casos  $\alpha = 0^\circ$  y  $\alpha = 90^\circ$ .

En la tabla 3.1 se presentan las soluciones de las curvas mostradas en las relaciones de dispersión de la Fig. 3.2. Sólo en estos casos particulares ( $\alpha = 0^\circ$  y  $\alpha = 90^\circ$ ) se obtienen expresiones analíticas para dichas curvas, en general para ángulos intermedios se requiere un tratamiento numérico.

A partir de las relaciones de dispersión en los diferentes ángulos de incidencia del campo externo  $\alpha$ , y para una frecuencia de trabajo  $\nu_r$  definida, es posible obtener la variación angular de los campos de resonancia. El modo acústico presenta un comportamiento igual al de un film simple con magnetización de saturación  $M$ , mientras que el modo óptico aparece a campos menores, tal como se muestra en la Fig. 3.3. La separación entre los modos óptico y acústico aumenta al aumentar el valor del campo de intercambio  $H_E$ . Las situaciones que corresponden al campo aplicado paralelo y perpendicular al plano de la muestra resultan particularmente interesantes ya que en estos casos la separación de los campo es directamente el valor de  $H_E$ . Para ángulos intermedios la diferencia  $H_{ac} - H_{op}$  presenta una variación angular particular la cual se muestra en la Fig. 3.4. Si la separación entre los modos acústico y óptico no es grande, la variación puede ser ajustada en forma aproximada con la función

$$H_{ac} - H_{op} \sim \frac{H_E}{\cos(\alpha - \varphi)}, \quad (3.7)$$

(suponiendo  $\varphi_{ac} \sim \varphi_{op}$  para este caso). A partir de esta expresión puede entenderse el pico observado en la región próxima a  $90^\circ$ , ya que en esta zona la diferencia  $\alpha - \varphi$  es máxima. Como se mencionó más arriba en los casos  $\alpha = 0^\circ$  y  $\alpha = 90^\circ$  se cumple en forma exacta  $H_{ac} - H_{op} = H_E$ . En el caso que  $H_E$  tienda a cero la curva correspondiente al modo óptico colapsa con la del modo acústico.

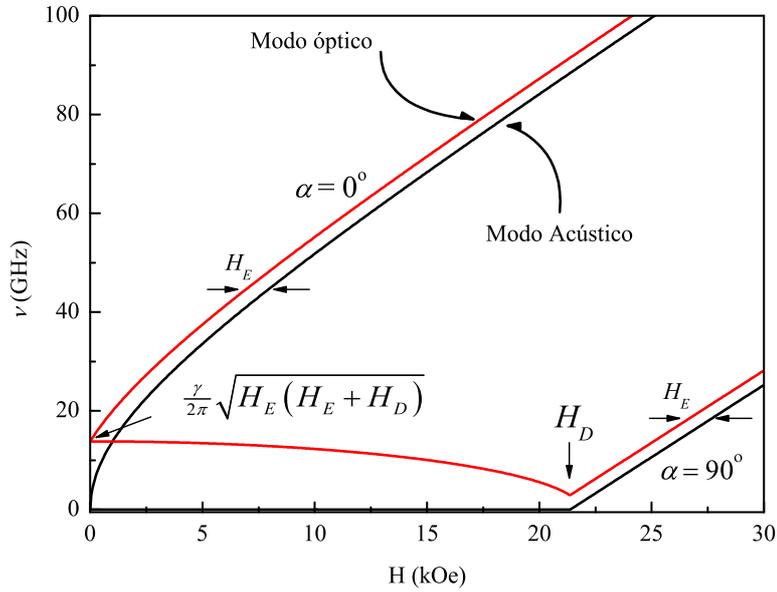


Figura 3.2: Relaciones de dispersión para el caso simétrico y  $J > 0$  (acople ferromagnético). Esta situación se caracteriza porque el modo óptico tiene frecuencias más altas que el modo acústico. En la figura se muestran las relaciones de dispersión correspondientes a  $\alpha = 0^\circ$  ( $H \parallel$  al plano del film) y  $\alpha = 90^\circ$  ( $H \perp$  al plano del film). Los parámetros utilizados para la simulación fueron  $H_D^{(1)}/4\pi = H_D^{(2)}/4\pi = H_D/4\pi = 1700 \text{ emu/cm}^3$ ,  $g_1 = g_2 = g = 2.09$ ,  $d_1 = d_2 = d = 17 \text{ nm}$  y  $H_E = 1 \text{ kOe}$ .

### 3.2.2. Acople antiferromagnético ( $J < 0$ )

El acople antiferromagnético (AF) entre dos capas ferromagnéticas se presenta en distintas configuraciones de multicapas. El origen de la interacción puede ser diverso dependiendo del espaciador utilizado [31]. En particular en multicapas con interacción tipo RKKY el campo de intercambio  $H_E$  cambia de signo en forma oscilatoria al variar el espesor del espaciador, existiendo regiones donde el acople es ferromagnético y otras que presentan acople AF [6]. Esta interacción se produce cuando dos capas ferromagnéticas están separadas por un espaciador metálico no magnético. Sistemas típicos son: Co|Ru|Co; Fe|Au|Fe; Co|Cu|Co [6, 31], entre otros. En estos casos el acople entre las capas ferromagnéticas es provista por los electrones de la banda de conducción del espaciador metálico que interactúan con los electrones del metal ferromagnético [31].

Los materiales antiferromagnéticos macizos se caracterizan porque la interacción se produce entre los espines localizados próximos entre sí, esta interacción origina el acoplamiento antiparalelo entre estos momentos. En cambio, en los sistemas de varias capas ferromagnéti-

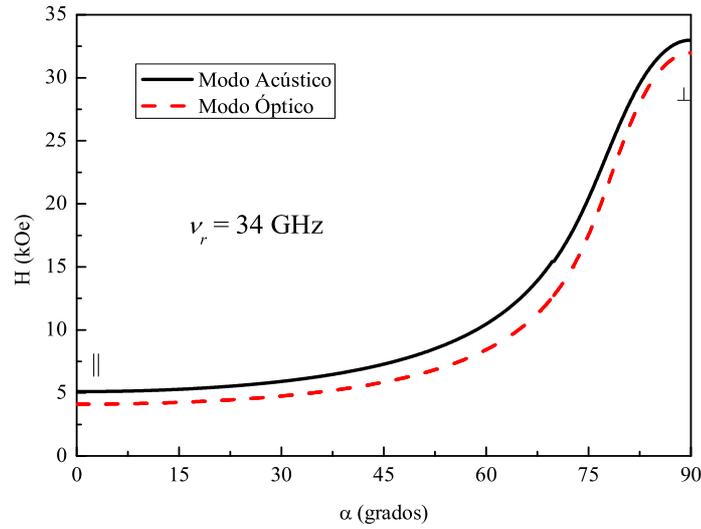


Figura 3.3: Variación angular de los campos de resonancia para el caso simétrico y con  $J > 0$ . Esta situación se caracteriza porque el modo óptico presenta campos de resonancia menores que el modo acústico. (Mismos parámetros que los usados en la Fig. 3.2).

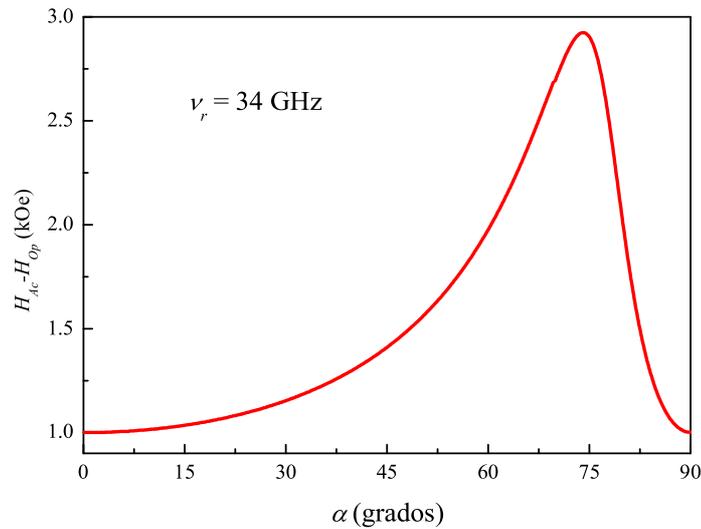


Figura 3.4: Variación angular de la diferencia entre los campos de resonancia del modo acústico y óptico. (Mismos parámetros que los usados en la Fig. 3.2).

cas acopladas antiferromagnéticamente, se puede pensar que la magnetización de cada capa se acopla antiparalela a la de la capa siguiente. Para diferenciar con el primer caso se utiliza el término *antiferromagneto sintético* (SAF) para designar a los films que se acoplan en forma AF.

En esta situación, en la que  $J$  es negativo, los ángulos de equilibrio de las magnetizaciones

no tienen una expresión sencilla como en el caso de  $J > 0$ , sin embargo los ángulos polares satisfacen (según la disposición de ángulos definida en la Fig. 2.10 y recordando que el campo  $\mathbf{H}$  está aplicado en el plano  $XY$ )  $\theta_2 = \pi - \theta_1$ . Cuando el campo magnético está aplicado paralelo al plano del film ( $\alpha = 0^\circ$ ) ocurre el siguiente comportamiento frente a la variación del módulo de  $\mathbf{H}$ : Al iniciarse el campo se logra un comportamiento de *spin-flop*<sup>2</sup> donde las magnetizaciones se orientan antiparalelas entre sí y perpendiculares al campo. Al aumentar  $H$  las magnetizaciones se inclinan hacia éste en forma paulatina variando el ángulo  $\theta$  según la ecuación  $\sin \theta = -\frac{H}{H_E}$ . En la figura 3.5 se muestra un esquema descriptivo de la situación. En la región comprendida entre  $0 < H < |H_E|$ , si bien la magnetización de cada capa está saturada, la magnetización total no llega aún a la saturación, ésta se logra para campos mayores o iguales a  $|H_E|$ . Por otra parte, el ángulo azimutal  $\varphi$  es cero para cualquier valor de  $H$ . En la Fig. 3.6 se muestra la dependencia de los ángulos de equilibrio frente al campo externo para esta situación.

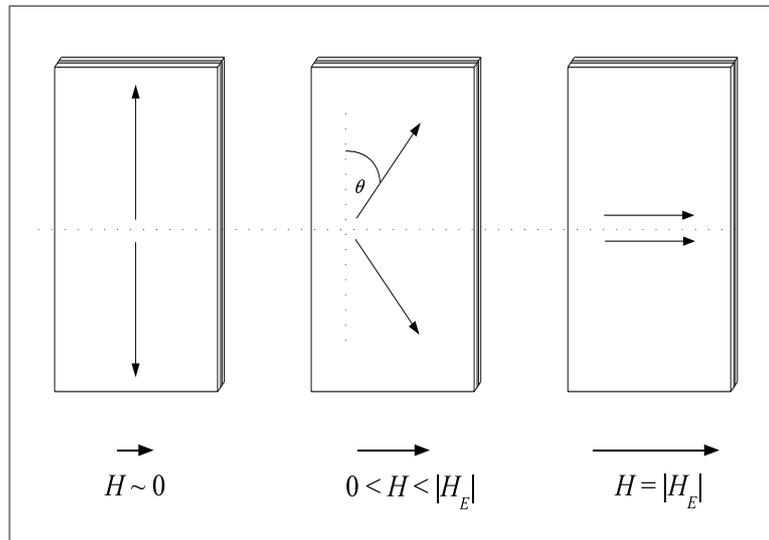


Figura 3.5: Esquema descriptivo del comportamiento de las magnetizaciones frente al campo magnético externo de los sistema simétricos y con acople AF (suponiendo que no hay anisotropía en el plano).

La proyección de la magnetización en la dirección del campo (en este caso  $\alpha = 0^\circ$ ) es de particular interés, ya que permite estimar el campo de intercambio  $H_E$  de manera alternativa a las medidas de FMR. Tal como se muestra en la simulación de la Fig. 3.7 la magnetización relativa (proyección de la magnetización en la dirección del campo  $H$  dividido la magnetización saturación) satura en la región  $H \geq |H_E|$  y es una recta de pendiente  $\frac{-1}{H_E}$  en el dominio  $-|H_E| < H < |H_E|$ .

Por otra parte, a partir de la ecuación de movimiento es posible calcular las relaciones

<sup>2</sup>Spin-flop: Proceso en el cual las magnetizaciones se orientan antiparalelas entre sí y perpendiculares al campo externo [32]. Este comportamiento existe sólo en ausencia de anisotropías dentro del plano, de manera contraria la respuesta de la magnetización frente al campo externo es más compleja.

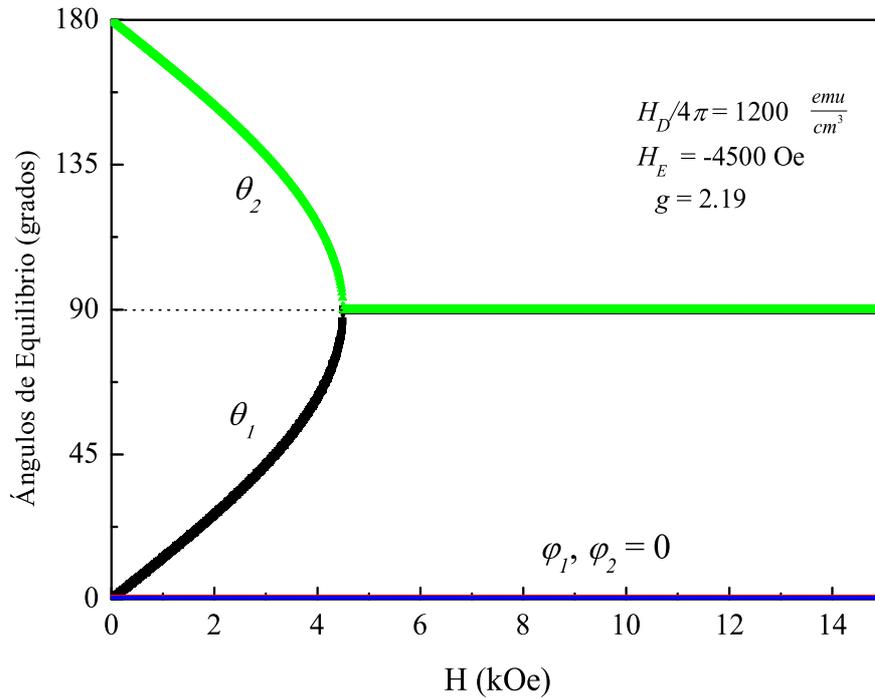


Figura 3.6: Evolución de los ángulos de equilibrio de las magnetizaciones en función de  $H$ . En este caso simétrico, con  $J < 0$  y con el campo aplicado paralelo al plano del film la saturación se logra en  $H = |H_E|$ .

de dispersión. En la Fig. 3.8 presentamos estas curvas para este caso simétrico y con acople AF, en la figura se muestran los casos en que el campo está aplicado en el plano del film ( $\alpha = 0^\circ$ ) y perpendicular al mismo ( $\alpha = 90^\circ$ ).

En el caso paralelo la rama del modo acústico en la región  $0 < H < |H_E|$  es una recta cuya ecuación es:  $\nu = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{1 + \frac{H_D}{|H_E|} H}$ . Así la medida del campo de resonancia de este modo en la dirección paralela puede ser utilizada para estimar el campo de intercambio  $H_E$ , independientemente de la observación o no del modo óptico. En la Tabla 3.2 se presentan las soluciones analíticas de las curvas mostradas en las relaciones de dispersión de la Fig. 3.8. Sólo en estos casos particulares ( $\alpha = 0^\circ$  y  $\alpha = 90^\circ$ ) se obtienen expresiones para dichas curvas, en general para ángulos intermedios se requiere un tratamiento numérico.

Una particularidad del acople AF (al menos en la región donde la magnetización está saturada) es que el modo óptico, cuyas magnetizaciones precesionan en contra fase, es menos energético que el modo acústico. Esto se debe a que la interacción tiende a orientarlas anti-paralelas entre sí, favoreciendo en energía a este modo de oscilación frente al modo acústico.

En la región en que la magnetización total está saturada es fácil identificar la rama óptica de la acústica ya que la primera presenta menor energía. En la zona no saturada de la magnetización los términos acústicos u ópticos no son del todo adecuados para identificar las diferentes ramas, según lo expuesto en la referencia [30]. A pesar de ello en este trabajo llamaremos modo acústico a aquel que presenta mayor intensidad respecto de las demás

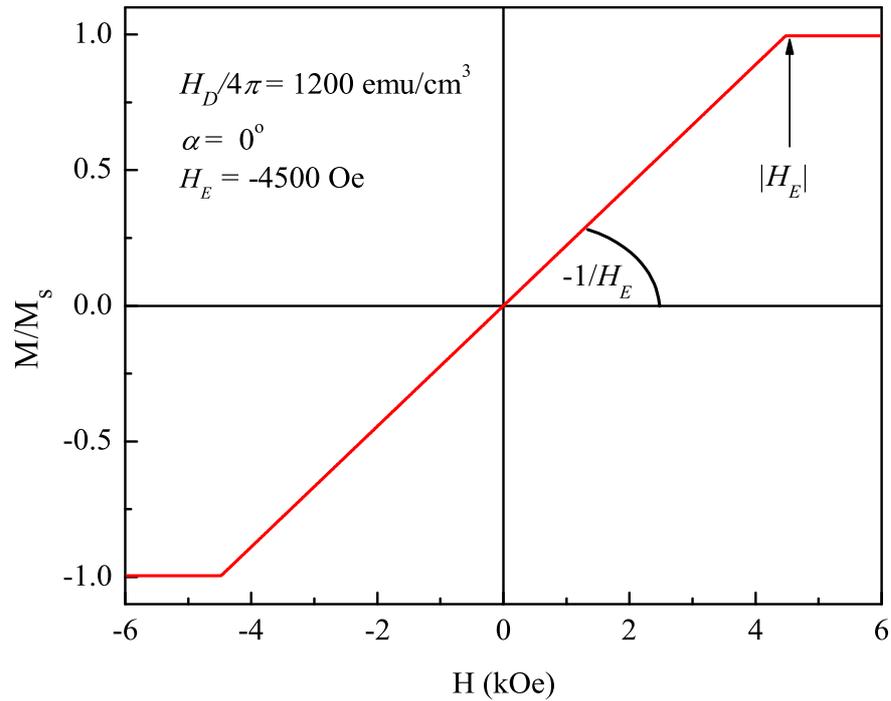


Figura 3.7: Simulación de una medida de magnetización DC en función del campo externo. Este tipo de medida resulta de utilidad para la determinación del campo de interacción  $H_E$ .

absorciones.

### 3.3. Modos de resonancia en sistemas asimétricos

Los sistemas asimétricos son aquellos cuyas capas ferromagnéticas no son equivalentes. La asimetría puede originarse si los materiales son distintos ( $M_1 \neq M_2$ ) o si las anisotropías en cada capa son diferentes. La sola diferencia en los espesores de las capas (siendo iguales las magnetizaciones y demás anisotropías) no se refleja en asimetría para el modelo planteado. El caso asimétrico es una situación más general que el caso simétrico, siendo la expresión para el campo de interacción directamente la Ec. 3.3,  $H_E = J(\frac{1}{d_1 M_1} + \frac{1}{d_2 M_2})$ .

#### 3.3.1. Acople ferromagnético ( $J > 0$ )

En los casos asimétricos y con  $J > 0$  aún existen las precesiones en fase y en contra fase de las magnetizaciones como soluciones a la ecuación de movimiento, tal como se esquematiza en la Fig. 3.9. Adoptaremos los nombres de  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  para el primer y segundo modo de resonancia respectivamente. En el modo en contra fase, la magnetización transversal total es distinta de cero a diferencia del caso simétrico, por lo tanto ambos modos serían visibles

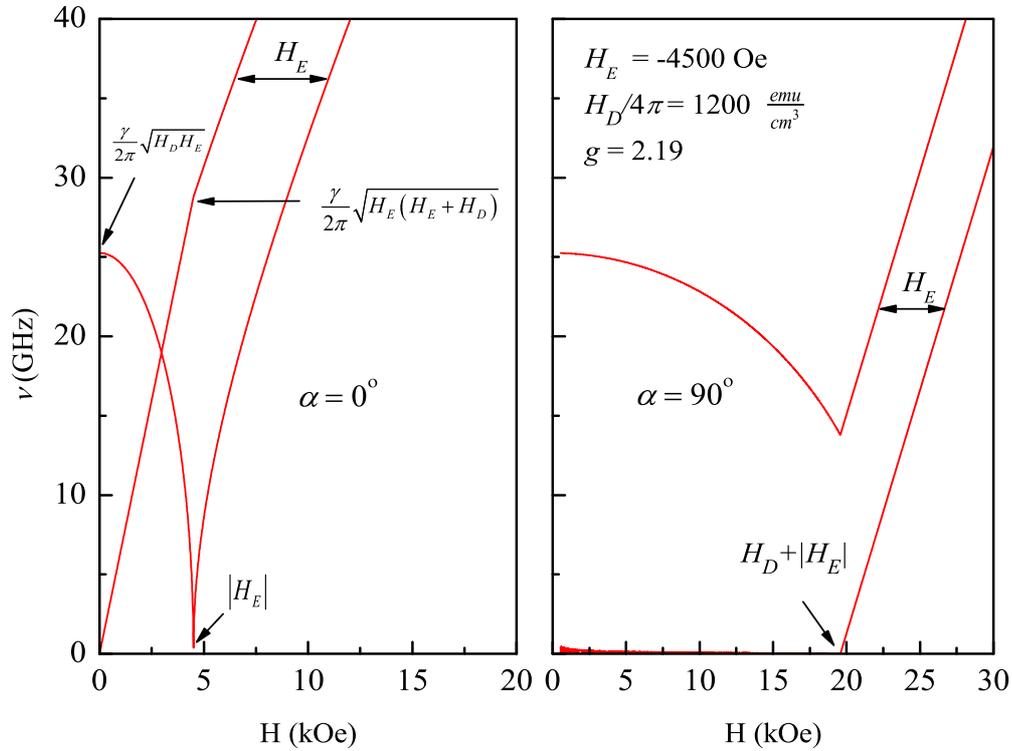


Figura 3.8: Relación de dispersión para el caso simétrico y  $J < 0$ . Este caso se caracteriza por tener el modo óptico energías menores que el modo acústico, por lo menos en la región en donde la magnetización está saturada. En la figura se muestran las relaciones de dispersión correspondientes a  $\alpha = 0^\circ$  y  $\alpha = 90^\circ$ .

en un experimento de FMR, con la particularidad de que cuanto más asimétricas sean las capas, mayor será la intensidad del modo tipo óptico  $H_{r2}$ .

En la Fig. 3.10 mostramos como son las relaciones de dispersión para capas asimétricas. En esta figura se presentan los casos en que el campo está aplicado paralelo ( $\alpha = 0^\circ$ ) y perpendicular ( $\alpha = 90^\circ$ ) al plano del film. En cada configuración se ven dos ramas, una para  $H_{r1}$  y otra para  $H_{r2}$ . Cuando  $H_E = 0$  cada rama responde a una capa específica del sistema, pero al aumentar el valor del acople  $H_E$  ambas curvas son influenciadas por la interacción, impidiendo esto relacionar a cada rama con una capa en particular.

En esta situación, a diferencia del caso simétrico, los ángulos de equilibrio de las magnetizaciones  $\varphi_1$  y  $\varphi_2$  ya no son iguales dada la asimetría en las capas, pero aún sigue siendo válida la relación  $\theta_1 = \theta_2 = \frac{\pi}{2}$ .

Por ser éste un caso general estudiaremos con cierto detalle el modelo con el fin de interpretar de la mejor forma los datos de las mediciones experimentales.

	Modo acústico	Modo óptico
	$\alpha = 0$	
$H <  H_E $	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{1 - \frac{H_D}{H_E} H}$	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_D H_E \left[ \left( \frac{H}{H_E} \right)^2 - 1 \right]}$
$H >  H_E $	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H(H + H_D)}$	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H + H_E) [(H + H_E) + H_D]}$
	$\alpha = 90^\circ$	
$H < H_D - H_E$	0	$\frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_E \left( H^2 \frac{H_E + H_D}{(H_E - H_D)^2} - H_D \right)}$
$H > H_D - H_E$	$\frac{\gamma}{2\pi} (H - H_D)$	$\frac{\gamma}{2\pi} (H - H_D + H_E)$

Tabla 3.2: Expresiones analíticas de las relaciones de dispersión mostradas en la Fig. 3.8. Las soluciones expuestas en la tabla representan los valores de  $\nu$ , para los casos  $\alpha = 0^\circ$  y  $\alpha = 90^\circ$ . Para una correcta interpretación de las ecuaciones es necesario tener en cuenta explícitamente que  $H_E < 0$ .

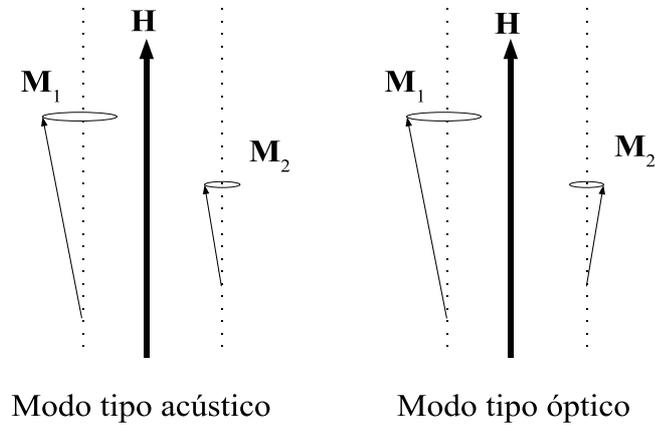


Figura 3.9: Esquema de los modos de precesión en sistemas asimétricos y acoplados. El modo  $H_{r1}$  corresponde a la precesión en fase de las magnetizaciones, mientras que el modo  $H_{r2}$  corresponde a la precesión en contra fase.

### Susceptibilidad escalar e intensidad de los modos de resonancia

Para obtener una expresión del tensor susceptibilidad de dos capas acopladas con la finalidad de calcular la forma e intensidad de los modos de resonancia, empezamos introduciendo

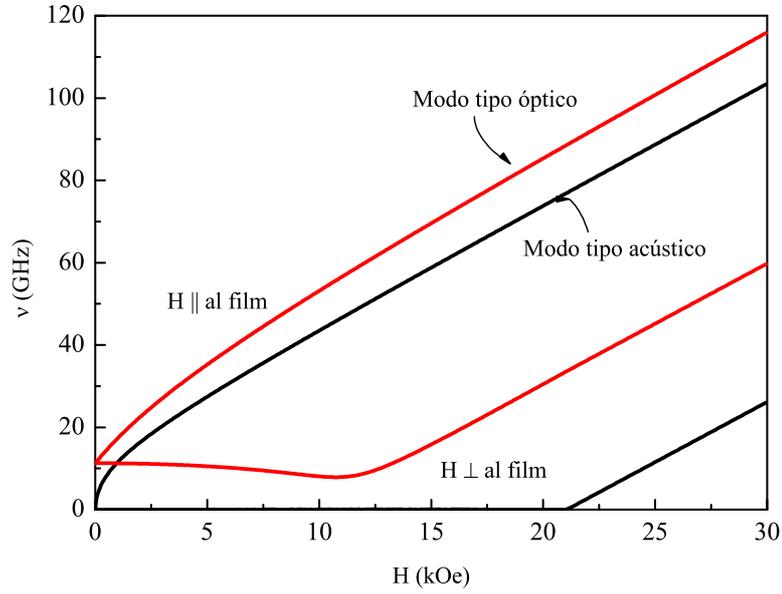


Figura 3.10: Relaciones de dispersión para el caso asimétrico y con acople ferromagnético. Al disminuir el valor de  $H_E$  las relaciones de dispersión tienden a la de dos films simples, uno con campo demagnetizante efectivo  $H_D^{(1)}/4\pi = 1700 \frac{emu}{cm^3}$  y otro con  $H_D^{(2)}/4\pi = 816 \frac{emu}{cm^3}$ . Los parámetros utilizados para la simulación fueron:  $g_1 = g_2 = 2.09$ ,  $H_E = 1000$  Oe.

explícitamente la dependencia temporal  $e^{i\omega t}$  en la ecuación 3.5. Manteniendo sólo términos lineales en  $\mathbf{m}_i$  y  $\mathbf{h}$  y trabajando en coordenadas esféricas es posible llegar a la siguiente ecuación cuando el campo magnético externo está aplicado paralelo al plano del film:

$$\mathbb{D}\mathbf{m} = \tilde{\mathbf{h}}. \quad (3.8)$$

Para el caso particular ( $\alpha = 0^\circ$ ) los ángulos de equilibrio de las magnetizaciones son:  $\varphi_1 = \varphi_2 = 0$  y  $\theta_1 = \theta_2 = \frac{\pi}{2}$ . En la ecuación 3.8, el vector magnetización dependiente del tiempo es:  $\mathbf{m} = (m_{r1}, m_{\theta1}, m_{\varphi1}, m_{r2}, m_{\theta2}, m_{\varphi2})$ ,  $\tilde{\mathbf{h}}$  es una combinación lineal de  $h_r$ ,  $h_\theta$  y  $h_\varphi$ , y la matriz dinámica  $\mathbb{D}$  toma la forma:

$$\mathbb{D} = \begin{pmatrix} \frac{i\omega}{\gamma M_1} & a & 0 & c \\ b & \frac{i\omega}{\gamma M_1} & -c & 0 \\ 0 & d & \frac{i\omega}{\gamma M_2} & e \\ -d & 0 & f & \frac{i\omega}{\gamma M_2} \end{pmatrix}, \quad (3.9)$$

con

$$\begin{aligned}
 a &= \frac{1}{M_1} \left( H + 4\pi M_1 - H_n^{(1)} + \frac{J}{d_1 M_1} - \frac{i\alpha_1 \omega}{\gamma} \right) \\
 b &= \frac{1}{M_1} \left[ \frac{i\alpha_1 \omega}{\gamma} - \left( H + \frac{J}{d_1 M_1} \right) \right] \\
 c &= -\frac{J}{M_1 M_2 d_1} \\
 d &= -\frac{J}{M_1 M_2 d_2} \\
 e &= \frac{1}{M_2} \left( H + 4\pi M_2 - H_n^{(2)} + \frac{J}{d_2 M_2} - \frac{i\alpha_2 \omega}{\gamma} \right) \\
 f &= \frac{1}{M_2} \left[ \frac{i\alpha_2 \omega}{\gamma} - \left( H + \frac{J}{d_2 M_2} \right) \right].
 \end{aligned} \tag{3.10}$$

Notar que  $\mathbb{D}$  es una matriz  $4 \times 4$  porque hemos omitido los términos radiales  $m_{r1}$ ,  $m_{r2}$  y  $h_r$  los cuales no contribuyen al comportamiento dinámico del problema. A partir de la expresión 3.9 es fácil visualizar que cuando  $J$  es igual a cero, la matriz dinámica se vuelve la misma que la esperada para dos films desacoplados ( $c = d = 0$ ).

La ecuación 3.8 puede ser invertida con el fin de expresar la magnetización transversal como función del campo rf de excitación.

$$\mathbf{m} = \mathbb{D}^{-1} \mathbb{C} \mathbb{C}^{-1} \tilde{\mathbf{h}} = \underline{\chi} \mathbf{h}. \tag{3.11}$$

La matriz  $\mathbb{C}$  es una matriz cambio de base ( $\mathbb{C} \mathbb{C}^{-1} = \mathbb{I}$ ) que convierte a  $\tilde{\mathbf{h}}$  en el vector  $\mathbf{h} = (h_\theta, h_\varphi, h_\theta, h_\varphi)$

$$\mathbb{C} = \begin{pmatrix} 0 & -1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \tag{3.12}$$

permitiendo obtener una expresión para el tensor susceptibilidad  $\underline{\chi} = \mathbb{D}^{-1} \mathbb{C}$ .

La expresión de  $\underline{\chi}$  es usualmente muy larga y complicada para ser escrita y generalmente, como en esta situación, se requiere del cálculo numérico para estudiar la forma de línea de resonancia (en el apéndice B mostramos la expresión completa). La medida de la intensidad absorbida en un experimento de FMR es proporcional a la parte imaginaria de la susceptibilidad escalar  $\chi$  la cual tiene la siguiente expresión [33]

$$\chi = \chi' + i\chi'' = \frac{1}{h^2} \mathbf{h}^\dagger \underline{\chi} \mathbf{h}. \tag{3.13}$$

En el análisis llevado a cabo en este trabajo la forma de línea de la absorción está normalmente formada por dos lorentzianas. La expresión de  $\chi''$  puede ser usada para estudiar la influencia que los diferentes parámetros tienen sobre el campo de resonancia y la intensidad de las líneas que aparecen en los espectros, así como también para observar la contribución que cada capa tiene en los modos de resonancia.

### Campos de resonancia y relación de intensidades

Definidos los valores de  $M_1$ ,  $M_2$  y demás parámetros involucrados en la ecuación 3.5, el efecto de  $H_E$  sobre los modos de resonancia puede ser explorado a partir de la susceptibilidad escalar.

Para valores positivos de  $H_E$  (acople ferromagnético) los principales efectos se encuentran en cambiar la posición de los campos de resonancia hacia campos menores y en disminuir la relación de intensidades  $\frac{I_1}{I_2}$ , donde  $I_1$  e  $I_2$  son las intensidades de los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  respectivamente.

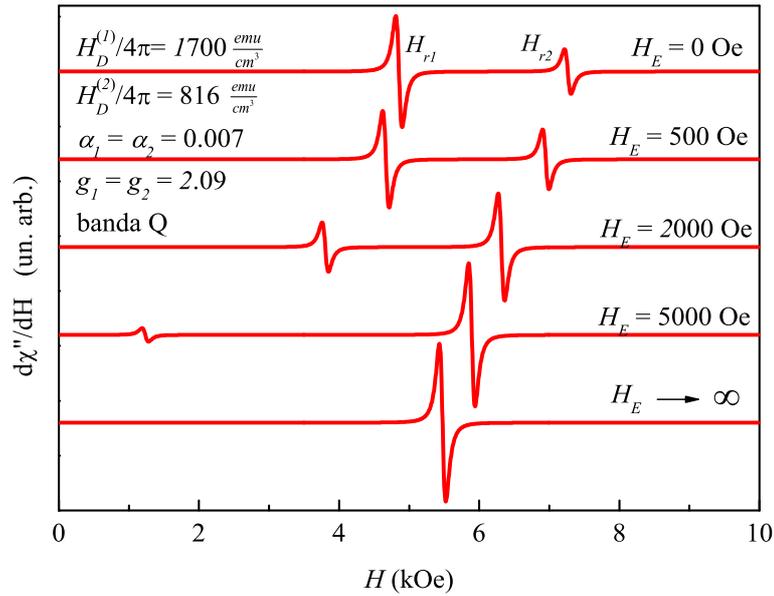


Figura 3.11: Simulación de espectros de resonancia para diferentes valores de campo de intercambio  $H_E$ . El campo magnético externo es aplicado paralelo al plano del film. Notar que para valores muy grandes de  $H_E$  se detecta sólo una absorción.

La Fig. 3.11 muestra un conjunto de curvas simuladas en las cuales el valor de  $H_E$  es incrementado desde cero hacia valores más grandes. Cuando  $H_E$  crece el modo  $H_{r1}$  se mueve a campos más bajos y disminuye su intensidad. Por otra parte el modo  $H_{r2}$  también disminuye

el campo de resonancia pero la intensidad se incrementa. La suma  $I_1 + I_2$  se mantiene casi constante<sup>3</sup>. Cuando el campo de interacción es grande y el gap en frecuencia mucho mayor que la frecuencia de trabajo el modo  $H_{r1}$  no puede ser observado, como se ve en la simulación de la Fig. 3.11 (la curva correspondiente a  $H_E \rightarrow \infty$ ). En este caso el sistema responde como una sola entidad frente al campo externo y la intensidad de este modo es similar a la suma  $I_1 + I_2$  de las restantes simulaciones de esta figura.

La variación en la intensidad relativa entre los dos modos ( $\frac{I_1}{I_2}$ ), es un parámetro que puede ser utilizado para estimar el valor de  $H_E$ , debido a que esta cantidad es sensible a la variación del campo de intercambio, sobre todo para valores pequeños de  $H_E$  (ver Fig. 3.12).

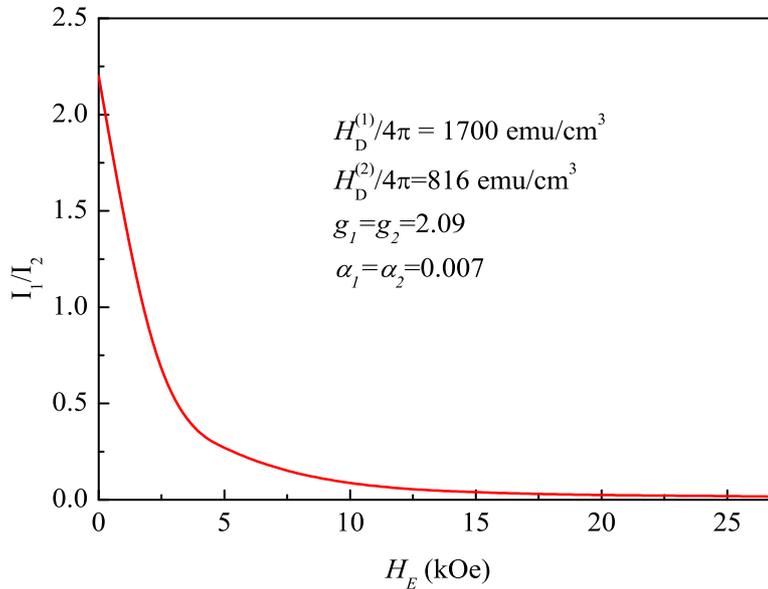


Figura 3.12: Variación de la relación de intensidades  $\frac{I_1}{I_2}$  en función del acople  $H_E$  entre las capas.

Aunque en un espectro experimental se observa la respuesta de todo el sistema, el modelo a partir de la ecuación 3.11 y 3.13, permite separar la contribución individual de cada capa a la señal de FMR. El aporte de cada una de ellas en el caso no acoplado ( $H_E = 0$ ) es mostrado en la Fig. 3.13 (a), en este caso los bloques fuera de la diagonal de la matriz dinámica  $\mathbb{D}$  son cero y el espectro está compuesto por la suma de la resonancia individual de cada capa. La Fig. 3.13 (b) corresponde al caso en el cual  $H_E$  es mayor que cero. En esta condición ambas capas contribuyen a cada modo ya que los bloques fuera de la diagonal son diferentes de cero. Es interesante notar que mientras la capa 1 tiene una contribución en fase a la intensidad

<sup>3</sup>Puede ocurrir que la frecuencia de trabajo sea menor que el gap aún para valores no muy grandes de  $H_E$ , en esta situación la intensidad del único modo observado no conservaría la intensidad total.

del modo de resonancia  $H_{r2}$ , la contribución de la capa 2 a  $H_{r1}$  tiene una contribución en contra fase. Esta es la razón por la que la intensidad del modo de bajos campos decrece (y la intensidad de  $H_{r2}$  crece) al aumentar  $H_E$ . Claro está que en el experimento la línea en contra fase no es observada, sino la respuesta total del sistema. Lo que ocurre es que cuando  $M_1$  y  $M_2$  precesionan en contra fase, la magnetización transversal total que se acopla al campo  $\mathbf{h}$  es más pequeña y por esta razón la intensidad de la línea de resonancia  $H_{r1}$  disminuye. Este también es el motivo por el cual la relación de intensidades  $\frac{I_1}{I_2}$  decrece conforme aumenta  $H_E$ .

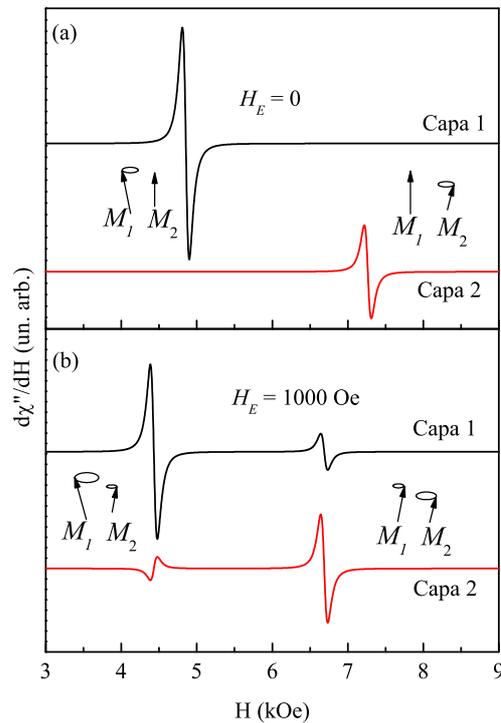


Figura 3.13: Contribución de cada capa al espectro de resonancia en los casos: a) Desacoplado, cada magnetización oscila en forma independiente y b) acoplado, las magnetizaciones oscilan en fase o en contra fase. La línea resultante está formada por la suma de los dos espectros. Se usaron los mismos parámetros que en la Fig. 3.11.

La variación angular del campo de resonancia también es afectada por el valor del campo de intercambio. Cuando  $H_E$  es igual a cero la variación de los campos de resonancia corresponden a dos films simples, uno de magnetización  $M_1$  y otro  $M_2$  (en este análisis consideramos nula a la anisotropía perpendicular). En esta situación los campos de resonancia se cruzan en un ángulo determinado por los valores de las magnetizaciones (ver líneas de puntos en la Fig. 3.14).

El efecto que produce  $H_E \neq 0$  es el de mover los campos de resonancias a campos menores, aumentar la separación entre los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  y además producir una brecha en la zona

donde los campos de resonancia antes se cruzaban, tal como se indica en la Fig. 3.14 (líneas continuas). Experimentalmente este efecto es muy difícil de observar ya que en esta región los anchos de líneas de los campos de resonancia se incrementan notablemente y las líneas suelen deformarse.

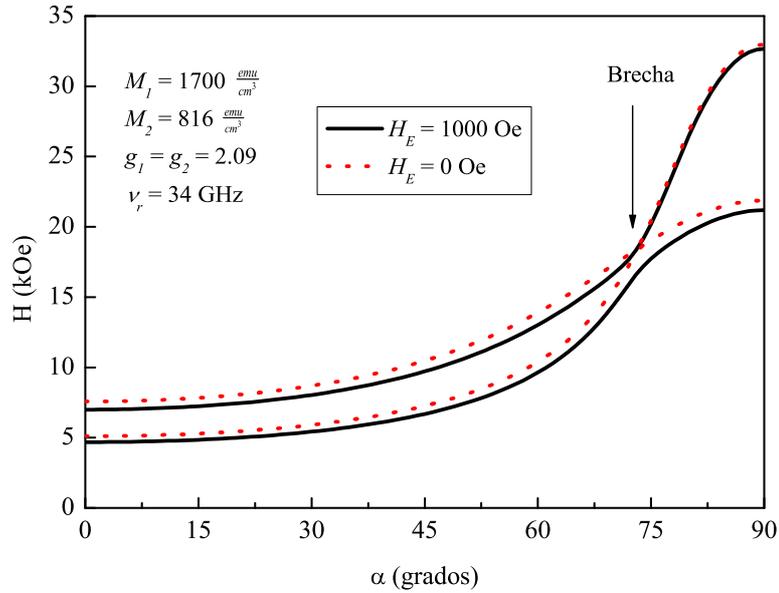


Figura 3.14: Variación angular de los campos de resonancia en los casos asimétricos con acople ferromagnético. Las líneas de puntos corresponden al caso sin interacción, mientras que en las líneas continuas el valor de  $H_E$  es 1000 Oe.

La evolución de los campos de resonancia en función de  $H_E$  es mostrada en la Fig. 3.15, en este caso el campo externo está aplicado paralelo al plano del film. En la figura se observa como el aumento de  $H_E$  produce una disminución en los campos de resonancia. Bajo este comportamiento se llega a una situación en donde el campo de resonancia  $H_{r1}$  no puede ser sintonizado por la frecuencia de trabajo, mientras que el campo correspondiente a  $H_{r2}$  disminuye asintóticamente a un valor de campo definido por

$$\lim_{H_E \rightarrow \infty} H_{r2} = \sqrt{(2\pi M_{eff})^2 + \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2} - 2\pi M_{eff}, \quad (3.14)$$

en donde

$$M_{eff} = \left( \frac{t_1 M_1^2 + t_2 M_2^2}{t_1 M_1 + t_2 M_2} \right). \quad (3.15)$$

La relación de dispersión en esta situación se reduce a

$$\lim_{H_E \rightarrow \infty} \left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 = H_{r2} (H_{r2} + 4\pi M_{eff}). \quad (3.16)$$

Comparando esta ecuación con la relación de dispersión correspondiente a un film simple  $\left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 = H (H + 4\pi M)$ , se puede observar la equivalencia en tratar al sistema muy acoplado como un film simple de magnetización  $M_{eff}$ .

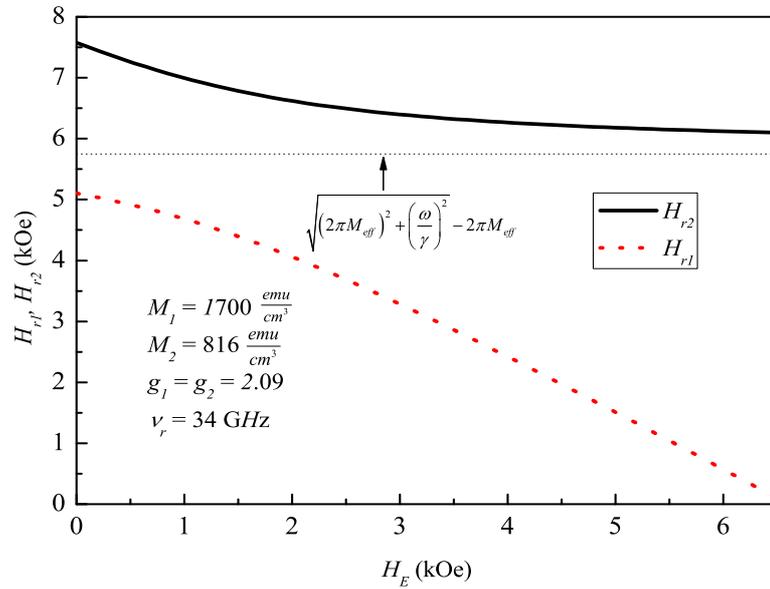


Figura 3.15: Dependencia de los campos de resonancia en función de  $H_E$ , en sistemas asimétricos y con  $J > 0$ . Cuando el valor de  $H_E$  es muy grande el valor de  $H_{r2}$  tiende al valor mostrado por la línea de puntos.

Resulta particularmente interesante, y nos resultará de utilidad, la expresión para  $M_{eff}$  cuando la bicapa interactuante es  $\text{Fe}(d)|\text{Fe-SiO}_2(t)$ . En esta situación la Ec. 3.15 se reduce a:

$$M_{eff} = M_{\text{Fe}} \frac{d + tx^2}{d + tx}, \quad (3.17)$$

donde  $x$  es la concentración volumétrica de Fe presente en el granular de Fe-SiO<sub>2</sub> y  $M_{\text{Fe}}$  es la magnetización de saturación del Fe.

### 3.3.2. Acople antiferromagnético ( $J < 0$ )

Este caso es el más general ya que los ángulos de equilibrio de las magnetizaciones son todos diferentes y no existe relación simple entre ellos. Por este motivo no es posible hacer

ninguna simplificación en las expresiones de la energía libre ni en la ecuación de movimiento. En este trabajo hemos estudiado experimentalmente algunos sistemas en donde aparece una pequeña asimetría entre capas acopladas antiferromagnéticamente y destacado cómo se manifiesta la asimetría en las medidas de FMR y magnetización DC. El caso general en el que se estudia el acople AF puede ser encontrado en la referencia [30] y no presentamos aquí un modelo para describir este tipo de sistemas.

### 3.4. Modelo para tricapas

A continuación desarrollamos un modelo fenomenológico original para describir el comportamiento de una tricapa donde todas las capas pueden interactuar entre sí. El modelo es una adaptación del propuesto por Smit y Beljers [28], en el que se incluyen interacciones entre capas ferromagnéticas e intenta describir algunos de los sistemas estudiados en este trabajo. A partir del modelo es posible obtener numéricamente la forma de línea y las intensidades de los espectros de FMR.

El sistema a ser descrito consiste en dos capas ferromagnéticas continuas ( $FM_i$ ) de espesores fijos de magnitud  $d$ , separadas por un espaciador granular de la forma Fe-SiO<sub>2</sub>. Los films granulares han sido estudiado en detalle en varios trabajos [2, 3] y en ellos se destaca que la anisotropía de forma de estos films depende de la concentración volumétrica de Fe,  $x$ . Para concentraciones mayores a la concentración de percolación  $x_p$ , el film se comporta como si tuviera un campo demagnetizante  $4\pi M_G$  siendo  $M_G = xM_{Fe}$ . Tanto el espesor del espaciador granular  $t$ , como la concentración volumétrica de Fe  $x$ , son parámetros a ser variados en el modelo.

Por otro lado, y como fue mencionado anteriormente, cuando dos capas interactúan fuertemente se comportan como un único sistema de magnetización  $M_{eff}$  (ver Ec. 3.15). Siguiendo estos conceptos, la idea del modelo es pensar a la tricapa como dos subsistemas fuertemente acoplados (valores suficientemente grandes para  $H_E^{(i)}$ ) que interactúan entre sí, tal como se esquematiza en la Fig. 3.16. Así separar al sistema  $FM_1|Fe-SiO_2|FM_2$  en dos subsistemas de magnetización  $M_{eff}^{(1)}$  y  $M_{eff}^{(2)}$  y espesores  $t_{eff}^{(1)}$  y  $t_{eff}^{(2)}$  acoplados con un campo de interacción  $H_E$ .

Es importante notar que si una de las capas continuas no interactúa con el espaciador granular, el modelo sigue siendo válido, sólo que en esa situación una de las magnetizaciones y espesores equivalentes conservan los valores de la capa ferromagnética continua no interactuante.

#### 3.4.1. FM|Granular fuertemente acoplado

Como se mencionó más arriba, si el campo de interacción  $H_E^{(i)}$  entre la capa continua  $i$  y el espaciador granular es grande (suficiente para generar una relación de dispersión con gap mucho mayor que la frecuencia de trabajo), ambos films responden al campo externo como

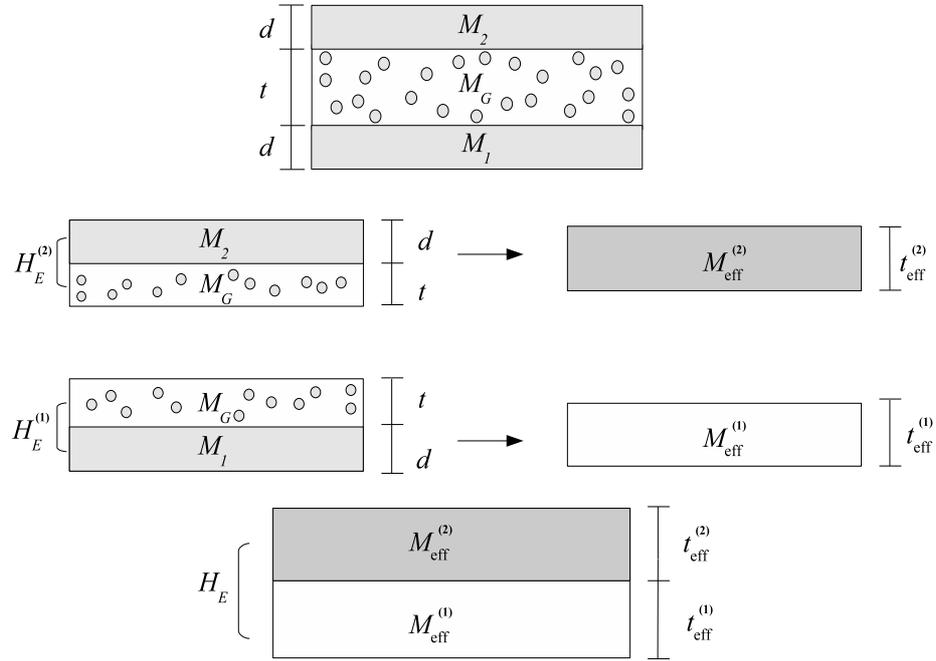


Figura 3.16: Esquema de las tricapas a ser estudiadas en esta sección. Si asumimos que existe una fuerte interacción entre las capas continuas y el espaciador granular, el sistema puede ser tratado como dos films separados  $M_1|M_G$  y  $M_G|M_2$ . De esta manera la tricapa puede ser modelada como dos capas equivalentes con magnetizaciones y espesores efectivos acopladas por un campo de interacción  $H_E$ .

una sola entidad, ya que el campo de interacción acopla fuertemente a las magnetizaciones de ambas capas. La relación de dispersión para este caso y con el campo  $\mathbf{H}$  aplicado paralelo al plano del film es:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H \left( H + H_{eff}^{(i)} \right) \quad (3.18)$$

con

$$H_{eff}^{(i)} = 4\pi \left( \frac{dM_i^2 + tM_G^2}{dM_i + tM_G} \right). \quad (3.19)$$

El subíndice  $i$  hace referencia a la capa continua 1 ó 2,  $t$  y  $M_G$  son el espesor y la magnetización del espaciador granular respectivamente. Como fue mencionado en la sección anterior, la bicapa se comporta como un film simple de magnetización efectiva de magnitud  $M_{eff}^{(i)}$

$$M_{eff}^{(i)} = \frac{d_i M_i^2 + t M_G^2}{d_i M_i + t M_G} \quad (3.20)$$

	$M_{eff}$	$t_{eff}$
(1) Fe( $d$ )   Fe-SiO <sub>2</sub> ( $t$ )	$M_{Fe} \frac{d + tx^2}{d + tx}$	$\frac{(d + tx)^2}{d + tx^2}$
(2) Fe-SiO <sub>2</sub> ( $t$ )   Py( $d$ )	$\frac{dM_{Py}^2 + t(xM_{Fe})^2}{dM_{Py} + txM_{Fe}}$	$\frac{(dM_{Py} + txM_{Fe})^2}{dM_{Py}^2 + t(xM_{Fe})^2}$

Tabla 3.3: Valores de  $M_{eff}$  y  $t_{eff}$  obtenidos de las ecuaciones (3.20) y (3.21) para el sistema equivalente.  $d$  y  $t$  son los espesores de la capa ferromagnética continua superior e inferior y del espaciador granular respectivamente.

y espesor efectivo  $t_{eff}^{(i)}$

$$t_{eff}^{(i)} = \frac{(d_i M_i + t M_G)^2}{d_i M_i^2 + t M_G^2}. \quad (3.21)$$

El espesor efectivo  $t_{eff}^{(i)}$  se obtiene de manera de conservar la magnetización total por unidad de área ( $t_{eff}^{(i)} M_{eff}^{(i)} = d_i M_i + t M_G$ ), o en otras palabras, para que conserve la intensidad de los espectros de FMR tanto en la bicapa original como en el sistema equivalente.

En la siguiente sección trataremos la tricapa FM<sub>1</sub>|Fe-SiO<sub>2</sub>|FM<sub>2</sub> como dos bicapas de magnetizaciones y espesores efectivos  $M_{eff}^{(1)}$ ,  $M_{eff}^{(2)}$ ,  $t_{eff}^{(1)}$  y  $t_{eff}^{(2)}$  respectivamente, acopladas a través de un campo de interacción de valor  $H_E$  tal como es sugerido en la Fig. 3.16. En este punto podemos usar la teoría o modelo descrito en la sección 3.3.1 para estudiar la posición de los campos de resonancia, la forma y la intensidad de las absorciones de FMR.

### 3.4.2. Qué se espera a partir del modelo

Del modelo recién descrito se esperan resultados medibles aún cuando el campo de interacción entre las capas efectivas sea nulo ( $H_E = 0$ ). Ya que en las muestras a ser estudiadas, las capas continuas son de Fe y/o Permalloy (Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>) será de utilidad asignar las siguientes cantidades  $M_1 = M_{Fe}$ ,  $M_2 = M_{Py}$  y  $d_1 = d_2 = d$ . Para el espaciador granular utilizaremos los parámetros  $M_G = x M_{Fe}$  y  $t$ . En la tabla 3.3 mostramos las expresiones de  $M_{eff}^{(i)}$  y  $t_{eff}^{(i)}$  que se obtienen a partir de las ecuaciones (3.20) y (3.21). Denotamos a Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> como Py.

Estas expresiones tienen una dependencia explícita con el espesor  $t$  y la concentración volumétrica de Fe  $x$  del espaciador granular. Estos parámetros influyen en los espectros de FMR y esta influencia existe aún cuando  $H_E$  es cero.

Es importante notar que cuando la concentración de Fe,  $x$ , en el granular es baja ( $x < x_p$ ), la interacción magnética entre los granos decrece y el acoplamiento con el film continuo es drásticamente suprimido. Por otro lado si el espesor es muy grande la capa continua no

podrá interactuar en forma eficaz con todo el espaciador granular. El modelo debe aplicarse con cuidado en estas situaciones límites.

### Número de modos de resonancia

En una tricapa totalmente desacoplada se esperan tres modos de resonancia, cada uno asociado a una capa diferente. Lo que el modelo predice es que una tricapa, donde el espaciador esté acoplado fuertemente con las capas continuas tendrá a lo sumo dos modos de resonancia observables, dependiendo del valor de  $H_E$ . A estos modos los llamaremos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$ . El primero tendrá un campo de resonancia cercano al correspondiente a  $M_{Fe}$  y el segundo próximo al correspondiente a  $M_{Py}$  (ver Fig. 3.17).

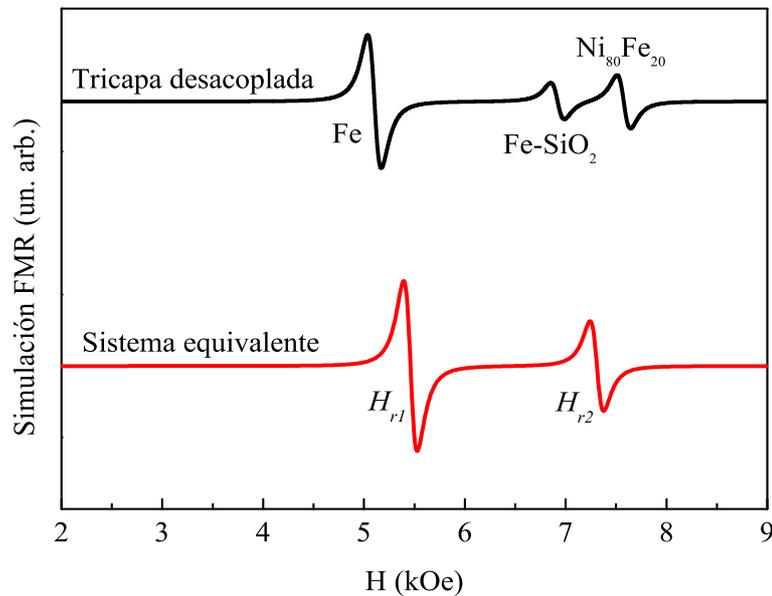


Figura 3.17: Al existir una fuerte interacción entre el granular y las capas continuas se produce la desaparición de uno de los modos de resonancia, el cual sí es observado en una tricapa desacoplada.

Los parámetros utilizados fueron:  $\nu_r = 34$  GHz;  $d = 17$  nm;  $t = 9$  nm;  $x = 0.59$ ;  $M_1 = 1700 \frac{emu}{cm^3}$ ;  $M_2 = 816 \frac{emu}{cm^3}$ ;  $M_G = xM_{Fe}$  y  $H_E = 0$ . Las magnetizaciones y espesores efectivos fueron obtenidos a partir de las ecuaciones de la tabla 3.3.

La posición de los picos de resonancia  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  del sistema equivalente están ligeramente corridas respecto de los modos de Fe y Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> del sistema original. El efecto de la capa granular es de correr el modo del Fe a campos más altos y el del Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> a campos menores. Este hecho se debe a que  $M_{Fe} > M_G > M_{Py}$ . Si en la simulación de la Fig. 3.17 se incrementara el valor de  $H_E$ , los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  del sistema equivalente seguirían el

comportamiento mostrado en la Fig. 3.11.

### Dependencia con los parámetros $t$ y $x$

Cuando el campo de intercambio es cero o muy pequeño ( $H_E \sim 0$ ) los espectros de FMR tienen una dependencia bien definida con los parámetros característicos del espaciador granular  $x$  y  $t$ , el aumento del valor de  $H_E$  modifica esta dependencia.

Para ser más descriptivos, cuando  $H_E \sim 0$  esperamos tener dos señales de absorción, una a un campo  $H_{r1}$  la cual corresponde a la resonancia del sistema equivalente con magnetización  $M_{eff}^{(1)}$  y otra a un campo  $H_{r2}$  asociada con  $M_{eff}^{(2)}$ . En la Fig. 3.18 mostramos la dependencia de la posición de estos campos de resonancia en función de  $t$  para diferentes valores de  $x$ . En estas simulaciones consideramos el campo aplicado paralelo al plano del film, utilizando una frecuencia de 34 GHz (banda Q).

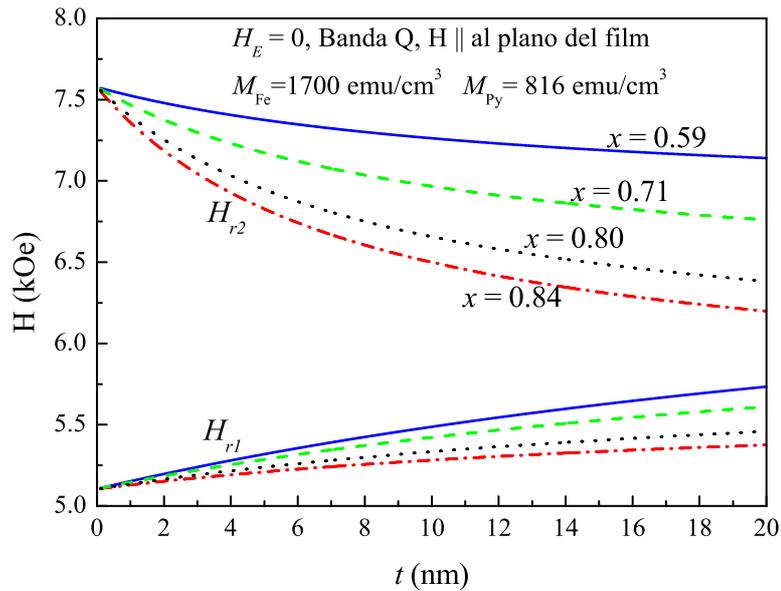


Figura 3.18: Valores predichos de los campos de resonancia  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  como función de  $t$  para distintos valores de  $x$  en un caso desacoplado ( $H_E = 0$ ). Las simulaciones fueron hechas para banda Q y con el campo externo aplicado paralelo al plano del film. Los indicadores de  $x$  también se aplican para el conjunto de curvas inferiores.

La principal característica que puede ser observada en la Fig. 3.18 es que la posición de los campos de resonancia cambian al variar  $t$  o  $x$ . Particularmente el valor de  $H_{r1}$  se incrementa al aumentar  $t$  y lo contrario ocurre para  $H_{r2}$ . Para un valor fijo del espesor del espaciador granular  $t$ , ambos campos de resonancia se mueven a campos menores al aumentar  $x$ . Como

puede ser apreciado, el efecto de la capa granular es más evidente sobre el film continuo de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  especialmente para valores grandes de  $t$  y  $x$ .

También es interesante analizar el comportamiento de los campos de resonancia en función del espesor del espaciador para diferentes frecuencias de excitación. En la Fig. 3.19 mostramos las relaciones de dispersión obtenidas a partir de la Ec. 3.18 utilizando diferentes espesores  $t$  e idénticos valores de concentración  $x=0.59$  para cada curva. Las simulaciones corresponden a la capa equivalente  $\text{Fe}|\text{Fe-SiO}_2$ .

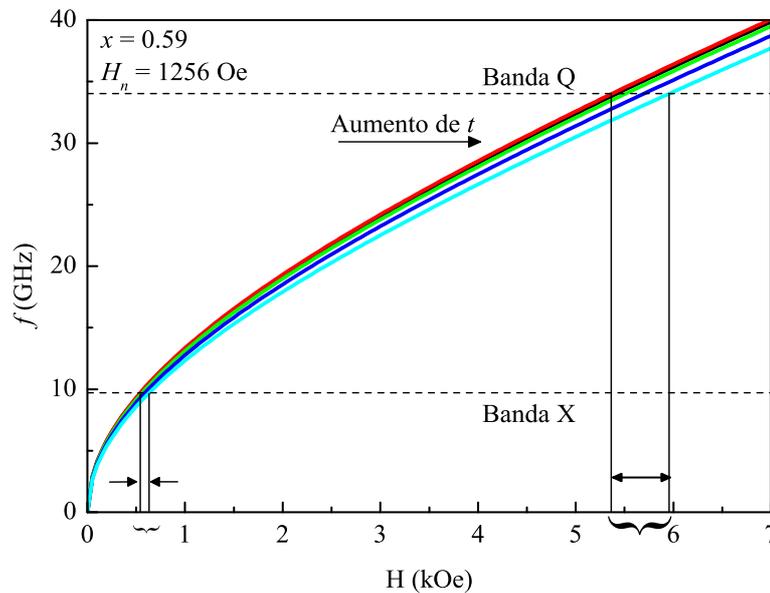


Figura 3.19: Relación de dispersión para el modo asociado a la capa con magnetización efectiva  $M_{eff}^{(1)}$ . Los valores del espesor del espaciador son: 1, 2, 3, 9 y 18 nm. La concentración del espaciador granular en todas las curvas es  $x = 0.59$ . las líneas de trazos horizontales corresponden a banda X (9.4 GHz) y banda Q (34 GHz). Las líneas verticales indican el cambio en la posición de los campos de resonancia para estas dos frecuencias.

En esta figura se observa que la posición del campo  $H_{r1}$  cambia a campos mayores al aumentar  $t$  para cualquier frecuencia de trabajo, pero esta variación es más notoria en mediciones de banda Q tal como es indicado por las líneas verticales en la figura. Este resultado se observa para cualquier valor de  $x$ , sin embargo es más evidente en concentraciones pequeñas.

### Acople entre $M_{eff}^{(1)}$ y $M_{eff}^{(2)}$ ( $H_E \neq 0$ )

Una vez determinados los valores de  $M_{eff}^{(1)}$ ,  $M_{eff}^{(2)}$  y demás parámetros que aparecen en el modelo, se puede analizar el efecto que produce un valor no nulo de  $H_E$  en la señal de absorción en la medida de FMR.

Para valores positivos de  $H_E$  (acople ferromagnético) el principal cambio se encuentra en la variación en la posición de los campos de resonancia y en la relación de intensidades ( $\frac{I_1}{I_2}$ ). Tal como fue descrito en la sección 3.3.1 (Campos de resonancia y relación de intensidades) el cambio en la relación de intensidades y la contribución de cada capa a los distintos modos de resonancia tiene una dependencia bien definida con  $H_E$ , todo lo expuesto en esa sección puede ser aplicado en esta situación.

En la Fig. 3.20 se muestra como varía la relación de intensidades en función del acople entre las capas efectivas  $M_{eff}^{(1)}$  y  $M_{eff}^{(2)}$ .

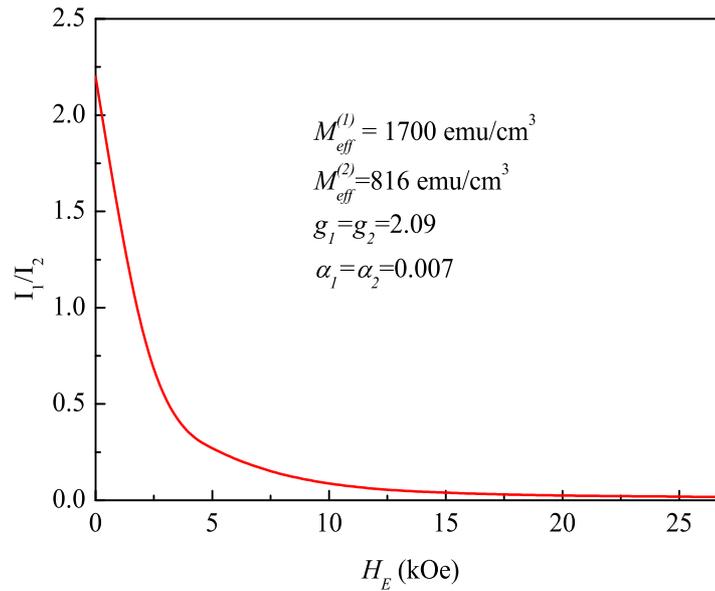


Figura 3.20: Variación de la relación de intensidades  $\frac{I_1}{I_2}$  en función del acople  $H_E$  entre las capas efectivas  $M_{eff}^{(1)}$  y  $M_{eff}^{(2)}$ .

Este cambio en la relación de intensidades es más notable cuando el campo  $H_E$  es pequeño, de esta manera, el cambio en la relación de intensidades puede ser usado para determinar el valor de  $H_E$  a partir de una medición experimental.

# Capítulo 4

## Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Fe ( $J > 0$ ) caso simétrico

Dentro del marco experimental, el primer conjunto de muestras estudiadas fue diseñado para ser un sistema simétrico y con acople ferromagnético ( $J > 0$ ). Para tal fin realizamos mediciones tanto de caracterización composicional como magnética en tricapas de la forma Fe | Fe( $x$ )SiO<sub>2</sub>(1- $x$ ) | Fe. A continuación presentamos una descripción de la fabricación y caracterización de estas muestras.

### 4.1. Fabricación y caracterización

Las muestras son tricapas de Fe | Fe( $x$ )SiO<sub>2</sub>(1- $x$ ) | Fe<sup>1</sup>, donde  $x$  expresa la fracción volumétrica de Fe presente en el espaciador granular, tal como fue discutido en las secciones 1.1 y 2.1.2. Estas multicapas fueron fabricadas por sputtering, sobre dos sustratos cuadrados

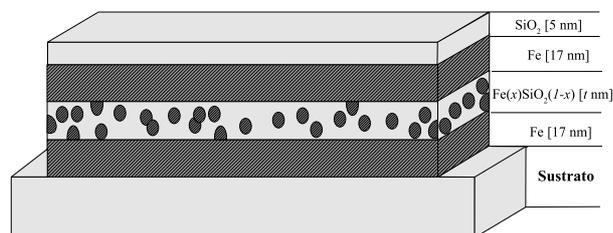


Figura 4.1: Esquema de la multicapa estudiada en este capítulo.

<sup>1</sup>Estas muestras fueron fabricadas por James Weston, en el *Center for Materials for Information Technology*, Tuscaloosa, USA.

de vidrio *corning* 7059 de 5.1 cm de lado cada uno y recubiertos por una capa protectora de  $\text{SiO}_2$  de 5 nm de espesor, para evitar la oxidación (ver esquema en la Fig. 4.1).

La primera capa de Fe fue crecida empleando la técnica de magnetron sputtering DC, desde un target de 10 cm de diámetro. Luego se creció el espaciador granular para el cual se usó magnetron sputtering RF, desde un blanco compuesto de Fe -  $\text{SiO}_2$  de 20 cm de diámetro, (ver Fig. 4.2), como es descrito en la sección 2.1.2. La segunda capa de Fe fue crecida posteriormente sobre el espaciador granular. Todo el proceso de fabricación, hasta el recubrimiento de la capa protectora de  $\text{SiO}_2$  de 5 nm, se realizó sin romper el vacío de la cámara de sputtering utilizando una presión de base de  $3 \times 10^{-7}$  Torr, una presión de Ar de 5 mTorr y una potencia de 200 W y 250 W para el blanco de Fe y el blanco compuesto respectivamente. Estas condiciones dieron un ritmo de crecimiento de aproximadamente 1 nm/s para la capa de Fe y 0.26 nm/s para la capa granular.

Del centro del sustrato de 10.2 cm se cortó una tira de aproximadamente 3 mm de ancho (ver esquema de blancos y sustrato en la Fig. 4.2). Esta tira se subdividió en 34 muestras de  $\sim 3 \times 3 \text{ mm}^2$  obteniéndose distinto contenido relativo de Fe y  $\text{SiO}_2$  en cada una de ellas. La variación de la concentración en cada muestra crecida de esta manera, es aproximadamente cuadrática con la distancia respecto del centro del target como puede verse en la Fig. 4.3.

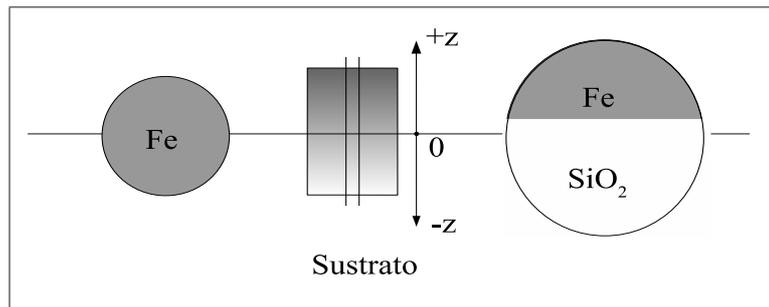


Figura 4.2: Esquema de la disposición de blancos respecto del sustrato.

Se prepararon 5 series (A, B, C, D y E) con 34 muestras cada una, la concentración volumétrica de Fe varía desde 0.45 hasta 0.95 en cada serie y estas se diferencian por el espesor de la capa granular. En la tabla 4.1 mostramos el espesor  $t$  nominal al centro del sustrato de cada serie. En todas las muestras el espesor ( $d$ ) de las capas continuas de Fe es de 17 nm, el del sustrato de vidrio 1 mm y el de la capa protectora de  $\text{SiO}_2$  de  $\sim 5$  nm.

Para estimar la cantidad relativa de átomos de Fe y  $\text{SiO}_2$  presentes en el espaciador granular se crecieron films de referencia sobre un sustrato de Cu, en las que se realizaron mediciones de XPS, AES y EDS<sup>2</sup>.

Para evitar la contaminación superficial en estas mediciones de caracterización composicional, se realizó una limpieza mediante un bombardeo con iones de argón (sputtering) para erosionar la superficie. El proceso de limpieza consistió en intercalar mediciones de AES y algunos minutos de sputtering hasta que las medidas de AES no cambien en los subsiguientes

<sup>2</sup>Las mediciones de EDS fueron realizadas por Pablo Levy en el Centro Atómico Constituyentes.

Serie	$t$ (nm)
A	1.1
B	2.2
C	4.5
D	9
E	18

Tabla 4.1: Espesor nominal del espaciador granular de cada una de las series de muestras. El valor presentado corresponde al estimado para la parte central del sustrato.

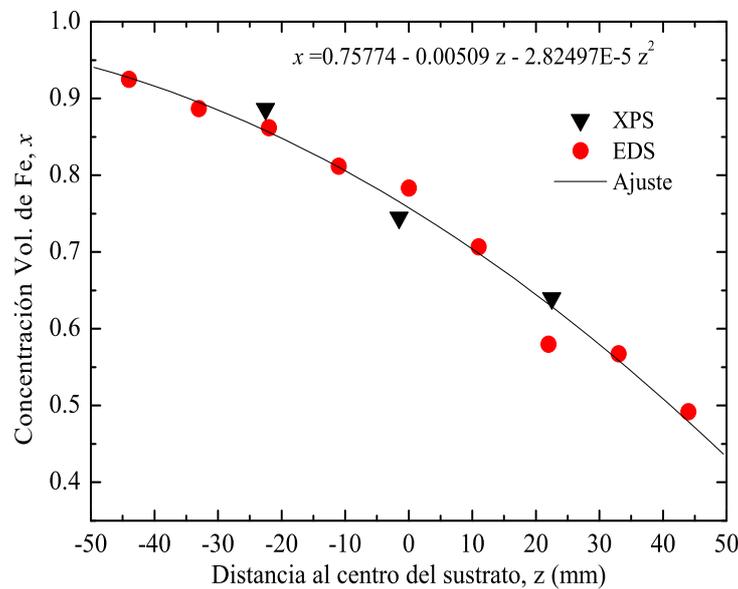


Figura 4.3: Cambio de la concentración volumétrica de Fe del espaciador granular respecto de la distancia al centro del sustrato. Los valores de  $x$  fueron determinados mediante mediciones de XPS y EDS.

sputtering. Una vez limpiadas las superficies se realizaron las mediciones de XPS. Se escogieron los picos correspondientes al Si-2p y Fe-3s debido a que están poco separados en energía, evitándose de esta manera incertezas en las constantes que relacionan el área de los picos con la cantidad de átomos en la muestra, ya que estas constantes pueden depender de una forma no muy predecible con la energía.

Adicional a las mediciones de XPS, también se realizaron estudios de EDS para estimar las concentraciones relativas de los componentes. A partir de la concentración atómica de Fe,  $x^a$ , obtenida de ambas mediciones, se pudo calcular la concentración volumétrica de Fe

( $x_{\text{Fe}}(\text{Vol})$  o simplemente  $x$ ) utilizando la fórmula:

$$x_{\text{Fe}}(\text{Vol}) = x = \left[ 1 + \frac{PM_{\text{SiO}_2} \sigma_{\text{Fe}} x_{\text{SiO}_2}^a}{PM_{\text{Fe}} \sigma_{\text{SiO}_2} x_{\text{Fe}}^a} \right]^{-1} \quad (4.1)$$

Donde  $PM$  es el peso molecular y  $\sigma$  la densidad. Reemplazando los valores correspondientes al  $\text{SiO}_2$  y  $\text{Fe}$ :

- $PM_{\text{SiO}_2} = 60.09 \frac{\text{gr}}{\text{mol}}$
- $\sigma_{\text{SiO}_2} = 2.32 \frac{\text{gr}}{\text{cm}^3}$
- $PM_{\text{Fe}} = 55.8 \frac{\text{gr}}{\text{mol}}$
- $\sigma_{\text{Fe}} = 7.86 \frac{\text{gr}}{\text{cm}^3}$

se obtiene la fórmula de conversión

$$x = \left[ 1 + 3.64 \frac{1 - x_{\text{Fe}}^a}{x_{\text{Fe}}^a} \right]^{-1} \quad (4.2)$$

En la Fig. 4.3 se presentan los valores de  $x$  en función de la distancia al centro del sustrato obtenidos a partir de la caracterización descripta. Además las mediciones de XPS, a partir de la separación entre los picos, permiten concluir que el Fe está en estado metálico mientras que el Si está formando un óxido, tal como es esperado en esta situación.

## 4.2. Magnetización DC

Las mediciones de magnetización DC fueron realizadas en el magnetómetro de muestra vibrante, VSM. Las medidas consistieron en ciclos de magnetización con el campo aplicado paralelo al plano definido por la muestra a temperatura ambiente.

En la Fig. 4.4 se presentan ciclos típicos que reúnen las principales características encontradas en estas muestras. Las medidas presentan campos coercitivos entre 10 y 50 Oe, dependiendo de la muestra y de la orientación del campo dentro del plano de la multicapa. Los ciclos mostrados en el panel a) corresponden a una muestra de la serie E ( $t = 18$  nm) con concentración  $x = 0.48$ , la cual presenta anisotropía uniaxial, distinguiéndose claramente la medida paralela de la perpendicular. Los ciclos mostrados en el panel b), también de la serie E con concentración  $x = 0.84$ , son ciclos cuadrados e isotrópicos dentro del plano de la muestra. En general, la mayoría de las muestras presentan una pequeña anisotropía uniaxial dentro del plano y la dirección del eje fácil no es arbitraria, sino perpendicular al gradiente de concentración  $x$ , del espaciador granular<sup>3</sup>. Los indicativos  $\parallel$  y  $\perp$  representan las direcciones paralela y perpendicular al eje fácil.

<sup>3</sup>Recordar que en las muestras el espaciador granular se crece desde un blanco mixto, el cual define una dirección de crecimiento de la concentración  $x$  (ver Fig. 4.2). La dirección del eje fácil es perpendicular a este eje de crecimiento de  $x$ .

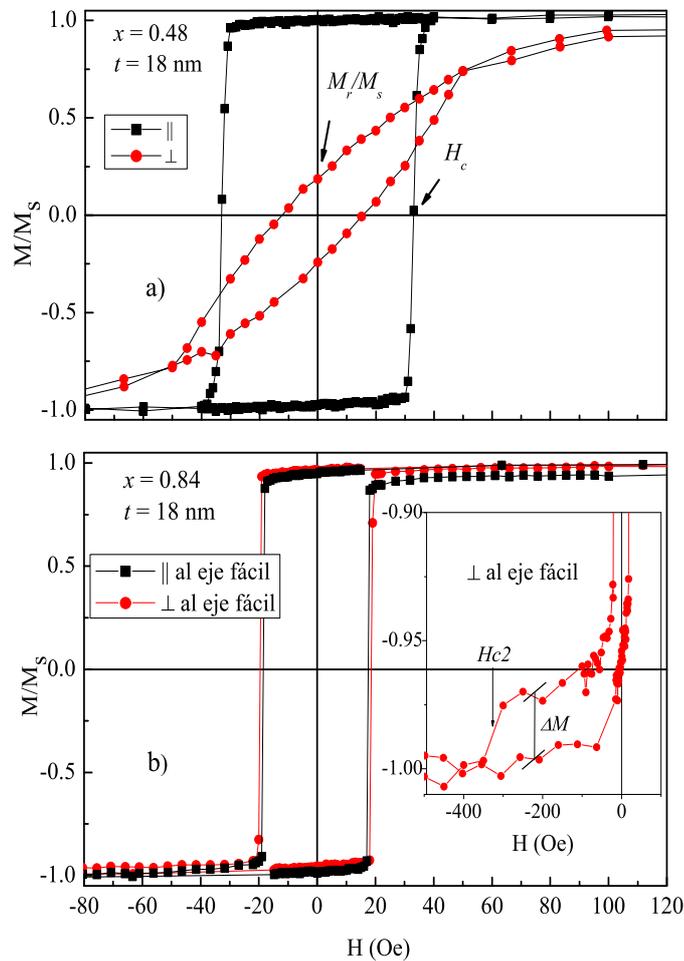


Figura 4.4: Ciclos de magnetización en función del campo magnético externo para dos muestras de la serie E. En la figura se indican la magnetización remanente relativa,  $\frac{M_r}{M_s}$  y el campo coercitivo,  $H_c$ .

En la Fig. 4.5 se presentan la magnetización remanente y los campos coercitivos, medidos en la dirección paralela y perpendicular al eje fácil, en función de la concentración  $x$  para las series D y E. Los datos que se muestran en esta figura resultan particularmente interesantes, ya que la diferencia entre la remanencia paralela y perpendicular (o la diferencia de los campos coercitivos medidos en estas dos direcciones) dan una idea de la magnitud de la anisotropía uniaxial. Si bien en la figura, sólo se presentan los datos de las series D y E, las demás series tienen un comportamiento similar en donde la diferencia entre las medidas paralela y perpendicular son notorias en los extremos de las curvas, especialmente para valores bajos de  $x$ . Este comportamiento indica que el valor de la anisotropía uniaxial es máximo en estos extremos y prácticamente nula en el centro. La existencia de esta anisotropía está relacionada con la distancia del sustrato respecto al centro del blanco en el

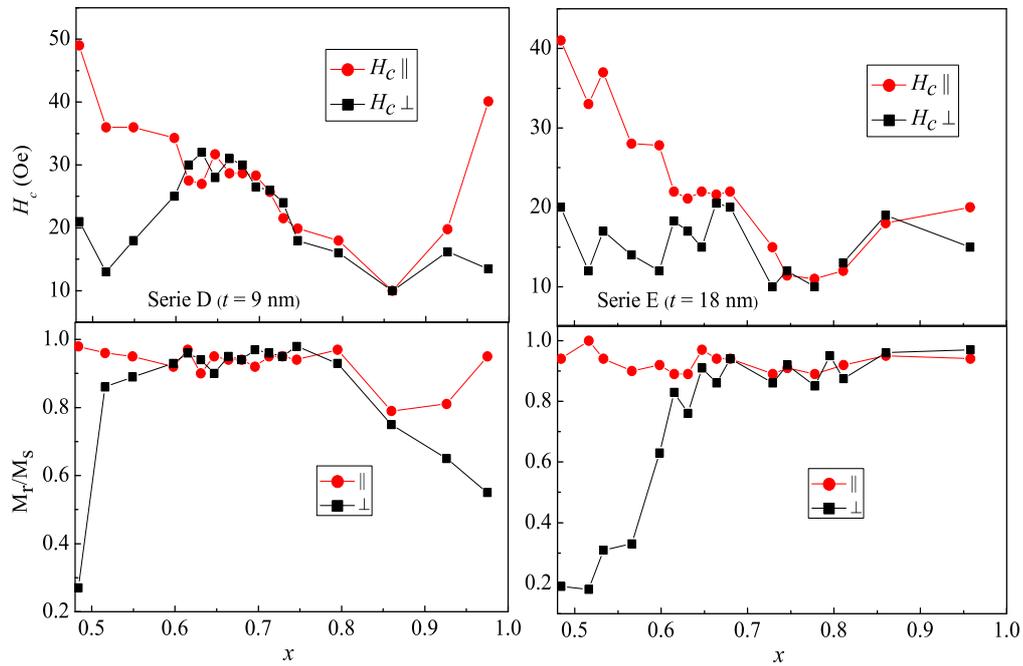


Figura 4.5: Magnetización remanente relativa a  $M_s$  y campo coercitivo en función de la concentración  $x$ , para las series D y E.

proceso de fabricación de la muestra. Probablemente tenga origen en la incidencia oblicua del material depositado, la cual es más significativa en los extremos del sustrato [34]. En la siguiente sección presentaremos más resultados experimentales que indican la presencia de esta anisotropía, a partir de mediciones que permiten estimar en forma cuantitativa su valor.

Una particularidad encontrada en estas muestras, es la presencia de más de un escalón en el proceso de reversión de la magnetización tal como es mostrado en el inset de la Fig. 4.4 b). Este salto se caracteriza por el valor del escalón  $\Delta M$  y el campo coercitivo asociado  $H_{c2}$ , los cuales están definidos en la figura. Este proceso de reversión de la magnetización, sólo se observa en muestras con alto valor de  $x$  y con espesores de 4.5, 9 y 18 nm, sin tener una dirección preferencial dentro del plano. Es sabido que los films delgados de Fe presentan campos coercitivos pequeños ( $< 10$  Oe), dependiendo de la calidad del film y de las anisotropías presentes, mientras que los films granulares presentan campos coercitivos mayores<sup>4</sup>. De esta manera, existe la tendencia a asignar este segundo salto a una porción del espaciador granular que no interactúa con el resto del sistema. Esta porción tendría su propio mecanismo de inversión de la magnetización y sería más notorio en muestras con espaciador

<sup>4</sup>Al menos cuando  $x > x_p$ , donde las partículas no están en estado superparamagnético. El valor de  $H_c$  en las capas granulares varía al cambiar la concentración y son mayores que los correspondientes a films simples de Fe.

más grueso. Sin embargo no se encontró ninguna dependencia sistemática de  $\Delta M$  y  $H_{c2}$  en función de los parámetros  $x$ ,  $t$  o la temperatura  $T$  que verifiquen esta suposición.

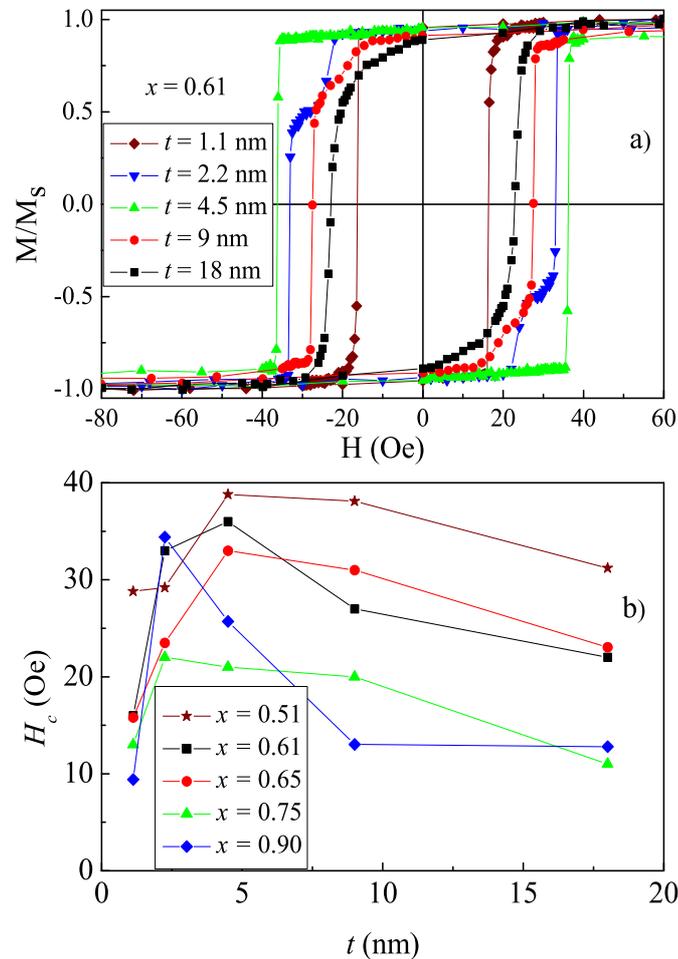


Figura 4.6: a) Ciclos de histéresis para todos los espesores con concentración  $x = 0.61$ . b) Campo coercitivo en función del espesor  $t$ , para las concentraciones indicadas en la figura. En todos los casos el campo externo está aplicado en el plano del film y paralelo al eje fácil.

También hemos estudiado la dependencia de las mediciones de magnetización DC en función del espaciador  $t$ , manteniendo constante el valor de la concentración. En la Fig. 4.6 a) presentamos ciclos de histéresis, realizados con el campo paralelo al eje fácil, para todos los espesores con concentración  $x = 0.61$ . En esta figura se puede apreciar que el campo coercitivo  $H_c$ , tiene un máximo en función del espesor. Este comportamiento ocurre para cualquier concentración, encontrándose el máximo entre 2 y 4 nm, como es mostrado en la Fig. 4.6 b). La existencia de un máximo en  $H_c$  es probablemente consecuencia de la interacción entre las diferentes capas. Es decir: cuando el espaciador es muy delgado, las

capas interactúan eficazmente siendo el efecto del espaciador granular muy pequeño sobre las capas de Fe, por lo reducido de su espesor, ocurriendo el cambio de signo de la magnetización a campos cercanos al esperado para las capas de Fe. A medida que el espaciador crece, la influencia de éste es más importante y debido a que el granular presenta campos coercitivos mayores que el Fe, se produce el aumento de  $H_c$ . Para espesores aún mayores ( $t > 4$  nm), la interacción ya no es tan efectiva ocurriendo que las capas pueden girar de forma relativamente independiente, dando esta situación campos coercitivos menores.

### 4.3. Estudio de resonancia ferromagnética

Las medidas fueron realizadas variando el ángulo de incidencia del campo externo tanto en el plano del film como saliendo de éste, utilizando dos frecuencias de excitación: Banda X (9.5 GHz) y Banda Q (34 GHz). Los valores considerados para las magnetizaciones de saturación y los factores  $g$  de los materiales de las muestras fueron  $M_{\text{Fe}} = 1700$  emu/cm<sup>3</sup>,  $M_G = xM_{\text{Fe}}$  y  $g_{\text{Fe}} = g_G = g = 2.09$ .

Para el análisis de las mediciones se utilizó un sistema de ejes coordenados similar al mostrado en la Fig. 2.10. Para describir la variación angular dentro del plano del film, se rotó el ángulo polar del campo externo ( $\beta$ ), el cual no está indicado en la figura y corresponde a mover el campo dentro del plano  $XZ$ .

En primera instancia del estudio, suponemos que el espaciador granular es sólo un mediador de la interacción entre las capas continuas de Fe. Así, se espera que la interacción entre estas dos capas sea más efectiva cuanto mayor sea la concentración  $x$  o menor sea el espesor  $t$  del espaciador, pero sin tener en cuenta la señal magnética del granular. De esta manera, planteamos un modelo de bicapas acopladas cuyo campo de interacción depende de  $x$  y de  $t$ .

#### 4.3.1. Variación angular dentro del plano

Tal como fue expuesto en la sección anterior sobre las medidas de magnetización DC, existe una anisotropía uniaxial dentro del plano, con el eje fácil perpendicular a la dirección de crecimiento de composición de  $x$ . Esta anisotropía también es medida con la técnica de FMR. Para describir las mediciones es preciso introducir el término  $K_u^{(i)} \sin^2(\theta_i)$  para cada capa en la Ec. 3.1 de la energía libre. Siendo  $K_u^{(i)}$  la constante de anisotropía uniaxial, la cual define el campo de anisotropía  $H_u^{(i)} = \frac{2K_u^{(i)}}{M_i}$  (ver apéndice A). Si bien no es posible discriminar el valor de  $H_u^{(i)}$  para cada capa, sí es posible estimar a partir de las mediciones, el orden de magnitud de esta anisotropía, si suponemos que  $H_u^{(1)} = H_u^{(2)} = H_u$ . Con esta condición, se realizó un ajuste sobre la variación angular del campo de resonancia (variación dentro del plano) medidos en una muestra de espesor  $t = 9$  nm y concentración  $x = 0.94$ , la cual presenta anisotropía uniaxial, ver Fig. 4.7.

En ésta se observa que el valor de  $H_u$  necesario para reproducir los resultados experimen-

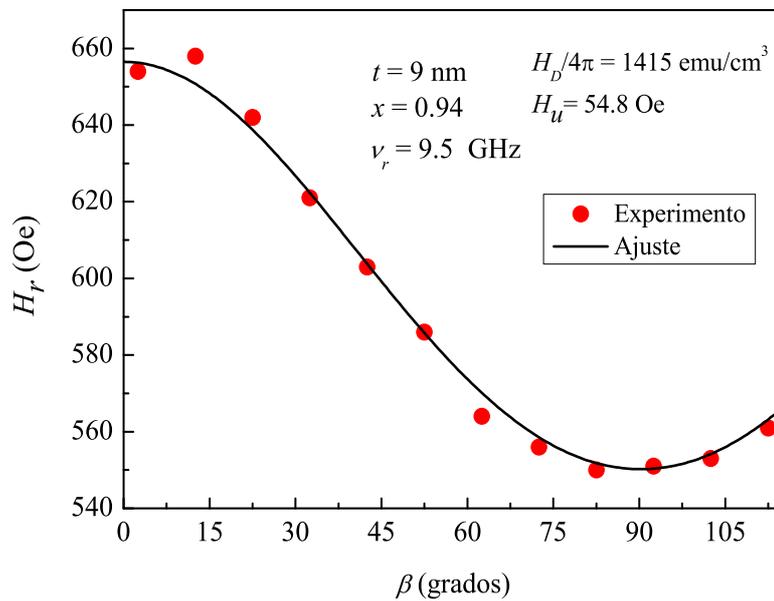


Figura 4.7: Variación angular del campo de resonancia de una muestra de la serie D con  $x = 0.94$ , con anisotropía uniaxial. El campo fue rotado dentro del plano de la multicapa y el eje fácil fue colocado paralelo a la dirección  $X$  (ver Fig. 2.10).

tales es de  $\sim 55$  Oe. En general para la mayoría de las muestras se obtiene un  $H_u < 80$  Oe, salvo muy pocas muestras extraídas de los extremos del sustrato, que llegan a tener  $H_u \sim 150$  Oe. A los fines de este estudio, consideraremos despreciable esta anisotropía uniaxial<sup>5</sup>.

Sólo a modo comparativo presentamos en la Fig. 4.8 los campos de resonancia paralelo y perpendicular en función de la concentración  $x$ , de las muestras de la serie D. Esta figura presenta gran similitud con la Fig. 4.5 donde se muestran los campos coercitivos  $H_c$  medidos paralelo y perpendicular al eje de anisotropía de esta misma serie. La similitud radica en que en ambos casos las diferencias entre las curvas paralela y perpendicular son un indicativo de la magnitud del campo  $H_u$ .

### 4.3.2. Modos ópticos y acústicos

Los espectros de FMR muestran una absorción para las medidas de banda X y dos para las de banda Q. En la Fig. 4.9 presentamos una serie típica de espectros, los cuales corresponden

<sup>5</sup>Para realizar las mediciones en banda Q es necesario disminuir considerablemente el tamaño de las muestras a fin de evitar recargar la cavidad. En el proceso de reducción del tamaño, se pierde control sobre la ubicación del eje fácil. Debido al pequeño valor que en general presenta esta anisotropía y la dificultad de reidentificar el eje fácil en estas situaciones, la consideramos despreciable.

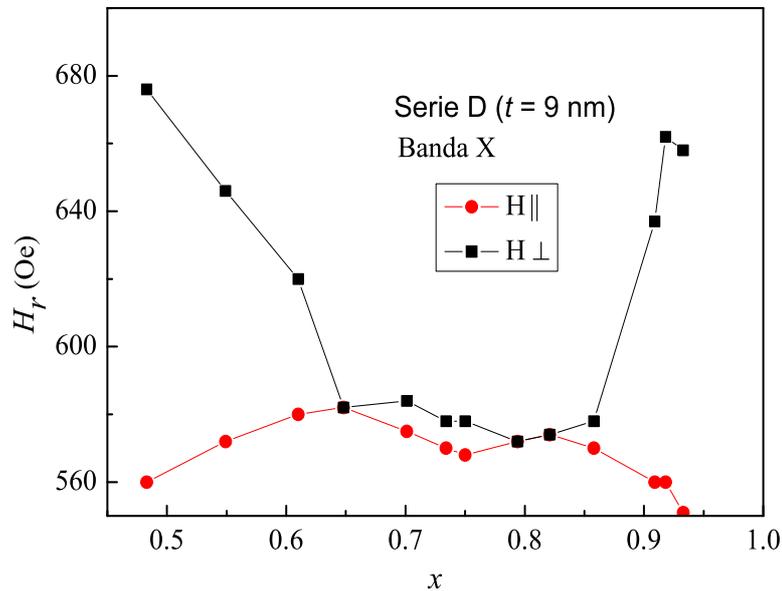


Figura 4.8: Campos de resonancia paralelo y perpendicular al eje fácil en función de la concentración para las muestras de la serie D. Las mediciones fueron realizadas con el campo aplicado dentro del plano del film.

a muestras de las series A, B, C, D y E con concentración  $x = 0.79$ . Las medidas fueron realizadas aplicando el campo paralelo al plano del film, en banda Q (Fig. 4.9 a) y banda X (Fig. 4.9 b).

De acuerdo a lo discutido en el capítulo anterior, en la sección referente a acoplamiento ferromagnético en sistemas simétricos, resulta intuitivo identificar a la absorción más intensa de los espectros de banda Q (Fig. 4.9 a) con el modo acústico ( $H_{ac}$ ) y a la otra absorción con el modo óptico ( $H_{op}$ ). El motivo por el cual hacemos estas asignaciones está basado en resultados que iremos mostrando y discutiendo durante el presente capítulo. Como primeros indicativos sugerentes resaltamos que:

- El modo más intenso se sintoniza a campos cercanos a los esperados para un film simple de Fe.
- El campo de resonancia de este modo, es poco dependiente del valor de  $H_E$  (ya que se espera una mayor interacción entre las capas continuas cuando el espesor del espaciador es más delgado).
- El modo restante es menos intenso y presenta campos de resonancia menores a  $H_{ac}$ .
- El campo de resonancia y la intensidad de este segundo modo son muy dependientes del acoplamiento.

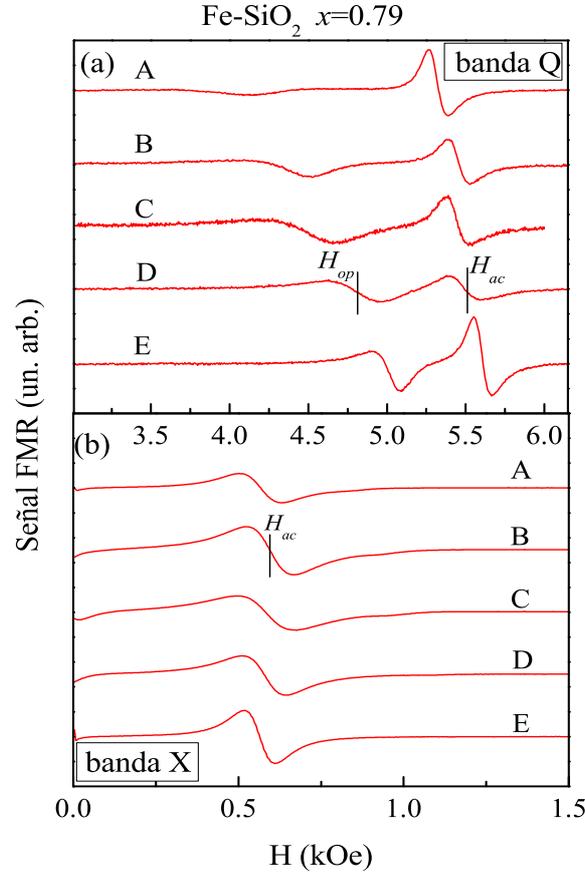


Figura 4.9: Espectros de resonancia de las muestras con concentración  $x = 0.79$  de las distintas series. Las medidas fueron realizadas en: a) banda Q y b) banda X, aplicando el campo paralelo al plano del film.

Estos indicios, más la simetría con la que fueron crecidas las muestras, sugieren un acoplamiento ferromagnético ( $J > 0$ ), donde las absorciones corresponden a los modos ópticos y acústicos antes mencionados.

Debido a que los espectros mostrados en la Fig. 4.9 fueron realizados aplicando el campo en el plano de las muestras, permiten estimar el campo de interacción  $H_E$  a partir de los modos  $H_{ac}$  y  $H_{op}$ , utilizando la relación  $H_E = H_{ac} - H_{op}$ . De esta manera es posible construir la curva del campo de interacción en función del espesor del espaciador para estas muestras (Fig. 4.10). En la misma se puede apreciar que la interacción es más efectiva cuando disminuye el espesor  $t$ .

Una particularidad de los espectros mostrados en la Fig. 4.9, es que sólo en las mediciones de banda Q se observa el modo óptico. Este hecho es debido a que la presencia del campo de intercambio  $H_E$ , genera un gap ( $\nu_0 = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_E[H_E + H_D]}$ ) en la rama óptica de la relación de dispersión. Este gap evita que este modo de absorción pueda ser sintonizado en banda X. En

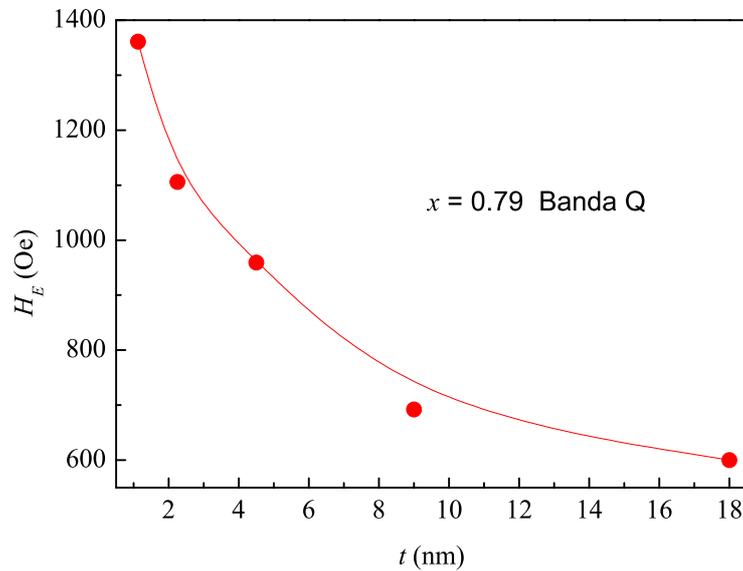


Figura 4.10: Variación del campo de interacción  $H_E$  con el espesor  $t$ . Los datos corresponden a muestras con concentración  $x = 0.79$ . La línea continua es sólo una guía visual.

la Fig. 4.11 se muestra la relación de dispersión que reproduce los campos de resonancia del espectro de la serie E de la Fig. 4.9. En ésta se puede apreciar como el modo óptico puede ser sintonizado sólo al emplear una frecuencia de excitación mayor a la de banda X.

Una manera alternativa de interpretar este resultado es a partir de la relación  $H_E = H_{ac} - H_{op}$  que vincula los modos de resonancia con el campo  $H_E$  cuando el campo está paralelo al plano del film. De esta relación se deduce que si  $H_E > H_{ac}$  el valor de  $H_{op}$  toma valores no disponibles de campo de resonancia (en este experimento  $H$  es el módulo del vector  $\mathbf{H}$ , por lo tanto definido positivo). A pesar de no poder sintonizarse este modo en banda X, algún efecto del ancho de línea puede ser observado en los espectros alrededor de campo cero.

A partir de la ecuación de movimiento, Ec. 3.5, es posible obtener la relación de dispersión o las frecuencias de precesión de las magnetizaciones en función del campo externo. En esta situación simétrica y con  $J > 0$  en que se cumple  $\theta_1 = \theta_2 = \pi/2$  y  $\varphi_1 = \varphi_2 = \varphi$ ,  $\frac{\omega}{\gamma}$  satisface

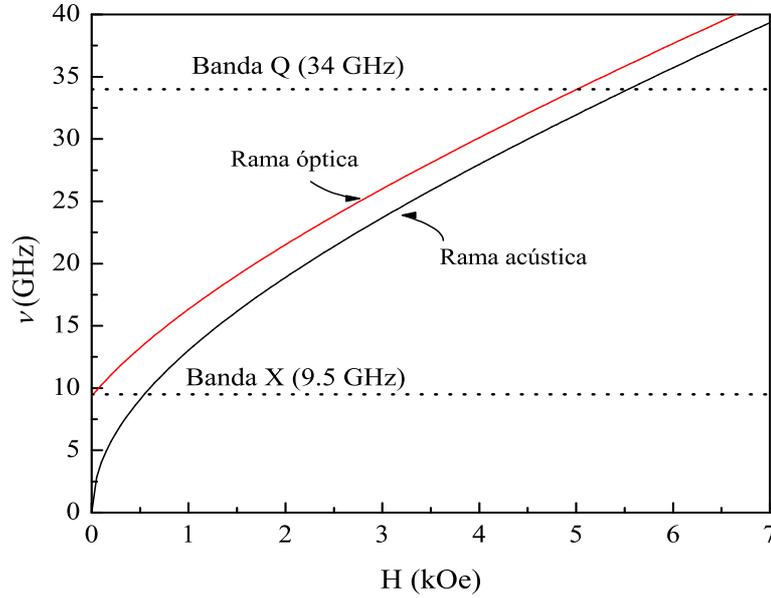


Figura 4.11: Relación de dispersión que reproduce los campos de resonancia de la muestra con  $t = 18$  nm y  $x = 0.79$ . El modo óptico sólo puede ser sintonizado utilizando frecuencias de excitación mayores a la de banda X.

la siguiente ecuación polinomial:

$$\begin{aligned}
 \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^4 - 2\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 \left[ \left(\frac{H_E}{2}\right)^2 + (H \cos(\varphi - \alpha) - H_D \sin^2(\varphi) + \frac{H_E}{2}) \right. \\
 \left. (H \cos(\varphi - \alpha) + H_D \cos(2\varphi) + \frac{H_E}{2}) \right] + \\
 \left[ (H \cos(\varphi - \alpha) - H_D \sin^2(\varphi) + \frac{H_E}{2})^2 - \left(\frac{H_E}{2}\right)^2 \right] \\
 \left[ (H \cos(\varphi - \alpha) + H_D \cos(2\varphi) + \frac{H_E}{2})^2 - \left(\frac{H_E}{2}\right)^2 \right] = 0
 \end{aligned} \tag{4.3}$$

Para obtener esta expresión escogimos  $H_D^{(1)} = H_D^{(2)} = H_D$ , ya que no se esperan diferencias apreciables en las anisotropías normales y a la vez no es posible discriminarlas a partir de las mediciones de FMR. La Ec. 4.3 permite además realizar el ajuste de la variación angular de los campos de resonancia y de la diferencia entre los modos acústico y óptico en función del ángulo azimutal  $\alpha$  del campo externo. En la Fig. 4.12 se presenta esta variación angular<sup>6</sup>

<sup>6</sup>Debido a la disponibilidad de campo magnético que ofrece el equipo de mediciones, no fue posible medir los campos de resonancia cuando el ángulo  $\alpha$  superaba los 75°.

realizada en la muestra con espesor  $t = 18$  nm y concentración  $x = 0.79$ . Para el ajuste se utilizaron los parámetros indicados en la figura.

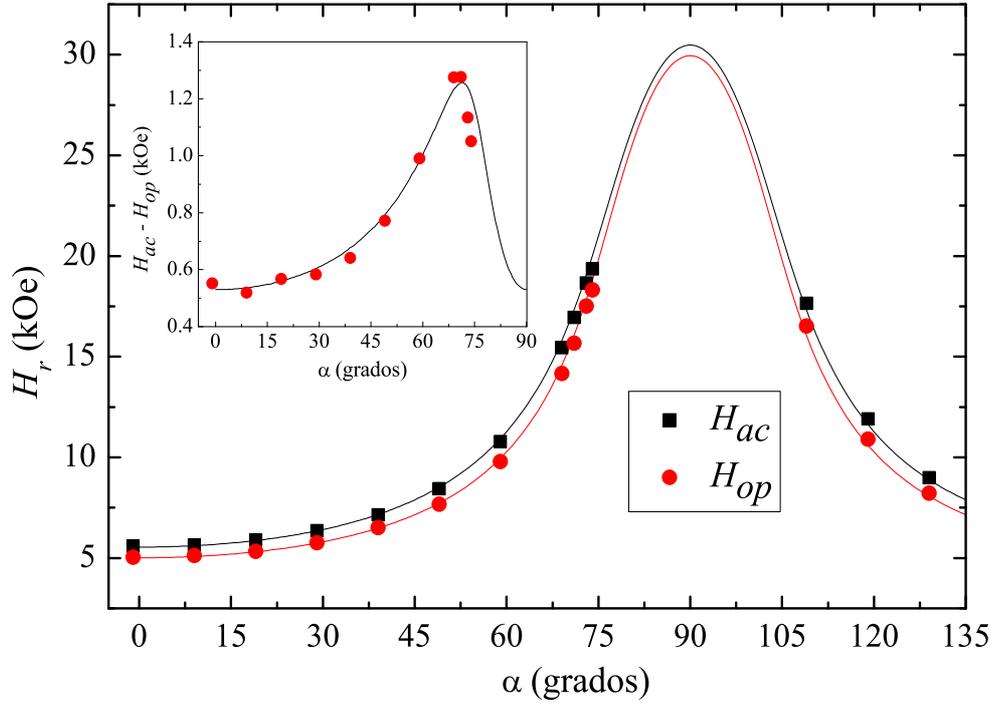


Figura 4.12: Variación angular del campo de resonancia de la muestra con espesor  $t = 18$  nm y concentración  $x = 0.79$ . El inset corresponde a la variación angular de la diferencia entre los modos acústico y óptico. La medida fue realizada en banda Q y las líneas continuas corresponden al ajuste realizado utilizando la Ec. 4.3 con los siguientes parámetros:  $H_D/4\pi = 1500$  emu/cm<sup>3</sup>,  $g = 2.09$ ,  $\nu_r = 34$  GHz,  $d = 17$  nm y  $H_E = 530$  Oe.

El campo de resonancia de ambos modos aumenta con el incremento de  $\alpha$ , pero siempre con el modo óptico con campos menores al acústico. Esta característica también es un buen indicativo de que el origen de los modos radica en la interacción entre las capas. De manera contraria, si la presencia de los modos tuviera origen en diferencias entre las capas (diferencias de anisotropías) se esperaría un cruce de los campos de resonancia en algún valor del ángulo  $\alpha$ .

La Fig. 4.12 muestra una excelente correspondencia entre el modelo y los datos experimentales. En el inset de esta figura, se muestra la variación angular de la diferencia entre los campos de resonancia de los modos acústico y óptico, junto con el ajuste realizado con el

modelo. Tal como fue mencionado en el capítulo anterior, el máximo en esta curva es debido a que la diferencia entre los ángulos  $\alpha$  y  $\varphi$  es máxima en esta región (ver Ec. 3.7).

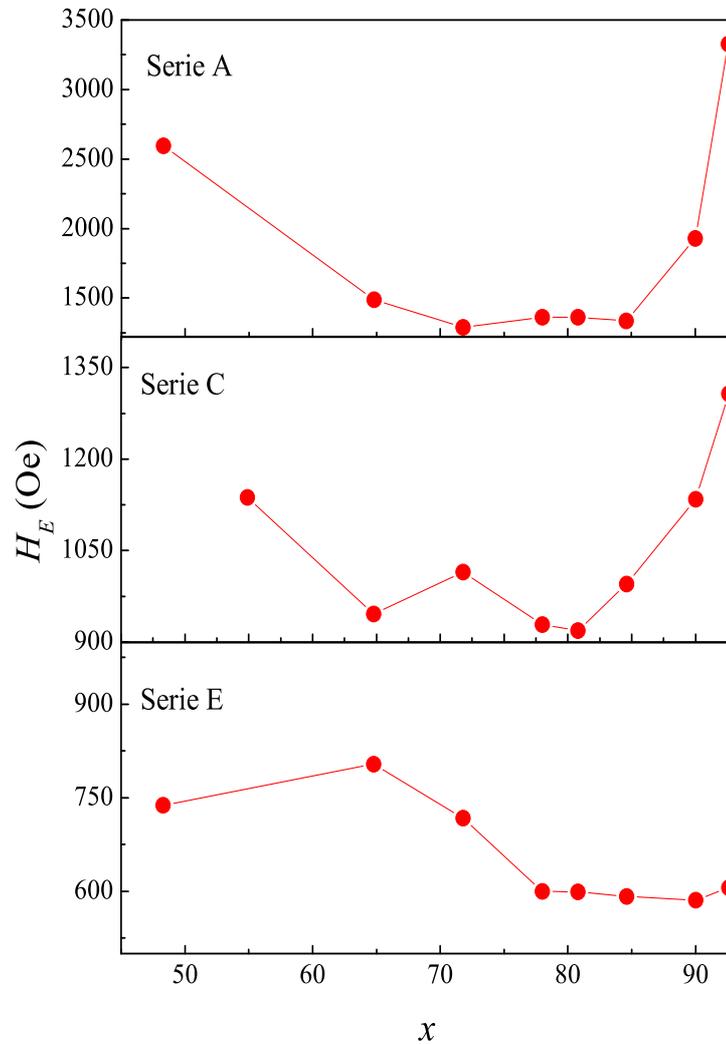


Figura 4.13: Dependencia del campo  $H_E$  en función de la concentración para las series A, C y E.

También se estudió la dependencia de  $H_E$  en función de la concentración para las distintas series. Los resultados obtenidos se presentan en la Fig. 4.13 donde los paneles a), b) y c) corresponden a la dependencia de  $H_E$  con la concentración de las series A, C y E respectivamente. Como fue mencionado, se puede observar para cualquier valor de  $x$ , que el campo de interacción es mayor para las muestras con espaciador más delgado (serie A). La serie E, con espaciador de 18 nm de espesor, presenta un campo de interacción relativamente

constante de  $\sim 700$  Oe. Las series C y A, con espaciadores de 4.5 y 1.1 nm respectivamente, presentan un incremento de  $H_E$  al aumentar la concentración. Sin embargo en la región de baja concentración, también se observa un aumento considerable en el valor de  $H_E$ . Este hecho puede estar relacionado a que en esta zona, el espesor real del espaciador es menor al nominal, tal como fue discutido en la sección 2.1.2. En este sentido, las mediciones en función de la concentración deben ser interpretadas con cierta precaución.

Antes de continuar con el análisis de los resultados, recordamos que para esta situación simétrica, las magnetizaciones transversales  $\mathbf{m}_1$  y  $\mathbf{m}_2$  oscilan en fase cuando se sintoniza el modo acústico ( $\mathbf{m}_1 = \mathbf{m}_2$ ) y en contra fase cuando se excita el modo óptico ( $\mathbf{m}_1 = -\mathbf{m}_2$ ). De acuerdo a este comportamiento y a la simetría del sistema, el modo óptico no tendría que ser detectado, ya que la magnetización transversal total sería nula. En las mediciones experimentales realizadas, la intensidad del modo óptico es pequeña, hasta podría considerarse despreciable frente a la intensidad del modo acústico. Sin embargo como es discutido en el apéndice C, se puede favorecer la visibilidad del modo óptico, orientando adecuadamente el ángulo de incidencia del campo de radiofrecuencia  $\mathbf{h}$ . En la Fig. 4.14 se muestra como una configuración estándar, con el campo de radiofrecuencia paralelo al plano del film, presenta una intensidad muy pequeña para el modo óptico, mientras que si la incidencia es perpendicular, la relación  $I_{op}/I_{ac}$  aumenta considerablemente. En general las muestras tienen un

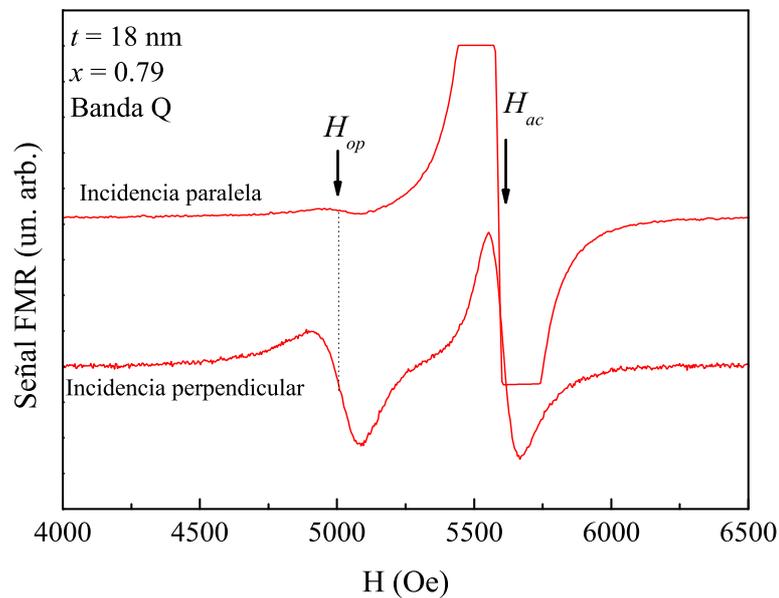


Figura 4.14: Dependencia de la intensidad de los modos óptico y acústico con el ángulo de incidencia del campo de excitación  $\mathbf{h}$ . La incidencia paralela o perpendicular indica que el campo de radiofrecuencia está en el plano o normal al plano de la muestra respectivamente, tal como es discutido en el apéndice C.

comportamiento que indica mucha simetría, pero para la presentación de los espectros, por ejemplo los de la Fig. 4.9, se eligió una configuración que favorezca la visibilidad del modo óptico.

### 4.3.3. Aporte del espaciador granular a la señal magnética

Como fue discutido en el capítulo anterior, en lo referente a sistemas de tricapas acopladas, la muticapa  $\text{Fe} | \text{FeSiO}_2 | \text{Fe}$ , puede ser pensada como una bicapa en la que dos films con magnetizaciones efectivas  $M_{eff}^{(1)}$  y  $M_{eff}^{(2)}$ , interactúan con un campo de intercambio  $H_E$ . En esta situación simétrica la magnetización efectiva es:

$$M_{eff}^{(1)} = M_{eff}^{(2)} = M_{eff} = M_{\text{Fe}} \left( \frac{d + x^2t}{d + xt} \right). \quad (4.4)$$

Los motivos por los cuales hacemos esta suposición en este sistema son esencialmente tres:

- No se detecta señal de FMR correspondiente a un film granular, indicando que el espaciador está fuertemente acoplado a las capas continuas de Fe.
- La dependencia con el espesor  $t$  y la concentración  $x$  del modo acústico.
- La dependencia del modo acústico con la frecuencia de excitación.

El primer ítem es verificado en los espectros de FMR, donde el comportamiento de los modos observados puede ser bien explicado a partir de los modos ópticos y acústicos, teniendo éstos origen en la interacción entre las capas y no en una señal pura del granular. A esta conclusión se llega tanto por el campo de resonancia que presentan los modos como por sus variaciones angulares.

Los dos ítems siguientes corresponden al desarrollo de esta sección.

El hecho de considerar las capas efectivas, no afecta en lo absoluto el análisis previo realizado. La diferencia entre los modos  $H_{ac}$  y  $H_{op}$  sigue siendo un estimativo del valor de  $H_E$  y las variaciones angulares no presentan cambios con la nueva suposición ya que en todo momento trabajamos con el campo demagnetizante efectivo  $H_D$ . Los cambios son esencialmente notorios en el modo acústico, en lo que refiere a la posición del campo de resonancia y a la intensidad de la absorción.

Los efectos de  $t$  y  $x$  sobre las medidas de FMR, tienen origen en la expresión del campo demagnetizante efectivo,  $M_{eff}$ . Según su expresión, un aumento de  $t$  o una disminución de  $x$  provocan que  $M_{eff}$  disminuya. Este efecto, en un experimento de FMR con el campo aplicado paralelo al plano del film, ocasiona un aumento en el campo de resonancia del modo acústico. Este aumento es fácil de comprender si se observan tanto la expresión de la relación de dispersión para estas condiciones

$$\left( \frac{\omega}{\gamma} \right)^2 = H_{ac} \left( H_{ac} + 4\pi M_{\text{Fe}} \frac{d + tx^2}{d + tx} - H_n \right), \quad (4.5)$$

como la expresión del campo de resonancia del modo acústico (obtenida a partir de la Ec. 4.5)

$$H_{ac} = \sqrt{\left[2\pi \left(M_{Fe} \frac{d + tx^2}{d + tx} - \frac{H_n}{4\pi}\right)\right]^2 + \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2} - 2\pi \left(M_{Fe} \frac{d + tx^2}{d + tx} - \frac{H_n}{4\pi}\right). \quad (4.6)$$

En la Fig. 4.15 presentamos los campos de resonancia del modo acústico en función del espesor  $t$  para tres concentraciones seleccionadas,  $x = 0.90$ ,  $0.79$  y  $0.65$ . Las medidas se realizaron en banda Q y con el campo paralelo al plano del film. Para un ajuste preciso fueron necesarios los valores de  $H_n$  indicados en la figura. En ésta se observa que el valor  $H_{ac}$  aumenta al aumentar  $t$  y este aumento es más importante cuando la concentración  $x$  es menor. El ajuste fue realizado utilizando la Ec. 4.6.

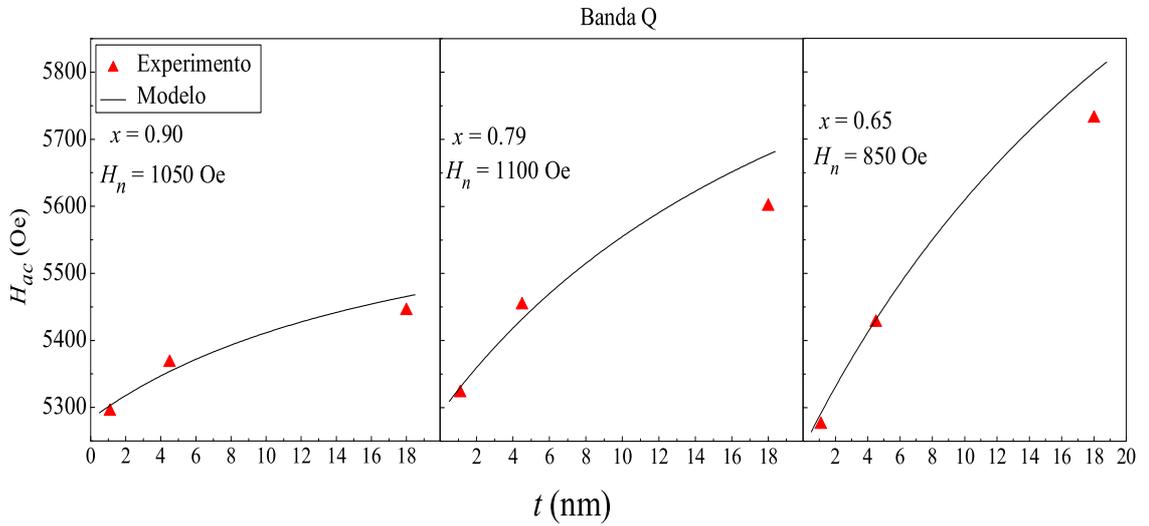


Figura 4.15: Dependencia del campo de resonancia del modo acústico en función del espesor para diferentes concentraciones. Las medidas fueron realizadas en banda Q, con el campo aplicado paralelo al plano del film.

Por otra parte, si se mantiene fija la concentración  $x$ , las relaciones de dispersión presentan variaciones al cambiar el espesor del espaciador  $t$  tal como es mostrado en la Fig. 4.16. En esta figura se puede apreciar que cuanto más alta es la frecuencia de excitación más notorio es el corrimiento de los campos de resonancia del modo acústico al variar el espesor  $t$ . En la Fig. 4.17 presentamos las absorciones experimentales correspondientes al modo acústico para diferentes espesores de las muestras con  $x = 0.79$ . Tal como es predicho por el modelo, en banda Q los campos de resonancia se corren a campos mayores al aumentar el espesor (aproximadamente 300 Oe) mientras que permanecen prácticamente constantes en banda X.

A fin de agrupar los efectos que tienen el espesor  $t$ , la concentración  $x$  y la frecuencia de trabajo  $\nu_r$  sobre el modo acústico, en la Fig. 4.18 presentamos una serie de espectros de FMR con el campo aplicado paralelo al plano de la muestra. En cada panel se presentan dos

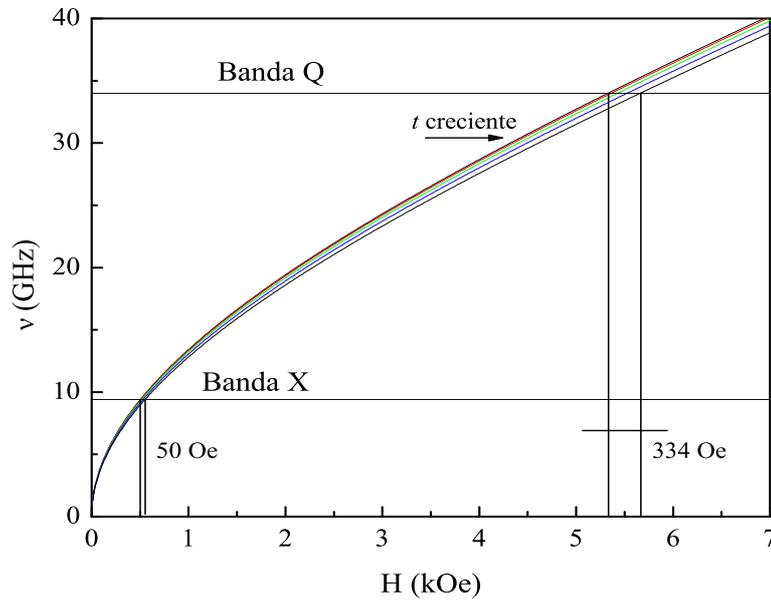


Figura 4.16: Dependencia de las relaciones de dispersión al aumentar  $t$  obtenidas a partir de la Ec. 4.5. Las curvas están simuladas para reproducir los campos de resonancia de las muestras de concentración  $x = 0.79$ , utilizando un campo de anisotropía normal  $H_n = 1100$  Oe, para todos los espesores.

espectros medidos en muestras con igual concentración y con espesores  $t = 1$  nm y  $t = 18$  nm. Al descender, las muestras medidas contienen menor valor  $x$ , y se presentan dos columnas una correspondiente a banda Q y la otra a banda X. En la columna correspondiente a las medidas de banda Q, se puede apreciar como la diferencia entre el campo de resonancia del modo acústico medido en la muestra de  $t = 1$  nm y la de  $t = 18$  nm, aumenta al disminuir la concentración  $x$ . En la figura se indica esta diferencia variando de 190 Oe en la muestra con  $x = 0.90$  hasta 550 Oe para la de  $x = 0.48$ . En banda X este aumento sólo se aprecia en las muestras con menor concentración, siendo el valor de la diferencia menor a 40 Oe en los casos en que la misma puede observarse. En ambos casos (banda X y banda Q) la diferencia en campo entre las muestras de 1 y 18 nm es un tanto menor al predicho por el modelo ( $\sim 60$  Oe más pequeños para banda X y  $\sim 100$  Oe menores para banda Q). A pesar de estas discrepancias, el comportamiento del modo  $H_{ac}$  es muy bien descrito por el modelo no sólo en forma cualitativa, sino también cuantitativa.

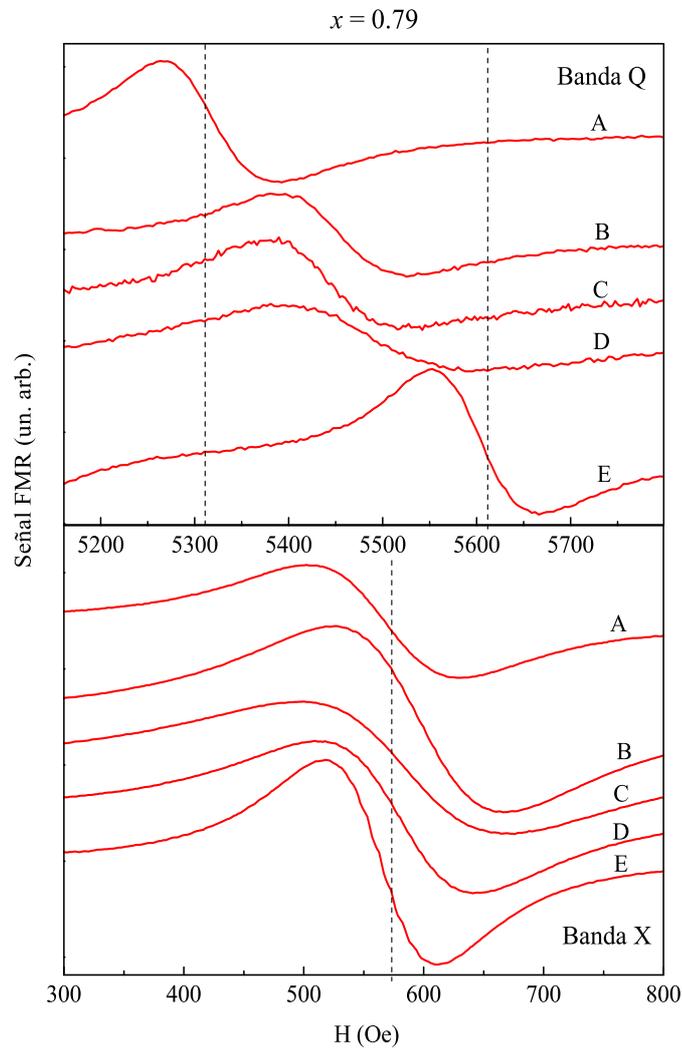


Figura 4.17: Ampliación de la Fig. 4.9 para observar en detalle el modo acústico. Tal como es predicho por el modelo, los campos de resonancia medidos en banda Q, se corren a campos mayores al aumentar el espesor  $t$ . Permaneciendo prácticamente constantes los medidos en banda X.

## 4.4. Conclusiones

Para resumir los resultados encontrados en este capítulo, referente a un sistema simétrico de la forma  $\text{Fe} | \text{FeSiO}_2 | \text{Fe}$ , podemos decir que las mediciones de resonancia ferromagnética reflejan un sistema muy simétrico con acople ferromagnético entre las capas, observándose en banda Q dos modos de absorción los cuales pueden ser identificados como los modos ópticos y acústicos. Debido al valor de los parámetros involucrados, en banda X sólo puede ser observado el modo acústico.

Se pudo estimar el campo de interacción  $H_E$  tanto en función del espesor  $t$  como de la concentración  $x$  del espaciador, observando que el acople es más efectivo cuando los espesores son más delgados. La dependencia con  $x$  indicaría que el espesor nominal es mayor al real en muestras con valores bajos de  $x$ .

Por otra parte aplicamos el modelo para tricapas interactuantes, basados en la no observación directa del modo correspondiente al espaciador granular y verificando el corrimiento del modo acústico en función de  $t$ ,  $x$  y la frecuencia de excitación  $\nu_r$ , encontrándose excelente acuerdo entre el modelo y la experiencia.

Las mediciones de magnetización DC, muestran que el campo coercitivo  $H_c$  presenta un valor máximo cuando es medido en función del espesor  $t$  del espaciador (manteniendo constante el valor de  $x$ ). Este máximo ocurre para espesores entre 2 y 4.5 nm y aparentemente tiene origen en la interacción entre las capas, la cual resulta más efectiva cuando el espesor es más delgado.

Además, las medidas de magnetización DC presentan más de un escalón en el proceso de inversión de la magnetización. Para este resultado no se encontró aún una explicación convincente, quedando abierta una discusión sobre el tipo de mediciones necesarias para llegar a una conclusión rigurosa.

De las medidas de FMR y magnetización DC también se observa que las muestras presentan una pequeña anisotropía uniaxial dentro del plano de la multicapa. Es probable que el origen de la misma provenga de la incidencia oblicua del material depositado desde el blanco, ya que tiene una dependencia con la distancia del sustrato al centro del blanco. El eje de anisotropía es perpendicular al gradiente de composición  $x$ .

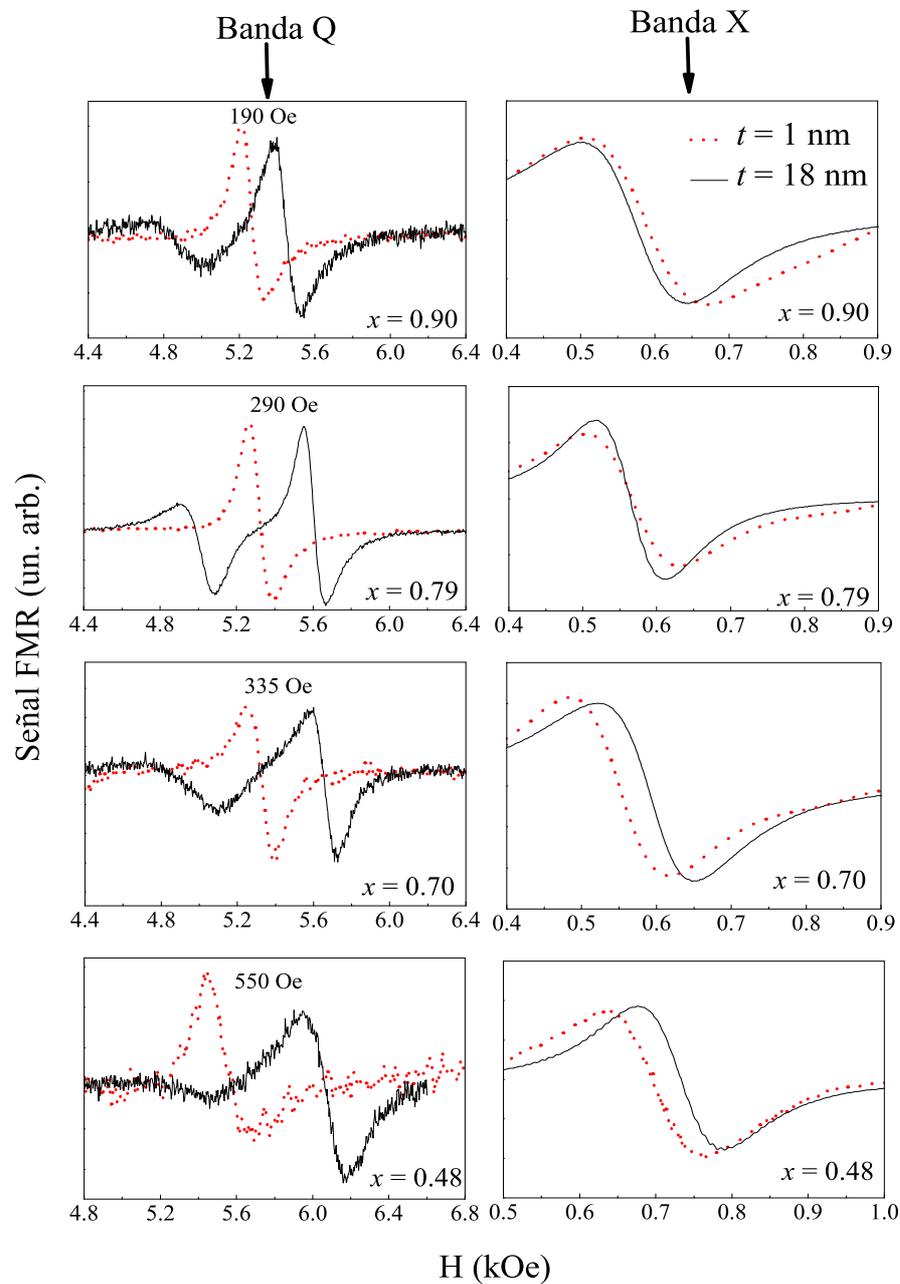


Figura 4.18: Conjunto de espectros de FMR medidos con el campo aplicado paralelo al plano de la muestra. En cada panel se presentan dos espectros medidos en muestras con igual concentración y con espesores  $t = 1 \text{ nm}$  y  $t = 18 \text{ nm}$ . Al descender, las muestras medidas contienen menor valor  $x$ , y se presentan dos columnas una correspondiente a banda Q y la otra a banda X. En los espectros de banda Q se indica la separación entre los campos de resonancia del modo acústico. Notar la diferencia en las escalas del campo magnético entre las medidas de banda Q y banda X.

# Capítulo 5

## Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Py ( $J > 0$ ) caso asimétrico

En este capítulo presentamos los resultados obtenidos en un sistema asimétrico, con acople ferromagnético. Las multicapas son de la forma Fe | Fe-SiO<sub>2</sub> | Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub><sup>1</sup>, similares a las estudiadas en el capítulo anterior, con la diferencia en la última capa, donde el Fe es reemplazado por Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (permalloy o simplemente Py), para generar la asimetría.

### 5.1. Fabricación y caracterización

Las muestras fueron crecidas con la técnica de sputtering, de idéntica manera que las muestras de Fe | Fe-SiO<sub>2</sub> | Fe descritas en el capítulo anterior. Se utilizaron las mismas condiciones de crecimiento (presión de base, de argón, ritmos de deposición y demás parámetros variables en el proceso) y similar disposición de blancos y sustratos, tal cual es detallado en la sección 4.1. Además se creció una muestra granular de referencia sobre un sustrato de Cu, para la determinación de la concentración volumétrica de Fe en el espaciador.

Se realizaron cinco series (A, B, C, D y E), las cuales difieren entre sí en el espesor nominal  $t$  del espaciador granular, siendo estos A = 1 nm, B = 2 nm, C = 4.5 nm, D = 9 nm y E = 18 nm. Los espesores de las capas continuas de Fe y Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> fueron escogidos idénticos e igual a  $d = 17$  nm. Cada serie está constituida por 34 muestras de 3x3 mm<sup>2</sup>, donde la concentración volumétrica de Fe  $x$  presente en el espaciador está comprendida en el rango  $0.45 < x < 0.85$ . En la Fig. 5.1 se muestra el valor de  $x$  en función de la distancia del sustrato al centro del blanco ( $z$ ). Estos resultados fueron obtenidos a partir de mediciones de EDS<sup>2</sup> realizadas sobre las muestras de referencia. Se observa un comportamiento aproximadamente cuadrático de la concentración en función de la distancia  $z$ .

A fin de proteger las muestras, al terminar de construir la multicapa, se depositaron 5 nm de SiO<sub>2</sub>. Es importante mencionar que debido al limitado número de cañones de magnetron sputtering para realizar el crecimiento de las capas ferromagnéticas continuas, fue necesario

---

<sup>1</sup>Estas muestras fueron fabricadas por James Weston, en el *Center for Materials for Information Technology*, Tuscaloosa, USA.

<sup>2</sup>Las mediciones de EDS fueron realizadas por Pablo Levy en el Centro Atómico Constituyentes.

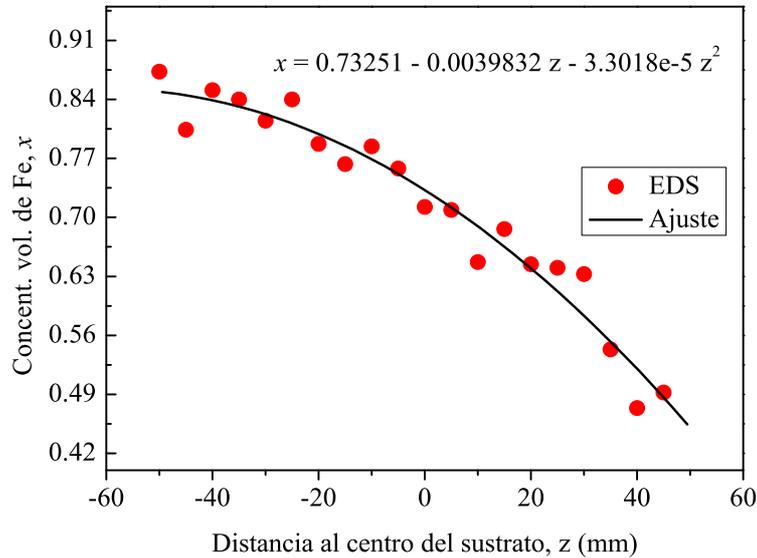


Figura 5.1: Variación de la concentración volumétrica de Fe  $x$  del espaciador granular respecto de la distancia al centro del sustrato. Los valores de  $x$  fueron determinados mediante mediciones de EDS. La curva continua corresponde al ajuste.

romper el vacío de la cámara luego de crecer el espaciador granular, para reemplazar el blanco de Fe por uno de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ . Con este procedimiento, es posible la presencia de una capa de óxido o impurezas que mermen la interacción entre la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  y el resto del sistema.

## 5.2. Magnetización DC

Las medidas de magnetización DC fueron realizadas en el magnetómetro VSM, a temperatura ambiente y con el campo aplicado paralelo al plano de la multicapa. En general los ciclos de magnetización presentan uno o dos escalones en el proceso de reversión de la magnetización. La presencia o ausencia de más de un escalón depende del valor de la concentración  $x$  y del espesor  $t$  del espaciador granular.

En la Fig. 5.2 se presentan dos ciclos típicos de magnetización, uno en el que se observa un único salto y otro con dos escalones. Los campos coercitivos de las distintas muestras se encuentran entre 25 Oe y 50 Oe, resultado que abarca a todas las series.

Al igual que las tricapas simétricas de  $\text{Fe}|\text{Fe-SiO}_2|\text{Fe}$  estudiadas en el capítulo anterior, estas muestras presentan una pequeña anisotropía uniaxial, cuyo eje fácil está perpendicular

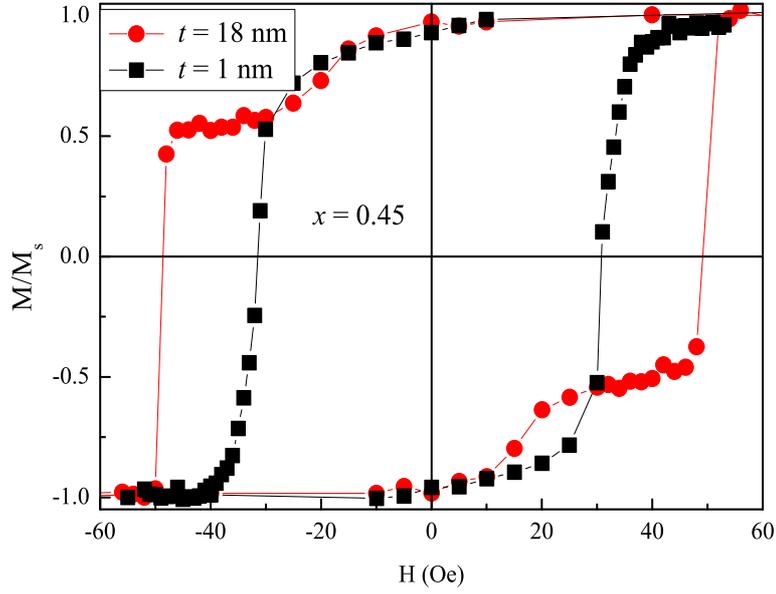


Figura 5.2: Ciclos de magnetización típicos encontrados en las muestras estudiadas en este capítulo. Las mismas presentan uno o dos escalones en el proceso de reversión de la magnetización dependiendo del valor del espesor  $t$  o la concentración  $x$ .

a la dirección de crecimiento de  $x$ . El valor de esta anisotropía es más notable en muestras extraídas de los extremos del sustrato (principalmente las que tienen bajo valor de  $x$ ) y la magnitud es similar a las encontradas en las muestras simétricas previamente estudiadas. Cuando la medición se realiza en la dirección perpendicular al eje fácil, se pierde detalle en los dos escalones, los cuales están bien definidos en la dirección paralela, ver Fig. 5.3.

Debido a que fue necesario romper el vacío en el proceso de fabricación de las muestras y la posible disminución de la interacción de la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  con el resto del sistema, puede pensarse que los diferentes escalones que presentan algunos ciclos de magnetización, corresponden a la inversión de las distintas capas presentes en el sistema, es decir la de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  en primera instancia (que generalmente presenta campos coercitivos muy pequeños) y las de  $\text{Fe}|\text{Fe}-\text{SiO}_2$  posteriormente, las cuales estarían fuertemente acopladas (según los resultados del capítulo anterior). Con esta suposición, la magnetización de saturación por unidad de superficie es  $M_s = (d + tx)M_{\text{Fe}} + dM_{\text{Py}}$ , y el valor de la magnetización en el primer escalón es  $M_e = (d + tx)M_{\text{Fe}} - dM_{\text{Py}}$  (suponiendo que la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  se invierte antes que el resto de la multicapa). Así, la magnitud del escalón tiene la siguiente expresión

$$m_e = \frac{M_e}{M_s} = \frac{(d + tx)M_{\text{Fe}} - dM_{\text{Py}}}{(d + tx)M_{\text{Fe}} + dM_{\text{Py}}} \quad (5.1)$$

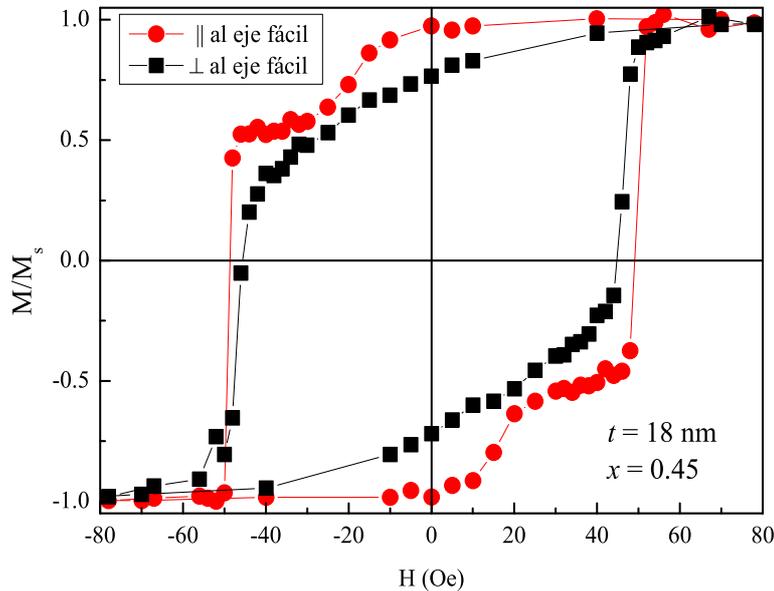


Figura 5.3: Ciclos de magnetización medidos con el campo aplicado dentro del plano del film en las direcciones paralela y perpendicular al eje de fácil magnetización.

En la Fig. 5.4 se presentan ciclos de histéresis para muestras con igual concentración  $x = 0.45$ , pero diferentes espesores siendo estos  $t = 18, 9, 4.5$  y  $1$  nm, tal como es indicado en la figura. Si se consideran las magnetizaciones de saturación de los distintas capas,  $M_{Fe} = 1700$  emu/cm<sup>3</sup>,  $M_G = xM_{Fe}$  y  $M_{Py} = 816$  emu/cm<sup>3</sup>, los valores esperados de  $m_e$  son 0.51, 0.44, 0.40 y 0.36 para los espesores  $t = 18, 9, 4.5$  y  $1$  nm respectivamente. Estos valores son considerablemente consistentes con los resultados experimentales los cuales se muestran en la figura. El ciclo correspondiente a la muestra de espesor  $t = 1$  nm es casi cuadrado, con un solo escalón. Esto es un indicativo de que en esta muestra la interacción entre las capas es suficiente para revertir la magnetización en un solo paso. En esta situación la Ec. 5.1 carece de significado.

La presencia de dos escalones existe sólo en las muestras con espaciadores más grandes y en las que el valor de  $x$  es bajo. A medida que  $t$  disminuye o  $x$  aumenta, el doble escalón se pierde y el ciclo se vuelve cuadrado. Además, la desaparición del doble escalón va acompañado de la disminución paulatina del campo coercitivo  $H_c$ , tal como es observado en la Fig. 5.5. En esta figura se presentan numerosos ciclos de histéresis realizados en muestras con diferentes concentraciones, los distintos paneles corresponden a diferentes series siendo estas a) serie E, b) serie D y c) serie A. Estos resultados presentan similitud con los reportados en la referencia [24], donde el incremento en la interacción de dos capas ferromagnéticas genera la pérdida paulatina de los dos escalones y la disminución del campo coercitivo, al menos cuando las capas están completamente acopladas.

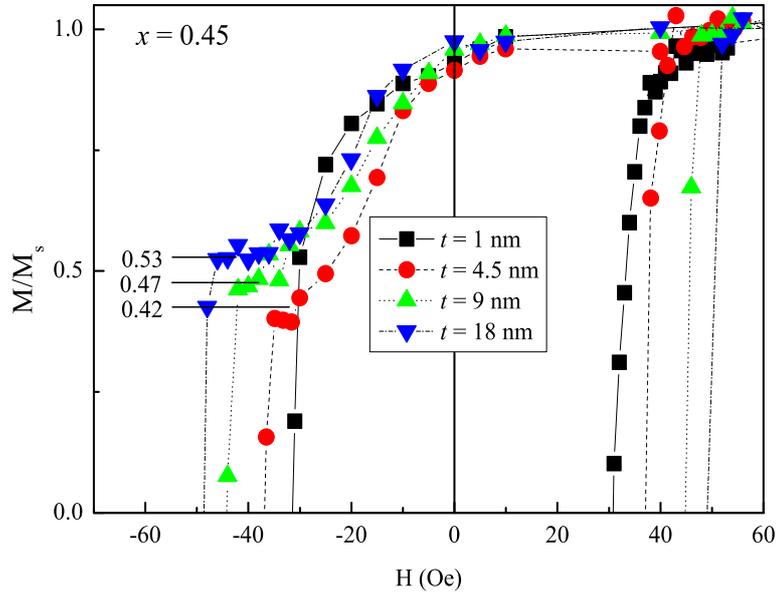


Figura 5.4: Ciclos de magnetización para muestras con concentración  $x=0.45$  y espesores  $t = 18, 9, 4.5$  y  $1$  nm. Se puede apreciar la disminución de  $m_e$  al disminuir el valor de  $t$  e igual comportamiento para el campo coercitivo  $H_c$ . Sólo se muestra el cuadrante superior, para observar con mayor claridad la forma de las curvas.

De esta manera, el comportamiento encontrado en los ciclos de magnetización indica que la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  está acoplada con el resto de la multicapa, sólo cuando el espesor del espaciador es pequeño o el valor de  $x$  es alto.

### 5.3. Estudio de resonancia ferromagnética

Las mediciones de resonancia ferromagnética fueron realizadas a temperatura ambiente, tanto en banda X como en banda Q. En general el campo fue aplicado paralelo al plano del film, aunque también se realizaron algunas variaciones angulares moviendo el ángulo azimutal  $\alpha$  del campo magnético (ver Fig. 2.10). En esta sección se asume que el campo está siempre aplicado dentro del plano de la muestra, salvo que se especifique alguna variación angular. En todas las mediciones el campo de radiofrecuencia  $\mathbf{h}$  fue aplicado paralelo al plano de la multicapa.

Los valores de los factores  $g$  de los distintos materiales que intervienen en la multicapa son  $g_{\text{Fe}} = 2.09$  [2],  $g_G = g_{\text{Fe}}$  [2] y  $g_{\text{Py}} = 2.08$  [35]. Debido a la similitud que tienen entre ellos y a fin de simplificar el tratamiento de las ecuaciones, se utilizó  $g_{\text{Py}} \sim g_{\text{Fe}} = g_G = g = 2.09$ .

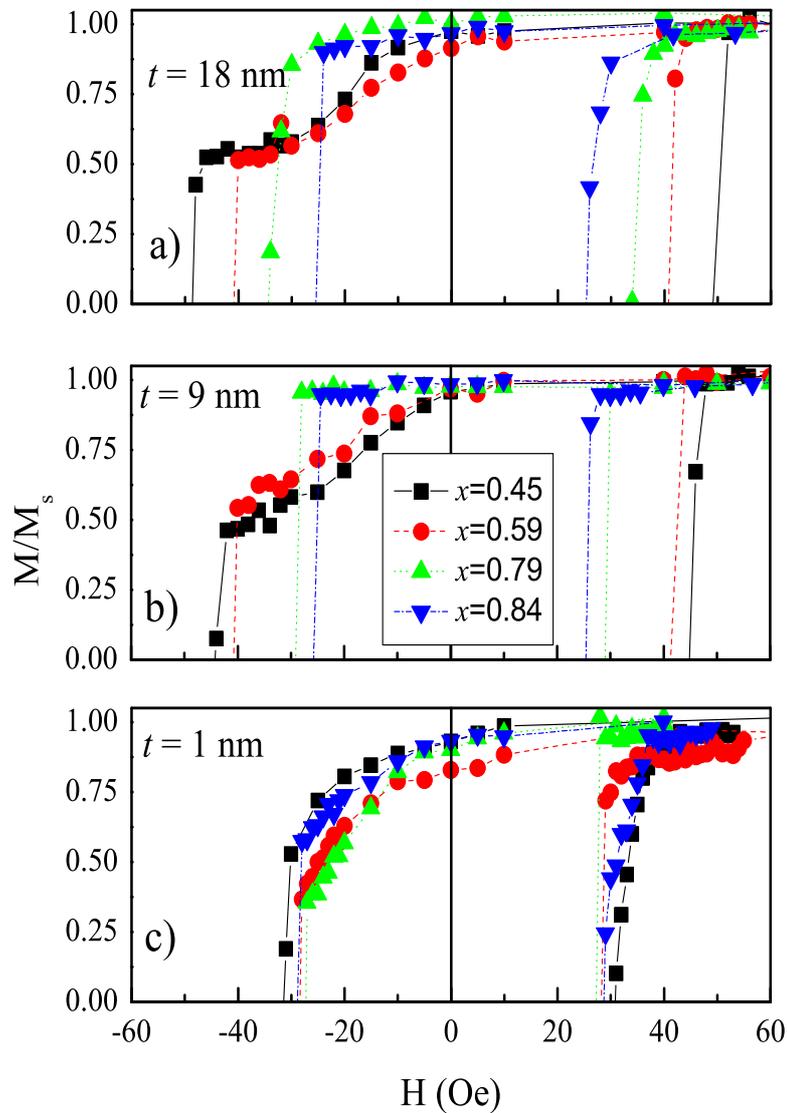


Figura 5.5: Curvas de magnetización DC en función de la concentración  $x$ , para algunos espesores seleccionados (sólo se muestra el cuadrante superior, para observar con mayor claridad la forma de las curvas). En los espesores  $t = 18$  nm y  $t = 9$  nm se distinguen dos escalones cuando el valor de la concentración es pequeña, mientras que para valores altos de  $x$  el ciclo tiende a ser cuadrado. Las muestras con espesor  $t = 1$  nm, presentan un sólo escalón en el proceso de reversión de la magnetización, independientemente del valor de  $x$ .

En todas las muestras medidas se observan dos modos de absorción. Uno con campo de resonancia cercano al esperado para un film simple de Fe, al cual llamamos  $H_{71}$  y otro con

campo cercano al correspondiente a un film de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ , al cual denominamos  $H_{r2}$ . En la Fig. 5.6 se observa un espectro típico medido en estas tricapas. La misma fue realizada en banda Q y se identifican los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$ . Por otra parte, no se observó ninguna señal que pueda ser asociada directamente a un modo de resonancia proveniente del espaciador granular. Este resultado sugiere que el espaciador está fuertemente acoplado a una o a ambas capas continuas, ver Fig. 3.17.

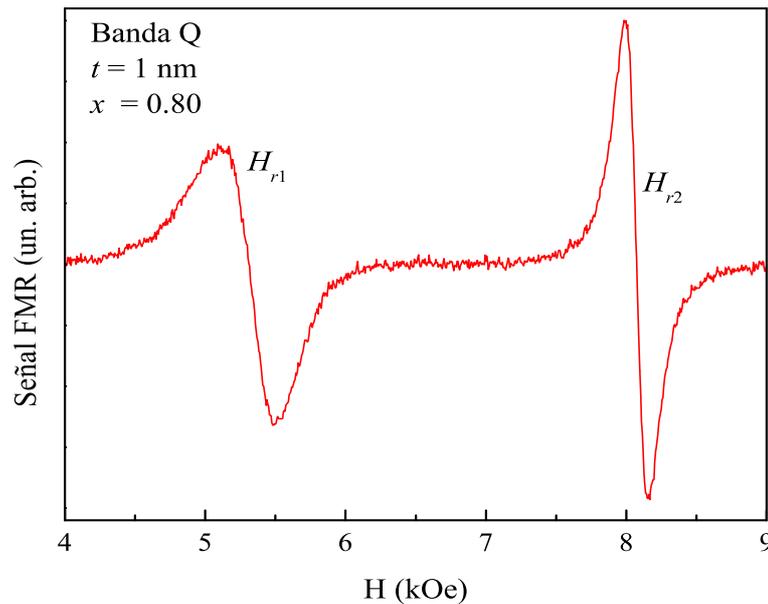


Figura 5.6: Espectro de resonancia típico medido en las tricapas de  $\text{Fe} | \text{Fe-SiO}_2 | \text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ . La medida fue realizada en banda Q, con el campo aplicado paralelo al plano de la muestra. Se indican los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$ .

### 5.3.1. Dependencia de los modos de resonancia con los parámetros $t$ y $x$

Como fue discutido en la sección 3.4, el efecto de un espaciador granular fuertemente acoplado con las capas continuas afecta a la posición de los campos de resonancia. En estas tricapas, debido a que en general  $M_{\text{Fe}} > M_G > M_{\text{Py}}$ , se espera que el modo  $H_{r1}$  aumente de valor mientras que  $H_{r2}$  disminuya al incrementarse el espesor  $t$  o al disminuir la concentración  $x$ . Este comportamiento en la posición de los modos puede ser comprendido a partir de la relación de dispersión, que para el caso en que el campo incida paralelo al plano de la muestra tiene la siguiente expresión

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_{ri} \left( H_{ri} + 4\pi M_{eff}^{(i)} - H_n^{(i)} \right) \quad (5.2)$$

donde el índice  $i$  identifica a las capas 1 y 2 respectivamente. Los campos de resonancia obtenidos a partir de esta expresión son mostrados en la Fig. 3.18<sup>3</sup>.

En la Fig. 5.7 se presentan cuatro conjuntos de curvas, cada uno de ellos contiene cinco espectros adquiridos en banda Q. Estos espectros fueron medidos en muestras con idéntico valor de  $x$ , pero diferentes espesores de espaciador  $t$ . Los espesores de las muestras medidas están indicados en la figura y las concentraciones de los diferentes paneles son: a)  $x = 0.84$ , b)  $x = 0.8$ , c)  $x = 0.71$  y d)  $x = 0.59$ . Tres comportamientos se deben resaltar de esta figura. En primer lugar que el modo  $H_{r2}$ , permanece prácticamente constante, independientemente del valor de  $x$  o  $t$ . En segundo lugar que el campo de resonancia del modo  $H_{r1}$ , aumenta de valor al incrementarse el espesor (para una concentración fija) y por último, que este aumento es más notorio cuanto menor es el valor de la concentración  $x$ .

El primer comportamiento resaltado de estas mediciones es consistente con el planteo de que la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  no está fuertemente acoplada con el resto de la tricapa, ya que los efectos del espesor  $t$  y la concentración  $x$  del espaciador granular se observan solamente sobre la posición del modo  $H_{r1}$ . En caso que el  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  estuviera muy acoplado al espaciador, se esperaría una dependencia muy notoria en la posición del modo  $H_{r2}$  con los parámetros  $t$  y  $x$ , dependencias aún mayores que las que se encuentran en el modo  $H_{r1}$ , tal como es mostrado en la Fig. 3.18.

Los dos últimos comportamientos resaltados, junto a la no observación directa del modo correspondiente al espaciador granular, indican que la capa continua de Fe y el espaciador granular están fuertemente acoplados. En esta situación la bicapa  $\text{Fe}|\text{Fe-SiO}_2$  puede ser tratada como una capa efectiva de magnetización

$$M_{eff}^{(1)} = M_{\text{Fe}} \frac{d + tx^2}{d + xt}, \quad (5.3)$$

y espesor efectivo

$$t_{eff}^{(1)} = \frac{(d + tx)^2}{d + tx^2}, \quad (5.4)$$

según lo expuesto en la sección 3.3.1 y la Tabla 3.3. La dependencia de  $M_{eff}^{(1)}$  con los parámetros  $t$  y  $x$  genera los corrimientos del campo de resonancia del modo  $H_{r1}$  encontrados en la Fig. 5.7.

---

<sup>3</sup>Las curvas mostradas en la Fig. 3.18 fueron obtenidas suponiendo que el granular interactúa fuertemente tanto con la capa de Fe como la  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ . En el caso particular de estas muestras, la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  no está muy acoplada al resto del sistema, por lo tanto no se espera una dependencia significativa del modo  $H_{r2}$  con los parámetros  $t$  y  $x$ .

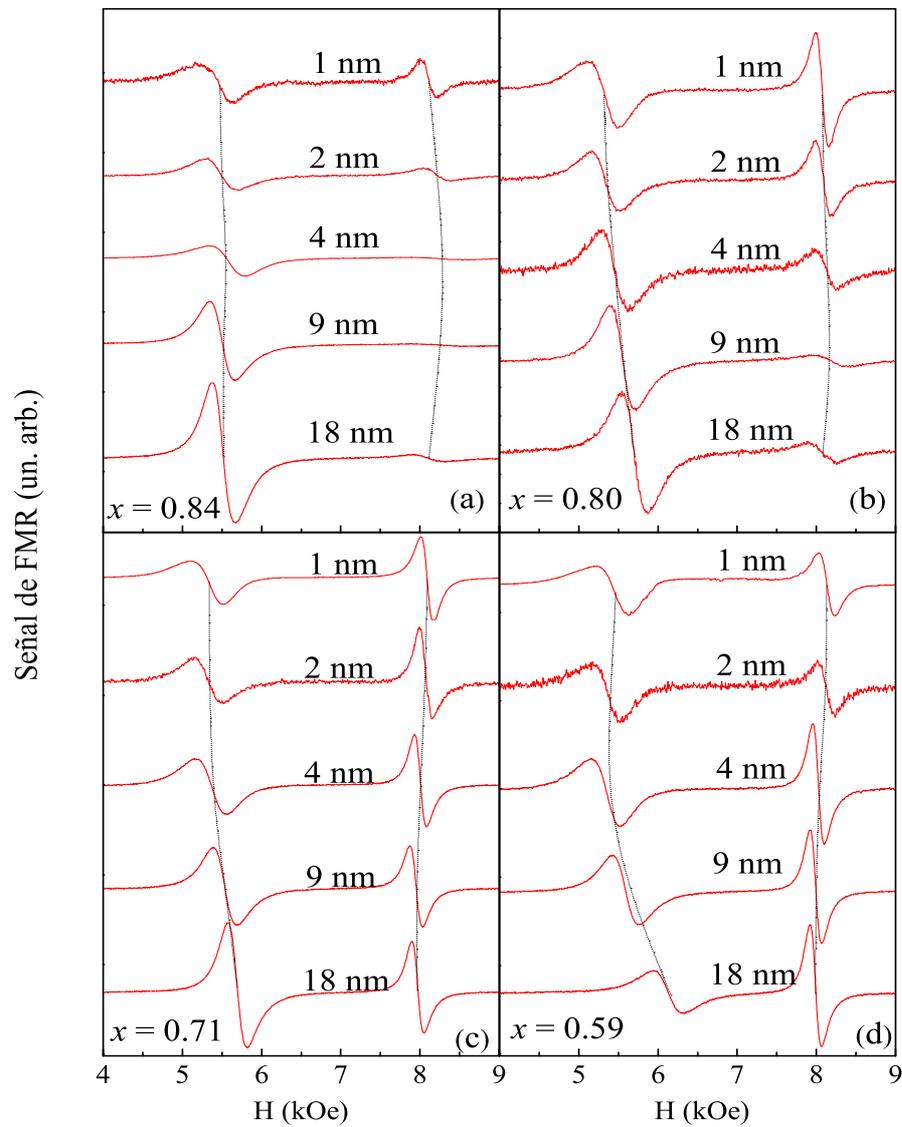


Figura 5.7: Conjunto de espectros medidos en banda Q. Cada conjunto contiene cinco mediciones realizadas en muestras con igual valor  $x$  pero distintos espesores  $t$ . Con líneas de puntos se indican las posiciones de los campos de resonancia.

### 5.3.2. Dependencia de los modos de resonancia con la frecuencia de excitación $\nu_r$

La forma funcional de la magnetización efectiva muestra que las relaciones de dispersión dependen de los valores de  $t$  y  $x$  y la dependencia está plasmada en la Ec. 5.2. Este resultado también fue expuesto en el modelo para tricapas y reportado experimentalmente en

el capítulo anterior. En esta situación asimétrica y debido a las condiciones de fabricación de las muestras, los parámetros  $t$  y  $x$  afectan principalmente a la posición del modo  $H_{r1}$  correspondiente a la capa efectiva Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>, ya que la capa efectiva  $M_{eff}^{(2)}$  es simplemente la capa de Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>.

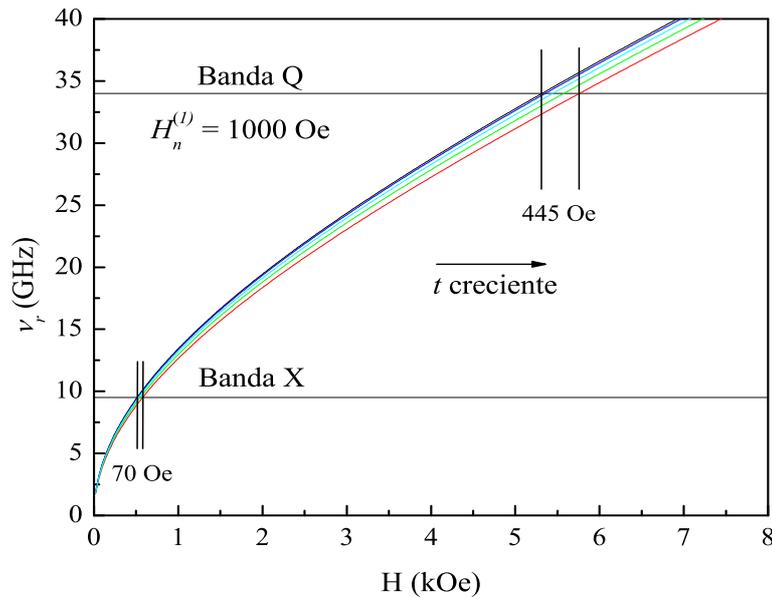


Figura 5.8: Relaciones de dispersión para el modo asociado a la capa con magnetización efectiva  $M_{eff}^{(1)}$ . Estas reproducen los campos  $H_{r1}$  mostrados en la Fig. 5.9. Los valores del espesor del espaciador son: 1, 2, 4.5, 9 y 18 nm. La concentración utilizada para el espaciador granular en todas las curvas es de  $x = 0.71$ . las líneas de trazos horizontales corresponden a banda X (9.5 GHz) y banda Q (34 GHz) y las verticales indican el cambio en la posición de los campos de resonancia para estas dos frecuencias.

En la Fig. 5.8 se presentan las relaciones de dispersión obtenidas a partir de la ecuación 5.2, utilizando los parámetros indicados en la figura. Estas curvas reproducen los campos de resonancia del modo  $H_{r1}$  que se obtienen al realizar mediciones de FMR en muestras de diferentes espesores  $t$  con igual concentración,  $x = 0.71$ . Los espectros se muestran en la Fig. 5.9, los cuales fueron medidos tanto en banda X como en banda Q. En la misma se observa el aumento del campo  $H_{r1}$  al incrementarse el espesor  $t$  y este aumento es más notorio en banda Q, tal como es anticipado por el modelo. Si bien los valores experimentales no son exactamente iguales a los predichos, ya que el cambio experimental en banda Q es  $\sim 60$  Oe menor al esperado y el cambio en banda X es  $\sim 40$  Oe mayor, las cantidades son considerablemente parecidas.

Como complemento a esta discusión, en la Fig. 5.10 se presentan los resultados obtenidos

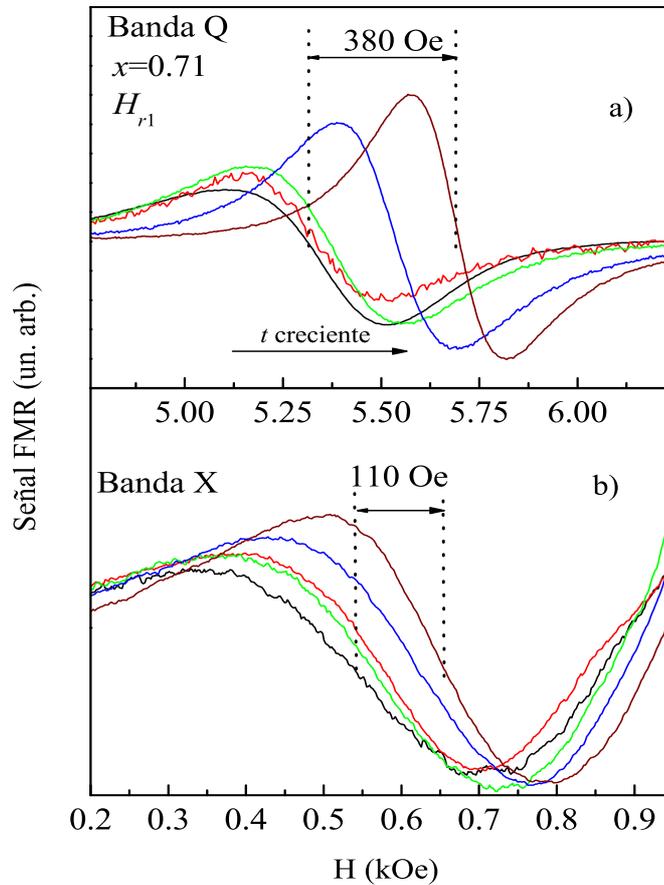


Figura 5.9: Modos  $H_{r1}$  medidos en a) banda Q y b) banda X. Las mediciones fueron realizadas en muestras con concentración  $x = 0.71$  de las distintas series. Los modos con campo de resonancia mayores corresponden a las muestras con valores de  $t$  más altos.

en otro conjunto de multicapas (con  $x = 0.6$ ), en la que se muestra la posición de los campos de resonancia  $H_{r1}$  experimentales en función de  $t$  y los anticipados por el modelo, tanto en banda X como en banda Q. Las relaciones de dispersión que reproducen los campos de resonancia experimentales se han discutido en la Fig. 3.19.

### 5.3.3. Relación de intensidades y campo de interacción $H_E$

A partir del modelo para tricapas acopladas es posible obtener las relaciones de intensidades  $I_1/I_2$  y compararlas con los datos experimentales. Como el espesor  $d$  de las capas continuas de Fe y  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  no cambia en las diferentes muestras, su contribución a las intensidades de los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  debería ser aproximadamente constante en todos los casos. Considerando que el espaciador granular está fuertemente acoplado con la capa de Fe, este

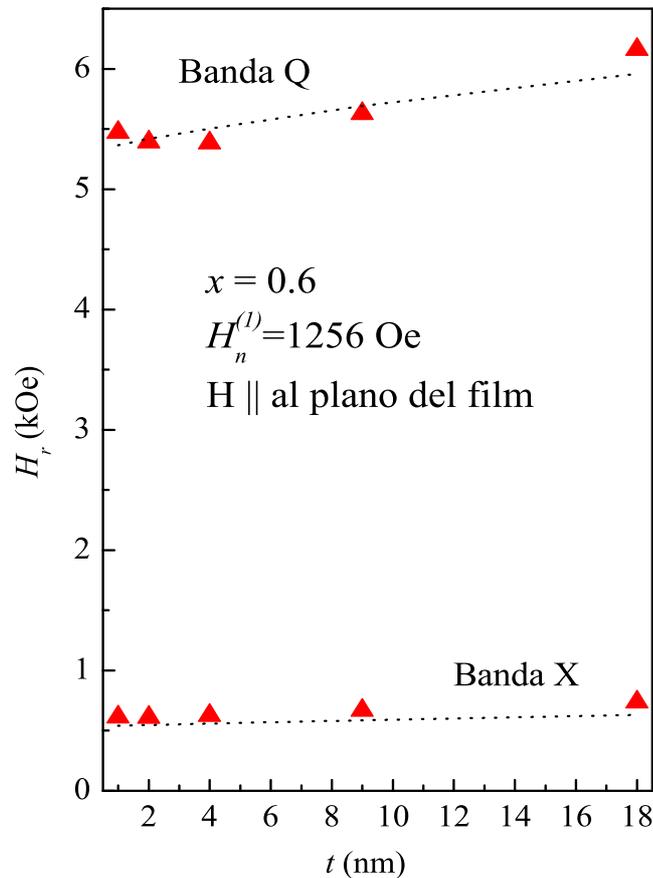


Figura 5.10: Corrimiento del campo de resonancia del modo  $H_{r1}$  medidos en banda Q y banda X. Las relaciones de dispersión se muestran en la Fig. 3.19.

debe contribuir mayormente a la intensidad del modo  $H_{r1}$ . Así la relación  $I_1/I_2$  debe incrementarse al aumentar el espesor  $t$  o al aumentar la concentración  $x$ , ya que en esos casos aumenta la cantidad de material ferromagnético que participa en la resonancia de este modo.

En la Fig. 5.11 a) mostramos el comportamiento anunciado por el modelo de la intensidad relativa  $I_1/I_2$  en función del espesor  $t$ , para diferentes valores de concentración  $x$  (en el caso  $H_E = 0$ ). Esta figura debe ser comparada directamente con la 5.11 b) donde se muestra la relación de intensidades experimentales. Los valores experimentales de las intensidades fueron obtenidos a partir de los espectros de la Fig. 5.7.

Aunque existe cierta incerteza en la determinación experimental de  $I_1/I_2$  debido esencialmente a que algunas líneas están deformadas (principalmente algunas del modo  $H_{r2}$  las cuales son muy anchas y la relación señal/ruido es muy baja), igualmente puede ser observado el incremento de esta cantidad tanto en función del espesor  $t$  como de la concentración  $x$  del espaciador granular.

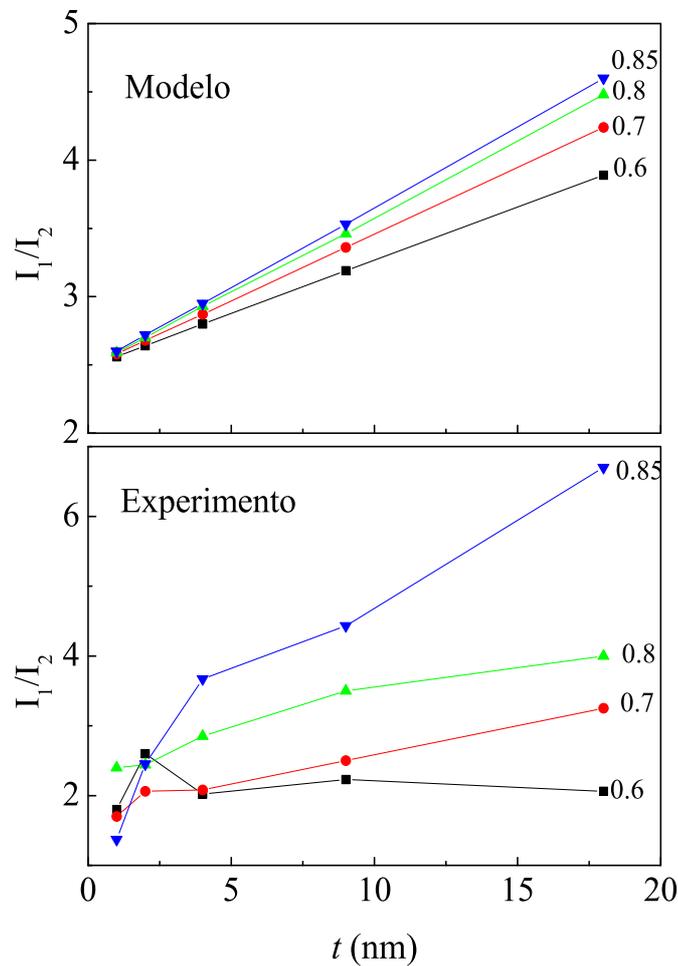


Figura 5.11: a) Variación de la intensidad relativa  $I_1/I_2$  como función de  $t$ , para diferentes valores de  $x$ , en el caso  $H_E = 0$ . Estas cantidades fueron obtenidas a partir del modelo propuesto. b) Valores experimentales de  $I_1/I_2$  obtenidos de la Fig. 5.7.

Hasta este punto del estudio de FMR, el comportamiento de los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  en función de los distintos parámetros, parecen explicarse sin tener presente al campo de interacción  $H_E$  entre las capas de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  y el resto de la multicapa. Sin embargo en la sección anterior referente a las mediciones de magnetización DC, hemos exhibido resultados que indican la presencia de acoplamiento, al menos en muestras con valores de  $t$  pequeños o valores de  $x$  elevados. A partir de estas observaciones, se puede pensar que en las muestras que existe acoplamiento, el valor de  $H_E$  debe ser relativamente pequeño. Tan pequeño como para no influir significativamente en la posición de los modos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$ , pero suficiente como para generar un solo escalón en el proceso de reversión de la magnetización en las mediciones de magnetización DC ( $H_E \gtrsim H_c$ ).

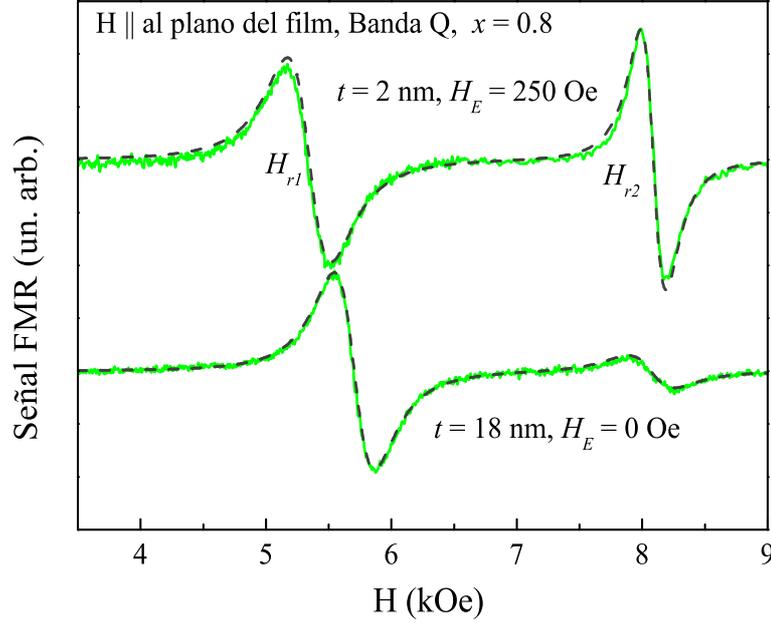


Figura 5.12: Espectros de FMR para las muestras con  $x = 0.80$ ,  $t = 2$  nm y  $x = 0.80$ ,  $t = 18$  nm. Las líneas continuas corresponden a los datos experimentales y las líneas de trazos al ajuste utilizando los siguientes parámetros:

Espectro superior:  $M_{eff}^{(1)} = 1670$  emu/cm<sup>3</sup>,  $t_{eff}^{(1)} = 18.92$  nm,  $M_{eff}^{(2)} = M_{Py}$ ,  $t_{eff}^{(2)} = d$ ,  $\alpha_1 = 0.026$ ,  $\alpha_2 = 0.015$ ,  $H_E = 250$  Oe,  $H_n^{(1)} = 1520$  Oe,  $H_n^{(2)} = 2150$  Oe.

Espectro inferior:  $M_{eff}^{(1)} = 1542$  emu/cm<sup>3</sup>,  $t_{eff}^{(1)} = 34.56$  nm,  $M_{eff}^{(2)} = M_{Py}$ ,  $t_{eff}^{(2)} = d$ ,  $\alpha_1 = 0.024$ ,  $\alpha_2 = 0.0275$ ,  $H_E = 0$ ,  $H_n^{(1)} = 1400$  Oe,  $H_n^{(2)} = 1590$  Oe.

Debido a la gran influencia que tiene un valor no nulo del campo de interacción, principalmente para valores pequeños de  $H_E$ , sobre las relaciones de intensidades  $I_1/I_2$  (ver Fig. 3.20), los resultados expuestos respecto a la relación de intensidades  $I_1/I_2$ , deben ser considerados solamente a modo cualitativo ya que para el análisis consideramos  $H_E = 0$  en todos los casos. Se requiere un análisis minucioso ajustando los espectros experimentales para estimar correctamente la relación de intensidades y el campo  $H_E$ . Debido a la baja relación señal/ruido y lo deformadas que son algunas líneas, este análisis no puede ser realizado en todos los espectros.

A modo de ejemplo, consideramos dos espectros, con los modos bien definidos, a fin de estimar el campo de interacción ajustando la forma de línea a partir del modelo, utilizando la

susceptibilidad escalar (ver Ec. 3.13 y apéndice B). En la Fig. 5.12 se presentan dos espectros de muestras con diferente valor de espesores  $t = 2$  nm y  $t = 18$  nm, ambas con concentración  $x = 0.8$ . Se debe notar que para la muestra con espaciador  $t = 18$  nm, el ajuste de la medición experimental se realiza con mucha precisión proponiendo un campo de interacción nulo  $H_E = 0$ , mientras que para el espectro de la muestra con  $t = 2$  nm, es necesario incluir un valor de  $H_E = 250$  Oe a fin de reproducir correctamente el espectro. Los parámetros utilizados para el ajuste se muestran en la figura y las cantidades  $M_{eff}^{(1)}$  y  $t_{eff}^{(1)}$  fueron obtenidas a partir de las ecuaciones 5.3 y 5.4 respectivamente.

### 5.3.4. Variaciones angulares

En la Fig. 5.13 se presenta la dependencia angular hacia afuera del plano de los campos  $H_{r1}$  y  $H_{r2}$  medidos en banda X, junto con el mejor ajuste numérico realizado utilizando el modelo. Las medidas fueron hechas en dos muestras con  $t = 1$  nm,  $x = 0.75$  y  $t = 18$  nm,  $x = 0.75$ . Para realizar la variación angular se escogió la frecuencia de banda X debido a la disponibilidad de campo del equipo (0 - 22000 Oe). En banda Q los campos de resonancia son mayores y en la zona cercana a la dirección perpendicular se elevan considerablemente quedando fuera del rango de trabajo del electroimán. Aún en banda X los campos de resonancia en la dirección perpendicular no pudieron ser determinados.

Los parámetros necesarios para realizar el ajuste se muestran en la figura y es posible simular considerablemente bien los datos experimentales. A partir de los ajustes hemos estimado el campo de interacción  $H_E$ . Para la muestra con espaciador más grueso el ajuste da un valor nulo para el campo  $H_E$ , mientras que para la muestra con  $t = 1$  nm el valor del campo de interacción es  $H_E \sim 40$  Oe. Debido al bajo valor de  $H_E$  y su poca influencia sobre los campos de resonancia, la estimación de  $H_E$  esta acompañada de un gran error.

## 5.4. Conclusiones

Como resumen de este capítulo referente al sistema asimétrico Fe | Fe-SiO<sub>2</sub> | Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>, podemos mencionar que los efectos del espaciador granular sobre la capa continua de Fe son comprobados experimentalmente y razonablemente bien descritos por el modelo para tricapas acopladas. Este resultado es encontrado tanto en las mediciones de FMR en función de los distintos parámetros (el espesor  $t$ , la concentración  $x$  y la frecuencia de excitación), como por las mediciones de magnetización DC en las que la magnitud de los escalones encontrados en algunas muestras indica que el Fe está fuertemente acoplado al espaciador mientras que el Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> está desacoplado o débilmente acoplado.

En muestras con valores de  $x$  elevado o con espesores de  $t$  pequeños, se observa la presencia de interacciones entre las capas de Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> y el resto del sistema, siendo el acople siempre ferromagnético ( $H_E > 0$ ), los valores del campo de interacción son pequeños y difíciles de cuantificar pero del orden o menores a 300 Oe. En la Fig. 5.14 presentamos un esquema

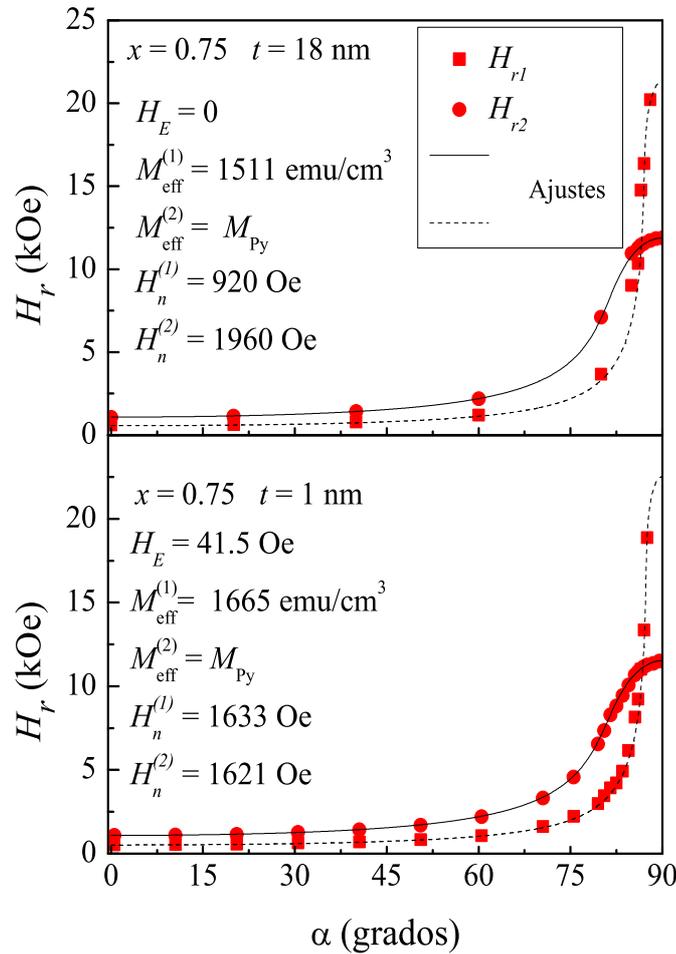


Figura 5.13: Variación angular de los campos de resonancia en función del ángulo de incidencia del campo externo  $\alpha$ . Las mediciones fueron realizadas en dos muestras, ambas con concentración  $x = 0.75$  y espesores  $t = 1$  nm y  $t = 18$  nm. Las líneas continuas y de trazos corresponden al ajuste realizado con los parámetros indicados en la figura.

ilustrativo de las muestras que presentan acople, definiendo como desacopladas a aquellas muestras en que se distinguen dos saltos en las mediciones de magnetización DC.

Con el modelo que describe la forma de línea fue posible determinar el valor de este campo, aunque en general su estimación es muy engorrosa e incierta debido a que muchas muestras presentan baja relación señal ruido en las medidas de FMR, o el efecto que produce la interacción sobre los modos es muy pequeño.

Uno de los motivos por el que la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  estaría desacoplada del resto del sistema puede deberse a que fue necesario romper el vacío después de crecer el espaciador granular en el proceso de fabricación de las muestras. También podría ser debido a que, a diferencia

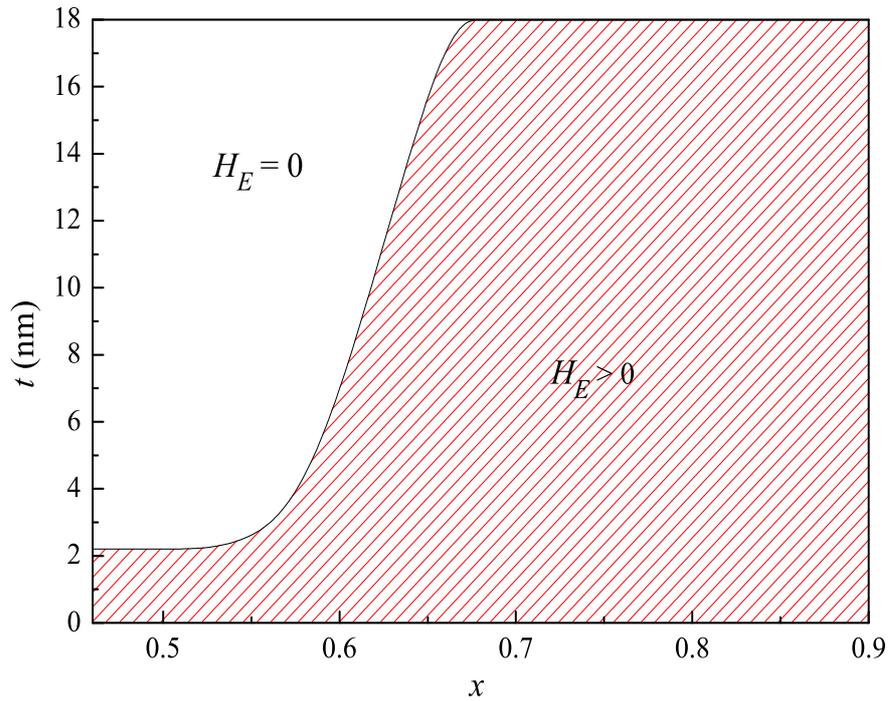


Figura 5.14: Diagrama de fases ilustrativo de las muestras que presentan acoplamiento, definiendo a las desacopladas como aquellas que presentan dos escalones distinguibles en el proceso de reversión de la magnetización en los ciclos de histéresis.

del Fe, el  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  simplemente no se acopla en forma efectiva al espaciador granular.

Al igual que en el conjunto de muestras simétricas estudiadas en el capítulo anterior se detectó la presencia de una pequeña anisotropía uniaxial la cual es más notoria en muestras extraídas de los extremos del sustrato, especialmente de la región de bajo valor de  $x$ .

En esta tesis no presentamos resultados ni analizaremos el comportamiento de los anchos de línea en estas muestras, sin embargo en la referencia [36] se encuentra una publicación en la que se muestran algunos resultados obtenidos a partir de este tipo de estudios.

## Capítulo 6

### Co|Ru|Co ( $J < 0$ ) caso simétrico

El mejoramiento de la estabilidad térmica de nanopartículas ha sido un tema muy estudiado en los últimos años [37], debido a las implicancias tecnológicas que conlleva este resultado. Con esta intención, a fin de observar los efectos que produce un ferromagneto sobre el superparamagnetismo de nanopartículas, resulta interesante colocar en contacto un arreglo de nanopartículas (o un film granular suficientemente diluido) con un film ferromagnético continuo, ver esquema en la Fig. 6.1 a). En la práctica este sistema no resulta adecuado para estudiar al film granular ya que su señal magnética queda enmascarada por la producida por el film continuo, la cual es mucho más intensa.

A fin de evitar este inconveniente y disminuir la señal proveniente del film continuo es posible utilizar un antiferromagneto sintético (SAF). Estos sistemas consisten en dos films ferromagnéticos separados por un metal no magnético a través del cual se genera un acople de intercambio indirecto tipo RKKY [6] entre las capas continuas. Eligiendo el espesor adecuado para el espaciador metálico es posible acoplar las capas en forma antiferromagnética (AF).

Para conseguir el SAF crecimos tricapas de Co|Ru|Co, Fig. 6.1 b). Estos sistemas son ampliamente utilizados en la fabricación de discos rígidos debido a que se pueden lograr campos de interacción muy grandes (hasta varios kOe [30]) entre las capas de Co. Así la idea es construir un SAF en donde las capas de Co estén en contacto con capas granulares. En la Fig. 6.1 c) se esquematiza el sistema completo. Con esta configuración se espera que la señal magnética proveniente de las capas de Co se cancele debido al acople AF y así obtener una señal más limpia proveniente de las capas granulares.

Por los motivos que se explicarán al final del capítulo, no fue posible estudiar en detalle el sistema completo Granular | Co|Ru|Co | Granular. A pesar de los inconvenientes, en este capítulo expondremos las propiedades magnéticas encontradas en el sistema Co|Ru|Co, los cuales ofrecen una gran variedad de resultados que pueden ser enmarcados dentro de los modelos presentados en los capítulos precedentes.

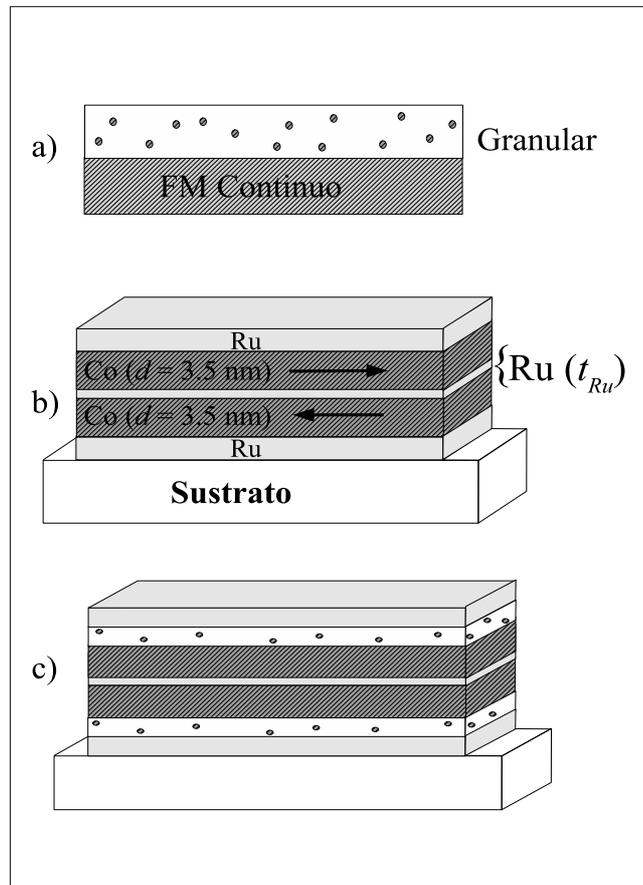


Figura 6.1: Esquema de las multicapas ideadas para estudiar el efecto que produce un ferromagneto continuo sobre el superparamagnetismo de nanopartículas. a) Capa granular en contacto con un film ferromagnético continuo. b) Antiferromagneto sintético de Co | Ru | Co. c) Sistema completo en el que dos capas de Co están acopladas en forma antiferromagnética y en contacto con films granulares.

## 6.1. Fabricación y caracterización

Las muestras de Co|Ru|Co fueron fabricadas por magnetron sputtering DC sobre un sustrato de vidrio. A fin de mantener la simetría de las muestras y evitar que las capas ferromagnéticas de Co queden expuestas al ambiente, se creció una precapa y una poscapa de Ru de 2 nm de espesor, ver esquema en la Fig. 6.1 b). Durante el proceso de fabricación se utilizó una presión de base de aproximadamente  $4 \times 10^{-7}$  Torr y la presión de argón en general fue de  $\sim 3$  mTorr dentro de la cámara de sputtering. La potencia de deposición fue de 10 W y el crecimiento se realizó a partir de blancos circulares de 3.75 cm de diámetro. Con estos parámetros los ritmos de deposición fueron de aproximadamente 0.09 nm/s para el Co y el Ru.

Se crecieron muestras donde se varió el espesor  $t_{Ru}$  entre  $0.4 \text{ nm} < t_{Ru} < 1.6 \text{ nm}$  y en

general se mantuvieron fijos e iguales a  $d = 3.5$  nm los espesores de las capas de Co. Estos valores fueron escogidos siguiendo la referencia [30].

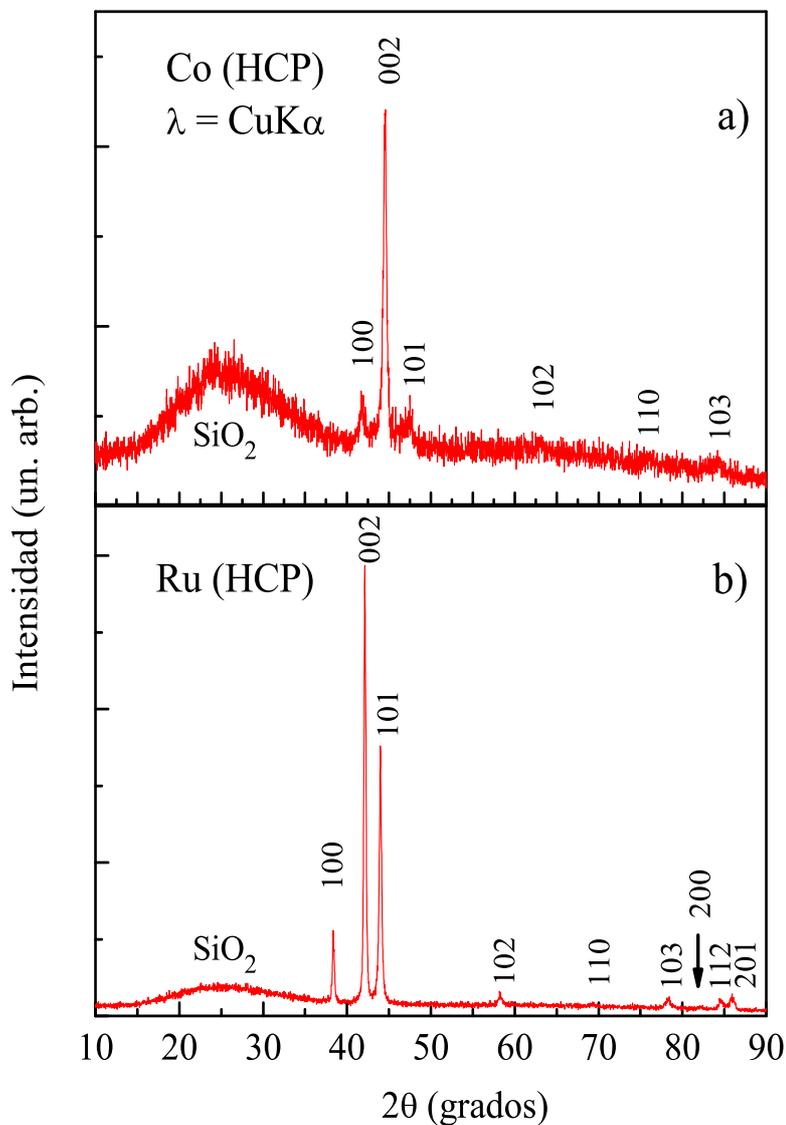


Figura 6.2: Mediciones de rayos X de las muestras de referencia de a) Co y b) Ru, ambas de 100 nm de espesor. En la figura se indican la posición (y los correspondientes índices cristalográficos) de los picos esperados para estos materiales. Ambas muestras crecen policristalinas dentro del plano del film con estructura HCP y texturadas con el eje  $c$  perpendicular al plano de la muestra. En ambas mediciones se observa la estructura amorfa correspondiente al sustrato de vidrio.

Se realizaron análisis de rayos X en films de referencia tanto de Co como de Ru, ambos

de 100 nm de espesor crecidos en las mismas condiciones que las multicapas, las mediciones correspondientes se presentan en la Fig. 6.2. El análisis indica que los materiales crecen policristalinos con estructura HCP y los resultados de las intensidades relativas de los picos experimentales comparados con los tabulados para estos materiales, muestran que el Co y el Ru crecen texturados en la dirección [001], es decir con el eje  $c$  perpendicular al plano del film. Se debe tener en cuenta que los resultados encontrados en las capas de referencia pueden no ser similares a los de las capas que componen las muestras, debido a que estas últimas tienen un espesor mucho más delgado, sobre todo el espaciador de Ru, en donde el espesor es cercano al 1% del correspondiente al film de referencia sobre la que se realizó la medida de rayos X.

Para crecer el sistema completo (Granular | Co|Ru|Co | Granular) se agregaron al proceso recientemente descrito, dos capas granulares de Fe-SiO<sub>2</sub> con una concentración  $x = 0.36 < x_p$  y espesores de 10 nm. El film fue crecido utilizando magnetron sputtering RF desde un blanco compuesto y las capas fueron ubicadas de tal manera de lograr la estructura simétrica esquematizada en la Fig. 6.1 c). Además se crecieron films granulares de referencia del mismo espesor y concentración sobre sustratos de vidrio.

## 6.2. Magnetización DC en el sistema Co|Ru|Co

Las mediciones de magnetización DC, realizadas en las muestras de Co|Ru|Co, fueron llevadas a cabo en el magnetómetro de muestra vibrante VSM y en el SQUID, siempre con el campo aplicado paralelo al plano del film.

En general los ciclos presentan dos comportamientos bien diferenciados entre sí, dependiendo del espesor del espaciador de Ru,  $t_{Ru}$ . Para espesores menores a  $t_{Ru} < 1.2$  nm se encontraron ciclos similares a los mostrados en la Fig. 6.3 a), mientras que para las muestras con espesores mayores a  $t_{Ru} > 1.2$  nm los ciclos fueron como los presentados en la Fig. 6.3 b). El ciclo de histéresis mostrado en el panel a) es característico de sistemas simétricos acoplados AF, donde las magnetizaciones de cada capa presentan un comportamiento de *spin-flop* al aplicarse el campo (ver sección 3.2.2). Al incrementarse el valor de  $H$ , estas se inclinan aumentando linealmente la magnetización total hasta llegar a la saturación. Como fue discutido en la sección 3.2.2, en esta situación de acople AF, las mediciones permiten estimar el campo de interacción observando el campo de saturación del ciclo, tal como es indicado en la figura. Por otra parte, el ciclo del panel b) es similar al que se obtiene en films simples ferromagnéticos. De esta manera el valor de  $H_E$  puede ser estimado a partir de las mediciones de magnetización DC sólo cuando el acople es AF y los ciclos son similares a los mostrados en la Fig. 6.3 a). En los casos restantes, por los menos a partir de este tipo de mediciones, no es posible saber si las capas están acopladas en forma ferromagnética o desacopladas.

Cuando las capas de Co están acopladas AF, pero no tienen el mismo espesor, los ciclos de magnetización difieren ligeramente del mostrado en la Fig. 6.3 a). En estos casos las medidas muestran que las capas no están compensadas apareciendo un *miniciclo* en las cercanías de

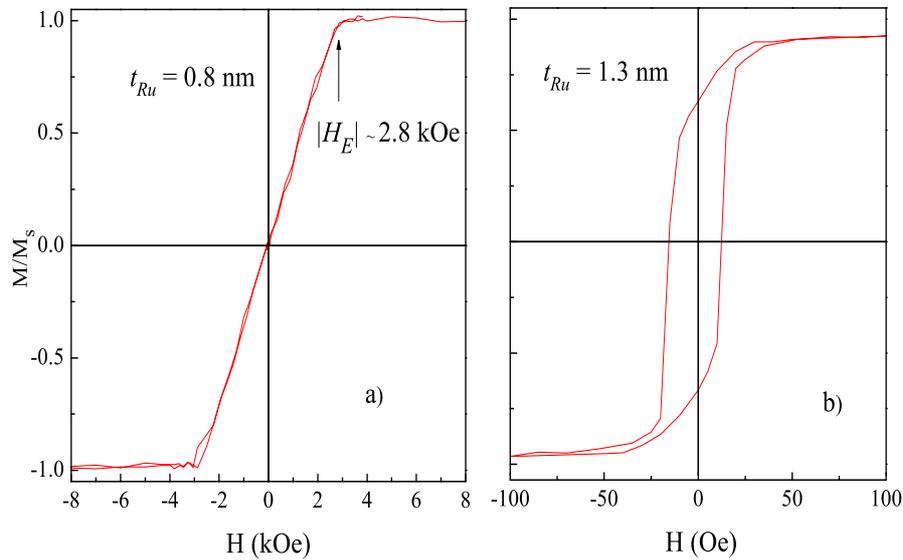


Figura 6.3: Ciclos de magnetización típicos encontrados en las muestras de Co|Ru|Co. En el panel a) se presenta una medición realizada en una muestra con espaciador de Ru menor a 1.2 nm, la cual presenta acople AF entre las capas de Co. El panel b) corresponde a una muestra con espesor mayor a 1.2 nm y la misma presenta acople ferromagnético. Las medidas fueron realizadas con el campo paralelo al plano del film. Notar la diferencia en las escalas de campo magnético.

campo cero, así las muestras con mayor asimetría presentan un miniciclo mayor. En la Fig. 6.4 se presentan tres ciclos de magnetización realizados con el campo aplicado en el plano. El panel a) corresponde a una muestra simétrica mientras que en los paneles b) y c) las medidas fueron realizadas en muestras asimétricas. Debido a que las primeras capas de Co tienen un espesor  $d = 3.5$  nm y las últimas tienen espesores distintos ( $d > d_1 > d_2$ ) la muestra del panel c) es la que presenta mayor asimetría y en consecuencia también tiene un miniciclo más notorio respecto de las restantes multicapas.

Por este motivo las mediciones de magnetización DC, cuando el acople es AF, no sólo permiten estimar el valor de  $H_E$ , sino que también brindan información de la simetría del sistema, ya que pequeñas asimetrías se reflejan en descompensaciones en los ciclos de magnetización.

A fin de encontrar los espesores óptimos del espaciador de Ru que generen acople AF entre las capas de Co, se crecieron una serie de muestras con diferentes espesores  $t_{Ru}$  variando éstos entre 0.4 y 1.6 nm. En la Fig. 6.5 se presentan los ciclos de magnetización obtenidos al realizar las mediciones de magnetización DC en las muestras de esta serie. En la misma se observa en los espesores más delgados un acople AF entre las capas de Co y la magnitud

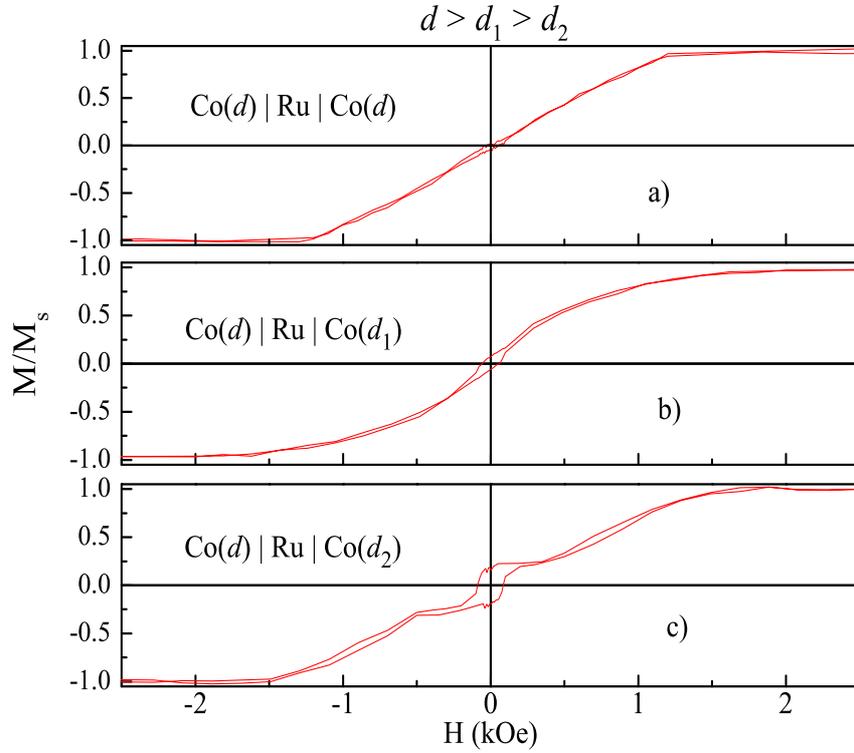


Figura 6.4: Ciclos de magnetización realizados en muestras con diferentes simetría. a) caso simétrico, b) y c) casos asimétricos. Las medidas se realizaron con el campo aplicado paralelo al plano del film y los espesores de la última capa de Co verifican  $d > d_1 > d_2$ .

de este acople disminuye al aumentar el espesor  $t_{Ru}$ . Por lo menos hasta el valor  $t_{Ru} \sim 1.2$  nm en donde  $J$  cambia de signo.

Además de las mediciones mostradas en la Fig. 6.5 realizamos medidas en la muestra con espesor  $t_{Ru} \sim 0.4$  nm. Esta muestra no presenta acople AF y es muy probable que la capa de Ru no sea continua debido a lo delgado de su espesor (0.4 nm corresponde prácticamente a una monocapa atómica). En esta situación existirían regiones donde las capas de Co están en contacto directo, impidiendo obtener las características de SAF. Así concluimos que los espesores óptimos para obtener un SAF son  $d = 3.5$  nm, y  $t_{Ru}$  en el rango de 0.6 a 1.2 nm.

### 6.3. FMR en el sistema Co|Ru|Co

Las mediciones de resonancia ferromagnética fueron realizadas a temperatura ambiente, utilizando la frecuencia de banda X en todos los casos. El campo magnético fue aplicado

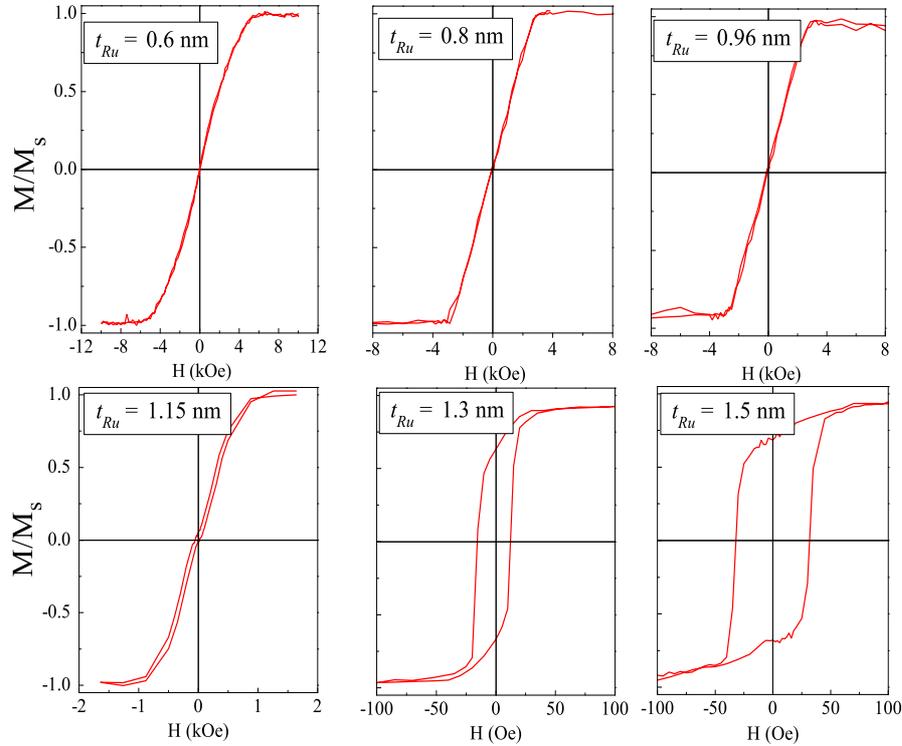


Figura 6.5: Ciclos de magnetización realizados en muestras con diferentes espesores del espaciador. Se puede apreciar que el cambio de signo en el acople se produce para un espesor  $t_{Ru}$  cercano a 1.2 nm. Este resultado es coincidente con el reportado en la referencia [30].

paralelo al plano del film, pero también se realizaron variaciones angulares con el campo saliendo del plano de la muestra. Para el análisis de las mediciones se utilizó un sistema de ejes coordenados como el mostrado en la Fig. 2.10. Estas muestras, a diferencia de las estudiadas anteriormente, no presentan anisotropía uniaxial dentro del plano<sup>1</sup>. Los valores del factor  $g$  y la magnetización de saturación del Co son  $g_{Co} = 2.19$  y  $M_{Co} = 1400 \text{ emu/cm}^3$  respectivamente.

Cuando el campo está aplicado paralelo al plano del film en general se observa un solo modo de excitación, el cual corresponde al modo acústico  $H_{ac}$ . En la Fig. 6.6 a) presentamos las relaciones de dispersión del modo acústico para diferentes valores de  $H_E$ , las cuales intentan reproducir los campos de resonancia de los espectros mostrados en la Fig. 6.6 b). Cuando  $H_E \geq 0$  las curvas colapsan en una única, la cual coincide con la de un film simple de Co. Por otra parte cuando  $H_E < 0$  la relación de dispersión es una recta<sup>2</sup> cuya expresión es

<sup>1</sup>Por el hecho de que no existe anisotropía uniaxial dentro del plano de las multicapas, junto a la isotropía del campo de interacción  $H_E$  es esperable un comportamiento de spín-flop en estas muestras.

<sup>2</sup>Esta expresión es válida en la región comprendida entre  $0 < H < |H_E|$ . Para valores de  $H > |H_E|$  la

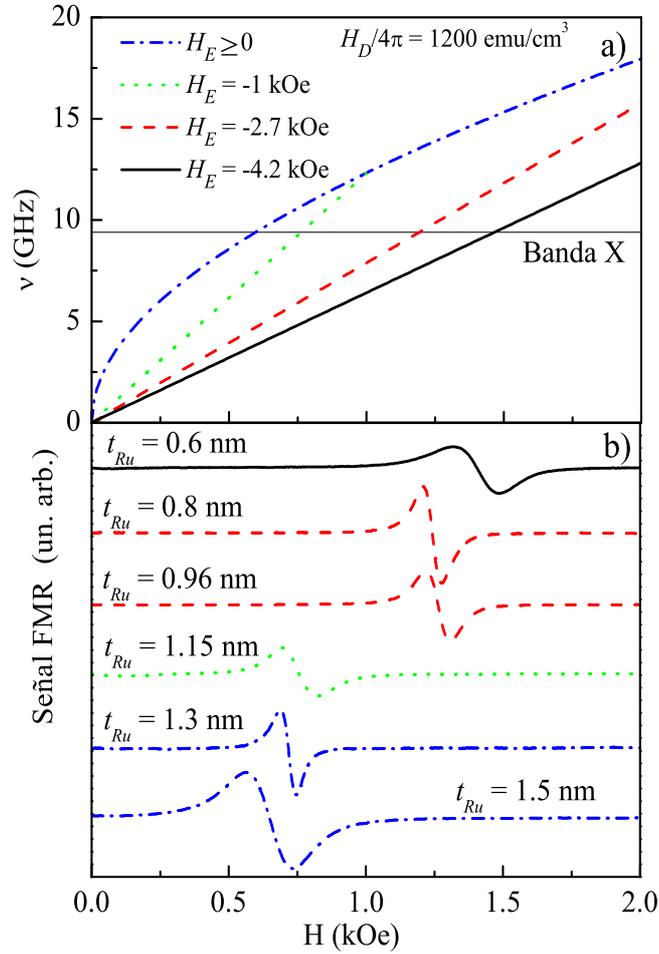


Figura 6.6: a) Relaciones de dispersión correspondiente al modo acústico para diferentes valores de  $H_E$ . Cuando  $H_E \geq 0$  las curvas colapsan en una única, la cual coincide con la de un film simple de Co. Si  $H_E < 0$  la relación de dispersión es una recta cuya pendiente depende de  $H_E$ . b) Espectros de FMR de muestras con distintos espesores  $t_{Ru}$ , medidos en banda X con el campo aplicado paralelo al plano. Sobre estas mismas muestras se realizaron las mediciones de magnetización DC mostradas en la Fig. 6.5.

$\nu = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{1 - \frac{H_D}{H_E} H}$ . Esta recta permite estimar el valor de  $H_E$  ya que la pendiente es afectada por la magnitud del campo de interacción. Los espectros presentados en esta figura fueron realizados en las mismas muestras sobre las que se realizaron las mediciones de magnetización DC presentadas en la Fig. 6.5. Los campos en los cuales satura la magnetización (al menos en las que existe acople AF) encontrados en esa figura deben ser comparados con los campos

relación de dispersión es similar a la de un film simple, ver tabla 3.2.

$H_E$  utilizados para obtener las relaciones de dispersión de la Fig. 6.6 a).

Si bien los valores de  $H_E$  encontrados en las mediciones de magnetización DC son similares a los encontrados en este análisis de FMR, estos últimos pueden ser estimados con mayor precisión si se contemplan las mediciones con campo aplicado perpendicular o realizando las variaciones angulares de los campos de resonancia a fin de utilizar un valor más adecuado del campo demagnetizante efectivo  $H_D$  para cada muestra. Por este motivo esta figura explica de modo cualitativo el comportamiento de los campos  $H_{ac}$  de los espectros de resonancia. Es interesante notar que es la única situación (cuando  $J < 0$  y en un sistema simétrico, al menos en el estudio presentado en este trabajo) en que se puede estimar el valor de  $H_E$  mediante la sola observación de la posición del campo de resonancia del modo  $H_{ac}$ .

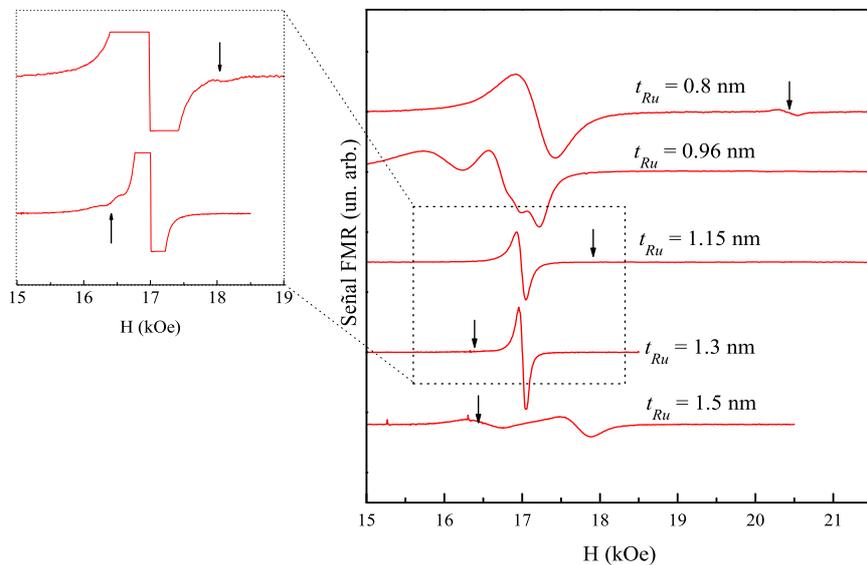


Figura 6.7: Espectros de FMR medidos en muestras con diferentes espesores de espaciador de Ru. Las mismas se realizaron con el campo aplicado perpendicular al plano. Se detallan algunas medidas para poder visualizar el modo óptico.

Las medidas de FMR de estas mismas muestras, pero aplicando el campo en la dirección perpendicular al plano, se presentan en la Fig. 6.7. En esta figura se puede apreciar con claridad la presencia del modo acústico y en general también se detecta, indicado con flechas y con muy poca intensidad, el modo óptico. En algunos casos es necesario realizar la medida con mayor ganancia para poder determinar la posición de este modo. A partir de la separación entre los modos acústico y óptico es factible determinar el campo  $H_E$  independientemente del valor de el campo demagnetizante efectivo, por este motivo y cuando sea posible es conveniente determinarlo a partir de esta configuración de medición. En las muestras con  $t_{Ru} = 1.3$  nm y  $t_{Ru} = 1.5$  nm se observa que el modo óptico tiene un campo de resonancia

menor al acústico, resultado que indica que existe acople entre las capas de Co y que el mismo es ferromagnético ( $J > 0$ ), a diferencia de las restantes muestras medidas donde el acoplamiento es AF ( $J < 0$ ).

La razón por la que el modo óptico es observable cuando el campo es aplicado en la dirección perpendicular, mientras que no lo es cuando la incidencia es paralela radica en la relación de intensidades ( $I_{ac}/I_{op}$ ) entre los modos. Esta cantidad  $I_{ac}/I_{op}$  disminuye cuando la incidencia del campo es perpendicular, aumentando la intensidad del modo óptico respecto del acústico. El análisis que demuestra este comportamiento no será explicado en este trabajo, pero se puede encontrar información detallada en la referencia [30].

Otra particularidad encontrada en las medidas con el campo aplicado perpendicular al plano del film, es que la muestra con espesor de espaciador  $t_{Ru} = 0.6$  nm no presenta ninguna absorción (ni siquiera la correspondiente al modo  $H_{ac}$ ), por este motivo no está incluida en la Fig. 6.7. Para comprender porqué esta muestra no presenta absorciones en esta configuración es útil analizar las relaciones de dispersión. En la Fig. 6.8 presentamos estas relaciones de dispersión para los ángulos de incidencia paralela ( $\alpha = 0^\circ$ ),  $\alpha = 70^\circ$  y perpendicular al plano de la muestra ( $\alpha = 90^\circ$ ), obtenidas a partir de los parámetros que ajustan los campos de resonancia medidos.

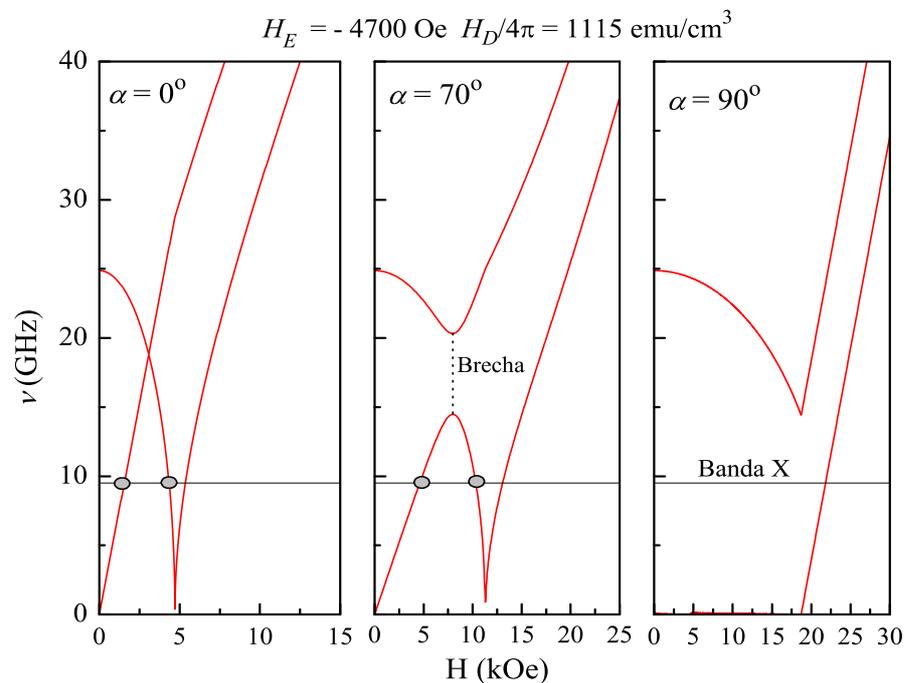


Figura 6.8: Relaciones de dispersión para distintos ángulos de incidencia del campo externo. Las simulaciones reproducen los campos de resonancia medidos en la muestra con espaciador  $t_{Ru} = 0.6$  nm. Se marcan con círculos los modos detectados en el experimento.

En esta figura, donde se remarcan con círculos los modos observados, podemos apreciar que para algún ángulo  $\alpha$  mayor a  $70^\circ$ , los modos dejan de ser detectados debido a que aparece una suerte de brecha de frecuencia en la que estos modos de precesión dejan de sintonizarse.

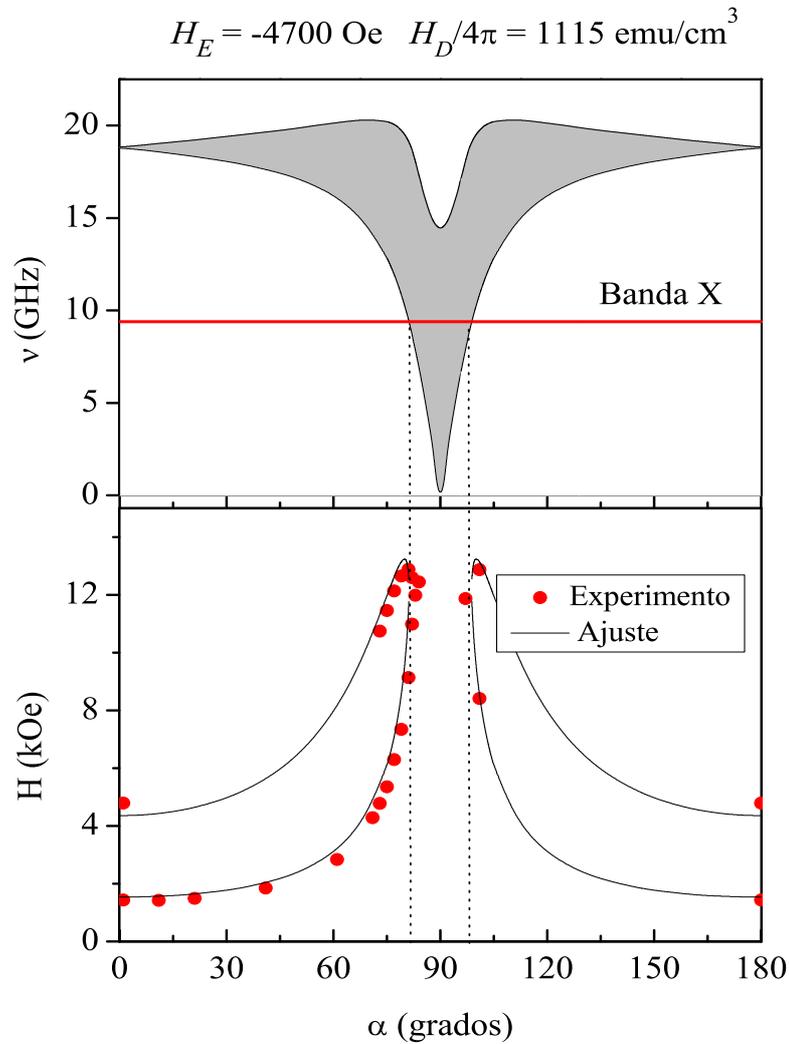


Figura 6.9: Variación angular de los campos de resonancia medidos en la muestra con espesor de espaciador de  $t_{Ru} = 0.6 \text{ nm}$ , En la misma se aprecia que la frecuencia de banda X sintoniza una región donde no se pueden excitar los modos de absorción. El campo de resonancia del modo óptico para la dirección paralela fue obtenido inclinando la muestra respecto del campo de radiofrecuencia, tal como es explicado en el apéndice C.

En la Fig. 6.9 se presenta la dependencia angular de la brecha junto con la variación angular de los campos de resonancia medidos en esta muestra. En la misma se observa en detalle la región angular en donde la frecuencia de banda X sintoniza esta brecha y en la

$t_{Ru}$ (nm)	$H_E^{\text{DC}}$ (kOe)	$H_E^{\text{FMR}}$ (kOe)
0.6	-5.0	-4.7
0.8	-2.8	-3.2
0.96	-2.9	-2.8
1.15	-0.9	-1.0
1.3	*	+0.6
1.5	*	+1.2

Tabla 6.1: Campos de interacción  $H_E$  para las muestras con distintos espesores de espaciador  $t_{Ru}$ . Los valores fueron obtenidos a partir de mediciones de magnetización DC (indicado como  $H_E^{\text{DC}}$ ) y por mediciones de FMR (indicado como  $H_E^{\text{FMR}}$ ). Cuando el campo de interacción es positivo, el valor de  $H_E$  no puede ser estimado a partir de las medidas de magnetización.

cual no hay modos de absorción. Con este análisis es posible concluir que esta muestra no presenta absorciones en la configuración perpendicular debido a que  $|H_E|$  tiene un valor que permite que la brecha sea sintonizada en banda X. Igualmente es posible estimar el valor de  $H_E$  realizando el ajuste de la variación angular de los campos de resonancia.

En la Tabla 6.1 presentamos los valores de  $H_E$ , encontrados a partir de las mediciones tanto de magnetización DC como de FMR para las muestras con distintos espesores  $t_{Ru}$ . Ambas técnicas experimentales muestran una buena concordancia en los valores obtenidos para este campo de interacción.

### 6.3.1. Efectos de la asimetría sobre las mediciones de FMR

Como fue mencionado en los capítulos anteriores las magnetizaciones transversales  $\mathbf{m}_1$  y  $\mathbf{m}_2$  oscilan en fase cuando se sintoniza el modo acústico ( $\mathbf{m}_1 = \mathbf{m}_2$ ) y en contra fase cuando se excita el modo óptico ( $\mathbf{m}_1 = -\mathbf{m}_2$ ). Debido a la precesión en contra fase de las magnetizaciones al excitarse el modo  $H_{op}$ , se dificulta su observación especialmente cuando el campo está aplicado paralelo al plano del film (ver referencia [30]).

Sin embargo en algunas situaciones, aunque las medidas de magnetización indiquen mucha simetría, fue posible observar con claridad todas las absorciones predichas, al menos cuando el campo aplicado estaba perpendicular al plano. En la Fig. 6.10 presentamos una medida de FMR realizada en una de estas muestras donde se observan todos los modos junto con la correspondiente relación de dispersión que reproduce los campos de resonancia experimentales. En este caso el modo acústico se sintoniza en campos cercanos a 17250 Oe, mientras que las absorciones restantes corresponden a modos ópticos. Recordamos que la separación entre el modo  $H_{ac}$  y el modo  $H_{op}$  de mayor campo es directamente una estimación del campo  $H_E$ . La poca intensidad del modo óptico es bien notoria, principalmente la que

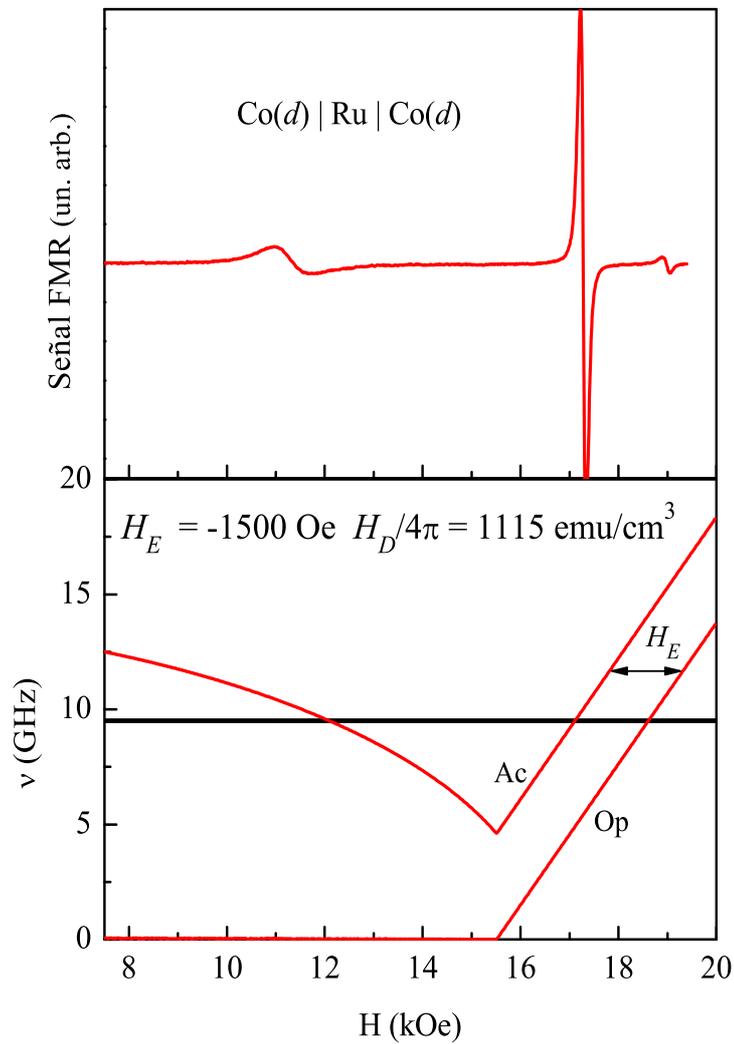


Figura 6.10: Espectro de resonancia realizado con el campo aplicado perpendicular al plano de la muestra. En la medida se pueden observar todos los modos de resonancia sintonizados en la relación de dispersión, la cual es presentada en el panel inferior.

presenta mayor campo de resonancia.

A fin de observar los efectos que produce la asimetría, esta medición la comparamos con un espectro tomado en una muestra más asimétrica. Las medidas se presentan en la Fig. 6.11 y junto al espectro, el correspondiente ciclo de magnetización DC. En los espectros se puede observar un menor valor en la relación de intensidades ( $I_{ac}/I_{op}$ ) en la muestra asimétrica y un *miniciclo* en el ciclo de magnetización, el cual no está presente en la muestra más simétrica.

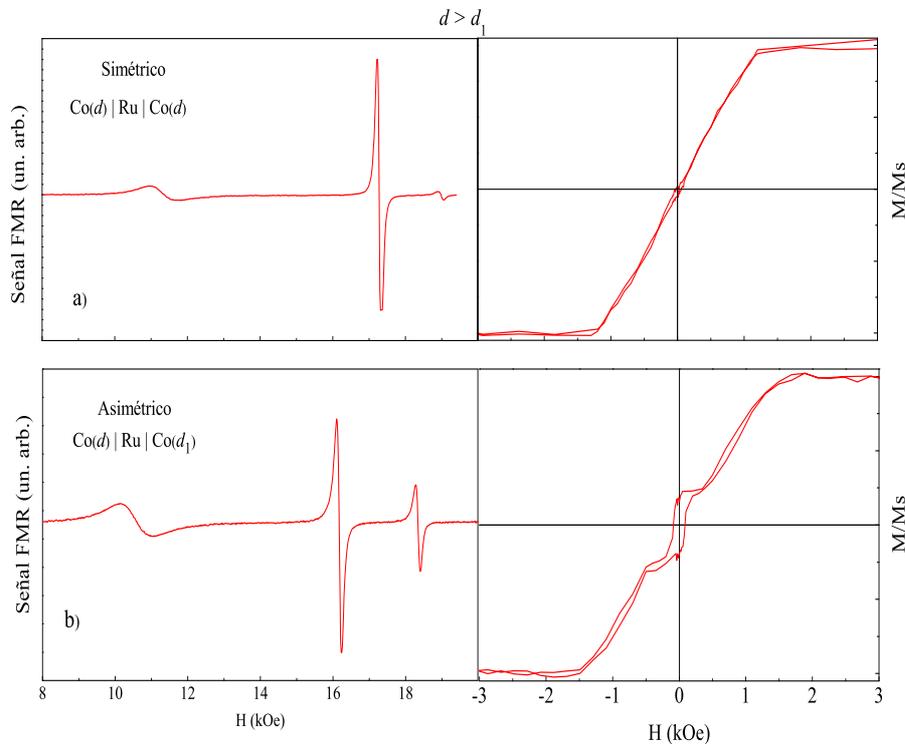


Figura 6.11: Espectros de resonancia realizados con el campo perpendicular al plano en dos muestras. El panel a) corresponde a una muestra simétrica mientras que el panel b) a una muestra asimétrica, ( $d = 3.5 \text{ nm} > d_1$ ). Junto a los espectros se presentan los correspondientes ciclos de magnetización los cuales fueron realizados con el campo aplicado paralelo al plano del film.

## 6.4. SAF|Granular

Como fue mencionado al comienzo de este capítulo, la intención de construir un antiferromagneto sintético es aprovechar el pequeño valor de magnetización en las cercanías de campo cero que en general presentan estos sistemas. Así al estar una capa granular en contacto con las capas de Co, podrían observarse los efectos que el film ferromagnético continuo ejerce sobre el superparamagnetismo de las nanopartículas, sin enmascarar la señal del film granular.

Una de las medidas estándares para observar la temperatura de bloqueo de nanopartículas son las curvas de magnetización en función de temperatura medidas en dos situaciones diferentes: la primera consiste en enfriar la muestra en presencia de un campo magnético ( $\sim 50 \text{ Oe}$  en nuestro caso) para luego medir la magnetización aumentando la temperatura. A

este protocolo de medición se lo llama *field cooling* (FC). En segunda instancia se realiza el mismo procedimiento, pero aplicando el campo luego de enfriar la muestra. A este caso se lo denomina *zero field cooling* (ZFC). Ambas mediciones, en nuestro caso particular, se realizan con el campo aplicado paralelo al plano. La derivada de la diferencia de ambas curvas en general presenta un máximo, el cual es un indicativo de la temperatura de bloqueo [38].

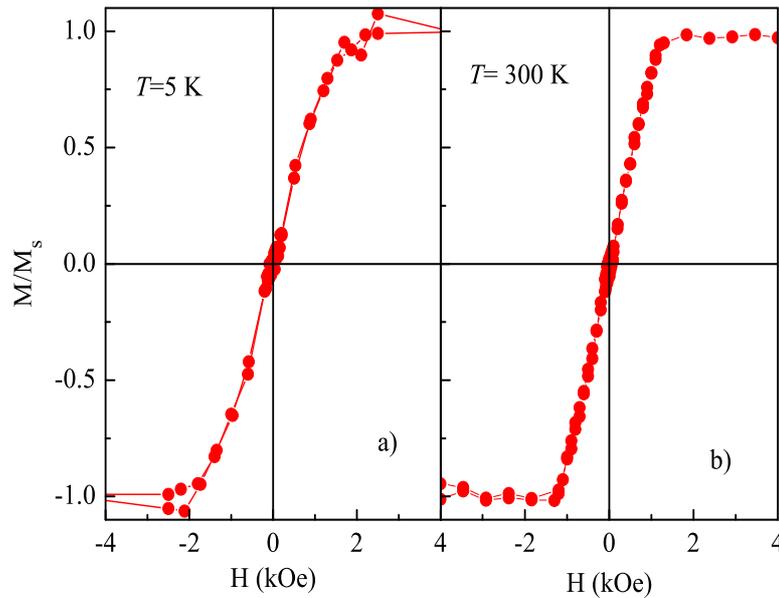


Figura 6.12: Mediciones de magnetización DC realizados en un antiferromagneto sintético a dos temperaturas distintas: a)  $T = 5$  K y b)  $T = 300$  K. Los ciclos se realizaron con el campo aplicado paralelo al plano de la muestra.

Para una correcta interpretación de las medidas es importante que el SAF mantenga su comportamiento AF en todo el rango de temperatura de la medición ZFC-FC. Para tal finalidad en la Fig. 6.12 presentamos dos ciclos de magnetización DC realizados en una muestra de Co|Ru|Co que presenta acople AF. Las medidas fueron llevadas a cabo con el campo aplicado paralelo al plano y el ciclo mostrado en el panel a) fue hecho a 5 K mientras que el del panel b) se realizó a 300 K. En esta figura se aprecia que el comportamiento AF se conserva en ambas medidas y la magnetización a 50 Oe (campo con el que se realizan las medidas ZFC-FC) se mantiene en un valor muy pequeño, cerca del 4% de la magnetización de saturación.

Por otra parte la medición ZFC-FC realizada en la muestra granular de referencia muestra una temperatura de bloqueo cercana a 30 K. En la Fig. 6.13 presentamos la medición que fue realizada aplicando un campo constante de  $\sim 50$  Oe y paralelo al plano del film.

La complicación surge al crecer el sistema completo Fe-SiO<sub>2</sub>|Co|Ru|Co|Fe-SiO<sub>2</sub> donde la presencia de las capas granulares en contacto con las capas de Co generan en las mediciones de

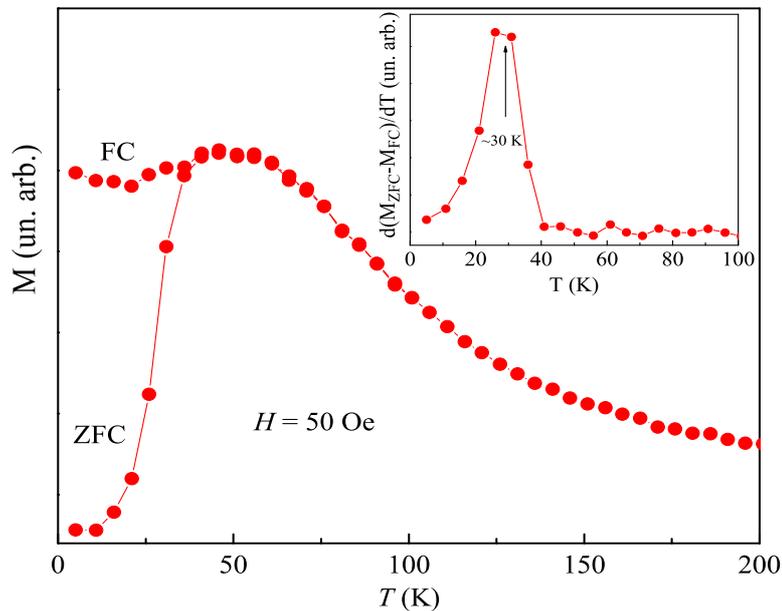


Figura 6.13: Medición ZFC-FC realizada en la muestra granular de Fe-SiO<sub>2</sub> de referencia. Esta muestra de concentración  $x \sim 0.36$  y espesor de 10 nm, presenta una temperatura de bloqueo cercana a 30 K. En el inset se presenta la derivada de la diferencia de ambas curvas.

magnetización DC miniciclos (ver Fig. 6.14 a), similares a los encontrados en las muestras asimétricas de Co|Ru|Co. Estos miniciclos aparecen incluso a temperatura ambiente y se hacen más notorios al disminuir la temperatura.

Si bien la presencia de un ciclo interior puede interpretarse como proveniente del granular en estado bloqueado, tanto la magnetización remanente como el campo coercitivo de este miniciclo varían de muestra en muestra y aparece aún cuando se sustituyen las capas granulares por capas no magnéticas de SiO<sub>2</sub>, tal como es mostrado en la Fig. 6.14 b). Para encontrar solución a este inconveniente se han ideado una serie de variantes, como por ejemplo cambiar la capa granular de Fe-SiO<sub>2</sub> por una granular de Co-Ag a fin de utilizar un cañón DC en lugar de uno RF al crecer esta capa, variar los parámetros de crecimiento: distancia del blanco al sustrato, presión de argón, ritmos y tiempos de deposición, crecer capas simétricas y asimétricas de Fe-SiO<sub>2</sub>, entre otras. Pero hasta el momento no se ha logrado encontrar una forma de crecer muestras con comportamiento reproducible.

De esta manera las mediciones ZFC-FC realizadas en el sistema completo así fabricado (Fig. 6.15 a) muestran un aparente incremento en la temperatura de bloqueo al ser comparada con la medición realizada en el film granular de referencia (Fig. 6.15 b), sin embargo este efecto parece provenir de una complicación estructural más que de la estabilización térmica de las nanopartículas. El origen de este problema no ha podido ser determinado con exactitud,

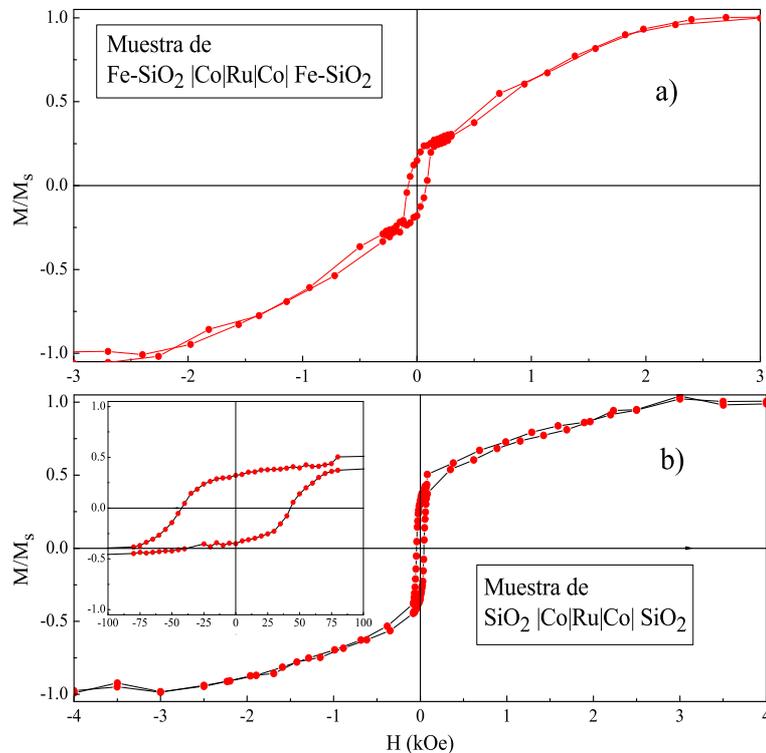


Figura 6.14: Medición de magnetización DC realizada en: a) multicapa de  $\text{Fe-SiO}_2|\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}|\text{Fe-SiO}_2$  y b) multicapa de  $\text{SiO}_2|\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}|\text{SiO}_2$ . Ambas medidas fueron hechas con el campo aplicado paralelo al plano de la muestra y a temperatura ambiente.

pero es muy probable que la estructura  $\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}$ , al tener espesores muy delgados, sufra algún tipo de distorsión al entrar en contacto con las capas granulares debido a tensiones, calentamientos u otros factores inherentes al proceso de sputtering. Si bien el comentario intenta dar una explicación sobre la complicación encontrada, hasta el momento es solamente especulativa.

## 6.5. Conclusiones

En este capítulo hemos expuesto en detalle las condiciones de fabricación y las propiedades magnéticas del sistema  $\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}$ . Hemos encontrado los espesores óptimos del espaciador de Ru para lograr un acople AF, estando estos en el rango de  $0.6 \text{ nm} < t_{\text{Ru}} < 1.2 \text{ nm}$ . Las medidas de magnetización DC permiten estimar el valor de  $H_E$  cuando el acople es negativo y además, a partir de la observación o no de un miniciclo en las cercanías de campo cero, dan información de la simetría entre las capas de Co.

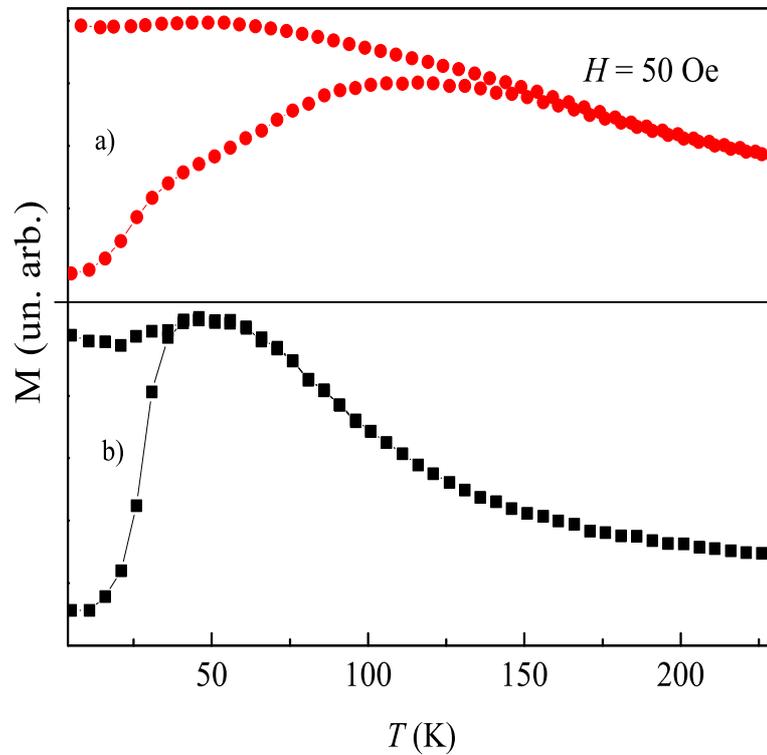


Figura 6.15: Mediciones ZFC-FC realizadas en el sistema completo  $\text{Fe-SiO}_2|\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}|\text{Fe-SiO}_2$  a) y en el film granular de referencia b).

Las medidas de FMR son bien descritas por el modelo expuesto en la sección 3.2.2 y permiten estimar el campo de interacción aún cuando el acople es positivo. A partir de este tipo de medidas es posible concluir que el acople entre las capas de Co cambia de signo en los espesores cercanos a  $t_{Ru} \sim 1.2 \text{ nm}$ . Los valores de  $H_E$  encontrados están en concordancia con los obtenidos a partir de mediciones de magnetización DC. Además se reportaron los efectos que la asimetría tiene sobre la intensidad de los distintos modos de absorción.

Al momento de construir el sistema completo  $\text{Fe-SiO}_2|\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}|\text{Fe-SiO}_2$  a fin de estudiar los efectos que las capas de Co tienen sobre las nanopartículas del film granular, han surgido complicaciones que aún no hemos podido solucionar. Probablemente relacionados con problemas estructurales en donde el sistema deja de ser simétrico, enmascarando esta asimetría los efectos que tienen las capas continuas de Co sobre el film granular.

# Capítulo 7

## Conclusiones generales

El trabajo presentado en esta tesis, abocado al estudio de las propiedades magnéticas de diferentes multicapas, ha dejado una serie de resultados que pueden ser reunidos en dos grandes grupos: los referentes a la interacción entre capas ferromagnéticas continuas separadas por un espaciador granular y los vinculados al sistema antiferromagneto sintético más granular (SAF|Gr).

En el primer grupo encontramos como resultado destacable, la posibilidad de sintonizar la magnitud del acople variando la concentración volumétrica  $x$ , manteniendo fijo el espesor del espaciador, es decir sin variar el espesor total de la muestra. La investigación realizada abre perspectivas interesantes para el desarrollo de sistemas en los que se requiere un control preciso del acoplamiento entre las capas magnéticas sin cambiar el espesor de la multicapa, ya que usualmente se consigue variar el acople ajustando el espesor del espaciador. Por otra parte hemos desarrollado un modelo original para describir estos sistemas que explica razonablemente bien los resultados experimentales.

Como cierre de este trabajo presentaremos un resumen de los resultados, los cuales fueron interpretados dentro de los diferentes modelos expuestos o permanecen a la espera de estudios complementarios para poder ser comprendidos.

### 7.1. Interacción entre capas FM continuas separadas por un espaciador granular

Tanto las muestras simétricas de Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Fe como las asimétricas de Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> fueron estudiadas en función de la concentración volumétrica de Fe  $x$  y el espesor  $t$  del espaciador granular. Ambos sistemas presentan una anisotropía uniaxial, cuyo eje fácil es perpendicular a la dirección de crecimiento de  $x$ . El valor de esta anisotropía es pequeña y es más notoria en las muestras extraídas de los extremos del sustrato, especialmente de la región de baja concentración  $x$ . Es probable que el origen de la misma sea la incidencia oblicua del material depositado sobre el sustrato al momento de crecer las distintas capas

durante el proceso de fabricación.

### 7.1.1. Muestras simétricas de Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Fe

A partir de las mediciones de FMR es posible determinar que los films presentan un acople ferromagnético ( $J > 0$ ) para todo valor de  $x$  y  $t$ . Las medidas muestran dos modos de absorción en banda Q, los cuales están asociados a los modos ópticos y acústicos. La separación entre estos modos permiten estimar el campo de interacción, estando este comprendido en el rango  $\sim 530 < H_E < \sim 3000$  Oe. Siendo el acople mayor en las muestras con espaciador más delgado. En banda X, debido a los valores de  $H_E$  que presentan las muestras, sólo es apreciable el modo acústico.

La dependencia del modo acústico con los parámetros  $x$  y  $t$  y la no observación directa de un modo asociado al espaciador granular permiten, a partir del modelo para tricapas acopladas discutido en el capítulo 3, concluir que el granular está fuertemente acoplado a las capas de Fe. Este resultado también es confirmado por la dependencia de este modo con las distintas frecuencias de excitación ( $\nu_r$ ) utilizadas en los experimentos. Los resultados encontrados son verificados por el modelo en forma cuantitativa, dentro de las incertezas propias de las mediciones. Los valores de  $H_E$  cuando el valor de  $x$  es alto, son menores a los esperados ya que la cantidad de Fe presente en el espaciador granular es elevada. Este resultado indica que pequeñas cantidades de SiO<sub>2</sub> presente en el espaciador son suficientes para suprimir notablemente la interacción entre las diferentes capas.

Las mediciones de magnetización DC realizadas en estas multicapas, muestran un máximo en el campo coercitivo en función del espesor  $t$ . Este máximo se observa para cualquier valor de  $x$  y aparece entre los espesores 2.2 y 4.5 nm. Además estas medidas muestran un doble escalón en el proceso de reversión de la magnetización el cual está presente en las muestras más gruesas y de mayor concentración. El origen de este salto no es claro y es tema de discusión para el futuro.

### 7.1.2. Muestras asimétricas de Fe|Fe-SiO<sub>2</sub>|Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>

Las mediciones de magnetización DC presentan uno o dos escalones en el proceso de reversión de la magnetización dependiendo del valor del espesor  $t$  y la concentración  $x$ . En las muestras donde existen dos saltos, la magnitud del escalón es consistente con el planteo de que la capa de Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> se invierte a campos más bajos que el resto de la multicapa.

Las medidas de FMR muestran dos modos de absorción ( $H_{r1}$  y  $H_{r2}$ ) tanto en banda X como en banda Q. El modo  $H_{r1}$  presenta campos de resonancia cercanos a los encontrados en films simples de Fe, mientras que el modo  $H_{r2}$  tiene campos similares a los esperados para films de Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>. La dependencia del modo  $H_{r1}$  con los parámetros  $t$  y  $x$  verifica que hay un fuerte acople entre la capa de Fe y el espaciador granular, mientras que el Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> está desacoplado o interactúa débilmente con el resto del sistema. Los datos obtenidos con distintas frecuencias de excitación confirman esta hipótesis.

En muestras donde existe acople entre las capas se concluye que el acople es ferromagnético ( $J > 0$ ) y que la magnitud del campo de interacción es menor a  $\sim 300$  Oe. Si bien se pudo estimar el valor de  $H_E$ , éste presenta mucho error debido a la poca influencia que produce la interacción sobre los modos, quedando su efecto enmascarado por la incerteza de otros parámetros. Las muestras con mayor valor de  $x$  o espaciador más delgado son las que presentan un acople mayor que cero.

Uno de los motivos por el que la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  está desacoplada del resto de la multicapa puede ser debido a que se necesitó romper el vacío después de crecer el espaciador granular, en el proceso de fabricación de las muestras, o simplemente debido a que, a diferencia del Fe, el  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  no se acopla en forma efectiva al espaciador granular.

## 7.2. Antiferromagneto sintético y capas granulares

Se estudió el sistema  $\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}$  encontrándose acople antiferromagnético en muestras con espesores del espaciador de Ru dentro del rango de  $0.6 < t_{\text{Ru}} < 1.2$  nm. Para espesores mayores el acople es ferromagnético al menos en el rango estudiado,  $t_{\text{Ru}} < 1.5$  nm.

Las mediciones de magnetización permiten estimar el acople, cuando este es AF y dan información de la simetría de la multicapa. Las mediciones de FMR permiten estimar el campo de interacción  $H_E$  independientemente del signo de  $J$  siendo las medidas bien descritas por el modelo planteado.

Al momento de construir el sistema completo  $\text{Fe-SiO}_2|\text{Co}|\text{Ru}|\text{Co}|\text{Fe-SiO}_2$  a fin de estudiar los efectos de las capas de Co sobre las nanopartículas del film granular, aparecieron complicaciones que no pudimos solucionar. Probablemente relacionados con problemas estructurales en donde el sistema deja de ser simétrico, enmascarando esta asimetría los efectos que tienen las capas continuas de Co sobre el film granular.

## 7.3. Perspectivas

Para finalizar queremos mencionar algunas ideas pendientes que quedan del trabajo presentado. Estas ideas se refieren a como solucionar los inconvenientes encontrados o a la posibilidad de ampliar los resultados de los sistemas estudiados.

En particular la serie de muestras asimétricas de  $\text{Fe}|\text{Fe-SiO}_2|\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  presentan poco acoplamiento entre la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  y el resto de la multicapa. Para dilucidar el origen de este débil acoplamiento sería conveniente crecer este tipo de muestras sin romper el vacío en el proceso de fabricación (situación que no es posible en el sistema de sputtering disponible) o al menos crecer la capa de  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  en la parte inferior de la multicapa a fin de observar si la supresión del acople se debe a impurezas u óxidos instalados en la interfaz al romper el vacío, o simplemente a que el acople  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}|\text{Fe-SiO}_2$  no es tan efectivo como en el caso  $\text{Fe}|\text{Fe-SiO}_2$ .

El estudio detallado de los anchos de línea, la dependencia con la temperatura y de las propiedades de transporte eléctrico en las muestras con espaciador granular son ítems que han quedado pendientes. En particular el análisis del transporte eléctrico en estos sistemas abre una serie de expectativas en cuanto a la influencia del espaciador sobre la corriente eléctrica, ya sea en configuración paralela o perpendicular al plano de la multicapa.

También sería interesante la ampliación del rango de valores de los parámetros  $x$  y  $t$  en estas series de muestras. Tanto para determinar el signo del acople en un rango mayor de valores de estos parámetros como para observar si existen indicativos de los efectos que ejercen las capas continuas sobre las nanopartículas de Fe, particularmente en concentraciones bajas  $x < x_p$ .

Otros sistemas como ser bicapas Granular|FM o FM|Granular pueden resultar de utilidad para verificar con más detalles el modelo expuesto, ya que dependiendo del valor de la magnetización de saturación del ferromagneto continuo se pueden inducir diferentes comportamientos en los modos de absorción de los experimentos de FMR.

La ruptura de la simetría en los sistemas Fe-SiO<sub>2</sub>|Co|Ru|Co|Fe-SiO<sub>2</sub> es un tema abierto sobre el cual hemos intentado diversas soluciones. Como opción, a fin de estudiar posibles efectos inducidos por tensiones, podría intentarse refrigerar el sustrato constantemente durante el proceso de fabricación para evitar el calentamiento de la muestra durante el crecimiento, ya que la dilatación/contracción de la misma durante el calentamiento/enfriado puede llegar a ser una de las causas que genere asimetrías en las muestras durante el proceso de fabricación. Otra alternativa sería desbalancear las capas de Co a fin de compensar las asimetrías generadas al incluir las capas granulares. Otros estudios estructurales complementarios, como ser rayos X o EXAFS, o magnéticos, como XMCD, podrían ayudar a esclarecer el desbalance observado.

# Apéndice A

## Campo demagnetizante y anisotropías

La magnetización de una muestra no sólo responde al campo externo aplicado, sino que también a las distintas anisotropías. A continuación describiremos alguna de ellas.

### A.1. Campo demagnetizante

El campo demagnetizante es un campo cuya magnitud depende de la magnetización  $\mathbf{M}$  y de la forma de la muestra.

¿Dónde se origina este campo interno? Tiene origen o existe debido a que la muestra es de tamaño finito. En el borde, entre el material de magnetización  $M$  y el medio generalmente con  $M = 0$ , hay una discontinuidad responsable de la existencia de este campo.

Si consideramos la inducción magnética junto con la ley de Maxwell

$$\begin{aligned}\mathbf{B} &= \mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M} \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0,\end{aligned}\tag{A.1}$$

observamos que aunque no haya campo externo aplicado existen soluciones no triviales para  $\mathbf{H}$  si  $\nabla \cdot \mathbf{M} \neq 0$ .

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = -4\pi\nabla \cdot \mathbf{M}.\tag{A.2}$$

En el caso que la magnetización del sistema sea uniforme, sólo existe  $\nabla \cdot \mathbf{M} \neq 0$  en la región donde el material se termina (existe una discontinuidad en  $\mathbf{M}$ ). A la solución de  $\mathbf{H}$  que satisface la Ec. A.2 generada por esta discontinuidad se la llama campo demagnetizante o  $\mathbf{H}_d$ .

El caso más sencillo de resolver, es el campo demagnetizante de una esfera uniformemente magnetizada. Donde se obtiene [39]:

$$\mathbf{H}_d = -\frac{4\pi}{3}\mathbf{M}.\tag{A.3}$$

Se encuentra que  $\mathbf{H}_d$  es proporcional a  $-\mathbf{M}$ , y a la constante de proporcionalidad se la llama “*factor demagnetizante*”, que para elipsoides, es un “*tensor demagnetizante*” ( $\underline{\mathbf{N}}$ ).

$$\underline{\mathbf{N}} = \begin{pmatrix} N_x & 0 & 0 \\ 0 & N_y & 0 \\ 0 & 0 & N_z \end{pmatrix}.$$

La complejidad del cálculo del campo demagnetizante aumenta para geometrías diferentes a la esférica, sin embargo existen cálculos analíticos realizados para un elipsoide donde los radios de los diferentes ejes son distintos, sean estos  $a$ ,  $b$  y  $c$ . En el límite, cuando  $b = c \neq a$  y  $a \ll c$ , las componentes de  $\underline{\mathbf{N}}$  tienen los siguientes límites ( $\frac{c}{a} = r$ ):

$$\begin{aligned} N_a &\rightarrow \frac{4\pi r^2}{r^2-1} \left( 1 - \sqrt{\frac{1}{r^2-1}} \sin^{-1}\left(\frac{\sqrt{r^2-1}}{r}\right) \right) \\ N_b &= N_c \rightarrow \frac{\pi^2}{r}, \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

este límite es particularmente interesante ya que en el caso donde  $a \rightarrow 0$ , el elipsoide se aproxima a un plano, obteniéndose un resultado útil para el estudio de films.

$$\begin{aligned} N_a &\rightarrow N_{\perp} = 4\pi \\ N_b = N_c &\rightarrow N_{\parallel} = 0, \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

el tensor demagnetizante del elipsoide se puede diagonalizar y cuenta con la propiedad de que la suma de las componentes diagonales es  $4\pi$  ( $N_x + N_y + N_z = 4\pi$ ) [40].

La densidad de energía asociada a la interacción entre  $\mathbf{H}_d$  y  $\mathbf{M}$  es:

$$E_d = \frac{1}{2} \mathbf{M} \underline{\mathbf{N}} \mathbf{M}.$$

Esta ecuación muestra que no todas las direcciones son equivalentes para  $\mathbf{M}$  y que ésta se encontrará en la dirección que minimize a la energía  $E_d$  (en ausencia de campo magnético exterior y de otras anisotropías). Se puede decir que la forma del sistema impone una anisotropía a la magnetización y usualmente se la llama “*anisotropía de forma*”.

Otros tipos de anisotropías, también pueden definir una dirección a la magnetización. Podemos mencionar a la anisotropía magnetocristalina, la cual es debida principalmente a la interacción espín-órbita y está asociada a la simetría de la red cristalina de la muestra [41]. Las anisotropías generadas por tensiones, inducidas por el sustrato, uniaxiales inducidas por el método de fabricación, son otros ejemplos de anisotropías que influyen en el comportamiento de la magnetización. Estas anisotropías, al igual que la de forma, pueden expresarse como un campo efectivo. Cuando la magnetización tiende a orientarse sobre una dirección se dice que el sistema presenta una anisotropía de *eje fácil*. Si en cambio la magnetización tiende a orientarse con igual probabilidad sobre alguna dirección dentro de un plano, se dice que presenta una anisotropía de *plano fácil* (o *eje difícil*).

## A.2. Anisotropía uniaxial

La forma más simple de anisotropía, y que usualmente existe en films, es la anisotropía uniaxial. Este tipo de anisotropía implica la simetría de rotación de la energía de anisotropía por unidad de volumen ( $f_u$ ) respecto del eje anisotrópico. El valor de  $f_u$  sólo depende del ángulo  $\phi$ , formado entre  $\mathbf{M}$  y la dirección de anisotropía, la cual asumimos contiene a un versor  $\hat{\mathbf{e}}_u$ . Así la expresión de la energía queda definida por la expresión [42]

$$f_u = - \sum_{n=0}^{\infty} K_n \left( \frac{\hat{\mathbf{e}}_u \cdot \mathbf{M}}{|\mathbf{M}|} \right)^{2n} = - \sum_{n=0}^{\infty} K_n \cos^{2n}(\phi), \quad (\text{A.6})$$

las constantes de anisotropía  $K_n$ , tienen unidades de  $\text{erg}/\text{cm}^3$ . La Ec. A.6 a primer orden es suficiente para modelar nuestros resultados experimentales, con lo cual la ecuación  $f_u$  se reduce a

$$f_u \sim -K_0 - K_u \left( \frac{\hat{\mathbf{e}}_u \cdot \mathbf{M}}{|\mathbf{M}|} \right)^2 = A + K_u \sin^2(\phi), \quad (\text{A.7})$$

donde el signo de  $K_u$  define si la anisotropía es de eje fácil o de plano fácil.

Por otra parte, la anisotropía uniaxial puede expresarse en unidades de campo magnético a partir de la fórmula

$$H_u = \frac{2K_u}{M}. \quad (\text{A.8})$$

## A.3. Interacción de intercambio

La existencia de interacción de intercambio entre momentos es isotrópica, no define ninguna dirección preferencial para los momentos en juego. Esta propiedad es interesante ya que muchas veces nanopartículas o films pueden estar separados por distancias muy pequeñas haciendo posible la existencia de interacción de intercambio. Esta afecta a las orientaciones que tienen entre sí las magnetizaciones pero no preferencia una dirección externa al sistema. Este análisis es válido también para films con interacciones de intercambio indirecto, como las tipo RKKY o las mediadas por un espaciador granular. Usualmente el acople se introduce a través de un término bilineal en la energía libre

$$f_e = -J \frac{\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2}{|\mathbf{M}_2||\mathbf{M}_1|}, \quad (\text{A.9})$$

donde  $J$  tiene unidades de  $\text{erg}/\text{cm}^2$  en films, e indica la magnitud del acople.

## Apéndice B

### Tensor susceptibilidad

La expresión del tensor susceptibilidad  $\underline{\chi}$  para dos capas acopladas ferromagnéticamente, en casos en que el campo está aplicado paralelo al plano del film ( $\alpha = 0^\circ$ ) es:

$$\underline{\chi} = \frac{1}{Z} \begin{pmatrix} A_{11} & A_{12} & A_{13} & A_{14} \\ A_{21} & A_{22} & A_{23} & A_{24} \\ A_{31} & A_{32} & A_{33} & A_{34} \\ A_{41} & A_{42} & A_{43} & A_{44} \end{pmatrix} \quad (\text{B.1})$$

Donde las componentes  $A_{ij}$  y la cantidad  $Z$  en función de los parámetros

$$\begin{aligned} a &= \frac{1}{M_1} \left( H + 4\pi M_1 - H_n^{(1)} + \frac{J}{d_1 M_1} - \frac{i\alpha_1 \omega}{\gamma} \right) \\ b &= \frac{1}{M_1} \left[ \frac{i\alpha_1 \omega}{\gamma} - \left( H + \frac{J}{d_1 M_1} \right) \right] \\ c &= -\frac{J}{M_1 M_2 d_1} \\ d &= -\frac{J}{M_1 M_2 d_2} \\ e &= \frac{1}{M_2} \left( H + 4\pi M_2 - H_n^{(2)} + \frac{J}{d_2 M_2} - \frac{i\alpha_2 \omega}{\gamma} \right) \\ f &= \frac{1}{M_2} \left[ \frac{i\alpha_2 \omega}{\gamma} - \left( H + \frac{J}{d_2 M_2} \right) \right] \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

tienen la expresión:

$$\begin{aligned}
 A_{11} &= M_1^2 \gamma^2 [(cd - ae) f M_2^2 \gamma^2 - a \omega^2] \\
 A_{12} &= i M_1 \gamma \omega [M_2 (cd M_1 - ef M_2) \gamma^2 - \omega^2] \\
 A_{13} &= -c M_1 M_2 \gamma^2 [(ae - cd) M_1 M_2 \gamma^2 + \omega^2] \\
 A_{14} &= -ic M_1 M_2 (a M_1 - f M_2) \gamma^3 \omega \\
 A_{21} &= -i M_1 \gamma \omega [M_2 (cd M_1 - ef M_2) \gamma^2 - \omega^2] \\
 A_{22} &= M_1^2 \gamma^2 [e (bf - cd) M_2^2 \gamma^2 + b \omega^2] \\
 A_{23} &= -ic M_1 M_2 (b M_1 - e M_2) \gamma^3 \omega \\
 A_{24} &= c M_1 M_2 \gamma^2 [(cd - bf) M_1 M_2 \gamma^2 - \omega^2] \\
 A_{31} &= -d M_1 M_2 \gamma^2 [(ae - cd) M_1 M_2 \gamma^2 + \omega^2] \\
 A_{32} &= id M_1 M_2 (b M_1 - e M_2) \gamma^3 \omega \\
 A_{33} &= M_2^2 \gamma^2 [b (cd - ae) M_1^2 \gamma^2 - e \omega^2] \\
 A_{34} &= i M_2 \gamma \omega [M_1 (cd M_2 - ab M_1) \gamma^2 - \omega^2] \\
 A_{41} &= id M_1 M_2 (a M_1 - f M_2) \gamma^3 \omega \\
 A_{42} &= d M_1 M_2 \gamma^2 [(cd - bf) M_1 M_2 \gamma^2 - \omega^2] \\
 A_{43} &= -i M_2 \gamma \omega [M_1 (cd M_2 - ab M_1) \gamma^2 - \omega^2] \\
 A_{44} &= -M_2^2 \gamma^2 [a (cd - bf) M_1^2 \gamma^2 - f \omega^2]
 \end{aligned} \tag{B.3}$$

$$Z = (cd - ae)(cd - bf) M_1^2 M_2^2 \gamma^4 + (ab M_1^2 + ef M_2^2 - 2cd M_1 M_2) \gamma^2 \omega^2 + \omega^4. \tag{B.4}$$

## Apéndice C

### Sobre la orientación de la microonda

En los capítulos anteriores se mencionó que en un caso simétrico e independientemente del signo de  $H_E$ , la intensidad del modo óptico debía ser nula, ya que las magnetizaciones transversales se cancelan al oscilar en contra fase.

En una situación experimental, cuando el campo externo estático  $\mathbf{H}$  está paralelo al plano del film, se pueden elegir varias configuraciones para el ángulo de incidencia del campo de radiofrecuencia  $\mathbf{h}$  tal como se ilustra en la Fig. C.1.

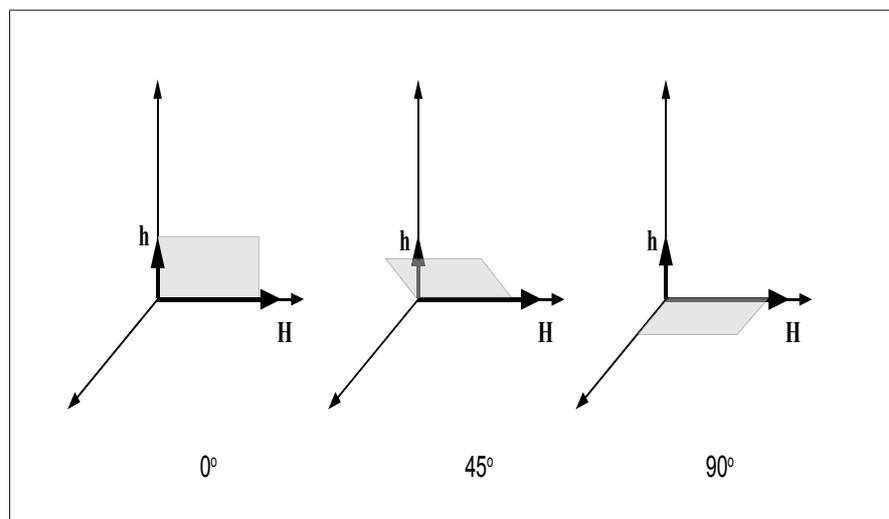


Figura C.1: En el esquema se muestran las distintas configuraciones usadas para observar la influencia de la orientación del campo de radiofrecuencia sobre la intensidad del modo óptico. En todos los casos el campo externo ( $\mathbf{H}$ ) está paralelo al plano del film.

En la Fig. C.2 se muestra como la relación de intensidades entre los modos acústico y óptico  $\frac{I_{ac}}{I_{op}}$  disminuye al aumentar el ángulo de incidencia del campo  $\mathbf{h}$ .

El motivo por el cual disminuye esta cantidad al aumentar el ángulo de incidencia no

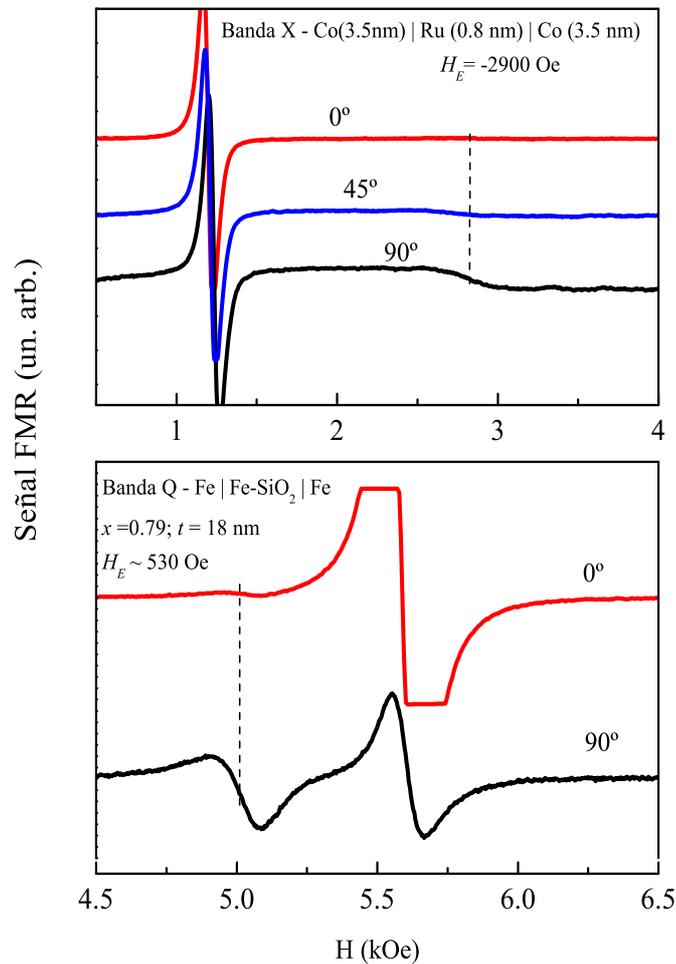


Figura C.2: La intensidad del modo óptico es dependiente de la orientación de la microonda respecto del film. En la figura superior se muestra una situación con acople antiferromagnético y en la inferior otra con acople ferromagnético.

está totalmente claro. Cuando el ángulo es  $0^\circ$ , los efectos de campo demagnetizante mantienen la magnetización transversal dentro del plano del film, mientras que el aumento del ángulo implica que ésta debe salir del plano. El efecto que produce el campo demagnetizante sobre  $\mathbf{m}$  podría no compensar  $\mathbf{m}_1$  respecto de  $\mathbf{m}_2$  con el consecuente aumento en la relación de intensidades. Otra razón puede ser que para ángulos mayores que cero, existan procesos dispersivos que favorezcan la visibilidad del modo óptico frente al acústico.

Si bien ambas sugerencias no han sido estudiadas en profundidad, es claro que en un sistema simétrico se puede favorecer la visibilidad del modo óptico, inclinando la muestra respecto del campo de radiofrecuencia  $\mathbf{h}$  tal como se ilustra en la Fig. C.1 y se observa en las medidas experimentales de la Fig. C.2.

# Bibliografía

- [1] Y. B. Xu, C. A. F. Vaz, A. Hirohata, C. C. Yao, W. Y. Lee, and J. A. C. Bland, F. Rousseaux, E. Cambril, and H. Launois, *J. Appl. Phys.* **85**(8), 6178 (1999).  
J. Vargas, R. D. Zysler, *Nanotech.* **16**, 1474 (2005).  
M.E. Saleta, H.E. Troiani, S. Ribeiro Guevara, R.D. Sánchez, M. Malta, R.M. Torresi, J. Magn. Magn. Mater. **320**, 268 (2008)
- [2] A. Butera, J. N. Zhou and J. A. Barnard, *Phys. Rev. B* **60**, 12270 (1999).
- [3] J. Gómez, A. Butera and J. A. Barnard, *Phys. Rev. B* **70**, 054428 (2004).
- [4] B. Cullity, *Introduction to magnetic materials*. pág. 383, (Addison & Wesley, 1972).
- [5] E. Chudnovsky and J. Tejada, *Macroscopic quantum tunneling of the magnetic moment*. (Cambridge University Press, 1998).
- [6] S. S. P. Parkin, R. Bhadra, and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2152 (1991)
- [7] S. A. Wolf, A. Y. Chtchelkanova, D. M. Treger, *IBM Journal of Research and Development*, **50**(1), Págs: 101-110 (2006).
- [8] A. Butera, *Revista Ciencia Hoy*, **15** (86), pág. 25 (2005).
- [9] P. Grunberg, R. Schreiber and Y. Pang, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2442 (1986).  
M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [10] B. Abeles, P. Sheng, M. Cousts and Y. Arie, *Adv. Phys.* **24**, 407 (1975).
- [11] C. L. Chien, *Annu. Rev. Matter. Sci.* **25**, 129 (1995).
- [12] B. Cullity, *Introduction to magnetic materials*. pág. 300, (Addison & Wesley, 1972).
- [13] J. Rivas, R. D. Sánchez, A. Fondado, C. Izco, A. J. García-Bastida, J. García-Otero, J. Mira, D. Baldomir, A. González, I. Lado, M. A. López Quintela and S. B. Oseroff, *J. Appl. Phys.* **76**, 6564 (1994).  
B. Cullity, *Introduction to magnetic materials*, pág. 387, (Addison & Wesley, 1972).
- [14] B. Cullity, *Introduction to magnetic materials*, págs. 410-418 (Addison & Wesley, 1972).

- [15] J. M. Vargas, *Tesis Doctoral*, Instituto Balseiro, pág. 112 (2007).
- [16] J. L. Dormann, L. Bessaist and D. Fiorani, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **21**, 2015 (1988).  
C. Verdes, B. Ruiz-Diaz, S. M. Thompson, R. W. Chantrell and Al. Stancu, *Phys. Rev. B* **65**, 174417 (2002)
- [17] A. Layadi and J. O. Artman, *J. Magn. Magn. Mater.* **92**, 143 (1990).
- [18] B. Heinrich, S. T. Purcell, J. R. Dutcher, K. B. Urquhart, J. F. Cochran, and A. S. Arrott, *Phys. Rev. B* **38**, 12879 (1988).
- [19] W. J. Gallagher, S. S. P. Parkin, *IBM Journal of Research and Development*, **50**(1), págs: 5-23 (2006).
- [20] J. Z. Sun, *IBM Journal of Research and Development*, **50**(1), págs: 81-100 (2006).
- [21] K. Wasa M. Kitabatake and H. Adachi, *THIN FILM MATERIALS TECHNOLOGY. Sputtering of Compound Materials*, págs. 133-139, (Springer-Verlag GmbH & Co. KG, 2004).
- [22] Guillermo Zampieri, *Modification Characterization and Modeling of surfaces - Lectures Volume 1*, pág. 8, (Edes, 1997).
- [23] J. C. Rojas Sánchez, *Tesis de Maestría en ciencias físicas*, Instituto Balseiro, (2005).
- [24] C. L. Platt, M. R. McCartney, F. T. Parker, and A. E. Berkowitz, *Phys. Rev. B* **61**, 9633 (2000).
- [25] G. J. Strijkers, J. T. Kohlhepp, H. J. M. Swagten, and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1812 (2000).
- [26] J. Camarero, Y. Pennec, J. Vogel, M. Bonfim, S. Pizzini, F. Ernult, F. Fettar, F. García, F. Lançon, L. Billard, B. Dieny, A. Tagliaferri, and N. B. Brookes, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 027201 (2003).  
H. Xi and R. M. White, *Phys. Rev. B* **62**, 3933 (2000).
- [27] A. Butera, J. L. Weston, and J. A. Barnard, *IEEE Trans. Magn.* **38**, 2862 (2002).  
R. Holtz, R. Lubitz, and A. Edelstein, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 943 (1990).
- [28] J. Smit and H. Beljers, *Philips Res. Rep.* **10**, 113 (1955).
- [29] G. N. Kakazei, A. F. Kravets, N. A. Lesnik, M. M. Pereira de Azevedo, Yu. G. Pogorelov and J. B. Sousa. *J. Appl. Phys.* **85**(8), 5654 (1999).
- [30] Z. Zhang, L. Zhou and P. E. Wigen, *Phys. Rev. B.* **50**, 6094 (1994).
- [31] M. Getzlaff, *Fundamentals of magnetism*, pág. 239 (Springer, 2007).

- [32] M. Getzlaff, *Fundamentals of magnetism*, pág. 101, (Springer, 2007).
- [33] U. Netzelmann, *J. Appl. Phys.* **68**, 1800 (1990).
- [34] S. Chikazumi, *Physics of magnetism*, pág. 406, (Krieger, Florida, 1978).
- [35] M. H. Seavey Jr., and P. E. Tannaenwald, *J. Appl. Phys.* **29**, 292 (1958).
- [36] J. Gómez, J.L. Weston and A. Butera, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 239 (2008).
- [37] V. Skumryev, S. Stoyanov, Y. Zhang, G. Hadjipanayis, D. Givord and J. Nogués, *Nature* **423**, 850 (2003).
- [38] J. C. Denardin, A. L. Brandl, M. Knobel, P. Panissod, A. B. Pakhomov, H. Liu, and X. X. Zhang, *Phys. Rev. B* **65**, 064422 (2002).
- [39] B. Cullity, *Introduction to magnetic materials*, pág. 55, (Addison & Wesley, 1972).
- [40] B. Cullity, *Introduction to magnetic materials*, págs. 49-58, (Addison & Wesley, 1972).
- [41] B. Cullity, *Introduction to magnetic materials*, págs. 214 y 266, (Addison & Wesley, 1972).
- [42] G. Bertotti, *Hysteresis in magnetism - For physicists, material scientists and engineers*, pág. 146, Academic Press (1988).

# Trabajos publicados durante el doctorado

## Referentes al trabajo de doctorado

1. “*Magnetic coupling in Fe/Fe-SiO<sub>2</sub>/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> thin films*”.  
J. Gómez, A. Butera and J. Weston.  
*Physica B* **384**, 126-128 (2006).
2. “*Coupling of Fe films through a granular magnetic layer*”.  
J. Gómez, A. Butera and J. Weston.  
*J. Appl. Phys.* **100**, 053908 (2006).
3. “*Ferromagnetic coupled modes in continuous/granular multilayers. Model and experiment*”.  
J. Gómez, A. Butera and J. L. Weston.  
*Phys. Rev. B* **76**, 184416 (2007).
4. “*Angular dependence of the ferromagnetic resonance spectrum in continuous / heterogeneous multilayers*”.  
J. Gómez, A. Butera and J. L. Weston.  
*J. Mag. Magn. Mater.* **320**, e239 (2008).

## Otros trabajos

1. “*Ferromagnetic resonance line width in Co(x)-SiO<sub>2</sub>(1-x) granular films*”.  
J. Gómez, A. Butera.  
*Physica B* **354**, 145-148 (2004).
2. “*Growth and magnetic characterization of epitaxial Fe<sub>81</sub>Ga<sub>19</sub>/MgO (100) thin films*”.  
A. Butera, J. Gómez and J. Weston.  
*J. Appl. Phys.* **98**, 033901 (2005).

3. “*Magnetic anisotropy in Fe<sub>81</sub>Ga<sub>19</sub>/MgO (100) films sputtered at different powers*”.  
A. Butera, J. Gómez, J. A. Barnard, and J. L. Weston.  
*Physica B* **384**, 262-264 (2006).
4. *Improved thermal stabilization of magnetic nanoparticles embedded in a ferromagnetic matrix*”.  
J. M. Vargaz, J. Gómez, A. Butera and R. D. Zysler.  
*Nanotechnology* **18**, 115714 (2007).
5. “*Ferromagnetic Resonance of Disordered FePt Thin Films*”.  
M. Vásquez Mansilla, J. Gómez, and A. Butera.  
*IEEE Trans. Mag.*, (Aceptado para su publicación Marzo 2008)

# Agradecimientos

Quisiera agradecer en primer lugar y de especial manera a mi director, Alejandro, por sus consejos, guía durante el doctorado y su apoyo en mi carrera.

A Carlos Ramos por sus correcciones y contribuciones, a Pablo Levy por las mediciones de EDS, a Guillermo Zampieri y Hugo Ascolani por las mediciones de XPS/AES, a Horacio Troiani por las fotografías de TEM y a Julio Guimpel por su disposición frente a los problemas con la máquina de sputtering.

A CNEA/Conicet por la beca de doctorado.

Recordar a todos los integrantes del laboratorio de resonancias, en especial a los más cercanos: Ettore, Marcelo, Dina y Carlos Rojas.

A la flia de acá y de allá que siempre están, en especial a Silvia y Ana Laura.

A mis amigos y conocidos que siempre recuerdo José, Darío, Pablo, Leticia, Enio.....

A todas estas personas quiero recordar y agradecer por estar presentes de una u otra manera. Gracias!