

Anisotropía magnética y acople magneto-elástico en películas delgadas de Fe1-xGax crecidas epitaxialmente sobre ZnSe/GaAs(001)

Mariana Barturen

▶ To cite this version:

Mariana Barturen. Anisotropía magnética y acople magneto-elástico en películas delgadas de FelxGax crecidas epitaxialmente sobre ZnSe/GaAs(001). Other [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI; Universidad nacional de Cuyo, 2014. Español. NNT: 2014PA066139. tel-01148811

HAL Id: tel-01148811 https://theses.hal.science/tel-01148811

Submitted on 5 May 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

TESIS CARRERA DE DOCTORADO EN FÍSICA

Anisotropía magnética y acople magneto-elástico en películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ crecidas epitaxialmente sobre ZnSe/GaAs(001)

Mariana Barturen Doctorando

Dr. Julián Milano Director Prof. Massimiliano Marangolo Co-director

Junio de 2014

Laboratorio de Resonancias Magnéticas – Centro Atómico Bariloche, Instituto de Nanociencias de París – Universidad de Paris VI, Pierre et Marie Curie

> Instituto Balseiro Universidad Nacional de Cuyo Comisión Nacional de Energía Atómica Argentina

Resumen

En la evolución de la investigación acerca de materiales magnetostrictivos, el descubrimiento de la aleación $Fe_{1-x}Ga_x$ fue un punto donde se alcanzó un compromiso muy conveniente entre los requerimientos de tener elevada magnetostricción a temperatura ambiente (del orden de 10⁴), campos de manipulación bajos (menores a 300 Oe), histéresis pequeña, gran ductilidad y bajo costo (por el hecho de no poseer tierras raras) [1]. Estas características inspiraron gran número de trabajos tanto teóricos como experimentales destinados a entender, entre otras cuestiones, la influencia de la estructura atómica en la magnetostricción.

En esta tesis hemos introducido el estudio de esta aleación crecida como película delgada. Las facilidades del Instituto de Nanociencia de Paris no permitieron contar con *films* crecidos por MBE de espesores nanométricos y monocristalinos.

Nuestro trabajo fue de índole experimental y consistió en realizar una caracterización magnética que incluyó el estudio de las anisotropías magnéticas, los coeficientes de acople-magneto-elástico y los dominios magnéticos. Para este trabajo se utilizaron principalmente las técnicas de resonancia ferromagnética, medición del acople magnetoelástico por deflexión de *cantilever* y microscopía de fuerza magnética.

Las anisotropías se estudiaron en función del espesor, concentración y estructura atómica lográndose una extensiva descripción del sistema. Se observó que los *films* conservan muchas de las característica del material masivo pero al mismo tiempo presentan otras que los hacen diferentes. En particular, se detectó la presencia de una fuerte anisotropía fuera del plano (del orden de diez veces mayor a la anisotropía dentro del plano) que tiene una contribución magnetocristalina, una magneto-elástica y otra de origen desconocido para la cual presentamos la propuesta de una anisotropía en la distribución de los pares de Ga (más pares de Ga fuera del plano que dentro del mismo). Esta última contribución pudo ser modelada proponiendo una adaptación del modelo fenomenológico de Cullen [2]. Como consecuencia de esta anisotropía fuera del plano aparecen, para espesores adecuados, dominios magnéticos en forma de tiras o *stripes* cuya presencia no había sido detectada antes de esta tesis. Estos dominios pueden rotar en la dirección del campo magnético de saturación aplicado. **Palabras clave:** GALFENOL, FEGA, PELÍCULAS DELGADAS, MAGNETOSTRIC-CIÓN, ACOPLE MAGNETO-ELÁSTICO, ANISOTROPÍAS MAGNÉTICAS, STRI-PES

Abstract

In the evolution of research concerning magnetostrictive materials, the discovery of the alloy $Fe_{1-x}Ga_x$ was a point where a very suitable commitment was reached between the requirements of having an elevated magnetostriction at a room temperature (in the order of 10⁴), low fields of manipulation (lower than 300 Oe), small hysteresis, great ductility and low cost (due to the fact of not possessing rare earths) [1]. These characteristics inspired a great amount of publications, both theoretical and experimental destined to understand, among other issues, the influence of the atomic structure in magnetostriction.

In this thesis we have introduced the study of this alloy grown as thin film. The facilities of Institute of Nanoscience of Paris allowed us to count on films of nanometric thicknesses and monocrystalline, grown by MBE.

Our work was of experimental nature and consisted in a magnetic characterization that included the study of magnetic anisotropies, magneto-elastic coupling coefficients and magnetic domains. For this work we principally used three techniques: ferromagnetic resonance, magnetoelastic coupling measurement by deflection of cantilever and magnetic force microscopy.

Anisotropies were studied in function of thickness, concentration and atomic structure, achieving an extensive description of the system. It was observed that the films conserved many of the bulk material characteristics, but at the same time they present some singularities that make them different. Particularly, a strong out of plane anisotropy was detected (ten times larger than the anisotropy inside the plane), which has a magnetocrystalline contribution, a magnetoelastic contribution and another one of unknown origin. To explain this last term which we put forward the hypothesis of an anisotropic distribution of Ga pairs (more Ga pairs out of plane than in plane). This last contribution could be modeled by adapting Cullen's phenomenological model [2]. As a consequence of this out of the plane anisotropy, magnetic domains with stripe pattern appear, for adequate thicknesses. This configuration was firstly detected during this thesis for this system. These domains can rotate in the direction of the saturation applied magnetic field. **Keywords:** GALFENOL, FEGA, THIN FILMS, MAGNETOSTRICTION, MAGNETO-ELASTIC COUPLING, MAGNETIC ANISOTROPIES, STRIPES

Résumé

Au cours de l'évolution des études sur les des matériaux magnétostructifs, la découverte de l'alliage $Fe_{1-x}Ga_x$ fut déterminante car ce composé répond à de nombreuses exigences comme une magnétostriction élevée à température ambiante (de l'ordre de 10^4), des champs coercitifs faibles (inférieurs à 300 Oe), une faible hystérésis, une grande ductilité et un faible coût (contrairement aux matériaux constitués de terres rares)[1]. Ces avantages ont motivé un grand nombre de travaux tant théoriques qu'expérimentaux dans le but de comprendre, entre autres, l'influence de la structure atomique sur la magnétostriction.

Dans cette thèse, je présente l'étude de cet alliage en couche mince. Le savoir faire d'une équipe de l'Institut des nanosciences de Paris dans le domaine de la croissance en couches minces par épitaxie par jet moléculaire (MBE) m'a permis de travailler sur des films monocristallins de $Fe_{1-x}Ga_x$ d'épaisseur nanométrique.

Mon travail, de nature expérimentale, a consisté à réaliser une caractérisation magnétique qui inclut l'étude des anisotropies magnétiques, des coefficients de couplages magnéto-élastiques et des domaines magnétiques. Pour cela j'ai utilisé principalement les techniques de résonance ferromagnétique, de mesure du couplage magnétoélastique par déflexion d'un cantilever et de microscopie à force magnétique (MFM).

Les anisotropies ont été étudiées en fonction de l'épaisseur du film, de la concentration en Gallium et de la structure atomique, donnant lieu à une description très complète du système. On observe que les couches minces de $Fe_{1-x}Ga_x$ conservent une grande partie des caractéristiques du matériau massif mais présentent également des spécificités. En particulier, on mesure une forte anisotropie hors plan (de l'ordre de dix fois supérieure à l'anisotropie dans le plan) à la fois d'origine magnétocristalline et magnétoélastique, et impliquant une autre contribution d'origine inconnue. Pour expliquer cette dernière contribution, nous avons émis l'hypothèse d'une anisotropie dans le plan). Nous avons pu modéliser le phénomène en adaptant le modèle phénoménologique de Cullen [2]. Comme conséquence de cette anisotropie hors plan, des domaines magnétiques en forme de bandes ou *stripes* apparaissent pour des épaisseurs de film supérieures à une épaisseur critique. Ces domaines, mis en évidence pour la première fois par ce travail de thèse, peuvent être retournés dans la direction du champ magnétique appliqué.

Mots clé: GALFENOL, FEGA, COUCHES MINCES, MAGNÉTOSTRICTION, COUPLA-GE MAGNÉTO-ÉLASTIQUE, ANISOTROPIES MAGNÉTIQUES, STRIPES

Índice de contenidos

Re	Resumen			
Al	ostra	ct		v
Ré	ésum	é		vii
Ín	dice	de con	tenidos	ix
In	trod	ucción		1
1.	Pre	sentaci	ión del sistema Fe _{1-x} Ga _x	5
	1.1.	Antece	edentes	6
	1.2. 1.3.	Magne Model	etostricción y acople magneto-elástico en Fe _{1-x} Ga _x masivo os propuestos para explicar el aumento en la magnetostricción	7
	_	tetrage	onal en $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo	10
2.	Técnicas experimentales			13
	2.1.	Resonancia ferromagnética (FMR)		
		2.1.1.	Dispositivo experimental y principio de funcionamiento \ldots .	13
		2.1.2.	Dinámica de la magnetización: ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert	15
		2.1.3.	Efecto de la cavidad resonante	15
		2.1.4.	Forma de línea	16
		2.1.5.	Frecuencia de resonancia y ancho de línea: ecuaciones de Smit-	
			Beljers	18
		2.1.6.	Modificación de los modos de resonancia según la banda elegida	19
		2.1.7.	Determinación de anisotropías magnéticas con medidas de FMR $$	20
		2.1.8.	Cálculo de errores en los parámetros obtenidos	20
	2.2.	Medic	ión del coeficiente de acoplamiento magneto-elástico por el método	
		de def	lexión de <i>cantilever</i>	21
		2.2.1.	Montaje experimental y principios de funcionamiento \ldots .	21
		2.2.2.	Relación entre la curvatura del cristal y el coeficiente de acople	
			magneto-elástico	22

		2.2.3.	Calibración de los fotodetectores	23		
		2.2.4.	Monitoreo de la magnetización mediante un experimento MOKE	23		
		2.2.5.	Cálculo de errores en los parámetros obtenidos	26		
	2.3.	Micros	scopía de fuerza magnética (MFM)	26		
		2.3.1.	Dispositivo experimental y principios de funcionamiento	26		
	2.4.	Disper	rsión resonante magnética de rayos-x (XMRS)	27		
		2.4.1.	Teoría básica de la dispersión magnética resonante de rayos-x $% f(x)=\int dx dx dx$.	27		
		2.4.2.	Espectroscopía de absorción de rayos-x (XAS) y dicroísmo circu-			
			lar magnético de rayos-x (XMCD)	30		
		2.4.3.	Curvas de hamacado	30		
	2.5.	Magne	etómetro de muestra vibrante (VSM)	30		
		2.5.1.	Dispositivo experimental y principio de funcionamiento	31		
	2.6.	Dispos	sitivo superconductor de interferencia cuántica (SQUID)	31		
		2.6.1.	Arreglo experimental y principio de funcionamiento	32		
3.	Mu	Muestras 3				
	3.1.	Muest	ras elaboradas para el estudio de anisotropías magnéticas (capítulo			
		4)				
	3.2.	Muestras elaboradas para el estudio de dominios magnéticos (capítulo 6) 40				
	3.3.	Muestras elaboradas para el estudio de los coeficientes de acople magneto-				
		elástic	o (capítulo 5)	40		
4.	Anisotropías Magnéticas 4					
	4.1.	Introd	ucción	43		
		4.1.1.	Contribuciones a la energía magnética en películas delgadas de			
			espesores nanométricos	44		
			Energía Zeeman	44		
			Factor de forma	45		
			Anisotropía magnetocristalina	45		
			Sistema con simetría cristalina cúbica			
				46		
			Sistema con simetría cristalina tetragonal	. –		
			Anisotropía inducida por tensiones: magneto-elástica	47 48		
			Contribuciones de volumen y superficie	49		
		412	Anisotropía magnética en Fe puro	40		
		1.1.4.	Fe masiyo	10 10		
			Fe crecido en películas delgadas sobre ZnSe	50		
		4.1.3.	Anisotropía magnética en Fe ₁ "Ga, masivo	51		
				~ -		

		4.1.4.	Modelado de la energía libre magnética del sistema	53	
	4.2.	.2. Método experimental		54	
	4.3. Resultados		ados	55	
		4.3.1.	Espectros de FMR y diagramas H_{res} vs. ϕ	55	
		4.3.2.	Anisotropías magnéticas en muestras crecidas sobre $\text{ZnSe}(001)$.	56	
	4.4.	Discus	sión	63	
	4.5.	Conclu	usiones	66	
5.	Mee	Medición de las constantes de acople magneto-elástico			
	5.1.	Introd	ucción	67	
		5.1.1.	Componentes de tensión	68	
		5.1.2.	Componentes de deformación	69	
			Componentes extensionales	69	
			Componentes de corte	70	
		5.1.3.	Relación entre tensión y deformación \hdots	72	
		5.1.4.	Densidad de energía elástica y magneto-elástica $\ . \ . \ . \ .$	72	
		5.1.5.	Relación entre el acople magneto-elástico y la magnetostricción .	73	
		5.1.6.	Diferencias para el acople magneto-elástico en material masivo y películas delgadas	74	
		5.1.7.	Técnicas de medición de la magnetostricción y del acople magneto-	11	
			elástico	75	
		5.1.8.	Cálculos de primeros principios para el estudio de la magnetos- tricción	77	
	5.2.	Métod	lo experimental	79	
	5.3 Besultados y discusión		ados y discusión	80	
	0.01	5.3.1	Medición de Ba	80	
		5.3.2	Medición de B_1	82	
		5.3.3	Extensión de la técnica para muestras de gran tamaño	83	
	5.4.	Conclu		83	
6.	For	maciór	n espontánea de dominios magnéticos en forma de tiras en	n	
	pelí	culas o	$ m delgadas \ de \ Fe_{1-x}Ga_x$	85	
	6.1.	Introd	lucción	85	
	6.2.	Conce	ptos teóricos	86	
		6.2.1.	Energía libre del sistema	86	
		6.2.2.	Clasificación de dominios magnéticos, factor Q	87	
		6.2.3.	Formación de dominios de franjas débiles $Q < 1$	87	
		6.2.4.	Modelo de Muller para la nucleación de <i>stripes</i>	88	
	6.3.	Métod	lo experimental	90	

		6.3.1.	Ciclos de histéresis	90
		6.3.2.	Estudios de microscopía de fuerza magnética (MFM)	90
			En remanencia	90
			Con campo magnético aplicado	90
		6.3.3.	Experimentos de absorción y dispersión de rayos-x	91
			Estudio de las propiedades electrónicas a través de espectrosco-	
			pía de absorción de rayos-x (XAS) y dicroísmo circular	
			magnético (XMCD)	91
			Estudio de la periodicidad y anisotropía rotacional a través de ex-	
			perimentos de dispersión resonante magnética de rayos-	
			$x (XMRS) \dots \dots$	91
	6.4.	Result	ados	91
		6.4.1.	Ciclos de histéresis	91
		6.4.2.	Estudios de microscopía de fuerza magnética (MFM)	94
			En remanencia	94
			Con campo magnético aplicado	99
		6.4.3.	Experimentos de absorción y dispersión de rayos-x	100
			Estudio de las propiedades electrónicas a través de espectrosco-	
			pía de absorción de rayos-x (XAS) y dicroísmo circular	
			magnético (XMCD) $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	100
			Estudio de la periodicidad y anisotropía rotacional a través de ex-	
			perimentos de dispersión resonante magnética de rayos-	
			$x (XMRS) \dots \dots$	100
	6.5.	Conclu	usiones	102
7.	Cor	nclusio	nes y perspectivas	103
A	Mo	delo de	e Cullen para explicar los efectos de los pares Ga-Ga en l	la
	anis	sotropí	a cúbica	107
в.	Elei	mentos	s de elasticidad	111
C.	Ecu	acione	s diferenciales de micromagnetismo y campo efectivo	117
Bi	bliog	grafía		119
Ρı	ıblic	aciones	s asociadas	131

Introducción

Magnetostricción es el fenómeno que describe cuánto se estira un material magnético cuando se le aplica un campo magnético externo. Este fenómeno se cuantifica mediante el coeficiente de magnetostricción $\lambda = \Delta L/L$ que representa el cociente entre la elongación sufrida por la muestra en la dirección del campo aplicado ΔL y la longitud inicial L. Según la simetría del material se necesitarán diferentes cantidades de constantes de magnetostricción para caracterizarlo.

La magnetostricción en material masivo es bien conocida desde sus primeras aplicaciones en transductores para navegación por sonido (SONAR por sus siglas en inglés), durante la Segunda Guerra Mundial. En este caso se utilizaba Ni. Luego se comenzaron a emplear tierras raras y más adelante la combinación de éstas con metales de transición 3d [1, 3]. Finalmente, la búsqueda de materiales con alta magnetostricción a temperatura ambiente y buena ductilidad llevó al descubrimiento, en 1999, de la aleación hierro-galio que será el objeto de estudio en esta tesis.

Cuando el material se crece como película delgada, el hecho de estar adherido a un sustrato hará que no se pueda deformar libremente, razón por la cual en estos casos es más apropiado hablar de acople magneto-elástico (MEC por sus siglas en inglés) que de magnetostricción [4]. El MEC es una constante que describe cómo cambia la anisotropía magnética a causa de una deformación en el material y es proporcional a la magnetostricción. La cantidad de constantes de MEC será igual a la cantidad de constantes de magnetostricción.

Debido a la gran expansión de la nanotecnología en los últimos años, la magnetostricción y el MEC están siendo estudiados nuevamente pero en películas delgadas con el objetivo de manipular sus propiedades magnéticas de las mismas por medios no inductivos. Esta necesidad surge en un contexto en el cual muchos dispositivos utilizados en aplicaciones de espintrónica necesitan controlar la magnetización de delgadas capas de material y para ello utilizan métodos que generan grandes pérdidas de energía. Como ejemplo podemos citar junturas túnel magnéticas utilizadas en las memorias de acceso aleatorio [5] en las cuales el control de la dirección de la magnetización en las capas ferromagnéticas se logra, usualmente, mediante un flujo de corriente a través de una cable o de una línea de transmisión en modo TEM (modo transversal electro-magnético). Otro ejemplo de estos dispositivos son las memorias tipo *racetrack* [6] en las cuales se utilizan corrientes eléctricas polarizadas en espín para mover dominios magnéticos. Recientemente, también se ha vuelto popular la exploración del efecto de *spin-torque* en el cual una corriente polarizada en espín transfiere momento angular a los electrones del material cambiando finalmente la magnetización total [7]. En particular la escritura de información magnética mediante este efecto requiere grandes densidades de corriente lo que conlleva a efectos indeseados de disipación de calor [8].

En este escenario, surge la idea de manejar el orden magnético mediante la aplicación de deformaciones mecánicas a través del MEC, que parece prometedora, en cuanto a la baja disipación de energía. Una implementación de esta idea consiste en el uso de sustratos piezoeléctricos o la adhesión de un *film* a un dispositivo piezoeléctrico, con lo cual la deformación se puede inducir mediante un campo eléctrico. A través de la aplicación de la deformación se pueden modificar diferentes propiedades magnéticas de un ferromagneto, especialmente la anisotropía [9–11]. La modificación de la anisotropía en forma estática puede conducir a la modificación, por ejemplo, de la magnetización de alguna capa magnética en una juntura túnel o en una válvula de espín [12] y en forma dinámica puede ser utilizada para producir ondas de espín [13].

En todos los dispositivos que hemos mencionado, los materiales magnéticos se utilizan en forma de película delgada. Luego, cualquier material con posibilidades de ser funcionalizado en estas aplicaciones deberá ser caracterizado como película delgada en cuanto a su anisotropía magnética y su MEC. Los órdenes de magnitud de estas dos cantidades en FeGa masivo son prometedores pero existe el interrogante de si serán preservados cuando el material se encuentre en la forma de *films* de espesores nanométricos, donde además de cambiar su tamaño éste se encuentra adherido a un sustrato que le impide deformarse libremente. Esta pregunta ha sido la motivación principal de esta tesis donde se han estudiado películas delgadas de Fe_{1-x}Ga_x.

La determinación de estos parámetros no es tarea sencilla. Para la medición de las anisotropías magnéticas en esta tesis hemos utilizado la resonancia ferromagnética que permite detectar constantes de hasta cientos de J/m^3 . Esta tarea se realizó en el laboratorio de Resonancias Magnéticas del Centro Atómico Bariloche utilizando *films* de espesores nanométricos y monocristalinos crecidos en el Instituto de Nanociencia de París. En cuanto al MEC presentamos un estudio realizado mediante el método de deflexión de *cantilever* que provee mediciones directas. Este trabajo se realizó mediante una colaboración con Dirk Sander en el Instituto Max-Planck de Microestructura en Halle, Alemania.

Todo el trabajo de la tesis ha sido de índole experimental. La estructura del trabajo se compone de siete capítulos.

En el capítulo 1 se presentan las características principales del sistema $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo.

En el capítulo 2 se describen las técnicas experimentales utilizadas durante todo el

trabajo. En el capítulo 3 se presentan las muestras utilizadas y sus estudios estructurales, realizados con anterioridad a esta tesis.

En el capítulo 4 se presentan las anisotropías magnéticas de este sistema en función del espesor, concentración y estructura atómica obtenidas a partir de estudios de resonancia ferromagnética.

El capítulo 5 está dedicado a los coeficientes de acople magneto-elástico que fueron medidos mediante la técnica de deflexión de *cantilever*.

En el capítulo 6 se presenta una particularidad del sistema crecido como película delgada, desconocida antes de esta tesis, que es la formación espontánea de dominios magnéticos en forma de franjas o *stripes*.

Por último, en el capítulo 7 resumimos las conclusiones globales del trabajo y presentamos algunas perspectivas para su continuación.

Anticiparemos que los resultados obtenidos son alentadores en cuanto a la utilización de películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ en la fabricación de dispositivos de espintrónica y magnónica.

Capítulo 1

Presentación del sistema $Fe_{1-x}Ga_x$

Cuando se aplica un campo magnético a un ferromagneto éste cambia de forma y dimensión. Este efecto fue identificado por primera vez en 1842 por J. P. Joule [14, 15], y en consecuencia se denomina magnetostricción Joule.



El fenómeno se cuantifica por el coeficiente de magnetostricción λ que representa el cociente entre la elongación sufrida por el material en la dirección del campo aplicado, ΔL y la longitud inicial L (ver figura 1.1):

$$\Lambda = \frac{\Delta L}{L}.$$
 (1.1)

Figura 1.1: Deformación de un material ferromagnético cuando se alinea la magnetización \vec{M} en una dirección determinada.

 λ puede tener distinto signo en distintos materiales y depende fuertemente de la intensidad del campo como de la dirección en la que éste se aplica. También alcanza un valor límite λ_s cuando la magnetización se satura[16]. Para una estructura cúbica existen dos direcciones cristalográficas principales sobre las que se mide la magnetostric-

ción: la [100] y la [111]. Con estas dos mediciones, λ_{100} (magnetostricción tetragonal) y λ_{111} (magnetostricción romboédrica) se puede caracterizar la magnetostricción de todo el sistema.

Un concepto que necesitamos definir para continuar esta discusión es el de anisotropía magnética. Esta magnitud cuantifica la dependencia espacial de las propiedades magnéticas de un material. En un dado material pueden existir anisotropías magnéticas de distintos orígenes (ver capítulo 4), en particular, la anisotropía magnetocristalina, presente en la aleaciones que citaremos a continuación, refleja cómo se ve afectada la magnetización por la simetría cristalina del sistema.

En lo que sigue describiremos la evolución de los materiales magnetostrictivos hasta llegar a las aleaciones $Fe_{1-x}Ga_x$ que serán el objeto de estudio de esta tesis. Luego nos introduciremos en el mundo del $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo contando los principales hallazgos experimentales junto con las teorías postuladas hasta el momento para explicarlos.

1.1. Antecedentes

Los primeros desarrollos de materiales magnetostrictivos se dieron durante la Segunda Guerra Mundial cuando las aleaciones basadas en Ni, uno de los tres metales de transición con propiedades ferromagnéticas (los otros dos son el Fe y el Co), eran ampliamente utilizadas en la fabricación de transductores para aplicaciones de navegación por sonido (SONAR por sus siglas en inglés). Estas aleaciones presentaban una magnetostricción de alrededor de 50 ppm. Alrededor de 1960 algunas tierras raras como el Tb o Dy demostraron tener extraordinarias propiedades magnetostrictivas [17, 18] $(3/2\lambda_s \sim$ 10000 ppm) pero sólo a bajas temperaturas ya que poseen una baja temperatura de Curie (menor a 250 K). Debido a que en los metales de transición 3d las temperaturas de Curie son altas se ensayaron aleaciones de éstos con tierras raras en un intento por lograr materiales con alta magnetostricción a temperatura ambiente. Es así como se descubrieron las aleaciones TbFe₂ y DyFe₂ que exhiben una magnetostricción de 2630 ppm y 650 ppm respectivamente, a temperatura ambiente [19]. Estas dos aleaciones poseen una gran anisotropía magnetocristalina y en consecuencia se requieren grandes campos magnéticos para llevarlas a saturación. Sin embargo, añadiendo Tb y Dy en las proporciones correctas [20] esta anisotropía se puede reducir considerablemente. Esto llevó al desarrollo de la aleación $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_{1.95}$ (conocida comercialmente con el nombre terfenol-D) por parte de investigadores del Naval Ordinance Laboratory que exhibe magnetostricción gigante a temperatura ambiente (~ 2000 ppm) y tiene una anisotropía magnetocristalina mucho menor que las aleaciones anteriores [20]. Uno de los inconvenientes del terfenol-D es su fragilidad, la cual lo hace muy poco resistente a impactos y esfuerzos mecánicos.

El intento de superar estas limitaciones del terfenol llevó al descubrimiento en 1999 de la aleación Fe-Ga capaz de soportar grandes tensiones (~ 500 MPa) [21, 22]. La aleación para una concentración particular de x=0,184 recibió el nombre de galfenol y fue patentada por el Naval Surface Warfare Center, Carderock Division (NSWC-CD). Aunque su magnetostricción resulta menor que las de las aleaciones anteriores, algunas de sus propiedades como la elevada magnetostricción a campos bajos (H_{sat} <250 Oe), gran permeabilidad, baja histéresis, ductilidad, resistencia a impactos, y la posibilidad de ser soldados hicieron que este material expandiera ampliamente la utilización de los materiales magnetostrictivos formando parte de sensores y actuadores.

1.2. Magnetostricción y acople magneto-elástico en $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo

El comportamiento del galfenol con la concentración x es conocido para muestras de material masivo. En 2003 Clark *et al.*[23], presentaron mediciones de la magnetostricción y constantes elásticas para monocristales de Fe_{1-x}Ga_x. Uno de sus objetivos era investigar el efecto de la historia térmica en estas propiedades, razón por la cual prepararon dos grupos de muestras con distinto tratamiento térmico. El tratamiento consistió en el recocido de las muestras a 1000°C siguiendo por un enfriamiento lento a 10°C/min o un enfriamiento rápido(*quenching*). Las constantes de magnetostricción $3/2\lambda_{100}$ y $3/2\lambda_{111}$ fueron medidas usando técnicas de *strain gauge*.



Figura 1.2: $(3/2)\lambda_{100}$ y $(3/2)\lambda_{111}$ en función de la concentración de Ga en Fe_{100-x}Ga_x masivo. Extraído de la referencia [23].

Los resultados para la magnetostricción tetragonal, λ_{100} , se muestran en la figura 1.2. Para el grupo con enfriamiento lento (*furnace cooled*), se pueden observar dos máximos alrededor de $x \sim 0, 17$ y $x \sim 0, 27$ y una fuerte supresión entre ellos. Para las muestras *quencheadas* λ_{100} aumenta su valor y el primer pico se desplaza a una concentración levemente mayor $x \sim 0, 19$.

 λ_{111} exhibe un cambio de signo para una concentración de $x \sim 0, 18$. La región de concentraciones pequeñas (x < 0, 20) presenta una pendiente completamente diferente que la región de concentraciones altas (x > 0, 20).



Figura 1.3: Estructuras atómicas A2, B2, D0₃, L1₂ y DO₁₉ para la aleación Fe-Ga. Figura extraída de la referencia [24].

Desde el punto de vista de la estructura atómica, el galfenol posee un complejo diagrama de fases [25]. Mientras más átomos de Ga se introducen en la aleación, más fases estructurales aparecen como la A2 , la B2 , la DO₃, la L1₂ y la DO₁₉ (ver figura 1.3). En particular describiremos el comportamiento para $0 \le x \le 0, 30$ porque éste es el rango de concentraciones que hemos estudiado en esta tesis. Las fases que aparecen para estas concentraciones son la A2, B2 y DO₃. La A2 es una red bcc de hierro α -Fe con átomos de Ga

distribuidos al azar. Tanto la fase B2 como la DO₃ son redes bcc de Fe en las cuales podemos encontrara pares de Ga: en la B2 estos pares se forman a segundos vecinos, a lo largo de la familia de direcciones $\langle 100 \rangle$ y en la DO₃ se forman a cuartos vecinos a lo largo de la familia de direcciones $\langle 101 \rangle$. Para concentraciones anteriores al primer máximo en λ_{100} , que definiremos como zona 1, se ha identificado principalmente la fase A2. Luego de este primer máximo y antes del mínimo en $x \simeq 0, 23$, zona de concentraciones que llamaremos zona 2, se encuentra una mayoritariamente una mezcla de fases DO₃ y A2. Cuando se analiza el resultado del *quencheado* en las muestras se observa que el principal efecto es el de reducir la tasa de crecimiento de *clusters* de alta concentración de galio, para dar lugar a la estructura DO₃ que presenta un orden de largo alcance en la distribución de los átomos de Ga [26]. En la región de transición entre la zona 1 y la zona 2, los *clusters* recién mencionados tienen simetría DO₃ para las muestras enfriadas lentamente mientras que para muestras *quencheadas* se encuentra también la simetría B2.

Todas las estructuras que aparecen en el material masivo son cúbicas. Los parámetros de red de la red bcc se han estudiado en la referencia [27] obteniéndose los resultados que se muestran en la figura 1.4.

En oposición a este escenario, en nuestras películas delgadas hemos identificado la B2 y no la DO₃, como así también una distorsión tetragonal que crece con la concentración de galio (ver capítulo 3).

Las constantes de acople magneto-elástico cuantifican el cambio en la anisotropía magnética a causa de una deformación inducida en la muestra. Se relacionan con la magnetostricción, en el caso de una simetría cúbica, según las ecuaciones:

$$\lambda_{100} = -\frac{2}{3} \frac{B_1}{c_{11} - c_{12}}, \quad \lambda_{111} = -\frac{1}{3} \frac{B_2}{c_{44}} \tag{1.2}$$

donde B_1 y B_2 son las constantes de acople magneto-elástico y c_{ij} son las constantes



Figura 1.4: Parámetro de red de la red bcc de la aleación $Fe_{100-x}Ga_x$ a temperatura ambiente, extraído de las referencias [27] (círculos macizos) y [28] (círculos vacíos). Figura extraída de la referencia [27].

elásticas del material. Estas ecuaciones serán desarrolladas en detalle en el capítulo 5.

En su trabajo, Clark *et al.* [23] también midieron las constantes elásticas de las muestras y usando la ecuación que relaciona (1.2) calcularon los coeficientes de acople magneto-elástico que se muestran en las tablas 1.1.

		0	2
	$(c_{11} - c_{12})/2[\text{GPa}]$	$3/2\lambda_{100} \ [\times 10^{-6}]$	$B_1 \; [{ m MJ/m^3}]$
x = 0,000	48	30	-2,9
x = 0,058	40	79	-6,3
x = 0,132	28	210	-11,8
x = 0,170	21	311	-13,1
x = 0,187	19,7	395	-15,6
x = 0,241	9,4	270	-5,1
x = 0,272	$6,\!8$	350	-4,8
	$c_{44}[\text{GPa}]$	$3/2\lambda_{111} \ [\times 10^{-6}]$	$B_2 \; [{ m MJ/m^3}]$
x = 0,000	116	-32	$7,\!4$
x = 0,086	119	-27	6,4
x = 0,132	~ 119	-24	5,7
x = 0,2088	~ 120	-42	-10,1
x = 0,2863	~ 120	-61	-14,6

Tabla 1.1: Coeficientes de acople magneto-elástico B_1 y B_2 y constantes elásticas a temperatura ambiente para $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo. Extraído de la referencia [23].

1.3. Modelos propuestos para explicar el aumento en la magnetostricción tetragonal en $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo

Diferentes teorías tratan de explicar la influencia de la adición de Ga en el incremento de la magnetostricción del galfenol en comparación con el Fe puro.

Para tratar de resolver esta pregunta, uno de los primeros intentos fue el de correlacionar la magnetostricción con las fases estructurales.

Cerca del primer máximo de magnetostricción, las fases que juegan el rol principal son la A2, la DO₃ y la B2 [29]. Por lo cual, los primeros cálculos teóricos se dedicaron a entender la contribución magnetostrictiva dada por cristales perfectos de cada fase. Estos estudios iniciales, realizados con técnicas de primeros principios encontraron que la fase B2 es la que origina la mayor λ_{100} [24].

Algunos años después, comenzó a aparecer evidencia acerca de la existencia de nanoprecipitados [25, 30] y una nueva teoría que incluye nanocristales fue presentada. Este modelo se basa en la idea de que el tratamiento térmico produce un estado química y estructuralmente heterogéneo que consiste de precipitados nanométricos de la fase DO₃ insertos en la matriz de A2, que resisten a la cohesión. Teóricamente se predijo que esta inhomogeneidad resulta de la siguiente secuencia de transformaciones: (i)descomposición $bcc \rightarrow bcc' + DO_3$, seguida de (ii) una deformación de Bain no difusiva que transforma los nanoprecipitados de DO₃ en una estructura tetragonal centrada en la caras (fct) similar a la fase L12. Luego se propone que la gran magnetostricción y la reducción de las constantes elásticas de estas aleaciones pueden ser causadas o bien por la deformación macroscópica que se origina cuando se aplica una campo magnético a raíz de una transformación displaciva confinada o por la reorientación, inducida por tensión, de microdominios tetragonales que se forman debido a la mencionada heterogeneidad en composición [31–33].

En este contexto, nuevos estudios de primeros principios se realizaron para *clusters* de B2 o DO₃ inmersos en una matriz de Fe bcc. En este caso los resultados mostraron una λ_{100} muy baja y negativa para la fase B2, en oposición a los resultados de los estudios para el caso del cristal puro de B2 [34]. Esto muestra cuán sensible es esta cantidad al ordenamiento atómico.

Desde el punto de vista experimental, la presencia de nanoclusters fue confirmada por numerosos experimentos [26, 35, 36]. Investigaciones de dispersión de neutrones a bajo ángulo demostraron que los momentos en el interior y alrededor de los *clusters* se reorientan cuando se aplica un campo magnético o una deformación mecánica [35]. Pero más tarde, mediciones de dispersión difusa de rayos-x [36] no pudieron mostrar evidencia de un alineamiento de los nanoprecipitados con un campo magnético externo, imponiendo un límite a esta teoría.

Estudios recientes de primeros principios para $Fe_{1-x}Ga_x$ y aleaciones relacionadas reprodujeron satisfactoriamente los resultados experimentales [37–39], indicando que los cambios producidos en la estructura electrónica intrínseca juegan un papel esencial. En particular, un trabajo clarificador en este sentido fue presentado por Zhang *et al.* en 2010 [39]. En este trabajo se posicionaron átomos de Fe y Ga en redes bcc en superceldas de 16 o 54 átomos para simular aleaciones con distinto contenido de Ga. Para las concentraciones que permitían varias configuraciones no equivalentes, se estudiaron todas las distribuciones posibles y se calcularon los coeficientes magnetostrictivos con la estructura más adecuada en cuanto a la minimización de energía. Esto significa que a diferencia de los trabajos anteriores, aquí no se partió de una fase estructural específica sino que los átomos de Ga se iban acomodando en las posiciones más convenientes de las superceldas. La figura 1.5 muestra los resultados.



Figura 1.5: Constante de magnetostricción tetragonal, $3/2\lambda_{001}$ en función del contenido de Ga. Los círculos representan los datos experimentales tomados a temperatura ambiente y los cuadrados los datos calculados a 0 K. También se muestran las configuraciones atómicas utilizadas para cada concentración. Los átomos de Fe se representan con esferas azules y los de Ga con esferas rojas. Extraído de la referencia [39].

En un trabajo reciente de este tipo de cálculo [40] se lograron contabilizar los pares de Ga correspondientes a la estructura B2 y DO_3 que se forman en este tipo de estructura llegando a la conclusión de que es mucho mayor el número de pares de la estructura DO_3 .

Más detalles acerca de cómo se calculan los coeficientes de magnetostricción en los cálculos de primeros principios, y del análisis de la influencia del Ga en la estructura electrónica se presentan en el capítulo 5.

Capítulo 2

Técnicas experimentales

2.1. Resonancia ferromagnética (FMR)

Las constantes de anisotropía magnética son magnitudes que cuantifican la dependencia espacial de la propiedades magnéticas de un material. En esta tesis hemos utilizado la técnica de resonancia ferromagnética para la determinación de estas constantes en nuestras películas delgadas.

Esta técnica permite detectar anisotropías de hasta cientos de J/m³. El equipo utilizado fue un espectrómetro Bruker ESP-300 localizado en el Laboratorio de Resonancias Magnéticas de Centro Atómico Bariloche, en la ciudad de Bariloche, Río Negro, Argentina.

2.1.1. Dispositivo experimental y principio de funcionamiento

En un experimento típico de FMR una muestra es sometida a un campo magnético uniforme \vec{H}_0 y, al mismo tiempo, a una onda electromagnética con frecuencia en el rango de las microondas y vector de propagación perpendicular a la dirección de \vec{H}_0 .

El esquema experimental se muestra en la figura 2.1. La microonda viaja por una guía de onda hasta la cavidad resonante donde encuentra la muestra. En nuestro caso, la intensidad de \vec{H}_0 es variable y la frecuencia de la microonda f_0 es fija.

En el tipo de mediciones que nosotros realizamos, \vec{H}_0 es suficientemente intenso como para que la magnetización \vec{M} se alinee en su dirección. La microonda añade un campo pequeño alterno perpendicular a \vec{H}_0 , que ejercerá un torque sobre \vec{M} , de manera que ésta precese alrededor de la dirección de \vec{H}_0 (ver figura 2.2). La frecuencia de precesión f dependerá, entre otras variables, de la intensidad de \vec{H}_0 , como se explicará más adelante. Normalmente, la muestra absorberá una cantidad mínima de la energía de onda electromagnética salvo que su frecuencia de precesión f coincida con la de la microonda f_0 . En este caso se producirá lo que llamamos resonancia, los momentos magnéticos precesarán alrededor de \vec{H}_0 con mayor amplitud y la absorción de energía



Figura 2.1: a) Foto de la configuración para estudios de resonancia ferromagnética. b) Esquema representativo donde se marca el camino de la onda electromagnética.

por parte de la muestra será mucho mayor que fuera de esta condición.

Luego, una medición convencional consiste en variar $\dot{H_0}$, y sensar la absorción de la microonda para identificar el campo de resonancia \vec{H}_{res} . Si las propiedades magnéticas del material varían en las distintas direcciones cristalográficas, también lo hará \vec{H}_{res} . Esta variación nos permitirá cuantificar las constantes de anisotropía magnética.

Para sensar la absorción se utiliza un diodo detector colocado en el camino de la microonda, después de incidir sobre la muestra (ver figura 2.1). En general, los dispositivos utilizan técnicas de lock-in para la detección de la absorción. Por esta razón, sobre el campo $\vec{H_0}$ se monta una pequeña señal alterna, denominada señal de modulación, para posibilitar el uso de estos dispositivos. En consecuencia, lo que en realidad se captura, es la derivada de la señal de absorción.

2.1.2. Dinámica de la magnetización: ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert

La dinámica de la magnetización es descripta por la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert [41]:

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = \underbrace{-\gamma(\vec{M} \times \vec{H}_{eff})}_{\text{Término de precesión}} + \underbrace{\frac{\alpha}{M} \vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t}}_{\text{Término de amortiguamiento}}$$
(2.1)



de los dos términos de

la ecuación de Landau-

Figura 2.2:

Gilbert-Lifshitz.

donde $\gamma = g\mu_B/\hbar$ es el factor giromagnético y su expresión está dada por g que es el factor de desdoblamiento espectroscópico y μ_b que es el magnetón de Bohr. $\gamma \simeq$ $1.9 \times 10^7 \text{ Hz/Oe}$ para g = 2, que es valor que corresponde a un electrón libre. α es el parámetro de amortiguamiento de Gilbert y es adimensional. $\alpha = G/\gamma M \ll 1$, donde G es el parámetro de amortiguamiento del material y en hierro es $G \simeq 6 \times 10^7 \text{ Hz}$ [41]. \vec{H}_{eff} es el campo efectivo actuando sobre la muestra, es decir, la suma de \vec{H}_0 más todos los campos de anisotropías.

El primer término de esta ecuación dará la precesión de la magnetización y el segundo representa su amortiguamiento como se muestra en la figura 2.2.

2.1.3. Efecto de la cavidad resonante

Efectos

Como se explicó en párrafos anteriores, en un experimento de FMR la muestra es montada en un circuito de microondas dotado de una cavidad resonante. La cavidad puede ser asimilada a un circuito RLC con impedancia $Z = R + i(\omega_0 L - 1/\omega_0 C)$ donde R, L y C son respectivamente la resistencia, la inductancia y la capacitancia equivalentes y $\omega_0 = 2\pi f_0$. Si consideramos que no todo el volumen de la cavidad está ocupado por la muestra, la inductancia de este circuito puede ser escrita como:

$$L = L_0[(1 - \eta) + \eta(1 + 4\pi\chi)] = L_0(1 + 4\pi\eta\chi)$$
(2.2)

donde L_0 es la inductancia de la cavidad vacía, $(1 + 4\pi\chi)$ es la permeabilidad de la muestra y η es el factor de llenado ($0 \le \eta \le 1$). Considerando que la frecuencia de resonancia del circuito (fuera de la condición de resonancia magnética) es $\omega_r^c = 1/(L_0 C)^{1/2}$, y poniendo $\chi = \chi^{Re} - i\chi^{Im}$ se obtiene:

$$Z = \underbrace{R + 4\pi\eta\omega_0 L_0\chi^{Im}}_{\text{Contribución}} + i \underbrace{\left[4\pi\eta\omega_0 L_0\chi^{Re} + \frac{L_0}{\omega_0}(\omega_0^2 - \omega_r^{c2})\right]}_{\text{Contribución}}$$
(2.3)

La parte real de Z da el término resistivo y fija la disipación de energía, la parte imaginaria representa el término reactivo. Obsérvese que el término reactivo produce corrimientos de la frecuencia de la cavidad respecto del valor ω_r^c . Los espectrómetros actualmente tienen distintos métodos para anular estos efectos ubicando a la cavidad en algún tipo de circuito puente y estabilizando la frecuencia del generador de microondas en $\omega_r^c = \omega_0$.

Cuando la frecuencia excitadora ω_0 se iguala a ω_r^c la impedancia en resonancia Z_r resulta:

$$Z_r = R(1 + 4\pi\eta Q\chi^{Im}) + i(4\pi\eta L_0\chi^{Re})$$
(2.4)

donde $Q = \omega_0 L_0/R$, es el factor de calidad del circuito. Esta ecuación muestra como el uso de una cavidad resonante magnifica el efecto de χ^{Im} a través del factor Q.

2.1.4. Forma de línea

En esta sección trataremos de dilucidar qué forma tiene el espectro de absorción en función de \vec{H}_0 . Como lo muestra la ecuación (2.4), la disipación de energía, estará determinada principalmente por χ^{Im} . Luego, en los párrafos siguientes, calcularemos la susceptibilidad magnética para el caso ilustrativo de una muestra de material masivo, isotrópica, con el objetivo de deducir su dependencia con \vec{H}_0 .

El caso de estudio se presenta en la figura 2.3. $\vec{H_0}$ se aplica en la dirección y y la microonda añade una perturbación \vec{h} perpendicular a $\vec{H_0}$. El campo total estará dado por $\vec{H}(t) = \vec{H_0} + \vec{h}e^{iwt}$ con $\vec{h} \perp \vec{H_0}$, donde $|\vec{h}| \ll |\vec{H_0}|$. Con esta configuración, la magnetización precesará alrededor del eje y. En este contexto se propone como solución de la ecuación (2.1) una magnetización de la forma:

$$\vec{M}(t) = \vec{M}_0 + \vec{m}e^{iwt} \quad \text{con} \quad \vec{m} \perp \vec{M}_0$$
(2.5)

donde y $|\vec{m}| \ll |\vec{M}_0|$. $|\vec{M}_0| = M_0$ es la magnetización de saturación y $|\vec{H}_0| = H_0$ es el campo uniforme aplicado.



Figura 2.3: Ilustración de los campos magnéticos típicos de un experimento de FMR. \vec{H}_0 es el campo externo uniforme y \vec{h} es el campo de la microonda perpendicular a \vec{H}_0 . La magnetización M precesará alrededor del eje de \vec{H}_0 . Figura extraída de [42].

Para resolver la ecuación (2.1) tomaremos $\vec{H}_0 = \vec{H}_{eff}$ para este caso ilustrativo, pero en los casos reales habrá que sumar a \vec{H}_0 los campos demagnetizantes, de anisotropías, etc, para obtener \vec{H}_{eff} . Para el caso de la figura 2.3 $\vec{H}(t) = (h_x e^{iwt}, H_0, h_z e^{iwt})$ y $\vec{M}(t) = (m_x e^{iwt}, M_0, m_z e^{iwt})$. Reemplazando estas expresiones en la ecuación (2.1) y linealizando en h_x , h_z , m_x y m_z , es decir, desechando los términos con productos cruzados de estas cantidades, obtenemos el sistema de ecuaciones:

$$iw \begin{pmatrix} m_x \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -M_0 \gamma \\ M_0 \gamma & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} h_x \\ h_z \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & -(\gamma H_0 + i\alpha\omega) \\ (\gamma H_0 + i\alpha\omega) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_x \\ m_z \end{pmatrix}$$
(2.6)

Este sistema es resoluble y su solución se puede reacomodar de la forma $\vec{m} = (\chi^{Re} + i\chi^{Im})\vec{h}$, siendo χ^{Re} y χ^{Im} tensores antisimétricos de dimensión 2×2. Como ejemplo analizaremos la componente xx de cada tensor. Éstas resultan, luego de despreciar los términos en $\alpha^2 \omega^2$:

$$\chi_{xx}^{Re} = \frac{\gamma^2 M_0 H_0 \left[(\gamma H_0)^2 - \omega^2 \right]}{\left[(\gamma H_0)^2 + \omega^2 \right]^2 - (2\omega\gamma H_0)^2}; \quad \chi_{xx}^{Im} = -\frac{\alpha\gamma\omega M_0 \left[(\gamma H_0)^2 + \omega^2 \right]}{\left[(\gamma H_0)^2 + \omega^2 \right]^2 - (2\omega\gamma H_0)^2}; \quad (2.7)$$



Figura 2.4: χ_{xx}^{Re} y χ_{xx}^{Im} normalizadas, en función de H_0 . Se calcularon utilizando los parámetros $\gamma = 1.84 \times 10^{11} \text{Hz}/\text{Oe}, \ \omega = 2\pi 23.9 \text{ GHz} \text{ y } \alpha = 1.9 \times 10^{-10}.$

La figura 2.4 muestra estas dos cantidades en función del campo H_0 calculadas con los parámetros $\gamma = 1.84 \times 10^{11} \text{ Hz/Oe}$, $\omega = 2\pi \times 23.9 \text{ GHz y } \alpha = 1.9 \times 10^{-10}$ que son muy cercanos a los que luego utilizaremos para nuestras mediciones. Se puede observar que χ_{xx}^{Im} , que es la cantidad relacionada a la absorción de energía por parte de la muestra, tiene una forma similar a la de una Lorentziana, para los parámetros utilizados.



Como se explicó anteriormente, lo que en realidad se mide es la derivada de la señal de absorción, por lo tanto, en general detectaremos espectros con una forma similar a la derivada de una Lorentziana como se muestra en la figura 2.5.

Figura 2.5: Espectro típico de FMR para una película delgada de $Fe_{0,86}Ga_{0,14}/ZnSe(001)$ de 36nm de espesor.

2.1.5. Frecuencia de resonancia y ancho de línea: ecuaciones de Smit-Beljers

Las ecuaciones de Smit-Beljers [43] ofrecen una manera sencilla de calcular la frecuencia de resonancia de un sistema y el ancho de línea. Se obtienen al aplicar la teoría perturbativa a la energía libre y al linealizar la ecuación de Landau-Lifshitz-Gilbert (2.1) como se explica a continuación.

Reemplazando en el lado derecho de la ecuación (2.1) $\frac{\partial \vec{M}}{\partial t}$ por $-\gamma(\vec{M} \times \vec{H}_{eff}) + \frac{\alpha}{M}\vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t}$ y conservando sólo términos lineales en α , se obtiene, luego de reordenar términos:

$$\frac{\partial M}{\partial t} \simeq -\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{eff} - \frac{\gamma \alpha}{M} [\vec{M}(\vec{M}.\vec{H_{eff}}) - \vec{H}_{eff}M^2].$$
(2.8)

 \vec{H}_{eff} se puede obtener como $\vec{H}_{eff} = \nabla_{\vec{M}} U$ donde U es la energía libre del sistema. En resonancia ferromagnética $|\vec{M}|$ =cte y por lo tanto convendrá escribir U y \vec{M} en coordenadas esféricas. Como U será función sólo de variables angulares, se la puede desarrollar en serie alrededor de los ángulos de equilibrio ϕ_{eq} y θ_{eq} . Este procedimiento más la suposición de una dependencia temporal de la forma e^{iwt} para la magnetización conduce a las ecuaciones de Smit-Beljers que dan la frecuencia de resonancia f y el ancho de la absorción Δf :

$$f = \left[\frac{1}{2\pi M_s \mathrm{sen}\theta} \sqrt{\left(U_{\phi\phi}U_{\theta\theta} - U_{\phi\theta}^2\right)}\right]\Big|_{\phi_{eq},\theta_{eq}}$$

$$\Delta f = \left[\frac{\alpha\gamma}{2\pi M_s} \left(U_{\theta\theta} + U_{\phi\phi}\frac{1}{\mathrm{sen}^{2}\theta}\right)\right]\Big|_{\phi_{eq},\theta_{eq}}$$
(2.9)

donde U_{ij} es la derivada segunda de U con respecto a i y a j. Mediante estas ecuaciones podemos ver que f depende del campo aplicado a través de las derivadas de la energía libre.

2.1.6. Modificación de los modos de resonancia según la banda elegida



Figura 2.6: Sistema de referencia para los experimentos de resonancia ferromagnética.

La frecuencia de la microonda incidente f_0 se mantiene fija durante los experimentos. En el laboratorio contamos con distintas guías de onda y cavidades de manera que podemos elegir entre cuatro frecuencias diferentes. Cuando trabajamos con una determinada frecuencia se dice que nos posicionamos en una determinada *banda*. Las bandas más comúnmente utilizadas son banda-X ($f_0 \sim 9$ GHZ), banda-K ($f_0 \sim 24$ GHZ) y banda-Q ($f_0 \sim 33$ GHZ).

El objetivo de esta sección es ejemplificar cómo varía el campo de resonancia de la muestra según

la banda elegida. Para esto desarrollaremos el caso sencillo de una película delgada con anisotropía de plano fácil, es decir donde la magnetización prefiere estar dentro del plano de la muestra, que fuera del mismo. El sistema de referencia elegido se muestra en la figura 2.6, el plano de la muestra es el plano xz y el campo \vec{H} se encuentra en el plano xy. En estas condiciones, considerando las contribuciones Zeeman y de campo demagnetizante (ver capítulo 4), la energía libre se escribe como:

$$U = -MH \operatorname{sen}\theta \cos(\phi - \phi_H) + 2\pi M^2 \operatorname{sen}^2\theta \operatorname{sen}^2\phi$$
(2.10)

Minimizando esta energía se pueden hallar los ángulos de equilibrio ϕ_{eq} y θ_{eq} . Éstos se calcularon para dos configuraciones: $\phi_H = 0$ y $\phi_H = \pi/2$. Luego se utilizan las ecuaciones de Smit-Beljers evaluadas en los ángulos de equilibrio para despejar la relación de dispersión, ω en función del campo.

El resultado se presenta en la figura 2.7. Se muestra ω/γ pero γ es una constante, por lo cual la forma de la relación de dispersión no se ve afectada. Se muestran dos líneas de dispersión, una para $\phi_H = \pi/2$ y otra para $\phi_H = 0$. Se puede



Figura 2.7: Relación de dispersión para el caso de un film delgado con anisotropía de plano fácil. Se muestran dos líneas de dispersión, una para $\phi_H = \pi/2$ y otra para $\phi_H = 0$.

observar la diferencia al trabajar en banda-Q los campos de resonancia resultarán mas altos que al utilizar banda-X.

2.1.7. Determinación de anisotropías magnéticas con medidas de FMR

Las medidas de FMR se pueden realizar en diferentes configuraciones variando la posición de la muestra con respecto al campo aplicado. En nuestro caso particular, el campo aplicado se mantuvo en el plano de la película delgada y se varió el ángulo ϕ del campo con respecto al eje [100]. Se construyeron diagramas de H_{res} en función de ϕ .

Para encontrar las constantes de anisotropía se utilizó un procedimiento iterativo que consta de los siguientes pasos:

- 1. Se proponen valores iniciales para las constantes de anisotropía.
- 2. Se propone como campo efectivo H_{eff} inicial el campo de resonancia H_{res} .
- 3. Se minimiza la energía libre para hallar el ángulo de equilibrio ϕ_{eq} , utilizando el H_{eff} elegido. θ_{eq} es siempre $\pi/2$ ya que el campo se aplica en el plano de la muestra.
- 4. Se obtiene nuevamente el campo efectivo a partir de las ecuaciones de Smit-Beljers.
- 5. Se iteran los pasos 3) y 4) hasta hallar el campo efectivo autoconsistentemente.
- 6. Se comparan los diagramas H_{res} vs. ϕ medido y ajustado. Si no coinciden, se proponen otras constantes de anisotropía y el procedimiento vuelve a empezar. Si coinciden, las constantes de anisotropía planteadas fueron correctas y el procedimiento termina.

2.1.8. Cálculo de errores en los parámetros obtenidos

En nuestro caso particular, la magnetización de saturación M se encuentra presente en dos contribuciones a la energía libre: en la contribución Zeeman y en el factor demagnetizante. La primera es lineal en M y la segunda cuadrática. Este factor es la mayor fuente de error en la determinación de las constantes de anisotropía. M_s se determina con un error relativo de alrededor del 5 % con lo cual el error en nuestros parámetros puede llegar a ser del 10 % (en el caso de dependencia cuadrática).

2.2. Medición del coeficiente de acoplamiento magnetoelástico por el método de deflexión de *cantilever*

Como se describió en la introducción las constantes de acople magneto-elástico cuantifican cuánto variará la anisotropía magnética a causa de una deformación inducida en el material. En esta tesis la técnica de deflexión de *cantilever* se utilizó para la medición de estas constantes en nuestras películas delgadas.

Esta técnica permite detectar acoples con valores a partir de 10^5 J/m^3 aproximadamente. Las mediciones se llevaron a cabo utilizando un equipo construido especialmente para este fin en el Instituto Max-Planck de Microestructura que se encuentra localizado en la ciudad de Halle (Alemania) en una colaboración con Dirk Sander.

2.2.1. Montaje experimental y principios de funcionamiento

La idea principal de esta técnica es medir la curvatura que adquiere un compuesto con sustrato cuando se aplica un campo magnético externo, magnitud que finalmente será proporcional al coeficiente de acople magneto-elástico, como se explica más abajo. En nuestro caso, trabajamos con *films* crecidos sobre sustratos y necesitamos muestras con una gran proporción de longitud a anchura (~ 4).



Figura 2.8: Esquema de la deflexión del *cantilever* cuando un campo magnético externo se aplica a lo largo y luego a lo ancho de la muestra. Caso de un coeficiente de acople magneto-elástico negativo.

El experimento consiste en aplicar un campo magnético, primero a lo largo y luego a lo ancho de la muestra. El campo debe ser lo suficientemente intenso como para alcanzar la saturación de la magnetización. Cuando éste se aplica a lo largo del *cantilever*, el material tenderá a elongarse (contraerse) en dicha dirección, en el caso

de un coeficiente de magnetostricción positiva (negativa). Puesto que posee un sustrato acabará por arquearse como se muestra en la figura 2.8. Cuando el campo se aplica a lo ancho de la muestra, ésta tenderá a contraerse (elongarse) a lo largo de esta dimensión y como resultado se arqueará en el sentido opuesto.

Para medir la deflexión del *cantilever*, utilizamos la configuración que se muestra en la figura 2.9. Un haz láser se divide en dos haces que inciden sobre el cristal en el extremo inferior de la muestra, en dos puntos distantes en algunos milímetros entre sí a lo largo de la dirección vertical. Los haces son reflejados y finalmente inciden en dos fotodiodos diferenciales. Los fotodiodos sirven como detectores sensibles a la posición y necesitan ser calibrados como se explica más abajo. Ambos están conectados a un amplificador.



Figura 2.9: Esquema utilizado para la medición de la curvatura del cristal. 1: portamuestras, 2: *cantilever*, 3: película delgada, 4: láser, 5: divisor de haz, 6: espejos regulables, 7: actuador piezoeléctrico, 8: fotodetector dividido. El recuadro muestra una vista ampliada de uno de los fotodetectores divididos. Los cables A y B de cada área sensible del diodo están conectados a un amplificador que entrega la señal de suma A + B, así como la diferencia A - B. Figura extraída de la referencia [44].

Este entrega una señal de diferencia y otra de suma, que indican la posición del haz y la iluminación promedio de cada detector, respectivamente. Un cambio de la curvatura del cristal induce un desplazamiento de los haces reflejados en los fotodiodos y un cambio en la señal diferencia de cada detector, mientras que la señal suma se ve muy poco afectada.

Al comparar el desplazamiento de los haces sobre los dos fotodetectores, Δ_{sup} y Δ_{inf} , podemos obtener la curvatura del cristal, $\Delta \kappa$ dada, según la geometría del arreglo experimental, por:

$$\Delta \kappa = \left(\frac{1}{R_{largo}}\right)^{M_{largo}} - \left(\frac{1}{R_{largo}}\right)^{M_{ancho}} = \frac{\Delta_{sup} - \Delta_{inf}}{2l_{spot}l_{PD}}$$
(2.11)

donde R_{largo} es el radio de curvatura a lo largo de la muestra, l_{spot} es la separación de los puntos de incidencia de los haces sobre el cristal ($\approx 4 \text{ mm}$) y l_{PD} es la distancia entre la superficie del cristal y los detectores ($\approx 300 \text{ mm}$). Los subíndices en M_{largo} y M_{ancho} describen la dirección de la magnetización.

La magnetización de la muestra es monitoreada durante todo el proceso mediante un experimento MOKE como se describe en las secciones siguientes.

2.2.2. Relación entre la curvatura del cristal y el coeficiente de acople magneto-elástico

El cambio de tensión $\Delta \tau_S$, es decir, el coeficiente de acople magneto-elástico B_x , se calcula como ([4, 45, 46]):

$$B_x = \Delta \tau_S = \frac{Y_s d_s^2}{6(1+\nu_s)d_F} \Delta \kappa = \frac{Y_s d_s^2}{6(1+\nu_s)d_F} \left(\frac{\Delta_{sup} - \Delta_{inf}}{2l_{spot}l_{PD}}\right)$$
(2.12)

donde el módulo de Young Y_s y el cociente de Poisson ν_s varían según la dirección de crecimiento de la muestra [4]. d_s es el espesor del sustrato y d_F es el espesor del film. Esta ecuación se basa en la suposición de una deflexión bidimensional libre, que aquí se justifica teniendo en cuenta la gran proporción longitud a anchura del cristal y la medición realizada en el extremo inferior del mismo [45].

2.2.3. Calibración de los fotodetectores



Figura 2.10: Medición de calibración utilizada para convertir la señal de los haces superior e inferior en desplazamientos. Los detectores son desplazados 15 μm por medio de un actuador piezo-eléctrico (parte 7 en la figura 2.9). (a) Señal cruda en volts, (b) cambio de posición en μm . La flecha indica que el cambio de señal corresponde a un desplazamiento de 15 μm . Extraído de la referencia [47].

Las señales entregadas por los fotodetectores necesitan ser convertidas desde un cambio de voltaje (V) a un desplazamiento (m). Por esta razón se hace necesaria una calibración. Esta calibración se realiza moviendo verticalmente los fotodetectores 15 μ m mientras que los haces láser permanecen inmóviles. Para mover los fotodetectores utilizamos un actuador piezoeléctrico calibrado. Registramos el cambio de señal resultante (V), como se indica en la figura 2.10. De esta manera conocemos el cambio de tensión correspondiente a un desplazamiento de $15\mu m$, y con esa información, calculamos el fac-

tor de calibración. Su magnitud es diferente para ambos detectores debido a ligeras diferencias de los perfiles de los haces. Por esta razón, cada detector requiere un factor de calibración específico.

2.2.4. Monitoreo de la magnetización mediante un experimento MOKE

El efecto magneto-óptico Kerr (MOKE, por sus siglas en inglés) describe una pequeña rotación del plano de polarización de una onda electromagnética luego de ser reflejada en una superficie magnetizada. La interacción entre el campo eléctrico de la
onda \vec{E} y el vector unitario de la magnetización \vec{m} es descripta fenomenológicamente por la ley dieléctrica[48]:

$$\vec{D} = \underbrace{\epsilon_D \vec{E}}_{\vec{N}} + \underbrace{i\epsilon_D Q_v \vec{m} \times \vec{E}}_{\vec{K}}$$
(2.13)

donde \vec{D} es el vector desplazamiento y representa la amplitud de la onda electromagnética emergente, ϵ_D es la constante dieléctrica y Q_v es la constante de Voigt. Q_v se conoce sólo para unos pocos materiales y es usualmente pequeña, por ejemplo, 0.03 para sistemas Ni-Fe [49]. Reduciremos nuestro análisis al caso de luz incidente con polarización plana. El primer término en (2.13), al que llamaremos \vec{N} , tiene la misma dirección de polarización que la luz incidente. El segundo término, \vec{K} da una componente cuya polarización es normal a \vec{N} . La superposición de \vec{K} y \vec{N} resulta en un vector que está rotado en un pequeño ángulo respecto a la dirección de polarización de la onda incidente. Este pequeño ángulo se denomina *rotación Kerr* y puede ser calculado a primer orden como $\phi_K = |\vec{K}|/|\vec{N}|$, resultando proporcional a la magnetización de la muestra.

Luego, si aplicamos un campo magnético variable y nos interesa estudiar la evolución de la magnetización podemos medir la rotación Kerr. Esto es lo que normalmente se hace en un experimento MOKE. Existen tres posibles configuraciones dependiendo de la orientación de la magnetización respecto a la superficie de reflexión y el plano de incidencia: polar, transversal y longitudinal, como se muestra en la figura 2.11.



Figura 2.11: Distintas configuraciones de un experimento MOKE. Polar: el vector de magnetización es perpendicular a la superficie de reflexión y paralelo al plano de incidencia. Longitudinal: el vector de magnetización es paralelo a la superficie de reflexión y al plano de incidencia. Transversal: la magnetización es paralela a la superficie de reflexión y perpendicular al plano de incidencia.

Se utilizan dos polarizadores para medir la rotación Kerr como se muestra en la figura 2.12. El primero es usado para lograr la polarización de incidencia deseada, y el segundo, al que llamaremos analizador, se coloca con un ángulo casi perpendicular al primero, para poder medir la rotación Kerr.

En nuestro caso, sólo utilizamos este experimento para confirmar la saturación de la magnetización durante la medición de la curvatura. Un experimento MOKE longitudinal mide la magnetización cuando se aplica campo horizontal y uno transversal



Figura 2.12: Esquema experimental utilizado para medir la rotación Kerr. Un haz incidente pasa por un polarizador para alcanzar luego la muestra. El haz reflejado pasa por otro polarizador, que llamaremos analizador, colocado con un ángulo casi perpendicular al primero. Finalmente el haz incide sobre el detector.

la monitorea cuando se aplica campo vertical. Para generar el haz utilizamos un diodo láser (de longitud de onda 670 nm, y 3 mW de potencia). Las mediciones se realizaron con el analizador rotado $\delta = 2^{\circ}$ (= 34,9 mrad) fuera de extinción. La rotación Kerr ϕ se calcula según:

$$\phi = \frac{\delta}{I_0} \Delta I \tag{2.14}$$

como se describe en la literatura [50]. Aquí, ΔI es el cambio de señal en el fotodetector luego de la reversión de la magnetización de saturación, e I_0 es la señal promedio en el fotodetector calculada a partir de mediciones para direcciones de saturación opuestas.



Figura 2.13: (a) Arreglo experimental utilizado para las mediciones MOKE. El camino del haz láser se encuentra delineado en puntos rojos. (b) Medición MOKE típica con el sensado hecho en la dirección [100]. El campo magnético (aproximadamente de 2500 Oe en nuestras muestras para alcanzar la saturación) se aplica durante 60 segundos en la dirección [010], que coincide con la dirección vertical del *cantilever*, luego es cambiado a la dirección [100] por otros 60 segundos y finalmente vuelve a la dirección [010]. Cuando el campo se aplica en la [100], esta dirección alcanza la saturación magnética y la señal aumenta. El campo magnético es sensado con una punta Hall colocada muy cerca de la muestra, durante el barrido en campo.

La figura 2.13 se presentan una foto del *setup* completo y una medición típica.

2.2.5. Cálculo de errores en los parámetros obtenidos

Mirando la ecuación (2.12) podemos identificar distintas fuentes de error. La separación entre los haces l_{spot} de alrededor de 4 mm se determina con una precisión de 0,3 mm, esto significa $\pm 7,5\%$ en error relativo. La determinación experimental de $l_{CD} \approx 300$ mm se realiza con una precisión de 1 mm, y esto da un error relativo de $\pm 0,3\%$. El espesor de la muestra d_F se determina por difracción de rayos-x con un error relativo del $\pm 4\%$. El espesor del sustrato d_s da un error relativo del $\pm 2\%$. Acerca de Δ_{sup} y Δ_{inf} , su error está mayormente dado por la calibración de los detectores y llega a ser del $\pm 2\%$. Se concluye que el error relativo total en la medición del acople magneto-elástico es de $\approx 18\%$.

2.3. Microscopía de fuerza magnética (MFM)

Esta técnica fue utilizada durante esta tesis para extraer imágenes de la componente de magnetización fuera del plano sobre la superficie de nuestras películas. Este tipo de microscopía permite una resolución de hasta unos pocos nanómetros. El equipo utilizado fue un microscopio VEECO dimension 3100 localizado en el Laboratorio de Resonancias Magnéticas del Centro Atómico Bariloche (Argentina).

2.3.1. Dispositivo experimental y principios de funcionamiento

El setup experimental utilizado en la microscopía de fuerza magnética se presenta esquemáticamente en la figura 2.14(a). En primer lugar explicaremos cómo se obtiene una imagen de topografía.



Figura 2.14: (a) Esquema del microscopio de fuerza magnética. Figura extraída de la referencia [51]. El *cantilever* oscila sobre la superficie a partir de una señal de entrada aplicada al actuador piezo-eléctrico. Un láser se refleja en la punta y luego incide sobre un fotodetector capaz de colectar la información de las oscilaciones. (b) Primer y segundo barridos necesarios para la confección de la imagen magnética. Para el segundo barrido la punta se eleva a fin de alejarse de la zona de influencia de las fuerzas de Van der Waals y repite el perfil de topografía medido en el primer escaneo para mantenerse a una distancia constante de la superficie. Imagen extraída de la referencia [52].

La superficie de una muestra es barrida con una pequeña punta, que posee un recubrimiento ferromagnético y que se encuentra ubicada al final de un *cantilever*. El barrido se efectúa en modo "Tapping", esto significa que la punta recorre la superficie oscilando sobre la misma. Para lograr esta oscilación, el *cantilever* se encuentra adherido a un piezoeléctrico al cual se aplica una señal de entrada senoidal. Un haz láser (de 632 nm de longitud de onda) es reflejado en la punta para luego incidir sobre un fotodetector capaz de colectar la información de las oscilaciones. En primer lugar se busca la frecuencia de resonancia del *cantilever* y toda la medición se efectúa a esta frecuencia o una muy cercana. La interacción de la punta con la superficie cambia la amplitud de la oscilación. Mediante un loop de retroalimentación se corregirá la señal de entrada aplicada al actuador piezoeléctrico de manera que la amplitud de oscilación de la punta se mantenga constante. La variación de la señal de entrada contendrá la información de la topografía.

Para extraer información magnética cada línea del barrido es escaneada dos veces. La primera vez, se recoge la información de la topografía. La segunda vez, la punta se eleva unos nanómetros sobre la superficie (típicamente entre 10 y 100 nm) de manera de alejar la punta de la zona de influencia de las fuerzas de Van der Waals (ver figura 2.14(b)). La distancia a la cual se eleva la punta se denomina *distancia de lift*. Se repite el perfil de topografía hallado en el primer barrido, de manera de mantener la punta siempre a la misma distancia de la superficie. En este caso, la punta es sólo sensible al gradiente de campo magnético fuera del plano generado por la muestra, por ejemplo, por una pared de dominio. El barrido de la muestra nos permite generar una imagen de la variación de este parámetro y así obtener información acerca del magnetismo de la muestra.

2.4. Dispersión resonante magnética de rayos-x (XMRS)

Esta técnica se utilizó durante la tesis para estudiar la estructura de dominios magnéticos en forma de franjas de nuestras películas (ver capítulo 6): determinación del período, campo de rotación, etc. Los experimentos se realizaron en el sincrotrón SOLEIL situado en la localidad de GIF-sur-YVETTE (Francia), en la líneas TEMPO y SEXTANTS en una colaboración con Maurizzio Sacchi.

2.4.1. Teoría básica de la dispersión magnética resonante de rayos-x

Cuando un frente de ondas de rayos-x atraviesa un sólido, excita los electrones de los átomos constituyentes del material. Estos electrones comienzan a oscilar en el plano



Figura 2.15: Esquema de la transición $L_{2,3}(2p \rightarrow 3d)$ del Fe. El fotón incidente tiene energía $\hbar \omega$ y estado de polarización $\zeta=0$ si es lineal, o $\zeta=\pm 1$ si es circular. El fotón dispersado puede tener un estado de polarización diferente ζ' . Figura extraída de la referencia [54].

de polarización de la luz [53]. Esta excitación es luego relajada a través de la emisión de una onda esférica centrada en el núcleo del átomo en cuestión. Si la energía del fotón incidente $\hbar\omega$ coincide con la diferencia de energía entre dos niveles atómicos, se produce lo que llamamos una resonancia: los electrones que ocupan el nivel inferior absorben el fotón y son promovidos a un nivel superior, el cual necesita estar al menos parcialmente desocupado para permitir la transición.

¿Cómo entra en juego el magnetismo en todo este proceso? La absorción y reemisión del fotón incidente es sensible al estado magnético del átomo solamente si la interacción espín-órbita juega un rol importante. Cuando un átomo está magnetizado tiene más electrones de conducción en un estado de espín que en el otro, resultando esto en un momento magnético total. Esta diferencia de ocupación también significa que el número de estados disponibles para el electrón excitado depende de su espín. Típicamente, la interacción espín-órbita es fuerte para electrones en los estados 2p y 3d de los metales de transición y tierras raras respectivamente.

La figura 2.15(a) muestra un ejemplo de una transición dipolar $L_{2,3}(2p \rightarrow 3d)$ del Fe. En este caso, un electrón 2p del núcleo es promovido, mas allá del nivel de Fermi (E_F) a la banda de conducción 3d. El momento angular del fotón incidente, que se denota $\zeta = 0$ para polarización lineal y $\zeta = \pm 1$ para polarización circular, puede ser transferido al electrón del núcleo 2p a través del acople espín-órbita. Para luz polarizada circularmente, las dos helicidades generan fotoelectrones con espín diferente, dado que transfieren momento angular opuesto. Debido a la magnetización, la banda de conducción 3d tendrá una densidad de estados desocupados diferente para electrones con espín up que para electrones con espín down. De esta manera, la sección eficaz resonante depende de la orientación relativa entre el momento angular del fotón incidente (polarización) y el eje de magnetización. Entonces, si en un experimento a) incidimos con luz polarizada circularmente a derecha y en un experimento b) usamos luz polarizada circularmente a izquierda, las secciones eficaces de dispersión para ambos experimentos serán distintas, y por lo tanto tendremos diferentes intensidades dispersadas en cada caso.

Esta propiedad de la dispersión magnética resonante de rayos-x (XMRS), de depender del estado magnético del sistema se puede utilizar justamente para extraer información del mismo. En particular explicaremos tres tipos de mediciones que son las que hemos utilizado en esta tesis: espectroscopía de absorción de rayos-x (XAS), dicroísmo circular magnético de rayos-x (XMCD) y curvas de hamacado.

Para cualquiera de estas técnicas se utiliza el setup experimental mostrado en la figura 2.16. El plano de incidencia queda definido por el vector de onda incidente \vec{K}_{in} y el vector de onda dispersado \vec{K}_{out} . θ_D es el ángulo entre el detector y la superficie. θ_S es el ángulo entre el haz incidente y la superficie. El eje z representa la normal a la superficie y el eje x está dado por la intersección entre el plano de incidencia y la superficie. Definiremos $\vec{q} = \vec{K}_{out} - \vec{K}_{in}$. q_x y q_z son las componentes de \vec{q} en los ejes x y z respectivamente.



Figura 2.16: Esquema de dispersión elástica de rayos-x. El plano de incidencia queda definido por el vector de onda incidente \vec{K}_{in} y el vector de onda dispersado \vec{K}_{out} . θ_D es el ángulo entre el detector y la superficie. θ_S es el ángulo entre el haz incidente y la superficie. El eje z representa la normal a la superficie y el eje x está dado por la intersección entre el plano de incidencia y la superficie. \vec{q} se define por la resta $\vec{K}_{out} - \vec{K}_{in}$ y q_x y q_z son sus componentes en los ejes x y z respectivamente.

2.4.2. Espectroscopía de absorción de rayos-x (XAS) y dicroísmo circular magnético de rayos-x (XMCD)

Para las curvas de XAS se varía la energía del haz incidente y se mantiene fija la posición del detector. Si recolectamos dos espectros XAS realizados el primero con luz incidente circularmente polarizada a derecha y el segundo a izquierda, y los restamos, obtenemos un espectro XMCD. Al efectuar la resta antes mencionada no deshacemos de la parte de la dispersión relacionada con resonancias estructurales (que será insensibles a la polarización de la onda incidente) y nos quedamos sólo con la información magnética.

2.4.3. Curvas de hamacado

En este tipo de medición se mantiene fijo el ángulo θ_D entre el detector y la superficie, y se varía el ángulo θ_S entre la superficie y el haz incidente. Dado que $q_x = q \mathrm{sen} \Delta \theta_S$ y $q_z = q \mathrm{cos} \Delta \theta_s$, una pequeña variación alrededor de la condición especular puede ser vista como un barrido en q_x a q_z constante.

2.5. Magnetómetro de muestra vibrante (VSM)

Los magnetómetros, como su nombre lo indica, se utilizan para medir el momento magnético de distintas muestras en diferentes condiciones. En esta tesis hemos utilizado el magnetómetro de muestra vibrante (VSM por sus siglas en inglés) para medir la magnetización de saturación a temperatura ambiente y ciclos de histésresis (curvas de magnetización versus campo magnético aplicado) en distintas direcciones. El VSM utilizado es un LakeShore 7300 que tiene una sensibilidad de 10^{-5} emu y se encuentra ubicado en el Laboratorio de Resonancias Magnéticas del Centro Atómico Bariloche (Argentina).

2.5.1. Dispositivo experimental y principio de funcionamiento

El magnetómetro de muestra vibrante (VSM por sus siglas en inglés), mide la fuerza electromotriz (fem) inducida en un conjunto de bobinas detectoras, por una muestra magnética cuando ésta es puesta a vibrar a frecuencia y amplitud constante en presencia de un campo magnético estático y uniforme [55]. El esquema experimental se muestra en la figura 2.17. A partir de la ley de inducción de Faraday, la fuerza electromotriz inducida en una bobina detectora, V_{fem} , es proporcional a la variación temporal de flujo magnético que pasa a través de ella: $V_{fem} = -\frac{d\phi}{dt}$ donde ϕ es el flujo magnético y t el tiempo. Debido a que la muestra vibra a una frecuencia f el flujo magnético a través de la bobina



Figura 2.17: Esquema experimental de un magnetómetro de muestra vibrante.

tendrá una dependencia temporal sen $(2\pi ft)$. A partir de esto puede verse que, si el eje de vibración de la muestra es el eje z:

$$V_{fem} \propto f m_0 \Omega(z) \tag{2.15}$$

donde m_0 es el momento magnético de la muestra y $\Omega(z)$ es una función que define la dependencia de V_{fem} con la posición de la muestra para una dada configuración de bobinas. Se puede observar que V_{fem} resulta proporcional a m_0 permitiendo esto su medición.

2.6. Dispositivo superconductor de interferencia cuántica (SQUID)

Dispositivo superconductor de interferencia cuántica (SQUID, por sus siglas en inglés) fue utilizado en esta tesis como magnetómetro. Con este sistema se pueden detectar momentos magnéticos de hasta 10^{-8} emu. Los equipos utilizados fueron SQUID Quantum Design MPMS-5S que se encuentra situado en el Laboratorio de Bajas Temperaturas del Centro Atómico Bariloche (Argentina) y un SQUID Quantum-Design MPMS-5S situado en Departamento de Física de la Universidad Federal de Sao Carlos (Brasil).

2.6.1. Arreglo experimental y principio de funcionamiento

El dispositivo superconductor de interferencia cuántica (SQUID por sus siglas en inglés) tiene muchas aplicaciones. En nuestro caso particular lo hemos utilizado como magnetómetro en el modo DC. La configuración experimental para la medición en este modo se muestra en la figura 2.18(a).

Éste dispositivo consta de un anillo superconductor con dos junturas Josephson. Las junturas se componen de dos superconductores separados por una delgada capa de material aislante [56]. Una corriente de *bias* I_b atraviesa el circuito de manera que por cada rama circula una corriente de intensidad $I_b/2$. Un cambio de flujo magnético $\Delta \Phi$ en el interior del anillo generará una corriente superconductora I_s que tenderá a anular este cambio de flujo.



Figura 2.18: a) Esquema ilustrativo del anillo superconductor y las junturas Josephson empleados en el SQUID. b) Corriente superconductora I_s generada en el circuito.

Como se puede apreciar en la figura 2.18(b) la corriente I_s se sumará a I_b en la primer rama y se restará en la segunda. Cuando la corriente total sobre una de las junturas excede su corriente crítica I_c un voltaje aparece sobre la juntura. Este efecto hará que aparezca una diferencia de tensión V_{AB} entre los puntos A y B del circuito.

El flujo magnético es una cantidad cuantizada cuyo cuanto fundamental es Φ_0 . Supongamos que el flujo magnético externo sobrepasa el valor $\Phi_0/2$. Como el flujo encerrado por el loop superconductor debe ser un múltiplo entero de Φ_0 las corrientes superconductoras, que antes circulaban con el sentido apropiado para anular el cambio de flujo, ahora circularán en el sentido contrario de manera de aumentar el flujo total y llevarlo hasta el valor Φ_0 . De esta manera I_s cambiará su sentido cada vez que el flujo alcance un múltiplo de $\Phi_0/2$. Si I_b supera I_c la juntura se comportará siempre de manera resistiva y el proceso recién explicado se verá reflejado en V_{AB} . La figura 2.19 muestra el voltaje V_{AB} para para el flujo magnético creciendo monótonamente. Se pueden ver las oscilaciones de período Φ_0 . Si colocamos una muestra magnética en el centro del anillo y la hacemos vibrar, ésta cambiara el flujo magnético y producirá un $\Delta \Phi$ cuyo efecto se verá reflejado en V_{AB} . Si Res la resistencia de la juntura se tendrá:

$$V_{AB} = R\left(\frac{I_b}{2} + I_s\right) - R\left(\frac{I_b}{2} + I_s\right)$$
$$= 2RI_s \qquad (2.16)$$
$$= 2R\frac{\Delta\Phi}{L}$$



Figura 2.19: Variación de voltaje V_{AB} para el flujo magnético creciendo monótonamente.



Capítulo 3

Muestras

En este capítulo describiremos presentaremos las muestras utilizadas para los distintos estudios llevados a cabo durante toda la tesis.

3.1. Muestras elaboradas para el estudio de anisotropías magnéticas (capítulo 4)

Para el estudio de las anisotropías magnéticas (capítulo 4) se elaboró una serie de muestras de $Fe_{1-x}Ga_x$ crecidas sobre un sustrato ZnSe/GaAs(001) terminado en Zn, de 0,5 mm de espesor aproximadamente, con reconstrucción $c(2 \times 2)$ [57]. La capa de ZnSe tiene un espesor de 20 nm y constituye una eficiente barrera química para separar el galfenol del sustrato, lo cual es necesario para evitar que la gran reactividad del Ga produzca interfases con elevada rugosidad. Los films Fe/ZnSe son un prototipo de la interfaz Fe/semiconductor con baja reactividad e interfaz con baja rugosidad [58]. Luego, se espera que la películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x/ZnSe$ también presenten muy baja reactividad dado que las condiciones de crecimiento son muy similares. La películas fueron depositadas mediante la técnica de crecimiento por haces moleculares (MBE), utilizando la evaporación conjunta de Fe y Ga en dos celdas de Knudsen independientes como se explica en la referencia [59]. La temperatura del sustrato se mantiene en 180 °C. Luego del crecimiento del FeGa, las muestras son transferidas desde la cámara de MBE a una cámara de ultra alto vacío (UHV) interconectada, donde la composición es medida por medio de experimentos de espectroscopia de foto-electrones de rayos-x (XPS). Finalmente, las muestras son recubiertas por una capa de oro de entre 3 y 10 nm de oro para evitar su oxidación.

También se fabricaron tres muestras sobre un sustrato de $SrTiO_3$ (STO) utilizando la misma técnica.

Tanto el crecimiento como los estudios estructurales de estas muestras fueron realizados con anterioridad a esta tesis. Las tablas 3.1 y 3.2 muestran un resumen de la muestras utilizadas así como sus parámetros mas importantes: la temperatura de la celda de galio durante el depósito T_{Ga} , la concentración porcentual de galio x, el espesor d, el sustrato utilizado, la temperatura de recocido en el caso en que se haya aplicado un tratamiento térmico, un rótulo escogido para cada muestra, el parámetro de red en el plano a, el parámetro de red fuera del plano c y la magnetización de saturación M_s .

Nombre	T _{Ga}	x	Espesor d	Sustrato	Temperatura	Rótulo
	(C)		(nm)		de recocido	
32m0127	-	$0,000 \pm 0,005$	02 ± 1	ZnSe/GaAs(001)	-	0,00-02nm
32m0125	710	$0,140 \pm 0,005$	02 ± 1	ZnSe/GaAs(001)	-	0,14-02nm
32m0116	730	$0,200 \pm 0,005$	02 ± 1	ZnSe/GaAs(001)	-	0,20-02nm
32m0126	-	$0,000 \pm 0,005$	04 ± 2	ZnSe/GaAs(001)	-	0,00-04nm
32m0124	710	$0,140 \pm 0,005$	04 ± 1	ZnSe/GaAs(001)	-	0,14-04nm
32m0123	730	$0,200 \pm 0,005$	04 ± 1	ZnSe/GaAs(001)	-	0,20-04nm
32m021	710	$0,140 \pm 0,005$	06 ± 1	ZnSe/GaAs(001)	-	0,14-06nm
32m022	730	$0,200 \pm 0,005$	06 ± 1	ZnSe/GaAs(001)	-	0,20-06nm
32m0122	710	$0,140 \pm 0,005$	18 ± 2	ZnSe/GaAs(001)	-	0,14-18nm
32m0115	730	$0,200 \pm 0,005$	18 ± 2	ZnSe/GaAs(001)	-	0,20-18nm
mbe986	-	$0,000 \pm 0,005$	36 ± 4	ZnSe/GaAs(001)	-	0,00-36nm
mbe991	710	$0,140 \pm 0,005$	36 ± 4	ZnSe/GaAs(001)	-	0,14-36nm
mbe996	728	$0,180 \pm 0,005$	36 ± 4	ZnSe/GaAs(001)	-	0,18-36nm
mbe998	734	$0,240 \pm 0,005$	36 ± 4	ZnSe/GaAs(001)	-	0,24-36nm
mbe983	740	$0,290 \pm 0,005$	36 ± 4	ZnSe/GaAs(001)	-	0,29-36nm
32m013	725	$0,180 \pm 0,005$	36 ± 4	ZnSe/GaAs(001)	$320^{\circ}\mathrm{C}$	0,18-36nm-Rec
32m018	740	$0,290 \pm 0,005$	36 ± 4	ZnSe/GaAs(001)	$320^{\circ}\mathrm{C}$	0,29-36nm-Rec
32m004	-	$0,000 \pm 0,005$	36 ± 4	STO(001)	-	0,00-36nm-STO
32m008	700	$0,030 \pm 0,005$	36 ± 4	STO(001)	-	0,03-36nm-STO
32m002	730	$0,110 \pm 0,005$	36 ± 4	STO(001)	-	0,11-36nm-STO
32m025	710	$0,140 \pm 0,005$	80 ± 2	ZnSe/GaAs(001)	-	0,14-80nm
32m030	720	$0,180 \pm 0,005$	55 ± 2	ZnSe/GaAs(001)	-	0,18-55nm
32m034	730	$0,200 \pm 0,005$	65 ± 2	ZnSe/GaAs(001)	-	0,20-65nm
32m031	740	$0,290 \pm 0,005$	72 ± 2	ZnSe/GaAs(001)	-	0,29-72nm

Tabla 3.1: Muestras utilizadas para el estudio de las anisotropías magnéticas. Se exhiben el nombre, la temperatura de la celda de galio durante el depósito T_{Ga} , la concentración porcentual de galio x, el espesor d, el sustrato utilizado, la temperatura de recocido en el caso en que se haya aplicado un tratamiento térmico y un rótulo escogido para cada muestra.

Nombro	Pátulo	a	с	M _s
Nombre	notulo	(nm)	(nm)	(emu/cm^3)
32m0127	0,00-02nm	-	-	1200 ± 100
32m0125	0,14-02nm	-	-	1300 ± 100
32m0116	0,20-02nm	-	-	1000 ± 100
32m0126	0,00-04nm	-	-	1200 ± 100
32m0124	0,14-04nm	-	-	1000 ± 100
32m0123	0,20-04nm	-	-	1100 ± 100
32m021	0,14-06nm	-	-	1400 ± 100
32m022	0,20-06nm	-	-	1500 ± 100
32m0122	0,14-18nm	-	-	1100 ± 100
32m0115	0,20-18nm	-	-	1000 ± 100
mbe986	0,00-36nm	0,28628	0,28628	1700 ± 100
mbe991	0,14-36nm	0,28789	0,29194	1500 ± 100
mbe996	0,18-36nm			1400 ± 100
mbe998	0,24-36nm			1400 ± 100
mbe983	0,29-36nm	0,28592	0,301307	900 ± 100
32m013	0,18-36nm-Rec	0,28806	0,290513	1400 ± 100
32m018	0,29-36nm-Rec	0,28839	0,2928	1000 ± 100
32m004	0,00-36nm-STO			1700 ± 100
32m008	0,03-36nm-STO			
32m002	0,11-36nm-STO			
32m025	0,14-80nm	0,28769	0,28971	1500 ± 100
32m030	0,18-55nm	0,28724	0,29276	1400 ± 100
32m034	0,20-65nm	0,28648	0,29219	1400 ± 100
32m031	0,29-72nm			900 ± 100

Tabla 3.2: Muestras utilizadas para el estudio de anisotropías magnéticas. En este caso se muestran el rótulo de cada muestra, el parámetro de red en el plano a, el parámetro de red fuera del plano c y la magnetización de saturación M_s .

Para las muestras de 36 nm, un extenso estudio estructural, realizado a partir de estudios de difracción de rayos-x se puede encontrar en la referencia [59]. La figura 3.1 muestra los parámetros de red fuera y dentro del plano para esta serie de muestras y los compara con los parámetros de red en material masivo, donde la estructura es cúbica. También se muestran los resultados para una serie de muestras recocidas.



Figura 3.1: Parámetros de red fuera y dentro del plano para una serie de muestras de 36 nm. También se muestran los parámetros de red relajados, a partir de los cuales la estructura estaría deformada (puntos rojos). Las referencias de las muestras masivas (cuadrados abiertos) se extrajeron de [27]. Figura extraída de la referencia [59].

Las principales conclusiones a las que se arribó después de este estudio son:

- El parámetro de red en el plano *a* permanece constante con la concentración. El crecimiento es no pseudomórfico con el sustrato ya que $a_{ZnSe}/2=2,834$ Å que es distinto al de las muestras (2,864 Å). El parámetro de red en el plano de las muestras es igual al del Fe masivo (y distinto al del FeGa masivo).
- Se puede observar una fuerte distorsi
 ón tetragonal que aumenta con la concentraci
 ón de Ga. Esta distorsi
 ón llega a tener valores de hasta el 5% en los casos m
 ás extremos.
- Estudiando las reflexiones permitidas y prohibidas para las distintas fases estructurales se descartó la presencia de la fase DO₃. Para concentraciones mayores a x=0.15 se constató la presencia de la fase B2. Debido a que la fase B2 tiene los pares de Ga alineados fuera del plano, se propone que la distorsión tetragonal en las muestras con x < 0.15 puede ser producto de la formación temprana de esta fase. Esta propuesta está fundamentada en los cálculos de primeros principios

realizados por Wu *et al.* [24, 34] en los que se muestra que la fase B2 sufre una distorsión tetragonal. El cálculo de la dependencia de la energía total con c/c_0 indica que para $c/c_0 \sim$ a 4% (como es nuestro caso para la muestra con x=0,25) la energía total baja en ~ 100 meV para la celda unidad [34].

- Luego del recocido los parámetros de red se relajan a los del material masivo, indicando una posible redistribución de los pares de Ga durante el tratamiento térmico.
- El cálculo de los parámetros de red relajados, respecto de los cuales la estructura estaría deformada, utilizando las constantes elásticas del FeGa masivo, da como resultado los parámetros de red del FeGa masivo. Esto sugiere que las constantes elásticas del material masivo son válidas también en las películas delgadas.

Ahora compararemos los parámetros de red de muestras con espesor nominal de 70 nm, con los de muestras de 36 nm. La figura 3.2 presenta los resultados para el cociente c/a en función de la concentración, para dos grupos de muestras: un grupo de 36 nm (0,00-36nm, 0,14-36nm, 0,18-36nm y 0,29-36nm) y otro con espesor nominal de 70 nm (0,14-80nm, 0,18-55nm y 0,20-65nm). La línea c/a=1 es orientativa y marca el



Figura 3.2: Cociente entre el parámetro de red fuera del plano c y el parámetro de red dentro del plano a, en función de la concentración de Ga. Se muestran los resultados para dos grupos de muestras de distinto espesor.

caso de una estructura cúbica. Se puede observar, en primer lugar, que la distorsión siempre aumenta con la concentración, y luego, que el grupo de muestras de 36 nm se encuentra más fuertemente distorsionado que el grupo de 70 nm.

3.2. Muestras elaboradas para el estudio de dominios magnéticos (capítulo 6)

Para el estudio de los dominios magnéticos se seleccionaron ocho muestras de las presentadas en las tablas 3.1 y 3.2 a saber: 0,14-36nm, 0,18-36nm, 0,24-36nm, 0,29-36nm, 0,14-80nm, 0,18-55nm, 0,20-65nm y 0,29-72nm. Estas muestras pueden separarse en dos grupos: uno con espesor alrededor de 36 nm y otro con espesor alrededor de 70 nm. En cada grupo hay muestras de cuatro concentraciones diferentes.

3.3. Muestras elaboradas para el estudio de los coeficientes de acople magneto-elástico (capítulo 5)

El método de deflexión de cantilever, utilizado para medir los coeficientes de acople magneto-elástico (ver capítulo 2), demanda muestras que posean un sustrato lo más delgado posible. Por esta razón se fabricó una nueva serie de muestras sobre un sustrato ZnSe/GaAs(001) de 100 μ m de espesor. Los *films* de Fe_{1-x}Ga_x fueron depositados por MBE sobre una capa de ZnSe terminada en Zn con reconstrucción c(2 × 2). Al igual que en los casos anteriores, el ZnSe se utilizó para separar el galfenol del sustrato y evitando su reactividad. La temperatura del sustrato se mantuvo constante para todas las composiciones: 180 °C. Los espesores de las películas delgadas están entre 50 y 100 nm para todas las muestras. Luego del depósito del FeGa, las muestras se transfirieron desde la cámara de MBE a otra cámara interconectada de UHV, donde su composición fue analizada por XPS. Finalmente, los films fueron cubiertos con una capa de oro protectora de 5 nm.

Posteriores estudios de XRD se realizaron para determinar los parámetros de red de las muestras utilizando radiación Cu K α en un difractómetro Philips X'Pert MRD. La magnetización de saturación M_s se extrajo de mediciones de VSM a temperatura ambiente. La tabla 3.3 exhibe los datos de esta serie de muestras.

La figura 3.3 muestra la distorsión c/a de este grupo de muestras en comparación con los dos grupos de muestras anteriores. La línea c/a=1 marca el caso de una estructura cúbica. Se puede observar que la mayoría de las muestras de esta serie presentaron una distorsión menor que los otros grupos de muestras. Se puede decir que salvo en dos casos, las muestras son casi cúbicas. En todo el grupo de muestras la distorsión alcanza como valor extremo un 2.7%. El hecho de que la mayoría de las muestras sean casi cúbicas permite que las mediciones de los coeficientes de acople magneto-elástico sean más directas y sencillas de analizar.

Muestra	$\begin{array}{ c }\hline T_{Ga}\\ (C)\end{array}$	x	Espesor (nm)	Rótulo	a (nm)	c (nm)	$M_s \ ({ m emu}/{ m cm}^3)$
32m100	-	$0,000 \pm 0,005$	55 ± 3	0,000-55nm	0,286000	0,28600	1600 ± 160
32m099	710	$0,\!135\pm 0,\!005$	95 ± 6	0,135-95nm	0,288460	0,28846	1200 ± 120
32m0107	715	$0,139 \pm 0,005$	59 ± 2	0,139-59nm	0,287430	0,29166	1100 ± 110
32m098	720	$0,142 \pm 0,005$	60 ± 5	0,142-60nm	0,289460	0,29022	1300 ± 130
32m0103	725	$0,157 \pm 0,005$	61 ± 5	0,157-60nm	0,286270	0,29417	1000 ± 100
32m097	730	$0,199 \pm 0,005$	73 ± 4	0,199-73nm	0,290800	0,29188	1000 ± 100
32m0106	735	$0,246 \pm 0,005$	67 ± 2	0,246-67nm	0,290715	0,29188	1300 ± 130

Tabla 3.3: Muestras utilizadas para la medición de los coeficientes de acople magneto-elástico. Se exhiben el nombre de la muestra, T_{Ga} que representa la temperatura de la celda de Ga durante el crecimiento, x que es la concentración relativa de Ga, un rótulo elegido para cada muestra, $a \ y \ c$ que son los parámetros de red dentro y fuera del plano respectivamente y M_s que es la magnetización de saturación.



Figura 3.3: Figura 3.2 donde se ha añadido la distorsión c/a de las muestras utilizadas para la medición del acople magneto-elástico.

Capítulo 4

Anisotropías Magnéticas

4.1. Introducción

Las constantes de anisotropía magnética cuantifican la dependencia espacial de las propiedades magnéticas de un material. En ausencia de campo magnético, un material isotrópico no tendrá una dirección preferencial para alinear sus momentos magnéticos, mientras que un material anisotrópico, tenderá a alinear sus momentos con el eje de fácil magnetización.

En este capítulo presentaremos los resultados de las anisotropías magnéticas de un grupo de películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ crecidas sobre un sustrato ZnSe/GaAs(001) en función del espesor, la concentración y la estructura atómica.

Como se explicó en el capítulo 3, estas muestras poseen una fuerte distorsión tetragonal. En una segunda etapa se procedió a comparar los resultados de estas muestras con los obtenidos para estructuras relajadas, muy próximas a ser cúbicas. Para esto se utilizaron muestras crecidas sobre $SrTiO_3$ (STO) y muestras sobre ZnSe recocidas.

En primer lugar explicaremos brevemente las contribuciones anisotrópicas a la energía magnética que pueden llegar a estar presentes en nuestras películas. Luego haremos un resumen de las anisotropías en hierro puro, comenzando por el material masivo para luego pasar a las modificaciones que sufren cuando el Fe es crecido como película delgada sobre ZnSe. Luego introduciremos el sistema $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo y finalmente pasaremos a describir nuestros resultados para las películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ sobre ZnSe y sobre STO.

4.1.1. Contribuciones a la energía magnética en películas delgadas de espesores nanométricos

En un sistema nanométrico, como es el caso de nuestras películas delgadas, habrá distintos términos de la energía libre que dependen de la orientación y/o intensidad de la magnetización \vec{M} : el término Zeeman, el factor de forma, la anisotropía magnetocristalina y la anisotropía inducida por tensiones.

A continuación se explicarán sintéticamente cada una de estas contribuciones eligiendo como sistema de referencia el que se presenta en la figura 4.1. Allí se muestra la magnetización $\vec{M} = M_s(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3)$ donde α_1 ,



Figura 4.1: Sistema de coordenadas elegido. Figura extraída de la referencia [60].

 α_2 y α_3 son sus cosenos directores y se definen por: $\alpha_1 = \operatorname{sen}\theta \cos\phi$, $\alpha_2 = \operatorname{sen}\theta \operatorname{sen}\phi$ y $\alpha_3 = \cos\theta$.

Energía Zeeman

La energía Zeeman, en el sistema internacional y en el vacío se define como:

$$U^{Zeeman} = -\mu_0 M \int \vec{H} \cdot \vec{m}(\vec{r}) dv \tag{4.1}$$

donde $\vec{m}(\vec{r}) = \vec{M}/M_s$. Al ser \vec{M} uniforme en el espacio su expresión se reduce a $-\mu_0 \vec{H} \cdot \vec{M} = -\vec{B} \cdot \vec{M}$. Como se puede observar, este término favorecerá la alineación de \vec{M} con el campo aplicado \vec{B} .

Factor de forma

Si se magnetiza un material ferromagnético y luego se remueve el campo aplicado, usualmente se observa que el material queda magnetizado. Sobre la superficie quedan dipolos no compensados que provocan la aparición de un campo magnético dentro del material, opuesto al campo aplicado originalmente, y que tiende a demagnetizar la muestra (ver figura 4.2). El campo demagnetizante \vec{H}_d es proporcional a la magnetización que le da origen, es decir $\vec{H}_d = -\bar{N}\vec{M}$. Al tensor de proporcionalidad \bar{N} se lo conoce como el tensor demagnetizante. Siempre se cumple la condición $Tr(\bar{N}) = 1$ en el sistema internacional.



Figura 4.2: Campo demagnetizante H_d en un elipsoide. Se aplica campo externo \vec{H}_0 que produce una distribución de polos en la superficie, lo cual da origen a un campo demagnetizante \vec{H}_d en el interior del material.



Figura 4.3: Elipsoide achatado, el eje a es mucho menor que el eje b, que es igual al eje c.

Para un elipsoide achatado, como el que se presenta en la figura 4.3 (el eje *a* es mucho menor que el eje *b*, que es igual al eje *c*), el tensor \overline{N} resulta diagonal y sus elementos son:

$$N_a \approx 1; \quad N_b = N_c = \frac{\pi}{r};$$
 (4.2)

donde r = c/a. El caso de películas delgadas suele aproximarse por este del elipsoide achatado. Normalmente, en *films* se cumple r > 1000 con lo cual, dos componentes

del tensor serán despreciables.

La energía correspondiente a factor demagnetizante, U^d , se define como:

$$U^{d} = -\frac{\mu_{0}}{2} \int \vec{H^{d}} \cdot \vec{M} dv = \frac{\mu_{0}}{2} \vec{M} \cdot \bar{\vec{N}} \cdot \vec{M}$$

$$\tag{4.3}$$

En el caso de la película delgada con el eje z fuera del plano se reducirá a $U^d = \frac{\mu_0}{2} M_z^2$.

Anisotropía magnetocristalina

En un sólido cristalino, los orbitales de los electrones desapareados se ven fuertemente influenciados por el campo cristalino, produciendo esto, en muchos casos, una anulación del momento orbital. Este efecto se conoce como quenching del momento orbital y es especialmente significativo en los elementos 3d [61]. Debido a este hecho, el acople espín-órbita, que normalmente es pequeño, cobra gran importancia y refleja la simetría de la red cristalina.

La anisotropía magnetocristalina, tiene su origen en este acople y describe la preferencia de la magnetización por diferentes direcciones cristalográficas relevantes del sistema. Deducir las anisotropías a partir de expresiones analíticas resulta muy complicado razón por la cual se recurre a expresiones fenomenológicas. Normalmente, se realizan expansiones del término de energía asociado a esta anisotropía, en armónicos esféricos y rara vez se necesita más que el cuarto término para modelar el sistema adecuadamente. Con esta aproximación, teniendo en cuenta que la expresión deberá tener simetría de rotación de 180 grados, y conservando hasta cuarto orden en los α_i , la energía asociada a la anisotropía magneto-cristalina U^{MCA} se puede escribir como [62]:

$$U^{MCA} = \sum_{i,k=1}^{3} \left(\beta_{ik} \alpha_i \alpha_k + \delta_{ik} \alpha_i^2 \alpha_k^2 \right)$$
(4.4)

donde β_{ik} y δ_{ik} son las constantes de anisotropía.

A continuación procederemos a especializar esta ecuación para los casos de un sistema con anisotropía cúbica y otro con simetría tetragonal ya que son de especial interés para modelar nuestros sistemas.

Sistema con simetría cristalina cúbica

El caso de un sistema con simetría cristalina cúbica, como el que se muestra en la figura 4.4, se encuentra ampliamente desarrollado en la literatura y una buena descripción puede hallarse en la referencia [63]. La contribución a la energía magnética en este caso U^c estará dada por:



Figura 4.4: Estructura cúbica y sus ejes principales.

$$U^{c} = K_{0}^{c} + K_{4}^{c}(\alpha_{1}\alpha_{2} + \alpha_{2}\alpha_{3} + \alpha_{3}\alpha_{1}) + K_{6}^{c}\alpha_{1}^{2}\alpha_{2}^{2}\alpha_{3}^{2} + \dots$$
(4.5)

donde K_o^c hace referencia a la constante de anisotropía cúbica de orden o en los α_i . K_0^c es un término sin dependencia angular por lo cual será despreciado. Según los valores de K_4^c y K_6^c los ejes de fácil, media y difícil magnetización estarán en las direcciones [100], [110] o [111], como se detalla en la tabla 4.1 [63].

TTO	0		0	0	0	0
K_4^c	>0	> 0	> 0	< 0	< 0	< 0
K_6^c	$> -\infty$	$> -9K_4^c$	$> -\frac{9}{4}K_4^c$	$> -\infty$	$> \frac{ K_4^c }{4}$	$> K_4^c $
	$< -9K_{4}^{c}$	$< -\frac{9}{4}K_4^c$	$< +\infty$	$ < \frac{9 K_4^c }{4}$	$ < K_{4}^{c} $	$ $ $< +\infty$
Fácil	[111]	[100]	[100]	[111]	[110]	[110]
Medio	[100]	[111]	[110]	[110]	[111]	[100]
Difícil	[110]	[110]	[111]	[100]	[100]	[111]

Tabla 4.1: Ejes de fácil, media y difícil magnetización de la anisotropía cúbica dependiendo de los valores de K_4^c y K_6^c [63].

Sistema con simetría cristalina tetragonal

Para una estructura tetragonal, como la que se muestra en la figura 4.5, manteniendo términos hasta el orden cuatro en los α_i , podemos escribir la energía magnetocristalina U^t como :



Figura 4.5: Estructura tetragonal.

$$U^{t} = K_{0}^{t} + K_{2}^{t(z)}\alpha_{3}^{2} + K_{4}^{t(x,y)}\alpha_{1}^{2}\alpha_{2}^{2} + K_{4}^{t(z)}\alpha_{3}^{4}$$
(4.6)

donde $K_o^{t(pl)}$ se refiere a la constante de anisotropía tetragonal de orden *o* relacionada a la proyección de la magnetización en las direcciones *p* y *l*. El término de orden cero (K_0^t) no posee dependencia angular y por lo tanto será ignorado. En nuestro caso el término de orden 2 en α_3 es suficiente para modelar las mediciones y por lo tanto despreciaremos el término en α_3^4 . En estas condiciones se obtiene:

$$U^{t} = K_{2}^{t(z)} \alpha_{3}^{2} + K_{4}^{t(x,y)} \alpha_{1}^{2} \alpha_{2}^{2}$$

$$(4.7)$$

La simetría planteada puede distinguir entre tres posibles ejes fáciles: [100], [110] y [001]. Siguiendo el análisis presentado para la anisotropía cúbica en [63], reescribimos U^t cuando la magnetización se encuentra a lo largo de cada unos de estos ejes y obtenemos la tabla 4.2.

Dirección	α_1	α_2	α_3	U_t
[100]	1	0	0	0
[110]	$\frac{1}{\sqrt{2}}$	$\frac{1}{\sqrt{2}}$	0	$\frac{1}{4}K_4^{t(xy)}$
[001]	0	0	1	$K_2^{t(z)}$

Tabla 4.2: U^t para diferentes direcciones cristalográficas.

Dependiendo de los valores de las constantes de anisotropía el eje de fácil magnetización será el [100], el [110] o el [001] según la tabla 4.3.

	$K_4^{t(xy)} > 0$	$K_4^{t(xy)} > 0$	$K_4^{t(xy)} > 0$
	$K_2^{t(z)} < 0$	$0 < K_2^{t(z)} < \frac{1}{4} K_4^{t(xy)}$	$K_2^{t(z)} > \frac{1}{4} K_4^{t(xy)}$
Fácil	[001]	[100]	[100]
Medio	[100]	[001]	[110]
Difícil	[110]	[110]	[001]
	$K_4^{t(xy)} < 0$	$K_4^{t(xy)} < 0$	$K_4^{t(xy)} < 0$
	$K_2^{t(z)} < \frac{1}{4}K_4^{t(xy)}$	$\frac{1}{4}K_4^{t(xy)} < K_2^{t(z)} < 0$	$K_2^{t(z)} > 0$
Fácil	[001]	[110]	[110]
Medio	[110]	[001]	[100]
D . C. 1	F	[t o o]	[004]

Tabla 4.3: Ejes de fácil, media y difícil magnetización dependiendo de los valores de $K_2^{t(z)}$ y $K_4^{t(xy)}$.

Reescribiendo la ecuación (4.7) en el sistema de coordenadas de la figura 4.1:

$$U^{t} = K_{2}^{t(z)} \cos^{2}\theta + \frac{1}{4} K_{4}^{t(xy)} \sin^{4}\theta \sin^{2}2\phi$$
(4.8)



Figura 4.6: Variación angular de la energía libre en el caso de considerar una anisotropía tetragonal, calculada para el caso de campo magnético aplicado en el plano del film ($\theta = \pi/2$). Se tomó $K_4^{t(xy)} = 1$ J/m³. El ángulo $\phi = 0$ coincide con la dirección [100].

La figura 4.6 presenta la variación angular de este término de energía, calculada para el caso de campo magnético aplicado en el plano ($\theta = \pi/2$). Se tomó $K_4^{t(xy)} = 1$ J/m³. Se puede observar que la variación tiene simetría de eje-4, es decir que el período es de $2\pi/4$.

Anisotropía inducida por tensiones: magneto-elástica

Como se explicará en el capítulo 5, el acople magneto-elástico puede producir una anisotropía si el sistema se encuentra tensionado. Este es el caso de nuestras muestras, debido al desajuste con el sustrato como se detalla en el capítulo 3. La expresión para la energía magneto-elástica U^{me} en una estructura cúbica es (ver capítulo 5):

$$U^{me} = -B_1(\alpha_1^2 \epsilon_{xx} + \alpha_2^2 \epsilon_{yy} + \alpha_3^2 \epsilon_{zz}) - B_2(\alpha_1 \alpha_2 \epsilon_{xy} + \alpha_1 \alpha_3 \epsilon_{xz} + \alpha_2 \alpha_3 \epsilon_{yz})$$
(4.9)

donde ϵ_{ij} es el elemento ij del tensor de deformación, B_1 y B_2 son las constantes de acople magneto-elástico. En nuestro caso $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$ y $\epsilon_{xy} = \epsilon_{xz} = \epsilon_{yz} = 0$, como fue verificado por experimentos de difracción de rayos-x. En estas condiciones y recordando la relación $\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 = 1$ se cumple:

$$U^{me} = B_1(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)\epsilon_{xx} + B_1\alpha_3^2\epsilon_{zz}$$

= $B_1(1 - \alpha_3^2)\epsilon_{xx} + B_1\alpha_3^2\epsilon_{zz}$
= $B_1\epsilon_{xx} + \underbrace{B_1(\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx})}_{K^{me}}\alpha_3^2$ (4.10)

Se puede observar que resulta una anisotropía K^{me} de magnitud $B_1(\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx})$. Dependiendo del signo esta anisotropía tenderá a alinear la magnetización fuera del plano (caso negativo) o dentro del mismo (caso positivo).

Contribuciones de volumen y superficie

Para películas delgadas crecidas sobre sustratos es usual encontrar que, para las distintas anisotropías, hay una parte de ellas que es función del espesor d. Normalmente se encuentra la dependencia 1/d. A esta contribución se la denomina "de superficie". A la parte que no depende del espesor se la llama contribución "de volumen".

4.1.2. Anisotropía magnética en Fe puro

En esta sección detallaremos las anisotropías presentes en Fe puro masivo y luego explicaremos cómo se modifican cuando el Fe se crece como película delgada sobre ZnSe.

Fe masivo

El hierro masivo sólo presenta anisotropía magnetocristalina cúbica. Por lo tanto, recordando la ecuación (4.5) las constantes de anisotropía relevantes son K_4^c y K_6^c que resultan 4.8×10^4 J/m³ y 0.5×10^4 J/m³ respectivamente [63].

Fe crecido en películas delgadas sobre ZnSe

Cuando el hierro se crece como película delgada sobre una capa fina de ZnSe la anisotropía cúbica se modifica para tener una contribución de volumen y otra de superficie. Esto se debe a que en la primeras capas, la película intentará copiar la estructura del sustrato. A medida que aumenta el espesor la estructura se irá relajando hacia los parámetros del material masivo. Por esto se genera una contribución de superficie que será inversamente proporcional al espesor. Para el caso particular de Fe/ZnSe podemos decir que la contribución de volumen aparece luego de los 2 monocapas atómicas [64] con el eje fácil en la dirección [100] y un valor entre $4,5 \times 10^4$ y $6,3 \times 10^4$ J/m³ [65–67]. La contribución de superficie es muy pequeña y se puede despreciar [68].



Figura 4.7: a)Estructura zinc-blenda del ZnSe(001). Se pueden observar planos compuestos totalmente de átomos de Zn y planos formados sólo por átomos de Se. b) Estructura de enlaces libres para una estructura terminada en un plano de Zn. Los enlaces libres libres quedan alineados en la dirección [110]. c) Estructura de enlaces libres para una estructura terminada en un plano de Se. Los enlaces libres libres quedan alineados en la dirección [110].

Por otra parte la interfaz con el sustrato añade una anisotropía extra. El ZnSe tiene estructura zinc-blenda y crecido en la dirección (001) tendrá planos compuestos totalmente de átomos de Zn y planos compuestos sólo de átomos de Se. Como se muestra en la figura 4.7, dependiendo de si el crecimiento termina en un plano de Zn o en un plano de Se, los enlaces libres quedan alineados todos en la dirección [110] o $[1\bar{1}0]$ respectivamente. Esta particularidad introduce una dirección preferencial para la magnetización en el eje de los enlaces libres [69]. En realidad, dado que estos enlaces se encuentran a 45 grados del plano de la muestra, pueden generar un eje de fácil magnetización dentro del plano y otro fuera del plano. De forma fenomenológica se

modelan estos efectos introduciendo en la energía libre, un término de anisotropía uniaxial en el plano $K_u^{DB(IP)} \operatorname{sen}^2 \theta \operatorname{cos}^2(\phi - \phi_u)$ y otro fuera del plano $K_u^{DB(OP)} \operatorname{cos}^2 \theta$. $K_u^{DB(IP)}$ y $K_u^{DB(OP)}$ son las constantes de anisotropía uniaxial dentro y fuera del plano respectivamente, relacionadas a los enlaces libres y ϕ_u vale $\pi/4$ cuando el eje fácil introducido es el [110] y $-\pi/4$ cuando se introduce el [110]. La nomenclatura "uniaxial" significa que mediante esta expresión se está introduciendo un sólo eje fácil en el sistema.



Figura 4.8: Variación angular de la energía libre en el caso de considerar una anisotropía tetragonal más una anisotropía uniaxial en el plano, calculada para el caso de campo magnético aplicado en el plano ($\varphi_H = \pi/2$). Se tomó $K_4^{t(xy)} = 1$ J/m³ y $K_u^{IP} = 0.1$ J/m³.

A modo ilustrativo, graficamos en la figura 4.8 la variación angular de la energía libre cuando consideramos una anisotropía tetragonal más una anisotropía uniaxial, en el caso de campo magnético aplicado en el plano ($\phi_H = \pi/2$). El eje fácil de la anisotropía tetragonal fue colocado en la dirección [100] y el eje fácil de la uniaxial en la [110]. Se tomaron $K_4^{t(xy)}=1$ J/m³ y $K_u^{IP}=0,1$ J/m³. Se puede ver, en comparación con la figura 4.6, que ahora hay dos tipos de máximo diferentes, y que la superposición de estas dos anisotropías da como resultado una simetría de eje-2. Esto significa que el período en la variación angular es de $2\pi/2$.

Pasando a los datos encontrados en la bibliografía, podemos decir que $K_u^{DB(IP)}$ posee el eje fácil en la dirección [110] y el difícil en la [110] y sus valores están entre 3.2×10^{-5} y 5.9×10^{-5} J/m³ [66, 67]. $K_u^{DB(OP)}$ tiene valores muy altos para espesores entre 0 y 5 nm (del orden de 10⁵ o 10⁶ J/m³) y se reduce muy rápidamente luego de 15 nm [58, 65, 70].

4.1.3. Anisotropía magnética en $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo

Las constantes de anisotropía para $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo, fueron medidas por primera vez en 2004 [71]. Los resultados en función de la concentración de Ga se presentan en la figura 4.9.



Figura 4.9: a) Constante de anisotropía cúbica K_1 para $\operatorname{Fe}_{1-x}\operatorname{Ga}_x$ masivo. Esta constante corresponde a K_4^c en la ecuación (4.5). b) Constante de anisotropía cúbica K_2 para $\operatorname{Fe}_{1-x}\operatorname{Ga}_x$ masivo. Esta constante corresponde a K_6^c en la ecuación (4.5). Ambas figuras fueron extraídas de la referencia [71].

La constante K_1 corresponde a nuestra constante K_4^c en la ecuación (4.5). Se puede observar que esta constante aumenta, en comparación con la del Fe, al adicionar una leve cantidad de Ga. Luego decrece con la concentración hasta hacerse negativa en x = 0, 20. Los valores de K_4^c y K_6^c indican, según la tabla 4.1, que para x = 0, 20 hay una rotación del eje fácil que antes estaba de la dirección [100] a la [110].

El decrecimiento de la anisotropía pudo ser modelado más tarde, en 2007 por Cullen [2]. En este modelo se propone la presencia de pares Ga-Ga distribuidos isotrópicamente en la familia de direcciones <100>. Los autores explican que estos pares pueden modificar los momentos de los átomos de Fe vecinos introduciendo de esta manera una anisotropía local efectiva, paralela o perpendicular al eje del par. Para este modelo, el hecho de que la anisotropía generada por el par sea paralelo o perpendicular al eje del defecto, produce el mismo resultado final. La suma de todas las anisotropías locales producidas por los pares termina por introducir en la red un grado de desorden que hace decrecer la anisotropía cúbica. Lógicamente, a mayor concentración de Ga, se formarán más pares, el grado de desorden introducido será mayor y la anisotropía cúbica se verá mas disminuida (ver apéndice A).

4.1.4. Modelado de la energía libre magnética del sistema

Teniendo en cuenta la contribución Zeeman, el factor de forma, la simetría tetragonal, una anisotropía uniaxial en el plano y otra fuera del plano, se obtiene, para la densidad de energía libre del sistema, una expresión de la forma:

$$U = -\vec{B}\vec{M} + \frac{\mu_0}{2}M^2\cos^2\theta + \frac{1}{4}K_4^{t(xy)}\sin^4\theta\sin^22\phi + K_u^{OP}\cos^2\theta + K_u^{IP}\sin^2\theta\cos^2\left(\phi - \frac{\pi}{4}\right)$$

$$(4.11)$$

donde $K_4^{t(xy)}$ es la anisotropía tetragonal, K_u^{OP} es la anisotropía fuera del plano y K_u^{IP} es la anisotropía uniaxial en el plano. \vec{M} es el vector magnetización, \vec{B} es el campo externo y los ángulos θ y ϕ corresponden al sistema de coordenadas presentado en la figura 4.1.

 K_u^{OP} contendrá las contribuciones de K^{me} , $K_u^{DB(OP)}$ y $K_2^{t(z)}$ ya que todas poseen la misma dependencia angular. No seremos capaces de discriminar cada una de ellas a partir de las mediciones y en consecuencia, no podremos comparar $K_4^{t(xy)}$ con $K_2^{t(z)}$ para situarnos en la posición adecuada de la tabla 4.3. Sólo podremos distinguir los casos $K_4^{t(xy)} > 0$ y $K_4^{t(xy)} < 0$,

A continuación, resumimos el significado de los signos para cada anisotropía:

- $K_u^{(OP)} > 0$ favorece la magnetización en el plano $K_u^{(OP)} < 0$ favorece la magnetización fuera del plano
- si $K_4^{t(xy)} > 0$ entonces [100] es mas fácil que [110]

si $K_4^{t(xy)} < 0$ entonces [100] es mas difícil que [110]

• $K_u^{(IP)} < 0$ introduce un eje fácil en la dirección [110] $K_u^{(IP)} > 0$ introduce un eje fácil en la dirección [110]

4.2. Método experimental

Se realizó un estudio de las anisotropías magnéticas del sistema $Fe_{1-x}Ga_x$ crecido como película delgada mediante experimentos FMR a temperatura ambiente. La técnica fue descripta en el capítulo 2.

Las anisotropías se estudiaron en función del espesor d, del contenido de galio x y también de la estructura atómica. Se utilizó un grupo de muestras crecidas por MBE como se detalla en el capítulo 3 sobre ZnSe(001), de distintos espesores (2 nm, 4 nm, 6 nm, 18 nm, 36 nm y 70 nm) y distintas concentraciones (0,00, 0,14, 0,18, 0,20 y 0,29).

Como se especificó en el capítulo 3 estas muestras poseen una fuerte distorsión tetragonal que se relaja luego del recocido. Esta distorsión tetragonal fue atribuida a la formación de pares de Ga fuera del plano (o sea en la dirección [001])[59]. El hecho de que se pierda esta distorsión luego del recocido indicaría que estos pares sufren un reordenamiento durante este proceso, o sea la estructura atómica antes y después del recocido es diferente. Para estudiar cómo afecta el recocido a las anisotropía magnéticas, se analizaron mediciones sobre dos muestras recocidas: 0,18-36nm-Rec y 0,29-36nm-Rec.

Finalmente se estudiaron también tres muestras crecidas sobre un sustrato STO: 0,00-36nm-STO, 0,03-36nm-STO y 0,11-36nm-STO. Sobre este sustrato las muestras crecen sin distorsión, es decir tienen estructura cúbica, como se especifica en el capítulo 3. Esto nos permitió completar el estudio del efecto de la compresión ejercida por el sustrato sobre las anisotropías magnéticas.

Se realizaron mediciones de FMR a temperatura ambiente en un espectrómetro Bruker ESP-300 en banda-K ($f \sim 24$ GHz). La razón para la elección de esta banda radica en la necesidad de que la resonancia magnética, se produjera para un campo magnético donde las muestras estuvieran saturadas (mayor a 2500 Oe en nuestro caso); fuera de esta situación, el sistema presenta dominios magnéticos y los espectros de resonancia son mucho más complejos de analizar. Como se explicó en el capítulo 2 el campo de resonancia variará según la banda de trabajo elegida y por lo tanto elegimos la banda-K para cumplir el objetivo recién detallado.

Se midió la variación del campo de resonancia H_{res} con el ángulo en el plano de aplicación del campo externo, ϕ_H en la figura 4.1. Recalcamos que el campo externo fue aplicado siempre en el plano de la muestra.

Para obtener las constantes de anisotropía a partir de los diagramas H_{res} vs. ϕ_H se utilizó el procedimiento iterativo explicado en el capítulo 2, el cual involucra a las ecuaciones de Smit-Beljers [43] que a su vez involucran derivadas de la energía libre.

La expresión de la energía libre contiene la magnetización de saturación M_s . Este dato fue medido para todas las muestras utilizando en algunos casos un SQUID)y en otros un VSM. Los datos de M_s para todas las muestras se presentaron en el capítulo 3 (ver tabla 3.2).

4.3. Resultados

En primer lugar presentaremos casos representativos de los espectros de FMR y de los diagramas de H_{res} vs. ϕ_H para ejemplificar su morfología en los sistemas estudiados. Luego, pasaremos a explayar los resultados de las anisotropías magnéticas en función del espesor, concentración y estructura atómica.

4.3.1. Espectros de FMR y diagramas H_{res} vs. ϕ

La figura 4.10 muestra los espectros de resonancias obtenidos para la muestra 0,14-36nm. Se muestran los resultados para el campo aplicado en los ejes $[100], [110] y [1\overline{1}0] ya que corresponden$ a puntos extremos para esta muestra. El eje 100 tiene su resonancia en un campo menor que los demás ejes. Esto implica, en nuestro caso particular, en el que trabajamos con las muestras en saturación, que alinear la magnetización en esta dirección cuesta menos energía que en otras direcciones. Con este razonamiento, el eje [100] es el eje fácil, el eje [110] es intermedio y el eje $[1\overline{1}0]$ es difícil. Ajustando estos espectros con derivadas de Lorentzianas (ver capítulo 2)



Figura 4.10: Espectros de FMR para la muestra 0,14-36nm. Los espectros corresponden al campo externo aplicado en las direcciones [100], [110] y $(1\overline{10})$.

pudimos determinar H_{res} en cada caso. Con estos datos se construyeron los diagramas H_{res} vs. ϕ_H .

La figura 4.11 muestra estos diagramas para muestras de 36nm de tres concentraciones diferentes: Fe puro, x=0,14 y x=0,29. La primera observación que hacemos es la clara presencia de anisotropías en estos sistemas. Se puede observar claramente un eje-4 para todos los casos. Las dos muestras de menor concentración muestran los máximos en las mismas posiciones (familia de direcciones <100>) mientras que la muestra res-



Figura 4.11: Diagrama H_{res} vs. ϕ_H para tres muestras de 36nm y distinta concentración.

tante tiene los máximos desplazados en 45° (familia de direcciones <110>). El análisis de este comportamiento será detallado posteriormente. Por comparación de los diagramas con la figura 4.8 podemos deducir la presencia de una anisotropía uniaxial en el plano para las dos muestras de menor concentración.

Otra observación importante es el desplazamiento del valor medio de las curvas, a mayor concentración mayor valor medio. Teniendo en cuenta la expresión de la energía libre (4.11), este efecto se puede deber a una disminución de M_s , un aumento en K_u^{OP} o a una combinación de ambos.

4.3.2. Anisotropías magnéticas en muestras crecidas sobre Zn-Se(001)

La figura 4.12 presenta los resultados de $K_4^{t(xy)}$ vs. espesor para diferentes concentraciones de Ga.

En primer lugar podemos destacar que las mediciones de todas las concentraciones verifican el mismo signo que en el material masivo a la concentración equivalente. Esto significa que las películas delgadas presentan el mismo eje fácil que el material masivo. Es importante notar la rotación del eje fácil que se produce para x=0,20, éste pasa de estar en la dirección [100] a la dirección [110]. El mismo efecto se verifica en el *bulk* [71].

Para las tres concentraciones medidas, esta anisotropía tiende a incrementar su módulo con el espesor al igual que el hierro. Por otra parte, para éste parece alcanzar una saturación luego de 20 nm mientras que para $Fe_{1-x}Ga_x$ crece lentamente con el



Figura 4.12: $K_4^{t(xy)}$ vs. espesor para diferentes concentraciones de galio. También se incluyeron algunas referencias para material masivo [71] y algunas referencias para films de hierro puro (a):[64] (b):[70] (c):[65].

espesor hacia el valor *bulk* correspondiente. Para explicar este efecto se puede pensar en una contribución de superficie, pero descartamos esta posibilidad ya que este tipo de término debería anularse luego de 20 nm típicamente. Como ejemplo, citamos el caso de films de Fe/ZnSe donde , para espesores mayores a 15 nm la contribución de superficie es menor al 5% [64, 65, 70]. También notamos que las muestras de 18 nm presentan valores de $K_4^{t(xy)}$ más cercanos a los del *bulk* que las muestras de 36 nm. Este hecho refuerza el complejo escenario recién expuesto.



Figura 4.13: $K_u^{(IP)}$ vs. espesor para diferentes concentraciones de galio.

La figura 4.13 muestra las mediciones del término $K_u^{(IP)}$. En primer lugar podemos observar, para las tres concentraciones, una tendencia de esta anisotropía a anularse con el espesor, al igual que se observa en los films de Fe/ZnSe. Para espesores altos

 $K_u^{(IP)}$ tiene el mismo eje fácil que los films de Fe/ZnSe. Estos dos hechos confirman una contribución a esta anisotropía del mismo origen microscópico interfacial que para los films de Fe/ZnSe (ver sección 4.1.2). Sin embargo existen dos cambios de signo, el primero ocurre para espesores pequeños (2-4 nm) y representa una rotación del eje fácil de esta anisotropía, que luego vuelve a su posición original para espesores mayores a 18 nm. Estos dos cambios de signo indican que $K_u^{(IP)}$ no es sólo de origen interfacial si no que hay otra contribución en juego. Este es un hecho novedoso que distingue nuestro sistema del Fe/ZnSe.

No hemos podido descifrar la causa de estas dos rotaciones. Un posible ingrediente es el cambio de la estructura interfacial debido a la adición de Ga. Cabe notar también que la rotación se produce en 4 nm en la concentración de de x = 0, 14 y en 6 nm en la concentración de x = 20, esto es, la muestra de menor concentración sufre la rotación a un espesor menor que la muestra de mayor concentración. Este hecho complica aún más la interpretación de esta anisotropía. Posiblemente, cálculos ab-initio para estudiar la interfaz FeGa/ZnSe podrían ayudar a entender esta dinámica.

El segundo hecho que distingue a los films de FeGa/ZnSe de los de Fe/ZnSe es el valor, aproximadamente cuatro veces mayor de $K_u^{(IP)}$ para la muestra 0,20-36nm.

Comportamientos anómalos de esta anisotropía con el espesor se han reportado en películas de Fe/GaAs (sin la capa de ZnSe). En esos casos se observó una reducción inesperada de los valores de $K_u^{(IP)}$ [68]. Este decrecimiento fue atribuido a la competición entre dos posibles terminaciones del GaAs (Ga o As) cada una de las cuales generaría una anisotropía perpendicular a la otra (siempre en el plano de la muestra). Esta competición resultaría en una constante de anisotropía efectiva reducida. De todas maneras, éste no parece ser nuestro caso, ya que para espesores mayores a 18 nm, casi todas las muestras (excepto por la 0,20-36nm) presentan valores similares a los del Fe/ZnSe. Además, la interfaz Fe/ZnSe se caracteriza por no presentar escalones en las terminaciones de Zn o Se. Por otra parte, en la referencia [72] se muestra que, en Fe/ZnSe esta anisotropía es muy sensible a la reconstrucción de la interfaz, pudiendo llegar hasta a duplicar su valor.

La figura 4.14 presenta los resultados para la anisotropía fuera del plano K_u^{OP} . Primero, vale la pena destacar que los valores son, para los espesores más grandes, al menos, un orden de magnitud mayores que los reportados para Fe/ZnSe. También podemos observar que el módulo de esta constante aumenta con la concentración y ,en promedio, decrece con el espesor, salvo alrededor de 36 nm donde se produce un aumento local. Los valores para espesores pequeños coinciden los del Fe/ZnSe.

Como se explicó en las secciones anteriores, existen distintas fuentes para esta anisotropía: la contribución relacionada a la interfaz $K_u^{DB(OP)}$, la del acople magneto-elástico K^{me} y la magnetocristalina $K_2^{t(z)}$. $K_u^{DB(OP)}$ se reduce muy rápidamente luego de 20 nm de espesor para films de Fe/ZnSe. Por esta razón descartaremos esta contribución



Figura 4.14: K_u^{OP} vs. espesor para diferentes concentraciones de galio. También se incluyeron algunas referencias para films de Fe/ZnSe (a):[64] (b):[70] (c):[65].

ya que la consideraremos despreciable en comparación con las otras dos.

La contribución K^{me} puede ser calculada debido a que conocemos la deformación dentro y fuera del plano ϵ_{xx} y ϵ_{zz} respectivamente. Como se reportó en la sección 4.1.1 $K^{me} = -B_1(\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx})$ donde B_1 es el coeficiente de acople magneto-elástico tetragonal. Como se detalla en el capítulo 5, este coeficiente puede variar con el espesor y sobre todo puede ser muy distinto en películas delgadas que en material masivo. En ese mismo capítulo se presentan los valores medidos de B_1 para muestras de alrededor de 75 nm. Interpolando estos resultados hemos obtenido los coeficientes B_1 para las concentraciones de las muestras de alrededor de 70 nm y con esto hemos realizado el cálculo de K^{me} . Los resultados se exhiben en la tabla 4.4:

Muestra	$B_1~({ m J/m^3})$	$K^{me}~({ m J/m^3})$
0,14-80nm	-5,4	$3,7 \times 10^4$
0,18-55nm	-4,7	$8,8 \times 10^4$
0,20-65nm	-4,2	$8,3 \times 10^4$

Tabla 4.4: Resultados del cálculo de la contribución magneto-elástica a la anisotropía fuera del plano k^{me} , para muestras de espesor cercano a 70 nm.

En todos los casos K^{me} resultó un orden de magnitud menor que $K_u^{(OP)}$ medida. Este resultado es sorprendente ya que los estudios estructurales realizados en estas muestras habían mostrado que la distorsión tetragonal (cociente c/a donde c es el parámetro de red fuera del plano y a el parámetro de red dentro del plano) aumenta con la concentración, al igual que $K_u^{(OP)}$. La manera usual de vincular la deformación con la anisotropía es a través del acople magneto-elástico. Pero los resultados obtenidos nos dicen que éste no es suficiente para explicar la anisotropía.
Para profundizar este punto, se propuso un experimento adicional, en el que se midieron las anisotropías de muestras sin deformar o con una deformación muy pequeña. Se utilizaron dos grupos de muestras que cumplían con este requisito. El primer grupo corresponde a dos muestras recocidas de 36 nm y de concentraciones x=0,18 y x=0,29. Los tratamientos térmicos se encuentran detallados en el capítulo 3 y como allí se explica la muestra 0,16-36nm-Rec posee una distorsión pequeña (c/a=1,015) mientras que la muestra 0,29-36nm-Rec tiene una distorsión que puede considerarse nula (c/a=1,008). El segundo grupo corresponde a tres muestras crecidas sobre un sustrato STO, lo cual hace que sean cúbicas. También en este caso tenían 36 nm de espesor y las concentraciones eran Fe puro, x=0,03 y x=0,11.



Figura 4.15: K_u^{OP} vs. concentración para tres grupos de muestras de 36 nm: muestras crecidas sobre ZnSe, muestras recocidas y muestras crecidas sobre STO.

La figura 4.15 presenta los resultados de este experimento. Si comparamos las muestras originales con las recocidas, notamos un decrecimiento grande en el módulo de esta anisotropía, en el caso de x=0.18 decrece el 56 % y en el caso x=0.29, decrece el 95 %.

En lo que sigue analizaremos la relación entre la anisotropía magneto-elástica y la distorsión antes y después del recocido. Por el lado de la distorsión, la cantidad c/a-1 cuantifica el alejamiento porcentual de la estructura cúbica perfecta (caso en el que c/a vale 1). Si calculamos el cociente de esta cantidad antes y después del recocido γ_{dist} se obtiene:

$$\gamma_{dist} = \frac{(c/a-1)|_{DR}}{(c/a-1)|_{AR}} = \frac{a_{AR}(c-a)_{DR}}{a_{DR}(c-a)_{AR}}$$
(4.12)

donde los subíndices AR y DR significan "antes del recocido" y "después del recocido" respectivamente. Por otra parte, la anisotropía magneto-elástica es proporcional a la cantidad $\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx}$. Luego, si consideramos el coeficiente de acople magneto-elástico se mantiene constante antes y después del recocido, la variación de esta anisotropía estará dada por γ_{me} :

$$\gamma_{me} = \frac{(\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx})|_{DR}}{(\epsilon_{zz} - \epsilon_{xx})|_{AR}} = \frac{c_{AR}a_{AR}(c-a)_{DR}}{c_{DR}a_{DR}(c-a)_{AR}} = \frac{c_{AR}}{c_{DR}}\gamma_{dist}$$
(4.13)

El cociente c_{AR}/c_{DR} es muy cercano a 1 y por lo tanto, si el coeficiente de acople magneto elástico permanece inalterado antes y después del recocido $\gamma_{dist} \sim \gamma_{me}$, como se muestra en la tabla 4.5

x	γ_{dist}	γ_{me}	Reducción esperada en K^{me}
0,18	0,324	0,328	68%
0,29	0,283	0,291	72%

Tabla 4.5: γ_{dist} y γ_{me} calculados para las muestras de x=0,18 y x=0,29. Se presenta también la reducción en porcentaje de la anisotropía magneto-elástica K^{me} .

Los valores que se muestran en esta tabla indican que para ambas muestras hubo una reducción cercana al 70 % en la contribución magneto-elástica. Sin embargo, cuando miramos los valores absolutos de K^{me} y $K_u^{(OP)}$, como se muestra en la tabla 4.6 notamos que K^{me} no es suficiente para explicar la totalidad de $K_u^{(OP)}$. K^{me} se encuentra siempre por debajo (en módulo) de $K_u^{(OP)}$ salvo en el caso de x=0,29 después del recocido. Para calcular esta tabla se extrajeron los B_1 de la interpolación de los valores medidos en el capítulo 5.

		Antes del recocido		Después del recocido			
~	d	B_1	K^{me}	$K_u^{(OP)}$	K^{me})	$K_u^{(OP)}$	Reducción
<i>x</i>	(nm)	(J/m^3)	(J/m^3)	(J/m^3)	(J/m^3)	(J/m^3)	en $K_u^{(OP)}$
0.18	36	-4,2	-11.75×10^4	-49.40×10^4	$-3,95 \times 10^4$	$-28,00 \times 10^4$	43%
0.29	36	-2,1	-10.81×10^4	-21.50×10^4	$-3,16 \times 10^4$	$-0,90 \times 10^4$	96%

Tabla 4.6: Comparación entre K^{me} y $K_u^{(OP)}$ calculadas antes y después del recocido.

Aún nos queda por analizar la contribución magnetocristalina $K_2^{t(z)}$ a $K_u^{t(OP)}$. Como explicamos en la sección 4.1.4 no podemos discriminar esta contribución de las demás. Si la consideramos del mismo orden que la contribución magnetocristalina en el plano $K_4^{t(xy)}$, la suma $K^{me} + K_u^{t(OP)}$ no es suficiente para explicar la $K_u^{(OP)}$ medida.

Por otra parte sabemos que las muestras con sustrato de STO cúbicas, con lo cual, no hay contribución magnetocristalina a la anisotropía fuera del plano y además, $K^{me}=0$ por ser nula la deformación. Sin embargo, la muestra 0,11-36nm-STO tiene una $K_u^{t(OP)}$ distinta de cero.

Toda esta información nos hizo pensar en la posibilidad de alguna otra contribución a esta anisotropía. En la discusión de los resultados (sección 4.4) presentaremos una idea relacionada al desorden introducido en la matriz de hierro, por la formación de pares Ga-Ga para explicar estos datos.



Figura 4.16: $K_4^{t(xy)}$ vs. concentración para tres grupos de muestras de 36 nm: muestras crecidas sobre ZnSe sin recocidas y sin recocer, y muestras crecidas sobre STO.

Por completitud presentaremos las anisotropías restantes $(K_4^{t(xy)} ext{ y } K_u^{(IP)})$ para estos grupos de muestras. En la figura 4.16 se presentan los datos de $K_4^{t(xy)}$. Se puede observar que para las muestras recocidas los valores permanecen alrededor de los de las muestras originales. Para las muestras crecidas sobre STO el cambio de signo (y por la tanto la rotación del eje fácil de la [100] a la [110]) se produce para una concentración menor $(x \approx 0.09)$ que la de las muestras sobre ZnSe $(x \approx 0.17)$.



Figura 4.17: $K_u^{(IP)}$ vs. concentración para tres grupos de muestras de 36nm: muestras crecidas sobre ZnSe, muestras recocidas y muestras crecidas sobre STO.

La figura 4.17 exhibe la anisotropía uniaxial en el plano para los tres grupos de muestras. Para las muestras recocidas se produce un aumento de la misma para x=0,18.

Recordando, como se explicó en la sección 4.1.2, que el origen de esta anisotropía tiene que ver con la distribución orientada de los enlaces libres del sustrato, este último dato implicaría que algo cambia en la interfaz después del recocido. El sustrato STO posee enlaces libres en las dos direcciones perpendiculares y por lo tanto no genera esta anisotropía uniaxial, hecho que se verifica en las mediciones donde resulta cero para todas las concentraciones.

4.4. Discusión

Como explicamos en la sección anterior, $K_u^{(OP)}$ no puede ser explicado en su totalidad por una contribución magneto-elástica y una contribución magnetocristalina. Otro factor que puede influir en las anisotropías es la formación de pares Ga-Ga dentro de la matriz de hierro. Existe un modelo fenomenológico presentado por Cullen et al. [2], en el que se propone la formación de pares de galio como responsable de la reducción de la anisotropía cúbica con la concentración en FeGa bulk (ver apéndice A). Se postula la existencia de pares Ga-Ga orientados al azar en cualquiera de las tres direcciones <001>. Estos defectos producirían en los átomos de hierro vecinos una tendencia a alinear su momento magnético en forma paralela o perpendicular al eje del par Ga-Ga. De esta manera se crea una anisotropía uniaxial local que puede estar orientada en cualquiera de los tres ejes <001>. Se agrega un término a la energía libre, que tiene en cuenta la anisotropía local generada por estos pares Ga-Ga. Calculando la respuesta promedio a un pequeño campo externo aplicado perpendicularmente a una dirección $\langle 100 \rangle$ obtienen la susceptibilidad transversal que puede ser relacionada al término suplementario en la energía libre. Finalmente, resulta la siguiente anisotropía efectiva:

$$K_{eff} = K_1 - \frac{4K^2}{\pi A_0} a_d^2 x^4 \tag{4.14}$$

donde K_{eff} es la anisotropía cúbica efectiva, K_1 es la anisotropía cúbica del hierro, K es la anisotropía asociada a los pares de galio, A_0 es la constante de intercambio y a_d es la dimensión del par Ga-Ga (típicamente 2 veces el parámetro de red).

Para testear el modelo en nuestras muestras hemos graficado la anisotropía tetragonal en función de $a_d^2 x^4$, que sería la cantidad que contiene toda la dependencia en concentración. Los resultados se muestran en la figura 4.18 para el grupo de muestras de 36 nm y luego el grupo de 70 nm de espesor.

Se puede observar claramente la dependencia lineal de la anisotropía tetragonal con $a_d^2 x^4$, sobre todo para las muestras de 70 nm. Esta es una excelente confirmación de que el modelo describe apropiadamente nuestras muestras. De la pendiente de los ajustes lineales realizados se extrajo el valor de K, que es la anisotropía asociada a



Figura 4.18: $K_4^{t(xy)}$ vs $a_d^2 x^4$ donde a_d es la dimensión del par Ga-Ga (típicamente 2 veces el parámetro de red) y x es la concentración de Ga. Para las referencias en material masivo los valores de K_4^c fueron extraídos de [71] y los parámetros de red de [27].

los pares Ga-Ga resultando en los valores $(3,5\pm0,2)\times10^7$ J/m³ en el caso del *bulk*, $(3,56\pm0,01)\times10^7$ J/m³ para las muestras de 70 nm y $(3,5\pm0,6)\times10^7$ J/m³ para las muestras de 36 nm. Los tres valores resultan indistinguibles entre sí, indicando esto que la contribución de los pares de Ga-Ga es constante para todos lo espesores. Para estos cálculos se utilizó $A_0=1,6\times10^{-11}$ J/m, valor reportado en la referencia [73]. a_d se tomó igual a dos veces el parámetro de red, para nuestras muestras estos parámetros se exhiben en el capítulo 3 y para el *bulk* los datos se extrajeron de la referencia [27].

Lo anteriormente explicado indica que el modelo funciona para la anisotropía tetragonal. Ahora, en relación a la anisotropía fuera del plano, nosotros proponemos la existencia de una orientación preferencial para los pares Ga-Ga, que es la dirección del crecimiento ([001]). Esta situación conllevaría a un desbalance en la cantidad de pares en las direcciones [100] y [010] con respecto a la dirección [001]. Existirían más pares en la dirección [001] que en la otras dos. Luego, habrá una cantidad de pares en la dirección [001] balanceados, es decir, que encuentran pares correspondientes en las otras dos direcciones, y una cantidad de pares que quedarán desbalanceados. Proponemos a estos pares desbalanceados como responsables de la generación de una contribución a la anisotropía fuera del plano. Cabe aclarar que hacemos la suposición también, de que los pares Ga-Ga generan una anisotropía local paralela a su eje.

Recientemente se ha publicado un trabajo de dinámica molecular de primeros principios [40], en el que se calcula, entre otros factores, la cantidad de pares de Ga en cristales de la fase B2 y de la fase DO₃ en función de la concentración (ver figura 4.19(a).) Tomando la curva de los pares de B2 y realizando una interpolación de los puntos graficados, se puede estimar la cantidad de pares balanceados para una dada concentración. Dividiendo esta magnitud por el número de sitios sobre los que se hicieron las cálculos (128 sitios por ser una red bcc de 64 celdas) se puede calcular la densidad de pares balanceados δ_{bal} si el cristal fuera completamente de la fase B2.



Figura 4.19: a) Cantidad de pares de Ga en cristales de la fase DO_3 y B2 obtenidos a partir de cálculos de dinámica molecular de primeros principios. Figura extraída de la referencia [40].

Atribuyendo el excedente en $K_u^{(OP)}$ a una cantidad de pares desbalanceados en el eje z, la densidad de los mismos δ_{unbal} se puede calcular mediante la ecuación:

$$\delta_{unbal} = \frac{\left(K_u^{(OP)} - K^{me}\right)}{K} \tag{4.15}$$

Como ejemplo calculamos esta cantidad para las muestras de 70 nm ya que en ellas conocemos K^{me} con exactitud. Los resultados se muestran en la tabla 4.7. Mirando la columna desbalance ($\delta_{unbal}/\delta_{bal}$) se puede ver que un desbalance de pares es significativo (de entre 40 % y 70 %).

Muestra	$egin{array}{c} K_u^{(OP)}\ [{ m J/m^3}] \end{array}$	$K^{me} \ [{ m J/m^3}]$	K $[J/m^3]$	δ_{bal}	δ_{unbal}	$egin{array}{c} ext{Desbalance} = \ \delta_{unbal}/\delta_{bal} \end{array}$
0,14-80nm	$-11,4 \times 10^{4}$	$-3,7{\times}10^{4}$	$-3,5 \times 10^{7}$	0,005	0,002	0,43
0,18-55nm	$-37,0 \times 10^{4}$	$-8,8 \times 10^4$	$-3,5 \times 10^{7}$	0,012	0,008	$0,\!65$
0,20-65nm	$-46,8 \times 10^4$	$-8,3 \times 10^{4}$	$-3,5 \times 10^{7}$	0,016	0,011	$0,\!68$

Tabla 4.7: δ_{bal} , δ_{unbal} y desbalance para un grupo de muestras con espesor nominal de 70 nm.

4.5. Conclusiones

Hemos logrado cuantificar las anisotropías magnéticas de películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ crecidas sobre ZnSe/GaAs(001) en función del espesor y concentración.

En primer lugar se verificó que en las películas delgadas, la anisotropía tetragonal $K_4^{t(xy)}$ posee el mismo signo (y por lo tanto mismo eje fácil) que el material masivo a la misma concentración.

En líneas generales, la anisotropía uniaxial en el plano $K_u^{(IP)}$ posee el mismo signo que en películas de Fe/ZnSe salvo para espesores muy pequeños. La razón de esta rotación permanece desconocida.

También hemos podido comparar las anisotropías de estructuras distorsionadas con las de estructuras relajadas (muestras recocidas y muestras crecidas sobre STO). Esto nos permitió en primer lugar detectar la gran anisotropía fuera del plano $K_u^{(OP)}$ en la muestras crecidas sobre ZnSe y su correlación con la distorsión estructural. El acople magneto-elástico contribuye a esta anisotropía pero no es suficiente para explicar su gran intensidad.

Se propuso como contribución extra la anisotropía local generada por pares Ga-Ga, que por un lado explica muy bien la reducción de la anisotropía tetragonal $K_4^{t(xy)}$ con la concentración y por el otro, si existiera mayor cantidad de pares en la dirección [001] que en las direcciones [100] y [010], permitiría explicar $K_u^{(OP)}$. Este desbalance en la cantidad de pares en la dirección [001] es una situación metaestable que produce tanto una distorsión tetragonal como una fuerte anisotropía fuera del plano. Un pequeño desbalance, del orden del 10 % produce una gran anisotropía. Para el análisis de esta idea nos hemos basado en el modelo fenomenológico de Cullen [2].

Capítulo 5

Medición de las constantes de acople magneto-elástico

5.1. Introducción

La magnetostricción, tal como fue definida en el capítulo 1, es apropiada para describir la deformación inducida por la magnetización en materiales masivos. Las películas delgadas, sin embargo, están rígidamente unidas a un sustrato, y no pueden cambiar su longitud libremente. En su lugar, la tensiones magneto-elásticas o magnetostrictivas se acomodan hasta ser compensadas por las tensiones elásticas, y la deformación resultante es una curvatura que depende de la rigidez del sustrato[4] (ver figura 5.1).



Figura 5.1: Efecto del acople magneto–elástico en material masivo y en películas delgadas. (a) El acople magneto–elástico resulta en una deformación magnetostrictiva $\lambda = \Delta L/L$ en material masivo. (b) La presencia del sustrato produce tensiones magnetostrictivas que finalmente generan una curvatura. El coeficiente de acople magneto–elástico *B* puede ser calculado a partir del radio de curvatura *R*. Figura extraída de la referencia [4].

Por lo tanto, el concepto de magnetostricción debe ser evitado en el tratamiento de films ferromagnéticos. En su lugar es preferible el uso del coeficiente de acople magneto-elástico B, que representa la tensión magnetostrictiva. Para ilustrar el significado de este coeficiente, imaginemos un sistema cristalino con simetría cúbica fuera de su posición de equilibrio bajo la influencia de ciertas fuerzas que cambian la forma del cristal. El coeficiente B cuantifica el cambio en la anisotropía magnética a causa de la deformación.

Al igual que λ , B varía con la orientación cristalográfica. Para una estructura cúbica, existen dos direcciones principales: la [100] relacionada a B_1 y la [111] relacionada B_2 , como será detallado más adelante. En este capítulo reportamos las mediciones del acople magneto-elástico por el método de deflexión de *cantilever*, para una serie de películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ (espesor nominal de 75 nm) crecidas sobre ZnSe/GaAs(001). También discutimos los resultados en comparación con los del material masivo. Para este propósito introduciremos primero algunos elementos de elasticidad y propiedades magnéticas en sistemas cristalinos. Luego haremos un repaso de la literatura acerca de este acople en Fe masivo, $Fe_{1-x}Ga_x$ masivo y películas delgadas de Fe/ZnSe. También explicaremos sintéticamente los aspectos principales de los cálculos de primeros principios para esta clase de sistemas. Finalmente presentaremos nuestros resultados y los contrastaremos con el contexto anteriormente establecido.

5.1.1. Componentes de tensión

La tensión mecánica mide la intensidad promedio de las fuerzas internas en un material. La dimensión física de la tensión es fuerza por unidad de área. Para ejemplificar el concepto, imaginemos la aplicación de una fuerza a un sólido en un punto Q como se muestra en la figura 5.2.



Figura 5.2: Proyecciones de la fuerza resultante utilizadas para calcular la tensión. Extraído de la referencia [74].

Elegimos un área elemental ΔA alrededor de Q, con su vector normal en la dirección x. Esto nos permitirá calcular los elementos de tensión relacionados al eje x. Definimos los tres componentes x de tensión en el punto Q tomando los límites cuando al área tiende a cero de los cocientes de fuerza sobre unidad de área.

$$\sigma_{xx} = \lim_{\Delta A \to 0} \frac{\Delta F_x}{\Delta A}, \qquad \sigma_{xy} = \lim_{\Delta A \to 0} \frac{\Delta F_y}{\Delta A}, \qquad \sigma_{xz} = \lim_{\Delta A \to 0} \frac{\Delta F_z}{\Delta A}$$
(5.1)

Si elegimos el área infinitesimal ΔA con el vector normal en y o z obtendremos los otros seis elementos de tensión: σ_{yy} , σ_{yx} , σ_{yz} , σ_{zz} , σ_{zx} y σ_{zy} .

Los nueve elementos de tensión se pueden acomodar en una matriz de 3 \times 3 que forma el tensor de tensiones σ :

$$\sigma = egin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_{zz} \end{pmatrix}$$

A partir de la condición de equilibrio del momento se puede mostrar que $\sigma_{xy} = \sigma_{yx}$, $\sigma_{xz} = \sigma_{zx}$ y $\sigma_{yz} = \sigma_{zy}$, siendo σ un tensor simétrico.

5.1.2. Componentes de deformación

La deformación es una medida normalizada que representa el desplazamiento de partículas de un cuerpo relativo a su posición de equilibrio. Existen dos tipos: el extensional (normal o axial) que mide la deformación a lo largo del eje donde se aplica la fuerza y el de corte (lateral) que mide la deformación en un eje perpendicular al de aplicación de la fuerza.

Componentes extensionales



Figura 5.3: Paralelepípedo sin deformar y deformado de un material en 3D. Las componentes de corte son cero por lo cual los ángulos se preservan. El cambio en las dimensiones del paralelepípedo están exageradas para una mejor visualización. Figura extraída de la referencia [75].

Consideremos un pequeño paralelepípedo de material alineado con los ejes {x, y, z}, como se muestra en la figura 5.3(a). Los lados del paralelepípedo tienen dimensiones Δx , Δy y Δz , respectivamente, en la configuración no deformada. El paralelepípedo pasa a tener una configuración deformada como se exhibe en la figura 5.3 (b) pero todos sus ángulos siguen siendo rectos. La configuración deformada tiene dimensiones $\Delta x + \Delta u$, $\Delta y + \Delta v$ y $\Delta z + \Delta w$, respectivamente. Las componentes de tensión promedio se definen por:

$$\epsilon_{xx}^{av} = \frac{\Delta x + \Delta u - \Delta x}{\Delta x} = \frac{\Delta u}{\Delta x}, \\ \epsilon_{yy}^{av} = \frac{\Delta y + \Delta v - \Delta y}{\Delta y} = \frac{\Delta v}{\Delta y}, \\ \epsilon_{zz}^{av} = \frac{\Delta z + \Delta w - \Delta z}{\Delta z} = \frac{\Delta w}{\Delta z}$$
(5.2)

Los valores puntuales, en la esquina P del paralelepípedo, se obtienen pasando al límite cuando las dimensiones tienden a cero:

$$\epsilon_{xx} = \lim_{x \to 0} \frac{\Delta u}{\Delta x} = \frac{\partial u}{\partial x}, \qquad \epsilon_{yy} = \lim_{y \to 0} \frac{\Delta v}{\Delta y} = \frac{\partial v}{\partial y}, \qquad \epsilon_{zz} = \lim_{z \to 0} \frac{\Delta w}{\Delta z} = \frac{\partial w}{\partial z} \tag{5.3}$$

Componentes de corte

Las componentes de corte miden los cambios en los ángulos cuando el material se distorsiona debido a una tensión de corte. Para definirlos es necesario observar dos direcciones que forman el plano que se distorsiona.



Figura 5.4: Deformación de corte promedio en el plano x, y sufrida por un paralelepípedo a causa de una tensión de corte τ . Figura extraída de la referencia[75].

La figura 5.4 (a) un cubo de material que sufre una deformación puramente de corte en el plano x, y. Mirando a lo largo de la dirección z podemos describir el proceso a través de la vista en dos dimensiones de la figura 5.4 (b, c). Bajo la acción de una tensión de corte $\sigma_{xy} = \sigma_{yx} = \tau$, el ángulo formado por PQ y PR, originalmente $\pi/2$ radianes, se transforma en $\pi/2 - 2\gamma$ radianes. Este cambio se toma como la definición de la deformación de corte promedio asociada con las direcciones $x \in y$:

$$\gamma_{xy}^{av} = \gamma \tag{5.4}$$

Por convención γ_{xy}^{av} es positivo si el ángulo $\angle \{PQ, PR\}$ decrece; de esta manera una deformación positiva corresponde a la tensión positiva. Supongamos que el rectángulo ABCD de dimensiones Δx y Δy alineadas con los ejes x e y respectivamente, sufre una deformación de corte como se representa en el esquema 5.5. el rectángulo original se convierte en un paralelogramo A'B'C'D', cuyos lados no están necesariamente alineados con los ejes.



Figura 5.5: Esquema utilizado para calcular la deformación de corte promedio sobre el rectángulo *ABCD* a partir de los datos de desplazamiento desde la esquina. Extraído de la referencia [75].

Nuestro objetivo será el de calcular la deformación de corte promedio $\gamma_{xy}^{av} = \gamma$ en términos de los desplazamientos de las cuatro esquinas. Observamos que $\gamma = \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_2)$, donde γ_1 y γ_2 son los ángulos indicados en la figura 5.5, con sentidos positivos. Tenemos:

$$\tan\gamma_1 = \frac{v_B - v_A}{u_B - u_A} = \frac{\Delta v_{BA}}{\Delta x + \Delta u_{BA}}, \qquad \tan\gamma_2 = \frac{u_C - u_A}{v_C - v_A} = \frac{\Delta u_{CA}}{\Delta y + \Delta v_{CA}}, \tag{5.5}$$

Asumimos que las deformaciones son infinitesimales . Consecuentemente $\gamma_1 \ll 1$ y $\gamma_2 \ll 1$, de donde $\tan \gamma_1 \simeq \gamma_1$ y $\tan \gamma_2 \simeq \gamma_2$. De igual manera, $\Delta u_{BA} \ll \Delta x$ y $\Delta v_{CA} \ll \Delta y$. Introducir estas simplificaciones en (5.5) lleva a:

$$\gamma_{xy}^{av} = \gamma = \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_2) \simeq \frac{1}{2}\left(\frac{\Delta v_{BA}}{\Delta x} + \frac{\Delta u_{CA}}{\Delta y}\right) = \frac{1}{2}\left(\frac{\Delta v}{\Delta x} + \frac{\Delta u}{\Delta y}\right)$$
(5.6)

Para definir la deformación de corte γ_{xy} en el punto P pasamos al límite en la expresión de la deformación promedio (5.6) haciendo tender Δx y Δy a cero. En este límite, esto da la suma de las derivadas parciales cruzadas:

$$\gamma_{xy} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) = \gamma_{yx} \tag{5.7}$$

El procedimiento puede ser repetido en las otras direcciones donde se obtiene:

$$\gamma_{yz} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right) = \gamma_{zy}, \qquad \gamma_{xz} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) = \gamma_{zx}, \tag{5.8}$$

Los nueve componentes de deformación, 3 extensionales y 6 de corte, pueden ser acomodados en una matriz 3×3 , que constituye el tensor de deformación ϵ que es

simétrico:

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \gamma_{xy} & \gamma_{xz} \\ \gamma_{xy} & \epsilon_{yy} & \gamma_{yz} \\ \gamma_{xz} & \gamma_{yz} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{xy} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{xz} & \epsilon_{yz} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}$$

5.1.3. Relación entre tensión y deformación

Para relacionar la tensión y la deformación de manera rigurosa, es necesario definir la densidad de energía elástica f_{el} como función de los elementos del tensor de constantes elásticas c_{ijkl} y del tensor simétrico de deformación ϵ . Manteniendo hasta el segundo orden en la deformación, f_{el} queda escrita como [76]:

$$f_{elastic} = \frac{1}{2} c_{ijkl} \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} \tag{5.9}$$

La tensión estará dada por la derivada parcial de la energía elástica con respecto a la deformación:

$$\sigma_{ij} = \frac{\partial f_{elastic}}{\partial \epsilon_{ij}} = \frac{1}{2} c_{ijkl} \epsilon_{kl} \tag{5.10}$$

5.1.4. Densidad de energía elástica y magneto-elástica



Figura 5.6: Sistema de coordenadas elegido para la ecuación (5.12).

Para la descripción de las densidades de energía elástica $f_{elastic}$ y magneto-elástica f_{me} utilizaremos el sistema de coordenadas exhibido en la figura 5.6. La magnetización se define como $\vec{M} = M_s(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3)$ siendo $\alpha_1 = \operatorname{sen}\theta \cos\phi, \alpha_2 = \operatorname{sen}\theta \operatorname{sen}\phi$ y $\alpha_3 = \cos\theta$.

En el Apéndice B se detallan las expresiones para $f_{elastic}$ y f_{me} correspondientes a estructuras cúbica y tetragonal. La simetría tetragonal requiere el uso de seis

constantes elásticas y cuatro constantes de acople magneto-elástico mientras que la cúbica utiliza 3 constantes elásticas y dos de acople magneto-elástico. Nuestras muestras se encuentran deformadas tetragonalmente con lo cual, el tratamiento más adecuado sería el de utilizar las expresiones que tengan en cuenta esta configuración. Sin embargo, la gran cantidad de constantes necesarias para definir el sistema en el caso tetragonal dificulta el tratamiento. Dado que la distorsión de las muestras utilizadas es pequeña (menor al 0,5% en la mayoría de los casos) como se detalla en el capítulo 3, simplificaremos el problema asumiendo una estructura cúbica para analizar nuestras mediciones.

En este caso se obtiene, para la densidad de energía elástica, manteniendo hasta el segundo orden en la deformación (ver apéndice B):

$$f_{elastic}^{cubic} = \frac{1}{2}c_{11}(\epsilon_{xx}^2 + \epsilon_{yy}^2 + \epsilon_{zz}^2) + c_{12}(\epsilon_{xx}\epsilon_{yy} + \epsilon_{yy}\epsilon_{zz} + \epsilon_{xx}\epsilon_{zz}) + \frac{1}{2}c_{44}(\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{yz}^2 + \epsilon_{xz}^2) \quad (5.11)$$

donde ϵ_{ij} son las componentes del tensor de deformación.

Y para la energía magneto-elástica, manteniendo hasta el primer orden en la deformación, primer orden en los coeficientes de acople magneto-elástico y segundo orden en los α_i :

$$f_{me}^{cubic} = B_1(\epsilon_{xx}\alpha_1^2 + \epsilon_{yy}\alpha_2^2 + \epsilon_{zz}\alpha_3^2) + B_2(\epsilon_{yz}\alpha_2\alpha_3 + \epsilon_{xy}\alpha_1\alpha_2 + \epsilon_{xz}\alpha_1\alpha_3)$$
(5.12)

donde los B_i son los coeficientes de acople magneto-elástico.

En $f_{elastic}^{cubic}$ (ecuación (5.11)) el orden 2 es el menor para los α_i mientras que f_{me}^{cubic} (ecuación (5.12)) el orden 1 es el menor para los α_i .

5.1.5. Relación entre el acople magneto-elástico y la magnetostricción

Para encontrar la magnetostricción de muestras masivas debemos hallar los componentes de deformación ϵ_i que minimizan la suma $f_{me} + f_{elastic}$. Este procedimiento de minimización es equivalente a la condición de que las tensiones magnetostrictivas sean compensadas por las tensiones elásticas que se desarrollan en el material. Las tensiones magnetostrictivas se obtienen a partir de las derivadas parciales de f_{me} con respecto a las deformaciones. Con esta minimización se halla el vínculo entre λ_{100} , λ_{111} y B_1 , B_2 [61, 77]:

$$\lambda_{100} = -\frac{2}{3} \frac{B_1}{c_{11} - c_{12}}, \quad \lambda_{111} = -\frac{1}{3} \frac{B_2}{c_{44}}$$
(5.13)

Los prefactores 2/3 y 1/3 aparecen, porque λ_{100} (λ_{111}) se define el cambio de longitud medido en las dirección [100] ([111]) debido a la magnetización en esa dirección partiendo de un estado ideal demagnetizado. Este estado demagnetizado se asume caracterizado por una distribución isotrópica de la magnetización en los ejes fáciles. Esto introduce factores $\alpha_i^2(\text{demag}) = 1/3$ y $\alpha_i \alpha_j(\text{demag}) = 0$ en la ecuación (5.12) para el estado de referencia demagnetizado [4].

Las constantes elásticas de nuestros *films* se tomaron iguales a las del material masivo. En la referencia [59] se presenta fuerte evidencia de esta afirmación.

5.1.6. Diferencias para el acople magneto-elástico en material masivo y películas delgadas

La primera evidencia experimental de la presencia de una componente interfacial en el acople magneto-elástico de una muestra ferromagnética fue presentada por Sun y O'Handley [78]. Los autores midieron la influencia de una tensión externa sobre la anisotropía de varias aleaciones amorfas. Encontraron que la magnitud del acople magneto-elástico cerca de la superficie era mayor y se desviaba de los valores respectivos para material masivo, por factores de 2 ó 3. Más tarde, esta supuesta contribución superficial a la anisotropía fue atribuida a un coeficiente magneto-elástico superficial B_S que introduce una corrección al coeficiente magneto-elástico efectivo, de la siguiente manera: $B_{eff} = B_{bulk} + B_S/d_F$, donde d_F es el espesor de la película magnética [79].

La dependencia lineal de la densidad de energía magneto-elástica con la deformación, como se puede apreciar en la ecuación (5.12), indica que éste parámetro influye de manera significativa en la anisotropía magnética. En películas ultrafinas el desajuste entre la película y el substrato, a menudo alcanza valores entre cero y tres por ciento por lo cual se deben considerar correcciones dependientes de la deformación al coeficiente de acople magneto-elástico [80, 81]. La corrección en su forma más simple agrega un término lineal en la deformación, $B_{1eff} = B_{1bulk} + D\epsilon$. Esta fórmula fue aplicada con éxito para explicar la dependencia del acople magneto-elástico con la tensión en películas delgadas epitaxiales de Fe(100) de 100 nm de espesor [82]. Se encuentra que la corrección de B_1 puede llegar a cambiar la magnitud y signo del acople magneto-elástico incluso para deformaciones menores al 1%. Si tomamos en cuenta la corrección debido a una contribución interfacial y luego la dependencia con la deformación, la ecuación para el B medido (B_{eff}) sería:

$$B_{eff} = B_{bulk} + B_s/d_F + D\epsilon. \tag{5.14}$$

El rol de la formación de aleaciones para el acople magneto-elástico fue estudiado para aleaciones de CoPd en multicapas [83–87].Los autores encuentran que el acople magneto-elástico en estas multicapas no está gobernado por las propiedades magnetostrictivas del Co, sino por aquellas de la aleación CoPd. Adjudican este efecto a la hibridización electrónica entre el Co y el Pd y a la posibilidad de la formación de aleaciones Co–Pd en la interfaz [84, 87].

Finalmente, otro mecanismo que puede modificar el acople magneto-elástico es la morfología del *film*. Kim y Silva estudiaron la magnetostricción en *films* policristalinos de permalloy usando un tester óptico de gran precisión donde el ruido de fondo es típicamente del orden de 10^{-9} . Este tester emplea un campo magnético alterno en el plano y la deflexión de un haz láser para medir la magnetostricción. Se reportó un

incremento en la magnetostricción desde esencialmente cero a valores negativos en el orden de -2×10^{-6} para películas de espesores menores a 7 nm [88]. La desviación de los resultados con respecto al material masivo fue correlacionada con el incremento de la rugosidad en la superficie, aunque la influencia de tensión residual no fue excluida del todo.

En conclusión, esta discusión de algunas peculiaridades del acople magneto-elástico en películas ultrafinas revela que, en general, debe esperarse un comportamiento distinto al de los valores en el material masivo. Para explicar estos efectos se hacen necesarios modelos físicos que vayan más allá de una simple dependencia en deformación de la densidad de energía magneto-elástica y la contribución superficial puede llegar a ser significativa en comparación a los valores en material masivo.

5.1.7. Técnicas de medición de la magnetostricción y del acople magneto-elástico

Una extensa revisión de las técnicas que pueden usarse para medir la magnetostricción y el acople magneto-elástico en material masivo se presentan en las referencias [16, 89, 90]. En lo que sigue resumiremos métodos directos en indirectos que han sido aplicados en el estudio de propiedades magneto-elásticos.

Los métodos directos evalúan la deformación o la torsión magnetostrictiva para determinar las constantes magnetostrictivas.

Para material masivo, técnicas de sensado de deformación (conocidas como técnicas de *strain gauge*) han sido utilizadas para medir el cambio en la longitud de una muestra durante el proceso de magnetización. A partir del cambio relativo en longitud, medido a lo largo de cierta dirección cuando la magnetización se encuentra a lo largo de otra dirección, todas las constantes magneto-elásticas de estructuras cúbicas o hexagonales pueden ser determinadas [4].

Alternativamente, la muestra de material masivo se puede hacer parte de un capacitor plano, y los cambios magnetostrictivos en la longitud de la muestra pueden ser medidos con gran sensibilidad.

La tensión magnetostrictiva de muestras de material masivo ha sido medida usando técnicas que involucran fibra óptica [91, 92]. La muestra se emplea como obturador en el camino de la luz dentro de una fibra óptica. Luego una deformación magnetostrictiva oscilante en el tiempo modula la intensidad de la luz [93].

La dependencia de la corriente túnel, entre una punta y la muestra, con la distancia entre ellas ha sido utilizada para medir la magnetostricción en el modo de operación de loop cerrado [94, 95]. Sin embargo, el experimento túnel es extremadamente sensible al ruido electrónico y vibracional, razón por la cual este experimento no superó la sensibilidad de las técnicas ópticas o capacitivas[94]. Para muestras masivas en forma de cintas y cables, se ha demostrado que el efecto Wiedemann permite una determinación muy precisa de la magnetostricción de saturación de muestras elásticas y magnéticamente isotrópicas [16]. La idea básica de este efecto es medir la torsión inducida en un cable cuando es magnetizado a lo largo de su eje y una corriente lo atraviesa. La corriente induce un campo magnético circular, orientado de manera perpendicular al eje del cable. La magnetización del cable va a ser deflectada por el campo magnético efectivo. Una tensión magnetostrictiva se induce en la sección transversal del cable, y éste finalmente se retorcerá [16].

Cuando se trata de muestras con sustrato, el acople magneto-elástico ha sido medido sensando la curvatura que adquiere la muestra cuando se le aplica un campo magnético externo. Este experimento da información directa acerca de los coeficientes de acople magneto-elástico [4].

Es importante notar que cuando se trata de muestras de material masivo, los métodos directos dan información del coeficiente de magnetostricción λ . Si deseamos extraer el coeficiente de acople magneto-elástico B necesitaremos dividir λ por una expresión que involucra las constantes elásticas como se expone en las ecuaciones (5.13). Por otra parte, cuando se trata de muestras con sustrato, la técnica de medición de la curvatura nos permitirá extraer B de forma directa, lo cual es una gran ventaja ya que el error relativo es mucho menor comprado con las técnicas de medición indirectas que se decriben a continuación.

En los métodos indirectos, se aplica una tensión externa a las muestras en forma de compresión, elongación o flexión. La elongación de las muestras producirá un cambio en la anisotropía efectiva debido al acople magneto-elástico (efecto Villari) [16]).La idea principal de estos métodos indirectos es explorar la contribución del acople magneto-elástico a la anisotropía magnética. El cambio en la anisotropía magnética puede ser investigado a través de susceptibilidad inicial, la forma de la curva de magnetización, dispersión de luz Brillouin o resonancia ferromagnética.

5.1.8. Cálculos de primeros principios para el estudio de la magnetostricción

Los estudios de primeros principios son ampliamente utilizados para investigar el efecto del orden estructural en la magnetostricción.



Figura 5.7: Ejemplo da la variación de E_{MCA} y E_{tot} con la deformación ϵ utilizados para calcular λ . En este caso el sistema era Fe_{82,5}Ga_{17,5}. Extraído de la referencia [96].

Estos cálculos hacen uso del hecho de que en sistemas cúbicos, el coeficiente de magnetostricción puede ser determinado a través de la dependencia de la energía de anisotropía magnetocristalina E_{MCA} y de la energía total E_{tot} con la deformación [97]:

$$\lambda = \frac{2}{3} \frac{dE_{MCA}/d\epsilon}{d^2 E_{tot}/d\epsilon^2} \tag{5.15}$$

Como $d^2 E_{tot}/d\epsilon^2$ es siempre positivo para estructuras estables, λ tendrá el mismo signo de la pendiente de la curva E_{MCA} vs. ϵ . Clara-

mente, el mayor reto en la determinación de esta constante usando técnicas de primeros principios será la obtención de un resultado confiable para E_{MCA} , que es típicamente muy pequeño y requiere gran precisión para trabajar con el término del acople espínórbita (SOC). La figura 5.7 muestra un ejemplo de la variación de E_{MCA} y E_{tot} con la deformación ϵ utilizado en el cálculo de λ para el sistema Fe_{82,5}Ga_{17,5}, extraído de la referencia [96]. Se puede ver que E_{MCA} y E_{tot} tienen escalas muy diferentes, la escala de la primera en muy pequeña en comparación con la escala de la segunda.

Para poder entender los factores más influyentes en el incremento de la magnetostricción del FeGa con respecto a la del Fe, es conveniente recordar la ecuación a menor orden de la contribución del SOC a la energía total [98]:

$$E^{SOC} = -(\xi)^2 \sum_o \sum_u \frac{|\langle o|\vec{\sigma}. \vec{L}|u\rangle|}{\zeta_u - \zeta_o}$$
(5.16)

donde *o* y *u* representan los conjuntos de estados ocupados y desocupados respectivamente. ξ es una constante, $\vec{\sigma}$ es el momento angular de espín y \vec{L} es el momento angular orbital. ζ_o y ζ_u son las energías de los estados ocupados y desocupados.

De las dos ecuaciones anteriores podemos ver que un factor esencial para lograr una fuerte magnetostricción es tener una gran cambio en E_{MCA} frente a una deformación pequeña. Esto puede ser logrado reduciendo la separación en energía entre los estados ocupados y desocupados, o sea, el denominador en (5.16).

Para ejemplificar esta idea mostraremos los resultados de los cálculos de primeros principios obtenidos en la referencia [96] para una aleación $Fe_{93,75}Ga_{6,25}$. La figura



Figura 5.8: (a) Densidad de estados (DOS) proyectada para diferentes orbitales en el átomo de hierro más cercano al átomo de galio (Fe(C)) en el sistema Fe_{93,75}Ga_{6,25} (líneas sólidas) en la banda de espín down, en comparación a los resultados correspondientes el Fe masivo (líneas punteadas). La línea vertical en E=0 marca la posición del nivel de Fermi. (b) Número de estados alrededor del nivel de Fermi (integrado en ±0.2 eV) para átomos de Fe(C) en Fe_{100-x}Ga_x (x < 25%). Extraído de la referencia [96].

5.8(a) muestra la densidad de estados (DOS) calculada para distintos orbitales d en el átomo de Fe más cercano al átomo de Ga (denominado Fe(C)) en la banda de espín down, acompañado por los resultados correspondientes al Fe masivo. Una observación obvia para el Fe masivo en la figura 5.8(a) es que el nivel de Fermi yace sobre un valle en la DOS, y por lo tanto, las energías de anisotropía magnetocristalina inducidas por la deformación serán pequeñas debido al gran valor de $\zeta_u - \zeta_o$. La presencia de Ga introduce estados no ligados alrededor de Fe(C), principalmente en los orbitales $d_{xz,uz}$, debido a la débil hibridización Fe–Ga. La reducida separación en energía de los estados alrededor de E_F aumenta significativamente la interacción SOC y, en consecuencia, la magnetostricción. Para ilustrar la correlación entre la magnetostricción y la disponibilidad de estados d en Fe(C) alrededor del nivel de Fermi, el número de estados integrado en ± 0.2 eV en función de la concentración de Ga se presenta en la figura 5.8(b). Es claro que los valores de $N(E_F)$ en la banda de espín down aumenta monótonamente $\cos x$, correspondiendo esto a un incremento en los enlaces libres del Fe alrededor de los átomos de Ga. La tendencia también se correlaciona bien con el incremento monótono de la magnetostricción en la figura 1.2(a).

5.2. Método experimental

El objetivo principal de esta parte del trabajo fue la medición de los coeficientes de acople magneto-elástico B_1 y B_2 en películas delgadas de Fe_{1-x}Ga_x crecidas sobre ZnSe/GaAs(001) usando la técnica de deflexión de *cantilever* como se describe en el capítulo 2. Este método consiste en la medición de la curvatura inducida en una película con sustrato, por la aplicación de un campo magnético. Para este propósito es necesario contar con *films* crecidos sobre sustratos lo más delgados posible. Consecuentemente fue necesario fabricar nuevas muestras como se detalla en el capítulo 3. Se creció una serie de muestras sobre un sustrato ZnSe(001) de 100 μ m de espesor, concentraciones variando entre x=0.00 y x=0.25 y espesor nominal de 75nm. Los detalles se especifican en el capítulo 2 sección 3.3.

Se midieron los coeficientes de acople magneto-elástico B_1 y B_2 de esta serie de muestras a temperatura ambiente. Todas las mediciones se llevaron a cabo en el Instituto Max Planck de Microestructura, situado en la ciudad de Halle (Alemania) a través de una colaboración con Dirk Sander.

Para estas mediciones se asumió una estructura cúbica. Como fue formulado por Kittel [61], los coeficientes de acople magneto-elástico pueden ser obtenidos como las derivadas parciales con respecto a la deformación de la energía magneto-elástica. De la ecuación (5.12) observamos:

$$\sigma_{xx} = \frac{\partial f_{me}^{cubic}}{\partial \epsilon_{xx}} = B_1 \alpha_1^2, \quad \tau_{xy} = \frac{\partial f_{me}^{cubic}}{\partial \epsilon_{xy}} = B_2 \alpha_1 \alpha_2, \tag{5.17}$$

donde σ_{xx} y τ_{xy} son las componentes del tensor de tensiones definidas en 5.1.1. Ahora, particularizando para la magnetización en distintas direcciones:

para
$$\vec{M}$$
 en la dirección [100] $\rightarrow (\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = (1, 0, 0) \Rightarrow \begin{cases} \sigma_{xx} = B_1 \\ \tau_{xy} = 0 \end{cases}$ (5.18)
para \vec{M} en la dirección [110] $\rightarrow (\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = (\frac{1}{\sqrt{2}}, \frac{1}{\sqrt{2}}, 0) \Rightarrow \begin{cases} \sigma_{xx} = 0 \\ \tau_{xy} = B_2/2 \end{cases}$



Figura 5.9: Cantilever 5.9 sujetado en su ancho.

Ahora necesitamos encontrar experimentalmente σ_{xx} y τ_{xy} . Analicemos el caso de σ_{xx} . Esta componente puede ser determinada midiendo el cambio en el radio de curvatura del *cantilever* que resulta cuando la magnetización es rotada desde la dirección x hacia la dirección y (ver figura 5.9). Bajo estas condiciones y asumiendo un sustrato elásticamente isotrópico σ_{xx} puede ser calculado como [4]:

$$\sigma_{xx} = \frac{Y_S d_S^2}{6(1+\nu_S)d_F} \left[\left(\frac{1}{R_x}\right)^{M_{largo}} - \left(\frac{1}{R_x}\right)^{M_{ancho}} \right]$$
(5.19)

donde Y_S el módulo de Young del sustrato y ν_S es el cociente de Poisson del sustrato, y ambos se calculan para la dirección de crecimiento de la muestra (en nuestro caso la dirección (001))[4]. d_S y d_F son los espesores del sustrato y del *film* respectivamente. R_x es el radio de curvatura en la dirección x que se mide como se explica en el capítulo 2 sección 2.2. Los subíndices en M_{largo} y M_{ancho} describen la dirección de la magnetización.

Hemos tomado los valores de Y_S y ν_S de la referencia [99]: para el cálculo de B_1 utilizamos $Y_S=0.853\times10^{11}$ Pa y $\nu_S=0.312$, y para B_2 usamos $Y_S=1.213\times10^{11}$ Pa y $\nu_S=0.021$. Finalmente, usando la ecuación (5.18) se obtiene B_1 .

Empleando el mismo procedimiento se mide B_2 , pero colocando la dirección [110] en el largo de la muestra .

La ecuación (5.19) es válida para superficies de sustratos de simetría de rotación de al menos eje-3 sobre la normal al sustrato. También se asume aplicable la aproximación de deflexiones pequeñas en películas delgadas [100].

5.3. Resultados y discusión

5.3.1. Medición de B_2

Para la medición del coeficiente B_2 contábamos con cristales cortados apropiadamente, con la dirección [110] paralela al largo de las muestras. Esta es la dirección más sencilla para cortar la muestra ya que coincide con la dirección de más fácil clivado del GaAs. La figura 5.10(a) muestra la configuración utilizada para medir la curvatura. Un ciclo típico se muestra en la figura 5.10(b). El campo magnético se aplica en primer lugar 50 segundos a lo largo de la muestra (dirección [110]), luego 50 segundos a lo ancho y finalmente otros 50 segundos a lo largo.

La figura 5.11 exhibe los resultados. En primer lugar podemos ver que hemos recuperado el valor del hierro masivo en nuestras películas delgadas. El comportamiento en función de la concentración es el mismo que el de las muestras masivas, con el detalle de que nuestra curva parece estar reducida por un factor que aumenta su valor en las concentraciones más altas. El cambio de signo ocurre $x \simeq 0.14$ en nuestros *films* que es una concentración cercana a aquella para la cual el cambio de signo ocurre en material masivo.

Observando la ecuación (5.14) sin tener en cuenta la contribución interfacial, la corrección más simple debida a la deformación tendría la forma: $B_2^{thinfilm} = B_2^{bulk} + D\epsilon$,



Figura 5.10: (a) Configuración utilizada para la medición de la curvatura. (b) Señal en los detectores superior e inferior para 50 segundos de magnetización a lo largo de la muestra, luego 50 segundos a lo ancho, y finalmente otros 50 segundos a lo largo.



Figura 5.11: Coeficiente de acople magneto-elástico B_2 para una serie de películas delgadas de Fe_{1-x}Ga_x crecidas sobre ZnSe/GaAs(001), en función de la concentración x. Todas las muestras tienen un espesor entre 50 y 100 nm. Las referencias para el material masivo se extrajeron de [23].

donde $B_2^{thinfilm}$ representa el valor medido, B_2^{bulk} es el valor para la concentración correspondiente en material masivo, D es una constante y ϵ es la deformación, como se explica en 5.1.6. B_2 se relaciona a la deformación de corte y debería estar afectado principalmente por ésta. Pero nuestras muestras no poseen esta clase de deformación como fue comprobado por los experimentos de difracción de rayos-x.

Las muestras son demasiado espesas para ser afectadas por una contribución interfacial la cual normalmente desaparece luego de algunas monocapas [4].

Luego, la diferencia $B_2^{thinfilm} - B_2^{bulk}$ parece estar asociada a diferencias estructurales entre el material masivo y las películas delgadas.

5.3.2. Medición de B_1

Para medir B_1 fue necesario cortar las muestras en la dirección [100]. Como ésta no es una dirección de fácil clivado del GaAs hemos aplicado un corte láser a nuestras muestras, llevado a cabo en las facilidades del Instituto Max Planck de Física de Microestructura.

La figura 5.12 muestra los resultados de las mediciones de B_1 .



Figura 5.12: Coeficiente de acople magneto-elástico B_1 para una serie de películas delgadas de Fe_{1-x}Ga_x crecidas sobre ZnSe/GaAs(001), en función de la concentración de Ga x. Todas las muestras tienen un espesor de entre 50 y 100 nm. Las referencias del material masivo fueron extraídas de [23].

Encontramos para el hierro un valor muy similar al del material masivo. El comportamiento en función del contenido de galio es el mismo que el de las muestras masivas, pero con una dependencia más débil en concentración.

 B_1 está relacionado con las deformaciones extensionales y debe ser mayormente afectado por éstas. Luego, hemos intentado la corrección presentada en la ecuación (5.14) despreciando el término interfacial. La diferencia entre los valores para muestras masivas y películas delgadas en función de la deformación no posee un comportamiento lineal, indicando que la corrección por deformación no es suficiente para explicar los resultados obtenidos.

También en este caso la diferencia $B_1^{thinfilm} - B_1^{bulk}$ parece estar relacionada a diferencias estructurales entre el material masivo y las películas delgadas.

5.3.3. Extensión de la técnica para muestras de gran tamaño



Figura 5.13: Configuración experimental utilizada para la medición de la curvatura en muestras de gran tamaño.

Cada vez que cortamos una muestra existe el riesgo de destruirla dada su naturaleza frágil y quebradiza, y aún si esto no ocurre la inversión de tiempo y esfuerzo en esta tarea es significativa. Por esta razón decidimos intentar una nueva aproximación. Trabajamos con muestras de gran tamaño, 2,0 cm \times 2,5 cm aproximadamente sujetadas de un extremo para tratar de simular una deflexión libre. Las mediciones se tomaron en una posición muy cercana al borde libre de las muestras. La figura 5.13 muestra la configuración uti-

lizada para la medición de B_1 . Todas la muestras utilizadas tenían la dirección [110] paralela a un borde, dado que, como se explicó anteriormente, es la dirección de clivado fácil del GaAs. Para la medición de B_1 el cristal fue sujetado de manera que la dirección [100] quedara en posición vertical. Para la medición de B_2 el cristal fue sujetado con su dirección [110] en posición vertical. Los resultados para ambos coeficientes se muestran en la tabla 5.1:

	$B_1[M]$	J/m^3]	$B_2 [{ m MJ/m^3}]$		
	cantilever	cantilever	cantilever	cantilever	
	cortado	entero	cortado	entero	
x = 0,000	-1.7 ± 0.4	-1.4 ± 0.3	7 ± 2	7 ± 2	
x = 0,135	-5.4 ± 0.8	-6 ± 1	$2.9{\pm}0.7$	$2.1{\pm}0.5$	
x = 0,200	-5 ± 1	-5 ± 1	-5 ± 1	-9 ± 2	

Tabla 5.1: Coeficientes de acople magneto-elástico B_1 y B_2 medidos para los *cantilevers* enteros y luego para los *cantilevers* cortados.

Salvo por un caso, los resultados en los *cantilevers* enteros son indistinguibles de aquellos obtenidos en los *cantilevers* cortados. Esto transforma la técnica en una idea atractiva que puede ser estudiada en mayor profundidad para encontrar las condiciones en las cuales no es necesario cortar las muestras.

5.4. Conclusiones

Hemos medido exitosamente las constantes de acople magneto-elástico B_1 y B_2 de una serie de muestras de Fe_{1-x}Ga_x/ZnSe/GaAs(001) usando el método de deflexión de *cantilever*, que proporciona una medición directa de estas constantes.

En el caso de B_1 se puede observar un comportamiento en concentración similar al

de las muestras masivas pero con los valores reducidos y también con una dependencia más débil con el contenido de Ga.

Según los estudios estructurales, en nuestras muestras se han identificado las fases estructurales A2 y B2 y se ha descartado la presencia de la fase DO₃ (ver capítulo 3). La estructura B2 es posiblemente responsable de la gran anisotropía fuera del plano, hipótesis que hemos modelado aplicando una extensión del modelo de Cullen [2]. Probablemente esta estructura es no es tan influyente sobre el acople magneto-elástico. Los cálculos de primeros principios, presentados por Wu *et al.* [24], predicen que esta fase es muy influyente sobre el coeficiente B_1 , pero éstos fueron realizados sobre una estructura pseudo B2 (estructura con distorsión tetragonal).

Cuando los cálculos se repitieron para clústers de B2 insertos en una matriz de Fe bcc, los resultados mostraron una λ_{100} muy pequeña y negativa [34].

Un estudio reciente de dinámica molecular de primeros principios (AIMD por sus siglas en inglés) efectuado por Khmelevska *et al.* [101], mostró que también la estructura DO_3 puede producir un gran acople magneto-elástico indicando que la estructura B2 no es tan crítica para estos efectos.

Los últimos trabajos de dinámica molecular de primeros principios [40] han sugerido que la modificación de la cantidad de electrones por celda unidad puede prolongar en concentración el comportamiento creciente del módulo de B_1 con lo cual se podrían alcanzar valores más altos de este coeficiente de acople magneto-elástico. Por esta razón, la sustitución de una pequeña cantidad (entre 1 % y 2 %) de Ga por Cu o Zn podría incrementar este coeficiente.

En el caso de B_2 , el comportamiento en función de la concentración es el mismo que en muestras masivas, con el detalle de que toda la curva parece estar reducida por un factor que aumenta su valor para concentraciones altas. El cambio de signo también se identifica en películas en una posición desplazada levemente hacia concentraciones más bajas.

Las medición en muestras de gran tamaño parece ser una técnica prometedora a la hora de evitar el corte de las mismas.

Capítulo 6

Formación espontánea de dominios magnéticos en forma de tiras en películas delgadas de Fe_{1-x}Ga_x

6.1. Introducción

Cuando un ferromagneto es enfriado por debajo de la temperatura de Curie, su magnetización se divide espontáneamente en regiones llamadas dominios magnéticos de manera de reducir su energía magnetostática. Los momentos magnéticos dentro de cada dominio están orientados en la misma dirección, pero para dominios diferentes esta dirección puede variar. Las regiones que separan dominios magnéticos se denominan paredes de dominio, en ellas la magnetización rota, ya sea abrupta o gradualmente, de una dirección a la otra. La estructura de dominios es responsable del comportamiento magnético en materiales como el hierro, níquel, cobalto, sus aleaciones, ferritas, etc.



Figura 6.1: Visión esquemática de un patrón de *stripes*, la magnetización fuera del plano oscila con un período definido p_s . $\theta(x)$ es el ángulo de la magnetización con respecto a la dirección y. H_{ex} es el campo magnético aplicado. K_N es la anisotropía fuera del plano. M es la magnetización. Figura extraída de la referencia [102].

En películas delgadas, el campo demagnetizante tiende a colocar la magnetización en el plano, como se explicó en el capítulo 4. Por otro lado puede existir una anisotropía de origen interfacial, magnetocristalina o magnetoelástico que favorece la magnetización fuera del plano. La competencia entre estos dos factores puede generar, para un rango de espesores adecuado, una configuración particular de dominios en la cual la magnetización fuera del plano oscila con un período definido. Cuando el sistema adquiere esta estructura se dice que los dominios tienen configuración de tiras (franjas, *stripes*) (ver figura 6.1). Estos dominios se han detectado para muchos sistemas como por ejemplo películas delgadas de FePt [103], permalloy [104], etc.

Cuando se aplica un campo magnético de saturación en el plano y luego se retira, estas estructuras aparecen. En algunos casos, las franjas se forman siempre en la dirección del campo aplicado lo que implica que no tienen una orientación preferencial en el plano, si no que su dirección depende de la historia magnética de la muestra. A este fenómeno se lo denomina *anisotropía rotacional* [73, 105].

En este capítulo presentaremos en primer lugar algunos conceptos teóricos necesarios para construir un modelo que prediga la aparición de *stripes* así como su periodicidad. Luego se presenta una caracterización magnética de muestras de distintas concentraciones y espesores a través de ciclos de histéresis y finalmente se procede a mostrar un estudio de estos dominios mediante las técnicas de microscopía de fuerza magnética y dispersión magnética resonante de rayos-x.

6.2. Conceptos teóricos

6.2.1. Energía libre del sistema

La densidad de energía libre total U_{tot} del sistema está compuesta por cinco términos [48]:

$$U_{tot} = \underbrace{A(\operatorname{\mathbf{grad}}\vec{m})^{2}}_{\text{Intercambio}} + \underbrace{F_{an}(\vec{m})}_{\text{Anisotropía}} - \underbrace{\vec{H}_{ex} \cdot \vec{M}}_{\text{Zeeman}} - \underbrace{\frac{1/2\vec{H}_{d} \cdot \vec{M}}_{\text{Campo demagnetizante}}}_{\operatorname{Campo demagnetizante}} - \underbrace{\bar{\sigma}_{ex}\bar{\epsilon}^{0}}_{\text{Esfuerzo externo}} + \underbrace{\frac{1/2(\bar{p}_{e} - \bar{\epsilon}^{0})\bar{c}(\bar{p}_{e} - \bar{\epsilon}^{0})}_{\text{Acople magneto-elástico}}$$
(6.1)

El primer término hace referencia a la energía de intercambio, la cual penaliza el gradiente de la magnetización. Este término favorece la alineación paralela de todos los momentos. A es la constante de intercambio y \vec{M} la magnetización del sistema que puede ser escrita como $\vec{M} = M_s \vec{m}$, donde M_s es la magnetización de saturación. El segundo término corresponde a la energía de anisotropía magnetocristalina la cual, en general, propicia la alineación de la magnetización con algunos ejes cristalinos. F_{an} es una función de \vec{m} y varía según el sistema en cuestión. El término de Zeeman favorece la alineación de \vec{M} con el campo magnético aplicado $\vec{H_{ex}}$. El campo demagnetizante favorece, en el caso de una película delgada, la magnetización en el plano. El quinto término introduce una dirección privilegiada debido al esfuerzo externo; σ_{ex} es el tensor de esfuerzo externo y $\epsilon^{\bar{0}}$ es el tensor de deformación inicial. El sexto término se relaciona con el acople magneto-elástico y trata de minimizar la deformación elástica sufrida a causa de \vec{H}_{ex} , \bar{p}_e es el tensor de distorsión y \bar{c} es el tensor de rigidez. Según las ecuaciones de Maxwell, $\dot{H_d}$ y $\bar{p_e}$ deben cumplir:

$$\mathbf{div}(\mu_o \vec{H_d} + \vec{M}) = 0 \qquad \mathbf{rot}(\vec{H_d}) = 0$$

$$\mathbf{Div}[\bar{c}.(\bar{p}_e - \bar{\epsilon}^{\bar{0}})] = 0 \qquad \mathbf{Rot}(\bar{p}_e) = 0$$
(6.2)

Aquí hacemos la diferencia de la operaciones de divergencia y rotor escritas en minúscula o mayúscula dependiendo de si se aplica a un vector o a un tensor respectivamente.

6.2.2. Clasificación de dominios magnéticos, factor Q

Un parámetro importante a la hora de analizar los dominios magnéticos de un material es la cantidad adimensional $Q = K/K_d$, que es la relación entre una anisotropía dada K y la anisotropía producida por el campo demagnetizante K_d . Para ejemplificar se puede usar el caso de materiales fuertemente uniaxiales donde K será la anisotropía uniaxial. Dependiendo de si Q es mayor o menor que 1 se podrán identificar diferentes estructuras en los dominios magnéticos.

6.2.3. Formación de dominios de franjas débiles Q < 1.

La situación a ser discutida se presenta en la figura 6.2. Se trata de un film de espesor d y anisotropía fuera del plano K_n . Limitaremos la discusión al caso de un patrón en dos dimensiones que no depende del eje z, y al de un material con Q < 1.



Figura 6.2: Visión esquemática de los dominios tipo *stripes.* K_n es la anisotropía fuera del plano, H_{ex} es el campo externo aplicado y d el espesor. El eje z tiene su origen a la mitad del espesor del film, o sea $z = \pm d/2$ sobre las superficies. (a) Caso de una película magnética blanda $(Q \ll 1)$. (b) Caso de una película magnética con anisotropía fuera del plano alta. $(Q \approx 1)$.

La competencia entre el campo demagnetizante y la anisotropía fuera del plano tendrán como punto de equilibrio una configuración en la que la magnetización se encuentra en su mayor parte en el plano con una componente oscilante fuera del plano. Pero si el espesor es demasiado pequeño, el gradiente de magnetización será demasiado grande y el término de intercambio impedirá que esta situación ocurra. Luego, en este caso, toda la magnetización se encontrará en el plano, dado que Q < 1. Cuando el espesor aumenta, se llega a una instancia en la que el gradiente de magnetización disminuye y la configuración de franjas se hace la más estable. El mínimo espesor para el cual esto ocurre es el espesor crítico d_{cr} .

En la figura 6.2 se presenta los dos casos extremos: para $Q \ll 1$ la oscilación tendrá un carácter de flujo cerrado mientras que para el caso de $Q \approx 1$ las oscilación será esencialmente unidimensional.

6.2.4. Modelo de Muller para la nucleación de stripes

En 1961, Muller y Brown presentaron la primera solución al problema de la nucleación de dominios en forma de *stripes* [106, 107], la cual utiliza varias aproximaciones que se describirán en los párrafos subsiguientes. A continuación se desarrollará el modelo, utilizando como caso de estudio el sistema presentado en la figura 6.2.

En este sistema, $F_{an}(\vec{m})$ puede ser escrita como $K_n(1-m_z^2)$, de manera de minimizar este término de energía cuando la magnetización se encuentra en el eje z. En este contexto y despreciando los efectos de deformación, las ecuaciones micromagnéticas pueden ser escritas como [48]:

$$\vec{m} \times (2A\nabla^2(\vec{m}) + 2K_n m_z \hat{e}_3 + M_s H_{ex} \hat{e}_2 - M_s \mathbf{grad}(\Phi_d)) = 0$$
 (6.3)

donde los \hat{e}_i son los vectores unitarios a lo largo de la dirección i y Φ_d es el potencial del campo demagnetizante (ver apéndice C).

Limitaremos la discusión al caso de un patrón en dos dimensiones que no depende del eje y. También se hace la suposición de que al momento de nuclearse los stripes las componentes m_x y m_z son pequeñas. Entonces el potencial Φ_d puede también suponerse pequeño debido a que es lineal en m_x y m_z . La tercera componente, $m_y = \sqrt{1 - m_x^2 - m_z^2}$ puede ser tratada como constante (= 1) a primer orden.

Bajo estas condiciones, la ecuación (6.3) puede ser linealizada en m_x , m_z y Φ_d , conduciendo esto, junto con la ecuación del micromagnetismo (C.2) (ver apéndice C), al set de ecuaciones diferenciales:

$$-2A\nabla^{2}(m_{z}) - 2K_{n}m_{z} + M_{s}H_{ex}m_{z} + M_{s}\frac{\partial\Phi_{d}}{\partial z} = 0;$$

$$2A\nabla^{2}(m_{x}) - M_{s}H_{ex}m_{x} = 0;$$

$$\nabla\Phi_{d} = \left(\frac{M_{s}}{\mu_{0}}\right)\left(\frac{\partial m_{x}}{\partial z} + \frac{\partial m_{z}}{\partial z}\right);$$

$$\nabla^{2}\tilde{\Phi}_{d} = 0;$$

(6.4)

donde $\tilde{\Phi}_d$ es el potencial fuera del film. Sobre la superficie, las condiciones de contorno son:

$$\Phi_d = \tilde{\Phi}_d; \quad \frac{\partial m_x}{\partial z} = \frac{\partial m_z}{\partial z} = 0; \quad \frac{\partial \tilde{\Phi}_d}{\partial z} - \frac{\partial \Phi_d}{\partial z} = -\frac{M_s m_z}{\mu_0} \quad \text{para} \quad z = \pm d/2; \quad (6.5)$$

Se proponen soluciones de la forma:

$$m_1 = Be^{i(\mu_s x + \kappa z)}; \qquad m_2 = Ce^{i(\mu_s x + \kappa z)}; \Phi_d = Ue^{i(\mu_s x + \kappa z)}|_{interior}; \qquad \tilde{\Phi}_d = \tilde{U}e^{i(\tilde{\mu}_s x + \tilde{\kappa} z)}|_{exterior};$$
(6.6)

donde los subíndices *interior* y *exterior* hacen referencia a la región del espacio de la que se está hablando. Se aplican las condiciones de contorno (6.5), se hacen combinaciones lineales de las soluciones y sólo se retienen las soluciones para las que m_z es par en z y m_x y Φ_d son impares en z. Para el caso de K_n grande, κ adopta dos valores complejo conjugados ($\kappa_{1,2} = \nu_1 \pm i\nu_2$) y un valor positivo (κ_3). En este caso las soluciones son:

$$m_{x} = [b_{1}\mathrm{senh}(\nu_{2}z)\mathrm{cos}(\nu_{1}z) + b_{2}\mathrm{cosh}(\nu_{2}z)\mathrm{sen}(\nu_{1}z) + b_{3}\mathrm{sen}(\kappa_{3}z)]\mathrm{sen}(\mu_{s}x)$$

$$m_{z} = [c_{1}\mathrm{cosh}(\nu_{2}z)\mathrm{cos}(\nu_{1}z) + c_{2}\mathrm{senh}(\nu_{2}z)\mathrm{sen}(\nu_{1}z) + c_{3}\mathrm{cos}(\kappa_{3}z)]\mathrm{cos}(\mu_{s}x)$$

$$\Phi_{d} = [u_{1}\mathrm{senh}(\nu_{2}z)\mathrm{cos}(\nu_{1}z) + u_{2}\mathrm{cosh}(\nu_{2}z)\mathrm{sen}(\nu_{1}z) + u_{3}\mathrm{sen}(\kappa_{3}z)]\mathrm{cos}(\mu_{s}x)$$
(6.7)

Luego se reemplazan estas soluciones en la ecuación (6.4) y en las condiciones de contorno (6.5). Para que el determinante de este sistema se anule y la solución exista es necesario fijar un espesor d. Luego, el espesor crítico d_{cr} para la nucleación de *stripes* queda definido por el número de onda μ_s (que a su vez define el período λ), y por el campo aplicado. Solamente un factor de amplitud queda indeterminado.

Como último paso, el número de onda μ_s es optimizado a fin de encontrar el mínimo d_{cr} posible para un dado campo. El resultado es un patrón en forma de franjas donde la magnetización se aleja en forma sinusoidal de la dirección del campo aplicado. La solución general depende de tres parámetros: el espesor d, el campo aplicado H_{ex} y el parámetro del material $Q = K_n/K_d$. Luego, se podrán definir o bien un espesor crítico para un dado campo H_{ex} debajo del cual la magnetización es uniforme o un campo crítico para un dado espesor mas allá del cual los stripes no son estables.

Para Q pequeño, la solución se aproxima a la expresión analítica [108]:

$$m_x = \frac{ad}{w} \sin\left(\frac{\pi z}{d}\right) \sin\left(\frac{\pi x}{w}\right), \quad m_z = \frac{ad}{w} \cos\left(\frac{\pi z}{d}\right) \cos\left(\frac{\pi x}{w}\right), \quad \Phi_d = 0$$
(6.8)

lo que lleva a la condición crítica:

$$d_{cr} = 2\pi \frac{\sqrt{A/K_n}}{1-h}, \quad p_{s(cr)} = d_{cr} \sqrt{\frac{1-h}{1+h}}, \quad \text{con} \quad h = \frac{1}{2} \frac{H_{ex}M_s}{K_n},$$
 (6.9)

La función coseno en m_z se hace cero en las superficies $(z = \pm d/2)$. Su derivada no es cero violando una de las condiciones de contorno (6.5). De todas maneras, la solución rigurosa sigue el comportamiento del coseno. $p_{s(cr)}$ es el período crítico de los stripes. Para campo cero, $p_{s(cr)} = d_{cr}$.

6.3. Método experimental

Las muestras con las que se experimentó son películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ crecidas sobre un sustrato ZnSe/GaAs(001). Se trabajó con dos grupos de muestras, uno con d = 36 nm y el otro con $d \approx 70$ nm, y cuatro concentraciones para cada grupo. El método de crecimiento se encuentra detallado en el capítulo 3.

6.3.1. Ciclos de histéresis

Se midieron ciclos de histéresis (magnetización M vs. campo magnético aplicado H) a temperatura ambiente y en distintas direcciones cristalográficas. Para la obtención de estos ciclos se utilizó SQUID. Algunos de los ciclos presentados fueron medidos con un magnetómetro de fuerza de gradiente alterno (AGFM por sus siglas en inglés) con anterioridad a esta tesis.

6.3.2. Estudios de microscopía de fuerza magnética (MFM)

En remanencia

Como se describió anteriormente, algunas particularidades de los ciclos de histéresis dan indicios de una estructura de dominios magnéticos en forma de tiras. Para investigar esta hipótesis se realizaron medidas de microscopía de fuerza magnética (MFM), mediante la cual es posible obtener una imagen de la magnetización fuera del plano en la superficie de una película. La técnica se encuentra descripta en capítulo 2 sección 2.3. Las imágenes se tomaron en un microscopio VEECO Dimensión 3100 con una punta magnética cubierta con Co/Cr (modelo MESP) usando como distancia de lift 20nm. Se tomaron las imágenes de los dos grupos de muestras y también se analizaron sus transformadas de Fourier.

Con campo magnético aplicado

En el equipo de MFM es posible aplicar campo magnético in situ, de hasta 300 Oe en el plano de la muestra. Aprovechando esta facilidad se realizó un experimento para visualizar la rotación de los *stripes*. Se eligió una muestra particular, 0,14-80nm debido a que en la dirección [100] el campo de saturación es muy pequeño (ver figura 6.4(a)) y por lo tanto es posible saturar dentro del equipo. Al empezar el experimento los *stripes* se encontraban alineados en la dirección [010]. Luego se procedió a aplicar campo en la dirección perpendicular ([100]) y se tomaron imágenes para distintos valores de campo.

6.3.3. Experimentos de absorción y dispersión de rayos-x

Estudio de las propiedades electrónicas a través de espectroscopía de absorción de rayos-x (XAS) y dicroísmo circular magnético (XMCD)

Se realizaron experimentos de XAS y XMCD para comparar las propiedades electrónicas de una muestra 0,18-36nm con las del hierro puro (ver capítulo 2.4.2). Los mismos se llevaron a cabo en la línea TEMPO del sincrotrón SOLEIL situado en la localidad de GIF-sur-YVETTE (Francia) en una colaboración con Maurizzio Sacchi. Se utilizaron para todas las mediciones los bordes de absorción $L_{2,3}$ del hierro.

Estudio de la periodicidad y anisotropía rotacional a través de experimentos de dispersión resonante magnética de rayos-x (XMRS)

Con el objetivo de realizar un análisis más cuantitativo del período de los stripes y de la anisotropía rotacional se realizaron experimentos de dispersión magnética resonante de rayos-x (XMRS) en la línea SEXTANTS del sincrotrón de SOLEIL también en colaboración con Maurizzio Sacchi, usando los bordes de absorción $L_{2,3}$ del hierro. Los principios de la técnica se encuentran descriptos en el capítulo 2.4. Estos experimentos proveen simultáneamente información acerca de las propiedades estructurales y magnéticas de las muestras [109]. La muestra utilizada fue la 0,18-55nm.

Antes de comenzar los experimentos el arreglo de *stripes* se encontraba alineado en la dirección [100], perpendicular al plano de dispersión. Por medio de un electroimán, se aplicó campo magnético in situ a lo largo de dirección [010] con intensidad suficiente para rotar los *stripes*. Llamaremos q_z y q_x a las componentes del momento q que yacen sobre el plano de dispersión y son perpendicular y paralela a la superficie de la muestra respectivamente. Se realizaron barridos de hamacado para obtener información acerca de la periodicidad de los *stripes* (p_s) siguiendo la ley de difracción $q_x = \pm 2m\pi/p_s$ donde m es un número entero.

6.4. Resultados

6.4.1. Ciclos de histéresis

En esta sección presentaremos una primera caracterización magnética de estas muestras. Se midieron ciclos de histéresis (magnetización M vs. campo magnético aplicado H) a temperatura ambiente y en distintas direcciones cristalográficas.

En la figura 6.3 mostramos los ciclos de histéresis para magnetización en el plano (IP) de las muestras de 36 nm, en las direcciones cristalinas [100], [110] y [1 $\overline{1}$ 0]. La muestra 0,14-36nm tiene el eje de fácil magnetización en la dirección [100] y el difícil en la [1 $\overline{1}$ 0]. Este eje difícil en la [1 $\overline{1}$ 0] también aparece en películas delgadas de



Figura 6.3: Ciclos de histéresis, medidos por AGFM, para las muestras de 36 nm como se indica en cada panel. Diferentes colores y símbolos indican las direcciones en el plano a lo largo de las cuales las mediciones fueron hechas ([100], [110] y $[1\overline{10}]$).

hierro crecidas epitaxialmente sobre ZnSe [66, 69] y es atribuido a un origen interfacial. Por completitud, hemos medido muestras de 36 nm con concentraciones menores que x=0,14 y todas mostraron el mismo comportamiento magnético que la muestra de x=0,14. Las similitudes con los films de hierro nos permiten decir que los films de FeGa con concentraciones hasta x=0,14 tienen el comportamiento propio del hierro con la adición de un decrecimiento progresivo de la anisotropía en el plano.

En la muestra 0,18-36nm, la dirección [100] se convierte en el eje de difícil magnetización y la [110] en el fácil. Este comportamiento también se observa para la muestras de 0,24-36nm, pero con una respuesta aún mas isotrópica. Finalmente, los ciclos de la muestra de 0,29-36nm tienen la misma forma para todas las direcciones. Se deduce que principalmente dos aspectos distinguen a las muestras con x > 0,18 de aquellas con concentraciones menores:

 i) la extinción del eje-4 de simetría en la anisotropía magnetocristalina. Esta pérdida ya ha sido observada en FeGa masivo [71] y está relacionada con una distribución al azar de pares Ga-Ga en la familia de direcciones (001). Sin embargo, estudios cristalográficos recientes [59] muestran que estos films poseen una dirección preferencial para el ordenamiento de los pares de galio: la dirección de crecimiento, o sea la [001].

ii) El hecho de que la dirección [100] se vuelve el eje de difícil magnetización, lo cual se ve reflejado en un cambio de signo de la anisotropía de eje-4. Este fenómeno se observa también en material masivo para x = 0,20[71].



Figura 6.4: Ciclos de histéresis, medidos con SQUID, para las muestras de 72 nm como se indica en cada panel. Diferentes colores y símbolos indican las direcciones en el plano a lo largo de las cuales las mediciones fueron hechas ([100], [110] y $[1\bar{1}0]$).

En la figura 6.4 se presentan los ciclos de histéresis de las muestras de espesor nominal de 75 nm. La muestra de 0,14-80nm, al igual que la muestra de 0,14-36nm tiene el eje fácil en la dirección [100]. Por otra parte, las direcciones [110] y [1 $\overline{1}$ 0] son magnéticamente equivalentes. Este efecto está de acuerdo con lo esperado si se tiene en cuenta que la diferencias entre ambas provienen de una contribución interfacial que es inversamente proporcional al espesor. Por otra parte, las otras muestras (0,18-55nm, 0,20-65nm y 0,29-72nm) muestran un comportamiento más isotrópico.

Mas allá de la comparación de los ejes magnéticos, es importante notar que para las muestras de espesores altos (excepto por la 0,29-72nm) existe una diferencia cualitativa con respecto a las de 36 nm: exhiben una región donde M varía lineal y reversiblemente con H, como se indica en la figura 6.4(a) y en los recuadros de las figuras 6.4(b) y 6.4(c). Este comportamiento es una marca distintiva de los dominios magnéticos en forma de tiras (*stripes*) en películas delgadas[110].

6.4.2. Estudios de microscopía de fuerza magnética (MFM)

En remanencia

Para obtener estas imágenes un campo magnético de saturación, H_s , se aplicó en una dirección dada (como se muestra en las figuras), luego, H_s fue retirado y las imágenes se tomaron en remanencia. Hemos encontrado dominios en forma de tiras en las muestras 0,14-80nm, 0,18-55nm, 0,20-65nm y 0,29-36nm mientras que para las otras muestras estos dominios no fueron detectados.

En las figura 6.5, 6.6 y 6.7 mostramos las imágenes de MFM para las muestras en las que se observaron *stripes*. También se presentan sus transformadas de Fourier y el factor de estructura S(k), que es una integración angular en el espacio recíproco, manteniendo el módulo de k constante. Este factor permite obtener el período de las franjas evitando los errores por desalineación y la modulación intrínseca de las tiras a lo largo de la muestra.

En todos los casos el patrón de *stripes* se formó en la dirección de aplicación de H_s . Como se mencionó anteriormente, este efecto se conoce como anisotropía rotacional [105] y es esperado en nuestras muestras ya que proviene de la magnetostricción y del *stress* residual, que crean un eje fácil a lo largo de la dirección de H_s .

Como se explicó en la sección 6.2.4, la aparición de este patrón se observa para películas de espesor mayor a un espesor crítico, d_{cr} , que es determinado mayormente por el factor Q y de la constante de intercambio A (ver ecuación (6.9)).

En las figuras 6.5(a) y 6.5(b), mostramos los arreglos de *stripes* observados en la muestra 0,14-80nm. La figura 6.5(a) muestra un patrón de franjas obtenido luego de aplicar H_s en la dirección [100]. Se observa un particular diseño en forma de zig-zag orientado a lo largo de la dirección [100]. Este arreglo periódico en forma de zig-zag fue verificado analizando el espacio recíproco como se muestra en la figura 6.5(c). En esta figura se observan cuatro puntos. Los dos que yacen sobre el eje k_x indican que el arreglo es periódico en la dirección x. También observamos dos puntos adicionales que se encuentran en un eje rotado respecto del eje k_x . Esto es sencillo de entender a partir de la figura del espacio real 6.5(a), porque una región de los *stripes* se encuentra orientada en la dirección y. Luego, estos dos puntos adicionales en la transformada de Fourier, están relacionados a la región del zig-zag que forma un ángulo con la dirección de H_s .

Por otra parte, en la figura 6.5(b) se muestra el arreglo de dominios para H_s aplicado



Figura 6.5: (a) y (b) Patrón de *stripes* para la muestra de 0,14-80nm cuando el campo de saturación H_s se aplica a lo largo de las direcciones [100] y [110] respectivamente. (c) y (d) Espacio recíproco de los patrones de franjas mostrados en (a) y (b) respectivamente. Los inset en (c) y (d) muestran el factor de esctructura S(k).

en la dirección [110]. Para esta dirección los *stripes* no exhiben el zig-zag observado cuando H_s se aplica en la dirección [100]. El espacio recíproco correspondiente a esta dirección (figura 6.5(d)) confirma que la estructura de zig-zag no está presente, o sea, sólo se observan dos puntos en el eje k_x .

A pesar de las diferencias en la forma del patrón de *stripes*, sus períodos son los mismos para las dos direcciones de aplicación de H_s . Estos períodos fueron confirmados por el factor de estructura S(k) (ver los insets de las figuras 6.5(c)y (d)).

La tabla 6.1 exhibe los valores de los períodos para todas la muestras en las que se hallaron *stripes*.

No hemos encontrado en la literatura evidencia previa de este patrón de diente de sierra en sistemas como estos. En la referencia [110] se reporta un patrón en forma


Figura 6.6: (a) y (b) Patrón de *stripes* para las muestras de 0,18-55nm y 0,20-65nm respectivamente cuando un campo de saturación H_s se aplica a lo largo de la dirección [110]. (c) y (d) Espacio recíproco de los patrones de franjas mostrados en (a) y (b) respectivamente. Los inset de las figuras (c) y (d) muestran el factor de estructura S(k).

Muestra	Rótulo	$p_s (\mathrm{nm})$	d_{cr} (nm)
32m025	0,14-80nm	155 ± 5	75 ± 15
32m030	0,18-55nm	125 ± 5	60 ± 12
32m034	0,20-65nm	150 ± 5	35 ± 7
mbe983	0,29-36nm	80 ± 5	50 ± 10
32m031	0,29-72nm	No se pudo determinar	50 ± 10

Tabla 6.1: Periodo de los stripes p_s para las distintas muestras en los que éstos aparecieron.

de zig-zag, pero no es periódico como en nuestras muestras, parece ser originado por efectos de borde.

En las figuras 6.6(a) y (b) mostramos el arreglo de *stripes* para las muestras de 0,18-55nm y 0,20-65nm. Esta vez, solo mostramos los arreglos para H_s en la dirección [110]



Figura 6.7: (a) y (b) Patrón de *stripes* para las muestras de 0,29-36nm y 0,29-72nm respectivamente cuando un campo de saturación H_s se aplica a lo largo de la dirección [110]. (c) y (d) Espacio recíproco de los patrones de franjas mostrados en (a) y (b) respectivamente. Los inset de las figuras (c) y (d) muestran el factor de estructura S(k).

debido a que en la otras direcciones presentaron la misma configuración en remanencia. En este caso, las franjas son similares a las observadas para las muestras 0,14-80nm con H_s aplicado en la dirección [110]. Los periodos se muestran en la tabla 6.1.

Finalmente, en la figura 6.7(a) y (b), mostramos el arreglo de *stripes* para las muestras 0,29-36nm y 0,29-72nm, para H_s aplicado en la dirección [110] (las otras direcciones presentan la misma configuración en remanencia). Para la muestra 0,29-36nm se puede observar que el patrón es más difuso que en los casos anteriores, los *stripes* son más cortos y están distribuidos mas al azar en el espacio. Este hecho es corroborado en la figura 6.7(c), donde el espacio recíproco no presenta puntos claramente definidos. De todas formas es posible observar que S(k) tiene un pico en $k \sim 75\mu m^{-1}$ (ver inset de la figura 6.7(c)). Con respecto a la muestra 0,29-72nm, recordemos que los ciclos de histéresis no presentaron la parte "lineal reversible" (ver figura 6.4(d)). Sin embargo, la figura 6.7(b) muestra un patrón de *stripes* difuso con un período más largo que aquel observado en las muestras de 0,29-36nm. De todas maneras no tuvimos éxito en la determinación de λ , como se puede observar en el inset de la figura 6.7(d), S(k) presenta un pico muy ancho, mostrando que el período no se encuentra bien definido.

Con el objetivo de explorar cómo las propiedades magnéticas de nuestras muestras se relacionan con los parámetros de los *stripes*, hemos aplicado el modelo de Muller (sección 6.2.4) para la estimación del espesor crítico d_{cr} . Dados el parámetro $Q \ y A$, se puede calcular d_{cr} (ver ecuación (6.9)). En el caso de A utilizamos la constante del hierro puro masivo $(1,4\times10^{-11} \text{ J/m [63]})$. K_n fue calculado mediante la relación $k_{\perp} = \frac{1}{2}H_{\perp}M$, donde H_{\perp} , el campo de saturación fuera del plano, se extrajo de los ciclos de histéresis de la muestras, fuera del plano. Los resultados para d_{cr} se exhiben en la tabla 6.1. Considerando el error, todas las muestras tienen un espesor mayor al espesor crítico excepto por la muestra 0,29-36nm. Ésta es la única que no encaja en la descripción hecha por el modelo de Muller.

En la referencia [73] se reporta el valor del parámetro $A=1,6\times10^{-11}$ J/m para la muestra 0,20-65nm. Utilizando este valor se obtiene un d_{cr} de 38nm, el cual es un valor más apropiado que el anterior, debido a que en la muestra de 0,20-36nm no se detectaron *stripes*.

Estos resultados acentúan la importancia de tener una buena determinación de los parámetros utilizados. En este sentido, a partir de las mediciones magnéticas hemos tenido éxito en la determinación de M_s y K_n . Por otra parte, para el parámetro A sólo en el caso de la muestra 0,20-65nm se encontró una referencia. Indudablemente, conocer el A del FeGa bulk habría mejorado la capacidad predictiva del modelo. Sin embargo, las diferencias en la estructura atómica de nuestras películas delgadas con respecto al *bulk* hacen difícil garantizar que el parámetro medido en el *bulk* sea apropiado, especialmente para concentraciones altas de galio, donde la distorsión tetragonal de nuestras películas es notable [59].

También es importante notar que el patrón de zig-zag es un efecto relacionado a la anisotropía en el plano que no es tenida en cuenta en ninguno de los modelos vigentes.

Con campo magnético aplicado

En este caso el objetivo fue estudiar la rotación de los *stripes* mediante la aplicación de un campo perpendicular a la dirección de los mismos. Se analizó la muestra 0,14-80nm. Al empezar el experimento los *stripes* se encontraban alineados en la dirección [010]. Se comenzó a aplicar campo en la dirección perpendicular [100] y se fueron tomando imágenes para distintos valores de campo aplicado. La figura 6.8 muestra los resultados.



Figura 6.8: Experimento de rotación de *stripes* en la muestra 0,14-80nm. Al empezar el experimento las franjas se encontraban alineadas en la dirección [010], que en las imágenes es la vertical. Se comenzó a aplicar campo en la dirección perpendicular [100] (horizontal) y se fueron tomando imágenes para distintos valores de campo.

Se puede observar que el patrón de *stripes* permanece inalterado hasta que el campo llega a 80 Oe. A este campo lo llamaremos H_{rot} . Luego de este campo las franjas comienzan a rotar coherentemente y rápidamente llegan a la dirección del campo aplicado. Para campo mayores a 200 Oe los *stripes* desaparecen debido a que la magnetización alcanza la saturación.

6.4.3. Experimentos de absorción y dispersión de rayos-x

Estudio de las propiedades electrónicas a través de espectroscopía de absorción de rayos-x (XAS) y dicroísmo circular magnético (XMCD)

La espectroscopia XAS es sensible a estados electrónicos desocupados cerca del nivel de Fermi y por lo tanto a las propiedades electrónicas. El espectro XMCD, es obtenido al restar dos espectros XAS medidos con rayos-x circularmente polarizados con distintas helicidades. Este brinda información acerca de las propiedades magnéticas del estado fundamental de un sistema, y permite estudiar cada elemento constituyente en forma separada.



Figura 6.9: Espectros XAS y XMCD de la muestra 0,18-36nm en los bordes $L_{2,3}$ de absorción del Fe.

En la figura 6.9 se muestran los espectros XMCD de la muestra elegida (0,18-36nm), medidos en los bordes $L_{3,2}$ del hierro. Comparando con aquellos medidos en la referencia [58] para el Fe puro, se puede concluir que a pesar de la adición del Ga los espectros conservan la forma de los espectros del Fe puro sin modificaciones apreciables en la configuración electrónica.

Estudio de la periodicidad y anisotropía rotacional a través de experimentos de dispersión resonante magnética de rayos-x (XMRS)

La figura 6.10(a) muestra las curvas de hamacado en q_x de XMRS obtenidas utilizando rayos-x circularmente polarizados y de energía en el borde 2p del hierro (707eV). Además de la reflexión especular, aparecen dos picos en $q_x = 52 \ \mu \text{m}^{-1}$ que pueden ser atribuidos a un patrón regular de *stripes* con una periodicidad $\lambda = 121$ nm. A estos picos los denominaremos picos satélite. El periodo obtenido está en acuerdo con las mediciones de MFM (ver la transformada de Fourier en la imagen 6.6).



Figura 6.10: a) Curvas de hamacado para la muestra 0,18-55nm. Intensidad dispersada versus ángulo, para distintos valores de q_z . Los picos que se ven a los costados de la reflexión especular se encuentran a $q_x=0,52 \ \mu m^{-1}$, correspondiendo a un período de los *stripes* de 121 nm. b) Intensidad integrada del pico en función de la energía del fotón incidente.

La figura 6.10(b) muestra que la intensidad del pico decrece cuando nos alejamos de la resonancia del hierro, es decir cuando variamos la energía de los fotones incidentes en unos pocos eV. Esto confirma el origen puramente magnético de los *stripes* ya que si los picos tuvieran también un origen estructural, deberían seguir viéndose aún fuera de la resonancia del Fe.



Figura 6.11: Intensidad del pico de difracción en función del campo H aplicado. Inicialmente los *stripes* se encuentran alineados según la dirección [110] y luego se comienza a aplicar campo perpendicular y se mide la intensidad del pico satélite en función del campo aplicado.

Cuando se aplica campo perpendicular a la dirección de los stripes, estos rotan como fue observado anteriormente en las mediciones de MFM con campo aplicado. El siguiente experimento consistió en aplicar campo perpendicular a la dirección de las franjas y repetir las curvas de hamacado para observar el comportamiento de los picos satélite. La figura 6.11 presenta la intensidad normalizada de los uno de los picos satélite en función del campo aplicado. Cuando los stripes comienzan a rotar, la intensidad del pico decrece,

como es de esperarse debido a la rotación de la magnetización. Se pueden diferenciar dos regímenes magnéticos, antes de alcanzar los 200 Oe la intensidad del pico permanece casi constante y luego, decae abruptamente.

6.5. Conclusiones

Hemos verificado la existencia de dominios magnéticos en forma de franjas para películas delgadas de $Fe_{1-x}Ga_x$ crecidas sobre un sustrato ZnSe/GaAs(001). Esta estructura de dominios aparece para films con espesores mayores a un espesor crítico que varía con la concentración de Ga. Si se aplica un campo de saturación en el plano, y luego se lo retira, las franjas se forman siempre en la dirección del campo aplicado. Hemos comprobado también, que si se aplican campo pequeños (del orden de 200 Oe) en el plano, perpendiculares a las franjas, estas comienzan a rotar coherentemente cuando se sobrepasa un campo característico H_{rot} .

Mediante experimentos de XMRS hemos confirmado el origen puramente magnético de la estructura de franjas. La periodicidad medida por MFM y por XMRS coincide. La rotación de las franjas cuando se aplica un campo perpendicular, verifica un comportamiento que pudo ser comprobado con ambas técnicas: las franjas no parecen modificarse hasta que el campo sobrepasa H_{rot} . Cuando el campo alcanza ese valor, los stripes comienzan a rotar.

La respuesta magnética de las películas delgadas de FeGa estudiadas siguen, a primera aproximación, dos tipos de comportamientos. Las muestras con x < 0,14 muestran comportamiento muy similar al de los films de hierro puro, mientras que las muestras con x > 0,15 tienen ciclos de histéresis similares a los del FeGa masivo.

La observación de los dominios en forma de *stripes* en estos films magnetostrictivos propone nuevas preguntas para esta clase de sistemas. En particular, se plantea la necesidad de desarrollar nuevos modelos que tengan en cuentan la anisotropía magnética en el plano, para ver si se llega a reproducir el patrón de zig-zag observado.

Capítulo 7

Conclusiones y perspectivas

En la evolución de la investigación acerca de materiales magnetostrictivos el descubrimiento de la aleación $Fe_{1-x}Ga_x$ fue un punto donde se alcanzó un compromiso muy conveniente entre los requerimientos de tener elevada magnetostricción a temperatura ambiente (del orden de 10⁴), campos de manipulación bajos (menores a 300 Oe), histéresis pequeña, gran ductilidad y bajo costo por el hecho de no poseer tierras raras [1]. Estas características inspiraron gran número de trabajos tanto teóricos como experimentales destinados a entender, entre otras cuestiones, la influencia de la estructura atómica en la magnetostricción.

En esta tesis hemos introducido el estudio de esta aleación crecida como película delgada. Las facilidades del Instituto de Nanociencias de París nos permitieron contar con *films* crecidos por MBE de espesores nanométricos y monocristalinos.

Algunos trabajos previos a esta tesis, ya habían caracterizado estructuralmente estas muestras [59] hallando una distorsión tetragonal metaestable que se pierde cuando se aplica un recocido. Esta distorsión había sido atribuida a la formación de pares de galio en la dirección de crecimiento de las muestras (fuera del plano), los cuales se redistribuyen cuando se aplica un tratamiento térmico. Las fases estructurales identificadas fueron la A2 y B2 que también se encuentran en el *bulk*, pero a diferencia de éste no se halló de la fase DO₃.

Nuestro trabajo fue de índole experimental y consistió en realizar una caracterización magnética que incluyó el estudio de las anisotropías magnéticas, los coeficientes de acople magneto-elástico y los dominios magnéticos. Para este objetivo se combinaron las disponibilidades experimentales de tres laboratorios: Laboratorio de Resonancias Magnéticas del Centro Atómico Bariloche, (Argentina), Instituto de Nanociencias de París (Francia) e Instituto Max-Planck de Microestructura, Halle (Alemania).

Desde el punto de vista de la investigación básica, hemos logrado una sólida descripción del sistema crecido como película delgada en función del espesor, concentración de galio y estructura atómica. Como conclusiones globales podemos decir que, a pesar de las diferencias estructurales respecto del *bulk*, el sistema conserva muchas de sus características. Como ejemplos podemos citar una anisotropía magnetocristalina en el plano cuyo eje fácil rota con la concentración de Ga, elevados coeficientes de acople magneto-elástico a temperatura ambiente (del orden de 1/3 de los del *bulk* para B₁ y muy cercano a los del *bulk* para B₂), mismos parámetros de red cuando se pierde la distorsión tetragonal (luego del recocido), etc. Este panorama alienta el uso del FeGa como película delgada expandiendo ampliamente su campo de utilización.

Por otra parte, a diferencia del *bulk*, nuestras películas poseen una fuerte anisotropía fuera del plano (del orden de diez veces mayor a la anisotropía dentro del plano) que tiene una contribución magnetocristalina, una magneto-elástica y otra posiblemente debida a una anisotropía en la distribución de los pares de Ga (más pares de Ga fuera del plano que dentro del mismo). Esta última contribución pudo ser explicada proponiendo una adaptación del modelo fenomenológico de Cullen [2]. Como consecuencia de esta anisotropía fuera del plano aparecen, para espesores adecuados, dominios magnéticos en forma de tiras o *stripes* que se pueden rotar en la dirección del campo de saturación aplicado.

Algunas particularidades del sistema quedan aún por entender, por citar algunas: la rotación de la anisotropía tetragonal en el plano con la concentración, que es un efecto que se observa también en el material masivo, la rotación de la anisotropía uniaxial en el plano con el espesor, y la modificación de los coeficientes de acople magneto-elástico con respecto a los del *bulk*. La anisotropía inherente a una distribución anisotrópica de pares de galio en la familia de direcciones $\langle 100 \rangle$, es una propuesta que parece explicar gran parte de nuestros resultados y que necesitaría más estudios para ser confirmada. La presencia de pares de Ga-Ga puede ser confirmada mediante estudios de sincrotrón de EXAFS y difracción de rayos-x.

Los últimos trabajos de dinámica molecular de primeros principios [40] han sugerido que la modificación de la cantidad de electrones por celda unidad puede prolongar en concentración el comportamiento creciente del módulo de B_1 con lo cual se podrían alcanzar valores más altos de este coeficiente de acople magneto-elástico. Surge entonces, como extensión natural de este trabajo, la idea de fabricar muestras donde se sustituya una pequeña cantidad de Ga por Cu o Zn (entre 1 % y 2 %) y el estudio de sus propiedades estructurales y magnéticas.

Desde el punto de vista de las aplicaciones podemos decir que para las concentraciones y espesores en los cuales se forman los dominios en forma de franjas, los campos de saturación se ven incrementados con respecto a los del *bulk* con lo cual, para algunas aplicaciones que requieran manipular el magnetismo con campos bajos, será preferible evitar esta configuración magnética.

Por otra parte, en otro tipo de aplicaciones, el patrón de stripes puede ser aprove-

chado como cristal magnónico. Los cristales magnónicos son materiales ferromagnéticos con propiedades magnéticas periódicamente moduladas donde habrá bandas de estados permitidos separadas por gaps de frecuencias prohibidas, para los magnones que intenten propagarse en este material [111–114]. Por estas razones, estos cristales son

fuertes candidatos a ser utilizados para la construcción de filtros nanométricos y procesamientos de señales de frecuencias de GHz como también dispositivos de funciones lógicas.

Por nuestra parte también proponemos, como continuación de esta tesis, el estudio de la propagación de ondas acústicas superficiales (SAW, por sus siglas en inglés) en nuestro sistema. El sustrato de GaAs tiene propiedades piezoeléctricas que se pueden aprovechar para generar y detectar [115] SAWs en los *films* (fonones). La modulación periódica de la deformación, modificará también la anisotropía fuera del plano, y se espera que esto cree ondas de espín cuando la excitación tenga una frecuencia perteneciente a una banda de estados permitidos. Luego, estudiando la atenuación de las SAW's inyectadas se podría obtener información acerca de la formación de ondas de espín en nuestro sistema. El hecho de que los *stripes* se formarán siempre en la dirección del campo aplicado, permitiría variar fácilmente la geometría del experimento.

El estudio de las propiedades de transporte puede ofrecer valiosa información acerca de la configuración de dominios magnéticos y cómo éstos varían con temperatura, campo aplicado, etc.

Por otra parte, muchas aplicaciones requieren que el material se litografíe con lo cual otra posible proyección sería la de estudiar qué sucede con los dominios magnéticos cuando se confina el tamaño de las películas.

Por último, existe también la posibilidad de adherir las películas a un sustrato piezoeléctrico y estudiar las propiedades magnéticas en función de la deformación. Ya existen algunos trabajos de estas características reportados [116] pero hasta el momento no se ha presentado ningún estudio sistemático en cuanto a espesor y concentración.

Apéndice A

Modelo de Cullen para explicar los efectos de los pares Ga-Ga en la anisotropía cúbica

Cullen propuso en 2007 la formación de pares Ga-Ga como responsable de la reducción de la anisotropía cúbica con la concentración[2]. Se postula la existencia de pares Ga-Ga orientados al azar en cualquiera de las tres direcciones <001> como se muestra en la figura A.1.



Figura A.1: Representación esquemática en dos dimensiones de los pares Ga-Ga orientados al azar en cualquiera de los ejes <001>.

Estos defectos producirían en los átomos de hierro vecinos una tendencia a alinear su momento magnético en forma paralela o perpendicular al eje del par Ga-Ga. De esta manera se crea una anisotropía uniaxial local orientada al azar en cualquiera de los tres ejes <001>. La energía libre, por átomo, del sistema queda descripta por:



El primer término representa la energía de intercambio isotrópica con los demás átomos, J es la constante de acoplamiento y Ω es el volumen atómico. El segundo término representa la energía dipolar (Zeeman), \vec{M} es el vector magnetización local, que puede escribirse como $\vec{M_i}(R_l) = M_s \vec{\alpha_i}(R_l)$ y \vec{H} el campo externo. El tercer término representa la anisotropía magnetocristalina cúbica y el cuarto término da cuenta de la anisotropía random uniaxial producida por los pares Ga-Ga en los átomos de Fe vecinos. P_i es la probabilidad de que el eje i (i = x, y, z) sea el eje del defecto, y puede tomar los valores 0 o 1. EL paso siguiente es pedir que se cumpla la condición de que el torque ejercido sobre cada momento magnético ($\vec{L}(R_l)$) sea cero, que es la ecuación básica del micromagnetismo [117] [118]:

$$\vec{L}(R_l) = 0$$

$$\vec{M}(R_l) \times H_{eff}(R_l) = 0$$

$$\vec{\alpha} \times \frac{\partial F}{\partial \vec{\alpha}} = 0 \quad \text{para todo } R_l$$
(A.2)

donde H_{eff} es el campo efectivo ejercido sobre cada momento magnético. El objetivo es obtener una expresión de la anisotropía efectiva K_{eff} y ver cómo varía con la concentración. Para esto, se estudiaron la susceptibilidad transversa χ_t , dado que $\frac{1}{\chi_t} = K_{eff}$ [119].

Entonces, la estrategia general utilizada es introducir un campo externo pequeño, perpendicular al eje de fácil magnetización, y estudiar la respuesta del sistema, extraer la susceptibilidad transversa y de allí la anisotropía efectiva.

Para nuestro caso tomamos como eje fácil el [100]. Si se aplica un campo pequeño en dirección perpendicular $\vec{h} = (0, h_y, h_z)$, la magnetización se desviará poco del eje fácil y podrá escribirse como $\vec{M} = M_s(1, \delta_y, \delta_z)$. En este caso, la ecuación A.2 se convierte en una ecuación lineal, no local en δ_y, δ_z . Bajo estas condiciones, se vuelve conveniente trabajar con las transformadas de Fourier ($\gamma_y(q), \gamma_z(q)$). Llamaremos $\gamma_{\perp} = (\gamma_y, \gamma_z)$. Sus componentes satisfacen:

$$A(q)\gamma_{i}(q) - M_{s}^{2}\vec{q}.\vec{\gamma}_{\perp}\frac{q_{i}}{q^{2}} + 2K_{1}\gamma_{i} + 2K\sum_{q'}Q_{ix}\gamma_{i}(q') = \tilde{h}_{i}(q)$$
(A.3)

para i = y, z. Q_{ix} es la q-ésima componente de Fourier de $P_i(R) - P_x(R)$. $A(q) \equiv J\gamma^{-1}(Z - \sum_l e^{iqR_l})$, donde Z es el número de vecinos cercanos de un átomo de hierro. Se aproximará $A(q) \simeq A_0 q^2$ donde A_0 es la constante de intercambio de Stiffness. Se busca la respuesta a un campo uniforme, y por esta razón nos quedamos sólo con el primer componente del desarrollo de $\tilde{h}_i(q)$, el término para q = 0. La ecuación para q = 0 promediada sobre las fluctuaciones espaciales de la magnetización es:

$$2K_1\overline{\gamma_i(0)} + 2K\sum_{q'}\overline{Q_{ix}(-q')\gamma_i(q')} = h_i \tag{A.4}$$

Asumiendo que Q y γ no están fuertemente correlacionadas, $\overline{Q(q')Q(q)\gamma(q+q')}$ se reduce a $\overline{Q(q')Q(q)}.\overline{\gamma(q+q')}$. Aplicando esta relación en A.4 tomando q' = -q y extrayendo γ_i de A.3 se obtiene:

$$\left\{2K_{1} - (2K^{2})\sum_{q'} \overline{|Q_{ix}(q')|^{2}} \left[\frac{1}{A(q') + 2K_{1}} + \frac{1}{A(q') + 2K_{1} + M_{s}^{2}sin^{2}\theta}\right]\right\}\overline{\gamma_{i}(0)} = h_{i}$$
(A.5)

Se tomará:

$$\overline{|Q_{ix}(q')|^2} = \begin{cases} |P_{ix}^2| \cong 4C^2 & \text{para } q \le q_c \\ 0 & \text{para } q > q_c, \quad q_c = \frac{2\pi}{a} \end{cases}$$
(A.6)

que significa que la probabilidad de encontrar un defecto en una dirección dada, dentro de un radio a, es $2C^2$. El radio a es la dimensión del defecto y es típicamente dos veces el parámetro de red. El coeficiente que acompaña $\overline{\gamma_i(0)}$ es la inversa de la susceptibilidad transversa, o sea, la anisotropía efectiva. Haciendo la integral en A.5 para A_0 muy grande, o sea, despreciando K_1 y M_s se obtiene:

$$K_{eff} = K_1 - \frac{4K^2C^4a^2}{\pi A_0} \tag{A.7}$$

Apéndice B

Elementos de elasticidad

En este apéndice mostraremos conceptos necesarios en la construcción de las ecuaciones de la densidad de energía elástica y magneto-elástica. Seguiremos la estructura desarrollada en la referencia [16].

A continuación definiremos lo elementos del tensor lagrangiano de deformación η_{ij} . Consideremos un punto en una sustancia deformable de coordenadas $\vec{p}^0 = (x_1^0, x_2^0, x_3^0)$ que luego de ser deformada la sustancia pasa a tener coordenadas $\vec{p}^1 = (x_1^1, x_2^1, x_3^1)$. El vector desplazamiento será definido como:

$$\vec{u} = \vec{p}^1 - \vec{p}^0$$
 (B.1)

Si las componentes del vector desplazamiento u_i son funciones continuas y diferenciables de las coordenadas iniciales x_i^0 , es posible definir las componentes del tensor de desplazamiento $u_{ij} = \partial u_i / \partial x_j^0$. Luego, teniendo en cuenta la ecuación B.1:

$$dx_i^1 = dx_i^0 + \sum_j u_{ij} dx_j^0 \tag{B.2}$$

Ahora consideremos un segundo punto cercano al primero cuyas coordenadas serán antes de la deformación $\vec{g}^0 = \vec{p}_0 + \vec{dp}_0$ y luego de la misma $\vec{g}^1 = \vec{p}_1 + \vec{dp}_1$. Las distancia entre estos dos puntos antes de la deformación ds^0 y luego de la misma ds^1 será:

$$ds^{0} = \sqrt{\sum_{i} dx_{i}^{0}}; \quad ds^{1} = \sqrt{\sum_{i} dx_{i}^{1}}$$
 (B.3)

Se dice que un cuerpo está deformado cuando se observa un cambio en la distancia relativa de puntos del material, luego, haciendo uso de esta definición caracterizaremos la deformación con la diferencia:

$$ds^{1^2} - ds^{0^2} = 2\sum_{ij} u_{ij} dx_i^0 dx_j^0 + \sum_{ijk} u_{ki} u_{kj} dx_i^0 dx_j^0$$
(B.4)

que puede ser escrita como:

$$ds^{1^2} - ds^{0^2} = 2\sum_{ij} \eta_{ij} dx_i^0 dx_j^0$$
(B.5)

Con esto, se pueden definir las nueve componentes del tensor lagrangiano de deformación η_{ij} . Introduzcamos las combinaciones lineales simétricas y antisimétricas de los u_{ij} :

$$\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji} = \frac{1}{2}(u_{ij} + u_{ji}); \quad \omega_{ij} = -\omega_{ji} = \frac{1}{2}(u_{ij} - u_{ji});$$
 (B.6)

Con éstas, las componentes del tensor lagrangiano se definen como:

$$\eta_{ij} = \epsilon_{ij} + \frac{1}{2}(\epsilon_{ki} + \omega_{ki})(\epsilon_{kj} + \omega_{kj})$$
(B.7)

Cabe destacar que este tensor será simétrico. La configuración final de la sustancia se puede definir completamente en términos de los ϵ_{ij} y los ω_{ij} . Por su parte, el tensor η_{ij} no provee una descripción completa de la transformación ya que no contiene información acerca de las rotaciones. Existen casos de deformación no uniforme donde los distintos elementos de volumen del material pueden rotar localmente. Para analizar estos casos utilizamos la expresión:

$$x_i^1 = \sum_j \left(\delta_{ij} + \epsilon_{ij} + \omega_{ij}\right) x_i^0 \tag{B.8}$$

donde $\delta_{ij}=1$ para i=j y cero en cualquier otro caso. La expresión para la rotación manteniendo términos hasta segundo orden en los u_{ij} es [16]:

$$\Re_{ij} = \Re_{ji}^{-1} \approx \delta_{ij} + \omega_{ij} + \frac{1}{2} \sum_{l} \left(\omega_{il} \omega_{lj} - \omega_{il} \epsilon_{lj} + \epsilon_{li} \omega_{jl} \right)$$
(B.9)

Ahora la transformación puede ser completamente descripta por los η_{ij} y los \Re_{ij} definidos para cualquier posición del material.

Con las componentes η_{ij} se pueden hacer combinaciones convenientes para describir las transformaciones de un material con distintas simetrías como lo muestra la tabla B.1:

Para trabajar con estas bases de funciones debemos definir nuevas constantes elásticas c^{μ} en función de los elementos del tensor de rigidez:

$$c^{\alpha} = c_{11} + 2c_{12}; \quad c^{\gamma} = c_{11} - c_{12}; \quad c^{\epsilon} = 2c_{44};$$
 (B.10)

Y finalmente completamos esta base definiendo los polinomios armónicos hasta segundo orden en las coordenadas como se muestra en la tabla B.2.

Simetría Base	O_3	$\mathbf{D}_{\infty \mathbf{h}}$	$\mathbf{C}_{\mathbf{I}}$	T_{I}	Ο	H_{I}
$\frac{1}{\sqrt{3}}(\eta_{xx} + \eta_{yy} + \eta_{zz})$	η^{lpha}	$\eta^{lpha,1}$	η^{lpha}	$\eta^{lpha,1}$	$\eta^{lpha,1}$	$\eta^{lpha,1}$
$\sqrt{rac{2}{3}}(\eta_{zz}-rac{\eta_{xx}+\eta_{yy}}{2})$	η_1^{γ}	$\eta^{lpha,2}$	η_1^γ	$\eta^{lpha,2}$	$\eta^{lpha,2}$	$\eta^{lpha,2}$
$rac{1}{\sqrt{2}}(\eta_{xx}-\eta_{yy})$	η_2^{γ}	η_1^γ	η_2^γ	η^{γ}	$\eta^{lpha,3}$	η_1^ϵ
$\sqrt{2}\eta_{xy}$	η_3^{γ}	η_2^{γ}	η_1^ϵ	η^{δ}	η^eta	η_2^ϵ
$\sqrt{2}\eta_{yz}$	η_4^γ	η_3^γ	η_2^ϵ	η_1^ϵ	η^{γ}	η_1^{ξ}
$\sqrt{2}\eta_{zx}$	η_5^{γ}	η_4^γ	η_3^ϵ	η_2^ϵ	η^{δ}	η_2^{ξ}

Tabla B.1: Coeficientes η calculados para distintos grupos de simetría: isotrópico (O_3) , cilíndrico $(D_{\infty h})$, cúbico (C_I) , tetragonal (T_I) , ortorrómbico (O) y hexagonal (H_I) . Tabla extraída de la referencia [16].

Simetría Polinomios	O ₃	$\mathbf{D}_{\infty \mathbf{h}}$	C_{I}	T_{I}	0	H_{I}
$P_0 = \frac{1}{\sqrt{3}}(x^2 + y^2 + z^2)$	$P^{\alpha,0}$	$U^{lpha,0}$	$K^{\alpha,0}$	$Q^{lpha,0}$	$O^{lpha,0}$	$H^{\alpha,0}$
$P_1 = \sqrt{\frac{2}{3}} \left(z^2 - \frac{x^2 + y^2}{2} \right)$	$P_1^{\gamma,2}$	$U^{\alpha,2}$	$K_1^{\gamma,2}$	$Q^{lpha,2}$	$O^{lpha,2}$	$H^{\alpha,2}$
$P_2 = \frac{1}{\sqrt{2}}(x^2 - y^2)$	$P_2^{\gamma,2}$	$U_1^{\gamma,2}$	$K_2^{\gamma,2}$	$Q^{\gamma,2}$	$O^{\alpha,2'}$	$H_1^{\epsilon,2}$
$P_3 = \sqrt{2}xy$	$P_3^{\gamma,2}$	$U_2^{\gamma,2}$	$K_1^{\epsilon,2}$	$Q^{\delta,2}$	$O^{\beta,2}$	$H_2^{\epsilon,2}$
$P_4 = \sqrt{2}yz$	$P_4^{\gamma,2}$	$U_1^{\delta,2}$	$K_2^{\epsilon,2}$	$Q_1^{\epsilon,2}$	$O^{\gamma,2}$	$H_1^{\zeta,2}$
$P_5 = \sqrt{2}zx$	$P_5^{\gamma,2}$	$U_2^{\delta,2}$	$K_3^{\epsilon,2}$	$Q_2^{\epsilon,2}$	$O^{\delta,2}$	$H_2^{\zeta,2}$

Tabla B.2: Polinomios armónicos de grado l= 0, 2 calculados para distintos grupos de simetría: isotrópico (O_3), cilíndrico ($D_{\infty h}$), cúbico (C_I), tetragonal (T_I), ortorrómbico (O) y hexagonal (H_I). Tabla extraída de la referencia [16].

Con todos elementos la energía elástica $f_{elastic}$ de un sistema con simetría cúbica, hexagonal, tetragonal u ortorrómbica, conservando hasta el segundo orden en la deformación, se puede escribir como: [16]:

$$f_{elastic} = \sum_{ij} c^{\alpha}_{ij}(\eta^{\alpha,i})(\eta^{\alpha,j}) + \frac{1}{2} \sum_{\mu \neq \alpha,i} c^{\mu}(\eta^{\mu}_{i})^{2}$$
(B.11)

En particular, para una estructura cúbica, el tensor de constantes elásticas expresado en la base descripta anteriormente será:

$\int c^{\alpha}$	0	0	0	0	0)
0	c^{γ}	0	0	0	0
0	0	c^{γ}	0	0	0
0	0	0	c^{ϵ}	0	0
0	0	0	0	c^{ϵ}	0
0	0	0	0	0	c^{ϵ}

con:

$$c^{\alpha} = c_{11} + 2c_{12};$$
 $c^{\gamma} = c_{11} - c_{12};$ $c^{\epsilon} = 2c_{44};$ (B.12)

Y para una estructura tetragonal con el eje z como el eje de distorsión:

$\left(c_{11}^{\alpha}\right)$	c_{12}^{α}	0	0	0	0)
c_{12}^{α}	c_{22}^{α}	0	0	0	0
0	0	c^{γ}	0	0	0
0	0	0	c^{δ}	0	0
0	0	0	0	c^{ϵ}	0
0	0	0	0	0	c^{ϵ}

siendo:

$$c_{11}^{\alpha} = \frac{1}{3} \left(2c_{11} + 2c_{12} + 4c_{13} + c_{33} \right); \qquad c_{22}^{\alpha} = \frac{1}{3} \left(c_{11} + c_{12} - 4c_{13} + 2c_{33} \right)$$

$$c_{12}^{\alpha} = -\frac{\sqrt{2}}{3} \left(c_{11} + c_{12} - c_{13} - c_{33} \right); \qquad (B.13)$$

$$c^{\gamma} = c_{11} - c_{12}; \qquad (B.13)$$

$$c^{\delta} = 2c_{66}; \qquad c^{\epsilon} = 2c_{44};$$

Luego, despreciando los términos sin variación angular, reagrupando y renombrando variables se obtiene para le estructura cúbica:

$$f_{elastic}^{cubic} = \frac{1}{2}c_{11}(\epsilon_{xx}^2 + \epsilon_{yy}^2 + \epsilon_{zz}^2) + c_{12}(\epsilon_{xx}\epsilon_{yy} + \epsilon_{yy}\epsilon_{zz} + \epsilon_{xx}\epsilon_{zz}) + \frac{1}{2}c_{44}(\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{yz}^2 + \epsilon_{xz}^2)$$
(B.14)

Y para la tetragonal:

$$f_{elastic}^{tetragonal} = \frac{1}{2} c_{11} (\epsilon_{xx}^2 + \epsilon_{yy}^2) + \frac{1}{2} c_{33} \epsilon_{zz}^2 + c_{12} \epsilon_{xx} \epsilon_{yy} + c_{13} (\epsilon_{yy} \epsilon_{zz} + \epsilon_{xx} \epsilon_{zz}) + \frac{1}{2} c_{44} \epsilon_{xy}^2 + \frac{1}{2} c_{66} (\epsilon_{yz}^2 + \epsilon_{xz}^2)$$
(B.15)

Se puede observar que en la expresión de $f_{elastic}$ para una estructura cúbica habrá seis 3 constantes elásticas involucradas mientras que en la de una estructura tetragonal habrá seis.

Para las mismas simetrías, la densidad de energía magneto-elástica f_{me} , manteniendo hasta el primer orden en los coeficientes de acople magneto-elástico y hasta el cuarto orden en los α_i , se define como: [16]:

$$f_{me} = \sum_{li} b_i^{\alpha,l} \eta^{\alpha,i} P^{\alpha,l} \left(\alpha_k^* \right) + \sum_{\mu \neq \alpha, l, i} b^{\mu,l} \eta_i^{\mu} P_i^{\mu,l} \left(\alpha_k^* \right) \tag{B.16}$$

donde $\alpha_k^* = \Re_k \alpha_k$. Los $P^{\alpha,l}$ y los $P_i^{\mu,l}$ son los polinomios armónicos definidos en la tabla B.2. Los $b^{\alpha,l}$ y $b^{\mu,l}$ son los coeficientes de acople magneto-elástico. El primer término describe un modo de deformación isotrópico mientras que el segundo representa el efecto anisotrópico de la magnetostricción Joule.

Particularizando para una estructura cúbica, manteniendo hasta el primer orden en la deformación, segundo orden en los α_i , despreciando los términos sin variación angular y renombrando variables se obtiene:

$$f_{me}^{cubic} = B_1(\epsilon_{xx}\alpha_1^2 + \epsilon_{yy}\alpha_2^2 + \epsilon_{zz}\alpha_3^2) + B_2(\epsilon_{yz}\alpha_2\alpha_3 + \epsilon_{xy}\alpha_1\alpha_2 + \epsilon_{xz}\alpha_1\alpha_3) + \dots$$
(B.17)

Mientras que para una estructura tetragonal resulta:

$$f_{me}^{tetragonal} = B_1(\epsilon_{xx}\alpha_1^2 + \epsilon_{yy}\alpha_2^2) + B_1'\epsilon_{zz}\alpha_3^2 + B_2 + B_2\epsilon_{xy}\alpha_1\alpha_2 + B_2'(\epsilon_{yz}\alpha_2\alpha_3 + \epsilon_{xz}\alpha_1\alpha_3) + \dots$$
(B.18)

Notamos que para la descripción de una estructura tetragonal necesitamos cuatro constantes de acople magneto-elástico mientras que para una estructura cúbica sólo se necesitan dos.

Apéndice C

Ecuaciones diferenciales de micromagnetismo y campo efectivo

El micromagnetismo es una técnica que trata los momentos magnéticos como un continuo y es utilizada para predecir el comportamiento magnético en escalas por debajo del μ m [48]. Las escalas de longitud son consideradas suficientemente grades como para ignorar la estructura atómica del material (aproximación del continuo) y suficientemente pequeñas para resolver estructuras magnéticas como por ejemplo paredes de dominio o vórtices. El propósito de las ecuaciones estáticas del micromagnetismo es encontrar las distribución espacial de la magnetización en equilibrio, o sea hallar la orientación espacial del vector \vec{m} . A continuación deduciremos estas ecuaciones.

Teniendo en cuenta la restricción $m^2 = 1$ y aplicando cálculo variacional a la ecuación [6.1] con las condiciones [6.2], se llega a:

$$-2A\nabla^2 \vec{m} + \mathbf{grad}_{\tilde{\mathbf{m}}} F_{an}(\vec{m}) - (\vec{H}_{ex} + \vec{H}_d)M_s - (\bar{\bar{\sigma}}_{ex} + \bar{\bar{\sigma}}^{ms})\mathbf{Grad}_{\tilde{\mathbf{m}}} \bar{\bar{\epsilon}}^0 = f_L \vec{m} \quad (C.1)$$

donde ∇^2 es el operador de Laplace y f_L es un parámetro lagrangiano. $\bar{\sigma}^{ms} = \bar{c}.(\bar{p}_e - \bar{\epsilon}^0)$ es proporcional a la desviación del estado de deformación inicial. En esta derivación, \vec{m} es considerado el único parámetro libre.

 $\vec{H_d}$ y \bar{p}_e se consideran determinados completamente por la magnetización. Esto implica, para $\vec{H_d}$ que puede ser derivado de un potencial $\vec{H_d} = \mathbf{grad}\Phi$, que está conectado a la carga magnética $\lambda = -\mathbf{div}(\vec{M})$ por la ecuación potencial $\mu_0 \nabla^2 \Phi = -\lambda$. Por lo tanto:

$$\vec{H}_d = -\mathbf{grad}(\Phi_d) \quad \text{con} \quad \nabla^2 \Phi_d = \frac{M_s}{\mu_0} \mathbf{div}(\vec{m})$$
 (C.2)

Para cada distribución $\vec{M}(\vec{r})$ es posible derivar $\vec{H_d}$ usando las herramientas de la teoría de potenciales o hallando soluciones numéricas, que es el camino más comúnmente elegido.

También es posible derivar \bar{p}_e a partir de un vector desplazamiento \vec{u} con la ecuación $\bar{p}_e = -\mathbf{Grad}(\vec{u})$. Asimismo se puede hallar una pseudo ecuación potencial para \vec{u} : $\mathbf{Div}(\bar{c}.\mathbf{Grad}(\vec{u})) = -\mathbf{Div}(\bar{c}.\bar{c}^0)$. Pero esta ecuación es, en general , muy difícil de resolver debido al tensor de orden cuatro \bar{c} .

El lado izquierdo de la ecuación [C.1] puede ser escrito como:

$$-M_{s}\underbrace{\left[\vec{H}_{ex}+\vec{H}_{d}+\frac{1}{M_{s}}\left[2A\nabla^{2}\vec{m}-\mathbf{grad}_{\tilde{\mathbf{m}}}F_{an}(\vec{m})+(\bar{\bar{\sigma}}_{ex}+\bar{\bar{\sigma}}^{ms})\mathbf{Grad}_{\tilde{\mathbf{m}}}\bar{\bar{\epsilon}}^{0}\right]\right]}_{\tilde{\mathbf{H}}_{\text{eff}}}=f_{L}\vec{m}$$
(C.3)

donde \vec{H}_{eff} representa un *campo efectivo*. Se puede probar que:

$$\vec{M} \times \vec{H}_{eff} = 0 \tag{C.4}$$

y esta ecuación ofrece una interpretación más simple de las ecuaciones del micromagnetismo: el torque ejercido por el campo efectivo sobre cualquier vector de magnetización debe ser cero cuando se tiene equilibro estático.

La ecuación [C.3] con las condiciones [6.2] constituyen las ecuaciones básicas del micromagnetismo.

Bibliografía

- Petculescu, G., Wu, R., McQueeney, R. Magnetoelasticity of bcc Fe-Ga Alloys, tomo 20 de Handbook of Magnetic Materials. Hardbound, 2012.
- [2] Cullen, J., Zhao, P., Wuttig, M. Anisotropy of crystalline ferromagnets with defects. *Journal of Applied Physics*, **101** (12), 123922, 2007.
- [3] Atulasimha, J., Flatau, A. A review of magnetostrictive iron-gallium alloys. Smart Mater. and Struct., 20, 043001, 2011.
- [4] Sander, D. The correlation between mechanical stress and magnetic anisotropy in ultrathin films. *Reports on Progress in Physics*, **62** (5), 809, 1999.
- [5] Ackereman, J. Toward a universal memory. *Science*, **308**, 508, 2005.
- [6] Parkin, S., Hayashi, M., Thomas, L. Magnetic domain-wall racetrack memory. Science, 320, 190, 2008.
- [7] Katine, J., Albert, F., Buhrman, R., Myers, E., Ralph, D. Current-driven magnetization reversal and spin-wave excitations in Co/Cu/Co pillars. *Phys. Rev. Lett.*, 84, 3149, 2000.
- [8] Wang, K., Alzate, J., Khalili Amiri, P. Low-power non-volatile spintronic memory: STT-RAM and beyond. J. Phys.D, 46, 074003, 2013.
- [9] Liu, M., Hoffman, J., Wang, J., Zhang, J., Nelson-Cheeseman, B. Non-volatile ferroelastic switching of the Verwey transition and resistivity of epitaxial Fe₃O₄/PMN-PT (011). Sci. Rep., 3, 1876, 2013.
- [10] Hockel, J., Bur, A., Wu, T., Wetzlar, K., Carman, G. Electric field induced magnetization rotation in patterned Niring/[Pb(Mg_{1/3}Nb2/3)O₃] _{1-0,32}-[PbTiO₃]_{0,32} heterostructures. Appl. Phys. Lett., **100**, 022401, 2012.
- [11] Adamo, C., Ke, X., Wang, H., Xin, H., Heeg, T., Hawley, M. E., et al. Effect of biaxial strain on the electrical and magnetic properties of (001) LSMO thin films. Appl. Phys. Lett., 95, 112504, 2009.

- [12] Finizio, S., Foerster, M., Buzzi, M., Krüger, B., Jourdan, M., Vaz, C., et al. Magnetic Anisotropy Engineering in Thin Film Ni Nanostructures by Magnetoelastic Coupling. Phys. Rev. Appl., 1, 021001, 2014.
- [13] Cherepov, S., Amiri, P., Alzate, J., Wong, K., Lewis, M., Upadhyaya, P., et al. Electric-field-induced spin wave generation using multiferroic magnetoelectric cells. Appl. Phys. Lett., 104 (082403), 2014.
- [14] Joule, J. P. On a new class of magnetic forces. Sturgeon's Annals of Electricity, 8, 219, 1842.
- [15] Joule, J. P. On the effects of magnetism upon the dimensions of iron and steel bars. *Phil. Mag.*, **30** (3), 76–225, 1847.
- [16] Du-Tremolet-de Lacheisserie, E. Magnetostriction: theory and applications of magnetoelasticity. CRC Press, 1993.
- [17] Clark, A. E., Bozorth, R. M., Desavage, B. F. Anomalous thermal expansion and magnetostriction of single crystals of dysprosium. *Physics Letters A*, 5 (2), 100–102, 1963.
- [18] Legvold, S., Alstad, J., Rhyne, J. Giant magnetostriction in dysprosium and holmium single crystals. *Physical Review Letters*, **10** (12), 509–511, 1963.
- [19] Clark, A., DeSavage, B., Bozorth, R. Anomalous thermal expansion and magnetostriction of single-crystal dysprosium. *Phys. Rev.*, **138**, 24, 1965.
- [20] Abbundi, R., Clark, A. Analogous thermal expansion and magnetostriction of single-crystal Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe2. *IEEE Trans. Magn.*, **13**, 4510–5, 1977.
- [21] Clark, A. E., Restorff, J. B., Wun-Fogle, M., Lograsso, T. A., Schlagel, D. L. Magnetostrictive properties of body-centered cubic Fe-Ga and Fe-Ga-Al alloys. *IEEE Transactions on Magnetics*, **36** (5 I), 3238–3240, 2000.
- [22] Guruswamy, S., Srisukhumbowornchai, N., Clark, A. E., Restorff, J. B., Wun-Fogle, M. Strong, ductile, and low-field-magnetostrictive alloys based on Fe-Ga. *Scripta Materialia*, 43 (3), 239–244, 2000.
- [23] Clark, A. E., Hathaway, K. B., Wun-Fogle, M., Restorff, J. B., Lograsso, T. A., Keppens, V. M., et al. Extraordinary magnetoelasticity and lattice softening in bcc Fe-Ga alloys. Journal of Applied Physics, 93 (103), 8621–8623, 2003.
- [24] Wu, R. Origin of large magnetostriction in FeGa alloys. Journal of Applied Physics, 91 (10 I), 7358–7360, 2002.

- [25] Ikeda, O., Kainuma, R., Ohnuma, I., Fukamichi, K., Ishida, K. Phase equilibria and stability of ordered b.c.c. phases in the Fe-rich portion of the Fe-Ga system. *Journal of Alloys and Compounds*, **347** (1-2), 198–205, 2002.
- [26] Du, Y., Huang, M., Chang, S., Schlagel, D. L., Lograsso, T. A., McQueeney, R. J. Relation between Ga ordering and magnetostriction of Fe-Ga alloys studied by x-ray diffuse scattering. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 81 (5), 2010.
- [27] Dunlap, R. A., McGraw, J. D., Farrell, S. P. A Mössbauer effect study of structural ordering in rapidly quenched Fe–Ga alloys. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **305** (2), 315 – 320, 2006.
- [28] Luo, H. Lattice parameters of iron-rich iron-gallium alloys. Trans. Metall. Soc. AIME, 239, 119, 1967.
- [29] Xing, Q., Du, Y., McQueeney, R. J., Lograsso, T. A. Structural investigations of Fe-Ga alloys: Phase relations and magnetostrictive behavior. *Acta Materialia*, 56 (16), 4536–4546, 2008.
- [30] Bhattacharyya, S., Jinschek, J. R., Khachaturyan, A., Cao, H., Li, J. F., Viehland, D. Nanodispersed DO₃ -phase nanostructures observed in magnetostrictive Fe-19% Ga Galfenol alloys. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 77 (10), 2008.
- [31] Khachaturyan, A. G., Viehland, D. Structurally heterogeneous model of extrinsic magnetostriction for Fe-Ga and similar magnetic alloys: Part I. Decomposition and confined displacive transformation. *Metallurgical and Materials Transactions* A: Physical Metallurgy and Materials Science, **38** A (13), 2308–2316, 2007.
- [32] Khachaturyan, A. G., Viehland, D. Structurally heterogeneous model of extrinsic magnetostriction for Fe-Ga and similar magnetic alloys: Part II. Giant magnetostriction and elastic softening. *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science*, **38** A (13), 2317–2328, 2007.
- [33] Cao, H., Gehring, P. M., Devreugd, C. P., Rodriguez-Rivera, J. A., Li, J., Viehland, D. Erratum: Role of nanoscale precipitates on the enhanced magnetostriction of heat-treated galfenol (Fe1-xGax) alloys (Physical Review Letters (2009) 102 (127201)). *Physical Review Letters*, **105** (11), 2010.
- [34] Wang, H., Zhang, Y. N., Yang, T., Zhang, Z. D., Sun, L. Z., Wu, R. Q. Ab initio studies of the effect of nanoclusters on magnetostriction of Fe_{1-x} Ga_x alloys. *Applied Physics Letters*, **97** (26), 2010.

- [35] Laver, M., Mudivarthi, C., Cullen, J. R., Flatau, A. B., Chen, W. C., Watson, S. M., et al. Magnetostriction and magnetic heterogeneities in iron-gallium. *Physical Review Letters*, **105** (2), 2010.
- [36] Du, Y., Huang, M., Lograsso, T. A., McQueeney, R. J. X-ray diffuse scattering measurements of chemical short-range order and lattice strains in a highly magnetostrictive Fe_{0,813}Ga_{0,187} alloy in an applied magnetic field. *Physical Review B* Condensed Matter and Materials Physics, 85 (21), 2012.
- [37] Hong, S. C., Yun, W. S., Wu, R. Giant magnetostriction of Fe_{1-x}Be_x alloy: A first-principles study. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, **79** (5), 2009.
- [38] Cao, H., Gehring, P. M., Devreugd, C. P., Rodriguez-Rivera, J. A., Li, J., Viehland, D. Role of nanoscale precipitates on the enhanced magnetostriction of heat-treated galfenol (Fe_{1-x}Ga_x) alloys. *Physical Review Letters*, **102** (12), 2009.
- [39] Zhang, Y. N., Cao, J. X., Wu, R. Q. Rigid band model for prediction of magnetostriction of iron-gallium alloys. *Applied Physics Letters*, **96** (6), 2010.
- [40] Wang, H., Zhang, Y. N., Wu, R. Q., Sun, L. Z., Xu, D. S., Zhang, Z. D. Understanding strong magnetostriction in Fe_{100-x}Ga_x alloys. *Scientific Reports*, 3, 2013.
- [41] Bhagat, S. M., Haraldson, S., Beckman, O. Ferromagnetic resonance in amorphous systems. J. Phys. Chem. Solids, 38, 593–599, 1997.
- [42] Sierra García, J. F. Magnetization Dynamics in Magnetic and Superconducting Nanostructures. Tesis Doctoral, Universidad Autónoma de Madrid, 2008.
- [43] Smit, J., Beljers, H. Phillips Res. Rep., 10 (113), 1955.
- [44] Premper, J., Sander, D., Kirschner, J. A combined surface stress and magneto optical Kerr effect measurement setup for temperatures down to 30 K and in fields of up to 0.7 T. *Review of Scientific Instruments*, 83 (7), 073904, 2012.
- [45] Dahmen, K., Lehwald, S., Ibach, H. Bending of crystalline plates under the influence of surface stress - a finite element analysis. *Surface Science*, 446 (1–2), 161 – 173, 2000.
- [46] Ibach, H. The role of surface stress in reconstruction, epitaxial growth and stabilization of mesoscopic structures. Surface Science Reports, 29 (5-6), 193–263, 1997.

- [47] Bayreuther, G., Premper, J., Sperl, M., Sander, D. Uniaxial magnetic anisotropy in Fe/GaAs(001): Role of magnetoelastic interactions. *Physical Review B* - Condensed Matter and Materials Physics, 86 (5), 2012.
- [48] Hubert, A., Schäfer, R. Magnetic Domains: The Analysis of Magnetic Microstructures. Springer, 1998.
- [49] Miyahara, T., Takahashi, M. Dependence of the longitudinal Kerr magneto-optic effect on saturation magnetization in Ni-Fe films. Jpn J Appl Phys, 15 (2), 291– 298, 1976.
- [50] Qiu, Z., Bader, S. Surface magneto-optic Kerr effect (SMOKE). Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 200 (1), 664–678, 1999.
- [51] Scanning Probe Microscopy (SPM). URL http://www.klaeui-lab.physik. uni-mainz.de/146.php, University of Mainz.
- [52] Magnetic Force Microscopy (MFM). URL http://www.parkafm.com/ AFM_guide/spm_modes_7.php?id=1211&Magnetic%20Force%20Microscopy% 20(MFM), Park systems.
- [53] Nielsen, J. A., F., M. D. Elements of Modern X-Ray Physics. Wiley-IEEE Press, 2001.
- [54] Peters, J. F. Resonant soft x-ray scattering studies of the magnetic nanostructure of stripe domains. Tesis Doctoral, Universiteit op Donderdag, 2003.
- [55] Tobia, D. Efectos de superficie e interacción de intercambio en nanopartículas magnéticas. Tesis Doctoral, Universidad de Cuyo, 2011.
- [56] Pasquini, G. SQUID y materiales superconductores, 2011. URL http://users. df.uba.ar/pasquini/labo5/El%20SQUID.pdf.
- [57] Masel, R. Principles of Adsorption and Reaction on Solid Surfaces. John Wiley & Sons, 1996.
- [58] Marangolo, M., Gustavsson, F., Eddrief, M., Sainctavit, P., Etgens, V. H., Cros, V., et al. Magnetism of the Fe/ZnSe (001) interface. *Physical Review Letters*, 88 (21), 2172021–2172024, 2002.
- [59] Eddrief, M., Zheng, Y., Hidki, S., Rache Salles, B., Milano, J., Etgens, V. H., et al. Metastable tetragonal structure of FeGa epitaxial thin films on ZnSe/GaAs(001) substrate. Phys. Rev. B, 84, 161410, Oct 2011.

- [60] Yalçın, O. Ferromagnetic Resonance Theory and Applications, 2013. URL http://www.intechopen.com/ books/ferromagnetic-resonance-theory-and-applications/ ferromagnetic-resonance.
- [61] Kittel, C. Physical theory of ferromagnetic domains. *Reviews of Modern Physics*, 21 (4), 541–583, 1949.
- [62] Landau, L. D., Pitaevskii, L. P., Lifshitz, E. M. Electrodynamics of Continuous Media. <u>En</u>: Course of theoretical Physics, tomo 8, pág. 3. Pergamon Press, 1984.
- [63] Cullity, B. D., Graham, C. D. Introduction to Magnetic Materials. 2^a ed^{<u>6n</u>}. Wiley-IEEE Press, 2009.
- [64] Marangolo, M., Gustavsson, F., Guichar, G. M., Eddrief, M., Varalda, J., Etgens,
 V. H., et al. Structural and magnetic anisotropies of Fe/ZnSe(001) thin films.
 Phys. Rev. B, 70, 134404, Oct 2004.
- [65] Meckenstock, R., Spoddig, D., Himmelbauer, K., Krenn, H., Doi, M., Keune, W., et al. Magnetic properties of Fe/ZnSe and Fe/GaAs heterostructures investigated by ferromagnetic resonance and SQUID measurements. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 240 (1–3), 410 – 413, 2002. 4th International Symposium on Metallic Multilayers.
- [66] Gustavsson, F., Nordström, E., Etgens, V. H., Eddrief, M., Sjöstedt, E., Wäppling, R., et al. Magnetic moment and anisotropy at the Fe/ZnSe(001) interface studied by conversion electron Mössbauer spectroscopy. *Physical Review B* -*Condensed Matter and Materials Physics*, 66 (2), 244051–244055, 2002.
- [67] Reiger, E., Reinwald, E., Garreau, G., Ernst, M., Zölfl, M., Bensch, F., et al. Magnetic moments and anisotropies in ultrathin epitaxial Fe films on ZnSe(001). *Journal of Applied Physics*, 87 (9 III), 5923–5925, 2000.
- [68] Krebs, J. J., Jonker, B. T., Prinz, G. A. Properties of Fe single-crystal films grown on (100)GaAs by molecular-beam epitaxy. *Journal of Applied Physics*, 61 (7), 2596–2599, 1987.
- [69] Sjöstedt, E., Nordström, L., Gustavsson, F., Eriksson, O. Uniaxial magnetocrystalline anisotropy of metal/semiconductor interfaces: Fe/ZnSe(001). *Physical Re*view Letters, 89 (26), 267203/1–267203/4, 2002.
- [70] Steren, L. B., Milano, J., Eddrief, M., Etgens, V. H. Magnetic properties of Fe/ZnSe/Fe trilayers . *Physica B: Condensed Matter*, **320** (1–4), 162 – 164, 2002.

Proceedings of the Fifth Latin American Workshop on Magnetism, Magnetic Materials and their Applications.

- [71] Rafique, S., Cullen, J. R., Wuttig, M., Cui, J. Magnetic anisotropy of FeGa alloys. *Journal of Applied Physics*, 95 (11), 6939–6941, 2004.
- [72] Tacchi, S., Grnäs, O., Stollo, A., Madami, M., Gubbiotti, G., Carlotti, G., et al. Epitaxial Fe films on ZnSe(001): Effect of the substrate surface reconstruction on the magnetic anisotropy. Journal of Physics Condensed Matter, 24 (23), 2012.
- [73] Tacchi, S., Fin, S., Carlotti, G., Gubbiotti, G., Madami, M., Barturen, M., et al. Rotatable magnetic anisotropy in a Fe_{0,8} Ga_{0,2} thin film with stripe domains: Dynamics versus statics. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 89 (2), 2014.
- [74] Felippa, C. Stress, 2013. URL http://www.colorado.edu/engineering/CAS/ courses.d/Structures.d/IAST.Lect04.d/IAST.Lect01.pdf.
- [75] Felippa, C. Strains, 2013. URL http://www.colorado.edu/engineering/CAS/ courses.d/Structures.d/IAST.Lect04.d/IAST.Lect04.pdf.
- [76] Ashcroft, N. W., Mermin, N. D. Solid State Physics. Philadelphia: Saunders College, 1976.
- [77] Lee, E. W. Magnetostriction and magnetomechanical effects. *Reports on Progress in Physics*, 18 (1), 184–229, 1955.
- [78] Sun, S. W., O'Handley, R. C. Surface magnetoelastic coupling. *Physical Review Letters*, 66 (21), 2798–2801, 1991.
- [79] Song, O., Ballentine, C. A., O'Handley, R. C. Giant surface magnetostriction in polycrystalline Ni and NiFe films. *Applied Physics Letters*, 64 (19), 2593–2595, 1994.
- [80] O'Handley, R. C., Sun, S. Strained layers and magnetoelastic coupling. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **104-107** (PART 3), 1717–1720, 1992.
- [81] O'Handley, R. C., Song, O. ., Ballentine, C. A. Determining thin-film magnetoelastic constants. *Journal of Applied Physics*, 74 (10), 6302–6307, 1993.
- [82] Koch, R., Weber, M., Thürmer, K., Rieder, K. H. Magnetoelastic coupling of Fe at high stress investigated by means of epitaxial Fe(001) films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **159** (1-2), L11–L16, 1996.

- [83] Fujiwara, H., Kadomatsu, H., Tokunaga, T. Magnetocrystalline anisotropy and magnetostriction of Pd-Co alloys. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **31-34** (PART 2), 809–810, 1983.
- [84] Takahashi, H., Tsunashima, S., Iwata, S., Uchiyama, S. Measurement of magnetostriction constants in polycrystalline alloy and multilayer films of PdCo and PtCo. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 126 (1-3), 282–284, 1993.
- [85] Tsunashima, S., Nakamura, K., Uchiyama, S. Perpendicular magnetic anisotropy of PdCo and PtCo based multilayers. *IEEE Transactions on Magnetics*, 26 (5), 2724–2726, 1990.
- [86] Nakamura, K., Tsunashima, S., Hasegawa, M., Uchiyama, S. Perpendicular magnetic anisotropy of PdCo alloy in multilayered structure. *Journal of Magnetism* and Magnetic Materials, **93** (C), 462–464, 1991.
- [87] Takahashi, H., Tsunashima, S., Iwata, S., Uchiyama, S. Measurement of magnetostriction constants in polycrystalline alloy and multilayer films of PdCo and PtCo. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **126** (1-3), 282–284, 1993.
- [88] Kim, Y. K., Silva, T. J. Magnetostriction characteristics of ultrathin permalloy films. Applied Physics Letters, 68 (20), 2885–2886, 1996.
- [89] Bozorth, R. M. Ferromagnetism. Wiley, 1993.
- [90] Lachowicz, H. K., Szymczak, H. Magnetostriction of amorphous magnetic materials. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 41 (1-3), 327–334, 1983.
- [91] Giallorenzi, T. G., Bucaro, J. A., Dandridge, A., Siegel Jr., G. H., Cole, J. H., Rashleigh, S. C., et al. Optical fiber sensor technology. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, QE-18 (4), 626–665, 1982.
- [92] Bucholtz, F., Koo, K. P., Sigel Jr., G. H., Dandridge, A. Optimization of the fiber/metallic glass bond in fiber-optic magnetic sensors. *Journal of Lightwave Technology*, LT-3 (4), 814–817, 1985.
- [93] Squire, P. T., Gibbs, M. R. J. Fibre-optic dilatometer for measuring magnetostriction in ribbon samples. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, **20** (5), 499–502, 1987.
- [94] Brizzolara, R. A., Colton, R. J. Magnetostriction measurements using a tunneling-tip strain detector. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 88 (3), 343–350, 1990.

- [95] Costa, J. L., Nogués, J., Rao, K. V. Direct measurements of magnetostrictive process in amorphous wires using scanning tunneling microscopy. *Applied Physics Letters*, pág. 3374, 1995.
- [96] Zhang, Y., Wu, R. Mechanism of Large Magnetostriction of Galfenol. *IEEE Trans. Magn.*, 47 (10), 2011.
- [97] Wu, R. Q., Chen, L. J., Shick, A., Freeman, A. J. First-principles determinations of magneto-crystalline anisotropy and magnetostriction in bulk and thinfilm transition metals. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 177-181 (PART 2), 1216–1219, 1998.
- [98] Wang, D. ., Wu, R., Freeman, A. J. First-principles theory of surface magnetocrystalline anisotropy and the diatomic-pair model. *Physical Review B*, 47 (22), 14932–14947, 1993.
- [99] Brantley, W. A. Calculated elastic constants for stress problems associated with semiconductor devices. J. Appl. Phys., 44 (534), 1973.
- [100] Timoshenko, S., Woinowsky-Krieger, S. Theory of Plates and Shells. Singapore: McGraw-Hill, 1959.
- [101] Khmelevska, T., Khmelevskyi, S., Mohn, P. Magnetism and structural ordering on a bcc lattice for highly magnetostrictive Fe-Ga alloys: A coherent potential approximation study. *Journal of Applied Physics*, **103** (7), 2008.
- [102] Alvarez-Prado, L. M., Perez, G. T., Morales, R., Salas, F. H., Alameda, J. M. Perpendicular anisotropy detected by transversely biased initial susceptibility via the magneto-optic Kerr effect in FeSi thin films and $\text{Fe}_x\text{Si}_{1-x}/\text{Si}$ multilayers: Theory and experiment. *Physical Review B*, **56** (6), 1997.
- [103] Guzmán, J. M., Álvarez, N., Salva, H. R., Vásquez Mansilla, M., Gómez, J., Butera, A. Abnormal temperature dependence of the coercive field in FePt thin films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **347**, 61–67, 2013. Cited By (since 1996):1.
- [104] Ramos, C., Brigneti, E. V., Gómez, J., Butera, A. Stripe domains in Permalloy films as observed by ferromagnetic resonance and magnetic force microscopy . *Physica B: Condensed Matter*, **404** (18), 2784 – 2786, 2009.
- [105] Lehrer, S. S. Rotatable anisotropy in negative magnetostriction NiFe films. Journal of Applied Physics, 34 (4), 1207–1208, 1963.

- [106] Muller, M. W. Distribution of the magnetization in a ferromagnet. *Physical Review*, **122** (5), 1485–1489, 1961.
- [107] Brown Jr., W. F. Rigorous calculation of the nucleation field in a ferromagnetic film or plate. *Physical Review*, **124** (5), 1348–1353, 1961.
- [108] Hubert, A. Stray-field- free magnetization configurations. *Physica Status Solidi*, 32 (2), 519–534, 1969.
- [109] Spezzani, C., Fabrizioli, M., Candeloro, P., Di Fabrizio, E., Panaccione, G., Sacchil, M. Magnetic order in a submicron patterned permalloy film studied by resonant x-ray scattering. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, **69** (22), 224412–1–224412–7, 2004.
- [110] Saito, N., Fujiwara, H., Sugita, Y. A new type of magnetic domain structure in negative magnetostriction Ni-Fe films. *Journal of the Physical Society of Japan*, 19 (7), 1116–1125, 1964.
- [111] Kruglyak, V. V., Demokritov, S. O., Grundler, D. Magnonics. Journal of Physics D: Applied Physics, 43 (26), 2010.
- [112] Tacchi, S., Montoncello, F., Madami, M., Gubbiotti, G., Carlotti, G., Giovannini,
 L., et al. Band diagram of spin waves in a two-dimensional magnonic crystal.
 Physical Review Letters, 107 (12), 2011.
- [113] Wang, Z. K., Zhang, V. L., Lim, H. S., Ng, S. C., Kuok, M. H., Jain, S., et al. Nanostructured magnonic crystals with size-tunable bandgaps. ACS Nano, 4 (2), 643–648, 2010.
- [114] Tacchi, S., Duerr, G., Klos, J. W., Madami, M., Neusser, S., Gubbiotti, G., et al. Forbidden band gaps in the spin-wave spectrum of a two-dimensional bicomponent magnonic crystal. *Physical Review Letters*, **109** (13), 2012.
- [115] Soderkvist, J., Hjort, K. The piezoelectric effect of GaAs used for resonators and resonant sensors. Journal of Micromechanics and Microengineering, 4 (1), 28–34, 1994.
- [116] Parkes, D. E., Shelford, L. R., Wadley, P., Holý, V., Wang, M., Hindmarch, A. T., et al. Magnetostrictive thin films for microwave spintronics. Scientific Reports, 3, 2013.
- [117] Brown, W. F. Theory of the Approach to Magnetic Saturation. Phys. Rev., 58, 736–743, Oct 1940.

- [118] Brown, W. F. The Effect of Dislocations on Magnetization Near Saturation. *Phys. Rev.*, **60**, 139–147, Jul 1941.
- [119] Asti, G., Rinaldi, S. Singular points in the magnetization curve of a polycrystalline ferromagnet. *Journal of Applied Physics*, 45 (8), 3600–3610, 1974.

Publicaciones asociadas

- 1. Barturen M, Rache Salles B, Schio P, Milano J, Butera A, Bustingorry S, et al. Crossover to striped magnetic domains in $Fe_{1-x}Ga_x$ magnetostrictive thin films. Appl Phys Lett. 2012;101(9).
- Barturen M, Sacchi M, Eddrieff M, Milano J, Bustingorry S, Popescu H, et al. Rotatable anisotropy of epitaxial Fe_{1-x}Ga_x thin films. European Physical Journal B. 2013;86(4).
- Tacchi S, Fin S, Carlotti G, Gubbiotti G, Madami M, Barturen M, et al. Rotatable magnetic anisotropy in a Fe_{0,8}Ga_{0,2} thin film with stripe domains: Dynamics versus statics. Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics. 2014;89(2).
