

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**

**FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS**

**Departamento de Física de Materiales**



**PROCESOS DE IMANACIÓN EN SISTEMAS MAGNÉTICOS  
CON ANISOTROPÍA DE CANJE**

**MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR**

**PRESENTADA POR**

Elena Pina Martínez

Bajo la dirección del doctor

Celso Prados Espasandín

**Madrid, 2002**

**ISBN: 84-669-1752-7**

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**

FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS  
DEPARTAMENTO DE FÍSICA DE MATERIALES

INSTITUTO DE MAGNETISMO APLICADO  
LABORATORIO SALVADOR VELAYOS

# **Procesos de imanación en sistemas magnéticos con anisotropía de canje**

Memoria presentada por

**Elena Pina Martínez**

para optar al grado de  
Doctor en Ciencias Físicas

Madrid, junio de 2002

*A mis padres y a mis hermanos.*

*Quiero expresar en estas líneas mi agradecimiento a todas aquellas personas e instituciones que han hecho posible la realización de este trabajo.*

*Al Profesor Antonio Hernando Grande, director del Instituto de Magnetismo Aplicado, quiero agradecerle profundamente la oportunidad que me dio un día, de hace ya casi seis años, de pasar a formar parte de su grupo de investigación. Aquel día, que recuerdo con precisión, comenzó mi andadura en esta profesión de la física experimental y comenzó también para mí una etapa inolvidable y feliz de mi vida. La completa formación científica y tecnológica que he adquirido en su grupo es de un nivel difícilmente comparable al que se pueda adquirir actualmente en otros centros de investigación. Y todo ello se debe a su amplia y generosa visión tanto de la ciencia como del trabajo en equipo y, por supuesto, a su entusiasmo contagioso por el saber.*

*Al Doctor Celso Prados Espasandín, director de esta Tesis Doctoral, debo agradecerle todo el conocimiento que me ha transmitido en estos años de dedicación constante e incondicional, su entusiasmo por el trabajo bien hecho, y el haber sido para mí un maestro y un amigo.*

*A la Doctora Amelia Montone, del centro de investigación ENEA-Cassaccia en Roma (Italia), le agradezco su íntegra dedicación durante el mes en el que realizamos la caracterización estructural de las muestras estudiadas en esta memoria. En ese tiempo aprendí mucho junto a ella y creo que hicimos un trabajo bonito.*

*A Marta Multigner y a María de la Sierra Flores, les agradezco su imprescindible ayuda en la realización de las medidas con el magnetómetro SQUID, así como su permanente disponibilidad y buen humor.*

*A mi hermano Manuel, gran entusiasta de la ciencia, y a mi amiga María, siempre dispuesta a ayudar, les agradezco muchísimo el haberse leído íntegramente esta memoria y haberme ayudado con la redacción y comprensión del texto.*

*Agradezco a todos y cada uno de los compañeros que han pasado por el Instituto de Magnetismo Aplicado a lo largo de estos años y a todos los que están ahora, el buen clima de trabajo que siempre han creado, sus enseñanzas, su apoyo y su amistad.*

*Y por último, agradezco al Ministerio de Ciencia y Tecnología la financiación recibida a lo largo de estos años a través de un proyecto de investigación concedido por la CICYT, a RENFE, a la UCM y a todas las instituciones públicas y privadas que apoyan constantemente la actividad científica del Instituto de Magnetismo Aplicado.*

# Índice

<b>1. Introducción</b>	1
Bibliografía	19
<b>2. Técnicas experimentales</b>	
2.1. Fabricación de muestras: <i>Sputtering</i>	23
2.1.1. Introducción	23
2.1.2. Descripción de la instalación	24
2.1.2.1. Cámara de depósito	24
2.1.2.2. Grupo de bombeo	25
2.1.2.3. Fuente de alimentación	26
2.1.2.4. Equipo de refrigeración y descalcificación	26
2.1.3. Descripción del proceso de pulverización catódica	27
2.1.3.1. Etapa de vacío	27
2.1.3.2. Formación del plasma	28
2.1.3.3. Crecimiento de la película delgada	29
2.1.4. Tipos de técnicas <i>sputtering</i>	31
2.1.4.1. <i>Sputtering</i> DC	31
2.1.4.2. <i>Sputtering</i> RF	31
2.1.4.3. <i>Sputtering</i> magnetrón	32
2.1.4.4. <i>Sputtering</i> reactivo	33
2.2. Técnicas de caracterización estructural	34
2.2.1. Difracción de Rayos X	34
2.2.1.1. Descripción del dispositivo	35
2.2.1.2. Diagramas de difracción $\theta$ - $2\theta$	36
2.2.2. Microscopía electrónica de transmisión	38
2.2.2.1. Fundamentos	39
2.2.2.2. Descripción del microscopio	41
2.2.2.3. Preparación de muestras	47
2.3. Técnicas de caracterización magnética	53
2.3.1. Técnicas inductivas: el magnetómetro SQUID	54
2.3.1.1. Fundamentos del SQUID	54
2.3.1.2. Descripción del dispositivo	56
2.3.2. Técnicas magnetoópticas: el efecto Kerr	58
2.3.2.1. Medida de ciclos de histéresis por efecto Kerr	60
2.4. Magnetorresistencia anisótropa	63
2.4.1. Medida de AMR en función del ángulo a temperatura ambiente	64
2.4.2. Medida de AMR en función de la temperatura	65

Bibliografía	66
<b>3. Caracterización estructural</b>	<b>67</b>
3.1.Fabricación de muestras	69
3.2.Caracterización estructural mediante XRD	72
3.2.1.Determinación del espesor	72
3.2.2.Determinación del tamaño de grano	73
3.3.Caracterización estructural mediante TEM	75
3.3.1.Óxido de cobalto	76
3.3.2.Óxido de níquel	79
3.3.3.Bicapa $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$	82
3.3.4.Bicapa $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$	84
3.4.Conclusiones	86
Bibliografía	87
<b>4. Anisotropía de canje y estructura nanocrystalina</b>	<b>89</b>
4.1.Evolución térmica del ciclo de histéresis	92
4.1.1.Sistema $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$	95
4.1.2.Sistema $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$	103
4.1.3.Interpretación de los resultados	108
4.1.3.1.Modelo teórico para el cambio de signo de $H_E$	112
4.2.Efectos de entrenamiento	119
4.2.1.Sistema $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$	122
4.2.2. Sistema $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$	127
4.2.3.Interpretación de los resultados	131
4.3.Conclusiones	140
Bibliografía	143
<b>5. Relajación magnética y magnetorresistencia</b>	<b>145</b>
5.1.Relajación magnética	148
5.1.1.Relajación magnética a 50 K	153
5.1.2. Relajación magnética a 160 K	165
5.2.Magnetorresistencia anisótropa	173
5.2.1.Curvas de magnetorresistencia a 50 K	175
5.2.1.1.Primera curva de magnetorresistencia a 50	175
5.2.1.2.Segunda curva de magnetorresistencia a 50 K	179

5.2.2.	Curvas de magnetorresistencia a 160 K	180
5.2.3.	Dependencia térmica de la magnetorresistencia	183
5.3.	Interpretación de los resultados	186
5.3.1.	$T_{med} > T_B$ (rango sin anisotropía de canje)	187
5.3.2.	$T_{med} \sim T_B$ (anisotropía de canje cerca de la transición)	189
5.3.3.	$T_{med} \ll T_B$ (rango con anisotropía de canje)	191
5.3.3.1.	Segunda, tercera, cuarta y sucesivas ramas a 50 K	192
5.3.3.2.	Primera rama a 50 K	193
5.4.	Conclusiones	197
	Bibliografía	199
<b>6.</b>	<b>Procesos de imanación</b>	201
6.1.	Ciclos de histéresis longitudinales y transversales en función del ángulo	203
6.1.1.	Sistema sin anisotropía de canje $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$	205
6.1.2.	Sistema con anisotropía de canje $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$	212
6.1.2.1.	Sistema sin polarizar	212
6.1.2.2.	Sistema polarizado a $0^\circ$	214
6.1.2.3.	Sistema polarizado a $90^\circ$	224
6.1.3.	Pentacapa $Co-O/ Ni_{80}Fe_{20}/Cu/ Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$	231
6.1.3.1.	Sistema desacoplado	232
6.1.3.2.	Sistema acoplado	235
6.2.	Magnetorresistencia anisótropa	238
6.2.1.	Sistema sin anisotropía de canje $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$	240
6.2.2.	Sistema con anisotropía de canje $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$	243
6.2.2.1.	Modelo de magnetorresistencia para rotaciones de la imanación en presencia de un campo $H_E$	246
6.3.	Interpretación de los resultados	250
6.3.1.	Rotaciones incoherentes en un sistema de dos espines	258
6.3.2.	Modelo de rotaciones incoherentes en un sistema con anisotropía de canje	261
6.4.	Conclusiones	272
	Bibliografía	275
<b>7.</b>	<b>Conclusiones y futuros trabajos</b>	277

***Experimentar:*** probar y ensayar prácticamente la virtud y propiedades de una cosa // Notar, sentir, echar de ver en sí una cosa. // Sufrir, padecer.

del Diccionario Ideológico de la Lengua Española.  
Julio Casares, de la R.A.E.



# Capítulo 1

---

## Introducción

El experimento, método científico de investigación fundado en la generación voluntaria de fenómenos, ha servido a la Humanidad desde sus albores como útil para comprender lo que la Naturaleza mostraba a su alrededor. Pero también en muchas ocasiones un determinado experimento ha puesto de manifiesto aquello que no se buscaba, y que la Naturaleza parecía querer ocultar. La Historia de la Ciencia nos ha ido mostrando sucesivamente esa capacidad reveladora del experimento.

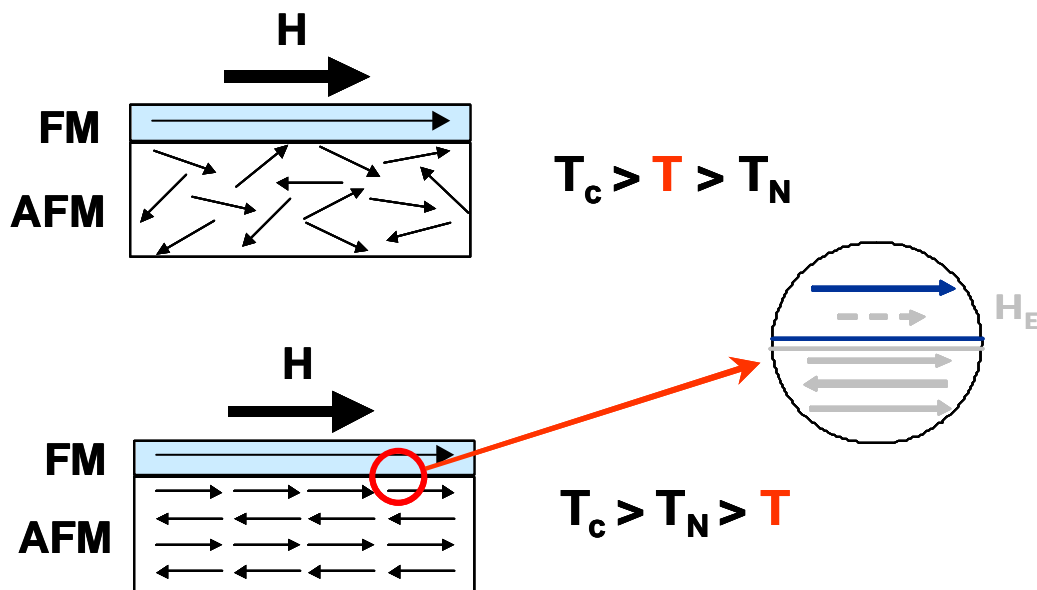
La anisotropía de canje es uno de esos fenómenos que un experimento reveló inesperadamente. Fue en 1957 cuando Meijkeljohn & Bean [1] descubrieron un desplazamiento de la curva de imanación tras haber enfriado una muestra compacta formada por pequeñas partículas de cobalto, de tamaños comprendidos entre 10 nm y 100 nm, en presencia de un campo magnético. Además del desplazamiento de la curva de imanación, el sistema experimentaba un inesperado aumento de campo coercitivo. Repitiendo el experimento sin la presencia del campo magnético, el sistema presentaba las propiedades magnéticas usuales, es decir, un ciclo de histéresis centrado y un campo coercitivo que se correspondía con la anisotropía de las partículas de cobalto.

La explicación al fenómeno se encontró en el hecho de que, de forma accidental, las partículas de cobalto se habían oxidado parcialmente, de manera que estaban rodeadas de un pequeño recubrimiento de óxido de cobalto. El óxido de cobalto es un material antiferromagnético que tiene una temperatura de orden, o temperatura de Néel, próxima a la temperatura ambiente. La interacción de canje entre los espines del cobalto metálico y los espines de los iones de cobalto en el antiferromagnético, parecía ser el origen de esta nueva anisotropía, que se dio a llamar por ello *anisotropía de canje*.

La anisotropía de canje es un fenómeno que en general se presenta en sistemas magnéticos en los que existe interacción entre entidades con orden ferromagnético (FM) y entidades con orden antiferromagnético (AF), y que se manifiesta a temperaturas en las que ambos órdenes coexisten. La interacción se produce en la superficie de contacto entre las dos fases, por lo que se dice que es un fenómeno de carácter interfacial. Por ello, aunque fue descubierta en sistemas granulares, la anisotropía de canje ha sido principalmente estudiada desde entonces en materiales en forma de película delgada. El

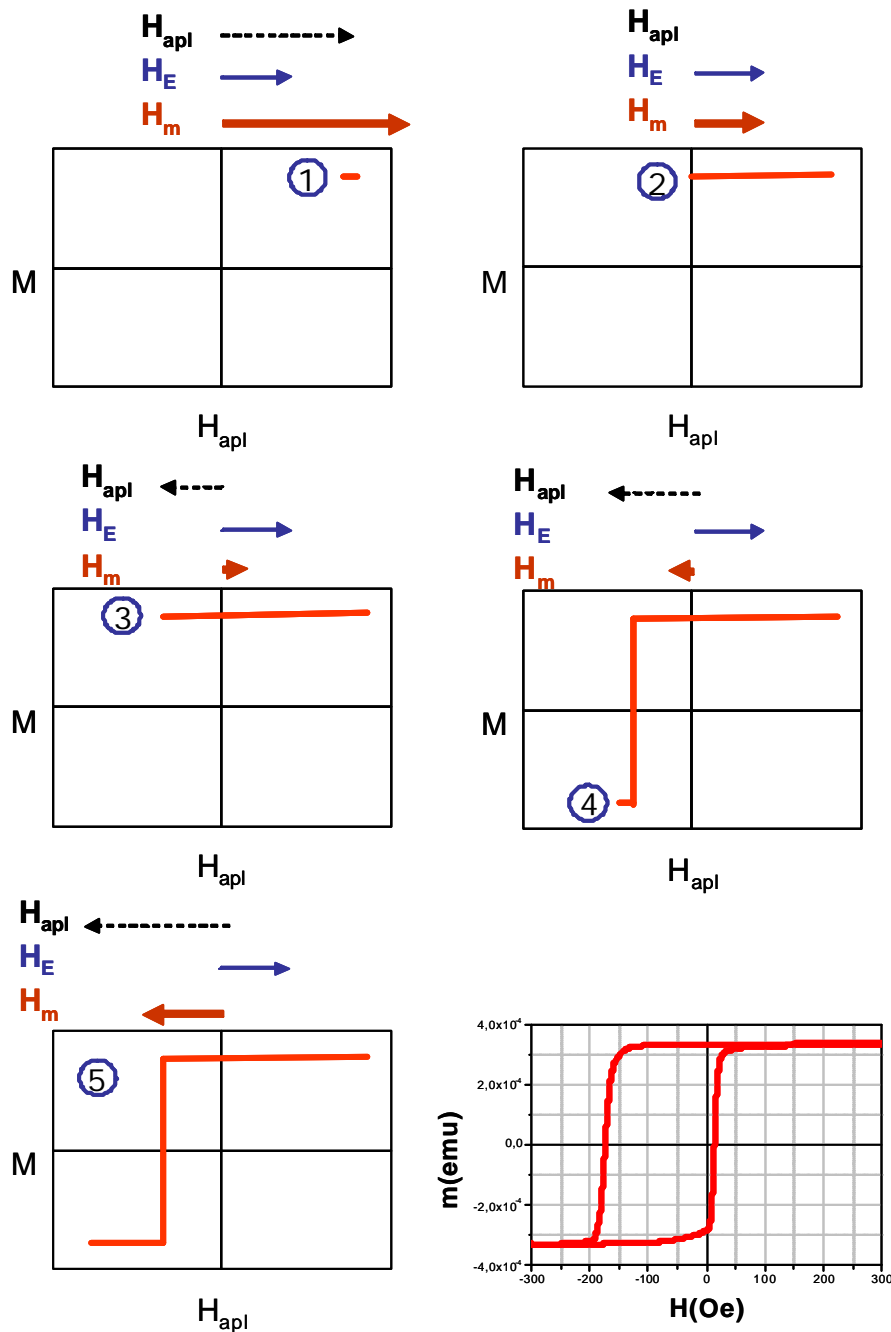
estudio de la anisotropía de canje en películas delgadas es especialmente interesante debido al control de las intercaras que se tiene en estos sistemas, además de por su amplia aplicabilidad tecnológica, como se verá más adelante.

Para la observación de la anisotropía de canje, en principio, es necesario enfriar el sistema en presencia de un campo magnético de amplitud suficiente para saturar la fase ferromagnética. El enfriamiento se debe producir desde una temperatura superior a la temperatura de Néel,  $T_N$ , de la fase antiferromagnética que normalmente es inferior a la temperatura de Curie,  $T_c$  de la fase ferromagnética. De esta manera, cuando se establece el orden antiferromagnético, existe una configuración privilegiada según la cual la red AF se ordenará. La degeneración energética de las dos configuraciones posibles del AF se rompe debido a la interacción de canje del AF con el momento FM. Así pues, la red AF queda “congelada” en una determinada configuración después del enfriamiento con campo. El proceso se puede explicar, en una visión muy simplificada, como se muestra en la siguiente figura:



Esta explicación intuitiva supone que la imanación en el FM es uniforme y que, cuando se produce el ordenamiento de la red AF, sólo está presente en la intercara una de las subredes del AF. El momento neto AF descompensado en la intercara es el que interacciona con la imanación del FM. Esta interacción se puede asumir como un campo *extra*  $H_E$  en el interior del FM, tal y como se observa en el detalle de la intercara, mostrado en la parte derecha de la figura anterior.

Veamos cómo es el proceso de inversión de la imanación en un sistema en que existe un campo extra  $H_E$  positivo, mediante la siguiente secuencia, en la que  $H_{apl}$  es el campo aplicado externamente y  $H_m$  es el campo en el interior de la muestra (suma vectorial de  $H_{apl}$  y  $H_E$ ):



Los cinco primeros paneles de la secuencia anterior, corresponden a un sistema ideal sin coercitividad en el que la inversión de la imanación (panel 4) se produce cuando se invierte el campo en el interior de la muestra. Debido a la presencia del

campo  $H_E$ , esto no ocurre cuando el valor del campo externo está en torno a cero, como sucedería en un sistema sin anisotropía de canje, si no cuando se aplica un campo de valor  $-H_E$ . Como consecuencia, la curva de imanación sufre un desplazamiento hacia campos negativos (panel 5). La curva de re-imanación en este sistema ideal seguiría la primera curva. En el panel 6 de la secuencia anterior, se ha representado el ciclo de histéresis de un sistema real con coercitividad. La magnitud del **campo de desplazamiento** o **campo de canje** en este sistema se define como:

$$H_E = \frac{H_{dr} + H_{iz}}{2}$$

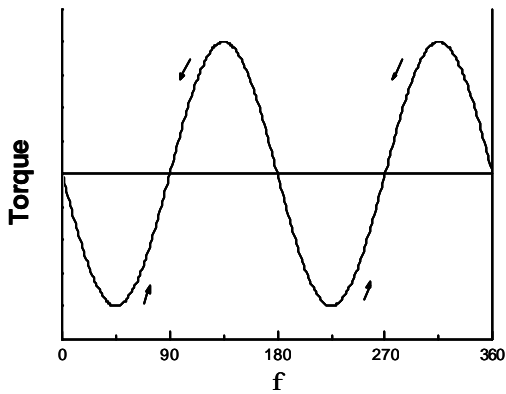
donde  $H_{dr}$  y  $H_{iz}$  son los dos puntos de corte de la curva con el eje de campos tales que  $H_{dr} > H_{iz}$ .

La magnitud del campo de canje en ocasiones se describe en términos de la **energía de canje** interfacial por unidad de área, definida como [2]:

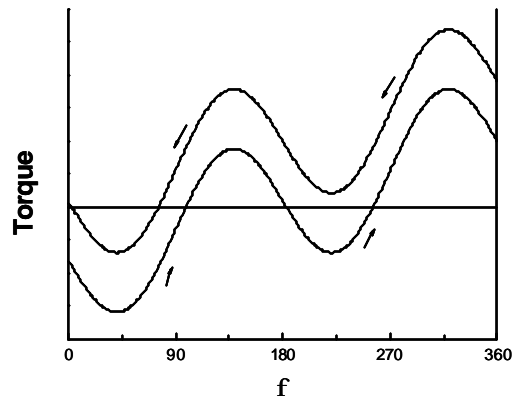
$$\Delta E_{canje} = M_{FM} t_{FM} H_E$$

donde  $M_{FM}$  es la imanación de saturación del material FM y  $t_{FM}$  es el espesor del mismo. Esta descripción del campo de canje permite comparar el efecto de anisotropía de canje en distintos sistemas, independientemente del tipo de material FM estudiado y de su espesor.

Una de las características fundamentales de la anisotropía de canje es su direccionalidad. La dependencia de  $H_E$  con el ángulo  $\phi$  que forman el campo aplicado y el campo de enfriamiento es de tipo sinusoidal, y presenta periodicidad  $2\pi$ . Por otra parte, las medidas de torque magnético realizadas en este tipo de sistemas y consistentes en medir la fuerza necesaria para rotar la muestra en presencia de un campo magnético, difieren de las realizadas en los sistemas sin anisotropía de canje. En las curvas de torque aparece una componente de la forma  $\sin\phi$ , que se superpone al término uniáxico usual  $\sin^2\phi$ , de manera que sólo presentan un mínimo absoluto, como se puede ver en la siguiente figura, en la que se comparan dos curvas de torque típicas medidas en sistemas con y sin anisotropía de canje.

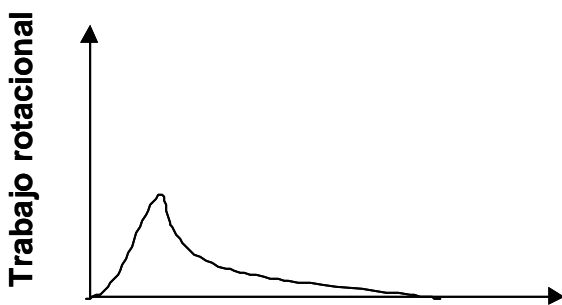


**Anisotropía uniáxica**



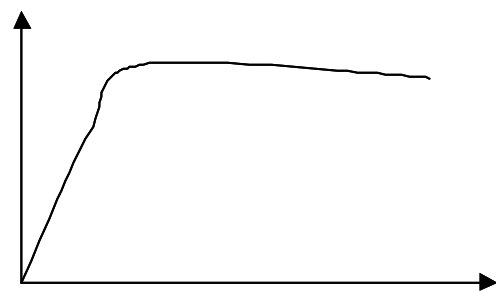
**Anisotropía unidireccional**

Como consecuencia de esta histéresis en las curvas de torque, en un ciclo completo se realiza un cierto trabajo rotacional, característico de los sistemas con anisotropía de canje. Este trabajo rotacional se realiza contra el sistema incluso cuando el campo aplicado satura la fase FM. En la figura siguiente se comparan las curvas típicas de trabajo rotacional en sistemas con y sin anisotropía de canje.



**Campo aplicado**

**Sistema sin  
anisotropía de canje**



**Campo aplicado**

**Sistema con  
anisotropía de canje**

En un sistema con anisotropía de canje sólo hay un “sentido” de fácil imanación, en lugar de una dirección de fácil imanación como ocurre en los sistemas con

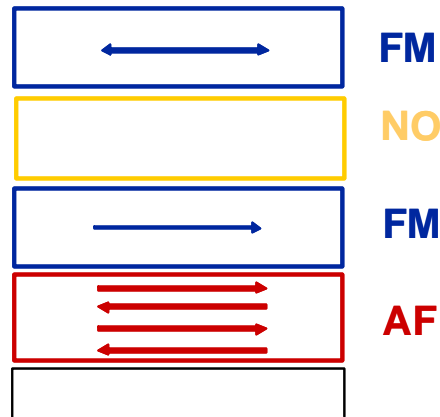
anisotropía uniáxica. Se dice por ello que la anisotropía de canje es una anisotropía de **carácter unidireccional**.

Otra de las principales características que presenta un sistema con anisotropía de canje es un importante **aumento del campo coercitivo**, que lo diferencia de un sistema similar sin acoplamiento en canje con un AF. Por ejemplo, una película delgada de cobalto nanocristalino de 30 nm de espesor que presente a 50 K una coercitividad en torno a 20 Oe, si está acoplada en canje con una capa AF de óxido de aluminio de unos 3 nm, puede llegar a presentar un campo coercitivo de unos 200 Oe a la misma temperatura.

El descubrimiento de la anisotropía de canje fue presentado a la comunidad científica [1] como una nueva fuente de anisotropía con la que generar aumentos de campo coercitivo en el ámbito de los materiales magnéticamente duros. El desplazamiento del ciclo de histéresis y el aumento de coercitividad originaban mayores valores del producto energético, circunstancia que hacía de estos materiales buenos candidatos para la fabricación de imanes permanentes. Sin embargo, fue el posterior desarrollo de la tecnología de los medios de grabación magnética lo que verdaderamente abrió el gran campo de aplicación de los sistemas con anisotropía de canje en forma de película delgada. Entre algunas de las aplicaciones que se han encontrado están los sensores de campo magnético, los sensores de posición o los estabilizadores de señal en medios de grabación. Pero sin duda alguna, la aplicación que más repercusión ha tenido en la industria son las llamadas “*spin valves*”, estructuras que se incluyen hoy en día en la práctica totalidad de las cabezas lectoras de los discos duros de los ordenadores.

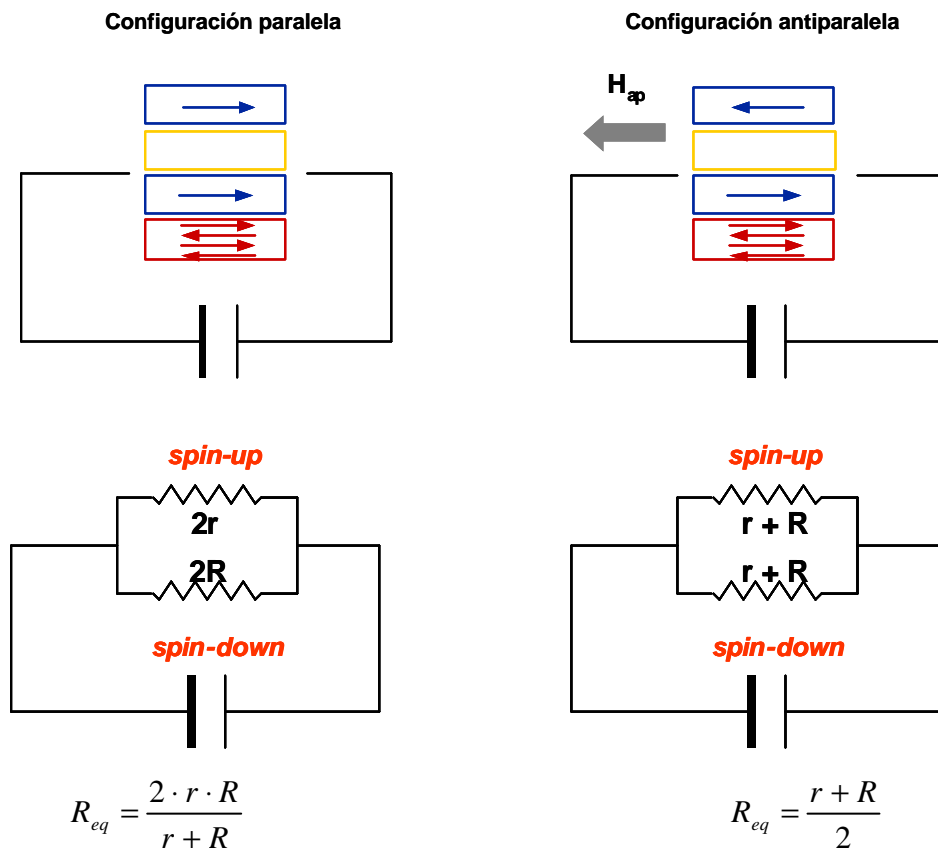
En 1991 Dieny y sus colaboradores [3] encontraron a temperatura ambiente elevados valores de magnetorresistencia (MR), en torno al 3%, en estructuras en forma de película delgada formadas por dos capas FM desacopladas y separadas por una capa espaciadora de un metal no magnético. En estas estructuras una de las capas FM está acoplada en canje con una capa de un material AF, mientras que la otra permanece libre. La aplicación de un campo magnético de valor relativamente bajo, permite invertir la imanación de la capa FM libre, variando así la orientación relativa de la imanación de las capas FM. De esta manera, el sistema pasa de la configuración paralela a la configuración antiparalela y viceversa mediante la aplicación de un campo magnético.

En la siguiente figura se ha esquematizado una estructura tipo *spin valve*, como la descrita aquí:



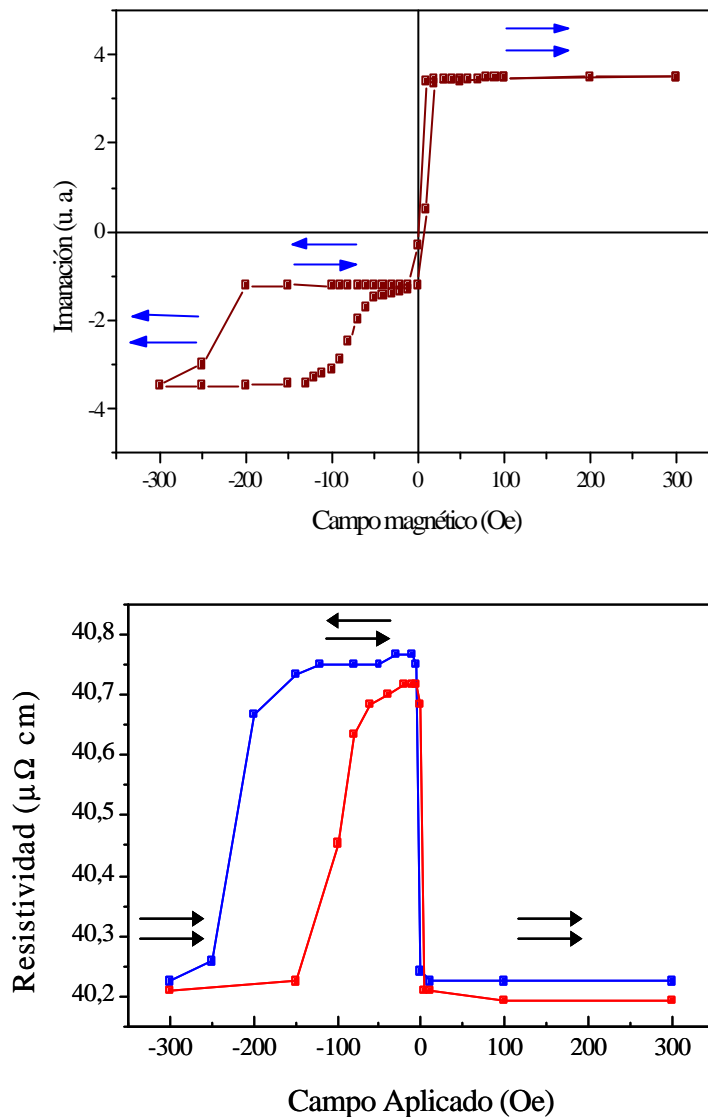
La conductividad eléctrica en los materiales magnéticos se explica mediante el modelo de los dos canales [4], según el cual existe una corriente de electrones mayoritarios aquellos cuyo momento de espín es paralelo a la imanación del material) independiente de la corriente de electrones minoritarios (antiparalelos a la imanación). La resistividad del primer canal es menor que la del segundo.

El efecto *spin valve* se puede explicar en el marco de este modelo, mediante un sencillo símil [5]: se equipara una estructura *spin valve* con un circuito eléctrico equivalente, constituido por dos resistencias conectadas en paralelo. Cada una de las resistencias se asocia la resistividad de cada uno de los canales. Así, cuando la orientación relativa del espín electrónico y la imanación de la capa FM correspondiente es paralela, la dispersión es menor y la resistencia que se asocia es  $r$ . Cuando son antiparalelos, la dispersión es mayor y la resistencia asociada es  $R$ , siendo  $R > r$ . En la siguiente figura se esquematizan los circuitos equivalentes correspondientes a las dos configuraciones de una estructura *spin valve*.



La resistencia equivalente del circuito en configuración paralela es menor que la resistencia del circuito equivalente en configuración antiparalela, lo que explica de manera sencilla el efecto *spin valve*. Una curva típica de imanación de una de estas estructuras, presenta dos saltos correspondientes a las inversiones de la imanación en ambas capas FM. La capa acoplada con el AF, como consecuencia de la anisotropía de canje, presenta un ciclo de histéresis desplazado y con mayor coercitividad que la capa FM libre, que no presenta desplazamiento del ciclo de histéresis. En las siguientes figuras se han representado un ejemplo [6] de la curva de imanación de una estructura tipo *spin valve* y la curva de magnetorresistencia correspondiente, indicándose en ambas la orientación relativa de la imanación de las capas FM.





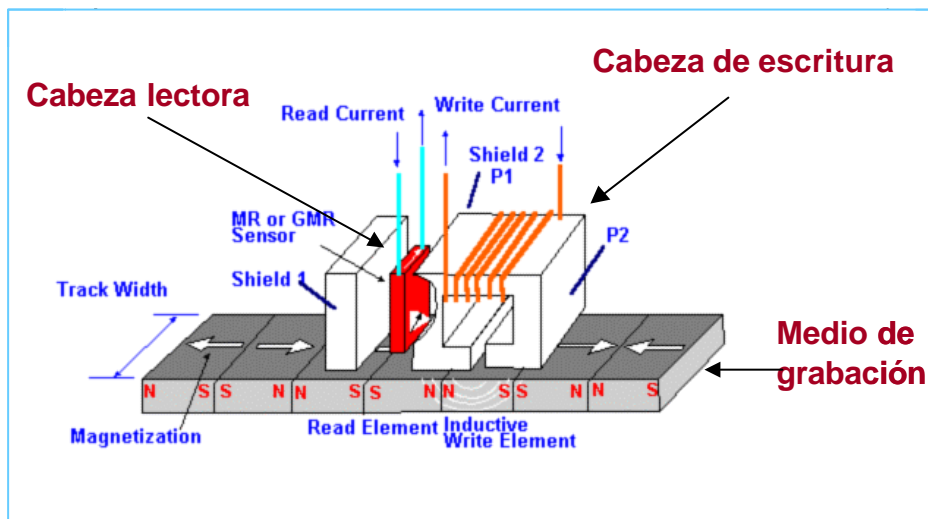
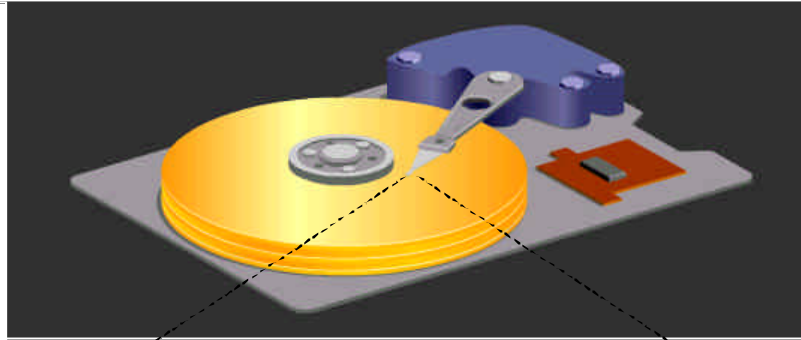
Este sistema es, por tanto, capaz de detectar un campo magnético mediante una variación de resistencia. Este es el fundamento de cualquier dispositivo sensor de campo, incluidos aquellos incorporados en las cabezas lectoras de los discos duros, que detectan los campos creados por las unidades de información o *bits*, grabadas en el medio magnético. Desde el punto de vista tecnológico, la mayor ventaja que presentan las estructuras tipo *spin valve*, es su bajo valor del campo de saturación, es decir, el campo para el que se produce la máxima variación de resistencia. Estos campos de saturación pueden ser tan pequeños como el campo coercitivo de la capa FM libre.

Inicialmente, las cabezas lectoras de los discos duros incluían otro tipo de estructuras, que presentan magnetorresistencia gigante o GMR (del inglés *Giant Magnetoresistance*). Se trata de multicapas formadas por capas FM acopladas entre sí

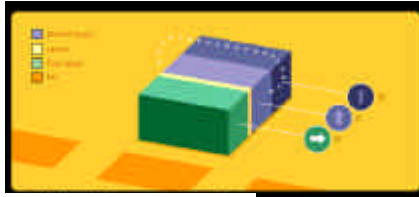
antiferromagnéticamente y separadas por capas no magnéticas. Ejemplos de estas estructuras son las del tipo Co/Au/Co o las del tipo Fe/Cr. Aunque estas estructuras presentan valores de GMR incluso del 200% [7], los campos para los que se produce el efecto están en torno a 20 kOe. En el caso de las *spin valves* aunque las máximas variaciones encontradas están en torno al 10%, el efecto se produce para valores de campo de unas pocas decenas de Oe. Este factor ha sido decisivo para que se hayan ido sustituyendo las multicapas GMR por estructuras tipo *spin valve*, a medida que se han ido aumentando las densidades de almacenamiento de memoria en los discos duros, o lo que es lo mismo, al ir disminuyendo los valores del campo creado por los cada vez más pequeños *bits* de información.

En el siguiente gráfico [8] vemos en qué lugar se incorpora un sistema tipo *spin valve* en una cabeza lectora de un disco duro. En esta figura vemos, en el panel superior, el esquema de un disco duro sobre el que se encuentra una aguja que barre toda la superficie del disco, gracias a su desplazamiento lateral y al giro del propio disco. En el panel inferior se esquematiza el dispositivo que se encuentra en el extremo de la aguja. En este esquema se observa el medio de grabación, compuesto por *bits* o unidades de momento magnético, la cabeza de escritura y la cabeza lectora representada en color rojo, donde se encuentra la estructura *spin valve*.

Disco duro



En el esquema de la siguiente página [8] se explica en cinco pasos el proceso de lectura que identifica el paso de un *bit* mediante el cambio de la configuración antiparalela o paralela en la estructura *spin valve* (representada en colores verde-amarillo-azul).



Quando el *bit* está alejado, la *spin valve* se encuentra en un estado de resistencia intermedia



El campo magnético generado por el *bit* imana la lámina libre hacia arriba. La resistencia de la *spin valve* disminuye



El paso del *bit* modifica el campo aplicado sobre la *spin valve*, y en consecuencia su resistencia eléctrica



El campo generado por el *bit* en las cercanías de su polo sur imana la lámina libre hacia abajo, con lo que aumenta la resistencia de la *spin valve*



El cambio de resistencia identifica el paso de un bit de información

Desde la primera observación del fenómeno de anisotropía de canje en sistemas granulares [1] en 1957 se han hecho continuos esfuerzos por explicar el origen último del fenómeno. Hasta la fecha existen distintas teorías y modelos que explican bien el desplazamiento de la curva de imanación. Sin embargo, la dilucidación del origen del aumento de campo coercitivo es un tema aún pendiente y existe controversia en la comunidad científica en cuanto a los mecanismos de inversión de la imanación en estos sistemas. Se trata, por tanto, de uno de los temas abiertos y de mayor actualidad en el campo de la Física de Materiales Magnéticos.

La primera aproximación a la explicación del fenómeno fue dada por sus descubridores, Meiklejohn y Bean. En su modelo [1], la anisotropía unidireccional es debida al acoplamiento en canje entre los espines fijos del AF y los espines del FM en la superficie de contacto. En esta superficie ideal sólo está presente una de las dos sub-redes del AF y es el momento totalmente descompensado de esa superficie el que crea el campo de canje responsable del desplazamiento observado. Sin embargo, esta explicación bastante intuitiva, no predecía correctamente el orden de magnitud del campo de desplazamiento, sino que aportaba valores muy superiores a los medidos experimentalmente. El modelo, además, postulaba la rotación coherente de la imanación del FM como mecanismo de inversión de la imanación, ejes de anisotropía del FM y del AF colineales, acoplamiento ferromagnético en la intercara y no consideraba la existencia de dominios ni en el FM ni en el AF.

Posteriormente, se desarrollaron distintas teorías con objeto de subsanar esta discordancia en el orden de magnitud y que se basan principalmente en la necesidad de reducir el momento magnético no compensado del AF en la intercara para obtener el orden de magnitud correcto de  $H_E$ . Estas teorías incluyen otros parámetros importantes presentes en los sistemas con anisotropía de canje, como pueden ser la formación de dominios en el AF o en el FM, la distribución de tamaños de grano o la distribución aleatoria de anisotropía en la superficie del AF, que no habían sido considerados en el primer modelo. Así, Néel [9] y posteriormente Mauri [10], afirman que es energéticamente más favorable la formación de paredes en el AF paralelas a la intercara. De esta manera los valores del campo de desplazamiento se reducen considerablemente. Néel también propuso una visión más realista de la intercara en la que debido a la rugosidad coexisten las dos sub-redes del AF, lo que compensaría parcialmente el momento y reduciría los valores de  $H_E$ .

En los estudios de Malozemoff [11], se propone la formación de dominios en el AF, perpendiculares a la intercara como consecuencia de una interacción de canje distribuida al azar. Dicha distribución estaría originada por la rugosidad y la inhomogeneidad de la superficie a escala atómica y daría lugar a una reducción del momento no compensado en la intercara y por tanto a una reducción de  $H_E$ . Dentro de esta corriente se pueden incluir los estudios relacionados con la anisotropía de canje en sistemas policristalinos [12-14]. En estos sistemas, se considera el hecho de que en un cristal antiferromagnético no infinito, es decir, con una relación superficie-volumen no despreciable, existe una fracción considerable de espines no compensados que dan origen a un momento magnético neto. Takano *et al.* [15] han medido el momento neto en el sistema CoO/MgO policristalino y demuestran que es el momento descompensado de la superficie del AF el origen de la anisotropía de canje. En este sentido, los granos AF desempeñarían un papel análogo al de los dominios perpendiculares propuestos por Malozemoff. Todos estos trabajos apuntan al momento descompensado en la intercara como origen de la anisotropía de canje. No obstante, se han encontrado valores del desplazamiento no nulos en superficies epitaxiales compensadas como en el caso de FeF<sub>2</sub> [16].

Respecto al aumento del campo coercitivo no se ha establecido aún una teoría definitiva que explique bien su origen. Las primeras teorías en las que una superficie AF totalmente descompensada era la responsable de la anisotropía unidireccional, y que no predecían bien el orden de magnitud del campo de canje, tampoco acertaban en la estimación del orden de magnitud del campo coercitivo. Meiklejohn y Bean, en su primer modelo, consideraban que la imanación en el FM era uniforme y que se invertía mediante un proceso de rotación coherente. El campo coercitivo entonces sería el que predice el modelo de Stoner-Wolhfarth [17], debido a la anisotropía uniaxial del ferromagnético. Sin embargo, experimentalmente se encuentran siempre valores mucho mayores. En el marco del modelo de Mauri en el que se forma una pared paralela a la intercara en el ferromagnético, los valores del campo coercitivo predichos son bastante mejores pero no se ajustan del todo bien con los datos experimentales.

Las teorías que se han ido desarrollando después descartan ya la rotación coherente como mecanismo de inversión de la imanación. Dentro de la línea de los trabajos de Malozemoff en los que la rugosidad de la intercara adopta un papel fundamental, las predicciones son mucho mejores. En estos casos la formación de

dominios inhomogéneos en el ferromagnético y el anclaje de las paredes sobre el antiferromagnético en sitios energéticamente favorables explican bastante mejor el aumento de coercitividad. Sin embargo, no dan cuenta de la inducción del eje uniáxico, asociado al eje unidireccional, que se describirá en esta memoria.

En cuanto a los sistemas policristalinos, los últimos trabajos publicados [18] apuntan a la formación de dominios ultra-pequeños, tan pequeños como los granos antiferromagnéticos, como origen del aumento de coercitividad. La competición entre el canje entre dominios en el ferromagnético y la interacción del FM con los granos AF distribuidos al azar es crucial para la formación de estos dominios bastante más pequeños que los que se formarían en un FM de las mismas características pero no acoplado. En algunos trabajos [19] se han observado mediante Microscopía de Fuerza Magnética estos dominios, e incluso rotaciones incoherentes de la imanación.

La fenomenología relacionada con la anisotropía de canje es amplísima, existiendo numerosos e interesantes efectos característicos de los sistemas con anisotropía de canje. Muchos de ellos son aspectos sin resolver o cuya explicación es aún controvertida y que hace que la anisotropía de canje siga siendo aun después de más de 40 años de su descubrimiento, uno de los temas de máxima actualidad en el ámbito de la Física de los Materiales Magnéticos.

Uno de los efectos más ampliamente estudiados, y que constituye una cuestión aún abierta, es la influencia del espesor de las capas tanto AF,  $t_{AF}$ , como FM,  $t_{FM}$ , en la magnitud del campo  $H_E$ . En la mayoría de los sistemas estudiados se ha encontrado la siguiente dependencia con el espesor de la capa ferromagnética[2]:

$$H_E \propto \frac{1}{t_{FM}}$$

que pone de manifiesto el carácter interfacial del fenómeno de anisotropía de canje. Esta dependencia se cumple en el rango de espesores mayores que el tamaño típico de dominio. Sin embargo para capas más delgadas esta dependencia no es válida.

La dependencia con el espesor de la capa AF es aún más complicada aunque parece existir un comportamiento general consistente en la existencia de un espesor crítico por encima del cual  $H_E$  es constante [20]. Por debajo de este valor  $H_E$  decrece

hasta hacerse cero a partir de un valor crítico de  $t_{AF}$ . No obstante, estos valores críticos dependen de la microestructura de cada sistema específico así como de la temperatura.

Otro de los efectos estudiados es la dependencia con el tamaño de grano AF. Tampoco en este aspecto hay un comportamiento claramente general [2]; mientras en algunos sistemas  $H_E$  aumenta cuando aumenta el tamaño de grano, en otros sucede lo contrario. Probablemente esto es debido al hecho de que variando el tamaño de grano también se varían otras propiedades como pueden ser el grado de textura, la estructura de espín en la intercara o la anisotropía AF. Estos factores, que también influyen enormemente en el valor del campo de canje, han sido ampliamente estudiados en muchos sistemas, no estando del todo esclarecido el origen de su influencia.

Otra de las particularidades que se han estudiado ampliamente [21-23] en los sistemas con anisotropía de canje es la asimetría de los ciclos de histéresis. Esta asimetría es una evidencia de los diferentes mecanismos de inversión de la imanación que tienen lugar en diferentes ramas del ciclo de histéresis.

El efecto de entrenamiento, fenómeno consistente en la dependencia de  $H_E$  y  $H_c$  con el número de ciclos de histéresis realizados en el sistema, es un efecto característico de los sistemas policristalinos con anisotropía de canje, que se relaciona con reorientaciones sucesivas del momento descompensado AF en cada inversión de la imanación FM [24].

Otro peculiar fenómeno que se da en los sistemas con anisotropía de canje es el llamado “*memory effect*” [25]. Este efecto consiste en la dependencia que exhibe el campo  $H_E$  con el estado de imanación del ferromagnético durante el proceso de enfriamiento. Así es posible alterar y “diseñar” la dependencia térmica del campo de canje, incluidos cambios de signo en el mismo, mediante procedimientos de enfriamiento determinados que combinan campos alternos y continuos en distintos rangos de temperaturas.

El efecto llamado “*positive exchange bias*” [26] consiste en la obtención de valores positivos de  $H_E$  tras un proceso de enfriamiento con un campo positivo muy intenso. El efecto se explica suponiendo una interacción de canje antiferromagnética entre FM y AF y un valor de campo de enfriamiento lo suficientemente intenso como para orientar el momento interfacial del AF.

Existen otros muchos aspectos relacionados con esta inagotable fuente de fenomenología que es la anisotropía de canje, que no se mencionarán aquí y que están



ampliamente descritos en el trabajo de J. Nogués e I. K. Schuller [2], probablemente el mejor compendio de anisotropía de canje que se encuentra en la bibliografía.

El trabajo que aquí se presenta es un estudio sistemático de la anisotropía de canje en sistemas nanocristalinos que se encuentra en la línea de los trabajos anteriormente citados realizados en sistemas policristalinos. La influencia del tamaño de grano en el rango de los nanómetros en las propiedades magnéticas de los sistemas magnéticos en general, es un tema que actualmente suscita un gran interés en la Ciencia de Materiales. Sin embargo, no son muy numerosos los estudios en este rango dimensional llevados a cabo en sistemas con anisotropía de canje. Veremos cómo la estructura nanocristalina en estos sistemas es el origen de algunos interesantes fenómenos no descritos hasta el momento, como el cambio de signo del campo de canje  $H_E$  con la temperatura y el entrenamiento.

El objetivo principal de este estudio es la determinación de la naturaleza de los procesos de imanación que tienen lugar en este tipo de sistemas. Se pretende desentrañar cuál es el mecanismo que hace que el establecimiento de la anisotropía de canje en un sistema genere un aumento de campo coercitivo y se desarrolle un eje uniaxial de anisotropía estrechamente vinculado al eje unidireccional inducido. Para llevar a cabo este objetivo se ha realizado primeramente un análisis estructural de las muestras y posteriormente se han caracterizado magnéticamente los sistemas por medio de distintos métodos experimentales. La estructura del trabajo es la siguiente:

- En el capítulo 2 se describen todas las técnicas de fabricación y preparación de muestras, caracterización estructural y caracterización magnética empleadas en la realización de este trabajo.
- En el capítulo 3 se presentan las características morfológicas de las muestras fabricadas y los resultados del estudio de caracterización estructural llevados a cabo mediante Microscopía Electrónica de Transmisión y Difracción de Rayos X.
- El capítulo 4 está dedicado al análisis de la evolución térmica de la anisotropía de canje a través del estudio de ciclos de histéresis en dos sistemas diferentes de

bicapas FM/AF. También se estudian los efectos de entrenamiento y su dependencia térmica. Uno de los efectos mas interesantes que se ha encontrado es un cambio de signo del campo  $H_E$ , que se produce en un rango de temperaturas cercanas a la temperatura de orden de los óxidos AF. Estos resultados se relacionarán con la estructura nanocristalina de los dos sistemas estudiados, y se propondrá un modelo teórico que da cuenta de ellos.

- En el capítulo 5 se estudian las propiedades de relajación magnética y magnetorresistencia en uno de los sistemas FM/AF anteriores y su relación con el mecanismo de inversión de la imanación.
- En el capítulo 6 se hace un estudio comparativo de los procesos de imanación a temperatura ambiente de un sistema FM/AF sin anisotropía de canje y otro con anisotropía de canje. Se determinará el tipo de mecanismo de inversión de la imanación que tiene lugar en el sistema con anisotropía de canje y se propondrá una explicación que de cuenta tanto del aumento de coercitividad como de la inducción de un eje uniaxial paralelo al eje unidireccional.

## Bibliografía

- [1] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean. *Physical Review*, **105**, 3 (1957)
- [2] J. Nogués, Ivan K. Schuller, *J. Mag. Mag. Mat.* **192**, 203 (1999)
- [3] B. Dieny , V.S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D.R. Wilhoit and D. Mauri *Phys. Rev. B*, **43**, 1297 (1991)
- [4] I. A. Campbell and A. Fert. “Ferromagnetic Materials”. Ed. E.P. Wohlfarth. North-Holland. Amsterdam, 1982.
- [5] D. M. Edwards, J. Mathon and R. B. Muniz, *IEEE Trans. Magn.* 27(4) 1991.
- [6] D. V. Dimitrov, C. Prados, C. Y. Ni, G. C. Hadjipanayis and J. Q. Xiao, *J. Mag. Mag. Mat.* **189**, 25 (1998)
- [7] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. A. Fert, F. Nquyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Greuzet, A. Friedrich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61** (1988) 2472.
- [8] [www.ibm.com](http://www.ibm.com)
- [9] L. Néel, *Ann. Phys. (Paris)* **2**, **61**(1967)
- [10] D. Mauri *et al*, *J. Appl. Phys.* **62**, 3047 (1987)
- [11] A.P. Malozemoff, *Phys. Rev. B*, **35**, 3679 (1987)
- [12] E. Fulcomer and S. H. Charap, *J. Appl. Phys.* **43** (10), (1972) 4190
- [13] K. Takano R.H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, and G. Thomas, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1130 (1997)
- [14] D. Martien, K. Takano, A. E. Berkowitz and D. J Smith, *Appl. Phys. Lett.* **74** (9), 1314 (1999)
- [15] K. Takano R.H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, and G. Thomas, *J. Appl. Phys.* **83**, 6888 (1998)
- [16] J. Nogués, D. Lederman, T. J. Moran and Ivan K. Schuller K.V. Rao, *appl. Phys. Lett.* **68** (1996) 3186.
- [17] E.C. Stoner and E. P. Wolhfarth, *Trans. R. Soc. London* **240**, 599 (1948)
- [18] Z. Li and S. Zhang, *Phys. Rev. B* **61**, R14897 (2000)
- [19] H. S. Cho, C. Hou, M. Sun and H. Fujiwara, *J. Appl. Phys.* **85** (8), 5160 (1999)
- [20] R. Jungblut, R. Coehoorn, M. T. Johnson, J. vaan de Stegge, A. Reinders, *J. Appl. Phys.* **75** ( 1994) 6659.

- [21] C. Tsang and K. Lee, J. Appl. Phys. **53**, 2605 (1982)
- [22] M.D. Stiles and R. D. McMichael, Phys. Rev. B **59** 3722(1999)
- [23] T. Ambrose and c. L. Chien, J. Appl. Phys. **83**, 7223 (1998)
- [24] A.P. Malozemoff, Phys. Rev. B, **37**, 7673 (1988)
- [25] N. J. Gökemeijer, J. W. Cai and C.L. Chien, Phys. Rev. B, **60**, 3033 (1999)
- [26] J. Nogués, D. Lederman, T.J. Morán and I.K. Schuller, Phys. Rev. Lett. **76** (24) 4624 (1996)

# Capítulo 2

---

## Técnicas experimentales

Un trabajo experimental como el que aquí se presenta requiere del uso de diferentes técnicas pertenecientes, a veces, a distintos ámbitos de la Física Experimental. En algunos casos, este uso tan sólo consiste en el aprendizaje de una rutina que permita obtener resultados con eficacia en equipos pre-diseñados. En otros casos, el experimentador es tan sólo un puro observador de lo que un técnico especialista realiza pero en otros muchos, es preciso desarrollar un sistema de medida que se adecue al problema que se pretende resolver, por lo que se hace necesario conocer ampliamente la técnica experimental. En cualquier caso, el conocimiento de los fundamentos de la técnica empleada es, cuando no imprescindible, siempre de gran utilidad para la realización del trabajo y la interpretación de los resultados derivados del mismo.

Las técnicas empleadas en este trabajo se pueden clasificar en tres grandes grupos: técnicas destinadas a la fabricación de materiales, caracterización estructural y caracterización magnética. La técnica empleada para la fabricación de muestras es la pulverización catódica, mediante la cual se obtienen materiales en forma de película delgada. La obtención de materiales con buenas propiedades estructurales y magnéticas mediante este método es un proceso muy laborioso, tanto por el manejo de la instalación utilizada como por la complejidad de los mecanismos físicos que intervienen en un proceso de pulverización catódica. La experiencia en la fabricación de materiales, así como el conocimiento de trabajos previos, juegan un papel fundamental para el uso exitoso de esta compleja técnica.

En cuanto a la caracterización estructural de las muestras, son dos las técnicas utilizadas en este trabajo: la Difracción de Rayos X y la Microscopía Electrónica de Transmisión. El uso de la primera, en este trabajo, se ha limitado al estudio de diagramas de bajo ángulo para la estimación de los espesores de los materiales depositados, y diagramas a alto ángulo para la determinación del tamaño de grano, no habiéndose hecho estudios de la estructura cristalina en profundidad. La preparación de muestras para el estudio de Difracción de Rayos X en el caso de películas delgadas resulta inmediata.

No es así el caso de Microscopio Electrónico de Transmisión, herramienta tan potente como compleja que requiere para la obtención de buenos resultados un exhaustivo proceso de preparación de muestras, así como un profundo conocimiento tanto de la técnica como de la instalación utilizada a tal efecto. En este caso, la experiencia del operador es fundamental e imprescindible y se adquiere tras años de trabajo y estudio.

Finalmente, para la caracterización magnética de las muestras se han empleado fundamentalmente tres dispositivos experimentales: un magnetómetro SQUID, un dispositivo de medida de ciclos de histéresis en función del ángulo a temperatura ambiente basado en el efecto *Kerr* y un dispositivo para la medida de magnetorresistencia en función del ángulo también a temperatura ambiente. El primero es un dispositivo comercial manejado por el técnico especialista. Los dos últimos dispositivos, así como los *software* que los controlan, se han diseñado e implementado específicamente para la realización de las medidas que se presentan en este trabajo.

Con objeto de dar una visión general de todas estas técnicas, se describirán a continuación sus fundamentos teóricos y los dispositivos empleados. También se describirá en detalle el método de preparación de muestras para su estudio en el Microscopio Electrónico de Transmisión, por ser de especial interés e importancia.

## 2.1. Fabricación de muestras: Sputtering

### 2.1.1. Introducción

Existen diferentes técnicas de fabricación de materiales en forma de película delgada, que se pueden clasificar atendiendo a la naturaleza del método empleado. Así se distinguen técnicas físicas, técnicas químicas y técnicas físico-químicas. Entre las primeras se encuentra la técnica de pulverización catódica o *sputtering* mediante la cual se han fabricado las muestras estudiadas en esta memoria.

La pulverización catódica o *sputtering* consiste en la evaporación de átomos de un material, llamado *blanco*, mediante bombardeo iónico y su deposición controlada sobre otro material, llamado *sustrato*. La pulverización se lleva a cabo en una cámara de vacío en la que se colocan el blanco y el sustrato y en la que se introduce un gas a baja presión (del orden de  $10^{-3}$  mbar). Entre las placas que soportan el blanco y el sustrato se establece una diferencia de potencial elevada del orden de 600 V que produce la ionización del gas. Los iones del gas y los electrones desprendidos conforman un plasma luminiscente que será el responsable del proceso de evaporación que tenga lugar en la superficie del blanco. Así, los iones positivos se dirigen hacia el cátodo, donde se encuentra situado el blanco, y chocan contra él con la energía suficiente (10-5000 eV) como para arrancar algunos átomos de su superficie, que viajan con una energía media de 4 eV hasta alcanzar la superficie del sustrato y depositarse allí.

Mediante esta técnica es posible fabricar películas delgadas de casi cualquier tipo de material, conductor o dieléctrico, y sobre cualquier tipo de sustrato que sea susceptible de soportar las condiciones de vacío de la cámara y una temperatura de unos 60°C como máximo. De hecho, se trata de una técnica muy extendida en el recubrimiento de materiales a escala industrial.

## 2.1.2. Descripción de la instalación.

El equipo empleado en la fabricación de las muestras estudiadas en este trabajo es un modelo ALCATEL SCM-450. La instalación consta de los siguientes elementos:

### 2.1.2.1 Cámara de depósito

La cámara de vacío, cilíndrica, permite el alojamiento de cuatro blancos distintos así como de cuatro porta-sustratos. Los blancos están colocados en la parte inferior de la cámara sobre la placa catódica, que se polariza con una tensión voltaica continua o alterna (dependiendo del proceso, como se verá posteriormente). Los sustratos están situados en la parte superior de la cámara sobre la placa anódica, que es paralela a la placa catódica y que está conectada a tierra. Paralela también a ambas placas y situada entre ellas existe otra placa, aislada eléctricamente, con una ventana que tiene como función la focalización del plasma en un solo sustrato, evitando la contaminación de los otros durante el depósito.

Este equipo dispone de una opción llamada “*sputtering magnetrón*” que consiste en la aplicación de un campo magnético bajo la superficie del blanco durante el proceso de pulverización y que hace más efectivo el proceso de bombardeo iónico del blanco. El campo magnético es creado por una serie de imanes dispuestos bajo el blanco.

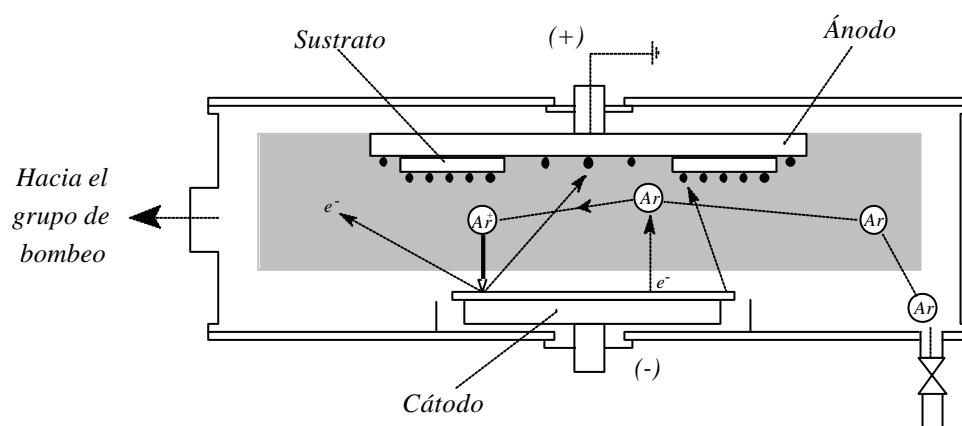


Figura 2.1.1. Esquema de la cámara de vacío



Mientras la base donde se hallan los blancos emplazados es fija, los sustratos están colocados sobre un tambor giratorio que se acciona mediante los mandos del panel de control del equipo, y que es operativo cuando la cámara está cerrada y se está efectuando el bombeo. También es posible cambiar la posición de la ventana. De este modo se pueden depositar varios materiales sobre distintos sustratos sin necesidad de abrir la cámara y preservando las condiciones de *sputtering*.

La cámara tiene tres válvulas de entrada para gases. En la instalación aquí descrita estos tres gases son:

- Ar de pureza N-55: es el gas de descarga para formar el plasma luminiscente.
- O<sub>2</sub> de pureza N-50: este gas se utiliza par depositar óxidos metálicos mediante lo que se conoce como *sputtering reactivo*, variedad de la técnica que se describirá más adelante.
- N<sub>2</sub> de pureza N-50: se emplea como gas seco para abrir la cámara evitando la condensación de agua que se produciría si se abriera con aire.

En la figura 2.1.1 se muestra un esquema de la cámara de vacío descrita anteriormente.

### 2.1.2.2 Grupo de bombeo

Este equipo es el responsable de las condiciones de presión de la cámara de depósito. Como cualquier proceso de fabricación de materiales el *sputtering* requiere unas condiciones previas que garanticen la calidad del material fabricado. Así previamente a la introducción del gas se alcanza en la cámara una presión del orden de  $10^{-7}$ - $10^{-6}$  mbar. Para ello el grupo de bombeo dispone de dos sub-equipos que alcanzan dicha presión a través de dos etapas de bombeo:

- Primera etapa: dos bombas rotatorias logran una presión de  $10^{-4}$  mbar

- Segunda etapa: una bomba turbomolecular consigue una presión mínima de  $10^{-7}$  mbar evacuando a una velocidad de bombeo de 430 l/s.

Una vez alcanzadas las condiciones requeridas de vacío se introduce gas argón a una presión de  $10^{-3}$  mbar. El equipo de bombeo es capaz de evacuar continuamente incluso contra presiones superiores ( $10^{-2}$  mbar).

### 2.1.2.3 Fuente de alimentación.

La fuente de alimentación proporciona al cátodo el voltaje necesario para encender el plasma. En el equipo descrito aquí existen dos fuentes de alimentación de distinto tipo:

- Fuente DC: fuente de potencia continua; máxima potencia: 600 W
- Fuente RF: fuente de potencia alterna de radiofrecuencia (13.56 MHz); máxima potencia: 300 W

Como se verá en la descripción del proceso de sputtering cada una de estas fuentes es eficaz en la fabricación de un tipo de muestra: la fuente de voltaje alterno se emplea específicamente para el crecimiento de materiales no conductores. En la fabricación de las muestras de este trabajo se ha utilizado siempre la fuente RF.

### 2.1.2.4 Equipo de refrigeración y descalcificación.

Tanto la bomba turbomolecular como los porta-sustratos y los blancos requieren una refrigeración continua durante el proceso de bombeo y deposición. Para ello un circuito por el que circula agua a una presión de 5 bar está instalado bajo las pletinas de los blancos y los sustratos y refrigera también la bomba turbomolecular. El agua es bombeada por una bomba rotatoria que mantiene la presión del agua mediante

comparación con un balón isobárico. Previamente a su entrada al circuito del equipo, el agua pasa por un filtro descalcificador.

Los circuitos de refrigeración requieren periódicamente una limpieza o purga que se realiza mediante la introducción de aire comprimido a 5 bar de presión. La instalación dispone de un compresor de aire para tal efecto

### **2.1.3. Descripción del proceso de pulverización catódica**

El proceso de pulverización catódica es un proceso puramente mecánico en el que los átomos son liberados del blanco gracias a la energía mecánica del choque de los iones contra su superficie. Los iones acelerados alcanzan energías hasta del orden de 5000 eV. Por el choque contra la superficie del blanco esta energía se disipa en parte en energía térmica, en parte en la emisión de electrones secundarios y tan sólo aproximadamente un 1% se invierte en la emisión de átomos. Los átomos pulverizados salen en un amplio rango de direcciones, siendo predominante la dirección normal a la superficie del blanco (también del sustrato) y con una distribución de energías cuyo valor medio es generalmente de 4 eV, dos órdenes de magnitud superior a la que adquieren los átomos en los procesos de evaporación térmica [1]. Para describir el proceso se pueden considerar las siguientes etapas:

#### **2.1.3.1 Etapa de vacío**

Esta etapa es fundamental para lograr una buena pureza de las muestras fabricadas. Hay metales como el cobalto que se oxidan fácilmente y, por tanto, requieren un buen vacío, del orden de  $10^{-7}$  mbar. Sobre la presión de vacío se introduce un gas inerte a una presión que suele estar entre  $10^{-3}$  - 1 mbar. Normalmente se emplea gas argón por ser un gas noble con baja afinidad electrónica, es decir con mayor tendencia a formar iones positivos en lugar de iones negativos. La presión del gas es un parámetro que determina tanto el ritmo de crecimiento de la película como el tipo de estructura que crece sobre el sustrato. A mayor presión menor será la energía media de los átomos pulverizados que llegan al sustrato puesto que sufren en su recorrido mayor

número de colisiones. Otro factor determinante tanto de la eficacia del proceso como de la pureza final de las muestras es la velocidad de evacuación del grupo de bombeo. Es importante la rápida evacuación de partículas residuales en el proceso de pulverización.

### 2.1.3.2 Formación del plasma

El gas que se introduce en la cámara de vacío, normalmente argón contiene un pequeño porcentaje de átomos ionizados por las radiaciones ambientales. Al someterlo a una diferencia de potencial, los electrones libres se aceleran y chocan contra los átomos produciéndose nuevas ionizaciones. Así se forma un *plasma* luminiscente que contiene diferentes partículas: átomos de Ar eléctricamente neutros por una parte, iones  $\text{Ar}^+$  por otra y electrones. Cada una de estas partículas tendrá un comportamiento diferente bajo el campo eléctrico de la cámara. En su movimiento colisionarán produciéndose continuamente nuevas ionizaciones y neutralizaciones. Los iones con carga positiva se aceleran hacia el cátodo, donde se halla situado el blanco, y chocan pudiéndose producir fundamentalmente tres tipos de procesos [2]:

- expulsión de átomos del blanco
- neutralización de iones de  $\text{Ar}^+$ , con la consiguiente expulsión de átomos de Ar gaseoso
- absorción de iones en el blanco

En estos procesos también existe la emisión de electrones secundarios que se incorporarán al plasma contribuyendo a la ionización de nuevos átomos del gas. La diferencia de potencial que se establece entre las placas anódica y catódica puede ser continua o alterna. El tipo de voltaje empleado constituye una variedad de la técnica de *sputtering*, como se verá más adelante.

### 2.1.3.3 Crecimiento de la película delgada

Todo el proceso anteriormente descrito da lugar al crecimiento de una película delgada con una cierta estructura que depende de las condiciones de *sputtering*, en particular de los siguientes factores:

- La **estructura del sustrato** condiciona fuertemente la del material crecido sobre él. En muchos casos se utilizan sustratos monocristalinos, generalmente silicio, cortados paralelamente a planos cristalinos bien conocidos para favorecer el crecimiento de una determinada estructura. En el caso de las muestras de este trabajo se han utilizado siempre sustratos amorfos y es la rugosidad superficial la que condiciona la estructura de la película.
- La **presión del gas** de descarga determina el recorrido libre medio de los átomos pulverizados así como en el valor de la energía con la que llegan a la superficie del sustrato. En general, al aumentar la presión del gas de descarga se producirá una mayor retrodispersión de los átomos pulverizados y éstos llegarán con menos energía al sustrato. Existe una distribución de energías centrada en un valor en torno a 4 eV pero algunas partículas pueden incluso alcanzar 50 eV. Son estas últimas las que provocarán la pulverización local de la superficie del sustrato dando lugar a centros de nucleación que favorecerán un crecimiento columnar. Si son muchos los átomos energéticos se formarán muchos centros de nucleación y percolarán dando lugar a una estructura mucho más densa. Si por el contrario la energía con la que llegan al sustrato los átomos pulverizados es muy baja, estos buscarán mínimos energéticos y se distribuirán uniformemente sobre la superficie del sustrato.
- La **temperatura del sustrato**. El aumento de la temperatura puede dar lugar a la difusión superficial de los átomos depositados en busca de posiciones menos energéticas. La estructura a la que dará lugar será menos texturada.

- La *distancia entre blanco y sustrato*. En general la energía de los átomos que alcanzan el sustrato será menor cuanto mayor sea la distancia entre los cátodos. Además los elementos más ligeros que conformen el blanco se dispersarán más que los más pesados produciéndose un enriquecimiento en estos últimos a medida que la distancia aumente.

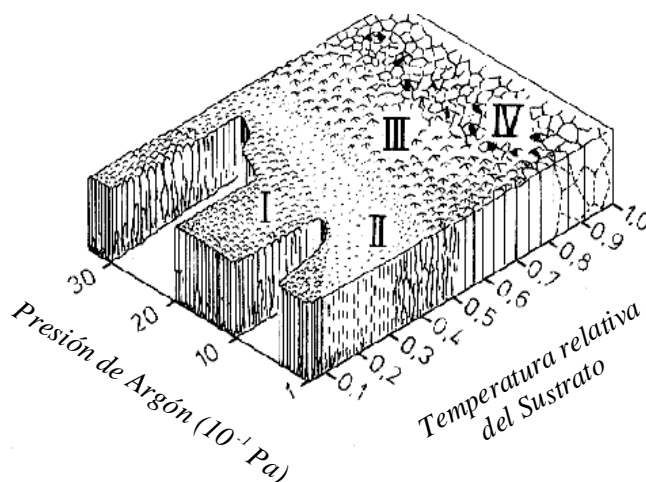


Figura 2.1.2. Estructura columnar del depósito. I, estructura porosa; II, zona de transición; III, estructura columnar; IV, recristalización de los granos. Los ejes representan la temperatura del sustrato  $T$ , en relación con la temperatura de fusión del material,  $T_M$ .

En general, la dirección normal a la superficie del sustrato es preferencial, por lo que predominantemente se da un crecimiento columnar. Existe un modelo desarrollado por B. A. Movchan y A. V. Demchishin [3] que relaciona dicha estructura con la presión de argón y la temperatura. La figura 2.1.2 muestra un dibujo ilustrativo de los resultados de dicho modelo.

La velocidad de crecimiento de la película delgada depende de varios factores. Se define *ritmo de crecimiento o rendimiento* al siguiente cociente:

$$r = \frac{\text{espesor } (\text{\AA})}{\text{tiempo de depósito(s)}}$$

[2.1]

donde el espesor se refiere al de la capa depositada y el tiempo el que permanece el sustrato expuesto al plasma luminiscente. El rendimiento se calcula explícitamente para cada blanco y en las condiciones de *sputtering* que se han prefijado. En general, depende del voltaje, la presión de gas, el voltaje entre placas, la temperatura, la superficie del blanco y la distancia entre blanco y sustrato.

## **2.1.4. Tipos de técnicas *sputtering***

### **2.1.4.1 *Sputtering* DC**

En este proceso se aplica un voltaje continuo a la placa catódica que queda polarizada negativamente durante todo el proceso. El proceso ocurre en la manera en que se ha descrito anteriormente. Es aplicable para materiales conductores (metales y sus aleaciones) y algunos semiconductores. No es aplicable para materiales dieléctricos como la alúmina o la sílice, puesto que éstos no conducen y por lo tanto no se producen los procesos anteriormente enumerados que conllevan a la pulverización del blanco.

El voltaje necesario en este tipo de proceso es del orden de 1000 V. La eficacia del proceso depende fuertemente del número de emisiones de electrones secundarios del blanco por lo que se requiere un voltaje elevado para mantener dicho número. Este voltaje está íntimamente relacionado con la presión en el interior de la cámara. Al aumentar la presión la eficacia del proceso disminuye y será necesario aplicar mayor voltaje.

### **2.1.4.2 *Sputtering* RF**

Este proceso es específicamente aplicable a materiales dieléctricos aunque también se emplea para materiales conductores o semiconductores. La aplicación de un voltaje continuo a un material dieléctrico implicaría la polarización de su superficie pero no permitiría la conducción a su través necesaria para la continuidad eléctrica. La aplicación de un voltaje alterno hace que en el semiperíodo negativo los iones positivos

viajen hacia el blanco y se acumulen allí, y durante el período positivo sean los electrones los que viajen hacia el blanco descargándolo. Si la frecuencia es baja tanto iones como electrones podrían viajar del ánodo al cátodo pulverizando ambos, situación que no sería favorable en principio. Al ir aumentando la frecuencia se producen mayor número de colisiones ionizantes de los electrones del plasma con átomos neutros con lo que el proceso ganará en eficacia. Si la frecuencia es suficientemente elevada los iones de Ar, que son bastante masivos, no podrán seguir al campo eléctrico. Si mediante un sistema de impedancias acoplada a la fuente se consigue anular el flujo de cargas hacia la fuente se producirá una especie de potencial pulsado (solo existente en el semiperíodo negativo) llamado *potencial de autopolarización* [4] que será capaz de pulverizar el blanco eficazmente.

Las frecuencias para las que se produce la inmovilización de los iones positivos están en el rango de las radiofrecuencias. Por tratarse de una frecuencia en la banda de radiocomunicaciones sólo está permitida la utilización de la frecuencia 13.56 MHz y sus armónicos superiores. El equipo descrito utiliza la frecuencia 13.56 MHz.

Las ventajas de esta técnica RF son, en primer lugar, la posibilidad de depositar materiales tanto conductores como no conductores, y en segundo lugar la reducción del potencial necesario, puesto que la naturaleza oscilante del campo eléctrico aumenta la movilidad de los electrones secundarios que provocan mayor número de colisiones. En este caso el orden de magnitud del voltaje necesario es de 100 V

### **2.1.4.3 *Sputtering* Magnetron**

El *sputtering magnetron* consiste en la aplicación de un campo magnético que refuerza el bombardeo de los electrones con los átomos del gas. Hay diferentes configuraciones posibles. La que dispone el equipo descrito se trata de un imán colocado debajo del blanco cuyas líneas de fuerza se cierran sobre la superficie del blanco. Los electrones del plasma trazan trayectorias helicoidales sobre el blanco como se muestra en la figura 2.1.3.



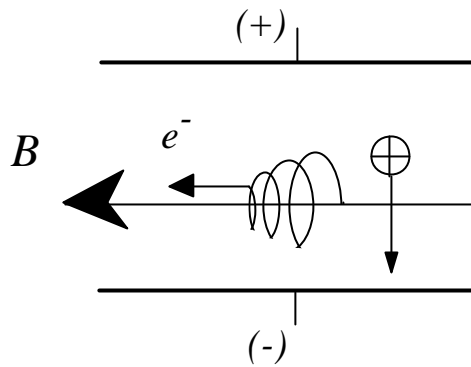


Figura 2.1.3. Trayectorias helicoidales de los electrones durante la pulverización magnetrón.

#### 2.1.4.4 *Sputtering* reactivo

Una variedad de esta técnica es la conocida como *sputtering reactivo*, que consiste en introducir una cierta presión de gas  $O_2$  en la cámara durante la deposición. Las moléculas de  $O_2$  se disocian por el choque con los iones de  $Ar^+$  y se combinan con los átomos del metal pulverizado para finalmente depositarse ya combinados sobre el sustrato. Esta técnica ha sido empleada para el crecimiento de los óxidos antiferromagnéticos ( $NiO$  y  $CoO$ ) estudiados en este trabajo.

## 2.2. Técnicas de caracterización estructural

### 2.2.1. Difracción de Rayos X

Difracción es cualquier desviación de la luz que no es debida ni a reflexión ni a refracción. Los fenómenos de difracción son causados por *pequeños* obstáculos que encuentra la radiación en su propagación y son en última instancia fenómenos de interferencia. Al decir *pequeños* se está ya mencionando la misma naturaleza de la difracción: la difracción tiene relevancia cuando las dimensiones típicas de los obstáculos son comparables a la longitud de onda de la radiación.

La teoría que describe los fenómenos de difracción se basa en el principio de *Huyghens-Fresnel*, que dice que “todo punto de una superficie iluminada es un punto emisor de radiación, que emite un frente esférico. Los diferentes frentes esféricos emitidos interfieren entre sí”. A partir de este principio el problema de la difracción consiste en calcular la superposición de frentes de onda que interfieren. De esta manera, a partir de un patrón o figura de difracción se puede obtener información muy detallada acerca del objeto difractor. Por ello la difracción es una herramienta muy poderosa para el estudio de la materia.

Como se ha mencionado la difracción ocurre cuando las dimensiones de la onda y las del obstáculo son comparables. En el caso del sólido cristalino, las dimensiones relevantes son las distancias entre planos cristalinos, que son del orden de  $10^{-10}$  m. La zona del espectro electromagnético cuyas longitudes de onda están en este rango es la de la radiación X.

Un sistema de difracción de rayos X posee una fuente emisora de la radiación que incide sobre la muestra y un detector que recoge el haz difractado. La intensidad detectada presenta máximos para ciertos ángulos que vienen dados por la ley de Bragg:

$$2d_{hkl} \operatorname{sen} \mathbf{q} = n\mathbf{l}$$

[2.2]

donde  $d_{hkl}$  es la distancia interplanar entre la familia de planos ( $hkl$ ),  $\mathbf{l}$  es la longitud de onda de la radiación incidente,  $\mathbf{q}$  el ángulo formado entre la radiación incidente y la familia de planos ( $hkl$ ), y  $n$  el orden de difracción.

### 2.2.1.1 Descripción del dispositivo

El difractómetro empleado en el estudio de caracterización estructural de este trabajo es un difractómetro de polvo SIEMENS D-500. Este equipo utiliza la radiación  $K_{\alpha}$  del cobre, cuya longitud de onda es  $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$ , y un monocromador de grafito. A diferencia de otros métodos, como el *método de Laue* que sólo es aplicable a muestras monocristalinas, el *método de polvo* permite estudiar muestras policristalinas,.

El dispositivo opera normalmente en la configuración  $\mathbf{q}$ - $2\mathbf{q}$ , configuración en la que el tubo emisor permanece fijo. La muestra se mueve un ángulo  $\mathbf{q}$ , mientras el detector gira un ángulo  $2\mathbf{q}$ . De esta manera emisor y detector se hallan en posiciones de reflexión especular. En la figura 2.2.1 se muestra un esquema del modo de operación.

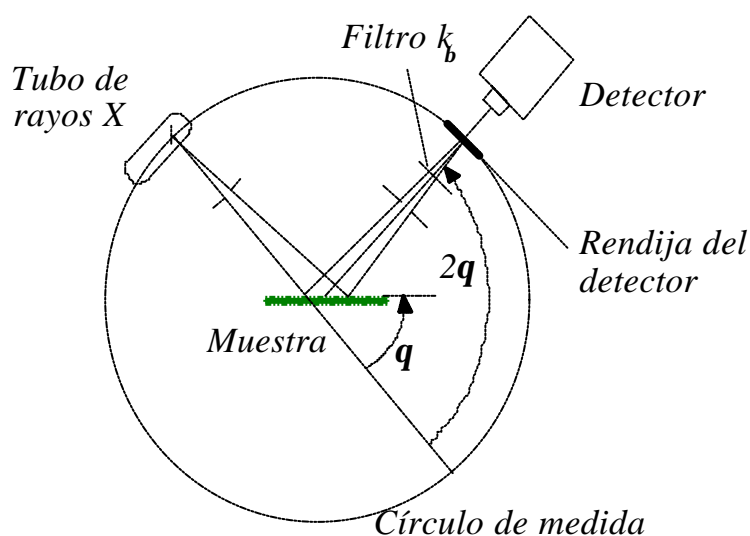


Figura 2.2.1. Modo de operación  $\mathbf{q}$ - $2\mathbf{q}$  del difractómetro SIEMENS D-5000.

### 2.2.1.2 Diagramas de difracción $q$ - $2q$

El uso de la técnica de difracción de rayos X en películas delgadas es doblemente útil, ya que permite estudiar no sólo la estructura de los materiales depositados sino la estructura misma de la película. Se han estudiado dos tipos de perfiles  $\theta$ - $2\theta$ : perfiles a bajos ángulos,  $\theta < 15^\circ$  y perfiles a altos ángulos,  $\theta > 15^\circ$

#### a) Diagramas a bajo ángulo

En esta región de ángulos se puede analizar la modulación química de las distintas capas que conforman la película delgada. Esta técnica, especialmente útil para el estudio de multicapas, en el caso de una sola capa también permite determinar su espesor a partir de los diferentes órdenes de difracción. En esta región hay pequeñas desviaciones de la ley de Bragg, pero en una buena aproximación se puede aplicar ésta.

En este rango es importante el centrado previo del sistema detector-muestra de manera que se opere entorno a la reflexión angular con un error menor de  $0.001^\circ$ . Para ello primeramente se opera con el difractómetro en el modo *Rocking Curve*. En este modo se mueve el detector mientras la muestra y el emisor permanecen fijos. Una vez hallado el máximo correspondiente a la reflexión especular se corrige la posición inicial del detector para que el sistema esté perfectamente centrado.

#### b) Diagramas a alto ángulo

Los perfiles en la región de altos ángulos dependen fundamentalmente de la coherencia estructural en la dirección de crecimiento, es decir, la dirección normal al plano de la película.

Las muestras estudiadas en este trabajo son de naturaleza nanocrystalina. Esto quiere decir que la coherencia cristalina es muy baja, del orden de nanómetros, y en este caso la ley de *Bragg* no se cumple exactamente. En las condiciones ideales de monocromaticidad y cristalinidad (la ley de *Bragg* está deducida en el supuesto ideal de un cristal infinito) los perfiles de difracción son superposiciones de funciones delta de Dirac centradas en posiciones angulares que satisfacen la condición de *Bragg*. Cuando

se considera una situación más real y se tiene en cuenta el tamaño finito de los cristales, los picos de difracción son funciones similares a funciones gaussianas. La difracción existe no sólo para los ángulos de *Bragg* sino también para un cierto ángulo alrededor de ellos. En este caso se puede obtener el tamaño de grano  $\tau$  a partir de la anchura a mitad de altura de los picos,  $\Delta(2\theta)$ , ya que ambas magnitudes se relacionan a través de la fórmula de *Scherrer* [5]:

$$\tau = \frac{0.9\lambda}{\Delta(2\theta) \cos \theta} \quad [2.3]$$

donde  $\lambda$  es la longitud de onda de la radiación incidente y  $\theta$  la posición angular del máximo de difracción.

### 2.2.2. Microscopía electrónica de transmisión

El microscopio electrónico de transmisión o TEM (del inglés *Transmission Electron Microscope*) [6] es una de las herramientas más potentes que hoy en día existen para la caracterización estructural de la materia a escala atómica. La teoría de la dualidad onda-corpúsculo desarrollada por Louis de Broglie en 1925 estableció un marco teórico para poder superar el límite óptico de resolución y así se construyó el primer microscopio electrónico comercial en 1936 ideado por Ruska y Knoll y desarrollado por la compañía norteamericana Metropolitan-Vickers. El poder de resolución de estos microscopios, que utilizan los electrones como fuente de iluminación de las muestras, es del orden de su longitud de onda, que en aproximación no relativista se expresa como:

$$l = \frac{h}{\sqrt{2mE}} \approx \frac{1.22}{E^{1/2}} \quad [2.4]$$

donde  $h$  es la constante de Planck,  $E$  es la energía de los electrones y  $m$  su masa. El límite de resolución de estos microscopios no es puramente una cuestión física como era el caso del límite óptico en el que la longitud de onda de la radiación visible marcaba la resolución de los microscopios ópticos. En el caso de la microscopía electrónica de transmisión es un problema técnico el que se impone: la imposibilidad de realizar buenas lentes electromagnéticas además del posible deterioro que pueda producir en las muestras el uso de voltajes de aceleración elevados. Desde los comienzos de la microscopía electrónica de transmisión todos los esfuerzos tecnológicos se han dirigido en desarrollar lentes electromagnéticas lo más perfectas posible y en conseguir los mayores voltajes de aceleración. Así, se ha llegado a la resolución atómica mediante el desarrollo de los microscopios de alta resolución (HRTEM) con voltajes de aceleración del orden de 1 megavoltio.

### 2.2.2.1 Fundamentos

Los electrones son un tipo de radiación ionizante que interactúa directamente con los campos electromagnéticos locales que existen en la materia. A diferencia de los rayos X, en los que se produce una interacción indirecta entre el campo radiado por los fotones y el emitido exclusivamente por los electrones excitados de la materia, la interacción con los electrones se produce tanto a nivel electrónico como a nivel nuclear, por lo que el resultado de dicha interacción contiene una información acerca de la materia mucho más completa y valiosa. Cuando un haz de electrones incide sobre un material atravesándolo se producen una serie de procesos que dan lugar a una distribución no uniforme de electrones emergentes (ver figura 2.2.2). En esta distribución se halla la mayor parte de la información química y estructural que se puede obtener. Además, por el hecho de tratarse de una radiación ionizante, se producen una serie de emisiones llamadas *emisiones secundarias*, que aportan información principalmente composicional.

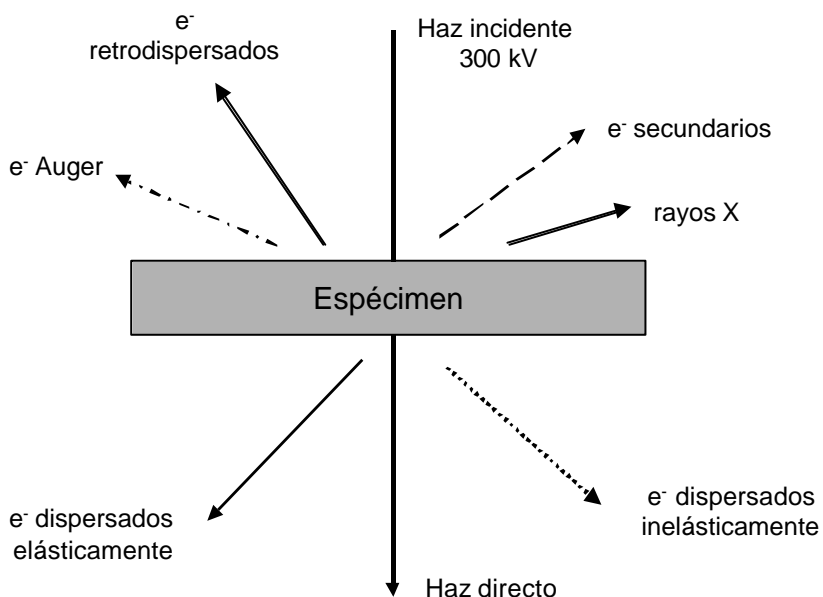


Figura 2.2.2. Diagrama de señales que se generan cuando un haz de electrones de alto voltaje incide sobre un espécimen.

Con respecto a la distribución de electrones emergentes, una parte de ellos constituyen el llamado *haz directo*, formado por aquellos electrones que no sufren ninguna desviación respecto a la dirección de incidencia. Este haz es de gran importancia pues sirve de referencia para el centrado y enfoque de la muestra así como para la alineación del haz y del sistema de lentes. Otra parte de los electrones, los llamados *electrones dispersados*, sufren desviaciones respecto al ángulo de incidencia. Algunos de ellos emergen de la muestra con ángulos superiores a 90°: son los llamados *electrones retrodispersados*.

La dispersión de electrones puede ser un proceso elástico o inelástico, lo que hace clasificar a los electrones dispersados en *dispersados elásticamente* o *inelásticamente*, siendo estos últimos los que dan información sobre los daños estructurales que sufre el material durante el bombardeo electrónico. Generalmente se analizan los electrones dispersados elásticamente y en concreto son de gran importancia aquellos cuyos ángulos de dispersión son pequeños, pues son lo que contienen mayor información estructural.

La distribución angular de la dispersión da lugar a un **patrón de difracción** de electrones. La distribución espacial se observa como contraste en una **imagen** de la muestra. Se asocian diferentes contrastes en la imagen a distintos ángulos de desviación del haz incidente y por tanto a distintas intensidades del haz que se recoge a la salida. El análisis de una imagen de contraste permite obtener información tal como las dimensiones características de la muestra (tamaños de cristal, espesores de capas, etc.), rugosidad, distribución de partículas, etc. Normalmente se analizan individualmente los haces emergentes, seleccionándolos convenientemente, pero en algunos casos se permite la salida simultánea de varios haces que interaccionan. En estos casos se analiza la diferencia de fase entre los diferentes frentes de onda y se obtiene una imagen con **contraste de fase**. Este tipo de imágenes son de difícil interpretación dada la gran sensibilidad del contraste de fase a pequeñas variaciones de espesor, orientación, factor de dispersión de la muestra, así como a pequeños cambios en el foco y astigmatismo de las lentes. Esta misma sensibilidad hace esta técnica muy útil para la observación de estructuras de dimensiones atómicas tales como defectos, vacantes y fronteras de grano. El estudio de los patrones de difracción de electrones es una herramienta muy poderosa para el conocimiento de la estructura cristalina. Imagen y difracción, junto con la



espectrometría de rayos X, constituyen las tres técnicas fundamentales de la microscopía electrónica por transmisión.

### 2.2.2.2 Descripción del microscopio.

El microscopio utilizado para la observación de las muestras estudiadas en este trabajo es un microscopio comercial JEOL modelo JEM-4000FX que opera con un voltaje de aceleración de 300 kV [7]. Este microscopio se encuentra en el Laboratorio de Microscopía Electrónica del centro de investigación ENEA-Cassaccia, Roma (Italia). Todo el trabajo de caracterización estructural realizado con el mismo ha sido facilitado y dirigido por la Dra. Amelia Montone.

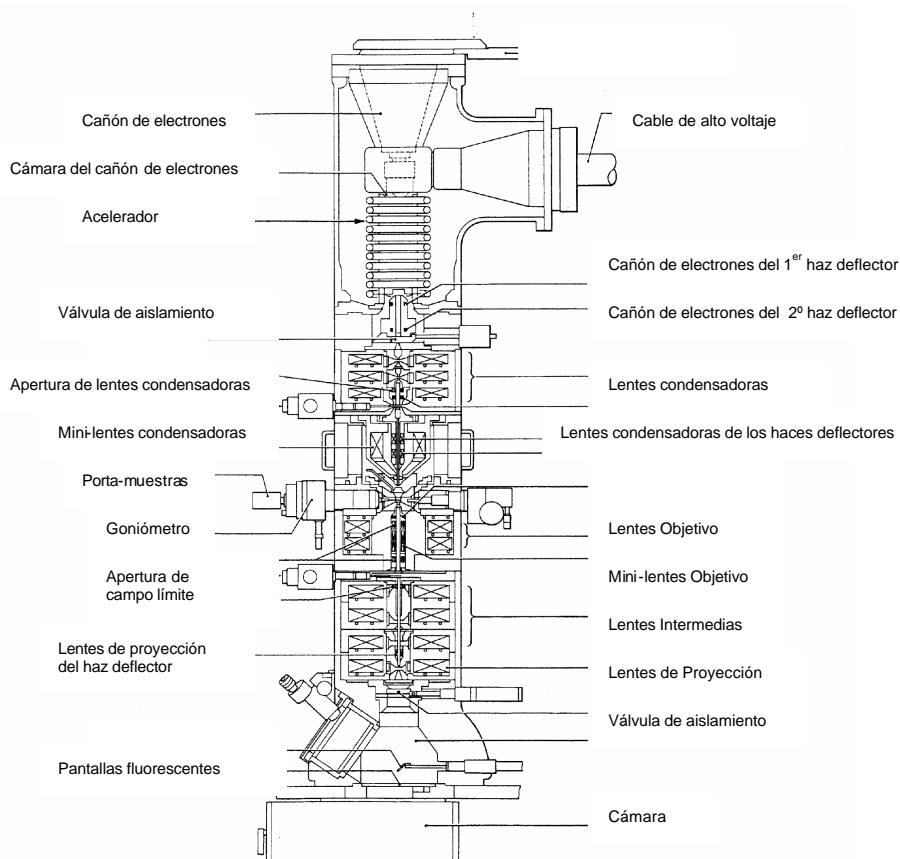


Figura 2.2.3. Sección transversal del microscopio electrónico de transmisión utilizado[7].

En la figura 2.2.3 se muestra una sección transversal esquematizada de la columna de dicho microscopio. El eje de la columna se llama eje óptico. Se describen a continuación los sistemas principales que lo conforman:

### **1. Fuente de electrones**

Una fuente de electrones es un material, normalmente en forma de filamento, que emite electrones cuando es sometido bien a un campo eléctrico intenso, *fuentes de emisión de campo* o bien a un calentamiento, *fuentes de emisión termoiónica*. Una buena fuente termoiónica debe tener o un punto de fusión elevado o un valor bajo de la función de trabajo  $\phi$  (energía a la que los electrones escapan de la superficie). La fuente de electrones del microscopio aquí descrito es una fuente termoiónica de  $\text{LaB}_6$ , que se caracteriza por tener un valor bajo de la función de trabajo

### **2. Cañón de electrones**

La función del cañón de electrones es acelerar y dirigir los electrones de la fuente dentro del sistema de iluminación. Así un cañón de electrones actúa como una primera lente que proporciona a los electrones la energía suficiente, acelerándolos mediante un voltaje que se aplica entre los dos cátodos de un triodo. El filamento de  $\text{LaB}_6$  constituye el cátodo de este triodo.

### **3. Lentes de electrones**

Las lentes de electrones son quizás el elemento más importante dentro de un microscopio de transmisión. Debido a la dificultad de construir buenas lentes electromagnéticas son éstas las que limitan el poder de resolución. Una lente de electrones es una lente magnética que tiene básicamente dos funciones:

- dirigir los haces de electrones emergentes de un punto del objeto hacia un solo punto de la imagen.
- dirigir los haces paralelos a un punto del plano focal de la lente.

El fundamento de una lente electromagnética es la capacidad de un campo magnético de modificar la trayectoria de una carga eléctrica en movimiento. Así, una lente magnética es un electroimán (ver figura 2.2.4) en cuyo entrehierro existe un campo magnético capaz de confinar un haz de electrones en una dirección (todas las lentes magnéticas son convergentes). La distribución de líneas de campo en el interior del entrehierro viene dada por la disposición y forma de las piezas polares. Existen complejos programas de cálculo que aproximan las trayectorias de un electrón en el interior de una de estas lentes para distintas configuraciones de las piezas polares. Aún así y a pesar de los enormes avances tecnológicos que se han hecho en la construcción de lentes magnéticas desde que por primera vez que Busch en 1927 logró enfocar un haz de electrones, hoy en día las lentes de electrones todavía son muy imperfectas. La obtención de imágenes con buena resolución depende en buena parte de la solventación de algunos problemas que se producen en estos sistemas como son las aberraciones y el astigmatismo, entre otros. Estos efectos se corrigen con la incorporación en el microscopio de otras lentes magnéticas (lentes secundarias).

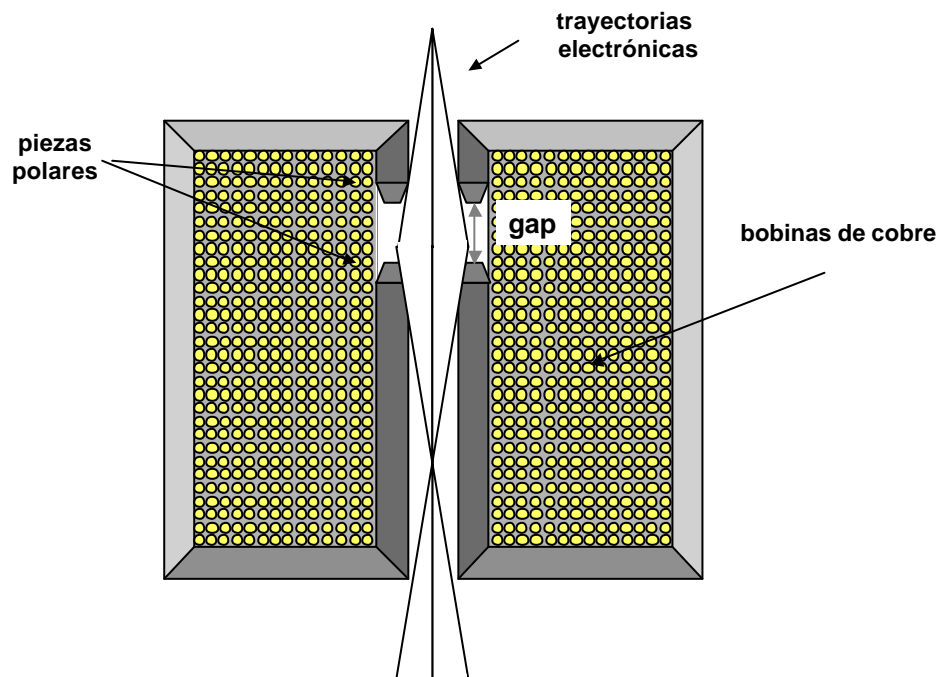


Figura 2.2.4 Diagrama esquemático de una lente magnética

En un microscopio electrónico las lentes magnéticas están fijas y sus características, como el plano focal o el aumento, se modifican a través de la corriente que se aplica a las bobinas de las piezas polares.

Existen varios grupos de lentes en un microscopio electrónico con distintas funciones. Delante de la muestra existe una serie de *lentes condensadoras* cuya función es la de enfocar el haz incidente sobre la muestra. Mediante estas lentes se controla la sección de muestra que se ilumina. La *lente objetivo*, que se sitúa detrás de la muestra, es una de las lentes más potentes y tiene como función enfocar el haz emergente de la muestra. Es la más difícil de construir puesto que el espécimen debe ir situado lo más cerca posible de su plano objeto, con lo que éste debe estar muy bien definido. Las *lentes intermedias* son un grupo de lentes que situadas tras la lente objeto pueden ser ajustadas de modo que:

- el plano focal de la lente objetivo coincida con su plano objeto. Entonces se observará un patrón de difracción (PD) en la pantalla de visualización.
- el plano imagen de la lente objetivo coincida con su plano objeto. En la pantalla de visualización se observará finalmente una IMAGEN.

Estos dos modos de operación del TEM se esquematizan en la figura 2.2.5. Mediante las lentes intermedias se selecciona también el aumento de la imagen final. Finalmente, la *lente de proyección* tiene como función enfocar la imagen o el PD en la pantalla de visualización.

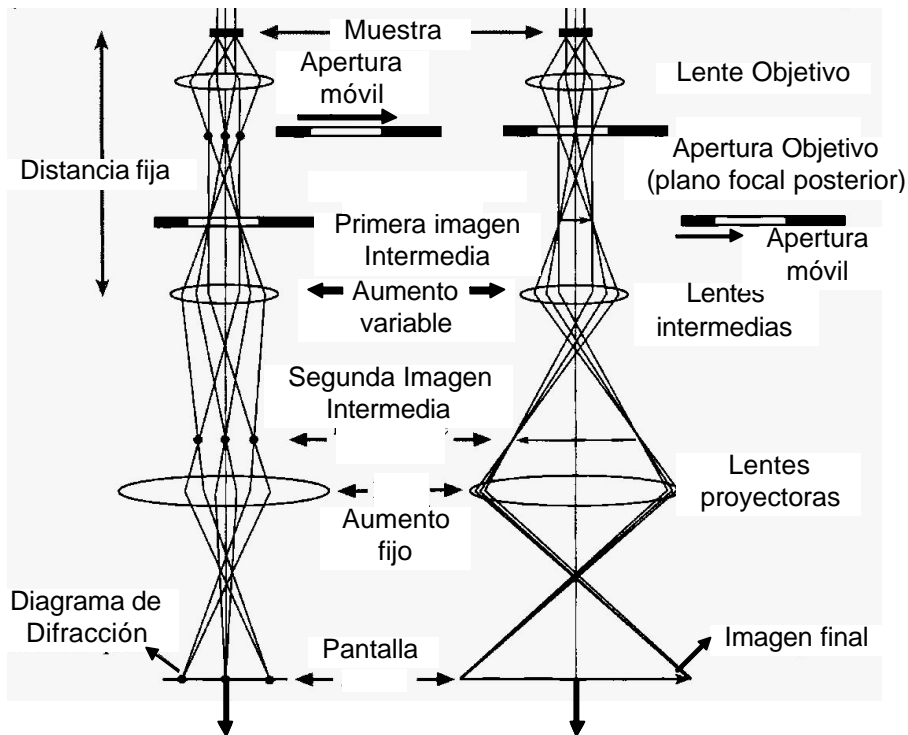


Figura 2.2.5. Dos modos de operación del TEM

#### 4. Aperturas y diafragmas

Las aperturas en un microscopio de transmisión son también un elemento importante en cuanto que son necesarias para mejorar su resolución. Las lentes magnéticas producen fuertes aberraciones y otros defectos en las imágenes que forman, que se pueden corregir limitando la apertura de las lentes. Una apertura es un orificio circular realizado en un diafragma, que normalmente es un disco de un material refractario como el molibdeno o el platino. En el caso del microscopio descrito, todos los diafragmas son de molibdeno con aperturas variables entre 10  $\mu\text{m}$  y 200  $\mu\text{m}$ .

El uso de aperturas tan pequeñas reduce mucho la intensidad de electrones que se recoge procedente de la muestra y por tanto se pierde información, especialmente la que contiene la dispersión a altos ángulos. No obstante, estas aperturas son imprescindibles para disminuir el efecto de las aberraciones puesto que aumentan enormemente tanto la profundidad de campo como la profundidad de foco. Esto hace que una muestra de TEM de pocos nanómetros de espesor pueda estar enfocada íntegramente al mismo tiempo. Además en el caso de las aperturas que se emplazan en

las lentes condensadoras tienen una función protectora del espécimen puesto que reducen la cantidad de radiación que recibe.

La apertura más importante en un TEM es la llamada *apertura objetivo*, que permite seleccionar los electrones que formarán la imagen final. Esta selección se hace sobre el PD como se muestra en figura 2.2.6. La *apertura objetivo* se coloca en el plano focal de la lente objetivo y se puede desplazar lateralmente de modo que:

- sólo se transmitan los electrones centrales, es decir el haz directo y los electrones dispersados con bajos ángulos. La imagen así formada se llama *imagen de campo claro* o, en inglés, *bright field* (BF).
- sólo se transmita un haz de electrones seleccionado entre los dispersados a ángulos mayores. La imagen en este caso se llama *imagen de campo oscuro* o *dark field* (DF).
- se transmitan varios haces simultáneamente. Esta técnica se utiliza para obtener una imagen con *contraste de fase*. El contraste de fase es muy sensible a pequeñas variaciones de foco en la lente objetivo por lo que para realzar el efecto normalmente se desenfoca ligeramente la imagen, obteniéndose una *imagen fuera de foco*.

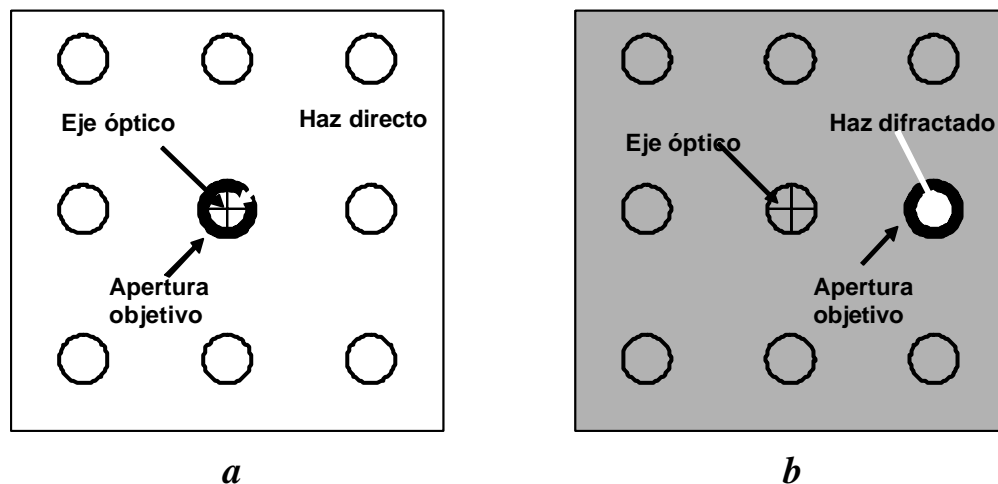


Figura 2.2.6. Esquema sobre el patrón de difracción de la colocación de la apertura objetivo para la obtención de a) una imagen BF y b) una imagen DF

## **5. Sistema de visualización**

Los electrones no pueden ser detectados por el ojo humano por lo que para visualizar una imagen TEM es preciso transformar la intensidad del haz electrónico en intensidad luminosa. Para ello, se hace uso del fenómeno de catodo-luminiscencia, proceso por el cual la energía de los llamados rayos catódicos (electrones) se transforma en energía lumínica. Se suelen utilizar materiales fluorescentes como el ZnS que emite con una longitud de onda de 450 nm para recubrir las pantallas de visualización de los microscopios electrónicos.

El microscopio utilizado dispone de dos pantallas fluorescentes en el interior de la cámara de visualización para la observación directa de imágenes y patrones de difracción. Estas pantallas pueden ser retiradas para dar acceso a una cámara CCD que se encuentra en la parte inferior de la columna del microscopio y que está conectada con el sistema de registro y digitalización de imágenes.

## **6. Cámara de la muestra**

El microscopio utilizado dispone de una cámara para alojar la muestra que se encuentra a una presión de  $10^{-5}$  Pa. Para ello existe un sistema de bombeo con dos bombas iónicas una de difusión de aceite y dos rotatorias. El portamuestras puede alojar simultáneamente dos muestras que deben ser emplazadas en unas pequeñas rejillas circulares de cobre de 3 mm de diámetro. Dicho portamuestras se acciona externamente con un goniómetro que permite girar las muestras hasta  $45^\circ$  hacia el eje óptico.

### **2.2.2.3 Preparación de muestras**

La preparación de una muestra para su observación en el TEM consiste en su adelgazamiento hasta el punto en el que ésta se hace transparente al paso de los electrones. El término *transparente* significa aquí que los electrones sean capaces de atravesar el material con intensidad suficiente como para, en un tiempo razonable, formar en la pantalla detectora una imagen interpretable. La preparación de la muestra

no debe dañar su composición y estructura o en tal caso debe hacerlo de manera que los efectos de la preparación sobre la estructura y la composición sean conocidos. El espesor máximo al que los electrones incidentes atraviesan con suficiente intensidad una muestra depende del material estudiado y de la intensidad del haz de electrones. Por ejemplo en el caso de las aleaciones de aluminio es necesario adelgazar al menos hasta  $1\ \mu\text{m}$  la muestra, mientras que en el caso del acero se requieren espesores en torno a 100 nm.

Existen numerosos métodos de preparación de muestras, adecuados a cada tipo de material, así como al tipo de información que se desee obtener: métodos de adelgazamiento químicos, mecánicos, electroquímicos, etc. Aquí se describirá el método empleado para la preparación de las muestras estudiadas en esta memoria. Se trata de un método de adelgazamiento mecánico que no altera la estructura de las muestras y que es específico para la preparación de materiales en forma de película delgada

En el caso de las muestras que se han estudiado en este trabajo se trata de películas, bicapas y capas individuales, depositadas sobre sustrato de vidrio que en ningún caso sobrepasan en su totalidad  $0.1\ \mu\text{m}$  de espesor. Por tanto la preparación consiste básicamente en el adelgazamiento del sustrato.

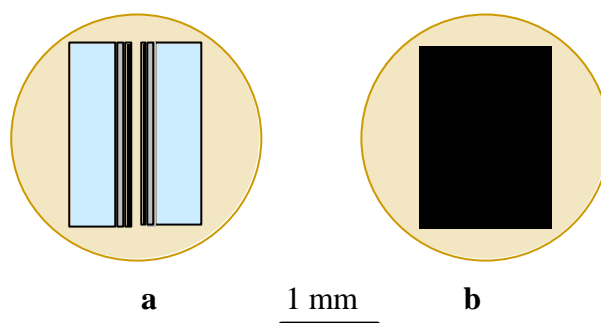
Se han preparado las muestras de dos maneras diferentes según la información que se precisaba obtener. En el caso de las bicapas interesaba observar las intercaras por lo que se prepararon para **observación en sección transversal**. Las capas individuales sin embargo se prepararon para **observación en el plano**. A continuación se describen estos dos modos de preparación así como su utilidad.

### **1. Preparación para observación en sección transversal**

Este método es específico para el estudio de intercaras. Dado que los electrones son insensibles a variaciones químicas y de estructura en la dirección paralela al haz incidente es preciso colocar la muestra de manera que el haz de electrones encuentre a su paso las intercaras transversalmente. Para ello se cortan dos trozos iguales de una longitud no superior a 3 mm (dimensión del diámetro de la rejilla del TEM descrita en el apartado anterior) y se encolan de modo que las intercaras se encuentren enfrentadas,



como se observa en la figura 2.2.7a. Además, en aquellos casos en los que el espesor del sustrato es demasiado pequeño ( $150\ \mu\text{m}$ ), se pueden encolar a ambos lados otros dos trozos de otro material, como por ejemplo el silicio, para hacer el espécimen más manejable. Este modo de preparación permitirá observar las intercaras en las bicapas así como la dimensión transversal de los policristales que las conforman, como se verá en el capítulo 3.



*Figura 2.2.7. Preparación de muestras para su observación a) transversal y b) en el plano.*

De este modo se prepararon las capas individuales pudiéndose así determinar las dimensiones de los policristales en el plano de la película, como se verá más adelante.

## **2. Preparación para observación en el plano**

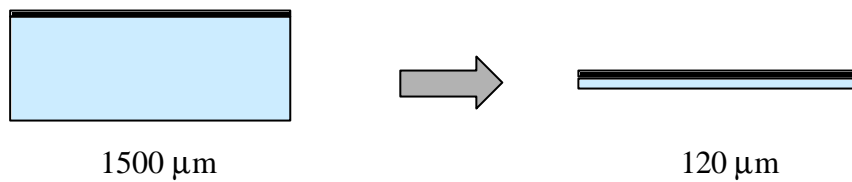
Este modo de preparación de la muestra se utiliza en los casos en los que no interesa la observación de intercaras y en los que el material es homogéneo en la dirección perpendicular al haz de electrones. En este caso se corta un espécimen de dimensiones inferiores a las de la rejilla del portamuestras del TEM en el que se colocará tras su adelgazamiento de modo que el haz incida perpendicularmente a la película delgada (ver figura 2.2.7).

## **3. Adelgazamiento de especímenes**

Una vez que la muestra se ha cortado con las dimensiones apropiadas, bien para su observación en el modo transversal, bien para su observación en el plano, las subsiguientes fases de preparación son comunes. Se trata de adelgazar progresivamente

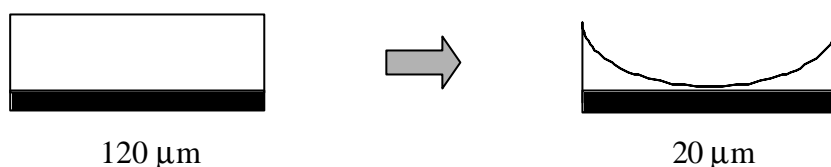
el espécimen en distintas etapas sucesivas. Todos los dispositivos empleados para este fin son modelos comerciales de la marca GATAN. A continuación se describen las tres etapas fundamentales de adelgazamiento:

a) **Adelgazamiento inicial**



En esta etapa se adelgaza mecánicamente el espécimen desde su espesor inicial, normalmente en torno a 1.5 mm, hasta 120  $\mu\text{m}$ , mediante rozamiento sobre un papel de lija (existen distintos grados de granulación) con un lubricante adecuado. Para ello se emplaza en un disco porta-muestras de manera que esté encolado por la parte de la película para que el sustrato de vidrio quede libre, ya que será éste el que se adelgace. El disco porta-muestras dispone de un tornillo micrométrico giratorio que permite desplazar el espécimen en la dirección de su espesor, sacándolo progresivamente, en pasos de 1  $\mu\text{m}$ , de su posición inicial, en la que la superficie del espécimen se encuentra perfectamente rasurada con la superficie del disco porta-muestras. Este disco, con el espécimen emplazado en su centro, se sitúa normalmente sobre una rueda que gira a velocidad controlada en la que se encuentra el papel de lija y sobre la que se inyecta un chorro de agua como refrigerante y lubricante del proceso. En el caso de las muestras estudiadas en este trabajo, el hecho de que el sustrato sea de vidrio, que es un material muy frágil, hace que la preparación sea especialmente laboriosa y lenta. Con objeto de evitar la rotura del vidrio se han adelgazado las muestras manualmente (sin hacer girar la rueda con el papel de lija) en pasos de 10  $\mu\text{m}$  sobre un papel de lija de grado 1000 utilizando como lubricante glicerina.

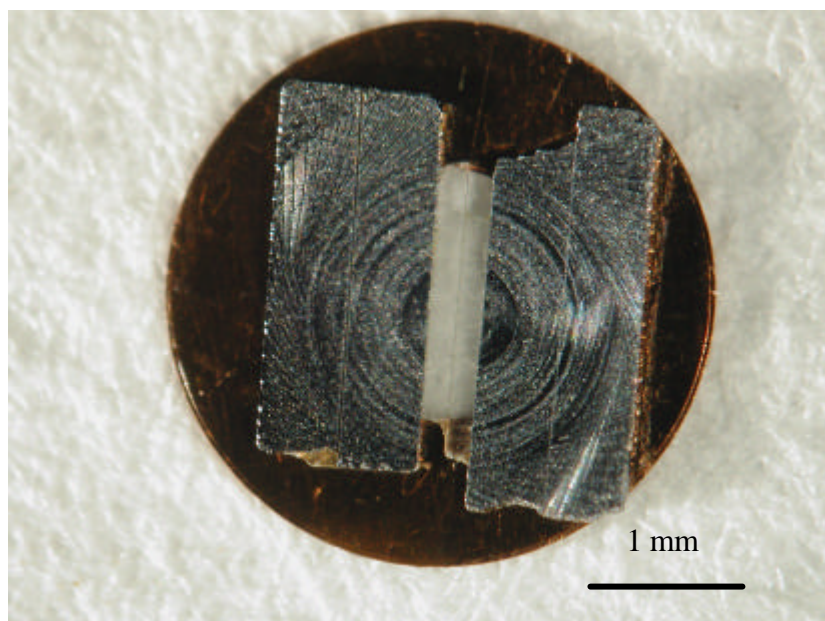
**b) Adelgazamiento central**



En esta etapa se adelgaza mecánicamente el espécimen sólo en la zona central realizando una concavidad. De esta manera se pueden conseguir adelgazamientos hasta espesores en torno a 5 μm preservando la manejabilidad del espécimen y evitando la rotura en el caso de los materiales más frágiles. Además, de este modo la zona más delgada queda localizada.

Para realizar la concavidad central se ha utilizado el dispositivo *Precision dimple grinder* modelo GATAN 656/3. Este dispositivo dispone de una pequeña rueda de cobre giratoria (15mm Ø) que, apoyada sobre el centro del espécimen, pule el material por rozamiento. Además dispone de un micrómetro con control automático de modo que se para cuando se ha alcanzado el espesor programado. En este caso se utiliza como lubricante del proceso pasta de diamante de grado 6 y alcohol etílico. En esta etapa se adelgazaron los especímenes hasta 20 μm.

Una vez concluida esta etapa se emplaza el espécimen en la rejilla de cobre que se introducirá posteriormente en el porta-muestras del TEM. Este paso es uno de los más delicados del proceso puesto que se transfiere manualmente una muestra que tiene unas pocas micras de espesor de un porta-muestras a otro. La figura 2.2.8 muestra una fotografía de una muestra preparada para observación en sección transversal realizada con una cámara incorporada a un microscopio óptico.



*Figura 2.2.8. Fotografía de una muestra preparada para observación en sección transversal, montada en la rejilla de cobre*

### **c) Adelgazamiento final por bombardeo iónico**

La etapa final de adelgazamiento se realiza bombardeando la zona central de la muestra con un haz de iones acelerado. Así se consiguen zonas de la muestra con espesores tan pequeños como una décima de micra e incluso regiones en las que se evapora el material completo. Esta última etapa de adelgazamiento se ha llevado a cabo mediante el dispositivo de precisión GATAN 691 PIPS (*Precision Ion Polishing System*). Este dispositivo dispone de una cámara de vacío en la que se establece una presión de Argón de  $10^{-5}$  Torr y en la que se introduce el espécimen en un portamuestras que gira sobre el eje perpendicular al plano de la superficie de la muestra. En el interior de la cámara existen dos cañones eléctricos que accionados alternativamente dirigen contra el centro de la superficie de la muestra sendos haces de iones de  $\text{Ar}^+$ . Estos cañones funcionan independientemente de modo que cada uno de ellos puede incidir con un ángulo y una intensidad diferente. El proceso se controla a través de un microscopio incorporado al sistema. Los parámetros utilizados en este trabajo son un ángulo de incidencia de  $5^\circ$  y un voltaje de aceleración de 5 keV para ambos cañones lo que supone una corriente aplicada de  $10 \mu\text{A}$ .

## 2.3. Técnicas de caracterización magnética

Existen diferentes maneras de caracterizar magnéticamente un material, dependiendo de los parámetros que resulten interesantes para un estudio determinado. Generalmente, la medida de la curva de imanación arroja una información muy valiosa para determinar el proceso de imanación, la histéresis y algunos parámetros como el campo coercitivo, la imanación de saturación, la imanación remanente o el campo de anisotropía. Tanto en el campo de la de la investigación fundamental como en el de las aplicaciones muchas veces interesa conocer la evolución térmica de un determinado parámetro o su comportamiento bajo algún agente externo como una tensión mecánica aplicada o una corriente eléctrica. Todos estos aspectos hacen que haya una amplia variedad de técnicas de caracterización magnética, que se pueden englobar dentro de diferentes categorías. Quizá el grupo más amplio lo constituyan el de las técnicas inductivas basadas en la ley de inducción de Lenz-Faraday. El conocimiento de toda la fenomenología en torno a esta ley fundamental del Magnetismo se remonta a los albores de esta ciencia, por lo que han sido muchos los métodos de medida que se han desarrollado, fundamentados en ella. En este capítulo se describirá el magnetómetro de interferencia cuántica o SQUID (Superconducting Quantum Interference Device). Si bien la medida de imanación que el magnetómetro SQUID hace se basa en la fenomenología de la superconductividad, el método de detección también es inductivo en el sentido convencional anteriormente mencionado.

Otro grupo de técnicas de caracterización que ha surgido con el desarrollo de sistemas ópticos de precisión como láseres, cámaras CCD o foto-detectores, y que es muy útil en el estudio de materiales en forma de película delgada, es el de las técnicas magnetoópticas basadas en el efecto Kerr. Se describirá más adelante esta técnica aplicada a la medida de ciclos de histéresis.

Por último se describe aquí una técnica de gran utilidad para la determinación de procesos de imanación: la medida de magnetorresistencia anisótropa.

### 2.3.1. Técnicas inductivas: el magnetómetro *SQUID*

El magnetómetro SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) es un dispositivo de medida muy común hoy en día en los laboratorios de Magnetismo y que está basado en la tecnología de uniones tipo *Josephson* en anillos superconductores. La precisión en la medida de la imanación, en torno a  $10^{-7}$  emu, lo hace de especial utilidad para el estudio del magnetismo en materiales en forma de película delgada.

#### 2.3.1.1 Fundamentos del *SQUID*

El elemento principal que constituye este magnetómetro [8] es un anillo superconductor cerrado mediante una unión *Josephson*. Se detallan a continuación algunos conceptos referidos a este elemento.

##### a) Anillo superconductor

Un material superconductor es aquel que es capaz de conducir la electricidad sin resistencia, es decir, sin disipación de energía y que expulsa las líneas de campo magnético de su interior. Los superconductores están caracterizados por un diagrama de fases tridimensional, como el mostrado en la figura 2.3.1, que determina tres parámetros críticos: la temperatura  $T_c$ , la corriente  $J_c$  y el campo  $H_c$  [9]. Para valores de la temperatura, la corriente, o el campo externo superiores a los críticos, el material no se comporta como superconductor, y por tanto, presenta resistencia y permite la entrada de líneas de campo magnético en su interior.

Si se construye un anillo con un material superconductor se encuentra un interesante efecto que consiste en la cuantización del flujo magnético en su interior [10]. Supongamos que por encima de la temperatura crítica  $T_c$  se aplica un campo magnético externo al anillo. Como el material está en su estado conductor normal, el campo magnético penetrará en el interior. Si ahora se enfría el sistema por debajo de  $T_c$ , el material comenzará a generar corrientes de inducción en su superficie para expulsar el campo en su interior. Estas corrientes, debido a que la resistencia es nula, persistirán

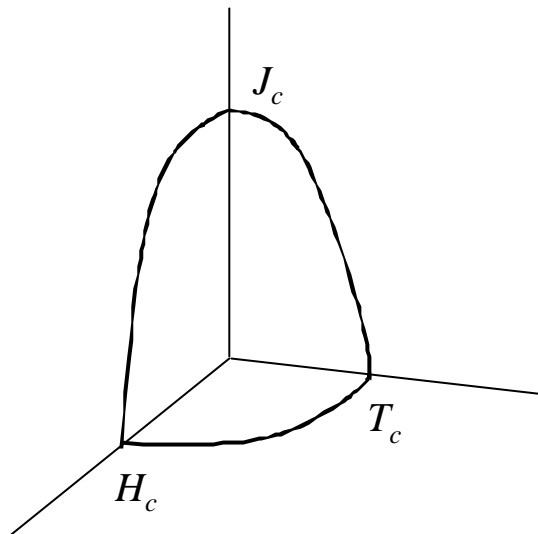


Figura 2.3.1. Diagrama de fases de un superconductor

indefinidamente aun cuando el campo externo se retire. Así, en el interior del anillo quedarán “atrapadas” algunas líneas de campo, es decir, habrá un cierto flujo magnético. La característica fundamental de este flujo es que está cuantizado en unidades de flujo magnético llamadas fluxones, o fluxoides, de magnitud:

$$\phi_0 = h/2e = 2.07 \cdot 10^{-15} \text{ Wb}$$

**b) Uniones Josephson**

Una unión *Josephson* es un tipo de unión débil que consiste en un material aislante muy delgado, menor de  $10^{-5}$  cm, que cierra un circuito superconductor, como pueda ser un anillo. *Josephson* demostró en 1962 que por efecto túnel podían atravesar esta unión pares de *Cooper* de un parte de la unión a la otra. Los pares de *Cooper* son pares de electrones predichos en la teoría BSC de superconductividad y que serían el equivalente a las cuantos elementales que describen otras propiedades de los materiales, como puedan ser los fonones o los magnones. Hay dos efectos característicos derivados del efecto Josephson:

- Efecto *Josephson* dc que consiste en la generación de una corriente continua en un circuito superconductor cerrado por una unión no polarizada

- Efecto *Josephson* ac que consiste en la generación de una corriente alterna de frecuencia  $\omega=2eV/h$  cuando se aplica un voltaje  $V$  continuo a la unión, es decir, cuando se polariza la unión.

El principal efecto que tiene la implementación de una unión *Josephson* en un circuito superconductor es la reducción del valor de la corriente crítica  $J_c$ .

### 2.3.1.2 Descripción del dispositivo

El *SQUID* utilizado en este trabajo es un magnetómetro tipo RF *Quantum Design* modelo MPMS [11]. En este tipo de magnetómetros, el anillo superconductor contiene una sola unión Josephson, a diferencia de otros que contienen dos, y está acoplado inductivamente a dos circuitos (ver figura 2.3.2). El primer circuito es un circuito LC que trabaja en corriente alterna en régimen cercano a su frecuencia de resonancia. La misión de este circuito acoplado, o circuito tanque, es mantener permanentemente al anillo, mediante la amplitud de corriente RF adecuada, en un estado de transición superconductor-conductor. De esta manera la impedancia del circuito RF cambia periódicamente. El segundo circuito está constituido por una bobina detectora formada por cuatro espiras en serie-oposición donde va emplazada la muestra. Los movimientos de la muestra en el interior de estas bobinas generan por inducción un voltaje Lenz en el circuito que crea un campo en las proximidades del anillo. Este campo adicional, creará una impedancia adicional en el circuito LC que se registrará mediante una variación de voltaje. Este voltaje será un múltiplo de  $\phi_0$  y es en última instancia el que proporciona la medida de la imanación de la muestra.



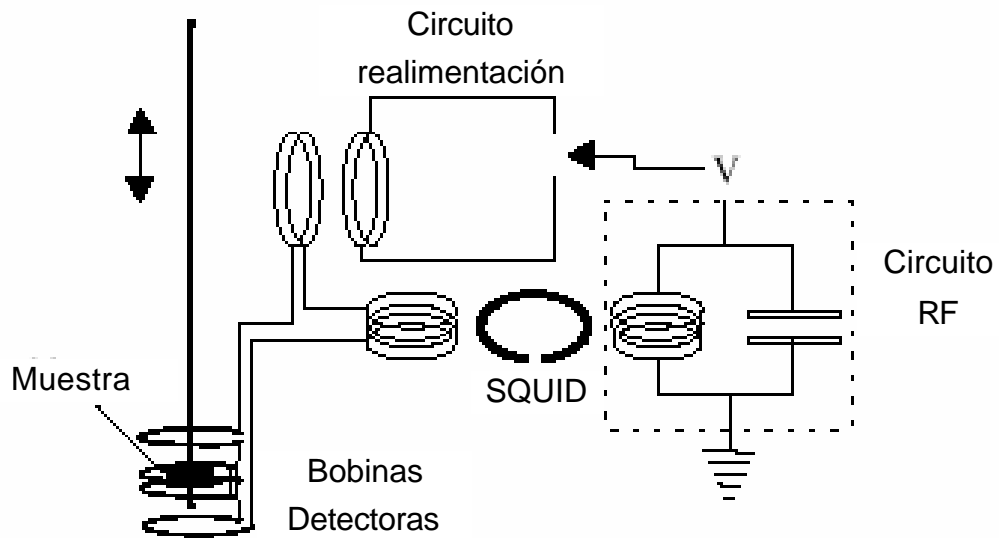


Figura 2.3.2. Esquema del dispositivo de medida SQUID.

El SQUID empleado en este trabajo dispone de una cámara para la muestra en la que la temperatura se puede variar en un rango comprendido entre 1.7 K y 400 K. Para la aplicación de campo magnético se dispone de unas bobinas superconductoras. El máximo campo aplicado posible es 5 T y la precisión es de aproximadamente  $2 \cdot 10^{-4}$  T. El equipo dispone, además de los portamuestras convencionales, de un portamuestras especial para medir resistencia por el método de las cuatro puntas.

### 2.3.2. Técnicas magneto-ópticas: el efecto *Kerr*

Las ecuaciones de Maxwell de la electrodinámica estudian la propagación de la radiación electromagnética tanto en el vacío como en un medio material. Estas ecuaciones permiten predecir el comportamiento de los campos electromagnéticos en interacción con la materia. Asimismo, hacen posible el conocimiento de las propiedades electromagnéticas de la materia a través del análisis de los cambios que produce dicha interacción en la radiación electromagnética. Por tanto las ecuaciones de Maxwell constituyen una valiosísima herramienta para el estudio íntimo de la materia tanto a nivel microscópico como macroscópico. En este sentido, el efecto *Kerr* magneto-óptico proporciona un instrumento para el estudio de un material magnético.

El efecto *Kerr* magneto-óptico [12] consiste en la alteración del estado de polarización de un haz de luz linealmente polarizada incidente en un material magnético tras su reflexión en la superficie. Dicha alteración conlleva un cambio de elipticidad, (efecto que aparece por el hecho de tratarse de una reflexión en una superficie dieléctrico-metal), y una cierta rotación del plano de polarización respecto a los del haz incidente originada por la interacción entre el campo eléctrico de la radiación incidente y la imanación presente en el material magnético. Dicha rotación es proporcional al valor de la imanación y se expresa matemáticamente mediante el siguiente término de interacción [13]:

$$\text{rotación} \sim \mathbf{M} \times \mathbf{E} \quad [2.5]$$

donde  $\mathbf{M}$  es el vector de imanación del material magnético y  $\mathbf{E}$  ( $E_x, E_y, E_z$ ) es el vector campo eléctrico de la radiación incidente.

El efecto *Kerr* es, en principio, observable en cualquier configuración de imanación y radiación incidente. En la práctica se eligen configuraciones sencillas que simplifican los cálculos y la interpretación de los resultados. Existen básicamente tres configuraciones para la imanación (longitudinal, transversal y polar) y dos polarizaciones posibles (luz s-polarizada y luz p-polarizada), que se describirán a continuación.

Se define el *plano de incidencia* como el plano formado por el vector  $\mathbf{k}$  del campo incidente y la normal al plano de la muestra. La luz incidente, linealmente polarizada, puede ser s- polarizada o p- polarizada, dependiendo de si es perpendicular al plano de incidencia o paralela a él, respectivamente, como se muestra en la figura 2.3.3.

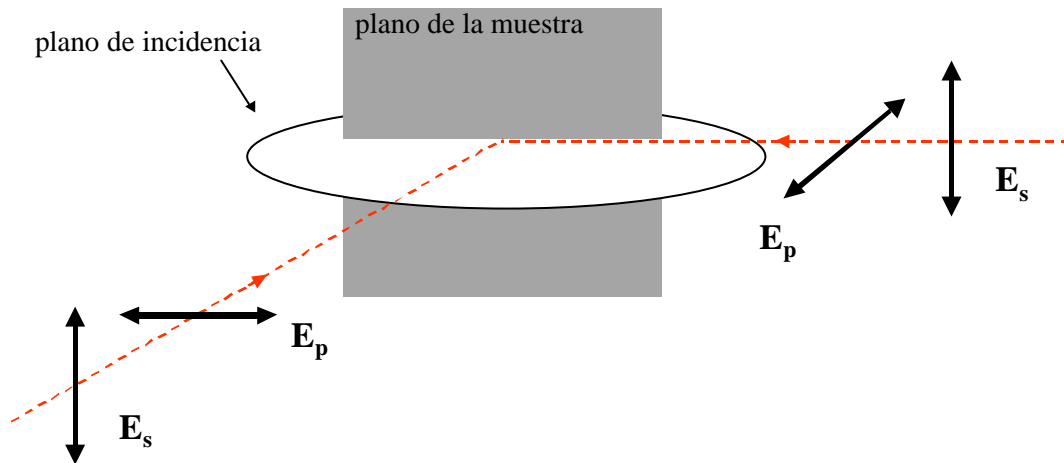


Figura 2.3.3 Esquema de los vectores de polarización incidentes en el plano de la muestra

Dependiendo de la orientación de la imanación en la muestra se definen las siguientes configuraciones, esquematizadas en la figura 2.3.4:

- Longitudinal: la imanación está contenida en el plano de la muestra y es paralela al plano de incidencia.
- Transversal: la imanación está contenida en el plano de la muestra y es perpendicular al plano de incidencia.
- Polar: la imanación es perpendicular al plano de la muestra.

Las condiciones en las que se han realizado todas las medidas de este trabajo son **configuración longitudinal y polarización s**. De este modo se asegura que la rotación *Kerr* medida sea exclusivamente la originada por la interacción con la componente de la imanación longitudinal.

La luz linealmente polarizada reflejada en una muestra magnética sufre una alteración en su estado de polarización, que puede ser convenientemente analizada para

obtener información sobre las propiedades magnéticas de dicho material. La existencia del efecto *Kerr* en muestras magnéticas, permite tanto la medida de ciclos de histéresis como la observación de dominios magnéticos mediante montajes ópticos bastante sencillos. En los siguientes apartados se describe el montaje experimental que se ha desarrollado en este trabajo.

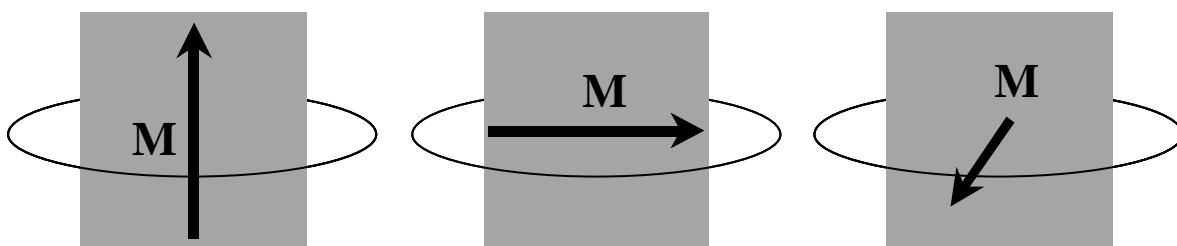


Fig. 2.3.4 Esquema de las tres configuraciones posibles en un experimento de efecto Kerr:  
a) transversal, b) longitudinal c) polar.

### 2.3.2.1 Medida de ciclos de histéresis por efecto *Kerr*

La rotación Kerr es proporcional al valor de imanación en el material, por lo que determinando el ángulo de rotación del plano de polarización podemos obtener un valor proporcional a la imanación, y variando el campo magnético aplicado obtener un ciclo de histéresis del material. Conviene destacar que, si bien esta técnica no permite determinar el valor de la imanación, sí es posible obtener ciclos de histéresis de los que obtener información sobre los procesos de imanación. La figura 2.3.5 es un esquema del montaje experimental desarrollado en este trabajo para la medida de ciclos de histéresis.

La fuente de luz (1) es un láser de He-Ne de potencia 4 mW y longitud de onda 632 nm. Esta longitud de onda es apropiada para el tipo de muestras que se han medido. Se trata de películas delgadas de no más de 100 nm de espesor en el caso de las muestras más gruesas. Suponiendo que la longitud de penetración del haz láser en la muestra es del orden de una longitud de onda, esto nos asegura que la luz incidente está penetrando en todo el material y que la información obtenida proviene de todo el espesor de la muestra. El tamaño del “spot” es de aproximadamente 2 mm de diámetro.

El haz láser atraviesa un polarizador (2) tipo Glan-Thompson que permite elegir la dirección de polarización del haz incidente sobre la muestra. La muestra se sitúa sobre un porta-muestras (3) giratorio que permite cambiar la orientación de la muestra con respecto al campo magnético aplicado. También permite colocar el “spot” en diferentes regiones de la muestra y realizar un “barrido” en las mismas condiciones de medida. Mediante las bobinas (4) se aplica el campo magnético en la dirección  $x$  (que llamaremos longitudinal, por ser la misma dirección de imanación que estamos analizando con la configuración Kerr elegida). Estas bobinas crean un campo uniforme de constante 33 Oe/A. Las bobinas (5) permiten la aplicación de un campo en la dirección  $y$ , o dirección transversal, de constante 20 Oe/A. Ambos sistemas de aplicación de campo magnético son alimentados eléctricamente mediante un amplificador bipolar KEPCO modelo BOP 50-4M (6) que suministra una corriente máxima de  $\pm 4$  A.

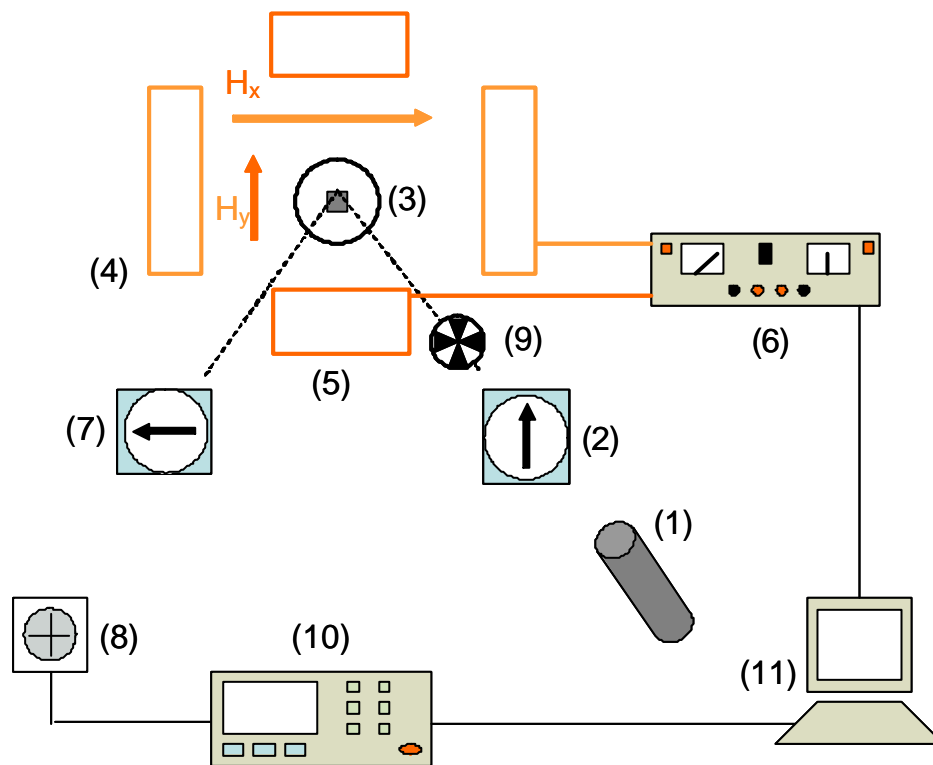


Figura. 2.3.5 Esquema del montaje experimental para la medida de ciclos de histéresis longitudinales y transversales por efecto Kerr.

El haz reflejado por la muestra pasa por un segundo polarizador (7) que está cruzado con respecto al primero con el fin de trabajar en condiciones cercanas a la de extinción. Finalmente la luz es recogida en un foto-diodo (8) que da un valor de voltaje proporcional a la intensidad que detecta. Este voltaje, que es alterno debido a la presencia de un modulador de amplitud (9) colocado detrás del primer polarizador, es leído por un amplificador “lock-in” (10) que transfiere los datos a un ordenador (11) que también controla la amplitud del campo aplicado por medio de un *software* en lenguaje LabView desarrollado especialmente para este trabajo. Debido a la configuración *Kerr* escogida, la componente de la imanación que siempre se mide es la componente según el eje  $x$  ( $M_x$ ), independientemente de la dirección del campo aplicado. Por tanto, se obtendrán:

- ciclos longitudinales  $M_x$ - $H_x$  en el caso de aplicar el campo mediante las bobinas (4)
- ciclos transversales  $M_x$ - $H_y$  en el caso de aplicar el campo mediante las bobinas (5)

Normalmente, como se verá en los estudios realizados en esta memoria, interesará medir las componentes longitudinal y transversal de la imanación para una misma configuración de campo aplicado longitudinal. Como mediante el montaje experimental descrito siempre se determina la componente longitudinal a lo largo del campo aplicado con las bobinas (4), cuando se aplica el campo con las bobinas (5) en realidad se mide la componente transversal de la imanación correspondiente a un campo aplicado formando  $90^\circ$  con la dirección longitudinal. Por ello es preciso relacionar las medidas de la siguiente manera:

$$\text{medida } H_{\text{long}}(f) \ll \text{medida } H_{\text{trans}}(f + p)$$

Debido a que la técnica *Kerr* no proporciona una medida directa de la imanación sino un valor de foto-voltaje proporcional a ella, es preciso normalizar los valores medidos para poder analizar adecuadamente los resultados. Así tanto los valores de foto-voltaje de un ciclo longitudinal como los del correspondiente ciclo transversal se normalizan al valor máximo del ciclo longitudinal correspondiente al estado saturado.

## 2.4. Magnetorresistencia anisótropa

Se define magnetorresistencia como la variación de la resistencia de un material con su estado de imanación. Todos los metales manifiestan magnetorresistencia aunque es en aquellos que presentan orden magnético en los que el efecto es mayor. En el níquel, por ejemplo, se observa un cambio en la resistencia del 2% cuando pasa del estado desimanado al estado de saturación.

La magnetorresistencia depende del ángulo formado por la de la imanación y la dirección de la corriente en el interior del material, por lo que recibe generalmente el nombre de magnetorresistencia anisótropa o AMR (del inglés *Anisotropic Magnetoresistance*). La AMR tiene su origen en la interacción spin-órbita. En un modelo de un solo ion, las nubes electrónicas que rodean a cada ion en el sólido están acopladas con el momento magnético atómico de manera que cuando éstos giran por la acción de un campo magnético “arrastran” a las órbitas.

La medida de la AMR proporciona información sobre el proceso de imanación debido a su dependencia angular[14]:

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_J = \frac{3}{2} \left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{sat} [1 - \langle \cos^2 \mathbf{J} \rangle] \quad [2.6]$$

que relaciona los valores de resistencia en el estado saturado y el estado en que la imanación forma un cierto ángulo  $\theta$  con la corriente. En el caso de que la inversión de la imanación tenga lugar a través de una rotación pura de la imanación, la magnetorresistencia sigue la siguiente ley experimental:

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right) = \frac{3}{2} \left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{sat} \left(\frac{M}{M_s}\right)^2 \quad [2.7]$$

En el caso en el que la inversión de la imanación tenga lugar mediante la nucleación de un dominio inverso, dado que la magnetorresistencia no es sensible a cambios en el sentido de la imanación, no se observarán cambios en la medida de AMR.

Experimentalmente, la medida de la resistencia se hace mediante el *método de las cuatro puntas*. Este método consiste en realizar cuatro contactos en la superficie de la muestra: a través de dos de ellos se hace circular una pequeña corriente conocida (del orden de 1 mA) y entre los otros dos se mide la diferencia de potencial. Este método asegura la medida de la resistencia de la muestra (y la resistividad, conociendo la distancia entre los puntos de contacto) eliminando la contribución que pudieran tener los hilos conductores. Normalmente los multímetros comerciales incluyen la opción *cuatro puntas*, como es el caso del multímetro modelo HP8334 utilizado en los montajes experimentales de este trabajo.

En este trabajo se han llevado a cabo básicamente dos tipos de medidas de magnetorresistencia: la medida de AMR en función de la temperatura y la medida de la MR en función del ángulo a temperatura ambiente. Para ello se han desarrollado dos montajes experimentales diferentes que se describen a continuación.

#### **2.4.1 Medida de AMR en función del ángulo a temperatura ambiente**

Para esta medida se ha desarrollado un sistema de registro simultáneo de campo magnético y de la resistencia. El montaje experimental diseñado se muestra esquemáticamente en la figura 2.3.6. La aplicación de campo se lleva a cabo mediante unas bobinas *Helmholtz* calibradas, de constante 33 Oe/A, eléctricamente alimentadas por un amplificador bipolar KEPCO modelo BOP 50-4M que suministra una corriente máxima de  $\pm 4$  A. Un multímetro modelo FLUKE 45 conectado en serie con las bobinas y el amplificador permite determinar la corriente circulante por las bobinas. El portamuestras giratorio como el descrito en el apartado anterior permite la medida de la dependencia angular de la AMR, en el plano de la muestra.

Finalmente, la toma de datos se realiza mediante un *software* en lenguaje LabView, desarrollado explícitamente para este trabajo, que interactúa con el montaje experimental aplicando el voltaje apropiado al amplificador de corriente y realizando lectura de los dos multímetros a través de una tarjeta de adquisición de datos NI-GPIB0.



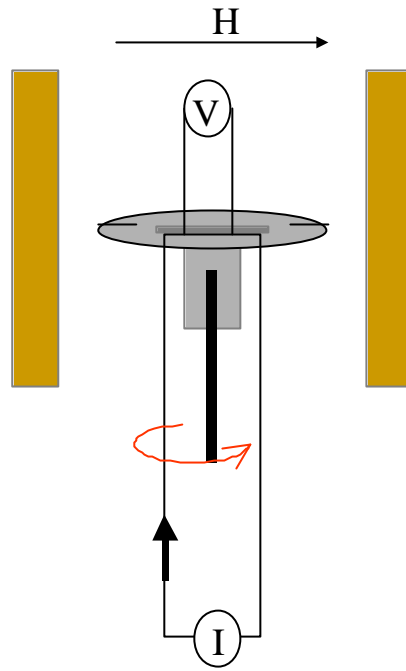


Figura. 2.3.6. Esquema del montaje experimental para la medida de la AMR

## 2.4.2 Medida de AMR en función de la temperatura

Para realizar este tipo de medidas se ha empleado la instalación del magnetómetro SQUID anteriormente descrito, aunque sin hacer uso de la medida de imanación. Los contactos eléctricos se hicieron sobre muestras de dimensiones compatibles con las dimensiones del portamuestras del SQUID.

La aplicación del campo magnético y de la temperatura es programada mediante el *software* del magnetómetro. El sistema de registro de datos de magnetorresistencia es el mismo que el empleado para la medida de la AMR en función del ángulo. En este caso el sistema registra a una velocidad de 0.2 datos/seg, adecuada a los tiempos de operación del magnetómetro SQUID. Ambos sistemas son previamente sincronizados de manera que tras la medida es posible obtener los datos temporalmente correlacionados de AMR, campo y temperatura.

## Bibliografía

- [1] J. L. Vossen y W. Kern, *Thin Films Processes*, Academic Press (1978)
- [2] R. V. Stuart et al., *J. Appl. Phys.* **40**, 2 (1969)
- [3] B.A. Movchan y A. V. Demchishin, *Phys. Met. Metall. (URSS)* 28(1969)
- [4] C. Sella, 1er Symp. Europeo sobre Pulverización Catódica (Toulouse), editado por la Société Française du Vide (1969)
- [5] B. D. Cullity, *Elements of X-Ray Diffraction*, Ed. Addison Wesley, Londres (1978).
- [6] D. B. Williams y C. B. Carter. “*Transmission Electron Microscopy*” Plenum Press, New York, 1996.
- [7] *Manual de Instrucciones del Microscopio Electrónico JEM-4000FX*.
- [8] W. W. Webb. “*Superconducting Quantum Magnetometers*”, *IEEE Trans. Mag*, vol. Mag-8, nº 1, 1972.
- [9] J.L. Vicent. “*Superconductividad*”. Editorial EUDEMA (1991)
- [10] A. Hernando, J.M Rojo. “*Física de los Materiales Magnéticos*” Ed. Síntesis, S.A. 2001.
- [11] Manual de instrucciones del magnetómetro Quantum Design MPMS.
- [12] Reitz and Miltdford. “*Fundamentos de la Teoría Electromagnética*” Unión Tipográfica. Ed. Hispano Americana.
- [13] J. Zak, E.R. Moog, C. Liu, S. D. Bader. “*Fundamental magneto-optics*”, *J. Appl. Phys.* 68 (8), 1990
- [14] B.D. Cullity, “*Introduction to magnetic Materials*”, Addison-Wesley Publishing Company, 1972.

### Caracterización estructural de muestras

Las características estructurales de los sistemas magnéticos en general, suelen tener una gran repercusión en sus propiedades magnéticas. En el caso de los sistemas con anisotropía de canje, debido al carácter interfacial de esta interacción, la influencia de las propiedades estructurales de la intercara de contacto entre fases FM y AF y las de las propias fases, es enorme. En concreto, algunas de las características estructurales de la fase AF, como puedan ser la textura cristalina y el tamaño de grano, desempeñan un papel decisivo en la respuesta magnética de la fase FM [1].

Son numerosos los trabajos realizados sobre la influencia que la estructura cristalina tiene en la anisotropía de canje. Entre ellos se encuentran los estudios de Berkowitz et al. [2] en sistemas policristalinos, en los que se comprueba que es posible controlar la magnitud del campo de canje mediante la modificación de la microestructura cristalina de los granos AF. Nikitenko et al. [3] han estudiado la influencia que la presencia de defectos en muestras monocristalinas NiFe/NiO tiene en el mecanismo de inversión de la imanación en bicapas FM/AF acopladas en canje. Los trabajos de I. K. Schuller et al. [4] realizados en películas policristalinas de Fe crecidas sobre (110) MnF<sub>2</sub> estudian la asimetría de los ciclos de histéresis en relación con la microestructura del MnF<sub>2</sub>. R. P. Michel et al. [5] han hecho un estudio comparativo de sistemas monocristalinos y policristalinos con anisotropía de canje, encontrando importantes diferencias en las propiedades de anisotropía de canje.

Los sistemas magnéticos estudiados en esta memoria son películas delgadas nanocristalinas fabricadas, expresamente para este estudio, mediante la técnica de pulverización catódica descrita en el capítulo 2. Todas las muestras se han fabricado en la instalación de *sputtering* existente en el Instituto de Magnetismo Aplicado.

En este capítulo se detallarán primeramente las condiciones de fabricación de los materiales constituyentes de las muestras. A continuación se describirán los resultados de su caracterización estructural.

Las técnicas empleadas para tal fin son la Difracción de Rayos X o XRD (del inglés X Ray Diffractometry) y la Microscopía Electrónica de Transmisión o TEM (del inglés Transmission Electron Microscopy).

Las muestras fabricadas se pueden clasificar en tres grupos atendiendo a su número de capas: **capas individuales, bicapas y pentacapas**. Las capas individuales son metales ferromagnéticos y óxidos antiferromagnéticos que se fabricaron como muestras de control. Sobre estas muestras se ha hecho el estudio del ritmo de crecimiento de cada material así como la caracterización estructural mediante XDR y TEM. Las propiedades estructurales encontradas en las capas individuales son atribuibles a cada una de las capas constituyentes de las bicapas y pentacapas cuando son fabricadas en las mismas condiciones. Las bicapas están constituidas por una capa de material ferromagnético (FM) y otra de material antiferromagnético (AF). Las pentacapas están formadas por dos bicapas FM/AF separadas por una capa de cobre.



## 3.1 Fabricación de muestras

Las muestras fueron depositadas sobre sustratos de vidrio. Se han utilizado básicamente dos tipos de material atendiendo a su comportamiento magnético: metales ferromagnéticos y óxidos antiferromagnéticos. A continuación se describen cada uno de ellos así como las condiciones de *sputtering* bajo las que se han depositado.

- **METALES FERROMAGNÉTICOS**

- $Ni_{80}Fe_{20}$  o *Permalloy* (nombre comercial de la aleación) depositado mediante *sputtering* magnetrón RF. El blanco a partir del cual se depositó la aleación es un blanco compuesto\*.
- $Ni$ , depositado mediante *sputtering* magnetrón RF a partir de un blanco comercial de pureza 99.9%

- **ÓXIDOS ANTIFERROMAGNÉTICOS**

- $Ni_{50}O_{50}$  Este material se depositó mediante *sputtering* magnetrón RF a partir de una pastilla preparada mediante prensado del material en polvo con la composición indicada. Las condiciones de *sputtering* de este óxido son las mismas que las de la deposición de los metales ferromagnéticos.
- $Ni-O$ ,  $Co-O$  y  $Co-Ni-O$  Estos óxidos fueron fabricados mediante la técnica conocida como *sputtering reactivo*, citada en el capítulo 2, a partir de blancos comerciales de Co y Ni

La tabla 3.1 contiene las condiciones de *sputtering* en las que se ha fabricado cada material. Se indican en ella la presión inicial de la cámara de vacío  $P_{in}$ , la presión de oxígeno molecular  $P_{O_2}$  en el caso de *sputtering* reactivo, la presión de argón introducida  $P_{Ar}$  (en el caso de *sputtering* reactivo se indica la presión sobre  $P_{O_2}$  o

---

\*La composición de las películas obtenidas a partir de este blanco ha sido medida mediante EDS (Espectroscopia de Dispersión de Electrones) en el SEM del Centro de Microscopía Electrónica "Luis Bru" de la UCM.

sobrepresión), la temperatura  $T$  de la cámara, el voltaje  $V$  entre placas y la potencia  $P$  suministrada por la fuente de alimentación.

<i>Material</i>	$P_{in}$ (mbar)	$P_{O_2}$ (mbar)	$P_{Ar}$ (mbar)	$T(^{\circ}C)$	$V(V)$	$P(W)$
<i>Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>, Ni, Ni<sub>50</sub>O<sub>50</sub></i>	$10^{-7}$	-	$5 \times 10^{-3}$	28	280	300
<i>Ni-O, Co-O, Co-Ni-O</i>	$10^{-7}$	$2 \times 10^{-3}$	Sobrepresión: $5 \times 10^{-3}$	28	280	300

Tabla 3.1 Condiciones de fabricación de los materiales depositados.

El material utilizado como sustrato de los materiales depositados es el vidrio. Este material amorfo se escogió para evitar el crecimiento preferencial que se produce sobre otro tipo de sustratos cristalinos como el silicio. En este caso se trataba de inducir el crecimiento nanocristalino de los materiales tanto ferromagnéticos como antiferromagnéticos. Así se emplearon láminas comerciales de vidrio de espesores 1 mm y 150  $\mu$ m. La Tabla 3.2 compila la nomenclatura y características de todas las muestras fabricadas.

	<i>Nombre</i>	<i>Estructura y composición</i>	<i>Substrato</i>
<i>Capas individuales</i>	<i>PY1*</i>	<i>Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (20 nm)</i>	<i>Vidrio 1 mm</i>
	<i>PY2*</i>	<i>Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (40 nm)</i>	
	<i>COO1</i>	<i>Co-O (20 nm)</i>	
	<i>COO2</i>	<i>Co-O (40 nm)</i>	
	<i>CONIO1</i>	<i>Co-Ni-O (10 nm)</i>	
	<i>CONIO2</i>	<i>Co-Ni-O (20 nm)</i>	
	<i>CONIO3</i>	<i>Co-Ni-O (40 nm)</i>	
	<i>NIO60</i>	<i>Ni<sub>50</sub>O<sub>50</sub> (10 nm)</i>	
	<i>NIO240</i>	<i>Ni<sub>50</sub>O<sub>50</sub> (70 nm)</i>	<i>Vidrio 150 mm</i>
	<i>NIO1</i>	<i>Ni-O (100 nm)</i>	
	<i>NIO2</i>	<i>Ni-O (20 nm)</i>	
	<i>NIO3</i>	<i>Ni-O (40 nm)</i>	
	<i>NI1*</i>	<i>Ni (40 nm)</i>	
	<i>NI2*</i>	<i>Ni (20 nm)</i>	
<i>NI3*</i>	<i>Ni (200 nm)</i>		
<i>NI4*</i>	<i>Ni (40 nm)</i>		

	Nombre	Estructura y composición	Substrato
Bicapas	PYC1*	$Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-O (20 nm)	Vidrio 1 mm
	PYC2	Co-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)	
	PYC3	Co-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)	
	PYC4*	$Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-O (20 nm)	
	PYC5*	$Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ Co-O (20 nm)	
	PYCN1*	Co-Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)	
	PYCN2*	Co-Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)	
	PYCN3*	$Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-Ni-O (20 nm)	
	PYCN4*	$Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ Co-Ni-O (20 nm)	
	NIOPY2*	$Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ $Ni_{50}O_{50}$ (40 nm)	
	NIOPY4*	$Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ $Ni_{50}O_{50}$ (40 nm)	
	Bicapas	NIONI1*	Ni (40 nm)/Ni-O (20 nm)
NIONI2*		Ni (40 nm)/Ni-O (40 nm)	
Pentacapas	ST1-1	Co-Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/Cu(1,5 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ Co-O (20 nm)	Vidrio 1 mm
	ST1-2	Co-Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/Cu(3 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST1-3	Co-Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/Cu(4,5 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST1-4	Co-Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/Cu(6 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST1-5	Co-Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/Cu(7,5 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (40 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST2-1	Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/Cu(1,5 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST2-2	Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/Cu(3 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST2-3	Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/Cu(4,5 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST2-4	Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/Cu(6 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-O (20 nm)	
	ST2-5	Ni-O (20 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/Cu(7,5 nm)/ $Ni_{80}Fe_{20}$ (20 nm)/ Co-O (20 nm)	

Tabla 3.2 Nomenclatura y características de las muestras fabricadas. Se señalan en color amarillo aquellas que serán estudiadas en esta memoria.

\*) Todas estas muestras fueron recubiertas por una capa de Cu de unos 1,5 nm de espesor para evitar la oxidación de los metales cuando se extraen de la cámara de vacío.

## 3.2 Caracterización estructural mediante XRD

### 3.2.1 Determinación del espesor

El control del espesor de material depositado se obtiene mediante el conocimiento del *rendimiento o ritmo de crecimiento* ( $r$ ) del blanco pulverizado en las condiciones de sputtering prefijadas. Para calcular  $r$  se fabricaron muestras de calibración, que son capas individuales del material que se va a estudiar, con distintos tiempos de deposición. Estas capas individuales se analizan mediante Difracción de Rayos X a bajo ángulo.

En la figura 3.2.1 se muestra como ejemplo un diagrama de difracción a bajo ángulo de una de las capas individuales de calibración. A partir del mismo se calculan los valores del espesor correspondiente a los distintos órdenes de difracción,  $d_1$ ,  $d_2$ ,  $d_3$ , etc, mediante la ley de Bragg.

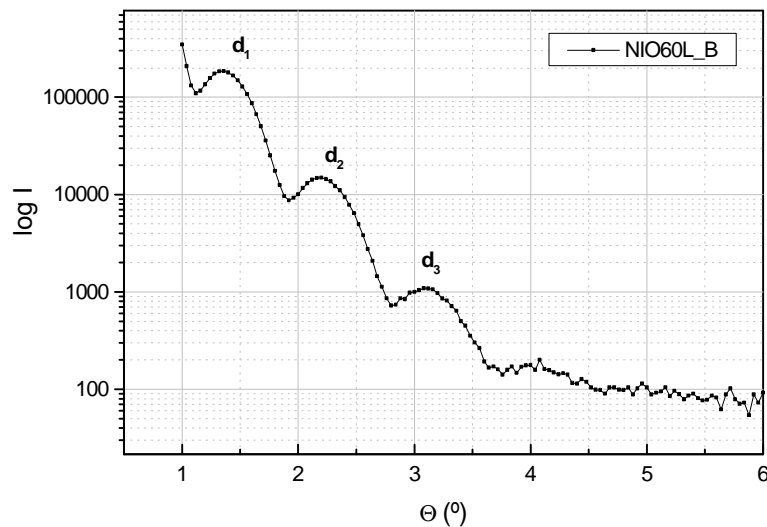


Figura 3.2.1 Diagrama de difracción de rayos X en escala logarítmica a bajo ángulo correspondiente a una muestra de calibración de Ni-O



Para cada orden de difracción se calcula el siguiente valor:

$$\text{sen}Q_n = \lambda/2d_n \quad [3.1]$$

donde  $\lambda = 1.5409 \text{ \AA}$  es la longitud de onda de emisión del difractómetro empleado. Estos valores se ajustan a una recta, de cuya pendiente se obtiene el espesor de material realmente depositado para cada tiempo de deposición. Finalmente, se calcula el valor medio para todos los tiempos de deposición, que es el rendimiento  $r$ . En la tabla 3.2 se dan los valores calculados de esta manera para todos los materiales depositados:

<i>Material</i>	<i>Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub></i>	<i>Ni</i>	<i>Co-O</i>	<i>Ni-O</i>	<i>Ni<sub>50</sub>O<sub>50</sub></i>	<i>Co-Ni-O</i>
<i>r (Å/s)</i>	0.9	0.7	0.3	0.3	0.05	0.4

Tabla 3.2 Ritmo de crecimiento,  $r$ , de los materiales fabricados determinados a partir de muestras de calibración.

### 3.2.2 Determinación del tamaño de grano

La primera estimación del tamaño medio de los cristales previa al estudio que se ha realizado con el TEM, se hizo mediante Difracción de rayos X a alto ángulo en las capas individuales. Se ha supuesto el mismo tamaño de grano cuando se depositan los mismos espesores en las bicapas y las pentacapas, bajo las mismas condiciones de *sputtering*. Mediante esta técnica, no tan potente como la difracción de electrones, se estima la dimensión de los cristales en la dirección transversal al plano de la película.

En la figura 3.2.2 se representa un detalle del diagrama de difracción de la muestra CO01 (ver tabla 3.1) correspondiente al único pico de intensidad que aparece en el diagrama. Este hecho se da en todas las muestras estudiadas y es un indicio de una muy baja cristalinidad en las mismas. En algunos casos los picos están tan poco definidos que sólo se ha podido establecer una estimación de la cota superior del tamaño de grano dentro de la resolución de la técnica.

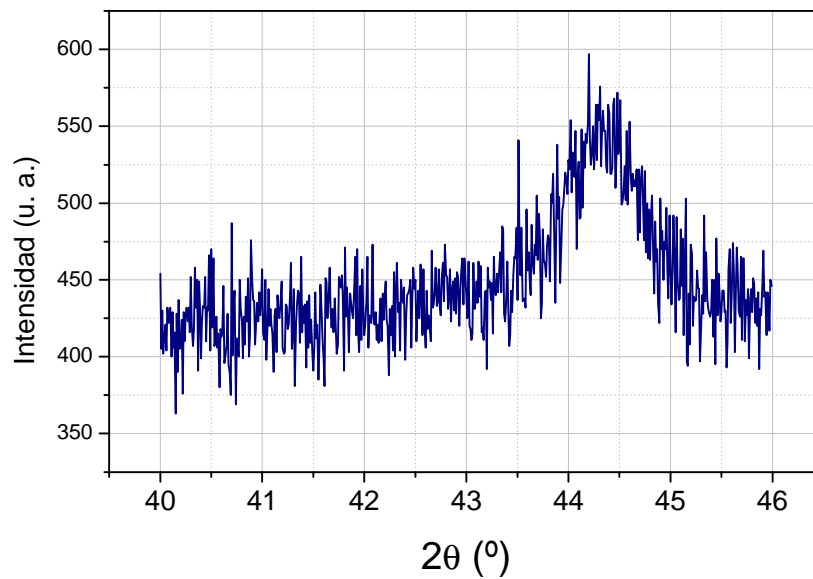


Figura 3.2.2. Pico del diagrama de difracción de rayos X a alto ángulo correspondiente a la muestra CO01.

El tamaño de grano,  $\tau$  se calcula a partir de la fórmula de Scherrer (ver capítulo 2) cuya expresión es:

$$t = \frac{0.9l}{\Delta(2q)\cos q} \quad [3.2]$$

donde  $\Delta$  es la anchura del pico a mitad de altura y  $\theta$  es la posición angular del máximo de difracción.

Así se han calculado, y en algunos casos tan sólo estimado, los valores del tamaño transversal medio de los cristales para cada material en muestras de espesores 20 nm y 40 nm. Los resultados, en la tabla 3.3, muestran en todos los casos dimensiones en el rango de los nanómetros, siendo mayores los cristalitos en el caso de los metales. Para los óxidos en las muestras de 20 nm tan sólo se puede afirmar que el tamaño medio de grano es menor que 5 nm. Las dimensiones son siempre mayores en el caso de muestras de espesor 40 nm.

	<i>espesor 20 nm</i>	<i>espesor 40 nm</i>
$Ni_{80}Fe_{20}$	37 nm	60 nm
Ni	15 nm	30 nm
Co-O	< 5 nm	18 nm
Ni-O	< 5 nm	40 nm
$Ni_{50}O_{50}$	< 5 nm	< 5 nm

Tabla 3.3 Tamaño de grano medio de los materiales fabricados para dos espesores diferentes.

Estos resultados son la primera manifestación del carácter nanocristalino de los sistemas estudiados que tanta repercusión va a tener en las propiedades magnéticas como se verá a lo largo de los próximos capítulos. Además el hecho de que el tamaño de los cristales aumente con el espesor de la capa crecida indica en casi todos los casos un crecimiento columnar de los cristales. Los valores aquí obtenidos se compararán con los que proporcione el estudio realizado por microscopía electrónica de transmisión.

### 3.3 Caracterización estructural mediante TEM

El carácter nanocristalino de las muestras fabricadas se manifiesta de manera relevante en los resultados que se presentan en esta memoria. En este aspecto, el conocimiento de la nanoestructura y, en particular, del tamaño medio de los nanocristales, ha sido decisivo en la interpretación de algunos de los resultados más importantes. Es especialmente interesante la observación de la frontera de grano las capas antiferromagnéticas. La diferencia estructural entre frontera e interior de grano que se da en estos óxidos nanocristalinos tiene consecuencias interesantísimas en el magnetismo de los sistemas estudiados, que se reflejan a escala macroscópica. Por todo ello ha sido fundamental el uso del microscopio electrónico de transmisión

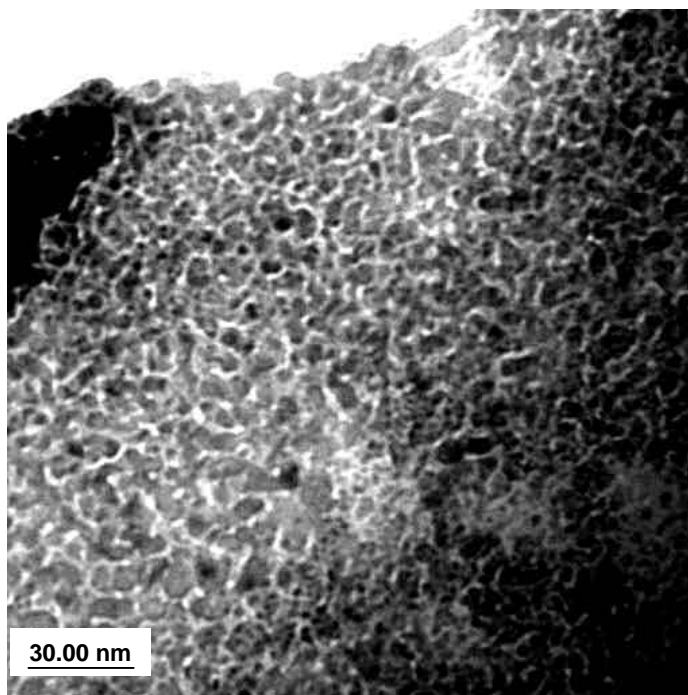
El estudio estructural mediante microscopía de transmisión de las muestras de este trabajo está basado en la obtención de imágenes. Existen esencialmente dos modos de operación en el TEM: el que permite obtener una imagen de contraste y el que ofrece un patrón de difracción. Este segundo modo sólo se ha utilizado de forma funcional para seleccionar imágenes en *campo claro* o imágenes de *campo oscuro*.

Se han hecho dos tipos de estudio en las muestras según fueran éstas capas individuales o bicapas. Así, las capas individuales se han preparado para su *observación en el plano*, según el método descrito en el capítulo 2. La observación en el plano ha permitido estimar la distribución de tamaños de grano así como su forma, aspecto y disposición en las direcciones que definen el plano de la muestra. Este plano es especialmente importante en los sistemas estudiados en este trabajo ya que se trata de sistemas en interacción a través de la superficie de contacto entre las capas FM/AF. Por ello, se ha considerado fundamental el estudio particular de las capas individuales.

La *observación en sección transversal* se ha realizado en muestras FM/AF. En este caso este método permite la observación de las intercaras, el análisis del tipo de crecimiento cristalino dentro de una capa y de una capa sobre otra, así como la determinación del tamaño de grano en la dirección normal al plano de las muestras. Estos resultados se compararán con los obtenidos por difracción de rayos X.

### 3.3.1 Óxido de cobalto

El primero de los óxidos antiferromagnéticos estudiados es un óxido de cobalto fabricado por *sputtering* reactivo. La figura 3.3.1 corresponde a una imagen de contraste en campo claro de una zona delgada de la muestra de óxido de cobalto CO01 (ver tabla 3.1). Esta imagen exhibe una estructura constituida por granos nanométricos con simetría cuasi-esférica, con una distribución homogénea de orientaciones que se deduce de una distribución homogénea de contrastes sobre la imagen.



*Figura 3.3.1 Imagen TEM de contraste en campo claro de una muestra de Co-O La imagen está ligeramente fuera de foco para realzar el contraste de fase en las fronteras de grano*

El aspecto más importante que cabe destacar en esta imagen es la diferencia de contraste que se observa en los límites que separan un cristalito de otro, es decir, la **frontera de grano** aparece perfectamente definida alrededor de cada uno de los granos. Se ha estimado sobre esta imagen un tamaño medio de las fronteras de unos **0,5 nm**. Esta imagen está ligeramente fuera de foco, lo que realza el contraste de fase entre la frontera de grano y el grano. El contraste de fase es sensible a variaciones estructurales de dimensiones atómicas en la muestra, por lo que se deduce de la imagen que existe una cierta diferencia estructural o composicional entre la frontera de grano y el grano. Este primer resultado es, como se verá en el siguiente capítulo, de gran importancia para la interpretación de algunos resultados magnéticos.

Sobre la misma zona de la muestra se tomó una imagen de contraste en campo oscuro que aparece en la figura 3.3.2. Esta imagen permite observar mejor la forma de los cristalitos y determinar con mayor precisión su tamaño aunque en ella no se observa la frontera de grano.

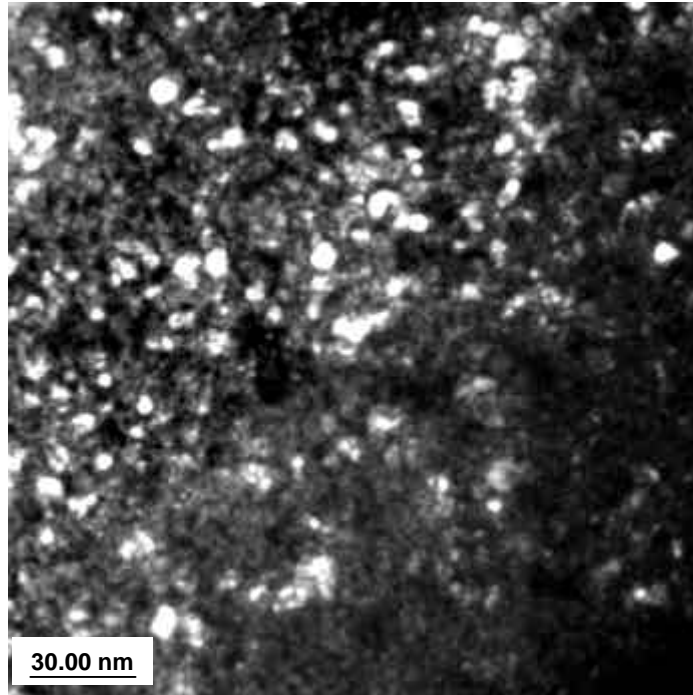


Figura 3.3.2 Imagen TEM de contraste en campo oscuro de una muestra de Co-O.

Sobre esta imagen se ha hecho un análisis de la distribución de tamaños de grano mediante la medida de los diámetros de  $N$  granos, elegidos aleatoriamente para el estudio del tamaño de grano. Los resultados se han ajustado a una distribución log-normal de tamaños de grano. Este tipo de distribución es frecuentemente encontrada en muestras policristalinas fabricadas mediante *sputtering*[6]

La figura 3.3.3 muestra los resultados del estudio de tamaños de grano en un histograma sobre el que se ha representado la curva resultante del ajuste numérico a una expresión de la forma:

$$y = y_0 + \frac{A}{\sqrt{2psD}} e^{-\frac{[\ln \frac{D}{D_0}]^2}{2s^2}} \quad [3.3]$$

Los parámetros resultantes del ajuste numérico son:

$$y_0 = 2 \pm 1$$

$$s = 1.9 \pm 0.3$$

$$D_0 = 3,7 \pm 0.1 \text{ nm}$$

$$A = 7.0 \pm 1.0 \text{ nm}$$

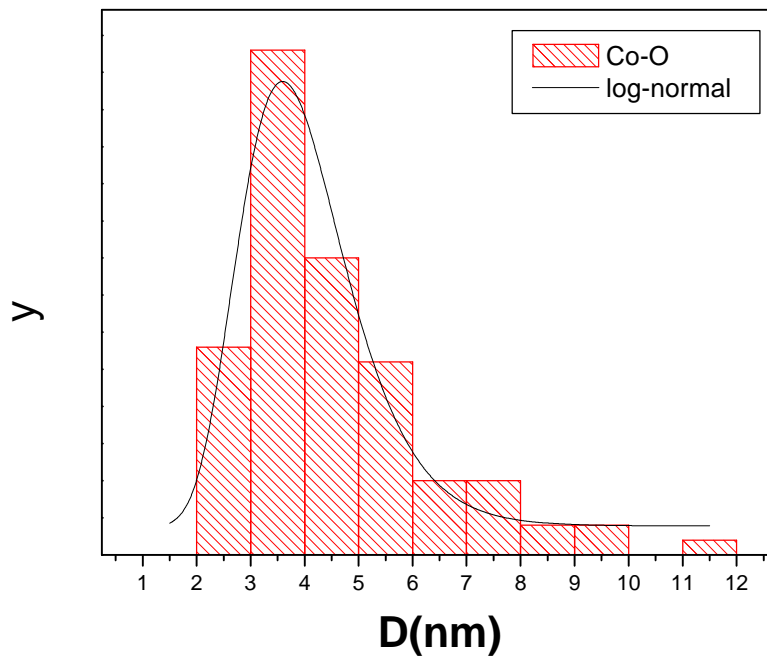
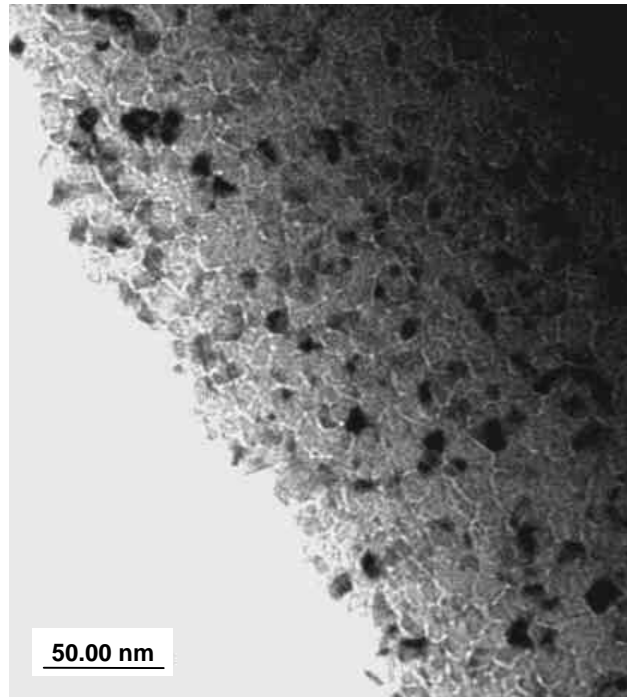


Figura 3.3.3. Distribución de tamaños de grano presente en la muestra de Co-O. Sobre el histograma se ha representado la distribución log-normal a la que se ajustan los datos experimentales.

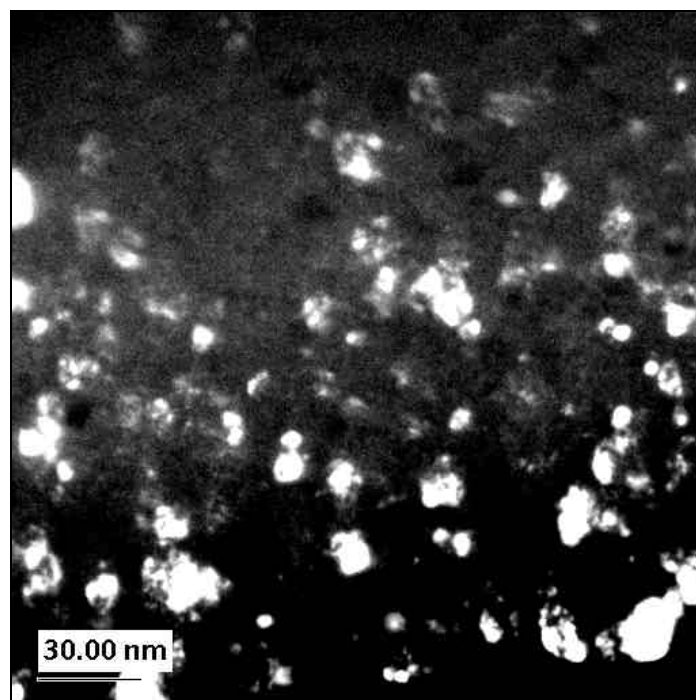
### 3.3.2 Óxido de níquel

El segundo de los óxidos estudiados, un óxido de níquel obtenido por *sputtering* a partir de una pastilla con composición nominal  $\text{Ni}_{50}\text{O}_{50}$ , también presenta una estructura de granos cuasi-esféricos de dimensiones nanométricas con una distribución uniforme de orientaciones .

En la figura 3.3.4 se observa una imagen en campo claro, ligeramente fuera de foco de una zona delgada de la muestra NIO240 (ver tabla 3.1), en la que de nuevo hay un gran contraste entre las zonas correspondientes al borde de grano y las correspondientes al interior de grano. El tamaño medio de frontera está de nuevo en torno a 0,5 nm.



*Figura 3.3.4 Imagen TEM de contraste en campo claro de una muestra de Ni-O La imagen está ligeramente fuera de foco para realzar el contraste de fase en las fronteras de grano*



*Figura 3.3.5 Imagen TEM de contraste en campo oscuro de una muestra de Ni-O*



El estudio de la distribución de tamaños de grano se ha hecho sobre una imagen en campo oscuro obtenida sobre la misma zona de la muestra (ver figura 3.3.5). De nuevo se ajustan los datos a una distribución log-normal de la forma de la ecuación [3.3] con los siguientes parámetros de ajuste:

$$\begin{array}{ll} y_0 = 2 \pm 1 & s = 2,1 \pm 0,4 \\ D_0 = 5,0 \pm 0,4 \text{ nm} & A = 5,0 \pm 1,0 \text{ nm} \end{array}$$

En la figura 3.3.6 se han representado en un histograma los datos experimentales y sobre ellos la curva correspondiente al ajuste numérico.

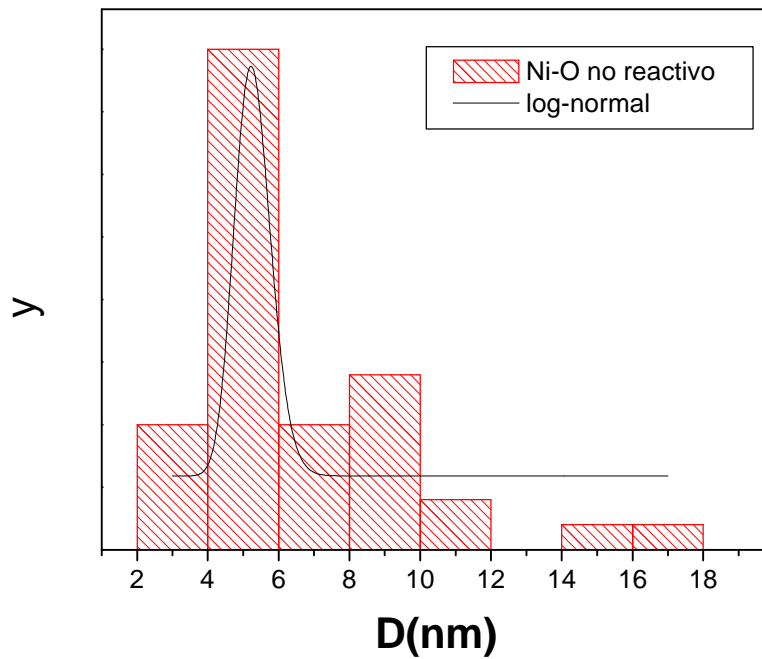


Figura 3.3.6. Distribución de tamaños de grano en la muestra de Ni-O. Sobre el histograma se ha representado la distribución log-normal a la que se ajustan los datos experimentales.

### 3.3.3 Bicapa $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ / Co-O

La figura 3.3.7 corresponde a una imagen en campo claro de la muestra PYC4 (ver tabla 3.1). En esta imagen en sección transversal se distinguen perfectamente los dos materiales depositados que quedan claramente definidos por la intercara que los delimita. La definición de dicha intercara ha sido confirmada por microanálisis de rayos X y análisis de microdifracción realizados sobre diferentes zonas de la muestra.

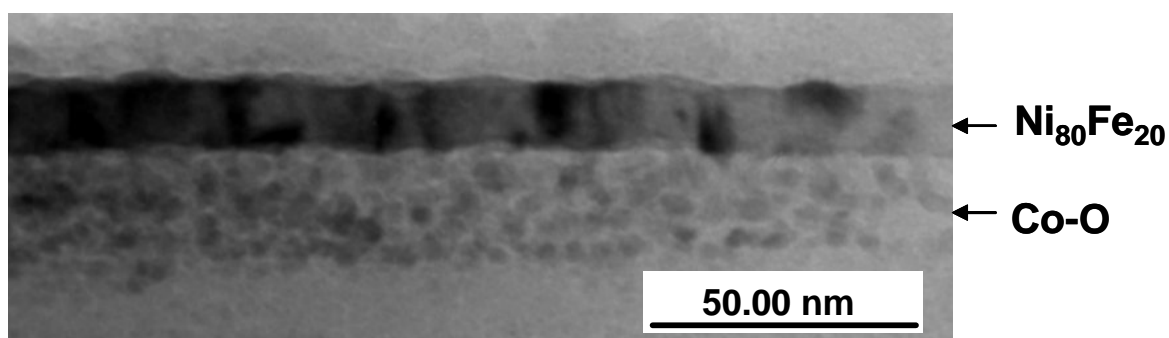


Figura 3.3.7 Imagen TEM de contraste en campo claro de la bicapa  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  / Co-O en sección transversal.

La capa inferior en la figura 3.3.7 corresponde al óxido de cobalto depositado sobre el sustrato de vidrio. El Co-O de nuevo exhibe una distribución uniforme de granos nanométricos de geometría cuasi-esférica, confirmando los resultados anteriores. Esta capa tiene un espesor medio de 29 nm medido sobre la imagen que está en concordancia con el calculado mediante la técnica de difracción de rayos X. Las dimensiones transversales de los granos de nuevo presentan un valor medio en torno a 4 nm. Este valor confirma el estudio que se hizo previamente mediante difracción de rayos X (ver apartado 3.2) en el que, con la resolución de la técnica, se obtenía un tamaño lateral medio de grano menor de 5 nm (ver tabla 3.3).

La capa superior corresponde al *Permalloy* con un espesor medio, de 22 nm, medido sobre la imagen, de nuevo en concordancia con el calculado por medio de  $\lambda$  (~20 nm) ligeramente menor. La estructura que presenta el *Permalloy* es completamente diferente a la del óxido: se trata de una estructura de crecimiento columnar de granos con un tamaño lateral medio de 14,2 nm. Estos cristalitos crecen sobre el óxido de cobalto no epitaxialmente y en algunos casos tienen la altura del espesor de la capa (~20 nm). Mediante XDR esta dimensión se estimaba un poco mayor.

La imagen en campo oscuro (figura 3.3.8) permite observar con más claridad la forma y distribución de granos en la muestra y sobre ella se han medido las dimensiones de éstos.

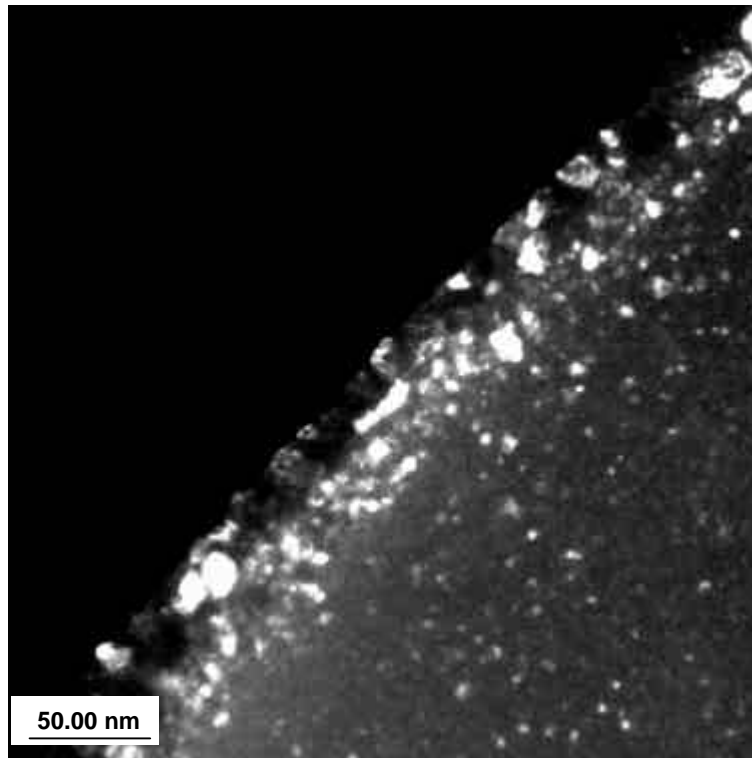


Figura 3.3.8. Imagen TEM de contraste en campo oscuro de la bicapa  $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$  en sección transversal.

### 3.3.4 Bicapa $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ / Ni-O

La segunda de las bicapas AF/FM estudiadas es la correspondiente a la muestra NIOPY2 (ver tabla 3.1). La figura 3.3.9 muestra una imagen en campo claro de esta muestra. Esta imagen no es tan nítida como la correspondiente a la otra bicapa (figura 3.3.7) y presenta un aspecto “desenfocado”. Esto es debido a la presencia en la muestra de un material dieléctrico como el vidrio del sustrato. Durante la iluminación de la muestra la superficie del vidrio se carga electrostáticamente creándose una distribución de cargas que se desplazan dentro del propio campo eléctrico del haz electrónico. Así durante la toma de una imagen resultaba prácticamente imposible mantener fija la muestra ni siquiera durante el tiempo de exposición. Este hecho dificultó en muchas ocasiones el trabajo de microscopía aunque finalmente se obtuvieron imágenes con suficiente definición como para observar las intercaras y poder medir las dimensiones de los cristalitos así como los espesores de las capas.

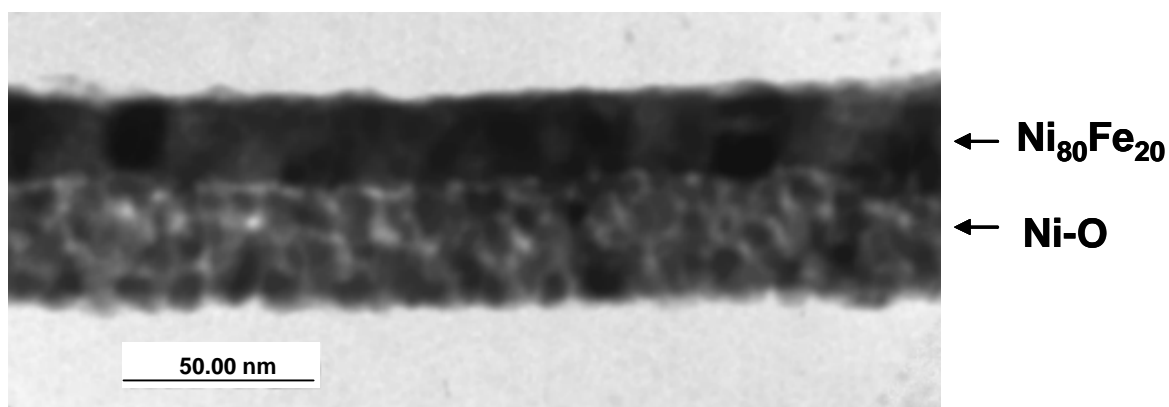


Figura 3.3.9 Imagen TEM de contraste en campo claro de la bicapa  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ /Ni-O en sección transversal.

Los espesores medidos sobre la imagen son de 30 nm para el óxido de níquel y 20 nm para el *Permalloy*, valores coincidentes con los que se estimaron a partir del ritmo de crecimiento de los dos materiales. En la figura 3.3.9 se observan las diferencias estructurales que existen entre el óxido de níquel y el *Permalloy*. El óxido presenta una distribución de granos nanométricos de geometría cuasi-esférica, como se observaba ya en las imágenes en el plano de la capa individual de Ni-O (figuras 3.3.4 y 3.3.5). El tamaño medio transversal, 4,7 nm, medido sobre la imagen en campo oscuro (ver figura 3.3.10) está de nuevo en concordancia con el estimado por difracción de rayos X.

La capa de *Permalloy* presenta crecimiento columnar y se ha calculado un tamaño medio lateral de 13,5 nm, valor cercano al encontrado para el *Permalloy* en la otra bicapa.

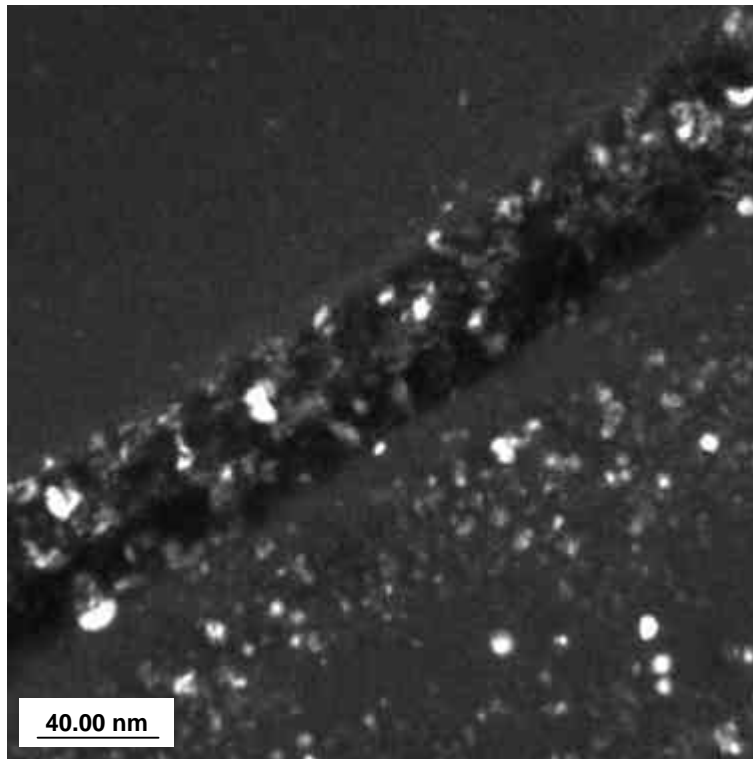


Figura 3.3.10 Imagen TEM de contraste en campo oscuro de la bicapa  $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$  en sección transversal.

## 3.4 Conclusiones

- Los **materiales ferromagnéticos** estudiados presentan todos estructura nanocristalina. El análisis mediante XRD revela valores de las dimensiones transversales de los granos en torno a unas **pocas decenas de nanómetros** (aproximadamente en torno al valor del espesor de las capas). Las imágenes TEM en sección transversal de las bicapas revelan un crecimiento columnar de los granos y confirman las dimensiones estimadas por XRD.
- Los **óxidos antiferromagnéticos** exhiben un marcado carácter nanocristalino. Mediante el análisis por XRD se estimó inicialmente un tamaño transversal medio de grano inferior a **5 nm**, dentro de la resolución de la técnica. Las imágenes TEM muestran una distribución homogénea de granos cuasi-esféricos con tamaños distribuidos según una ley de distribución log-normal centrada en torno a 5 nm y 4 nm en Co-O y Ni-O, respectivamente.
- La **frontera de grano en los óxidos**, estimada a partir de las imágenes TEM en torno a un valor medido de **0,5 nm**, exhibe una gran diferencia de contraste de fase respecto al interior de los granos. Esto pone en evidencia una diferencia estructural o composicional entre frontera e interior en cada cristalito antiferromagnético.
- Las imágenes TEM de las **bicapas** muestran que no existe un crecimiento estructural de los metales ferromagnéticos sobre los óxidos. Las intercaras aparecen muy definidas con una rugosidad menor de 3 nm.

## Bibliografía

- [1] J. Nogués and Ivan K. Schuller, *J. Mag. Mag. Mat.* **192**, 203 (1999)
- [2] D. Martien, K. Takano, A. E. Berkowitz and D.J. Smith, *App. Phys. Lett.* **74** (9) 1314 (1999)
- [3] V. I. Nikitenko, V. S. Gornakov, L. M. Dedukh, A.J. Shapiro, R.D. Schull, A. Chaiken, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc*, Vol 517, 43 (1998)
- [4] M.R. Fitzsimmons, P. Yashar, C. Leighton, I. K. Schuller, J. Nogués, C. F. Majkrzak and J. A. Dura, *Phys. Rev. Lett.* **84**,17 (2000)
- [5] R. P. Michel, A. Chaiken, C. T. Wang, L.E. Johnson, *Phys. Rev. B* **58**(13) 8566 (1998)
- [6] R. V. Stuart, G. K. Wehner and G. S. Anderson, *J. Appl. Phys.* **40** (2), 803 (1969)

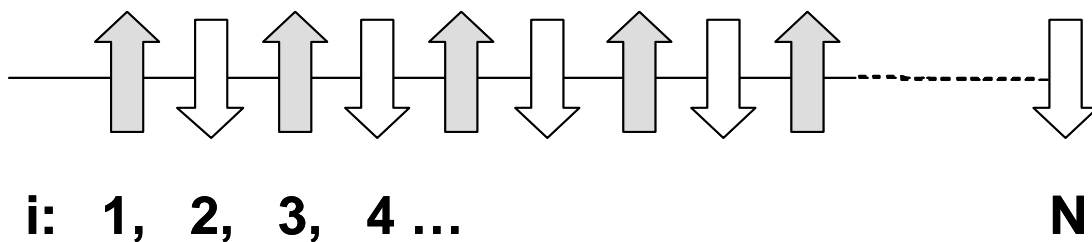
# Capítulo 4

## Anisotropía de canje y estructura nanocrystalina

Este capítulo está dedicado al estudio de la influencia que la estructura tiene en las propiedades de anisotropía de canje en sistemas nanocrystalinos ferromagnético-antiferromagnético (FM-AF) en forma de película delgada. Los sistemas que aquí se estudia fueron caracterizados estructuralmente en detalle en el capítulo 3, en el que se determinaron tamaños de grano medios de 14 nm, en el caso de los metales FM, y en torno a 4 nm en el caso de los óxidos AF, en los que se diferencia claramente una frontera de grano de unos 0,5 nm de espesor.

El punto de partida del trabajo que aquí se presenta son los resultados de algunos de los trabajos de anisotropía de canje en sistemas policristalinos [1-3] que se mencionaron en la introducción de esta memoria. En dichos estudios se relaciona directamente el campo de canje  $H_E$  con el momento descompensado interfacial de los granos AF. En el modelo propuesto por Berkowitz [1] la magnitud de  $H_E$  es directamente proporcional al momento descompensado por unidad de superficie. Además, los cálculos muestran que dicho momento descompensado es inversamente proporcional al tamaño de grano AF. Estas predicciones son confirmadas experimentalmente mediante la medida de la termorremanencia en películas delgadas de Co-O [2] y en otros estudios realizados sobre la modificación de  $H_E$  mediante el control del tamaño de grano AF [3].

Cabe aquí preguntarse cuál es el origen de la descompensación de momento en un antiferromagnético policristalino. Para responder a esta pregunta se pondrá un sencillo ejemplo. Considérese una cadena lineal de  $N$  espines dispuestos antiferromagnéticamente, tal y como se muestra en la siguiente figura:





El momento por unidad de longitud de esta cadena vendrá dado por la siguiente expresión:

$$M_L = \frac{\sum_{i=1}^N (-1)^i}{N}$$

Si la cadena es de longitud infinita es evidente que no existe momento neto por unidad de longitud puesto que:

$$M_\infty = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{\sum_{i=1}^N (-1)^i}{N} \rightarrow 0$$

Por el contrario, si se corta la cadena de manera que su longitud sea finita (cristal unidimensional finito) hay una cierta probabilidad de que exista momento neto por unidad de longitud, ya que:

$$\sum_{i=1}^N (-1)^i = \begin{cases} 0 & \text{si } N \text{ es par} \\ -1 & \text{si } N \text{ es impar} \end{cases}$$

Este ejemplo aunque muy sencillo, pone de manifiesto que la existencia de momento descompensado, en un cristal antiferromagnético está inequívocamente vinculada a la finitud de su tamaño. En sistemas reales como los estudiados por Berkowitz [3], se demuestra además que el momento descompensado es inversamente proporcional al tamaño medio de grano y que, por tanto, es posible aumentar la magnitud del campo de canje reduciendo el tamaño de grano de los cristales AF.

Las dimensiones típicas de los sistemas aquí estudiados, como son el espesor de las capas y el tamaño medio de los granos cristalinos, se encuentran en el rango de los nanómetros. Este rango dimensional constituye uno de los focos de mayor atención de la Ciencia de Materiales actual. Dentro del Magnetismo nos encontramos con que *lo nanométrico* es el ámbito del orden magnético. Las distancias a las que se transmite la interacción de canje en materiales como por ejemplo el hierro, el níquel o el cobalto son de algunos nanómetros. Por otra parte, el número de átomos situados en la frontera de un cristal nanométrico constituye en torno al 20-30% del total de átomos. Por tanto

también cabe esperar de estos sistemas interesantes propiedades macroscópicas derivadas de la importancia que cobra la frontera grano en este rango dimensional.

Por todo ello, es evidente el interés que suscita el estudio de la anisotropía de canje en sistemas con tamaños de grano reducidos. En este capítulo se han estudiado dos sistemas FM/AF diferentes. Ambos tienen como material ferromagnético una capa de 20 nm de *Permalloy* y distintos óxidos antiferromagnéticos: óxido de cobalto y óxido de níquel. Estos sistemas tienen la siguiente nomenclatura, composición y estructura (ver tabla 3.1):

**PYC4**             $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (20 nm) / Co-O (20 nm)

**NIOPY2**         $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (20 nm) / Ni-O (40 nm)

El estudio de la anisotropía de canje se ha centrado principalmente en el análisis de la evolución térmica de los ciclos de histéresis. La primera parte del capítulo está dedicada a la dependencia térmica del campo coercitivo y del campo de canje en ambos sistemas, una vez inducida la anisotropía mediante enfriamiento con campo y eliminados los efectos ligados a estados metaestables. En la segunda parte del capítulo se estudian en los mismos sistemas los efectos de entrenamiento y su evolución con la temperatura.

## 4.1 Evolución térmica del ciclo de histéresis

El estudio de la evolución térmica de las propiedades magnéticas en un sistema magnético es siempre de gran importancia para su caracterización. En el caso de un sistema FM/AF con anisotropía de canje este estudio permite conocer el rango térmico en la que dicha interacción inducida está presente y determinar la temperatura de orden del material antiferromagnético.

Las medidas de ciclos de histéresis que aquí se presentan se han efectuado en el magnetómetro SQUID descrito en el capítulo 2 sobre muestras de un tamaño aproximado de  $0.2 \text{ cm}^2$ . Las muestras se colocan en el porta-muestras de manera que su dirección de fácil imanación\* sea paralela al campo que aplica el solenoide superconductor.

Se ha estudiado la evolución térmica del campo coercitivo  $H_c$  y el campo de anisotropía  $H_E$ , determinados a partir del ciclo de histéresis y que se definen según las siguientes expresiones:

$$H_c = \frac{H_{dr} - H_{iz}}{2} \quad (1)$$

$$H_E = \frac{H_{dr} + H_{iz}}{2} \quad (2)$$

donde  $H_{iz}$  y  $H_{dr}$  son los valores de corte del ciclo de histéresis con el eje  $M = 0$  tales que  $H_{iz} < H_{dr}$ .

A continuación se describe el procedimiento experimental que se ha llevado a cabo para las medidas de ciclos de histéresis.

---

\* la dirección de fácil imanación se determinó previamente mediante magnetometría de efecto Kerr a temperatura ambiente, a través de la medida de ciclos de histéresis en función del ángulo.

## **Procedimiento experimental**

Con el fin de inducir anisotropía de canje en una dirección particular, se sometió a las muestras a un proceso de enfriamiento con campo que se describe a continuación y que se encuentra esquematizado en el diagrama 4.1.

### **1. Temperatura inicial**

La temperatura inicial del proceso es siempre superior a la temperatura de bloqueo del óxido antiferromagnético correspondiente. *A priori*, se tiene una idea aproximada de esta temperatura: 260 K para el Co-O y 450 K para el Ni-O [4]. La propia medida de la dependencia térmica de  $H_c$  y  $H_E$  proporcionará el valor experimental de dichas temperaturas para los óxidos fabricados.

### **2. Aplicación de un campo de enfriamiento $H_{enf}$**

El enfriamiento de las muestras se ha llevado a cabo en todos los casos en presencia de un campo  $H_{enf} = + 1000$  Oe , donde el signo + se refiere a la dirección positiva de campos en las curvas de imanación.

### **3. Temperatura final**

La temperatura final del proceso de enfriamiento es en todos los casos 50 K.

### **4. Entrenamiento de la muestra**

Con objeto de eliminar el efecto de entrenamiento a 50 K se aplican seis veces consecutivas campos magnéticos de amplitud  $\pm 1000$  Oe alternadamente negativos y positivos .

### **5. Temperatura de medida**

Se establece la temperatura de medida  $T_{med}$  del ciclo de histéresis correspondiente.

## 6. Medida del ciclo de histéresis a $T_{med}$

Todos los ciclos de histéresis se realizaron con un campo máximo de  $\pm 1000$  Oe aplicado en la dirección de fácil imanación de la muestra.

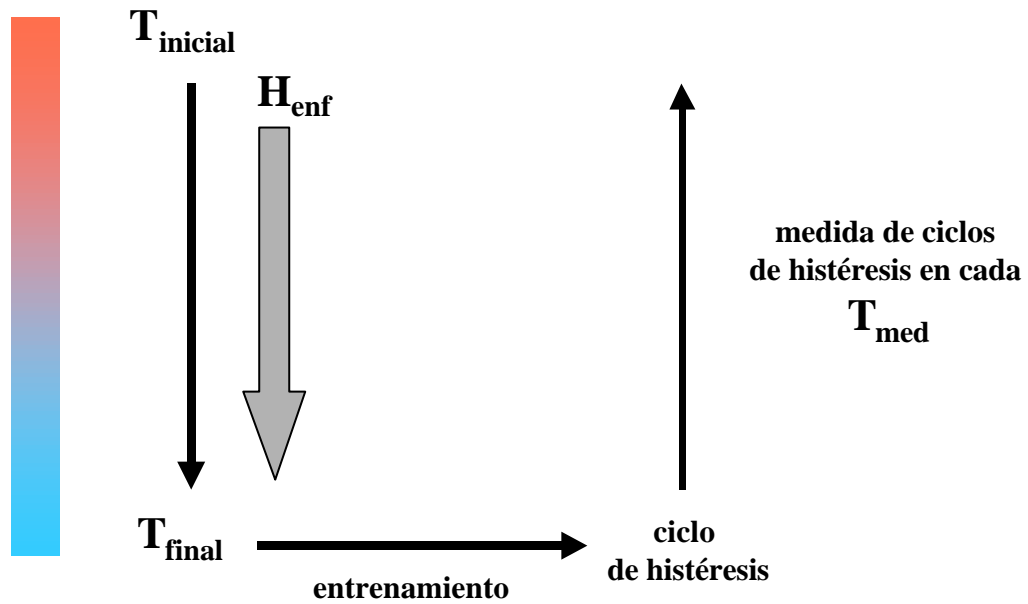


Diagrama 4.1 Esquema del procedimiento experimental para el estudio de la evolución térmica del ciclo de histéresis.

### 4.1.1 Sistema $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ / Co-O

La temperatura inicial del proceso de enfriamiento en este sistema es 300 K. Como se ha dicho anteriormente, se puede hacer una estimación *a priori* de la temperatura del óxido antiferromagnético. En el caso del óxido de cobalto policristalino la bibliografía [4] presenta distintos valores según el grado de cristalinidad pero nunca superiores a 300 K. De esta manera se puede asegurar que a esta temperatura el óxido está en su estado no magnético.

En la figura 4.1.1 se muestra el ciclo de histéresis medido a 300 K en la muestra PYC4. El campo coercitivo está en torno a 7 Oe, valor que también presenta a esta temperatura la capa individual de *Permalloy* del mismo espesor (muestra PY1, ver tabla 3.1). Esta coincidencia de valores del campo coercitivo, junto con el hecho de que el ciclo de histéresis no está desplazado, pone en evidencia que no hay acoplamiento en canje entre las capas óxido de cobalto y *Permalloy* a esta temperatura, es decir, que el óxido no presenta orden magnético.

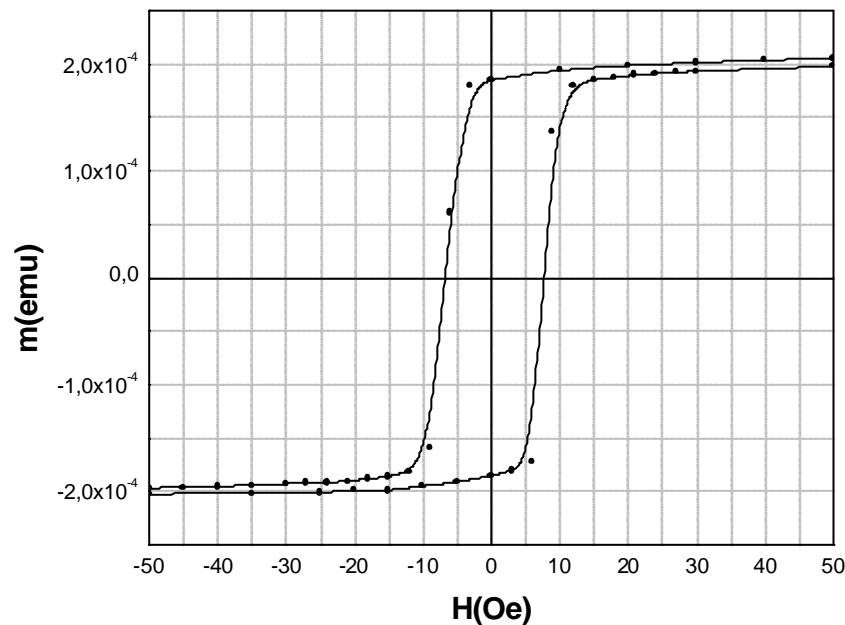


Figura 4.1.1 Ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medido a 300 K.

Tras el proceso de enfriamiento con campo aplicado y el entrenamiento de la muestra, el sistema muestra un comportamiento magnético diferente: el ciclo de histéresis presenta a 50 K un desplazamiento hacia campos aplicados negativos de -70

Oe y un campo coercitivo de 170 Oe, como se puede observar en la figura 4.1.2. Esto indica que durante el proceso de enfriamiento con campo se ha inducido anisotropía de canje en el sistema.

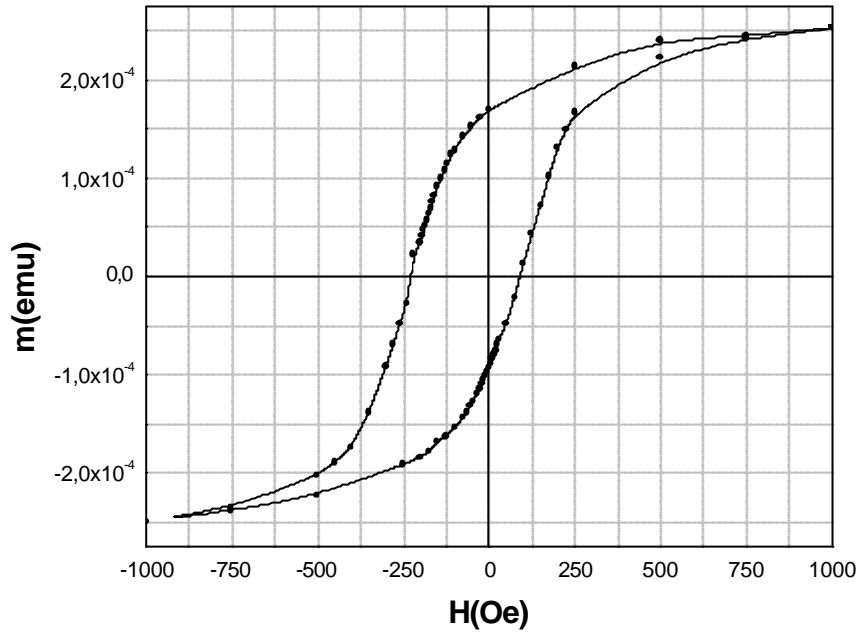


Figura 4.1.2. Ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medido a 50 K tras enfriamiento con campo y una vez realizado el entrenamiento del sistema.

Se midieron ciclos de histéresis para distintos valores de  $T_{med}$  según se iba incrementando ésta. Se distinguen dos rangos de temperaturas, atendiendo al diferente comportamiento observado:

a) **Primer rango de temperaturas: 50 K-160 K**

La figura 4.1.3a muestra una primera secuencia de la evolución térmica del ciclo de histéresis en la que se han seleccionado cuatro temperaturas diferentes. En esta región **el desplazamiento del ciclo de histéresis es negativo** como ocurre normalmente en este tipo de sistemas: los ciclos se desplazan hacia campos negativos tras el enfriamiento con campo positivo. La evolución del desplazamiento es también la usual, es decir,  $H_E$  disminuye progresivamente al aumentar la temperatura hasta que aproximadamente a 155 K se hace cero. El campo coercitivo también presenta el comportamiento normalmente observado en los sistemas con anisotropía de canje, es decir, disminuye con la temperatura.

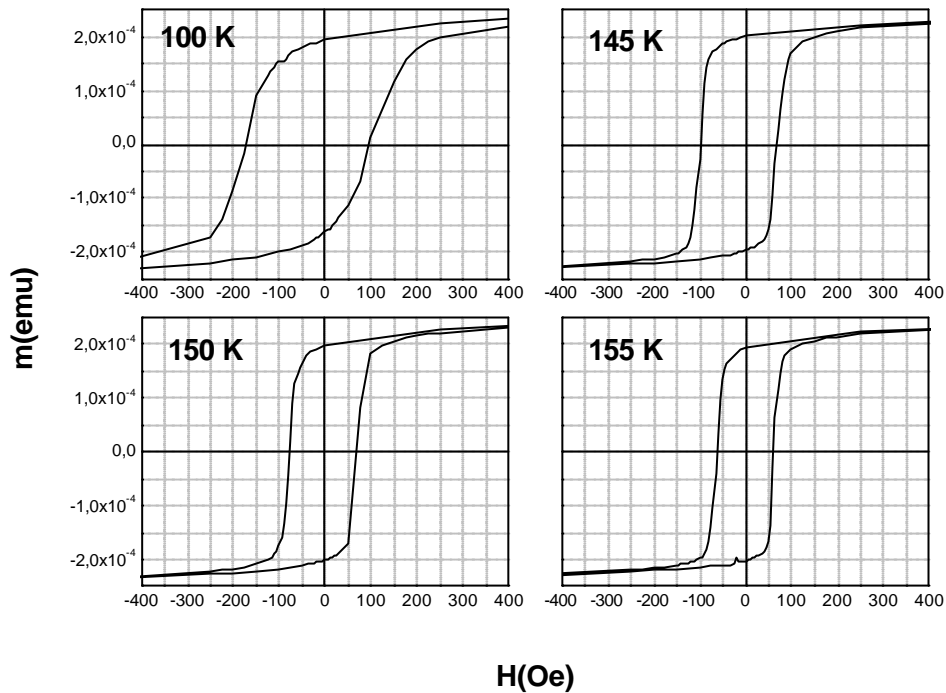


Figura 4.1.3a. Evolución térmica del ciclo de histéresis de la muestra PCY4 en el rango de temperaturas comprendido entre 50 K y 160 K. El desplazamiento de las curvas es negativo.

### b) Segundo rango de temperaturas: 160 K-300 K

En este rango de temperaturas se ha observado un interesante y novedoso fenómeno: a partir de 160 K, los ciclos de histéresis comienzan a desplazarse hacia campos positivos. En todo este segundo rango de temperaturas el **desplazamiento del ciclo es positivo**.

En la figura 4.1.3b se muestra una secuencia de la evolución del ciclo de histéresis para las cuatro temperaturas indicadas. La evolución del campo del desplazamiento presenta un comportamiento inusual: el desplazamiento positivo, cuantificado por el parámetro  $H_E$ , aumenta hasta 170 K, temperatura a partir de la cual  $H_E$  disminuye hasta volver a anularse a partir de 190 K aproximadamente.

En cuanto al campo coercitivo, decrece monótonamente en este rango de temperaturas. A partir de 190 K, temperatura a la cual desaparecen los efectos de la anisotropía de canje, el campo coercitivo sigue decreciendo hasta recuperar el valor inicial de 7 Oe a 300K.



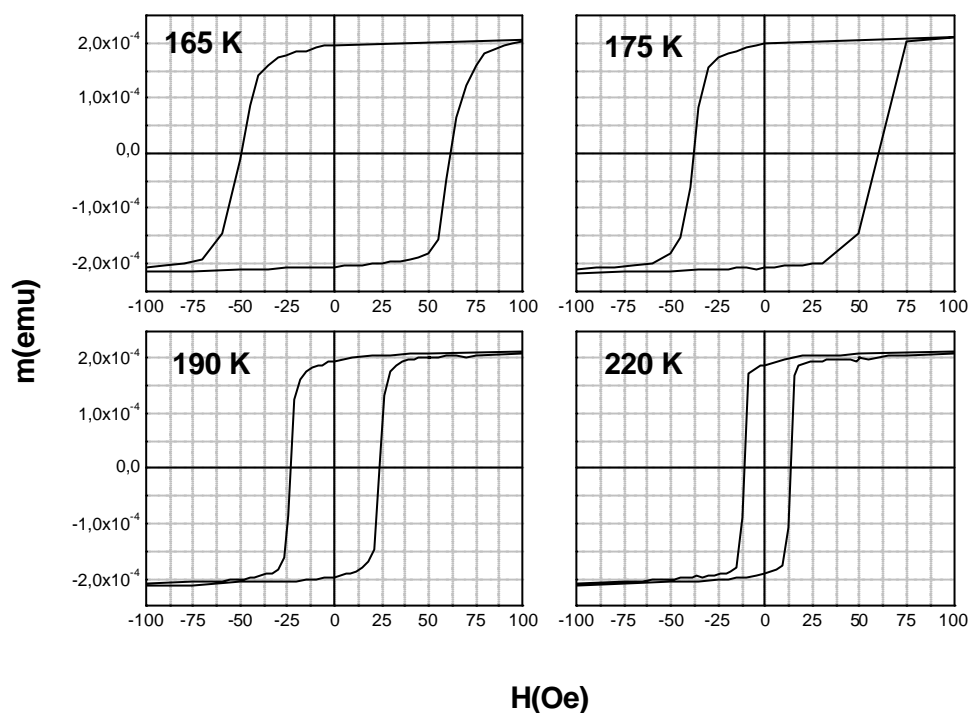


Figura 4.1.3b. Evolución térmica del ciclo de histéresis de la muestra PCY4 en el rango de temperaturas comprendido entre 160 K y 220 K. El desplazamiento de las curvas es positivo.

Todos los resultados anteriormente expuestos se resumen en las figuras 4.1.4 y 4.1.5 en las que se muestra la evolución térmica de los parámetros  $H_c$  y  $H_E$ . Éstos han sido calculados según las definiciones (1) y (2) en cada ciclo de histéresis medido. En la figura 4.1.4. se observa, como ha indicado, que el desplazamiento es negativo en el rango comprendido entre 50 K y 160 K. En torno a 160 K, tras una progresiva disminución del valor de  $H_E$ , éste se hace cero y se produce un **cambio de signo**. El desplazamiento positivo alcanza el valor máximo a 170 K y posteriormente disminuye hasta hacerse de nuevo cero alrededor de 190 K.

En la figura 4.1.5, que presenta la evolución térmica del campo coercitivo, se observa un decrecimiento monótono de  $H_c$  en todo el rango de temperaturas estudiado. Es importante destacar la presencia de un punto de inflexión en torno a 160 K, coincidiendo con el cambio de signo de  $H_E$ , que determina dos regímenes claramente distintos en la evolución térmica del campo coercitivo. Este comportamiento recuerda al que se observa en las curvas  $M(T)$  en sistemas magnéticos con dos fases ferromagnéticas [5]. En dichos sistemas en los que cada fase tiene una temperatura de Curie diferente, y suficientemente separadas, es posible determinar a partir de la curva

de termo-imanación ambas temperaturas de transición. Este aspecto se tratará más extensamente en la interpretación de los resultados que se presentará más adelante.

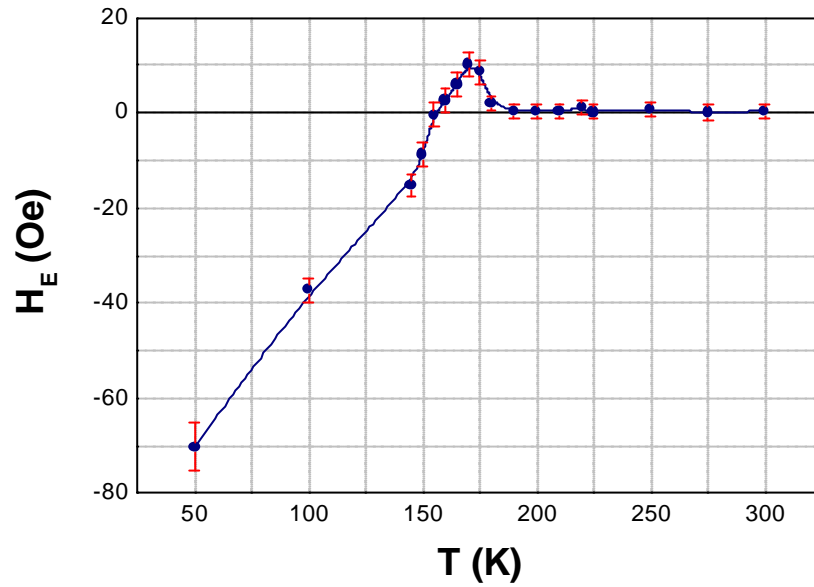


Figura 4.1.4 Evolución térmica del campo de canje en la muestra PYC4 tras enfriamiento con campo aplicado de 1000 Oe.

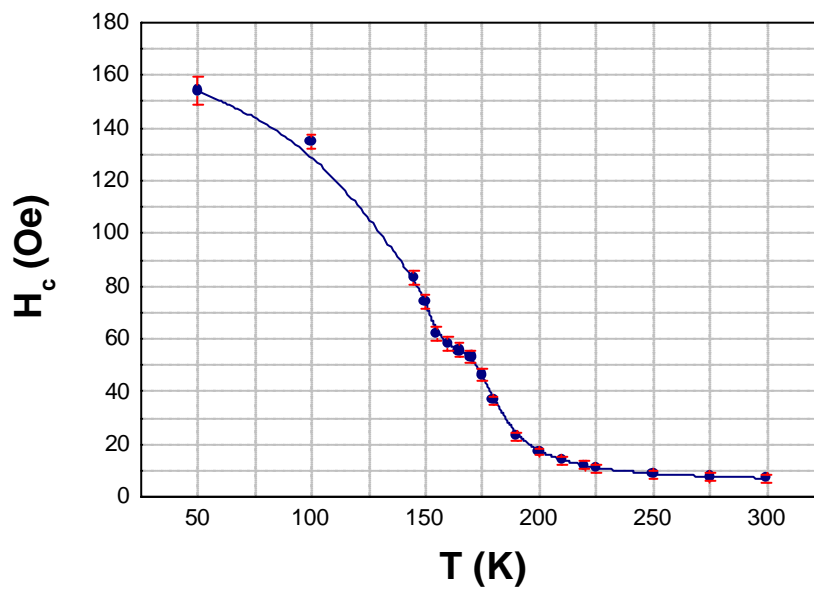


Figura 4.1.5 Evolución térmica del campo coercitivo en la muestra PYC4 tras enfriamiento con campo aplicado de 1000 Oe

El fenómeno de cambio de signo del campo de canje encontrado en estos experimentos resulta, en principio, sorprendente por lo novedoso e inusual del efecto en este tipo de sistemas. Se debe, por tanto, corroborar que no se trata de un fenómeno espurio debido a factores que no se hayan tenido previamente en cuenta. Para ello, en primer lugar, se repitió varias veces el experimento, determinándose en cada ocasión, de la misma manera, los valores de  $H_E$  y  $H_C$ . A partir de los estos resultados obtenidos se realizó un estudio estadístico del que se obtuvieron valores medios y sus desviaciones típicas. Estos resultados estadísticos son los representados en las figuras 4.1.4 y 4.1.5, en las que sobre los datos experimentales se han representado las barras de error. Se puede observar que la magnitud del efecto de cambio de signo es superior a la del error, por lo que se demuestra así la repetitividad del fenómeno.

Por otra parte, se podría pensar que el hecho de que la fase ferromagnética no esté saturada magnéticamente a bajas temperaturas, como se observa por ejemplo en los ciclos de histéresis medidos a 50 K (ver figura 4.1.2), y sí lo esté a temperaturas más altas (por ejemplo ver los ciclos a 175 K y 190K, figura 4.1.3b), esté originando un cambio de signo en  $H_E$  a la temperatura en la que la fase magnética comienza a estar saturada con un campo de 1000 Oe. Para descartar la posibilidad de que el efecto sea debido al hecho de que se trate de ciclos menores a baja temperatura y ciclos saturados a altas temperaturas, se ha repetido el estudio de la evolución térmica del ciclo de histéresis aplicando un campo máximo de  $\pm 5$  T. Con este valor de campo se asegura la saturación de la fase ferromagnética en todas las temperaturas del rango estudiado.

Los resultados de este segundo experimento son similares a los obtenidos en el primero. En la figura 4.1.6 se compara la evolución térmica del desplazamiento en ambos experimentos. En el caso de la curva correspondiente a los ciclos medidos a  $\pm 5$  T se encuentran valores de  $H_E$  algo menores a baja T pero se produce de nuevo el cambio de signo en torno a 160 K. Con este nuevo experimento queda comprobada la fiabilidad de los primeros resultados obtenidos.

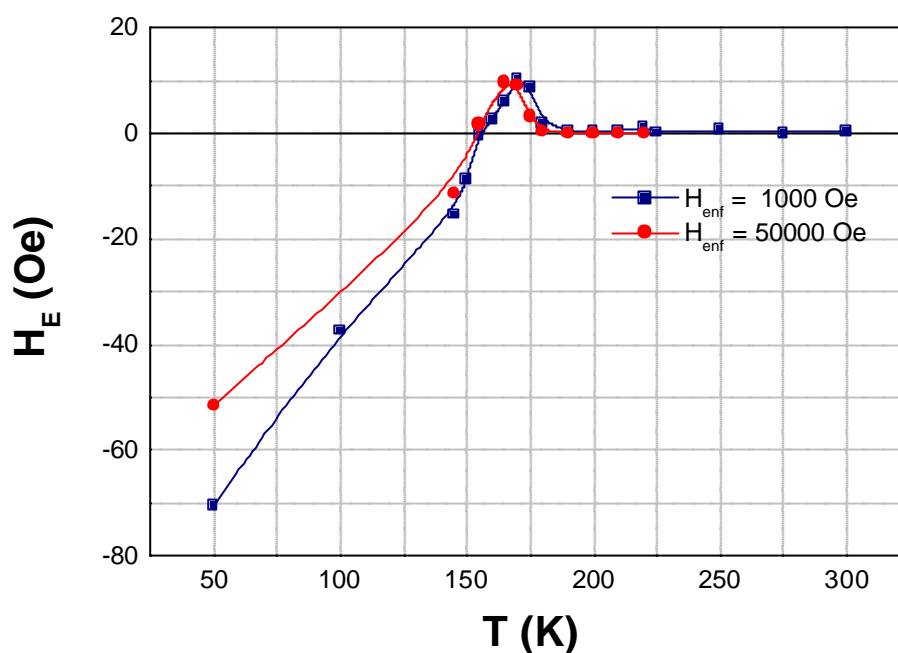


Figura 4.1.6. Comparación de la evolución térmica del desplazamiento de los ciclos de histéresis medidos con campo máximo  $\pm 1000$  Oe y  $\pm 50000$  Oe en la muestra PYC4 tras enfriamiento con campo aplicado de  $+1000$  Oe

En la introducción de este capítulo se mencionaba que la mayoría de los modelos y experimentos acerca de la anisotropía de canje en sistemas policristalinos [1-3, 6, 7] muestran que la magnitud de los campos  $H_C$  y  $H_E$  está directamente relacionada con la magnitud del acoplamiento en canje en la intercara en interacción, y por tanto, ambos son función del momento descompensado del antiferromagnético. Así, la evolución térmica de los campos  $H_C$  y  $H_E$  está directamente ligada a la evolución térmica del momento descompensado. Con objeto de analizar más en detalle la dependencia térmica de los campos  $H_C$  y  $H_E$ , encontrada experimentalmente, se ha calculado la derivada respecto a  $T$  de las curvas experimentales representadas en las figuras 4.1.4 y 4.1.5. Este método es frecuentemente usado para estimar temperaturas de Curie a partir de las curvas  $M(T)$  en sistemas bifásicos [5]. El resultado de este cálculo (ver figura 4.1.7) permite determinar las siguientes temperaturas de transición, que se relacionan con la evolución térmica del estado magnético del óxido de cobalto:

- $T_F(\text{Co-O})=150\text{ K}$ . Es la temperatura a la que se produce el cambio de signo del desplazamiento. A esta temperatura las derivadas de  $H_E$  y  $H_c$  alcanzan extremos locales: el campo de canje presenta un valor mínimo y el campo coercitivo un valor máximo.
- $T_{\text{máx}}(\text{Co-O})=170\text{ K}$ . Es la temperatura a la que el desplazamiento positivo alcanza su valor máximo. A esta temperatura la derivada de  $H_E$  se hace cero y la de  $H_c$  presenta un máximo local.
- $T_B(\text{Co-O})=180\text{ K}$ . Es la temperatura a la que desaparece el efecto de desplazamiento del ciclo de histéresis y se asocia con la temperatura de orden, o **temperatura de bloqueo**, del antiferromagnético. A esta temperatura las dos derivadas de nuevo alcanzan un extremo local, en ambos casos un mínimo.

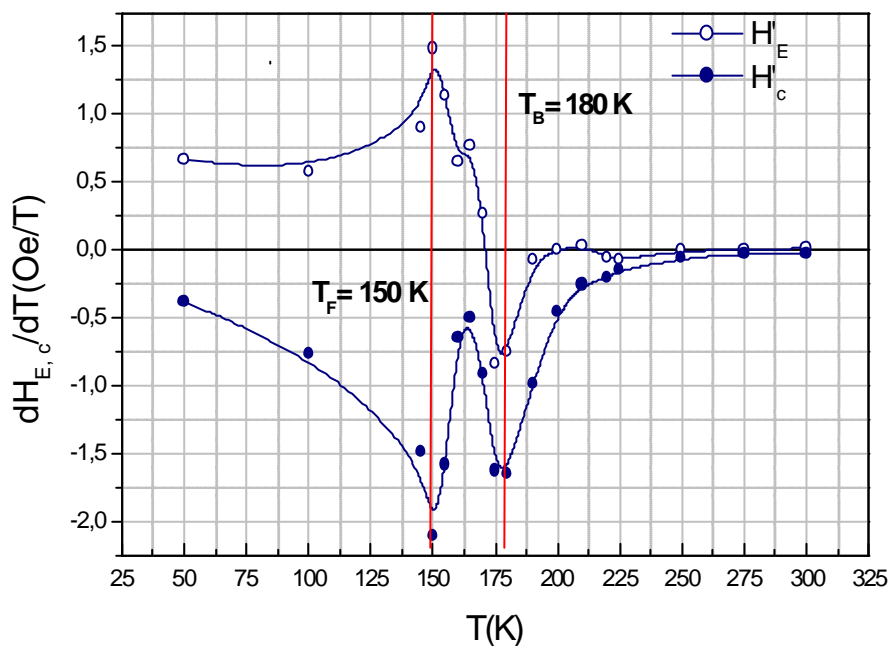


Figura 4.1.7 Evolución térmica de la derivada del campo coercitivo y del campo de canje en la muestra PCY4 tras enfriamiento con campo aplicado de 1000 Oe.

### 4.1.2 Sistema $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$

Se ha realizado un estudio similar al anterior en la muestra NIOPY2. En este caso la temperatura inicial del proceso de enfriamiento 400 K, temperatura ligeramente superior a la temperatura de orden del óxido de níquel fabricado. La figura 4.1.8 presenta el ciclo de histéresis medido a 400 K. Este ciclo de histéresis no presenta desplazamiento y el valor del campo coercitivo es 7 Oe, valor también correspondiente al de muestra de *Permalloy* PY1 a esta temperatura. Esto pone de manifiesto que no hay acoplamiento en canje a esta temperatura entre el óxido y el *Permalloy*, es decir, el óxido se encuentra en su estado paramagnético.

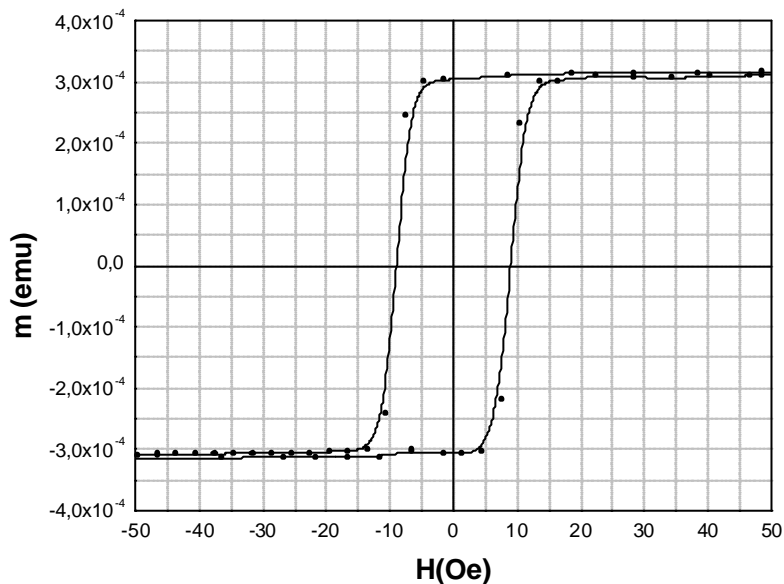


Figura 4.1.8 Ciclo de histéresis de la muestra NIOPY2 medido a temperatura  $T = 400 \text{ K}$ .

Después de calentar la muestra a 400 K se procedió al enfriamiento con campo aplicado + 1000 Oe y al entrenamiento de la muestra, según el diagrama 4.1. El ciclo de histéresis medido a 50 K presenta un valor del campo coercitivo,  $H_c$ , de 63 Oe y un valor del campo de desplazamiento,  $H_E$ , de -48 Oe, como se observa en la figura 4.1.9.

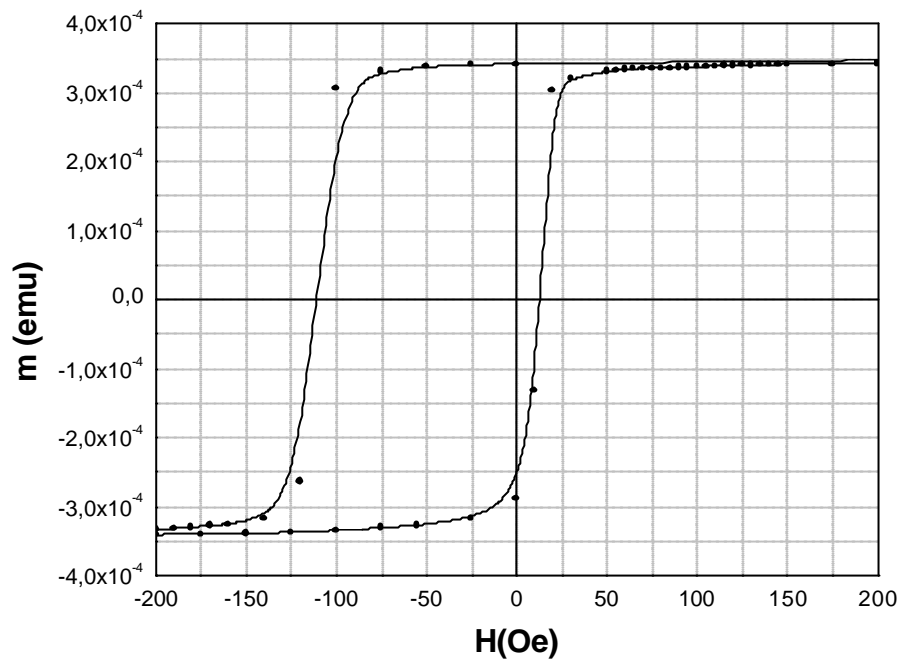


Figura 4.1.9 Ciclo de histéresis de la muestra NIOPY2 medido a temperatura 50 K tras su enfriamiento en campo  $H_{enf} = 1000$  Oe y una vez realizado el entrenamiento del sistema.

Se midieron ciclos de histéresis a distintas temperaturas, presentándose de nuevo dos rangos de temperaturas en los que se observan comportamientos diferentes del campo  $H_E$ .

a) **Primer rango de temperaturas: 50K - 300 K:**

La figura 4.1.10a presenta una secuencia de la evolución térmica del ciclo de histéresis para las cuatro temperaturas indicadas. En este rango el desplazamiento que se presenta es el usual, es decir, **negativo** y su valor disminuye progresivamente con el incremento de la temperatura. El campo coercitivo disminuye también con la temperatura.

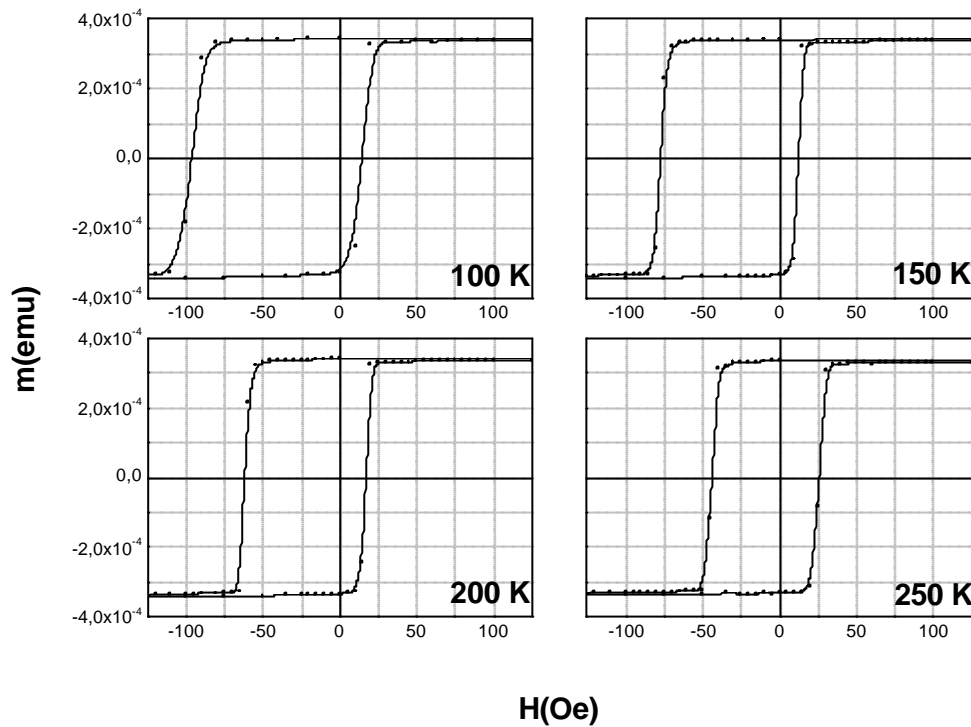


Figura 4.1.10a. Evolución térmica del ciclo de histéresis de la muestra NIOPY2 en el rango de temperaturas indicado.

**b) Segundo rango de temperaturas: 300K - 400 K:**

En este rango de temperaturas se han vuelto a encontrar resultados similares a los obtenidos en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$ . A 300 K se produce un **cambio de signo** en el desplazamiento del ciclo de histéresis, que es **positivo** en todo el rango. El valor máximo de  $H_E$  se alcanza a 350 K, temperatura a partir de la cual  $H_E$  comienza a decrecer hasta hacerse cero a 400 K. La figura 4.1.10b muestra una secuencia de la evolución térmica de los ciclos de histéresis para las cuatro temperaturas indicadas dentro de este rango.



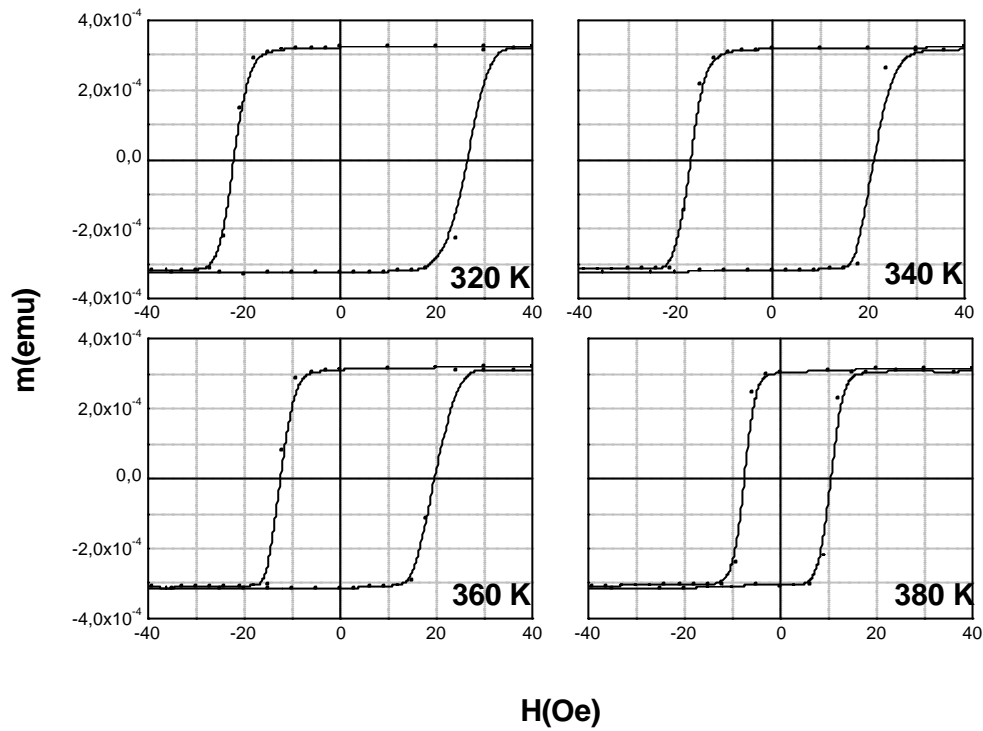


Figura 4.1.10b. Evolución térmica del ciclo de histéresis de la muestra NIOPY2 en el rango de temperaturas indicado.

Todos estos resultados se cuantifican mediante los valores de  $H_E$  y  $H_C$  calculados según las expresiones (1) y (2). La evolución térmica de estos campos está representada en las figuras 4.1.11 y 4.1.12, respectivamente.

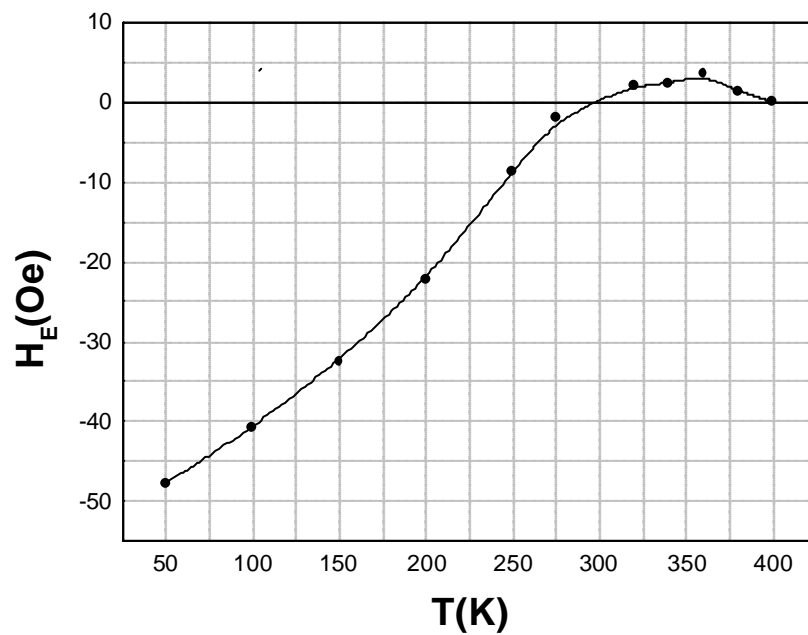


Figura 4.1.11 Evolución térmica del campo de canje en la muestra NIOPY2 tras enfriamiento con campo aplicado de + 1000 Oe.

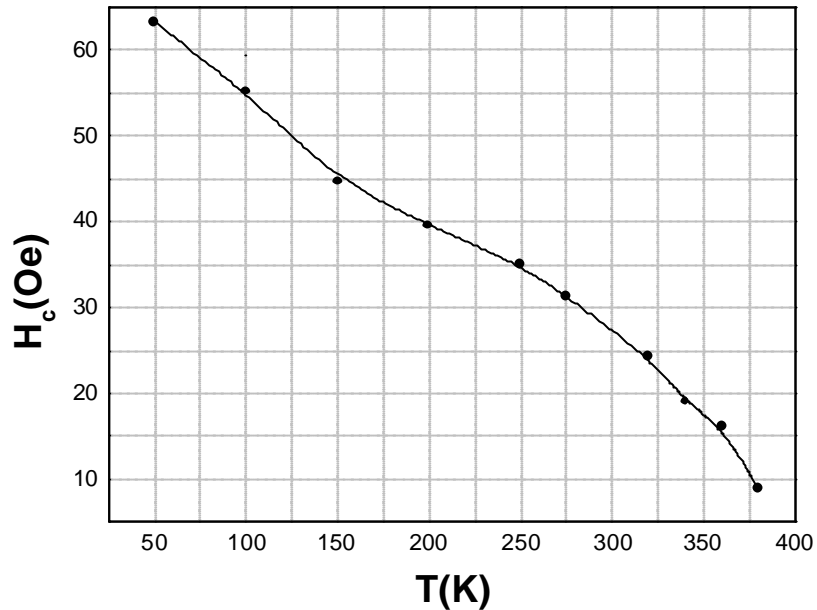


Figura 4.1.12 Evolución térmica del campo coercitivo en la muestra NIOPY2 tras enfriamiento con campo aplicado de 1000 Oe.

Del mismo modo que se hizo para el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$ , a partir de estos datos se han calculado las derivadas de  $H_c$  y  $H_E$  con respecto a  $T$  para determinar las siguientes temperaturas de transición en este sistema, asociadas a la evolución del estado magnético del óxido de níquel:

- **$T_F(\text{Ni-O})=300 \text{ K}$**  Es la temperatura a la que se produce el cambio de signo del desplazamiento.
- **$T_{\text{máx}}(\text{Ni-O})=360 \text{ K}$** . Es la temperatura a la que el desplazamiento positivo alcanza su valor máximo.
- **$T_B(\text{Ni-O})=400 \text{ K}$** . Es la temperatura a la que desaparece el efecto de desplazamiento del ciclo de histéresis y se asocia a la temperatura de orden, o **temperatura de bloqueo** del óxido de níquel.

### 4.1.3 Interpretación de los resultados.

Una vez que se ha estudiado la evolución térmica de la anisotropía de canje en dos sistemas AF/FM diferentes nos encontramos ante un fenómeno común a ambos sistemas: el **cambio de signo del campo de desplazamiento  $H_E$**  a una cierta temperatura. Este resultado, muy novedoso, no se ha encontrado en la bibliografía consultada. Normalmente se observan desplazamientos negativos del ciclo de histéresis cuando la anisotropía de canje se establece mediante enfriamiento con campo positivo moderado (hasta del orden de 0.5 T). No obstante, en algunos estudios realizados en Fe/FeF<sub>2</sub> [8] y sistemas similares se han observado desplazamientos positivos de la curva de imanación cuando el campo de enfriamiento es muy elevado (~ 7 T). En estos casos los resultados se explican [9] suponiendo que es el campo de enfriamiento el que polariza el momento descompensado del antiferromagnético (y no el momento del ferromagnético) y que existe un acoplamiento antiferromagnético en la intercara con el ferromagnético. En nuestro caso no cabe esperar dicha alineación puesto que se trata de un campo de enfriamiento moderado que no es capaz de orientar el pequeño momento no compensado. Estamos, por tanto ante un fenómeno de otra naturaleza que habrá que interpretar en otro contexto.

Teniendo en cuenta que el origen de la anisotropía de canje en este tipo de sistemas policristalinos es la interacción de canje entre el momento descompensado del AF y el momento magnético del FM, se pueden hacer, en principio, dos hipótesis que expliquen el cambio de signo del campo de canje a una cierta temperatura:

1. A una cierta temperatura, se produce un **cambio de signo de la interacción de canje**.
2. A una cierta temperatura se produce una **inversión del momento descompensado**.

Respecto a la primera hipótesis no se ha encontrado *a priori* un argumento plausible que lleve a pensar que se produzca tal cambio por efecto de la temperatura. La

naturaleza de la interacción de canje en superficies FM/AFM es aún desconocida. Se han hecho algunos estudios en Ni-Fe/Co-O [10] en los que se analiza la dependencia de la densidad de energía interfacial con la composición del FM, a través del comportamiento del campo de canje. No obstante, en dichos trabajos no se ha llegado a concluir si se trata de un mecanismo de canje directo o supercanje.

La segunda hipótesis propuesta, la **inversión del momento descompensado**, puede ser argumentada dentro del marco de la nanoestructura del antiferromagnético como se hará seguidamente. Esta hipótesis será asumida aquí y sobre ella se desarrollará un modelo para explicar los resultados anteriores. En general, en los sistemas magnéticos nanocristalinos como los estudiados en este trabajo, la frontera de grano adquiere una gran importancia en el comportamiento magnético de los mismos. A medida que se reduce el tamaño del cristal aumenta la relación superficie-volumen aumentando así la fracción de momentos magnéticos que se hallan en la superficie. Por ejemplo, en un cristal del tamaño de 1 nm el número de espines en la frontera es comparable al de los que se encuentran en el interior. En sistemas nanoestructurados tipo *spin-glass* se ha comprobado que es la frontera de grano la responsable del desacoplamiento entre granos al formarse en ella una estructura magnéticamente desordenada que impide la transmisión de la interacción de canje entre granos [11-12]. En otros trabajos se han determinado temperaturas de orden diferentes para la frontera y para el interior [13]. En general, debido al mayor grado de desorden en la estructura de la frontera la temperatura de orden es menor en ésta que en el interior del grano.

Los óxidos antiferromagnéticos presentes en los sistemas estudiados están constituidos por granos cuasi-esféricos de dimensiones entorno a los 5 nm, tal y como se vio en el capítulo de caracterización estructural. Estos granos presentaban dos subestructuras claramente distintas, con diferente contraste de fase en las imágenes TEM: la frontera de grano y el interior de grano o *bulk*. Es plausible suponer que estas dos subestructuras, frontera y *bulk*, debido a su diferente naturaleza derivada de su diferente dimensionalidad, tengan propiedades magnéticas también distintas. Supongamos que cada una de ellas tiene una temperatura de orden distinta:  $T_F$  para la frontera y  $T_B$  para el interior, siendo  $T_F < T_B$ .

En la introducción a este capítulo se ilustró cuál es el origen de la descompensación de momento en un antiferromagnético policristalino. Se puso como

ejemplo el de una cadena lineal de longitud finita en la que el momento por unidad de longitud venía dado por la siguiente expresión:

$$M_L = \frac{\sum_i^N (-1)^i}{N} = \begin{cases} 0 & \text{si } N \text{ es par} \\ -1/N & \text{si } N \text{ es impar} \end{cases}$$

Siguiendo con este sencillo ejemplo intentaremos reproducir las condiciones del experimento real de medida de ciclos de histéresis. Para ello supongamos que el número de espines es impar, es decir, que estamos en el caso en el que existe descompensación de momento y que dicho momento está polarizado en una dirección determinada (en la del campo de enfriamiento, si suponemos canje ferromagnético. Todo el argumento posterior es válido considerando canje antiferromagnético) El valor del momento descompensado es entonces  $-1/N$ . Para simular el efecto del incremento de temperatura tendremos en cuenta que existen dos temperaturas de orden en el antiferromagnético tal y como se ha supuesto anteriormente. Cuando se alcance la temperatura de orden de la frontera,  $T_F$ , que es inferior a la del interior,  $T_B$ , la frontera transitará a su estado paramagnético. Esto se puede simular eliminando en la cadena unidimensional los espines de los extremos, que son los que tienen menor número de interacciones a vecinos próximos y que se identifican con la frontera de grano del cristal unidimensional. El momento neto total de esta nueva configuración será:

$$\frac{\sum_{i=2}^{N-1} (-1)^i}{N} = +\frac{1}{N}$$

Es decir, cuando se eliminan los espines de la “frontera” se produce la inversión del momento descompensado. Un esquema de esta situación se puede ver en la figura 4.1.13. Conviene resaltar a la vista de esta figura que el momento descompensado lo localizamos en uno de los extremos puesto que es en ellos donde menor número de interacciones existe.

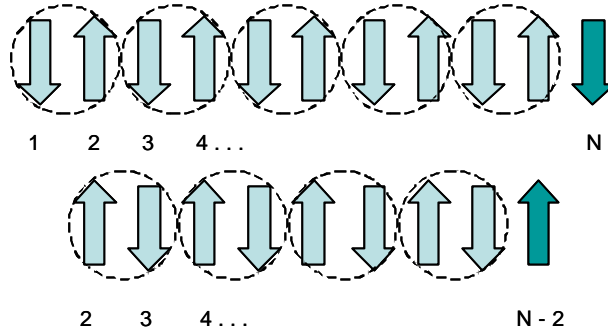


Figura 4.1.13. Inversión del momento magnético descompensado en una cadena unidimensional de espines cuando se eliminan los espines de los extremos.

El ejemplo se puede extender al caso de una red bidimensional cuadrada de dimensión  $N \times M$  en la que cada espín ocupa la posición  $(i, j)$  con momento  $(-1)^{i+j}$ . La resultante del momento magnético por unidad de área  $A$  será:

$$M_A = \frac{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^M (-1)^{i+j}}{A} = \begin{cases} 0 & \text{si } N \times M \text{ es par} \\ 1/(N \times M) & \text{si } N \times M \text{ es impar} \end{cases}$$

El límite de esta suma cuando  $N$  y/o  $M$  tienden a infinito es cero, es decir, no hay posibilidad de descompensación de momento si la red tiene un número infinito de espines. Consideremos ahora el caso finito en el que hay descompensación de momento en una determinada dirección, es decir, que el producto  $N \times M$  es un número impar. Si ahora se eliminan los espines con menor número de vecinos próximos, que son los que están situados en los vértices de la red y que tienen coordenadas  $(1,1)$ ,  $(N,1)$ ,  $(1,M)$  y  $(N,M)$  el momento neto será:

$$M_A = \frac{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^M (-1)^{i+j} - 4}{A} = \frac{-3}{N \times M}$$

De nuevo el aumento de la temperatura por encima de la temperatura  $T_F$ , es decir, la eliminación magnética de las fronteras (ver como ejemplo figura 4.1.14) provoca la inversión del momento neto no compensado. Este momento está

principalmente situado en las fronteras del grano, puesto que es allí donde el número de interacciones a próximos vecino es menor.

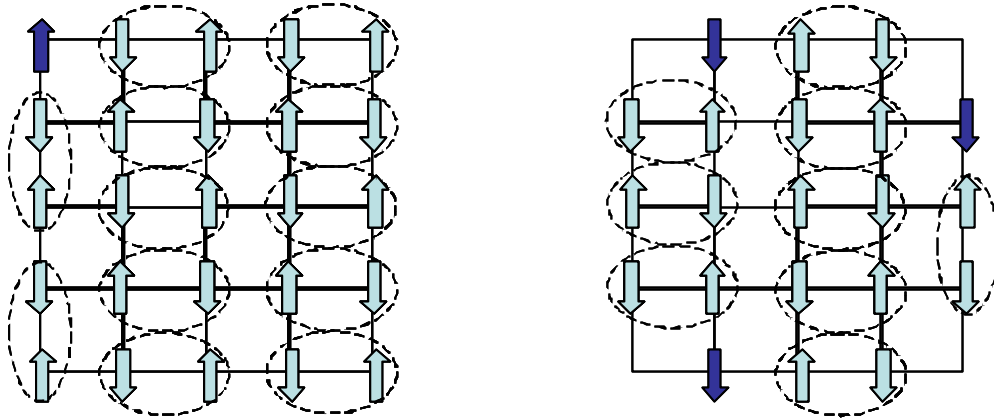


Figura 4.1.14. Inversión del momento magnético descompensado en una red cuadrada de espines en configuración antiferromagnética cuando se eliminan los espines de los extremos.

Los dos ejemplos anteriores pueden resultar bastante intuitivos para comprender cuál es el mecanismo que se propone para dar cuenta de una inversión del momento neto en una configuración antiferromagnética determinada cuando se eliminan los espines con menor número de interacciones a vecinos próximos.

#### 4.1.3.1. Modelo teórico para el cambio de signo de $H_E$

Basado en estas consideraciones anteriores relacionadas con la inversión de momento, se ha desarrollado un modelo teórico para calcular la dependencia térmica del momento descompensado en una cierta distribución de granos antiferromagnéticos bidimensionales. Lo que se pretende con este modelo es hacer una aproximación lo más realista posible a los sistemas reales estudiados. Las bicapas FM-AFM estudiadas presentaban una superficie de contacto bien definida en las imágenes TEM (ver capítulo 3). En la figura 4.1.15 se ha representado una vista idealizada de dicha intercara, en la que se produce la interacción de canje.

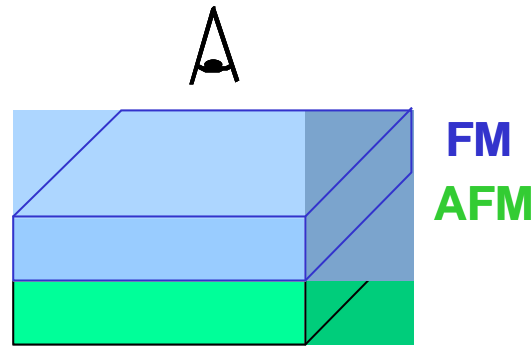


Figura 4.1.15. Esquema de la superficie de contacto FM-AFM

Para modelar esta intercara se tendrán en cuenta los resultados del estudio de caracterización estructural que se presentaron en el capítulo 3. Se vio allí que los óxidos antiferromagnéticos, óxido de cobalto y óxido de níquel, estaban constituidos por granos de simetría quasi-esférica distribuidos uniformemente. Por tanto, se considerará la superficie AFM formada por granos circulares de radio  $R$ , tal y como se muestra en la figura 4.1.16.

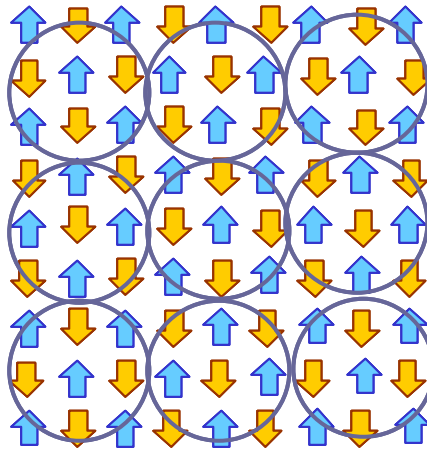


Figura 4.1.16. Distribución de granos de simetría circular en el interior AFM y vistos desde la perspectiva de la figura 4.1.15.

Dentro de cada uno de estos granos, los espines se orientan antiferromagnéticamente en una red bidimensional cuadrada como la descrita en el ejemplo anterior y cuyo parámetro de red estará referido al parámetro de red real de los materiales antiferromagnéticos. El momento neto por unidad de superficie de cada grano será:



$$m_R = \frac{\sum_{i^2+j^2 \leq R^2} (-1)^{i+j}}{pR^2}$$

En principio, para cada valor de  $R$  existen dos posibles configuraciones degeneradas que podemos caracterizar por el signo del espín situado en la posición  $(0,0)$  y que tendrán valores opuestos del momento descompensado (ver figura 4.1.17). Esta degeneración se romperá durante el proceso de enfriamiento al polarizar el momento descompensado de cada grano en la dirección del campo de enfriamiento.

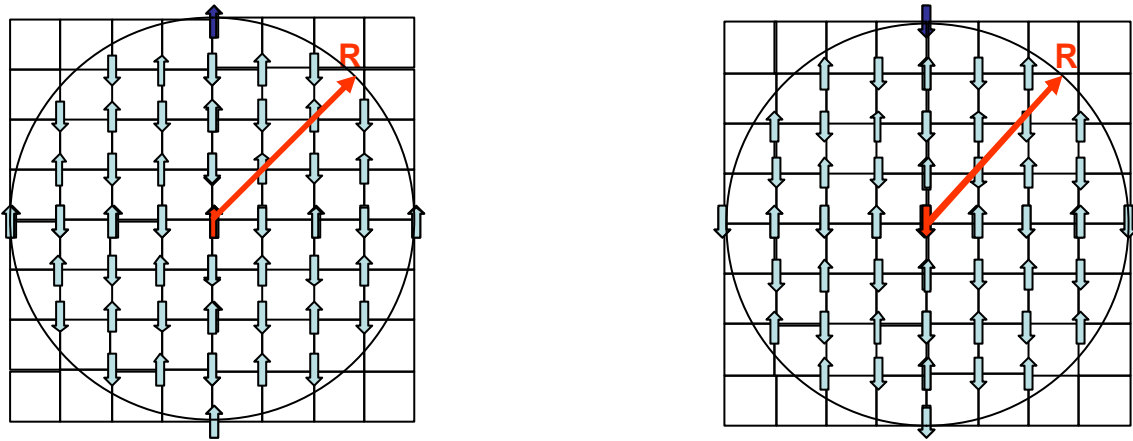


Figura 4.1.17. Dos configuraciones posibles para un grano circular de radio  $R$  con una disposición antiferromagnética de espines situados en una red bidimensional cuadrada. El momento no compensado se encuentra en la frontera y tiene signo contrario en una configuración y otra.

Simularemos el aumento de temperatura eliminando los espines de la frontera en un cristalito de estas características polarizado en una determinada dirección. Para ello consideramos cada grano de radio  $R$  formado por un círculo interior de radio  $R_{\text{mag}}$ , o radio magnético, en el que los espines están dispuestos antiferromagnéticamente y una corona exterior de anchura  $R-R_{\text{mag}}$  en la que se han eliminado los espines tal y como se representa en la figura 4.1.18.

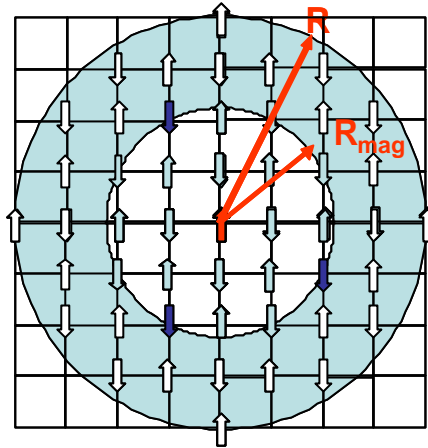


Figura 4.1.18. Efecto sobre el momento descompensado de la eliminación de los espines de la corona externa en un grano de radio externo  $R$  y radio interno (radio magnético)  $R_{mag}$ . El momento no compensado se encuentra en el borde del círculo interno.

Se define el parámetro  $t_f$  o *tamaño relativo de frontera* como:

$$t_f = R - R_{mag}$$

donde  $R$  y  $R_{mag}$  están referidos al parámetro de red. Por tanto  $t_f$  es un parámetro adimensional que representa el espesor de la corona no magnética.

Para simular el efecto del enfriamiento con campo, inicialmente, para cada valor de  $R$  impondremos la **condición de polarización**, eligiendo la configuración inicial que cumpla:

$$\sum_{i^2+j^2 \leq R^2} (-1)^{i+j} > 0$$

Una vez fijada esta configuración inicial, se aumentará paulatinamente el espesor de la frontera  $t_f$  de tal forma que se eliminen los espines de la corona exterior, siempre manteniendo la configuración inicial. De esta manera, **incrementar el espesor de la frontera** simula el efecto de **aumentar la temperatura**. Se calcula entonces el momento neto por unidad de superficie, considerada ésta la del grano completo de radio  $R$ :

$$m_{R_{mag}} = \frac{\sum_{i^2+j^2 \leq R_{mag}^2} (-1)^{i+j}}{pR^2}$$

Las muestras reales estudiadas mostraban una distribución log-normal de tamaños de grano con una cierta anchura de la forma (ver capítulo 3):

$$y = \frac{A}{\sqrt{2psR}} e^{-\frac{[\ln \frac{R}{R_0}]^2}{2s^2}}$$

que será asumida en este modelo. El momento neto total de la distribución de granos de tamaño medio  $R_0$  será la suma de todos los momentos netos de los granos de radio  $R$ , dotando a cada término del peso de la distribución log-normal:

$$M_{R_0} = k \sum_R e^{-\frac{[\ln \frac{R}{R_0}]^2}{2s^2}} \sum_{i^2+j^2 \leq R_{mag}^2} (-1)^{i+j}$$

donde  $k$  es una constante que engloba todas las constantes anteriores. De esta manera, se han calculado los valores de  $M_{R_0}$ , para distintos valores del radio magnético  $R_{mag}$  y para distintos valores de  $R_0$ , variando el parámetro  $t_f$  entre 0 y 1. De acuerdo con los resultados obtenidos en el estudio de caracterización estructural, se han tomado los siguientes parámetros de la distribución log-normal:

$$R_0 = 2.0, 2.5, 3.0, 3.5 \text{ nm} \quad s = 2 \text{ nm}$$

Estos parámetros relativos al parámetro de red del Co-O,  $a = 0,427 \text{ nm}$  [13] son:

$$R_0/a = 4.68, 5.85, 7.03, 8.2 \quad s = 0.7$$

El resultado de estos cálculos se muestra en la figura 4.1.19 donde se ha representado la dependencia de  $M_{R_0}$  con  $t_f$  para los distintos valores de  $R_0$

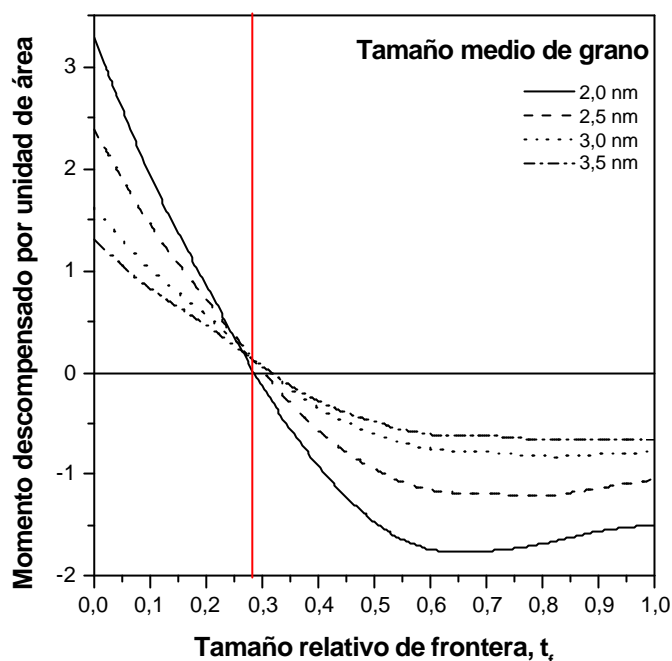


Figura 4.1.19. Momento magnético neto total por unidad de área ( $M_{R0}$ ) en función del tamaño relativo de la frontera  $t_f$  calculado para diferentes valores de  $D_0$ .

Los resultados de este cálculo muestran que en para un tamaño relativo de frontera de un parámetro de red se produce la **inversión del momento descompensado**. Además, conviene destacar también a la vista de los resultados que el efecto de inversión del momento, es decir, la variación neta de momento, es mayor cuanto menor es el tamaño medio de grano  $R_0$ . Asimismo, el momento descompensado inicial calculado para  $t_f = 0$  es máximo para el menor  $R_0$ , 2,0 nm y mínimo para el mayor  $R_0$ , 3,5 nm. Este resultado vuelve a poner de manifiesto la relación entre descompensación de momento y tamaño de grano.

Relacionaremos ahora los resultados obtenidos en el modelo arriba presentado con los datos experimentales obtenidos en los sistemas reales estudiados. Los experimentos de evolución térmica de los ciclos de histéresis mostraban la existencia de dos temperaturas de transición  $T_F$  y  $T_B$  en los dos sistemas estudiados que determinaban el cambio de signo del campo de canje y la desaparición del efecto de desplazamiento, respectivamente. Estas temperaturas  $T_F$  y  $T_B$  se van a asociar ahora a las transiciones magnéticas de la frontera de grano y del interior de grano, respectivamente. El cambio de signo de  $H_E$  a la temperatura  $T_F$  observado en los resultados experimentales se

corresponde en el modelo con el cambio de signo del momento descompensado que se produce para un tamaño relativo de frontera de 0,3. La inversión del momento del momento neto descompensado se produce cuando la frontera tiene un tamaño de aproximadamente un parámetro de red. Este resultado está en buen acuerdo con el tamaño estimado en las imágenes TEM para la frontera de grano AFM (entorno a 0,5 nm, ver capítulo 3).

Los resultados de este modelo muestran que efectivamente el efecto de inversión del momento descompensado, y por tanto, el cambio de signo del campo de canje  $H_E$ , están relacionados con la pérdida de orden magnético a una temperatura dada,  $T_F$ , en la frontera de los granos antiferromagnéticos.

## 4.2 Efectos de entrenamiento

Se llama efecto de entrenamiento o *training effect* en sistemas con anisotropía de canje a la dependencia de los campos  $H_E$  y  $H_c$  con el número de ciclos de histéresis medidos  $n$ . El efecto consiste, en general, en una disminución de  $H_E$  con el número de ciclos del sistema acoplado en canje y frecuentemente se ha encontrado una dependencia de la forma [15]:

$$H_E(n) - H_E(\infty) \propto \frac{1}{\sqrt{n}}$$

Este fenómeno, que se da fundamentalmente en sistemas policristalinos (es muy pequeño e incluso inexistente en sistemas monocristalinos [16]), parece estar vinculado a reorientaciones parciales del momento descompensado de los granos AF, que evolucionan a configuraciones energéticamente más favorables en cada inversión de la imanación del FM. Como consecuencia de dicha reordenación de momentos magnéticos, y dado que el origen del campo coercitivo en este tipo de sistemas está íntimamente relacionado con la micro-estructura del mismo, este efecto también afecta al campo coercitivo. Normalmente se produce una disminución de la coercitividad con el número de ciclos de histéresis

En este trabajo se ha hecho un estudio en profundidad de los efectos de entrenamiento, centrado en las variaciones de  $H_E$  y  $H_c$  debidas al entrenamiento de las muestras a distintas temperaturas. Los resultados se relacionarán con la estructura nanocristalina de los sistemas estudiados y con los resultados obtenidos en el estudio anterior de la evolución térmica de la anisotropía de canje. El procedimiento experimental, presentado en el diagrama 4.2 se describe a continuación.

## **Procedimiento experimental**

### **1. Temperatura inicial**

La temperatura inicial es superior a la temperatura de bloqueo del óxido correspondiente. Esta temperatura se estimó anteriormente:

$$T_B(\text{Co-O})=180 \text{ K}$$

$$T_B(\text{Ni-O})=400 \text{ K}$$

### **2. Aplicación del campo de enfriamiento $H_{enf}$**

El enfriamiento de las muestras se ha llevado a cabo en todos los casos en presencia de un campo de + 1000 Oe.

### **3. Temperatura de medida $T_{med}$**

El equipo experimental se dispuso en el modo de medida *not undercooling*, que es un modo que evita sub-enfriar la muestra, es decir, sobrepasar en el enfriamiento la temperatura de medida.

### **4. Entrenamiento de la muestra**

Se midieron para cada temperatura  $T_{med}$  tres ciclos de histéresis consecutivos con campo máximo de  $\pm 1000$  Oe aplicado en la dirección de fácil imanación de la muestra. Los resultados experimentales muestran que en los sistemas estudiados en esta memoria los efectos de entrenamiento se manifiestan principalmente en los tres primeros ciclos de histéresis medidos.

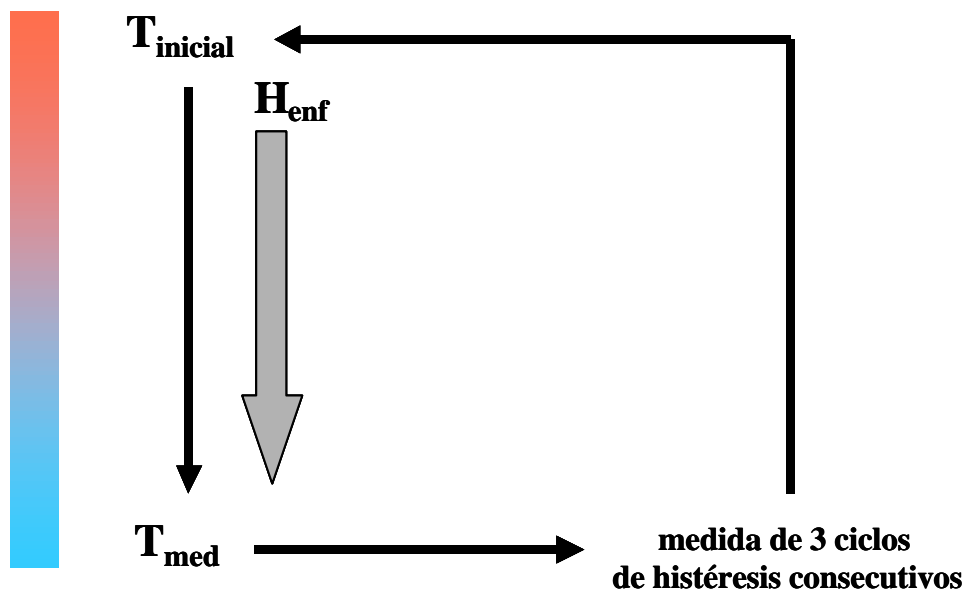


Diagrama 4.2 Esquema del procedimiento experimental para el estudio de los efectos de entrenamiento.



### 4.2.1 Sistema $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$

En la figura 4.2.1 se muestran los tres primeros ciclos de histéresis medidos a 50 K en la muestra PYC4.

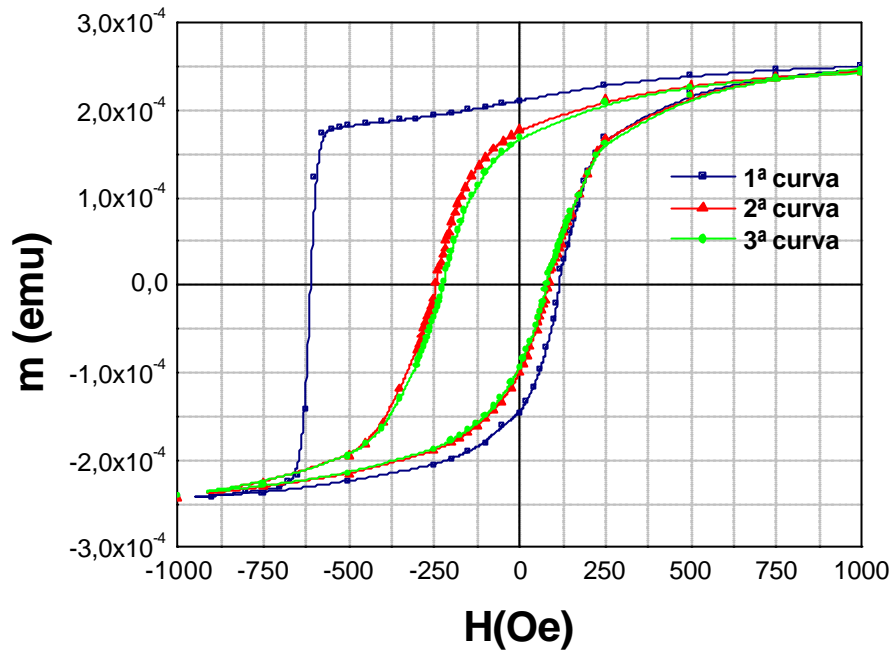


Figura 4.2.1 Tres primeros ciclos de histéresis de la muestra PYC4 realizados a  $T = 50$  K tras enfriamiento en campo  $H_{enf} = 1000$  Oe.

El primer aspecto que hay que destacar al observar estas primeras medidas a 50K, es la enorme asimetría que exhibe el primer ciclo de histéresis en las ramas de desimanación y reimanación (primera y segunda ramas, respectivamente). Esta asimetría se pone de manifiesto tanto en los valores de corte de la curva de imanación con el eje  $m = 0$  a ambos lados del origen,  $+110$  Oe y  $-625$  Oe, respectivamente, como en la forma de ambas curvas. Este hecho parece indicar un cambio en el proceso de imanación tras la primera inversión de la imanación. Este aspecto se tratará ampliamente en el capítulo siguiente. En segundo lugar, es evidente que otro efecto del entrenamiento es la reducción sucesiva del campo coercitivo así como del campo de desplazamiento. El primer ciclo presenta un campo coercitivo de  $428$  Oe y un desplazamiento de  $-242$  Oe. En el segundo y tercer ciclo los valores del campo coercitivo se ven reducidos a  $172$  Oe y  $160$  Oe respectivamente y el desplazamiento

disminuye también siendo ahora  $-77$  Oe y  $-70$  Oe, respectivamente. El segundo y tercer ciclo no presentan la asimetría en las dos ramas tan patente en el primer ciclo.

Se han estudiado los efectos de entrenamiento en el rango de temperaturas comprendido entre  $120$  K y  $200$  K. Los resultados obtenidos se han clasificado en tres rangos diferentes de temperaturas atendiendo al tipo de efecto de entrenamiento observado en el campo de canje.

a) **Primer rango de temperaturas: 120 K- 150K**

En este rango el campo  $H_E$  es **negativo** y el efecto del entrenamiento es la reducción de su valor absoluto. El campo coercitivo se reduce y el primer ciclo sigue exhibiendo asimetría en las dos ramas aunque ésta disminuye al incrementar la temperatura de medida. Como ejemplo se muestra la medida a  $120$  K en la figura 4.2.2.

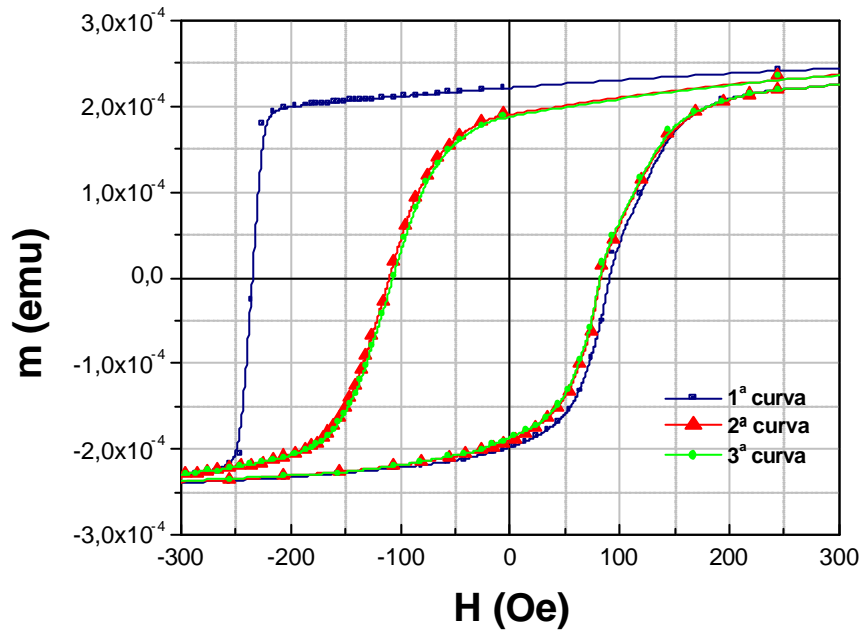


Figura 4.2.2 Tres primeros ciclos de histéresis de la muestra PYC4 realizados a  $T = 120$  K tras enfriamiento en campo  $H_{enf} = 1000$  Oe.

**b) Segundo rango de temperaturas: 155 K- 170K**

En este rango de temperaturas  $H_E$  es negativo en el primer ciclo de histéresis y el efecto más notable del proceso de entrenamiento es un **cambio de signo en  $H_E$**  de modo que en el segundo y tercer ciclos de histéresis el desplazamiento es positivo. En la figura 4.2.3 se muestra como ejemplo esta evolución en la medida que se ha realizado a 160 K. En este rango la asimetría en las dos ramas del primer ciclo se hace menos evidente.

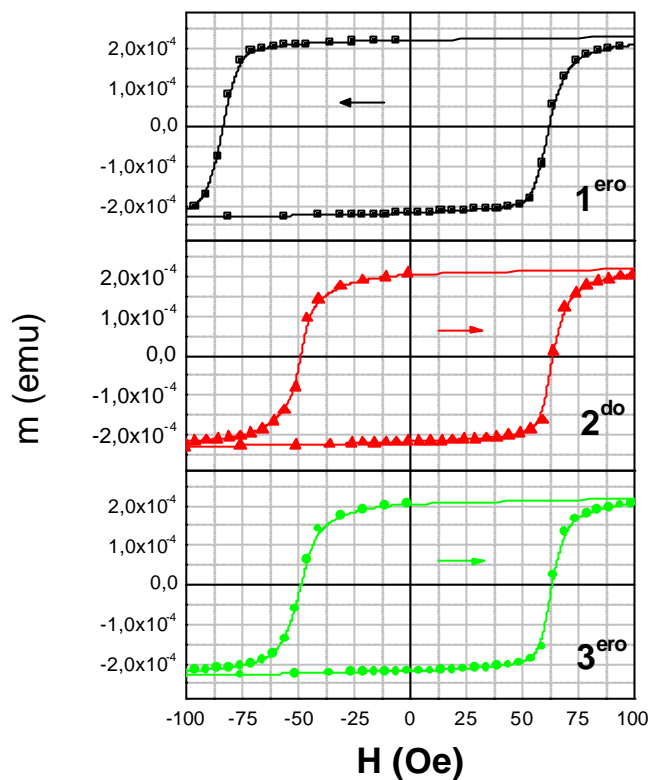


Figura 4.2.3. Tres primeros ciclos de histéresis medidos a la 160 K tras enfriamiento con campo +1000 Oe desde 300 K en la muestra PYC4.

**c) Tercer rango de temperaturas: 175 K- 200K**

En este rango el desplazamiento es siempre **positivo** y el efecto del entrenamiento es la reducción de su valor. A partir de 190 K, aproximadamente, ya no existe desplazamiento en el primer ciclo de histéresis y desaparecen los efectos de entrenamiento. La figura 4.2.4 muestra los tres ciclos de histéresis medidos a 180 K:

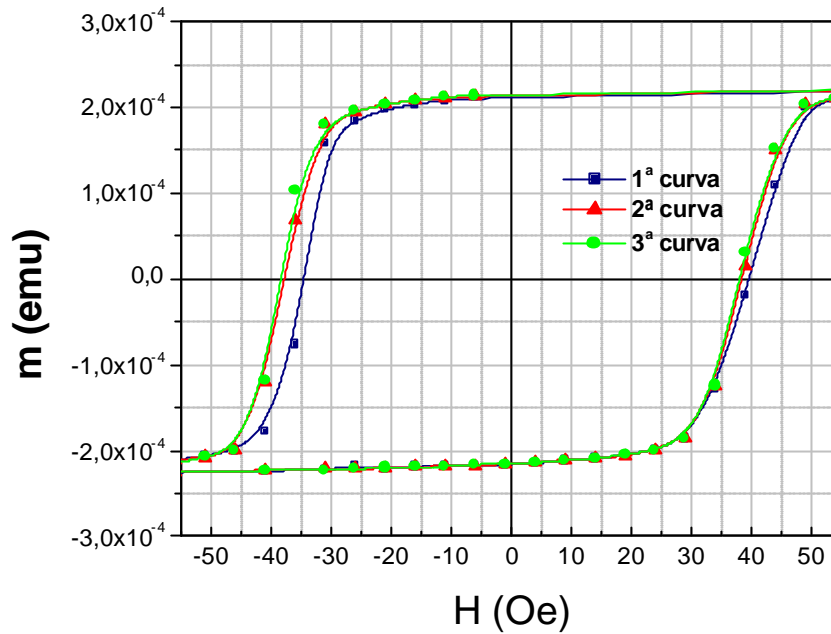


Figura 4.2.4 Tres primeros ciclos de histéresis de la muestra PYC4 realizados a  $T = 180$  K tras enfriamiento en campo  $H_{enf} = 1000$  Oe.

Todos estos resultados se han cuantificado mediante la determinación de los valores de los campos  $H_E$  y  $H_C$  para cada ciclo de histéresis y para cada temperatura de medida. El resultado se ha representado en las figuras 4.2.5 y 4.2.6 en las que se muestran los tres ciclos de histéresis consecutivos medidos a cada  $T_{med}$ .

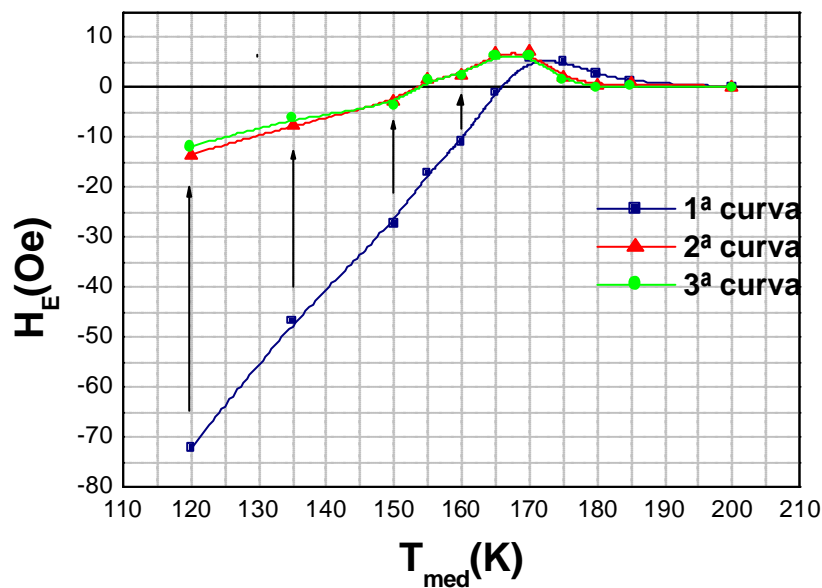


Figura 4.2.5. Valores del campo  $H_E$  en los tres primeros ciclos de histéresis medidos a la temperatura  $T_{med}$  tras enfriamiento con campo  $+1000$  Oe desde  $300$  K hasta  $T_{med}$  en la muestra PYC4.

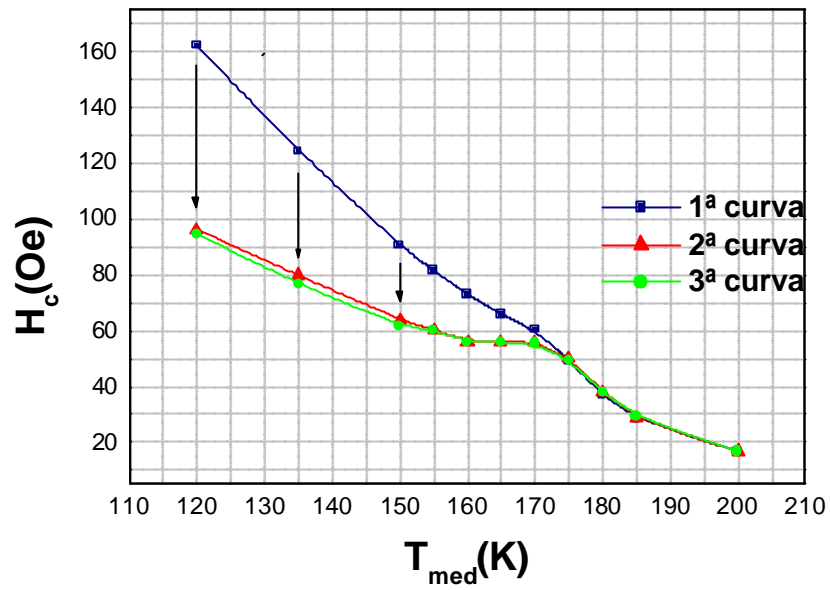


Figura 4.2.6. Valores del campo coercitivo de los tres primeros ciclos de histéresis medidos a la temperatura  $T_{med}$  tras enfriamiento con campo +1000 Oe desde 300 K hasta  $T_{med}$  en la muestra PYC4.

Los resultados anteriores muestran importantes efectos de entrenamiento en este sistema en un amplio rango de temperaturas. Estos resultados se analizarán más adelante y se interpretarán relacionándolos con aquellos obtenidos en el estudio de evolución térmica del apartado anterior.

### 4.2.2. Sistema $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ / Ni-O

De manera análoga se han estudiado los efectos de entrenamiento en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  encontrándose resultados similares a los anteriores. La figura 4.2.7 muestra los tres primeros ciclos de histéresis medidos a 50 K tras enfriamiento con campo desde 400 K medidos en la muestra NIOPY2. El desplazamiento a esta temperatura es negativo,  $-83$  Oe, y el valor del campo coercitivo es 93 Oe. El efecto del entrenamiento a 50 K es la progresiva reducción de los valores de campo coercitivo y desplazamiento desde el primer ciclo de histéresis hasta el tercero.

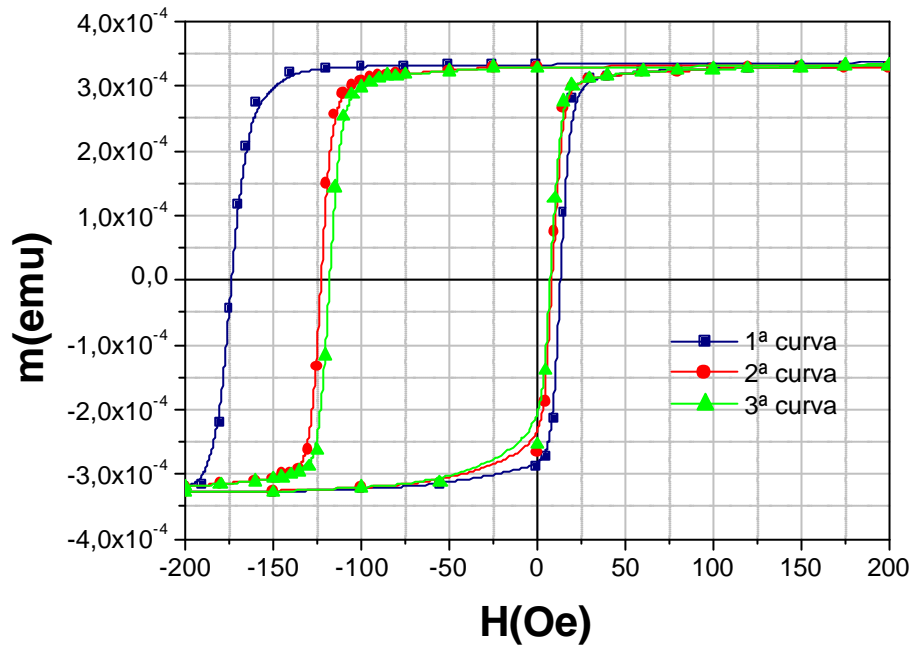


Figura 4.2.7 Tres primeros ciclos de histéresis de la muestra NIOPY2 realizados a  $T = 50$  K tras enfriamiento en campo  $H_{enf} = + 1000$  Oe.

A diferencia de la asimetría observada en las dos ramas del primer ciclo de histéresis en la muestra PYC4, en este sistema no parece existir esa gran diferencia entre ambos procesos de inversión de la imanación en el ferromagnético.

Se han estudiado los efectos de entrenamiento en esta muestra en el rango de temperaturas comprendido entre 200 K y 400 K. A la vista de los resultados obtenidos medidos a cada temperatura se pueden establecer tres rangos de temperaturas

atendiendo al efecto de entrenamiento que se produce en cada uno de ellos sobre el desplazamiento:

a) **Primer rango de temperaturas: 200 K-325 K**

En este rango de temperaturas el desplazamiento es **negativo** en los tres ciclos de histéresis y el entrenamiento reduce su valor absoluto. En la figura 4.2.8 se muestran los tres ciclos medidos a 250 K. El valor del campo coercitivo se reduce con el entrenamiento

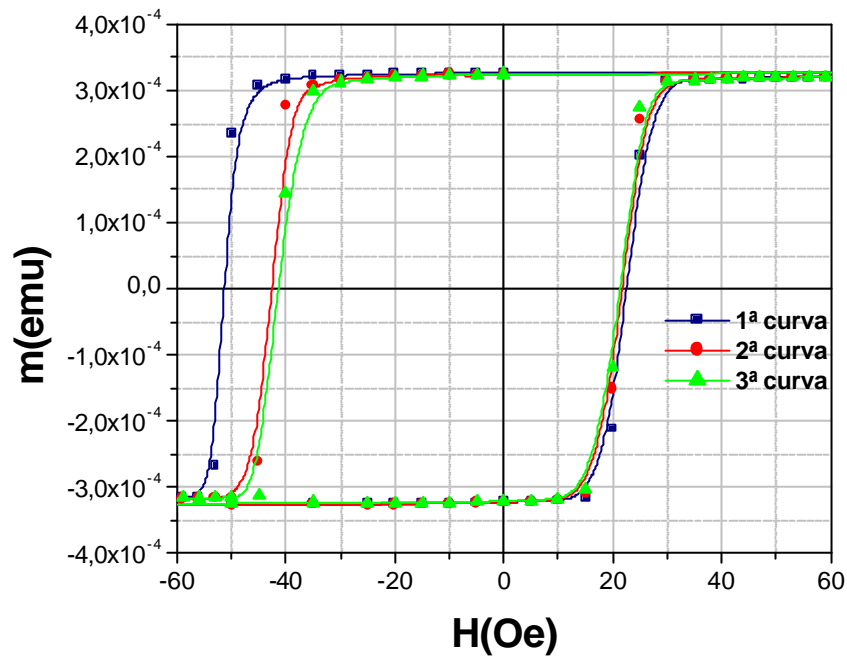


Figura 4.2.8. Tres primeros ciclos de histéresis medidos a la temperatura 250 K tras enfriamiento con campo de +1000 Oe desde 400 K en la muestra NIOPY2.

**b) Segundo rango de temperaturas: 325 K-350 K**

En este rango los valores de  $H_c$  y  $H_E$  permanecen constantes en los tres ciclos de histéresis consecutivos.

**c) Tercer rango de temperaturas: 350 K-375 K**

En este rango de temperaturas el desplazamiento de los ciclos es **positivo** en los tres casos. El efecto del entrenamiento es la progresiva reducción del valor de  $H_E$ . Con respecto al campo coercitivo en general no sufre modificación con el proceso de entrenamiento salvo un ligero aumento que experimenta a 375 K, temperatura a la cual el campo de canje se hace máximo. La figura 4.2.9 muestra las medidas realizadas a 375 K.

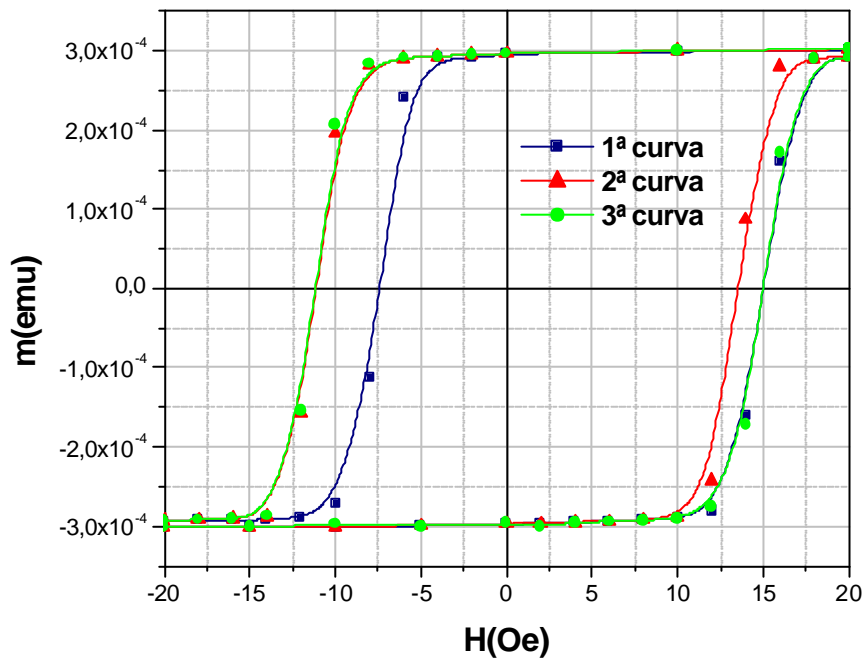


Figura 4.2.9. Tres primeros ciclos de histéresis medidos a la temperatura 375 K tras enfriamiento con campo de +1000 Oe desde 400 K en la muestra NIOPY2.

Se han calculado los valores de  $H_E$  y  $H_c$  en cada uno de los tres ciclos y para cada temperatura de medida. El resultado se ha representado en las figuras 4.2.10 y 4.2.11, respectivamente.



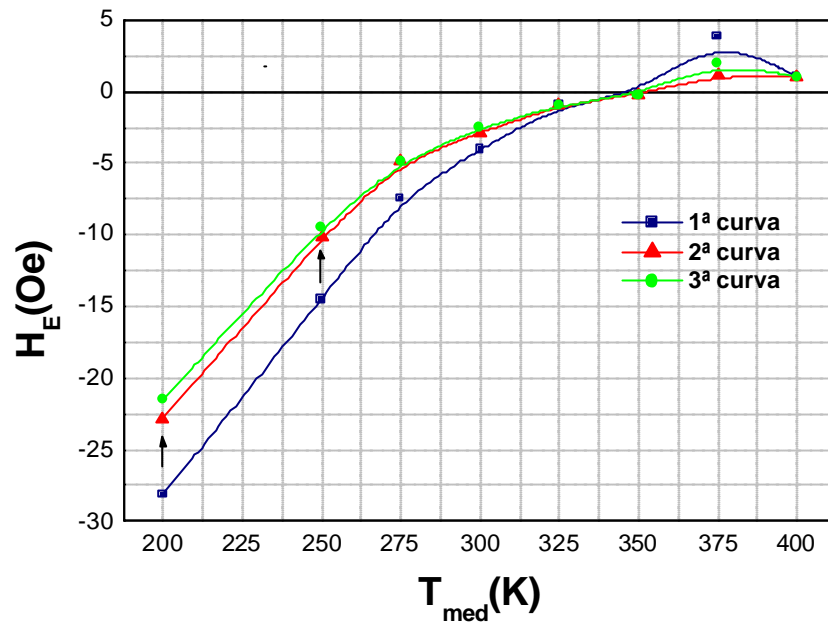


Figura 4.2.10. Valores del desplazamiento de los tres primeros ciclos de histéresis medidos a la temperatura  $T_{med}$  tras enfriamiento con campo +1000 Oe desde 400 K hasta  $T_{med}$  en la muestra NIOPY2.

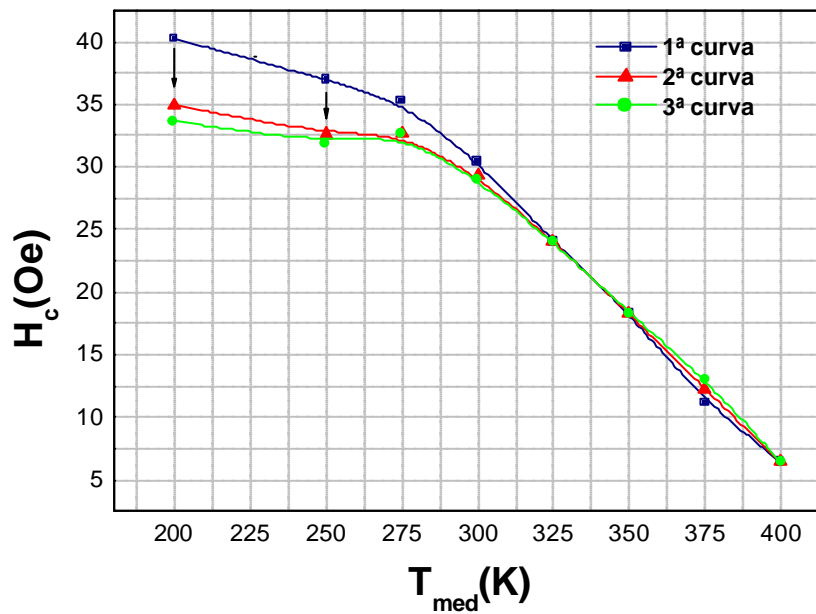


Figura 4.2.11 Valores del campo coercitivo de los tres primeros ciclos de histéresis medidos a la temperatura  $T_{med}$  tras enfriamiento con campo +1000 Oe desde 400 K hasta  $T_{med}$  en la muestra NIOPY2.

### 4.2.3. Interpretación de los resultados

En el estudio anterior se han descrito considerables efectos de entrenamiento en los dos sistemas estudiados, siendo más importante e interesante la fenomenología relacionada con el sistema con Co-O. Por ello el análisis de los resultados que se hará a continuación se centrará básicamente en lo relativo al sistema  $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$ , siendo no obstante la interpretación que se propondrá también válida para el sistema  $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$ . Las diferencias entre ambos sistemas se analizarán al final de este apartado.

Los efectos presentados anteriormente están estrechamente vinculados con la naturaleza nanocristalina de los sistemas estudiados. Como se dijo en la introducción de este capítulo los efectos de entrenamiento en sistemas policristalinos están relacionados con reorientaciones sucesivas del momento magnético descompensado del AF. Estas reorientaciones corresponden a transiciones irreversibles de los granos antiferromagnéticos que en cada inversión de la imanación encuentran posiciones más favorables energéticamente. Las inestabilidades en el AF fueron inicialmente predichas por Louis Néel en 1967 [17] como posible fuente de coercitividad en sistemas con anisotropía de canje. Posteriormente estas transiciones irreversibles fueron propuestas por Fulcomer y Charap [18] en su modelo de fluctuaciones térmicas en sistemas con acoplamiento FM-AF para explicar la dependencia del campo coercitivo con la frecuencia del campo aplicado y con la temperatura. Más recientemente, en el marco de esta teoría los procesos irreversibles en el AF han sido asumidos en otros modelos teóricos como los de Fujiwara et al. [19] o Stiles et al. [6,7] que dan cuenta del aumento de campo coercitivo en sistemas policristalinos con anisotropía de canje. En los trabajos de este último, se diferencian dos contribuciones en el AF: la primera permanece invariable tras sucesivas inversiones de la imanación del ferromagnético y es la responsable del campo de canje. La segunda sufre transiciones irreversibles, bien mediante salto de paredes formadas en el interior del grano, bien mediante reorientaciones de los granos, y da cuenta del aumento de campo coercitivo al menos en el primer proceso de inversión de la imanación.

Siguiendo la línea del análisis realizado sobre el estudio de evolución térmica de los ciclos de histéresis en el apartado anterior, el momento magnético asociado a la

frontera de grano en el antiferromagnético parece mostrar un magnetismo más débil que el interior de grano. Por tanto parece lógico pensar que estas reorientaciones de momento estén relacionadas fundamentalmente con las fronteras de grano.

A la vista de los resultados obtenidos en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$  se han establecido tres rangos de temperaturas distintos, atendiendo a la diferencia de los efectos observados. Teniendo en cuenta el estudio de la evolución térmica de los ciclos de histéresis se han considerado las temperaturas de transición  $T_B$  y  $T_N$  allí determinadas.

**a)  $T_{\text{med}} < T_F$  (  $\gg 150 \text{ K}$  )**

En este rango el efecto del proceso de entrenamiento en el sistema es la reducción del valor absoluto de  $H_E$ , siempre **negativo**, y la reducción del valor del campo coercitivo.

El proceso de enfriamiento comienza a 300 K con un campo aplicado de + 1000 Oe. En este estado inicial la capa ferromagnética se encuentra saturada magnéticamente. Se inicia el enfriamiento, y una vez alcanzada  $T_B$ , temperatura de orden del óxido de cobalto (aproximadamente 200 K, ver apartado anterior) los momentos magnéticos de cada uno de los granos antiferromagnéticos que lo conforman comienzan a formar una red antiferromagnética ordenada. Cada uno de estos granos de la intercara FM/AF tiene un momento neto descompensado localizado en la frontera de grano que se orientará preferencialmente en la dirección del campo de enfriamiento. Esta orientación preferente se produce debido a la interacción del momento AF descompensado en la intercara con el momento magnético de la capa FM.

Cuando se alcanza  $T_{\text{med}}$  y se retira el campo polarizante los granos antiferromagnéticos, en este rango de temperaturas en el que la energía térmica no es muy elevada, quedan “congelados” con su momento descompensado paralelo a la dirección de la imanación remanente en el ferromagnético. Siguiendo la línea argumental del modelo de campo coercitivo de Stiles [7], podemos suponer que en esta intercara con gran descompensación de momento hay un gran número de granos AF que se encuentran en posiciones de no equilibrio. Esto es debido a que en principio en la intercara hay una distribución al azar de ejes locales de anisotropía AF y que el proceso de enfriamiento “fuerza” a los momentos descompensados de cada grano AF a

orientarse en una determinada dirección que no es necesariamente la de los ejes locales de anisotropía.

En esta situación de no-equilibrio la intercara presenta un elevado momento neto descompensado que provocará un gran desplazamiento del primer ciclo de histéresis (-72 Oe a 120 K ). Tras la primera inversión de la imanación en el ferromagnético una parte de los granos AF evolucionan a estados energéticamente más favorables, es decir, sus momentos descompensados en la frontera de grano se reorientan parcialmente de modo que se reduzca la energía de anisotropía del grano (ver figura 4.2.12). En consecuencia el momento neto descompensado en la intercara disminuye. Dado que el desplazamiento del ciclo está relacionado con la magnitud del momento neto no compensado, esta disminución revierte en una disminución del valor de  $H_E$  en el segundo ciclo de histéresis.

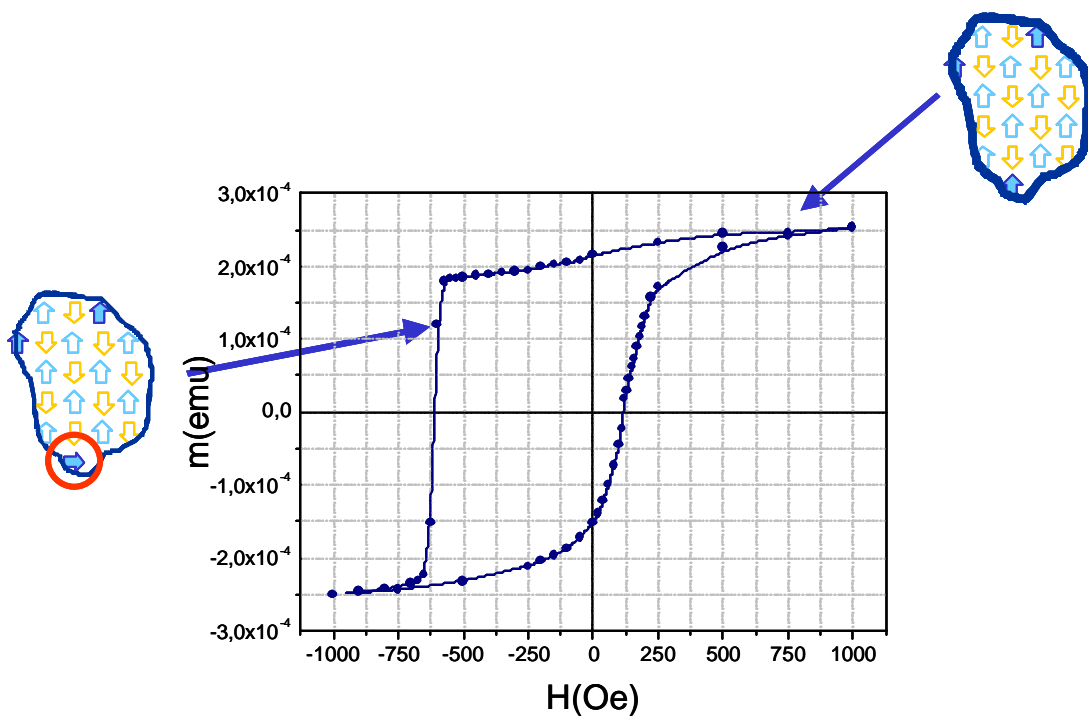


Figura 4.2.12 Reorientación parcial de momentos en las fronteras de grano antiferromagnético durante el primer ciclo de histéresis a 50 K.

Del mismo modo, durante las sucesivas inversiones de la imanación se producen nuevas reorientaciones (aunque cada vez en menor número) del momento descompensado de los granos antiferromagnéticos, que revierten en una nueva

reducción del desplazamiento en el tercer ciclo de histéresis. A partir de un cierto número de inversiones de la imanación del ferromagnético no se producen más reorientaciones en los granos AF ya que se alcanza un estado de equilibrio estable y el valor de  $H_E$  permanece constante. Esto sucede en este sistema a partir del tercer ciclo de histéresis.

La transición de los granos antiferromagnéticos a estados energéticamente más favorables, también tiene repercusión en el **campo coercitivo** tal y como predicen los cálculos de Stiles. En su modelo, sin embargo, no se mencionan los efectos de entrenamiento por lo que los resultados de sus cálculos son válidos para el primer ciclo de histéresis y dan cuenta del aumento de campo coercitivo en esta primera curva. Las transiciones de los granos AF, que se producen mayoritariamente en la primera rama del ciclo de histéresis, son procesos irreversibles que contribuyen al aumento del campo coercitivo tan sólo en el primer ciclo de histéresis. Una vez estas transiciones se producen no vuelven a producirse en posteriores inversiones de la imanación y por tanto no contribuirán al campo coercitivo en posteriores ciclos de histéresis. Como el número de transiciones irreversibles disminuye con el número de inversiones producidas, el campo coercitivo disminuye progresivamente en cada ciclo de histéresis. La estabilización de los granos AF produce la estabilización del valor de  $H_c$  a partir del tercer ciclo de histéresis.

La magnitud del efecto tanto en el campo de canje como en el campo coercitivo, es decir, la variación relativa de los valores de  $H_c$  y  $H_E$  entre el primer y el tercer ciclos es menor cuanto mayor es  $T_{med}$ . Esto es debido a que cuanto mayor es la temperatura de medida, mayor es la energía térmica del sistema y menor número de granos AF se encuentran fuera de sus posiciones de equilibrio.

**b)  $T_F (\gg 150K) < T_{med} < T_{m\acute{a}x} (\gg 170K)$**

En este rango de temperaturas el efecto del entrenamiento presenta un comportamiento especial: se produce un **cambio de signo** en  $H_E$ . El proceso de enfriamiento acaba en una temperatura en la que ya se ha establecido el orden antiferromagnético en los granos, pero que es ligeramente superior a la temperatura de orden de las fronteras. Debido a la interacción con el momento del ferromagnético, existe inmediatamente después de enfriar el sistema un cierto momento descompensado

en las fronteras que provoca el desplazamiento negativo del primer ciclo de histéresis. En este estado, aun presentando orden magnético, las fronteras están alejadas del equilibrio termodinámico. La primera inversión de la imanación del ferromagnético provee al sistema de la energía suficiente para que se produzca la relajación de las fronteras a su estado no magnético. De esta manera desaparece el momento descompensado de la frontera y aparece el efecto del momento descompensado presente en el interior del grano, que como se vio en el apartado anterior, puede tener sentido opuesto. Este momento descompensado en sentido inverso hace que el segundo ciclo de histéresis se encuentre desplazado hacia campos positivos (ver figura 4.2.13). En este punto el sistema se encuentra ya en un estado más relajado y no se producen cambios significativos en  $H_E$  tras los sucesivos ciclos de histéresis.

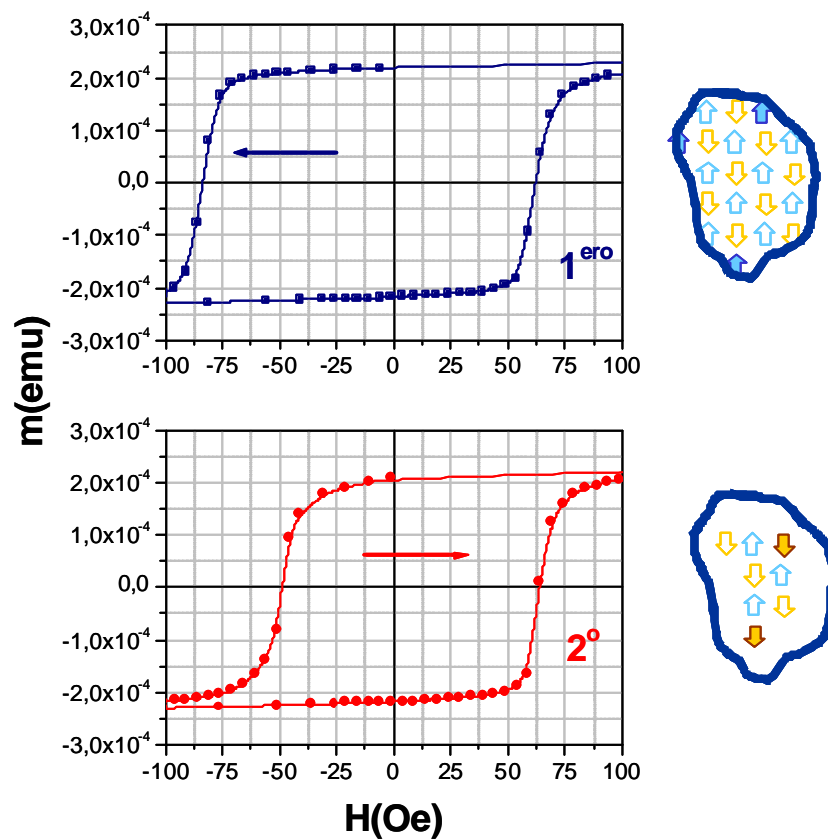


Figura 4.2.13. Transición de la frontera de grano al estado paramagnético tras el primer ciclo de histéresis a 160 K.

En cuanto al campo coercitivo, se produce una reducción de su valor de nuevo causada por la transición irreversible de las fronteras que contribuyen en el primer ciclo de histéresis y no en los sucesivos. Así el campo coercitivo se estabiliza tras el primer ciclo de histéresis.

c)  **$T_{\text{máx}} (\gg 170\text{K}) < T_{\text{med}} < 200 \text{ K}$**

En este rango de temperaturas  $H_E$  es siempre es **positivo** y el efecto del entrenamiento es la reducción de su valor. Con respecto al campo coercitivo, en este rango no se observan variaciones significativas durante el proceso de entrenamiento. En este caso la temperatura de medida es bastante superior a  $T_F$ , temperatura de orden de la frontera, (superior a  $T_{\text{máx}}$ , temperatura a la que se medía el valor máximo del desplazamiento positivo) aunque todavía inferior a la temperatura de bloqueo del Co-O. Durante el enfriamiento, los granos se ordenan antiferromagnéticamente cuando se alcanza  $T_B$  de manera que, como en los casos anteriores, existe un momento descompensado en la dirección del campo de enfriamiento localizado en la frontera. Una vez alcanzada  $T_{\text{med}}$ , cuando se retira  $H_{\text{enf}}$ , la energía térmica es suficiente para provocar la inmediata relajación de la frontera, que transita a su estado no magnético propio de esta temperatura. En este caso no es necesaria ni siquiera la primera inversión de la imanación del ferromagnético para que se produzca esta transición de la frontera y por tanto estas reorientaciones de momento en las fronteras apenas contribuyen al campo coercitivo.

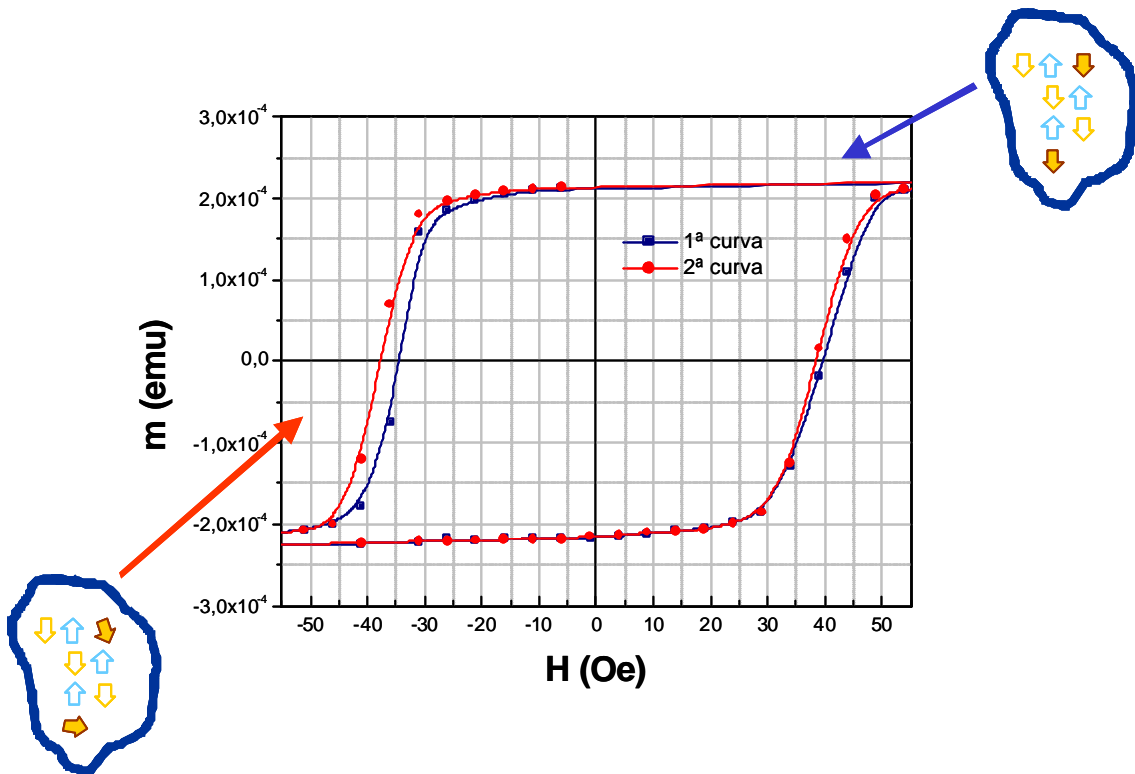


Figura 4.2.14. Reorientación de momentos en el interior de grano antiferromagnético tras el primer ciclo de histéresis a 180 K.

En esta situación la configuración de granos AF presente al retirar el campo de enfriamiento es tal que existe un momento neto descompensado en la dirección del campo de enfriamiento pero con **sentido opuesto** al inicialmente establecido durante el enfriamiento. Conviene recordar que, cuando la frontera pierde el orden magnético el momento descompensado del interior se encuentra en sentido opuesto. Este momento descompensado hace que el primer ciclo de histéresis esté desplazado hacia campos positivos. Análogamente a lo que ocurría en el primer rango de temperaturas, a la temperatura de medida, una cierta proporción de los granos AF está en posiciones de no equilibrio con respecto a sus propios ejes de anisotropía (distribuidos en principio al azar) y tras la primera inversión de la imanación evolucionan a estados más favorables energéticamente reorientando sus momentos descompensados, que en este caso provienen del interior de grano. Esto hace que haya una reducción del momento neto en la intercara que repercute en el desplazamiento del segundo ciclo de histéresis, que se ve reducido. Esta situación se ha esquematizado en la figura 4.2.14. Durante el segundo ciclo de histéresis se producen nuevas reorientaciones, aunque en menor número, que hacen que se reduzca nuevamente el momento descompensado y por tanto el



desplazamiento del tercer ciclo de histéresis. A partir de este punto este proceso se estabiliza y ya no se producen transiciones apreciables, de manera que  $H_E$  alcanza un valor constante a tras el tercer ciclo de histéresis.

Estas reorientaciones de momento producen, sin embargo, reducciones muy pequeñas del campo de canje: obsérvese en la figura 4.2.5 que la máxima variación que se produce es inferior a 5 Oe. Esto significa que estos procesos irreversibles conllevan una muy pequeña variación de energía que no afecta en ningún caso al campo coercitivo de manera apreciable.

Los resultados obtenidos en el sistema  $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$  son similares a los obtenidos en el sistema  $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$  aunque se han observado algunas diferencias. En general los efectos de entrenamiento son menores en este sistema, es decir, se observan variaciones menores de  $H_E$  y  $H_c$  así como menor asimetría entre las dos ramas del primer ciclo de histéresis. Otra de las diferencias observadas en este sistema es que no existe una región de temperaturas en la que el entrenamiento tenga el efecto de invertir el signo del momento descompensado y por tanto el del desplazamiento de los ciclos de histéresis. Sin embargo hay una región intermedia en que  $H_c$  y  $H_E$  no se ven modificados por el entrenamiento. Varios aspectos, que se enumeran a continuación, pueden estar influyendo en estas diferencias:

- En primer lugar el tamaño medio de grano del óxido de níquel es mayor que el del óxido de cobalto (5,0 nm frente a 3, 7 nm, ver capítulo 3). Como se ha dicho, la magnitud del momento descompensado en la frontera de grano es inversamente proporcional al tamaño de grano. Así es lógico pensar que en la intercara el momento neto descompensado es menor en el caso del óxido de níquel que en el óxido de cobalto. Esto además se puede ver claramente si se comparan los primeros ciclos de histéresis medidos a 50 K en ambos sistemas. Mientras que en el sistema  $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$  el campo de desplazamiento está en torno a -240 Oe, este valor es tan sólo -80 Oe en el caso del sistema  $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$ .
- En segundo lugar, la constante de anisotropía del óxido de cobalto ( $k_{Co-O}(77\text{ K})=5\cdot 10^6\text{ erg/cm}^3$  [20]) es mayor que la del óxido de níquel ( $k_{Ni-O}(77\text{ K})=8\cdot 10^5\text{ erg/cm}^3$  [21]). Este hecho ya se reflejaba en los valores del campo coercitivo y del desplazamiento que se obtuvieron en el estudio de evolución

térmica de los ciclos de histéresis. Si se comparan los valores representados en las figuras 4.1.4 y 4.1.5 correspondientes al sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$  y los de las figuras 4.1.11 y 4.1.12 relativos al sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  se observa que en el rango comprendido entre 50 K y 150 K (rango en el que en ambos sistemas está bien establecida la anisotropía de canje)  $H_c$  y  $H_E$  son siempre mayores en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$  para igual temperatura. Por tanto, dado que la anisotropía es menor en el sistema con óxido de níquel y que los efectos de entrenamiento están vinculados a reducciones sucesivas de ésta, es lógico que los efectos sean mayores en el caso del sistema con óxido de cobalto.

- El rango de temperaturas en el que se produce el cambio de signo de  $H_E$  en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  es superior (300-400 K) al del sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$  (150 K-200 K) y por tanto el efecto de la energía térmica es mayor, siendo el orden magnético más débil tanto en la frontera como en el interior de los granos AF.

## 4.4 Conclusiones

En este capítulo se ha estudiado la influencia que la estructura nanocristalina tiene en sistemas con anisotropía de canje [22]. En el capítulo anterior, en el que se caracterizaban estructuralmente los sistemas estudiados, se mostró que los óxidos AF estaban formados por granos cristalinos de un tamaño medio en torno a 4-5 nm. Además, se ha visto una clara diferencia estructural entre las fronteras de grano, que presentaban un espesor medio de alrededor de 0,5 nm, y el interior de los cristalitos. Aquellos resultados han mostrado tener un papel fundamental en las propiedades magnéticas de los sistemas cuando en ellos se induce anisotropía de canje. Así los principales resultados obtenidos se resumen a continuación:

- Los dos sistemas estudiados presentan anisotropía de canje en el rango de temperaturas inferiores a  $T_B$ , temperatura que ha sido determinada a partir del análisis de la evolución térmica de los ciclos de histéresis. Las temperaturas determinadas son las siguientes:

$$T_B = 180 \text{ K} \quad \text{en el sistema Ni}_{80}\text{Fe}_{20} / \text{Co-O}$$

$$T_B = 400 \text{ K} \quad \text{en el sistema Ni}_{80}\text{Fe}_{20} / \text{NiO}$$

- La dependencia térmica del campo de canje  $H_E$  presenta un **cambio de signo** que se produce a la temperatura  $T_F$  siendo ésta:

$$T_F = 150 \text{ K} \quad \text{en el sistema Ni}_{80}\text{Fe}_{20} / \text{Co-O}$$

$$T_F = 300 \text{ K} \quad \text{en el sistema Ni}_{80}\text{Fe}_{20} / \text{NiO}$$

Este cambio de signo se relaciona con un cambio de signo del momento no compensado neto que interacciona con el FM.

- Se ha propuesto un mecanismo para explicar el cambio de signo del momento descompensado a una cierta temperatura basado en la existencia de dos subestructuras en los granos AF, frontera e interior, con diferentes temperaturas de

orden. Se identifica la temperatura  $T_B$  con la temperatura de orden del **interior de grano** y la temperatura  $T_F$  con la temperatura de orden de la **frontera de grano** de los granos AF. La transición completa al estado no magnético de la frontera de grano permite la aparición del efecto del momento descompensado del interior de grano, que tiene signo opuesto y produce el desplazamiento positivo del ciclo de histéresis.

- Se ha desarrollado un modelo teórico en el que el que la intercara AF se modela mediante una distribución log-normal de granos circulares independientes. En cada uno de los granos AF los espines están dispuestos antiparalelamente en un red bidimensional cuadrada. Inicialmente se “polariza” el momento descompensado de la distribución en una dirección. El efecto de la temperatura se simula mediante la pérdida de orden magnético en una corona circular exterior. El modelo predice el cambio de signo del momento neto de la distribución de granos cuando el tamaño de la frontera no magnética es del orden de un parámetro de red (0,427 nm en el caso del Co-O). Este resultado esté en buen acuerdo con la estimación del tamaño de frontera a partir de las imágenes TEM.
- Los efectos de entrenamiento a baja temperatura ponen de manifiesto la existencia de una intercara con un momento descompensado muy elevado formada por una gran cantidad de granos AF en configuraciones energéticas inestables. Las sucesivas inversiones del momento ferromagnético provocan transiciones irreversibles de los granos AF a estados energéticamente más favorables que revierten en una reducción del momento neto descompensado en la intercara. Este hecho tiene como consecuencia una gran reducción de los valores de  $H_C$  y  $H_E$  en ciclos de histéresis consecutivos. El efecto es mayor en el sistema  $Ni_{80}Fe_{20}$  / Co-O puesto que es el que tiene menor tamaño de grano AF y mayor anisotropía local.
- En el sistema  $Ni_{80}Fe_{20}$  / Co-O el entrenamiento de la muestra a temperaturas en torno a  $T_F$  provoca la transición de la frontera de grano a su estado no magnético induciendo el **cambio de signo de  $H_E$** . En este rango de temperaturas la frontera tiene un magnetismo muy débil y es suficiente la primera inversión del momento ferromagnético para provocar su transición completa.

- A temperaturas  $T_{\text{med}}$  superiores a  $T_F$  al retirar el campo de enfriamiento se produce la relajación inmediata de la frontera a su estado no magnético. Por ello, en este rango de temperaturas el primer ciclo presenta ya desplazamiento positivo y el efecto del proceso de entrenamiento es la progresiva reducción del campo de canje  $H_E$ .

## Bibliografía

- [1] K. Takano R.H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, and G. Thomas, Phys. Rev. Lett. **79**, 1130 (1997)
- [2] K. Takano R.H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, and G. Thomas, J. Appl. Phys. **83**, 6888 (1998)
- [3] D. Martien, K. Takano, A. E. Berkowitz and D. J Smith, Appl. Phys. Lett. **74** (9), 1314 (1999)
- [4] J. Nogués, D. Lederman, T, J. Moran and Ivan K. Schuller K.V. Rao, Appl. Phys. Lett. **68** (1996) 3186
- [5] B.D. Cullity, “*Introduction to magnetic Materials*”, Addison-Wesley Publishing Company, 1972
- [6] M.D. Stiles, R. D. McMichael, P.J. Chen and W. F. Egelhoff, Jr., Phys. Rev. B **58** 8605(1998) 3722
- [7] M.D. Stiles and R. D. McMichael, Phys. Rev. B **59** 3722(1999)
- [8] J. Nogués, D. Lederman, T.J. Morán and I.K. Schuller, Phys. Rev. Lett. **76** (24) 4624 (1996)
- [9] J. Nogués, C. Leighton and I.K. Schuller, Phys. Rev B, **61** (2) 1315 (2000)
- [10] F. T. Parker, K. Takano and A. E. Berkowitz, Phys. Rev B, **61** (2) 866 (2000)
- [11] E. Navarro, A. Hernando, A. R. Yavari, D. Fiorani, M. Rosenberg, J. Appl. Phys. **86**, 2166 (1999)
- [12] L. del Bianco, C. Ballesteros, J. M. Rojo, A. Hernando, Phys. Rev. Lett. **82**, 4500 (1998)
- [13] A. Hernando, I. Navarro, C. Prados, D. García, M. Vázquez, J. Alonso. Phys Rev. B 1996;**53**(13):8223.
- [14] C. Kittel, “*Introducción a la física del estado sólido*”, Editorial Reverte, 1993.
- [15] C. Schlencker, D. Paccard, J. de Phys. (France) **28**(1967) 611.
- [16] T.J. Morán, J.M. Gallego, I.K. Schuller, J. Appl. Phys. **78** (1995) 1887
- [17] L. Néel, Ann. Phys. (Paris) **2**, 61 (1967). Ed. N. Kurti (Gordon and Breach, New York, 1988), p. 469.
- [18] E. Fulcomer and S. H. Charap, J. Appl. Phys. **43** (10), (1972) 4190

- [19] H. Fujiwara, K. Nishioka, C. Hou, M. R. Parker, S. Gangopadhyay and R. Metzger, *J. Appl. Phys.* 79 (8), (1996) 6286
- [20] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean. *Physical Review*, 105, 3 (1957)
- [21] A. F. Khapikov, J. W. Harrell, H. Fujiwara, C. Hou, *J. Appl. Phys.* 87 (9), (2000) 4954
- [22] C. Prados, E. Pina, A. Hernando and A. Montone, *Phys. Rev. B*, (en revisión).

# Capítulo 5

---

## Relajación magnética y magnetorresistencia

El estudio de las propiedades de relajación magnética y de transporte en un sistema magnético constituye una importante vía para la determinación de los procesos de imanación que tienen lugar en él. En ese sentido, en este capítulo, a través de este tipo de medidas se van a obtener importantes y novedosas conclusiones sobre los procesos de imanación que tienen lugar en sistemas nanocristalinos con anisotropía de canje. Si bien en el capítulo anterior se estudió la evolución térmica del campo de canje y el campo coercitivo, independientemente del mecanismo que producía la inversión de la imanación en el ferromagnético, en este capítulo el estudio se centrará, precisamente, en la determinación de la naturaleza del proceso de imanación en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  / Co-O a diferentes temperaturas y en las diferentes ramas del ciclo de histéresis

Desde el descubrimiento de la anisotropía de canje en 1961 [1] se han hecho continuados esfuerzos por esclarecer el mecanismo de inversión de la imanación en este tipo de sistemas. Inicialmente se propuso la rotación uniforme de la imanación del FM, mecanismo que posteriormente ha sido descartado por fallar en las predicciones de los valores de  $H_E$  y  $H_c$ . Como alternativas, se han propuesto otros mecanismos que involucran la formación de paredes de dominio en el AFM [2,3,4] sobre los que la imanación del FM se comporta coherentemente.

Desde el punto de vista experimental, con el desarrollo de nuevas técnicas de visualización de dominios, se han hecho numerosos trabajos en diferentes sistemas con anisotropía de canje. Los trabajos de Nikitenko et al. [5] sobre la asimetría en los procesos de imanación en sistemas policristalinos preparados con defectos, muestran mediante técnicas de Microscopía Óptica de efecto Faraday la formación de paredes de dominio con diferentes centros de nucleación dependiendo de la rama del ciclo de histéresis estudiada. Este comportamiento se comprende bien en estas muestras policristalinas atendiendo a la naturaleza unidireccional de la anisotropía de canje. I.K. Schuller [6] et al., mediante la técnica de Reflectometría de neutrones polarizados, determinan en muestras monocristalinas macladas una cierta microestructura de



dominios, cuya disposición depende de la dirección del campo de enfriamiento y de la rama del ciclo estudiada. Los diferentes procesos de inversión de la imanación que se observan, son consecuencia de las características particulares de las muestras estudiadas, así como de la dirección particular de medida. En los trabajos de X. Portier et al. [7] se han detectado también, mediante Microcopía Lorentz Electrónica de Transmisión, diferencias en los procesos de imanación en las diferentes ramas del ciclo de histéresis. Estos autores observan la formación y crecimiento de un dominio invertido en la rama de desimanación, mientras que en la rama de reimanación observan primeramente la rotación de la imanación y posteriormente la nucleación de un dominio invertido. La técnica de Microscopía de Emisión de Fotoelectrones también ha sido utilizada para la observación de dominios en bicapas Co/LaFeO<sub>3</sub> [8]. Aunque esta técnica ha sido probada con éxito en este sistema, este estudio no arroja conclusiones concretas sobre el proceso de inversión de la imanación.

Como se ha visto, la mayoría de los trabajos arriba citados se centran en el estudio de las asimetrías presentes en los ciclos de histéresis. No obstante, en ninguno de ellos se hace alusión a los efectos de entrenamiento que suelen tener lugar en los sistemas con anisotropía de canje, especialmente en los policristalinos. Una de las características presentes en los sistemas que presentan efectos de entrenamiento [9,10] es, precisamente, la asimetría del primer ciclo de histéresis. Parece evidente, por tanto, que el mecanismo de imanación cambia con el entrenamiento de los sistemas, por lo que convendría diferenciar los mecanismos que tienen lugar antes y después del entrenamiento.

En este sentido en este capítulo se desarrollará un estudio de los procesos de inversión de la imanación a diferentes temperaturas en el sistema Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> / Co-O, complementario al de los efectos de entrenamiento del capítulo anterior. Allí se vio cómo en este sistema, tras el proceso de enfriamiento con campo, se inducía una relativamente elevada descompensación de momento en la intercara AF/FM, que originaba valores de H<sub>E</sub> tan altos como -300 Oe en el primer ciclo de histéresis medido a 50 K. Además, el primer ciclo exhibía una gran asimetría especialmente a bajas temperaturas, que se reducía mediante el entrenamiento de la muestra, estabilizándose de esta manera el mecanismo de inversión de la imanación.

En este capítulo se pretende determinar el mecanismo general de imanación en un sistema nanocristalino con anisotropía de canje, y en particular el que tiene lugar en el estado metaestable en que se encuentra el sistema antes de su entrenamiento.

## 5.1 Relajación magnética

Se entiende por relajación magnética la variación temporal de la imanación de un material a una temperatura y un campo magnético externo fijos. Street y Wooley [11] estudiaron este fenómeno en imanes permanentes de Alnico y asociaron este cambio de la imanación a fluctuaciones térmicas suficientemente energéticas como para provocar la inversión irreversible de la imanación en pequeñas zonas del material llamadas *volúmenes de activación*. La energía necesaria para la inversión de la imanación en cada volumen de activación se llama *energía de activación*. Esta barrera energética será superada cuando la energía térmica sea mayor que la energía de anisotropía del volumen de activación o partícula. La probabilidad para que esto ocurra puede ser expresada por el factor de Boltzmann:

$$e^{-KV/k_B T}$$

donde  $V$  es el volumen de la partícula,  $K$  es la constante de anisotropía,  $k_B$  la constante de Boltzmann y  $T$  la temperatura. Así, la variación temporal de  $M$  puede ser expresada según la siguiente expresión:

$$-dM/dt = f_0 M e^{-kV/k_B T} = M/t$$

donde se define:

$$t^{-1} = f_0 \exp(-kV/k_B T)$$

[5.1]

como el *tiempo de relajación o vida media*, y  $f_0$  es el *factor de frecuencia* que se suele considerar constante e igual a  $10^9 \text{ s}^{-1}$ .

Existen varios modelos matemáticos que dan cuenta de la relajación magnética en diferentes sistemas y que proponen diferentes distribuciones para el tiempo de relajación. El más sencillo es el que predice un decaimiento exponencial de la imanación con el tiempo según la ley de Arrhenius-Néel:

$$M(t) = M(0)e^{-t/\tau} \quad [5.2]$$

En este modelo se propone un único valor del tiempo de relajación y por tanto se considera una función univaluada de la energía de activación. En un sistema de partículas, todas tendrían igual volumen y el mismo valor para la barrera de energía por lo que presentan la misma probabilidad de transición.

Otros sistemas presentan comportamientos distintos debido a la existencia de una cierta distribución de tiempos de relajación, que puede ser consecuencia de una distribución de volúmenes, de anisotropías o de centros de nucleación de paredes de dominios magnéticos. En el caso de una distribución constante, tal y como proponen Street y Wooley e integrando sobre la distribución de  $\tau$  se obtiene una ley logarítmica:

$$M(t) = C \pm S \ln(t) \quad [5.3]$$

donde C y S son parámetros ajustables. El parámetro S se llama *viscosidad magnética* y depende del campo aplicado H. Este comportamiento logarítmico también es predicho por O'Grady [12], suponiendo una distribución constante de volúmenes de partícula.

A partir del parámetro S es posible obtener un valor del volumen de activación a través de la siguiente relación [13]:

$$\frac{S}{c_{irr}} = \frac{k_B T}{VM_s} \quad [5.4]$$

donde  $\chi_{irr}$  es la susceptibilidad irreversible. La susceptibilidad irreversible da una medida de la distribución de barreras energéticas que hay en el sistema por lo que está relacionada con la evolución temporal de la imanación, cuyo origen es la activación térmica de los volúmenes de activación. Esta activación térmica confiere a las partículas, en el caso de un sistema de partículas, la energía suficiente para superar la altura energética de dichas barreras. Los valores máximos de S y  $\chi_{irr}$  reflejan el

comportamiento de la mayoría de las barreras y se producen generalmente en torno al campo coercitivo. Es decir, el campo coercitivo caracteriza la inversión de la mayoría de los granos magnéticos en la muestra. Esta definición de  $V$  puede considerarse como el tamaño medio de grano magnético involucrado en la inversión de la imanación.

Más recientemente [14], se han propuesto otras distribuciones, como la función gamma, que dan lugar a términos logarítmicos no lineales. Así en el caso más general, en el que existiera una distribución más o menos estrecha de energías, se obtendría una serie de potencias en  $\ln(t)$ .

La relajación magnética también se ha estudiado en sistemas con anisotropía de canje [15] en los que se observa generalmente un comportamiento logarítmico de la imanación frente al tiempo para campos en torno al campo coercitivo. En algunos trabajos [16], se han detectado diferencias en la relajación magnética entre una rama del ciclo y otra, lo que pone de manifiesto una asimetría en el proceso de imanación, que ya se había observado en otro tipo de medidas.

El análisis de las propiedades de relajación magnética de un sistema puede proporcionar información acerca de la microestructura del mismo, tamaños de partículas, energías de activación, así como de los mecanismos de inversión de la imanación. Desde el punto de vista de las aplicaciones interesa sobre todo conocer e incluso controlar los tiempos de relajación para fabricar dispositivos lo más estables posible.

El estudio de la relajación magnética que se ha llevado a cabo en este trabajo está motivado, en buena parte, por los interesantes resultados obtenidos en el estudio de los efectos de entrenamiento. Uno de estos resultados es la gran asimetría observada a baja temperatura en las dos ramas del primer ciclo de histéresis tras el enfriamiento con campo, y la disminución progresiva de dicha asimetría que se produce tras los ciclos de histéresis subsecuentes. La medida de la relajación va a proporcionar más información a la hora de identificar y caracterizar los procesos de imanación que tienen lugar en estas circunstancias.

El estudio se ha centrado en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (20 nm) / Co-O (20 nm) ya que es el que presenta una fenomenología más interesante en cuanto a efectos de entrenamiento se refiere. Se han hecho medidas de relajación a dos temperaturas características: 50 K y 160 K. La primera se encuentra en el rango de temperaturas en el que tanto la asimetría del primer ciclo como los efectos de entrenamiento son más

relevantes. La segunda está en el rango de temperaturas en las que el entrenamiento produce un cambio de signo en el campo  $H_E$  lo que hace interesante su análisis. Las medidas se han realizado en el magnetómetro SQUID en muestras de aproximadamente  $0,5 \text{ cm}^2$  mediante el siguiente procedimiento experimental, esquematizado en el diagrama 5.1:

## PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

### 1. Temperatura inicial

La temperatura inicial es 300 K, superior a  $T_B$  del óxido de cobalto ( $\sim 180$  K).

### 2. Aplicación del campo de enfriamiento $H_{enf}$

Enfriamiento en presencia de un campo de + 1000 Oe.

### 3. Temperatura de medida $T_{med}$

Se han hecho medidas a 50 K y a 160 K.

### 4. Secuencia de campos de entrenamiento

La secuencia de campos aplicados a  $T_{med}$  hasta estabilizar el campo de medida  $H_{med}$  según la rama del ciclo de histéresis que se estudie es:

1ª rama:  $H_{med} (<0)$

2ª rama: -1000 Oe  $H_{med} (>0)$

3ª rama: -1000 Oe +1000 Oe  $H_{med} (<0)$

### 4 Aplicación del campo de medida $H_{med}$

### 5 Medida de la imanación durante el tiempo de medida, $t_{med}$

El ritmo de medida aproximado es de 4 medidas por minuto.

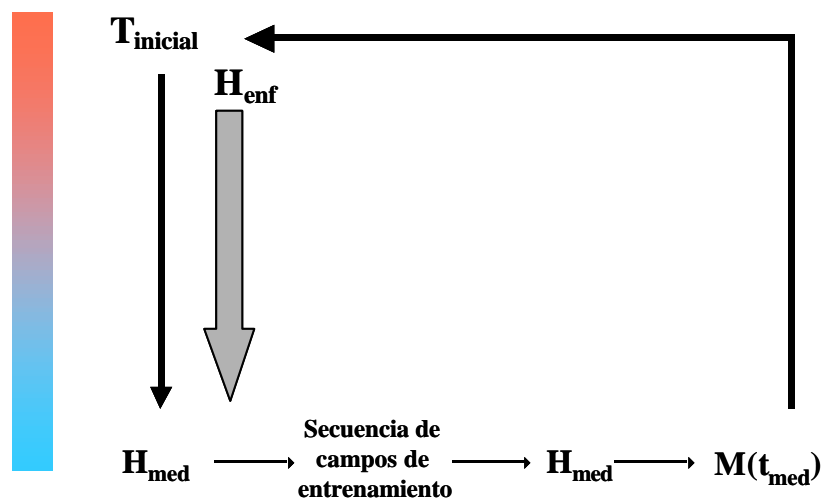


Diagrama 5.1 Esquema del procedimiento experimental para el estudio de la relajación magnética.

### 5.1.1 Relajación magnética a 50 K

Una de las características más interesantes que se ha observado en este sistema por debajo de la temperatura de bloqueo del AF, es la gran asimetría del primer ciclo de histéresis realizado tras el proceso de enfriamiento con campo. Esta asimetría, que se observa claramente por la diferencia de forma de las dos ramas del ciclo, pone de manifiesto un posible cambio en el proceso de imanación, inducido por la reordenación del momento descompensado en la intercara del AF tras la primera inversión de la imanación en el FM.

La figura 5.1.1 muestra el primer ciclo de histéresis medido en la muestra PYC4 a 50 K tras el enfriamiento con campo + 1000 Oe. Sobre la misma figura se ha representado la derivada de la imanación con respecto al campo, calculada a partir de los datos del ciclo de histéresis. La magnitud de la derivada en cada punto es proporcional a la susceptibilidad magnética, y la llamaremos aquí, por comodidad, también susceptibilidad magnética, medida en emu/Oe. Este cálculo muestra una clara diferencia en los picos de susceptibilidad máxima en ambas ramas.

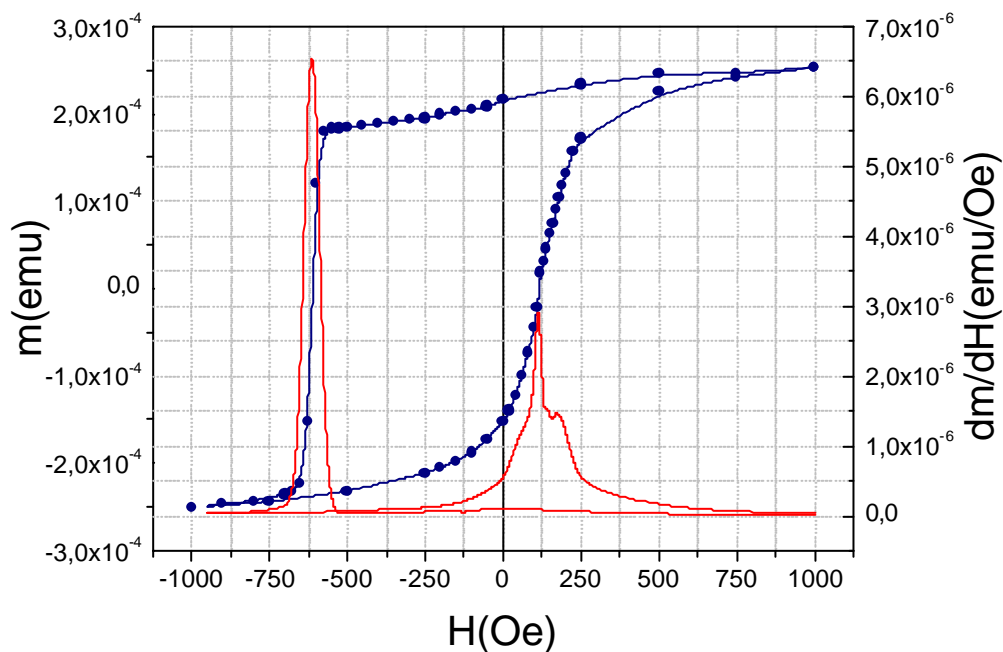


Figura. 5.1.1 Primer ciclo de histéresis (línea azul con puntos) de la muestra PYC4 a 50K tras enfriamiento con campo magnético de + 1000 Oe. Sobre él se ha representado (línea roja) la derivada del momento respecto al campo, calculada a partir de los datos experimentales.



El proceso de la primera rama presenta mayor susceptibilidad que el de la segunda rama. La susceptibilidad máxima medida es  $7 \cdot 10^{-6}$  emu/Oe y ocurre en  $-625$  Oe. En la segunda rama la susceptibilidad máxima es  $3 \cdot 10^{-6}$  emu/Oe y se produce en  $+110$  Oe. Además también existe una gran diferencia en la anchura de los picos. La primera rama tiene una anchura de pico a media altura de  $60$  Oe frente a  $130$  Oe que presenta la segunda rama.

En el segundo ciclo de histéresis la asimetría se ve reducida y los procesos de ambas ramas presentan valores muy parecidos de la susceptibilidad  $2,2 \cdot 10^{-6}$  emu/Oe en  $-250$  Oe y  $2,8 \cdot 10^{-6}$  emu/Oe en  $+90$  Oe, como se aprecia en la figura 5.1.2. Además la anchura de los picos es del orden de  $200$  Oe en ambos casos.

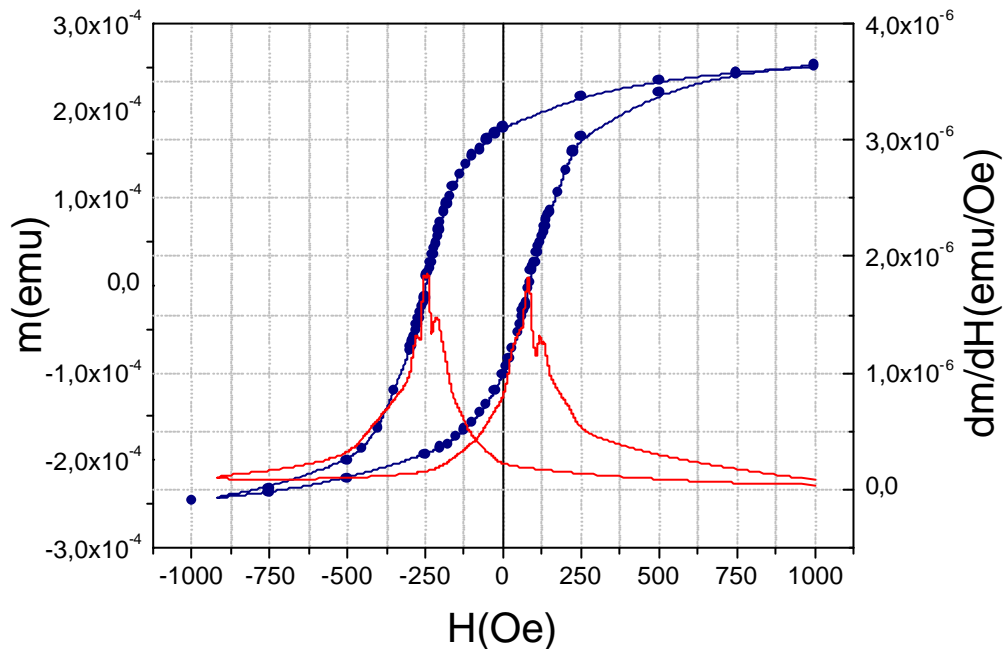


Figura. 5.1.2. Segundo ciclo de histéresis (línea azul de puntos) de la muestra PYC4 a 50K tras enfriamiento con campo magnético de  $+1000$  Oe. Sobre él se ha representado (línea roja) la derivada del momento respecto al campo, calculada a partir de los datos experimentales.

Para analizar más profundamente los diferentes mecanismos de inversión de la imanación en cada una de las ramas, se han hecho medidas de relajación magnética a  $50$  K en varios puntos en torno al punto de máxima susceptibilidad, según el procedimiento experimental indicado

a) **Medidas de relajación magnética a 50K: primera rama**

En la figura 5.1.3 se muestran las medidas correspondientes a la **primera rama** para los valores de  $H_{med}$  indicados, en torno a  $-625$  Oe. Estas curvas, representadas en escala logarítmica, exhiben una *caída en S* típica de un **decaimiento exponencial** de la imanación frente al tiempo. Se han realizado ajustes numéricos de los datos experimentales a una función de la forma [11]:

$$M = M_0(2e^{-(t-t_0)/t} - 1) \quad [5.5]$$

Todos los ajustes numéricos se han efectuado con el programa de cálculo incluido en el Software Microcal Origin 6.0, que ofrece los parámetros  $\chi^2$  y el coeficiente de correlación  $R^2$  como medida de la calidad del ajuste, y que también se incluirán en las tablas de parámetros. Un ejemplo de uno de estos ajustes, a campo aplicado  $-590$  Oe, se muestra en la figura 5.1.4 (nótese la escala logarítmica del tiempo). La tabla 5.1 presenta todos los parámetros obtenidos en esta serie de ajustes.

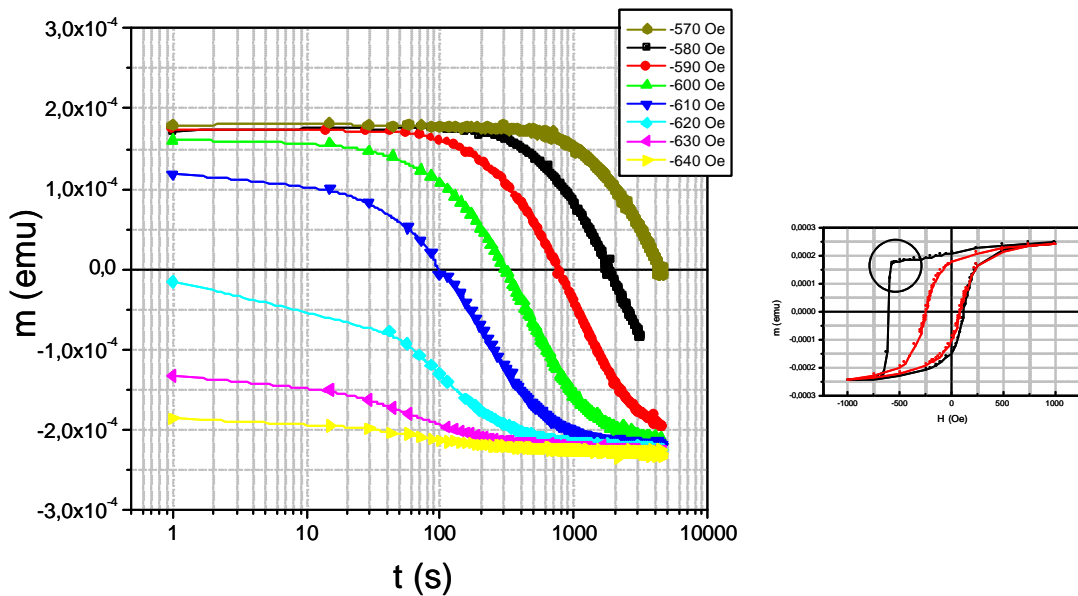


Figura. 5.1.3 Relajación magnética en la primera rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida para distintos campos a 50K tras enfriamiento con campo magnético de  $+1000$  Oe. El detalle indica la rama del ciclo de histéresis correspondiente.

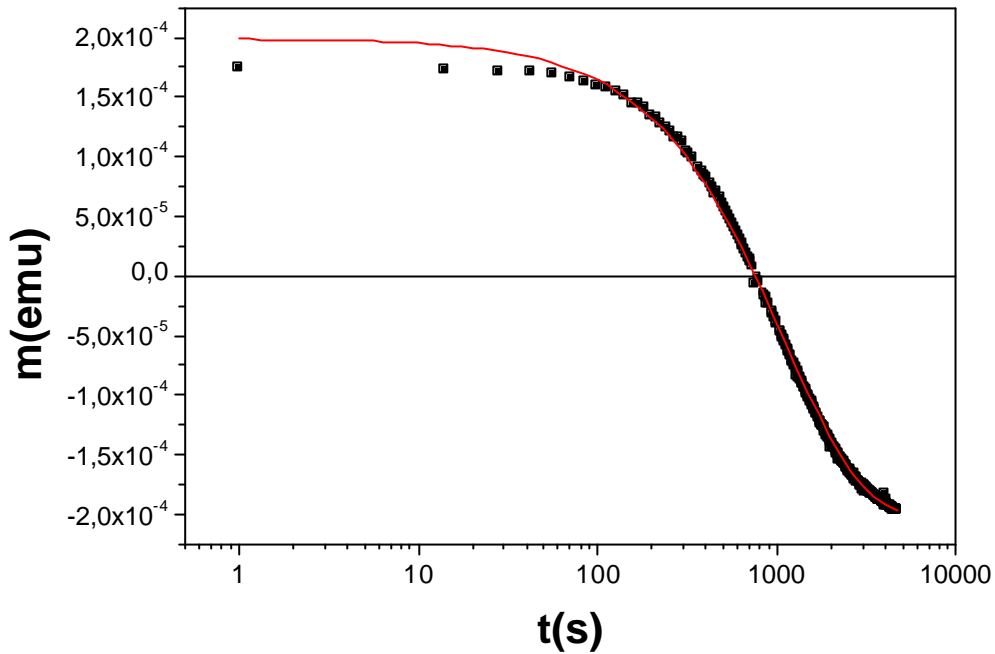


Figura. 5.1.4. Ajuste de los datos experimentales de la relajación magnética en la primera rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a -590 Oe y a 50 K.

$H_{med}(Oe)$	$M_0(emu)$	$t_0(s)$	$t(s)$	$Chi^2(10^{-11})$	$R^2$
-570	$2 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$26 \pm 10$	$6600 \pm 40$	4,2297	0,98774
-580	$2 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$32 \pm 10$	$2600 \pm 10$	4,7838	0,99328
-590	$2 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$-10 \pm 3$	$1104 \pm 5$	1,1857	0,99889
-600	$2,1 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	$-52 \pm 1$	$515 \pm 2$	1,1441	0,99818
-610	$2,2 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$-75 \pm 2$	$257 \pm 2$	1,4961	0,99437
-620	$2,2 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$-130 \pm 4$	$152 \pm 2$	1,0548	0,97573
-630	$2,2 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$-220 \pm 10$	$132 \pm 4$	0,54465	0,93779
-640	$2,3 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$-560 \pm 30$	$200 \pm 10$	0,39955	0,83772

Tabla 5.1 Parámetros del ajuste exponencial de los datos experimentales de la medida de relajación magnética en la primera rama del ciclo de histéresis a 50 K. Se señala en fondo gris el campo para el que el valor de  $t$  es mínimo.

A la vista de estos resultados se pueden destacar los siguientes puntos:

- El sistema muestra en la **primera rama** del ciclo de histéresis un proceso de **relajación puramente exponencial** lo que indica la presencia de una sola

barrera de energía bien definida. Este comportamiento es especialmente interesante e inusual en sistemas magnéticos nanocristalinos como el estudiado.

- El parámetro  $t_0$  es positivo para los dos primeros campos de medida. Este parámetro representa el tiempo inicial de relajación y no el tiempo inicial de medida, que es posterior en estos dos casos. En los demás casos, en que  $t_0$  es negativo, el sistema ya ha empezado a relajar de manera significativa antes de la primera medida.
- El inverso del parámetro  $\tau$  representa la velocidad de decaimiento  $1/\tau$  es máximo cuando  $\tau$  es mínimo, es decir en  $-630$  Oe, cuando la susceptibilidad es máxima en esta rama del ciclo de histéresis. El máximo ritmo de decaimiento es  $7,6 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ , como se observa en la figura 5.1.5.

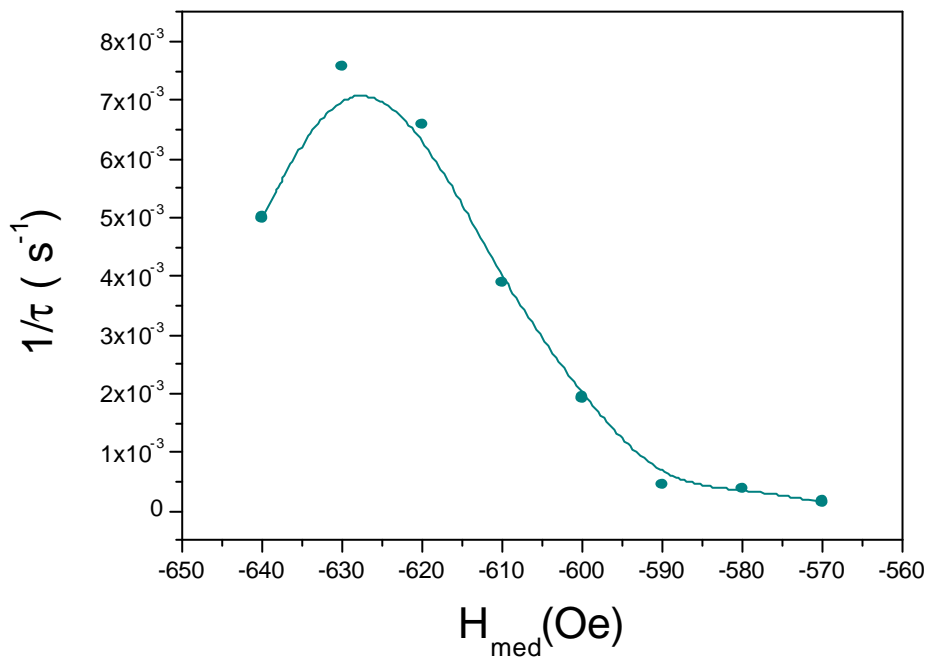


Figura. 5.1.5. Dependencia del tiempo de relajación con el campo de medida en la primera rama a medida 50 K.

- Los mejores ajustes se han obtenido para los campos  $-590$  Oe,  $-600$  Oe y  $-610$  Oe. Observando la figura 5.1.3 se ve que para estos campos las condiciones son las adecuadas para observar la inversión total de la imanación.

**b) Medidas de relajación magnética a 50K: segunda rama**

En segundo lugar, se ha medido la relajación magnética en la **segunda rama** del ciclo de histéresis para valores de  $H_{med}$  en torno a +110 Oe. Los resultados de estas medidas se han representado en escala logarítmica en la figura 5.1.6. La evolución lineal de la imanación en esta escala indica un **comportamiento logarítmico** de la relajación magnética en esta segunda rama. En este caso el ajuste de los datos experimentales se ha hecho sobre una función logarítmica de la forma[12]:

$$M = M_0 + S \ln(t + t_0)$$

[5.6]

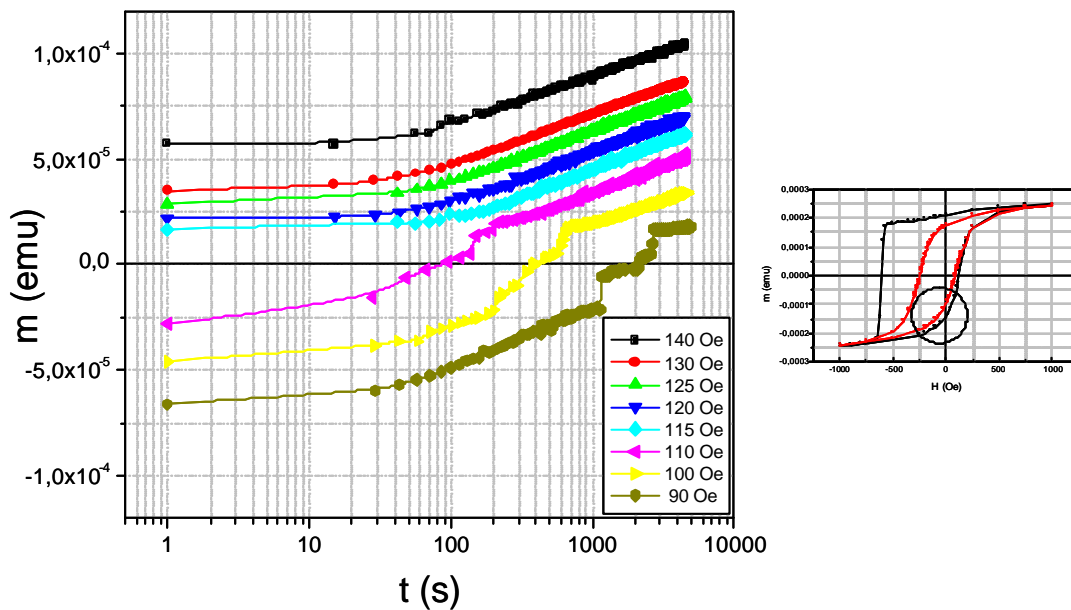


Figura. 5.1.6 Relajación magnética en la segunda rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida para distintos campos a 50K tras enfriamiento con campo magnético de + 1000 Oe. El detalle indica la rama del ciclo de histéresis correspondiente.

La figura 5.1.7 muestra un ejemplo del ajuste sobre los datos de la medida a + 110 Oe. En la tabla 5.2 se recogen los parámetros obtenidos en esta serie de ajustes numéricos, y se incluye el coeficiente de correlación lineal R.

$H_{med}(Oe)$	$M_0(emu)$	$S(emu)$	$R$
+90	$1,0 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$0,76 \cdot 10^{-5} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	0,87712
+100	$4,6 \cdot 10^{-5} \pm 4 \cdot 10^{-5}$	$2,16 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,996044
+110	$4,3 \cdot 10^{-5} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	$2,57 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,997844
+115	$3,1 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$2,54 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,998763
+120	$2,1 \cdot 10^{-5} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	$2,49 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,996766
+125	$1,8 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$2,47 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,997894
+130	$0,1 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$2,39 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,999472
+140	$2,0 \cdot 10^{-5} \pm 3 \cdot 10^{-6}$	$2,29 \cdot 10^{-5} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	0,996754

Tabla 5.2 Parámetros del ajuste logarítmico de los datos experimentales de la medida de relajación magnética en la segunda rama del ciclo de histéresis a 50 K. Se señala con fondo gris el campo para el cual el parámetro S es máximo.

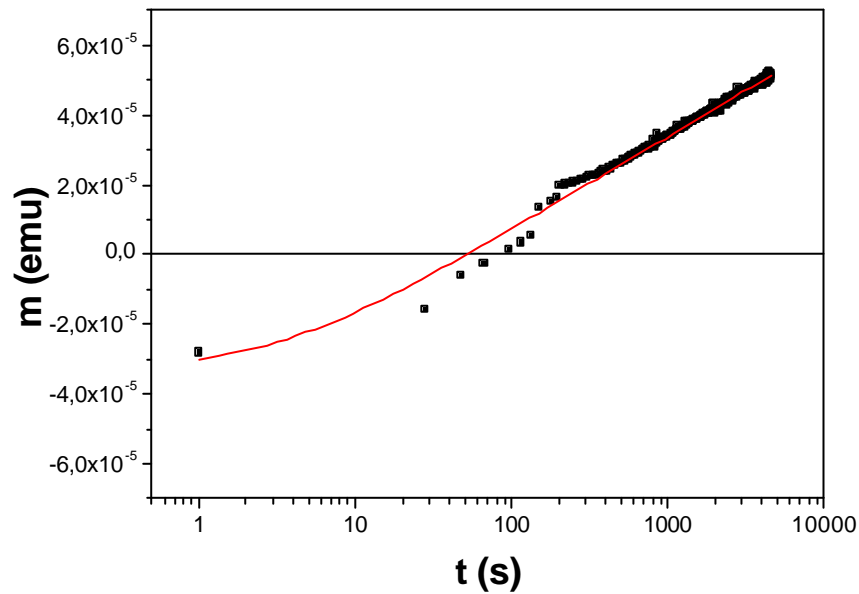


Figura. 5.1.7. Ajuste de los datos experimentales de la relajación magnética en la segunda rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a +110 Oe y a 50 K.

A partir de estos resultados obtenidos en la segunda rama podemos destacar los siguientes puntos:

- El mecanismo de relajación magnética ha cambiado totalmente tras el entrenamiento de la muestra correspondiente al primer medio ciclo de histéresis. Ahora se observa una **evolución logarítmica** que indica la existencia de una distribución de barreras energéticas con una cierta anchura.
- El parámetro  $S(H)$  alcanza su valor máximo,  $2,57 \cdot 10^{-5}$  emu, para  $H_{med} = +110$  Oe, es decir en torno al valor máximo de la susceptibilidad, tal y como se observa en la figura 5.1.8.

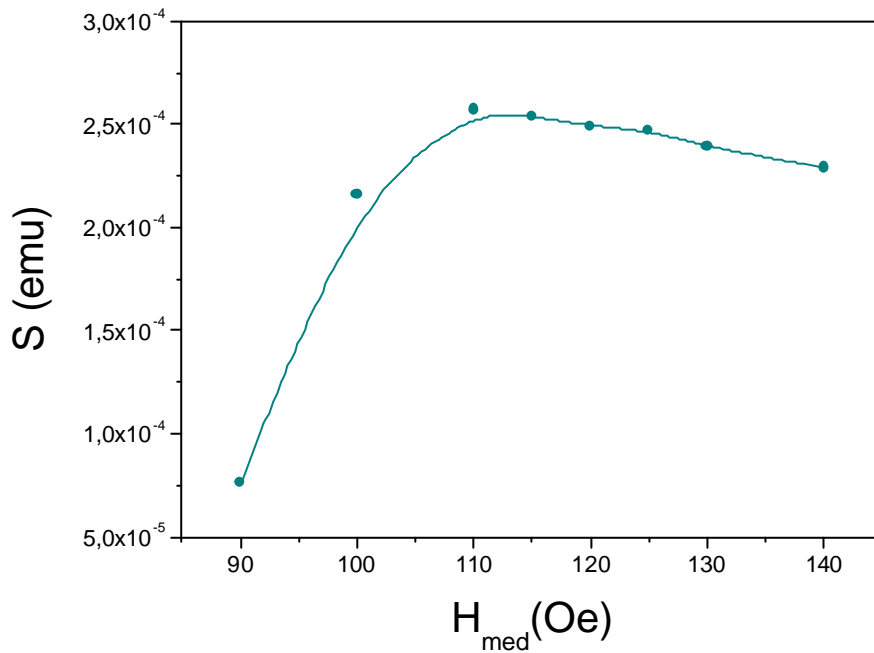


Figura. 5.1.8. Dependencia del parámetro  $S$  con el campo de medida en la segunda rama medida a 50K

- El valor máximo de la susceptibilidad calculada anteriormente (ver figura 5.1.1) es aproximadamente  $3 \cdot 10^{-6}$  emu/Oe. Se tomará este valor de la susceptibilidad como valor de la susceptibilidad irreversible, en una aproximación aceptable. Introduciendo los siguientes valores en la ecuación [5.4]:

$$k_B = 1,38 \cdot 10^{-16} \text{ erg/K}$$

$$S_{m\acute{a}x} = 2,57 \cdot 10^5 \text{ emu}$$

$$T = 50 \text{ K}$$

$$M_s (\text{Permalloy}) = 500 \text{ emu/cm}^3$$

$$c = 3 \cdot 10^{-6} \text{ emu/Oe}$$

se ha calculado el volumen de activación. Suponiendo una simetría esférica de los granos se puede hacer una estimación del tamaño medio (unidimensional) de grano correspondiente a dicho volumen de activación:

$$\sqrt[3]{V_{act}} \approx 11,7 \text{ nm}$$

Este tamaño estimado es ligeramente menor al tamaño medio que se estimó en el capítulo 3 para el *Permalloy*, a partir de las imágenes TEM. Dicho valor medio era aproximadamente 14 nm.

c) **Medidas de relajación magnética a 50K: tercera rama**

Por último se ha medido la relajación magnética en la **tercera rama** en torno a – 245 Oe, valor del campo en el que el segundo ciclo presenta máxima susceptibilidad en la rama de campos negativos. En la figura 5.1.9 se han representado, también en escala logarítmica, estas medidas que de nuevo muestran un **comportamiento logarítmico**. Se han ajustado numéricamente los datos experimentales a una función logarítmica de la forma:

$$M = M_0 - S \ln(t + t_0)$$

[5.7]

Los parámetros obtenidos en esta serie de ajustes se muestran en la tabla 5.3. Como ejemplo del ajuste realizado, véase la figura 5.1.10 en la que se muestran los datos experimentales de la medida a –230 Oe y el ajuste correspondiente.



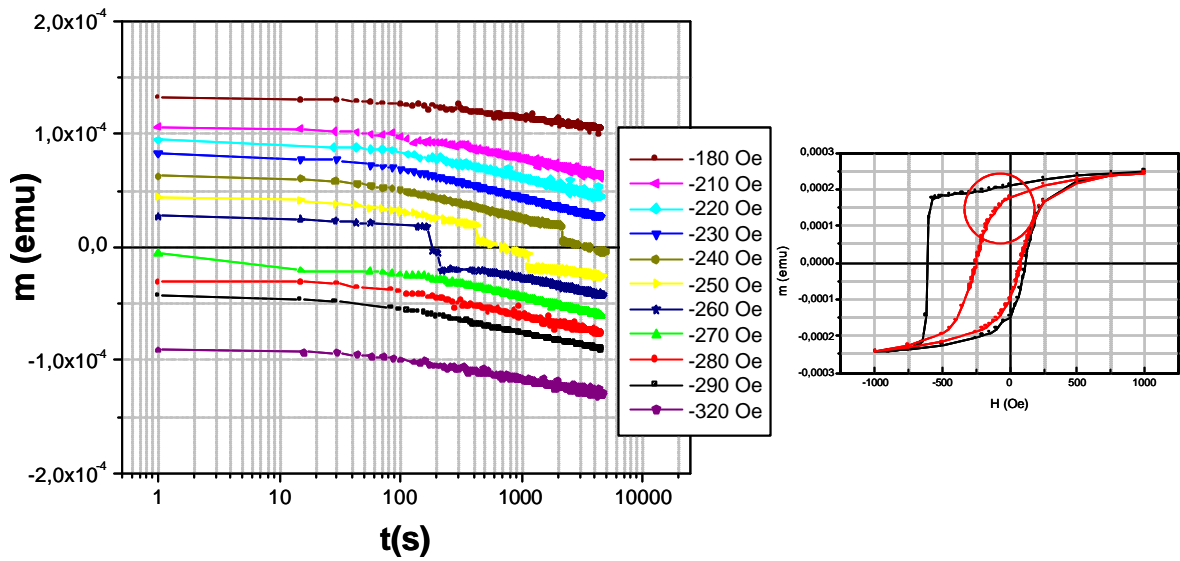


Figura. 5.1.9. Relajación magnética en la tercera rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a distintos campos y a 50K tras enfriamiento con campo magnético de +1000 Oe y entrenamiento con -1000 Oe y + 1000 Oe sucesivamente. El detalle indica la rama del ciclo de histéresis correspondiente.

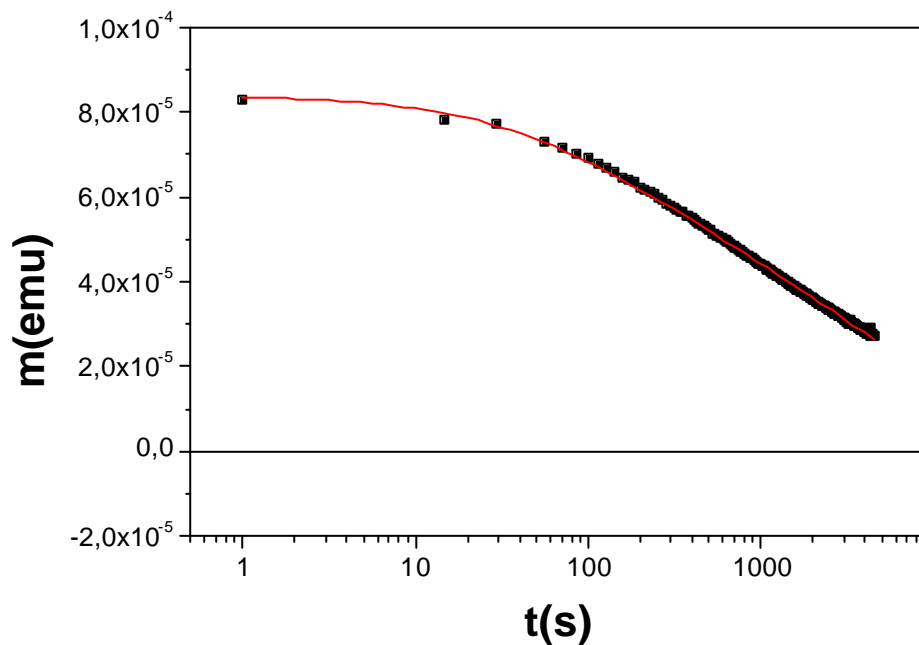


Figura. 5.1.10. Ajuste de los datos experimentales de la relajación magnética en la tercera rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a -230 Oe y a 50 K.

$H_{med}(Oe)$	$M_0(emu)$	$S(emu)$	$R$
-180	$1,58 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$1,46 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	0,97154
-210	$1,46 \cdot 10^{-4} \pm 0,2 \cdot 10^{-6}$	$2,27 \cdot 10^{-5} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	0,99075
-220	$1,38 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$2,54 \cdot 10^{-5} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	0,98532
-230	$1,22 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-6}$	$2,62 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,99941
-240	$0,96 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$2,34 \cdot 10^{-5} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	0,99897
-250	$0,31 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$2,54 \cdot 10^{-5} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	0,93461
-260	$0,41 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$2,29 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,99486
-270	$0,28 \cdot 10^{-4} \pm 0,2 \cdot 10^{-6}$	$2,08 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,99897
-280	$0,08 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$2,31 \cdot 10^{-5} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	0,97827
-290	$0,12 \cdot 10^{-4} \pm 0,3 \cdot 10^{-6}$	$2,13 \cdot 10^{-5} \pm 1 \cdot 10^{-7}$	0,99779
-320	$0,6 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$1,90 \cdot 10^{-5} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	0,97186

Tabla 5.3 Parámetros de ajuste logarítmico de los datos experimentales de la medida de relajación magnética en la tercera rama del ciclo de histéresis a 50 K. Se destaca sobre fondo gris el valor del campo para el que el parámetro S es máximo

A la vista de estos resultados se pueden destacar los siguientes puntos:

- El proceso de relajación magnética en la tercera rama presenta de nuevo una **dependencia temporal logarítmica**, que al igual que en el caso de la segunda rama la presencia de una distribución ancha de energías.
- El máximo valor del parámetro S ocurre en torno a -230 Oe y es aproximadamente  $2,62 \cdot 10^{-5}$  emu. Como se observa en la figura 5.1.11.
- Tomando el máximo de susceptibilidad de esta tercera rama (ver figura 5.1.3) que es  $2 \cdot 10^{-6}$  emu/Oe, se ha calculado el volumen de activación de igual forma que en el caso anterior y se ha estimado un tamaño medio de grano correspondiente a dicho volumen:

$$\sqrt[3]{V_{act}} \approx 10,2nm$$

Este valor, un poco menor que el obtenido en el caso de la segunda rama, también es ligeramente menor al tamaño medio de grano estimado para el *Permalloy* a partir de las imágenes TEM en el capítulo 3.

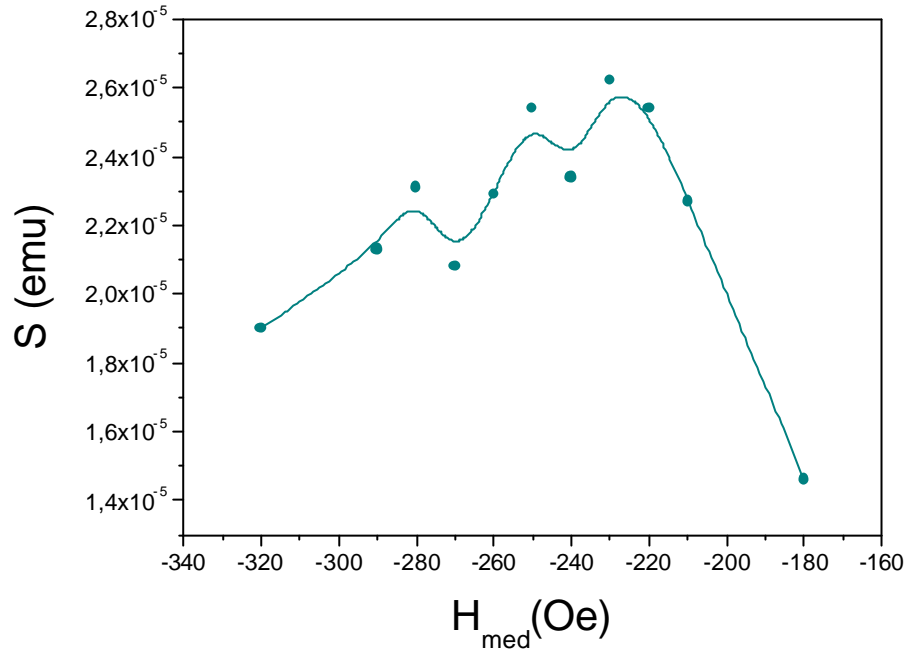


Figura. 5.1.11. Dependencia del parámetro S con el campo de medida en la tercera rama medida a 50K

### 5.1.2 Relajación magnética a 160K

Se han realizado también en este sistema medidas de relajación a 160 K. Esta temperatura se eligió por estar en el rango de temperaturas en el que el entrenamiento tiene el efecto de cambiar el signo del campo de canje. A esta temperatura la asimetría en las ramas no es apreciable en el primer ciclo de histéresis. La figura 5.1.12 muestra el primer ciclo de histéresis a 160 K sobre el que se ha representado la derivada calculada a partir de los datos experimentales. La susceptibilidad no presenta una gran diferencia de valores  $2,25 \cdot 10^{-5}$  emu/Oe y  $2,40 \cdot 10^{-5}$  emu /Oe, entre las dos ramas y la anchura a media altura de ambos picos es de 15 Oe. Estos valores indican que efectivamente no hay un cambio apreciable en el proceso de imanación tras la primera inversión de la imanación del ferromagnético.

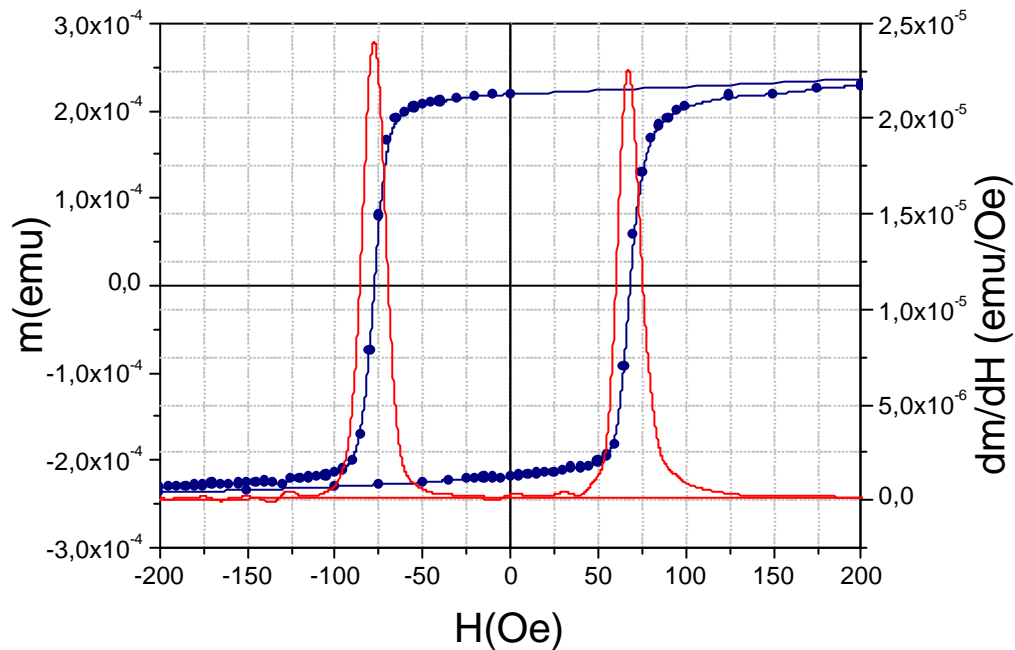


Figura 5.1.12 Primer ciclo de histéresis (línea azul de puntos) de la muestra PYC4 a 160 K tras enfriamiento con campo magnético de + 1000 Oe. Sobre él se ha representado (línea roja) la derivada calculada a partir de los datos experimentales.

Lo que sí es destacable es que en el segundo ciclo de histéresis se produce una inversión del signo del desplazamiento acompañada de una ligera asimetría en las dos ramas: la primera presenta un pico de la susceptibilidad cuyo máximo valor es  $2,2 \cdot 10^{-5}$  emu/Oe y su anchura a media altura 13 Oe. La rama de campos positivos presenta

mayor susceptibilidad  $2,5 \cdot 10^{-5}$  emu/Oe y menor anchura a mitad de altura 16 Oe como se observa en la figura 5.1.13.

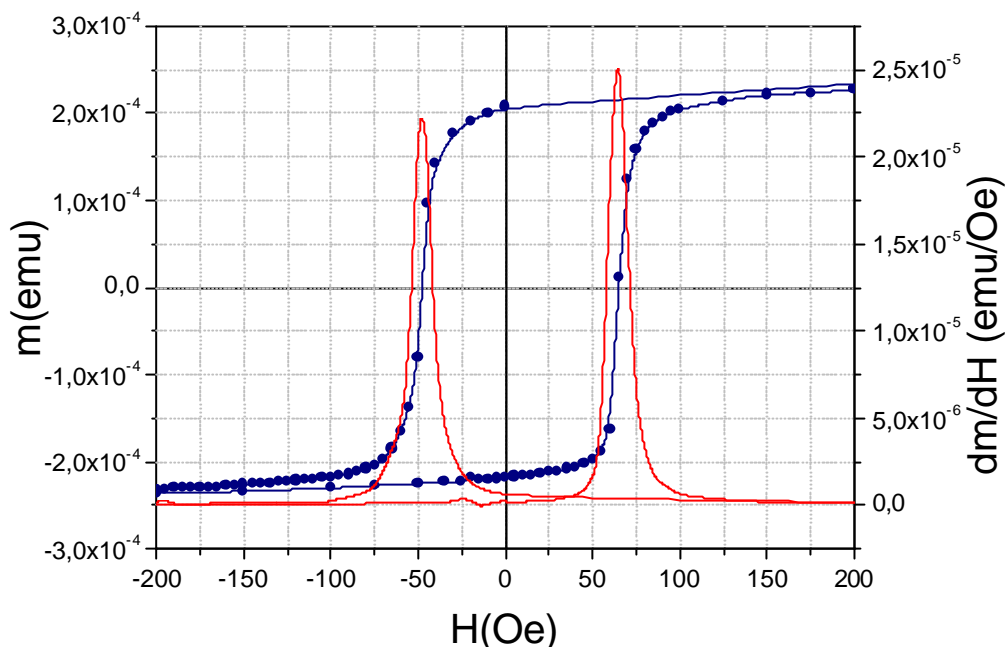


Figura 5.1.13 Segundo ciclo de histéresis (línea azul de puntos) de la muestra PYC4 a 160 K tras enfriamiento con campo magnético de + 1000 Oe. Sobre él se ha representado (línea roja) la derivada calculada a partir de los datos experimentales.

Se han realizado medidas de relajación magnética a 160 K con campo aplicado entorno a los puntos de máxima susceptibilidad correspondientes a la primera, segunda y tercera ramas.

a) **Medidas de relajación magnética a 160 K: primera rama**

En la figura 5.1.14 se muestran las medidas de relajación a 160 K para los campos  $H_{med}$  indicados entorno a -65 Oe. Representadas en escala logarítmica, estas medidas manifiestan un **decaimiento exponencial** de la imanación. Se han realizado ajustes a una exponencial de la forma de la ecuación [5.5]. Los parámetros de esta serie de ajustes se muestran en la tabla 5.4. Un ejemplo de estos ajustes se muestra en la figura 5.1.15.

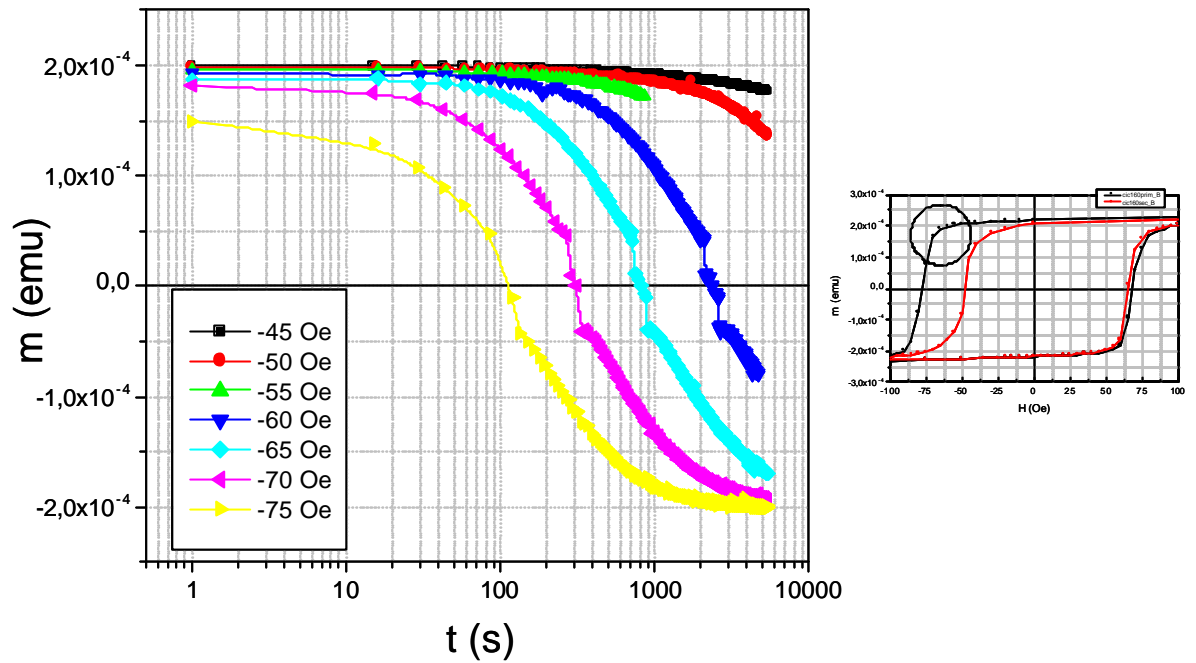


Figura 5.1.14. Relajación magnética en la primera rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a distintos campos y a 160 K tras enfriamiento con campo magnético de + 1000 Oe. El detalle indica la rama del ciclo de histéresis correspondiente.

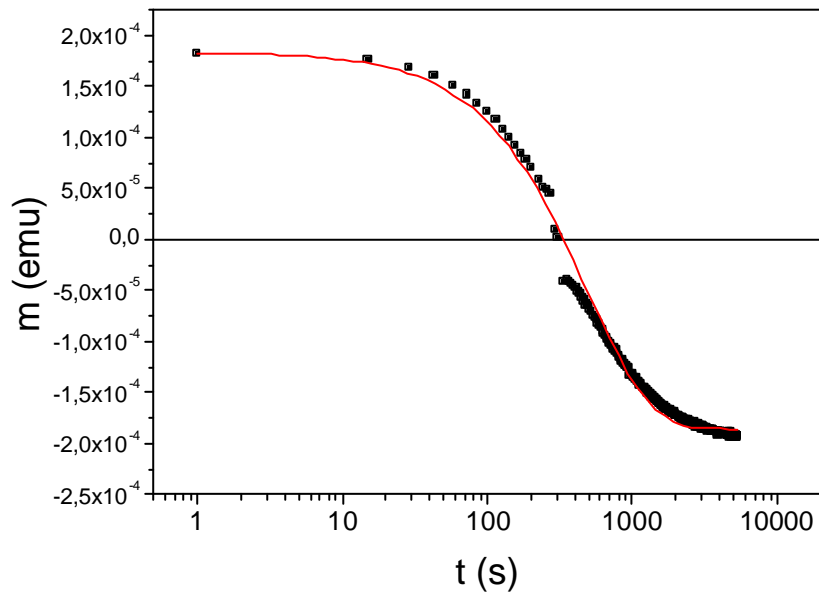


Figura 5.1.15. Ajuste exponencial de los datos experimentales de la relajación magnética en la primera rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a -70 Oe y a 160 K.

$H_{med}(Oe)$	$M_0(emu)$	$t_0(s)$	$t (s)$	$Chi^2 (10^{-11})$	<b>R</b>
-45	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$4180 \pm 20$	$97130 \pm 70$	0,07	0.97832
-50	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$1520 \pm 10$	$31540 \pm 30$	0,17	0.99416
-55	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$567 \pm 3$	$13448 \pm 20$	0,02	0.99548
-60	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$250 \pm 1$	$3202 \pm 20$	9,60	0.98763
-65	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$50 \pm 10$	$1230 \pm 10$	10,91	0.98724
-70	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$13 \pm 4$	$457 \pm 5$	7,84	0.98474
-75	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 0$	$-16 \pm 5$	$190 \pm 10$	23,26	0.88528

Tabla 5.4. Parámetros de ajuste exponencial de los datos experimentales de la medida de relajación magnética en la primera rama del ciclo de histéresis a 160 K. Se señala sobre fondo gris el valor del campo para el que  $t$  es mínimo

A partir de estos resultados se pueden destacar los siguientes puntos:

- La imanación muestra en esta **primera rama** a 160 K un claro **decaimiento exponencial** que indica la existencia de una sola barrera energética bien definida para la inversión de la imanación.
- El máximo valor ritmo de decaimiento (mínimo valor de  $\tau$ ) se alcanza en  $-75$  Oe, es decir en torno al campo coercitivo, y es  $5,3 \cdot 10^{-3} s^{-1}$ .
- Los coeficientes de correlación muestran un buen ajuste de los datos experimentales a la función propuesta en la ecuación [5.5].

b) **Medidas de relajación magnética a 160 K: segunda rama**

La figura 5.1.16 muestra la medida de relajación a 160 K correspondiente a la segunda rama para varios campos aplicados entorno a +60 Oe

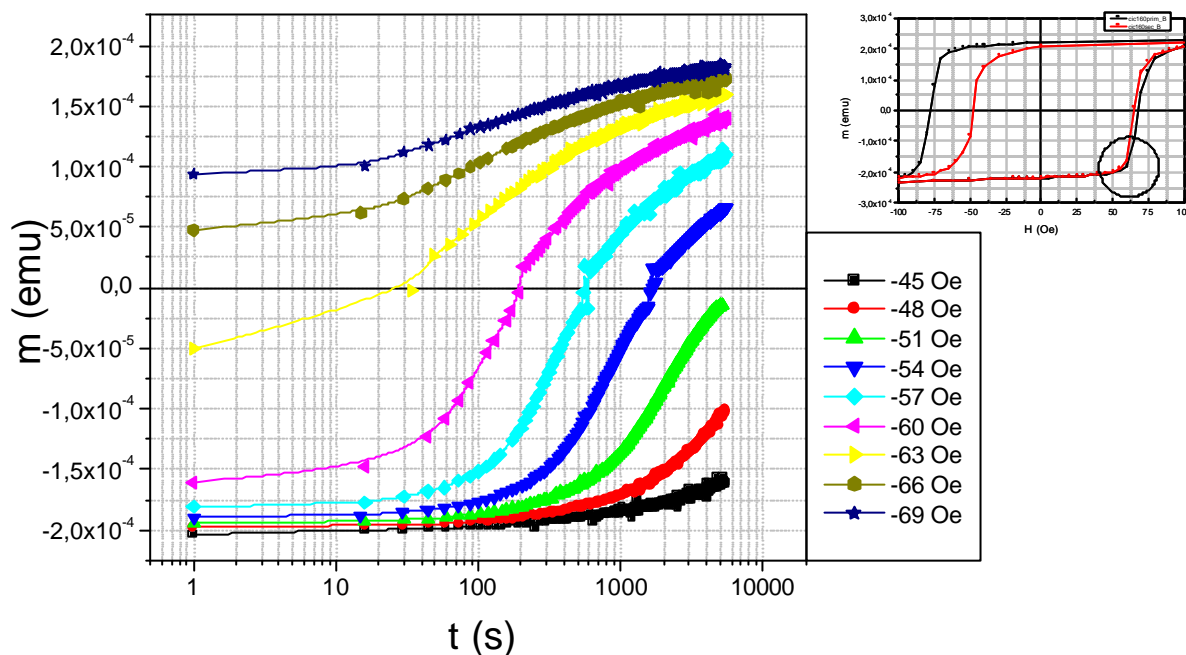


Figura 5.1.16. Relajación magnética en la segunda rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a distintos campos y a 160 K tras enfriamiento con campo magnético de + 1000 Oe y entrenamiento con - 1000 Oe. El detalle indica la rama del ciclo de histéresis correspondiente.

Estas curvas vuelven a presentar una dependencia exponencial de la imanación con el tiempo (nótese la escala logarítmica del tiempo). Se han hecho ajustes numéricos a una función de la forma [11]:

$$M = -M_0(2e^{-(t-t_0)/\tau} - 1)$$

La tabla 5.5 presenta los parámetros de ajuste de esta segunda medida y la figura 5.1.17 un ejemplo del ajuste realizado para un campo aplicado de + 51 Oe.



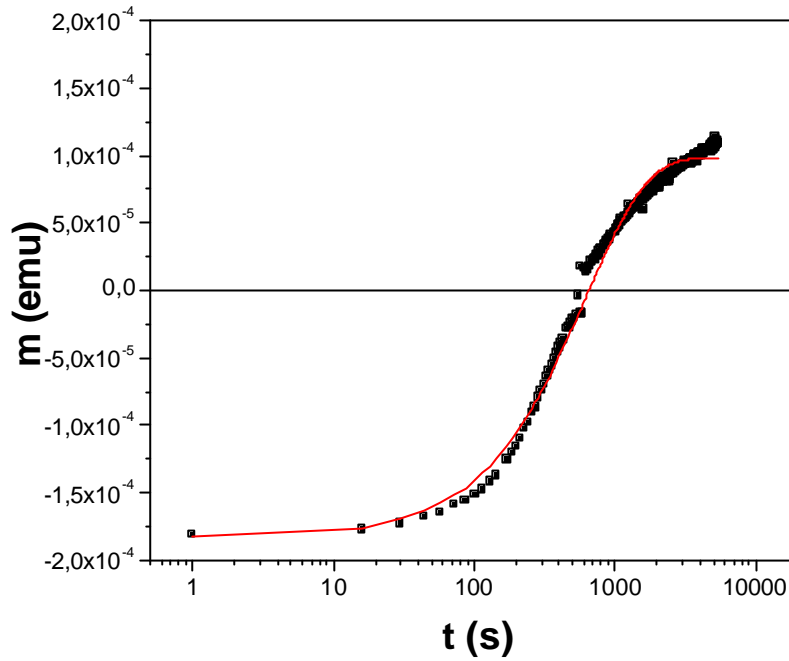


Figura5.1.17. Ajuste a una exponencial de los datos experimentales de la relajación magnética en la segunda rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a +51 Oe y a 160 K.

$H_{med}(Oe)$	$M_0(emu)$	$t_0(s)$	$t(s)$	$Chi^2(10^{-11})$	$R$
+45	$1 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-4}$	$9000 \pm 100$	$48000 \pm 1000$	0,58087	0,94489
+48	$0,7 \cdot 10^{-4} \pm 0,1 \cdot 10^{-4}$	$8000 \pm 100$	$12500 \pm 500$	0,166	0,99767
+51	$0,2 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$4200 \pm 100$	$2700 \pm 30$	0,74821	0,99745
+54	$0,6 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	$882 \pm 4$	$1220 \pm 10$	1,4019	0,99698
+57	$1 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$222 \pm 4$	$620 \pm 10$	5,578	0,98393
+60	$1,3 \cdot 10^{-4} \pm 1 \cdot 10^{-6}$	$-13 \pm 7$	$380 \pm 10$	9,9367	0,94229
+63	$1,5 \cdot 10^{-4} \pm 5 \cdot 10^{-7}$	$-440 \pm 20$	$490 \pm 20$	5,2212	0,91281
+66	$1,7 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	$-790 \pm 30$	$560 \pm 20$	2,0932	0,92606
+69	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$-1100 \pm 40$	$600 \pm 20$	1,0471	0,93267

Tabla 5.5 Parámetros de ajuste exponencial de los datos experimentales de la medida de relajación magnética en la segunda rama del ciclo de histéresis a 160 K. Se señala en fondo gris el valor de campo para el cual el parámetro  $t$  es mínimo.

A partir de estos resultados se pueden remarcar los siguientes puntos:

- De nuevo la imanación de muestra un **comportamiento exponencial** en esta **segunda rama**. A diferencia que lo que ocurría a 50 K temperatura a la cual cambiaba el proceso de relajación magnética de la primera rama a la segunda, en este caso se mantiene la misma dependencia.
- El máximo valor del ritmo de crecimiento se produce a + 60 Oe y es  $2,7 \cdot 10^{-3} \text{s}^{-1}$ .
- Los coeficientes de correlación indican un buen ajuste de los datos experimentales.

c) **Medidas de relajación magnética a 160 K: tercera rama**

Por último se ha medido a 160 K la evolución temporal de la imanación correspondiente a la tercera rama. Se han aplicado campos  $H_{\text{med}}$  en torno al valor del campo coercitivo en esta rama que es aproximadamente 48 Oe. En la figura 5.1.18 se han representado las curvas de relajación medidas en este caso.

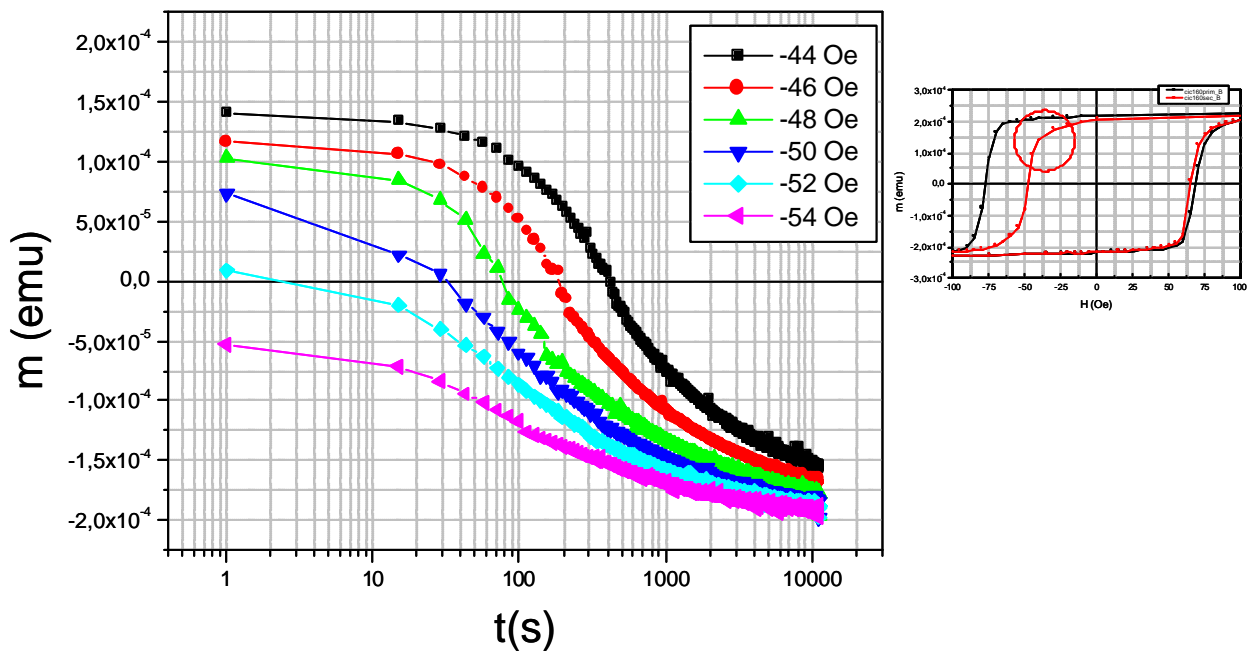


Figura. 5.1.18. Relajación magnética en la tercera rama del ciclo de histéresis de la muestra PYC4 medida a distintos campos y a 160 K tras enfriamiento con campo magnético de + 1000 Oe y entrenamiento con - 1000 Oe.

De nuevo estas medidas presentan un decaimiento exponencial de la imanación en el tiempo. Se han realizado los ajustes de los datos experimentales a una expresión de la forma habitual (ecuación [5.5]). Los resultados de dichos ajustes se encuentran en la tabla 5.6.

$H_{med}(Oe)$	$M_0(emu)$	$t_0(s)$	$t(s)$	$Chi^2 (10^{-11})$	$R^2$
-44	$1,4 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	$-150 \pm 10$	$920 \pm 10$	8,78	0,95911
-46	$1,6 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	$-280 \pm 10$	$700 \pm 10$	10,17	0,92432
-48	$1,7 \cdot 10^{-4} \pm 4 \cdot 10^{-7}$	$-370 \pm 20$	$570 \pm 10$	10,00	0,87808
-50	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-7}$	$-520 \pm 20$	$580 \pm 10$	6,14	0,88773
-52	$1,8 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$-720 \pm 20$	$610 \pm 10$	3,80	0,89352
-54	$1,9 \cdot 10^{-4} \pm 2 \cdot 10^{-7}$	$-1050 \pm 30$	$680 \pm 20$	1,96	0,89516

Tabla 5.6 Parámetros de ajuste exponencial de los datos experimentales de la medida de relajación magnética en la tercera rama del ciclo de histéresis a 160 K. Se señala en fondo gris el valor de campo para el cual el parámetro  $t$  es mínimo.

De estos ajustes numéricos se obtiene los siguientes resultados:

- Los datos experimentales obtenidos en la medida de la tercera rama exhiben nuevamente una **relajación exponencial** de la imanación. De nuevo el sistema presenta una sola barrera energética bien definida que es responsable de este comportamiento de la imanación.
- El máximo ritmo de decaimiento de la imanación se produce cuando el campo de medida es -48 Oe y es igual a  $1,7 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ .
- El parámetro  $t_0$  negativo en todos los casos indica que el sistema empieza a relajar antes de la primera medida.

Las medidas de relajación presentadas aquí han revelado un **cambio radical en el modo de relajación** de los sistemas, con el proceso de entrenamiento y la con temperatura. En el siguiente apartado se hará uso de la medida de magnetorresistencia anisótropa para determinar la naturaleza de los procesos imanación.

## 5.2. Magnetorresistencia anisótropa

Los diferentes modos de relajación observados en el estudio anterior ponen de manifiesto diferentes procesos de imanación, que serán aquí objeto de análisis a través de la medida de curvas de magnetorresistencia anisótropa. Este estudio, como se verá en los resultados presentados a continuación, permitirá dilucidar cuál es el mecanismo de inversión de la imanación que se produce en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$  cuando se establece en él la anisotropía de canje a diferentes temperaturas y cómo evoluciona dicho mecanismo con el entrenamiento de la muestra. Los resultados de este estudio y los obtenidos en el de relajación magnética se analizarán conjuntamente.

Debido a la dependencia angular [2.8] de la magnetorresistencia es posible discernir entre un proceso de rotaciones de la imanación o un proceso de nucleación y salto de paredes de  $180^\circ$ . Mientras el primer tipo de mecanismo da lugar a variaciones de AMR con una dependencia cuadrática con la imanación [2.7], la nucleación de un dominio invertido y el desplazamiento de paredes de  $180^\circ$  apenas produce variación de magnetorresistencia, lo que hace mantener constante el valor de la resistencia para todos los valores de la imanación. La definición de AMR que se ha tomado en este estudio (y en capítulos posteriores) es la siguiente:

$$\frac{\Delta R}{R}(H) = 100 \times \frac{R(H) - R(H_{sat})}{R(H_{sat})} (\%)$$

[5.8]

donde  $R(H)$  es la resistencia medida cuando el valor del campo aplicado es  $H$ , y  $R(H_{sat})$  es el valor de resistencia medido en el estado de saturación magnética. Se ha tomado como referencia el estado de saturación magnética por ser un estado de imanación bien definida en el sistema. Según este criterio, la magnetorresistencia:

- $\frac{\Delta R}{R}(H)$  es **negativa** cuando el efecto AMR es **positivo**, es decir, si  $R(H_{sat}) > R(H)$
- $\frac{\Delta R}{R}(H)$  es **positiva** cuando el efecto AMR es **negativo**, es decir, si  $R(H) > R(H_{sat})$

Las medidas de AMR se han realizado en el magnetómetro SQUID mediante el método de las 4 puntas en configuración longitudinal, descrito en el capítulo 2, sobre una muestra de  $3 \times 10 \text{ mm}^2$ . El procedimiento experimental, análogo al llevado a cabo en el estudio de efectos de entrenamiento del capítulo 4, se ha esquematizado en el diagrama 5.2. El procedimiento consiste en el enfriamiento con campo aplicado de +1000 Oe, desde 300 K hasta la temperatura de medida  $T_{\text{med}}$ , y la medida de dos curvas de AMR consecutivas. El campo máximo aplicado es  $\pm 1000 \text{ Oe}$ .

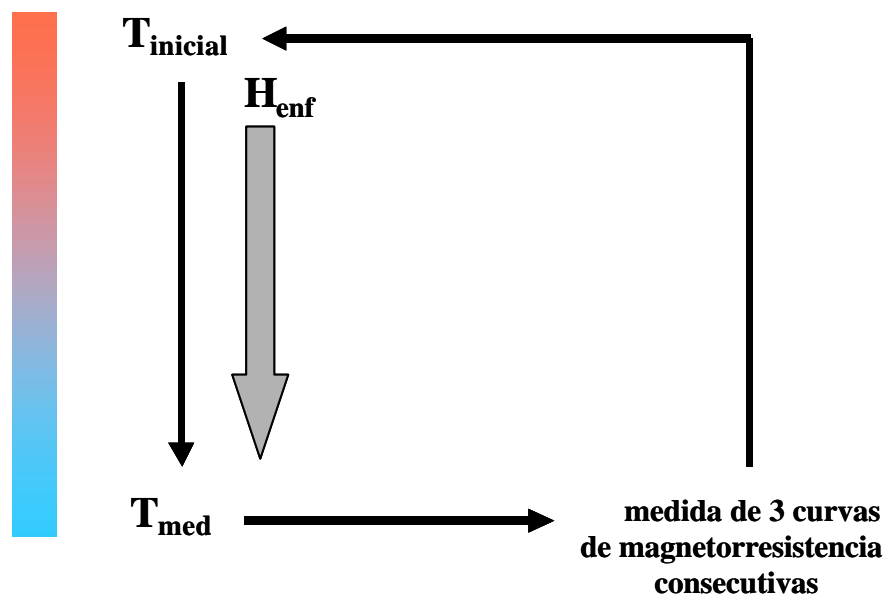


Diagrama 5.2 Esquema del procedimiento experimental para el estudio de curvas de magnetorresistencia.

Por analogía con el estudio de relajación magnética, se han estudiado en profundidad las medidas realizadas a las temperaturas 50 K y 160 K. No obstante, se ha hecho un estudio de la evolución térmica de las curvas de magnetorresistencia en el rango de temperaturas comprendido entre 50 K y 300 K.

## 5.2.1. Curvas de magnetorresistencia a 50 K

### 5.2.1.1. Primera curva de magnetorresistencia a 50 K

En la figura 5.2.1 se muestra la primera curva de magnetorresistencia medida en la muestra PYC4 a 50 K tras el proceso de enfriamiento. La curva presenta dos mínimos, uno en -575 Oe y otro en +110 Oe, que se corresponden con los valores de máxima susceptibilidad que se obtenían en la derivada del ciclo de histéresis (ver figura 5.1.1). Los valores de magnetorresistencia de estos dos extremos son 0,2% y 1,8%, respectivamente.

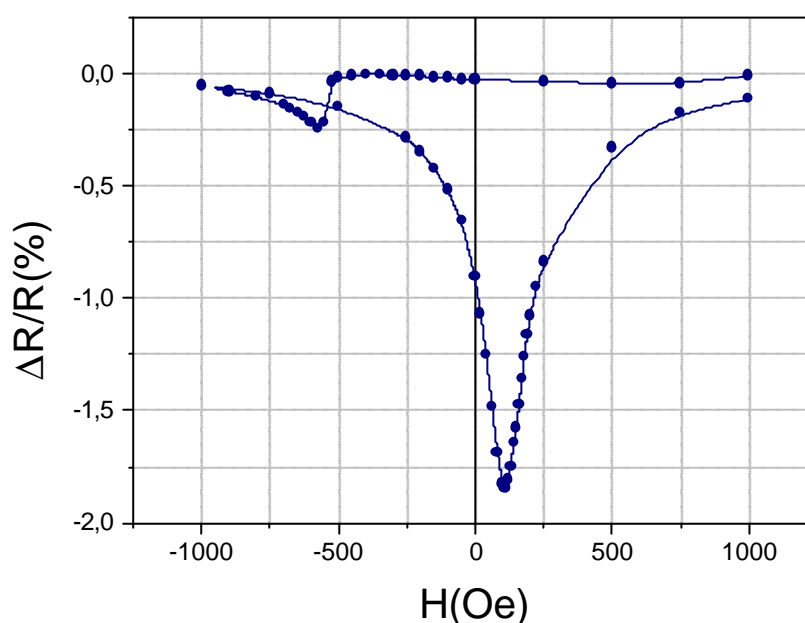


Figura 5.2.1. Primera curva de magnetorresistencia medida a 50 K.

La primera característica destacable de esta medida es la gran diferencia existente entre la rama de campos positivos y la de campos negativos. Además de la diferencia de valores de AMR, se observa una gran asimetría que la forma de la curva presenta en ambas ramas. Este hecho también se pone de manifiesto en la curva de resistencia frente a imanación que se ha representado en la figura 5.2.2.

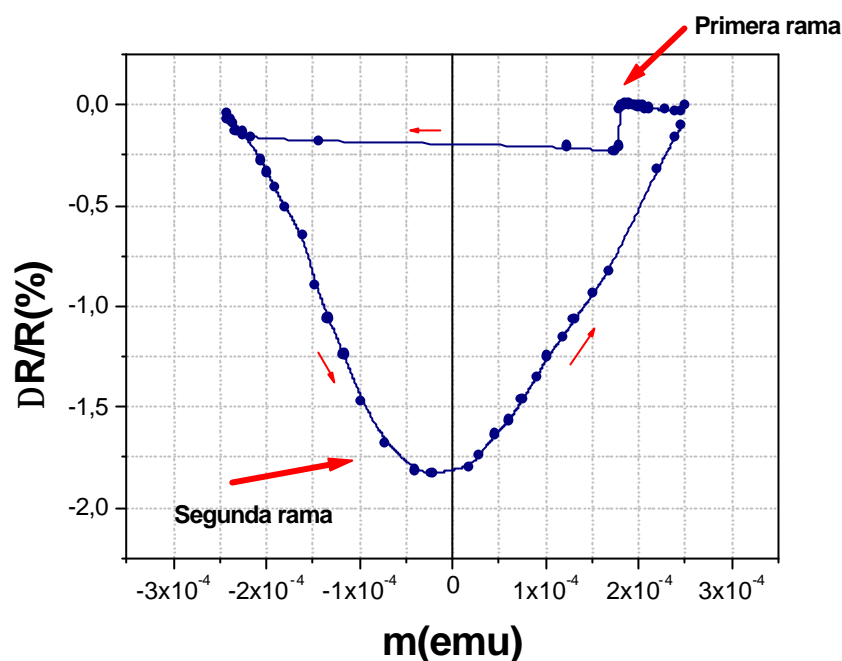


Figura 5.2.2. Dependencia de la magnetorresistencia con la imanación, medidas en la primera curva a 50 K.

En este gráfico se observa que en el primer proceso, ( $m_{\text{sat}} \rightarrow -m_{\text{sat}}$ ), la magnetorresistencia es prácticamente constante en todo el rango de la imanación, mientras que en el segundo proceso, ( $-m_{\text{sat}} \rightarrow m_{\text{sat}}$ ), se observa una dependencia cuadrática de la magnetorresistencia frente a la imanación. Esta gran diferencia entre las dos ramas puede, en principio, tener dos orígenes:

- a) El proceso de inversión de la imanación en la primera rama del ciclo (para campos negativos) tiene lugar con una elevada susceptibilidad y un corto tiempo de relajación (Figs. 5.1.1 y 5.1.3) Puede darse el caso de que la velocidad de medida de la magnetorresistencia (aproximadamente 2 medidas por minuto, dada la razón de aplicación del campo magnético en el SQUID), no sea suficiente para observar el proceso de imanación.
- b) Efectivamente, hay una **diferencia substancial entre los procesos** que tienen lugar en ambas ramas, por lo que la variación de magnetorresistencia es también diferente.

Con objeto de analizar la primera de las dos posibilidades anteriores, se ha medido la evolución temporal de la magnetorresistencia. El experimento, similar al de

medida de la relajación magnética, consiste en medir la magnetorresistencia en el tiempo con un campo aplicado constante. El procedimiento experimental, análogo al de la medida de relajación magnética, se ha esquematizado en el diagrama 5.3. Éste consiste en el enfriamiento de la muestra con un campo aplicado de +1000 Oe, desde 300 K hasta la temperatura de medida  $T_{med}$ , y la posterior aplicación del campo de medida  $H_{med}$ . El ritmo de medida es de dos medidas por segundo.

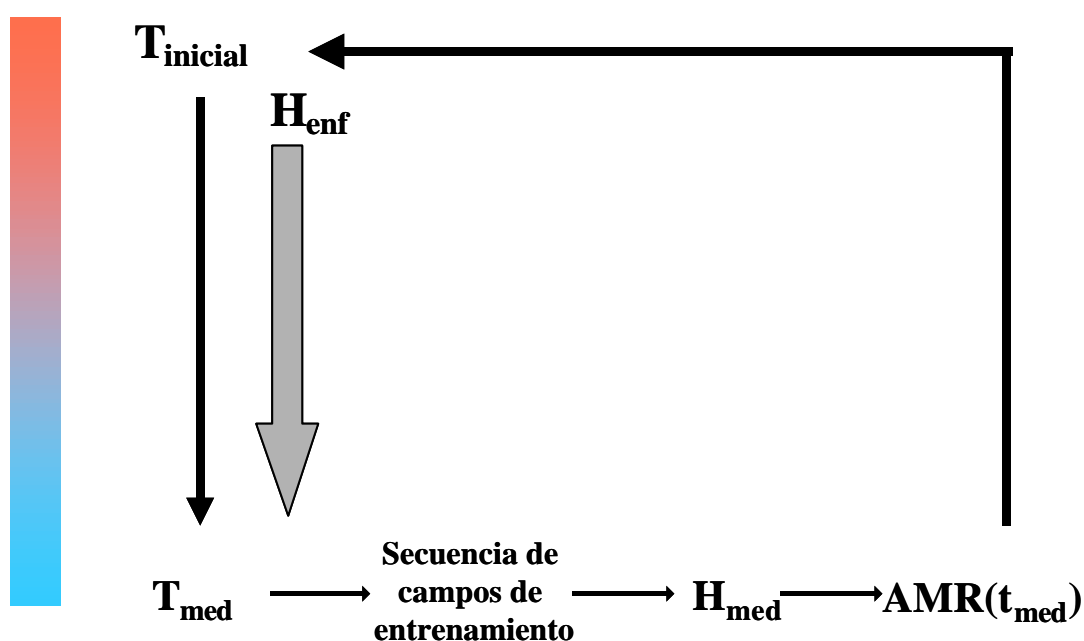


Diagrama 5.3 Esquema del procedimiento experimental para el estudio de la evolución temporal de la magnetorresistencia.

Se hicieron dos medidas de la evolución temporal de la magnetorresistencia a 50 K: ambas se han representado en la figura 5.2.3:

- La primera, correspondiente a la primera rama de la primera curva de magnetorresistencia, fue realizada con un campo aplicado de -560 Oe. El resultado de esta medida muestra una variación máxima de la magnetorresistencia de 0,2 %. Este valor coincide con el medido en la curva de magnetorresistencia (ver figura 5.2.1).



- La medida correspondiente a la segunda rama de la primera curva de magnetorresistencia, con campo aplicado +85 Oe, presenta una variación máxima de la magnetorresistencia de 1,8%. Este valor también es coincidente con el valor medido en la curva de magnetorresistencia (ver figura 5.2.1).

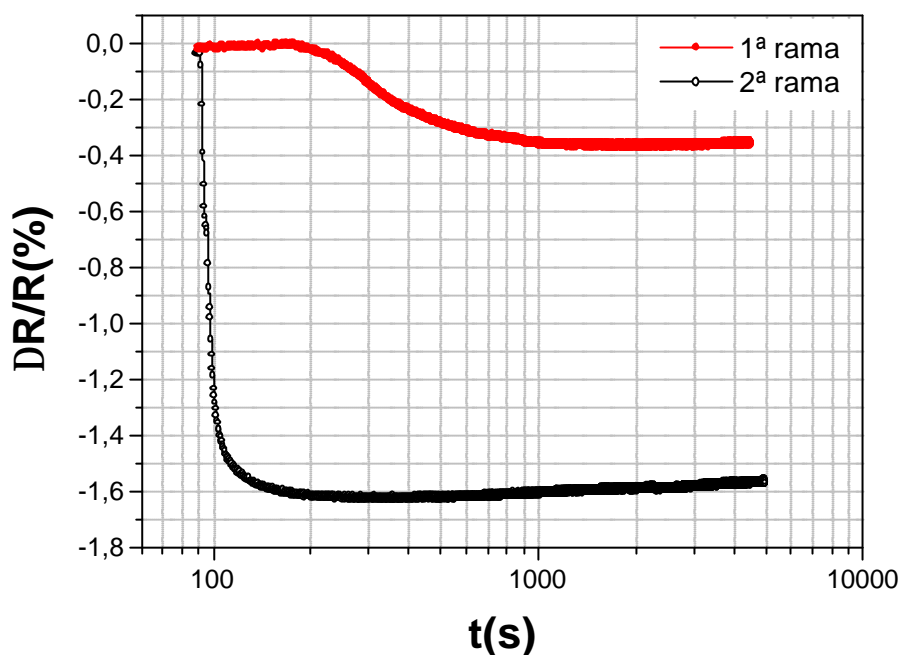


Figura 5.2.3. Evolución temporal de la magnetorresistencia medida a 50 K con campo aplicado -560 Oe (primera rama) y con campo aplicado + 85 Oe (segunda rama).

El experimento muestra que, efectivamente, existe una diferencia substancial entre los valores de magnetorresistencia medidos en una rama y en otra: el valor en la primera es 9 veces menor que en la segunda. Por ello resulta plausible que la diferencia de comportamiento magnetorresistivo se deba a una variación en el proceso de imanación. En la primera rama del ciclo se produce una inversión de la imanación sin variación de resistencia, propia de los procesos de nucleación de un dominio invertido y movimiento de paredes. En la segunda rama existe una variación cuadrática de la resistencia con la variación de la imanación (ver figura 5.2.2) propia de los procesos de rotaciones.

### 5.2.1.2. Segunda curva de magnetorresistencia a 50 K

La segunda curva de magnetorresistencia, mostrada en la figura 5.2.4, del mismo modo, exhibe dos mínimos que en este caso son aproximadamente de la misma amplitud, 1,8%. Estos extremos están situados en -240 Oe y 80 Oe, valores correspondientes a los picos de máxima susceptibilidad del ciclo de histéresis (ver figura 5.1.2). La curva, aunque está desplazada (aproximadamente - 80 Oe), presenta mayor simetría que la primera, lo que indica una estabilización del proceso de imanación.

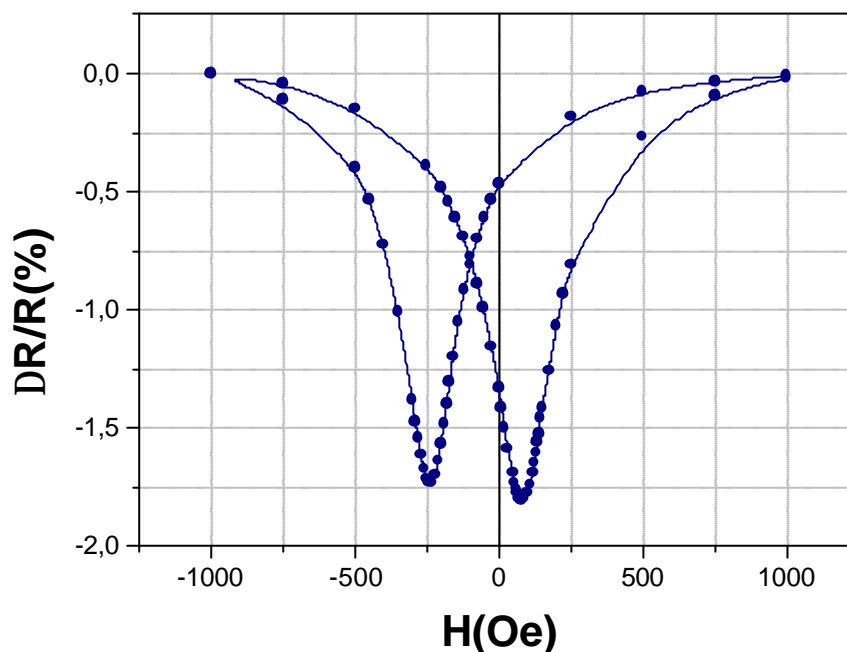


Figura 5.2.4. Segunda curva de magnetorresistencia medida a 50 K.

En la figura 5.2.5 se ha representado la evolución de la magnetorresistencia con la imanación, medidas en la segunda curva tras el proceso de enfriamiento. El comportamiento en las dos ramas es similar, presentando ambas una dependencia claramente parabólica (ver ecuación [2.9]), como corresponde a un proceso de inversión de la imanación por rotaciones

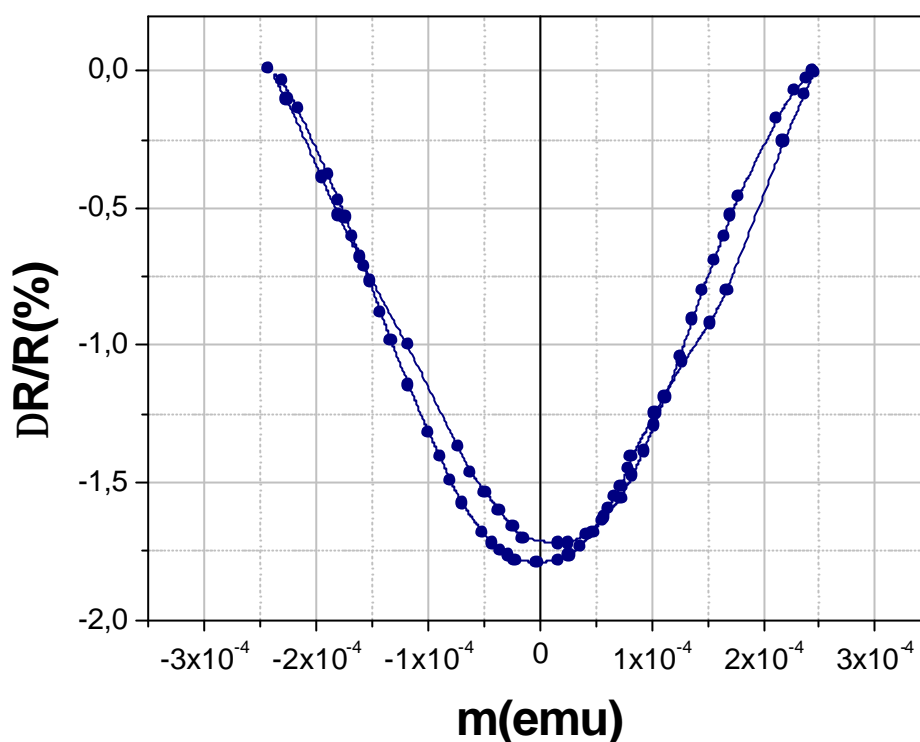


Figura 5.2.5. Dependencia de la magnetorresistencia con la imanación, medidas en la segunda curva a 50 K.

### 5.2.2. Curvas de magnetorresistencia a 160 K

En las figuras 5.2.6 y 5.2.7 se muestran las dos curvas de magnetorresistencia medidas a 160 K. A esta temperatura, si se recuerdan los resultados del estudio de los efectos de entrenamiento (figura 4.2.3), éste provocaba un **cambio de signo en el desplazamiento** de los ciclos de histéresis. Este resultado se confirma aquí a través de la medida de la AMR a 160 K: la primera curva (figura 5.2.6) está desplazada aproximadamente  $-10$  Oe, mientras que la segunda curva (figura 5.2.7) presenta un desplazamiento positivo de en torno a  $+9$  Oe.

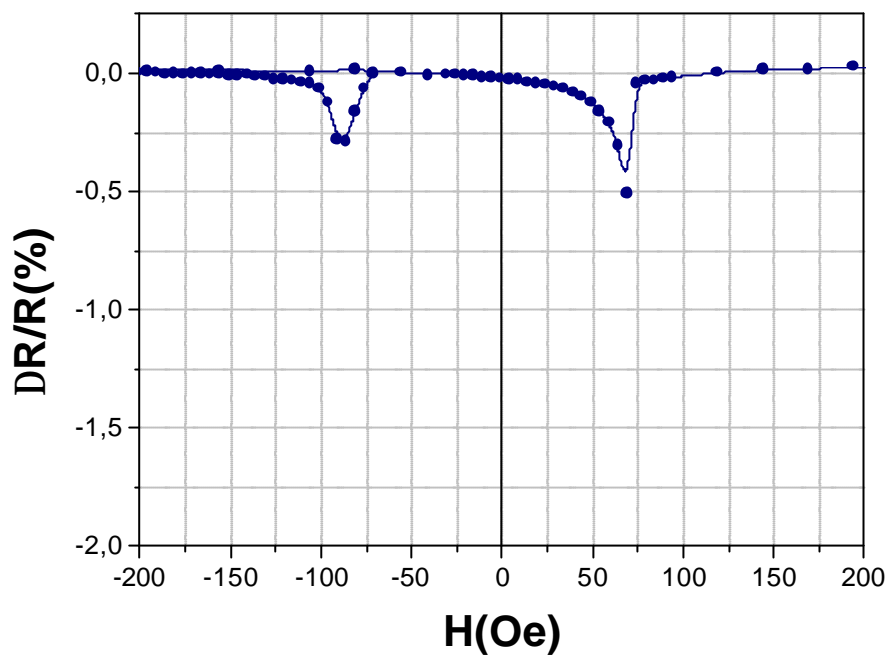


Figura 5.2.6. Primera curva de magnetorresistencia medida a 160 K

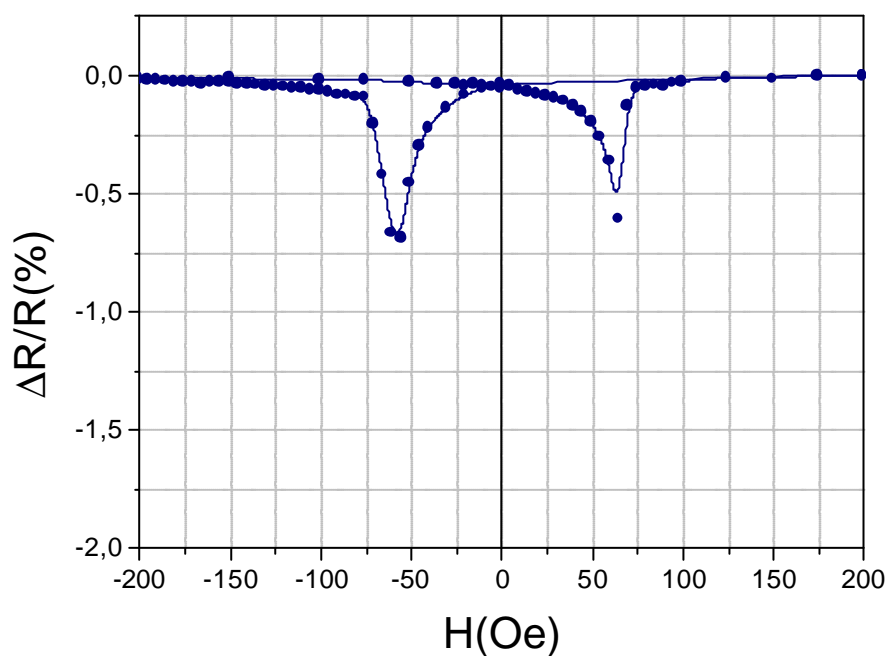


Figura 5.2.7. Segunda curva de magnetorresistencia medida a 160 K.

La medida de la primera curva (figura 5.2.6) vuelve a mostrar una cierta diferencia de valores de AMR entre la primera rama y la segunda rama. Esta diferencia, no obstante, se ha visto reducida, siendo ahora los valores - 0,3% en la primera rama y - 0.5% en la segunda.

La diferencia de procesos en las dos ramas también se sigue poniendo de manifiesto en la evolución de la magnetorresistencia con la imanación, que se ha representado en la figura 5.2.8.

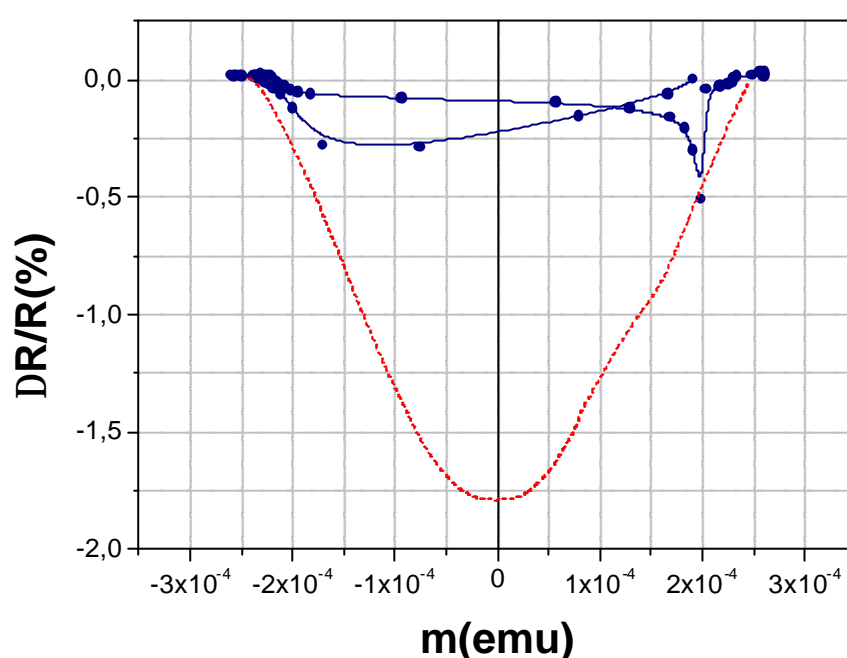


Figura 5.2.8. Dependencia de la magnetorresistencia con la imanación, medidas en la primera curva a 160K. La línea de puntos representa un comportamiento parabólico similar al encontrado a 50 K.

En la segunda curva (figura 5.2.7) medida a 160 K, el proceso de inversión de la imanación parece estabilizarse. La diferencia de valores de AMR entre ramas positiva y negativa se ha reducido, siendo - 0,6 % y -0,7 % respectivamente. La dependencia de la magnetorresistencia con la imanación correspondiente a esta medida se muestra en la figura 5.2.9.

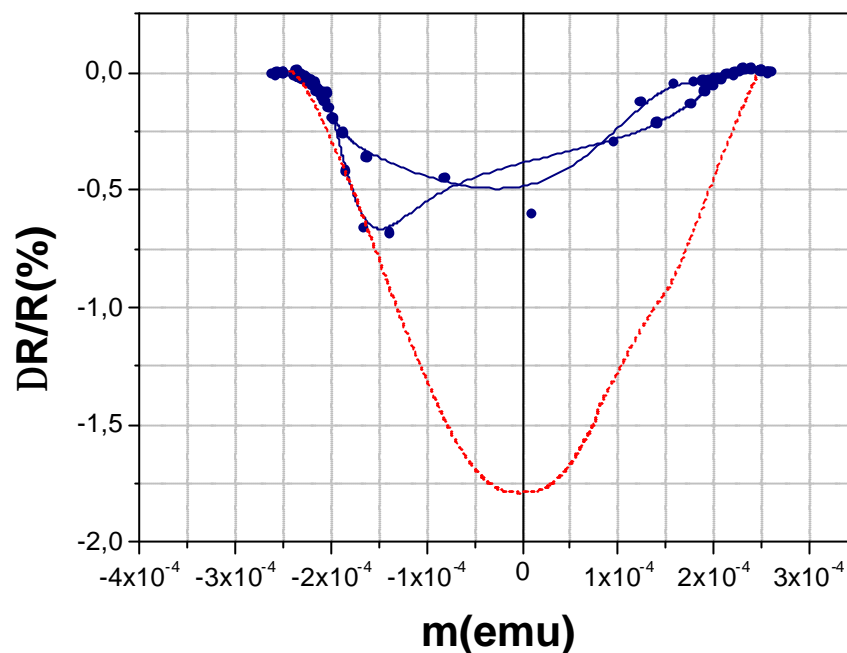


Figura 5.2.9. Dependencia de la magnetorresistencia con la imanación, medidas en la segunda curva a 160 K. La línea de puntos representa el comportamiento parabólico.

Se observa que en esta temperatura todas las dependencias de la magnetorresistencia con la imanación se alejan del comportamiento parabólico, lo que indica que el mecanismo de inversión se aleja de un proceso de rotaciones, siendo predominante la nucleación y propagación de paredes.

### 5.2.3. Dependencia térmica de la magnetorresistencia

Se han medido curvas de magnetorresistencia a diferentes temperaturas en el rango comprendido entre 50 K y 300 K. De esta manera, se ha estudiado la evolución térmica del proceso de imanación en cada una de las ramas de las dos primeras curvas medidas tras el proceso de enfriamiento.

Para cada temperatura estudiada se han determinado las máximas variaciones de la magnetorresistencia en las cuatro ramas, correspondientes a cada una de las dos curvas de magnetorresistencia medidas. Los resultados se han representado, en valor absoluto, en la figura 5.2.10 en la que se muestran las cuatro curvas obtenidas

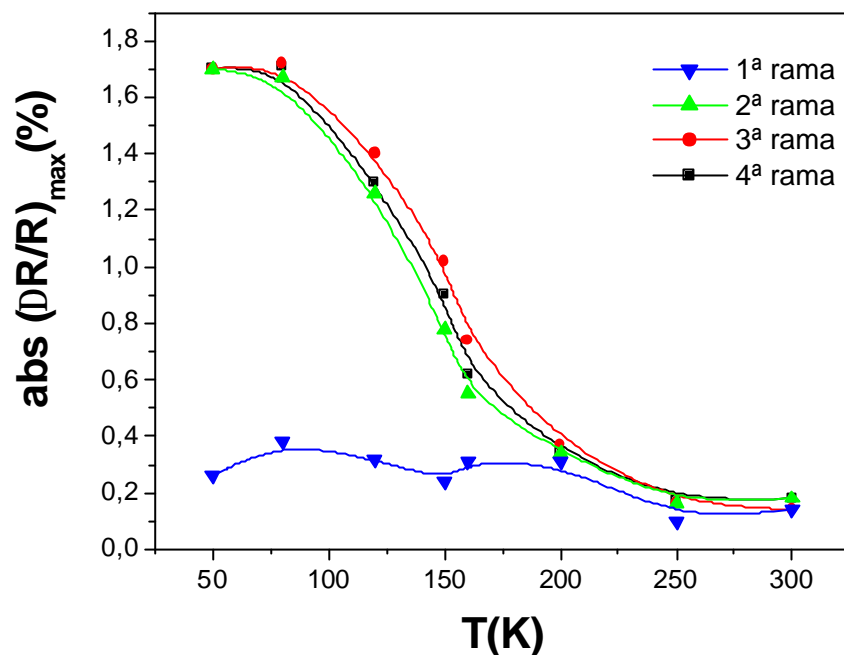


Figura 5.2.10. Dependencia térmica del máximo de la magnetorresistencia medido en las ramas indicadas de las curvas de magnetorresistencia.

A la vista de las medidas anteriormente expuestas se pueden destacar los siguientes puntos:

- Los valores de magnetorresistencia de las cuatro curvas confluyen a partir de una determinada temperatura, 200 K, que es aproximadamente la temperatura de bloqueo  $T_B$  del óxido de cobalto.
- El valor de la magnetorresistencia de la primera rama permanece aproximadamente constante en todo el rango de temperaturas.
- Las curvas correspondientes al resto de las ramas estudiadas, son prácticamente coincidentes y exhiben un decaimiento monótono desde el valor 1,6% a 50 K a hasta el valor 0,3%, valor que alcanzan a partir de 250 K.

A partir de los resultados anteriores se derivan las siguientes conclusiones acerca de los procesos de imanación:

- Los procesos de baja magnetorresistencia tienen lugar:
  - en la primera rama en todo el rango de temperaturas
  - en el resto de ramas en el rango  $T > T_B$

Estos procesos se asocian a un mecanismo de inversión de la imanación por **movimiento de paredes**.

- Los procesos de mayor magnetorresistencia tienen lugar en las ramas segunda, tercera y cuarta en el rango de temperaturas  $T < T_B$  y se asocian con un mecanismo de inversión de la imanación por **rotaciones**.
- El entrenamiento del sistema a temperaturas inferiores a la temperatura de bloqueo del antiferromagnético tiene como consecuencia un cambio sustancial en el mecanismo de inversión de la imanación.



### 5.3 Interpretación de los resultados

El objetivo del estudio llevado a cabo en este capítulo es la determinación de los procesos de imanación de los sistemas FM/AF nanocristalinos estudiados y la influencia de los procesos de entrenamiento, a través de las medidas de relajación magnética y magnetorresistencia anisótropa [17]. Los principales resultados obtenidos se resumen en la tabla 5.7.

T(K)		1ª Rama	2ª Rama	3º Rama
50	Relajación	<i>Exponencial</i> $r_{m\acute{a}x} = 7,6 \cdot 10^{-3} s^{-1}$	<i>Logarítmica</i> $V_{act} \gg 11,7 nm$	<i>Logarítmica</i> $V_{act} \gg 10,2 nm$
	AMR	~ 0	~ 2%	~ 2%
	Proceso	<i>Paredes</i>	<i>Rotaciones</i>	<i>Rotaciones</i>
160	Relajación	<i>Exponencial</i> $r_{m\acute{a}x} = 4,3 \cdot 10^{-3} s^{-1}$	<i>Exponencial</i> $r_{m\acute{a}x} = 2,7 \cdot 10^{-3} s^{-1}$	<i>Exponencial</i> $r_{m\acute{a}x} = 1,7 \cdot 10^{-3} s^{-1}$
	AMR	~ 0	~ 0,5%	~ 0,7%
	Proceso	<i>Paredes</i>	<i>Paredes</i>	<i>Paredes</i>

Tabla 5.7 Resumen de resultados obtenidos en las medidas de relajación y magnetorresistencia.

A la vista de los resultados expuestos en la tabla 5.7, parece que hay una clara correlación entre el modo de relajación magnética y el proceso de imanación que presenta el sistema, deducido de la medida de magnetorresistencia. Así se observa que:

- Los procesos en los que el mecanismo de inversión de la imanación es la nucleación de dominios invertidos y movimiento de paredes se corresponden con un modo de **relajación exponencial**. Este modo conlleva la existencia de una sola barrera energética en el proceso de inversión de la imanación. Esta barrera se va a asociar a la anisotropía uniaxial del sistema promediada en cada dominio. Recuérdese que el tamaño de grano en el FM es aproximadamente 14 nm, es decir, mucho menor que el tamaño de un dominio.

- Los procesos en los que el mecanismo de inversión de la imanación es la rotación se corresponden con un modo de **relajación logarítmica**. Este modo implica la existencia de una cierta distribución de barreras de energía, que se asocian a los ejes locales de anisotropía de cada uno de los cristales ferromagnéticos. Tal y como se muestra en la tabla anterior, los volúmenes de activación fluctúan entre 10 y 12 nm.

Se analizarán a continuación en detalle los resultados obtenidos, clasificados en tres rangos diferentes de la temperatura de medida  $T_{med}$

### 5.3.1 $T_{med} > T_B$ (rango sin anisotropía de canje)

En este rango de temperaturas superiores a la temperatura de orden,  $T_B$ , del AF, el sistema no presenta anisotropía de canje. El mecanismo de inversión que tiene lugar es la nucleación de un dominio invertido y desplazamiento de paredes. Éste es el proceso habitual en una película delgada de un material ferromagnético blando, como es el caso del *Permalloy*. La medida de magnetorresistencia demuestra que, efectivamente, no se produce un proceso de rotación de la imanación, puesto que los máximos valores de AMR medidos son bajos, no superiores a 0,2%

Con objeto de interpretar los resultados anteriores haremos un balance energético de los procesos de rotación y formación de dominio invertido. Para ello, consideraremos tanto en este caso como en todos los siguientes un estado magnético del sistema de imanación cero  $M = 0$ . Esto supone, considerar en el caso de la formación de un dominio invertido, que éste y el dominio no invertido tienen las mismas dimensiones. En el caso de la rotación, supondremos que la pared paralela tiene igualmente momento neto cero en la dirección del campo aplicado (dirección de medida). Por tanto, en esta estimación, la variación de energía Zeeman será la misma en todos los casos y por ello no tendremos en cuenta este término en el balance energético entre los modos de inversión de la imanación que se discuten.

En primer lugar, haremos una estimación de la energía de formación de un dominio invertido, o lo que es lo mismo, la energía de formación de la pared, a partir de la siguiente expresión [18]:

$$\mathbf{g}_{pared} = \sqrt{\frac{0,3kT_c \mathbf{p}^2 K(T)}{a}} \quad [5.9]$$

donde  $k$  es la constante de Boltzmann,  $T_c$  es la temperatura de Curie,  $K(T)$  la energía de anisotropía magnetocristalina y  $a$  el parámetro de red. El espesor de esta pared viene dado por la siguiente expresión [18]:

$$\mathbf{d}_{pared} = \sqrt{\frac{0,3kT_c \mathbf{p}^2}{4K(T)a}} \quad [5.10]$$

Se tomarán en adelante los siguientes valores, propios del *Permalloy* [19]:

$k = 1,38 \cdot 10^{-16} \text{ erg/K}$	$K(50K) = 5 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$
$a \approx 2,5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$	$K(160K) = 4,5 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$
$T_c = 853 \text{ K}$	$K(300K) = 3,5 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$
$M_s = 500 \text{ emu/cm}^3$	

y las siguientes dimensiones:

$t = 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$	$A = 0,5 \times 0,5 \text{ cm}^2$
----------------------------------	-----------------------------------

donde  $t$  es el espesor de la película y  $A$  la superficie de una muestra típica. Introduciendo los valores correspondientes en las expresiones [5.9] y [5.10] se estiman los siguientes valores para la energía de formación de una pared de  $180^\circ$  y su espesor en la capa de *Permalloy*:

$$\mathbf{g}_{pared} \approx 2 \cdot 10^{-1} \text{ erg / cm}^2$$

$$\mathbf{d}_{pared} \approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$$

La energía total de una pared perpendicular, suponiendo que el área de la misma es  $A_{pared} = 0,5 \text{ cm} \times 20 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$ , será:

$$E_{pared} \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ erg}$$

Por otra parte, estimamos la energía típica de rotación de la imanación en este sistema mediante la estimaremos a través de la siguiente expresión:

$$E_{rotación} = KV_{FM} \quad [5.11]$$

Teniendo en cuenta el volumen típico de la capa FM ,  $V_{FM} = 5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3$ , y el valor de la constante de anisotropía tenemos que la energía total de rotación:

$$E_{rotación} \approx 1,75 \cdot 10^{-3} \cdot \text{erg}$$

Este sencillo cálculo nos ha permitido corroborar que, como cabía esperar, el mecanismo más favorable energéticamente para la inversión de la imanación en ausencia de anisotropía de canje es la formación de paredes de  $180^\circ$  perpendiculares al plano de la película.

### 5.3.2 $T_{med} \sim T_B$ (anisotropía de canje cerca de la transición)

En este rango de temperaturas cercanas a la temperatura de transición,  $T_B$ , los efectos de la anisotropía de canje son de magnitud reducida (bajos campos de desplazamiento). Los valores de magnetorresistencia medidos a 160 K, así como su dependencia con la imanación, muestran de nuevo que el proceso a esta temperatura no se produce por rotación de la imanación, sino que fundamentalmente ocurre mediante la **nucleación de dominios invertidos y movimiento de paredes**. Además, la dependencia exponencial de la relajación magnética indica que el proceso es energéticamente univaluado, es decir, el sistema sólo encuentra una barrera energética para invertir la imanación. Esta barrera se asocia con la anisotropía uniaxial presente inicialmente en la lámina de *Permalloy*, promediada en cada dominio. Para corroborar

lo que las medidas de magnetorresistencia y relajación magnética ponen de manifiesto, haremos un balance energético similar al caso anterior.

En primer lugar, se debe hacer notar que para estimar tanto la energía de formación de un dominio invertido como la de rotación ahora habrá que evaluar también la energía de canje con el momento AF descompensado en la intercara responsable de la anisotropía de canje. Así, en el caso de la **formación de un dominio invertido** la energía total será:

$$E_{dominio} = E_{pared} + E_{canje}$$

La energía de la pared se calculó en el apartado anterior y la densidad de energía de canje se relaciona con el campo de desplazamiento a través de la siguiente expresión (ver capítulo 1):

$$\mathbf{g}_{canje} = -t\vec{M}_s \cdot \vec{H}_E \quad [5.12]$$

Consideraremos de nuevo por simplicidad, el estado en el que las dimensiones del dominio invertido y las del dominio no invertido son las mismas, tal y como se muestra en la figura 5.3.1a. Podemos expresar la densidad de energía de canje de la siguiente forma:

$$\mathbf{g}_{canje} \approx \frac{1}{2} M_s H_E - \frac{1}{2} M_s H_E = 0$$

Por tanto, la energía total del proceso es la de formación de la pared:

$$E_{dominio} = 3 \cdot 10^{-7} \text{ erg}$$

Consideremos ahora otro posible mecanismo de inversión de la imanación. Podemos pensar en un mecanismo que reduzca la energía de canje en la intercara con el momento AF descompensado: sería la formación de **una pared paralela** al plano de la

película. Observamos un esquema de la formación de esta pared paralela y su comparación con el proceso de formación de un dominio invertido en la figura 5.3.1: (a) formación de pared perpendicular (dominio invertido), y (b) formación de pared paralela en un sistema FM/AF.

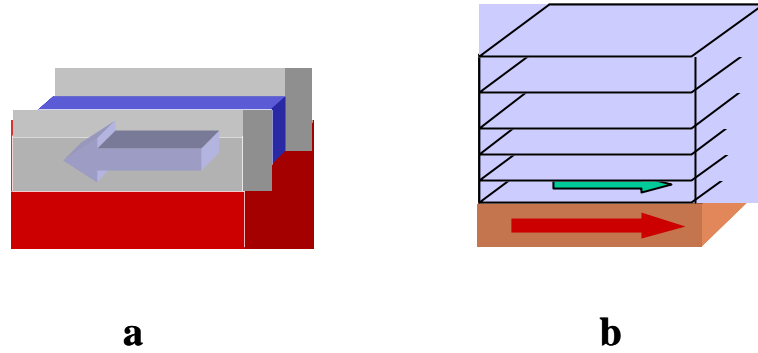


Figura 5.3.1. Formación de una pared de 180° a) perpendicular y b) paralela

La formación de esta pared paralela al plano de la película supone que básicamente todos los momentos magnéticos de la lámina FM están rotando simultáneamente, por lo que éste es un proceso básicamente de **rotaciones**. Una estimación del balance energético involucrado en este proceso es:

$$E_{rotación} = E_{pared-paralela} + E_{canje}$$

La densidad de energía de formación de la pared paralela viene dada mediante la siguiente expresión [18]:

$$g_{pared-paralela} = 2Kt \quad [5.13]$$

Introduciendo los valores correspondientes, se estima que la energía total es:

$$E_{pared-paralela} = 4,5 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$$

Para calcular la energía de canje, recordamos los resultados mostrados en la figura 5.1.12, en la que observamos que a 160 K el campo de desplazamiento  $H_E$ ,

medido en el primer ciclo de histéresis, es aproximadamente - 10 Oe. Introduciendo en la ecuación [5.12] los valores correspondientes y teniendo en cuenta el volumen de la lámina ferromagnética  $V_{FM}$ , se estima la energía de canje total en la intercara a 160 K:

$$E_{canje} = -2,5 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$$

Por tanto, la energía total del proceso de rotación es:

$$E_{rotación} = 2,5 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$$

El balance energético nos da como resultado que la energía de rotación es mayor que la energía de formación de un dominio invertido:

$$E_{rotación} > E_{dominio}$$

con lo que se estima que el mecanismo de inversión de la imanación más favorable a esta temperatura sigue siendo la **formación de dominios invertidos y desplazamiento de paredes**.

### 5.3.3 $T_{med} \ll T_B$ (rango con anisotropía de canje)

En este rango de temperaturas, la anisotropía de canje está bien establecida y el sistema presenta importantes efectos de desplazamiento de ciclo y de entrenamiento, por lo que es preciso distinguir dos situaciones diferentes:

- El estado en el que se encuentra el sistema cuando acaba de ser sometido al proceso de enfriamiento con campo, es un **estado metaestable** y por tanto la fenomenología que en él se produce es de una naturaleza particular.
- El entrenamiento de la muestra con una secuencia de campos aplicados tras el enfriamiento, provoca en el sistema la evolución hacia a un **estado estable**. Una vez alcanzado este estado, el proceso de inversión de la imanación se estabiliza de forma

que, en este punto, se puede considerar que en el sistema tiene lugar un proceso de inversión de la imanación general para cada temperatura.

Por tanto, el comportamiento de la primera rama de los ciclos de histéresis es diferente al que se presenta en las ramas subsecuentes. Esta diferencia se ha puesto de manifiesto en la medida de los ciclos de histéresis, en las medidas de relajación magnética y especialmente en las medidas de magnetorresistencia, en las que la primera rama exhibe un comportamiento claramente diferente al de las ramas segunda, tercera y cuarta. Se analizan a continuación los resultados obtenidos a 50 K.

### 5.3.3.1 Segunda, tercera, cuarta y sucesivas ramas a 50 K.

Las medidas de magnetorresistencia realizadas en estas ramas exhiben valores altos, en torno al 1,8 % y una dependencia cuadrática con la imanación, típica de los **procesos de rotaciones**. Además, la dependencia logarítmica de la relajación magnética pone de manifiesto que la inversión de la imanación es un proceso energéticamente multivaluado, es decir, existe una distribución ancha de barreras energéticas, que se asocian a los diferentes ejes de anisotropía local de los granos de la lámina FM policristalina, a través de los cuales la imanación rota. Este punto se ve corroborado en cierta medida con el tamaño nanométrico de los volúmenes de activación calculados a partir de las medidas de viscosidad magnética.

Veamos cómo el balance energético en este caso indica que es energéticamente más favorable la rotación de la imanación (entendida como la formación de una pared paralela) que la formación de un dominio invertido. Primeramente, estimaremos el valor de la energía de **rotación**:

$$E_{rotación} = E_{pared-paralela} + E_{canje}$$

La energía de la pared paralela es:

$$E_{pared-paralela} = 5 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$$



y la energía de canje en este caso, teniendo en cuenta que el valor del campo de desplazamiento del segundo ciclo de histéresis, medido a 50 K, es  $H_E = -80$  Oe (ver figura 5.1.2) es:

$$E_{\text{canje}} \approx -2,0 \cdot 10^{-2} \text{ erg}$$

con lo que:

$$E_{\text{rotación}} \approx -1,5 \cdot 10^{-2} \text{ erg}$$

La energía de formación de dominio es aproximadamente la misma que en el caso anterior:

$$E_{\text{dominio}} = 3 \cdot 10^{-7} \text{ erg}$$

por lo que en este caso el balance energético es tal que:

$$E_{\text{dominio}} > E_{\text{rotación}}$$

y por tanto se estima que el mecanismo más favorable es la **rotación de la imanación**.

### 5.3.3.2 Primera rama a 50 K

La medida de magnetorresistencia en esta rama (ver figura 5.2.2) indica claramente que el proceso de inversión de la imanación no ocurre por rotación. El bajo valor de magnetorresistencia, 0,2%, prácticamente constante en todo el rango de temperaturas, pone de manifiesto que el mecanismo que tiene lugar es la **nucleación de dominios invertidos y desplazamiento de paredes**. Por otra parte, la medida de relajación magnética en esta primera rama presenta una dependencia puramente **exponencial**. Este comportamiento indica, como en los casos anteriores, que se trata de un proceso en el que existe una sola barrera energética, que la asociamos con la anisotropía uniaxial del sistema.

El primer ciclo de histéresis medido tras el proceso de enfriamiento a 50 K (ver figura 4.2.1) presenta valores muy elevados tanto del campo coercitivo como del campo de canje: 370 Oe y -260 Oe, respectivamente. Esto supone que, para producir la primera

inversión de la imanación, es necesaria la aplicación de un campo externo de aproximadamente  $-625$  Oe. Este alto valor de campo indica la presencia de un elevado momento AF descompensado en la intercara.

El estudio de efectos de entrenamiento realizado en el capítulo 4 , mostraba que la primera inversión de la imanación está acompañada de la transición irreversible de una cierta cantidad de granos AF, que orientan sus momentos descompensados en direcciones de menor anisotropía local, no necesariamente paralelas a la dirección del campo de enfriamiento. Este hecho pone de manifiesto, que:

- hay una parte del momento descompensado que podemos llamar **metaestable**, que desaparece en la primera inversión de la imanación. Esta parte metaestable del momento descompensado contribuye a la coercitividad y al campo de canje tan sólo en el primer ciclo de histéresis.
- otra parte, que llamaremos **estable**, permanece tras la primera inversión de la imanación y contribuye al campo coercitivo y al campo de canje tanto en el primer ciclo de histéresis como en los subsecuentes.

Podemos estimar la contribución que ambas partes tienen al campo de canje en la primera inversión de la imanación, teniendo en cuenta los campos de desplazamiento del primer y segundo ciclos de histéresis:

$$H_E^{1er\ ciclo} = H_E^{estable} + H_E^{metaestable} = -260Oe$$

$$H_E^{2o\ ciclo} = H_E^{estable} = -80Oe$$

de lo que se deduce que:

$$H_E^{metaestable} = -180Oe \quad H_E^{estable} = -80Oe$$

Haremos ahora el balance energético de los procesos de formación de dominio invertido y rotación, en esta situación, en la que existen las dos contribuciones anteriores al campo  $H_E$  y un elevado campo aplicado externamente  $H_{apl} = -625$  Oe. Hay que hacer notar que el experimento muestra que desaparece la contribución metaestable

del momento descompensado cuando se invierte la imanación, por lo que en la estimación de la energía de rotación debemos tener en cuenta solamente la energía de canje con la parte estable del mismo. De esta manera, estimamos **la energía en un proceso de rotación**, según la siguiente expresión:

$$E_{rotación} = E_{pared-paralela} + E_{canje}(H_E^{estable})$$

Los valores de cada uno de los términos anteriores son:

$$E_{pared-paralela} \approx 5 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$$

$$E_{canje}(H_E^{estable}) \approx -2 \cdot 10^{-2} \text{ erg}$$

por lo que:

$$E_{rotación} \approx -1,5 \cdot 10^{-2} \cdot \text{erg}$$

Estimaremos ahora la **energía de formación de un dominio invertido**. En este caso hay que tener en cuenta que la formación del dominio invertido implica la inversión del momento metaestable, por lo que éste, una vez formado el dominio invertido, no contribuye a la energía de canje de éste. Por tanto, en el estado en que, como en los casos anteriores, las dimensiones de los dominios invertido y no invertido son idénticas, viene dada por la siguiente expresión:

$$E_{dominio} = \frac{1}{2} M_s H_E^{estable} - \frac{1}{2} M_s (H_E^{estable} + H_E^{metaestable})$$

y teniendo en cuenta los valores anteriores de los campos estable y metaestable:

$$E_{dominio} \approx -2,2 \cdot 10^{-2} \text{ erg}$$

Por lo tanto, dado que en este caso:

$$E_{rotación} > E_{dominio}$$

es evidente que el mecanismo más favorable es la formación de un **dominio invertido**.

## 5.4. Conclusiones

Las principales conclusiones derivadas de los resultados expuestos en este capítulo se resumen a continuación:

- El mecanismo de inversión de la imanación que tiene lugar en los sistemas con anisotropía de canje estudiados es una consecuencia del balance energético a cada temperatura y del estado del antiferromagnético tras el proceso de enfriamiento. Así se distinguen fundamentalmente dos estados:
  - **Estado metaestable**, en el que se encuentra el sistema tras el proceso de enfriamiento con campo y antes de la primera inversión de la imanación. Una parte del momento descompensado está en una posición inestable y se reorienta irreversiblemente tras la primera inversión de la imanación.
  - **Estado estable**, al que evoluciona el sistema tras sucesivas inversiones de la imanación. Prácticamente todo el momento descompensado AF en la intercara está en una posición estable
- En el estado **metaestable**, es decir, en la primera rama del ciclo de histéresis, el proceso de inversión de la imanación en todo el rango de temperaturas estudiado es la **formación de dominios invertidos y desplazamiento de paredes**. La medida de relajación magnética correspondiente presenta un comportamiento puramente exponencial, siendo la barrera única de energía en el proceso de inversión la anisotropía uniáxica de la lámina ferromagnética, y la máxima magnetorresistencia medida es baja, aproximadamente 0,2%.
- En el **estado estable**, es decir en las ramas segunda, tercera, cuarta y sucesivas, el proceso de inversión de la imanación depende del rango de temperaturas estudiado:
  - $T < T_B$  . La anisotropía de canje está bien establecida: el proceso tiene lugar mediante **rotaciones** de la imanación y la relajación magnética es

logarítmica, identificándose la disoersión de barreras energéticas propia de este tipo de relajación con los ejes de anisotropía local de la lámina ferromagnética policristalina.

- $T > T_B$  . La anisotropía de canje es débil puesto que la temperatura es próxima a la temperatura de transición del AF: el proceso tiene lugar mediante nucleación de dominios invertidos y **movimiento de paredes**.
  
- De todo lo anterior se deduce que en general la presencia de anisotropía de canje en los sistemas estudiados, parece obligar al sistema a invertir la imanación mediante un **proceso de rotaciones**, en el rango de temperaturas en que está bien establecida ( $< T_B$ ) y cuando el sistema está en un estado estable, tras el proceso de entrenamiento. En el capítulo siguiente se presenta un estudio sistemático de este proceso de rotaciones.

## Bibliografía

- [1] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean, Phys. Rev.105, 3 (1957)
- [2] E. Fulcomer and S. H. Charap, J. Appl. Phys., Vol. 43, No. 10, October 1972.
- [3] D. Mauri *et al*, J. Appl. Phys. **62**, 3047 (1987)
- [4] P. Malozemoff, Phys. Rev. B, 35, 3679 (1987)
- [5] V. I. Nikitenko et al, R.D. Shull et al and R P. Michael et al, Phys. Rev. 57,14 (1998)
- [6] M.R. Fitzsimmons, P. Yashar, C. Leighton, I. K. Schuller, J. Nogués, C. F. Majkrzak and J. A. Dura, Phys. Rev. Lett, 84,17 (2000)
- [7] X. Portier et al, J. Appl. Phys., 87,9 (2000)
- [8] F. Nolting et al., Nature (London) 405, 767 (2000)
- [9] S.G:E. Velthuis, A. Berger, G.P: Felcher, B.K. Hill and E.D. Dahlberg, J. Appl. Phys. 87,9 (2000)
- [10] K. Zhang, T. Zhao and H. Fujiwara, J. Appl, Phys., 89, 11 (2001)
- [11] Street, R. And Wooley, J.C., “A study of Magnetic Viscosity”, Proc. Phys. Soc. A **62**, 562-572(1949)
- [12] K. O’Grady, R.W. Chantrell, J. Popplewell and S.W. Charles, IEEE Trans. Magn. MAG-17 (1981) 2943
- [13] E.P. Wolthfarth, “*The coefficient of magnetic viscosity*”, J.Phys. F:Met.Phys., vol. 14, pp. L155-159, 1984.
- [14] A. Aharoni, J.Appl. Phys. **57** (1985) 4702
- [15] A. M. Goodman, H. Laidler, K. O’Grady, N. W. Owen, and A.K. Petford- Long, J. Appl. Phys. **87**,6409(2000)
- [16] C. Leighton , I.K. Schuller, Phys Rev B, Volume 63, (2001) 174419
- [17] C. Prados, E. Pina (en preparación)
- [18] B.D. Cullity, “*Introduction to magnetic Materials*”, Addison-Wesley Publishing Company, 1972
- [19] R. M. Bozorth, “*Ferromagnetism*”, D. Van Nostrand CVompany, INC., Canadá (1968)
- [20] M.D. Stiles, R. D. McMichael, P.J. Chen and W. F. Egelhoff, Jr., Phys. Rev. B 58 8605(1998) 3722

# Capítulo 6

---

## Procesos de imanación

Este capítulo está dedicado al estudio detallado de los procesos de imanación en sistemas con anisotropía de canje a temperatura ambiente. En el capítulo 4 se estudió la evolución térmica de la anisotropía de canje y se obtuvieron interesantes resultados relacionados con la estructura nanocristalina de los sistemas estudiados. En el capítulo 5 se estudiaron, a través del análisis de las medidas de relajación magnética y magnetorresistencia, los diferentes mecanismos de inversión de la imanación que tenían lugar en los mismos sistemas con anisotropía de canje. Esencialmente se observó cómo la primera inversión de la imanación tras el enfriamiento con campo se producía mediante un mecanismo de nucleación de un dominio invertido y propagación de paredes. En este caso existía una gran descompensación de momento en la intercara con el AF. Después del proceso de entrenamiento se vio cómo se reducía y se estabilizaba el grado de descompensación de la intercara. En este último caso el proceso de inversión de la imanación tenía lugar fundamentalmente mediante rotación de la imanación.

Como se indicó en la introducción al capítulo 4, mientras el origen del campo de canje  $H_E$ , está claramente relacionado con la interacción del momento del ferromagnético y el momento descompensado del antiferromagnético en la intercara, no existe aún una teoría única que establezca cuál es el origen del aumento de campo coercitivo en sistemas con anisotropía de canje. Por lo general, los trabajos sobre campo coercitivo en sistemas con anisotropía de canje no incluyen un estudio paralelo del campo de desplazamiento, y viceversa, por lo que ambos aspectos se abordan generalmente desde puntos de vista diferentes.

En este capítulo se presentará un estudio sistemático del proceso de imanación llevado a cabo en un sistema con anisotropía de canje a temperatura ambiente. Para ello se ha hecho un análisis comparativo entre las propiedades magnéticas de un sistema con anisotropía de canje y un sistema análogo sin anisotropía de canje. En primer lugar se presentarán los resultados de la medida de ciclos de histéresis longitudinales y transversales en función del ángulo formado por el campo aplicado y la dirección de fácil imanación de las muestras. A continuación se expondrán los resultados de la

medida de curvas de magnetorresistencia en función del ángulo medidas en las mismas condiciones.

El aumento de campo coercitivo en sistemas con anisotropía de canje parece estar íntimamente relacionado con un cambio en el mecanismo de inversión de la imanación respecto al de los sistemas sin anisotropía de canje. Mientras que los sistemas magnéticos blandos en forma de película delgada suelen invertir su imanación mediante procesos de nucleación y desplazamiento de paredes, la presencia de anisotropía de canje parece favorecer procesos basados en rotaciones de la imanación, con el consiguiente aumento de coercitividad.

En este trabajo se propondrá un mecanismo de **rotación incoherente** de la imanación que explica tanto el aumento de campo coercitivo como la presencia de un eje uniáxico inducido por la anisotropía unidireccional. Se mostrará cómo el aumento de campo coercitivo y la presencia de un eje uniáxico inducido por la anisotropía de canje están estrechamente vinculados a la naturaleza de este mecanismo de inversión de la imanación. Finalmente, los resultados obtenidos a partir de los cálculos realizados en el marco teórico de este modelo se compararán con las medidas experimentales.



## 6.1 Ciclos de histéresis longitudinales y transversales en función del ángulo

La medida simultánea de la evolución con el campo magnético aplicado de las componentes longitudinal y transversal de la imanación en función del ángulo es de gran utilidad para el análisis del mecanismo de inversión de la imanación. Existen diversas técnicas mediante las cuales se puede determinar la componente transversal de la imanación. Entre las más recientes, que utilizan tecnologías de nueva generación, están la microscopía de emisión de fotoelectrones y la reflectometría de neutrones. Sin embargo, existen técnicas más tradicionales como por ejemplo las técnicas inductivas, que son igualmente útiles y mucho menos costosas y sofisticadas.

La técnica empleada en este trabajo para la medida de ciclos de histéresis es la técnica de efecto Kerr a temperatura ambiente, cuyos fundamentos y montaje experimental fueron ampliamente descritos en el capítulo 2. Tal y como se explicó allí, mediante esta técnica se determinan la componente longitudinal  $M_x$  y la componente transversal  $M_y$  de la imanación para cada valor de campo longitudinal aplicado (ver figura 6.1.1).

En este apartado se compararán los procesos de imanación a temperatura ambiente en sistemas similares con y sin anisotropía de canje. Con tal objeto se han estudiado los siguientes sistemas:

**PYC4**      $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (20 nm) / Co-O (20 nm)

**NIOPY2**    $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (20 nm) / Ni-O (40 nm)

El sistema **PYC4** tiene como antiferromagnético el óxido de cobalto, que como tiene una temperatura de orden en torno a 200 K a temperatura ambiente no presenta anisotropía de canje.

El sistema **NIOPY2** tiene como material antiferromagnético el óxido de níquel cuya temperatura de orden está en torno a 375 K, por lo que a temperatura ambiente existirá interacción de canje entre la capa ferromagnética y la antiferromagnética..

Los dos sistemas anteriores también se han estudiado simultáneamente cuando forman parte del mismo sistema, en estructuras tipo *spin valve* (ver capítulo 1) en las siguientes muestras:

**ST2-1** Ni-O (20 nm)/ Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (20 nm)/**Cu(1,5 nm)**/ Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (20 nm)/ Co-O (20 nm)

**ST2-2** Ni-O (20 nm)/ Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (20 nm)/**Cu(6,0 nm)**/ Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (20 nm)/ Co-O (20 nm)

Estas dos pentacapas similares presentan dos situaciones distintas: en el sistema **ST2-1** las dos capas ferromagnéticas están acopladas entre sí a través de la capa de cobre, que tiene un espesor de 1,5 nm que permite la interacción de canje. En el sistema **ST2-2** la capa de cobre es lo suficientemente gruesa, 6 nm, como para impedir la interacción de canje entre las capas ferromagnéticas.

Todas las muestras fabricadas, inicialmente presentan una dirección de fácil imanación o eje fácil como consecuencia de la anisotropía uniáxica establecida durante el proceso de fabricación (*sputtering magnetron RF*). Este eje uniáxico se determinó en las muestras estudiadas mediante la medida de ciclos de histéresis longitudinales en función del ángulo a temperatura ambiente. Se considera dirección de fácil imanación aquella en la que el sistema presenta mayor valor de la imanación remanente.

Teniendo en cuenta que en el procedimiento experimental de medida angular lo que se hace girar es la muestra, llamaremos  $\phi$  al ángulo formado por el eje uniáxico de la muestra y la dirección del campo aplicado, y se tomará como origen de ángulos  $\phi = 0^\circ$ . En la figura 6.1.1 se ha esquematizado el convenio de signos adoptado para la medida de las componentes longitudinal y transversal de la imanación.

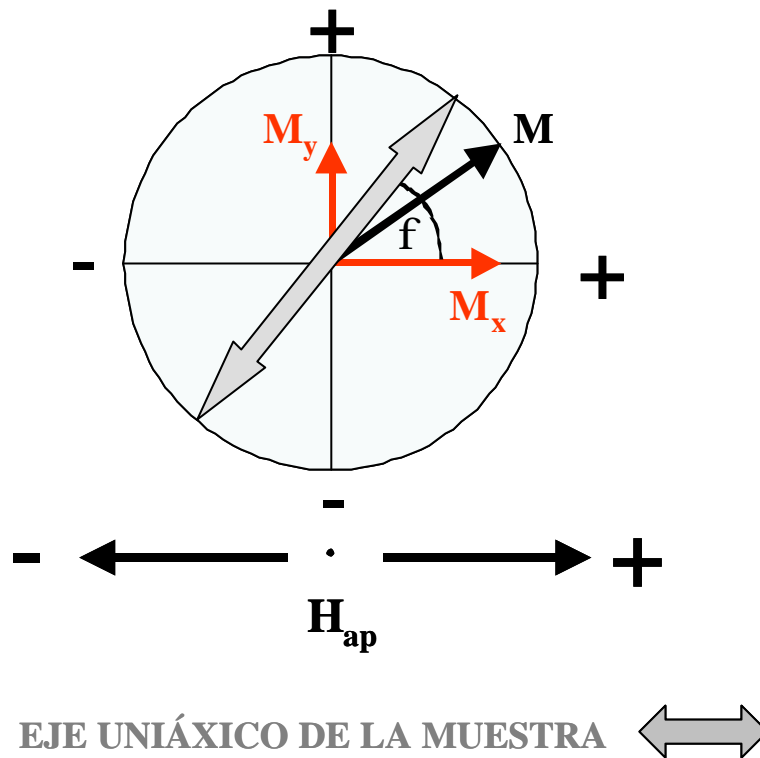


Figura 6.1.1. Convenio de signos tomada para la medida de las componentes longitudinal y transversal de la imanación.

### 6.1.1 Sistema sin anisotropía de canje: $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ / Co-O

Con objeto de estudiar el comportamiento de la imanación a temperatura ambiente durante el proceso de inversión en una capa ferromagnética libre, es decir, sin acoplamiento en canje con un antiferromagnético, se escogió la muestra PYC4

Se midieron ciclos de histéresis longitudinales y transversales con campo máximo aplicado  $\pm 60$  Oe en el rango de ángulos comprendido entre  $0^\circ$  y  $360^\circ$  en intervalos de  $10^\circ$ . En la figura 6.1.2 se muestra una selección de ciclos de histéresis medidos en los ángulos indicados. La línea azul representa la componente longitudinal y la línea roja con puntos la componente transversal.

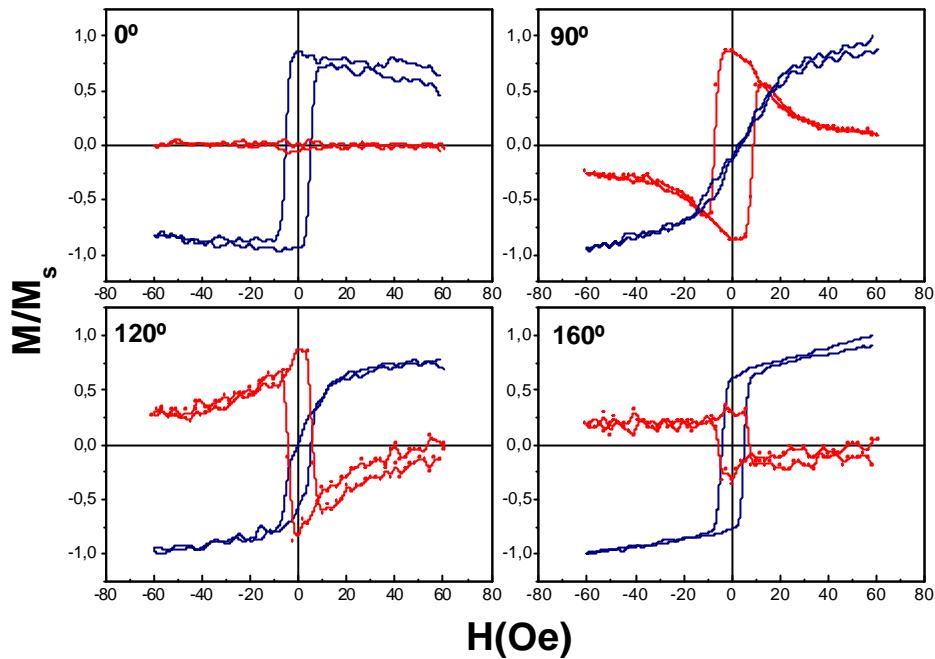


Figura 6.1.2. Ciclos de histéresis longitudinales (línea azul) y transversales (línea roja con puntos) medidos a temperatura ambiente en los ángulos  $\phi$  indicados en la muestra PYC4.

Los principales resultados obtenidos a partir de estas medidas se destacan en los siguientes puntos:

- En primer lugar, se pone de manifiesto la presencia de un eje de fácil imanación debido a la **anisotropía uniáxica** de la muestra y que, como se ha convenido, está situado en la dirección 0-180°. En la figura 6.1.3 se representa en coordenadas polares el campo coercitivo en función del ángulo  $\phi$  calculado según la siguiente expresión:

$$H_c = \frac{H_{dr} - H_{iz}}{2}$$

[6.1]

donde  $H_{dr} > H_{iz}$ , son los cortes de la curva de imanación longitudinal con el eje  $M=0$ . En dicha figura se observa que el campo coercitivo es mínimo en la dirección perpendicular al eje uniáxico (90°-270°). El valor máximo del campo coercitivo, en la dirección 0°-180°, es aproximadamente 5 Oe.

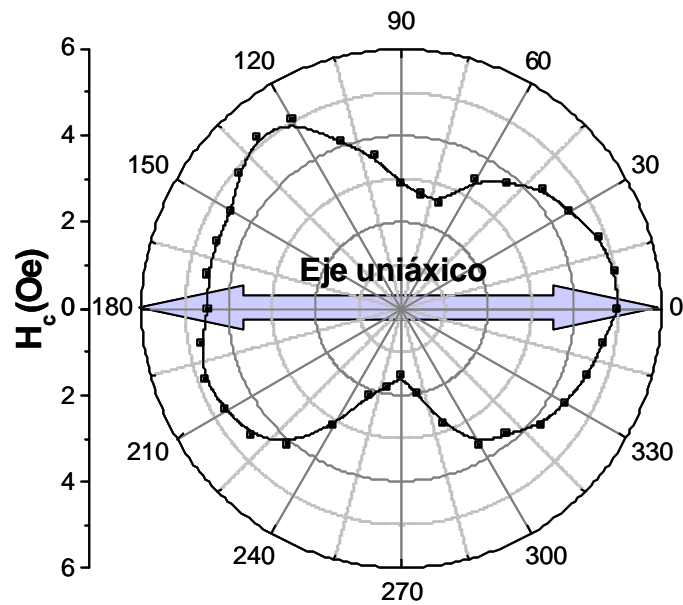


Figura 6.1.3. Campo coercitivo en coordenadas polares en función de ángulo  $f$  medido en la muestra PYC4 a temperatura ambiente.

- A partir de los ciclos transversales se ha calculado el valor máximo de la componente transversal de la imanación en función del ángulo. Los datos obtenidos se muestran en la figura 6.1.4., en la que se ha representado también la remanencia de los ciclos longitudinales. Estos resultados muestran que:
  - En la **dirección fácil** no hay componente transversal de la imanación. Este hecho indica que el proceso de inversión de la imanación ocurre en este eje mediante **nucleación de un dominio invertido y propagación de paredes**.
  - Fuera del eje fácil la imanación presenta una cierta componente transversal cuyo máximo, aproximadamente igual al valor de saturación, se produce en la dirección perpendicular al eje fácil. En estas direcciones la inversión de la imanación tiene lugar mediante un **proceso mixto** de rotación hacia el eje uniáxico y posterior nucleación y propagación de una pared de dominio.

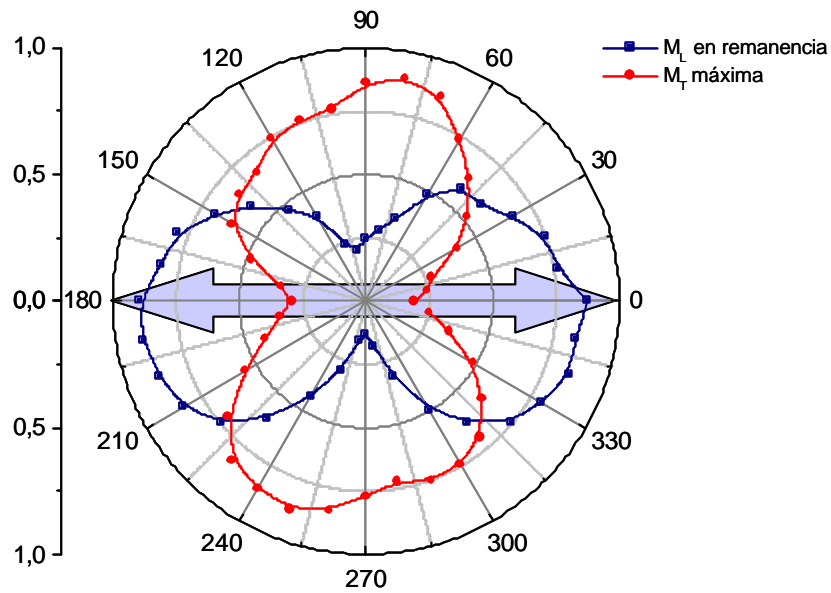


Figura 6.1.4. Remanencia longitudinal y máximo de la imanación transversal en función del ángulo  $f$  medidos en la muestra PYC4.

A continuación se analiza en detalle cómo es el proceso de inversión de la imanación fuera del eje fácil. Para ello observemos la figura 6.1.5, en la que se ha representado en seis pasos un esquema del proceso que tiene lugar. Se describen a continuación cada uno de estos pasos:

1.  $\mathbf{H} = \mathbf{H}_{\max}$   $\rightarrow$   $\mathbf{H} = \mathbf{0}$  Inicialmente la imanación se encuentra en la dirección del campo aplicado formando un ángulo  $\phi$  con el eje uniaxial. Sólo hay componente longitudinal  $M_x$  de la imanación. A medida que se reduce el campo aplicado la imanación **rota** hacia el eje uniaxial, siempre recorriendo el ángulo más pequeño, de manera que a campo cero es paralela a la dirección de fácil imanación. Junto a la componente longitudinal  $M_x$  aparece una componente transversal de la imanación  $M_y$ . Los valores de ambas componentes son:

$$M_x = M \cos f$$

$$M_y = M \sin f$$

2.  $\mathbf{H}=0 \text{ } \mathcal{D} \text{ } \mathbf{H}=-\mathbf{H}_c$  Se invierte la polaridad del campo aplicado y cuando el campo negativo alcanza el valor del campo coercitivo se produce la **nucleación y propagación de una pared**, de manera que la imanación sigue siendo paralela al eje uniaxial pero ahora tendrá sentido opuesto. Las componentes longitudinal y transversal cambian de signo:

$$M_x = -M \cos f$$

$$M_y = -M \sin f$$

3.  $\mathbf{H}=-\mathbf{H}_c \text{ } \mathcal{D} \text{ } \mathbf{H}=-\mathbf{H}_{\max}$  La imanación **rota** progresivamente desde el eje uniaxial hasta la dirección del campo aplicado. En el estado de saturación de nuevo la componente longitudinal es máxima y la transversal mínima.
4.  $\mathbf{H}=-\mathbf{H}_{\max} \text{ } \mathcal{D} \text{ } \mathbf{H}=0$ . La imanación **rota** de nuevo recorriendo el ángulo más pequeño hacia el eje uniaxial de manera que ambas componentes siguen siendo negativas.
5.  $\mathbf{H}=0 \text{ } \mathcal{D} \text{ } \mathbf{H}=\mathbf{H}_c$ . Cuando el campo positivo es igual al campo coercitivo se produce de nuevo la inversión de la imanación mediante **nucleación y propagación de una pared** de dominio invertido. Ahora ambas componentes  $M_x$  y  $M_y$  son positivas.
6.  $\mathbf{H}=\mathbf{H}_c \text{ } \mathcal{D} \text{ } \mathbf{H}=\mathbf{H}_{\max}$  La imanación **rota** hasta que se encuentra en la dirección del campo aplicado.

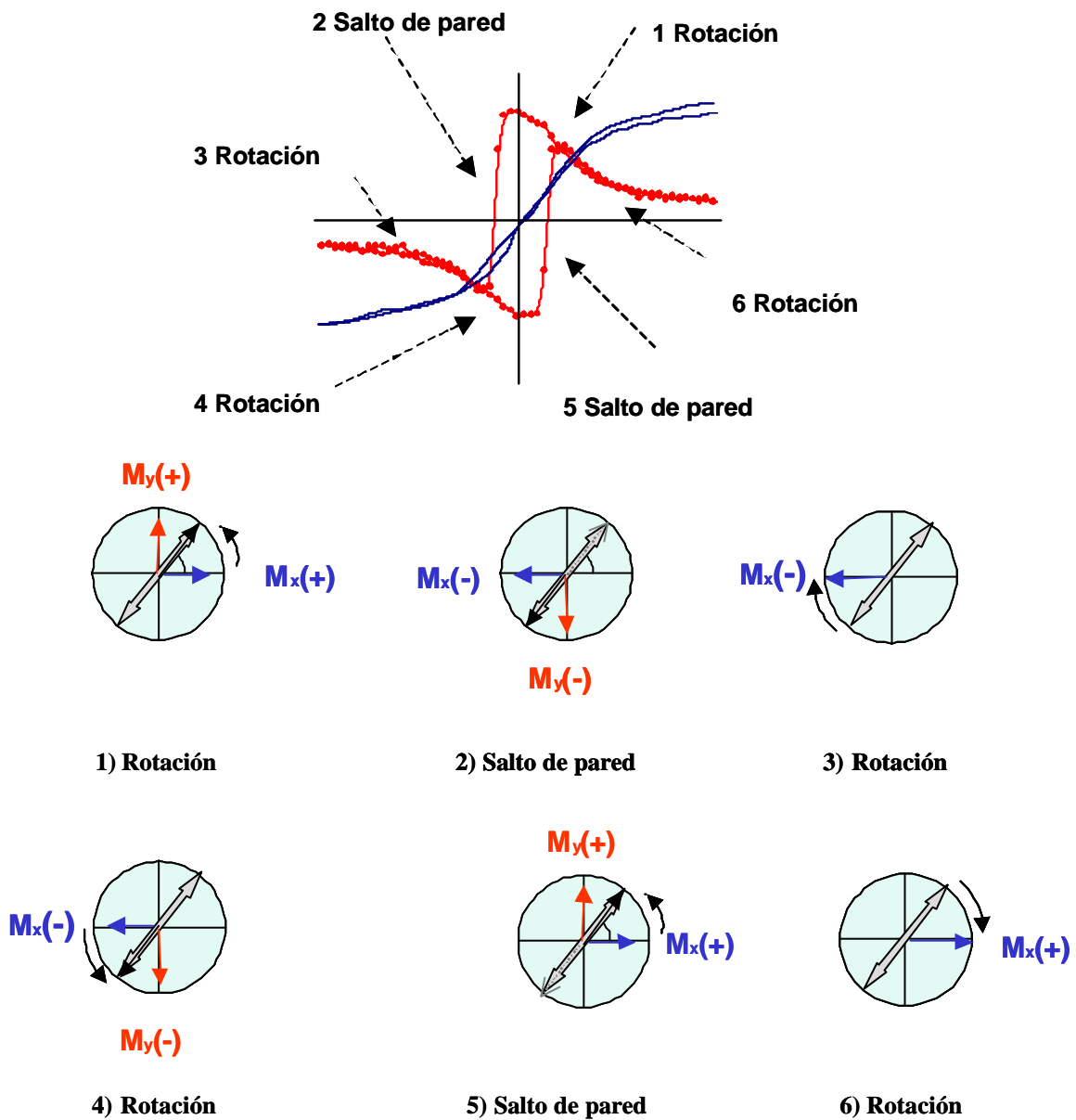


Figura 6.1 5. Esquema en seis pasos del proceso de inversión de la imanación durante el ciclo de histéresis cuando  $f^1 0^\circ$  en el sistema sin anisotropía de canje.

El esquema anterior muestra claramente cómo la presencia del eje uniaxial determina el sentido de rotación de la imanación, de manera que el ángulo de giro siempre sea el menor posible. En este aspecto, la medida de la imanación transversal es fundamental para determinar dicho sentido de giro. Así, si se representan (ver figura 6.1.6) los valores extremos de la imanación transversal en las ramas positiva ( $H_{ap}: + 60 \text{ Oe} \rightarrow - 60 \text{ Oe}$ ) y negativa ( $H_{ap}: - 60 \text{ Oe} \rightarrow + 60 \text{ Oe}$ ) de los ciclos frente al ángulo  $\phi$ ,



veremos que ambas presentan una dependencia de tipo sinusoidal y que las curvas están en **oposición de fase**. Este hecho es característico del proceso de imanación en sistemas con anisotropía uniáxica en los que existe nucleación de dominios inversos y desplazamiento de paredes.

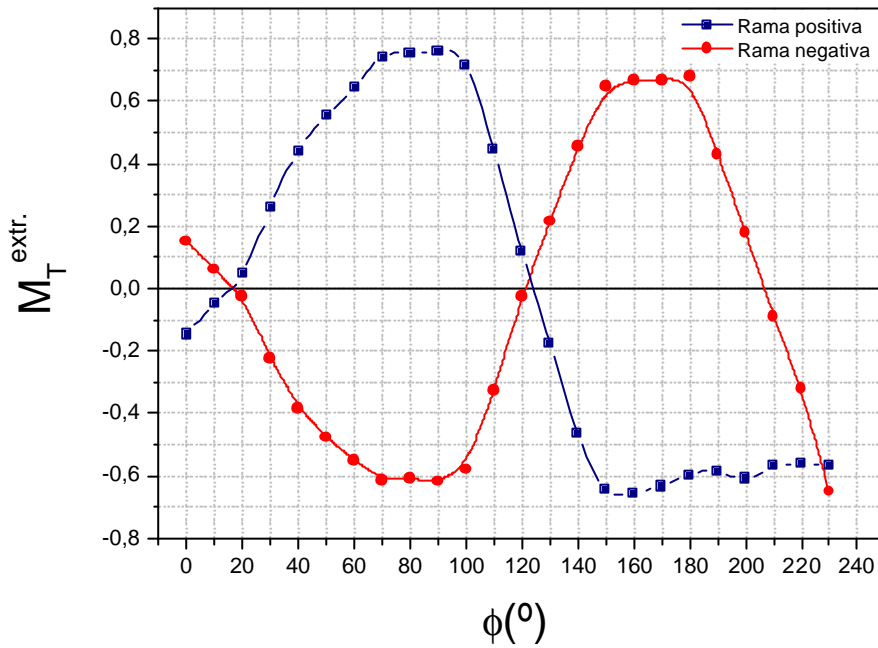


Figura 6.1 6. Evolución angular de los valores extremos de la imanación transversal en las ramas positiva y negativa. La dependencia en oposición de fase es característica de procesos de desplazamiento de paredes.

## 6.1.2 Sistema con anisotropía de canje: $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ / Ni-O

La muestra que se escogió para este estudio es la muestra NIOPY2, ya estudiada en capítulos anteriores.

### 6.1.2.1. Sistema sin polarizar

En primer lugar se estudió la muestra NIOPY2 previamente al procedimiento de enfriamiento con campo. Se midieron ciclos de histéresis longitudinales y transversales en función del ángulo con campo aplicado máximo  $\pm 80$  Oe. En la figura 6.1.7 se muestra una selección de ciclos medidos en los ángulos indicados.

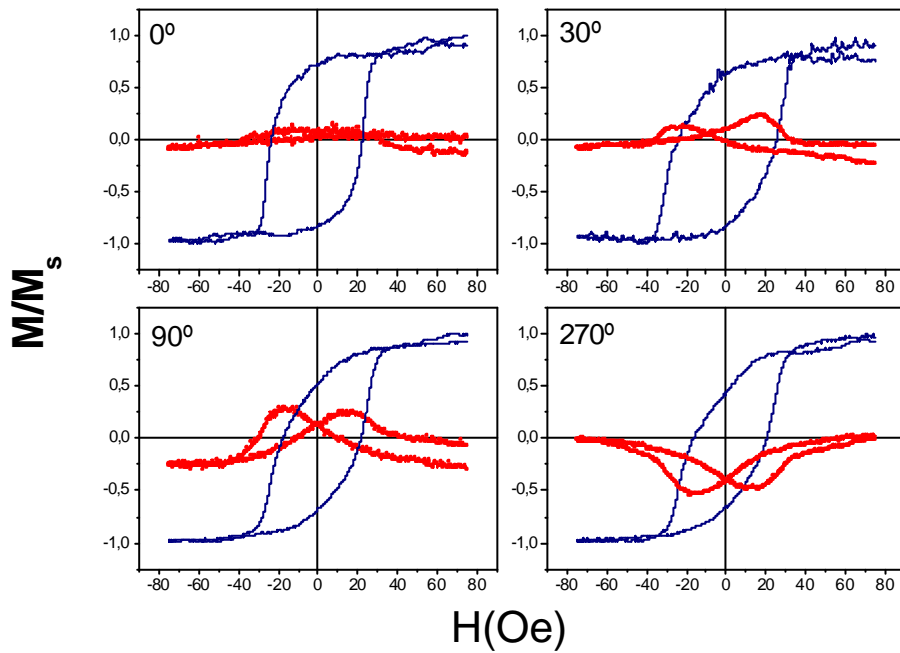


Figura 6.1.7. Ciclos de histéresis longitudinales (línea azul) y transversales (línea roja con puntos) medidos en los ángulos  $\theta$  indicados a temperatura ambiente en la muestra NIOPY2 sin polarizar.

Los principales resultados obtenidos a partir de las medidas anteriores se enumeran a continuación:

- En primer lugar, se observa un aumento considerable del campo coercitivo con respecto al sistema sin anisotropía de canje. A temperatura ambiente la capa de *Permalloy* no acoplada presentaba un campo coercitivo máximo de 5 Oe. Ahora el campo coercitivo máximo medido está en torno a 25 Oe.
- No se observa desplazamiento en los ciclos de histéresis. Aunque a temperatura ambiente el óxido de níquel está por debajo de su temperatura de orden, al no haber sido polarizado el sistema, existe una distribución aleatoria de los momentos descompensados de los granos AF que estará orientados según sus ejes locales de anisotropía. El momento descompensado promedio en la intercara es muy reducido y el pequeño campo de desplazamiento que pueda crear está por debajo del límite de resolución de la técnica empleada.
- Se observa un cambio sustancial en el proceso de inversión de la imanación respecto al que tenía lugar en el sistema sin anisotropía de canje. La medida de la componente transversal de la imanación indica que fuera del eje fácil, la imanación rota de manera que el signo de la componente transversal se conserva, es decir, **la imanación gira en sentidos opuestos** en una rama y otra del ciclo de histéresis.

A la vista de estos resultados se puede concluir que, aunque no hay desplazamiento de los ciclos de histéresis, existe interacción de canje entre la capa FM y la capa AF y que se manifiesta a través de un aumento considerable del campo coercitivo y un cambio en el proceso de inversión de la imanación.

### 6.1.2.2 Sistema polarizado a 0°

Con objeto de inducir de manera eficaz la anisotropía de canje en el sistema, la muestra se sometió al proceso de enfriamiento habitual en presencia de un campo de + 1000 Oe, aplicado en la dirección de fácil imanación inicial de la muestra. La temperatura inicial del proceso es superior a 400 K, temperatura de bloqueo del óxido de níquel, y la temperatura final del proceso es 50 K. De esta manera se inducirá un eje de anisotropía unidireccional en la misma dirección del eje uniáxico inicial de la muestra, como se indica en la figura 6.1.8.

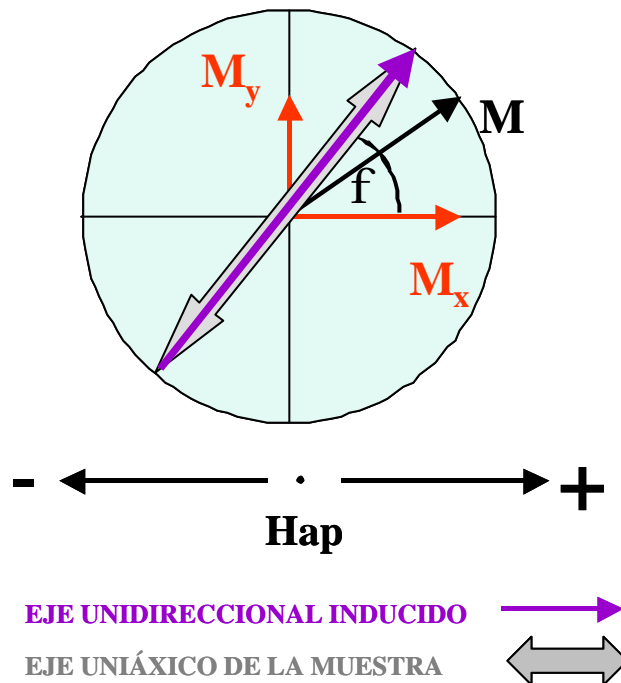


Figura 6.1.8. Esquema de los ejes de anisotropía y convenio de signos adoptado para la medida de las componentes longitudinal y transversal de la imanación.

Se midieron ciclos de histéresis en el rango de ángulos comprendido entre 0° y 360° en intervalos de 10°. Todos los ciclos se han realizado con un campo máximo aplicado de  $\pm 75$  Oe. En la figura 6.1.9 se muestran dos secuencias de ciclos de histéresis medidos en los valores de  $\phi$  indicados. La primera secuencia corresponde a ángulos comprendidos en el rango de 0°-180° y la segunda secuencia a ángulos comprendidos en el rango de 180°-360°.

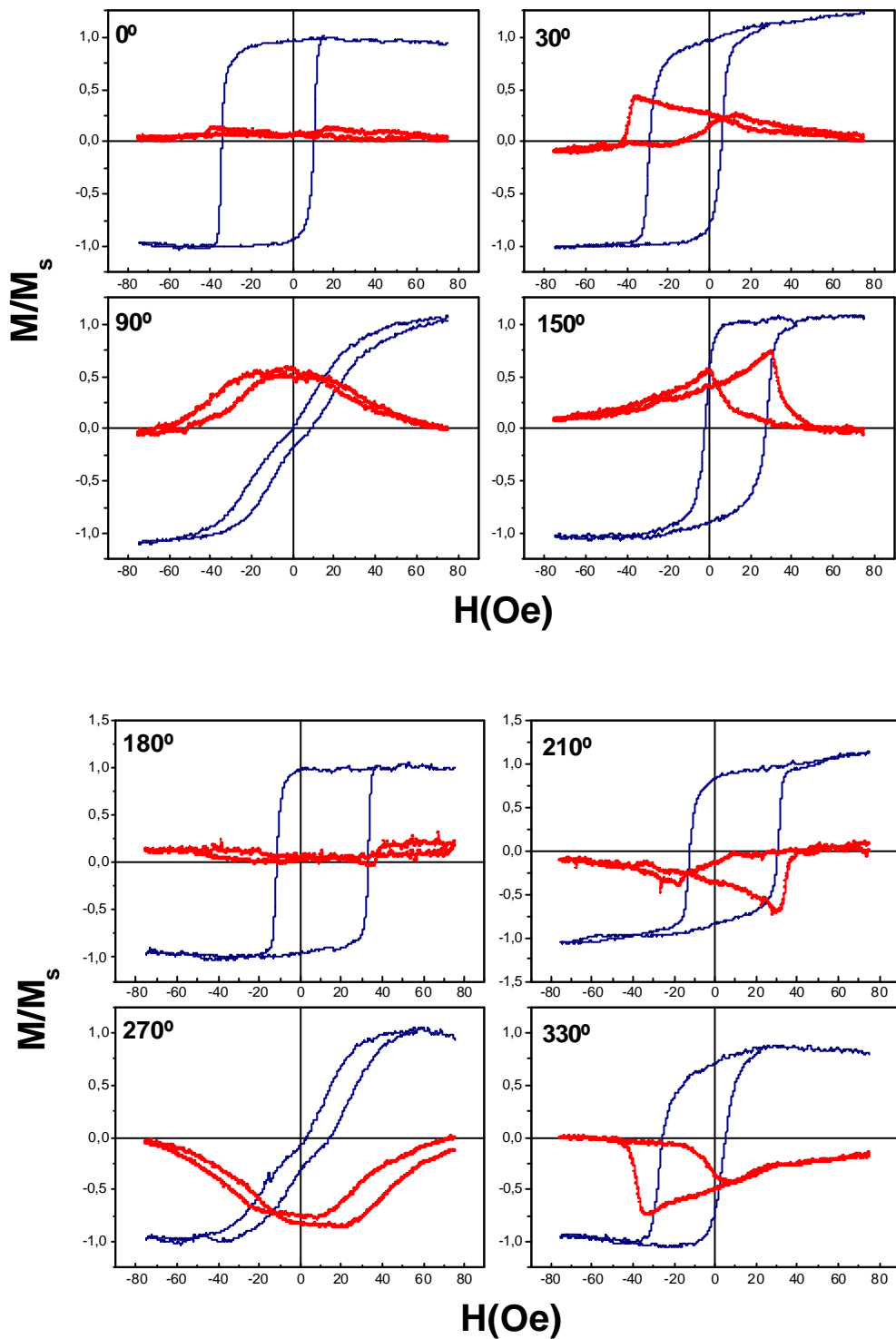


Figura 6.1.9. Ciclos de histéresis longitudinales (línea azul) y transversales (línea roja de puntos) para los ángulos  $\theta$  indicados medidos en la muestra NIOPY2 polarizada en la dirección  $\theta = 0^\circ$ .

A partir de de estas medidas se han calculado las dependencias angulares de los siguientes parámetros:

- El **campo coercitivo**  $H_c$  calculado a partir de los ciclos de histéresis longitudinales según la expresión:

$$H_c = \frac{H_{dr} - H_{iz}}{2} \quad [6.1]$$

- El **campo de desplazamiento**  $H_E$  calculado a partir de los ciclos longitudinales según la expresión

$$H_E = \frac{H_{dr} + H_{iz}}{2} \quad [6.2]$$

donde  $H_z$  y  $H_{dr}$  son los valores de corte de la imanación longitudinal con el eje  $M = 0$  tales que  $H_{iz} < H_{dr}$ .

- Los **valores extremos de la imanación transversal** en la rama de campos aplicados positivos  $M_T^{\text{extr}(+)}$  y negativos  $M_T^{\text{extr}(-)}$ . Estos parámetros permitirán conocer el sentido en el que se produce la rotación.

a) **Campo coercitivo.**

El primer lugar, se destaca que el valor del campo coercitivo en este sistema experimenta de nuevo un aumento considerable respecto a los valores de sistemas similares sin anisotropía de canje (ver apartado 6.1.1). Además se observa un claro desarrollo de un **eje de anisotropía uniáxica** que está mucho mejor definido que en el caso del sistema con anisotropía de canje pero sin polarizar. La diferencia de campo coercitivo entre el eje fácil y el eje difícil es de casi 20 Oe mientras que en el sistema no polarizado estaba en torno a 7 Oe.

La dependencia angular del campo coercitivo presenta un comportamiento tipo coseno de periodicidad  $\pi$ . En la figura 6.1.10 se han representado en coordenadas polares mediante puntos los valores experimentales de  $H_c$  y mediante una línea continua el resultado del ajuste numérico a una función de la forma:

$$H_c = A \cos \left[ 2 \frac{p(f - f_0)}{w} \right] + B$$

[6.3]

Los parámetros resultantes de este ajuste se recogen en la siguiente tabla:

Y	A(Oe)	B(Oe)	f <sub>0</sub> (°)	w(°)	c <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>
H <sub>c</sub>	8.9 ± 0.3	12.8 ± 0.2	6 ± 1	180 ± 0	1.90742	0.957959

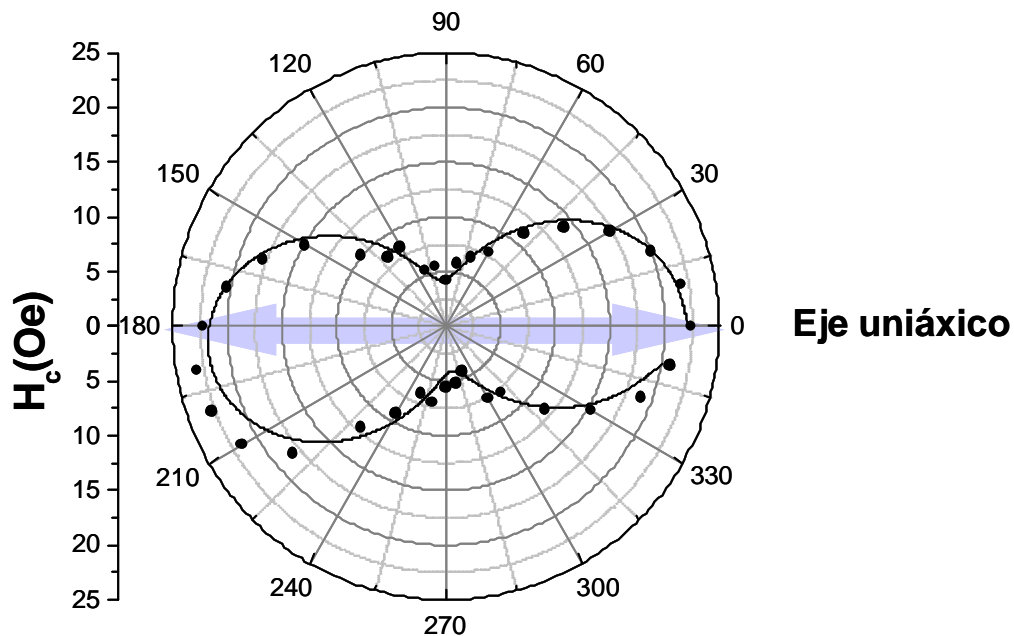


Figura 6.1.10. Dependencia angular del campo coercitivo. Sobre los datos experimentales, el ajuste numérico a una función coseno.-

Esta dependencia angular del campo coercitivo es la dependencia típica de un sistema con anisotropía uniáxica, en la que el campo coercitivo presenta una periodicidad  $\pi$ . El valor máximo del campo coercitivo, 22 Oe ocurre en la dirección 0°-180° ; el valor mínimo ocurre en la dirección perpendicular, 90°-270°, y está en torno a 5 Oe.

b) Campo de canje

El desplazamiento de los ciclos de histéresis mostrados en la figura 6.1.9 pone de manifiesto la aparición de una anisotropía de canje bien definida. En la figura 6.1.11 se han representado mediante puntos los valores experimentales de  $H_E$  en función del ángulo  $\phi$ . La línea continua sobre los datos experimentales corresponde al ajuste numérico realizado.

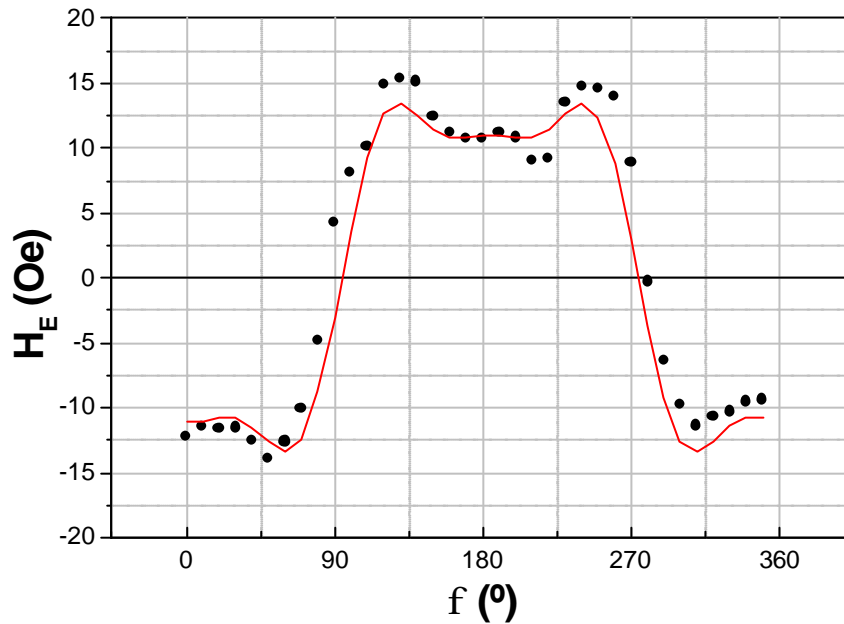


Figura 6.1.11. Dependencia angular del campo de canje. Sobre los datos experimentales, el ajuste numérico realizado.

Para realizar el ajuste numérico se han tenido en cuenta los estudios de Ambrose et al. [1] en los que establece una dependencia general del campo de canje consistente en una suma de términos impares en  $\cos f$ . Así la función sobre la que se ha hecho el ajuste es de la forma:

$$H_E = A \cos \left[ 2 \frac{p(f-f_0)}{w} \right] + B \cos \left[ 6 \frac{p(f-f_0)}{w} \right] + C \cos \left[ 10 \frac{p(f-f_0)}{w} \right]$$

[6.4]



Los parámetros resultantes del ajuste numérico se recogen en la siguiente tabla:

y	A(Oe)	B(Oe)	C(Oe)	f <sub>0</sub> (°)	w(°)	c <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>
H <sub>E</sub>	14.4 ± 0.6	5.1 ± 0.6	-17.8 ± 0.6	8 ± 1	360 ± 0	7.33538	0.9473

Los resultados presentados en la figura 6.1.11 ponen en evidencia el **carácter unidireccional** de la anisotropía de canje. Mientras el campo coercitivo presentaba periodicidad  $\pi$  en el ángulo  $\phi$ , el campo de canje presenta periodicidad  $2\pi$ .

c) **Imanación transversal**

La evolución angular de los valores extremos de la imanación transversal en las ramas positiva y negativa, M<sub>T</sub>(+) y M<sub>T</sub>(-) respectivamente, presenta una dependencia sinusoidal. Los datos experimentales se han ajustado numéricamente a una función de la forma:

$$y = A \operatorname{sen} \left[ 2p \left( \frac{f - f_0}{w} \right) \right]$$

[6.5]

Los parámetros resultantes del ajuste se resumen en la siguiente tabla:

y	A	f <sub>0</sub>	w	c <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>
M <sup>extr</sup> <sub>T</sub> (+)	0.70 ± 0.02	-13° ± 3°	400° ± 5°	0.00969	0.96814
M <sup>extr</sup> <sub>T</sub> (-)	0.84 ± 0.04	7° ± 5°	356 ± 5	0.03033	0.92725

En la figura 6.1.12 se han representado mediante puntos los valores experimentales de M<sub>T</sub><sup>extr</sup>(+) y M<sub>T</sub><sup>extr</sup>(-), así como las curvas resultantes de los ajustes numéricos realizados en cada caso.

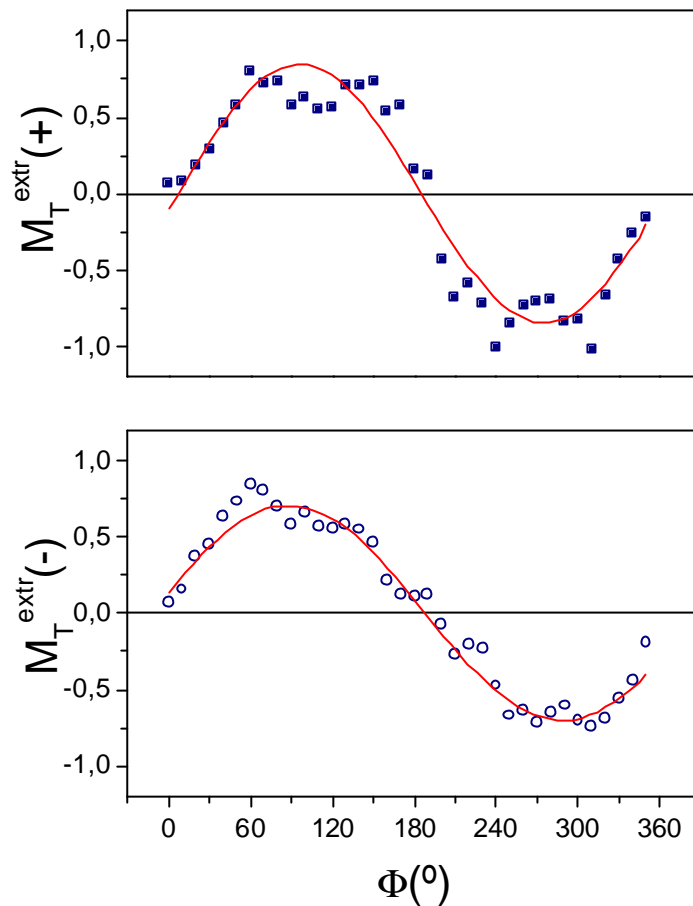


Figura 6.1.12. Dependencia angular del máximo de la imanación transversal en ambas ramas.  
Sobre los datos experimentales, los ajustes numéricos realizados

Si comparamos los resultados presentados en la figura 6.1.12 con los obtenidos en el sistema sin anisotropía de canje (ver figura 6.16) vemos que, a diferencia de aquellas curvas que estaban en oposición de fase, éstas se encuentran en fase. Este hecho indica que la imanación rota de manera que el signo de la componente transversal se conserva en cada rama del ciclo, es decir, rota en sentidos diferentes en una rama y otra del ciclo de histéresis. Esto supone una diferencia sustancial en el proceso de imanación respecto al que tenía lugar en el sistemas sin anisotropía de canje.

Analizaremos detalladamente a continuación cómo es el proceso de imanación en este sistema con anisotropía de canje. Para ello distinguiremos dos rangos angulares:

a)  $f$  en el rango ( $0^\circ - 180^\circ$ )

En este rango se ha observado que, según el convenio de ángulos y signos adoptado, **la imanación transversal  $M_y$  es siempre positiva**. En la figura 6.1.13 se ha esquematizado en cuatro pasos el mecanismo de inversión de la imanación.

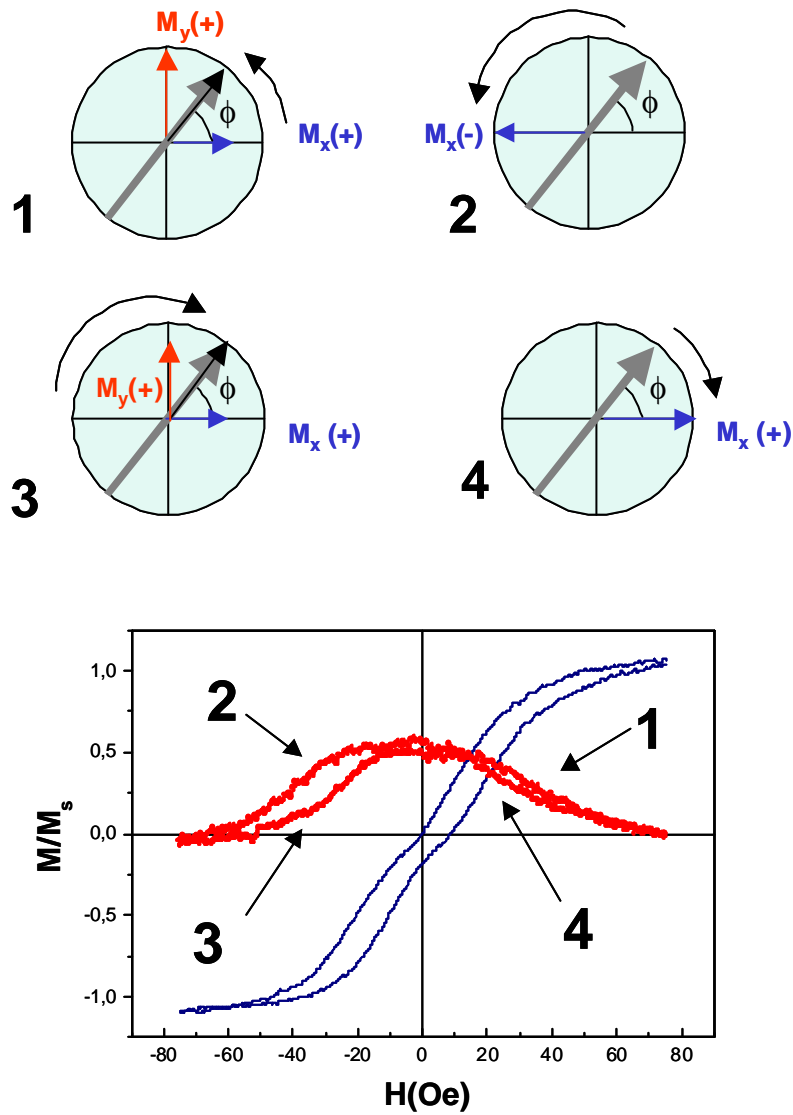


Figura 6.1 13. Esquema en cuatro pasos del proceso de inversión de la imanación durante el ciclo de histéresis cuando  $f \neq 0^\circ$  en el rango ( $0^\circ-180^\circ$ ) en el sistema con anisotropía de canje.

b)  $f$  en el rango ( $180^\circ - 360^\circ$ )

El mecanismo de inversión de la imanación en este rango es análogo al anterior, siendo en este caso **la componente transversal  $M_y$  de la imanación siempre negativa**. En la figura 6.1.1.4 se ha representado del mismo modo que en el caso anterior el proceso de inversión de la imanación en este rango.

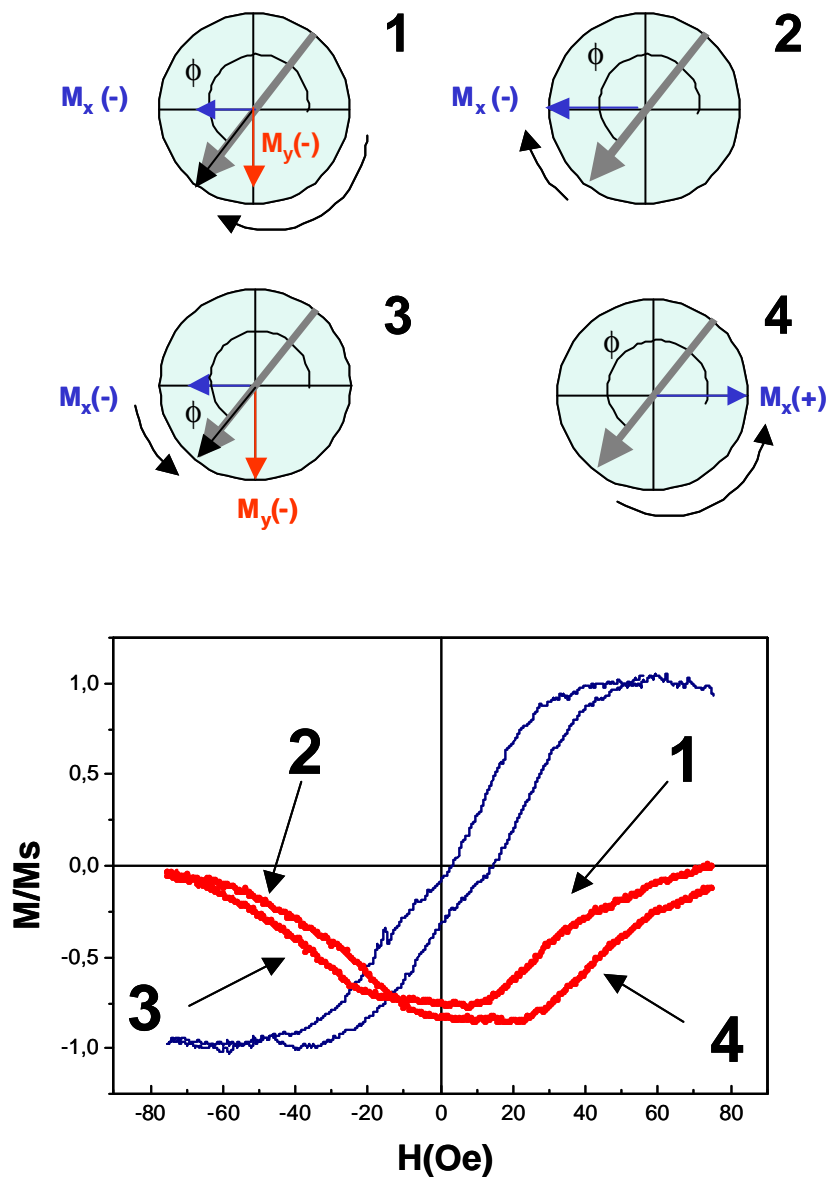


Figura 6.1 14. Esquema en cuatro pasos del proceso de inversión de la imanación durante el ciclo de histéresis cuando  $f^1 0^\circ$  en el rango ( $180^\circ-360^\circ$ ) en el sistema con anisotropía de canje.

A continuación se describirán los cuatro pasos en los que se ha esquematizado anteriormente el proceso de inversión de la imanación:

1.  $\mathbf{H} = \mathbf{H}_{\max} \text{ P } \mathbf{H} = \mathbf{0}$  Inicialmente la imanación se encuentra en la dirección del campo aplicado. A medida que disminuye el campo aplicado, la imanación **rota** hacia el eje unidireccional hasta que es paralela a éste a campo cero. Nótese que en este caso, el carácter unidireccional del eje de anisotropía determina claramente el sentido de giro y por tanto el signo de la componente transversal  $M_y$ , que es positiva en el primer rango angular y negativa en el segundo.
2.  $\mathbf{H} = \mathbf{0} \text{ P } \mathbf{H} = -\mathbf{H}_{\max}$  La imanación continua rotando progresivamente y en el mismo sentido hasta la dirección del campo aplicado. La componente longitudinal  $M_x$  cambia de signo.
3.  $\mathbf{H} = -\mathbf{H}_{\max} \text{ P } \mathbf{H} = \mathbf{0}$  La imanación vuelve por el mismo camino rotando hacia el eje unidireccional en sentido contrario que en los dos pasos anteriores. De esta manera el signo de  $M_y$  se conserva en todo el rango de campos aplicados.
4.  $\mathbf{H} = \mathbf{0} \text{ P } \mathbf{H} = \mathbf{H}_{\max}$  La imanación rota en el mismo sentido que en el paso anterior hasta ser paralela al campo aplicado. En la saturación sólo hay componente longitudinal  $M_x$ .

Como se ha visto, el proceso de inversión de la imanación parece tener lugar fundamentalmente mediante rotaciones hacia el eje unidireccional. La dependencia angular de  $M_T^{\text{extr}(+)}$  y  $M_T^{\text{extr}(-)}$ , ver figura 6.1.12, muestra que el proceso de imanación es radicalmente distinto al del caso del sistema sin anisotropía de canje. No obstante conviene destacar que la medida realizada en el **eje fácil**, es decir en los ángulos  $0^\circ$  y  $180^\circ$ , **no presenta componente transversal de la imanación**. Por tanto no es posible sacar una conclusión en este punto acerca del mecanismo de inversión de la imanación cuando el campo aplicado es paralelo a la dirección del eje unidireccional.

Los principales resultados obtenidos a partir de las medidas presentadas anteriormente se enumeran a continuación:

- El proceso de enfriamiento con campo induce en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  un **eje unidireccional** bien definido a temperatura ambiente en la dirección del campo polarizante. Este eje inducido tiene como consecuencia la aparición de un campo de desplazamiento cuya dependencia angular exhibe periodicidad  $2\pi$  y un valor máximo en torno a 15 Oe.
- El mecanismo de inversión de la imanación sufre un cambio sustancial respecto al que tenía lugar en el sistema sin anisotropía de canje  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$ . La medida de la dependencia angular de la componente transversal de la imanación indica que, cuando el campo se aplica en una dirección **fuera del eje unidireccional**, la imanación se invierte principalmente mediante **rotación hacia el eje unidireccional inducido**, de manera que gira en sentidos opuestos en una rama del ciclo y otra. Sin embargo, cuando se aplica el campo **en la dirección del eje unidireccional**, es decir en la dirección  $0^\circ$ - $180^\circ$ , la imanación **no presenta componente transversal**.
- El sistema con anisotropía de canje experimenta un aumento de coercitividad respecto al sistema sin anisotropía de canje presentando en este caso un valor máximo de 20 Oe. La dependencia angular del campo coercitivo presenta periodicidad  $\pi$ , lo cual indica que tras el proceso de enfriamiento existe un claro **eje uniáxico** en la dirección del campo de enfriamiento. Este eje de anisotropía está mejor definido que en el caso del sistema sin anisotropía de canje.

La aparición de un eje uniáxico en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  cuando se induce en él la anisotropía de canje, hace sospechar que ambos ejes, uniáxico y unidireccional, puedan estar relacionados de alguna manera. Para comprobar esta hipótesis se ha optado por elegir una dirección del campo de enfriamiento que no coincida con la del eje uniáxico presente inicialmente en la muestra. De esta manera si de nuevo se indujera un eje uniáxico en la dirección del campo polarizante, no se podría relacionar con la anisotropía inicial de la muestra, inducida en el proceso de fabricación.

### 6.1.2.3 Sistema polarizado a 90°

Con objeto de desvincular la aparición del eje uniáxico, inducido por la anisotropía de canje en la dirección del campo de enfriamiento, de la presencia del eje uniáxico existente previamente en la muestra se realizó el procedimiento usual de enfriamiento con campo, aplicando éste en esta ocasión en la dirección que forma un ángulo de  $-90^\circ$  con la dirección del eje fácil de la muestra (ver figura 6.1.15)

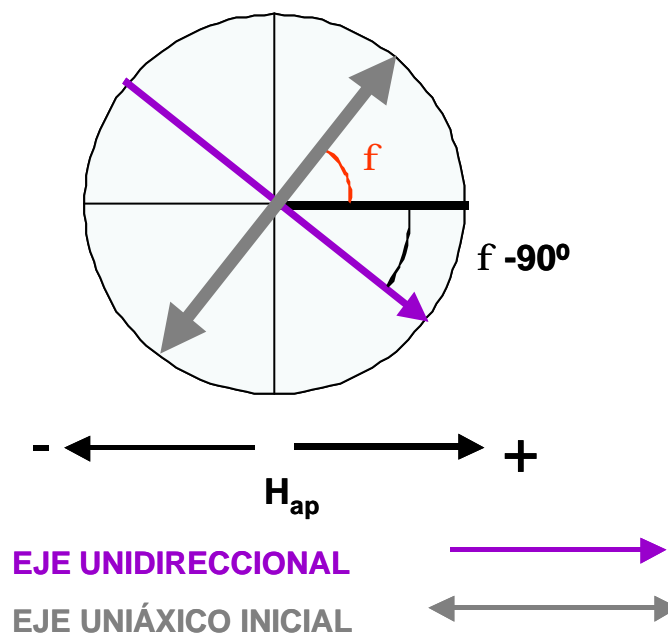


Figura 6.1.15. Eje unidireccional inducido en la dirección perpendicular al eje uniáxico inicial de la muestra.

Tras el proceso de enfriamiento se midieron a temperatura ambiente ciclos de histéresis longitudinales y transversales en función del ángulo  $\phi$ , en el rango comprendido entre  $0^\circ$ - $360^\circ$  en intervalos de  $10^\circ$  y con campo máximo aplicado de  $\pm 80$  Oe. En la figura 6.1.16 se muestra dos secuencias de ciclos medidos en los ángulos indicados.

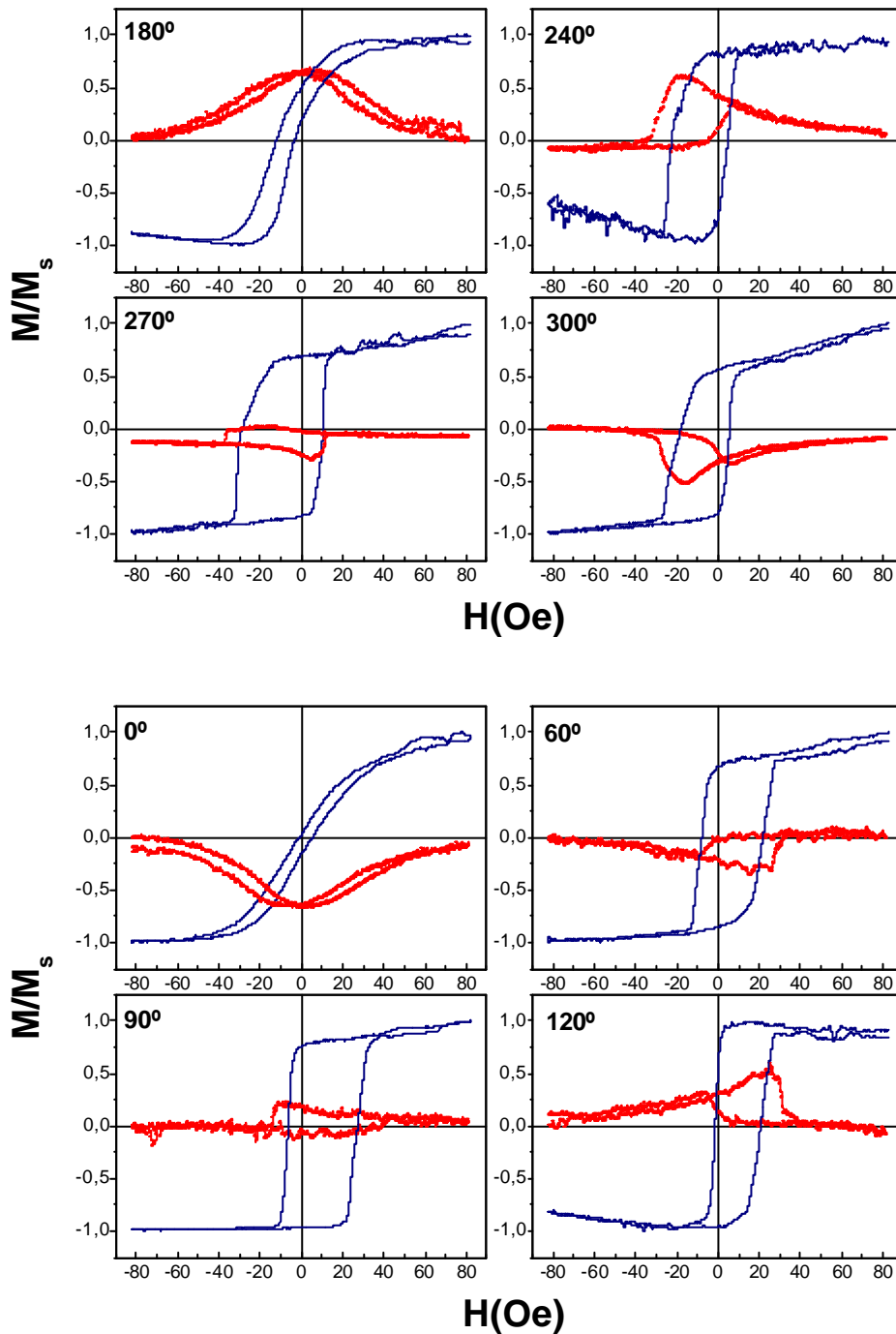


Figura 6.1.16 Ciclos de histéresis longitudinales (línea azul) y transversales (línea roja de puntos) medidos para los ángulos  $\mathbf{f}$  indicados en la muestra NIOPY2 polarizada en la dirección  $\mathbf{f} = 90^\circ$

A partir de esta nueva medida de ciclos de histéresis se han calculado del mismo modo que en el apartado anterior las dependencias angulares del campo coercitivo, el campo de canje y los valores extremos de la componente transversal de la imanación.



a) **Campo coercitivo**

El proceso de enfriamiento con campo nuevamente provoca un aumento del campo coercitivo, que presenta un valor máximo de aproximadamente 20 Oe. La dependencia angular de  $H_c$  presenta un comportamiento sinusoidal de periodicidad  $\pi$  que pone de manifiesto la inducción de un **eje uniáxico** bien definido en la nueva dirección del campo de enfriamiento. Los datos experimentales se han representado en coordenadas polares en la figura 6.1.17, en la que también se presenta la curva resultante del ajuste numérico realizado a una expresión de la forma [6.3]:

$$H_c = A \cos \left[ 2 \frac{p(f - f_0)}{w} \right] + B$$

Los parámetros resultantes de este ajuste numérico se recogen en la siguiente tabla:

y	A(Oe)	B(Oe)	$f_0(^{\circ})$	$w(^{\circ})$	$c^2$	$R^2$
$H_c$	$-7.4 \pm 0.3$	$10.7 \pm 0.2$	$115 \pm 1$	$184 \pm 1$	1.29242	0.95879

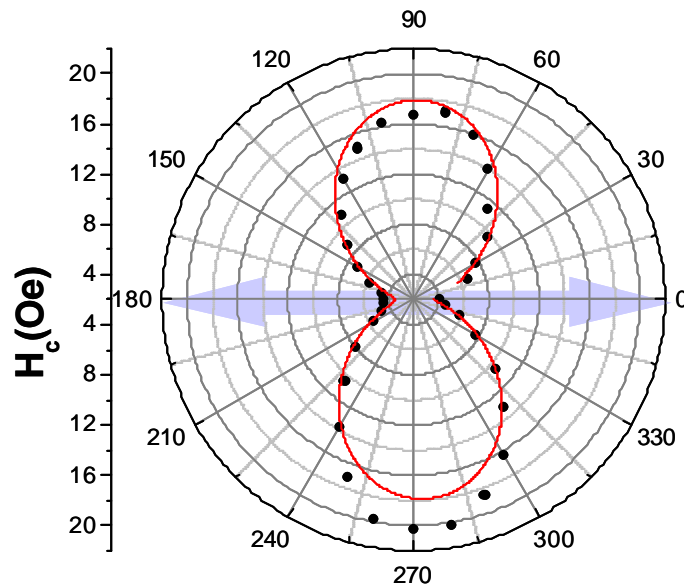


Figura 6.1.17. Dependencia angular del campo coercitivo en la muestra NIOPY2 polarizada en la dirección  $f = -90^{\circ}$ . Sobre los datos experimentales, el ajuste numérico a una función coseno.

b) Campo de canje

El desplazamiento de los ciclos de histéresis que se observa en la figura 6.1.16 pone de manifiesto que se ha inducido igualmente un **eje unidireccional** en la dirección y sentido del campo de enfriamiento. El máximo valor que presenta  $H_E$ , en la dirección  $90^\circ$ - $270^\circ$ , es de 15 Oe, aproximadamente. Se ha calculado  $H_E$  según la expresión [6.2] a partir de los ciclos longitudinales para cada ángulo medido. En la figura 6.1.18 se muestran en representación lineal mediante puntos los datos obtenidos así como el resultado del ajuste numérico realizado a una expresión de la forma [6.4]:

$$H_E = A \cos\left[2\frac{p(f-f_0)}{w}\right] + B \cos\left[6\frac{p(f-f_0)}{w}\right] + C \cos\left[10\frac{p(f-f_0)}{w}\right]$$

La siguiente tabla contiene los parámetros del ajuste numérico realizado:

y	A(Oe)	B(Oe)	C(Oe)	$f_0$ (°)	w(°)	c <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>
$H_E$	$14 \pm 1$	$5 \pm 1$	$2.8 \pm 0.6$	$-16 \pm 2$	$378 \pm 3$	6.76096	0.95227

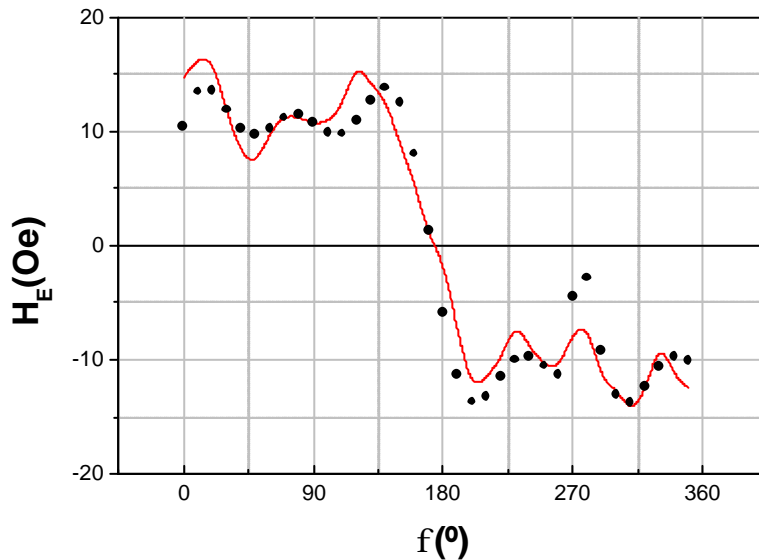


Figura 6.1.18. Dependencia angular del campo de canje en la muestra NIOPY2 polarizada en la dirección  $\hat{f} = -90^\circ$ . Sobre los datos experimentales, el ajuste numérico realizado.

c) **Imanación transversal**

En la figura 6.1.19 se representan por puntos los datos experimentales de la medida de los dos valores extremos de la componente transversal  $M_T^{\text{extr}(+)}$  y  $M_T^{\text{extr}(-)}$  correspondientes a las dos ramas del ciclo, en función del ángulo. Sobre los datos se han representado las curvas resultantes de los ajustes numéricos realizados sobre una función de la forma [6.5] :

$$y = A \text{sen} \left[ 2p \left( \frac{f - f_0}{w} \right) \right]$$

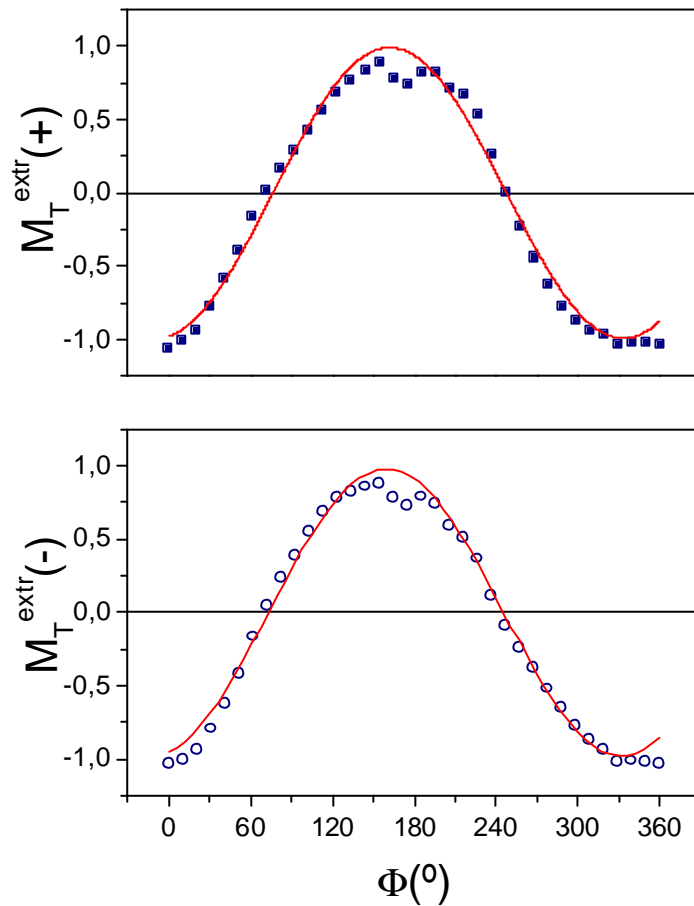


Figura 6.1.19. Dependencia angular de los valores extremos de la imanación transversal en ambas ramas de los ciclos de histéresis. Sobre los datos experimentales, los ajustes numéricos realizados.

Estas dos curvas se encuentran en fase y presentan valores extremos en los dirección  $0^\circ$ - $180^\circ$ , es decir, en la dirección perpendicular a la del campo de enfriamiento.

La siguiente tabla contiene los parámetros resultantes de los ajustes numéricos llevados a cabo:

y	A	$f_0$	w	$c^2$	$R^2$
$M_{T(+)}^{extr}$	$0.99 \pm 0.02$	$76^\circ \pm 2^\circ$	$342^\circ \pm 2^\circ$	0.00926	0.9836
$M_{T(-)}^{extr}$	$0.98 \pm 0.02$	$73^\circ \pm 2^\circ$	$344^\circ \pm 5$	0.00753	0.98616

Los resultados de la medida de imanación transversal, análogos a los obtenidos en el apartado anterior, implican de nuevo un mecanismo de inversión de la imanación que se produce fundamentalmente por rotación hacia el eje unidireccional cuando el campo se aplica fuera de la dirección de dicho eje sin que haya desplazamiento de paredes. Nuevamente cuando el campo se aplica a lo largo de la dirección del eje uniaxial la imanación no presenta componente transversal.

Como principal resultado obtenido en este apartado se destaca el hecho de que **el proceso de enfriamiento con campo no sólo induce un eje de anisotropía unidireccional sino también un eje de anisotropía uniaxial**. El aumento de campo coercitivo está por tanto relacionado con el desarrollo de un eje uniaxial inequívocamente vinculado al establecimiento de la anisotropía de canje en el sistema.

Queda planteada aquí, no obstante, la cuestión acerca del mecanismo de inversión de la imanación que tiene lugar cuando se aplica el campo externo a lo largo de direcciones cercanas al eje unidireccional. El hecho de que la componente transversal en ese caso sea cero podría llevar a pensar que se está produciendo una inversión mediante nucleación y propagación de una pared de dominio invertido, ya que este mecanismo no genera componente transversal de la imanación. No obstante, dado que los resultados obtenidos en este capítulo y en el anterior indican que el mecanismo de inversión en los sistemas estudiados es generalmente la rotación de la imanación, parece razonable no asumir *a priori* la nucleación de un dominio invertido. La medida de la magnetorresistencia anisótropa que se presentará más adelante será determinante para esclarecer este punto que queda aquí abierto.

### 6.1.3 Pentacapas Co-O/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ /Cu/ $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ /Ni-O

Con objeto de analizar simultáneamente los diferentes mecanismos de inversión de la imanación que tienen lugar en bicapas con y sin anisotropía de canje, se fabricaron muestras que contuvieran ambos sub-sistemas integrados en el mismo sistema. Así pues se crecieron pentacapas en las condiciones de *sputtering* señaladas en el capítulo 3 y cuya estructura se ha esquematizado en la figura 6.1.20. De esta manera se consigue, en primer lugar, asegurar que ambos subsistemas están fabricados en idénticas condiciones y en segundo lugar que su caracterización magnética se lleva a cabo también de manera simultánea y, por tanto, en las mismas condiciones.

Una vez analizados los procesos de inversión de la imanación por separado, se estudiará el proceso global que tiene lugar cuando ambos sistemas forman parte de una estructura tipo *spin valve*. El interés tecnológico de estas estructuras tipo *spin valve* se comentó ampliamente en la introducción de esta memoria.

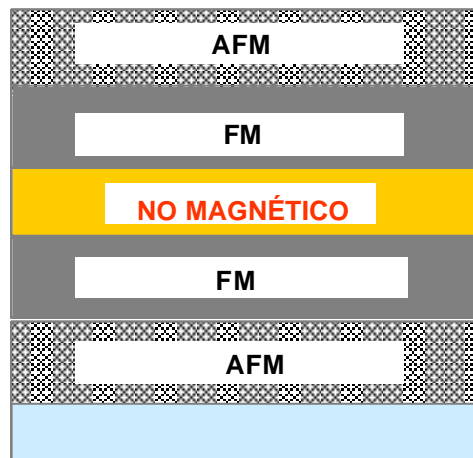


Figura 6.1.20. Esquema de una pentacapa que contiene dos bicapas FM/AF.

El estudio que se presenta a continuación [2] se centra en la medida de ciclos de histéresis longitudinales y transversales a temperatura ambiente en función del ángulo en dos estructuras diferentes.

### 6.1.3.1 Sistema desacoplado

En primer lugar, se estudió la muestra ST2-4 (ver tabla 3.1) en la que las capas magnéticas están desacopladas. Esta estructura, esquematizada en la figura 6.1.21, contiene dos capas FM desacopladas entre sí por medio de una capa de material no magnético (cobre) lo suficientemente gruesa (6 nm) como para impedir la interacción de canje. Una de las capas de *Permalloy PY1*, la que está en contacto con el óxido de níquel, presenta anisotropía de canje a temperatura ambiente al estar interactuando con el momento descompensado AF. La otra capa de *Permalloy PY2*, la que está en contacto con el óxido de cobalto, está libre de interacción puesto que a temperatura ambiente el óxido de cobalto no presenta orden magnético.

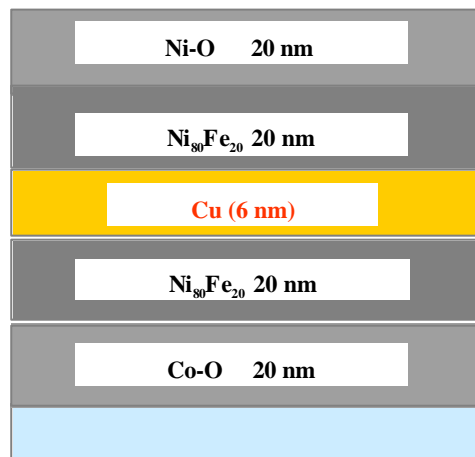


Figura 6.1.21. Esquema de las capas que conforman la estructura ST2-4.

Según el procedimiento habitual, y con objeto de establecer la anisotropía de canje, una vez determinada la dirección de fácil imanación inicial de la muestra ST2-4, se enfrió el sistema en presencia de un campo positivo de +1000 Oe aplicado según dicha dirección. Esta dirección se tomará como origen de ángulos en las medidas de ciclos de histéresis. Se midieron ciclos de histéresis longitudinales y transversales a temperatura ambiente con campo máximo aplicado  $\pm 80$  Oe en función del ángulo  $\phi$ .

En primer lugar, se analizará la medida de las componentes longitudinal y transversal de la imanación cuando se aplica el campo en la dirección del eje fácil, es decir cuando  $\phi = 0$ . Esta medida, representada en la figura 6.1.22 muestra que el ciclo de histéresis longitudinal es la superposición de dos curvas, cada una de ellas correspondiente al ciclo de histéresis de cada una de las capas ferromagnéticas (**P1** y **P2**). El ciclo de mayor coercitividad corresponde a la capa **PY1** y presenta un desplazamiento de  $-5$  Oe y un campo coercitivo de  $15$  Oe. El ciclo de menor campo coercitivo, en torno a  $5$  Oe, no presenta desplazamiento y corresponde a la capa **PY2** libre de anisotropía de canje.

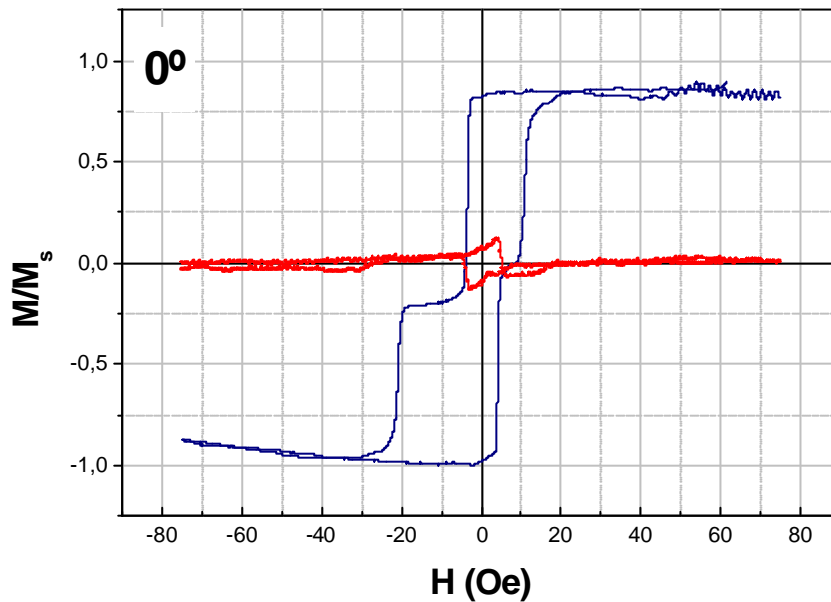


Figura 6.1.22. Ciclos de histéresis longitudinal (línea azul) y transversal (línea roja) medidos a temperatura ambiente a lo largo del eje fácil de la muestra ST2-4

Esta medida permite comprobar en primer lugar que efectivamente no hay interacción de canje entre capas ferromagnéticas, pues se observan dos procesos independientes en la inversión de la imanación. En segundo lugar, se comprueba que en la capa **PY1** se ha inducido anisotropía de canje.

La medida de la componente transversal de la imanación, que es prácticamente cero, también refleja el hecho de que se trata de una superposición de procesos puesto que en ambos sistemas por separado también esta componente medida en la dirección fácil era casi cero.

Para exponer más claramente el hecho de que se trata de una superposición de procesos tomaremos como ejemplo la medida realizada en  $\phi = 30^\circ$ . En la figura 6.1.23 se muestra en el panel superior la medida experimental de las componentes transversal y longitudinal y en los paneles inferiores a y b un esquema de la medida de las componentes transversales en los sistemas libre y acoplado que se midieron en el apartado anterior para este ángulo.

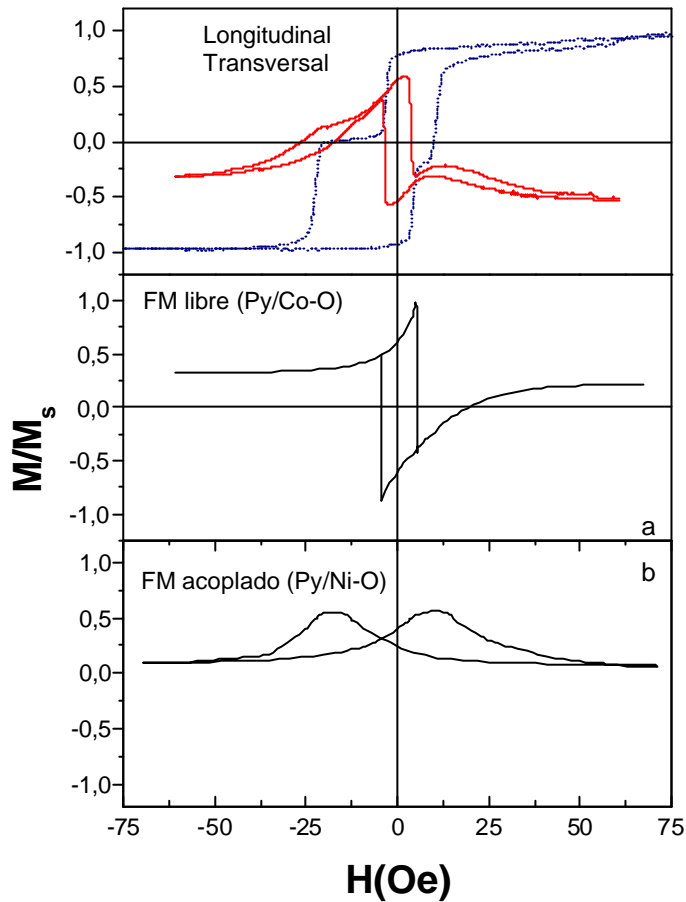


Figura 6.1.23. Ciclo de histéresis longitudinal y transversal medidos en la muestra ST2-4 a  $30^\circ$ .

Los paneles inferiores esquematizan los procesos en los sub-sistemas por separado.

A la vista de esta figura es evidente que el proceso de imanación en este sistema es una **superposición de los procesos** que tienen lugar en los sub-sistemas sin y con anisotropía de canje.



### 6.1.3.2 Sistema acoplado.

La segunda de las estructuras tipo *spin valve* estudiadas es una pentacapa en la que las dos capas ferromagnéticas *PY1* y *PY2* están acopladas a través de la capa de cobre que en este caso tiene un espesor de 1.5 nm que permite la interacción de canje. Un esquema de esta estructura (ST2-1, ver tabla 3.1), se muestra en la figura 6.1.24.

Al igual que en todos los casos precedentes se sometió a la muestra al procedimiento usual de enfriamiento con campo + 1000 Oe aplicado en la dirección de fácil imanación que presentaba la muestra. Se midieron a temperatura ambiente ciclos de histéresis longitudinales y transversales en función del ángulo con campo máximo aplicado  $\pm 75$  Oe.

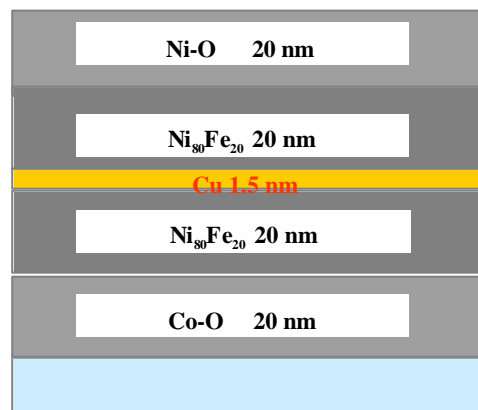


Figura 6.1.24. Esquema de las capas que conforman la estructura ST2-1.

En la figura 6.1.25 se muestra una selección de ciclos longitudinales y transversales medidos en los ángulos indicados.

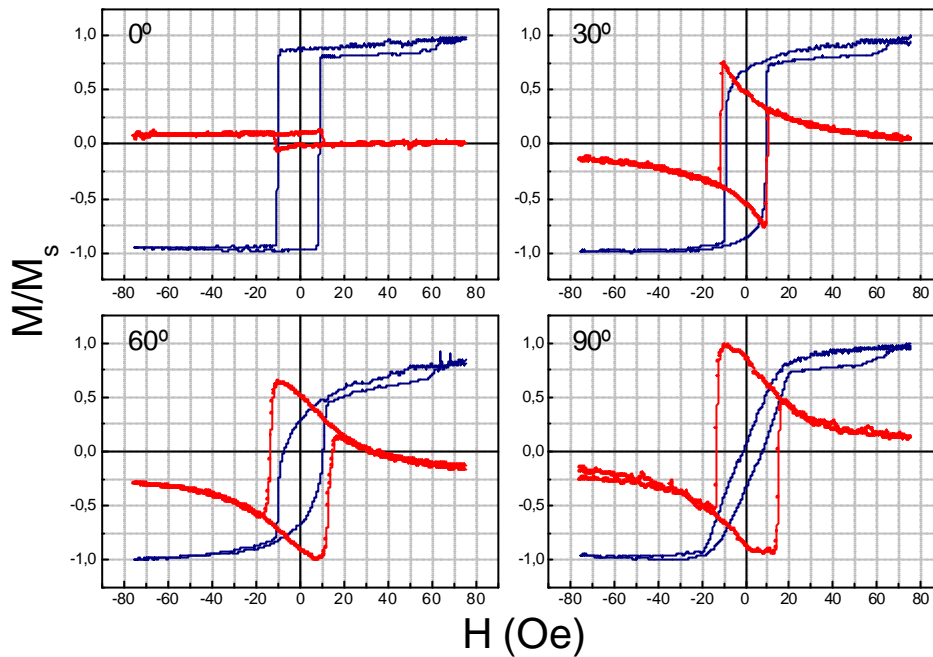


Figura 6.1.25 Ciclos de histéresis longitudinales (línea azul) y transversales (línea roja) medidos a temperatura ambiente en los ángulos indicados en la muestra ST2-1.

Estas medidas se asemejan a aquellas que se obtuvieron en el sistema sin anisotropía de canje: los ciclos de histéresis no presentan desplazamiento y la componente transversal de la imanación se comporta de manera similar a como lo hacía en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$  (ver figura 6.1.2). A partir de estos resultados se pueden destacar los siguientes puntos:

- Se observa la presencia de un **eje uniáxico** bien definido en la dirección del eje fácil inicial de la muestra, que es la del campo de enfriamiento.
- A diferencia del comportamiento observado en la pentacapa no acoplada, en este caso se observa un solo proceso de inversión de la imanación en los ciclos longitudinales. Este hecho permite corroborar el acoplamiento en canje entre las dos capas ferromagnéticas.

- Como consecuencia de este acoplamiento entre capas FM, el sistema se comporta como un FM de espesor efectivo 40 nm acoplado en canje con un AF de espesor 20 nm.. Se conoce experimentalmente [3] que el campo de desplazamiento tiene una dependencia con el espesor de la capa ferromagnética de la forma:

$$H_E \propto \frac{1}{t_F}$$

Por tanto cabe esperar un valor de  $H_E$  en la dirección  $\phi=0$  dos veces inferior al que se observaba en el sistema acoplado en canje  $Ni_{80}Fe_{20}/Ni-O$ , en el que la capa ferromagnética tenía un espesor de 20 nm. En aquel caso el máximo desplazamiento tenía un valor aproximado de 15 Oe, por lo que aquí se esperaría un valor en torno a 7 Oe. Sin embargo, en estas medidas no se observa desplazamiento probablemente debido a la proximidad de este valor al límite de resolución de la técnica empleada.

- El valor del campo coercitivo presenta un aumento respecto al del sistema sin anisotropía de canje  $Ni_{80}Fe_{20}/Co-O$ . El máximo valor ahora es aproximadamente 10 Oe en la dirección de fácil imanación. Este valor es el doble del que presentaba la capa de *Permalloy80* sin acoplamiento en canje y puede estar relacionado con el aumento del espesor efectivo del material FM.
- La medida de la imanación transversal pone en evidencia un proceso mixto de inversión de la imanación consistente en la rotación de la imanación hacia el eje uniaxial y la posterior nucleación y propagación de una pared de dominio tal y como ocurría en el sistema sin anisotropía de canje.

Resumiendo los resultados anteriores, se puede afirmar que debido al acoplamiento entre las capas ferromagnéticas, **este sistema se comporta globalmente como un sistema sin anisotropía de canje.**

## 6.2 Magnetorresistencia anisótropa

Paralelamente al estudio de los ciclos de histéresis longitudinales y transversales presentado anteriormente, se ha llevado a cabo un estudio análogo de la dependencia angular de la magnetorresistencia anisótropa (AMR) en las bicapas con y sin anisotropía de canje.

La motivación de este segundo estudio radica principalmente en una de las cuestiones que quedaron abiertas en el apartado anterior. Allí se vio que cuando se medían ciclos de histéresis en el sistema con anisotropía de canje aplicando el campo en la dirección del eje unidireccional inducido, la imanación no presentaba componente transversal. Este resultado, similar al obtenido en el sistema sin anisotropía de canje, se explica fácilmente en este segundo caso mediante la nucleación y propagación de una pared de dominio invertido, mecanismo en principio energéticamente favorable respecto a la rotación de la imanación como se verá al final del capítulo.

En el caso del sistema acoplado no es evidente la formación de dicho dominio puesto que hay que tener en cuenta que el gasto de energía de canje que se consumiría en el proceso de nucleación de un dominio invertido sobre una superficie AFM con un cierto momento descompensado resultaría muy desfavorable respecto a la rotación (se estimarán las energías en ambos casos al final del capítulo). Sin embargo la ausencia de componente transversal durante la inversión de la imanación pone en duda el hecho de que se esté produciendo una rotación de la imanación.

La dependencia angular de la AMR permitirá determinar inequívocamente si se produce la rotación de la imanación o no durante el proceso de inversión en todo el rango angular. Así, un proceso de nucleación de un dominio invertido en la dirección de aplicación del campo no producirá variación de AMR mientras que un proceso por rotaciones sí. Se midieron curvas de magnetorresistencia a temperatura ambiente en los sistemas  $N_{k_0}Fe_{20}/Co-O$  y  $N_{k_0}Fe_{20}/Ni-O$  mediante el método de las cuatro puntas descrito en el capítulo 2. El montaje experimental empleado permite el giro de la muestra de manera que se pueda variar el ángulo formado por la corriente eléctrica que circula a través de la muestra y la dirección del campo magnético aplicado. Los contactos eléctricos se hicieron a lo largo del eje uniaxial de las muestras y se siguió el mismo convenio de signos y ángulos adoptado para la medida de ciclos de histéresis (ver figura 6.2.1).

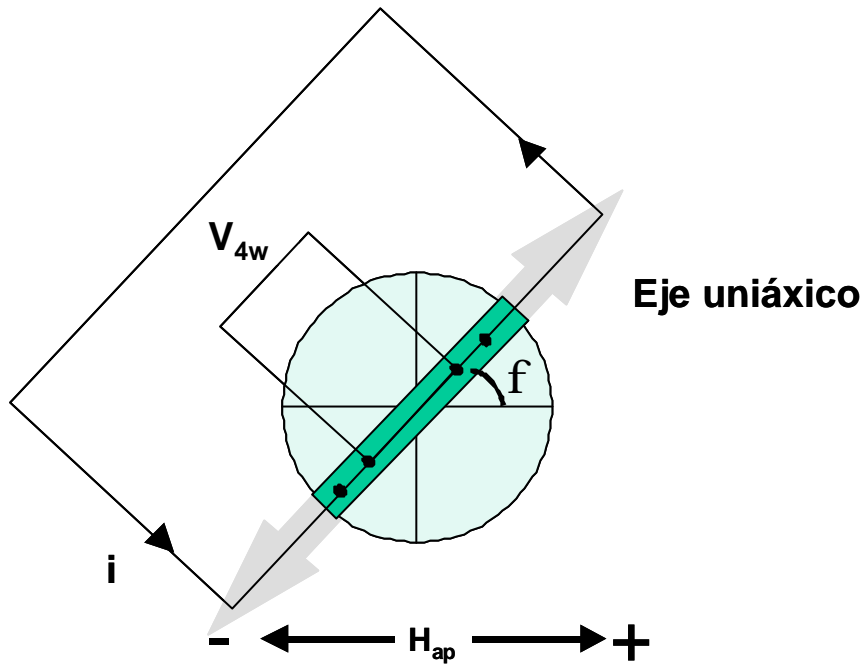


Figura 6.2.1. Esquema de la configuración de medida de ciclos de magnetorresistencia en función  $f$

### 6.2.1 Sistema sin anisotropía de canje: $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20} / \text{Co-O}$

Se midieron en la muestra PYC4 curvas de magnetorresistencia con campo máximo aplicado  $\pm 60$  Oe en función del ángulo  $\phi$  en intervalos angulares de  $10^\circ$ . La figura 6.2.2 muestra una selección de estas curvas para los ángulos indicados.

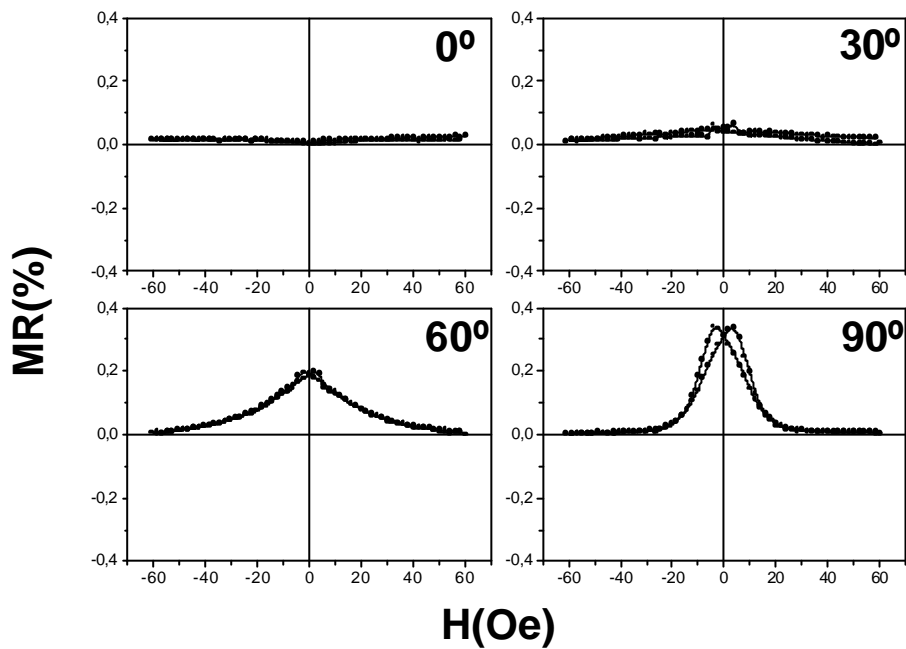


Figura 6.2.2. Curvas de magnetorresistencia medidas en la muestra PYC4 a temperatura ambiente para los ángulos indicados.

En esta figura se observa en primer lugar que en la dirección de fácil imanación ( $\phi = 0$ ) no hay apenas variación de la magnetorresistencia mientras que fuera del eje fácil el valor de la magnetorresistencia aumenta con  $\phi$  alcanzando el valor máximo, 0.38% , a  $\phi = 90^\circ$ . A partir de estas medidas se ha calculado para cada ángulo el valor máximo de la magnetorresistencia  $MR_{\max}$ . Los datos obtenidos se han representado mediante puntos en un gráfico en coordenadas polares en la figura 6.2.3 en la que también se muestra la curva resultante del ajuste numérico realizado sobre una función de la forma:

$$MR_{\max} = A \left[ 1 - \cos^2 \frac{p(f - f_0)}{w} \right]$$

[6.6]

y cuyos parámetros resultantes se encuentran en la siguiente tabla:

A	w	f <sub>0</sub>	c <sup>2</sup>	R <sup>2</sup>
0.31 ± 0.01	182° ± 1°	0° ± 0°	0.00079	0.93757

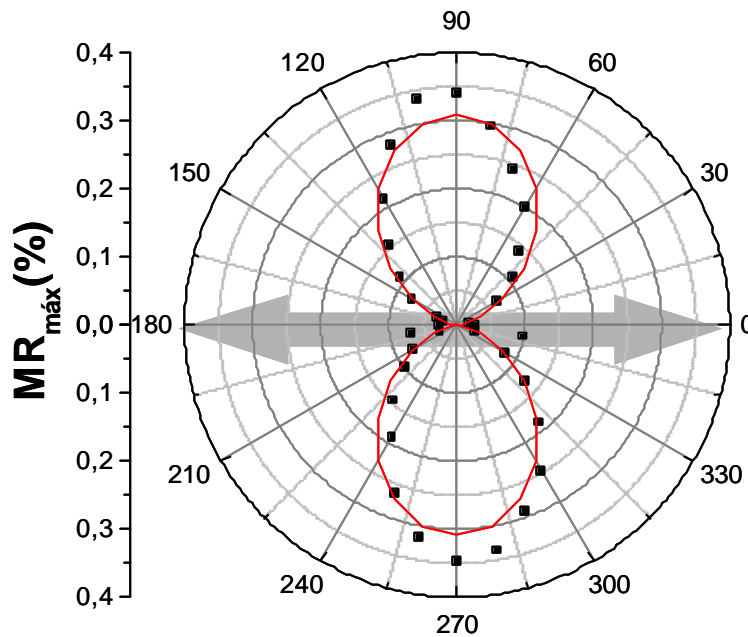


Figura 6.2.3. Máximo de la magnetorresistencia en función del ángulo en coordenadas polares medida en la muestra PYC4 a temperatura ambiente. Sobre los datos la curva resultante del ajuste numérico.

La dependencia que exhibe  $MR_{\max}$  es característica de los sistemas magnéticos blandos con anisotropía uniáxica y refleja el mecanismo de inversión de la imanación que se está produciendo en cada ángulo de medida. Así a partir de esta medida se pueden sacar las siguientes conclusiones acerca de dicho proceso:

- El proceso de imanación que tiene lugar en cuando el campo aplicado está en la dirección del **eje fácil** es la **nucleación** de un domino inverso. Este mecanismo, como ya se ha dicho, no da lugar a variación de la AMR.

- A medida que el campo aplicado sale fuera de esta dirección, es decir a medida que  $\phi$  aumenta, se va produciendo un proceso mixto de rotaciones y propagación de paredes tal y como se explicó en el apartado anterior (ver figura 6.1.5). Así pues, se van generando progresivamente mayores valores de AMR, que son proporcionales a la componente de la imanación en la dirección del campo aplicado.
- En la dirección perpendicular al eje uniáxico,  $f = 90^\circ$ , la inversión de la imanación se produce puramente por un **proceso de rotaciones**. Este hecho se pone claramente en evidencia si se analiza la dependencia de la imanación con la magnetorresistencia. En la figura 6.2.4. se ha representado  $M$  en función de  $R$  medidas a  $90^\circ$ . Si se recuerda la expresión [5.7] que daba cuenta de la dependencia que exhiben ambas magnitudes cuando el proceso tiene lugar mediante la rotación pura de la imanación, vemos que aquella dependencia cuadrática se reproduce en este caso.

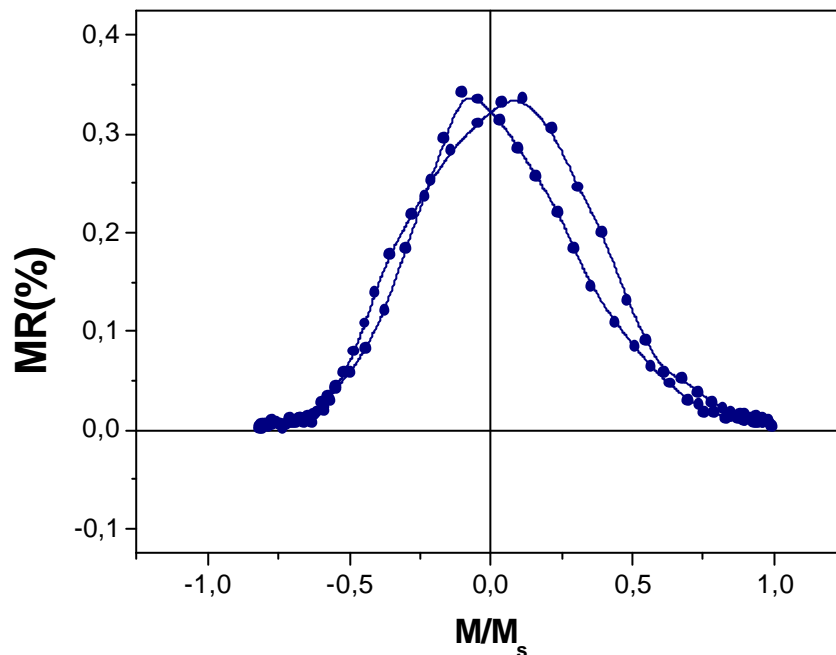


Figura 6.2.4. Dependencia cuadrática de la magnetorresistencia con la imanación en la medidas en el sistema sin anisotropía de canje.



### 6.2.2 Sistema con anisotropía de canje: $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20} / \text{Ni-O}$

La medida de la AMR en este sistema se hizo sobre la muestra NIOPY2 polarizada según su eje fácil inicial, que también es la dirección de circulación de la corriente. Se midieron curvas de magnetorresistencia con campo máximo aplicado  $\pm 90$  Oe en función del ángulo  $\phi$  en intervalos de  $10^\circ$ . En la figura 6.2.5 se muestran algunas de las curvas medidas en los ángulos indicados.

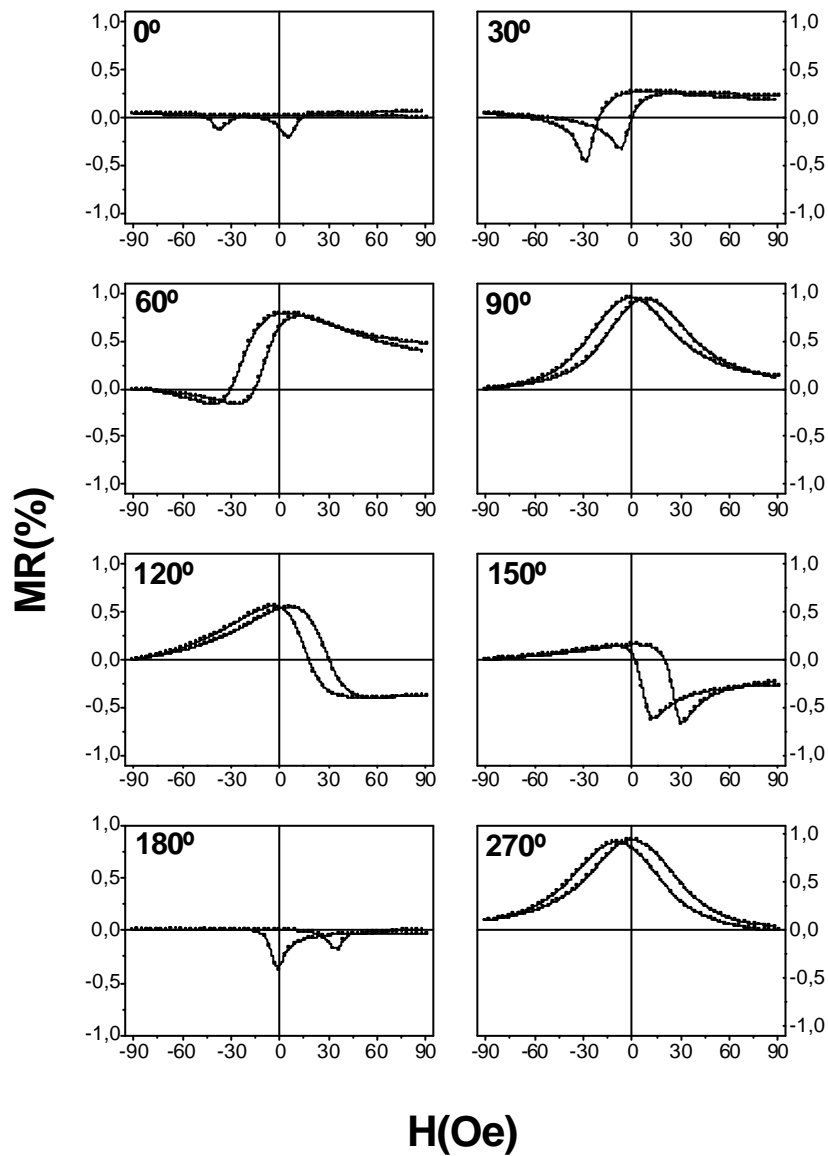


Figura 6.2.5. Ciclos de magnetorresistencia medidos en la muestra NIOPY2 a temperatura ambiente en los ángulos indicados.

A continuación se destacan los principales resultados obtenidos a partir de las medidas anteriores:

- Existe variación de la magnetorresistencia en todas las direcciones medidas. El máximo de esta variación se produce en la dirección  $90^\circ$ - $270^\circ$  y alcanza un valor de casi el 1%. El valor mínimo, aproximadamente 0.3%, se produce en el eje fácil.
- Las curvas presentan desplazamiento respecto al origen de campos, como consecuencia de la anisotropía de canje inducida mediante el proceso de enfriamiento.
- Las curvas además presentan una cierta asimetría que es más acentuada en las direcciones en torno a la dirección del eje unidireccional inducido y casi inexistente en la medida a lo largo de la dirección perpendicular.

A la vista de estos resultados parece bastante evidente que a lo largo de todas las direcciones medidas tienen lugar **procesos de rotación de la imanación**, puesto que siempre existe una variación significativa de la magnetorresistencia.

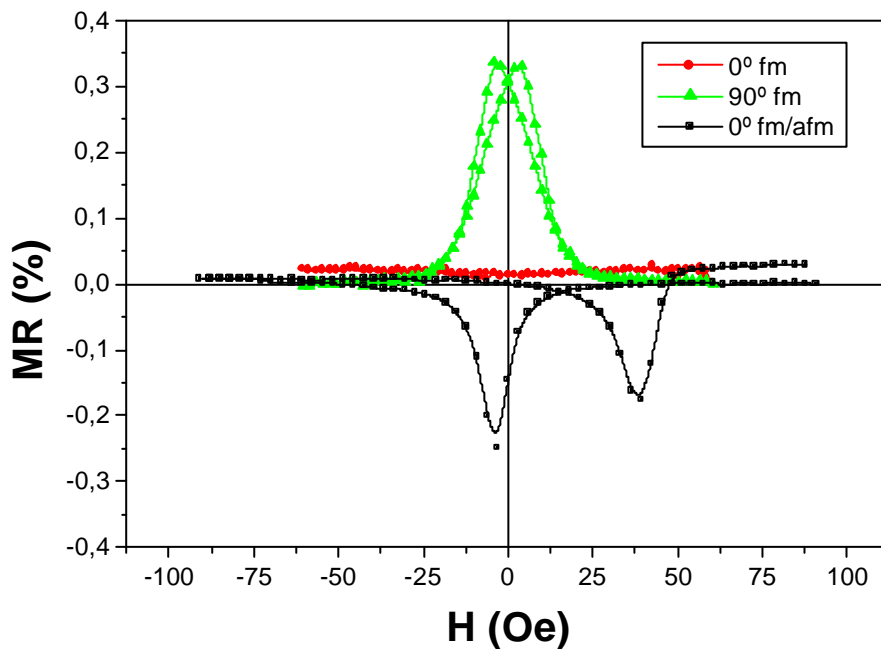


Figura 6.2.6. Comparación de la magnetorresistencia medida en los ángulos indicados en el sistema con anisotropía de canje y en el sistema sin anisotropía de canje

Obsérvese que el mínimo de esta variación, 0.3%, es del orden del máximo de la AMR medida en el sistema libre de anisotropía de canje a  $90^\circ$ , es decir, cuando en aquel sistema se producía la rotación pura de la imanación. En la figura 6.2.6 se comparan estos resultados.

En el caso concreto de la medida en la dirección perpendicular al eje unidireccional, es evidente que el proceso de inversión de la imanación también en este sistema con anisotropía de canje tiene lugar mediante rotación pura de la imanación. Una vez más la dependencia cuadrática de la AMR con la imanación pone en evidencia la rotación en este caso, tal y como se muestra en la figura 6.2.7.

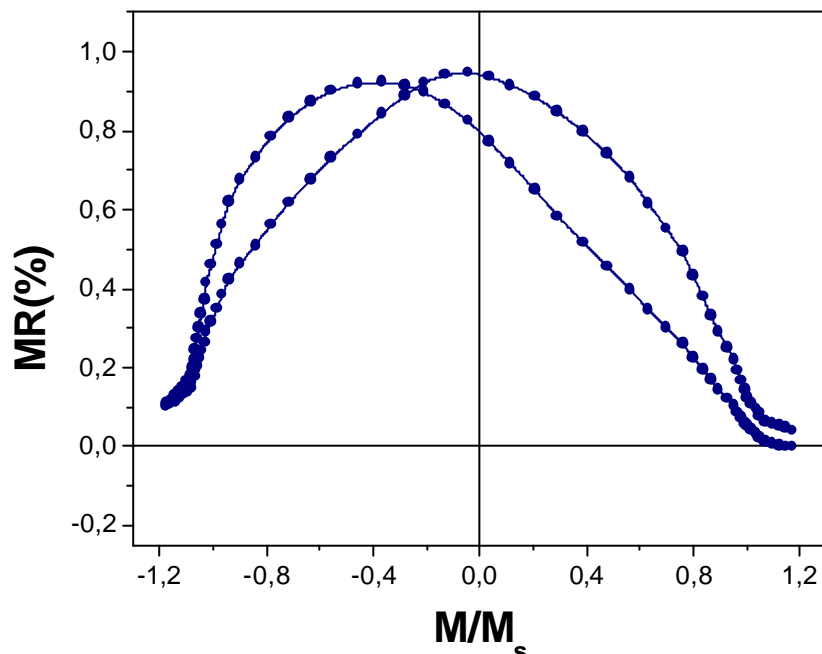


Figura 6.2.7. Dependencia cuadrática de la magnetorresistencia con la imanación en la medidas en el sistema con anisotropía de canje.

Sin embargo la morfología del resto de las curvas presentadas en la figura 6.2.5 no es de fácil interpretación. Tanto la asimetría que presentan como los cambios de signo que experimenta el valor de la magnetorresistencia no hacen nada evidente qué tipo de mecanismo de inversión de la imanación está teniendo lugar. Con objeto de esclarecer este punto se ha desarrollado un sencillo modelo para calcular valores de la magnetorresistencia en función del campo aplicado y del ángulo  $\phi$  en un sistema con anisotropía de canje, suponiendo rotación pura de la imanación.

### 6.2.2.1 Modelo de magnetorresistencia para rotaciones de la imanación en presencia de un campo $H_E$ .

El modelo teórico que aquí se presenta tiene como objeto calcular las curvas de magnetorresistencia en un sistema magnético en cuyo interior, debido a la presencia de una anisotropía de canje inducida, existe un campo extra o campo de canje  $H_E$ . Este modelo parte de la hipótesis de que el proceso de imanación en el sistema tiene lugar mediante rotación pura de la imanación. La magnetorresistencia en este caso tiene la siguiente dependencia con la imanación [2.7]:

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right) = \frac{3}{2} \left(\frac{\Delta R}{R}\right)_{sat} \left(\frac{M}{M_s}\right)^2$$

En este sistema con anisotropía de canje, superpuesto al campo aplicado existe un campo extra de manera que el campo efectivo en el interior de la muestra es:

$$\vec{H}_{ef} = \vec{H}_{ap} + \vec{H}_E$$

[6.7]

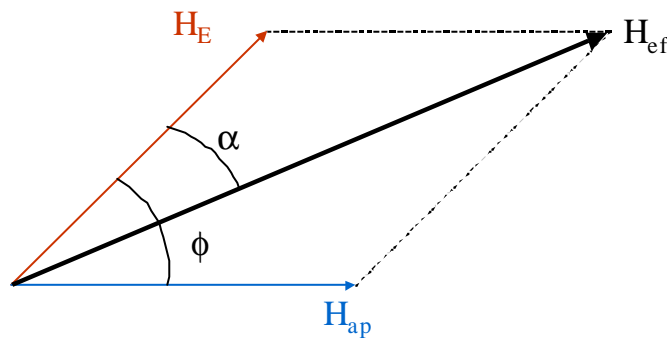


Figura 6.2.8. Suma geométrica del campo aplicado y el campo de canje. La dirección de la medida de la magnetorresistencia es la de  $H_E$

Se supondrá que la imanación está siempre en la dirección de este campo efectivo, de manera que interesará conocer su proyección sobre la dirección de medida,

es decir, la dirección de  $H_E$ . Por tanto, interesa conocer el coseno del ángulo formado por  $H_{ef}$  y  $H_E$ , es decir:

$$\cos \mathbf{a} = \frac{\vec{H}_{ef} \cdot \vec{H}_E}{|\vec{H}_{ef}| |\vec{H}_E|} \quad [6.8]$$

que es proporcional al valor de la imanación. Mediante el uso de las relaciones trigonométricas se puede desarrollar esta igualdad en términos de parámetros conocidos y se llega a la siguiente expresión:

$$\cos \mathbf{a} = \frac{H_E + H_{ap} \cdot \cos \mathbf{f}}{\sqrt{H_E^2 + H_{ap}^2 + 2H_E H_{ap} \cos \mathbf{f}}} \quad [6.9]$$

Definimos el parámetro de magnetorresistencia,  $m_r$  mediante la siguiente expresión, que obtenemos elevando al cuadrado la expresión [6.9] y efectuando algunas simplificaciones:

$$m_r = \cos^2 \mathbf{a} = \frac{H_E^2 + H_{ap}^2 \cos^2 \mathbf{f} + 2H_E H_{ap} \cos \mathbf{f}}{H_E^2 + H_{ap}^2 + 2H_E H_{ap} \cos \mathbf{f}} \quad [6.10]$$

Introduciendo en esta expresión el valor  $H_E = 20$  Oe y los valores de  $H_{ap}$  correspondientes a una curva de magnetorresistencia como las que se midieron experimentalmente, se han calculado los valores de  $m_r$  para cada ángulo  $\phi$  en el rango (0°-360°) en intervalos de 10°. Los valores obtenidos correspondientes al rango 0°-90° se han representado en la figura 6.2.9 normalizados al valor de saturación positiva ( $H = +90$  Oe.)

Las curvas resultantes del cálculo teórico no presentan coercitividad puesto que en el modelo no se ha introducido ningún término que de cuenta de la anisotropía uniáxica del sistema. Por tanto, debemos comparar estos resultados con los obtenidos en la medida experimental, tomando solamente la primera rama de las curvas de magnetorresistencia. En la figura 6.2.10 se ha representado esta primera rama correspondiente a las medidas en los ángulos  $0^{\circ}$ - $90^{\circ}$ . Vemos que los cálculos del modelo teórico reproducen con bastante fidelidad las medidas experimentales lo que lleva a pensar que, efectivamente, la dependencia complicada de las curvas de magnetorresistencia en función del ángulo de medida está indicando que en el sistema se están produciendo rotaciones de la imanación durante la inversión de ésta.

No obstante, se observan algunas diferencias entre la cálculo y el experimento. La más destacable de ellas es que mientras que en el sistema modelado el máximo valor de magnetorresistencia se produce simultáneamente en la dirección del eje fácil y la perpendicular a éste, en el sistema real la dirección fácil es la que menor variación de magnetorresistencia presenta. Como se ha dicho, en el modelo no se ha tenido en cuenta la anisotropía uniáxica del sistema por lo que todas las diferencias que se presenten entre los resultados del modelo y los resultados experimentales pueden radicar en este aspecto. En cualquier caso, el modelo reproduce la morfología de las curvas experimentales, lo que es de gran ayuda para una comprensión previa de las mismas.

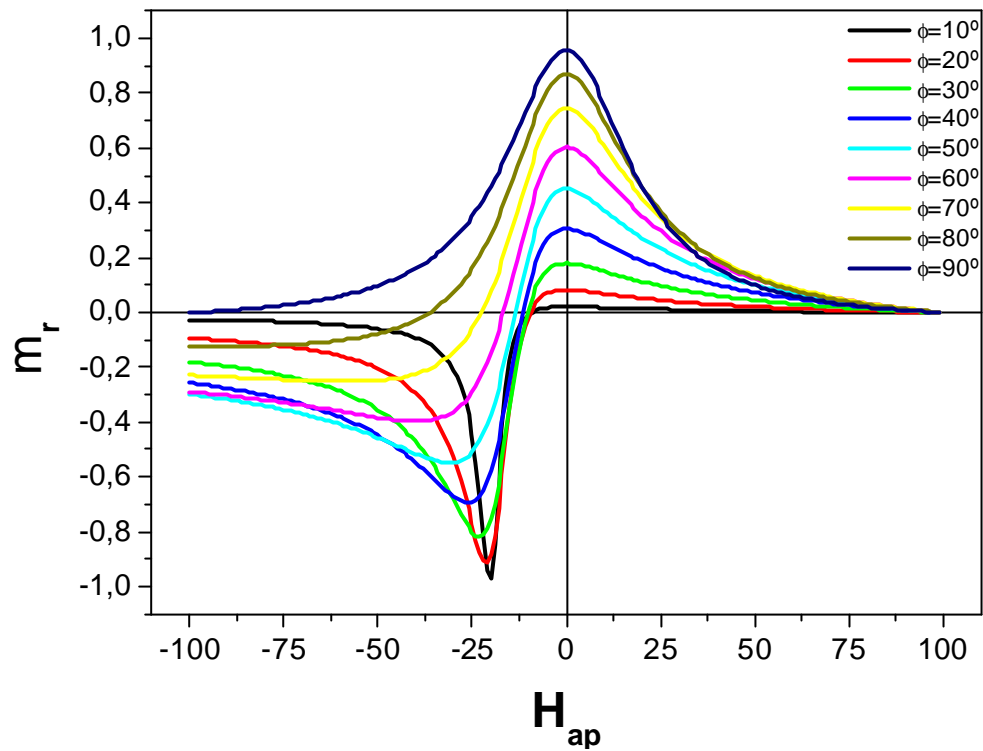


Figura 6.2.9. Valores de  $m_r$  calculados según la ecuación [6.10] para los ángulos indicados

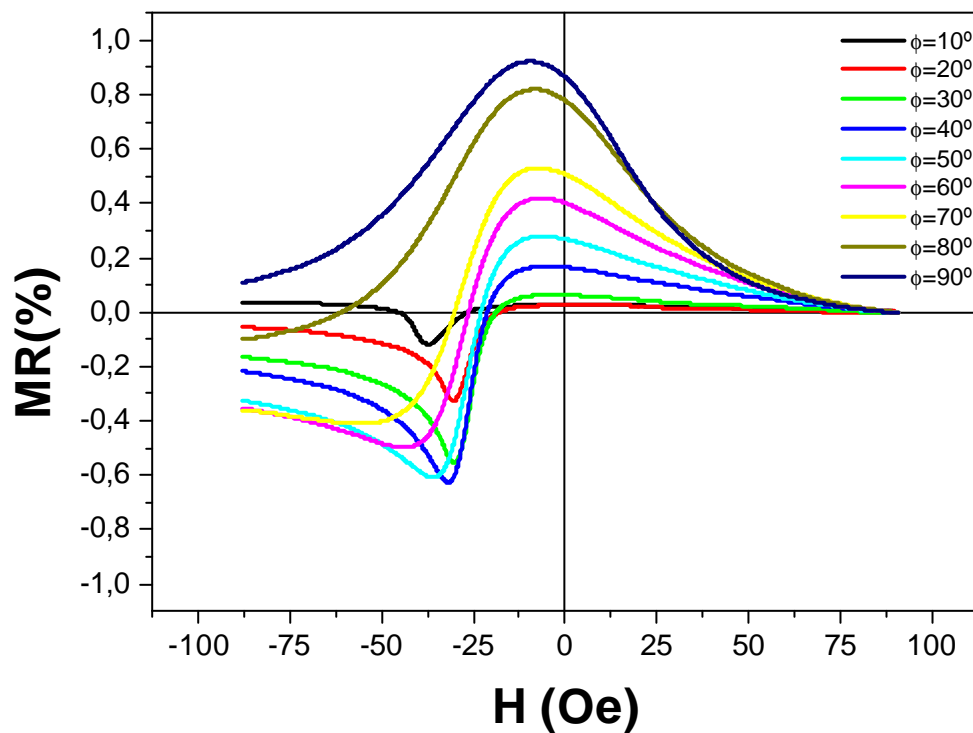


Figura 6.2.10. Medida experimental de la primera rama de la curva de AMR para los ángulos indicados.

### 6.3 Interpretación de los resultados

El estudio comparativo de los ciclos de histéresis longitudinales y transversales y de las curvas de magnetorresistencia anisótropa en los dos sistemas estudiados, con y sin anisotropía de canje, se ha revelado de gran utilidad para determinar el mecanismo de inversión de la imanación que tiene lugar en el sistema con anisotropía de canje. Como se mencionó en la introducción de esta memoria, no existe una teoría única para el mecanismo de inversión de la imanación en sistemas con anisotropía de canje sino que normalmente se dan diversas interpretaciones para explicar resultados experimentales concretos en sistemas estudiados específicos.

Tradicionalmente se asume el mecanismo sugerido por los descubridores del fenómeno de anisotropía de canje Meiklejohn & Beam [4]. En su modelo se asume lo que aquí llamaremos **rotación coherente** de la imanación del ferromagnético. Se empleará este término para dar cuenta de la rotación uniforme en el interior del FM. La coercitividad del sistema tendría su origen en las barreras de anisotropía que encuentra la imanación en su rotación. Debido a la simplicidad de esta hipótesis, en la que sólo existe un grado de libertad, que es la dirección de la imanación, se han venido haciendo desde entonces y en numerosos trabajos ajustes numéricos de los datos experimentales en el marco de este modelo.

El mecanismo de rotación coherente, no obstante, tiene algunos argumentos en contra que sirven de apoyo para otras teorías que han ido surgiendo recientemente y que lo descartan como mecanismo de inversión de la imanación [5-8]. El principal argumento en contra es el desacuerdo entre los valores de campo coercitivo que se encuentran experimentalmente y los que se derivan de suponer la rotación coherente en un sistema con barreras de anisotropía del orden de las medidas experimentalmente mediante diversas técnicas como la resonancia ferromagnética [9] o la medida del torque rotacional [10]. Algunos autores como Fulcomer et al. [11] y Mauri et al. [12] entonces sugieren, sin abandonar la idea de la rotación coherente, que el **origen de la coercitividad está en el antiferromagnético**. El modelo de Fulcomer y Charap se basa en la formación de pequeños dominios en el antiferromagnético sobre los que la imanación del ferromagnético se comporta coherentemente. Estos pequeños dominios se forman a merced de una distribución al azar de ejes de anisotropía del AF que dan lugar a una distribución de barreras de anisotropía y por tanto de campos coercitivos,



explicándose así el aumento global de coercitividad. La rugosidad de la intercara [13] puede dar lugar a inhomogeneidades en el proceso de imanación tales como nucleación, anclaje y salto de paredes como ocurre en un ferromagnético con defectos. Esto también originaría una distribución amplia de barreras energéticas locales que puede dar lugar al aumento del campo coercitivo.

En otros trabajos como los de Stiles [14] o Fujiwara [15] se consideran dos tipos de granos antiferromagnéticos: aquellos estables que contribuyen al campo de desplazamiento, y aquellos inestables que sufren transiciones irreversibles entre dos configuraciones posibles y que originarían el aumento de campo coercitivo. En este modelo, la imanación del ferromagnético se comporta coherentemente con el momento descompensado de estos granos inestables.

V. I. Nikitenko [7], K. O'Grady [16] e I. K. Schuller [17], entre otros, proponen la formación de un dominio invertido en el FM durante la inversión de la imanación. En los trabajos de Schuller [17] sobre asimetría en los procesos de imanación en muestras monocristalinas macladas, se ha observado experimentalmente la formación de dominios invertidos en una de las ramas del ciclo de histéresis. En el caso particular de estas muestras, la inclusión de defectos de apilamiento hace que el balance energético favorezca este mecanismo de inversión de la imanación. En general, la formación de un dominio invertido es, sin embargo, una hipótesis algo controvertida, ya que supondría un gran coste energético debido a la interacción de canje con una superficie en la que hay un elevado momento descompensado proveniente del AF.

Fujiwara [18] siguiendo el modelo de Fulcomer de un antiferromagnético con dominios o *clusters* pequeños, propuso en 1994 una cierta dispersión de momentos en torno a la dirección del campo de canje, con un ángulo  $\phi$  que es positivo para unos dominios AF y negativo para otros. En este modelo se supone la formación de una pared de Neél en el interior de los granos AF, que invierte su polaridad cuando el campo invertido es suficientemente elevado haciendo transitar a los granos AF irreversiblemente entre dos posibles configuraciones. Este mecanismo daría cuenta del aumento de campo coercitivo. El proceso que en este modelo se propone para la inversión de la imanación en el eje fácil es la **rotación incoherente de la imanación** debida a la dispersión local de los ejes de anisotropía de los granos AF. El término **incoherente** se empleará aquí para denominar el mecanismo de rotación en el que ésta gira en sentidos opuestos en diferentes regiones de la muestra. Otros trabajos posteriores

de este mismo autor [19] muestran imágenes de Microscopía de Fuerza Magnética en las que se observa cómo la imanación gira en sentido contrario en distintas partes de la muestra debido a la formación de paredes de 360°.

En los trabajos S. Zhang et al. [20,21] se remarca la imposibilidad de explicar el aumento de campo coercitivo en sistemas con anisotropía de canje si el mecanismo de inversión de la imanación es la rotación coherente. Estos autores proponen la formación de dominios ultra-pequeños en el ferromagnético durante el proceso de inversión de la imanación. La dimensión de estos dominios es inversamente proporcional a la relación entre el canje FM-FM y la interacción FM-AF. El resultado de la formación de estos dominios es la existencia de un gran número de barreras energéticas locales y por tanto una anisotropía promedio que da cuenta del aumento de campo coercitivo. La imanación rota entonces en distintas zonas de la muestra para distintos valores del campo aplicado e incluso lo hace en distintos sentidos. Una vez más se propone el mecanismo de rotación incoherente de la imanación.

En la línea de estos trabajos que proponen la rotación incoherente de la imanación está la interpretación que se dará de los resultados obtenidos en este trabajo. Se propondrá un mecanismo de **rotación incoherente** de la imanación que da cuenta de los resultados obtenidos en este capítulo. Las medidas presentadas en este capítulo de ciclos de histéresis longitudinales y transversales y magnetorresistencia en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  cuando en él se induce anisotropía de canje, permiten obtener las siguientes conclusiones:

1. En el sistema se desarrolla un eje de anisotropía **unidireccional** en la dirección del campo de enfriamiento.
2. Se produce un **aumento de campo coercitivo** cuyo máximo valor es aproximadamente 20 Oe.
3. En el sistema se desarrolla un eje **uniáxico** inequívocamente vinculado con el eje unidireccional.

4. La medida de magnetorresistencia en función del ángulo demuestra que durante la inversión de la imanación tienen lugar **rotaciones** de la imanación en todos los ángulos medidos.

De lo anteriormente expuesto, se deduce que la presencia de anisotropía de canje está forzando al sistema a invertir su imanación mediante un proceso de rotaciones. A diferencia de lo que sucede en el sistema sin anisotropía de canje en el que la formación de un dominio invertido es, en principio, más favorable energéticamente, la energía de canje FM-AF hace esta opción desfavorable en el sistema con anisotropía de canje.

Para exponer lo anterior más claramente haremos a continuación una evaluación estimativa de las energías de pared y de rotación en ambos sistemas. Consideraremos para ello un estado magnético del sistema de imanación cero, tanto en el caso de la formación de un dominio invertido como en el caso de la rotación. Por tanto, como en el capítulo precedente, consideraremos que la variación de energía Zeeman es la misma en ambos procesos por ello no la incluiremos en esta estimación.

En primer lugar calcularemos la densidad superficial de energía de formación de una pared de 180° en el *Permalloy* a partir de la expresión [22]:

$$\mathbf{g}_{pared} = \sqrt{\frac{0,3kT_c \mathbf{p}^2 K(T)}{a}} \quad [6.11]$$

donde  $k$  es la constante de Boltzmann,  $T_c$  es la temperatura de Curie,  $K(T)$  la energía de anisotropía magnetocristalina y  $a$  el parámetro de red. El espesor de esta pared viene dado por la siguiente expresión [22]:

$$\mathbf{d}_{pared} = \sqrt{\frac{0,3kT_c \mathbf{p}^2}{4K(T)a}} \quad [6.12]$$

Se tomarán en adelante los siguientes valores [23]:

$$k = 1,38 \cdot 10^{-16} \text{ erg/K}$$

$$a \approx 2,5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$$

$$T_c = 853 \text{ K}$$

$$K(300 \text{ K}) = 3,5 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$$

$$t = 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$$

$$A = 0,5 \cdot 0,5 \text{ cm}^2$$

$$M_s = 500 \text{ emu/cm}^3$$

donde  $t$  es el espesor de la película FM y  $A$  su superficie. Introduciendo los valores correspondientes en las expresiones [6.11] y [6.12] se estiman los siguientes valores para la densidad superficial de energía de formación de una pared de  $180^\circ$  y su espesor en el *Permalloy*:

$$g_{\text{pared}} \approx 0,2 \text{ erg/cm}^2$$

$$d_{\text{pared}} \approx 2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$$

Primeramente, evaluaremos la energía en el caso del **sistema sin anisotropía de canje**. La energía de formación de una pared de **dominio** perpendicular al plano de la película (ver figura 6.3.1a), suponiendo un área  $A_{\text{pared}} = 0,5 \text{ cm} \times 20 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$ , será:

$$E_{\text{pared-perpendicular}} \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ erg}$$

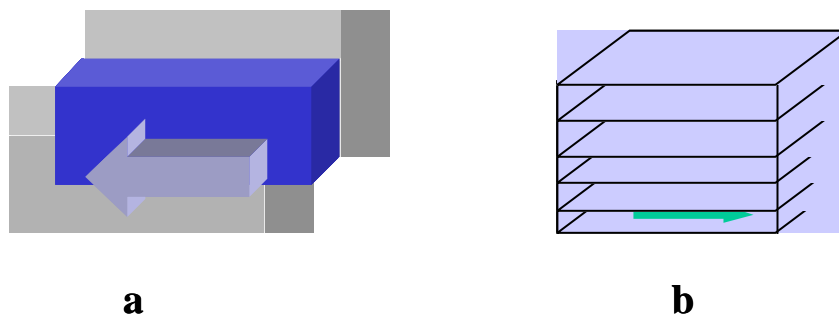


Figura 6.3.1. Formación de una pared de  $180^\circ$  a) perpendicular y b) paralela en el sistema libre

Sin embargo, si se produce la **rotación** de la imanación, o lo que es equivalente, se forma una **pared paralela** al plano de la película, de manera que la imanación rota a

lo largo del espesor de la película FM (ver figura 6.3.1b) una buena aproximación de la energía será en este caso[22]:

$$g_{pared-paralela} = 2Kt \quad [6.13]$$

Introduciendo los valores correspondientes, obtenemos un valor para la densidad de energía de la pared paralela:

$$g_{pared-paralela} = 1,4 \cdot 10^{-2} \text{ erg / cm}^2$$

Teniendo en cuenta que ahora el área de esta pared es 0,25 cm<sup>2</sup>, tendremos que la energía total del proceso de rotación es:

$$E_{pared-paralela} \approx 3,5 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$$

Por tanto, ya que:

$$E_{pared-paralela} > E_{pared-perpendicular}$$

es evidente que en el sistema sin anisotropía de canje el mecanismo de inversión de la imanación más favorable energéticamente es la **formación de una pared de 180°** perpendicular al plano de la película.

Veremos ahora qué ocurre en el **sistema con anisotropía de canje**. Los valores de las energías de formación de las paredes perpendicular y paralela son los mismos que en el caso anterior. Sin embargo, en este caso hay que tener en cuenta la energía de canje con el momento descompensado AF en la intercara (ver figura 6.3.2)

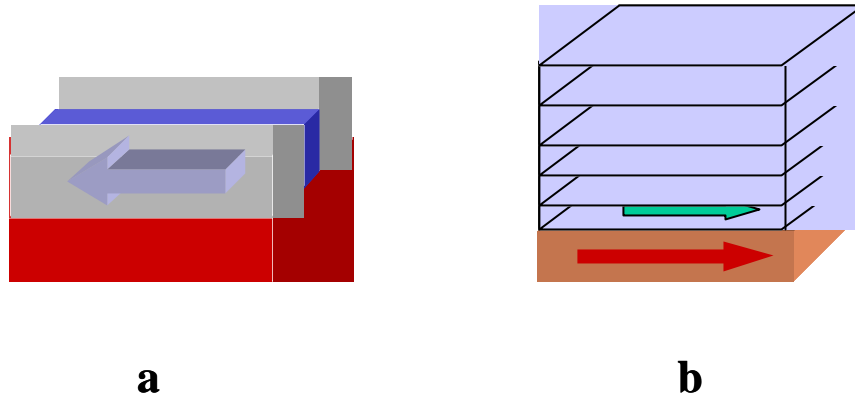


Figura 6.3.2. Formación de una pared de 180° a) perpendicular y b) paralela en el sistema con anisotropía de canje

La energía de canje por unidad de superficie se puede estimar teniendo en cuenta el campo de desplazamiento medido  $H_E$ , (-15 Oe, aproximadamente) a través del siguiente término de interacción [2]:

$$\mathbf{g}_{\text{canje}} = -t\vec{M}_s \cdot \vec{H}_E \quad [6.14]$$

Supongamos, en el caso de la **formación de un dominio invertido** (ver figura 6.3.2.a), la situación en la que el tamaño de ambos dominios, el invertido y el no invertido, es idéntico:

$$\mathbf{g}_{\text{canje}} \approx \frac{1}{2}M_s H_E - \frac{1}{2}M_s H_E = 0$$

Por tanto la energía total del proceso inversión por formación de dominio invertido en el sistema con anisotropía de canje será:

$$E_{\text{dominio}} = E_{\text{pared-perpendicular}} + E_{\text{canje}} \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ erg}$$

Evaluaremos ahora la energía del proceso de formación de una pared paralela, o lo que es lo mismo, el proceso de inversión de la imanación mediante **rotación** en el sistema con anisotropía de canje (ver figura 6.3.2.b). Ahora la energía de canje en la intercara será negativa, puesto que el momento del FM y el campo  $H_E$  son paralelos.

Introduciendo los valores correspondientes en la expresión [6.14], se estima que la energía de canje en la intercara es:

$$E_{\text{canje}} \approx -3,75 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$$

Por tanto, la energía total del proceso de rotación en el sistema con anisotropía de canje es:

$$E_{\text{rotación}} = E_{\text{pared-paralela}} + E_{\text{canje}} \approx -2,5 \cdot 10^{-4} \text{ erg}$$

Evidentemente, en el **sistema con anisotropía de canje** el balance energético es tal que:

$$E_{\text{dominio}} > E_{\text{rotación}}$$

por lo que la **rotación** es la opción energéticamente más favorable. En la tabla 6.1 se resumen los resultados anteriores.

Sistema	Dominio invertido	Rotación
<i>Sin anisotropía de canje</i>	$2 \cdot 10^{-7} \text{ erg}$	$3,5 \cdot 10^{-3} \text{ erg}$
<i>Con anisotropía de canje</i>	$2 \cdot 10^{-7} \text{ erg}$	$-2,5 \cdot 10^{-4} \text{ erg}$

Tabla 6.1. Energías de los procesos de formación de un dominio invertido y rotación en los sistemas con y sin anisotropía de canje.

Si ahora estimamos el campo coercitivo en un sistema en el que se produce la rotación coherente de la imanación, mediante la expresión de  $H_c$  que da el modelo de Stoner- Wohlfarth [23]:

$$H_c = \frac{2K}{M_s}$$

[6.15]

e introduciendo los valores  $K(300K) = 3,5 \cdot 10^3 \text{ erg/cm}^3$  y  $M_s = 500 \text{ emu /cm}^3$  obtenemos el siguiente valor:

$$H_c \approx 150e$$

Este valor, aunque un poco menor, está próximo al campo coercitivo máximo obtenido experimentalmente ( $\sim 20$  Oe). Esto indica que el aumento de campo coercitivo está originado por el hecho de que la imanación se vea obligada a rotar ante la presencia de anisotropía de canje en el sistema. No obstante, hay dos aspectos que hay que matizar en un mecanismo de rotación de la imanación:

- En primer término, no se explica la existencia de un eje uniáxico bien definido, es decir, el hecho de que el campo coercitivo no presente el mismo valor en todas las direcciones. *A priori*, tratándose de un sistema policristalino en el que existe una distribución aleatoria de ejes de anisotropía en el FM, no hay razón para pensar que hay un eje preferente de fácil imanación. Por tanto no podemos correlacionar la rotación de la imanación con la presencia del eje uniáxico. Sin embargo, sí que se ha visto que existe una correlación entre la presencia del eje unidireccional inducido y dicho eje uniáxico bien definido.
- En segundo lugar, si suponemos la rotación coherente de la imanación no es posible explicar la medida de imanación transversal en el eje unidireccional del sistema. Si recordamos aquel resultado (ver figura 6.1.9) veremos que la componente transversal es cero en dicha dirección. Hay dos posibles situaciones que no generan componente transversal (ver figura 6.3.3) durante la inversión de la imanación:
  - la formación de un domino invertido, posibilidad descartada en la discusión anterior y
  - la rotación incoherente de la imanación: la imanación rota en distintos sentidos de manera que la resultante de la componente transversal es cero.



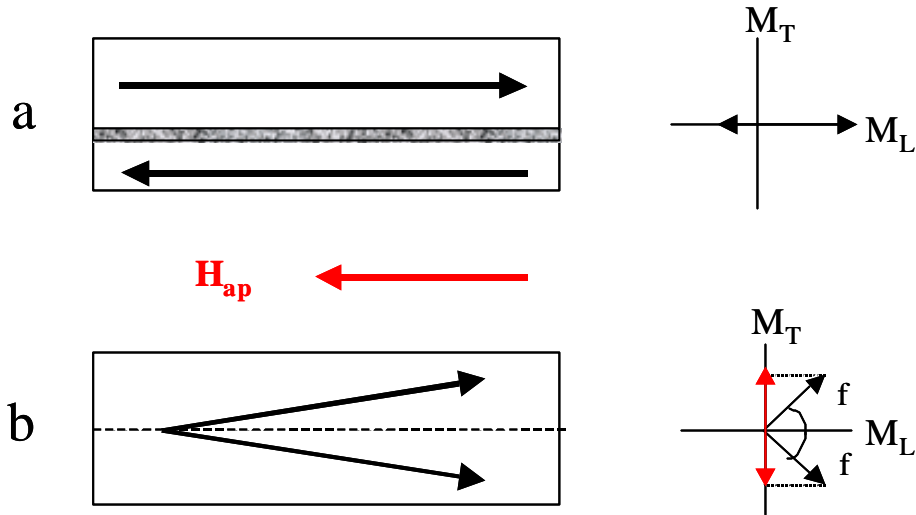


Figura 6.3.3. a) Formación de dominio invertido y b) rotación incoherente. En ninguna de las dos situaciones hay componente transversal de la imanación.

Con objeto de dar una explicación a estos dos aspectos consistente con todos los resultados anteriores se ha desarrollado un modelo de rotaciones incoherentes que se expondrá a continuación.

### 6.3.1 Rotaciones incoherentes en un sistema de dos espines

En primer lugar, para exponer de la manera más sencilla posible la naturaleza del mecanismo de la rotación incoherente que aquí se propone, se pondrá el ejemplo de un sistema de dos espines  $S_1$  y  $S_2$ . Supongamos que estos dos espines inicialmente, debido a sus ejes de anisotropía local, están situados en direcciones simétricas respecto a un eje de tal manera que forman con él un ángulo  $q$  (ver figura 6.3.4) y que interaccionan entre sí siendo la constante de interacción de canje  $A$ . Si ahora se aplica un campo externo  $\vec{H}$  en la dirección del eje de simetría, la energía total del sistema será:

$$E_T = E_{Zeeman} + E_{canje} = -\mathbf{m}_0 \vec{S}_1 \cdot \vec{H} - \mathbf{m}_0 \vec{S}_2 \cdot \vec{H} - A \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2$$

[6.16]

Nótese que en la expresión anterior no se ha tenido en cuenta la energía de anisotropía de los espines. Teniendo ahora en cuenta la relación de ángulos entre vectores, se puede describir la expresión anterior de la siguiente forma:

$$E_T = -\mathbf{m}_0 S_1 H \cos \mathbf{J} - \mathbf{m}_0 S_2 H \cos \mathbf{J} - A S_1 S_2 \cos 2\mathbf{J} \quad [6.17]$$

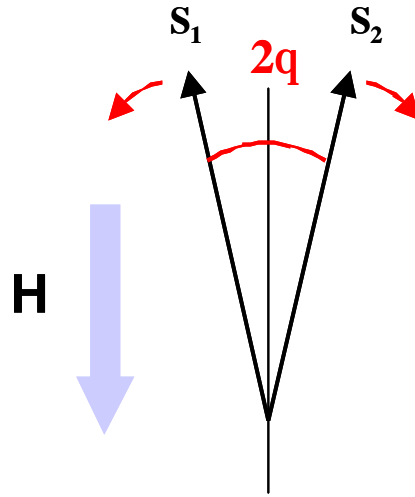


Figura 6.3.4. Rotación incoherente de dos espines que forman un ángulo  $2q$

Se puede expresar la ecuación anterior en términos del ángulo  $\theta$ , haciendo uso de la siguiente relación trigonométrica:

$$\cos 2\mathbf{J} = 1 - 2\text{sen}^2 \mathbf{J}$$

con lo que la ecuación [6.15] queda de la siguiente forma:

$$E_T = -\mathbf{m}_0 (S_1 + S_2) H \cos \mathbf{J} + \underline{\underline{2A S_1 S_2 \text{sen}^2 \mathbf{J}}} + cte \quad [6.18]$$

En esta nueva expresión aparece un término con el cuadrado del seno del ángulo  $q$  que no es sino un término de anisotropía uniáxica cuya constante es proporcional a la

interacción de canje entre bs espines. Son precisamente este tipo de términos de la energía los que generan coercitividad en los sistemas magnéticos.

Análogamente al caso típico del modelo de Stoner- Wollfarth, este sistema presenta dos posiciones de mínimos energéticos de tal forma que cuando se invierte el sentido del campo externo el sistema transita de uno a otro consumiendo una energía que es igual a  $4AS_1S_2$ . El campo coercitivo será en este caso proporcional al interacción de canje entre espines:

$$H_c = \frac{4AS_1S_2}{m_0(S_1 + S_2)} \quad [6.19]$$

En la figura 6.3.5. se ha esquematizado el ciclo de histéresis en este sistema. La diferencia de este sistema con el del modelo de Stoner-Wollfarth radica en el mecanismo de inversión de la imanación, que en este caso tiene lugar mediante la rotación de los espines en sentidos opuestos. La fuente de coercitividad, en este caso, no es un término de anisotropía uniáxica “convencional” sino la interacción de canje entre los espines que giran en sentidos opuestos.

Con este sencillo ejemplo se ha visto cómo en un sistema de dos espines que rotan incoherentemente aparece coercitividad sin tener en cuenta la energía de anisotropía de los espines. Con el siguiente modelo haremos una generalización a un sistema de N espines.

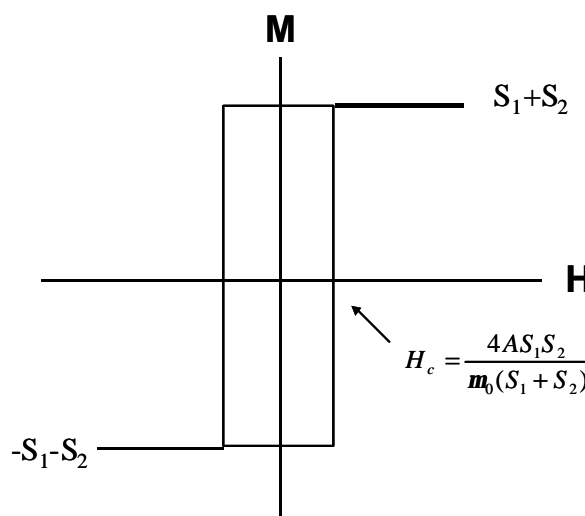


Figura 6.3.5. Esquema del ciclo de histéresis del sistema de dos espines que rotan incoherentemente

### 6.3.2 Modelo de rotaciones incoherentes en un sistema con anisotropía de canje

El modelo de rotaciones incoherentes que se presenta a continuación tiene como objeto calcular las curvas de imanación en un sistema magnético constituido por  $N$  espines interactuantes dos a dos en presencia de un campo extra  $H_{em}$  originado por una distribución de  $N$  momentos magnéticos. El modelo está basado en las siguientes consideraciones:

1. Se considera el antiferromagnético constituido por  $N$  granos independientes (que no interactúan entre sí) cada uno de ellos con un momento descompensado  $\mathbf{m}_i$ . Estos momentos, debido a la inhomogeneidad de la muestra y a la rugosidad de la intercara, estarán en principio orientados según sus ejes locales de anisotropía, distribuidos al azar (ver figura 6.3.6) de tal manera que

$$\langle \vec{m} \rangle = \sum_i \vec{m}_i = 0$$

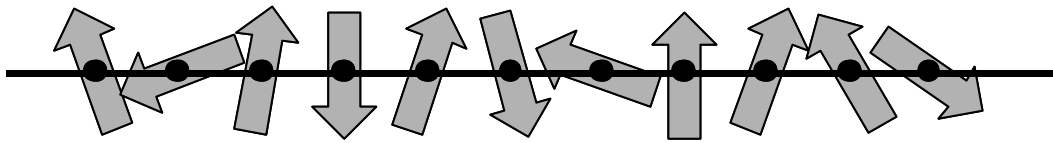


Figura 6.3.6. Cadena unidimensional de espines orientados aleatoriamente.

2. La polarización del AF mediante enfriamiento con campo, conlleva que cada uno de estos momentos  $\mathbf{m}_i$ , debido a la interacción con el FM en la intercara, se oriente en torno a la dirección del campo de enfriamiento con una cierta dispersión, de manera que ahora:

$$\langle \vec{m} \rangle = \sum_i \vec{m}_i \neq 0$$

Esta dispersión de momentos dará lugar a una dispersión de campos de canje locales  $\mathbf{h}_i$  que forman un ángulo  $\mathbf{d}_i$  con la dirección del campo de enfriamiento dentro de un cono de dispersión máxima  $\mathbf{d}$  (ver figura 6.3.7). y

cuyo valor promedio  $\mathbf{H}_{em}$  estará en la dirección del campo polarizante ( ver figura 6.3.8).

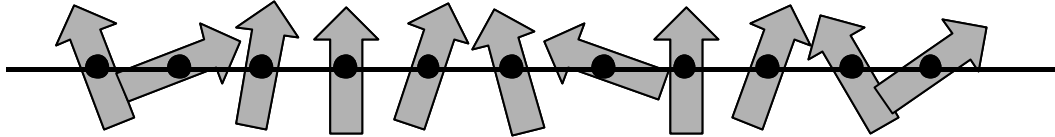


Figura 6.3.7. Cadena unidimensional de espines orientados dentro de un cono de dispersión.

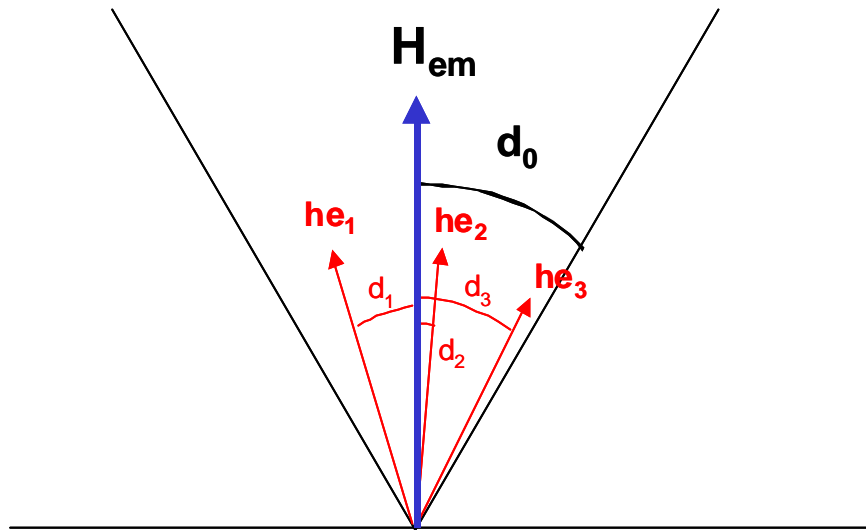


Figura 6.3.8. Cono de dispersión de campos de canje locales.

3. El campo aplicado  $\mathbf{h}_{ap}$  forma un ángulo  $\mathbf{a}$  con la dirección de  $\mathbf{H}_{em}$  (ver figura 6.3.9)
4. El ferromagnético está constituido por una distribución de  $N$  espines  $\mathbf{S}_i$  que interaccionan dos a dos entre vecinos próximos con una interacción de canje de magnitud  $\mathbf{e}$ , con el campo local correspondiente  $\mathbf{h}_i$  y con el campo aplicado  $\mathbf{h}_{ap}$ . El momento magnético promedio o imanación de la distribución es:

$$M = \frac{\sum_i \vec{S}_i}{N}$$

[6.20]

5. Cada espín  $\mathbf{S}_i$  forma un ángulo  $\pi/2 - \mathbf{x}_i$  con la dirección de  $\mathbf{h}_{ap}$  (ver figura 6.3.9)

A partir de las anteriores consideraciones podemos expresar la energía del ferromagnético mediante la siguiente ecuación:

$$E = -\sum_i \vec{h}e_i \cdot \vec{S}_i - \sum \vec{h}_{ap} \cdot \vec{S}_i - \sum_{\langle i,j \rangle} e \cdot \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad [6.21]$$

La expresión anterior contiene tres términos: el primer término corresponde a la energía *Zeeman* de los campos locales de canje, el segundo término da cuenta de la energía *Zeeman* del campo aplicado y, por último, el tercero expresa la energía de canje entre espines vecinos. En ningún caso se considera energía de anisotropía alguna.

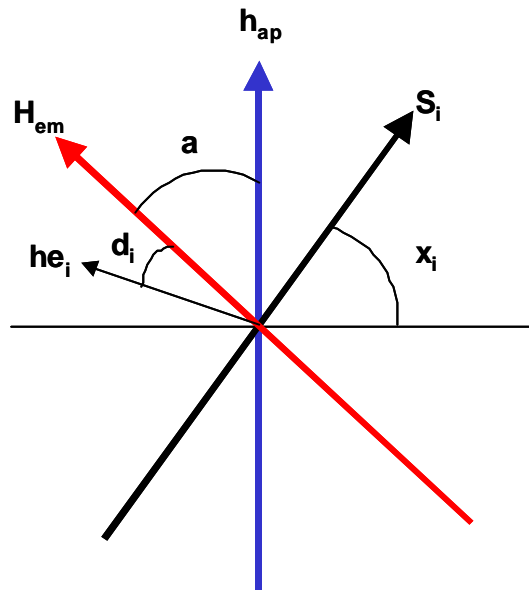


Figura 6.3.9. Configuración angular de campos y momentos magnéticos.

La ecuación [6.21] se puede describir en términos de los ángulos  $\mathbf{d}_i$  y  $\mathbf{x}_i$ , teniendo en cuenta la relación entre ellos. En el sistema de unidades en el que  $he_i = 1$  la energía tendrá la siguiente expresión:

$$E = -\sum_i \cos\left(\frac{\mathbf{P}}{2} - x_i + d_i + a\right) - h_{ap} \sum_i \cdot \cos(a + d_i) - e \sum_{\langle i,j \rangle} \cdot \cos(d_i + d_j)$$

[6.22]

A partir de esta expresión se calculan los valores de  $x_i$  ( $e$ ,  $a$ ,  $h_{ap}$ ) que minimizan la energía para cada valor de los parámetros  $e$ ,  $a$  y  $h_{ap}$  y del ángulo de dispersión  $d_0$ . Teniendo en cuenta la expresión [6.20] se pueden calcular las proyecciones del momento magnético promedio sobre la dirección del campo aplicado  $M_L$  y la dirección perpendicular  $M_T$  mediante las siguientes expresiones:

$$M_L(a, h_{ap}, e) = \frac{1}{N} \sum_i \text{sen}[x_i^{\min}(a, h_{ap}, e)]$$

$$M_T(a, h_{ap}, e) = \frac{1}{N} \sum_i \cos[x_i^{\min}(a, h_{ap}, e)]$$

[6.23]

de manera que se obtienen curvas de imanación longitudinal y transversal frente al campo aplicado  $h_{ap}$  para cada valor de la interacción de canje  $e$ ,  $d_0$  y el ángulo  $a$ . También es posible obtener curvas de magnetorresistencia, en las que ésta sea proporcional al cuadrado de las proyecciones de la imanación sobre la dirección de la corriente. Así pues, se define el parámetro  $M_R$ , proporcional a la magnetorresistencia, mediante la siguiente expresión:

$$M_R(a, h_{ap}, e) = \frac{1}{N^2} \sum_i \text{sen}^2[x_i^{\min}(a, h_{ap}, e)]$$

[6.24]

Se han calculado curvas de imanación longitudinales y transversales y curvas de magnetorresistencia introduciendo en las ecuaciones [6.23] y [6.24] los siguientes valores:

$$\begin{array}{lll} d = 80^\circ & N = 16 \text{ espines} & a = 0^\circ\text{-}360^\circ \\ h_{ap} = \pm 1.5 & e = 0.8 & \end{array}$$

En la figura 6.3.10 se han representado los resultados obtenidos en el caso de las curvas de imanación, calculadas en los ángulos indicados.

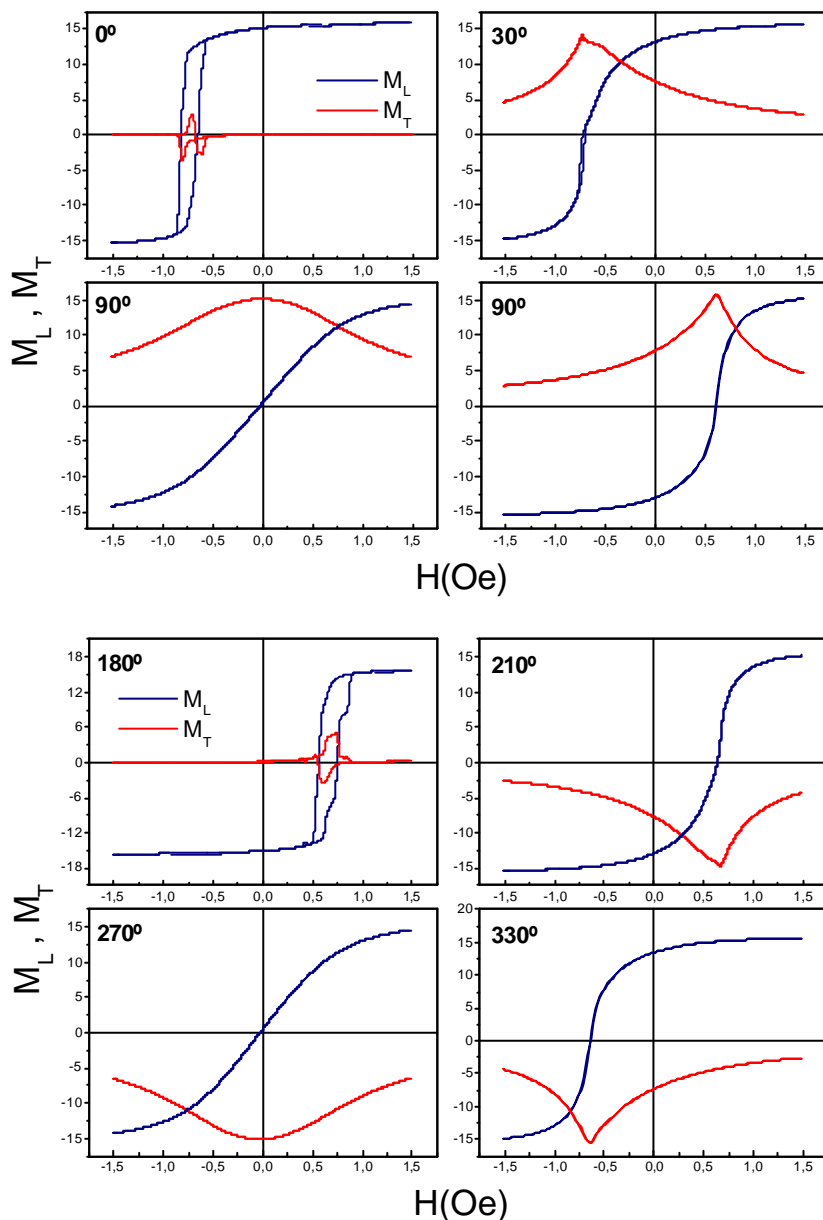


Figura 6.3.10. Curvas de imanación longitudinal (línea azul) y transversal (línea roja) calculadas para los ángulos indicados.

A partir de los resultados anteriores se destacan los siguientes puntos:

- Se pone de manifiesto la existencia de un **eje unidireccional** a lo largo de la dirección  $0^\circ$ - $90^\circ$  que tiene como consecuencia el desplazamiento de las curvas de imanación a lo largo del eje de campos. Se ha calculado la dependencia del campo



de desplazamiento ,  $h_{em}$ , en función del ángulo  $\alpha$ . El resultado se muestra en la figura 6.3.11 donde se observa una dependencia sinusoidal de periodicidad  $2\pi$ .

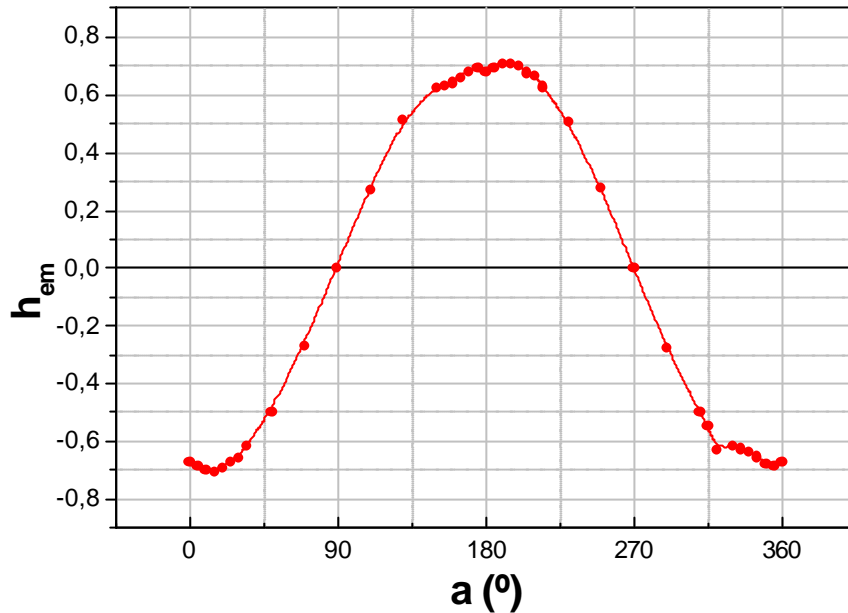


Figura 6.3.11. Valores de  $h_{em}$  en función del ángulo  $\alpha$  calculados a partir de los resultados del modelo.

- El campo coercitivo presenta una dependencia angular típica de los sistemas con anisotropía uniáxica. En la figura 6.3.12 se representan los valores de  $h_c$  calculados a partir de los resultados anteriores en función del ángulo  $\alpha$  en un gráfico en coordenadas polares. El eje uniáxico se observa bien definido en la dirección 0-180°. Recordamos aquí que el modelo no considera ningún tipo de anisotropía.

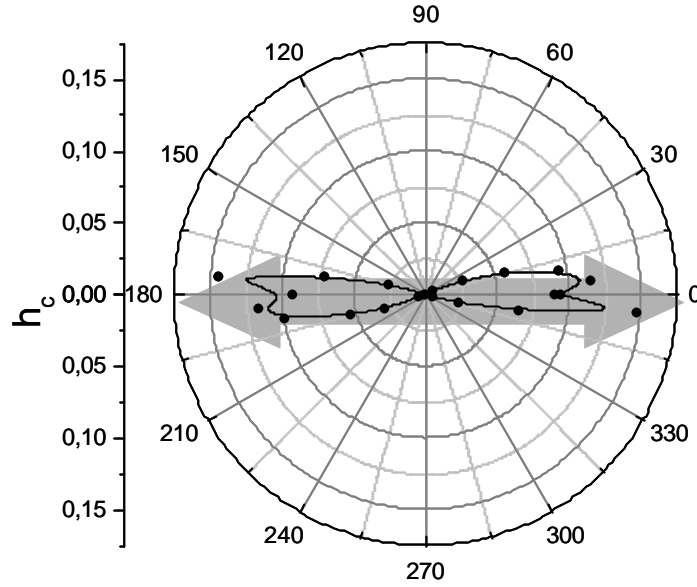


Figura 6.3.12. Valores de  $h_c$  en función del ángulo  $a$  calculados a partir de los resultados del modelo.

- La imanación transversal muestra que el proceso de imanación tiene lugar mediante rotación hacia el eje unidireccional. Debido a la baja histéresis que presenta el sistema fuera de la dirección del eje unidireccional, en la mayoría de las curvas anteriores sólo aparece un valor extremo de la imanación transversal. En la figura 6.3.13 se ha representado su valor absoluto en un gráfico en coordenadas polares:

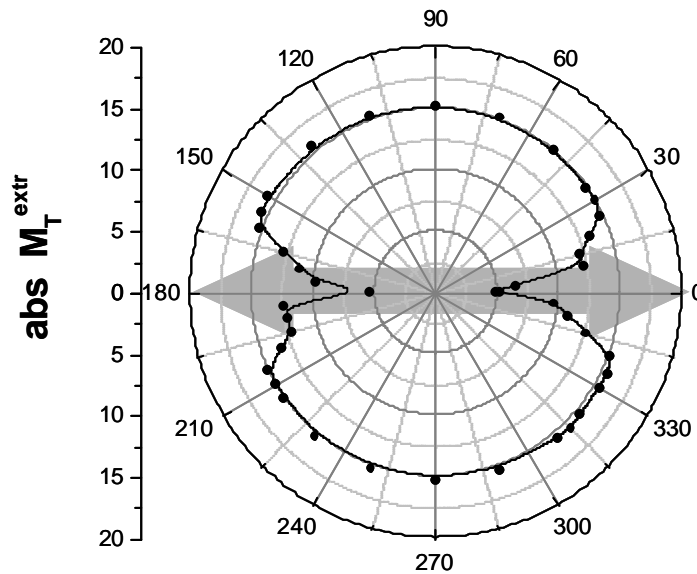


Figura 6.3.13. Valor extremo de  $m_t$  (en valor absoluto) en función del ángulo  $a$  calculados a partir de los resultados del modelo.

Observando las dos figuras anteriores, vemos que las regiones de mínima imanación transversal corresponden a regiones de máxima coercitividad, es decir, direcciones en torno al eje unidireccional, lo cual implica que la aparición de coercitividad se relaciona con el proceso de rotación incoherente. Esto se puede explicar teniendo en cuenta el cono de dispersión local, tal y como se ha representado en la figura 6.3.14. Cuando el valor medio  $H_{em}$  esté en una dirección próxima a la del campo aplicado, es decir, el ángulo  $\alpha$  sea próximo a  $0^\circ$  (a), la parte de espines que rotan en un sentido estará aproximadamente compensada con la de los que rotan en sentido contrario. De esta manera, la componente transversal de la imanación será muy pequeña. A medida que el ángulo  $\alpha$  se aproxima a  $90^\circ$  (b), aumenta la proporción de espines que gira en un sentido respecto a la que gira en otro. A  $90^\circ$  (c), todos los espines giran en el mismo sentido, y entonces, la componente transversal es máxima.

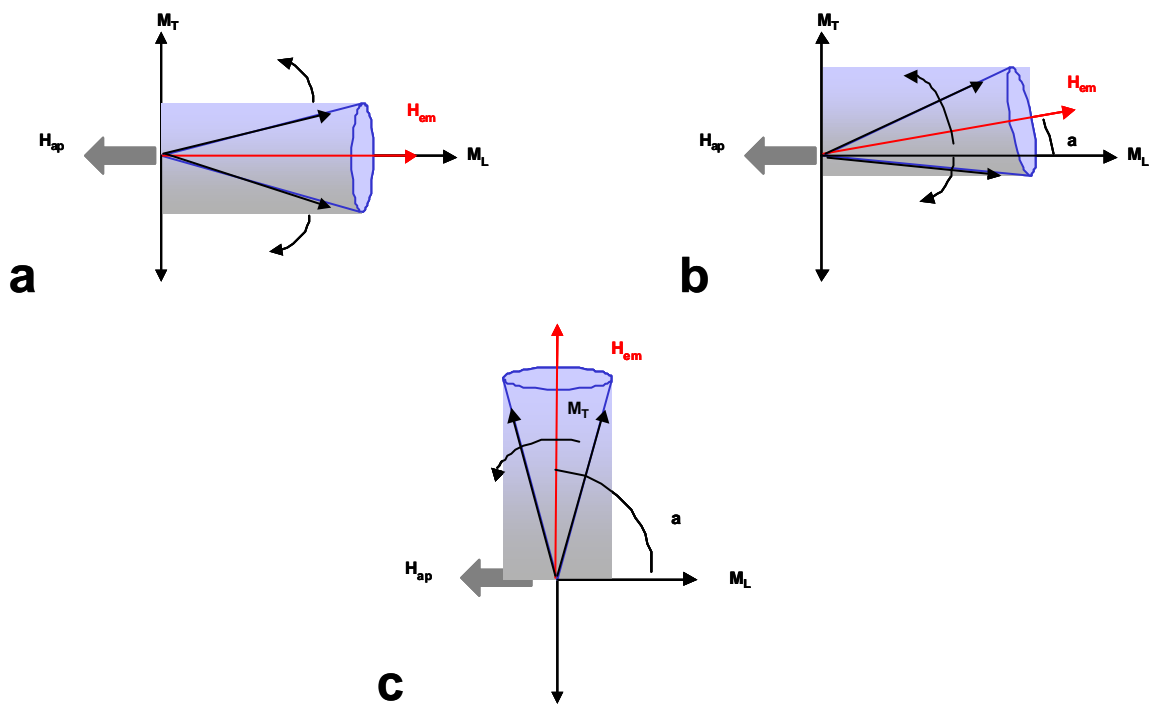


Figura 6.3.14. Cono de dispersión local. a) El campo aplicado es paralelo al eje del cono : el porcentaje de espines rotando en un sentido y otro es igual por lo que  $M_T = 0$ . b) El campo aplicado forma un cierto ángulo con el eje del cono: la mayor parte de los espines giran en un sentido por lo que  $M_T \neq 0$  y c) El campo aplicado es perpendicular al eje del cono: todos los espines giran en el mismo sentido de tal manera que  $M_T$  es máxima.

Por otra parte, se han representado en la figura 6.3.15 las curvas de magnetorresistencia calculadas para los ángulos indicados.

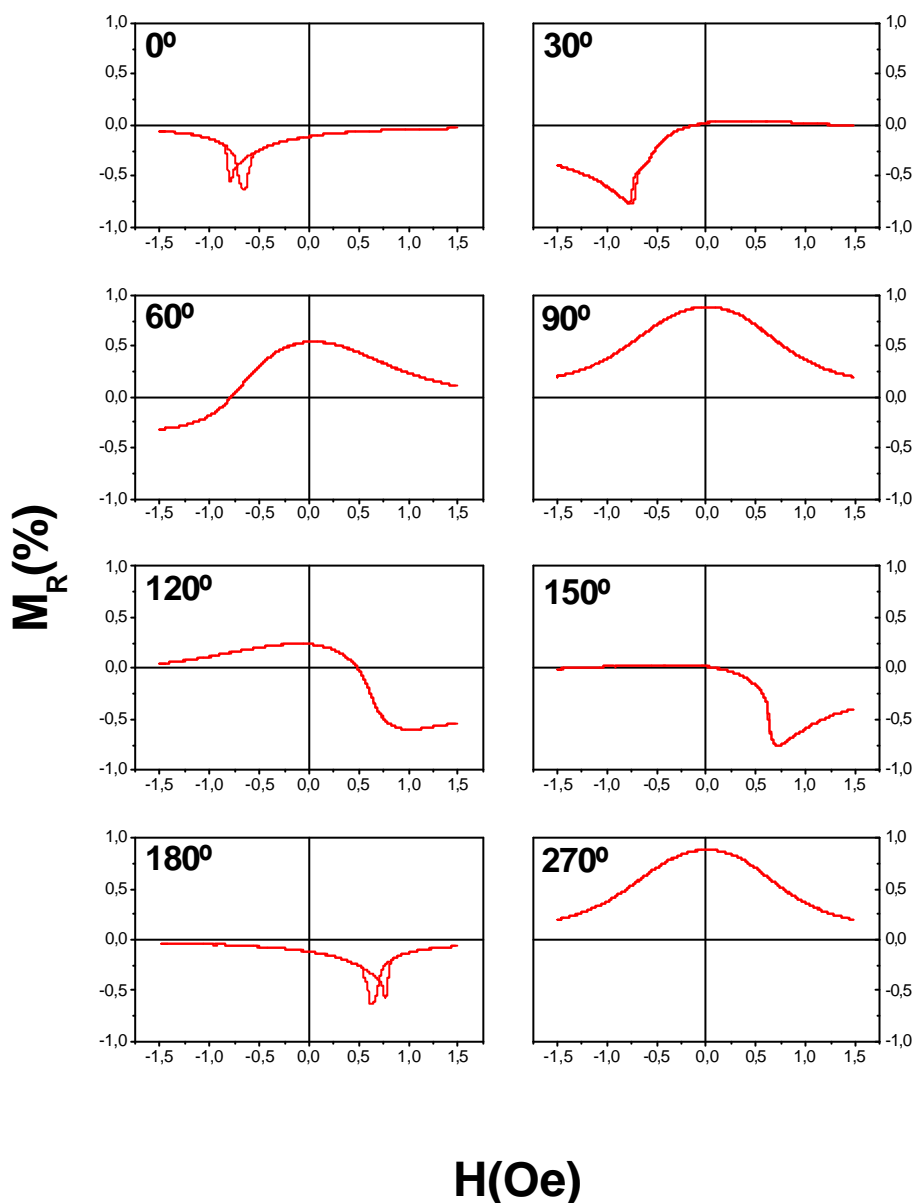


Figura 6.3.15. Curvas de magnetorresistencia calculadas para los ángulos indicados.

Si se comparan todos los resultados anteriores con los resultados experimentales de los apartados 6.1.2.2. y 6.2.2 y mostrados en las figuras 6.1.9, 6.1.10, 6.1.13, 6.1.12 y 6.2.5.veremos la gran analogía que presentan ambos. La reproducibilidad de los resultados experimentales a partir de las hipótesis del modelo de rotaciones incoherentes confiere al modelo un alto grado de validez para la interpretación de los resultados.

Los resultados de este modelo nos permiten concluir los siguientes puntos:

- Es posible generar coercitividad en el sistema a través del mecanismo de rotación incoherente e interacción de canje entre espines aun sin considerar la anisotropía uniaxial del sistema.
- El modelo predice la existencia de un eje uniaxial bien definido en la dirección del eje unidireccional.
- El campo coercitivo es máximo cuando el porcentaje de espines que giran en un sentido y otro está igualado. Esto ocurre en la dirección en la que el campo aplicado es paralelo al campo de canje promedio  $H_{em}$ . Entonces, el valor de la imanación transversal es cero.
- El campo coercitivo es mínimo cuando la rotación es uniforme, es decir, cuando el campo aplicado es perpendicular al campo de canje promedio  $H_{em}$  y todos los espines giran en el mismo sentido. Entonces la imanación transversal es máxima.

## 6.4 Conclusiones

En este capítulo se han estudiado los procesos de imanación a temperatura ambiente que tienen lugar en dos sistemas similares con y sin anisotropía de canje  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  y  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$ , respectivamente. El estudio comparativo de ambos sistemas ha sido de gran utilidad para la comprensión del mecanismo de inversión de la imanación en el sistema con anisotropía de canje. Los principales resultados obtenidos se resumen a continuación:

- Las medidas de ciclos de histéresis longitudinales y de curvas de magnetorresistencia en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Co-O}$  **sin anisotropía de canje** muestran:
  - la existencia de un eje uniaxial presente en la muestra debido al proceso de fabricación que se refleja en la dependencia angular del campo coercitivo. El valor máximo de  $H_c$  está en torno a 5 Oe.
  - que el mecanismo general de inversión de la imanación tiene lugar mediante un proceso mixto de **rotación coherente** hacia el eje uniaxial y posterior nucleación y propagación de una **pared de dominio invertido**. En particular, la inversión se produce:
    - en el eje fácil mediante salto de paredes
    - en el eje perpendicular mediante rotación pura
- La inducción de anisotropía de canje en el sistema  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ni-O}$  tiene las siguientes consecuencias:
  - la aparición de un eje inducido de anisotropía **unidireccional** que tiene como consecuencia el desplazamiento de los ciclos de histéresis. Este desplazamiento en el sistema estudiado tiene una dependencia angular de la forma :

$$H_E(Oe) = 15 \cos \left[ 2 \frac{p(f-f_0)}{360} \right] + 5 \cos \left[ 6 \frac{p(f-f_0)}{360} \right] - 18 \cos \left[ 10 \frac{p(f-f_0)}{360} \right]$$

donde  $\phi$  es el ángulo formado por el eje unidireccional y la dirección del campo magnético aplicado en los ciclos de histéresis.

- la aparición de un eje inducido de anisotropía **uniáxica** en la misma dirección del eje unidireccional bien definido e inequívocamente vinculado con él.
- un aumento de campo coercitivo  $H_c$  respecto al sistema sin anisotropía de canje que debido a la presencia del eje uniáxico tiene una dependencia angular:

$$H_c(Oe) = 9 \cos \left[ 2 \frac{p(f-f_0)}{180} \right] + 12$$

- un cambio substancial en el mecanismo de inversión de la imanación que se produce principalmente por **rotación incoherente** de la imanación. Esto se deduce del análisis conjunto de la medida de la componente transversal de la imanación y de la magnetorresistencia, cuyos valores máximos tienen las siguientes dependencias angulares en el sistema estudiado:

$$M_{l(\max)} = 0,8 \operatorname{sen} \left[ p \left( \frac{f-7}{178} \right) \right]$$

$$MR_{\max} (\%) = 0,3 \left[ 1 - \cos^2 \frac{pf}{180} \right]$$

- **El aumento de campo coercitivo y el desarrollo del eje uniáxico están claramente originados por el cambio en el mecanismo de inversión de la imanación, cambio inducido por la presencia en el sistema de anisotropía de canje**
- **El modelo de rotaciones incoherentes** propuesto para calcular las curvas de imanación longitudinal y transversal y las curvas de magnetorresistencia en un sistema de N espines interactuantes dos a dos y en presencia de campos locales de

canje creados por los momentos descompensados de N granos AFM, reproduce fielmente las curvas experimentales.

- Este **modelo sin anisotropía uniáxica**, predice la coercitividad del sistema. El campo coercitivo es generado por el mecanismo de rotación incoherente de espines con interacción de canje.



## Bibliografía

- [1] T. Ambrose, R.L. Sommer and C.L. Chien, Phys. Rev. B 56 (1), (1997), 83
- [2] Paper
- [3] J. Nogués, Ivan K. Schuller, J. Mag. Mag. Mat. **192**, 203 (1999)
- [4] W.H. Meiklejohn and C.P. Bean. Physical Review, 105, 3 (1957)
- [5] M.D. Stiles and R. D. McMichael, Phys. Rev. B 59 3722(1999)
- [6] Z. Li and S. Zhang, Phys. Rev. B **61**, R14897 (2000)
- [7] V. I. Nikitenko et al. Phys. Rev. B **57**, R8111 (1998)
- [8] H. Fujiwara, C. Hou, M. Sun , H. S. Cho and K. Nishioka , IEEE Trans. Mag., **35** , 0018-9464/99 (1999)
- [9] P. Lubitz, J. J. Krebs, M. M. Miller and S. Cheng, J. Appl. Phys. 83, 6819 (1998)
- [10] W.H. Meiklejohn, J. Appl. Phys. 33, 1328 (1962)
- [11] E. Fulcomer and S. H. Charap, J. Appl. Phys. 43 (10), (1972) 4190
- [12] D. Mauri *et al*, J. Appl. Phys. **62**, 3047 (1987)
- [13] A. P. Malozemoff, Phys. Rev. B, 35, 3679 (1987)
- [14] M.D. Stiles and R. D. McMichael, Phys. Rev. B 59 3722(1999)
- [15] C. Hou, H. Fujiwara and K. Zhang. J. Appl. Phys. **76**-26, 3974 (2000)
- [16] X. Portier et al. and K. O’Grady et al. J. Appl. Phys. **87**-9, 6412 (2000)
- [17] I. K. Schuller et. al, Phys. Rev. B **84**- 17 3986 (2000)
- [18] H. Fujiwara, K. Nishioka, C. Hou, M. R. Parker, S. Gangopadhyay and R. Metzger, J. Appl. Phys. **79** (8), (1996) 6286
- [19] H. S. Cho, C. Hou, M. Sun and H. Fujiwara, J. Appl. Phys. **85** (8), 5160 (1999)
- [20] Z. Li and S. Zhang, Phys. Rev. B **61**, R14897 (2000)
- [21] Z. Li and S. Zhang, Appl. Phys. Let., **77**-3 , 423 (2000)
- [22] B.D. Cullity, “*Introduction to magnetic Materials*”, Addison-Wesley Publishing Company, 1972.
- [23] Bozorth
- [24] E.C. Stoner and E. P. Wohlfarth, Trans. R. Soc. London **240**, 599 (1948)

# Capítulo 7

---

## Conclusiones y futuros trabajos

El trabajo que se ha expuesto en esta memoria ha dado como producto una serie de interesantes resultados relacionados con la naturaleza del fenómeno de anisotropía de canje en sistemas FM/AF nanocristalinos. Como es usual en los sistemas con anisotropía de canje en general, la fenomenología encontrada es amplia y muy variada. A continuación se expondrán las conclusiones finales que de este trabajo se derivan:

- A partir de los hechos experimentales, el mecanismo general de inversión de la imanación que se postula en los sistemas con anisotropía de canje estudiados es la **rotación de la imanación**, en contraposición al mecanismo de imanación cuando no existe anisotropía de canje, que es la nucleación de dominios invertidos y desplazamiento de paredes. Esta modificación del proceso de imanación, inducida por la interacción de canje interfacial, se propone como el origen del aumento de coercitividad observada en estos sistemas, respecto a los valores en un sistema análogo sin anisotropía de canje.
- Se ha observado la inducción de un **eje uniáxico** de anisotropía asociado al eje unidireccional de la anisotropía de canje. Los resultados experimentales descritos en esta memoria apuntan a la presencia de un mecanismo de rotación incoherente en direcciones cercanas a la dirección de enfriamiento del sistema como origen de esta anisotropía uniáxica asociada a la anisotropía unidireccional.
- Se ha desarrollado un **modelo teórico de rotaciones incoherentes** cuyos resultados se ajustan con fidelidad a los resultados experimentales y dan cuenta del aumento de campo coercitivo así como del desarrollo del eje uniáxico de anisotropía.
- Los sistemas estudiados presentan importantes efectos de entrenamiento, que también involucran cambios sustanciales en el mecanismo de inversión de la imanación. Las medidas de relajación magnética y de magnetorresistencia han puesto en evidencia que:

- la **primera inversión** de la imanación tras el proceso de enfriamiento tiene lugar mediante **movimiento de paredes de dominio**. Este proceso resulta el más favorable energéticamente en presencia de un elevado momento magnético en la intercara AF/FM.
- en las **sucesivas inversiones** de la imanación, el proceso de imanación evoluciona, debido a la progresiva reducción del momento en la intercara, hasta que se estabiliza y tiene lugar principalmente mediante **rotaciones**.
- La estructura nanocrystalina de los granos que conforman los materiales AF de las muestras estudiadas, consistente en una frontera de grano bien diferenciada del interior del grano, tiene interesantes efectos en las propiedades de anisotropía de canje de los sistemas. En concreto:
  - se ha observado en la evolución térmica del campo de desplazamiento, un **cambio de signo**, que se produce como consecuencia de la transición magnética de las fronteras de grano a una determinada temperatura. Esta temperatura  $T_F$ , inferior a la temperatura de bloqueo de los óxidos AF,  $T_B$ , se asocia con la temperatura de orden de la frontera.
  - el entrenamiento del sistema en un rango de temperaturas inferiores y próximas a  $T_F$  provoca el cambio de signo del campo de desplazamiento  $H_E$ . Este hecho también es una consecuencia de la estructura de los granos AF.
- El **modelo** propuesto para el **cambio de signo de  $H_E$**  predice una inversión del momento descompensado de una distribución de granos AF bidimensionales, para un determinado espesor de la frontera, supuesta ésta no magnética. Este resultado teórico está en buen acuerdo con los resultados experimentales.

Para concluir este trabajo, se expondrán a continuación una serie de trabajos que se pueden realizar en el futuro y que son complementarios al que aquí se ha realizado.

- En primer lugar, resultaría de gran interés realizar un estudio de observación de estructuras de dominios magnéticos en las muestras estudiadas mediante la técnica de Microscopía de Fuerza Magnética (MFM). Esta técnica, especialmente adecuada para estudio en películas delgadas, permitiría corroborar los resultados obtenidos en este trabajo acerca de los procesos de inversión de la imanación en cada uno de los casos estudiados.
- En segundo lugar, se podría diseñar un experimento para estudiar el mecanismo de rotación incoherente, postulado en este trabajo, en sistemas en los que se induzca “artificialmente” este tipo de mecanismo. Así, en estructuras como las pentacapas estudiadas en el capítulo 6, se pueden inducir, en cada una de las capas FM, ejes unidireccionales formando un cierto ángulo  $\theta$ . Esto se puede lograr gracias a las diferentes temperaturas de orden  $T_{B1}$  y  $T_{B2}$ , de los dos AFM presentes en estas estructuras. El procedimiento experimental constaría principalmente de dos etapas subsecuentes:
  - enfriamiento del sistema con campo aplicado en una determinada dirección, desde una temperatura superior a  $T_{B1}$  hasta una temperatura inferior a  $T_{B1}$  y superior a  $T_{B2}$ , siendo  $T_{B1} > T_{B2}$
  - enfriamiento con campo aplicado en una dirección que forme un ángulo  $\theta$  con la anterior, desde una temperatura superior a  $T_{B2}$  hasta la temperatura de medida, inferior a  $T_{B2}$

Los ejes unidireccionales inducidos en cada una de las capas FM y la interacción de canje entre ambas (parámetro controlable mediante el espesor de la capa intermedia de cobre) permitirían reproducir a escala macroscópica las condiciones microscópicas en las que se basa el modelo de rotaciones incoherentes. El análisis, en estas pentacapas, de las dependencias angulares del campo coercitivo, el campo de canje y las componentes longitudinal y transversal de la imanación en función del campo aplicado, permitiría profundizar en la naturaleza del mecanismo de rotación incoherente.

- Por último, sería interesante realizar un estudio de la influencia del tamaño de grano, tanto del material antiferromagnético como del ferromagnético, en la evolución térmica de la anisotropía de canje. Los fenómenos de cambio de signo de  $H_E$  observados en el capítulo 4, y relacionados con la naturaleza nanocrystalina de los granos AF hacen especialmente atractivo este estudio.