

# Formación espontánea de patrones magnéticos en películas delgadas de FeGa

Ignacio Fabre<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Física Experimental IV, Instituto Balseiro, Bariloche, Argentina*  
(Fecha: 28 de mayo de 2014)

En el presente trabajo se analiza la formación espontánea de patrones magnéticos en forma de stripes, en películas delgadas de  $\text{Fe}_{1-x}\text{Ga}_x$  para  $x = 0, 14, 20$  una deformación tetragonal menor al 0,4%. Se caracterizan las muestras a partir de las curvas de histéresis de magnetización en función del campo aplicado, y se calculan las constantes de asimetría mediante experimentos dinámicos de resonancia ferromagnética. Se define el factor de mérito  $Q = \frac{K_u}{\frac{1}{2}\mu_0 M^2}$  para comparar la asimetría fuera del plano de las muestras, observando que las muestras con mayor Ga son más asimétricas. Se comparan estos resultados con los de una muestra con mayor deformación tetragonal (del 1,3%), observando que los factores de mérito son un orden menores.

También se analiza un modelo de energía libre  $\phi^4$  capaz de reproducir el fenómeno de formación de stripes como el observado, desde la óptica del micromagnetismo. Se identifica el origen micromagnético de cada término del modelo, y se analiza el rango de validez de estos. También se observan correcciones al modelo que pueden extender el rango de validez del mismo.

## I. INTRODUCCIÓN

La formación de patrones magnéticos en materiales ha sido y sigue siendo de gran interés a lo largo de los años. Estos se originan a por la competencia entre interacciones de corto y largo alcance. Las primeras minimizan la energía alineando los momentos magnéticos (interacciones de intercambio), mientras que las segundas lo logran oponiéndolos (interacciones dipolares). Es por esto que se forman regiones del material con momentos alineados, pero cuyo momento total se opone a regiones similares vecinas, formando así patrones magnéticos en el material.

Los patrones magnéticos pueden tener diversas formas. Los hay en franjas, laberintos o burbujas, dependiendo de las propiedades del material en cuestión y el campo magnético externo en el cual se encuentra<sup>1,2</sup>. En particular, en las muestras delgadas de  $\text{Fe}_{1-x}\text{Ga}_x$  existe un espesor y porcentaje  $x$  de Ga críticos a partir de los cuales se observa la formación espontánea de patrones magnéticos tipo franja<sup>3</sup>, tal y como se observa en la figura 1.

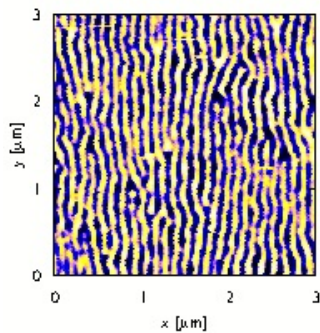


Figura 1. Medición de la magnetización fuera del plano de una muestra de  $\text{Fe}_{0,85}\text{Ga}_{0,15}$ , espesor nominal 72 nm realizada en un MFM por Mariana Barturen<sup>3</sup>.

La aleación FeGa tiene propiedades interesantes. No

solo presenta formación espontánea de patrones magnéticos, sino que también es un material magnetostrictivo, es decir que sus propiedades magnéticas y elásticas están fuertemente acopladas entre sí. Una deformación en el material dará lugar a un cambio en sus propiedades magnéticas y viceversa.

En un trabajo previo de Marisel Di Pietro<sup>4</sup> se estudiaron las anisotropías magnéticas de una muestra de  $\text{Fe}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}$  en función de la temperatura, encontrando que a campos magnéticos bajos, la componente normal al plano de la muestra de la magnetización deja de ser nula, y forma un patrón de franjas, o *stripes*, como el que se muestra en la figura 1. Asimismo la muestra utilizada en dicho trabajo era una aleación de FeGa con estructura tetragonal de cuerpo centrado, en la que la deformación tetragonal se encontraba en la dirección normal al plano. Dado que la muestra es magnetostrictiva, es de esperar que esta deformación tetragonal esté fuertemente involucrada en la anisotropía magnética que forma los stripes.

Es el objetivo de este trabajo analizar las anisotropías magnéticas en una muestra de FeGa que no presenta deformación tetragonal, para comparar con los trabajos previos<sup>4</sup> sobre muestras que sí la presentan.

También se analiza en forma teórica el origen y validez de un modelo efectivo para la energía libre que ha sido utilizado en trabajos previos<sup>4</sup> para simular numéricamente la formación de stripes.

## II. MÉTODO EXPERIMENTAL

Las muestras utilizadas, tanto en este trabajo como en los trabajos previos que se mencionen, fueron crecidas en el *Institut des Nano Sciences de Paris*<sup>5</sup> mediante la técnica de crecimiento epitaxial con haces moleculares (MBE). Se crece  $\sim 70\text{nm}$  FeGa en un sustrato de GaAs, con una interfase de  $\sim 2\text{nm}$  de ZnSe para que no formen aleación y el FeGa crezca homogéneamente<sup>6</sup>. Luego se recubre el FeGa con  $\sim 5\text{nm}$  de Au para protegerlo (ver

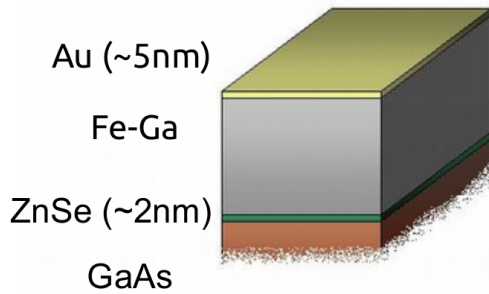


Figura 2. Corte esquemático de las muestras utilizadas.

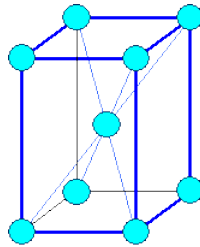


Figura 3. Estructura tetragonal de cuerpo centrado.

figura 2). Más información sobre la técnica de crecimiento puede ser encontrada en la literatura<sup>7</sup>.

En este trabajo se utilizaron tres muestras diferentes cuyas características se encuentran en la tabla I. Dado que se citan resultados de un trabajo previo de Marisel Di Pietro<sup>4</sup> como referencia, en la tabla se muestran también las características de la muestra allí utilizada. De ahora en adelante identificaremos las muestras por su porcentaje de Ga.

La estructura cristalina del hierro es una cúbica de cuerpo centrado (bcc). Sin embargo al crecer la muestra con galio y de forma epitaxial, la estructura resultante es tetragonal de cuerpo centrado (bct), con la deformación en la dirección normal al plano de la muestra. Al ser de interés para este trabajo considerar la deformación tetragonal de la red, se incluye esta en la tabla I haciendo referencia a los parámetros de red fuera del plano y en el plano (ver figura 3).

Para caracterizar las muestras se utilizaron técnicas de microscopía de fuerza magnética y magnetometría, utilizando los siguientes equipos.

**Microscopio de fuerza magnética (MFM):** El microscopio de fuerza magnética se basa en la detección de la interacción electromagnética entre una punta ferromagnética aguda y la muestra. Esta técnica se realizó en modo *lift*. Esto implica pasar dos veces por la muestra. La primera se realiza casi tocando la superficie para grabar información sobre la topografía de la muestra. Mientras que para la segunda se pasa a una distancia constante de la superficie, es decir se reproduce la topografía, y se toma información de las propiedades magnéticas<sup>8</sup>.

Muestra	Espesor (nm)	%Ga	Deformación (% $\frac{c-a}{a}$ )
32m097	73	20	0,4
32m098	92	14	0,3
32m100	55	0	0,0
Referencia			
32m023	72	20	1,3

Tabla I. Características de las muestras utilizadas, así como de la muestra de referencia<sup>4</sup>. Se muestra el espesor de la muestra, el porcentaje de Ga de la aleación FeGa, y la deformación tetragonal de la red, donde  $c$  y  $a$  son los parámetros de red fuera del plano y en el plano respectivamente.

**Magnetómetro de muestra vibrante (VSM):** El magnetómetro de muestra vibrante hace vibrar la muestra a una frecuencia y amplitud constantes. Esta vibración se produce en presencia de un campo magnético uniforme que varía cuasiestáticamente para realizar los ciclos de histéresis. Para cada valor de campo externo aplicado, mide la fuerza electromotriz que induce la muestra en una bobina detectora. Esta fuerza resulta proporcional a la magnetización de la muestra permitiendo así su medición. Un diagrama del equipo se puede observar en la figura 4. La sensibilidad con la que puede medir la magnetización es de  $10^{-5}$  emu<sup>9</sup>.

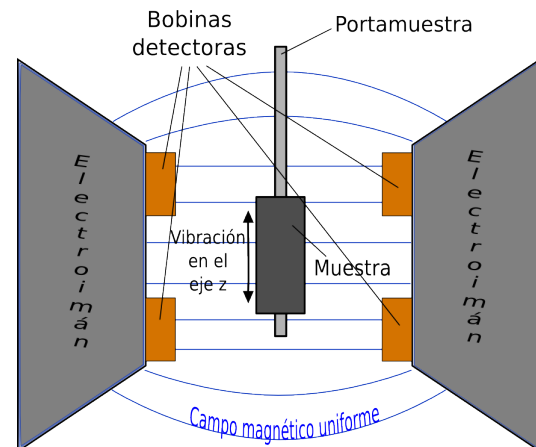


Figura 4. Esquema del magnetómetro de muestra vibrante (VSM).

Una vez caracterizada la muestra, se procedió a realizar un experimento dinámico de resonancia ferromagnética (FMR), para lo cual se utilizó un espectrómetro de resonancia electrónica cuyo esquema de funcionamiento se puede observar en la figura 6. Este consiste en colocar la muestra en una cavidad resonante y aplicar un campo magnético. Luego se bombardea la muestra con fotones de microonda, en la frecuencia de resonancia de la cavidad para maximizar su interacción con el momento magnético. Cuando el campo magnético aplicado es tal

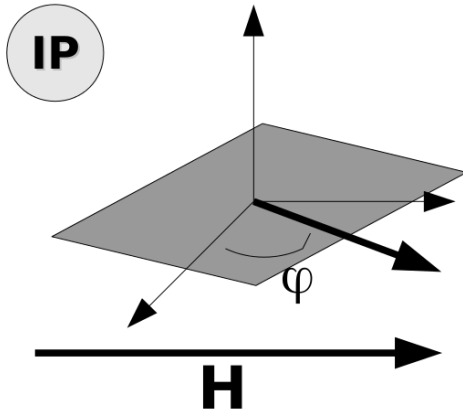


Figura 5. Configuración *in plane* utilizada para los experimentos de FMR. La dirección del campo aplicado se encuentra contenido en el plano de la muestra.

que la frecuencia de la microonda coincide con la frecuencia de Larmor de precesión del momento magnético de la muestra, hay una máxima absorción de energía de parte de esta que luego es disipada por mecanismos de relajación. La microonda saliente de la cavidad es censada por un diodo cuya corriente es proporcional esta, de modo de medir la absorción de la cavidad. A esta configuración se le agrega un par de bobinas secundarias junto a la cavidad que suman un campo magnético oscilante que se sincroniza con un lock-in para medir la derivada de la señal del diodo. De este modo, se obtienen curvas de la derivada de la absorción de la cavidad en función del campo, como la que se muestra en la figura 7. A partir de ellas, se obtiene el campo de resonancia de la muestra ( $H_r$ ) para el cual es mínima la absorción, a una dada frecuencia de precesión.

La muestra es solidaria a un goniómetro que permite variar el ángulo de la muestra respecto al campo externo aplicado. De este modo podemos observar la variación del campo de resonancia con la dirección del campo, y así analizar las anisotropías. La configuración utilizada fue con el campo en el plano de la muestra (ip: *in plane*), que se esquematiza en la figura 5.

El espectrómetro de resonancia electrónica utilizado fue un equipo Bruker ESR-300, configurado en la banda K ( $\sim 24\text{GHz}$ ).

### III. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

#### A. MFM

Se midió la magnetización fuera del plano de la muestra con 20% de Ga en el MFM. Se observó que a pesar de que la deformación tetragonal de la muestra es un orden de magnitud menor respecto a la de trabajos anteriores<sup>4</sup> (ver tabla I), esta presenta un patrón de franjas. Este

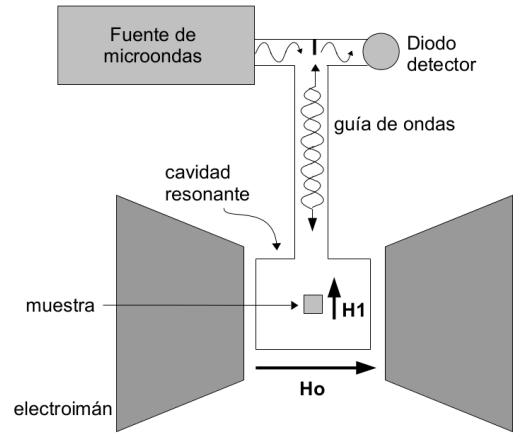


Figura 6. Esquema experimental utilizado para medir resonancia ferromagnética con un equipo Bruker.

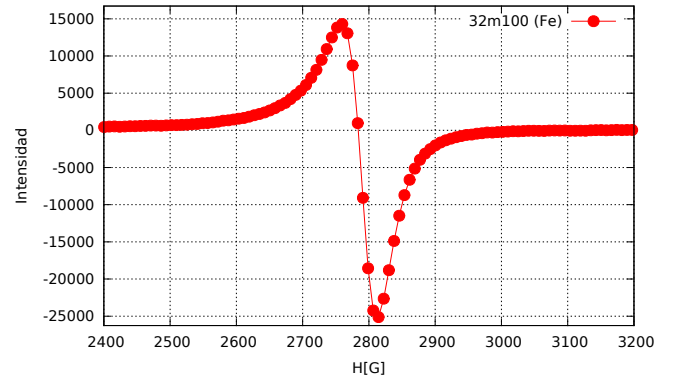


Figura 7. Derivada de la absorción de la muestra obtenida por FMR, en función del campo magnético aplicado, para una muestra de Fe.

se puede observar en la figura 8. La muestra había sido previamente llevada a saturación, y se observa que las franjas se orientan en la dirección en que había sido aplicado previamente el campo. Eso es lo que se conoce como *asimetría rotacional*<sup>10</sup>.

#### B. VSM

Se midieron las curvas de histéresis para el momento magnético en el plano de las muestras mencionadas en la tabla I empleando un magnetómetro de muestra vibrante (*VSM*). Para esto se utilizó una configuración *in plane*, como la que se muestra en la figura 5. Se realizaron 36 ciclos de mediciones variando el campo de 2000G a  $-2000\text{G}$  y vuelta; uno para cada dirección del campo entre 0 y  $360^\circ$  con un paso de  $10^\circ$ .

Se obtuvieron curvas de histéresis como la de la figura 9. En ellas se puede observar que antes de llegar al campo coercitivo, el momento magnético en el plano comienza a decrecer linealmente. Este fenómeno se debe a la apari-

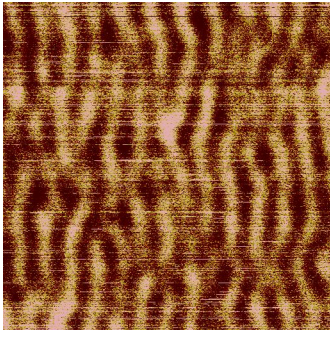


Figura 8. Medición de la magnetización fuera del plano de una muestra de  $\text{Fe}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}$  realizada en el MFM a temperatura ambiente. La dirección promedio de las franjas coincide con la dirección del campo magnético que previamente las había saturado. La imagen cubre un área en la muestra de  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ .

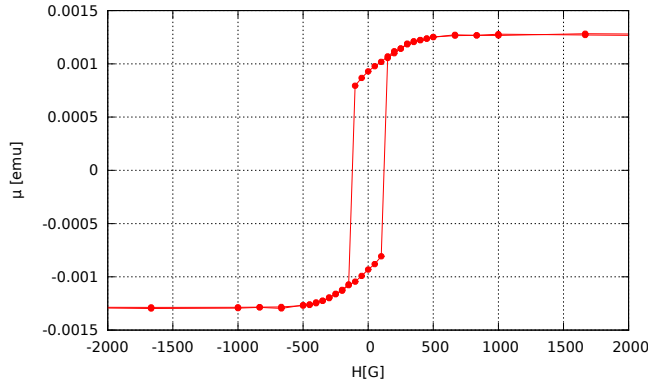


Figura 9. Curva de histéresis del momento magnético en el plano medida con un VSM para una muestra de  $\text{Fe}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}$  en la que el campo aplicado se encuentra en la dirección [110]

ción espontánea de stripes, es decir de una magnetización fuera del plano que hace que la proyección en el plano sea menor que el valor de saturación.

De estas curvas se pudo extraer el momento magnético de saturación de las muestras, a partir del cual se pudo determinar la magnetización de saturación  $M_s$  (momento magnético por unidad de volumen) de cada una de ellas. Estos valores se presentan en la tabla II.

Muestra	%Ga	Deformación (% $\frac{c-a}{a}$ )	Magnetización $M_s$ ( $10^2 \frac{\text{emu}}{\text{cm}^3}$ )
32m097	20	0,4	11,4(8)
32m098	14	0,3	13(1)
32m100	0	0,0	16(2)
Referencia			
32m023	20	1,3	14(1)

Tabla II. Magnetización de las muestras descritas en la tabla I medidas con el VSM, así como de la muestra de referencia<sup>4</sup>.

Si normalizamos por el valor de la magnetización, po-

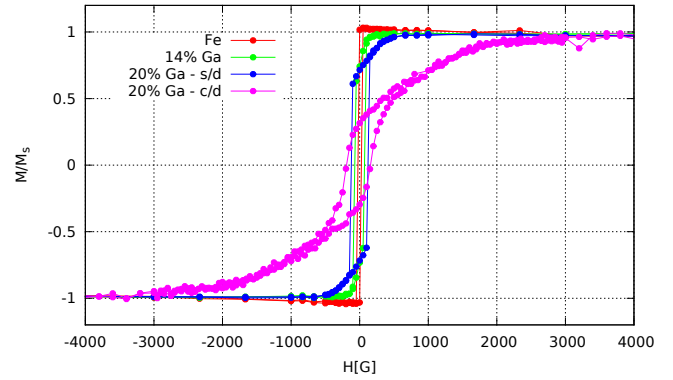


Figura 10. Curvas de histéresis de la magnetización normalizada a 1 de las distintas muestras con distintas proporciones de Ga. Se observa que el campo en el cual surgen espontáneamente los stripes aumenta al aumentar el porcentaje de Ga y la deformación de la muestra. Eso está relacionado con el aumento anisotropía normal al plano. Los símbolos "s/d" y "c/d" hacen referencia a *sin deformación* y *con deformación* respectivamente.

demos comparar los comportamientos de las muestras con distinto porcentaje de Ga. Esto se muestra en la figura 10. Se puede observar que el campo mencionado en el cual hay un cambio de pendiente, es decir en el cual aparecen los stripes, es cada vez mayor para muestras con mayor porcentaje de Ga, y mucho mayor para la muestra con deformación tetragonal. Esto, como veremos más adelante, está relacionado con que la anisotropía normal al plano es mayor para estas muestras, por lo que se necesita un campo mayor para hacer saturar la muestra. Dado que el material es magnetostrictivo, es razonable que la muestra con deformación tetragonal presente una anisotropía mucho mayor a las otras.

### C. FMR

Utilizando el resonador Bruker, se obtuvieron gráficas de la derivada de la absorción de la muestra en función del campo aplicado, tal y como se muestra en la figura 7. Si se hace un análisis de pequeñas oscilaciones a las ecuaciones de movimiento para un momento magnético en presencia de un campo (que se presentarán en la sección IV), la solución para la amplitud de oscilación en la resonancia es una Lorentziana, por lo que la absorción de energía lo será también. Ajustando entonces los parámetros de una lorentziana con las gráficas obtenidas, pudimos determinar la posición de los campos de resonancia  $H_r$ .

En las muestras, se observó la presencia de más de un campo de resonancia. Esto se debe a la inhomogeneidad de la muestra, que hace que tenga regiones con una frecuencia de resonancia definida, mientras que otras tienen otra. Al medir en el resonador, lo que vemos es la suma de todas estas contribuciones. Por esto, en general se ajus-

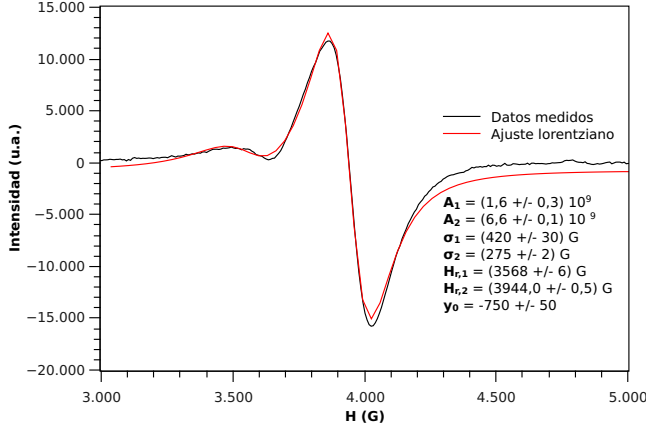


Figura 11. Derivada de la absorción de la cavidad en función del campo para una muestra de  $\text{Fe}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}$ . El campo aplicado está a  $10^\circ$  de la dirección cristalina  $[1\bar{1}0]$ . Se utilizó una función suma de derivadas de lorentzianas (ec. 1) para ajustarla.

taron funciones que son sumas de más de una lorentziana por cada gráfica, como se puede observar en la figura 11. También, este mismo fenómeno de inhomogeneidad hace que aún en las zonas con una frecuencia de resonancia definida, la dispersión de las frecuencias de resonancia en torno a esta altera ligeramente la forma de la curva de modo que no son exactamente lorentzianas. No obstante, la forma lorentziana sigue siendo buena para ajustar la zona central de la curva, que es la que nos determina el campo de resonancia, por lo que se utilizaron funciones de la forma

$$f(H) = y_0 + \sum_i^{\#\text{picos}} A_i \frac{\sigma_i(H - H_{r,i})}{(4(H - H_{r,i})^2 + \sigma_i^2)^2} \quad (1)$$

para ajustar las curvas.

Es importante ver que uno de los picos (el del campo de resonancia más alto) tiene una contribución mucho mayor a la señal. Esto indica que la porción de la muestra involucrada en esta resonancia es mayor, y por lo tanto este pico puede ser tomado como la resonancia principal de la muestra. Esto será importante a la hora de analizar estas gráficas en la subsección siguiente.

Se realizó esto para las tres muestras, y de este modo se obtuvo el campo de resonancia  $H_r$  en función de la orientación del campo para las tres muestras. Esto se presenta en la figura 12. Es importante notar las variaciones de  $H_r$ : para las direcciones  $[100]$ ,  $[010]$ ,  $[\bar{1}00]$  y  $[0\bar{1}0]$  el campo de resonancia es mínimo por lo que se le llaman *ejes fáciles* y corresponde a una simetría de orden 4; mientras que para las direcciones  $[110]$ ,  $[1\bar{1}0]$ ,  $[\bar{1}\bar{1}0]$  y  $[\bar{1}10]$  el campo de resonancia es máximo por lo que se les llaman *ejes difíciles*. Sin embargo, salvo para el caso del Fe en que estos corresponden a una simetría de orden 4, podemos distinguir dos categorías de *ejes difíciles*: el campo de resonancia para ejes  $[110]$  y  $[\bar{1}\bar{1}0]$  es mayor que

aquél para los ejes  $[1\bar{1}0]$  y  $[\bar{1}10]$ . Esto indica que al añadir Ga la simetría de orden 4 presente en el Fe se rompe en dos simetrías de orden 2.

Estas variaciones del  $H_r$  respecto a la dirección del campo aplicado es a lo que se le llama anisotropías y para analizarlas con más detalle será necesario introducir un modelo de la energía libre de la muestra.

### 1. Modelo efectivo para la energía libre

Cuando uno realiza un desarrollo de pequeñas oscilaciones para los momentos magnéticos, encuentra que la frecuencia de resonancia ( $\omega_r$ ) de estos cumple la relación

$$\omega_r^2 = \frac{\Gamma^2}{M^2 \sin^2(\theta)} \left[ \frac{\partial^2 F}{\partial \theta^2} \frac{\partial^2 F}{\partial \phi^2} - \left( \frac{\partial^2 F}{\partial \theta \partial \phi} \right)^2 \right], \quad (2)$$

que fué propuesta por J. Smit y H. G. Beljers en 1955 en su trabajo relacionado con absorción por resonancia ferromagnética<sup>11</sup>, y donde  $\Gamma = g\mu_B/\hbar$  es el factor giro-magnético,  $F$  es la energía libre, y  $\theta$  y  $\phi$  los ángulos que forma el campo aplicado con el momento magnético.

Nos vemos entonces en necesidad de un modelo fenomenológico para la energía libre, para la cual se propone

$$F = -\vec{H} \cdot \vec{M} + \frac{\mu_0}{2} M^2 \cos^2(\theta) - \frac{1}{4} K_1 \sin^4(\theta) \cos^2(2\phi) - K_n \cos^2(\theta) + K_u \sin^2(\theta) \cos^2(\phi - \gamma), \quad (3)$$

donde  $K_1$ ,  $K_n$  y  $K_u$  son las constantes de anisotropía<sup>2,12</sup>, y  $\theta$  y  $\phi$  son las coordenadas esféricas del momento magnético, siendo  $\theta = \frac{P_i}{2}$  el plano de la muestra.

El primer sumando de la ecuación 3 corresponde al acoplamiento Zeeman del momento magnético con el campo externo. El segundo es lo que se conoce como el *factor desmagnetizante* para una película delgada<sup>13</sup>, que hace que el momento  $\vec{M}$  se mantenga en el plano de la muestra para disminuir su energía (al mantener más 'líneas de campo' dentro del material).

El tercer sumando ( $K_1$ ) tiene su origen en la componente en el plano del campo efectivo magneto-cristalino que ve cada momento, para un cristal con simetría tetragonal<sup>7</sup>. Se observa en su forma explícita que es una simetría de orden 4 en  $\phi$ , que se corresponde con que en el plano la simetría tetragonal se reduce a la del cuadrado.

El cuarto sumando ( $K_n$ ) está relacionado a la anisotropía normal al plano. Tiene su origen en la componente normal tanto del campo magneto-cristalino, así como de la interacción que sucede en la interfase de FeGa con los enlaces libres de ZnSe<sup>14</sup>. Es una simetría de orden 2 en  $\theta$ , y favorece que el momento  $\vec{M}$  salga del plano (si  $K_n < 0$ ). Este sumando es de particular interés pues compite con el segundo, dando resultado a la formación de stripes.

El quinto y último sumando ( $K_u$ ) es la componente en el plano del fenómeno de interfase entre FeGa y los enlaces libres de ZnSe. Vemos que es una simetría de orden 2 en  $\phi$ , de modo que es el causante de que se los  $H_r$  máximos se agrupen en dos categorías.

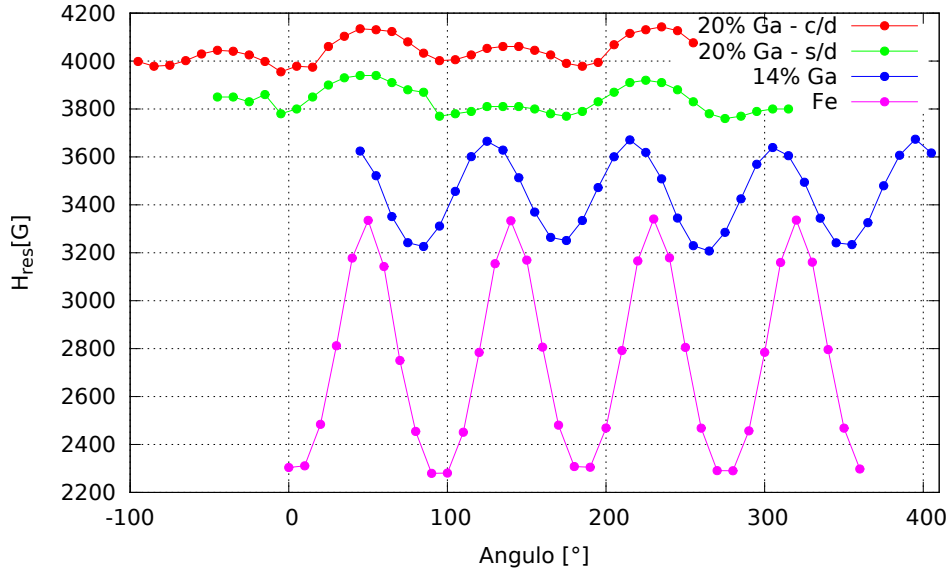


Figura 12. Campos de resonancia de las muestras en función del ángulo que forma el campo con la dirección cristalina [100]. También se muestra la misma curva medida para la muestra de referencia en un trabajo previo<sup>4</sup>. Las expresiones "c/d" y "s/d" hacen referencia a *con* y *sin deformación* respectivamente.

## 2. Ajuste

A partir de las ecuaciones 2 y 3, y conociendo las constantes de anisotropía, podemos reconstruir las curvas de  $H_r$  vs  $\phi$  mostradas en la figura 12 utilizando un método iterativo. Dada una dirección fija de campo externo, a partir de la energía libre  $F(\vec{H}, \theta, \phi)$  obtenemos los ángulos de equilibrio  $\theta_e^{(0)}$  y  $\phi_e^{(0)}$  del momento magnético, para

un campo  $H_r^{(0)}$  dado como semilla. Luego, en la ecuación de Smit-Belgers fijamos  $\omega_r$  en la frecuencia utilizada para medir las curvas en el FMR y los ángulos  $\theta = \theta_r^{(0)}$  y  $\phi = \phi_r^{(0)}$ , y resolvemos el campo  $H_r^{(1)}$ . Luego volvemos al primer paso y calculamos los nuevos ángulos de equilibrio. El esquema de iteración entonces es el que sigue:

Semilla:  $\rightarrow H_r^{(0)}$

i-ésimo paso:

$$\begin{aligned} \partial F(H_r, \theta, \phi)|_{H_r^{(i)}} = 0 &\rightarrow (\theta_e^{(i)}, \phi_e^{(i)}) \\ \Rightarrow \omega_r^2 = \frac{\Gamma^2}{M^2 \sin^2(\theta)} \left[ \frac{\partial^2 F(H)}{\partial \theta^2} \frac{\partial^2 F}{\partial \phi^2} - \left( \frac{\partial^2 F(H)}{\partial \theta \partial \phi} \right)^2 \right] \Bigg|_{(\theta_e^{(i)}, \phi_e^{(i)})} &\rightarrow H_r^{(i+1)}. \end{aligned}$$

Si la semilla  $H_r^{(0)}$  es buena, el proceso iterativo convergerá al campo de resonancia  $H_r$  que es solución de ambas ecuaciones, y de este modo encontramos el valor del campo de resonancia para una dada dirección del campo aplicado. Si se realiza este proceso para varias direcciones, construimos una curva como las de las figuras 12.

Utilizando este método, se ajustaron las constantes de anisotropía para que minimice el  $\chi^2$  entre la curva medida y la calculada, obteniendo entonces para cada una de las

muestras los parámetros que se observan en la tabla III.

En la tabla III se muestra factor de mérito  $Q$ , que se define como

$$Q = \frac{K_n}{\frac{1}{2}\mu_0 M^2} \quad (4)$$

que involucra las constantes de los dos términos de energía que compiten en la dirección fuera del plano. En el numerador tenemos la constante de anisotropía  $K_n$  que favorece a que los momentos salgan del plano, mientras

Muestra	$K_u$ ( $10^2 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$ )	$K_1$ ( $10^2 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$ )	$K_n$ ( $10^3 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$ )	$M$ ( $10^2 \frac{\text{emu}}{\text{cm}^3}$ )	$Q$ ( $10^{-2}$ )
Fe	0(5)	480(5)	0(3)	16(2)	0, 0(2)
14% Ga	0(5)	160(5)	20(5)	13(1)	1, 9(6)
20% Ga	45(5)	30(5)	20(5)	11, 4(8)	2, 4(7)
Referencia					
20% Ga	35(5)	50(5)	343(3)	14(1)	27(4)

Tabla III. Valores de las constantes de anisotropía, la magnetización y el factor de mérito definido en la ecuación 4, para las muestras medidas y la de referencia<sup>4</sup>.

que en el denominador tenemos el factor desmagnetizante que favorece que los momentos se alineen con el plano de la muestra. Un  $Q > 0$  implica que  $K_n > 0$  y por lo tanto que la magnetización sale del plano.

Lo que observamos es que el factor de mérito  $Q$  aumenta con el porcentaje de Ga, indicando que la anisotropía es mayor. También al comparar la muestra con 20% de Ga con la de referencia, notamos que aunque la composición es la misma, la muestra con deformación tetragonal tiene un factor  $Q$  un orden de magnitud más grande que el de aquella sin deformación tetragonal. Esta diferencia es de esperar, ya que el material es magnetostrictivo por lo que la ruptura de asimetría geométrica que induce la deformación tetragonal se traduce en una anisotropía magnética. Sin embargo también es notable que aún con una configuración casi cúbica, la muestras siguen presentando un  $Q > 0$  que da origen a la formación de patrones magnéticos, y más aún que este varía con la proporción de Ga. Esto podría sugerir que el origen de la anisotropía no sea solamente debido a la deformación geométrica del cristal, sino también en la distribución del Ga en el cristal. Sin embargo, para poder corroborar esta hipótesis, sería necesario medir por alguna otra técnica la distribución de las impurezas de Ga en el cristal de Fe cuando las muestras se crecen con esta técnica (MBE), y esto representa un desafío a nivel experimental.

#### IV. ANÁLISIS DE UN MODELO $\phi^4$ PARA LA ENERGÍA LIBRE BAJO LA ÓPTICA DEL MICROMAGNETISMO

##### A. Modelo $\phi^4$

En un trabajo previo<sup>4</sup>, se realizaron simulaciones numéricas que reproducen el patrón magnético de stripes para estudiar el comportamiento en diferentes escenarios. Para hacer esto, consideraron un modelo  $\phi^4$  para la magnetización fuera del plano, en el cual el parámetro  $\phi$  es proporcional a esta y su dinámica está determinada por la ecuación

$$\frac{\partial \phi}{\partial t}(\vec{r}) = -\lambda \frac{\delta F(\phi(\vec{r}))}{\delta \phi(\vec{r})}, \quad (5)$$

donde  $\lambda$  es una constante, y  $\frac{\delta F(\phi(\vec{r}))}{\delta \phi(\vec{r})}$  es la derivada funcional de la energía libre  $F(\phi(\vec{r}))$ , que en el modelo  $\phi^4$  es

de la forma

$$F = F_{\phi^4} + F_{rig} + F_{dip} + F_{xy} + F_{sat}.$$

El primer término es

$$F_{\phi^4} = \int d\vec{r} \alpha \left( -\frac{\phi^2(\vec{r})}{2} + \frac{\phi^4(\vec{r})}{4} \right) - h_0 \int d\vec{r} \phi(\vec{r}),$$

que es la suma de un doble pozo con mínimos en  $\phi = \pm 1$  y un campo externo  $h_0$  normal al plano.

El segundo término es el término de *rigidez* o *intercambio* y es de la forma

$$F_{rig} = \frac{\beta}{2} \int d\vec{r} (\vec{\nabla} \phi(\vec{r}))^2.$$

Este está relacionado a la interacción entre momentos vecinos que favorece que se alineen de forma ferromagnética.

El tercer término es el que tiene en cuenta la interacción dipolar, que es de largo alcance y favorece la orientación antiparalela o ferromagnética de los momentos, siendo la causa principal de la formación de dominios con momentos totales opuestos. Este se escribe de la forma

$$F_{dip} = \gamma \int d\vec{r} \phi(\vec{r}) \int d\vec{r}' \frac{\phi(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3}.$$

El cuarto término es de la forma

$$F_{xy} = \int d\vec{r} \left( \vec{H}_{xy} \cdot \vec{\nabla} \phi(\vec{r}) \right)^2$$

y representa de forma efectiva el acoplamiento entre el campo y los momentos, favoreciendo que el gradiente de  $\phi$  sea transversal al campo en el plano, y de este modo que los stripes se alineen con el campo en el plano. Este término se agrega para reproducir la *asimetría rotacional*<sup>10</sup>.

El quinto término fue colocado para reproducir la saturación que ocurre a campos grandes en el plano. Este es de la forma

$$F_{sat} = \sigma \int d\vec{r} \left| \vec{H}_{xy} \right| \frac{\phi(\vec{r})^2}{2}$$

y vemos que se encarga de modificar la forma del pozo de acuerdo a  $|\vec{H}_{xy}|$ , para que a campos grandes en el plano el único mínimo sea  $\phi = 0$ , es decir que el momento magnético yace completamente en el plano.

Este modelo reproduce la formación de patrones magnéticos de stripes<sup>4</sup>, tal y como los que se presentaron en la sección III. En particular, en nuestras muestras hemos trabajado con campos en el plano por lo que será ese el caso que analizaremos. Cuando el campo externo aplicado está en la dirección  $\hat{x}$  por ejemplo ( $\vec{H}_{x,y} = H\hat{x}$  y  $h_0 = 0$ ), la ecuación 5 queda de la forma:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \lambda \left( \alpha \phi (1 - \phi^2) - \sigma |H| \phi + \beta \nabla^2 \phi + 2 H^2 \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} - \gamma \int d\vec{r}' \frac{\phi(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} \right) \quad (6)$$

## B. Micromagnetismo

Las ecuación de Landau-Lifshitz<sup>2</sup> que describe la dinámica de un momento magnético  $\vec{M}$  en presencia de un campo externo efectivo  $\vec{H}_{\text{eff}}$  es

$$\dot{\vec{M}} = -\gamma_0 \vec{M} \times \vec{H}_{\text{eff}} + \alpha \vec{M} \times \dot{\vec{M}}, \quad (7)$$

donde  $\gamma$  es el factor giromagnético que hace precesar al momento en torno al campo, y  $\alpha$  es la constante de *damping* que tiene en cuenta la disipación local que hace que el momento termine por alinearse con el campo.

La ecuación 7 se puede escribir también de la forma

$$\dot{\vec{m}} = -\gamma \vec{m} \times \vec{H}_{\text{eff}} - \lambda \vec{m} \times (\vec{m} \times \vec{H}_{\text{eff}}) \quad (8)$$

que se conoce como ecuación de Gilbert<sup>2</sup>, donde si  $M_s$  es la magnetización de saturación,  $\vec{m} = \vec{M}/M_s$  es la magnetización normalizada,  $\gamma = \gamma_0/(1 + \alpha^2)$  y  $\lambda = \alpha\gamma/M_s$ . Si expandimos esta ecuación en sus componentes, tenemos el sistema de ecuaciones

$$\begin{aligned} m_x^2 + m_y^2 + m_z^2 &= 1 \\ \dot{m}_x &= \lambda(1 - m_x^2)H_{\text{eff},x} \\ &\quad + (\gamma m_z - \lambda m_x m_y) H_{\text{eff},y} \\ &\quad + (-\gamma m_y - \lambda m_z m_x) H_{\text{eff},z} \\ \dot{m}_y &= (-\gamma m_z - \lambda m_x m_y) H_{\text{eff},x} \\ &\quad + \lambda(1 - m_y^2)H_{\text{eff},y} \\ &\quad + (\gamma m_x - \lambda m_z m_y) H_{\text{eff},z} \\ \dot{m}_z &= (\gamma m_y - \lambda m_x m_z) H_{\text{eff},x} \\ &\quad + (-\gamma m_x - \lambda m_y m_z) H_{\text{eff},y} \\ &\quad + \lambda(1 - m_z^2)H_{\text{eff},z} \end{aligned} \quad (9)$$

donde añadimos la condición de  $|\vec{m}| = 1$ .

El campo efectivo que ve cada momento, está determinado por la derivada funcional de la energía  $E$  respecto a  $\vec{m}$  en ese punto, es decir

$$\vec{H}_{\text{eff}} = -\frac{1}{\mu_0 M_s} \frac{\delta E}{\delta \vec{m}}, \quad (10)$$

y

$$\begin{aligned} E = \int d\vec{r} \left( -K_u m_z^2 - \mu_0 M_s \vec{m} \cdot \vec{H} \right. \\ \left. + \frac{1}{2} \mu_0 M_s \vec{m} \cdot \vec{H}_{\text{dip}} + A |\vec{\nabla} \vec{m}|^2 \right) \end{aligned} \quad (11)$$

es la energía. En esta el primer término corresponde a la anisotropía magnética (siendo  $K_u$  la constante de anisotropía), el segundo es el acoplamiento Zeeman con un campo externo, el tercero es el término que corresponde a la interacción dipolar, donde  $H_{\text{dip}}$  es el campo efectivo generado por la interacción dipolar, y el último término es el de intercambio, o rigidez, que proviene de la interacción entre momentos vecinos. La expresión para el campo dipolar es

$$\begin{aligned} H_{\text{dip}} = \frac{M_s}{4\pi} \int d\vec{r}' \left( \frac{3\vec{m}(\vec{r}') \cdot (\vec{r} - \vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^5} (\vec{r} - \vec{r}') \right. \\ \left. - \frac{\vec{m}(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} \right). \end{aligned} \quad (12)$$

Luego, para un campo externo  $\vec{H} = H\hat{x}$ , el campo efectivo que ve cada momento tendrá componentes

$$H_{\text{eff},x} = H - \frac{1}{2} H_{d,x} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_x \quad (13)$$

$$H_{\text{eff},y} = -\frac{1}{2} H_{d,y} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_y \quad (14)$$

$$H_{\text{eff},z} = -\frac{1}{2} H_{d,z} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_z + \frac{2K_u}{\mu_0 M_s} m_z. \quad (15)$$

Luego, reemplazando la ecuación 15 en 9, y usando , obtenemos



$$\begin{aligned} \frac{\partial m_z}{\partial t} = & \frac{\gamma_0 \alpha}{(1 + \alpha^2) M_s} \left[ \left( \frac{M_s}{\alpha} m_y - m_x m_z \right) \left( H - \frac{1}{2} H_{d,x} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_x \right) \right. \\ & - \left( \frac{M_s}{\alpha} m_x + m_y m_z \right) \left( -\frac{1}{2} H_{d,y} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_y \right) \\ & \left. + (1 - m_z^2) \left( -\frac{1}{2} H_{d,z} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_z + \frac{2K_u}{\mu_0 M_s} m_z \right) \right]. \end{aligned} \quad (16)$$

### C. Correspondencia

Ahora podemos analizar el origen de los términos del modelo efectivo  $\phi^4$  en la ecuación 6, con los términos de la ecuación 16 que provienen de un modelo realista basado en el micromagnetismo.

#### 1. Doble Pozo y saturación

Primero que nada podemos observar que el doble pozo que se propone en el modelo  $\phi^4$  aparece naturalmente en la dinámica de los momentos, que aparece en el término correspondiente al  $H_{\text{eff},z}$ :

$$\phi \alpha (1 - \phi^2) \longleftrightarrow m_z \frac{2K_u}{\mu_0 M_s} (1 - m_z^2).$$

No solo aparece el doble pozo de forma natural, sino que la corrección dada por el  $F_{\text{sat}}$  colocada ad hoc para que el reproducir una saturación, aparece también de forma natural en el término relacionado al  $H_{\text{eff},x}$ :

$$-\sigma |H| \phi \longleftrightarrow -m_x H m_z.$$

Más aún, no hace falta tomar el módulo del campo ya que por acople Zeeman de  $\vec{m}$  con el campo,  $m_x$  y  $H$  tienen el mismo signo, y  $m_x H = |m_x| |H|$ . Sin embargo, hay una diferencia importante entre estos términos, y es que  $m_x = m_x(H)$  depende del campo, mientras que  $\sigma$  es una constante. Esto indica que en situaciones en las que  $m_x$  varíe mucho, la saturación no será necesariamente bien reproducida por el modelo  $\phi^4$ .

#### 2. Intercambio/Rigidez

Podemos observar también que el término de intercambio aparece de forma natural:

$$\lambda \beta \phi \longleftrightarrow (1 - m_z^2) \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_z.$$

Sin embargo aquí también notamos una diferencia que es importante, y es en el factor  $(1 - m_z^2)$ . Este factor es quien asegura que la contribución a la derivada de  $m_z$  se anule cuando  $m_z = \pm 1$ , que es de suma importancia ya que  $\vec{m}$  es por definición un vector normalizado. Esto

pone también restricciones a la validez del modelo  $\phi^4$ , ya que en situaciones en las que la componente del momento fuera del plano  $m_z$  sea grande, no se asegura la conservación de la magnetización. El modelo  $\phi^4$  solo puede ser aplicado entonces para situaciones en las que el momento magnético está en su mayor parte en el plano.

#### 3. Dipolar

Para mirar el término dipolar, es conveniente desarrollar la componente  $H_{\text{dip},z}$  de la ecuación 12. Para esto primero notemos que el primer término de la integral no tiene componente fuera del plano. Esto se debe a que, como  $M(\vec{r}')$  se anula fuera del plano y  $\vec{r}$  es un vector que apunta a un sitio de la muestra, entonces tanto  $\vec{r}'$  como  $\vec{r}$  están en el plano, y en particular  $(\vec{r} - \vec{r}')$  no tiene componente fuera del plano. Luego, tenemos que

$$H_{\text{dip},z} = -\frac{M_s}{4\pi} \int d\vec{r}' \frac{m_z(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3}$$

. Es fácil reconocer una expresión de esta forma en el modelo  $\phi^4$ , y establecer la correspondencia

$$-\gamma \int d\vec{r}' \frac{\phi(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} \longleftrightarrow (1 - m_z^2) \frac{M_s}{8\pi} \int d\vec{r}' \frac{m_z(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3}.$$

Nuevamente observamos la misma falencia que el término de intercambio. El factor  $(1 - m_z^2)$  que asegura la conservación del módulo del momento magnético hace que el modelo  $\phi^4$  solo pueda utilizarse en situaciones en las que la mayor componente de  $\vec{m}$  se encuentre en el plano.

#### 4. Asimetría rotacional

La asimetría rotacional es el término energético que favorece que los stripes se alineen en la dirección del campo, en concordancia con los experimentos. Sin embargo, en la literatura no se menciona el origen micromagnético de esta asimetría. Siendo que es el único término del modelo  $\phi^4$  al que no hemos asignado correspondencia, y que el término reproduce el fenómeno de asimetría

rotacional tal y como se observa en experimentos, deducimos que este término debe provenir de algunos de los otros que aparecen en la ecuación 16 y que aún no hemos mencionado. Esto nos deja con algunos de los términos correspondientes a  $H_{\text{eff},xy}$ .

Dado que para un campo aplicado en la dirección  $\hat{x}$ , la componente  $m_y$  del momento se espera que sea muy pequeña. Sin embargo, aunque fuera nula la asimetría rotacional debería seguir apareciendo como un término en la dinámica de  $m_z$ . Es por esto que descartamos los términos que contienen un factor  $m_y$  multiplicando. Eso nos deja con los términos

$$m_x \left[ m_z \left( \frac{H_{d,x}}{2} - \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_x \right) + \frac{M_s}{\alpha} \left( \frac{H_{d,y}}{2} - \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 m_y \right) \right].$$

Sin embargo, los términos que tienen el laplaciano, provienen de las interacciones de intercambio entre momentos, son locales y lo que hacen es favorecer al alineamiento ferromagnético de los momentos. Es por esto que podemos descartarlas ya que la interacción que buscamos es de mayor alcance (al menos mayor que las interacciones de intercambio que se mantienen en los vecinos inmediatos, dentro del mismo dominio), de modo que pueda penalizar energéticamente situaciones de stripes paralelos la campo (que es una situación menos local).

$$\frac{m_x}{2} \left( m_z H_{d,x} + \frac{M_s}{\alpha} H_{d,y} \right).$$

Entonces, el origen de la asimetría rotacional se reduce a la interacción dipolar, que si miramos en la ecuación 12 las componentes en el plano integra sobre todos los momentos a lo largo de esa dirección en la muestra (esto se ve ya que haciendo cambio de variable en el primer término de la ecuación 12, el integrando queda proporcional a  $(\vec{m}(\vec{r} - \vec{r}') \cdot \vec{r}')\vec{r}'$ ).

Si en particular miramos el término independiente de  $m_z$ , tiene una dependencia cuadrática en el momento magnético (una en  $m_x$  y otra dentro de la integral), y si recordamos que el momento magnético depende del campo a causa del acople Zeeman, vemos que a primer orden la dependencia en el campo es cuadrática, al igual que el término propuesto en el modelo  $\phi^4$ :

$$\frac{M_s}{2\alpha} m_x(H) H_{d,y}(H) \sim H^2 + \mathcal{O}(H^3).$$

Y como el otro término es cúbico en los momentos, es de orden mayor. De este modo podemos suponer una correspondencia entre el término de anisotropía rotacional y el acoplamiento dipolar en el plano:

$$2H^2 \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} \longleftrightarrow \frac{m_x(H)}{2} \left( \frac{M_s}{\alpha} H_{d,y}(H) + m_z(H) H_{d,x}(H) \right) \sim H^2 + \mathcal{O}(H^3).$$

## V. CONCLUSIONES

Se observó la formación de patrones magnéticos en películas delgadas de FeGa que presentaban una deforma-

ción tetragonal un orden menor a la de trabajos previos de Di Pietro<sup>4</sup>. Se caracterizaron las muestras utilizando un magnetómetro de muestra vibrante, y se observó en las curvas de histéresis el régimen lineal que toma lugar entre el campo de saturación y el coercitivo. Se observó que este régimen se prolonga más a medida que el porcentaje de Galio en la muestra es mayor, y esta es más anisotrópica.

Mediante experimentos dinámicos de resonancia ferromagnética se lograron medir las constantes de anisotropía para las distintas muestras, observándose que las muestras con mayor Ga eran más anisotrópicas en la dirección fuera del plano. A partir de estas se calculó el factor de Mérito  $Q = \frac{K_n}{\frac{1}{2}\mu_0 M^2}$  para cada muestra, que mide la competencia entre los términos energéticos que determinan el comportamiento de la componente normal al plano de magnetización. Se vió que el factor era no nulo para las muestras con Ga, y que crecía con la proporción de Ga. Se corroboró que el factor de mérito era un orden menor que en la muestra de Di Pietro<sup>4</sup> con mayor deformación tetragonal.

Por otro lado, se analizó el modelo efectivo  $\phi^4$  para la energía libre utilizado por Di Pietro<sup>4</sup> para reproducir en una simulación numérica el fenómeno de formación espontánea de stripes, comparandolo con la resolución del problema a partir de las ecuaciones del micromagnetismo. Se realizó este análisis cuando el campo externo aplicado se encuentra en el plano de la muestra. Las conclusiones a las que se llegó fueron:

- El doble pozo que se propone en el modelo  $\phi^4$  aparece naturalmente en las ecuaciones del micromagnetismo.
- El término efectivo colocado para producir la saturación de la muestra a campos grandes también aparece naturalmente en las ecuaciones del micromagnetismo, respetando el signo utilizado en  $\phi^4$ . La diferencia se encuentra en que este depende de la magnetización en el eje del campo, mientras que en el modelo  $\phi^4$  es independiente. Por esto, el modelo solo es válido cuando la magnetización en la dirección del campo aplicado no varía significativamente.
- Los términos de intercambio y de interacción dipolar propuestos en el modelo  $\phi^4$  se corresponden con la aproximación a primer orden en la magnetización fuera del plano de las ecuaciones del micromagnetismo. Esta aproximación a primer orden causa que en el modelo  $\phi^4$  no se conserve el módulo de la magnetización cuando la componente fuera del plano se hace grande. Por esto, el modelo solo es válido cuando la magnetización fuera del plano es mucho menor a la magnetización en el plano.
- El término efectivo que produce la asimetría rotacional, es decir el fenómeno observado que alinea los stripes con el campo externo, se pudo identificar que tiene origen en las interacciones dipolares

entre momentos. También, se corroboró que si se desarrolla la dependencia del momento con el campo externo a primer orden, estos términos dipolares son de orden cuadrático en el campo tal y como se propone en el modelo  $\phi^4$ .

De este modo se avanzó en conocer la validez de los resultados numéricos que se pueden obtener utilizando el modelo  $\phi^4$ , y se identifican correcciones al modelo que pueden extender su rango de validez.

## AGRADECIMIENTOS

Quiero agradecer especialmente a los Doctores Julián Milano y Sebastián Bustingorry por el tiempo y trabajo que dedicaron en enseñarme los principios de la física presente en el trabajo. También agradecer a las Licenciadas Mariana Barturen y Marisel Di Pietro por sus aportes y ayuda en la adquisición de datos.

- 
- <sup>1</sup> E. A. Jagla, *Numerical simulations of two-dimensional magnetic domain patterns*, Physical Review E 70, 046204 (2004)
- <sup>2</sup> A. Hubert, R. Schäfer, *Magnetic Domains*, Editorial Springer, Germany (2000)
- <sup>3</sup> M. Barturen et al, *Crossover to striped magnetic domains in  $Fe_{1-x}Ga_x$  magnetostrictive thin films*, Applied Physics Letters 101, 092404 (2012)
- <sup>4</sup> Marisel Di Pietro, trabajo para la materia Física Experimental IV titulado *Variación de las anisotropías magnéticas con temperatura en películas delgadas de  $Fe_{0,8}Ga_{0,2}$  y su relación con la estructura de dominios magnéticos*, Instituto Balseiro, 2013.
- <sup>5</sup> *Institut des Nano Sciences de Paris*, Paris, Francia - [www.insp.upmc.fr](http://www.insp.upmc.fr)
- <sup>6</sup> M. Marangolo, F. Gustavsson, M. Eddrief, Ph. Sainctavit, V. H. Etgens, V. Cros, F. Petroff, J. M. George, P. Bencok y N. B. Brookes, *Magnetism of the Fe/ZnSe(001) Interface*, Phys. Rev. Lett. 88, 217202 (2002).
- <sup>7</sup> M. Eddrief, Y. Zheng, S. Hidki, B. Rache Salles, J. Milano, V. H. Etgens y M. Marangolo, *Metaestable tetragonal structure of  $Fe_{100-x}Ga_x$  epitaxial thin films on ZnSe/GaAs(001) substrate*, Physical Review B 84, 161410 (2011).
- <sup>8</sup> A. Butera, Charla titulada *Técnicas de barrido de punta aplicadas al magnetismo*, X-LAW3M School, Argentina (2013)
- <sup>9</sup> D. Tobia, Tesis doctoral titulada *Efectos de superficie e interacción de intercambio en nanopartículas magnéticas*, Instituto Balseiro, Argentina (2011)
- <sup>10</sup> E. Sallica Leva, R. C. Valente, F. Martínez Tabares, M. Vásquez Mansilla, S. Roshdestwensky y A. Butera, *Magnetic domain crossover in FePt thin films*, Phys. Rev. B 82, 144410 (2010)
- <sup>11</sup> J. Smit y H. G. Beljers, *Ferromagnetic resonance absorption in  $BaFe_{12}O_{19}$  a highly anisotropic crystal*, Philips Res. Rep. 10, 113-130 (1955)
- <sup>12</sup> Trabajo actual de doctorado de Mariana Barturen, comunicación interna.
- <sup>13</sup> B. D. Cullity y C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*, Segunda Edición, Ed. Wiley, USA (2009)
- <sup>14</sup> Elisabeth Sjostedt, Lars Nordstrom, Fredrik Gustavsson y Olle Eriksson, *Uniaxial Magnetocrystalline Anisotropy of Metal/Semiconductor Interfaces: Fe/ZnSe(001)*, Phys. Rev. Lett. 89, 267203 (2002)