

FACULTAD DE CIENCIA  
DEPARTAMENTO DE FÍSICA  
UNIVERSIDAD DE SANTIAGO DE CHILE



**PROPIEDADES MAGNÉTICAS Y EFECTO  
HALL EXTRAORDINARIO EN PELÍCULAS  
DELGADAS NANOESTRUCTURADAS**

SEBASTIÁN ALFONSO MICHEA MORA

27 de septiembre de 2012



UNIVERSIDAD DE SANTIAGO DE CHILE

FACULTAD DE CIENCIA

DEPARTAMENTO DE FÍSICA

“PROPIEDADES MAGNÉTICAS Y EFECTO HALL  
EXTRAORDINARIO EN PELÍCULAS DELGADAS  
NANOESTRUCTURADAS”

SEBASTIÁN ALFONSO MICHEA MORA

Profesor Guía: DR. JULIANO DENARDIN CASAGRANDE

Profesores Comisión: DR. JUAN ESCRIG M.  
DR. DANIEL SERAFINI  
DR. ROBERTO RODRIGUEZ S.  
DR. ROBERTO LAVÍN S.  
DR. LEONARD SPINU

TESIS PARA OPTAR AL GRADO ACADÉMICO DE DOCTOR EN CIENCIAS  
CON MENCIÓN EN FÍSICA

SANTIAGO DE CHILE

SEPTIEMBRE 2012

“PROPIEDADES MAGNÉTICAS Y EFECTO HALL  
EXTRAORDINARIO EN PELÍCULAS DELGADAS  
NANOESTRUCTURADAS”

Trabajo de Graduación presentado a la Facultad de Ciencia, en cumplimiento parcial de los requerimientos exigidos para optar al Grado académico de Doctor en Ciencias con mención en Física

UNIVERSIDAD DE SANTIAGO DE CHILE

SANTIAGO DE CHILE

SEPTIEMBRE 2012

“PROPIEDADES MAGNÉTICAS Y EFECTO HALL  
EXTRAORDINARIO EN PELÍCULAS DELGADAS  
NANOESTRUCTURADAS”

SEBASTIÁN ALFONSO MICHEA MORA

Este trabajo de Graduación fue preparado bajo la supervisión del profesor guía Dr. Juliano Denardin C., del Departamento de Física y ha sido aprobado por los miembros de la comisión calificadora, del candidato

DR. JUAN ESCRIG M. ....

DR. DANIEL SERAFINI .....

DR. ROBERTO RODRÍGUEZ S. ....

DR. ROBERTO LAVÍN S. ....

DR. LEONARD SPINU .....

DR. JULIANO CASAGRANDE D. ....

.....

Director Departamento de Física

A mi compañera de vida, Diana.

# Agradecimientos

Los caminos recorridos pocas veces serán como uno los piensa. Durante mis casi 11 años que estuve en la USACH, en los que cuento mi carrera de pregrado y el doctorado, hubo momentos fáciles y otros difíciles. En particular, este último proceso fue un reto muy grande, donde me probe que soy capaz de varias cosas que en algún momento me cuestione. Es de conocimiento de la mayoría de mis cercanos, las vicisitudes por las cuales tuve que atravesar, y que felizmente llegaron a buen puerto. Por esta principal razón, agradezco a Dios por haber estado siempre en mi camino y haberme permitido tener la claridad y la tranquilidad para optar las decisiones correctas en el momento preciso.

Por otra parte me gustaría agradecer sinceramente a las personas que fueron parte de este proceso entre los que destaco a los profesores del programa de postgrado Fernando Mendez, Mikhail Plyushchay, Enrique Cerda, Dinesh P. Sing, Juan Escrig, Juan Carlos Retamal, Dora Altbir, Yolanda Vargas y Juliano Denardin, a los profesores que formaron parte del comité evaluador en especial a Leonard, por haber viajado tanto para estar acá y por haberme prestado su laboratorio y a Roberto quien será mi próximo jefe, así como también al personal administrativo del departamento, Erika, Emily, Susana, Don Cesar. En particular quiero agradecer a Juan Escrig y Juliano por haberme entregado las herramientas me han permitido forjar los cimientos en el área en la que he decidido especializarme y de forma especial a este último, mi tutor, por el apoyo incondicional en los momentos más difíciles, la confianza depositada al aceptar el desafío de tenerme como alumno memorista y la paciencia para instruirme en el magnetismo experimental.

Por otro lado, quiero agradecer a todos mis compañeros del programa, en particular a

todos mis partner de la oficina 1 de postgrado que en algún momento llegaron a ser casi todos, con quienes compartí muy gratos momentos, entre ellos destaco al Seba, Negro y Romi, Salao, Pancho, Papelaso así como a mis compañeros de Laboratorio donde destaco la gran ayuda que me brindaron la Ceci y Joel en la planificación y desarrollo de este trabajo de tesis. De forma particular me gustaría agradecer al Kvzon Juanito, ya que recorrimos casi el mismo camino juntos y debido a su ayuda éste se volvió más afable, gracias por las discusiones, sus consejos y su apoyo , realmente valoro mucho tu amistad.

Agradezco el financiamiento entregado por CONICYT por medio de la beca para estudio de doctorado en Chile, la que me permitió enfocarme solo en mis estudios sin la necesidad de preocuparme por mi manutención mensual, así como también a CEDENNA y el Nucleo Milenio de Magnetismo Básico y Aplicado que me permitieron participar en eventos de divulgación científica los que nutrieron considerablemente mi perfil de investigador.

También me gustaría agradecer a mis padres Vilma Mora y Alfonso Michea y mi hermana la Maca por el apoyo que me han brindado en todos los proyectos que he emprendido en mi vida. Ustedes son la base que me permitió llevar a cabo este desafío (toda mi carrera universitaria) y los responsables de la persona que soy hoy. Estoy muy contento de que sean mi familia, y no me gustaría que fuese de otra manera, gracias.

Finalmente, quiero agradecer a Diana, quien fue muy influyente para que me iniciara en este camino, por no decir persistente. Agradezco tus correcciones ortográficas, semánticas y fonológicas que realmente me ayudaron mucho ya que podríamos decir que cuando comenzamos yo tenía un TEL. También quiero agradecer tu preocupación, tu ocupación y tu incondicionalidad, muchas gracias. Hemos vivido muchas cosas juntos y espero que este nueva etapa que comienza sea mucho mejor.

Agradezco anticipadamente a las personas que por alguna razón tengan curiosidad en leer este trabajo de tesis al que pese al poco tiempo, le dedique mucho esfuerzo y espero realmente que les sea útil.

# Resumen

En estos últimos dos años, el interés científico ha estado centrado en el estudio de las propiedades magnéticas y el efecto Hall extraordinario de películas delgadas fabricadas por pulverización catódica (*sputtering*). En particular, en esta tesis se estudió de forma experimental las propiedades magnéticas y el efecto Hall extraordinario en películas delgadas bajo distintas configuraciones estructurales:

(i) Se realizaron mediciones de resistividad Hall y de las propiedades magnéticas en películas delgadas de una aleación amorfa basada en hierro ( $\text{Fe}_{73,4}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ ) denominada Fe-rich y en películas delgadas de multicapas de esta aleación con cobre. Se obtuvo un aumento en el valor de la sensibilidad de  $1.3 \text{ } \Omega/\text{T}$  y una reducción de la saturación debida a la intercalación de películas metálicas entre las películas de Fe-rich, mejorando los resultados en películas de hierro puro al obtener películas delgadas de una fase magnética en estado granular.

(ii) Se estudió la resistividad Hall en películas delgadas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> con una concentración sobre el límite de percolación. Las películas fueron depositadas sobre distintos sustratos a modo de obtener una caracterización del efecto mediante la estructuración de la película. Por medio de la medición de la resistencia de la película en función de la temperatura se observó una variación en el comportamiento eléctrico de la muestra de nanodomos. Este comportamiento más aislante de esta muestra es el responsable del aumento en el valor de la resistividad Hall de hasta 4 veces en comparación con las películas porosas. A bajas temperaturas se observa un incremento de la histéresis en la medición de la resistividad Hall en función del campo magnético aplicado, donde los mecanismos de conducción dominantes son los producidos por

la interacción espín-órbita, haciendo que la contribución ferromagnética debido a los eventos de dispersión sea mucho mayor que la contribución normal del efecto Hall.

(iii) El tercer sistema bajo estudio está constituido por películas delgadas de nanodomas de níquel con distinto espesor nominal. Se estudiaron las propiedades magnéticas vía magnetometría clásica y resonancia ferromagnética (FMR, *ferromagnetic resonance*). Por otro lado, se midió la resistividad Hall en un amplio rango de temperaturas desde 13 K a temperatura ambiente. Se observó un aumento en el campo coercitivo de las películas continuas y nanoestructuradas diferenciadas por un factor de escalamiento, ocurriendo un mínimo local cuando el campo magnético es aplicado fuera del plano de la muestra. No obstante, el campo de resonancia del espectro de FMR exhibe un claro eje de anisotropía en la dirección del plano de la muestra, sin embargo, el ensanchamiento del ancho de línea cuando el campo magnético aplicado es sacado del plano, indica que existen interacciones que inciden en la aparición del mínimo local del campo coercitivo. A partir del campo coercitivo asociado a la resistividad Hall se observa que el efecto de la nanoestructuración cumple el rol inverso que en el caso de la resistividad Hall aumentando su valor a medida que disminuye el espesor nominal de la película.

(iv) Finalmente, las propiedades magnéticas de películas porosas de cobalto de espesor fijo fueron estudiadas en función del diámetro del poro vía magnetometría clásica, simulaciones micromagnéticas y diagramas de curvas de reversión de primer orden (*FORCs*, *first order reversal curves*). El campo coercitivo depende explícitamente del tamaño del poro, aumentando su valor a medida que incrementa esta cantidad. De las imágenes de las simulaciones numéricas es posible ver que, incluso cuando la densidad de los agujeros es la misma para diferentes diámetros, un poro de diámetro mayor es asociado a la presencia de más dominios magnéticos y esto a una mayor densidad de paredes de dominios. Finalmente en todos los diagramas *FORCs* se observa un aumento mayor en la distribución de coercividad que en la distribución de la interacción, lo que indica que el efecto predominante de los poros con diámetros mayores es la formación de un gran número de dominios magnéticos.

A raíz de estos estudios podemos concluir que la estructuración de la película, ya sea

por medio de la utilización de sustratos autoensamblados o el depósito secuencial de películas de multicapas, presentan una influencia directa en las propiedades magnéticas y en el efecto Hall extraordinario de las muestras. Además, mediante el estudio de la resistividad Hall en función de la temperatura se observa que a temperaturas inferiores de la necesaria para la activación térmica se produce un aumento exponencial en el valor del campo coercitivo asociado a la medición de la resistividad Hall. Esta variación es característica para cada geometría y composición del arreglo magnético nanoestructurado. De tal manera, es posible modificar las propiedades de transporte eléctrico de espín dependiente de una película magnética mediante la variación de sus parámetros estructurales así como las propiedades magnéticas, como queda explícito en el caso de las películas porosas de cobalto.

# Índice general

<b>1. Introducción</b>	<b>1</b>
<b>2. Efecto Hall Extraordinario</b>	<b>5</b>
2.1. Introducción . . . . .	5
2.2. Efecto Hall Extraordinario . . . . .	7
2.3. Mecanismos de conducción . . . . .	8
<b>3. Técnicas experimentales</b>	<b>12</b>
3.1. Fabricación de películas delgadas . . . . .	13
3.2. Fabricación de membranas de alúmina porosa . . . . .	15
3.3. Equipos de caracterización . . . . .	19
3.3.1. Caracterización microestructural . . . . .	19
3.3.2. Caracterización magnética . . . . .	20
3.3.3. Caracterización eléctrica . . . . .	21
<b>4. Propiedades magnéticas y Efecto Hall extraordinario en películas delgadas de Fe-rich y películas de multicapas de Fe-rich/Cu</b>	<b>24</b>
4.1. Experimento . . . . .	25
4.2. Resultados y discusión . . . . .	27
4.2.1. Películas delgadas de Fe-rich . . . . .	27
4.2.2. Películas de multicapas de Fe-rich/Cu . . . . .	31
4.3. Conclusión . . . . .	36

<b>5. Efecto Hall extraordinario en películas delgadas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> con distintos tipos de geometrías</b>	<b>37</b>
5.1. Experimento . . . . .	38
5.2. Resultados y Discusión . . . . .	40
5.3. Conclusión . . . . .	51
<b>6. Propiedades magnéticas y efecto Hall extraordinario en películas delgadas de nanodomos de Níquel de distinto espesor</b>	<b>53</b>
6.1. Experimento . . . . .	54
6.2. Resultados y discusión . . . . .	56
6.3. Conclusión . . . . .	67
<b>7. Propiedades magnéticas de películas porosas de cobalto de espesor fijo y distinto diámetro de poros</b>	<b>69</b>
7.1. Experimento . . . . .	70
7.2. Resultados y discusión . . . . .	72
7.3. Conclusión . . . . .	82
<b>8. Conclusiones</b>	<b>83</b>

# Índice de figuras

2.1. Efecto Hall . . . . .	6
2.2. Relación entre la resistividad Hall y la histéresis magnética . . . . .	9
2.3. Mecanismos de conducción . . . . .	10
3.1. Diagrama de pulverización catódica . . . . .	15
3.2. Equipo de pulverización catódica . . . . .	15
3.3. Montaje experimental de la anodización de las membranas porosas . . . . .	16
3.4. Etapas de la anodización . . . . .	18
3.5. Diagrama de las membranas porosas . . . . .	19
3.6. Microscopio de barrido electrónico . . . . .	20
3.7. Magnetómetro de fuerza alterna . . . . .	21
3.8. Sistema de medición de transporte . . . . .	22
3.9. Método de van der Pauw . . . . .	22
4.1. Microscopía de barrido electrónico de películas de Fe-rich . . . . .	28
4.2. Histéresis magnética en películas de Fe-rich . . . . .	29
4.3. Resistividad Hall en películas de Fe-rich . . . . .	30
4.4. Difracción de rayos X en películas de Fe-rich/Cu . . . . .	32
4.5. Histéresis magnética en películas de Fe-rich/Cu . . . . .	33
4.6. Coeficiente térmico-resistivo en películas de Fe-rich/Cu . . . . .	34
4.7. Resistividad Hall en películas de Fe-rich/Cu . . . . .	35
4.8. Resistividad Hall en películas de Fe-rich/Cu (S7) a 12 K . . . . .	36

5.1. Coeficiente térmico-resistivo de películas de Ni-SiO <sub>2</sub> . . . . .	39
5.2. Microscopía de barrido electrónico de películas de Ni-SiO <sub>2</sub> . . . . .	42
5.3. Coeficiente térmico-resistivo de películas de Ni-SiO <sub>2</sub> . . . . .	43
5.4. Resistividad Hall en películas de Ni-SiO <sub>2</sub> a 12 k y temperatura ambiente	45
5.5. Estimación de reducción de la resistividad Hall . . . . .	46
5.6. Campo coercitivo asociado a la resistividad Hall en función de la tempe- ratura . . . . .	47
5.7. Campo coercitivo asociado a la resistividad Hall en función de la tempe- ratura con distintos parámetros de estructuración . . . . .	50
6.1. Microscopía de fuerza atómica de la película de nanodomos con 60 nm de espesor . . . . .	57
6.2. Perfil esquemático de la película de nanodomos . . . . .	57
6.3. Configuración experimental del campo magnético aplicado . . . . .	58
6.4. Dependencia angular de la coercividad en películas de nanodomos con distinto espesor . . . . .	58
6.5. Campo coercitivo de películas de nanodomos . . . . .	60
6.6. Espectro de resonancia ferromagnética típico . . . . .	62
6.7. Resonancia ferromagnética de la película de nanodomos con 20 nm de espesor . . . . .	62
6.8. Resonancia ferromagnética de la película de nanodomos con 100 nm de espesor . . . . .	63
6.9. Campo de resonancia en la película de nanodomos . . . . .	64
6.10. Ancho de línea en películas de nanodomos . . . . .	64
6.11. Resistividad Hall en función de la temperatura . . . . .	65
6.12. Campo coercitivo asociado a la resistividad Hall en función de la tempe- ratura . . . . .	66
7.1. Microscopía de fuerza atómica de la película porosa de 40 nm de diámetro	72

7.2. Microscopía de barrido electrónico de las películas de cobalto con distinto diámetro . . . . .	73
7.3. Histéresis magnética experimental . . . . .	74
7.4. Histéresis magnética simulada . . . . .	75
7.5. Campo coercitivo en función del diámetro del poro . . . . .	75
7.6. Configuración magnética del campo coercitivo obtenido en la simulación de la máscara ideal . . . . .	77
7.7. Configuración magnética del campo coercitivo obtenido en la simulación de la máscara real . . . . .	78
7.8. Curvas FORCs de la película porosa de 20 nm de diámetro . . . . .	78
7.9. Diagramas FORCs de las películas porosas . . . . .	80

# Índice de Tablas

1.1. Las siete eras del magnetismo . . . . .	2
4.1. Películas delgadas de Fe-rich . . . . .	26
4.2. Películas delgadas de multicapas de Fe-rich/Cu . . . . .	26
5.1. Parámetros de depósito de películas de Ni-SiO <sub>2</sub> . . . . .	39
5.2. Dimensiones características de películas de Ni-SiO <sub>2</sub> con distintas geometrías	41
6.1. Parámetros de anodización de películas de nanodornos . . . . .	55
6.2. Parámetros de depósito de películas de níquel . . . . .	55

# Capítulo 1

## Introducción

El estudio de las propiedades magnéticas y de magnetotransporte en arreglos magnéticos nanoestructurados es un tópico que ha llamado la atención debido a la gran diversidad de posibles aplicaciones tecnológicas orientadas principalmente a las áreas de almacenamiento de información de alta densidad y construcción de sensores magnéticos.

La historia del magnetismo es completamente contemporánea con el desarrollo de la ciencia. La capacidad que poseen los imanes de atraer objetos férreos, como un control remoto que actúa a distancia, a cautivado a innumerables espíritus curiosos durante más de dos milenios [1]. El comienzo de todo fue originado por un material llamado magnetita ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) del que se poseía grandes depósitos en el distrito griego de Magnesia (de ahí proviene su nombre) y fue el primer material magnético conocido por el hombre [2]. Fueron precisamente los griegos los que se dieron cuenta de que una pieza de hierro se convertía en magnética cuando ésta tocaba, o aún mejor, cuando se frotaba con un trozo de magnetita. El primer indicio de un dispositivo magnético corresponde a un imán tallado en forma de una cuchara (artesanía típica china) que fue usado en el área de la geomancia al comienzo de nuestra era en China, donde la base de la cuchara se fija a una superficie permitiendo que el asa se alinee con el campo magnético terrestre. Tiempo después, pero sin saber la exactitud de la fecha, utilizando agujas de hierro previamente magnetizadas suspendidas o flotando en un fluido se inventó lo que se conoce hoy en día como brújula de navegación. Esta brújula fue reinventada tiempo

después en Europa y permitió uno de los acontecimientos más grandes de la historia de la humanidad cuando en 1492 Cristóbal Colon descubre América.

La tabla 1.1 resume las siete eras principales en el desarrollo del magnetismo indicando sus principales desarrolladores y el dispositivo que fue ícono del proceso.

Periodo	Fecha	Dispositivo	Desarrollador	Material
Antigüedad	-2000-1500	Brújula de navegación	Geománticos	Hierro
Comienzos de la era moderna	1500-1820	Herradura magnética	Fuerza Naval	Hierro
Era del electromagnetismo	1820-1900	Electromagneto	Industria	Acero eléctrico
Era del entendimiento	1900-1935	Matrices de Pauli	Academia	—
Era de la alta frecuencia	1935-1960	Resonancia magnética	Ejército	Ferritas
Era de aplicaciones	1960-1995	Aplicaciones eléctricas	Mercado	Sm-Co, Nd-Fe-B
Era de la espín-trónica	1995-	Cabezas lectoras	Mercado	Multicapas

Tabla 1.1: Las siete eras del magnetismo [1]

La última era, que a mi entender es un poco anterior a la fecha señalada por la referencia, da cuenta del explosivo interés de estudiar las propiedades que poseen las películas delgadas debido a la cantidad de posibles aplicaciones que pueden desarrollar. En los últimos años, la explosión de la nanotecnología ligada al fenómeno del magnetismo a permitido el desarrollo y la comprensión de sistemas magnéticos nanoestructurados en una amplia gama de espectros de forma teórica y experimental, sumado al avance en la velocidad de computo que permite simular sistemas nanométricos que antes eran impensados. Estas nanoestructuras tienen una amplia gama de geometrías tales como hilos, tubos, tubos segmentados, domos, películas porosas, películas delgadas, películas delgadas de multicapas, entre otras. De todas estas geometrías anteriormente nombradas, las películas magnéticas producidas por pulverización catódica y compuestas por nanopartículas magnéticas y/o por multicapas delgadas de material magnético presentan interesantes propiedades intrínsecas como magnetoresistencia gigante (GMR Giant Magnetoresistance), efecto Hall extraordinario gigante (EHE Extraordinary Hall Effect) y superparamagnetismo. Además, la respuesta lineal del campo, la estabilidad térmica, la operabilidad a alta frecuencia, sus dimensiones nanométricas y, por sobre todo, simplicidad, durabilidad y bajo costo de fabricación, son buenas razones para considerar su aplicabilidad en un amplio espectro de aplicaciones tecnológicas del fenómeno

---

orientados en la construcción de sensores magnéticos y dispositivos de almacenamiento [4].

El objetivo principal de esta investigación es estudiar de forma experimental las propiedades magnéticas y de transporte eléctrico espín dependiente en arreglos magnéticos nanoestructurados en función de sus parámetros geométricos característicos (espesor, composición y geometría del sustrato).

Las propiedades de transporte eléctrico en las películas delgadas magnéticas, dependen implícitamente de la configuración de la magnetización en el material. A su vez, la configuración magnética depende de los parámetros geométricos añadidos en la estructuración de la película. El modelamiento en función de la geometría, junto con el estudio en función de la temperatura de las películas delgadas, permitirá obtener información relevante de las propiedades magnéticas y de transporte, así como de los mecanismos de conducción en estos sistemas magnéticos, permitiendo un mayor control en el transporte de los portadores de cargas para posibles aplicaciones tecnológicas.

Este trabajo de tesis se compone de ocho capítulos en los que se desarrollan los tópicos involucrados de forma individual. En el capítulo dos, se expone una revisión del efecto Hall extraordinario explicitando su origen y los mecanismos involucrados en la conducción de los portadores de carga bajo la acción de éste fenómeno. En el tercer capítulo titulado "Técnicas experimentales" se desarrollan las técnicas utilizadas para la fabricación de películas delgadas y la fabricación de membranas de alúmina porosa empleadas como sustrato, así como también los equipos utilizados para la caracterización microestructural, magnética y eléctrica. El cuarto capítulo está dedicado al estudio realizado de las propiedades magnéticas y de transporte eléctrico espín dependiente en películas delgadas de una aleación de hierro enriquecido y películas delgadas de multicapas de la aleación intercaladas con películas delgadas de cobre. La investigación sobre el efecto Hall extraordinario en películas delgadas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> con distintas geometrías se explica en el capítulo 5. En el capítulo 6 se describe la investigación realizada en películas de nanodornos de níquel con distinto espesor nominal para determinar las propiedades magnéticas y de transporte eléctrico espín dependiente que poseen en

función de este parámetro. El estudio de las propiedades magnéticas de películas porosas delgadas de cobalto de espesor fijo y distinto diámetro de poros se desarrolla en el capítulo 7. Finalmente, las conclusiones generales se enuncian en el último capítulo.

# Capítulo 2

## Efecto Hall Extraordinario

El efecto Hall extraordinario (EHE, *Extraordinary Hall Effect*), es un fenómeno de magnetotransporte relacionado con la dependencia que posee la resistividad de un material con el campo magnético aplicado. A mayor campo aplicado, mayor será el valor de la resistividad hasta llegar a un punto máximo de saturación. Este efecto es observado en materiales ferromagnéticos y es originado por la interacción espín-órbita de los electrones de la banda de conducción debido a la asimetría de la dispersión magnética. Este fenómeno ha sido ampliamente estudiado por más de un siglo en nuestra época moderna, siendo aún un problema enigmático tanto desde un punto de vista teórico como experimental. En este capítulo estudiaremos el efecto Hall extraordinario así como los mecanismos de conducción involucrados desde un punto de vista experimental.

### 2.1. Introducción

El efecto Hall extraordinario posee profundas raíces en la historia de la electricidad y el magnetismo. Está explícitamente relacionado con el efecto Hall, fenómeno que fue considerado como el descubrimiento de la época cuando E. H. Hall en el año 1879 en su publicación ”*On a new Action of the Magnet on Electric Currents*” [5] mientras experimentaba con materiales conductores observó que si se aplicaba un campo magnético en la dirección perpendicular a la que circula la corriente por un conductor, aparecía

un voltaje transversal perpendicular a la corriente y al campo magnético aplicado (ver Fig.2.1). En ausencia de un campo magnético aplicado, los electrones pueden moverse libremente en línea recta entre los eventos de dispersión en el interior de un sólido teniendo el mismo comportamiento en un gas de electrones libres aún en presencia de un campo magnético aplicado. En este último sistema, este campo ejerce una fuerza (Fuerza de Lorentz) sobre los electrones que los desvía de su camino recto, el campo eléctrico generado por el desplazamiento de los electrones balancea la fuerza de Lorentz y, en equilibrio, los electrones se mueven de la misma manera. Aquí los electrones se mueven con una velocidad  $\vec{v}$  en la dirección  $x$  y son inicialmente desviados en la dirección  $y$  por la acción de un campo  $\vec{H}$  aplicado en la dirección  $z$ . Como resultado existe un equilibrio entre la fuerza de Lorentz y el campo eléctrico inducido  $E_y$  en un gas ideal y por ende su resistencia no variará con la aplicación de un campo magnético.

Fuerza de Lorentz

$$F = -q \vec{v} \times \vec{B}$$

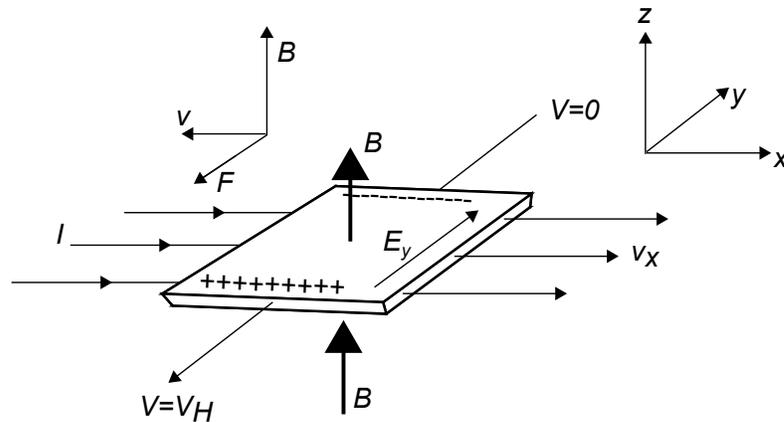


Figura 2.1: Diagrama de efecto Hall en un conductor.

Sin embargo, en un metal, los electrones de conducción poseen diferentes velocidades promedio y aunque el campo eléctrico Hall también se equilibra con el campo magnético, los electrones viajan de manera individual en trayectorias onduladas. La componente magnética de la fuerza de Lorentz ( $q\vec{v} \times \vec{B}$ ) provoca este desplazamiento de la órbita de los electrones, haciendo que viajen una distancia mayor incrementando

la cantidad de eventos de dispersión, por lo tanto la resistencia del material será mayor que la resistencia en ausencia de un campo magnético aplicado lo que da como resultado que en metales normales la resistencia Hall sea positiva [3].

No fue hasta un año más tarde, que el mismo Hall, experimentando con materiales ferromagnéticos, observó que éste voltaje transversal incrementaba notoriamente hasta un factor de 10 veces el valor de la resistencia en comparación con un conductor no magnético [7]. Esta contribución anómala de la resistencia del material, da nombre al efecto Hall ocurrido en aleaciones magnéticas y en la actualidad recibe el nombre de efecto Hall extraordinario o efecto Hall anómalo.

Ambos descubrimientos tuvieron un remarcado impacto en la época entregando información de la forma que se mueven las cargas al interior de un conductor. El primero de ellos nos brinda de una manera sencilla, una herramienta bastante elegante para determinar la concentración de cargas en conductores no-magnéticos de forma aproximada y jugó un rol muy importante en el nacimiento de la física de semiconductores y la electrónica de estado sólido hasta finales de la década de los 40. Debido al papel desempeñado, el efecto Hall fue catalogado como la reina de los experimentos de transporte de estado sólido [8].

Por otro lado, el efecto Hall extraordinario ha sido un problema enigmático tanto de forma teórica como de forma experimental por más de un siglo. La principal razón del poco avance en el estudio de este efecto radica en que el fenómeno involucra conceptos basados en topología y geometría que sólo han podido ser formulados en los últimos años sin poder entregar información concreta al respecto.

## 2.2. Efecto Hall Extraordinario

El efecto Hall extraordinario (*Extraordinary Hall Effect, EHE*), es un fenómeno que pese a tener más de un siglo de antigüedad, aún continúa siendo un problema enigmático tanto en la teoría como en el desarrollo experimental. Es un fenómeno de dispersión espín-dependiente observado en materiales ferromagnéticos y ocurre debido

a la asimetría de la dispersión magnética siendo proporcional a la magnetización de la muestra [8] y se representa como una contribución extraordinaria al valor de la resistividad bajo la acción de un campo magnético. Pugh ([9, 10]) estableció de manera empírica que la relación entre la resistividad Hall ( $\rho_{xy}$ ), el campo aplicado ( $H$ ) y la magnetización ( $M$ ) de un conductor ferromagnético es dada por:

$$\rho_{xy} = R_O H + R_S M, \quad (2.1)$$

donde  $R_O$  y  $R_S$  son los coeficientes de Hall común y extraordinario, respectivamente. El primer término en la ecuación 2.1 corresponde al término asociado al desplazamiento de cargas laterales producido por la componente magnética de la fuerza de Lorentz y es observado en todo conductor como respuesta del campo magnético aplicado, mientras que el segundo término representa la contribución extraordinaria del efecto Hall debido a la magnetización espontánea del material. Esta proporcionalidad entre la resistividad Hall y la magnetización, hace posible observar una reconstrucción de la histéresis magnética debido a que la contribución del EHE es mucho mayor que la contribución proporcional al campo (fig. 2.2)[11].

### 2.3. Mecanismos de conducción

De los estudios realizados en relación al EHE [11]-[28] se desprende que los mecanismos que dan origen a la contribución extraordinaria del efecto Hall en función de la resistividad lineal ( $\rho_{xx}$ ) que representa el valor de la resistividad del material sin la interacción con el campo magnético son tres (figura 2.3):

(i) La dispersión asimétrica (*skew scattering*)([19, 22, 23]), bajo un régimen de alta conductividad ( $\rho_{xx} < 10^{-6}(\Omega \cdot \text{cm})$ ), donde la resistividad lineal es proporcional a la resistividad Hall.

(ii) La deflexión intrínseca (*intrinsic deflection*)([20, 24]), bajo un régimen metálico ( $10^{-6}(\Omega \Delta \text{cm}) < \rho_{xx} < 10^{-4}(\Omega \cdot \text{cm})$ ), donde la resistividad lineal es independiente

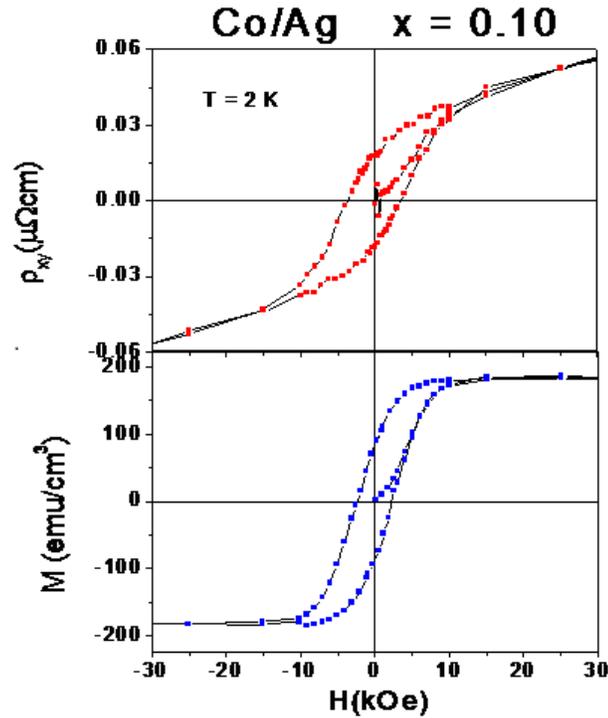


Figura 2.2: Reconstrucción de la histéresis magnética por medio de la medición de la resistividad Hall en función del campo aplicado en películas de multicapas de  $Co_x/Ag_{1-x}$  [11].

de la resistividad Hall.

(iii) Dispersión de saltos laterales (*side jump scattering*) ([9, 10]), bajo un régimen aislante ( $\rho_{xx} > 10^{-4}(\Omega \cdot \text{cm})$ ), donde la resistividad Hall es proporcional al cuadrado de la resistividad lineal.

El mecanismo de dispersión asimétrica (*skew scattering*) aborda una teoría semiclásica enfocada en la influencia de la dispersión en cristales amorfos, donde la fuente principal del efecto se debe a la interacción espín-órbita del electrón o de la impureza. Por otro lado, el mecanismo de saltos laterales (*side-jump scattering*) debido a la dispersión de cuasipartículas proviene de la interacción espín-órbita de impurezas acopladas, donde la velocidad del electrón es deflectada en dirección opuesta por el campo

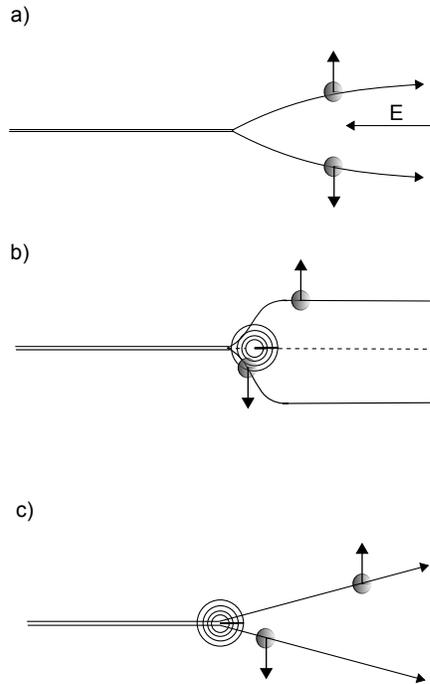


Figura 2.3: a) *Deflexión intrínseca*, donde una coherencia entre las bandas de conducción es introducida por un campo eléctrico externo que da lugar a una distribución de velocidades perpendicular a la dirección del campo. Debido a este efecto, las corrientes en un material ferromagnético no son cero y contribuyen al efecto hall extraordinario. b) *Saltos laterales*, en este tipo de mecanismo, la velocidad del electrón es deflectada de su trayectoria en la dirección opuesta al campo eléctrico experimentado cuando el portador de carga se acerca o se aleja de una impureza. c) *Dispersión asimétrica*, ocurre debido a la interacción espín-órbita efectiva de un electrón con la impureza.

eléctrico opuesto cuando éste se acerca o se aleja de la impureza. De estos mecanismos se puede desprender que la relación entre la resistividad óhmica ( $\rho$ ) y la resistividad Hall satisface la ley de potencia de modo que:

$$\rho_{xy} = a\rho + b\rho^2, \quad (2.2)$$

donde  $a$  y  $b$  son constantes de proporcionalidad. Los términos lineales y cuadráticos corresponden a los mecanismos de dispersión asimétrica y saltos laterales, respectivamente, y  $\rho$  corresponde a la resistividad a campo nulo. Cuando  $\rho$  es pequeño, a bajas temperaturas o en metales puros, se cree que la dispersión asimétrica entrega una mayor

---

contribución a la resistividad Hall. En aleaciones o materiales desordenados, cuando  $\rho$  es grande, el mecanismo dominante es la dispersión de saltos laterales.

La confusión debida al efecto Hall extraordinario, radica en la dificultad al identificar estos mecanismos de conducción, una baja comprensión de cómo compiten a escala microscópica y al estancamiento de los estudios experimentales en diversos sistemas magnéticos.

# Capítulo 3

## Técnicas experimentales

En este trabajo de tesis, se estudiaron las propiedades magnéticas y el efecto Hall extraordinario en películas delgadas nanoestructuradas. En particular se fabricaron películas delgadas de Fe-rich ( $\text{Fe}_{73,4}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ ) y películas delgadas de la misma aleación intercaladas con cobre. Un segundo sistema de estudio fue constituido por películas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> cuya concentración se encuentra sobre la transición metal aislante con distintos tipos de geometrías (películas porosas y películas de nanodomos). Por otra parte, también se fabricaron películas de nanodomos de níquel de distinto espesor nominal. Finalmente, se fabricaron películas porosas de cobalto con distinta distribución en el diámetro de poros del sustrato con un espesor nominal fijo.

En este capítulo, se describen las técnicas utilizadas para la fabricación de películas delgadas por medio de pulverización catódica (*sputtering*), las técnicas de fabricación de los sustratos de membranas de alúmina porosa y las técnicas de caracterización utilizadas. Este trabajo fue realizado en el Laboratorio de Superficies del Departamento de Física de la Universidad de Santiago de Chile el que cuenta con un equipo de pulverización catódica que posee dos fuentes pulverizadoras, una DC para materiales conductores

y una RF para materiales aislantes, así como también de un equipo completo para la fabricación de las membranas de alúmina porosa. En el caso particular de las películas de Fe-rich, las muestras fueron realizadas en colaboración con el Departamento de Física de la Universidad Federal de Santa María por medio del alumno de doctorado Matheus Gamino. La medición de las propiedades magnéticas y de transporte eléctrico espín dependiente fueron realizadas en el Laboratorio de Magnetismo del Departamento de Física de la Universidad de Santiago de Chile, el que cuenta con un magnetómetro de campo alterno con una capacidad de 1T y un sistema de medición de transporte acoplado a un crióstato de ciclo cerrado que permite la medición de transporte en un amplio rango de temperaturas (12-300 K) con una capacidad de 1.5 T. En el caso particular de las películas de nanodomas de níquel, la caracterización magnética fue realizada en el *Advance Material Research Institute* en la *University of New Orleans* en colaboración con el Dr. Leonard Spinu donde se utilizó un magnetómetro de muestra vibrante y un equipo de resonancia ferromagnética. Finalmente, para la caracterización microestructural de las muestras se utilizó un microscopio de barrido electrónico propiedad del Centro para el Desarrollo de la Nanociencia y la Nanotecnología que se encuentra en las dependencias del Laboratorio de Magnetismo en la Universidad de Santiago.

### 3.1. Fabricación de películas delgadas

Existen varias técnicas que permiten la fabricación de películas delgadas, entre ellas es posible destacar la evaporización, epitaxia molecular, electroquímica, depósito de capas atómicas y pulverización catódica, siendo ésta última una de las más versátiles y más utilizada para la fabricación de películas granulares.

El depósito de películas por pulverización catódica (*sputtering*) es llevado a cabo aplicando una gran diferencia de potencial entre el blanco (nombre designado al disco

sólido del material a depositar) y el sustrato, donde será el material depositado. El crecimiento de la película es realizado dentro de una cámara que es vaciada previamente. Un vacío base del orden de  $10^{-6}$ - $10^{-7}$  Torr es necesario para obtener películas con un alto grado de homogeneidad. La presencia de un gas inerte como Argón es necesaria en el interior de la cámara, en una primera instancia, para evitar reacciones químicas con el blanco. Una vez aplicada la diferencia de potencial entre el sustrato y el blanco, se crea un plasma en el interior de la cámara que consiste en un gas en un estado de alta energía siendo necesaria una presión de argón del orden de  $10^{-3}$  Torr para la sustentación de la condición de plasma en el interior de la cámara. Durante el depósito, los iones de argón energizados por el plasma colisionan con el blanco desprendiendo o arrancando átomos del material con una energía suficiente para ser acelerados en la dirección en la que se encuentra el sustrato permitiendo la formación de la película. Sin embargo, cuando los blancos están compuestos por materiales magnéticos, se observa una pérdida de la eficiencia en la tasa de depósito en comparación con los materiales no magnéticos. Para resolver este problema existe el sistema de magnetrón-*sputtering* que utiliza un imán bajo el blanco de forma de concentrar las colisiones de los iones en él. En relación a las fuentes que aceleran los iones contra los blancos, existen de dos tipos dependiendo del material que constituye el blanco. Una fuente DC que utiliza corriente continua y otra RF que utiliza radio frecuencias típicamente del orden de 13,6 MHz las que son usadas en materiales metálicos y en materiales aislantes, respectivamente.

En este trabajo de tesis se fabricaron 4 sistemas distintos de películas delgadas, donde en todas ellas se utilizó la técnica de pulverización catódica descrita anteriormente. En particular, para las películas delgadas de una fase magnética se utilizó esta técnica con un solo blanco comercial activado con la fuente de corriente directa, mientras que en las películas delgadas de multicapas se utiliza una variación de la misma de modo secuencial alternando el depósito de cada material. Por otra parte, las películas magnéticas de material magnético inmerso en un matriz aislante utiliza la co-pulverización de ambos materiales al mismo tiempo.

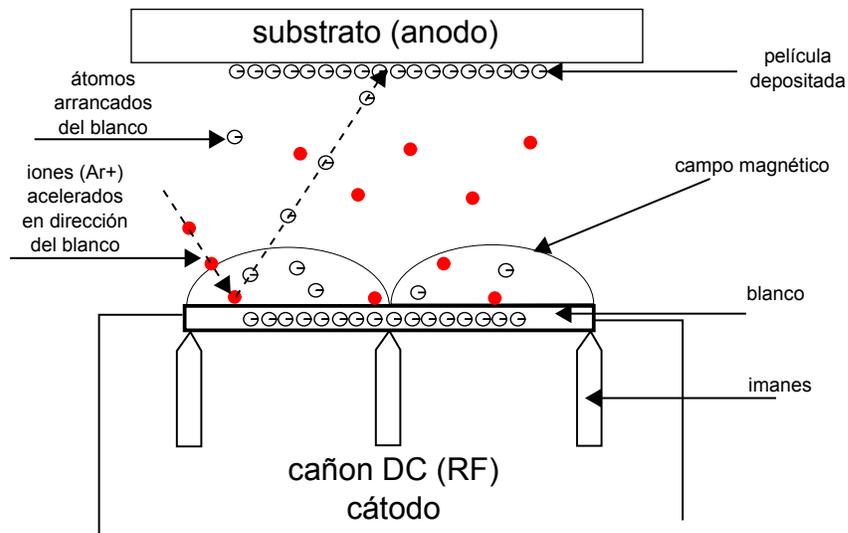


Figura 3.1: Esquema ilustrado del proceso de pulverización catódica.



Figura 3.2: Imagen del sistema de depósito de pulverización catódica.

## 3.2. Fabricación de membranas de alúmina porosa

Para el desarrollo de las películas fabricadas en este estudio, se utilizaron dos tipos de sustratos. Porta objetos de vidrio (comerciales) empleados para la observación en microscopios ópticos para las películas continuas y de multicapas. En el caso de las

películas con algún tipo de geometría inducida se emplearon membranas de alúmina porosa.

Las membranas de alúmina porosa corresponden a un arreglo de poros ordenados de forma hexagonal autoensamblado constituidos por óxido de aluminio ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Las membranas son preparadas a partir de una capa delgada de aluminio de alta pureza (99,99%), pasando por dos procesos de anodización [56]. Estos procesos han permitido obtener membranas con un alto ordenamiento poroso y una distribución uniforme del diámetro de los poros con unos agujeros paralelos entre sí y perpendiculares a la superficie de la película de aluminio en la que creció la membrana.

En el proceso de anodización, la oxidación del aluminio se produce a través de la reacción entre iones de Al y O, estos últimos provienen de la solución electrolítica los que a su vez incorporan aniones característicos del electrolito homogéneamente en toda la membrana. Como se explicó anteriormente, el metal utilizado para la fabricación de las membranas corresponde a una delgada película de aluminio de alta pureza, que puede anodizarse de tal forma que no altera su superficie durante el tratamiento obteniéndose como resultado una membrana homogénea y transparente. Los parámetros utilizados durante la anodización son [57]:

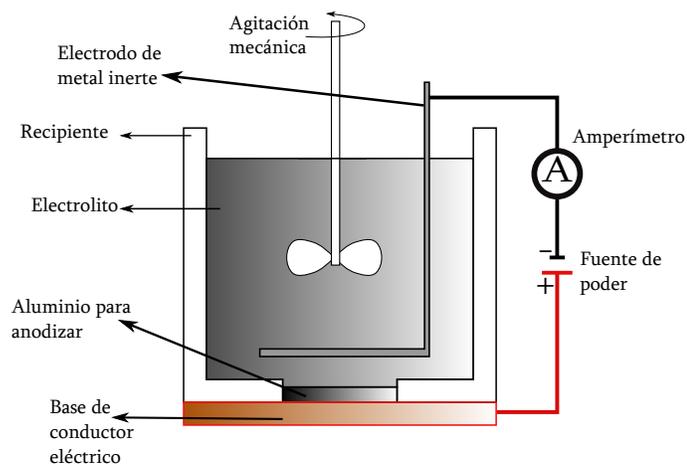


Figura 3.3: *Montaje experimental para la fabricación de membranas de alúmina porosa.*

i. Potencial de anodización: Corresponde a la diferencia del potencial a la que es sometida la solución electrolítica para oxidar la película de aluminio. Se ha comprobado que la separación entre los poros  $D$  es directamente proporcional al potencial aplicado con una constante de proporcionalidad.  $D = kV$  donde  $2,5 \leq k(\text{nm/V}) \leq 2,8$ .

ii. Tipo y concentración del electrolito: La utilización de un electrolito en particular influye directamente en el potencial que se aplicará a la solución, que además depende también de la conductividad que éste posea y el pH de la concentración, siendo esta última característica la que determinará el tamaño de los poros. Los electrolitos generalmente utilizados en el proceso de anodización son el ácido sulfúrico con un potencial de anodización bajo (5-40 V), ácido fosfórico y ácido oxálico que se pueden utilizar en potenciales medios (30-120 V) y altos (80-200 V), respectivamente. Por ejemplo, el ácido sulfúrico es un electrolito con una alta conductividad, y por ende si se utiliza un voltaje de anodización muy alto, se tenderá a producir roturas en la película del óxido. Esto implica que el valor del potencial más bajo junto con el pH menor conducirá a obtener membranas con diámetro de poros pequeños con esta solución, mientras que para obtener diámetros mayores se han de utilizar las otras soluciones electrolíticas basadas en ácido fosfórico y oxálico.

iii. Temperatura del electrolito: Este parámetro es muy importante, ya que debe mantenerse constante a lo largo de todo el proceso de anodización y por debajo de la temperatura ambiente para prevenir la disolución de la membrana debida al electrolito. El aumento de la temperatura conduce a un incremento en la velocidad de disolución de la membrana, provocándose una porosidad muy acusada. Por otra parte, la velocidad de crecimiento de la membrana es directamente proporcional con la temperatura.

iv. Agitación del electrolito: Para mantener la homogeneidad de la temperatura y el valor del pH de la solución es necesaria la agitación del electrolito. Esta agitación debe ser suficientemente fuerte como para poder eliminar burbujas de hidrógeno originadas

durante el proceso y permitir una difusión homogénea de los iones a lo largo de los canales de los poros.

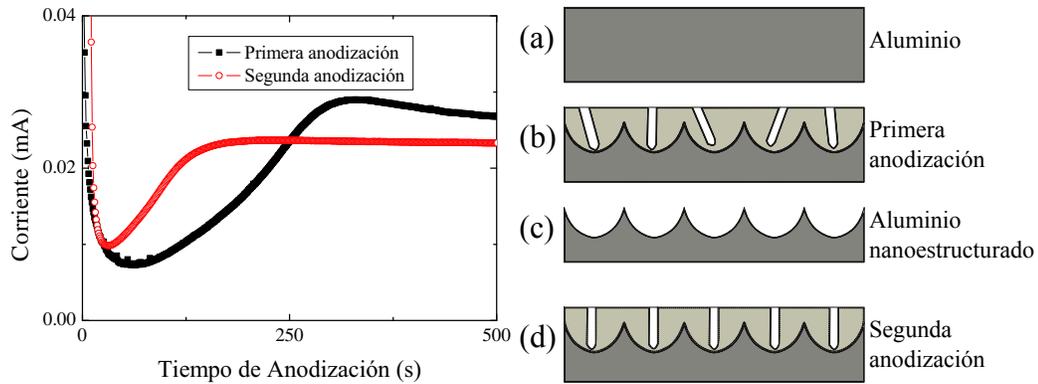


Figura 3.4: (Izq.) Densidad de corriente en función del tiempo de los procesos de anodización de alúmina porosa. (Der.) Fases esquemáticas del crecimiento de la membrana de alúmina porosa.

El proceso de crecimiento de la capa de óxido sobre la película de aluminio puede ser analizado a partir de la corriente en función del tiempo de anodización (figura 3.4). Inicialmente se observa una brusca disminución de la corriente que se asocia a un aumento en la resistencia del sistema al crecer una película continua y no porosa denominada capa barrera. La película de aluminio inicial, pese a tener un alto grado de pureza, posee una pequeña rugosidad lo que indica que habrán valles que se encontrarán distribuidos de forma aleatoria. Estas regiones presentarán una curvatura convexa y se producirá una concentración de cargas y, por consiguiente, un aumento de la temperatura (efecto Joule local) aumentando la acción disolvente del ácido disminuyendo la resistencia del sistema provocándose un aumento en la corriente hasta llegar a un máximo el cual se ha interpretado como el momento en que la cantidad de óxido crecido en la interfase metal-óxido y la eliminada de la base de los valles mediante disolución se compensan y, por consiguiente, el espesor de la capa barrera se mantendrá constante durante el resto del proceso. En las regiones donde no se produce disolución local, la velocidad del crecimiento del óxido sigue siendo mayor que la del efecto disolvente del electrolito, de modo que, seguirá creciendo la capa de óxido alrededor de los puntos

donde si se produce disolución. Finalmente la corriente tiende a decrecer suavemente lo que se puede deber a dificultades en la difusión de iones a lo largo de los canales de los poros. El resultado obtenido después de someter la película de aluminio a un doble proceso de anodización se encuentra ilustrado en la figura 3.5.

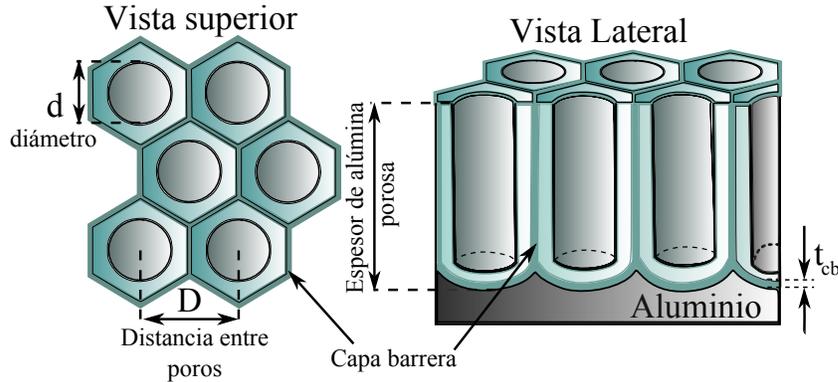


Figura 3.5: Esquema y parámetros geométricos característicos de una membrana de alúmina porosa tratada por un doble proceso de anodización.

El equipo utilizado para la fabricación de la membrana consta de una fuente de poder (*PROGRAMABLE POWER SUPPLY PSM-2010, GW INSTEK*), un amperímetro (*2400 SOURCE METER, KEITHLEY*), un baño térmico con control de temperatura automatizado (*LABTECH*) y un agitador comercial (*IKA RW20 DIGITAL*)

### 3.3. Equipos de caracterización

#### 3.3.1. Caracterización microestructural

La caracterización microestructural de las muestras fue realizada por medio de un microscopio de barrido electrónico *Carls Zeiss EVO 10 MA* (figura 3.6). Este tipo de instrumentos produce una imagen de la superficie barrida con una alta resolución

espacial. Una columna de aceleración con distintos dispositivos óptico-electrónicos que permiten la incidencia de un haz de electrones primarios sobre la superficie de la muestra, la que genera electrones secundarios y otro tipo de señales que son detectadas por sensores específicos para cada tipo de señal.



Figura 3.6: *Microscopio de barrido electrónico.*

### 3.3.2. Caracterización magnética

La caracterización magnética de las películas delgadas de éste estudio fue realizada por medio de un magnetómetro de fuerza alterna (figura 3.7) con una sensibilidad de  $5 \times 10^{-5}$  emu y una capacidad de 1.3 T. Este tipo de magnetómetro consta de un electroimán el que en sus polos posee un par de bobinas pequeñas que generan un pequeño campo magnético alterno en torno a una cierta frecuencia específica que esta relacionada con el dispositivo de medición. La medición del momento magnético se realiza por medio de un piezo-eléctrico donde se coloca la muestra magnética a caracterizar. Las condiciones de resonancia de este sensor dependen principalmente de la temperatura del dispositivo y de la cantidad de material magnético. Por lo tanto, se requiere un ajuste de la frecuencia de las bobinas para que el campo producido por éstas resuene con el piezo eléctrico y así obtener una correcta medición. Debido a la configuración del dispositivo, no es posible realizar mediciones angulares en este tipo de equipo, por

lo que usualmente se utilizan dos tipos de piezo-eléctricos los que permiten medir con el campo magnético aplicado en y fuera del plano de la película.



Figura 3.7: *Magnetómetro de fuerza alterna.*

### 3.3.3. Caracterización eléctrica

La caracterización eléctrica de las películas delgadas estudiadas en éste trabajo de tesis se realizó en un equipo de medición de transporte con una capacidad de 1.5 T acoplado a un crióstato de ciclo cerrado *Advance Research System, Inc* (figura 3.8) que permite realizar mediciones en un amplio rango de temperaturas (12-300 K).

Para medir la resistividad de la muestra se utilizó el método de van der Pauw que consiste en una técnica de 4 puntas que permite obtener la resistividad de la muestra sin considerar los parámetros geométricos superficiales que ésta posee. La figura 3.9 muestra el dibujo esquemático de esta técnica. Pese a esta gran ventaja, este método presenta una serie de condiciones las que dificultan el procedimiento experimental antes de la medición. Para ello se utilizaron máscaras durante el proceso de pulverización catódica en forma de cruz con un ancho de 500 micras y los contactos fueron realizados en los extremos de ésta. Los contactos son fabricados con soldadura de Indio el que permite usar una baja temperatura para fijar el contacto. La adherencia del contacto es realizada



Figura 3.8: *Sistema de medición de transporte.*

mediante una pintura conductora de plata sobre la que se coloca la soldadura. Una fuente de poder (*6221 DC AND AC CURRENT SOURCE, KEITHLEY*) entrega la corriente necesaria para lograr la medición de voltaje realizada por un nanovoltímetro (*2182A NANOVOLTIMETER, KEITHLEY*). El intercambio de los contactos, tal como se muestra en la figura 3.9, es logrado mediante una tarjeta matricial (*MULTIMETER DATA ACQUISITION, KEITHLEY*). El sistema de medición completo es programado por Labview.

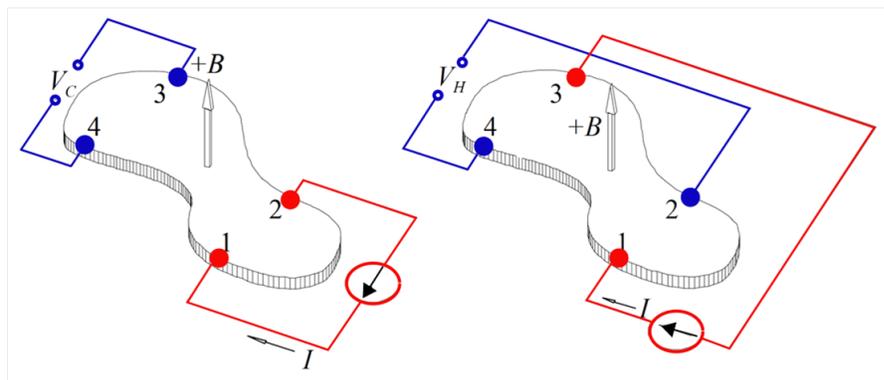


Figura 3.9: *Dibujo esquemático del método de Van der Pauw.*

Finalmente la resistividad de la muestra viene dada por:

$$\exp(-\pi R_{(12,34)}d/\rho_H) + \exp(-\pi R_{(24,13)}d/\rho_H) = 1$$

Donde  $d$  es el espesor de la muestra,  $R_{12,34}$  es la resistencia determinada dividiendo la diferencia de voltaje entre los contactos 34, mientras una corriente fluye desde 1 hasta 2 y  $R_{23,34}$  se define de la misma forma. Pese a la complejidad de la ecuación trascendental anterior para determinar la resistividad Hall, es posible realizar una aproximación si ambas resistencias medidas son similares, de esta forma, la resistividad Hall viene dada por:

$$\rho_H = \frac{R_{12,34} + R_{24,13}}{2}$$

Otras desventajas de aspecto netamente experimental son que el tamaño de los contactos afecta al voltaje requerido para pasar corriente por dos contactos y que la medición toma más tiempo, debido a que se deben adquirir dos datos de voltaje, en cambio que para los otros métodos, como la barra Hall, sólo es necesario uno. Sin embargo, el método es sumamente eficaz para realizar las mediciones [58, 59] con alta precisión.

## Capítulo 4

# Propiedades magnéticas y Efecto Hall extraordinario en películas delgadas de Fe-rich y películas de multicapas de Fe-rich/Cu

En este capítulo se estudiaron de manera sistemática las propiedades magnéticas y de transporte eléctrico espín dependiente de dos sistemas de películas delgadas basadas en una aleación de hierro enriquecido denominada Fe-rich ( $\text{Fe}_{73,4}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ ). El interés por el estudio de las películas delgadas radica en que las potenciales aplicaciones en sensores magnéticos o dispositivos de almacenamiento usando el efecto Hall extraordinario han ido incrementando con el pasar de los años. Recientemente, la observación del efecto Hall gigante en películas granulares ferromagnéticas aislantes cerca del límite de percolación, con valores de  $200 \mu\Omega\cdot\text{cm}$  [29, 37], a motivado una nueva era en el estudio de la resistividad Hall. En otros estudios incluso se han encontrado valores más altos en películas granulares de FeGe [38, 40] así como un incremento en la

sensibilidad en campos bajos cuando la película exhibe una anisotropía perpendicular al plano de la muestra [41]. Sistemas ferromagnéticos amorfos poseen un alto grado de desorden magnético y por ende, son buenos candidatos para incrementar la interacción espín-órbita, lo que se cree que es la clave para incrementar el valor del efecto Hall extraordinario [42]. Por otro lado, películas magnéticas de multicapas amorfas han sido estudiadas sistemáticamente en magnetos suaves([43, 44]). Los sistemas desarrollados en este estudio están constituidos por películas delgadas de distinto espesor de la aleación pura, y películas delgadas de multicapas de la aleación, intercaladas con películas delgadas de cobre con distinto espesor total y distinto espesor de cada bicapa. Se investigaron las propiedades de magnetotransporte en un amplio rango de temperaturas, desde 13 K a temperatura ambiente. En particular, se comparó el efecto Hall extraordinario en estos dos sistemas en términos del espesor y la estructura de las películas fabricadas. Se observó que las películas más gruesas poseen una anisotropía magnética orientada en el plano de éstas. Al disminuir el espesor de la película ferromagnética la resistividad Hall disminuye y la sensibilidad que puede alcanzar aumenta. Este último efecto también aparece cuando se intercalan películas de Cu entre las de Fe-rich además de incrementar la conductancia eléctrica del material.

## 4.1. Experimento

Para la fabricación de las películas delgadas desarrolladas en este estudio, se utilizaron como sustratos porta objetos comerciales de vidrios. Las películas delgadas de Fe-rich fueron fabricadas por pulverización catódica, en cambio las películas de multicapas de Fe-rich/Cu fueron fabricadas por pulverización catódica secuencial, ambas a temperatura ambiente. Para ambos depósitos se utilizaron blancos comerciales de Fe-rich ( $\text{Fe}_{73,4}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13,5}\text{B}_9$ ) y cobre (Cu) mediante una fuente RF y una fuente DC, respectivamente. El vacío base de la cámara fue de  $2 \times 10^{-7}$  Torr, mientras que la

presión de argón utilizada durante el depósito fue de 5.2 mTorr con un flujo constante de 20 sccm. Antes de comenzar el depósito se pre-pulverizaron los dos blancos por 5 minutos para eliminar las posibles capas de óxidos formados de forma natural sobre estos. Para ambos sistemas de estudio, el control del espesor fue llevado a cabo mediante el tiempo de exposición de cada material previamente calibrados obteniéndose una tasa de depósito de 9 nm/min y 16,2 nm/min para Fe-rich y cobre, respectivamente. Los espesores nominales, según las tasas obtenidas para ambos sistemas de estudio, aparecen detallados en las tablas 6.1 y 6.2. Las propiedades magnéticas de las películas fueron estudiadas via magnetometría clásica utilizando un magnetómetro de campo alterno a temperatura ambiente con el campo magnético aplicado en y fuera del plano de la película. La resistencia y la resistividad Hall fue medida utilizando el sistema de medición de transporte mediante el método de Van der Pauw en función de la temperatura desde 13 K hasta temperatura ambiente.

Muestra	$t_{Fe-rich}$ (nm)
M1	100
M2	500
M3	1000

Tabla 4.1: Conjunto de muestras de películas delgadas de Fe-rich de distinto espesor.  $t_{Fe-rich}$  corresponde al espesor nominal de la película expresado en nm

Muestra	$t_{Fe-rich}$ (nm)	$t_{Cu}$ (nm)	N	th (nm)
S1	100.0	0.0	1	100.0
S2	10.0	1.5	5	57.5
S3	10.0	1.5	10	115.0
S4	10.0	3.0	5	65.0
S5	10.0	4.0	5	70.0
S6	5.0	5.0	10	100.0
S7	2.5	5.0	10	75.0

Tabla 4.2: Conjunto de muestras de películas delgadas de multicapas de Fe-rich/Cu.  $t_{Fe-rich}$  es el espesor de la película de Fe-rich expresado en nm,  $t_{Cu}$  es el espesor de la película de Cu expresado en nm, N corresponde al número de bicapas (Fe-rich/Cu) que exhibe cada película y t espesor nominal total de la película expresado en nm.

## 4.2. Resultados y discusión

### 4.2.1. Películas delgadas de Fe-rich

#### Caracterización microestructural

La figura 4.1 muestra la caracterización microestructural de las películas delgadas de Fe-rich de distinto espesor. Con el objetivo de observar de forma más clara los estados magnéticos de las muestras bajo estudio, se preparó una solución ferrofluída magnética con nanopartículas de tamaño promedio inferior a 50 nm para lo que se utilizó la técnica de microscopía de barrido electrónico coloidal. La superficie de la película fue pintada con esta solución y después de secar fueron observadas en el microscopio. Como resultado se observó que las nanopartículas se orientaron en la dirección de los dominios magnéticos en la superficie de la película al ser aplicados sobre éstas en su estado remanente después de aplicárseles un campo de 1000 Oe. En las muestra M2 y M3 la magnetización forma dominios en forma de líneas a través de la película. En el caso de M1 no es posible observar el mismo tipo de dominio magnético lo que puede indicar cambios en la microestructura de la muestra al disminuir el espesor de la película, sin descuidar el hecho de que el espesor de M1 es comparable con el espesor promedio de las nanopartículas de la solución ferrofluída.

#### Caracterización Magnética

En la figura 4.2 se muestran las curvas de histéresis de las películas continuas de Fe-rich de distinto espesor con el campo magnético aplicado en y fuera del plano de las películas. Se puede observar una fuerte anisotropía magnética en el plano de éstas, donde en particular para la muestra M1 la relación entre la magnetización y el

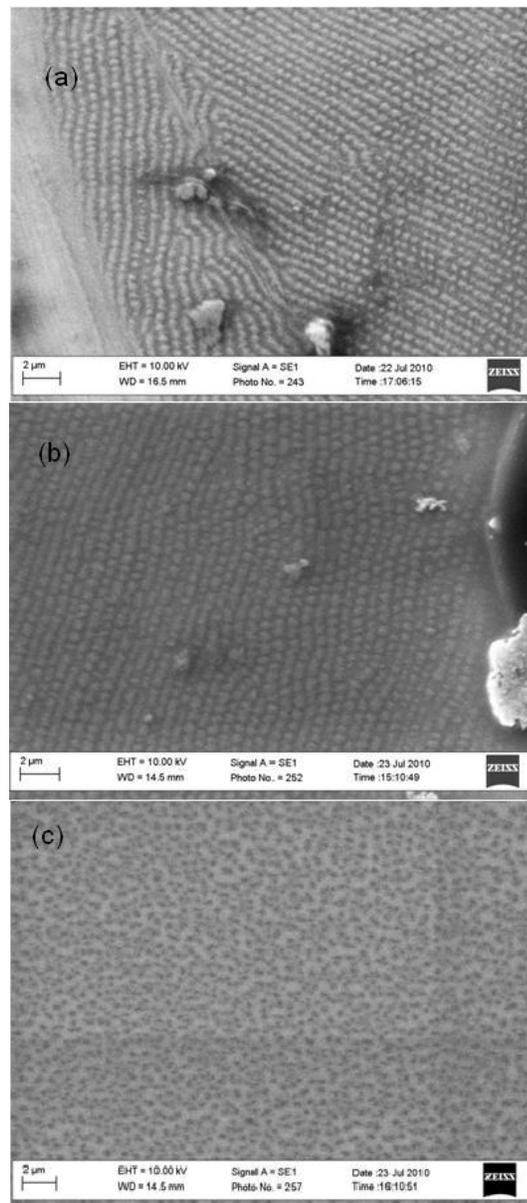


Figura 4.1: Imágenes de microscopía de barrido electrónico de las películas de Fe-rich con distinto espesor, a) M3, b) M2, c) M1.

campo magnético aplicado en el plano comienza a ser menos cuadrada indicando que la disminución considerable del espesor de la película puede dar paso a películas menos continuas, teniendo un formato más granular en su estructura interna.

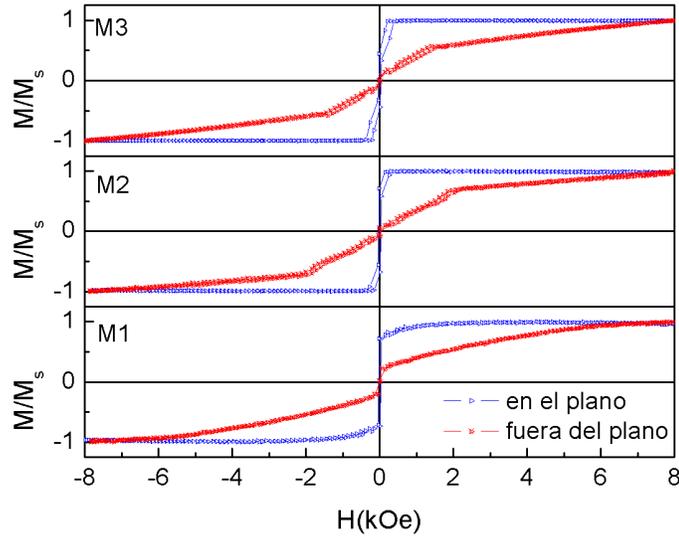


Figura 4.2: *Curvas de histéresis de las películas delgadas de Fe-rich con distinto espesor a temperatura ambiente.*

### Caracterización eléctrica y de magnetotransporte

La resistividad Hall en función del campo magnético aplicado fue medida para las tres muestras a temperatura ambiente. Los resultados de esta medición aparecen en la figura 4.3 donde es posible notar inmediatamente que existe un considerable aumento en el valor de la resistividad Hall a medida que disminuye el espesor de la película, así como también una reducción del campo de saturación requerido por la muestra bajo este mismo efecto, obteniéndose una sensibilidad de  $1.3 \Omega/T$ . El incremento del efecto Hall en la película más delgada se puede atribuir al incremento de los eventos de dispersión que ocurren en la película, los que eventualmente escalan con la resistividad de la muestra. Como la medición del efecto Hall es realizada con el campo magnético aplicado de manera perpendicular al plano de la película, la disminución del campo de saturación es una consecuencia directa de una disminución de la anisotropía en el plano que poseían las películas más gruesas tal como se observa en la figura 4.2.

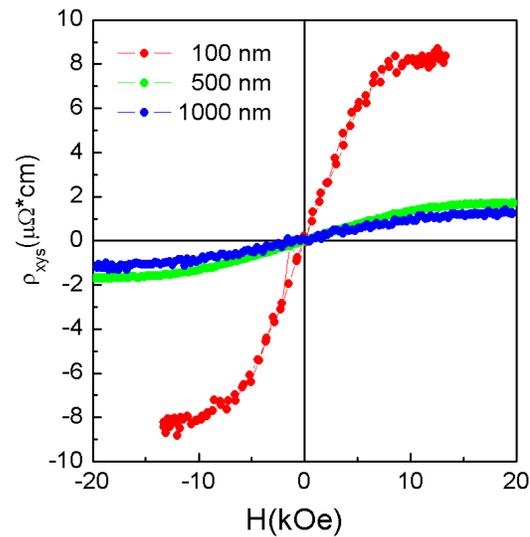


Figura 4.3: Resistividad Hall en función del campo magnético aplicado de las películas delgadas de Fe-rich con distinto espesor a temperatura ambiente.

Para investigar el efecto de una reducción aún mayor del espesor de las películas sobre la resistividad Hall se decidió intercalar películas de cobre entre las películas de Fe-rich de modo de impedir el incremento sustancial de la resistividad de las muestras, ya que debido a un explosivo incremento de esta cantidad, la medición de la resistividad Hall no es posible.

### 4.2.2. Películas de multicapas de Fe-rich/Cu

#### Caracterización microestructural

Para confirmar la estructura de multicapas de las películas de Fe-rich/Cu, se realizaron mediciones de difracción de rayos X de bajo ángulo en el Departamento de Física de la Universidad Federal de Santa María (figura 4.4) en las que se observa una buena definición de las estructuras de las bicapas de las películas en las figuras 4.4 (b), 4.4 (c) y 4.4(d). También se puede observar en la figura 4.4 (a) *Kiessing fringes* relacionados con la interferencia constructiva de los rayos X reflejados en la interfase substrato-película y película-aire. Por otro lado, es posible estimar el espesor de la muestra a partir de la periodicidad de los peaks de Bragg, lo cual arroja como resultado para la muestra S1 un espesor de 95,7 nm lo que no está muy alejado de nuestro espesor nominal de 100 nm obtenido mediante la calibración de las tasas de depósito de la pulverización catódica.

La periodicidad de los peaks de Bragg está relacionada con la interferencia constructiva de las bicapas de Fe-rich/Cu y se observa un corrimiento de los peaks de Bragg a bajos ángulos con el incremento del espesor de la capa de Cu. Se puede apreciar que la intensidad relativa de los peaks comienza a caer rápidamente a medida que el espesor de las capas de Cu disminuye. Como el espesor de cada capa es del orden de tan sólo unos pocos nanómetros, no es difícil imaginar que con la disminución del espesor de las capas de la película, éstas comienzan a presentar un estructura granular.

#### Caracterización magnética

La figura 4.5 muestra las curvas de histéresis a temperatura ambiente de las películas de Fe-rich/Cu. Todas las muestras presentan un comportamiento ferromagnéti-

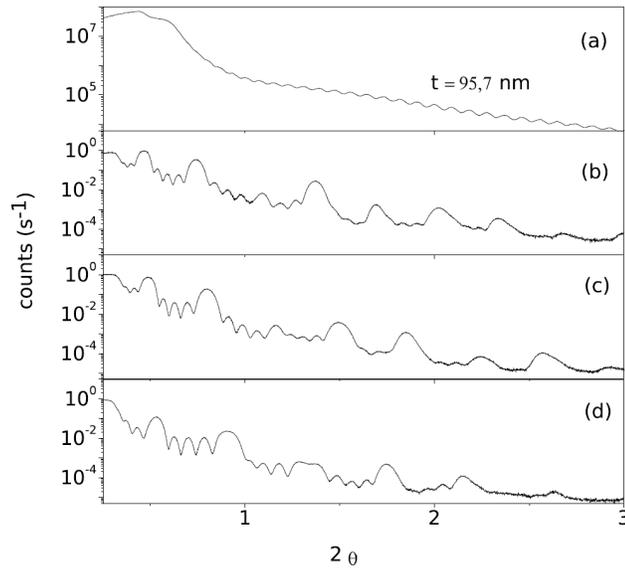


Figura 4.4: Patrón de difracción de rayos X del conjunto de películas de multicapas de la aleación Fe-rich/Cu según las etiquetas puestas en la tabla 6.2 (a) S1, (b) S7, (c) S6 y (d) S2. El espesor  $t$  de la muestra S1 fue obtenido mediante análisis de la difracción de los peaks de Bragg confirmando el espesor nominal de 100 nm.

co suave a temperatura ambiente con campos coercitivos del orden de los 10 Oe. Los momentos magnéticos de las capas ferromagnéticas tienden a ser fácilmente magnetizados en el plano de la película sin variar mucho su resultado, en comparación con las películas de Fe-rich, sin embargo las diferencias que existen entre los campos aplicados en y fuera del plano de la muestra son menos pronunciadas cuando el espesor relativo de la capa de Cu aumenta, y de forma aún más marcada en las muestras S6 y S7. Esto sugiere y confirma que en las películas de multicapas, el espesor de la aleación magnética es tan delgada que tiende a formar capas granulares intercaladas por capas de Cu.

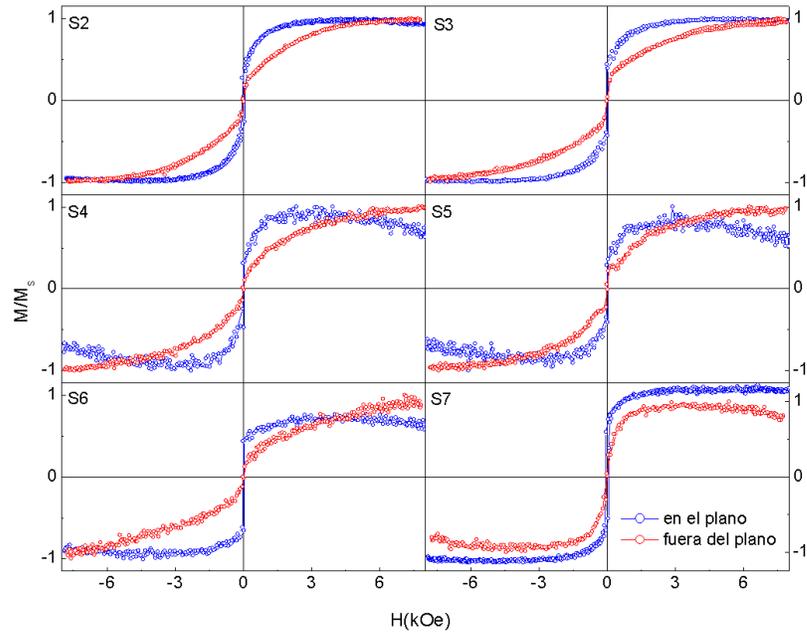


Figura 4.5: *Curvas de histéresis a temperatura ambiente de las películas de multicapas de Fe-rich/Cu con diferentes espesor y número de bicapas.*

### Caracterización eléctrica y de magnetotransporte

El coeficiente térmico-resistivo (TCR *temperature coefficient of resistance*) de las muestras fue medido descendiendo la temperatura desde la temperatura ambiente hasta 12 K (ver figura 4.6). Acá la temperatura es mostrada en escala logarítmica y el valor de la resistencia es normalizado al valor que posee en la temperatura mínima (12 K). En las muestra S1, S2 y S3, se aprecia un TCR negativo con una dependencia logarítmica de la resistencia en función de la temperatura ( $\propto -\log T$ ), que es característico de películas con un comportamiento altamente resistivo. Por otro lado las muestras S4, S5, S6 y S7 tienen un comportamiento típicamente metálico con un TCR positivo en todo el rango de temperaturas estudiado. El TCR negativo de las tres primeras muestras puede ser asociado a una interacción débil del sistema electrón-electrón en un sistema metálico

desordenado.

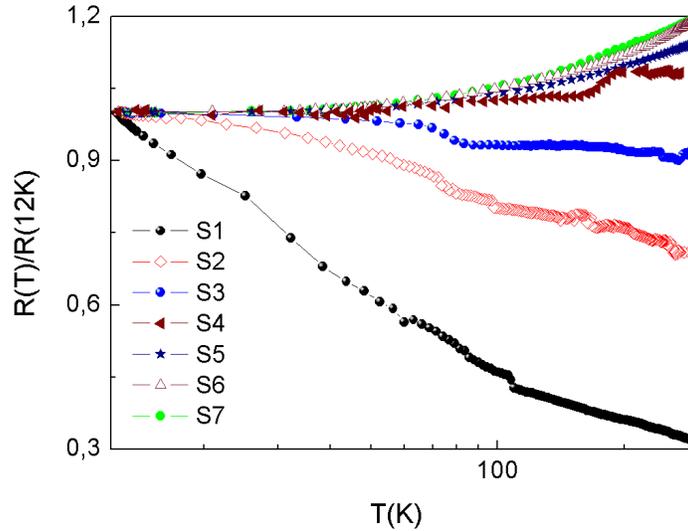


Figura 4.6: *Coefficiente Térmico-Resistivo de las películas de multicapas de Fe-rich/Cu con diferentes espesor y número de bicapas.*

Por otra parte, se estudió la resistividad Hall para el sistema completo a temperatura ambiente y 12 K. Los resultados obtenidos aparecen en la figura 4.7 donde la resistividad se muestra en escala logarítmica. Uno puede notar que a medida que el filme se vuelve más metálico, la resistividad Hall satura a campos menores. Como el espesor de la película metálica de Cu incrementa, la capa ferromagnética comienza a ser menos continua y la anisotropía en el plano también comienza a decrecer, tal como se puede observar a partir de la histéresis magnética de la figura 4.2. La muestra S1 presenta el valor más alto de resistividad Hall de todas las muestras. Para esta muestra se obtiene el valor de  $\rho_{xys}=7.94 \mu\Omega\cdot\text{cm}$  a temperatura ambiente y aumenta hasta  $\rho_{xys}=20 \mu\Omega\cdot\text{cm}$  a bajas temperaturas (12 K).

Finalmente, la figura 4.8 muestra la resistividad Hall de la muestra S7 en función del campo magnético aplicado medida a 12 K. Acá es posible observar que la curva presenta histéresis y un campo coercitivo asociado a la medición de la resistividad Hall

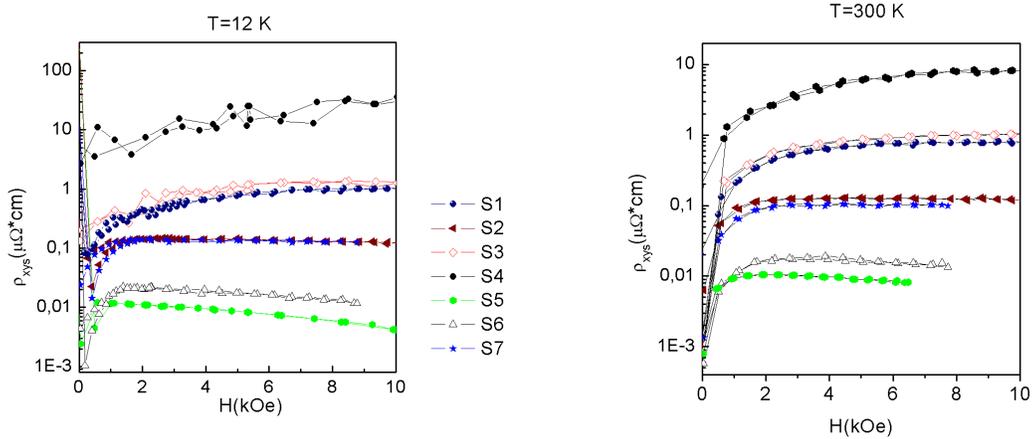


Figura 4.7: Resistividad Hall en escala logarítmica en función del campo magnético aplicado a  $T=12$  K y temperatura ambiente para las películas de multicapas de Fe-rich/Cu tabuladas en la tabla 6.2.

de 200 Oe. Para ésta muestra, la histéresis en la curva de Hall desaparece a temperaturas superiores a 25 K. En el caso mostrado en la figura 4.8 se puede observar una histéresis acinturada. Este tipo de curvas son características en sistemas compuestos por diferentes materiales, y en este caso puede ser asociado a la presencia de dos fases magnéticas, una fase magnética dura y otra fase magnética suave que están acopladas. Las capas magnéticas de Fe-rich, como en el caso de la muestra S7, están usualmente formada por una fase magnética suave y amorfa que presenta un pequeño campo coercitivo y otra fase magnética dura con granos nanocristalinos que poseen un alto campo coercitivo a bajas temperaturas. El bloqueo de las partículas superparamagnéticas es el responsable por la coercividad a bajas temperaturas.

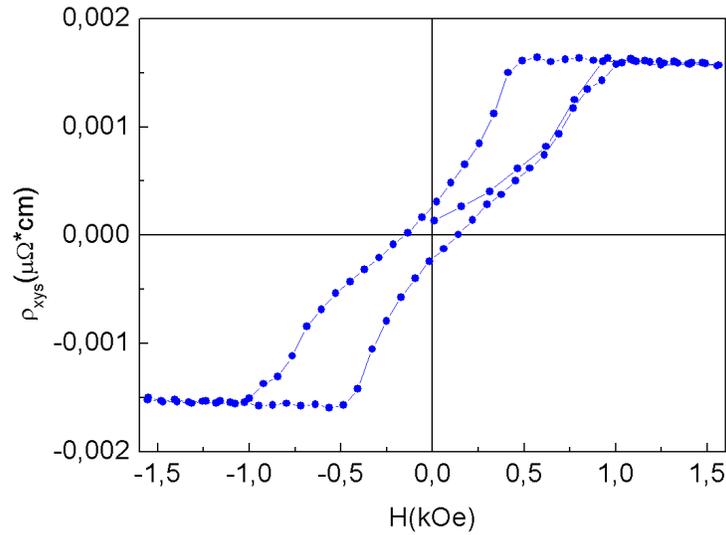


Figura 4.8: Resistividad Hall de la muestra S7 medida a 12 K.

### 4.3. Conclusión

Se midió el efecto Hall extraordinario en películas delgadas de Fe-rich y en películas delgadas de multicapas de Fe-rich/Cu. El aumento del valor de la resistividad Hall, cuando el espesor relativo de la película de Cu se incrementa, produce un aumento de la sensibilidad hasta un valor de  $1.3 \Omega/T$  bajo campos relativamente pequeños, mientras que en el caso de las películas aislantes fabricadas es de tan solo  $0.5 \Omega/T$  [11]. Por otro lado, la fuerte anisotropía magnética en el plano mostrada por las películas delgadas de Fe-rich disminuye cuando el espesor de la capa metálica se incrementa en las películas de multicapas. A su vez, la fabricación de películas de multicapas de Fe-rich/Cu reduce notoriamente la resistividad de la muestra y permite la formación de estructuras granulares al reducir de forma considerable el espesor de la capa de Fe-rich, disminuyendo el valor de la resistividad Hall.

# Capítulo 5

## Efecto Hall extraordinario en películas delgadas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> con distintos tipos de geometrías

En este capítulo se estudió el efecto Hall extraordinario en películas delgadas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> con distintos tipos de geometrías en un amplio rango de temperatura desde 13 K a temperatura ambiente. Las muestras estudiadas corresponden a películas porosas con una dispersión ordenada de poros, películas porosas con una dispersión desordenada de poros, películas de nanodornos y películas continuas, a modo de establecer el efecto de la nanoestructuración de esta última sobre el efecto estudiado. Para la fabricación de la película se realizó el depósito de modo tal de obtener muestras cuya concentración relativa se encontraba sobre la transición metal aislante. Se observó que la resistividad Hall tiene su máximo valor para la película continua y decrece cuando la cantidad de material relativo depositado sobre la película disminuye.

Por otro lado, se observó la aparición de histéresis en las curvas de resistividad Hall en función del campo magnético aplicado para todas las muestras, aumentando esta característica cuando la temperatura disminuye, además de obtener bajos campos de saturación para todas las muestras. Finalmente, se observa que el alto campo coercitivo asociado a la resistividad Hall posee una dependencia con la temperatura, indicando que los mecanismos de transporte varían con el cambio del sustrato.

## 5.1. Experimento

Las películas delgadas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> de  $\approx 60$  nm de espesor nominal fueron fabricadas por co-pulverización catódica sobre distintos sustratos a temperatura ambiente. Se utilizaron blancos comerciales para el depósito, uno de Ni mediante una fuente DC, y otro de SiO<sub>2</sub> mediante una fuente RF. El blanco de Ni fue previamente calibrado mediante observación en el microscopio de barrido electrónico obteniéndose una tasa de 3.5 nm/min. Por otro lado, la calibración del blanco de SiO<sub>2</sub> no fue posible medirla mediante esta técnica debido al poco contraste generado en el microscopio, por lo que se decidió realizar un conjunto de películas continuas donde se variarían los parámetros del depósito a modo de obtener la concentración relativa sobre la transición metal aislante. El objetivo de esta configuración para la fabricación de las películas radica en la observación de un incremento de la resistividad en películas de multicapas de una fase magnética y otra fase aislante, como es el caso del SiO<sub>2</sub> y también cuando la fase magnética se encuentra embebida en una matriz aislante, que es el caso que vamos a estudiar [30, 72–75]. La determinación correcta del comportamiento eléctrico de las películas fabricadas fue realizado por medio de las curvas de resistencia en función de la temperatura, para ello se utilizó el sistema de medición de transporte mediante la técnica de van der Pauw desde 13 K a temperatura ambiente. Este mismo sistema fue utilizado para la medición posterior de la resistividad Hall para el conjunto final de

muestras estudiadas. La figura 5.1 muestra el comportamiento eléctrico de las muestras fabricadas. Los parámetros utilizados en la fabricación de la muestra aparecen en la tabla 5.1 donde se utilizó un vacío base de  $3 \times 10^{-6}$  Torr y una presión de argón de 3 mTorr para cada una de ellas.

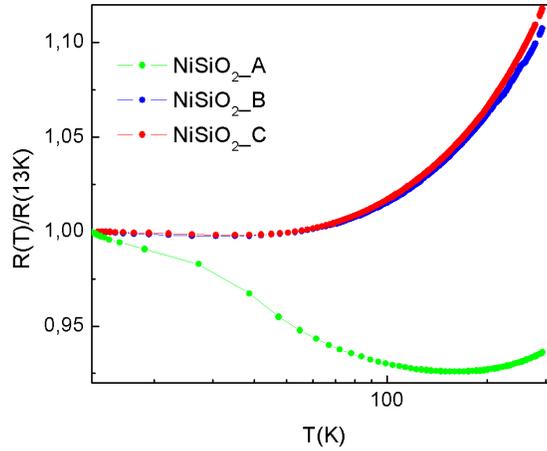


Figura 5.1: Coeficiente térmico-resistivo de las películas delgadas de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> tabuladas en la tabla 5.1

Muestra	P[Ni] (W)	P[SiO <sub>2</sub> ](W)	t(min)
NiSiO <sub>2</sub> A	15	100	16
NiSiO <sub>2</sub> B	30	100	8
NiSiO <sub>2</sub> C	40	100	8

Tabla 5.1: Parámetros del depósito utilizados para la fabricación de películas delgadas de Ni-SiO<sub>2</sub>. P[Ni] corresponde a la potencia en Watts utilizada por la fuente DC para activar el blanco de Ni, P[SiO<sub>2</sub>] corresponde a la potencia en Watts utilizada por la fuente RF para activar el blanco de SiO<sub>2</sub>, t corresponde al tiempo utilizado para el depósito de ambos materiales

En base a estos resultados la concentración utilizada para la fabricación de las muestras bajo estudio corresponde a los parámetros de la muestra Ni-SiO<sub>2</sub> B. De esta forma, utilizando las mismas condiciones de la cámara de pulverización se procedió a hacer el depósito de las películas sobre todos los substratos al mismo tiempo para asegurar la misma composición de las muestras. Como substrato se utilizaron un porta objeto

(vidrio) para la película continua (FILM), y membranas de alúmina porosa con distinta dispersión de poros, una con poros ordenados de manera hexagonal para obtener una película porosa ordenada (OADOTs), otra membrana sin el ordenamiento característico para obtener una película porosa desordenada (DADOTs) y finalmente una membrana con poros ordenados donde el depósito se realizó en la parte cerrada de ésta, con lo que se obtuvo una película de nanodomas (DOTs). La caracterización microestructural y la medición del espesor de la película depositada (FILM) fue realizada por medio de un microscopio electrónico de barrido, esta última medición confirmó que el espesor de la película es de  $\approx 60$  nm.

## 5.2. Resultados y Discusión

### Caracterización microestructural

La figura 5.2, corresponde a la caracterización microestructural de las películas porosas ordenadas (OADOTs), desordenadas (DADOTs) y la película de nanodomas (DOTs) de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> mediante la utilización de un microscopio de barrido electrónico. En la imagen de OADOTs, es posible observar que el material depositado forma una especie de caminos periódicos a lo largo de toda la película, lo que puede ayudar a la conducción de los portadores de carga en la muestra, ignorando las impurezas introducidas por la membrana. En cambio, este planteamiento no puede ser utilizado en la película porosa desordenada, debido a que la no periodicidad en la continuidad de ésta impide este tipo de configuración, lo que podría tener un efecto aislante sobre sí misma. Finalmente la película de nanodomas posee una geometría regular donde se puede observar una estructura en forma de domo sin mayores alteraciones. No se puede asegurar que el borde de este domo sea vacío, ya que probablemente una pequeña cantidad de material sea depositada en él. Este hecho marca una notoria diferencia en

comparación a las otras películas debido a que se estaría afectando de forma radical la periodicidad de la conducción a lo largo de ella. Se supone que en estos espacios intersticiales entre cada domo, la película sería tan delgada que anclaría la magnetización, provocando que los dominios magnéticos no se propagasen de forma tan sencilla a través de la película, favoreciendo o incrementando el valor de la resistencia medida, en este caso la resistividad Hall. Mediante análisis de imagen, es posible obtener las dimensiones características de cada muestra estudiada. Estos valores aparecen tabulados en la tabla 5.2.

Muestra	d (nm)	D (nm)
OADOTs	51,10	108,81
DADOTs	68,85	—
DOTs C	86,80	105,99

Tabla 5.2: Dimensiones características de las películas de Ni-SiO<sub>2</sub> con distintas geometrías. d corresponde al diámetro del elemento (poros y domos). D corresponde a la distancia entre centros de cada elemento.

### Caracterización eléctrica y de magnetotransporte

En la figura 5.3, es posible observar la dependencia de la resistencia de las películas en función de la temperatura normalizada al valor de la resistencia a la temperatura mínima (13 K). Las mediciones se realizaron a medida que bajaba la temperatura desde temperatura ambiente hasta 13 K. La línea negra es una muestra agregada a este sistema y corresponde a una película continua de níquel para tener de referencia el comportamiento de una muestra completamente metálica. Cuando se incluye la matriz aislante al sistema podemos notar un incremento en el valor de la resistencia de la película. La curva roja caracteriza este efecto ya que corresponde a la película continua de la aleación.

Las muestras FILM, OADOTs y DADOTs, muestran un comportamiento que

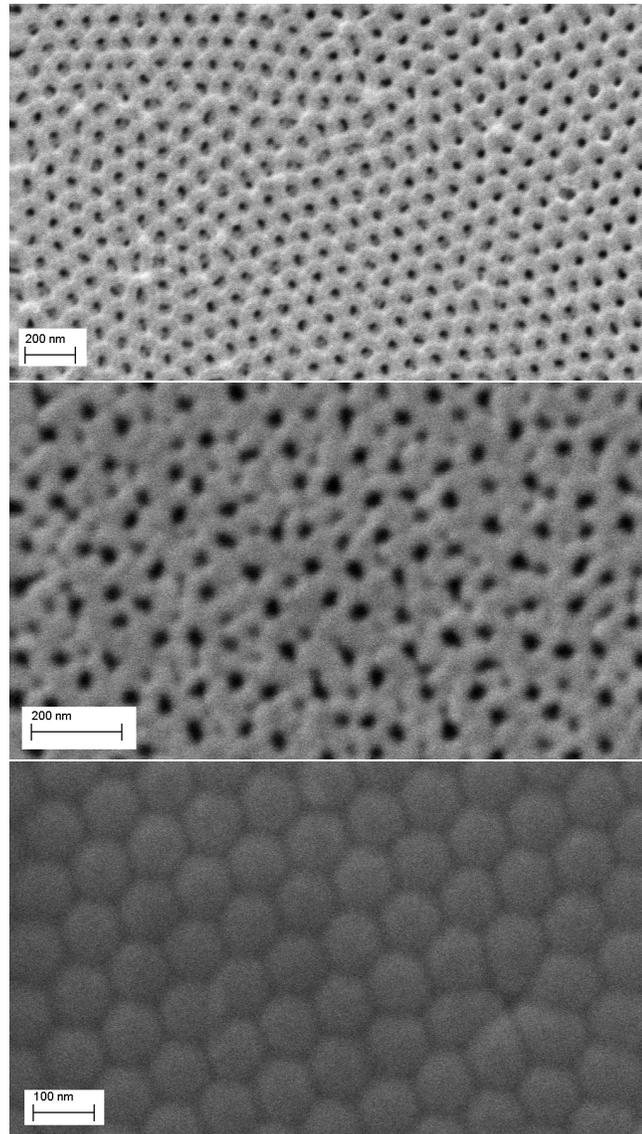


Figura 5.2: Imágenes de microscopía de barrido para películas delgadas de la aleación  $Ni-SiO_2$  cuya concentración se encuentra sobre la transición metal aislante con diferentes geometrías. a) Película porosa con una dispersión ordenada de poros (OADOTs). b) Película porosa con una dispersión desordenada de poros (DADOTs). c) película de nanodomas ordenados (DOTs).

tiende a ser metálico tal como la película continua de Ni con una dependencia de la resistencia proporcional a  $\log(T)$  a partir de una temperatura crítica. Sin embargo es notorio que no es un comportamiento completamente metálico y es posible concluir que los parámetros del depósito sitúan a estas muestras sobre la transición metal aislante.

Este tipo de dependencia térmica es atribuida a una débil localización de la interacción del sistema electrón-electrón en un sistema metálico desordenado [39]. Además se puede observar que la inclusión de los poros sobre la película, ya sea de forma periódica o no periódica, no afecta a gran escala el comportamiento eléctrico de la aleación que pese a observar un pequeño cambio, la película sigue estando sobre la transición metal aislante, por lo que podemos asumir que los mecanismos de transporte para estas muestras no varían con la nanoestructuración de la película.

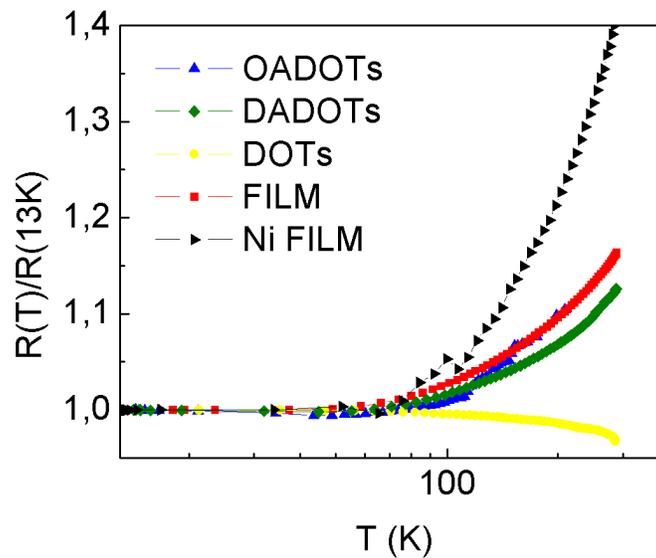


Figura 5.3: Coeficiente térmico-resistivo de las películas de  $Ni-SiO_2$  con distintas geometrías. El conjunto triángulos negros corresponde a una película continua de  $Ni$ . Los cuadrados rojos corresponden a la película continua de la aleación. El resto de las curvas representan a las películas nanoestructuradas donde las triángulos azules corresponden a la película con una distribución ordenada de poros, los diamantes verdes corresponden a la película con una distribución de poros desordenada y las círculos amarillos se relacionan con la película de nanodomas.

Por otro lado podemos ver la incidencia directa de la estructuración provocada por los nanodomas sobre la película continua, cambiando de forma radical el comportamiento eléctrico de la aleación pasando a ser una muestra bajo la transición metal aislante donde la dependencia de la resistencia es  $\propto -\log(T)$ , lo que implica que en este tipo de películas los mecanismos de transporte son distintos al de las otras pelícu-

las del conjunto. Este cambio puede ser atribuido a que el material depositado en los espacios intersticiales de los domos es mucho menor que en la parte superior de éstos, produciéndose una acumulación de los portadores de carga en estos lugares debido a que el efecto de la disminución del tamaño de la película permitirá obtener películas granulares de la fase magnética que la constituye.

La resistividad Hall en función del campo magnético aplicado a 13 k y a temperatura ambiente aparece en la figura 5.4. En ella, podemos observar que para la temperatura mínima el valor de  $\rho_{xys}$  no varía mucho en comparación con el valor medido a temperatura ambiente, sin embargo es posible observar un incremento de la histéresis para cada muestra a medida que disminuye la temperatura. Otro dato importante sobre esta medición es la reducción considerable del campo de saturación necesario, en comparación con muestras similares pero 6 veces más gruesas [76], debido a que la fuerte anisotropía magnética en el plano usualmente observada en películas granulares del orden de  $\approx 10^2$  nm de espesor dificulta la saturación de los momentos magnéticos fuera del plano de la película. También se puede apreciar un efecto en la reducción del valor de la resistividad Hall debido a la nanoestructuración de la película. La resistividad que posee una película será siempre proporcional a la cantidad de material depositada sobre ésta, pero en este caso particular, donde el proceso de pulverización fue realizado al mismo tiempo sobre todos los substratos, las condiciones originales respecto a la película continua y la gran responsable de este dato corresponde a la microestructura que posee cada substrato. Las películas porosas con una distribución de poros ordenada y desordenada muestran los valores más bajos para la resistividad Hall con  $0.16 \mu\Omega \cdot \text{cm}$  y  $0.24 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ , respectivamente. En comparación a estos dos últimos valores, la película de nanodomos presenta un importante incremento (aún menor en comparación con la película continua) de la resistividad Hall alcanzando un valor aproximado  $0,98 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ . Ahora para confirmar si éste es realmente un efecto de la estructuración de la película se debe considerar que como los substratos utilizados no son continuos, es necesario poder estimar el valor de la resistividad en función de la película continua para cada una de

las muestras y así identificar si la reducción de la resistividad es dada netamente por un efecto de reducción de la cantidad de material depositado. Para ello, mediante análisis de las imágenes de las microscopías de barrido, se determinó la cantidad de material depositado que debía haber en la película considerando que las muestras bajo estudio son sistemas planos de espesor constante, lo que no es válido específicamente para la película de nanodomos pero se puede considerar como una buena aproximación. Estos resultados aparecen graficados en la figura 5.5. El área efectiva calculada usando este procedimiento da cuenta de que los porcentajes en comparación con la película continua, en los que se debe reducir el valor de la resistividad Hall son de un 76,9 %, 89,7 % y 89,3 % para las muestras DOTs, DADOTs y OADOTs, respectivamente. En este último gráfico es posible que la variación debida a una eventual disminución de la cantidad de material depositado corresponda principalmente al hecho de la estructuración de la película y en particular para las películas porosas sigue el mismo comportamiento planteado por el cálculo.

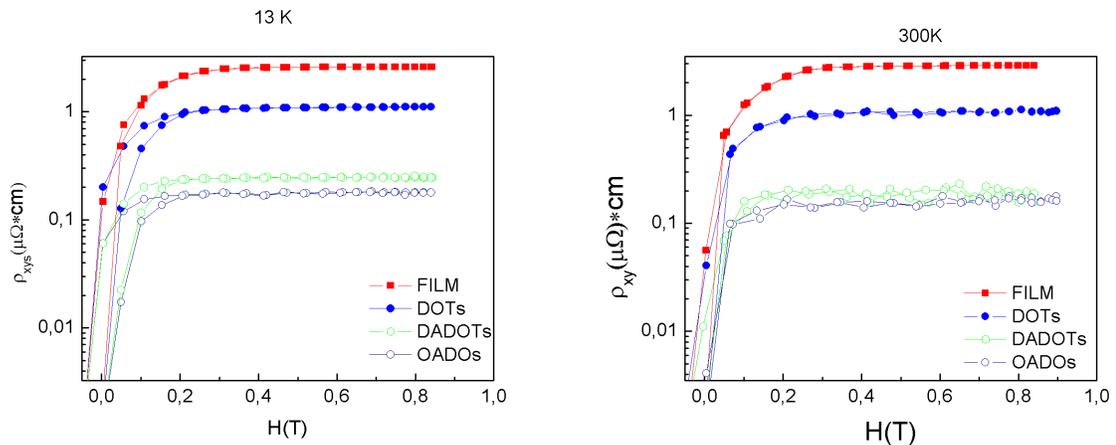


Figura 5.4: Dependencia de la resistividad Hall en escala logarítmica en función del campo magnético aplicado de las películas delgadas de Ni-SiO<sub>2</sub> con distintas geometrías: FILM (cuadrados rojos), DOTs (círculos azules), OADOTs (circunferencias azules) y DADOTs (circunferencias verdes)

Para las películas porosas con distribución de poros ordenados y desordenados se observa que los valores de la resistividad Hall son bastantes similares. Así, es posible

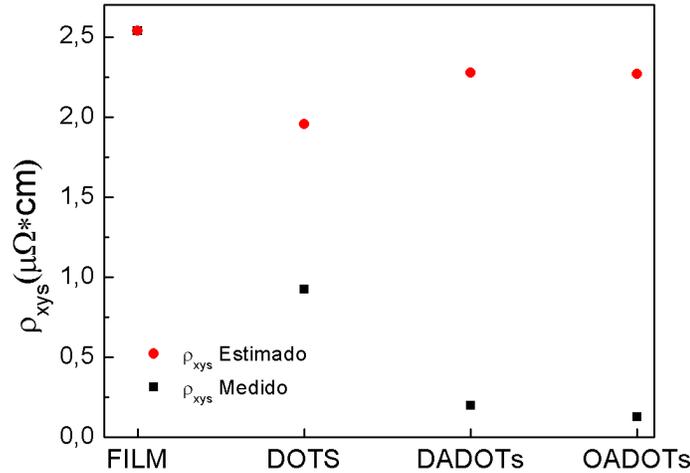


Figura 5.5: Resistividad Hall medida (cuadrados negros) comparada con la resistividad Hall estimada a partir de análisis de imágenes (círculos rojos) de las películas delgadas de Ni-SiO<sub>2</sub> con distintas geometrías en función del área superficial de la película continua.

argumentar que la conducción de los portadores de carga a través de la película están dominados por mecanismos intrínsecos y extrínsecos donde las fuentes de dispersión se encuentran principalmente en la matriz aislante. En la película de nanodomos, la resistividad Hall normalizada es mayor. Esto es consecuencia directa debido al poco material depositado en los espacios intersticiales de los domos, logrando anclar las paredes de dominio a lo largo de la película representado en un comportamiento eléctrico totalmente diferente al de las otras películas nanoestructuradas. El incremento de la resistividad Hall puede ser relacionado con que la conducción de los portadores de carga pasan a ser dominados por los mecanismos de saltos laterales [8].

Por otra parte, como la resistividad Hall es proporcional a la magnetización, es posible asociar un campo coercitivo a la histéresis que presenta esta cantidad en función del campo, el que no implica que el valor de la magnetización en ese punto sea cero, si no que corresponde a una relación directamente proporcional entre la magne-

tización y el campo coercitivo asociado, mediante una constante de proporcionalidad que corresponde a la razón entre los coeficientes de Hall asociados a la contribución normal realizada por la fuerza de Lorentz y la contribución extraordinaria debida a la dispersión asimétrica de los momentos magnéticos en el material ([9, 10]). Esta relación permitirá obtener información de la configuración magnética del sistema en función de la temperatura. La figura 5.6 muestra la relación entre los campos coercitivos asociados a la resistividad Hall en función de la temperatura.

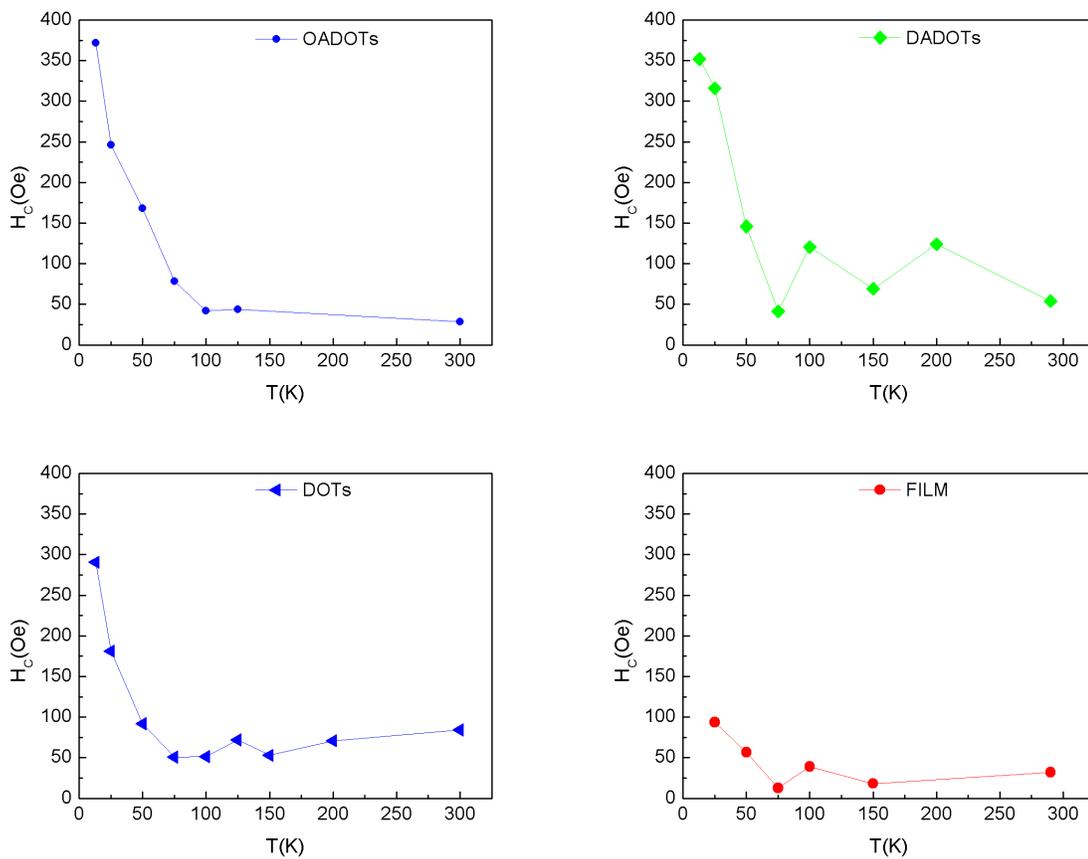


Figura 5.6: Dependencia del Campo coercitivo  $H_{CH}$  asociado a la medición de la resistividad Hall con la temperatura de las películas delgadas de la aleación  $Ni-SiO_2$ .

Este gráfico permite obtener un visión más clara del efecto de la estructuración de la película continua sobre las propiedades magnéticas y de transporte eléctrico espín dependiente en conjunto. Para la película continua, cuando disminuye la temperatura,

el incremento del campo coercitivo asociado a la resistividad Hall aumenta levemente de acuerdo al comportamiento paramagnético de una película delgada donde la magnetización de la nanopartículas de níquel se bloquean a bajas temperaturas. En este punto es necesario hacer hincapié en que la película está constituida por nanopartículas de níquel inmersas en una matriz aislante de dióxido de silicio, lo que implica que la fase magnética se encuentra en una configuración granular donde, a temperatura ambiente, pasa a tener un comportamiento superparamagnético y la histéresis que aparece se debe principalmente a la interacción de estas en la matriz aislante. Al disminuir la temperatura, los momentos magnéticos de estas nanopartículas se bloquean, además del hecho de que la conducción de los portadores de carga es exclusivamente vía eventos de dispersión y no por medio de activación térmica, permite el incremento de este campo coercitivo. Por otro lado, es necesario recordar que la medición de la resistividad Hall es realizada con el campo aplicado de manera perpendicular al plano de la película, lo que representa una dificultad mayor al alinear los momentos magnéticos fuera del plano de crecimiento. El efecto de la nanoestructuración de la película representa un cambio importante en la configuración magnética y es este hecho el que incide en el aumento del campo coercitivo asociado a la resistividad Hall, el que presenta un comportamiento de la forma exponencial en función de la temperatura  $\propto e^{-t}$ . Los valores máximos obtenidos son de 367 Oe, 347 Oe y 290 Oe para las películas delgadas con una distribución de poros ordenados, con una distribución de poros desordenadas y la película de nanodomas, respectivamente, medido a una temperatura de 13 K.

Para estudiar el efecto de los poros y de la inclusión de la matriz aislante en el campo coercitivo asociado a la resistividad Hall a bajas temperaturas, se fabricaron tres muestras distintas. La figura 5.7, podemos ver tres gráficas correspondientes al campo coercitivo asociado a la resistividad Hall en función de la temperatura para las tres películas distintas. La figura 5.7 a), corresponde a una película porosa de níquel donde se puede observar el efecto de la nanoestructuración provocada por la membrana de alúmina porosa con una dependencia lineal de  $H_{CH}$  con la temperatura. En la figura

5.7 c) corresponde a una película continua de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> en la concentración de la transición metal aislante. Aquí se puede ver que el incremento es mucho menor que en la película porosa de níquel pero la dependencia exponencial de  $H_{CH}$  con la temperatura es debida principalmente a la matriz aislante donde se encuentran embebidas las nanopartículas de níquel. Finalmente, la figura 5.7 a) corresponde a una película porosa de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> con distinto diámetro de poros de las muestras anteriormente estudiadas donde se puede apreciar que existe un aumento considerable en el valor del campo coercitivo asociado a la medición de la resistividad de Hall cuando la temperatura disminuye, siendo consistente con las figuras previamente explicadas.

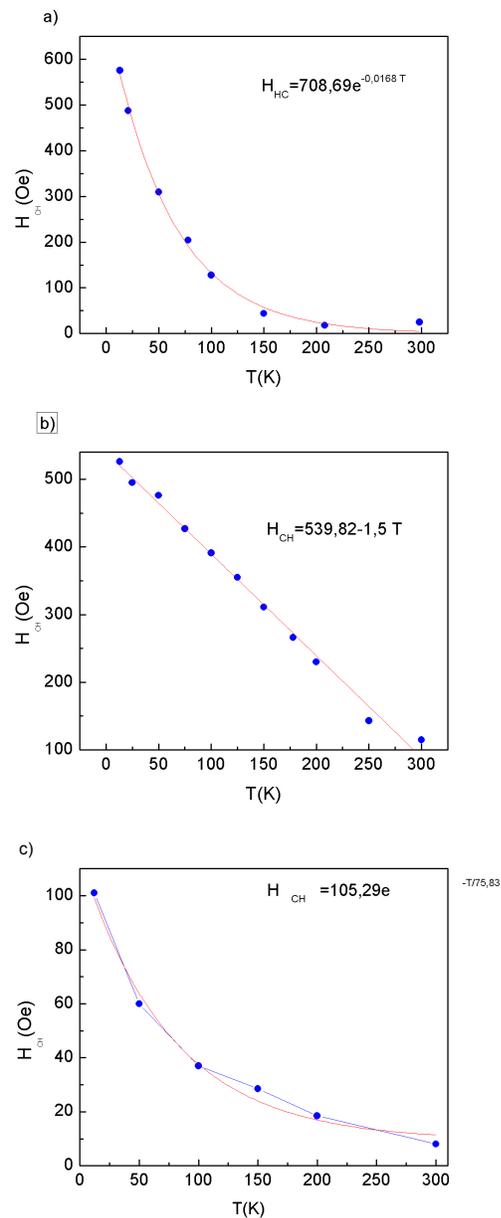


Figura 5.7: Dependencia del campo coercitivo  $H_{CH}$  asociado a la medición de la resistividad Hall con la temperatura para a) película porosa de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> en la misma concentración de las muestras de este estudio, pero con distinto diámetro de poros. b) Película porosa de Ni. c) Película continua de la aleación Ni-SiO<sub>2</sub> en la misma concentración del estudio.

## 5.3. Conclusión

En este capítulo se estudió el efecto sobre la resistividad Hall de la estructuración de una película continua mediante la utilización de tres sustratos distintos. Se fabricaron películas delgadas granulares de la aleación NiSiO<sub>2</sub> en la concentración de la transición metal aislante con distintas geometrías: películas porosas con una distribución ordenada poros (OADOTs), películas porosas con una distribución desordenada de poros (DADOTs) y películas de nanodomos ordenados (DOTs). Mediante la medición de la resistencia de la película en función de la temperatura se observó una variación en el comportamiento eléctrico de la muestra DOTs. Este comportamiento más aislante de ésta muestra es el responsable del aumento en el valor de la resistividad Hall de hasta 4 veces en comparación con las películas porosas y puede ser asociado al mecanismo de saltos laterales donde  $\rho_{xy} \propto \rho_{xx}^2$ .

La resistividad de Hall no escala linealmente con la cantidad de material depositado sobre el sustrato principalmente para las películas porosas, lo que implica que los canales de conducción a lo largo de la película no se ven afectados por la adición de esta geometría. Así, una reducción en el tamaño de los poros permitirá un aumento en el valor de la resistividad Hall.

A bajas temperaturas se observa un incremento en la histéresis observada en la medición de la resistividad Hall en función del campo magnético aplicado. En este punto, los mecanismos de conducción dominantes son los producidos por la interacción espín-órbita, haciendo que la contribución ferromagnética debido a los eventos de dispersión sea mucho mayor que la contribución normal del efecto Hall. Se pudo clarificar cómo es la dependencia de campo coercitivo asociado a la resistividad Hall en función de la temperatura, donde el máximo incremento es observado para las películas porosas. Separando los parámetros asociados se pudo determinar cómo varía explícitamente este campo en función de la temperatura. Si se tiene una película continua de una fase

---

magnética inserta en una matriz aislante, se observará una relación exponencial entre estas dos variables de la forma  $H_{CH} \propto Ae^{-T/B} - C$ . Si se tiene una película porosa de una sola fase magnética, se obtiene un valor alto del campo coercitivo con una dependencia lineal con la temperatura. Finalmente, si se posee una película porosa de una fase magnética inmersa en una matriz aislante, ambos efectos anteriormente nombrados se sumarán obteniéndose una dependencia de la forma  $H_{CH} \propto Ae^{-BT}$ .

## Capítulo 6

# Propiedades magnéticas y efecto Hall extraordinario en películas delgadas de nanodomos de Níquel de distinto espesor

Es este capítulo se estudiaron las propiedades magnéticas y la resistividad Hall en películas delgadas de nanodomos de níquel de 20, 40, 60 y 100 nm de espesor. Las películas de nanodomos han sido estudiadas recientemente donde en el proceso de fabricación varía desde el uso de sustratos autoensamblados hasta fabricados por litografía electrónica y técnicas coloidales [77–80]. Este sistema, también denominado *nanodots*, consiste en la inclusión de una geometría fuera del plano sobre una película continua. Las muestras fueron fabricadas mediante pulverización catódica. Como sustrato se utilizó la parte cerrada de las membranas de alúmina porosa y porta objetos comerciales de vidrio para la posterior comparación con las películas continuas. La caracterización magnética se realizó mediante técnicas de magnetometría clásica y de resonancia fe-

romagnética en función del ángulo azimutal a temperatura ambiente. La resistividad Hall se midió en un amplio rango de temperaturas desde temperatura ambiente hasta 13 K. Se observó en esta medición que el efecto de la nanoestructuración de la película continua, mediante la incorporación de domos, es más fuerte a medida que aumenta el espesor de la película nanoestructurada. Por otro lado, también se observa un ensanchamiento de la línea de resonancia en la medición de resonancia ferromagnética cuando el campo magnético es aplicado fuera del plano de las películas y se ve incrementado con el aumento del espesor de la muestra. El campo coercitivo muestra un comportamiento simétrico con una tendencia a tener una anisotropía perpendicular al plano de crecimiento para las películas de nanodomos. Las mediciones de resistividad Hall confirman el comportamiento inducido por la nanoestructuración de la película como en el capítulo anterior.

## 6.1. Experimento

Se fabricaron películas delgadas de nanodomos de distinto espesor de una fase magnética. Para el depósito de las películas se utilizó la técnica de pulverización catódica con un blanco comercial de Ni actuado por una fuente DC. Previamente se calibró la tasa de depósito de este blanco por medio de observación del perfil de la película en el microscopio de barrido obteniéndose una tasa aproximada de 3 nm/min. Como sustrato se utilizó la parte no porosa (cerrada) de la membrana de alúmina porosa cuyos parámetros de fabricación aparecen tabulados en la tabla 6.1, también se utilizaron porta objetos de vidrio para comparar las propiedades obtenidas con la película continua de igual espesor. Los espesores de las películas corresponden a 20, 40, 60 y 100 nm y son etiquetadas bajo la nomenclatura NH20, NH40, NH60 y NH100, respectivamente. Los parámetros utilizados para el depósito aparecen tabulados en la tabla 6.2 donde para cada película se realizó una pre-pulverización de 2 minutos del

blanco de níquel para eliminar cualquier óxido formado sobre la superficie de éste de forma natural. Finalmente, una capa delgada de Tántalo del orden de 4-6 nm fue depositada sobre la película fabricada para evitar cualquier fenómeno de oxidación que pudiese afectar el estudio a realizar. La caracterización microestructural de las películas de nanodomas fue realizada mediante microscopía de fuerza atómica. Se estudió la dependencia angular de las propiedades magnéticas por medio de un magnetómetro de muestra vibrante (VSM) y resonancia ferromagnética (FMR). Las mediciones de efecto Hall extraordinario se realizaron utilizando un sistema de medición de transporte mediante la técnica de van der Pauw en un amplio rango de temperaturas desde 13 K a temperatura ambiente.

Etapa	Ácido	Voltaje (V)	Temperatura (°C)	Tiempo (hrs)
1 <sup>a</sup> Anodización	Sulfúrico	25	3	3
2 <sup>a</sup> Anodización	Sulfúrico	25	3	8

Tabla 6.1: Parámetros utilizados en el proceso de doble anodización para la síntesis de las membranas de alúmina porosa utilizadas como substrato en la fabricación de películas delgadas de nanodomas de níquel.

	NH20	NH40	NH60	NH100
Vacío Base (Torr)	$9.0 \times 10^{-7}$	$9.0 \times 10^{-7}$	$9.0 \times 10^{-7}$	$9.0 \times 10^{-7}$
Flujo de Ar (sccm)	15	15	15	15
Presión de Ar (mTorr)	3	3	3	3
Potencia $Ni_{DC}$ (W)	50	50	50	50
Tiempo <sub>DC</sub>	5'42"	11'24"	17'6"	28'34"
$t_{nominal}$ (nm)	20	40	60	100
Potencia $Ta_{RF}$ (W)	50	50	50	50
Tiempo <sub>RF</sub> (min)	2'	2'	2'	3'
$t_{nominal}$ (nm)	4	4	4	6

Tabla 6.2: Parámetros utilizados en el proceso de pulverización catódica en la fabricación de películas delgadas de nanodomas de níquel.

## 6.2. Resultados y discusión

### Caracterización microestructural

La figura 6.1 muestra la topología de la película de nanodomos de Ni de 60 nm de espesor por medio de un microscopio de fuerza atómico. En ella es posible observar la estructura de domos insertada sobre la película continua. Debido a esta geometría, el espesor de la película de nanodomos deberá tener un espesor inhomogeneo a lo largo su superficie dejando tres regiones características en la estructura (fig. 6.2). La primera región corresponde al espacio existente entre los domos, donde la cantidad de material depositado es menor formando una película ultra delgada con una magnetización anclada de forma paralela a la superficie del substrato. La segunda región corresponde al espacio entre estos intersticios y la colina de los domos, donde la película crece en una dirección perpendicular al plano del substrato y su longitud puede ser comparable con el espesor de la película induciendo un cambio en la anisotropía de forma de la nanoestructura. Finalmente la colina del domo donde la mayor cantidad de material es depositado con una anisotropía en el plano de la muestra la que debido al espesor que posee, no debiese estar anclada. Con esta complicada fabricación no es posible tener un clara idea de como se comportarán las propiedades magnéticas de este tipo de nanoestructuras.

### Caracterización Magnética

El estudio de las propiedades magnéticas de las películas delgadas de nanodomos se realizó en función del ángulo azimutal  $\phi$  (6.3y se muestra en la figura 6.4. En la figura 6.5 aparece el resumen de esta medición donde se muestra la dependencia angular del campo coercitivo para cada película nanoestructurada en función del espesor nominal.

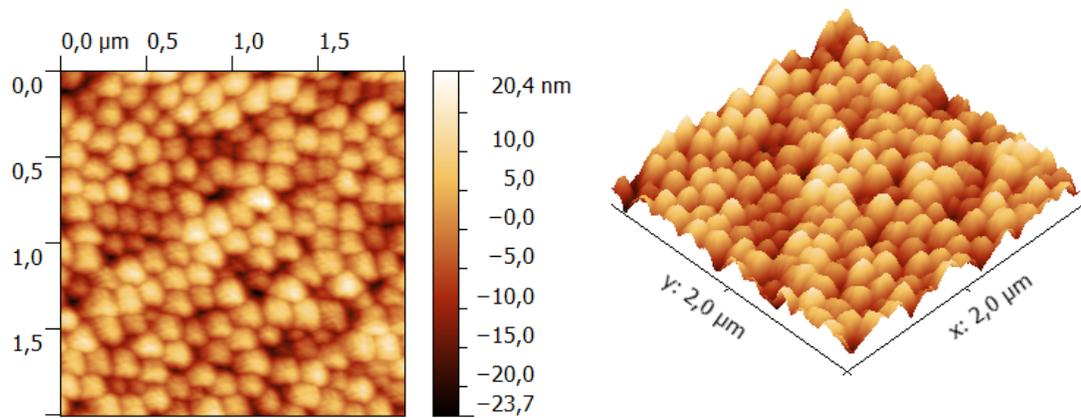


Figura 6.1: Microscopía de fuerza atómica de la muestra de nanohills de Ni de 60 nm de espesor.

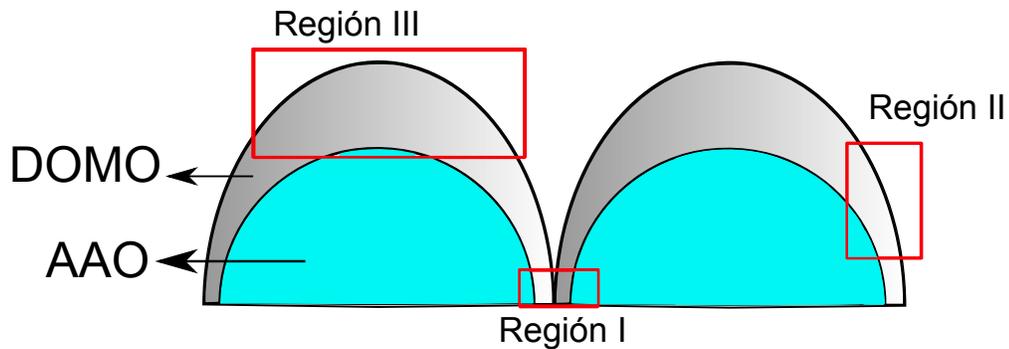


Figura 6.2: Perfil esquemático de la película de nanodomos

Aquí podemos apreciar que el comportamiento de todas las muestras es bastante similar, donde existe un mínimo de coercividad cuando el campo magnético es aplicado en la dirección del plano de la película ( $\phi = 0$ ), el campo coercitivo aumenta a medida que el campo pasa a ser aplicado en la dirección fuera del plano ( $0 \leq \phi \leq 180$ ), y posee un mínimo local cuando el campo está aplicado totalmente fuera del plano de la película ( $\phi = 90$ ).

En las gráficas de la figuras 6.4 y 6.5 es posible observar el comportamiento del

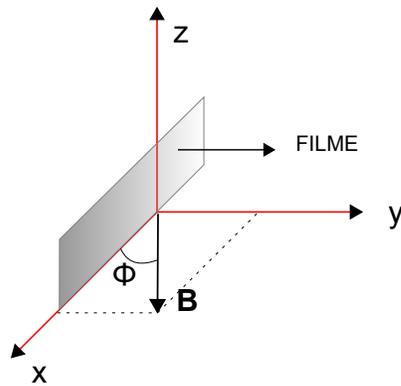


Figura 6.3: Configuración angular del campo magnético aplicado sobre las películas de nanodomo y continuas

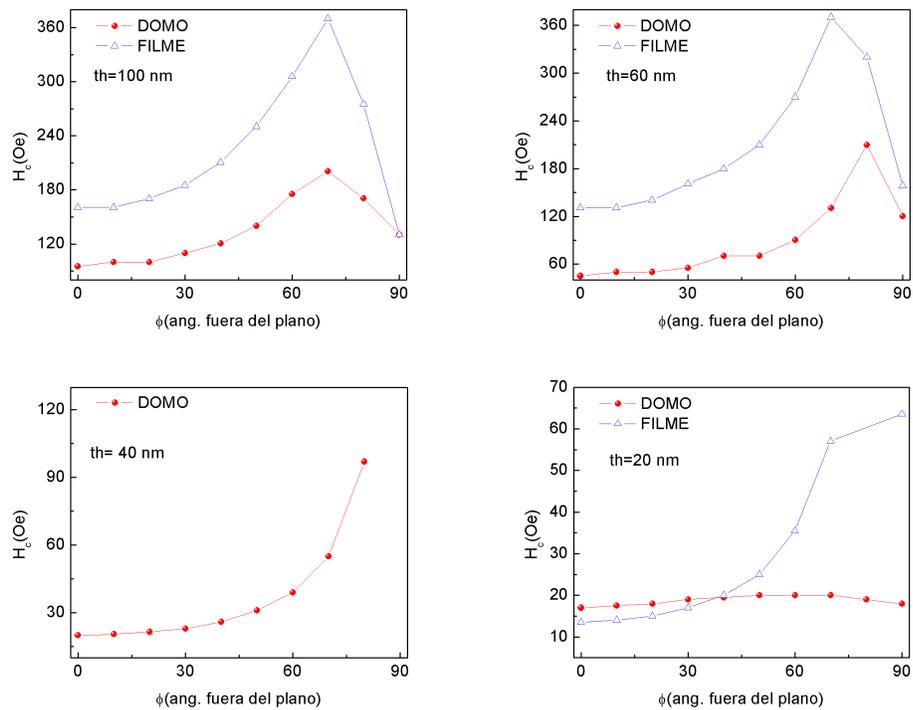


Figura 6.4: Dependencia angular del campo coercitivo de las películas delgadas de nanodomo de distinto espesor comparadas con las películas continuas. El espesor nominal de cada película que aparece en la figura es: a) 100 nm, b) 60 nm, c) 40 nm y d) 20 nm.

campo coercitivo en función del ángulo. Estudios anteriores muestran que al incluir en este tipo de películas una estructuración que sale del plano de crecimiento de la película se tiende a aumentar la coercividad obteniendo su valor máximo fuera del plano de la película [48, 77], indicando la posible existencia de una anisotropía perpendicular al plano. El comportamiento observado en la mayoría de las películas de este estudio es bastante similar a los reportes realizados, sin embargo, se observa que cuando el campo magnético aplicado se encuentra perpendicular al plano de la muestra aparece un mínimo local del valor de la coercividad sin importar el espesor nominal de la película. Este mínimo local se presenta tanto para la película continua como para la película nanoestructurada, siendo para estas últimas más suave el aumento de la coercividad, donde el máximo efecto de esta característica se aprecia en la película más gruesa. Por otro lado, el campo coercitivo de la película estructurada de 20 nm de espesor muestra una dependencia lineal en función del ángulo de aplicación del campo magnético. Este tipo de comportamiento indica una potencial aplicación en dispositivos de almacenamiento de información debido a la simplicidad que posee la construcción de esta nanoestructura y la no dependencia de sus propiedades magnéticas con la configuración de campo magnético. La aparición del mínimo local para las películas más gruesas se cree que esta relacionado con la no homogeneidad de las nanoestructuras, y a la cantidad de material que puedan poseer. La película más delgada puede ser considerada como un cascarón semiesférico, por ende no hay sorpresa en que el campo coercitivo no presente alguna dependencia fuera de la lineal en relación a la orientación del campo magnético. Para las otras películas, tal como se puede inferir de la figura 6.2, la cantidad de material depositado en la región II, la cual incide en el anclaje de la magnetización en la dirección perpendicular al plano de crecimiento de la película lo que reduce el valor del campo coercitivo generando este mínimo local.

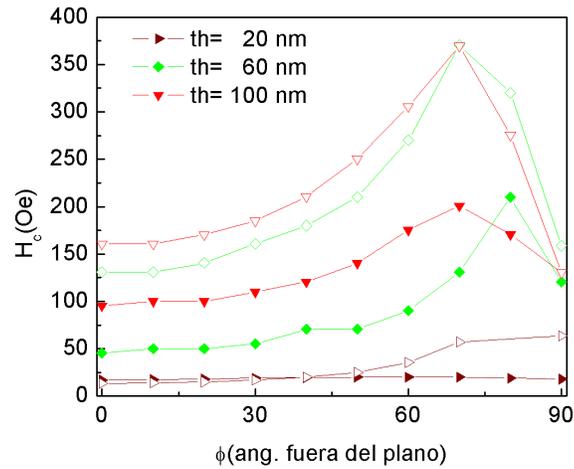


Figura 6.5: Dependencia angular del campo coercitivo de las películas de nanodiscos.

## Resonancia Ferromagnética

Cuando un campo magnético se aplica sobre una muestra, los momentos magnéticos no se alinean inmediatamente con éste. Es sabido que los momentos magnéticos precesan en torno al campo aplicado con una frecuencia  $\omega_0 = \gamma H_{eff}$  denominada frecuencia de Larmor, donde  $\gamma$  es el factor giromagnético cuyo valor es cercano a  $\sim 2,8 GHz/kOe$  y  $H_{eff}$  es el campo efectivo donde la variación temporal de la magnetización no es nula [81, 83]. Como los campos magnéticos utilizados en una medición experimental están cerca de los  $kOe$ , entonces la frecuencia de precesión de los momentos magnéticos está en el rango de las microondas.

Un experimento de resonancia ferromagnética (FMR) consiste en medir un espectro de absorción debido a la precesión del momento magnético de una onda electromagnética incidente. Esta onda electromagnética contiene un campo eléctrico y un campo magnético ( $h(t)$ ) el cual depende del tiempo de la forma  $e^{i\omega t}$ . La onda incidente es absorbida por la muestra cuando las frecuencias coinciden o se encuentran en condición de resonancia (resonancia magnética). Para realizar un experimento más fino se

varió el campo constante aplicado a la muestra manteniendo la frecuencia de la onda incidente fija. De esta manera, se medirá la potencia media absorbida por el sistema la que se relaciona con la magnetización por medio de:

$$\langle P \rangle = \frac{dE}{dt} = \frac{d}{dt} \left( -\vec{M} \cdot \left( \vec{H}_{eff} - \vec{h}(t) \right) \right). \quad (6.1)$$

Luego, la potencia se relaciona con la parte imaginaria de la susceptibilidad generalizada como:

$$\langle P \rangle = Re [-i\omega\chi(\omega)] h^2. \quad (6.2)$$

Finalmente, al resolver la ecuación dinámica de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) [81] se obtienen las soluciones para el tensor de la susceptibilidad magnética [82] y se observa que la dependencia de la susceptibilidad con el campo magnético aplicado tiene la forma de una función Lorentziana (figura 6.6 (a)) que es típica de sistemas sometidos a una resonancia forzada. La derivada de la susceptibilidad es proporcional a la derivada de la potencia media absorbida ( $\langle dP/dH \rangle \sim d\chi/dH$ ) y esta variación es la que se medirá en los experimentos de este trabajo de tesis (figura 6.6 (b)). Los datos característicos que se obtienen de este tipo de espectros entregan un campo de resonancia ( $H_R$ ) y un ancho de línea ( $\Delta H$ ). El campo de resonancia entrega información de las anisotropías presentes en las muestras mientras el ancho de línea entrega información de las posibles interacciones al interior de la muestra.

En las figuras 6.7 y 6.8 se observa el espectro de resonancia ferromagnética de las muestras de nanodomos con 20 y 100 nm de espesor comparados con las películas continuas de igual ancho, donde el campo magnético fue aplicado a  $0^\circ$  (en el plano de la muestra),  $30^\circ$ ,  $60^\circ$  y  $90^\circ$  (fuera del plano de la muestra). En ellas podemos ver la

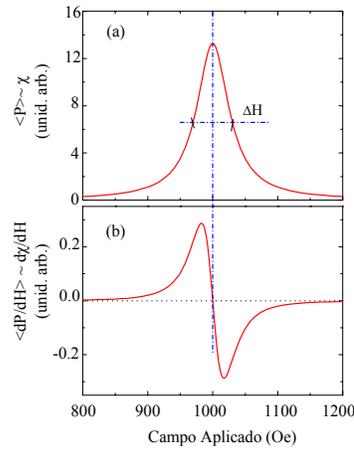


Figura 6.6: Forma típica de la potencia media absorbida que corresponde a una función Lorentziana, con un campo de resonancia de 1 kOe y ancho de línea  $\Delta H = 60$  kOe (a). Derivada de la Lorentziana (b).

existencia de un solo campo de resonancia que se desplaza a medida que el campo es aplicado fuera de la muestra. Por otro lado, las películas nanoestructuradas muestran un ensanchamiento en la línea de resonancia en comparación con la película continua, este tipo de ensanchamiento está relacionado con distintos tipos de procesos de relajación envueltos en la nanoestructura.

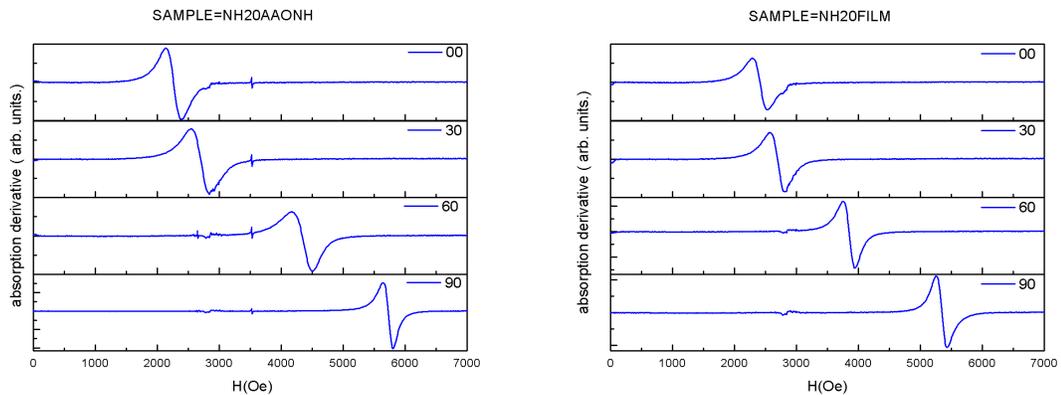


Figura 6.7: Resonancia ferromagnética en función del ángulo para la película de nanodomas de 20 nm de espesor en comparación con la película continua

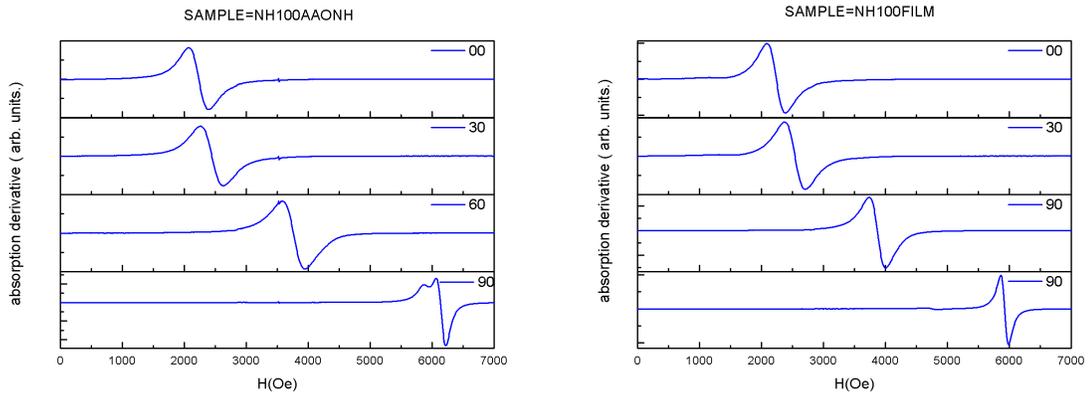


Figura 6.8: *Resonancia ferromagnética en función del ángulo para la película de nanodomas de 100 nm de espesor en comparación con la película continua*

La figura 6.9 muestra el comportamiento del campo de resonancia de las películas de nanodomas en función del ángulo de aplicación del campo magnético. Aquí, y en general para todas estas muestras, no existe una diferencia marcada en el comportamiento de esta variable. El hecho de que el campo de resonancia sea menor para todos los casos en que el campo se aplicó en la dirección del plano de la muestra es un claro indicio que la película posee una fuerte anisotropía en el plano. Este hecho no puede desmentir lo descrito anteriormente a partir de los datos obtenidos de las curvas de la coercividad en función del ángulo azimutal.

Por otra parte, a medida que aumenta el campo aplicado en el espectro de resonancia, se observa que para las películas nanoestructuradas existe un ensanchamiento en el ancho de línea que además depende del espesor nominal de la muestra. La figura 6.10 muestra la dependencia del ancho de línea de las películas de 20 y 100 nm de espesor en función del ángulo azimutal.

Se puede observar que en todas las muestras prevalece el proceso de relajación via dos-magnones, lo que se identifica claramente con la aparición de dos mínimos cuando el campo aplicado está en el y fuera del plano de crecimiento de la película.

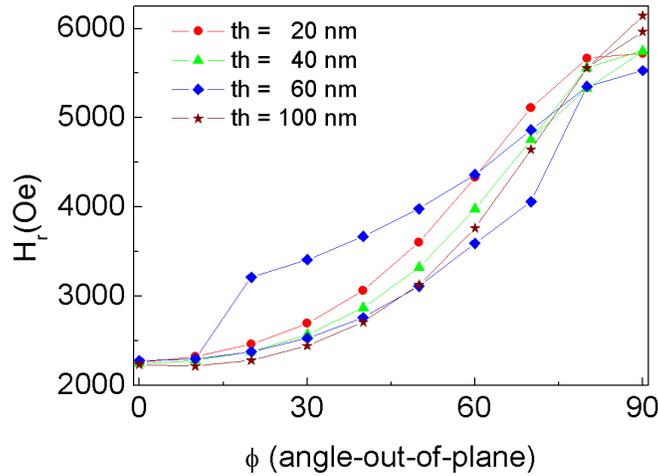


Figura 6.9: Dependencia angular del campo de resonancia de las películas de nanodomos níquel.

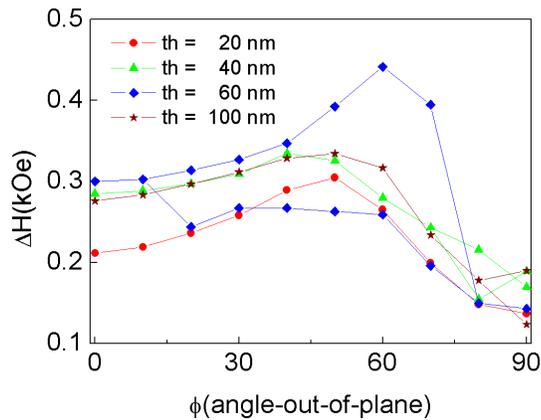


Figura 6.10: Dependencia angular del ancho de línea del espectro de resonancia de las películas de nanodomos de níquel.

De igual forma que en el campo de resonancia en función del ángulo azimutal, se observa que las películas continuas y las películas nanoestructuradas poseen un comportamiento similar pero, a diferencia del caso anterior, existe una diferencia en la magnitud de este valor, siendo la nanoestructuración responsable del incremento de esta cantidad. Además, para algunos ángulos, es posible observar la aparición de resonancias

dobles lo que indica que existiría distintas configuraciones magnéticas que interactúan con el campo magnético aplicado.

### Caracterización eléctrica y de magnetotransporte

Se midió la resistividad Hall para las películas continuas y nanoestructuradas con 60 y 100 nm de espesor nominal en función de la temperatura. Se observa que el valor de la resistividad de las muestras nanoestructuradas es menor que la de la película continua en todos los casos, siendo el efecto de la geometría de la película más fuerte cuando el espesor nominal decrece (figura 6.11). Sin embargo entre ambos sustratos, el estructurado y el continuo se observa la misma tendencia de forma lineal lo que implica que no existe una variación en la tendencia de ésta cuando el sustrato utilizado es la parte cerrada de la membrana de alúmina porosa.

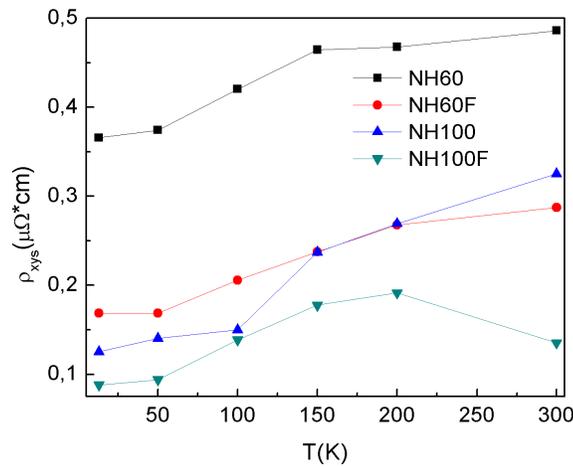


Figura 6.11: Resistividad Hall en función de la temperatura para las películas continuas y estructuradas con 60 y 100 nm de espesor nominal.

Por otra parte, la gráfica de la figura 6.12 muestra el comportamiento del campo coercitivo asociado a la curva de resistividad Hall en función del campo magnético

aplicado para todo el rango de temperatura estudiado (13-300 K) para las películas estructuradas y continuas de 60 y 100 nm de espesor nominal. En ella se observa que el efecto de la nanoestructuración cumple el rol inverso que en el caso de la resistividad Hall. A medida que decrece el espesor nominal de la película, el campo coercitivo crece notoriamente, obteniéndose un campo de 260 Oe en el caso de la película estructura con 60 nm de espesor mientras que para la misma película con 100 nm de espesor nominal se obtiene un campo de 599 Oe, ambos a 13 K de temperatura. Sin embargo, igual que en caso anterior, la diferencia con la película continua es sólo un factor de escalamiento tenue. El aumento de este campo coercitivo debido a la estructuración de la muestra puede deberse principalmente al anclaje de la magnetización en el material depositado en los espacios intersticiales de los domos, el que impide la propagación libre de los portadores de carga modificando los mecanismos de transporte al interior del material. La disminución del espesor de la muestra está directamente relacionado con la formación de películas granulares, las que al descender la temperatura generan estados magnéticos bloqueados en las nanopartículas de níquel incrementando el campo coercitivo asociado a la resistividad Hall.

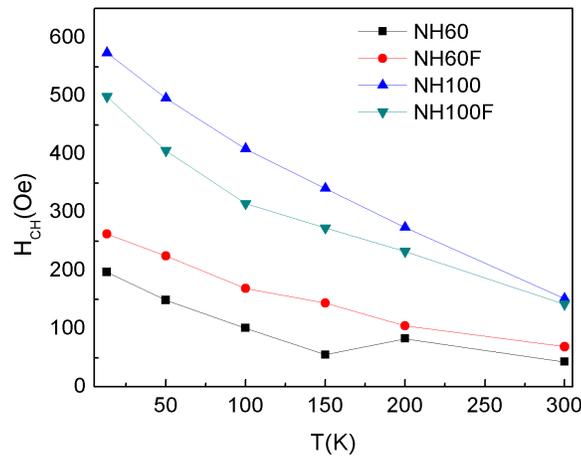


Figura 6.12: Campo coercitivo asociado a la resistividad Hall en función de la temperatura para las películas continuas y estructuradas con 60 y 100 nm de espesor nominal.

### 6.3. Conclusión

Se estudiaron las propiedades magnéticas y de transporte eléctrico espín dependiente en películas delgadas de nanodornos de 20, 40, 60 y 100 nm de espesor nominal fabricadas por pulverización catódica depositando material magnético sobre la superficie cerrada de las membranas de alumina porosa. Los resultados se compararon con las películas continuas depositadas sobre sustratos de vidrios con igual espesor nominal.

Se observó un aumento en el campo coercitivo de las películas continuas y nanoestructuradas diferenciadas por un factor de escalamiento, ocurriendo un mínimo local cuando el campo magnético es aplicado fuera del plano de la muestra. La aparición de este mínimo local, y su efecto menos notorio en las películas nanoestructuradas, puede deberse a que el material depositado en los espacios intersticiales de los domos forme una delgada película magnética con la magnetización orientada en la dirección del plano de ésta. Por otra parte, la película de nanodornos de 20 nm de espesor, presente un comportamiento lineal paralelo al eje de las ordenadas mostrando una simetría completa en función de la configuración del campo magnético.

Del espectro de resonancia ferromagnética se puede concluir que las películas nanoestructuradas poseen un claro eje de anisotropía en la dirección del plano de la muestra, sin embargo, el ensanchamiento de la línea de resonancia, cuando el campo magnético aplicado es sacado del plano indica que existen interacciones las que inciden en la aparición del mínimo local del campo coercitivo. También es claro que el mecanismo de relajación para este sistema corresponde principalmente a dos-magnones no pudiéndose evidenciar otro tipo de mecanismo.

Finalmente la resistividad de Hall para este tipo de nanoestructuras es directamente proporcional con el espesor y la nanoestructuración de la película continua. Por otro lado, el campo coercitivo asociado a la resistividad Hall cumple el rol inverso que

en el caso de la resistividad Hall.

# Capítulo 7

## Propiedades magnéticas de películas porosas de cobalto de espesor fijo y distinto diámetro de poros

La atención de la comunidad científica en la última década ha estado enfocada en el estudio de elementos magnéticos nanoestructurados [45–51] debido al reciente avance en las técnicas de síntesis de estas nanoestructuras, las que han permitido el desarrollo de geometrías bien controladas. Las películas porosas magnéticas corresponden a un arreglo de agujeros inmersos en una película magnética continua y son prometedoras candidatas para dispositivos de almacenamiento de información de alta densidad, así como también un interesante tópico de estudio para la física fundamental [52, 54]. En el caso particular de este estudio, la utilización de membranas de alúmina porosa como sustrato ha permitido la fabricación de películas delgadas porosas magnéticas con un alto grado de ordenamiento hexagonal y una distribución ordenada de poros. En estas películas porosas se puede observar que la presencia de agujeros puede variar la anisotropía magnética local de la película continua afectando las propiedades magnéticas

como el campo coercitivo, ejes de anisotropía y mecanismos de reversión, entre otros. En relación a esto último, es posible funcionalizar estas propiedades en términos de los parámetros geométricos de la película tales como, el diámetro del poro, la distancia entre poros y la distribución espacial de los poros. En este capítulo se estudio la influencia del tamaño del poro sobre las propiedades magnéticas de películas porosas de cobalto de 28 nm de espesor vía magnetometría clásica y simulaciones micromagnéticas utilizando el software libre Oommf. Los resultados muestran un incremento en el campo coercitivo en función del incremento del diámetro del poro. Por otro lado, los mecanismos de reversión son estudiados mediante simulaciones micromagnéticas para estados magnéticos metaestables. Finalmente, análisis de diagramas *FORC* (*Firts Order Reversal Curves*) también fueron realizados obteniéndose un incremento en la distribución de coercividad e interacciones con el incremento del diámetro del poro asociados a la formación de dominios magnéticos complejos en la película.

## 7.1. Experimento

Las películas porosas de cobalto con un espesor nominal de  $\approx 28$  nm y distinto diámetro de poro, fueron obtenidas mediante pulverización catódica. Los substratos utilizados corresponden a membranas de alúmina porosa con diámetros de poros iguales a 20 nm, 40 nm y 60 nm. Las membranas fueron fabricadas usando el proceso de anodización descrito en el capítulo 3 a partir de una película de aluminio de alta pureza (99,999 %) con 0.32 mm de espesor, la que fue previamente electropulida por un intervalo de tiempo entre 5-10 minutos en una solución de  $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OH}:\text{HClO}_4(3:1)$  bajo un voltaje de 10V y 4° C de temperatura, posteriormente es limpiada con acetona, etanol y agua destilada. Después del tratamiento las muestras son sometidas a una primera anodización a 40 V por 8 horas en la solución ácida con una concentración 0.3 M a 20 °C. Esta solución está compuesta por 7 gr de  $\text{H}_3\text{PO}_4$ , 1.8 gr de  $\text{H}_3\text{CrO}_4$  y  $\text{H}_2\text{O}$  hasta

completar 100 ml. El ordenamiento de los poros es obtenido después de una segunda anodización de 6 horas de duración donde se emplearon las mismas condiciones de la primera anodización. Para obtener la dispersión de diámetro mencionada anteriormente se sumergieron las membranas de alúmina porosa en una solución ácida al 5W % de  $\text{H}_3\text{PO}_4$  a  $35^\circ\text{C}$  por un intervalo de tiempo de 5-10 min. En todos los casos las membranas muestran un ordenamiento hexagonal y una buena uniformidad en la distribución del tamaño de los poros y la distancia entre ellos.

Las películas delgadas de cobalto fueron depositadas simultáneamente sobre las membranas de alúmina porosa con tres diferentes diámetros replicando el ordenamiento hexagonal de poros del sustrato donde además se utilizó un sustrato de vidrio (porta objeto) como referencia para obtener una película continua. El vacío base del depósito fue de  $5 \times 10^{-7}$  Torr y la presión de argón de la cámara se mantuvo a 3 mTorr con un flujo constante de 20 sccm. Se utilizó un blanco comercial de cobalto, el que fue activado mediante la fuente de corriente directa con una potencia de 50 W por 8 min. Considerando la tasa de depósito para el cobalto de 3.4 nm/min, la que fue calibrada previamente, se obtiene un espesor nominal de la película igual a 28 nm.

La caracterización magnética fue realizada empleando un magnetómetro de fuerza alterna a temperatura ambiente así como también el análisis de las *FORCs* con el campo magnético aplicado en el plano de las películas para ambas mediciones. La caracterización microestructural de las muestras fue realizada por medio de microscopía de barrido electrónica con un EVO MA 10 de *Carls Zeiss*. Las simulaciones micromagnéticas fueron realizadas mediante el *software* libre OOMMF [55] utilizando el paquete 3D. Para esto último, el sistema ferromagnético se divide en celdas cúbicas donde cada una de éstas posee una magnetización uniforme. Los parámetros utilizados en la simulación son característicos del cobalto, el que posee una magnetización de saturación  $M_s = 1400 \times 10^3$  A/m [55], constante de *stiffness*  $A = 30$  J/m [55] y una constante de anisotropía magnética cristalina nula debido a las películas delgadas fabricadas por

pulverización catódica son consideradas como policristalinas, con lo que es posible despreciar esta constante. La celda unitaria cúbica ocupada en la simulación tiene 5 nm de lado y en todos los casos se utilizó una constante de *damping* igual a 0.5.

## 7.2. Resultados y discusión

### Caracterización microestructural

La caracterización microestructural de las películas de cobalto depositadas sobre las membranas de alúmina porosa con 20, 40 y 60 nm diámetro se muestra en la figura 7.2. En la imagen se puede observar que la película de cobalto cubre toda la superficie entre los poros de manera homogénea. Por otro lado la figura 7.1 muestra una imagen de microscopía de fuerza atómica de la película porosa de cobalto con un diámetro de poros igual a 40 nm donde se observa la homogeneidad del depósito. Además es posible observar una estructura granular alrededor de los agujeros lo que puede inferir directamente en el comportamiento magnético de la muestra.

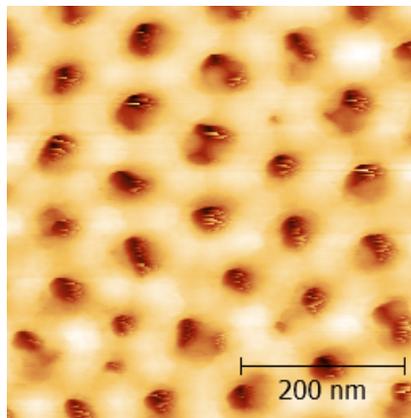


Figura 7.1: *Microscopía de fuerza atómica de la película porosa de cobalto con diámetro de poro igual a 40 nm.*

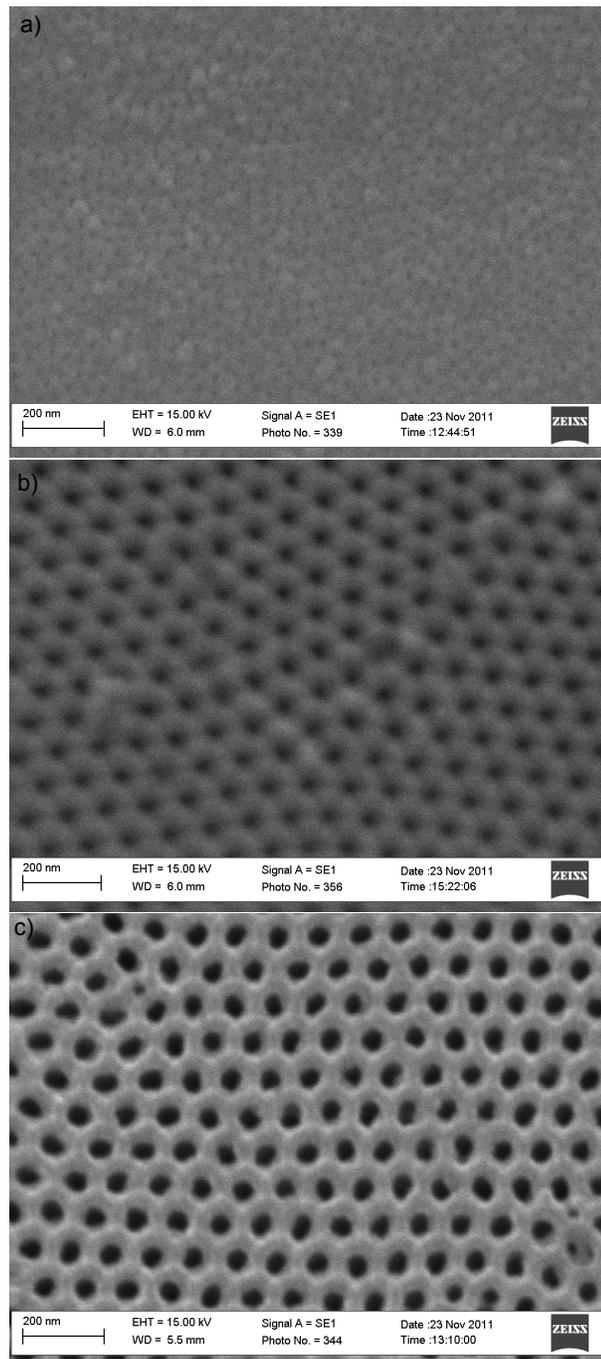


Figura 7.2: Microscopía de barrido electrónico para las películas porosas de cobalto con distinto diámetro de poros. a) 20 nm, b) 40 nm, c) 60nm.

### Caracterización magnética

La película continua de cobalto presenta un comportamiento ferromagnético suave con un campo coercitivo de 38 Oe a temperatura ambiente. Debido a la nanoestructuración de la película, se observa un aumento de la histéresis magnética conforme aumenta el diámetro del poro del substrato considerando que la película continua posee una distribución de poros con diámetro igual a cero. La magnetización normalizada con la magnetización de saturación de la muestra en función del campo magnético aplicado se observa en la figura 7.3.

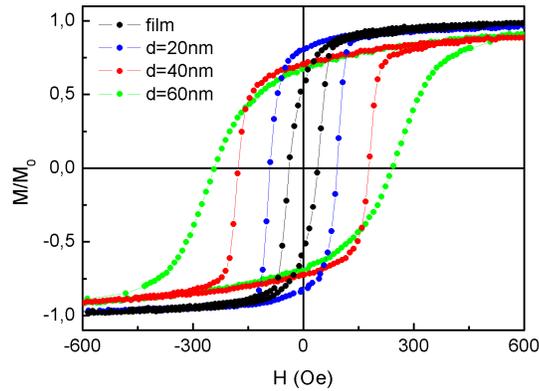


Figura 7.3: *Histéresis magnética de las películas porosas de cobalto con distinto diámetro. film corresponde a la película continua.*

Por otra parte, a modo de obtener mayor información de las propiedades magnéticas de este sistema se decidió realizar simulaciones micromagnéticas con dos tipos de máscaras, la primera está constituida por una máscara ideal con una distribución hexagonal de poros y un diámetro homogéneo igual a 0, 20, 40 y 60 nm. La segunda máscara corresponde a las imágenes de microscopía de barrido electrónico de la figura 7.2 tratadas previamente con el software Image J para realzar el contraste necesario para la simulación micromagnética. En todas las simulaciones se utilizaron imágenes de  $1000 \times 1000$  nm, un espesor de 30 nm y una celda unitaria de 5 nm.

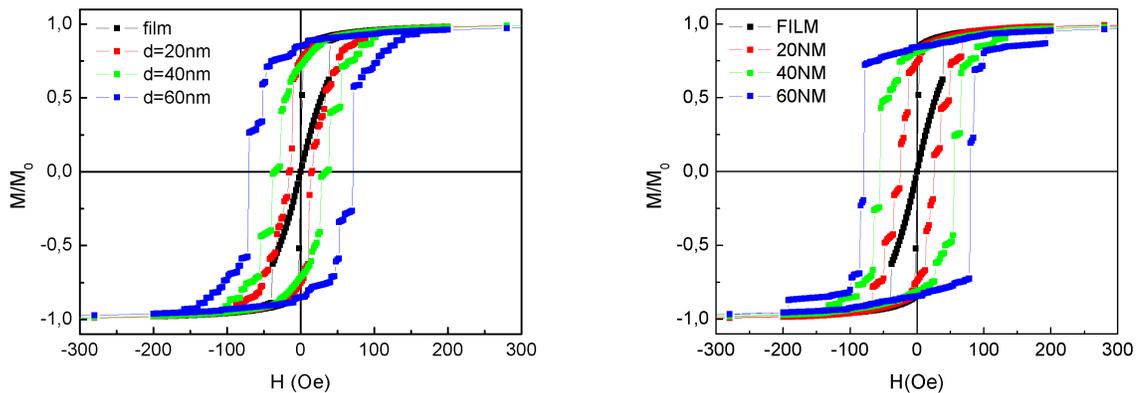


Figura 7.4: *Histéresis magnética de las simulaciones de las películas porosas de cobalto con distinto diámetro donde film corresponde a la película continua. (Izquierda) Simulación realizada con las imágenes obtenida de las microscopías de barrido electrónico. (Derecha) Simulación realizada con imágenes ideales.*

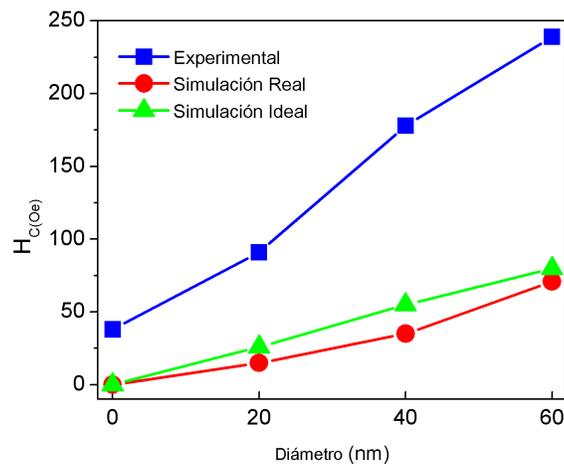


Figura 7.5: *Campo coercitivo en función del diámetro del poro para la medición experimental, la simulación con la máscara real y la simulación con la máscara ideal.*

En la curvas de histéresis obtenidas en la simulación se muestran en la figura 7.4 donde se observa la misma tendencia de la medición experimental de la figura 7.3, donde el aumento del diámetro del poro incide en el aumento del campo coercitivo. En particular se observa que los valores de campo coercitivo para la simulación, donde se

utilizó la máscara tomada de las microscopías, son menores que las máscaras ideales. La diferencia entre las simulaciones puede deberse a dos características que diferencian una máscara de otra. En arreglos reales, los defectos que aparecen en la microscopía producen un quiebre en la simetría hexagonal cambiando el número de los vecinos el que típicamente desciende de 6 a 5 cambiando el número de paredes de dominio atrapadas alrededor del agujero. Otro efecto del quiebre en la simetría se refiere a que la anisotropía en el plano que posee el sistema real permite la formación de dominios magnéticos menos definidos. Por otro lado, la geometría ideal presenta un rol crucial en la determinación de la constricción magnética y por ende el potencial anclaje de las paredes de dominio jugando un mayor rol en el campo coercitivo. El campo coercitivo en función del diámetro del poro aparece graficado en la figura 7.5 para los tres tipos de los resultados obtenidos.

La figura 7.6 muestra la configuración magnética del campo coercitivo obtenido en la simulación de la máscara ideal. De estas imágenes es posible ver que incluso cuando la densidad de los agujeros es la misma para diferentes diámetros, un poro de diámetro mayor es asociado a la presencia de más dominios magnéticos y esto a una mayor densidad de paredes de dominios. Dada la distancia entre poros  $D=100$  nm, es posible definir un parámetro  $s = D - d$  donde  $d$  es el diámetro del poro. Este parámetro puede ser denominado como constricción magnética entre dos poros vecinos y puede adquirir los valores 40 nm, 60nm, y 80nm para las películas de diámetro 60, 40 y 20 nm, respectivamente. Debido al arreglo hexagonal, cada poro es rodeado por seis primeros vecinos y 6 segundos vecinos. En ese sentido, cada poro crea seis constricciones con sus primeros vecinos y así, las paredes de dominio pueden ser atrapadas o ancladas debido a este efecto. Cada una de estas paredes de dominio experimentará una interacción dipolar variable a lo largo de toda la estructura y por ende puede estar sujeta a un potencial de anclaje [60]. La figura 7.7 muestra la configuración magnética del campo coercitivo obtenido en la simulación de la máscara real. La formación de paredes de dominio se ve reducida en comparación con la figura 7.6 debido a que la topología que

presentan estas máscaras incluye los defectos naturales de la película. Este hecho reduce la creación de los potenciales que anclan la estructura de dominio provocando un leve incremento en el valor del campo coercitivo.

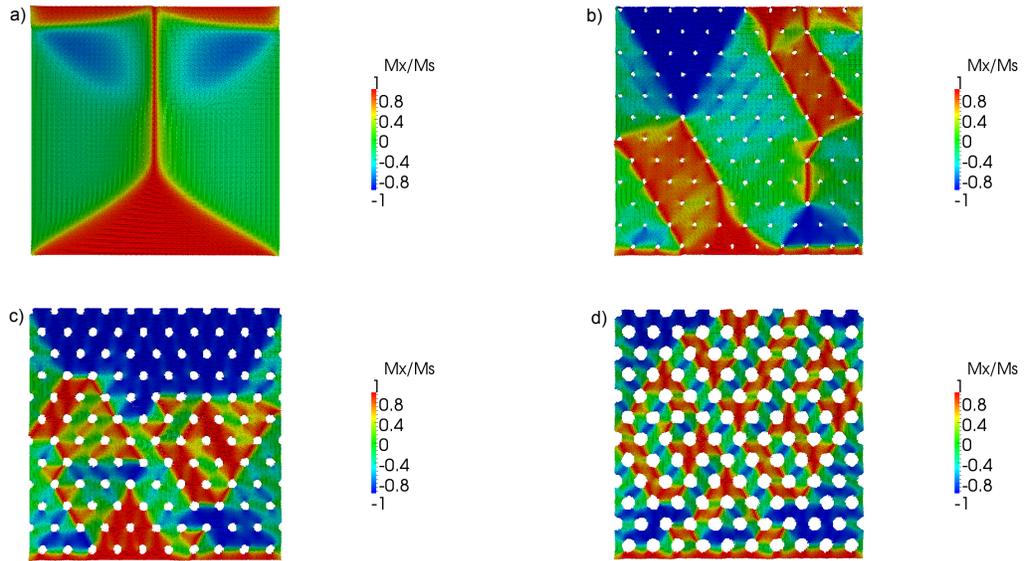


Figura 7.6: Configuración magnética del campo coercitivo ( $m=0$ ) obtenido en la simulación de la máscara ideal. a) film, b)  $d=20$  nm, c)  $d=40$  nm, d)  $d=60$ .

La pared de dominio atrapada por este potencial puede adoptar distintas configuraciones magnéticas estables y puede ser liberada a través de un proceso complejo bajo la acción de un potencial de desanclaje [61, 62]. De la figura 7.6 es posible también ver que así como el parámetro  $s$  disminuye la densidad de las paredes de dominios disminuye lo que puede ser interpretado como un descenso del potencial de anclaje experimentado por las paredes de dominio relacionado con el aumento del campo coercitivo.

La figura 7.8 muestra las mediciones de las curvas *FORCs* medidas con el campo magnético aplicado en el plano de la muestra con un diámetro de poros igual a 20 nm. El contorno delimitado por la gráfica corresponde exactamente a la curva de histéresis.

La medición de las curvas *FORCs* representa una técnica que es utilizada para

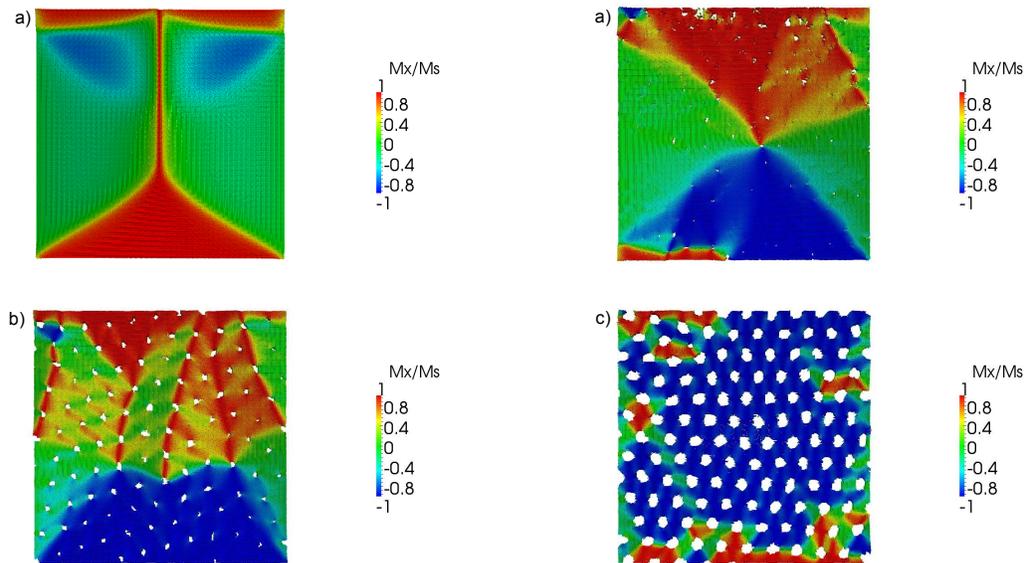


Figura 7.7: Configuración magnética del campo coercitivo obtenido en la simulación de la máscara real. a) film, b)  $d=20$  nm, c)  $d=40$  nm, d)  $d=60$ .

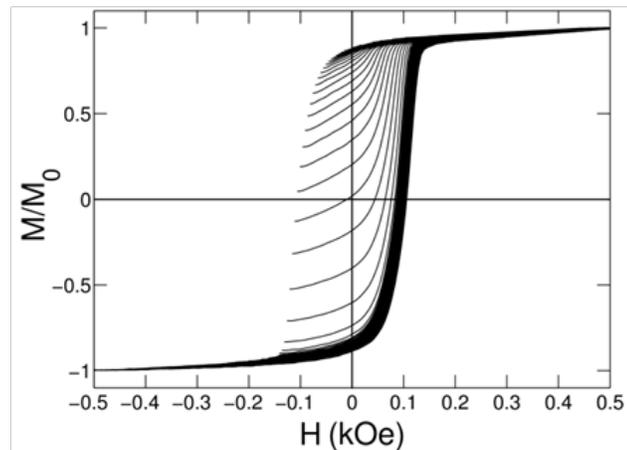


Figura 7.8: *First-order reversal curves* correspondiente a la película porosa de 20 nm de diámetro.

estudiar las propiedades magnéticas de una muestra en detalle debido al hecho de que la curva de histéresis es una medida global de la magnetización de un sistema. De esta manera, las curvas *FORCs* entregan información en relación a todos los aspectos involucrados en las propiedades magnéticas. En este contexto, los diagramas *FORCs* dan una

importante contribución al estudio experimental de sistemas magnéticos compuestos de muchas partículas magnéticas o dominios magnéticos. Los diagramas *FORCs* entregan información de la distribución de coercividades y de interacciones del sistema, además de la fracción de la magnetización reversible e irreversible [63, 64]. Esta técnica ha sido utilizada para estudiar diversos fenómenos y sistemas magnéticos [65–69].

La medición *FORC* comienza con la saturación de la muestra a un alto campo magnético. Luego, el campo es disminuido hasta un campo de reversión  $H_a$ . Entonces las curvas *FORC* son definidas como la medición de la curva de saturación cuando el campo aplicado incrementa desde el campo de reversión hasta el campo de saturación. La magnetización para un campo  $H_b$  en la curva *FORC* con campo inicial  $H_a$  es denotado por  $M(H_a, H_b)$ , donde  $H_b > H_a$ . El modelo estadístico que describe al sistema con un conjunto de entidades magnéticas está basado en el modelo de Preisach [70] y es usado para ilustrar y obtener información sobre las *FORCs*. La función densidad de probabilidad del ensemble es definido por [71]:

$$\rho(H_a, H_b) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2 M}{\partial H_a \partial H_b} \quad (7.1)$$

Esta función se extiende sobre el plano en el que reside  $(H_a, H_b)$ . Los diagramas *FORCs* corresponden a un gráfico del contorno de la ecuación 7.1 y puede ser expresado en términos de las variables  $H_c = (H_b + H_a)/2$  y  $H_i = (H_b - H_a)/2$  permitiendo obtener la componente reversible de la magnetización la que aparenta estar centrada en  $H_c = 0$ . La función densidad descrita anteriormente para la muestra es obtenida mediante la derivación numérica de la función  $M(H_a, H_b)$  la que contiene todas las mediciones realizadas. El contorno delineado por las *FORCs* para las películas porosas con diámetro de poros igual a 20, 40 y 60 nm son mostrados en la figura 7.9.

Los diagramas *FORCs* para la película con poros de diámetro igual a 20 nm muestra una pequeña región de magnetización reversible para  $H_c > 0$ , con una delgada

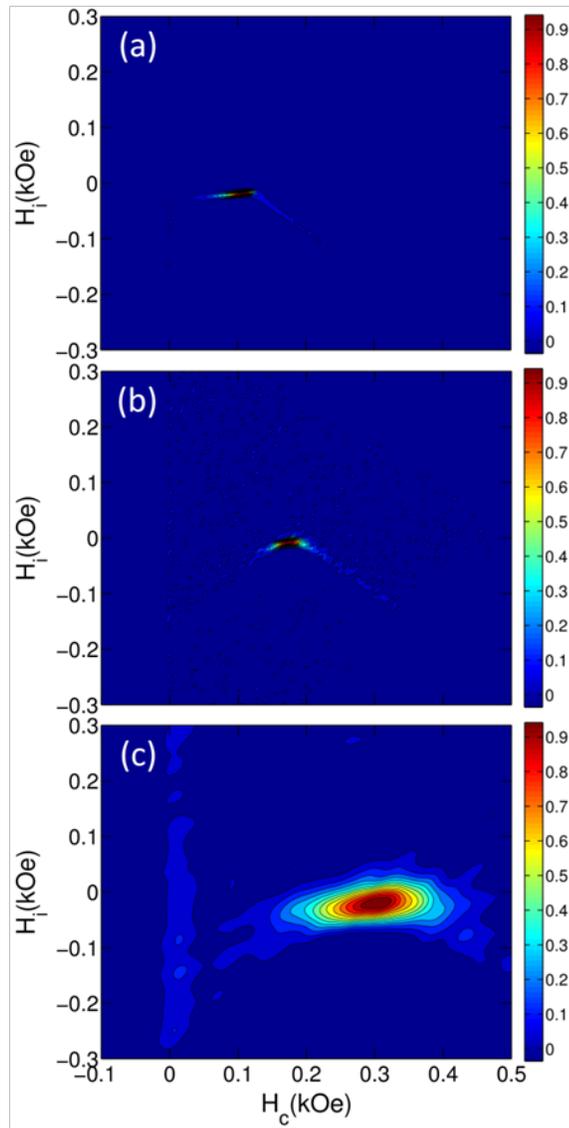


Figura 7.9: Diagramas *FORCs* de las películas porosas de cobalto diámetro igual a a) 20 nm, b) 40 nm, c) 60 nm.

distribución de la interacción y una pequeña distribución de coercividad centrada en  $H_c = 106$  Oe, que es bastante cercano al valor obtenido en la curva de histéresis (122 Oe). La pequeña región en el diagrama indica que el sistema presenta una estructura más homogénea de dominios magnéticos que las películas con poros más grandes. Teóricamente, los diagramas *FORCs* de un monodominio biestable, es un *spot* localizado sobre el eje de coercividad en un punto igual a la coercividad de la curva de histéresis del siste-

ma. El diagrama del sistema con 40 nm de diámetro muestra un panorama similar al de 20 nm de diámetro con la diferencia que la región de magnetización reversible centrada en  $H_c = 176$  Oe, que corresponde a un valor bastante cercano a la histéresis de la curva (150 Oe). Esta región muestra un leve incremento en la distribución de interacción y la distribución de coercividad que en el caso anterior. Específicamente, el incremento del ancho en la región de la distribución de interacción, puede indicar la presencia de estructuras magnéticas más complejas que para el caso de diámetro menor con una gran cantidad de dominios magnéticos interactuantes. Por otro lado en el diagrama para la película con 60 nm de diámetro se obtiene una gran región de magnetización irreversible centrado en  $H_c = 300$  Oe bastante cercano al valor obtenido en la histéresis magnética de 239 Oe. Este sistema posee un gran distribución de coercividades y de interacciones, lo que indica la presencia de estructuras magnéticas mucho más complejas que para diámetros menores. El incremento de la distribución de coercividades que son regiones magnéticas que revierten su magnetización con distintos campos externos implica en una estructura de dominios más compleja y más densa se ha formado en la estructura, estos dominios, como se puede observar en la figura 7.6 posee forma de laberintos. El incremento de regiones magnéticas orientadas en diferentes direcciones incrementa la interacción magnética entre regiones vecinas lo que se evidencia del incremento en la distribución de interacción del diagrama *FORC*.

Finalmente en todos los diagramas se observa un aumento mayor en la distribución de coercividad que en la distribución de la interacción, lo que indica que el efecto predominante de los poros con diámetros mayores es la formación de un gran número de dominios magnéticos. Dada la naturaleza bidimensional de las muestras y la dirección en la que se aplicó el campo magnético externo, el efecto de la interacción magnética es menor que la de formación de dominios magnéticos debido a que la anisotropía magnética de las películas se encuentra en el plano de estas.

### 7.3. Conclusión

El campo coercitivo de las películas porosas de cobalto presenta una gran dependencia con el diámetro de los poros que posee la película. A medida que se incrementa el diámetro del poro, el valor de la coercividad también aumenta de forma lineal. Este hecho fue evidenciado tanto de forma experimental como en las simulaciones micro-magnéticas utilizando distintos tipos de máscaras. La figura 7.6 muestra la configuración magnética del campo coercitivo obtenido en la simulación de la máscara ideal. De estas imágenes es posible ver que incluso cuando la densidad de los agujeros es la misma para diferentes diámetros, un poro de diámetro mayor es asociado a la presencia de más dominios magnéticos y esto a una mayor densidad de paredes de dominios.

En los diagramas *FORCs* de las películas porosas de cobalto se aprecia un aumento progresivo en la distribución de coercividad e interacción. El aumento progresivo de las distribuciones de coercividad e interacción da cuenta de la aparición de estructuras de dominios magnéticos más complejas al aumentar el diámetro de los poros (estructura laberíntica), lo cual resulta en un aumento de la coercividad de las películas. El diagrama *FORCs* de la muestra de 60 nm muestra una distribución de coercividad e interacción grande, en contraste con los arreglos de 20 nm y 40 nm. El aumento de la distribución de coercividad indica que a medida que se aumenta el diámetro de los poros, se aumenta la diversidad de procesos de reversión de magnetización irreversibles, los cuales exhiben distintos valores de coercividad. Por otro lado, el incremento en la distribución indica que la interacción magnética es más fuerte debido a la formación de múltiples dominios producido por la presencia de los poros. Como el tamaño de los poros crece, el número de puntos donde la magnetización de la muestra es anclada aumenta, lo que se evidencia la producción de pequeños dominios y consecuentemente en un incremento de la interacción entre estas regiones.

# Capítulo 8

## Conclusiones

Respecto al trabajo realizado es posible obtener conclusiones para cada sistema separado tal como se mostró en cada capítulo.

i. En el estudio propiedades magnéticas y Efecto Hall extraordinario en películas delgadas de Fe-rich y películas de multicapas de Fe-rich/Cu se concluye que:

El aumento del valor de la resistividad Hall cuando el espesor relativo de la película de Cu incrementa, produce un aumento de la sensibilidad hasta en un valor de  $1.3 \Omega/T$  bajo campos relativamente pequeños mientras que en el caso de las películas aislantes fabricadas es de tan solo  $0.5 \Omega/T$  [11]. Por otro lado, la fuerte anisotropía magnética en el plano mostrada por las películas delgadas de Fe-rich disminuye cuando el espesor de la capa metálica se incrementa en la películas de multicapas. A su vez, la fabricación de películas de multicapas de Fe-rich/Cu reduce notoriamente la resistividad de la muestra y permite la formación de estructuras granulares en la película disminuyendo el valor de la resistividad Hall.

ii. En el estudio del efecto Hall extraordinario en películas delgadas de la aleación

Ni-SiO<sub>2</sub> con distintos tipos de geometrías se concluye que:

Existe un efecto sobre la resistividad Hall debido a la estructuración de una película continua. Mediante la medición de la resistencia de la película en función de la temperatura se observó una variación en el comportamiento eléctrico de la muestra DOTs. Este comportamiento más aislante de esta muestra es el responsable del aumento en el valor de la resistividad Hall de hasta 4 veces en comparación con las películas porosas y puede ser asociado al mecanismo de saltos laterales donde  $\rho_{xys} \propto \rho_{xx}^2$ . Por otro lado la resistividad de Hall no escala linealmente con la cantidad de material depositado sobre el sustrato principalmente para las películas porosas, lo que implica que los canales de conducción a lo largo de la película no se ven afectados por la adición de esta geometría. Se pudo clarificar como es la dependencia de campo coercitivo asociado a la resistividad Hall en función de la temperatura, donde el máximo incremento es observado para las películas porosas. Separando los parámetros asociados se pudo determinar como varía explícitamente este campo en función de la temperatura. Si se tiene una película continua de una fase magnética inserta en una matriz aislante, se observará una relación exponencial entre estas dos variables de la forma  $H_{CH} \propto Ae^{-T/B} - C$ . Si se tiene una película porosa de una sola fase magnética, se obtiene un alto valor del campo coercitivo con una dependencia lineal con la temperatura. Finalmente, si se posee una película porosa de una fase magnética inmersa en una matriz aislante, ambos efectos anteriormente nombrados se sumarán obteniéndose una dependencia de la forma  $H_{CH} \propto Ae^{-BT}$ .

iii. En el estudio de las propiedades magnéticas y efecto Hall extraordinario en películas delgadas de nanodomos de Níquel de distinto espesor se concluye que:

Existe un aumento del campo coercitivo en las películas continuas y nanoestructuradas que se diferencia por un factor de escalamiento ocurriendo un mínimo local cuando el campo magnético es aplicado fuera del plano de la muestra. La aparición de

---

este mínimo local, y su efecto menos notorio en las películas nanoestructuradas, puede deberse a que el material depositado en los espacios intersticiales de los domos forma una delgada película magnética con la magnetización orientada en la dirección del plano de ésta. Por otro lado, las películas nanoestructuradas poseen un claro eje de anisotropía en la dirección del plano de la muestra que es evidenciado en el espectro de resonancia ferromagnética, sin embargo, el ensanchamiento de la línea de resonancia cuando el campo magnético aplicado es sacado del plano indica que existen interacciones las que inciden en la aparición del mínimo local del campo coercitivo. Finalmente, la resistividad de Hall para este tipo de nanoestructuras presenta un aumento en su valor con el aumento sistemático del espesor nominal de la película y la consecuente disminución de la nanoestructuración en comparación con la película continua. El campo coercitivo asociado a la resistividad Hall disminuye con el efecto de la nanoestructuración y la disminución el espesor nominal de la película.

iv. En el estudio de las propiedades magnéticas de películas porosas de cobalto de espesor fijo y distinto diámetro de poros se concluye que:

A medida que se incrementa el diámetro del poro, el valor de la coercividad aumenta de forma lineal tanto en la medición experimental como en las simulaciones micromagnéticas utilizando distintos tipos de máscaras. A partir de estas simulaciones se observó, en el caso particular donde la máscara utilizada corresponde a una imagen real, que incluso cuando la densidad de los agujeros es la misma para diferentes diámetros, un poro de diámetro mayor es asociado a la presencia de más dominios magnéticos y esto a una mayor densidad de paredes de dominios. El incremento de las distribuciones de coercividad y de interacción en los diagramas *FORCs* se debe a la formación de estructuras de dominios magnéticos más complejos altamente interactuantes producido por las presencia de los poros.

A raíz de estos estudios podemos concluir que la estructuración de la película,

ya sea por medio de la utilización de substratos autoensamblados o el depósito secuencial de películas de multicapas, presenta una influencia directa en el comportamiento eléctrico y las propiedades magnéticas de las muestras que se observa en las mediciones de la resistividad lineal en función de la temperatura. Además, mediante el estudio de la resistividad Hall en función de la temperatura se observa que a temperaturas inferiores de la necesaria para la activación térmica se produce un aumento exponencial en el valor del campo coercitivo asociado a la medición de la resistividad Hall. Esta variación es característica para cada geometría y composición del arreglo magnético nanoestructurado. De tal manera, es posible modificar las propiedades eléctricas espín dependientes de una película magnética mediante la variación de sus parámetros estructurales así como las propiedades magnéticas, como queda explícito en el caso de las películas porosas de cobalto.

# Bibliografía

- [1] J. M. D. Coey, Magnetism and Magnetic Materials, Cambridge University Press (2009).
- [2] B. D. Cullity, C. D. Graham, Introduction to Magnetic Materials, IEEE Press, 2 Edt. (2009).
- [3] N. Spalding, Magnetic Materials, Cambridge University Press, p.146 (2003).
- [4] A. Gerber, O. Riss, arXiv:0803.0124v1 (2008).
- [5] E. H. Hall, American Journal of Mathematics, 2, 287-292 (1879).
- [6] P. Jordan, E. Wigner, Z. Physik, 47, 631 (1928).
- [7] E. H. Hall, Phil. Mag., 12, 157 (1881).
- [8] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. Macdonal, N.P. Ong., Rev. Mod. Phys., 82, 1539-1592 (2012).
- [9] Pugh, E. M., Phys. Rev., 36, 1503 (1930).
- [10] Pugh, E. M., and T. W. Lippert, Phys. Rev., 42, 709 (1932).
- [11] J .C. Denardin M. Knobel, X.X. Zhang, A.B. Pakhomov, Appl. Phys. Lett., 82, 763 (2003).
- [12] Berger, L., Phys. Rev. B, 2, 4559 (1970).

- [13] Fert, A., and O. Jaoul, *Phys. Rev. Lett.*, 28, 303 (1972).
- [14] A. Fert., *J. Phys. F: Metal Phys.*, 3 (1973).
- [15] R. Karplus, J. M. Luttinger, *Phys. Rev.*, 95, 1154 (1954).
- [16] N. A. Sinitsyn, *J. Phys.: Condens. Matter*, 20 (2008).
- [17] J. Smit, *Physica*, 21, 877 (1955).
- [18] J. Smit, *Physica*, 24, 39 (1958).
- [19] J. M. Luttinger, *Phys. Rev.*, 112, 3 (1958).
- [20] Winkler, R., *Spin-Orbit Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*. Springer, Berlin (2003).
- [21] S. Michea, J.C.Denardin, M.Gamino, L.S.Dorneles, M.A.Correa, *Physica B: Condensed Matter*, 407, 16, 3178-3180 (2012).
- [22] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Ettiène, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, 61, 2472 (1988).
- [23] Barnas J, Fuss A, Camley R, Grunberg P, Zinn W, *Phys. Rev. B*, 42, 8110 (1990).
- [24] S. S. Parkin, K.P. More and Roche, *Phys. Rev. Lett.*, 64, 2304 (1990).
- [25] W.B. Mi, P. Li, E.Y. Jiang, H.L. Bai, *Applied Surface Science*, 256, 2831-2836 (2010).
- [26] A. Barthelemy, A. Fert, J-P. Contour, M. Bowen, V. Cros, J.M. De Teresa, A. Hamzic, J.C. Faini, J.M. George, J. Grollier, F. Montaigne, F. Pailloux, F. Petroff, C. Vouille. *J. Magn. Magn. Mater.*, 242-245, 68-76 (2002).
- [27] R. Schad, C.D. Potter, P. Belien, G. Verbanck, V.V.Moshchalkov, Y. Bruynseraede, *Appl. Phys. Lett.*, 64, 3500 (1994).

- [28] A. Barthelemy, A. Fert, F. Petroff, Handbook of Magnetic Materials, 12, Elsevier, Amsterdam, pp. 1-96 (1999)
- [29] A. Gerber, J. Magn. Magn. Mater., 310, 2749 (2007).
- [30] A. B. Pakhomov, X. Yan, B. Zhao, Appl. Phys. Lett. 67, 3497 (1995).
- [31] J. C. Denardin, M. Knobel, H. Liu, X. X. Zhang, A. B. Pakhomov, J. Magn. Magn. Mater., 262, 15 (2003).
- [32] L. M. Socolovsky, C. L. P. Oliveira, J. C. Denardin, M. Knobel, I. L. Torriani, J. Appl. Phys., 99, 08C511 (2006).
- [33] J. C. Denardin, A. B. Pakhomov, M. Knobel, H. Liu, X. X. Zhang, J. Magn. Magn. Mater., 680, 226-230 (2001).
- [34] B. A. Aronzon, V. V. Rylkov, D. Y. Kovalev, E. Z. Meilikhov, A. N. Lagarkov, M. A. Sedova, M. Goiran, N. Negre, B. Raquet, J. Leotin, Phys. Status Solidi B, 218, 169 (2000).
- [35] X. N. Jing, N. Wang, A. B. Pakhomov, K. K. Fung, X. Yan, Phys. Rev. B, 53, 14032 (1996).
- [36] X. U. Qing-Yu, N. I. Gang, W. Zhi-Ming, S. Hai, D. U. You-Wei, Chin. Phys. Lett., 18, 672 (2001).
- [37] J. Wang, W. Zou, Z. Lu, Z. Lu, X. Liu, J. Xu, Y. Lv, L. Lin, F. Zhang, Y. Du, J. Phys. D: Appl. Phys., 40, 2425 (2007).
- [38] W. B. Mi, Y. W. Liu, E. Y. Jiang, H. L. Bai, J. Appl. Phys., 103, 093713 (2008).
- [39] H. Liu, R. K. Zheng, X. X. Zhang, J. Appl. Phys., 98, 086105 (2005).
- [40] Y. W. Liu, W. B. Mi, E. Y. Jiang, H. L. Bai, J. Appl. Phys., 102, 063712 (2007).

- [41] J. Moritz, B. Rodmacq, S. Auffret, B. J. Dieny, *Phys. D: Appl. Phys.*, 41, 135001 (2008).
- [42] E. Jakubczyk, A. Krajczyk, M. Jakubczyk, *J. Phy: Con. Series*, 79, 012008 (2007).
- [43] M. A. Corrêa, A. D. C. Viegas, R. B. da Silva, A. M. H. de Andrade, R. L. Sommer, *J. Appl. Phys.*, 101, 043905 (2007).
- [44] M. A. Corrêa, F. Bohn, A. D. C. Viegas, A. M. H. de Andrade, L. F. Schelp, R. L. Sommer, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 41, 175003 (2010).
- [45] Vernier N., Allwood D. A., Atkinson D., Cooke M. D., Cowburn R. P., *Europhys. Lett.*, 65, 526 (2004).
- [46] Martin C. R., *Science*, 266, 1961 (1994).
- [47] Rosa W. O., Knobel M., Cescato L., Gobbi A., Vázquez M., *Solid State Commun.*, 142, 228 (2007).
- [48] W. O. Rosa, M. Jaafar, A. Asenjo, M. Vázquez, *Nanotechnology*, 20, 075301, (2009).
- [49] S. D. Bader, *Rev. Mod. Phys.*, 78, 1 (2006).
- [50] J. Nogues et al., *Phys. Rep.*, 422, 65 (2005).
- [51] R. Skomski, *J. Phys.: Condens. Matter*, 15, R841 (2003).
- [52] R. P. Cowburn, A. O. Adeyeye, J. A. C. Bland, *Appl. Phys. Lett.*, 70, 2309 (1997).
- [53] L. Torres, L. Lopez-Diaz, J. Iñiguez, *Appl. Phys. Lett.*, 73, 3766 (1998).
- [54] M.T. Rahman, N.N. Shams, C.-H. Lai, *Nanotechnology*, 19, 325302 (2008).
- [55] <http://math.nist.gov/oommf/>
- [56] Masuda H., Fukuda K. *Science* 268, 1566 (1995).

- [57] D. Navas O. Tesis Doctoral. Fabricación y caracterización de arreglos de nanohilos magnéticos en películas de alumina porosa. Universidad Autónoma de Madrid.
- [58] L. J. van der Pauw, *Phi. Res. Rep.*, 13, 1-9, (1958).
- [59] L. J. van der Pauw, *Phi. Tech. Rev.*, 20, 220-224, (1958).
- [60] Metaxas P. J., Zermatten P. J., Jamet J. P., Ferre J., Gaudin G., Rodmacq B., Schuhl A., Stamps R. L., *Applied Physics Letters*, 94, 132504 (2009).
- [61] Briones J., Montaigne F., Hehn M., Lacour D., Childress J. R., Carey M. J., *Physical Review B*, 83, 060401 (R) (2011).
- [62] Attané J. P., Ravelosona D., Marty A., Samson Y., Chappert C., *Physical Review Letters*, 96, 147202 (2006).
- [63] Beron F., Pirota K. R., Knobel M., *Journal of Applied Physics*, 109, 07E308 (2011).
- [64] Beron F., Menard D. and Yelon A. *Journal of Applied Physics*, 103, 07D908 (2007).
- [65] Lavin R., Farias C. and Denardin J. C., *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 324, 1800 (2012).
- [66] Dumas R. K., Li C. P., Roshchin I. V., Schuller I. K., Liu K., *Physical Review B*, 75, 134405 (2007).
- [67] Pike C., Fernandez A., *Journal of Applied Physics*, 85, 6668 (1999).
- [68] Chiriac H., Lupu N., Stoleriu L., Postolache P., Stancu A., *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 316, 177 (2007).
- [69] Lavin R., Denardin J. C., Escrig J., Altbir D., Cortes A. and Gomez H., *IEEE Transactions on Magnetics*, 44, 2808, (2008).
- [70] F. Preisach, *Physik*, 94, 277, (1935).
- [71] C. R. Pike, *Physical Review B*, 68, 104424, (2003).

- [72] E. K. Sichel, J. I. Gittleman, Phys. Rev. B, 42, 2, 75-77 (1982).
- [73] C. Wan, P. Sheng, Phys. Rev. B, 66, 075309 (2002).
- [74] X. X. Zhang, C. Wan, H. Liu, Z. Q. Li and P. Sheng, Phys. Rev. Let., 86, 24 (2001).
- [75] B. Zhao, X. Yan, J. Appl. Phys., 81 (8) (1997).
- [76] W. J. Xu, B. Zhang, Q. X. Wang, W. B. Mi, Z. Wang, W. Li, R. H. Yu, X. X. Zhang, Phys. Rev. B, 83, 205311 (2011).
- [77] M. Albrecht, G. Hu, I. L. Guhr, T. C. Ulbrich, J. Boneberg, P. Leiderer, G. Shatz., Nat. Mat., 4 (2005).
- [78] T. C. Ulbrich, D. Makarov, G. Hu, I. L. Guhr, S. Suess, T. Schrefl, M. Albrecht, Phys. Rev. Let., 96, 077202 (2006).
- [79] W. O. Rosa, M. Jaafar, A. Asenjo, M. Vázquez, Nanotechnology, 20, 075301 (2009).
- [80] X. Gao, L. Liu, B. Birajdar, M. Ziesse, W. Lee, M. Alexe, D. Hesse, Adv. Funct. Matter, 19, 3450-3455 (2009).
- [81] A. Aharoni, Introduction to the theory of ferromagnetism, Oxford University Press, Second Edition (1996).
- [82] R. Rodriguez-Suarez, Fenômenos Magneto-Eletrônicos em Interfaces Metálicas, Tese Doctoral, Universidad Federal de Pernambuco (2006).
- [83] W. F. T. Brown, Jr. Micromagnetics, Interscience Publishers (1963).