

DEPENDENCIA DE LA T_C CON ESPESOR RELATIVO EN BICAPAS FERRO-ANTIFERRO DEL SISTEMA $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$

Lorena Marín^{1*}, María Elena Gómez¹, David F. Reyes¹, Luis A. Rodríguez²

1: Departamento de Física, Grupo de Películas Delgadas, Universidad del Valle. Cali, Colombia

2: Departamento de Física, Grupo de Transiciones de Fase en Sistemas no Metálicos, Universidad del Valle. Cali, Colombia

* E-mail: lomarin@calima.univalle.edu.co

Recibido: Nov-2008; Revisado: 18-Nov-2009; Aceptado: 20-Feb-2010

Publicado On-Line el 30-Jul-2010

Disponible en: www.rlmm.org

Trabajo presentado en el congreso "X Iberoamericano de Metalurgia y Materiales (X IBEROMET)" celebrado en Cartagena, Colombia, del 13 al 17 de Octubre de 2008; y se seleccionó para ser remitido a la RLMM para su arbitraje reglamentario y publicación.

Resumen

Se crecieron bicapas del sistema manganita tipo $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ en sus fases ferromagnética $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (F-LCMO) y antiferromagnética $\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$ (AF-LCMO) sobre sustratos monocristalinos de SrTiO_3 con orientación (100). Las bicapas fueron crecidas *in situ* usando la técnica de sputtering dc a altas presiones de oxígeno, a temperatura del sustrato de 850°C y presiones de 3,5 mbar. Sobre el sustrato se depositó la fase antiferromagnética con espesor (t_{AF}) y luego la capa ferromagnética con espesor (t_F). La razón de espesores t_{AF}/t_F varió manteniendo constante el espesor total de la bicapa en 70nm. De las graficas de magnetización en función de la temperatura tomadas para diferentes campos de enfriamiento H_{FC} (100 Oe – 1000 Oe) se observa un incremento en la magnetización de saturación, $M(0)$, a medida que aumenta el H_{FC} . Para cada curva de magnetización en función de la temperatura, $M(T)$, se determinó la temperatura de transición T_C . La tendencia de T_C muestra un aumento con el campo aplicado y un corrimiento hacia valores mayores con el aumento del espesor de la capa ferromagnética en la bicapa.

Palabras Claves: Bicapas ferro/antiferro, manganitas, propiedades magnéticas

Abstract

Bilayers of the $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ system manganite type in their Ferromagnetic $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (F-LCMO) and antiferromagnetic $\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$ (AF-LCMO) phase were grown on (100) oriented SrTiO_3 monocrystalline substrates. The bilayers were grown *in situ* by using a dc sputtering technique at high oxygen pressure and at a substrate temperature of 850 °C and pressure of 3,5 mbar. On the substrate we grew the antiferromagnetic-layer with a given Antiferromagnetic thickness, t_{AF} and then the ferromagnetic layer on the AF-layer, with a given F thickness, t_F . The ratio of t_{AF}/t_F thickness varied maintaining constant the total thickness of the bilayer in 70 nm. The temperature dependence of the magnetization curves for different applied magnetic field cooling, H_{FC} , (100 Oe – 1000 Oe) show that saturation magnetization, $M(0)$, increases with the increasing of H_{FC} . We determined the transition temperature, T_C , for each thermal demagnetization curve, $M(T)$. The transition temperature, T_C , shows an increase with the increasing of the applied field and a shift toward bigger values with the increase of the ferromagnetic layer in the bilayer.

Keywords: Ferro/antiferro bilayers, manganites, magnetic properties

1. INTRODUCCION

La manganita de lantano con estructura perovskita, LaMnO_3 , dopadas con Ca, $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$, es un sistema que presenta alta correlación entre sus características estructurales y sus propiedades magnéticas y de transporte en todo el rango de dopaje, $0 < x < 1$, [1]. Específicamente, para $x=1/3$ el sistema tiene una transición para-ferromagnética a 260 K acompañada de una transición aislante-metal

en la conducción eléctrica [2]; mientras que a 140 K, para $x=2/3$, la transición es para-antiferromagnética [3]. El crecimiento en forma de capa delgada de la fase ferromagnética, $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (F-LCMO), y la fase antiferromagnética, $\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$ (AF-LCMO), provee un sistema ideal para crear una interfaz ferro/antiferro y estudiar su contribución al efecto *exchange-bias*, [4] en sistemas óxidos [5,6].

Específicamente, en el caso de superredes de este sistema $[\text{AF-LCMO}/\text{F-LCMO}]_N$ encontramos una dependencia de la magnetización de saturación con el espesor de la capa antiferromagnética, t_{AF} , [7]; y la magnitud del efecto *exchange bias*, H_{ex} , con el espesor de la capa ferromagnética, t_{F} , a una misma temperatura [8]. Con el fin de conocer la contribución o no de la interfaz entre las fases ferro y antiferromagnética a la dependencia de la magnetización de saturación y la temperatura de transición con el espesor las capas, t_{F} y t_{AF} , realizamos un estudio en bicapas de este sistema modificando los espesores relativos de las capas $t_{\text{F}}/t_{\text{AF}}$, para diferentes campos de enfriamiento aplicados, H_{FC} .

En este trabajo reportamos el estudio de propiedades magnéticas en bicapas de la fase antiferromagnética, $\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$ y ferromagnética, $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$, variando el espesor relativo, $t_{\text{F}}/t_{\text{AF}}$, de las dos capas pero manteniendo constante el espesor de la bicapa, $\text{AF-LCMO}(t_{\text{AF}})/\text{F-LCMO}(t_{\text{F}})$, y la dependencia de la temperatura crítica de transición para-ferromagnética con la magnitud del campo de enfriamiento (H_{FC}) aplicado, para relaciones de espesores $t_{\text{F}}/t_{\text{AF}}$ de 1/6 y 6/1.

2. DETALLES EXPERIMENTALES

Las bicapas $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ fueron crecidas *in situ* usando la técnica de pulverización catódica DC a altas presiones (3,5 mbar) de oxígeno puro, sobre sustratos mono cristalinos de SrTiO_3 con orientación (100). Los parámetros de crecimiento de las bicapas se detallan en la Tabla No. 1.

Tabla 1. Parámetros de deposición para el crecimiento de las bicapas.

Parámetros	$\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$	$\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$
Potencia	DC 380V 100mA.	DC 390V 80mA.
Sustrato	$\text{SrTiO}_3(100)$	$\text{SrTiO}_3(100)$
Gas-Sputtering	O_2 100%	O_2 100%
Presión	3.5 mbar	3.5 mbar
Temperatura-Sustrato	850° C	850° C
Rata de deposición	80 nm/h	80nm/h

La capa depositada directamente sobre el sustrato es la fase antiferromagnética AF, seguida de la fase ferromagnética F, debido a que el desajuste en parámetros de celda es menor entre la capa AF y el

SrTiO_3 (100). El espesor total de la bicapa se mantuvo constante en 70nm. Variamos los espesores para la fase ferromagnética de 60 nm y la antiferro de 10 nm, F60AF10; y viceversa, ferromagnética de 10 nm y la antiferro de 60 nm, F10AF60. Esto es, la relación de espesores $t_{\text{F}}/t_{\text{AF}}=6/1$ y $1/6$ respectivamente.

La caracterización magnética consistió en medidas de magnetización en función de la temperatura para diferentes valores de campo magnético aplicado durante enfriamiento (H_{FC}) desde la temperatura ambiente (curvas MT). Las medidas magnéticas fueron obtenidas utilizando un *physical properties measurement system*, PPMS, de la compañía *quantum design* en el modo VSM (magnetómetro de muestra vibrante) en el rango de temperatura de 5 a 300K para diferentes campos de enfriamiento aplicado entre 100 y 1000 Oersted, curvas tomadas cada 100 Oe. Para determinar T_{C} de las curvas de demagnetización térmica se ajustaron los datos experimentales cerca de la transición para-ferro, entre 160 y 270 K, usando una distribución gaussiana de temperaturas de transición de acuerdo con lo reportado por G. Campillo et al. [9] en capas de la fase ferromagnética. En este rango de temperatura (160 a 270 K) la contribución a la magnetización es debida solo a la capa ferromagnética, libre de una posible interacción en la interfaz con la capa antiferromagnética. Nuestras películas de la capa antiferromagnética han mostrado una temperatura de Néel alrededor de 150 K [10].

3. RESULTADOS Y DISCUSION

La Figura 1 muestra la dependencia con la temperatura de la densidad de magnetización para la bicapa F60AF10/STO, para diferentes campos de enfriamiento aplicados en el rango de 100 Oe a 1000 Oe. La Figura 2 muestra las curvas de magnetización en función de la temperatura para la bicapa F10AF60/STO. La magnetización se da en unidades electromagnéticas emu/cm^3 . Para el cálculo del volumen se consideró la contribución de la fase ferromagnética, considerando el área de la superficie del sustrato y el espesor nominal.

Observamos que las curvas son características de un material ferromagnético, en donde la magnetización extrapolada a temperatura cero, $M(0)$, como la temperatura crítica dependen de la magnitud del campo de enfriamiento H_{FC} .

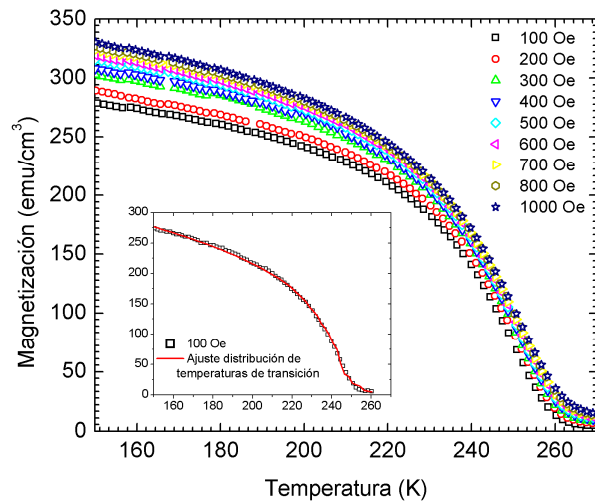


Figura 1. Dependencia de la magnetización con la temperatura para la bicapa F60AF10 para campos de enfriamiento aplicados H_{FC} : (□) 100 Oe, (◊) 200 Oe, (△) 300 Oe, (▽) 400 Oe, (◇) 500 Oe, (◀) 600 Oe, (◁) 700 Oe, (◊) 800 Oe, (★) 1000 Oe. La grafica insertada muestra el ajuste sobre la curva de 100 Oe.

Para la bicapa F60AF10, $M(0)$ aumenta con el incremento de H_{FC} . Para la bicapa F10AF60, $M(0)$ aumenta con H_{FC} entre 100 Oe y 600 Oe, por encima de 600 Oe, el valor de $M(0)$ disminuye con H_{FC} . El cambio observado de $M(0)$ entre 100 Oe y 200 Oe para la bicapa F10AF60 se debe posiblemente a contribuciones diamagnética, que se hacen despreciables a medida que aumenta H_{FC} .

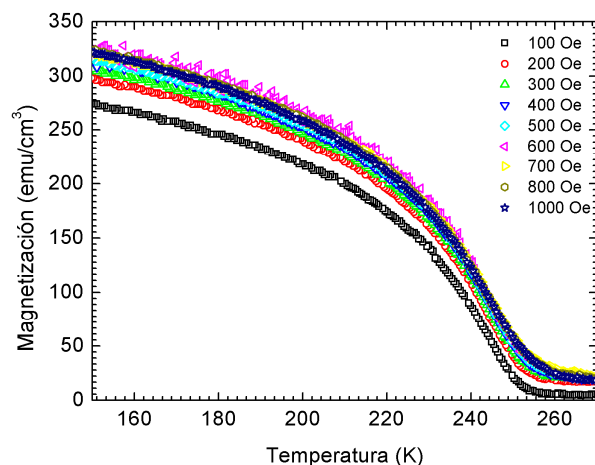


Figura 2. Dependencia de la magnetización con la temperatura para la bicapa F10AF60 para campos de enfriamiento aplicados H_{FC} : (□) 100 Oe, (◊) 200 Oe, (△) 300 Oe, (▽) 400 Oe, (◇) 500 Oe, (◀) 600 Oe, (◁) 700 Oe, (◊) 800 Oe, (★) 1000 Oe.

El aumento de $M(0)$ con H_{FC} se debe posiblemente a

las interacciones de los momentos magnéticos en la interfaz de la capa ferromagnética y la antiferromagnética contribuye a que los momentos magnéticos se alineen con mayor eficiencia a campos aplicados mayores cuando pasan por la temperatura crítica de Néel de la fase antiferromagnética.

En la Figura 3 se grafica la magnetización en función de la temperatura para un mismo campo de enfriamiento, $H_{FC}=100$ Oe, para las dos bicapas. Observamos que tanto la magnetización extrapolada a temperatura cero $M(0)$ y la temperatura crítica T_C dependen del espesor relativo de la capa ferromagnética.

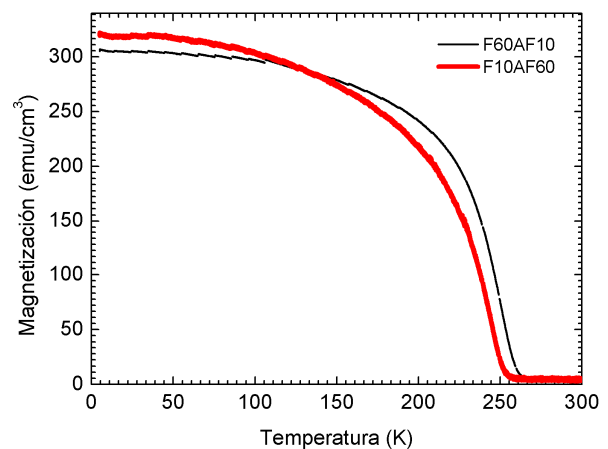


Figura 3. Comparación para las dos bicapas de la magnetización en función de la temperatura para un $H_{FC}=100$ Oe. Bicapa F10AF60 línea roja y bicapa F60AF10 línea negra.

Los resultados indican que la temperatura crítica T_C es diferente para las dos bicapas: T_C es mayor para la bicapa F60AF10, aquella con mayor proporción de fase ferromagnética. Esto posiblemente es debido a que en el caso de F10AF60, aquella con menor proporción de la fase ferromagnética, las interacciones en la interfaz F/AF afectan la transición de la capa ferromagnética, y/o a ese espesor la capa ferromagnética posee mayor estrés. Aparentemente las competiciones del ordenamiento magnético en la interfaz hacen que la temperatura crítica de la fase ferromagnética se vea afectada por la cantidad de material antiferromagnético cuantificada en su espesor. Este resultado está de acuerdo con lo encontrado superredes [F-LCMO/AF-LCMO]_N, donde la magnetización de saturación muestra un aumento con el aumento del espesor de la capa antiferromagnética [7].

Alrededor de la temperatura de Néel del material antiferromagnético ($\sim 140\text{K}$) [3], se observa que la densidad de magnetización de la bicapa F10AF60 supera la de la bicapa F60AF10. Finalmente la magnetización de saturación es mayor para la bicapa con menor cantidad de material ferromagnético. De nuevo, es posible explicar este aumento si consideramos que las interacciones en la interfaz F/AF, como en el caso de las superredes mencionadas anteriormente, hacen que la fase ferromagnética se extienda dentro de la fase antiferromagnética [11].

Para el cálculo de la temperatura crítica a partir de las curvas térmicas de magnetización se realizó un ajuste de mínimos cuadrados a los datos experimentales asumiendo una distribución gaussiana alrededor de T_C [9]. En este modelo consideramos el material intrínsecamente inhomogéneo, lo que nos permite analizar con una distribución estadística el comportamiento de la magnetización en función de la temperatura, asumiendo que el sistema tiene diferentes T_C . En la Figura 4 se muestra la dependencia de la temperatura de transición T_C , con la magnitud del campo de enfriamiento aplicado, para los dos bicapas.

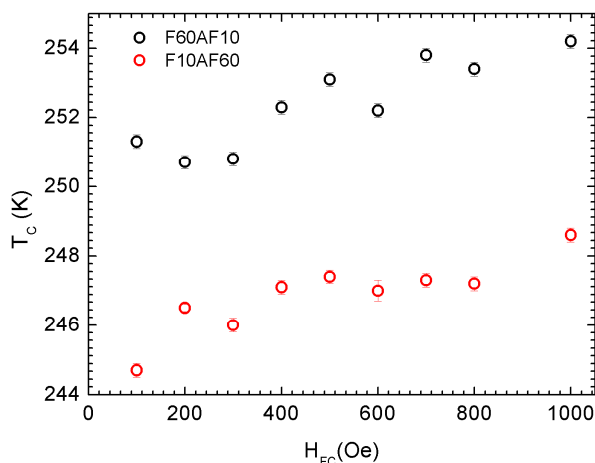


Figura 4. Dependencia de la temperatura crítica, T_C , con el campo de enfriamiento aplicado, H_{FC} . Bicapa F10AF60 círculos de color rojo y bicapa F60AF10 círculos de color negro.

Observamos que la temperatura de transición aumenta a medida que aumenta el campo de enfriamiento aplicado. La bicapa con mayor espesor de material ferromagnético, F60AF10, presenta valores de T_C mayores.

4. CONCLUSIONES

Los resultados de este trabajo muestran que las propiedades ferromagnéticas, magnetización de saturación, $M(0)$, y la temperatura crítica, T_C , en bicapas de las fases ferro y antiferromagnética de la manganita de La dopada con Ca, F-LCMO(t_F)/AF-LCMO(t_{AF}), dependen de la magnitud de campo magnético de enfriamiento aplicado, H_{FC} , y del espesor relativo de las capas individuales, t_F/t_{AF} . La temperatura crítica T_C aumenta con el aumento de H_{FC} y con el espesor de la capa ferromagnética; la magnetización de saturación crece también con el aumento de H_{FC} y con el espesor de la capa antiferromagnética; indicando que las interacciones en la interfaz de las fases ferro y antiferromagnética hacen que la cantidad de material antiferromagnético influya, muy probablemente, la fase ferromagnética se extienda dentro de la fase estequiométricamente antiferromagnética.

5. AGRADECIMIENTOS

Los Autores agradecen al Centro de Excelencia en Nuevos Materiales, contrato CENM-COLCIENCIAS RC-043-(2005). COLCIENCIAS proyecto 1106-05-11458 CT-046-(2002)

6. REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] Zener C, *Phys. Rev.* 1951, **82**, 403.
- [2] Campillo G, Gómez M. E, Berger A, Hoffmann A, Escudero R, Prieto P. *J. Appl. Phys.* 2006, **99**, 08C106.
- [3] Radaelli P. G, Cox D. E, Capogna L, Cheong S.-W, Marezio M. *Phys. Rev. B*, 1999, **59**, 22.
- [4] Meiklejohn W. H and Bean C. P, *Phys. Rev.* 1957, **105**, 904.
- [5] Panagiotopoulos I, Christides C, Pissas M. and Niarchos D, *Phys. Rev. B*, 1999, **60**, 485-491.
- [6] Prieto P, Gómez M. E, Campillo G, Berger A, Baca E, Escudero R, Morales F, Guimpel J, and Haberkorn N, *phys. stat. sol. (a)* 2004, **201**, 10, 2343-2346.
- [7] Campillo G, Hoffman A, Gómez M. E. and Prieto P, *J. Appl. Phys.* 2005, **97**, 10K104.
- [8] Gómez M. E, Campillo G, Ramirez J.-G, Hoffmann A, Guimpel J. *Phys. Status Solidi C*, 2007, **4**, 4181-4187.
- [9] Campillo G, Berger A, Osorio J, Pearson J. E, Bader S. D, Baca E. and Prieto P; *J. Magn.*

Magn. Mater, 2001, **237** 61-68.

- [10] Campillo G, Hoffmann A, Gómez M. E and Prieto P. *Rev. Fis. Col*, 2005, **37**, 215.
- [11] Hoffmann A, May S. J, Te Velthuis S. G, Park S, Park, Fitzsimmons M. R, Campillo G and Gómez M.E. *Phys. Rev. B*, 2009, **80**, 052403.