

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**

**FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS**  
**Departamento de Física de Materiales**



**OPTIMIZACIÓN DE LAS PROPIEDADES MAGNÉTICAS  
Y DE TRANSPORTE EN MULTICAPAS METÁLICAS Y  
HETEROESTRUCTURAS MAGNÉTICAS DILUÍDAS**

**MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR**

**PRESENTADA POR**

**Rocío Ranchal Sánchez**

Bajo la dirección de los doctores:  
Eloísa López Pérez y Claudio Aroca Hernández-Ros

**Madrid, 2006**

- **ISBN: 978-84-669-2926-4**

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID  
FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS  
DEPARTAMENTO DE FÍSICA DE MATERIALES



Optimización de las propiedades magnéticas y de  
transporte en multicapas metálicas y  
heteroestructuras magnéticas diluidas

Tesis para optar al grado de  
DOCTOR EN CIENCIAS FÍSICAS

Presentada por  
Rocío Ranchal Sánchez

Dirigida por  
Dra. Eloísa López Pérez  
Dr. Claudio Aroca Hernández-Ros

Madrid, 2006.



*A mis padres.*

*A Agustín, Chelo y Alejandro.*

*A Víctor.*



*“La evidencia es la más decisiva demostración”*. Cicerón.

*“Nuestra sociedad es masculina, y hasta que no entre en ella la mujer no será humana”*. Henrik J. Ibsen.

*“La inspiración llega, pero te tiene que encontrar trabajando”*. Pablo Picasso.



# Agradecimientos

Aunque sé que es un tópico, tengo que agradecer a mucha gente el que esta tesis haya llegado a su fin.

En primer lugar, dar las gracias a mis dos directores de tesis (Eloísa y Claudio) no sólo el haberme dado la posibilidad de realizarla sino también, la paciencia y las horas de trabajo dedicadas a que esta tesis saliera adelante.

M<sup>a</sup> Carmen Sánchez me ha brindado su amabilidad y simpatía en todo momento. Pedro Sánchez me ayudó a conseguir tener subvención durante mi primer año de tesis, y también me dio lecciones sobre la vida, una de ellas, cómo hablar en público.

Parte de este trabajo ha sido realizado en los laboratorios de la “*Unité Mixte de Physique CNRS/Thales*” bajo la supervisión de los Prof. Agnès Barthélémy y Albert Fert. Agradecer a Albert Fert el haberme acogido durante 6 meses en su laboratorio en el que tanto he aprendido y a Agnès Bathélémy el haberme brindado la oportunidad de trabajar con el Co-LSTO, que tantas alegrías me ha dado. Dar las gracias a los dos por su cercanía y facilidad en el trato. *Merci*.

Fue mucha la gente con la que trabajé en Orsay, y a todos ellos gracias. Sin embargo, quisiera destacar de mi estancia el haber trabajado con el Dr. Manuel Bibes que me enseñó bastante de lo que sé sobre cómo caracterizar un material. El Dr. Karim Bouzeouhane me ayudó con el AFM y el Dr. Anane con el SQUID. Finalmente, agradecer al Prof. Jean Piere Contour, director del grupo de Superconductores de Alta Temperatura, la supervisión de los crecimientos de las capas de Co-LSTO. *Merci*.

Mi vida científica ha corrido prácticamente paralela al crecimiento del ISOM por lo que es bastante la gente de la E.T.S.I. Telecomunicaciones a la que tengo cosas que agradecer. El profesor Elías Muñoz coordinó mi trabajo sobre GaN a lo largo de un año y aunque esa investigación no forma parte del contenido de esta tesis, sirvió para entrar en contacto con la caracterización de dispositivos electrónicos. Hay mucha gente que he conocido durante este tiempo en los laboratorios del ISOM que me gustaría nombrar por todo el tiempo que hemos pasado juntos, algunas se fueron (Eva, Susana, Fernando, Alicia, Ulloa, Pablo), otras permanecen (Pau, Jorge, Carlos, Javier M., Maite, David L-R) y muchos han llegado (Juan, Sergio, Javier G., Raquel, Fátima, Miguel).

Queda por nombrar la gente del Departamento de Física de Materiales. Carlos Díaz-Guerra, Pedro Hidalgo, Ignacio Cuesta (ya no está en el departamento, pero da igual) Ana Urbieta, y Emilio Nogales han estado conmigo prácticamente todo este tiempo. Violeta vino con nosotros hace dos años y se ha convertido en una de nuestras mejores adquisiciones. Compañeros



de despacho he tenido multitud, unos se han integrado y otros no. Rocío Cortés y Manuel Plaza han llegado los últimos y ya se encuentran como pez en el agua. Giorgio demostró ser un compañero excepcional, no sólo dentro como fuera del despacho. Irene, que formó parte también de mi grupo de investigación, aguantó estoicamente mis ganas de conversación. Con Óscar Rodríguez he pasado casi 6 años (quitando nuestras respectivas estancias, menos) compartiendo despacho y todavía permanecemos en el mismo sitio...

Durante la realización de esta tesis han sido muchos los que han pasado por mi grupo de investigación, el GDM. Quiero mencionar aquellos que me han ayudado a que todo fuera más sencillo, como Lucas Pérez que me ayudó (entre otras cosas) con el software de control y la puesta a punto del sistema de medida por efecto Kerr, Óscar de Abril me enseñó el funcionamiento básico del SEM, David Ciudad últimamente comparte conmigo los problemas con el VSM, José Luis Prieto que conoce como nadie los secretos de nuestro sputtering y Marco Maicas que tanto me ha ayudado con la redacción de esos artículos que al principio tan mal se me daban. En especial, destacar a Miguel González con el que tantos ratos he compartido, tanto en el laboratorio (esos eternos cambios de blancos en el sputtering), como fuera de él. Lo mejor, volver a casa en su Ford Fiesta y hablar sobre la vida.

Por último, quiero nombrar a las personas que me han ayudado en el plano personal. Diego me brindó su amistad en algún mal rato que otro. *Patri* y *Ajo* (Patricio y M<sup>a</sup> José) me facilitaron mi vida en París gracias a su apoyo y compañía. Rocío Muñoz, me ha levantado la moral en demasiadas ocasiones y por eso, siempre estaré en deuda con ella. Con Natalia he compartido multitud de experiencias, tanto buenas como malas, que nos han ayudado a fortalecer nuestra amistad. Con Pilar (*Pili*), tengo muchas cosas en común (tú ya sabes a que me refiero) y por eso, le deseo toda la suerte del mundo. David (próximamente Dr. Maestre) no sólo es y será mi mejor compañero de despacho sino que además, es de mis mejores amigos. Por todo, se merece un 10.

Pero sobre todo, y sin ningún tipo de duda, los que más me han ayudado en estos años han sido mi hermano, mis padres y Víctor. Para ellos simplemente no hay palabras, **GRACIAS** de todo corazón.

# Índice

<b>Resumen</b> .....	<b>1</b>
<b>Abstract</b> .....	<b>3</b>
<b>1. Introducción</b> .....	<b>5</b>
<b>1.1. Introducción</b> .....	<b>7</b>
<b>1.2. Estructura de la tesis</b> .....	<b>11</b>
<b>1.3. Referencias</b> .....	<b>12</b>
<b>2. Técnicas experimentales</b> .....	<b>15</b>
<b>2.1. Elaboración de blancos</b> .....	<b>17</b>
<b>i. Blancos de Py</b> .....	<b>17</b>
<b>ii. Blancos de LSTO</b> .....	<b>18</b>
<b>2.2. Técnicas de crecimiento</b> .....	<b>18</b>
<b>i. Pulverización catódica “sputtering”</b> .....	<b>18</b>
<b>ii. Deposición por láser pulsado</b> .....	<b>22</b>
<b>iii. Comparación entre el sputtering y el PLD</b> .....	<b>25</b>
<b>2.3. Caracterización estructural: Difracción de rayos-X</b> .....	<b>26</b>
<b>i. Configuración simétrica</b> .....	<b>27</b>
<b>ii. Configuración asimétrica</b> .....	<b>28</b>
<b>2.4. Caracterización morfológica: Microscopía de fuerzas atómicas (AFM)</b> .....	<b>28</b>
<b>2.5. Caracterización composicional: Espectroscopía de electrones Auger (AES)</b> .....	<b>29</b>
<b>2.6. Litografía óptica (fotolitografía)</b> .....	<b>30</b>
<b>2.7. Caracterización magnética</b> .....	<b>32</b>
<b>i. Efecto Kerr magneto-óptico</b> .....	<b>33</b>

ii.	Magnetómetro de muestra vibrante (VSM) .....	37
iii.	Magnetómetro SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) .....	38
iv.	Magnetómetro de gradiente de campo alterno (AGFM) .....	39
2.8.	Caracterización eléctrica .....	41
i.	Muestras de Py/Gd .....	41
ii.	Películas de Co-LSTO .....	42
2.9.	Referencias .....	43
<b>3.</b>	<b>Caracterización estructural, magnética y eléctrica de tricapas de Py/Gd/Py .....</b>	<b>45</b>
3.1.	Introducción .....	47
3.2.	Caracterización estructural y morfológica de tricapas de Py/Gd .....	50
3.3.	Cálculo numérico .....	62
3.4.	Caracterización magnética .....	71
i.	Caracterización magnética a temperatura ambiente .....	71
ii.	Caracterización magnética en función de la temperatura .....	74
a.	Primera serie de tricapas Py/Gd/Py .....	74
b.	Segunda serie de tricapas Py/Gd/Py.....	76
3.5.	Caracterización eléctrica de tricapas de Py/Gd/Py .....	84
i.	Resistencia eléctrica en función de la temperatura .....	84
ii.	Magnetorresistencia en función de la temperatura .....	88
iii.	Cálculo de la constante de acoplamiento Py-Gd .....	93
3.6.	Referencias .....	98
<b>4.</b>	<b>Caracterización magnética del sistema optimizado Py/Gd .....</b>	<b>99</b>
4.1.	Introducción .....	101

4.2. Optimización del sistema Py/Gd .....	103
4.3. Procesos de acoplamiento a través de paredes en sistemas basados en bicapas de Py/Gd .....	111
4.4. <i>Exchange-bias</i> en películas de Py-Gd a campos altos .....	121
4.5. Referencias .....	125
<b>5. Optimización y estudio del sistema <math>\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3</math> dopado con Co (Co-LSTO) .....</b>	<b>127</b>
5.1. Introducción .....	129
5.2. Elaboración de blancos .....	131
5.3. Influencia del sustrato .....	138
i. Crecimiento de las muestras .....	138
ii. Caracterización morfológica .....	141
iii. Caracterización estructural .....	143
iv. Caracterización magnética .....	145
5.4. Caracterización estructural y morfológica de películas delgadas de Co-LSTO .....	147
i. Caracterización por RHEED, AFM, difracción de rayos-x y TEM .....	147
ii. Espectroscopia electrónica Auger (AES) .....	152
5.5. Ferromagnetismo y polarización de espín de capas delgadas de Co-LSTO .....	156
i. Influencia de la presión de oxígeno en las propiedades magnéticas de películas delgadas de Co-LSTO .....	156
a. Caracterización estructural y morfológica .....	156
b. Caracterización magnética .....	157
ii. Magnetorresistencia túnel (TMR) .....	165
5.6. Estado de alta movilidad en el sustrato STO(001) .....	168

5.7. Referencias .....	173
<b>6. Conclusiones .....</b>	<b>175</b>
6.1. Conclusiones .....	177
6.2. Conclusions .....	180
<b>Anexo. Magnetorresistencia en películas de Py/Cu/Py .....</b>	<b>183</b>
A.1. Introducción .....	185
A.2. Resultados experimentales .....	188
A.3. Estudio teórico .....	193
A.4. Conclusiones .....	197
A.5. Referencias .....	198

## Resumen

La investigación realizada en este trabajo de tesis se ha dirigido a la optimización y estudio de dos sistemas diferentes de películas delgadas ferromagnéticas, por un lado multicapas metálicas acopladas magnéticamente y por otro óxidos magnéticos diluidos dopados con Co. En el primer sistema se han estudiado multicapas permalloy/gadolinio (Py/Gd) y en el segundo películas delgadas de  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  dopado con Co (Co-LSTO). Ambos sistemas presentan características interesantes tanto desde el punto de vista de la física básica como desde el tecnológico.

En las intercaras de las multicapas de Py/Gd existe acoplamiento antiferromagnético al igual que sucede en las multicapas de Fe/Gd o Co/Gd. En estas multicapas la existencia de biestabilidad puede utilizarse a la hora de desarrollar sensores magnéticos. La aleación  $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$  (Py) se utiliza en muchos dispositivos debido a su bajo campo coercitivo y elevada permeabilidad, por lo que es de esperar que las multicapas de Py/Gd presenten características muy atractivas para aplicaciones tecnológicas. Sin embargo, como hay pocos trabajos acerca de este sistema resulta primordial su caracterización en detalle (estructural, magnética y eléctrica).

En el estudio de las tricapas Py/Gd/Py se llegó a la conclusión de la necesidad de optimizar la estructura debido a la difusión de Ni en el Gd que reduce la interacción en la intercara. La existencia de temperatura de compensación ( $T_{\text{Com}}$ ) en las multicapas metálicas se ha considerado como indicativo del acoplamiento antiferromagnético en la intercara en la práctica totalidad de los trabajos publicados hasta ahora. Las tricapas Py/Gd/Py, a pesar de su acoplamiento antiferromagnético, no presentan  $T_{\text{Com}}$  debido a su elevado espesor y bajo acoplamiento. Este resultado se ha explicado mediante un modelo numérico.

Después de optimizar el sistema Py/Gd, estudiamos el acoplamiento magnético en estas estructuras. Los resultados muestran dos tipos de acoplamiento dependiendo de la temperatura y del espesor de la capa de Py. Entre 250 y 140 K, el acoplamiento se puede explicar a través de la interacción de las paredes de la capa de Py con la imanación de la capa de Gd. Por debajo de 140 K hemos mostrado que hay procesos magnéticos debidos a la interacción antiferromagnética Py-Gd.

En los últimos años, han aparecido un gran número de investigaciones acerca de los óxidos magnéticos diluidos (ZnO, TiO<sub>2</sub>, HfO<sub>2</sub>, ...). En estos materiales se dopa un óxido semiconductor con impurezas magnéticas para obtener un nuevo material que presente propiedades semiconductoras y ferromagnéticas al mismo tiempo. En este trabajo se han ampliado las investigaciones realizadas en este campo hasta el momento, ya que hemos partido de un sistema de electrones altamente correlacionados paramagnético, el LSTO, que pasa a ferromagnético a temperatura ambiente al doparlo con una pequeña cantidad de Co.

En primer lugar mostramos que el sustrato óptimo para obtener capas delgadas de Co-LSTO con baja rugosidad es el STO(001). Al no encontrar signos de agregados de Co mayores de 10 nm podemos concluir que el ferromagnetismo del Co-LSTO es de tipo intrínseco. Esta hipótesis está apoyada por medidas de magnetorresistencia túnel que muestran una polarización de espín elevada en este material. Finalmente, hemos encontrado que las condiciones óptimas para el crecimiento del Co-LSTO (baja presión de oxígeno) inducen un estado de alta movilidad en el sustrato de STO. Por lo tanto, el Co-LSTO presenta características atractivas para su aplicación en el campo de la espintrónica debido tanto a su ferromagnetismo a temperatura ambiente como a su elevada polarización de espín. Es más, el crecimiento a baja presión de oxígeno del Co-LSTO sobre STO, permite pensar en el desarrollo de un dispositivo en el que se combine un material con una elevada polarización de espín con otro de alta movilidad eléctrica en una heteroestructura formada únicamente por óxidos.

## Abstract

The aim of this thesis is the optimization of two different kind of ferromagnetic thin films: magnetically coupled metallic multilayers and diluted magnetic oxides doped with Co. In the first case it has been studied permalloy/gadolinium (Py/Gd) multilayers and in the second  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  doped with Co (Co-LSTO) thin films. Both of them exhibit interesting characteristics from the point of view of basic physics and applications.

There is an antiferromagnetic exchange coupling at the Py/Gd interfaces as in the case of Fe/Gd and Co/Gd multilayers. Due to its low coercivity and high permeability the  $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$  alloy (Py) is widely used in magnetic devices and thus, Py/Gd multilayers appear as an interesting system to study. However there are few works on Py/Gd and therefore a detailed characterization -structural, magnetic and electrical- is essential.

Py/Gd/Py trilayers have not optimum properties due to the Ni interdiffusion at the interfaces that reduces the Py-Gd coupling. Compensation Temperature ( $T_{\text{Com}}$ ) has commonly been used as a signature of the interface antiferromagnetic coupling in metallic multilayers. In spite of the antiferromagnetic coupling, the studied Py/Gd/Py trilayers do not have  $T_{\text{Com}}$  due to the weak coupling and the high Py thickness. This result has been explained by means of a numerical model.

The magnetic coupling has been studied in the optimized structures. Results show there exist two kind of couplings depending on the temperature and the Py thickness. From 250 to 140 K, the coupling can be explained by taking into account the interaction between Py domain walls and the Gd magnetization. At temperatures lower than 140 K the magnetization processes are due to the Py-Gd antiferromagnetic exchange coupling.

In the last few years a great number of works have been done in diluted magnetic oxides such as ZnO,  $\text{TiO}_2$  and  $\text{HfO}_2$ . These materials exhibit ferromagnetism as they have been doped with magnetic impurities as Co and so, they have semiconducting and ferromagnetic properties at the same time. In this work we have opened a new research field doping a strong correlated electrons system,  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ . The paramagnetic LSTO becomes ferromagnetic at room temperature when it is doped with only 1-2 % of Co.

First of all, Co-LSTO thin films grown on STO(001) show flat surfaces. As we have no evidence of Co clusters higher than 10 nm it can be concluded that



## Abstract

---

ferromagnetism is intrinsic to the Co-LSTO. This hypothesis is also confirmed by the high spin polarization obtained in tunnel magnetoresistance measurements. Finally, we have found that the best growth conditions for the Co-LSTO -low oxygen pressure- induce a high mobility state in the STO. In conclusion, Co-LSTO exhibits interesting properties for its application in spintronics due to its ferromagnetism at room temperature and its high spin polarization. Furthermore, by using low oxygen growth conditions, we have obtained a full oxide heterostructure combining a high- $T_C$  diluted ferromagnet (Co-LSTO) with a high-mobility conductor (STO).

# **Capítulo 1**

---

## **Introducción**

---



# 1. Introducción.

## 1.1. Introducción

El avance desarrollado en el estudio de materiales magnéticos desde los últimos años de la década de los 70 viene marcado principalmente por las mejoras de las técnicas de vacío. Este perfeccionamiento permitió el desarrollo de técnicas de crecimiento con las que se consigue la deposición de películas delgadas con espesor controlado a escala nanométrica.

Las películas delgadas fueron los primeros sistemas de reducida dimensionalidad utilizados para el desarrollo de nuevas aplicaciones y la investigación de nuevos fenómenos. Aunque el descubrimiento de la magnetorresistencia gigante (GMR: *Giant Magnetoresistance*) en 1988 impulsó el estudio de los procesos de transporte en multicapas metálicas magnéticas [1], la posibilidad de controlar la resistencia eléctrica de un material ferromagnético mediante la aplicación de campo magnético ya era conocida desde años anteriores [2-4], la denominada magnetorresistencia anisotrópica (AMR: *Anisotropic Magnetoresistance*). El fenómeno de AMR en películas delgadas de permalloy (Py) se utilizó en las cabezas lectoras de los discos duros hasta que fue recientemente desbancada por cabezas lectoras magnetoresistivas basadas en GMR.

De las aleaciones de Fe-Ni la más utilizada es el Py ( $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ ) con una imanación de saturación de 1 T, un campo coercitivo entre 1 y décimas de Oe, una magnetostricción prácticamente nula y una temperatura de Curie de aproximadamente 720 K. Debido a sus propiedades como material magnéticamente blando, existe un gran número de trabajos acerca de la magnetorresistencia de multicapas basadas en Py [5-9] así como el desarrollo de sensores tipo *fluxgate* de Py [11-14].

La configuración electrónica de las tierras raras (TR) es del tipo  $4f^n 5s^2 5p^6 5d^1 6s^2$ , y por tanto, la capa incompleta que es la responsable del magnetismo es una capa muy profunda. El acoplamiento entre una TR y un metal magnético de transición depende del llenado de la banda 4f de la TR. Las TR ligeras ( $n < 7$ ) presentan un acoplamiento con los metales de transición de tipo ferromagnético mientras que las TR pesadas presentan

un acoplamiento antiferromagnético [15]. En ambos casos, el acoplamiento es de canje entre la banda 4f de la TR y la banda 3d de los metales de transición. Además, sólo las TR pesadas ( $n \geq 7$  electrones), presentan comportamiento ferromagnético siendo el Gd la que mayor temperatura de Curie ( $T_C$ ) presenta (Gd: 289 K, Tb: 218 K, Dy: 90 K, Ho: 20 K) [2]. El Gd no sólo es la única TR pesada que tiene una única fase ferromagnética por debajo de la  $T_C$  [16] sino que además, no presenta temperatura de Néel por encima de su  $T_C$  como ocurre con las otras TR pesadas. Al encontrarse la banda 4f del Gd semillena ( $n = 7$ ), su momento orbital es nulo y por tanto su anisotropía magneto-cristalina es mucho menor (casi nula) que la de las otras TR.

En las intercaras de las multicapas de Py/Gd existe acoplamiento antiferromagnético [17-18] al igual que sucede en las multicapas de Fe/Gd o Co/Gd. Camley demostró de forma teórica el comportamiento de las multicapas formadas por Gd y Fe, en función de la temperatura y el campo magnético aplicado, analizando las posibles fases que podían aparecer en estos sistemas [19-21]. Estas fases han sido observadas de forma experimental, en multicapas de Fe/Gd que son las que presentan fronteras más abruptas [22-26]. Sin embargo, aunque el sistema Fe/Gd presenta óptimas características tanto estructurales como magnéticas, uno de sus inconvenientes es el elevado campo coercitivo del Fe. El grupo de A. R. Koymen ha realizado trabajos en el sistema CoNi/Gd [27-30] pero, además de que existe una fuerte difusión de Co y Ni en el Gd, la coercitividad de estas estructuras sigue siendo elevada.

En esta tesis se ha realizado un estudio en detalle del sistema Py/Gd. En primer lugar se muestra como, al igual que en las estructuras Co/Gd y CoNi/Gd, existe interdifusión siendo en este caso los átomos de Ni los que se difunden hacia la capa de Gd. La caracterización magnética y eléctrica de tricapas de Py/Gd/Py muestra que el acoplamiento Py-Gd está debilitado debido a esta interdifusión de Ni. En este trabajo de tesis se propone una solución para obviar el problema de la difusión y se ha analizado el acoplamiento magnético en las estructuras Py/Gd optimizadas en las que la difusión de Ni es prácticamente nula. Se ha encontrado que el acoplamiento existente en estas muestras depende tanto de la temperatura como del espesor de las capas de Py, siendo efectivo el acoplamiento en la interfase únicamente por debajo de 140 K.

De forma paralela al desarrollo de la GMR aparecieron estudios acerca de otros procesos de magnetorresistencia como la magnetorresistencia balística (BMR: *Ballistic Magnetoresistance*), la magnetorresistencia colosal (CMR: *Colossal Magnetoresistance*) o la magnetorresistencia túnel (TMR: *Tunnel Magnetoresistance*). Es en este último fenómeno de magnetorresistencia en el que nos centraremos debido a su estrecha relación con esta tesis. En la TMR los procesos de magnetorresistencia se encuentran asociados al transporte túnel entre dos electrodos magnéticos a través de una barrera aislante muy delgada. El primer modelo que explica la TMR fue propuesto por Simmons en 1963 [31] y aunque Jullière en 1975 observó TMR en uniones túnel formadas por dos electrodos ferromagnéticos [32], fue en 1995 cuando Moodera obtuvo TMR a temperatura ambiente [33]. La fórmula de Jullière relaciona la amplitud de la TMR con la polarización de espín,  $P_1$  y  $P_2$ , de cada uno de los electrodos:

$$TMR = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2}$$

La expresión de Jullière nos indica que para obtener la amplitud de TMR más elevada posible es necesario disponer de electrodos en la unión túnel con la mayor polarización de espín posible. Debido a que los metales magnéticos como el Fe y el Co presentaban polarizaciones de espín relativamente bajas,  $\sim 20\%$ , fue necesario desarrollar una investigación en materiales que presentaran una polarización cercana al  $100\%$ , los denominados semi-metales. De entre los candidatos a semi-metales prácticamente sólo el  $\text{Cr}_2\text{O}$  y el  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$  (LSMO) han mostrado tener una polarización de espín mayor del  $95\%$  [34-36]. Aunque en uniones túnel basadas en LSMO se ha llegado a obtener amplitudes para la TMR de hasta el  $1800\%$  [37], su pérdida de polarización de espín a temperaturas muy por debajo de la temperatura ambiente no le hace un buen candidato para aplicaciones tecnológicas. Actualmente, la investigación de materiales magnéticos con elevada polarización de espín se está realizando principalmente en semiconductores y óxidos semiconductores dopados con impurezas magnéticas [38-42] lo que permitiría una fácil integración de estos materiales en estructuras semiconductoras.

En esta tesis se ha desarrollado el estudio de una doble perovskita, candidata a tener una elevada polarización de espín, pero no basada en Mn como el LSMO sino en Ti. Como el material de partida,  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  (LSTO), no es ferromagnético [43], se han introducido impurezas de Co para intentar inducir un ferromagnetismo intrínseco a la matriz. En la primera parte demostramos que el sustrato óptimo para este material es el  $\text{SrTiO}_3$ . No se han observado agregados de Co en las capas de Co-LSTO, indicando que el ferromagnetismo en este material es de tipo intrínseco. Además, las propiedades magnéticas de estas capas están fuertemente influenciadas por la presión de oxígeno utilizada durante el crecimiento, siendo mayor su imanación de saturación cuando se crecen a baja presión. Las uniones túnel del tipo Co-LSTO/LAO/Co crecidas a baja presión presentan una fuerte polarización de espín que puede ser explicada a partir de un modelo de túnel resonante asistido a través de una banda de estados asociada a defectos localizada en la barrera. Finalmente, se ha visto que las condiciones de baja presión de oxígeno inducen un estado de alta movilidad en el sustrato de STO.

Por último, para comprobar que en nuestro sistema de sputtering se podían obtener capas delgadas de alta calidad y con control a nivel nanométrico en su espesor, se realizó un estudio de la magnetorresistencia de tricapas de Py/Cu/Py que aparece en el Anexo. Este trabajo se realizó de forma previa a la investigación realizada en el sistema Py/Gd, que fue desarrollada una vez controlado el proceso de crecimiento de capas metálicas de bajo espesor. S.S. Parkin había demostrado que el espesor de la capa no magnética en multicapas acopladas antiferromagnéticamente era crítico para la observación o no de GMR [5]. Aprovechando la aparición de GMR en las tricapas de Py/Cu/Py con un espesor de Cu de 0.9 nm, se analizó la influencia de la anisotropía magnética en la magnetorresistencia en el plano de estas estructuras.

### 1.2. Estructura de la tesis

**Capítulo 1.** En este capítulo se justifican los objetivos de esta tesis: la optimización y caracterización del sistema Py/Gd y de películas delgadas de Co-LSTO.

**Capítulo 2.** En él se presentan las técnicas experimentales utilizadas tanto para el crecimiento como para la caracterización estructural, magnética y eléctrica de las muestras.

**Capítulo 3.** Este capítulo está dedicado a la caracterización de tricapas Py/Gd/Py. En la primera parte se muestra la caracterización estructural realizada en este sistema. En la segunda parte se desarrolla un modelo teórico para analizar cual es la configuración magnética de las tricapas en función del acoplamiento de canje en la interfase. Por último, en la tercera parte aparecen los resultados de la caracterización magnética y eléctrica.

**Capítulo 4.** En la primera parte se presenta nuestra propuesta para la optimización de la estructura Py/Gd. En la segunda parte están los principales resultados obtenidos en la caracterización magnética en función de la temperatura en el sistema Py/Gd optimizado. Se han encontrado dos tipos de acoplamiento, la interacción de las paredes de la capa de Py con la imanación de la capa de Gd (entre 250 K y 140 K) y el acoplamiento antiferromagnético Py-Gd en la interfase (para temperaturas inferiores a 140 K).

**Capítulo 5.** Este capítulo está completamente dedicado a la caracterización estructural, eléctrica y magnética de películas delgadas de Co-LSTO. El SrTiO<sub>3</sub> ha mostrado ser el mejor sustrato para las capas de Co-LSTO. Existe una fuerte dependencia de las propiedades magnéticas con la presión de oxígeno mostrando las capas crecidas a baja presión una fuerte polarización de espín. Además, se ha visto que estas condiciones de crecimiento inducen un estado de alta movilidad en el sustrato de SrTiO<sub>3</sub>.

**Capítulo 6.** Recogemos los principales resultados y aportaciones obtenidas en esta tesis.

**Anexo.** Se encuentra dedicado a la magnetorresistencia de tricapas de Py/Cu/Py. Se realiza un estudio experimental de los procesos de transporte en el plano en este sistema, que es completado mediante un modelo teórico.



### 1.3. Referencias

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [2] S. Chikazumi, Physics of Magnetism, John Wiley & Sons, (1964).
- [3] T. R. McGuire, and R. I. Potter, IEEE Trans. Mag. **11**, 1018 (1975).
- [4] A. Fert, I.A. Campbell, J. Phys. F **6**, 849 (1976).
- [5] S.S. Parkin, Appl. Phys.Lett. **60**, 512 (1992).
- [6] Y. J. Song, S.K. Joo, IEEE Trans. Magn. **32**, 5 (1996).
- [7] S. Heitmann, A. Hütten, T. Hempel, W. Schepper, G. Reiss, J. Appl. Phys. **87**, 4849 (2000).
- [8] R. Ranchal, M. Torija, E. López, M.C. Sánchez, C. Aroca, P. Sánchez. Nanotechnology **13**, 392-397 (2002).
- [9] V. Vovk, G. Schmitz, A. Hütten, Appl. Phys. Lett. **88**, 023120 (2006).
- [10] S. Kawahito, Y. Sasaki, H. Sato, T. Nakamura, Y. Tadokoro, Sensors and Actuators A **43**, 128 (1994).
- [11] J. Deak, A.H. Miklich, J. Slonczewski, R.H. Koch, Appl. Phys. Lett. **69**, 1157 (1996).
- [12] J.G. Deak, R.H. Koch, G.E. Guthmiller, R.E. Fontana, IEEE Trans. Mag. **36**, 2052 (2000).
- [13] A. Tipek, P. Ripka, T. O'Donnell, J. Kubik, Sensors and Actuators, A **115**, 286 (2004).
- [14] A. Tipek, P. Ripka, T. O'Donnell, J. Kubik, IEEE Sensors Journal **5**, 1264 (2005).
- [15] E. du Trémolet. *Magnétisme*. Editorial EDP, Grenoble (2000).
- [16] A. W. Pang, A. Berger, H. Hopster, Phys. Rev. B. **50**, 6457 (1994).
- [17] N. Hayashi, E. Goto, K. Nishimoto, Japan. J. Appl. Phys. **7**, 555 (1968).
- [18] J. L. Prieto, M. G. Blamire, J. E. Evetts, Phys. Rev. Lett. **90**, 027201 (2003).
- [19] R.E. Camley, D.R. Tilley, Phys. Rev. B **37**, 3413 (1988).
- [20] R.E. Camley, Phys. Rev. B **39**, 12316 (1989).
- [21] R.E. Camley, R.L. Stamps, J. Phys.: Condens. Matter. **5**, 3727 (1993).
- [22] K. Cherifi, C. Dufour, Ph. Bauer, G. Marchal, Ph. Mangin, Phys. Rev. B **44**, 7733 (1991).

- [23] C. Dufour, K. Cherifi, G. Marchal, Ph. Mangin, M. Hennion, *Phys. Rev. B.* **47**, 14572 (1993).
- [24] M. Sajjeddine, Ph. Bauer, K. Cherifi, C. Dufour, G. Marchal, R. E. Camley, *Phys. Rev. B* **49**, 8815 (1999).
- [25] D. Haskel, G. Srajer, J. C. Lang, J. Pollmann, C. S. Nelson, J. S. Jiang, S. D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 207201 (2001).
- [26] A. Koizumi, M. Takagaki, M. Suzuki, N. Kawamura, N. Sakai, *Phys. Rev. B* **61**, 14909 (2000).
- [27] B. Altunçevahir, A. R. Koymen, *J. Appl. Phys.* **90**, 2939 (2001).
- [28] B. Altunçevahir, A. R. Koymen, *J. Appl. Phys.* **89**, 6822 (2001).
- [29] B. Altunçevahir, S. Demirtas, A. R. Koymen, *J. Appl. Phys.* **93**, 7157 (2003).
- [30] B. Altunçevahir, A. R. Koymen, *J. Magn. Magn. Mater.* **261**, 424 (2003).
- [31] J.G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 1763 (1963).
- [32] M. Jullière, *Phys. Lett. A* **54**, 225 (1975).
- [33] J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273 (1995).
- [34] R.J. Soulen, J.M. Byers, M.S. Osofsky, B. Nadgorny, T. Ambrose, S.F. Cheng, P.R. Broussard, C.T. Tanaka, J. Nowak, J.S. Modera, A. Barry, J.M.D. Coey, *Science* **282**, 85 (1998).
- [35] J.S. Parker, S.M. Watts, P.G. Ivanov, P. Xiong, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 196601 (2002).
- [36] J.H. Park, E. Vescovo, H.J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, T. Venkatesan, *Nature* **392**, 794 (1998).
- [37] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J.P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître, A. Fert, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 233 (2003).
- [38] H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 363 (1996).
- [39] A.H. MacDonald, P. Schiffer, N. Samrth, *Nat. Mater.* **4**, 195 (2005).
- [40] T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, D. Ferrand, *Science* **287**, 1019 (2000).
- [41] Y. Matsumoto, M. Murakami, T. Shono, T. Hasegawa, T. Fukumura, M. Kawasaki, P. Ahmet, T. Chikyow, S. Koshihara, H. Koinuma, *Science* **291**, 854 (2001).
- [42] J.M.D. Coey, M. Venkatesan, C.B. Fitzgerald, *Nat. Mater.* **4**, 173 (2005).

[43] J.E. Sunstrom, S.M. Kauzlarich, P. Klavins, Chem. Mater. **4**, 346 (1992).

# **Capítulo 2**

---

## **Técnicas experimentales**

---



## 2. Técnicas experimentales

### 2.1. Elaboración de blancos

Las películas metálicas se crecieron mediante la técnica de pulverización catódica (“*sputtering*”) mientras que las películas de  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  (LSTO) se crecieron mediante deposición por láser pulsado (PLD). En ambos casos, el proceso de crecimiento se realiza a partir de la extracción de átomos desde el material en masivo mediante bombardeo, en el caso del sputtering con iones de Ar y en el PLD con radiación láser. Este material masivo se conoce como blanco, siendo obtenido para las aleaciones por el método de sinterización. Los blancos de Py ( $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ ) se realizaron en los laboratorios del Dpto. de Física de Materiales de la UCM mientras que los blancos de LSTO se hicieron bajo la dirección del Dr. R. LeBourgeois en “*Thales Research&Technology*”, en Francia. Los procesos de sinterizado son distintos para el caso del Py y del LSTO ya que, en un caso, es necesario que el blanco no se oxide, mientras que en el caso del LSTO el material a sinterizar es un óxido.

#### i. Blancos de Py.

Como se acaba de mencionar, en el caso del Py es necesario que el blanco no se oxide durante el proceso de sinterizado. Para ello, los polvos de partida son manipulados dentro de una campana con atmósfera de nitrógeno. En un contenedor con bolas de ágata se introducen las cantidades adecuadas de Fe (pureza 99.9 %) y Ni (pureza 99.99 %) para obtener un blanco con la composición  $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ . En este contenedor se muelen los polvos en el molino durante 2 horas a 90 r.p.m. Una vez terminada la molienda, hay que volver a introducir el contenedor en la cámara de nitrógeno, para traspasar los polvos al troquel para prensarlos con una presión de 510 mPa. Finalmente, el recocido se realiza en atmósfera reductora de nitrógeno a 850 °C durante 2 horas.

## ii. Blancos de LSTO.

La producción de estos blancos se realizó usando técnicas convencionales de obtención de cerámicas. Una diferencia con respecto al proceso de sinterizado anterior es que con polvos de óxidos no es necesario trabajar en atmósferas controladas pudiendo incluso realizar la molienda en un molino con agua para mejorar la homogeneidad del proceso. Como era la primera vez que se obtenía este material en el laboratorio, hubo que realizar varias pruebas para encontrar la temperatura de sinterizado. Este estudio se encuentra explicado en detalle en el Capítulo 5. En este apartado señalamos brevemente los pasos realizados para la realización de estos blancos.

La molienda se realiza en un molino de bolas de *zirconox* ( $ZrO_2/MgO/ZnO/Co_3O_4$ ) introduciendo además de los polvos 200 ml de agua para favorecer el mezclado. Después se realizó un tamizado para eliminar posibles grumos y un secado de los polvos a 90 °C para eliminar el agua. El prensado tuvo lugar en una prensa hidrostática bajo una presión de 1.5 bar. Finalmente, aunque se probaron atmósferas de nitrógeno y de aire, se vio que los blancos presentaban una mayor compactación al ser recocidos en aire.

Se obtuvieron 3 blancos con concentraciones de Co de 0, 1.5 y 3 %. Aparte de estos blancos, también se trabajó con un blanco obtenido en el laboratorio del profesor P. Berthet “*Laboratoire de Physico-Chimie de l’Etat Solide*” de la Université Paris-Sud siendo su contenido en Co del 1.5 %.

## 2.2. Técnicas de crecimiento

### i. Pulverización catódica (“*sputtering*”).

La pulverización catódica, de ahora en adelante *sputtering*, ha sido la técnica de crecimiento utilizada para depositar las películas delgadas metálicas magnéticas. Se han crecido tanto capas formadas a base de Py y Gd como tricapas de Py/Cu/Py. El estudio de estas últimas muestras aparece en el Anexo.

Esta técnica consiste en el bombardeo con iones de un gas inerte (generalmente Ar) sobre el blanco del material que se quiere depositar. Variantes de este proceso

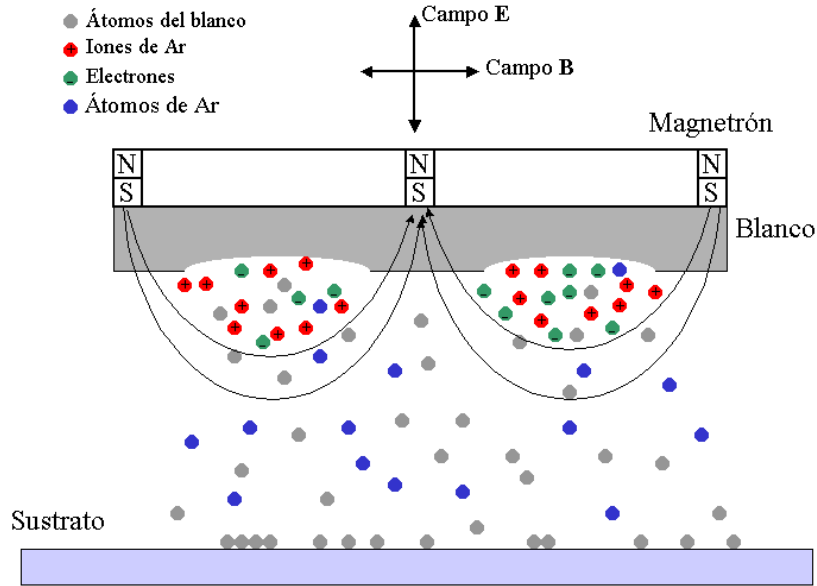
estándar serían: utilizar un gas que reaccionara con el blanco (sputtering reactivo) o utilizar de forma simultánea dos o más blancos para obtener una aleación (co-sputtering).

Antes de introducir el gas que se usará para el bombardeo, hay que hacer vacío en la campana para eliminar las impurezas (sobre todo el oxígeno). Los iones son acelerados mediante una diferencia de potencial suficiente como para poder arrancar átomos del blanco debido a un intercambio de momento lineal entre los iones y los átomos del blanco. Al trabajar con Ar, los iones que aparecen son  $\text{Ar}^+$  por lo que para poder acelerarlos contra el blanco, éste tiene que actuar como electrodo negativo (cátodo) mientras que el sustrato estará conectado a tierra (ánodo). La llegada continua al sustrato de átomos procedentes del blanco da lugar al crecimiento.

Existen tres técnicas básicas de sputtering:

- **Sputtering diodo.** Se trabaja únicamente con un ánodo (sustrato) y un cátodo (blanco). Se producen pocos choques entre los iones y el blanco por lo que es necesario trabajar con presiones elevadas (20-100 mTorr) dando lugar a un ritmo de crecimiento muy lento. En este método, se produce un elevado calentamiento del sustrato debido a que los electrones chocan contra él al ser atraídos por su potencial positivo.
- **Sputtering triodo.** Para aumentar el proceso de ionización del Ar se generan electrones mediante un filamento termoiónico. Este aumento de iones mejora la eficiencia del proceso de impactos contra el blanco, por lo que los crecimientos se pueden realizar a presiones más bajas (0.5-1 mTorr).
- **Sputtering magnetrón.** Las partículas cargadas, siendo en su mayoría iones  $\text{Ar}^+$  y electrones que ionizan al Ar, se encuentran confinados en las cercanías de la superficie del blanco debido al campo magnético creado por unos imanes (magnetrones) colocados tras el blanco. Este confinamiento de las cargas eléctricas, mejora la eficiencia de la producción de iones permitiendo obtener ritmos de crecimiento de nm/min para presiones de Ar de 1 mTorr. Otra ventaja de esta técnica es el menor calentamiento del sustrato, debido a que existe un menor choque de los electrones contra él, al estar confinados en la botella magnética generada por los magnetrones.





**Figura 2.1.** Dibujo esquemático para el proceso de formación del plasma y evaporación en un sputtering de magnetrón.

Cuando se depositan metales basta con utilizar una fuente de continua DC para crear el campo eléctrico. Sin embargo, cuando se trabaja con blancos que son aislantes eléctricos hay que trabajar con una fuente de radiofrecuencia RF para evitar que el blanco se cargue.

Los 4 parámetros fundamentales con los que se controla el ritmo de crecimiento son la temperatura del sustrato, la distancia blanco-sustrato, la presión de Ar y la potencia de crecimiento. En nuestro equipo, la distancia blanco-sustrato y la temperatura del sustrato no se pueden modificar por lo que el ritmo de crecimiento se controla mediante la potencia de crecimiento y la presión de Ar.

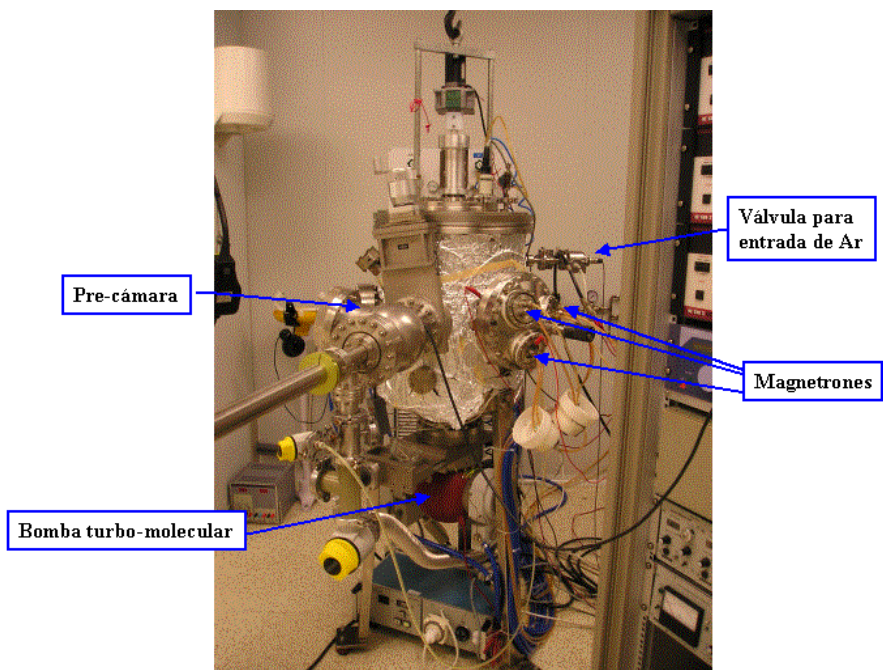
- **Potencia de crecimiento.** Es el producto de los voltios necesarios para crear el arco del plasma y la corriente iónica absorbida por el blanco. Al aumentar la potencia de crecimiento, crece el ritmo de crecimiento ya que se arranca un mayor número de átomos del blanco.
- **Presión de Ar.** Al aumentar la presión, estamos aumentando la concentración del plasma que rodea al blanco. Los átomos al ser expulsados del blanco tienen que atravesar este plasma antes de alcanzar en el sustrato. A mayor

concentración del plasma, mayor número de choques entre los átomos y el plasma, lo que disminuye el ritmo de crecimiento.

- **Temperatura del sustrato.** Cuanto menor sea la temperatura del sustrato más lento el ritmo de crecimiento ya que disminuye la movilidad de los átomos.
- **Distancia blanco-sustrato.** A mayor distancia menor ritmo de crecimiento ya que se dificulta el que los átomos alcancen el sustrato.

El sputtering utilizado es un sputtering de magnetrón que aunque pertenece al Grupo de Dispositivos Magnéticos (GDM), se encuentra en las instalaciones del Instituto de Sistemas Optoelectrónicos y Microtecnología de Madrid (ISOM). Todas las muestras crecidas en este sputtering fueron depositadas con una fuente de continua sobre sustratos de vidrio. Este sustrato fue elegido tanto por su baja rugosidad como por el hecho de ser transparente a la luz. La baja rugosidad lo hace apto para el crecimiento de películas delgadas y su transparencia a la luz permitió caracterizar mediante efecto Kerr la capa inferior de Py de las tricapas Py/Gd/Py.

En nuestro equipo hay un sistema planetario para el movimiento de los sustratos de tal forma que no sólo pueden cambiar de posición en torno a la cámara de crecimiento, sino que también pueden rotar sobre sí mismos durante el crecimiento lo que mejora la homogeneidad de las muestras. Además, se pueden aplicar campos magnéticos en el plano de las muestras para inducir las direcciones de anisotropía deseadas.

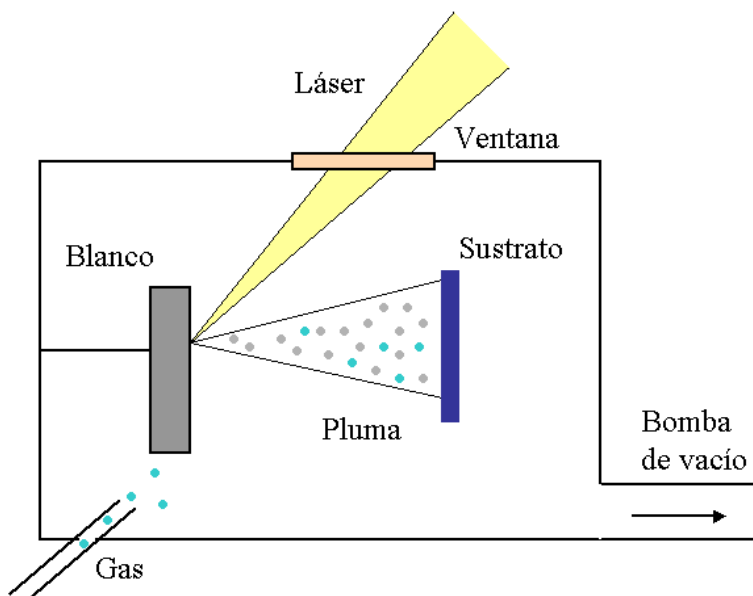


**Figura 2.2.** Vista general del sistema de sputtering utilizado

## ii. Deposición por láser pulsado (PLD).

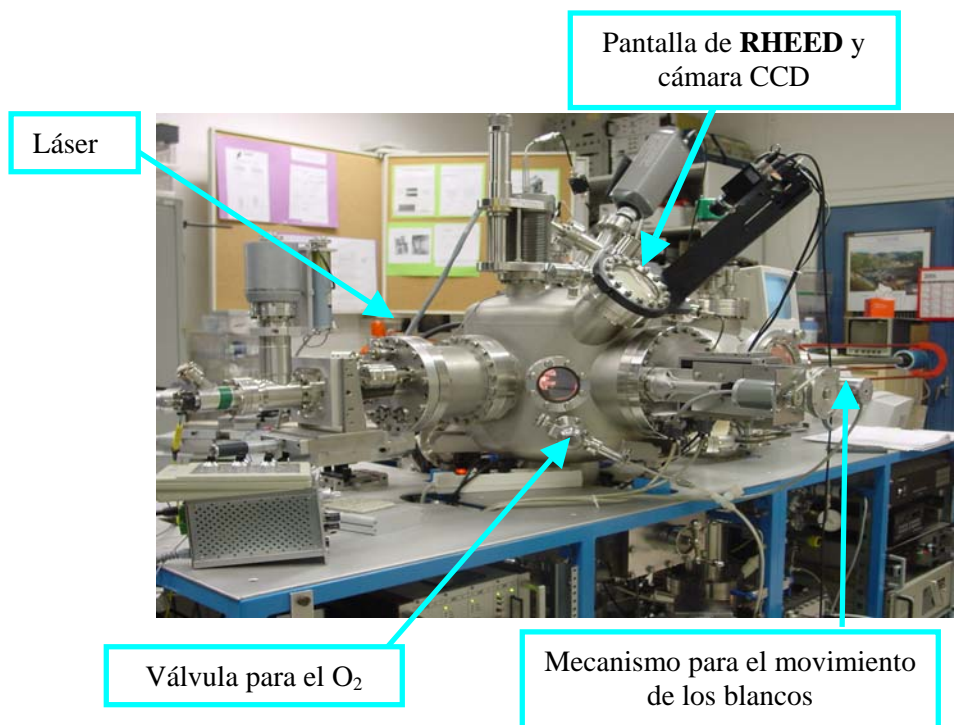
La deposición por láser pulsado (PLD: *Pulsed Laser Deposition*) fue la técnica utilizada para el crecimiento de las películas delgadas de LSTO. Todas las muestras fueron depositadas en su totalidad en el grupo “*Supraconducteurs à Haute température Critique et Dispositifs Exploratoires*” dirigido por el Prof. Jean Pierre Contour perteneciente a la “*Unité Mixte de Physique CNRS/Thales*”.

Aunque en este trabajo sólo se han crecido capas de óxidos magnéticos mediante PLD, ésta es una técnica muy versátil que permite crecer cualquier tipo de material (superconductores de alta temperatura, ferroeléctricos, materiales optoelectrónicos, ...) sin tener que alterar el dispositivo experimental. Esto se debe a que su principio básico de funcionamiento consiste en arrancar átomos de un blanco al incidir sobre él con un láser altamente energético [1]. Los átomos arrancados del blanco se depositan sobre el sustrato obteniendo con relativa facilidad capas epitaxiales.



**Figura 2.3.** Esquema del funcionamiento básico de la técnica de PLD.

El sistema experimental del grupo de J.-P Contour dispone de un equipo RHEED (RHEED: *Reflected High Energy Electrons Diffraction*) incorporado en la cámara de crecimiento que permite estudiar la superficie de los sustratos antes de los crecimientos. A partir de las oscilaciones RHEED se puede controlar *in situ* tanto el ritmo como el mecanismo de crecimiento de las capas. El ritmo de crecimiento de estas capas ha sido un parámetro fundamental, ya que a partir de él y del parámetro de red fuera del plano se ha calculado el espesor de las capas. La temperatura del sustrato durante el crecimiento es de 700 °C. Para evitar la aparición de un cambio de estructura o de tensiones durante el enfriamiento de las muestras, este proceso se realiza a la misma presión de oxígeno que la utilizada durante el crecimiento. Los diagramas RHEED se usan para comprobar que la superficie no ha cambiado, realizando estas medidas tanto una vez finalizado el crecimiento como después de su enfriamiento.



**Figura 2.4.** Vista general del equipo de PLD utilizado.

El láser utilizado es un láser de Nd:YAG que emite en el infrarrojo con una longitud de onda de 1064 nm. Esta frecuencia se triplica para obtener una longitud de onda de 355 nm (ultravioleta). Esta es una  $\lambda$  más adecuada para la radiación láser debido a que para  $\lambda$  comprendidas entre 200 y 400 nm se disminuye la longitud de penetración debido a un aumento de absorción de la radiación en la superficie del blanco. La densidad de energía sobre la superficie del blanco fue de  $2.8 \text{ J/cm}^2$ . Para conseguir que esta densidad de energía sea estable hay que mantener el sistema óptico bien alineado para no perder coherencia en el haz.

El crecimiento no se realiza de forma continua sino que se trabaja con un láser pulsado, de ahí el nombre de la técnica. Valores para las frecuencias de los pulsos del orden del Hz permiten alcanzar ritmos de crecimiento de 0.25-0.5 monocapas/s. En nuestro caso, la frecuencia de trabajo estaba fijada en 5 Hz. Los átomos sólo llegan al sustrato durante el tiempo de vida del plasma (algunos microsegundos). Es durante el tiempo que el plasma se encuentra apagado (0.2 s para una frecuencia de 5 Hz) cuando se produce la difusión de los átomos en la superficie del sustrato para alcanzar

configuraciones energéticamente favorables. Por tanto, es necesario mantener el sustrato a una temperatura elevada para poder obtener crecimientos capa a capa. Como se ha comentado anteriormente, las capas de LSTO se crecieron a 700 °C.

Los sustratos utilizados para el crecimiento de estas muestras fueron SrTiO<sub>3</sub>(001) y LaAlO<sub>3</sub>(001). De aquí en adelante denominaremos a estos sustratos como STO y LAO.

### iii. Comparación entre el sputtering y el PLD.

Por último, pasamos a comentar las ventajas e inconvenientes de una técnica de crecimiento sobre la otra.

- Los parámetros de crecimiento del PLD como son la presión, la temperatura del sustrato, la densidad de energía del láser, ... se encuentran desacoplados entre sí lo que permite una gran libertad a la hora de elegir las condiciones de crecimiento. En el caso del sputtering, la potencia de crecimiento se encuentra ligada a la presión ya que al aumentar la potencia se incrementa la presión necesaria para encender el plasma. Así, el rango accesible a los parámetros de crecimiento es menor en el sputtering.
- El rango de presiones que se puede utilizar en el PLD va desde 0.3 Torr hasta 10<sup>-9</sup> Torr (presión residual de la campana). La elección de una presión u otra no influye apenas en el ritmo de crecimiento sino en la estequiometría del material depositado. En el caso del sputtering, la presión de Ar se encuentra limitada a un rango de 10<sup>-3</sup> mbar ya que presiones mayores de Ar reducen considerablemente el ritmo de crecimiento.
- En el PLD, el material evaporado forma un plasma (pluma) en el que existen tanto átomos del blanco, como átomos e iones del gas y electrones. Esta pluma se encuentra muy localizada limitando a una zona muy estrecha la región en la que el material se deposita. En el caso del sputtering la evaporación es “sucia” ya que aunque el plasma se encuentra confinado por el campo magnético producido por los magnetrones, los átomos arrancados del blanco no se ven afectados por este campo (son eléctricamente neutros) pudiendo depositarse tanto en el sustrato como en otras regiones de la cámara.

- En principio, cualquier material puede ser depositado por PLD ya que la radiación láser interactúa con cualquier material independientemente de su conductividad eléctrica. En el caso del sputtering, una fuente de continua sólo es útil para depositar materiales metálicos siendo necesario una fuente de radiofrecuencia para materiales aislantes.
- Como se ha comentado anteriormente, las capas obtenidas por PLD presentan una alta calidad cristalina pudiendo obtener capas epitaxiales con relativa facilidad. Sin embargo, las capas obtenidas por sputtering suelen ser policristalinas.
- Los láseres con los que se suele trabajar en la técnica de PLD presentan un alto coste lo que encarece esta técnica con respecto al sputtering.
- Si no se trabaja con blancos de elevada compactación ( $\geq 90\%$ ) en el PLD, suelen formarse agregados en la superficie de la muestra. En el caso del sputtering, un blanco no demasiado compacto impide el crecimiento a bajas presiones de Ar pero no suele influir en la morfología de la muestra.
- Tanto el sputtering como el PLD son técnicas de alto vacío lo que facilita su uso frente a las técnicas de ultra-alto vacío.

Por tanto, aunque la técnica PLD permite crecimientos de capas de mayor cristalinidad que las obtenidas por sputtering, su alto coste hace que el sputtering esté más extendido en aquellos campos en los que no sea necesario la obtención de capas epitaxiales.

### **2.3. Caracterización estructural: Difracción de rayos X.**

La difracción de rayos-X es una técnica no destructiva de caracterización estructural. Las muestras de Py/Gd han sido medidas en el CAI de Difracción de rayos-X del departamento de Química Inorgánica de la Universidad Complutense de Madrid por el Dr. Julián Velázquez. Las muestras de LSTO fueron analizadas por el Dr. Manuel Bibes en la “*Université Paris-Sud*” de Francia. En este último caso se realizaron medidas tanto en configuración simétrica como asimétrica.

Tanto en la configuración simétrica como en la asimétrica, lo que se estudia es la interacción entre la radiación electromagnética incidente y los electrones de los átomos del material. Cuando la estructura del material es amorfa, aparece un halo ancho debido a que la radiación es dispersada en todas las direcciones. Sin embargo, cuando el material se encuentra ordenado, cada familia de planos dispersa la radiación en una misma dirección.

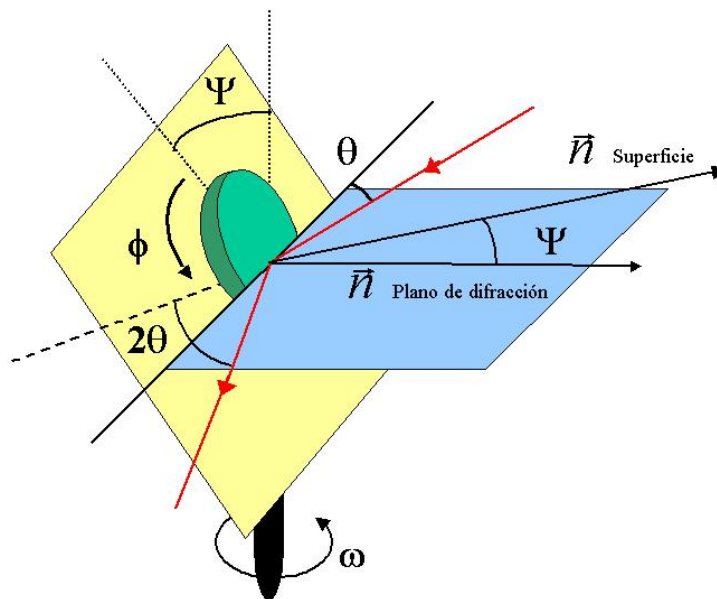


Figura 2. 5. Esquema de los ángulos que aparecen en el fenómeno de la difracción.

### i. Configuración simétrica

En esta configuración, el ángulo de inclinación de la muestra es nulo ( $\Psi = 0$ ), por lo que los picos de difracción se encuentran asociados a las familias de planos  $\{hkl\}$  paralelas a la superficie de la muestra. Con estas medidas por tanto, se estudia la estructura, textura y el parámetro de red de estas familias de planos. Las medidas tomadas se han hecho realizando un barrido  $\theta$ - $2\theta$ , es decir, el haz se mantiene fijo mientras que la muestra rota con una velocidad  $\omega$ . Para medir en todo momento el haz difractado, el detector se mueve de forma síncrona con la muestra formando un ángulo  $2\theta$  respecto del haz incidente.



## ii. Configuración asimétrica

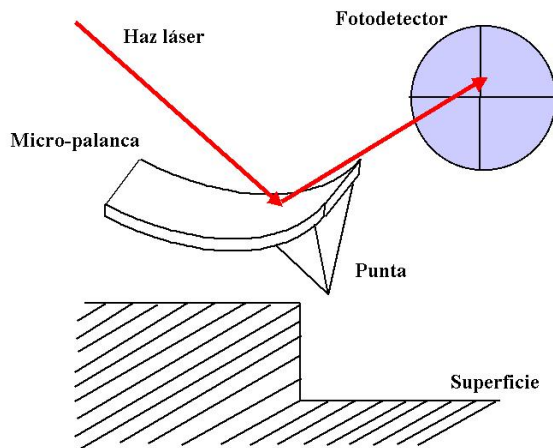
En esta configuración el ángulo de inclinación es no nulo ( $\Psi \neq 0$ ), lo que permite medir las reflexiones asociadas a planos no paralelos al plano de la muestra. Para saber si existe epitaxia entre la capa y el sustrato lo que se hace es situarnos en un pico de difracción asociado a una familia de planos no paralelos a la superficie de la muestra para luego hacer un barrido en  $\phi$  (“ $\phi$ -scans”). Si los picos de difracción de la capa y del sustrato aparecen para los mismos ángulos  $\phi$ , eso quiere decir que las capas son epitaxiales.

## 2.4. Caracterización morfológica: Microscopio de fuerzas atómicas (AFM).

La morfología de la superficie de las muestras, tanto de las capas metálicas como de los óxidos, fue estudiada mediante microscopía de fuerzas atómicas (AFM: *Atomic Force Microscopy*). La caracterización se realizó en ambos casos mediante un microscopio comercial *Nanoscope III multimode* de *Digital Instruments*.

El AFM fue desarrollado por Binnig y Quate en 1986 [2], años después del desarrollo del microscopio túnel. Destacar de entre las ventajas del AFM su capacidad de trabajar en aire y la versatilidad para analizar cualquier tipo de muestras con independencia de su conductividad eléctrica.

Esta microscopía se basa en la detección de las fuerzas que sufre una punta afilada cuando barre la superficie de una muestra. Estas fuerzas producen una deflexión de la micro-palanca en la que está montada la punta siendo monitorizadas a través de un sistema óptico formado por un láser y un fotodiodo. La resolución de la técnica está determinada por el tamaño y radio final de la punta siendo de décimas de angstroms para la resolución vertical, mientras que en el caso de la resolución lateral aunque en algunos casos pueda ser atómica, generalmente suele ser algo mayor.



**Figura 2.6.** Esquema del funcionamiento de un AFM.

Aunque existen dos modos básicos de funcionamiento del AFM, el modo contacto y el modo no contacto (“*tapping*”), en esta tesis sólo se ha trabajado en el modo *tapping*. En *tapping*, la micro-palanca se hace vibrar a una frecuencia cercana a la de su frecuencia de resonancia a una cierta distancia de la superficie, generalmente decenas de nm. Al interactuar la punta con la muestra aparecen fuerzas de tipo Van der Waals que modifican esta oscilación. Existe un circuito de retroalimentación que registra la imagen de topografía al mantener o bien la frecuencia, o bien la amplitud de la oscilación, constante mientras la punta recorre la superficie de la muestra.

## **2.5. Caracterización composicional: Espectroscopía de electrones Auger (AES)**

La caracterización composicional de las muestras tanto de Py/Gd como las capas de LSTO fue realizada por Frédéric Wyczisk de “*Thales Research&Technology*” en Francia. El equipo utilizado contiene no sólo un analizador de electrones Auger sino que también dispone de un sistema para atacar la muestra con un haz de iones  $\text{Ar}^+$ . Así, se puede realizar tanto un mapa de composición de la superficie de la muestra como analizar la composición según la perpendicular a la muestra al ir atacando y analizando de forma progresiva.

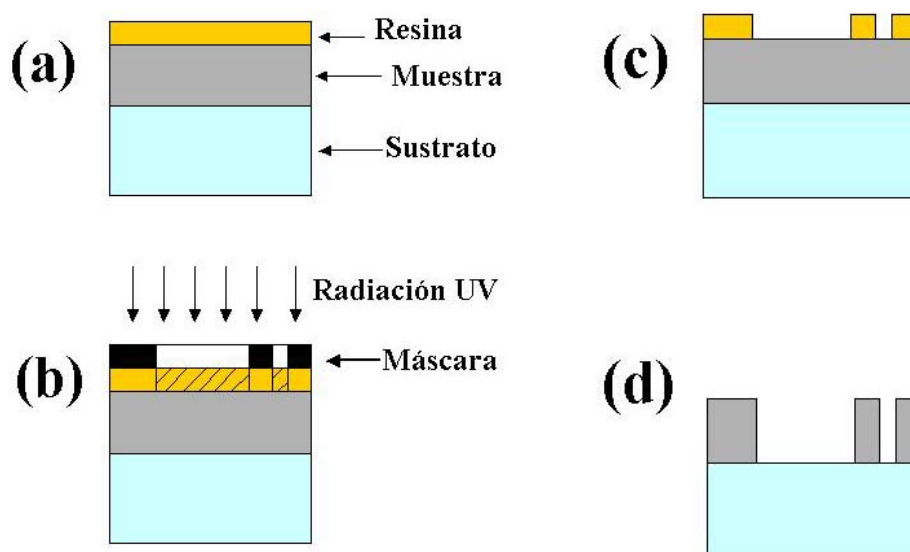
Los electrones Auger aparecen cuando un átomo es ionizado en uno de sus niveles más internos. Esta ionización se puede producir mediante rayos-X o como ocurría en nuestro caso, mediante los electrones procedentes del filamento del microscopio de barrido (SEM: *Scanning Electron Microscope*). Para reducir su energía, el átomo excitado rellena este hueco con un electrón de otra capa superior que emite en este proceso o un fotón de rayos-X (fluorescencia de rayos-X) o cede su energía a un tercer electrón en forma de energía cinética. Es este tercer electrón el electrón Auger, que al proceder de niveles poco ligados al núcleo puede abandonar fácilmente el átomo. Para favorecer la creación de electrones Auger frente al proceso de fluorescencia, hay que trabajar con energías para el haz incidente de entre 2 y 5 keV. Como los electrones Auger no sólo tienen que tener energía suficiente para abandonar el átomo sino también para abandonar el material, la técnica es superficial porque la energía incidente es tan baja que sólo los electrones procedentes de una profundidad de entre 5 y 25 Å pueden ser analizados. La composición se obtiene a través del análisis de la energía cinética de los electrones Auger que se encuentra directamente relacionada con la energía de los niveles atómicos de los que procedían.

El equipo usado fue un microscopio SEM de emisión de campo Philips 680 trabajando con una diferencia de potencial de 5 keV y un ángulo de incidencia de 30° en el filamento. Los iones utilizados para el ataque son iones de Ar acelerados con un potencial de 0.5 keV. El vacío previo en la cámara tiene que ser del orden de  $10^{-10}$  Torr (ultra-alto vacío) para evitar la presencia de átomos adsorbidos en la superficie de la muestra.

### 2.6. Litografía óptica (fotolitografía)

Los procesos de litografía permiten el diseño de estructuras tridimensionales a partir de una estructura bidimensional (la superficie). En todos los sistemas estudiados (capas de Py/Gd, Py/Cu y LSTO) hubo que realizar procesos de fotolitografía. En el caso de las muestras metálicas, todo este proceso tuvo lugar en las instalaciones del ISOM mientras que las capas de LSTO fueron litografiadas en el centro *Unité Mixte de Physique CNRS/Thales*.

La muestra sobre la que se deposita la resina se coloca sobre una plataforma (“*spinner*”) que gira a alta velocidad. Este proceso permite no sólo la uniformidad de la capa de resina sino que también permite controlar su espesor, a mayor velocidad menor espesor. Para eliminar el disolvente de la resina se realiza un recocido, o bien en un horno a 90 °C durante 30 minutos, o bien en placa calefactora a la misma temperatura pero sólo durante un minuto. Posteriormente, se coloca una máscara que contiene los diseños que se quieren realizar y se irradia la resina con luz UV. Esta luz, es capaz de romper las cadenas poliméricas de aquellas regiones que han quedado expuestas a la radiación de tal forma que introduciendo la muestra en el revelador, se elimina la resina de estas zonas irradiadas. En el caso de las capas de Py/Gd, el proceso prosigue con un ataque húmedo mediante ácidos. La resina que no ha sido irradiada no es eliminada mediante los ácidos de tal forma que sólo aquellas zonas que no están protegidas por resina tras el revelado son atacadas. La composición del ataque es:  $6\text{H}_2\text{O}:2\text{H}_2\text{SO}_4:5\text{HNO}_3:5\text{CH}_3\text{COOH}$ . Los restos de resina son eliminados mediante acetona.



**Figura 2.7.** Proceso de fotolitografía, (a) deposición de la resina, (b) exposición a radiación UV, (c) revelado y (d) ataque químico.

## 2.7. Caracterización magnética

Una primera clasificación de las técnicas de caracterización magnética se puede hacer teniendo en cuenta si son:

- a) técnicas de caracterización superficial ó
- b) técnicas de caracterización masivas.

En el primero de los casos sólo se obtiene información magnética sobre las propiedades superficiales de la muestra. Estas técnicas son muy útiles no sólo para estudiar las propiedades magnéticas superficiales sino también para estudiar sistemas en los que la cantidad de material magnético a caracterizar es muy pequeña como *dots* o películas ultra-finas en las que o las técnicas de caracterización masivas no tienen resolución suficiente, o tienen un alto coste como la caracterización mediante SQUID. Entre estas técnicas de caracterización superficial quizá la más utilizada sea el efecto Kerr que se basa en el cambio que sufre luz linealmente polarizada cuando se refleja en la superficie de un material magnético imanado.

Otra clasificación para las técnicas de caracterización magnética se podría hacer teniendo en cuenta el principio básico en el que se encuentran basadas:

- a) en la inducción electromagnética
- b) en la medida de fuerzas o torques
- c) en la medida del campo generado por los dipolos de la muestra.

Las técnicas de inducción se basan en la ley de inducción electromagnética de Faraday, cuando el flujo del campo magnético varía en el tiempo aparece una fuerza electromotriz inducida. De entre todas las técnicas basadas en este principio, quizá la más extendida para la investigación de películas delgadas magnéticas sea el magnetómetro de muestra vibrante (VSM: *Vibrating Sample Magnetometer*).

Las técnicas de fuerza, se basan en medir la fuerza o torque que aparece al someter un material magnético a un campo magnético externo. De entre estas técnicas cabe destacar entre ellas la utilizada en esta memoria, el magnetómetro de gradiente de campo alterno (AGFM: *Alternating Gradient Field Magnetometer*).

En el último apartado de la clasificación destacaríamos el microscopio de fuerzas magnéticas (MFM: *Magnetic Force Microscope*). Con este microscopio se pueden medir los dominios magnéticos en las superficies de las muestras con una resolución del orden

de centenas de nm. Su funcionamiento es similar al de un AFM, pero se usa un punta magnética que detecta el campo creado por los dipolos magnéticos superficiales.

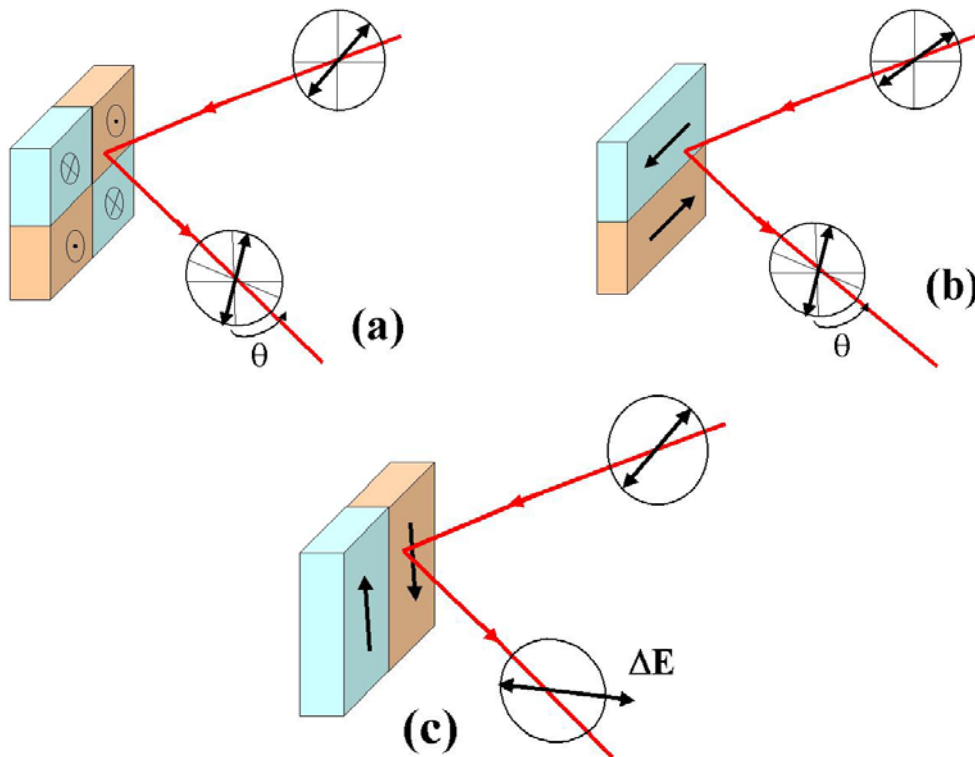
**i. Efecto Kerr magneto-óptico (MOKE).**

Los primeros experimentos acerca de la interacción entre la luz y la materia fueron realizados por M. Faraday en 1845 [3]. Pero fue J. Kerr quien estudió el cambio tanto en intensidad como en el estado de polarización de la luz cuando se reflejaba en la superficie de un material imanado [4-5]. Así, cuando se estudian los cambios que sufre la luz cuando se transmite en un material se habla de efecto Faraday mientras que si se trabaja con cambios en la luz reflejada se denomina efecto Kerr. En el efecto Kerr magneto-óptico (MOKE: *Magneto-Optic Kerr Effect*) se distinguen tres configuraciones según cual sea la orientación relativa entre el vector imanación de la muestra con respecto a la superficie reflectante y al plano de incidencia de la luz.

- **Efecto Kerr Polar (P-MOKE).** La imanación está en la dirección perpendicular a la superficie de la muestra es decir, es perpendicular al plano de reflexión y paralela al plano de incidencia (Fig 2.8). En esta configuración, la luz linealmente polarizada sufre un cambio en el plano de polarización.
- **Efecto Kerr Longitudinal (L-MOKE).** El vector imanación es paralelo a la superficie de la muestra estando contenido en el plano de incidencia (Fig 2.8). Como en el caso anterior, la luz sufre un cambio en el plano de polarización al ser reflejada en la superficie.
- **Efecto Kerr Transversal (T-MOKE).** El vector imanación es paralelo a la superficie de la muestra pero es perpendicular al plano de incidencia (Fig. 2.8). En esta configuración, no existe un cambio en el plano de polarización sino en la intensidad de la luz reflejada.

Información complementaria sobre la teoría del efecto Kerr clásico se puede consultar en las referencias [6] y [7]. Durante la realización de esta tesis aunque se ha trabajado tanto en la configuración transversal como en la longitudinal, ha sido en esta última con la que se ha realizado la caracterización de las tricapas de Py/Gd/Py, parte

fundamental de esta tesis. La configuración transversal sólo se ha utilizado para la caracterización magnética de tricapas de Py/Cu/Py (Anexo). La diferencia entre ambas configuraciones es la magnitud de la luz que hay que detectar. En el caso del T-MOKE, no aparece cambio en el estado de polarización ya que la luz no se propaga en la dirección de la imanación y por tanto lo que hay que detectar son cambios en la intensidad de la luz reflejada. En el L-MOKE, al incidir con luz linealmente polarizada sobre un material magnético, sí aparece un cambio en su estado de polarización. En ambos casos, tanto el cambio en el plano de polarización como en la intensidad de la luz reflejada son proporcionales a la imanación de la muestra por lo que aunque no se pueden extraer valores de imanación a partir de estas medidas, sí se pueden estudiar otros parámetros característicos de los materiales magnéticos como la remanencia, la susceptibilidad o el campo coercitivo a partir de los ciclo de histéresis obtenidos con esta técnica.



**Figura 2.8.** (a) Efecto Kerr polar, (b) efecto Kerr longitudinal y (c) efecto Kerr transversal

El sistema de caracterización Kerr del Dpto. de Física de Materiales fue mejorado durante la realización de esta tesis habiendo colaborado en este proceso el Dr. Lucas Pérez. En nuestro sistema se realiza tanto la detección de luz como la aplicación de campo magnético mediante las entradas y salidas analógicas de un amplificador *lock-in* SRS-830 de *Stanford Research Systems*. Este *lock-in* se controla con un ordenador programado en Visual Basic 5.0 a través de una conexión RS232. Para crear el campo magnético se introduce a un amplificador de continua el voltaje de una salida analógica del *lock-in*. Los carretes Helmholtz con los que se crea el campo magnético, se encuentran conectados a la salida del amplificador de tal forma que el valor del campo se obtiene midiendo a través de una entrada analógica del *lock-in* el voltaje en bornes de una resistencia colocada también a la salida del amplificador de continua. Se dispone de dos pares de carretes Helmholtz perpendiculares entre sí, para aplicar campo en la muestra lo que permite medir tanto en la configuración longitudinal como transversal.

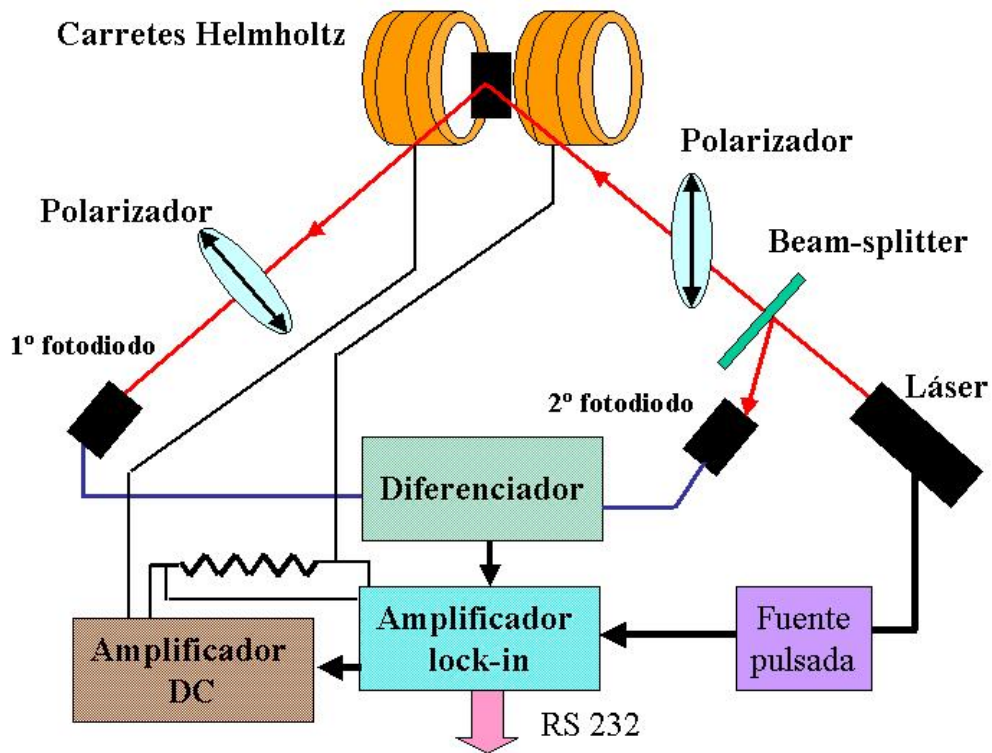


Figura 2.9. Sistema de medida para el efecto Kerr.



La técnica Kerr permite caracterizar magnéticamente aquella región del material en la que la luz penetra. Como fuente de luz hemos utilizado un láser de estado sólido con una longitud de onda de 633 nm siendo su longitud de penetración de 15 nm [8]. Para muestras con un espesor menor a 15 nm, la técnica Kerr será una técnica de caracterización masiva mientras que para espesores mayores será una técnica de caracterización superficial.

Debido a que hay que detectar las pequeñas variaciones que sufre la luz, es necesario minimizar al máximo las fuentes de ruido, tanto eléctrico como mecánico. Las vibraciones mecánicas se minimizaron colocando todo el sistema óptico en una mesa anti-vibratoria y colgando del techo los carretes Helmholtz.

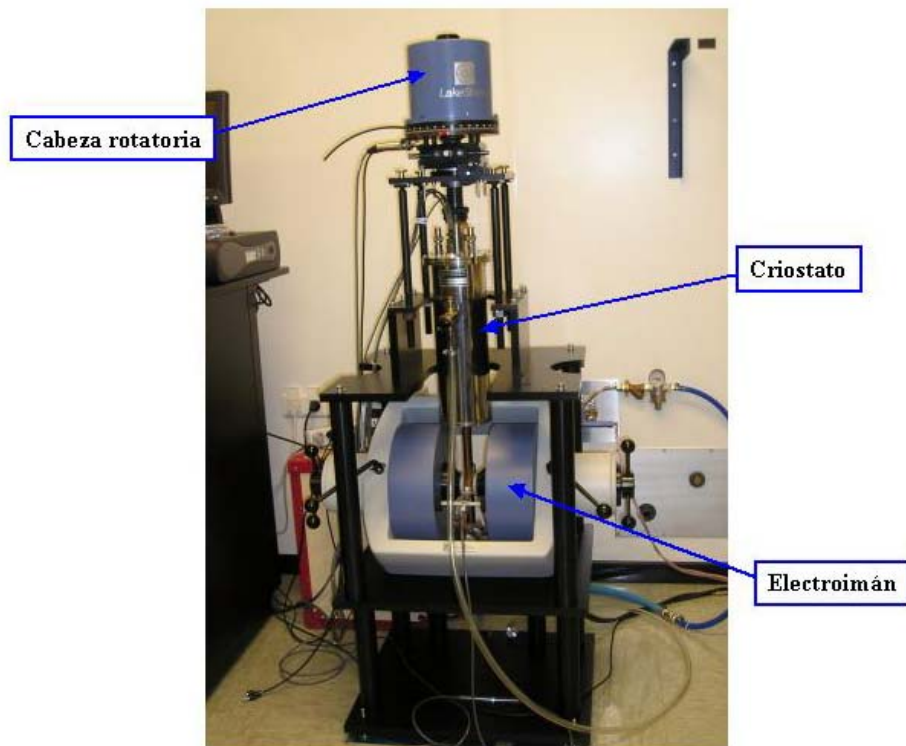
El ruido eléctrico se evita realizando la detección de la luz reflejada usando un sistema de detección en frecuencia (*lock-in*) además de un dispositivo diferenciador que resta dos señales, la que contiene la información magnética menos la emitida directamente desde el láser. Para utilizar este dispositivo diferenciador, en primer lugar hay que dividir la luz emitida por el láser en dos haces con un “*beam-splitter*”, un haz se reflejará en la muestra y será recogido en un primer fotodiodo y que será el que lleve la información magnética, y un segundo haz que se mide a la salida del láser en un segundo fotodiodo. Al restar las señales detectadas en los dos fotodiodos, lo que se obtiene es una señal en la que se ha eliminado el nivel de continua del láser y cualquier perturbación que hubiera podido aparecer al ser emitida la luz. Es esta señal diferenciada la que se lleva a una entrada analógica del *lock-in* para ser filtrada al estar el *lock-in* sincronizado con la frecuencia de la fuente pulsada utilizada para alimentar el láser.

Finalmente, comentar el sistema óptico utilizado en nuestro sistema experimental. Tenemos dos polarizadores girados 90° uno respecto del otro para poder detectar las variaciones aparecidas en el plano de polarización de la luz que se encuentra linealmente polarizada antes de ser reflejada en la superficie de la muestra. Las anisotropías magnéticas de las muestras son analizadas gracias a la posibilidad de girar 360° el portasustratos.

## ii. Magnetómetro de muestra vibrante (VSM).

El VSM es quizá la técnica inductiva más utilizada para la caracterización de películas delgadas magnéticas habiendo sido desarrollada por S. Foner en 1959 [9]. En esta técnica, la muestra vibra siendo detectada la fuerza electromotriz inducida en unos solenoides secundarios. El voltaje que aparece en los solenoides debido a la vibración de la muestra es de la misma frecuencia que la del movimiento armónico simple de la muestra, alcanzándose sensibilidades de  $10^{-6}$  emu al utilizar un sistema *lock-in* para realizar la medida. Nuestro equipo es un *LakeShore 7300* que dispone de 4 solenoides secundarios para mejorar la detección. El voltaje que se obtiene es proporcional a la imanación de la muestra por lo que para obtener un valor correcto del momento magnético hay que realizar una calibración del sistema. En nuestro caso hemos utilizado una esfera de Ni ya que de esta forma no interviene la anisotropía de forma de la muestra usada para la calibración.

El equipo en su configuración estándar sólo permite medir a temperatura ambiente con un campo máximo de 15 kOe (1.5 T). Para las medidas en función de la temperatura se dispone de un criostato Janis 73013N de flujo abierto de nitrógeno líquido que permite medir en un rango de temperatura que va desde 300 K hasta 80 K. Al tener que introducir el criostato entre las piezas polares del electroimán, el campo magnético máximo que se puede alcanzar se reduce a 10 kOe (1 T). Tanto a temperatura ambiente como con el criostato, la cabeza del VSM puede girar  $360^\circ$  lo que permite el estudio de las anisotropías magnéticas en el plano de la muestra. Para la caracterización magnética a distintas temperaturas se midieron ciclos de histéresis y el momento magnético en función de la temperatura.



**Figura 2.10.** Vista general del VSM con el criostato de nitrógeno líquido de flujo abierto.

### iii. Magnetómetro SQUID (Superconducting Quantum Interference Device).

Como acabamos de ver, la mínima temperatura accesible en nuestro VSM es de 80 K. En las muestras de Py/Gd en las que fue necesario ampliar el estudio a más baja temperatura, las medidas fueron realizadas por el Dr. Julio Romero en el magnetómetro SQUID del CAI del departamento de Química Inorgánica de la Universidad Complutense de Madrid. En el caso de las muestras de LSTO, toda la caracterización magnética en función de la temperatura se realizó mediante SQUID en el centro *Unité Mixte de Physique CNRS/Thales*. El modelo de SQUID utilizado en ambos casos fue un MPMS de *Quantum Design*, que en su configuración estándar permite trabajar en un rango de temperatura que va de 4 hasta 400 K.

El magnetómetro SQUID es el sistema experimental con la mayor resolución que existe para la caracterización magnética. El funcionamiento de un magnetómetro SQUID

se basa en la unión Josephson, que permite detectar variaciones de un cuanto de flujo magnético ( $h/2e$ ). Esta sensibilidad teórica se ve reducida hasta  $10^{-8}$  emu debido a la electrónica de control. Más detalles acerca de la unión Josephson y del dispositivo SQUID se pueden encontrar en [10] y [11]. Debido a la alta sensibilidad de esta unión, en el equipo MPMS no se mide directamente con ella sino que lo que se hace es mover la muestra entre dos bobinas superconductoras que se encuentran conectadas a la unión mediante hilos superconductores. Así, el voltaje inducido en estas bobinas genera un cambio en la corriente superconductoras que circula en ellas, siendo éste el cambio que se mide en la unión Josephson.

Para evitar la medida de ruidos en el SQUID, es necesario que la zona en la que se encuentra la unión Josephson se encuentre apantallada magnéticamente. No es necesario que el campo en esa zona sea nulo, pero sí que sea uniforme ya que lo que mide el SQUID son los gradientes de campo. También es necesario que el campo aplicado sea uniforme en una región considerablemente grande ya que la muestra se desplaza dentro de las bobinas superconductoras una distancia de aproximadamente 6 cm (este es un parámetro variable que puede oscilar entre 4 y 12 cm). En el caso del VSM, la muestra vibra con una amplitud de aproximadamente 5 mm, lo que hace que el campo tenga que ser uniforme en una región del espacio mucho más pequeña que en un SQUID.

Otro problema frente a otras técnicas de caracterización es la elevada duración de sus medidas. El campo magnético se aplica con bobinas superconductoras siendo necesario un tiempo que oscila entre 0.5 y 5 minutos, según la corriente utilizada para la aplicación de campo, para estabilizar los vórtices. Sin embargo, quizá la mayor limitación de este equipo sea su alto coste de mantenimiento ya que trabaja con He líquido.

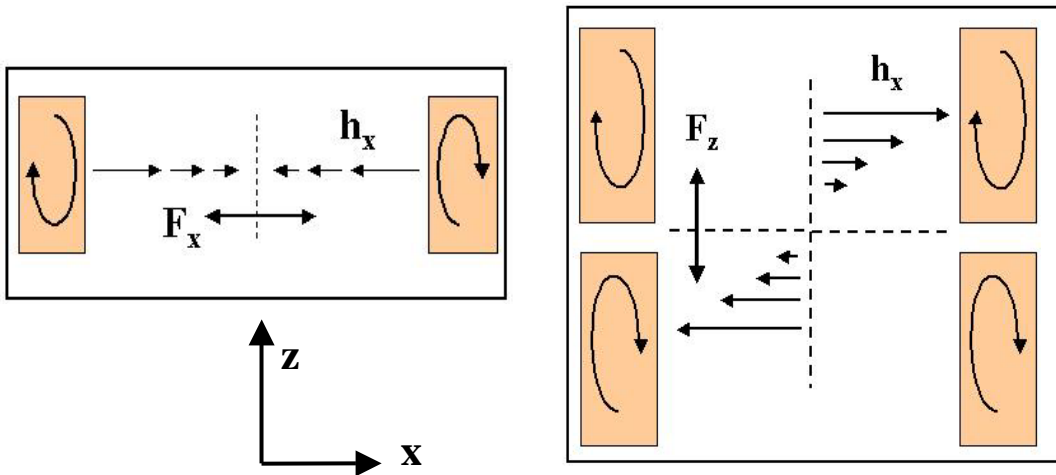
#### **iv. Magnetómetro de gradiente de campo alterno (AGFM).**

Esta fue la técnica que se utilizó en la *Unité Mixte de Physique CNRS/Thales* para caracterizar las muestras de LSTO a temperatura ambiente. El equipo utilizado fue un AGFM comercial de *Princeton Measurement Corporation*. Aunque se puede colocar un criostato sólo se trabajó a temperatura ambiente siendo el campo máximo aplicable de 14 kOe (1.4 T).

Este es un magnetómetro que usa la técnica de fuerza para obtener la respuesta del material frente al campo magnético aplicado. El gradiente del campo magnético alterno genera una fuerza periódica sobre la muestra que se encuentra montada sobre un piezoeléctrico. Al aplicar un campo continuo, aparece una fuerza sobre la muestra que se traduce en una variación en la frecuencia de oscilación del sistema piezo-muestra. Esta fuerza es proporcional tanto a la imanación de la muestra, como al gradiente del campo. Para la creación del gradiente del campo magnético existen dos configuraciones posibles:

- a) se utilizan dos bobinas que crean un gradiente en la dirección horizontal (eje x). El piezoeléctrico que se usa (“sonda-x”), detecta variaciones de vibración en el eje x,  $F_x = M_x(dH_x/dx)$ .
- b) se utilizan 4 bobinas que crean un gradiente en el eje x pero en la dirección vertical (eje z). El piezoeléctrico que se usa se conoce como “sonda-z” y detecta las vibraciones verticales,  $F_z = M_x(dH_x/dz)$ .

Estudios anteriores sobre este equipo realizados por el Dr. R. Morales [6] han mostrado que la “sonda-x” funciona correctamente mientras que la “sonda-z” presenta problemas a la hora de medir sistemas con baja imanación.



**Figura 2.11.** Esquema para la generación del gradiente del campo en un AGFM en la configuración de dos bobinas (izquierda) y cuatro bobinas (derecha).

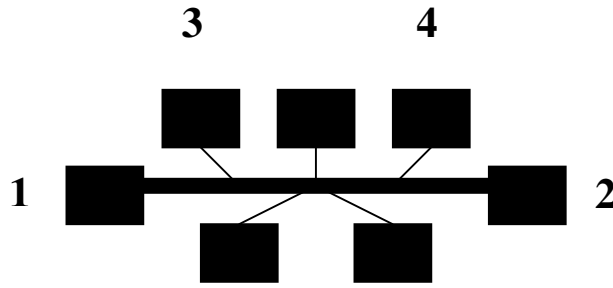
La sensibilidad de esta técnica es ligeramente superior a la de un VSM,  $10^{-7}$ - $10^{-6}$  emu, pero con el inconveniente de que el tamaño de las muestras que se pueden analizar es generalmente menor ( $0.3 \text{ cm} \times 0.3 \text{ cm}$ ) al de las muestras que se pueden analizar en un VSM ( $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ ). Por tanto, para aprovechar al máximo la sensibilidad de la técnica y debido también, a que muestras más grandes no se pueden introducir en las piezas polares del AGFM, es necesario cortar las muestras con el tamaño adecuado antes de analizarlas.

### 2.8. Caracterización eléctrica

La caracterización eléctrica de las muestras de Py/Gd se realizó en las instalaciones del Dpto. de Física de Materiales de la UCM. En el caso de las muestras de LSTO, esta caracterización se llevó a cabo tanto en los equipos de la *Unité Mixte de Physique CNRS/Thales*, como en los laboratorios del Prof. Amir Hamzic en el Departamento de Física de la Facultad de Ciencias en Zagreb, Croacia.

#### i. Muestras de Py/Gd.

Las medidas de transporte se realizaron en un criostato de helio de flujo cerrado que permite medir desde temperatura ambiente hasta 10 K. Se utilizó el método de las 4 puntas para obtener la resistencia eléctrica y la magnetorresistencia (MR) en función de la temperatura. El campo magnético se aplicó tanto en la dirección paralela (LMR: MR longitudinal) como en la perpendicular a la corriente (TMR: MR transversal) mediante unos carretes Helmholtz. En todos los casos la corriente circula en el plano de la muestra es decir, trabajamos en la configuración CIP (CIP: *Current In the Plane*). Para ello, se diseñó el motivo que aparece en la figura 2.12 mediante fotolitografía. Este diseño presenta más contactos de los estrictamente necesarios ya que es un diseño que se puede usar también para medidas de efecto Hall. En nuestro caso, la corriente circula entre los contactos 1 y 2, siendo los contactos 3 y 4 utilizados para medir el voltaje.



**Figura 2.12.** Máscara utilizada para las medidas de MR y resistencia eléctrica en función de la temperatura en el Dpto. de Física de Materiales de la UCM.

## ii. Películas de LSTO

Para realizar las medidas de resistencia eléctrica en función de la temperatura, el sistema utilizado consiste en un motor “paso a paso” que va introduciendo lentamente la muestra en una botella de helio líquido. Este descenso lento y progresivo permite medir en un rango de temperatura que va de temperatura ambiente hasta  $\sim 30$  K. Las botellas que se utilizan para estas medidas son botellas con un contenido de entre 8 y 5 litros de helio líquido por lo que resulta difícil alcanzar temperaturas más bajas de 30 K. Este sistema es muy útil para analizar muestras sin necesidad de ningún tipo de procesado ya que los contactos eléctricos se realizan por contacto.

Las medidas de MR túnel por el contrario se realizaron usando un criostato *Oxford* de helio de flujo abierto que permite medir desde temperatura ambiente hasta 4 K. La muestra puede girar  $360^\circ$  en el plano de la muestra siendo el campo máximo aplicable de 6 kOe.

Las medidas realizadas por el Prof. Amir Hamzic, junto con los Dr. M. Basletic y E. Tafra en el Departamento de Física de la Facultad de Ciencias en Zagreb, Croacia, han permitido el análisis de las propiedades de transporte de la heteroestructura Co-LSTO/STO y Co-LSTO/LAO. Estas medidas se realizaron en sistemas en los que puede alcanzar campos magnéticos de hasta 15 T y temperaturas de 1.5 K. Los detalles sobre las condiciones de medida se pueden consultar en [12].

## 2.9. Referencias

- [1] D. B. Chrisey, G. K. Hubler. *Pulsed Laser Deposition of Thin Films*. Editorial John Wiley & Sons, New York, (1994).
- [2] G. Binning, C. F. Auqte, Ch. Gerber, Phys. Rev. Lett. **56**, 930 (1986).
- [3] M. Faraday, Trans. Roy. Soc. **5**, 592 (1846).
- [4] J. Kerr, Phylos. Mag. **3**, 321 (1877).
- [5] J. Kerr, Phylos. Mag. **5**, 161 (1878).
- [6] R. Morales Arboleya. *Evolución térmica del acoplamiento magnético de multicapas de  $Gd_xCo_{1-x}$  y propiedades magnéticas de láminas nanoestructuradas 1D de aleaciones de MT-Met (MT: Fe, Co; Met:Si)*. Tesis Doctoral, Universidad de Oviedo (2002).
- [7] J. P. Andrés González. *Caracterización estructural y magnética del sistema Gd-Co*. Tesis doctoral, Universidad Complutense de Madrid (1999).
- [8] S. L. Gnatchenko, A. B. Chizhik, D. N. Merenkov, V. V. Eremenko, H. Szymczak, R. Szymczak, K. Fronc, R. Zuberenc, J. Magn. Mater. **186**, 139 (1998).
- [9] S. Foner, Rev. Sci. Instrum. **30**, 548 (1959).
- [10] M. Tinkham. *Superconductivity*. Editorial McGraw-Hill.
- [11] A. Hernando, J. M. Rojo. *Física de los materiales magnéticos*. Editorial Síntesis (2000).
- [12] G. Herranz, M. Basletic, M. Bibes, R. Ranchal, A. Hamzic, E. Tafra, K. Bousehouane, E. Jacquet, J.P. Contour, A. Barthélémy, A. Fert, Phys. Rev. B **73**, 064403 (2006).





## **Capítulo 3**

---

### **Caracterización estructural, magnética y eléctrica de tricapas de Py/Gd/Py**

---



## 3. Caracterización estructural, magnética y eléctrica de tricapas de Py/Gd/Py.

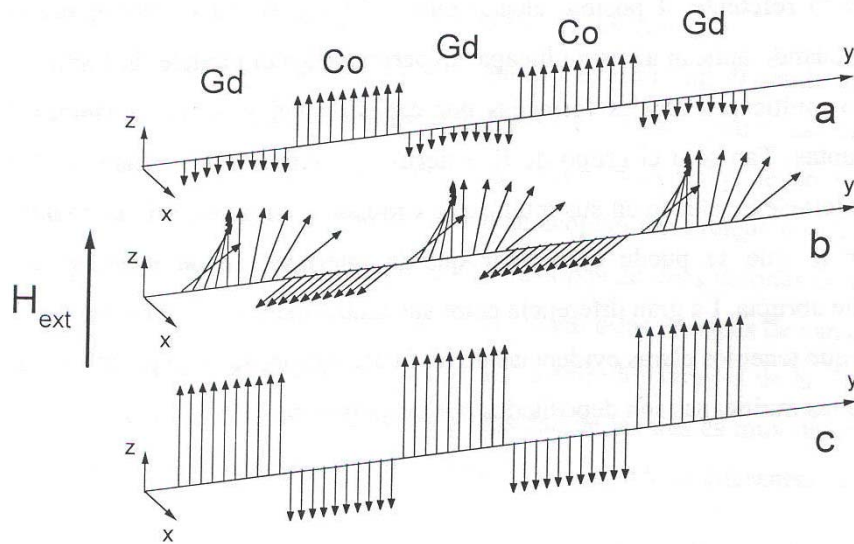
### 3.1. Introducción

Las multicapas formadas por capas alternadas de Gd y metales magnéticos de transición se comportan como “ferrimagnéticos gigantes” ya que están compuestos por materiales con imanaciones distintas con orientaciones antiparalelas. Como en los materiales ferrimagnéticos, el momento magnético en función de la temperatura de estas multicapas presenta una temperatura en la que la imanación total es nula (o bien un mínimo absoluto). Este punto se conoce como temperatura de compensación ( $T_{Com}$ ) y es la temperatura que delimita el que sea la imanación del metal de transición o la del Gd la que se encuentra orientada en la dirección del campo magnético aplicado [1-3]. A cada temperatura se orienta en la dirección del campo aplicado aquella capa que presente una mayor imanación y la  $T_{Com}$  es la frontera para el cambio en la orientación. Por tanto, aparecen dos fases claramente diferenciadas, una en la que es el metal de transición el que se orienta en la dirección del campo aplicado y una segunda fase, a más baja temperatura, en la que es el Gd el que se orienta en la dirección del campo. Por tanto, la existencia de  $T_{Com}$  en este tipo de multicapas es una señal indicativa del acoplamiento antiferromagnético.

Debido a la competición entre la energía de canje asociada al acoplamiento antiferromagnético y la energía del campo magnético o energía Zeeman, aparece una rotación de los momentos magnéticos [1-2, 4-5]. A fin de minimizar la energía, el campo magnético tiende a orientar los momentos magnéticos en la dirección del campo magnético aplicado, mientras que el acoplamiento en la intercara tiende a que las imanaciones del Py y del Gd tengan orientaciones antiparalelas. Por tanto, aparece un giro de los momentos magnéticos que en el caso de campos magnéticos aplicados muy intensos, da lugar a la aparición de una tercera fase magnética conocida como “*twisted*”, en la que ninguna de las capas se encuentra orientada en la dirección del campo sino que los momentos de todas las capas están formando un cierto ángulo con la dirección del campo magnético aplicado. Para campos más débiles, se forma una pared en el plano que

ocupará o no, todo el espesor de la capa dependiendo del espesor de ésta [6]. Por tanto, la observación de procesos de imanación por rotación (la fase “*twisted*” sólo aparece bajo determinadas condiciones), es indicativa de acoplamiento antiferromagnético en este sistema.

En total, estos sistemas tendrían tres fases completamente diferenciadas: (1) Metal de transición alineado con el campo, (2) Gd alineado en el campo y (3) “*twisted*”. Los trabajos de Camley y colaboradores [1-2, 4] han mostrado que la aparición de una fase u otra no depende únicamente de la temperatura sino también, del campo magnético aplicado.



**Figura 3.1.** Representación esquemática de las tres fases que aparecen en las multicapas de metales de transición (en este ejemplo es Co) y Gd. Figura extraída de la tesis de J.P. Andrés [7]. (a) La imanación de las capas de Co se encuentran alineadas en la dirección del campo, (b) fase *twisted* y (c) la imanación de la capa de Gd es la que se encuentra orientada en la dirección del campo magnético aplicado.

En las multicapas de Co/Gd se ha visto que existe una fuerte interdifusión de Co hacia la capa de Gd que afecta tanto a las propiedades eléctricas [8] como a las magnéticas [3] del sistema. Por el contrario, las multicapas de Fe/Gd muestran fronteras abruptas con interdifusión, únicamente, en una región de 0.6 nm cerca de las intercaras

[9]. Por tanto, el Gd se acopla de forma más efectiva con el Fe dando lugar a que una capa de 0.4 nm de Gd cercana a la intercara permanezca imanada por encima de la  $T_C$  de la capa de Gd [10].

Como ya comentamos en la introducción, resulta interesante tanto desde el punto de vista tecnológico como del de ciencia básica el estudio del sistema Py/Gd. En este capítulo se realiza un estudio completo de las propiedades estructurales, eléctricas y magnéticas de tricapas de Py/Gd/Py. Las medidas estructurales muestran que existe una fuerte interdifusión de Ni hacia la capa de Gd, mientras que el perfil del Fe es prácticamente abrupto en la intercara. En los siguientes apartados se estudia como afecta esta interdifusión a las propiedades eléctricas y magnéticas obteniendo a partir de estas medidas tanto la  $T_C$  de las capas de Gd como la constante de acoplamiento entre el Py y el Gd. También se ha desarrollado un cálculo numérico que nos permite analizar los datos experimentales.

### 3.2. Caracterización estructural y morfológica de tricapas de Py/Gd.

Antes de estudiar el acoplamiento en películas delgadas de Py/Gd se realizó un estudio estructural y morfológico de este sistema ya que, como se ha visto en las multicapas de Co/Gd, las propiedades estructurales afectan de forma muy apreciable tanto a las propiedades eléctricas como a las magnéticas [3, 8].

Se realizó una calibración del ritmo de crecimiento del Py y del Gd sobre sustratos de vidrio manteniendo fija la presión de argón en  $2 \cdot 10^{-3}$  mbar y variando la potencia de crecimiento entre 10 y 50 W. La presión base en la campana era inferior a  $4 \cdot 10^{-7}$  mbar, obteniéndose presiones tan bajas como  $\sim 4 \cdot 10^{-8}$  mbar tras el proceso de pre-sputtering. Con este proceso de pre-sputtering se consigue tanto la limpieza de los blancos como la reducción de la presión base en la campana. Se suele realizar a una presión de Ar ligeramente más baja y con una potencia mayor que las usadas durante los crecimientos para acelerar el proceso. En nuestro caso, se realizó con una potencia de 75 W y una presión de Ar de  $1.5 \cdot 10^{-3}$  mbar.

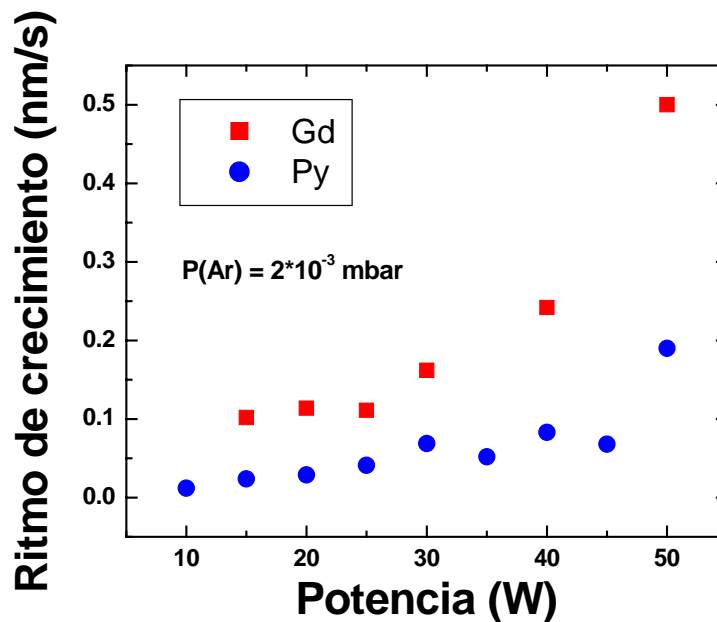


Figura 3.2. Ritmo de crecimiento en función de la potencia para una presión de Ar de  $2 \cdot 10^{-3}$  mbar.

Para todas las potencias utilizadas, el ritmo de crecimiento del Gd es siempre más elevado que el del Py. Para obtener estos ritmos de crecimiento se midió el espesor de la capa crecida para lo que se hizo una litografía a fin de obtener un escalón en las muestras. El espesor de este escalón se midió mediante un perfilómetro *Alpha-step 200* de *Tencor Instruments*.

Los resultados obtenidos en los difractogramas de rayos-X de alto ángulo en las capas delgadas de Gd crecidas a distintas potencias están de acuerdo con los obtenidos por otros autores [7]. Al aumentar la energía con la que llegan los átomos de Gd al sustrato (en nuestro caso al aumentar la potencia de crecimiento ya que la presión de Ar se mantuvo fija en  $2 \cdot 10^{-3}$  mbar) se favorece el crecimiento del Gd en la dirección preferencial (002). Sin embargo, si los átomos llegan con menos energía al sustrato, debido en nuestro caso a una disminución de la potencia, comienzan a aparecer otras direcciones cristalográficas como son la (100) y la (101). También se observa que, para todas las potencias, los picos se encuentran desplazados hacia ángulos inferiores respecto de los del Gd masivo indicando una disminución del parámetro de red en nuestras capas.

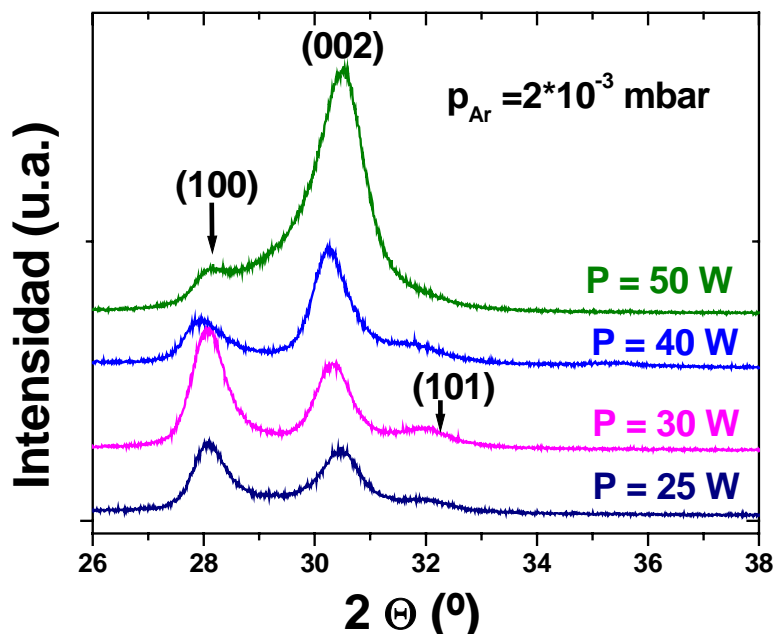
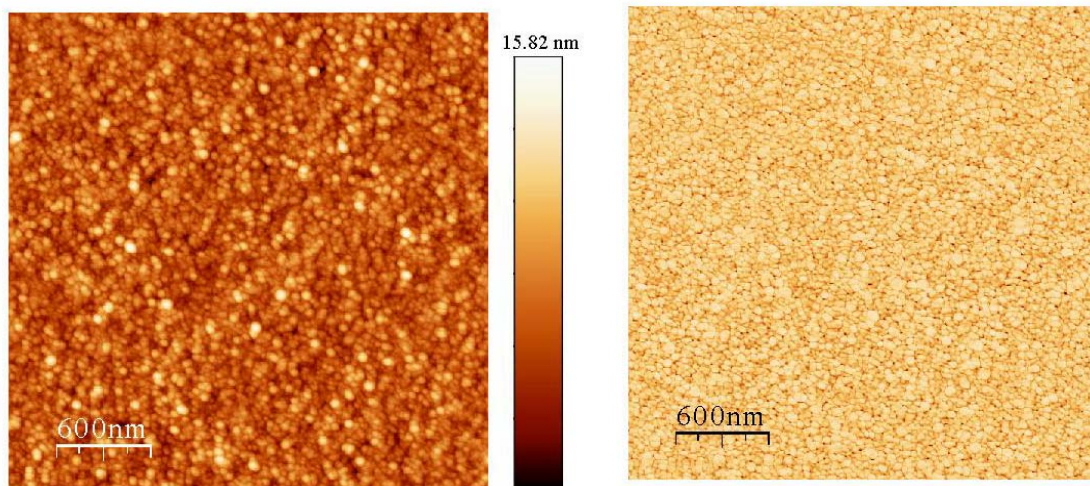


Figura 3.3. Difractogramas de rayos-X de alto ángulo de capas de Gd en función de su potencia de crecimiento.



El análisis de los difractogramas de rayos-X de alto ángulo de las capas de Gd muestra que la potencia idónea de crecimiento es de 50 W, cómo mínimo, para obtener capas de Gd con una única dirección preferencial. Sin embargo, en nuestras muestras, se eligió como potencia de crecimiento 30 W al tener en cuenta otras razones. Hay que recordar que en el crecimiento de multicapas resulta de gran importancia el que la rugosidad en las intercaras sea lo más pequeña posible para evitar acoplamiento espurio como el de “piel de naranja” [11, 12]. Por tanto, hay que conseguir crecimientos capa a capa, en los que las rugosidades que se obtengan sean bajas. Generalmente, esto se puede lograr realizando los crecimientos de forma lenta. En el crecimiento por sputtering la forma de ralentizar la deposición manteniendo fija la presión de Ar es disminuyendo la potencia. El ritmo de crecimiento obtenido a 30 W es lo suficientemente pequeño como para permitir crecimientos lentos pero sin alargar excesivamente la duración de los mismos. Por tanto, usaremos como referencia para las capas del Gd de las tricapas Py/Gd/Py el difractograma de la capa crecida a 30 W que presenta tres picos de intensidad que aparecen en  $2\Theta = 28^\circ$ ,  $2\Theta = 30.3^\circ$  y  $2\Theta = 32^\circ$  siendo el pico más intenso el que aparece a  $28^\circ$  asociado a la dirección (100).

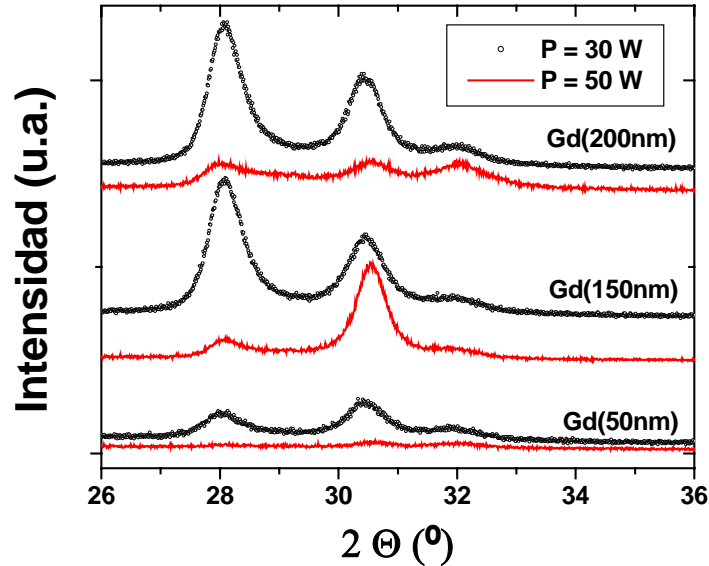
Prácticamente todo nuestro estudio estructural y morfológico está realizado en capas crecidas a 30 W y con una presión de Ar de  $2 \cdot 10^{-3}$  mbar. Se midió la rugosidad de las capas de Gd y Py crecidas en estas condiciones mediante un microscopio de fuerzas atómicas en su configuración *tapping* para usar estos valores como referencia. La rugosidad de las capas de Gd es ligeramente superior a la obtenida en las capas de Py, mientras que la rms en áreas de  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$  para el Gd es de 1.841 nm, la de la capa de Py es 1.088 nm (Figura 3.4).



**Figura 3.4.** Imagen de AFM de una capa de Gd crecida sobre vidrio. La imagen de la izquierda se corresponde con la imagen de topografía y la imagen de la derecha a la fase. La rugosidad en un área de  $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$  es de 1.841 nm.

Para estudiar la dependencia de la estructura de la capa de Gd con la potencia de crecimiento en la estructura multicapa, se crecieron tricapas de Py/Gd/Py a 50 W y 30 W. En estas muestras, se mantuvo fijo el espesor de las capas de Py en 200 nm variando el espesor de Gd entre 50 y 200 nm.

En la figura 3.5 sólo se muestra la región de los difractogramas de rayos-X de alto ángulo donde aparecen los picos de Gd porque en la zona del Py ( $2\theta \sim 44^\circ$ ) no se observó ningún tipo de evolución. Como muestran los difractogramas, las tricapas crecidas a 50 W presentan peores patrones de difracción que las crecidas a 30 W. La anchura a mitad de altura (FWHM: Full Width at Half Maximum) de los picos de Gd de las muestras crecidas a 50 W se encuentra en torno a  $1^\circ - 0.8^\circ$ , mientras que para las de 30 W es en todos los casos de aproximadamente  $0.8^\circ$ . Además, los picos de difracción de las muestras crecidas a 30 W son de mayor intensidad relativa que los de 50 W. Es decir, las tricapas crecidas a 30 W presentan una capa de Gd con mejor calidad estructural que las crecidas a 50 W.



**Figura 3.5.** Difractogramas de rayos-X de alto ángulo para tricapas de Py/Gd/Py crecidas a 30 y 50 W. El espesor de Py se mantuvo fijo en 200 nm y el de Gd se varió entre 200 y 50 nm.

Si sólo se comparan las tricapas crecidas a 30 W, observamos que el valor de la FWHM disminuye al aumentar el espesor de Gd hasta alcanzar el valor característico de una capa Gd (Figura 3.5). Los datos que aparecen a continuación fueron obtenidos a partir de la reflexión (100) que es la de mayor intensidad para esta potencia y que aparece en  $2\Theta = 28^\circ$ .

Gd = 50 nm. FWHM =  $0.83^\circ$

Gd = 100 nm. FWHM =  $0.78^\circ$

Gd = 150 nm. FWHM =  $0.71^\circ$

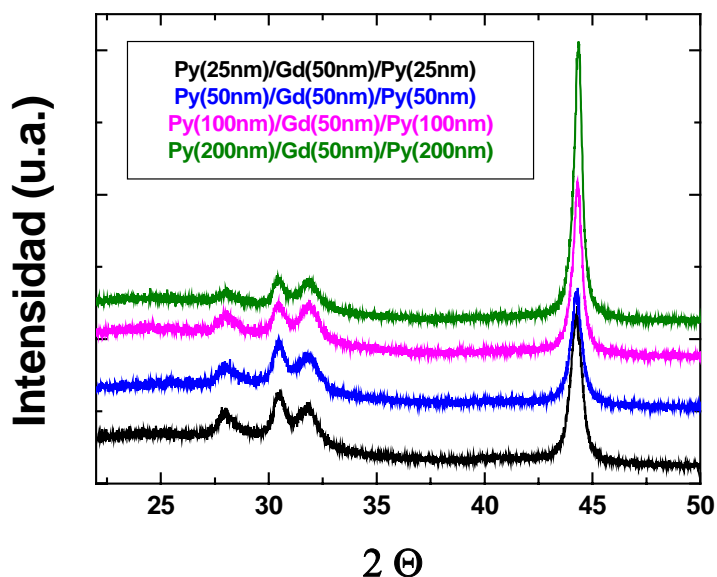
Gd = 200 nm. FWHM =  $0.70^\circ$

Capa de Gd, FWHM =  $0.71^\circ$ .

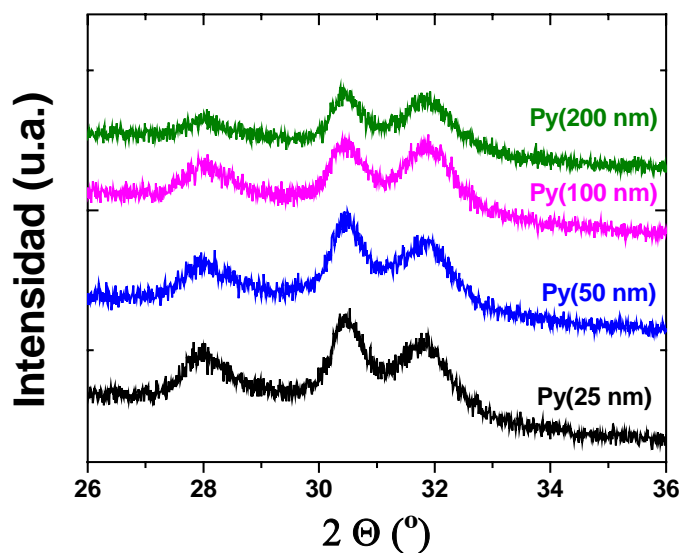
Los difractogramas de las tricapas crecidas a 30 W muestran también que, al reducir el espesor de Gd, la intensidad del pico  $2\Theta = 28^\circ$  disminuye de forma muy acusada (Figura 3.5). Al ser esta la reflexión predominante para la capa de Gd utilizada como referencia, nuestros resultados parecen indicar que, en las tricapas, la estructura de la capa de Gd no sólo se ve afectada por la potencia de crecimiento sino también por algún otro fenómeno asociado a las capas de Py.

Para estudiar este efecto, se crecieron tricapas de Py/Gd/Py a una potencia de 30 W en las que el espesor de Gd se mantuvo fijo en 50 nm y se varió el de Py entre 25 y 200 nm. En estas tricapas, se añadieron además capas “*buffer*” y “*capping*” de Mo, de espesores de 10 y 20 nm respectivamente, para evitar la oxidación de las muestras. Además, como ya se habían caracterizado magnéticamente las muestras de la serie anterior (los resultados aparecen en el apartado **3.4 Caracterización magnética**), se dedujo la importancia de inducir una dirección de anisotropía en las capas de Py durante el crecimiento. Para ello, se aplicó un campo de 40 Oe en el plano de las muestras durante su obtención.

El espesor de Gd se mantuvo fijo en 50 nm en todas las muestras y era de esperar que los picos de difracción asociados a la capa de Gd de las tricapas no variasen con el espesor de Py. Sin embargo, esto no fue así y los difractogramas presentan una clara dependencia entre el espesor de Py y los picos de difracción asociados al Gd, a mayor espesor de Py menor intensidad de los picos de difracción asociados al Gd (figura 3.6 y 3.7). Como en las muestras anteriores, en la región del Py no aparece ningún aspecto reseñable.

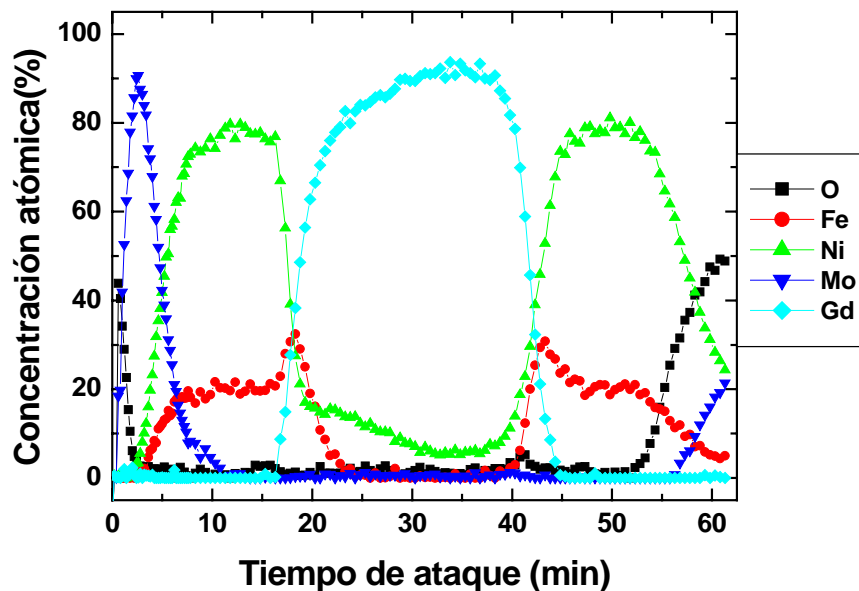


**Figura 3.6.** Difractograma de rayos-X de alto ángulo de tricapas de Py/Gd/Py en las que el espesor de la capa de Gd es de 50 nm en todos los casos y el de Py varía entre 25 y 200 nm. Estas tricapas se crecieron con una capa “*buffer*” de 10 nm y una capa “*capping*” de 20 nm, respectivamente.

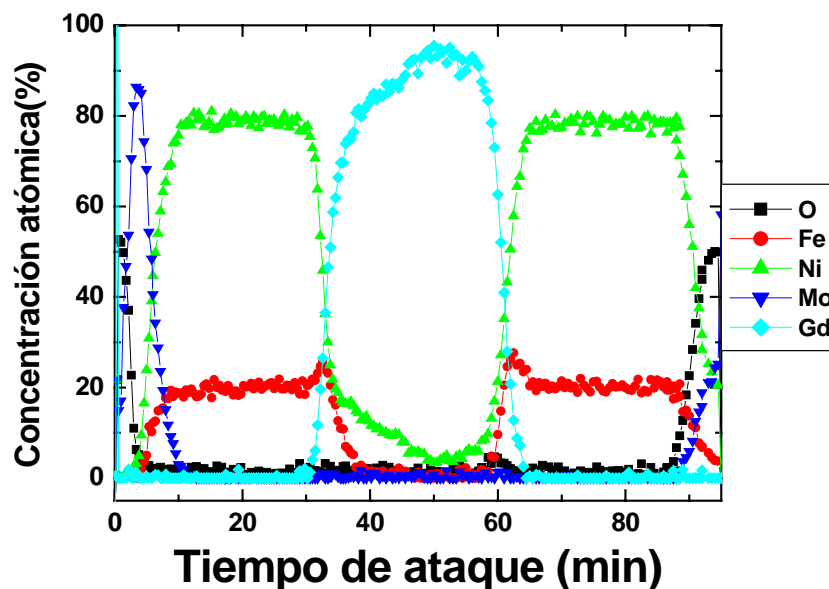


**Figura 3.7.** Mismo difractograma que el de la figura 3.6 pero en este caso, sólo se muestra la región asociada a los picos de difracción de las capas de Gd.

En esta última serie de muestras se realizaron perfiles de composición mediante espectroscopía de electrones Auger (AES). Al combinar esta técnica espectroscópica con el bombardeo iónico se consigue analizar la composición en la dirección perpendicular al sustrato es decir, en la dirección del crecimiento de las capas.



**Figura 3.8.** Perfil de composición Auger para la tricapa Mo(10 nm)/Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm)/Mo(20 nm).



**Figura 3.9.** Perfil de composición Auger para la tricapa Mo(10 nm)/Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Py(50 nm)/Mo(20 nm).

Estas medidas fueron realizadas por Frédéric Wyszczisk en *Thales, Research&Technology* en Orsay, Francia, habiendo sido seleccionadas para este análisis muestras con espesores para las capas de Py de 25 y 50 nm.

El análisis por espectroscopía Auger muestra que las tricapas no se encuentran oxidadas y que el perfil del Fe es bastante abrupto. Sin embargo, existe una cierta concentración de Ni en la capa de Gd, procedente principalmente de la capa superior de Py, debido a la mayor facilidad del Ni frente al Fe para difundirse en el Gd. La concentración asimétrica de Ni en la capa de Gd está relacionado con el proceso de evaporación. Los átomos de Ni llegan con gran energía procedentes del blanco lo que favorece la interdifusión de Ni al crecer la capa superior de Py encima de la ya existente de Gd. Sin embargo, cuando se crece la capa de Gd encima de la capa inferior de Py, los átomos de Ni se encuentran ya en la red de Py por lo que la difusión desde esta capa termalizada hacia la de Gd es más difícil. De este modo aparece un perfil de difusión asimétrico, ya que prácticamente todo el Ni que se difunde proviene de la capa superior de Py.

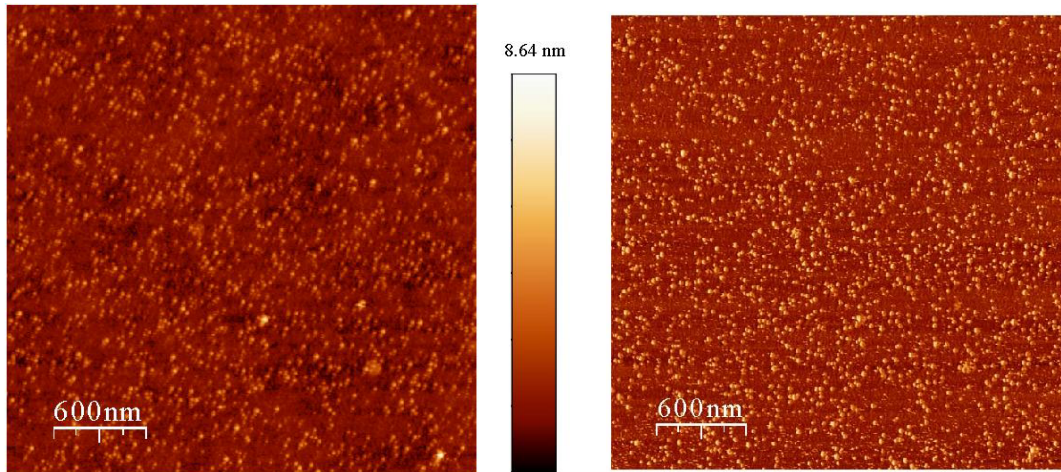
También se aprecia en las medidas de AES que, al aumentar el espesor de Py, aumenta la concentración de Ni en la capa de Gd. Durante la evaporación, las muestras se

calientan ya que no controlamos su temperatura durante el crecimiento. Por tanto, un aumento del espesor de la capa de Py lleva consigo un aumento del tiempo de evaporación y se favorece la difusión que es un proceso que aumenta con la temperatura. Para un espesor de permalloy de 50 nm, el máximo de concentración de Ni se obtiene en la intercara superior Gd/Py siendo del 23.2 % mientras que para un espesor de Py de 25 nm es del 19.3 %. Sin embargo, la concentración de Ni en la intercara inferior se mantiene en un 4 % tanto en la tricapa de 25 nm de espesor como en la de 50 nm de Py.

El análisis por Auger de la composición a lo largo de la dirección perpendicular permite entender mejor los difractogramas de rayos-X. La pérdida del patrón característico es más acusada en las muestras crecidas a 50 W frente a las crecidas a 30 W, ya que al aumentar la potencia de crecimiento se incrementa también la energía con la que llegan los átomos de Ni al sustrato favoreciendo su difusión. Así hay más Gd aleado con Ni, menos Gd puro y por tanto es menor la intensidad de los picos de difracción. Por otro lado, la difusión crece con el espesor de Py ya que a mayor espesor, más tiempo de deposición y por tanto, mayor concentración de Ni en la capa de Gd. Esto explica el que la intensidad de los picos de difracción del Gd dependa del espesor de Py.

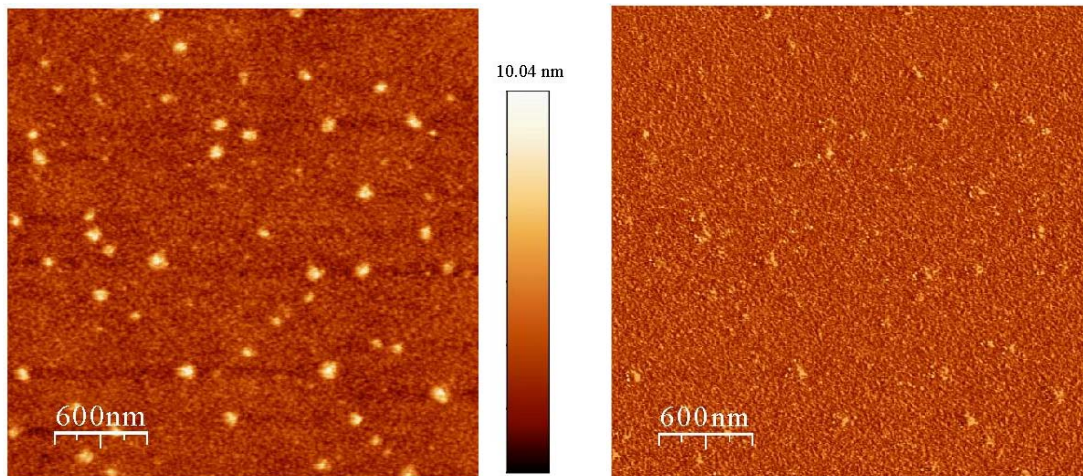
En el estudio del acoplamiento en películas delgadas es importante conseguir las intercaras con la menor rugosidad posible para evitar acoplamientos espurios del tipo “piel de naranja” (“*orange-peel*”), como ya se mencionó antes. Para estudiar la rugosidad en las intercaras se crecieron muestras especiales que no tienen la estructura completa Mo/Py/Gd/Py/Mo sino que terminan en alguna intercara. La rugosidad se midió mediante un microscopio de fuerzas atómicas en su modo “*tapping*”. En todos los casos la rms (root mean square) de la rugosidad se obtuvo en áreas de  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ .

- **Mo(10 nm)/Py(25 nm)**



**Figura 3.10.** Imagen de topografía obtenida mediante AFM de la superficie de una capa de Py de 25 nm crecida sobre una capa *buffer* de Mo de 10 nm de espesor. La imagen de la izquierda se corresponde con la topografía de la muestra y la de la derecha con la imagen de la fase.

- **Mo(10 nm)/Py(25 nm)/Gd(50 nm)**



**Figura 3.11.** Imagen de topografía obtenida mediante AFM de la superficie de una capa de Gd de 50 nm crecida sobre una capa *buffer* de Mo de 10 nm y una capa de 25 nm de espesor de Py. La imagen de la izquierda se corresponde con la imagen de la topografía y la de la derecha con la imagen de la fase.

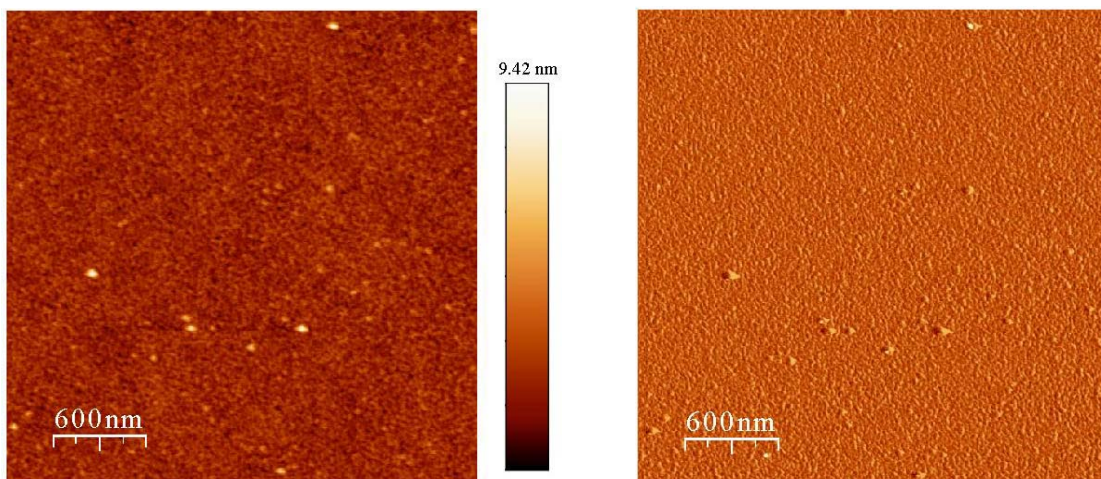


En la muestra Mo(10 nm)/Py(25 nm) se estudia la rugosidad en la intercara Py/Gd inferior. La rugosidad de la superficie de esta muestra (rugosidad de una capa de Py después de haberla crecida sobre una capa *buffer* de Mo de 10 nm) es de **0.616 nm** en un área de  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ . Esta rugosidad es ligeramente superior a la obtenida en la superficie de sustratos de vidrio (**0.577 nm**) pero es inferior a la obtenida en capas de Py crecidas directamente sobre estos sustratos de vidrio (**1.088 nm**). Es decir, la capa *buffer* de Mo favorece el crecimiento de capas de Py menos rugosas.

En la muestra Mo(10 nm)/Py(25 nm)/Gd(50 nm) se mide la rugosidad en la intercara Gd/Py, es decir, la rugosidad en la intercara superior Py/Gd obteniendo una rms de **0.814 nm** en un área de  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ . Esto significa que la rugosidad en la intercara Py/Gd inferior es menor que en la superior, por lo que es de esperar un peor acoplo magnético en esta segunda. En cualquier caso, la rugosidad obtenida en esta superficie de Gd es inferior a la obtenida en una capa de Gd crecida directamente sobre el vidrio (**1.841 nm**).

En la imagen de topografía de la superficie de la capa de Gd de la muestra Mo(10 nm)/Py(25 nm)/Gd(50 nm) se aprecian unas pequeñas columnas de altura entre 5 y 7 nm. En principio se podría pensar que estas columnas pudieran afectar a las medidas de composición tomadas por AES. Si esto fuera así, en las medidas de composición debería aparecer un alto contenido en Gd cerca de la intercara de la capa superior de Py. Sin embargo, como en ninguna de las muestras analizadas ha aparecido este efecto, podemos descartar el que la topografía de la superficie de Gd afecte a las medidas de composición por AES.

- **Mo(10 nm)/Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm)/Mo(20 nm)**



**Figura. 3.12.** Imagen de topografía obtenida mediante AFM de la superficie de la muestra Mo(10 nm)/Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm)/Mo(20 nm). La imagen de la izquierda se corresponde con la imagen de la topografía y la de la derecha con la imagen de la fase.

En esta última muestra lo que se ha medido es la rugosidad en la superficie de una estructura completa obteniéndose un valor de **0.634 nm** en el mismo área que en los casos anteriores ( $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$ ). Es decir, al finalizar el crecimiento se consigue reducir en la superficie de la muestra el aumento de rugosidad aparecido en la intercara Gd/Py. Aún así, este aumento de la rugosidad en la intercara superior no resulta conveniente debido a la pérdida de acoplamiento que lleva asociado.

En resumen, en este apartado de caracterización estructural se concluye que la intercara superior Gd/Py presenta peores características tanto estructurales como morfológicas que la intercara inferior debido tanto a la mayor difusión de Ni como a su mayor rugosidad.

### 3.3. Cálculo numérico

En este apartado se muestran los resultados obtenidos a partir del cálculo numérico desarrollado para entender de forma cualitativa la configuración de los momentos magnéticos de cada capa de las tricapas Py/Gd/Py en función de la temperatura. En este cálculo no se ha tenido en cuenta la interdifusión de Ni de forma explícita, por lo que se puede considerar como una primera aproximación.

Como hemos comentado en la introducción de este capítulo, el Gd no presenta anisotropía magneto-cristalina debido a que su momento orbital es nulo ( $L = 0$ ). Sin embargo, el Gd para temperaturas inferiores a 200 K tiene una constante de magnetostricción elevada ( $\lambda_s \sim 100 \cdot 10^{-6} - 200 \cdot 10^{-6}$ ) [13] lo que da lugar a una anisotropía de origen magneto-elástica muy alta.

La deformación en un material ferromagnético se encuentra relacionada con la constante de magnetostricción a través de la expresión:

$$\Delta l/l = (3/2)\lambda_s(M/M_s)^2$$

La tensión mecánica que produce esta deformación es  $\sigma = Y(\Delta l/l)$ , donde Y es el módulo de Young, por lo que:

$$\sigma = (3/2)Y\lambda_s(M/M_s)^2$$

El Gd se encuentra sobre un sustrato rígido que al no permitir que se deforme da lugar a la aparición de una energía de anisotropía magneto-elástica por unidad de volumen que viene dada por:

$$K = (3/2)\lambda_s\sigma = 9/4Y\lambda_s^2(M/M_s)^2$$

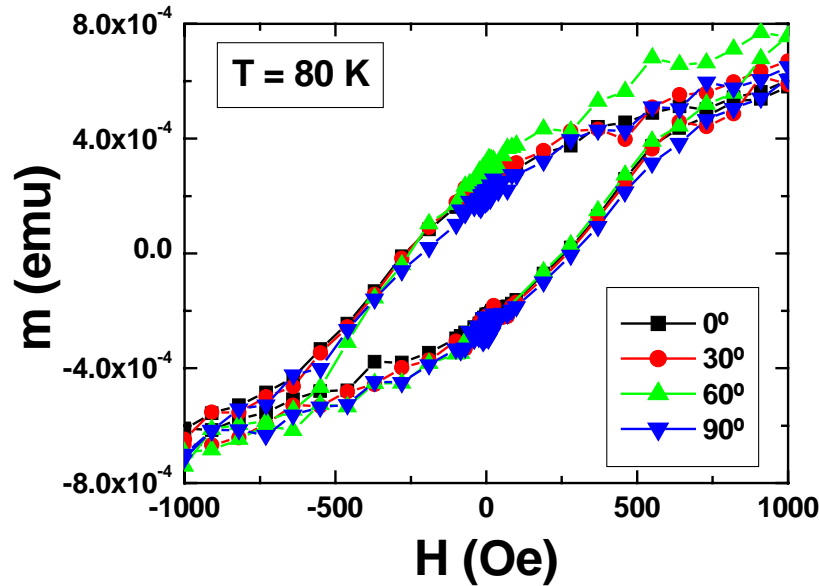
Por tanto, el valor máximo de la anisotropía magneto-elástica es:

$$K_{\max} = 9/4Y\lambda_s^2$$

Introduciendo en esta expresión los valores del módulo de Young y de la magnetostricción del Gd, ( $Y_{\text{Gd}} = 55 \text{ GPa}$ ,  $\lambda_s \sim 150 \cdot 10^{-6}$ ) obtenemos un valor de la constante de anisotropía magneto-elástica de:

$$K \approx 3000 \text{ J/m}^3$$

Como esta anisotropía proviene de la existencia de tensiones mecánicas en la capa de Gd, no produce un eje de fácil imanación, sino una dispersión de la anisotropía. Así, en una capa de Gd de 50 nm de espesor los ciclos de histéresis tomados formando distintos ángulos entre un eje de referencia y la dirección del campo magnético aplicado, no muestran la existencia de un eje fácil definido.



**Figura 3.13.** Ciclos de histéresis de una capa de Gd de 50 nm de espesor para distintos ángulos ( $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $90^\circ$ ) entre un eje de referencia en la muestra y la dirección del campo magnético aplicado.

Para realizar el cálculo se subdivide cada capa en  $n$  elementos de espesor  $e_i/n$  donde  $e_i$  es el espesor total de cada capa. Dentro de cada uno de estos elementos la imanación se considera uniforme, estando definida su dirección por sus cosenos directores. En nuestro cálculo sólo ha sido necesario utilizar un coseno director ya que se ha simulado la orientación de la imanación a lo largo del espesor de la tricapa. La energía del sistema viene dada por la suma de la de cada uno de estos elementos, donde se ha tenido en cuenta la energía de canje dentro de cada capa, la energía de anisotropía, la energía Zeeman y la interacción antiferromagnética en la intercara.

La dependencia con la temperatura se ha tenido en cuenta tanto en la imanación de cada elemento, como en las energías de canje en las intercaras,  $C_{12}$  y  $C_{23}$ . Estas constantes representan la interacción antiferromagnética en las intercaras Py/Gd y dependen de la imanación de ambos, Py y Gd. La dependencia con la temperatura de la imanación de saturación se ha tomado como de tipo Bloch es decir,

$$M = M_{sat}(1 - (T/T_C)^{3/2})$$

Para minimizar la energía del sistema se ha utilizado el método del gradiente conjugado [14]. Así se obtiene el ángulo entre la imanación y el campo aplicado a lo ancho del espesor de la tricapa. La energía total por unidad de área viene dada por la siguiente expresión:

$$\begin{aligned}
 W = & \sum_{j=1}^3 \left\{ \sum_{i=0}^{n_j} \left[ A_{exj} \frac{(\alpha_{i+1}^j - \alpha_i^j)^2}{\left(\frac{e_j}{n_j}\right)} + K_j \left( \sin \left( \frac{(\alpha_{i+1}^j + \alpha_i^j)}{2} - \theta_j \right) \right)^2 \left(\frac{e_j}{n_j}\right) \right] \right\} + \\
 & + \sum_{j=1}^3 \left\{ \sum_{i=0}^{n_j} \left[ -\mu_0 H M_{sj} \left(\frac{e_j}{n_j}\right) \cos \left( \frac{(\alpha_{i+1}^j + \alpha_i^j)}{2} - \beta \right) \right] \right\} + \\
 & + C_{12} \cos(\alpha_m^1 - \alpha_0^2) + C_{23} \cos(\alpha_{n_2}^2 - \alpha_0^3) \tag{3.1}
 \end{aligned}$$

En esta ecuación  $n_j$  es el número de subdivisiones dentro de la capa  $j$  (“*mesh density*”),  $e_j$  es el espesor de la capa  $j$ ,  $\alpha_i^j$  es el ángulo entre la dirección de la imanación del intervalo  $i$  de la capa  $j$  con respecto a un eje de referencia. Estos son los ángulos respecto de los que se ha minimizado la energía.  $M_{sj}$  es la imanación de la capa  $j$ ,  $A_{exj}$  es la constante de canje del material de la capa  $j$ ,  $C_{12}$  es la energía de canje para el acoplamiento en la intercara entre las capas 1 y 2 y  $C_{23}$  es la energía de canje para el acoplamiento en la intercara de las capas 2 y 3, siendo éstas energías por unidad de área,  $K_j$  es la energía de anisotropía de la capa  $j$ ,  $\theta_j$  es el ángulo entre la dirección de anisotropía de la capa  $j$  y el eje de referencia,  $H$  es el campo aplicado y  $\beta$  es el ángulo entre el campo  $H$  y el eje de referencia.

En la primera serie de tricapas, el espesor de Py es de 200 nm mientras que el de Gd varía entre 50 y 200 nm. En la simulación se ha tenido en cuenta que las direcciones de anisotropía de las capas de Py en estas muestras se encuentran desalineadas (como se muestra en los datos experimentales de la caracterización magnética que aparecen en el apartado siguiente *3.4 Caracterización magnética*).

Los valores utilizados para las constantes de canje dentro de cada capa ( $A_{ex-Py}$  y  $A_{ex-Gd}$ ) son del orden de  $10^{-12}$  J/m, valores que han sido obtenidos a través de la expresión  $A = (2JS^2)/a$ . Para las constantes de acoplamiento de canje en las intercaras se usaron los valores del acoplamiento entre el Fe y el Gd [6] ya que no se han encontrado valores tabulados para el acoplamiento Py-Gd. Las constantes de acoplamiento  $C_{12}$  y  $C_{23}$ , tienen unidades de energía por unidad de área [3.1]. El acoplamiento de canje en la intercara no se limita únicamente a la frontera Py/Gd sino que se propaga una determinada distancia dentro de cada capa. Prieto y colaboradores consideran que el decaimiento de esta interacción es de tipo exponencial con una longitud característica de 1 nm [6]. En este trabajo sin embargo, se han simplificado los cálculos eliminando la dependencia exponencial del acoplamiento con el espesor, pero se ha mantenido que el acoplamiento afecta a 1 nm de espesor dentro de cada capa, tanto de Py como de Gd. Por ello, el parámetro que se introduce en nuestros cálculos es la constante de acoplamiento en la intercara multiplicada por el espesor en el que esta interacción es efectiva, 1 nm. Por ello, se define un nuevo parámetro  $A_{Py-Gd}$  con unidades de energía por unidad de longitud, con el mismo valor tanto para la intercara superior como para la inferior.

- **Capas de Py:**

Espesor: 200 nm

Constante de canje ( $A_{ex-Py}$ ):  $2.7 \cdot 10^{-12}$  J/m

Energía de anisotropía:  $400 \text{ J/m}^2$ . El ángulo que forman las direcciones de anisotropía de las dos capas de Py es de  $90^\circ$ .

- **Capa de Gd:**

Espesor: 200, 150, 100 y 50 nm

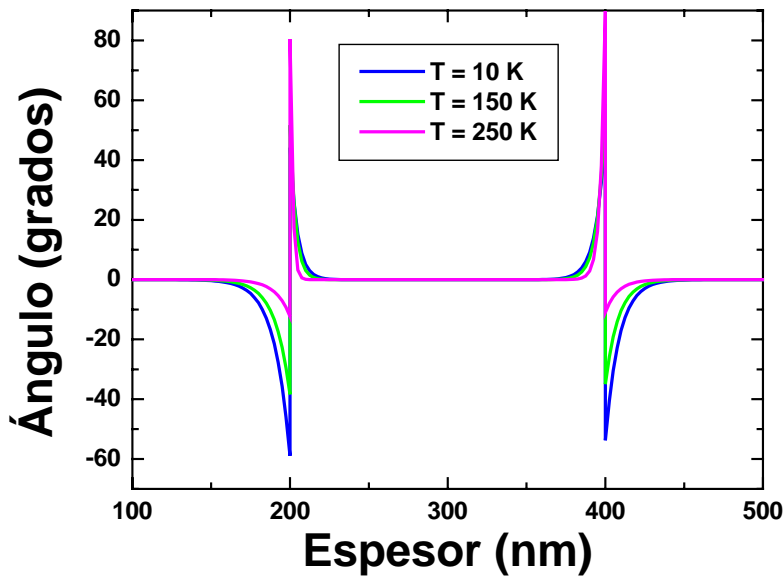
Constante de canje ( $A_{ex-Gd}$ ):  $7 \cdot 10^{-12}$  J/m

Energía de anisotropía:  $3000 \text{ J/m}^2$

- **Intercara:**

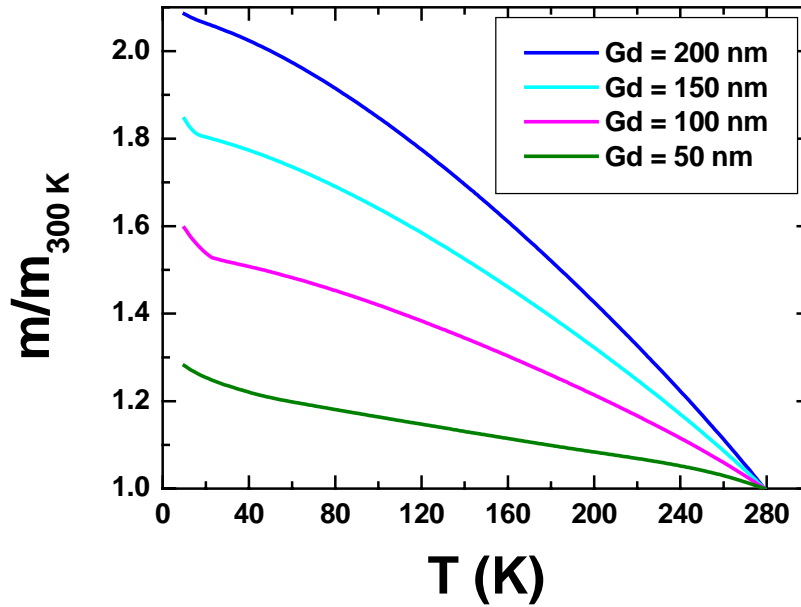
Constante de canje en la intercara ( $A_{\text{Py-Gd}}$ ):  $-1 \cdot 10^{-12}$  J/m.

Para estos valores, la longitud de canje ( $\delta = \sqrt{A/K}$ ) es 59 nm para el Py mientras que para el Gd es 18 nm. Las regiones que estén a una distancia de la intercara mayor que la longitud de canje, se consideran desacopladas es decir no influenciadas por la interacción de canje antiferromagnética por lo que están condicionadas únicamente por la anisotropía y el campo aplicado (Figura 3.14). También se puede observar en la figura 3.14 como, en la capa de Py, la región en la que se produce el giro de los momentos magnéticos aumenta según disminuye la temperatura, a la vez que disminuye en la capa de Gd. Esto se debe a que la imanación a baja temperatura de la capa de Gd (1.95 T) es mayor que la de la capa de Py (1 T), de tal forma que al reducir la temperatura la energía del sistema es más pequeña cuanto menor sea el espesor de la región de Gd en el que se produce el giro de los momentos magnéticos.



**Figura 3.14.** Simulación del ángulo formado entre la imanación y el campo magnético aplicado para la tricapa de Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm) a distintas temperaturas. Se toma como valor del campo aplicado 1 kOe. Observar que en la figura sólo se ha representado la mitad del espesor de la capa Py.

En esta primera serie, los espesores de todas las capas son mayores que su longitud de canje. En la curva  $m/m_{300K}$  en función de la temperatura no aparece  $T_{Com}$  ya que, al existir regiones de capas de Py y de Gd que se encuentran orientadas en la dirección del campo, es imposible alcanzar un estado en el que las imanaciones sean iguales y de sentido opuesto (Figura 3.15).



**Figura 3.15.** Resultado de la simulación del momento magnético en función de la temperatura obtenido en el cálculo numérico para tricapas con un espesor fijo de Py de 200 nm y espesores de 200, 150, 100 y 50 nm para la capa de Gd. En la simulación se tomó el campo aplicado como 10 kOe (1 T).

En la segunda serie de tricapas, el espesor de Gd tiene un valor constante de 50 nm que es mayor que su longitud de canje. El espesor de las capas de Py varía entre 25 y 200 nm, es decir, en este caso tenemos capas de Py con espesores superiores e inferiores a su longitud de canje. Las anisotropías de las dos capas de Py tienen la misma dirección ya que se está simulando la serie en la que se aplicó un campo de 40 Oe durante el crecimiento de las muestras para inducir el mismo eje fácil en ambas capas de Py. Los parámetros utilizados para la simulación en este caso fueron:

- **Capas de Py:**  
Espesor: 25, 50, 100 y 200 nm  
Constante de canje ( $A_{ex,Py}$ ):  $2.7 \cdot 10^{-12}$  J/m



Energía de anisotropía:  $400 \text{ J/m}^2$

- **Capa de Gd:**

Espesor: 50 nm

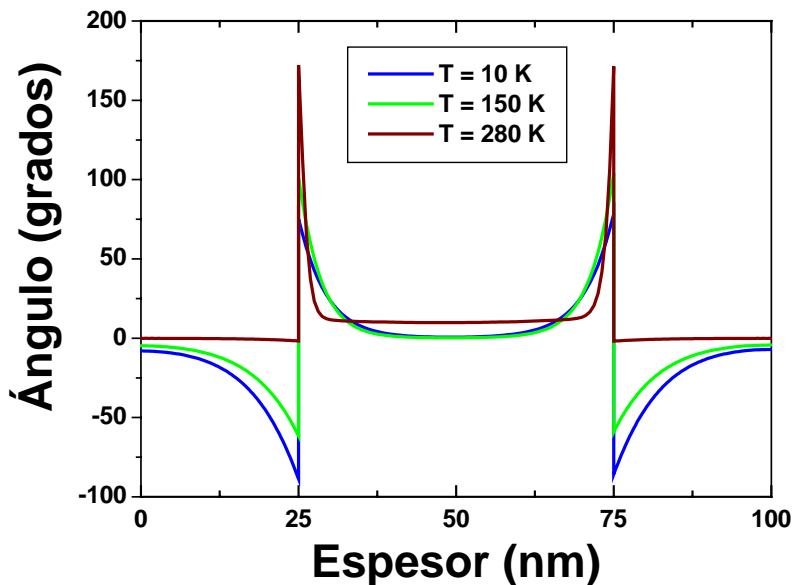
Constante de canje ( $A_{\text{ex,Gd}}$ ):  $7 \cdot 10^{-12} \text{ J/m}$

Energía de anisotropía:  $3000 \text{ J/m}^2$

- **Intercara:**

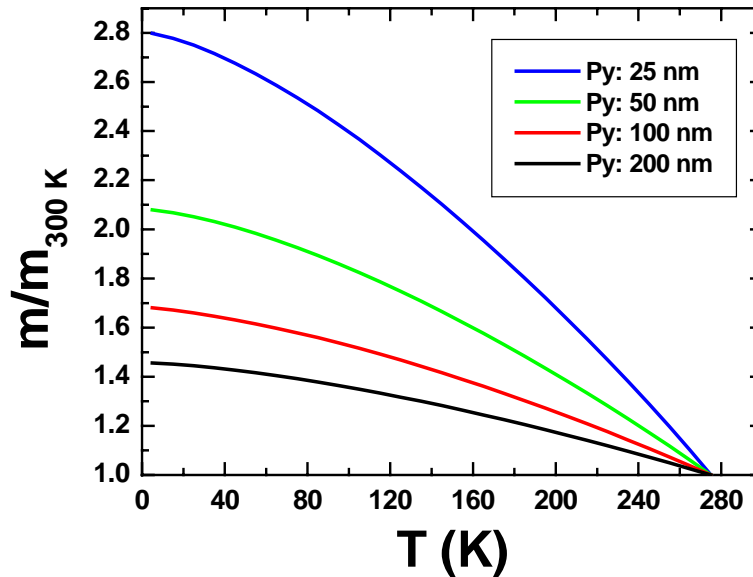
Constante de canje en la intercara ( $A_{\text{ex,Py}}$ ):  $-1 \cdot 10^{-12} \text{ J/m}$

En la tricapa con un espesor de Py de 25 nm (espesor menor que su longitud de canje) se aprecia con mayor claridad el fenómeno comentado anteriormente. A baja temperatura la imanación está girando a lo largo de prácticamente todo esta capa. Sin embargo, a temperaturas cercanas a la de Curie de la capa de Gd, este giro pasa a la capa de Gd debido a su menor imanación (Figura 3.16).



**Figura 3.16.** Resultados de la simulación para el ángulo formado entre la imanación y el campo magnético aplicado para la tricapa de Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm) a distintas temperaturas. Se ha tomado como campo aplicado 1 kOe.

La simulación del momento magnético en función de la temperatura de estas tricapas tampoco muestra  $T_{Com}$ , sino que aparece un aumento del momento magnético al disminuir la temperatura (Figura 3.17).



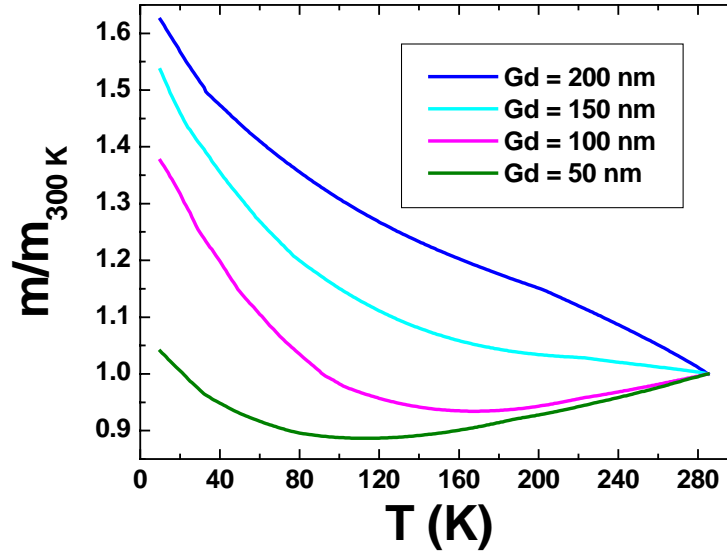
**Figura 3.17.** Momento magnético en función de la temperatura obtenido en el cálculo numérico para tricapas con un espesor fijo de Gd de 50 nm y espesores de 25, 50, 100 y 200 nm para la capa de Py. El campo aplicado es de 1 kOe.

Debido a que no aparece  $T_{Com}$  en la simulación de las muestras estudiadas decidimos cambiar los parámetros introducidos en el cálculo. Aumentando en un orden de magnitud todas las constantes de canje (pasan a ser del orden de  $10^{-11}$  J/m<sup>2</sup>), eliminando la anisotropía de las capas y reduciendo el campo aplicado a 100 Oe, aparece  $T_{Com}$  en las tricapas de la primera serie.

- **Capas de Py:**  
Espesor: 200 nm  
Constante de canje ( $A_{ex Py}$ ):  $2.7 \cdot 10^{-11}$  J/m
- **Capa de Gd:**  
Espesor: 200, 150, 100 y 50 nm  
Constante de canje ( $A_{ex Gd}$ ):  $7 \cdot 10^{-11}$  J/m

- **Intercara:**

Constante de canje en la intercara ( $A_{\text{ex Py}}$ ):  $-1 \cdot 10^{-11}$  J/m



**Figura 3.18.** Momento magnético en función de la temperatura obtenido en el cálculo numérico para tricapas con un espesor fijo de Py de 200 nm y espesores de 200, 150, 100 y 50 nm para la capa de Gd. El campo aplicado es de 100 Oe.

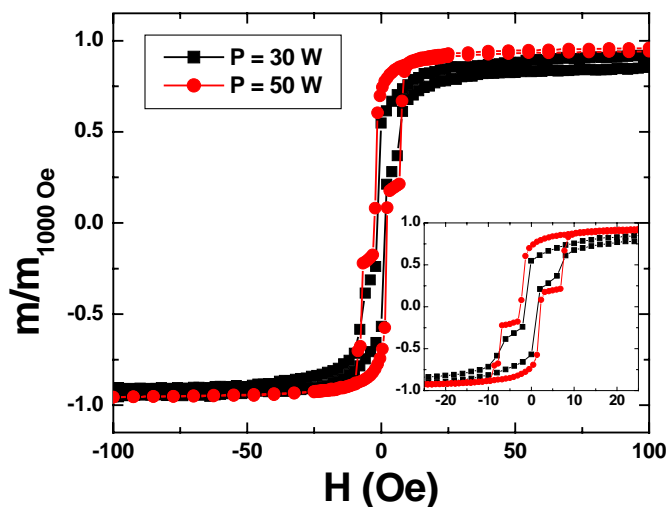
En resumen, en este apartado hemos estudiado a partir de simulaciones la distribución de los momentos magnéticos a lo largo del espesor de las muestras. También hemos calculado el momento magnético en función de la temperatura, obteniendo que las tricapas estudiadas no presentan  $T_{\text{Com}}$ . Esto no indica que las capas no se encuentren acopladas ya que los cálculos se han realizado introduciendo el acoplamiento antiferromagnético en las intercara. Sin embargo, es necesario aumentar en un orden de magnitud los valores de las constantes de canje y eliminar las anisotropías para que en el cálculo aparezcan  $T_{\text{Com}}$ .

### 3.4. Caracterización magnética

En este apartado se muestran y se analizan los resultados de la caracterización magnética en tricapas de Py/Gd/Py. Las medidas en función de la temperatura sólo se han realizado para las tricapas crecidas a 30 W ya que son las muestras que menor difusión de Ni presentan según indican los datos de difracción de rayos-x.

#### i. Caracterización magnética a temperatura ambiente

A temperatura ambiente el Gd se encuentra en estado paramagnético por lo que los fenómenos magnéticos de las tricapas Py/Gd/Py a esta temperatura sólo estarán relacionados con las capas de Py. En los ciclos de histéresis de VSM de las tricapas, crecidas tanto a 50 W como a 30 W, existe un salto en la imanación en la región de bajo campo que se produce cuando el campo magnético aplicado ya ha invertido su valor (Figura 3.19). Aparece un “plateau” que indica que permanece imanación orientada en el sentido positivo del campo magnético a pesar de que éste haya invertido su valor. También se observa en estos ciclos que el campo coercitivo de las tricapas crecidas a 50 W es mayor que el de las de 30 W. Esto puede explicarse ya que, al aumentar la difusión de Ni con la potencia, la concentración de Ni en la capa de Py se reduce, aumentando así su campo coercitivo.



**Figura 3.19.** Ciclos de histéresis a temperatura ambiente obtenidos en el VSM para tricapas de Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm) crecidas a 50 y 30 W.

El VSM es una técnica que nos da información del momento magnético de la muestra en su conjunto. Para estudiar de donde provienen los saltos de la imanación se utilizó el efecto Kerr longitudinal (L-MOKE) para analizar por separado el comportamiento magnético de cada capa de Py. Para ello, se incidió con el láser tanto en la capa superior del Py como en la capa inferior crecida sobre el vidrio. Estas medidas permiten conocer la dirección de la anisotropía y el campo coercitivo de cada capa de Py por separado. Los ciclos se midieron por cada lado en la misma dirección (mismo ángulo formado entre el campo magnético aplicado y un eje de referencia).

Como se observa en los ciclos de efecto Kerr (Figura 3.20), las dos capas de Py presentan distintos campos coercitivos lo que explica los saltos de imanación observados en los ciclos de VSM. Como prácticamente todo el Ni que existe en la capa de Gd procede de la capa superior de Py, su campo coercitivo es mayor ya que tiene una composición deficiente en Ni con respecto a la de la capa inferior. Así, la aparición de los “plateau” en la imanación se asociaría a que cada capa de Py invierte su imanación para un valor distinto de campo.

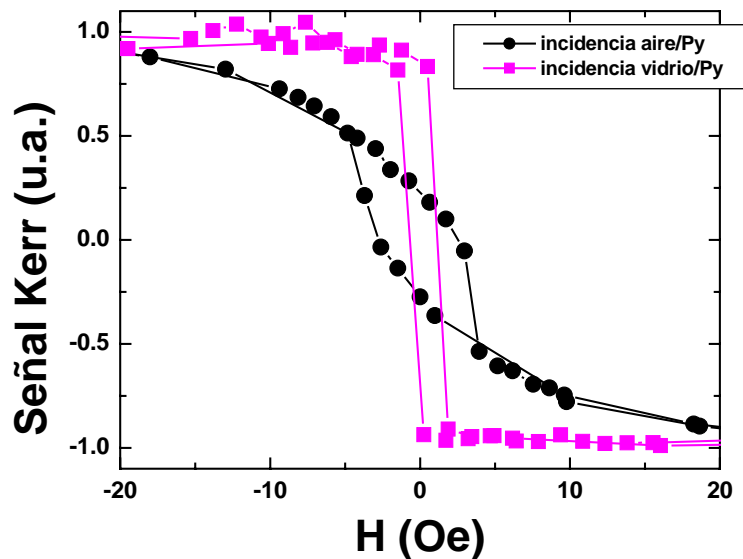
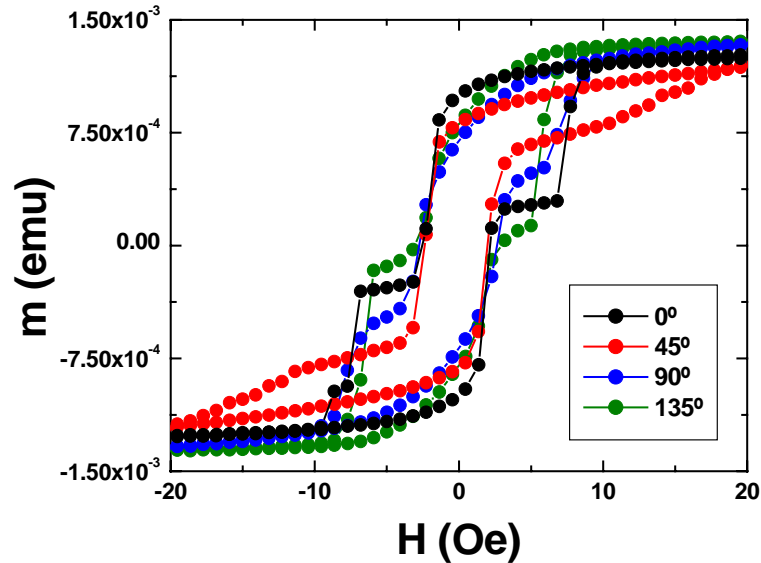


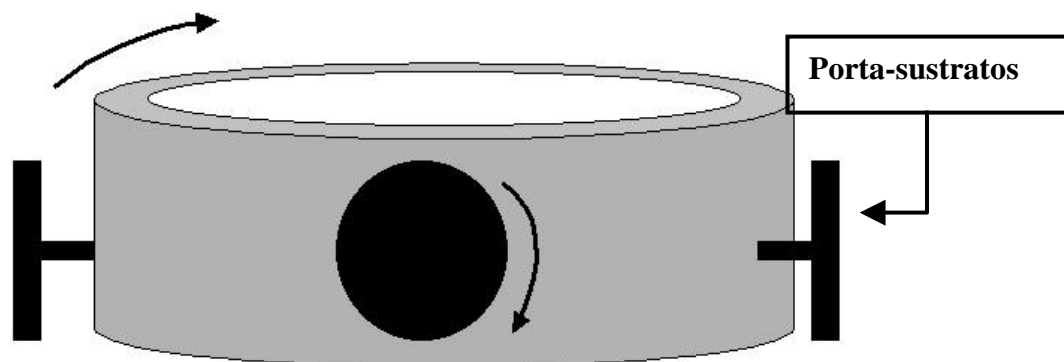
Figura 3.20. Ciclos de histéresis a temperatura ambiente obtenidos por MOKE de la tricapa Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm) crecidas a 50 W.

Los ciclos medidos por efecto Kerr muestran también que las direcciones de los ejes de anisotropía de las capas de Py se encuentran formando un ángulo de aproximadamente  $90^\circ$  entre ellas. Este desalineamiento explica la imposibilidad de obtener un eje de anisotropía definido en los ciclos de VSM (Figura 3.21).



**Figura 3.21.** Ciclos de histéresis de la tricapa Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm) crecida a 50 W medidos en el VSM a temperatura ambiente aplicando el campo en diferentes direcciones respecto de un eje de referencia.

El campo magnético en la campana del sistema de sputtering es no nulo, ya que los magnetrones crean un campo en el plano de la muestra de aproximadamente 4 Oe (0.4 mT), siendo este campo capaz de inducir una dirección de anisotropía en las capas de Py. Debido al sistema planetario de giro utilizado en el sputtering (Figura 3.22), a la vez que se mueve el portasustratos para cambiar el blanco con el que se encuentra enfrentado, también gira la muestra respecto de un eje perpendicular a su plano. Así, en la segunda capa de Py se induce una dirección de anisotropía distinta a la de la primera capa porque ha cambiado el ángulo entre la muestra y el campo creado por los magnetrones. Esto explicaría las distintas direcciones de anisotropía de las capas de Py.

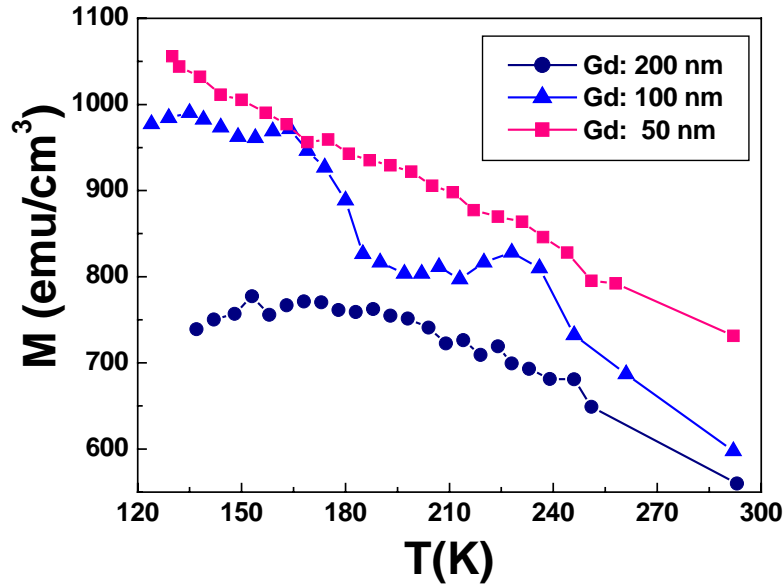


**Figura 3.22.** Esquema del sistema rotatorio planetario utilizado para el movimiento de los sustratos en el sputtering.

## ii. Caracterización magnética en función de la temperatura

### a) Primera serie de tricapas Py/Gd/Py

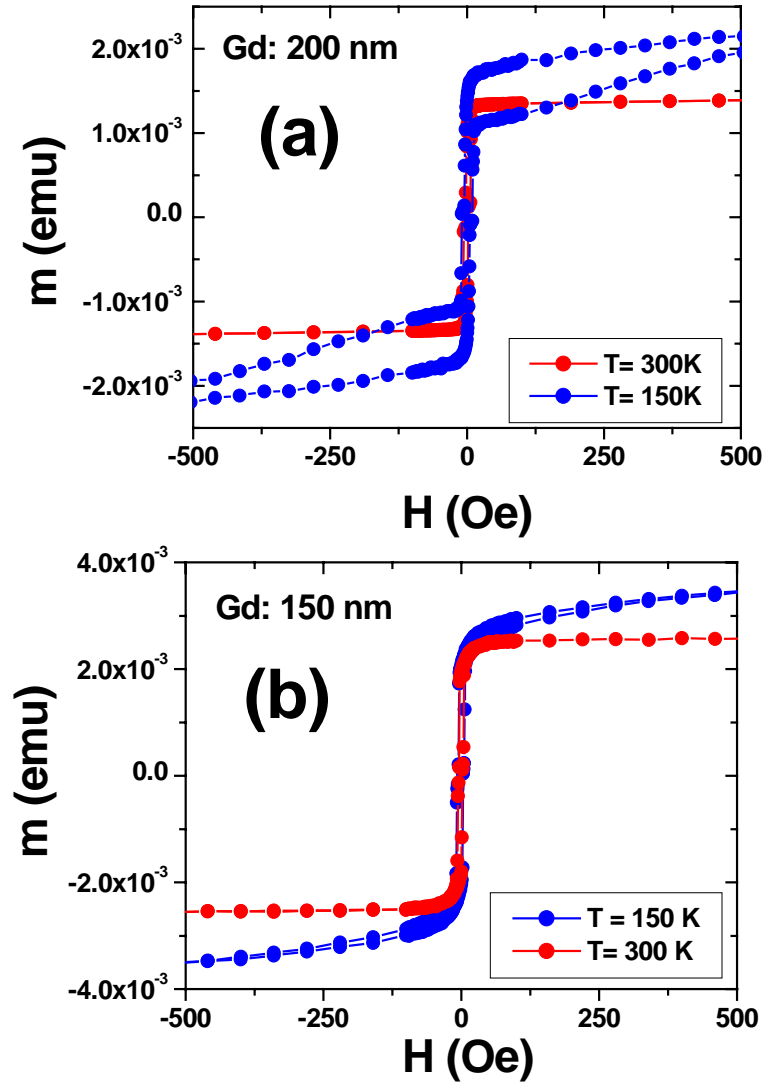
En esta primera serie de muestras el espesor de Py se mantuvo constante en 200 nm y el espesor de Gd varía entre 50 y 200 nm. En este caso, el momento magnético se midió aplicando un campo de 10 kOe (1 T) en el plano de la muestra. Como se ha visto en la caracterización a temperatura ambiente, las capas de Py tienen las direcciones de anisotropía desalineadas lo que imposibilita aplicar el campo en una dirección de anisotropía definida. En el rango de temperatura estudiado no aparece  $T_{Com}$  sino que la imanación aumenta de forma continua al disminuir la temperatura (Figura 3.23). Los resultados son similares a los obtenidos en la simulación numérica del comportamiento magnético de estas tricapas (Figura 3.15). La no existencia de  $T_{Com}$  en estas estructuras, no implica que no haya acoplamiento antiferromagnético entre el Py y el Gd, sino que los espesores tan elevados de las capas utilizadas no permiten la compensación del momento magnético.



**Figura 3.23.** Imanación en función de la temperatura para tricapas con un espesor de Py de 200 nm, mientras que el de Gd varía entre 50 y 200 nm. El momento magnético fue medido para un campo aplicado de 10 kOe.

A 300 K los ciclos de histéresis sólo muestran el comportamiento asociado a la capa de Py (Figura 3.24). Sin embargo, a 150 K, se puede diferenciar claramente la contribución de las capas de Py y Gd. En la región central aparece un ciclo con bajo campo coercitivo que sería el del Py, mientras que a alto campo se observa el comportamiento magnético asociado a un material con una alta anisotropía, que sería el Gd. Cuanto mayor sea el espesor de la capa de Gd, existe más región de Gd sin Ni difundido lo que explica que la contribución del Gd en los ciclos de histéresis crezca cuando aumenta su espesor (Figura 3.24).





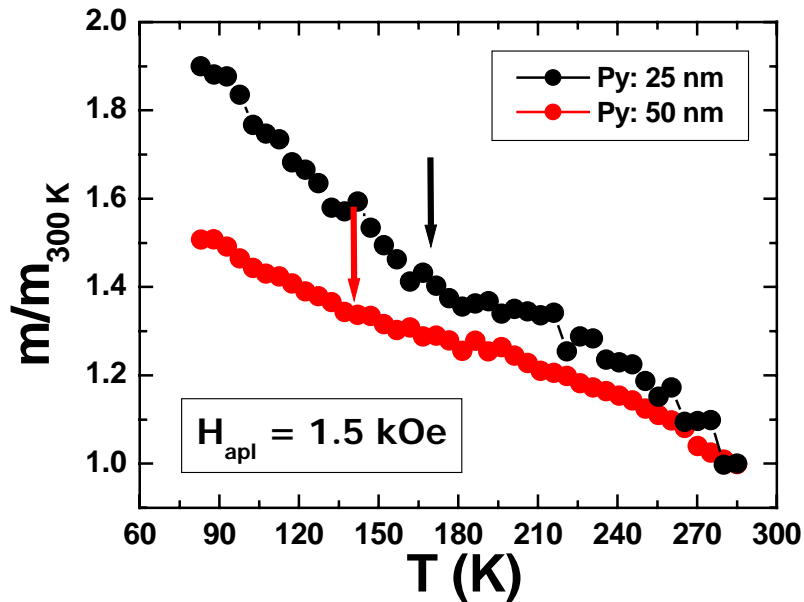
**Figura 3.24.** Ciclos de histéresis obtenidos en el VSM a 300 y 150 K para (a) Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm) y (b) Py(200 nm)/Gd(150 nm)/Py(200 nm).

### b) Segunda serie de tricapas Py/Gd/Py

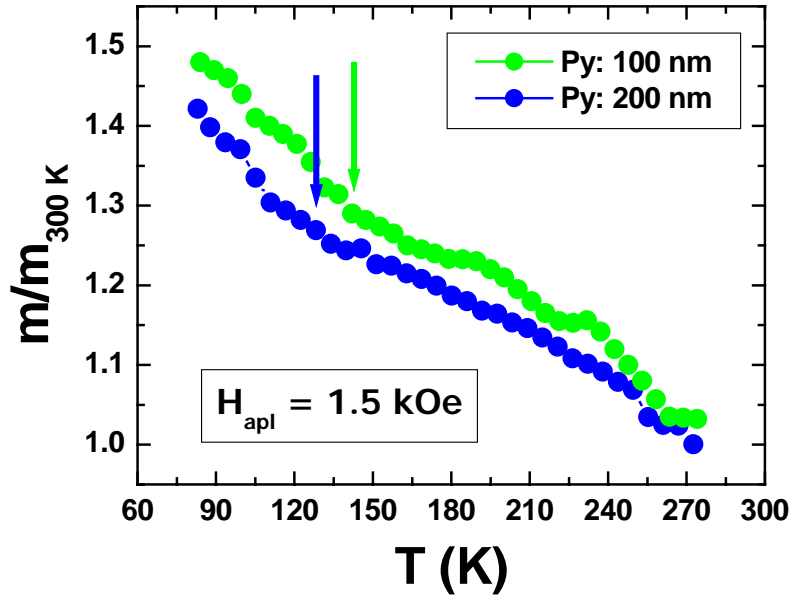
En esta segunda serie de tricapas el espesor de Gd se mantuvo fijo en 50 nm y el de Py varía entre 25 y 200 nm. Las condiciones de crecimiento de estas capas se han mejorado respecto de la primera serie ya que por un lado se han introducido capas *buffer* y *capping* de Mo de 10 y 60 nm, respectivamente y, además, se ha aplicado en el plano de la muestra un campo magnético de dirección constante mucho mayor ( $H = 40 \text{ Oe}$ ) que el existente en la campana durante el crecimiento para evitar el desalineamiento de los ejes de anisotropía de las capas de Py. El alineamiento de los ejes de anisotropía permite

realizar las medidas del momento magnético en función de la temperatura aplicando el campo en el eje fácil de las capas de Py. En esta segunda serie de muestras, en la medida del momento magnético se ha reducido el campo aplicado a 1.5 kOe (0.15 T), ya que para el campo utilizado en la primera serie tanto el Py como el Gd se encuentran saturados lo que dificulta la observación de los efectos relacionados con el acoplamiento en la intercara.

Estas tricapas tampoco muestran  $T_{Com}$ , sin embargo en las medidas del momento magnético en función de la temperatura aparecen puntos de inflexión. Estos puntos nos dan información de un cambio de fase en las muestras, observándose que este cambio de fase se desplaza hacia temperaturas inferiores al aumentar el espesor de Py (Figura 3.25 y 3.26).



**Figura 3.25.** Momento magnético en función de la temperatura de las tricapas Py/Gd/Py con espesores de Py de 25 nm (●) y 50 nm (●) (segunda serie). El momento magnético se obtuvo aplicando un campo de 1.5 kOe en el plano de la muestra según la dirección de anisotropía de las capas de Py.



**Figura 3.26.** Momento magnético en función de la temperatura de las tricapas Py/Gd/Py con espesores de Py de 100 nm (●) y 200 nm (●) (segunda serie). El momento magnético se obtuvo aplicando un campo de 1.5 kOe en el plano de la muestra según la dirección de anisotropía de las capas de Py.

Los resultados anteriores pueden explicarse porque en la intercara superior Py/Gd existe una difusión de Ni procedente de la capa de Py hacia la de Gd que hace que aparezcan aleaciones del tipo  $Gd_{1-x}Ni_x$ . El contenido en Ni de esta aleación depende tanto del espesor de Py como de la distancia a la intercara. A mayor espesor de Py y mayor cercanía a la intercara, mayor es el contenido en Ni en la capa de Gd. Según otros autores, en las aleaciones de  $Gd_{1-x}Ni_x$  con un contenido de Ni menor del 60 %, los átomos de Ni no tienen momento magnético y la interacción de canje en la aleación sólo tiene lugar entre los átomos de Gd [15]. Estas aleaciones son ferromagnéticas pero con una  $T_C$  entre los 130 y 70 K dependiendo de su contenido en Ni [15-18]. Por tanto, podemos deducir que en nuestras películas tricapa el acoplo entre el Py y el Gd es de tipo antiferromagnético porque los átomos de Gd son los que tienen el momento magnético en las aleaciones de  $Gd_{1-x}Ni_x$  que aparecen en las intercaras, pero es necesario disminuir la temperatura por debajo de la  $T_C$  de estas aleaciones para que pueda existir este acoplamiento. Los puntos de inflexión del momento magnético aparecen en el rango de

temperatura comprendido entre los 160 y los 130 K ya que se encuentran relacionados con la  $T_C$  de las aleaciones de  $Gd_{1-x}Ni_x$  presentes en cada tricapa. Cuanto mayor sea el espesor de la capa de Py, mayor es el contenido en Ni de la aleación y por consiguiente, menor su  $T_C$ . Los valores obtenidos para las  $T_C$  se encuentran resumidos en la tabla 3.1.

<b>Tricapas</b>	<b><math>T_C</math> (K)</b>
<b>Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25nm)</b>	162
<b>Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Py(50 nm)</b>	152
<b>Py(100 nm)/Gd(50 nm)/Py(100 nm)</b>	142
<b>Py(200 nm)/Gd(50 nm)/Py(200 nm)</b>	134

**Tabla 3.1.**  $T_C$  de la capa de Gd para tricapas con distinto espesor de Py y espesor de Gd de 50 nm.

En las simulaciones numéricas no aparecen puntos de inflexión en las curvas de momento magnético en función de la temperatura ya que estarían relacionados con el paso al estado ferromagnético de las aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$ , fenómeno que no ha sido considerado en las simulaciones.

Se han medido los ciclos de histéresis de estas muestras desde temperatura ambiente hasta 80 K. Para temperaturas desde  $T = 300$  K hasta  $T \sim 150$  K sólo se observa el comportamiento asociado a la capa de Py. Para temperaturas inferiores, se observa en la región de alto campo el comportamiento asociado a la capa de Gd. Por debajo de 150 K, se produce además un ensanchamiento en la región central de los ciclos (Fig. 3.27).

Como referencia, se creció una capa de Py de 75 nm de espesor con las mismas condiciones de crecimiento que las utilizadas en las tricapas. El campo coercitivo ( $H_C$ ) de las tricapas y el de esta capa de Py se representa en la figura 3.28 en función de la temperatura. Puede observarse que desde temperatura ambiente hasta  $\sim 150$  K, el  $H_C$  de las tricapas toma los mismos valores y presenta la misma variación con la temperatura que el  $H_C$  de la capa sencilla de Py. Es decir, para temperaturas superiores a la  $T_C$  de las

aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$ , la capa de Gd no influye en el comportamiento magnético de las tricapas. Para temperaturas inferiores a la  $T_C$  de las aleaciones comienza a aparecer acoplamiento antiferromagnético lo que da lugar al ensanchamiento de los ciclos visto anteriormente y que se traduce en un aumento del  $H_C$ .

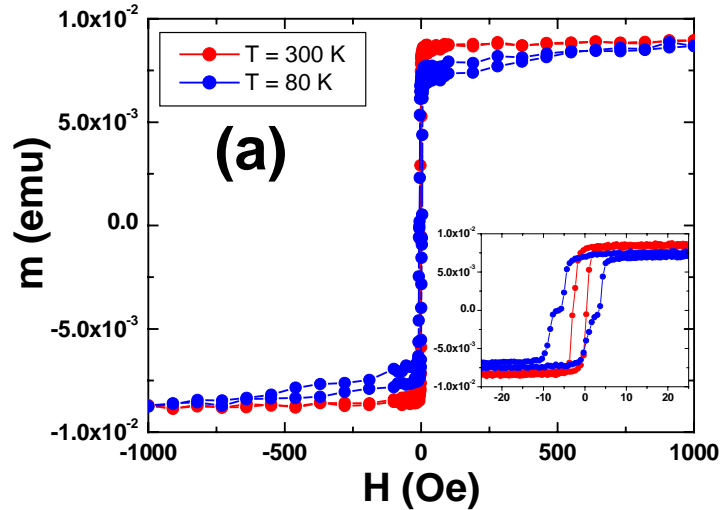


Figura 3.27. Ciclos de histéresis obtenidos en el VSM a 300 K y 80 K para la tricapas Py(200 nm)/Gd(50 nm)/Py(200 nm). Inset: región central de los ciclos de histéresis.

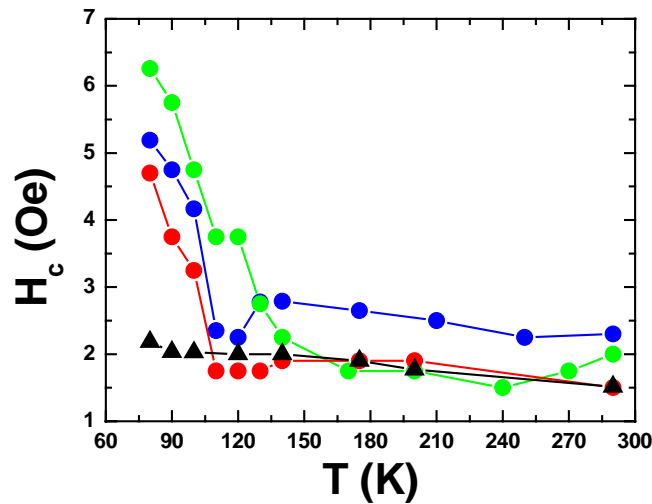
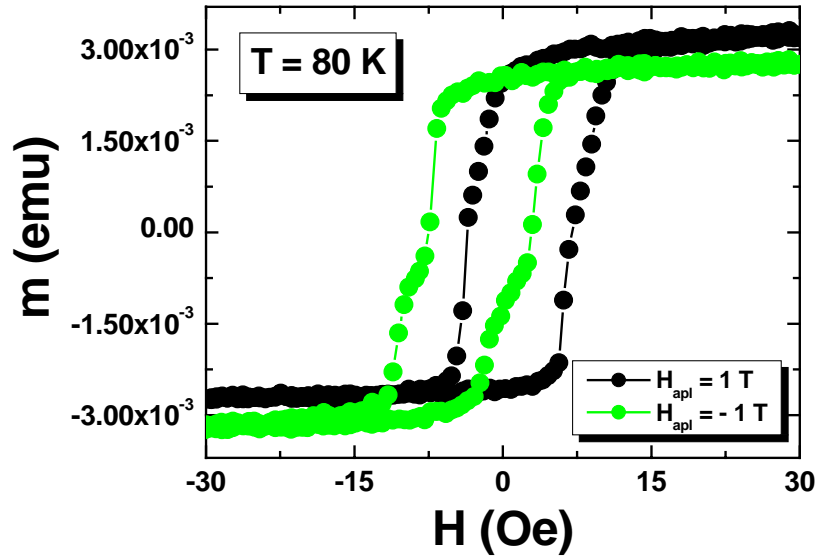


Figura 3.28. Campo coercitivo en función de la temperatura para las tricapas con un espesor de Gd de 50 nm y espesores de Py de 50 nm (●), 100 nm (●) y 200 nm (●). (▲) Capa de Py de 75 nm de espesor.

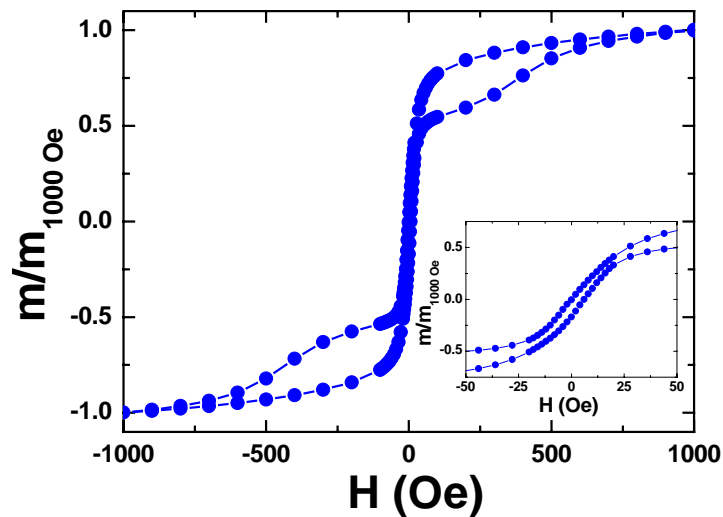
Para comprobar que existe un acoplo antiferromagnético Py/Gd en estas tricapas, a pesar de no tener  $T_{Com}$ , se han medido ciclos menores. Para ello, se satura la muestra con un campo de 10 kOe (1 T) en la dirección positiva del campo magnético para luego hacer un ciclo en el que no se satura la muestra (ciclo menor). A continuación, se aplica un campo saturante de 10 kOe en la dirección opuesta y se hace de nuevo otro ciclo menor. Los ciclos menores se realizaron para valores de campo entre  $\pm 30$  Oe. Cuando dos materiales se encuentran acoplados por canje, se produce un desplazamiento de estos ciclos menores en el eje horizontal. En nuestras tricapas, sólo aparece desplazamiento de los ciclos menores para temperaturas inferiores a la  $T_C$  de las aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$ .



**Figura 3.29.** Ciclos menores a 80 K para la tricapa Py(100 nm)/Gd(50 nm)/Py(100 nm). (●) Ciclo menor tras haber aplicado un campo saturante de 1 T, (●) Ciclo menor tras haber aplicado un campo saturante de - 1 T.

Sin embargo, aunque existe acoplamiento antiferromagnético, es difícil alcanzar el punto de compensación en estas tricapas aún a 12 K, ya que los ciclos de histéresis, muestran tanto la parte del ciclo correspondiente al Py como al Gd (Figura 3.30). Sin embargo, en la zona central de estos ciclos aparece un cambio en los procesos de imanación de la capa de Py que podemos asociar al acoplo antiferromagnético.

Desde temperatura ambiente hasta  $\sim 150$  K, en los ciclos sólo aparece contribución asociada al Py y los procesos de imanación tienen lugar por desplazamientos de paredes, ya que la capa de Py se encuentra completamente desacoplada en este intervalo de temperatura (Figura 3.27). Sin embargo, por debajo de 150 K, el ciclo se ensancha, es decir la imanación del Py es anclada por algún mecanismo que puede asociarse al paso al estado ferromagnético de la intercara (Figura 3.27). Finalmente, a baja temperatura, tienen lugar los procesos de imanación por rotación (Figura 3.30). Estos procesos de rotación se encuentran relacionados con la interacción de canje entre el Py y el Gd ya que como mostraban las simulaciones, al disminuir la temperatura aumenta la región de la capa de Py en la que aparece rotación de los momentos magnéticos.



**Figura 3.30.** Ciclos de histéresis a 12 K obtenido en el SQUID de la tricapa Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm).

En resumen, hemos estudiado las propiedades magnéticas tanto a temperatura ambiente como a baja temperatura de dos series de tricapas de Py/Gd/Py. La primera conclusión obtenida es que se necesita aplicar durante el crecimiento un campo en el plano de las muestras para evitar el desalineamiento de los ejes de anisotropía de las capas de Py. En segundo lugar, se ha observado como la difusión de Ni afecta a las propiedades magnéticas de estas tricapas, ya que el acoplo antiferromagnético entre el Py y el Gd no aparece hasta temperaturas inferiores a la  $T_C$  de las aleaciones en las intercara

que es donde tiene lugar el acoplamiento. Por último, aunque las multicapas basadas en Gd y metales magnéticos de transición se caracterizan por presentar  $T_{Com}$  en las medidas del momento magnético en función de la temperatura, en las series de tricapas estudiadas no hemos observado este fenómeno. Esto no significa que no exista acoplamiento antiferromagnético en ellas como hemos demostrado estudiando los ciclos menores.



### 3.5. Caracterización eléctrica de tricapas de Py/Gd/Py.

Debido a la estrecha relación entre los procesos magnéticos y los de transporte en las multicapas magnéticas, la caracterización eléctrica nos permite completar los resultados obtenidos en el apartado anterior.

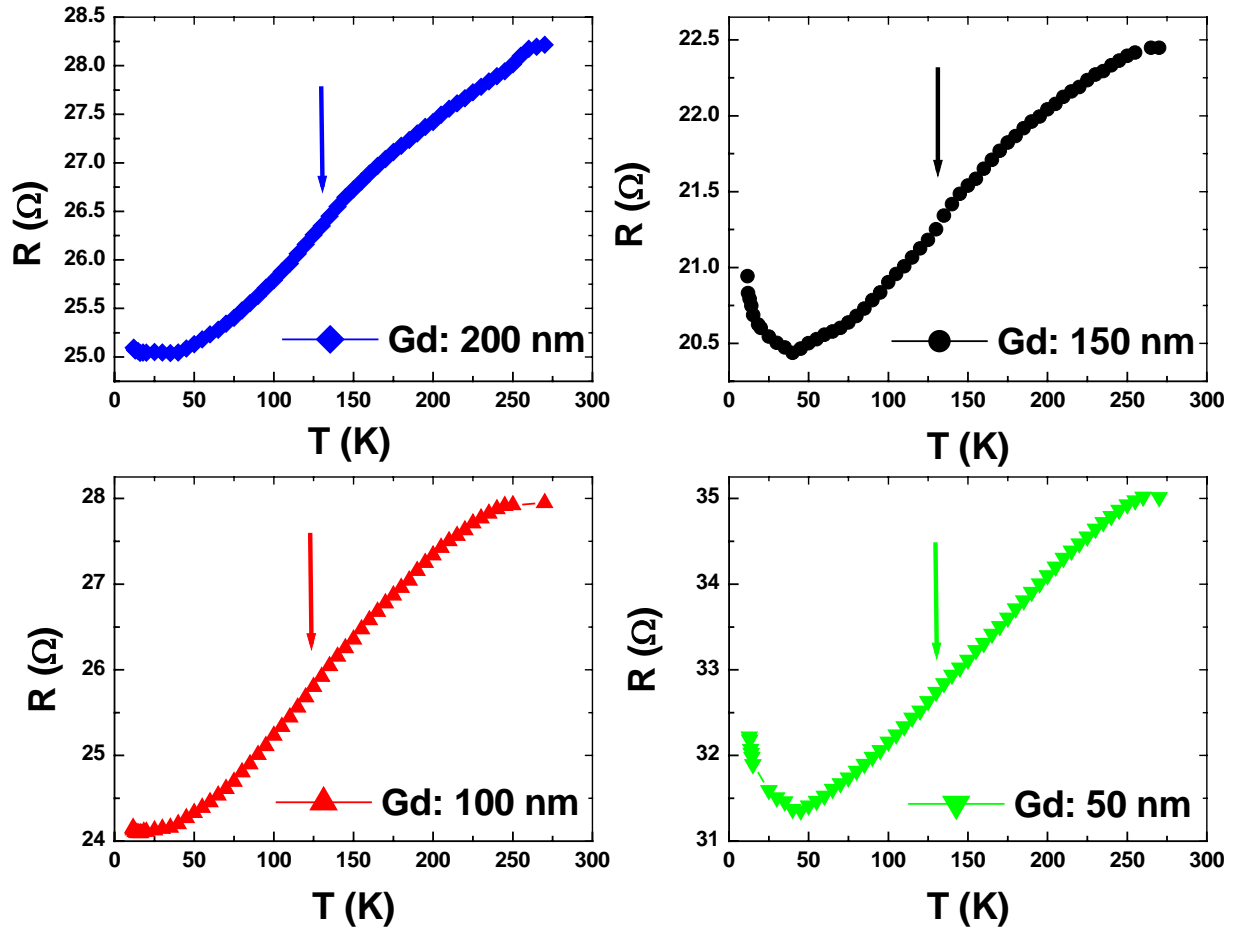
Como las medidas eléctricas se hicieron en la configuración en el plano (CIP), las tricapas analizadas en este apartado no tienen ni *buffer* ni *capping* de Mo para evitar que la conducción eléctrica tenga lugar en las capas no magnéticas. Además, si tenemos en cuenta las resistividades eléctricas del Py y del Gd ( $\rho_{\text{Py}} \approx 15 \mu\Omega\text{m}$ ,  $\rho_{\text{Gd}} \approx 139 \mu\Omega\text{m}$ ) y los espesores de las capas utilizadas, Py ( $\geq 25 \text{ nm}$ ) y Gd (50 nm), la resistencia eléctrica del Py es menor que la del Gd ( $R_{\text{Py}} \leq 60 \Omega$ ,  $R_{\text{Gd}} = 278 \Omega$ ) y por tanto, las propiedades eléctricas en el plano se encuentran principalmente relacionadas con la configuración magnética de las capas de Py.

#### i. Resistencia eléctrica en función de la temperatura.

Las medidas de resistencia eléctrica en función de la temperatura se realizaron aplicando un campo de 170 Oe en la dirección paralela y perpendicular a la corriente, desde temperatura ambiente hasta 10-12 K.

En las medidas del momento magnético en función de la temperatura del apartado anterior, observamos puntos de inflexión que se relacionaban con la  $T_C$  de las aleaciones de  $\text{Gd}_{1-x}\text{Ni}_x$ . Las medidas de resistencia eléctrica de las tricapas en función de la temperatura presentan puntos de inflexión en las mismas regiones de temperatura. En el caso de las medidas de resistividad, los puntos de inflexión están relacionados con algún cambio de fase, como es el paso al estado ferromagnético de las aleaciones de  $\text{Gd}_{1-x}\text{Ni}_x$ .

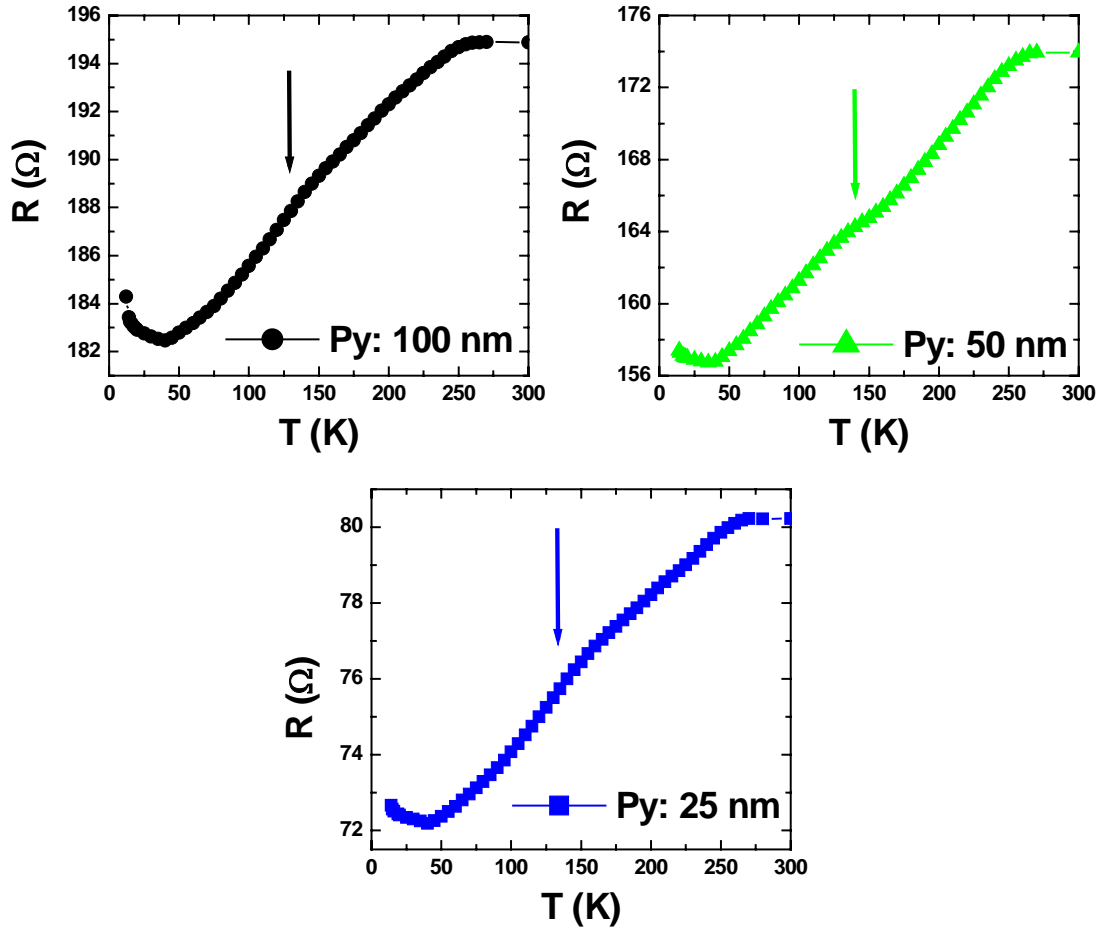
En la primera serie de muestras, las  $T_C$  obtenidas mediante medidas de resistividad, no se pueden comparar con los resultados de su caracterización magnética, ya que las medidas del momento magnético fueron realizadas a campos demasiado elevados como para observar puntos de inflexión. No obstante en la segunda serie, se obtiene un buen acuerdo entre ambos tipos de caracterizaciones, tabla 3.1 y tabla 3.3.



**Figura 3.31.** Resistencia en función de la temperatura medida en la configuración CIP para un campo aplicado de 170 Oe en la dirección perpendicular a la corriente para las tricapas con un espesor fijo de Py de 200 nm y un espesor de Gd que varía entre 50 y 200 nm.

Tricapa	$T_C$
Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm)	135 K
Py(200 nm)/Gd(150 nm)/Py(200 nm)	135 K
Py(200 nm)/Gd(100 nm)/Py(200 nm)	125 K
Py(200 nm)/Gd(50 nm)/Py(200 nm)	130 K

**Tabla 3.2.**  $T_C$  de las aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$  obtenidas mediante medidas de resistencia en función de la temperatura.



**Figura 3.32.** Resistencia en función de la temperatura medida en la configuración CIP para un campo aplicado de 170 Oe en la dirección perpendicular a la corriente para las tricapas con un espesor fijo de Gd de 50 nm y espesores de Py comprendidos entre 25 y 200 nm.

Tricapa	$T_C$
Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm)	160 K
Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Py(50 nm)	150 K
Py(100 nm)/Gd(50 nm)/Py(100 nm)	135 K

**Tabla 3.3.**  $T_C$  de las aleaciones de  $Gd_{1-x}Ni_x$  obtenidas mediante medidas de resistividad en función de la temperatura.

Si comparamos las  $T_C$  obtenidas en la primera serie de muestras (Tabla 3.2) con las obtenidas en la segunda (Tabla 3.3), observamos una mayor dispersión de los valores obtenidos para la  $T_C$  en las muestras de la segunda serie. El contenido en Ni en la capa de Gd viene marcado por el espesor de la capa de Py, a mayor espesor de Py mayor concentración de Ni. En la primera serie de muestras, el espesor de Py se mantuvo fijo en 200 nm por lo que el contenido en Ni de las aleaciones en todas las tricapas de esta serie es prácticamente el mismo y por tanto, la  $T_C$  es similar en todas ellas. La variación en el espesor de Gd sólo afecta al grosor de la región de Gd puro en el interior de esta capa. En la segunda serie de tricapas por el contrario, se ha mantenido fijo el espesor de Gd y variado el espesor de la capa de Py, por lo que ha cambiado el contenido en Ni de las aleaciones y por tanto su  $T_C$ .

En todas las medidas de resistencia en función de la temperatura aparece un segundo punto de inflexión a más baja temperatura, entorno a los 40 K (Tablas 3.4 y 3.5). Este cambio de pendiente podría estar relacionado con la  $T_{Com}$  de las tricapas pero las simulaciones del momento magnético no han mostrado que exista  $T_{Com}$  en este rango de temperatura y, además, debería aparecer una dependencia entre estos puntos de inflexión y los espesores de las capas, si de verdad indicaran la  $T_{Com}$  de las tricapas. Los valores obtenidos para este segundo punto inflexión (lo denominaremos como  $T_2$ ) se encuentran resumidos en las siguientes dos tablas. Se puede comprobar que este fenómeno no está relacionado con las aleaciones de  $Gd_{1-x}Ni_x$  ya que prácticamente todas las tricapas presentan el mismo valor de esta temperatura.

Como la caracterización eléctrica se ha realizado en la configuración CIP y la resistividad del Py es más baja que la del Gd, las medidas de transporte se encuentran relacionadas con los procesos de conducción en la capa de Py. Por debajo de  $T_2$  aparece un fuerte aumento de la resistencia eléctrica, que debe relacionarse con algún mecanismo que aumente los procesos de dispersión en la capa de Py. Prieto y colaboradores [6] han demostrado que una pared de dominio contribuye positivamente a la resistencia eléctrica. Nuestras simulaciones en el sistema Py/Gd indican que, al reducir la temperatura, aumenta la región en la que los momentos magnéticos se encuentran girando en la capa de Py, siendo este giro el que genera la pared en el plano. Por tanto, el aumento de

resistencia por debajo de  $T_2$  lo podemos asociar a la formación de una pared en el plano en la capa de Py. Dependiendo del espesor de esta capa en relación con la longitud de canje, esta pared puede ocupar o no todo el grosor de la capa de Py.

<b>Tricapa</b>	<b><math>T_2</math></b>
<b>Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm)</b>	35 K
<b>Py(200 nm)/Gd(150 nm)/Py(200 nm)</b>	40 K
<b>Py(200 nm)/Gd(100 nm)/Py(200 nm)</b>	20 K
<b>Py(200 nm)/Gd(50 nm)/Py(200 nm)</b>	40 K

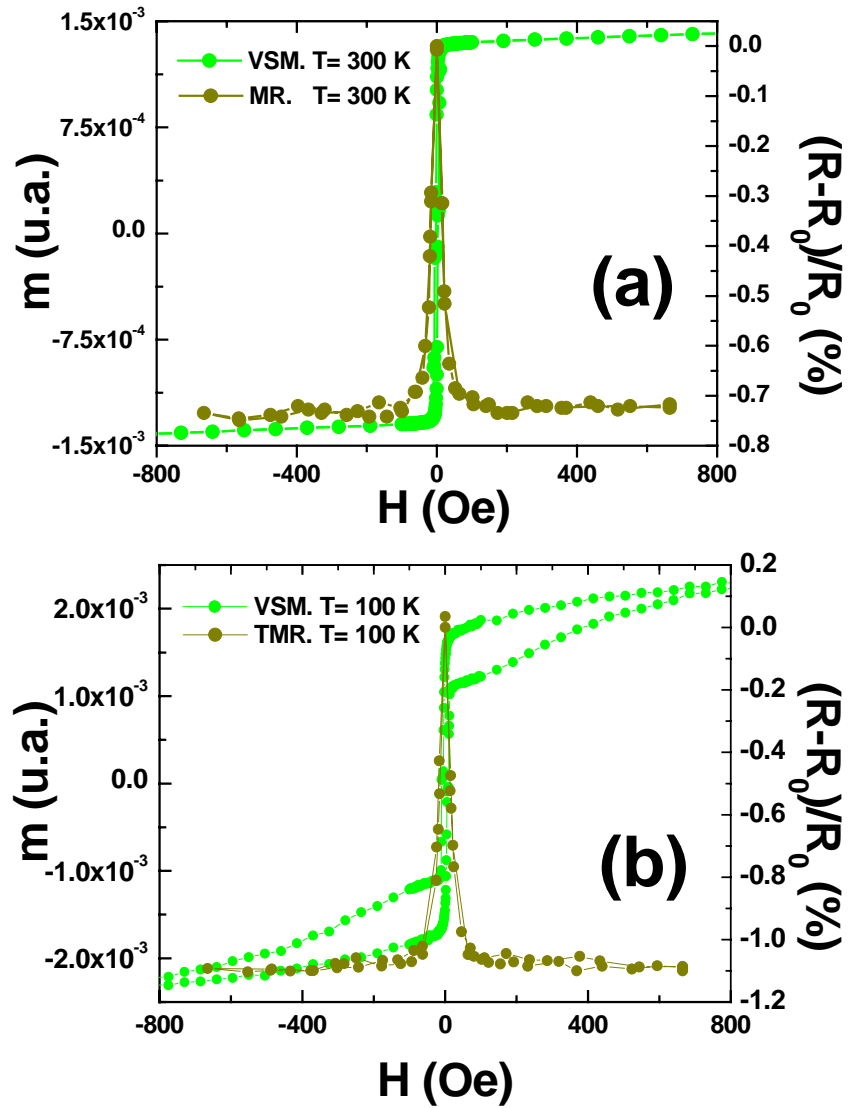
**Tabla 3.4.**  $T_2$  para las tricapas de la primera serie obtenidas a partir de la resistividad en función de la temperatura.

<b>Tricapa</b>	<b><math>T_2</math></b>
<b>Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm)</b>	40 K
<b>Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Py(50 nm)</b>	40 K
<b>Py(100 nm)/Gd(50 nm)/Py(100 nm)</b>	40 K

**Tabla 3.5.**  $T_2$  para las tricapas de la segunda serie obtenidas a partir de la resistividad en función de la temperatura.

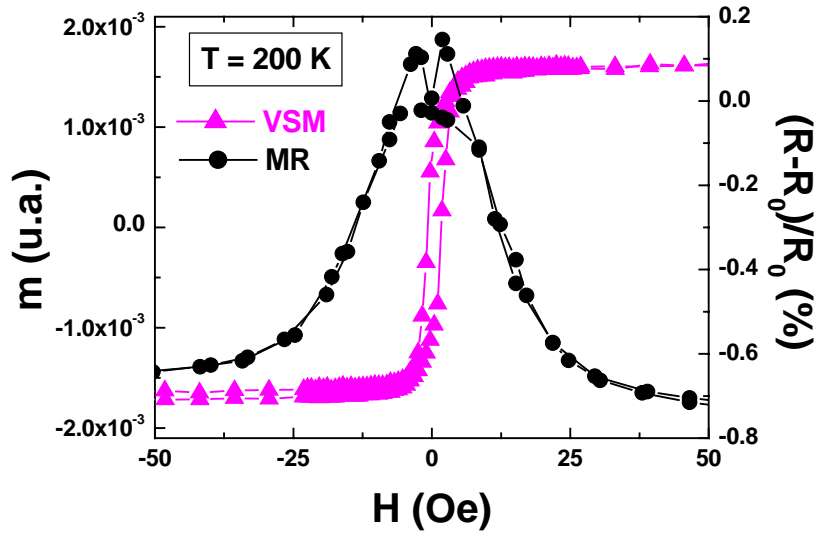
## **ii. Magnetorresistencia en función de la temperatura**

En la primera serie de tricapas, las capas de Py son más gruesas que la longitud de canje por lo que, a cualquier temperatura, hay regiones de Py que se encuentran desacopladas. Estas regiones hacen que la contribución de la AMR a la MR total sea muy elevada, enmascarando la aparición de otros fenómenos. Así, la comparación entre las medidas magnéticas y las eléctricas (Figura 3.33) muestra que no existe una relación directa entre ambas, ya que el campo de saturación del ciclo de histéresis no coincide con el de la MR ni a temperatura ambiente ni a baja temperatura, lo que dificulta la interpretación de estas medidas de MR.



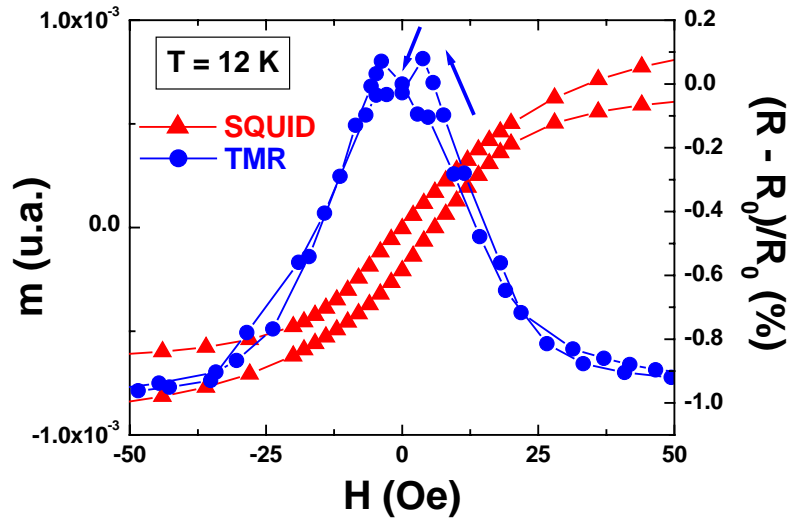
**Figura 3.33.** Comparación entre las medidas de MR en la configuración perpendicular y los ciclos de histéresis de la tricapa Py(200 nm)/Gd(200 nm)/Py(200 nm) para temperaturas de (a) 300 K y (b) 100 K.

En la segunda serie de muestras, en el caso de la tricapa con 25 nm de espesor de Py a alta temperatura aún no se pueden relacionar directamente los procesos de transporte y magnéticos (Figura 3.34).



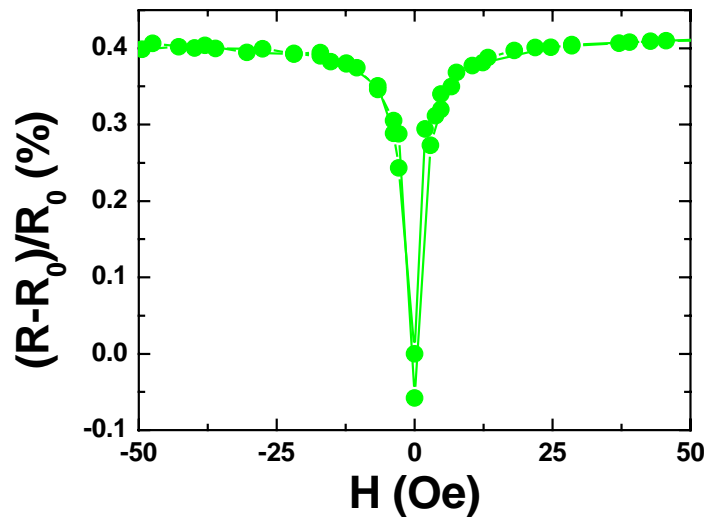
**Figura 3.34.** Comparación de la TMR y el ciclo de histéresis a 200 K de la tricapa Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm).

Sin embargo, a baja temperatura (12 K) se observa que los picos de la magnetorresistencia transversal (TMR) tienen lugar en la misma región de campo que los procesos de imanación en la capa de Py (Figura 3.35). Los ciclos de histéresis indican que a 12 K los procesos de imanación en la capa de Py tienen lugar por procesos de rotación. La comparación de la TMR con el ciclo de histéresis muestra que esta rotación es la responsable de los picos de MR ya que aparecen para los valores de campo en los que se anula la imanación (Figura 3.35). Además, las medidas se realizan a 12 K que es inferior a  $T_2$  por debajo del cual aparecía una pared en el plano en la capa de Py. Como el espesor de la capa de Py (25 nm) es menor que su longitud de canje (59 nm), esta cuasipared estará ocupando toda la capa, por lo que la contribución de la AMR a la TMR es nula ya que no hay regiones de Py orientadas en la dirección del campo aplicado. A 12 K, los picos de MR aparecen antes de que el campo magnético se haya invertido debido al acoplamiento antiferromagnético que hace que la imanación del Py se invierta antes que el campo aplicado lo haya hecho, para orientarse antiparalelamente con la imanación del Gd. Gira a la vez toda la capa de Py ya que se encuentra completamente acoplada al ser su espesor menor que su longitud de canje.



**Figura 3.35.** Comparación de la TMR y el ciclo de histéresis a 12 K de la tricapa Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm).

Estos picos de TMR no se pueden asociar a la AMR ya que la AMR se caracteriza por presentar picos en los valores del campo coercitivo, después de que el campo se haya invertido y tanto en la configuración longitudinal como en la transversal. Sin embargo, en la tricapa con un espesor de Py de 25 nm, los picos en la MR aparecen antes de que el campo se haya invertido en la configuración transversal, pero no en la longitudinal (Figura 3.36).



**Figura 3.36.** Ciclos de MR para la tricapa Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm) a 12 K en la configuración longitudinal (LMR), campo paralelo a la corriente.



En el caso de la tricapa con un espesor de Py de 50 nm los picos de TMR a 12 K aparecen a campo nulo mientras que para la de 100 nm de Py aparecen después de que el campo se haya invertido (Figura 3.37 y figura 3.38). Es decir, al aumentar el espesor de la capa de Py se produce un desplazamiento progresivo de los picos de TMR, de forma que para 100 nm sólo aparece contribución de AMR.

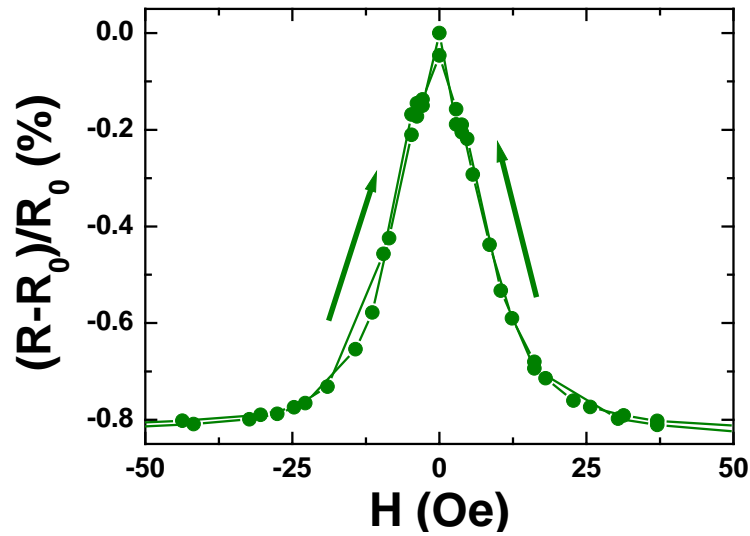


Figura 3.37. TMR de la tricapa Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Py(50 nm) a 12 K.

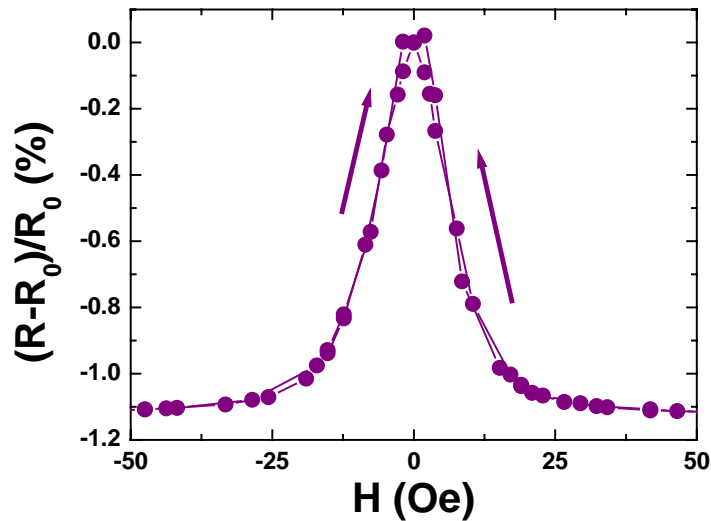


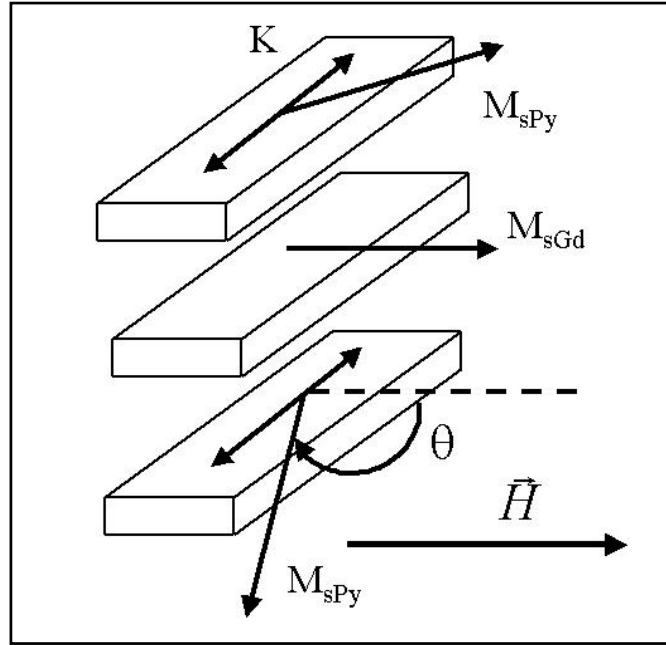
Figura 3.38. TMR a 12 K para la tricapa Py(100 nm)/Gd(50 nm)/Py(100 nm).

La simulación numérica muestra que, a muy baja temperatura y para capas de Py de espesor menor que su longitud de canje, toda la capa se encuentra afectada por la interacción de canje Py-Gd de la intercara, produciéndose la rotación de los momentos magnéticos casi exclusivamente en la capa de Py. Sin embargo, al ir elevando la temperatura, las zonas de la capa de Py más alejadas de la intercara dejan de estar acopladas y se orientan en la dirección del campo. En el caso de capas más gruesas que su longitud de canje, estas regiones desacopladas aparecen incluso a temperaturas de 10 K. Estas regiones son las responsables de la existencia de contribución de AMR en las medidas de transporte. En las tricapas estudiadas, sólo a 12 K y para un espesor de Py de 25 nm, la contribución de la AMR es prácticamente nula pudiendo relacionar de forma sencilla, las medidas de MR con los ciclos de histéresis. A temperaturas más elevadas y para espesores de Py mayores que su longitud de canje, existen dos contribuciones a la MR, la asociada al giro de los momentos magnéticos y la AMR.

### **iii. Cálculo de la constante de acoplamiento Py-Gd**

La comparación de las medidas magnéticas y eléctricas nos muestran que la rotación de los momentos magnéticos se produce de forma clara en la capa de Py por lo que el Gd estará orientado en la dirección del campo aplicado. En la figura 3.39 aparece esquematizada la configuración para las imanaciones de las diferentes capas de una tricapa Py/Gd/Py a 12 K. La capa de Gd tiene su imanación orientada en la dirección del campo aplicado debido al valor tan elevado de su momento magnético ( $7.55 \mu_B$ ) a esta temperatura. La imanación de las capas de Py estará solicitada por la dirección de su anisotropía, por la del campo magnético aplicado y por la interacción antiferromagnética Py/Gd en la intercara. En esta situación, la energía por unidad de área de una capa de Py puede expresarse como:

$$w_s = C_{Py-Gd} \cos\theta + K e_{Py} \cos^2\theta - \mu_0 M_s H e_{Py} \cos\theta$$



**Figura 3.39.** Representación esquemática de los parámetros utilizados para el cálculo de la constante de acoplamiento Py-Gd.

La condición de mínima energía se obtiene anulando su derivada respecto del ángulo  $\theta$ , esto es:

$$0 = dw_s/d\theta = -C_{Py-Gd}\text{sen}\theta - 2K e_{Py}\text{cos}\theta\text{sen}\theta + \mu_0 M_s H e_{Py}\text{sen}\theta$$

Es decir, en el estado de mínima energía se cumple que:

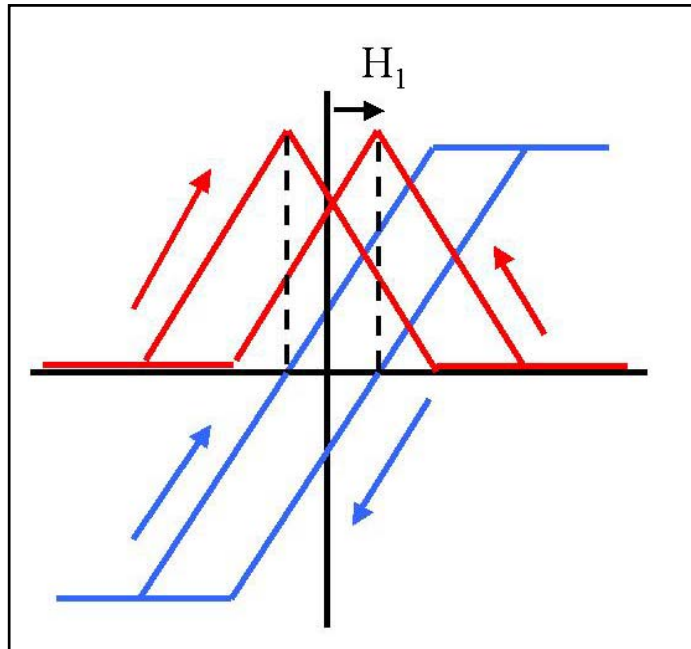
$$\text{cos}\theta = (\mu_0 M_s H e_{Py} - C_{Py-Gd})/2K e_{Py}$$

A 12 K la TMR y el comportamiento magnético de la capa de Py están relacionados de tal forma que los picos de TMR aparecen antes de que el campo magnético aplicado se haya invertido ya que el ciclo de histéresis de la capa de Py se recorre en sentido inverso debido al acoplamiento antiferromagnético como muestra el esquema de la figura 3.40. Como los picos de TMR aparecen cuando la imanación de la capa de Py es nula, es decir  $\text{cos}\theta = 0$ . Así se obtiene:

$$C_{Py-Gd} = \mu_0 M_s H_1 e_{Py}$$

siendo  $H_1$  el campo para el que aparece el pico de TMR. Introduciendo los valores  $H_1 = 304$  A/m,  $\mu_0 M_s = 1$  T,  $e_{Py} = 25$  nm, en la expresión de  $C_{Py-Gd}$  obtenemos la constante de acoplamiento Py-Gd en tricapas de Py/Gd/Py:

$$C_{Py-Gd} = 7.5 \times 10^{-6} \text{ J/m}^2$$



**Figura 3.40.** Representación esquemática de la relación entre los procesos de imanación en la capa de Py y la TMR.

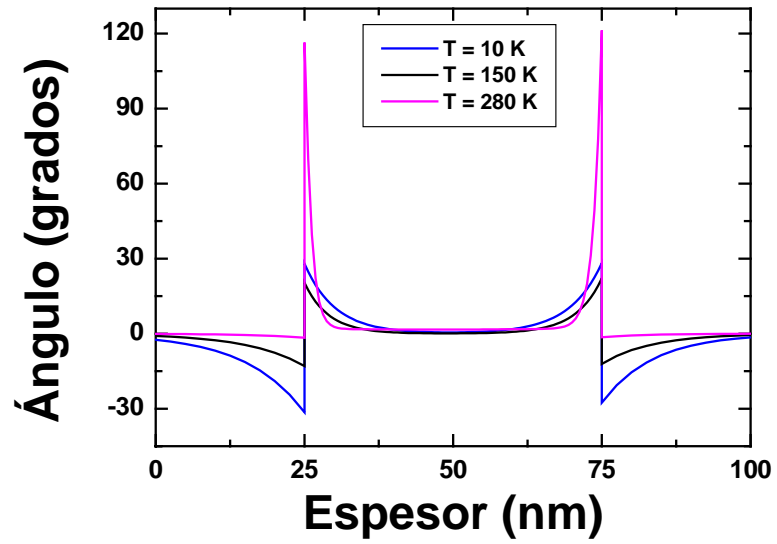
El valor obtenido para la constante de acoplamiento Py-Gd es inferior al tabulado para el Fe-Gd o Gd-Gd [6, 19-20]. Este resultado se puede explicar por la existencia de las aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$  que debilitan la interacción de canje en nuestras tricapas. El que el canje en la intercara sea tan débil explica el que la tricapa con un espesor de Py de 50 nm, a pesar de que es menor que su longitud de canje, no presente picos de TMR antes de que el campo se haya invertido.

En nuestros ciclos de histéresis la parte central no se recorre en sentido inverso debido a que se mide, tanto en el VSM como en el SQUID, el momento magnético total

de las muestras. Esto hace que no se pueda separar completamente la contribución debida al Py de la asociada al Gd, aunque la parte central de los ciclos está asociada principalmente al comportamiento de la capa de Py.

En las simulaciones, se consideran las intercaras abruptas y no tienen en cuenta el fenómeno de la difusión de Ni, siendo necesario aumentar el canje con respecto a los valores tabulados para el Fe-Gd para que aparecieran las temperaturas de compensación. Sin embargo, hemos visto que el acoplamiento Py-Gd se encuentra debilitado por la aparición de aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$  en las intercaras lo que dificulta más aún la aparición de  $T_{Com}$  en estas tricapas.

Para comprobar cual es el efecto del bajo canje Py-Gd en la configuración magnética de las tricapas, se ha estudiado el ángulo formado entre los momentos magnéticos de las tricapas y la dirección del campo magnético aplicado, introduciendo en el cálculo teórico el valor de la constante de canje obtenido de forma experimental. En la figura 3.41 se muestra la configuración magnética de una tricapa con un espesor de Gd de 50 nm y de 100 nm para las capas de Py a distintas temperaturas. En esta figura aparece rotación de la imanación ya que, aunque pequeño, sigue existiendo acoplamiento antiferromagnético en la intercara. Sin embargo, lo que ha disminuido drásticamente ha sido el ángulo de rotación de la imanación ya que ahora el ángulo de rotación en la intercara a baja temperatura es de aproximadamente  $60^\circ$ , mientras que cuando se toma la constante de canje Fe-Gd se alcanzaba un giro de  $180^\circ$  en la intercara (Figura 3.16). Este bajo valor en el giro de la imanación en la intercara produce una mala alineación antiparalela lo que explica de nuevo la falta de  $T_{Com}$  en estas tricapas.



**Figura 3.41.** Simulación del ángulo formado entre la imanación y el campo magnético aplicado para la tricapa Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Py(25 nm) a distintas temperaturas. Se ha tomado como campo aplicado 1 kOe.

### 3.6. Bibliografía

- [1] R.E. Camley, D.R. Tilley, Phys. Rev. B **37**, 3413 (1988).
- [2] R.E. Camley, Phys. Rev. B **39**, 12316 (1989).
- [3] J.P. Andres, L. Chico, J. Colino, J.M. Riveiro, Phys. Rev. B **66**, 094424 (2002).
- [4] R.E. Camley, R.L. Stamps, J. Phys.: Condens. Matter. **5**, 3727 (1993).
- [5] J.L. Prieto, B.B. van Aken, G. Burnell, C. Bell, J.E. Evetts, N. Mathur, M.G. Blamire, Phys. Rev. B **69**, 054436 (2004).
- [6] J. L. Prieto, M. G. Blamire, J. E. Evetts, Phys. Rev. Lett. **90**, 027201 (2003).
- [7] J. P. Andrés González. *Caracterización estructural y magnética del sistema Gd-Co*. Tesis doctoral, Universidad Complutense de Madrid (1999).
- [8] J. Colino, J.P. Andrés, J.M. Riveiro, J.L. Martínez, C. Prieto, J.L. Sacedón, Phys. Rev. B **60**, 6678 (1999).
- [9] M. Sajieddine, Ph. Bauer, K. Cherifi, C. Dufour, G. Marchal, R. E. Camley, Phys. Rev. B **49**, 8815 (1999).
- [10] D. Haskel, G. Srajer, J. C. Lang, J. Pollmann, C. S. Nelson, J. S. Jiang, S. D. Bader, Phys. Rev. Lett. **87**, 207201 (2001).
- [11] L. Néel, R. Acad. Sci. **255**, 1545 (1966).
- [12] L. Néel, R. Acad. Sci. **255**, 1676 (1966).
- [13] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*. Ed. John Wiley & Sons. New York, (1964).
- [14] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B. P. Flannery. *Numerical Recipes in C*, Editorial Cambridge University Press, New York (2002).
- [15] T. R. McGuire, R. J. Gambino, IEEE Trans. Magn. **14**, 838 (1978).
- [16] R. Mallik, P. L. Paulose, E. V. Sampathkumaran, S. Patil, V. Nagarajan, Phys. Rev. B **55**, 8369 (1997).
- [17] J. Durand, S. J. Poon, IEEE Trans. Magn. **13**, 1556 (1977).
- [18] X. Y. Liu, J. A. Barclay, R. B. Gopal, M. Földeàki, R. Chahine, T. K. Bose, P. J. Schurer, J. L. LaCombe, J. Appl. Phys. **79**, 1630 (1996).
- [19] F. Canet, C. Bellouard, S. Mangin, C. Chatelain, C. Senet, R. Siebrecht, V. Leiner, M. Piecuch, Eur. Phys. J. B **34**, 381 (2003).
- [20] P. Hansen, C. Clausen, G. Much, M. Rosenkranz, K. Witter, J. Appl. Phys. **66**, 756 (1989).

# Capítulo 4

---

## Caracterización estructural y magnética de bicapas de Py/Gd

---





## 4. Caracterización magnética del sistema optimizado Py/Gd.

### 4.1. Introducción

Los resultados del estudio de tricapas Py/Gd/Py del capítulo anterior muestran que esta estructura no se encuentra optimizada debido tanto a la mayor rugosidad de la intercara superior Gd/Py con respecto a la de la intercara inferior, como por la elevada concentración de Ni en la capa de Gd. Este último es el problema fundamental del sistema Py/Gd, ya que la aparición de aleaciones del tipo  $Gd_{1-x}Ni_x$  en las intercara, da lugar a un debilitamiento del acoplamiento Py-Gd.

Del estudio anterior concluimos que la difusión de Ni se produce principalmente desde la capa superior de Py hacia la capa de Gd. Para reducir y evitar este fenómeno se propone la eliminación de esta capa superior de Py preparando y estudiando muestras donde las bicapas Py/Gd sean la unidad elemental. En el caso de las estructuras multicapa, decidimos separar las bicapas de Py/Gd mediante capas espaciadoras no magnéticas, que en nuestro caso serán capas de 20 nm de Mo. Se siguen creciendo las capas *buffer* y *capping* de Mo para evitar la difusión de oxígeno desde el sustrato de vidrio hacia la multicapa mediante el *buffer*, y evitar la oxidación de la última capa que ahora siempre será de Gd, mediante el *capping*. El espesor de las capas *buffer* y *capping* es de 10 y 60 nm, respectivamente. De nuevo, para evitar el desalineamiento de las direcciones de anisotropía de las capas de Py en estas películas, se aplicó un campo de 40 Oe durante su crecimiento. La estructura de las muestras estudiadas en este capítulo es de la forma:

$$\text{Mo}(\textit{buffer})/[\text{Py}(\text{t nm})/\text{Gd}(\text{50 nm})/\text{Mo}(\text{20 nm})]_x/\text{Mo}(\textit{capping})$$

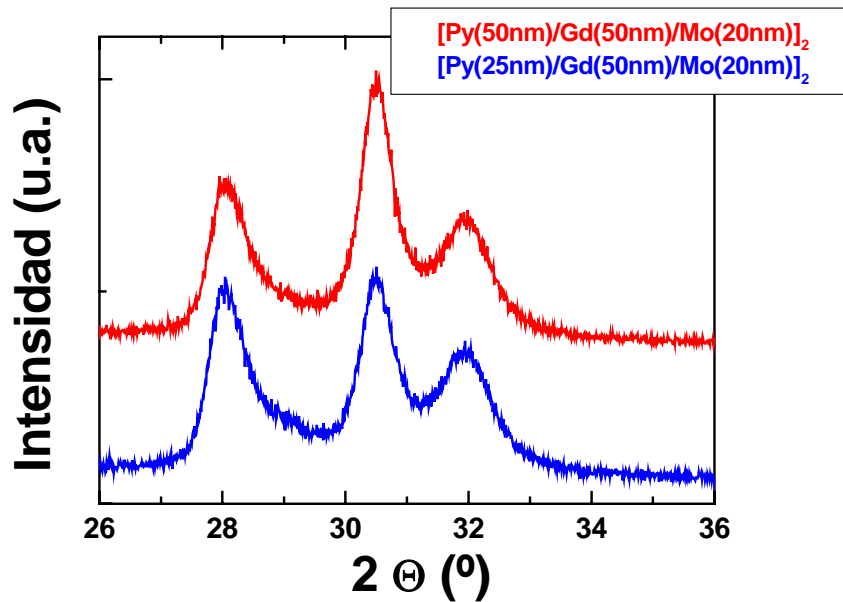
Todas las muestras estudiadas en este capítulo tienen un espesor fijo de 50 nm de Gd mientras que el de Py varía entre 25 y 200 nm. Estos espesores se han elegido para poder realizar una comparación directa entre los resultados de este estudio y los resultados de la segunda serie de tricapas Py/Gd/Py presentados en el capítulo anterior. El subíndice  $x$  nos indica el número de bicapas Py/Gd que forman la estructura. Las muestras con espesores de Py de 100 y 200 nm son simples bicapas ( $x = 1$ ). En el caso de

las muestras con espesores de 25 y 50 nm se prepararon con  $x = 2$ , es decir, son bicapas dobles para conseguir mayor señal en las medidas magnéticas.

En la primera parte del capítulo comprobamos la mejora de las propiedades magnéticas de estas nuevas estructuras basadas en bicapas de Py/Gd frente a las de las tricapas de Py/Gd/Py debido a la eliminación de la intercara superior Gd/Py. En la segunda parte, se realiza un estudio completo de las propiedades magnéticas del sistema optimizado Py/Gd. Esta caracterización no sólo muestra que este sistema presenta acoplamiento de canje antiferromagnético Py-Gd en la intercara, sino que también existe una interacción indirecta entre el Py y el Gd a través del acoplo de las paredes de Py en la capa de Gd. Esta interacción predomina frente al canje directo Py-Gd en un rango de temperatura comprendido entre 250 K y aproximadamente 140 K, dependiendo este límite inferior del espesor de la capa de Py de forma que se desplaza hacia valores inferiores de temperatura al aumentar el espesor de Py. Este resultado no ha aparecido en trabajos previos de multicapas de Fe/Gd o Co/Gd debido a que nuestras películas tienen capas suficientemente espesas como para que la formación de paredes sea energéticamente favorable.

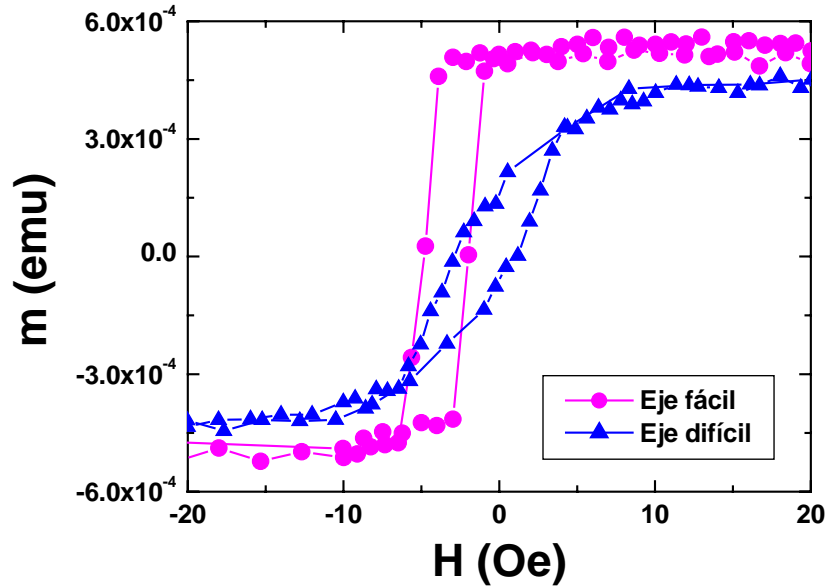
## 4.2. Optimización del sistema Py/Gd.

Los difractogramas de rayos-X de alto ángulo de estas estructuras basadas en bicapas de Py/Gd, muestran que los picos de difracción asociados al Gd presentan la misma FWHM y la misma intensidad relativa en todos los casos. Esto se puede explicar teniendo en cuenta que los picos de difracción asociados al Gd ya no dependen del espesor de Py al haber desaparecido la difusión de Ni.



**Figura 4.1.** Difractogramas de rayos-X de alto ángulo para las dobles bicapas  $[\text{Py}(50\text{ nm})/\text{Gd}(50\text{ nm})/\text{Mo}(20\text{ nm})]_2$  (rojo) y  $[\text{Py}(25\text{ nm})/\text{Gd}(50\text{ nm})/\text{Mo}(20\text{ nm})]_2$  (azul).

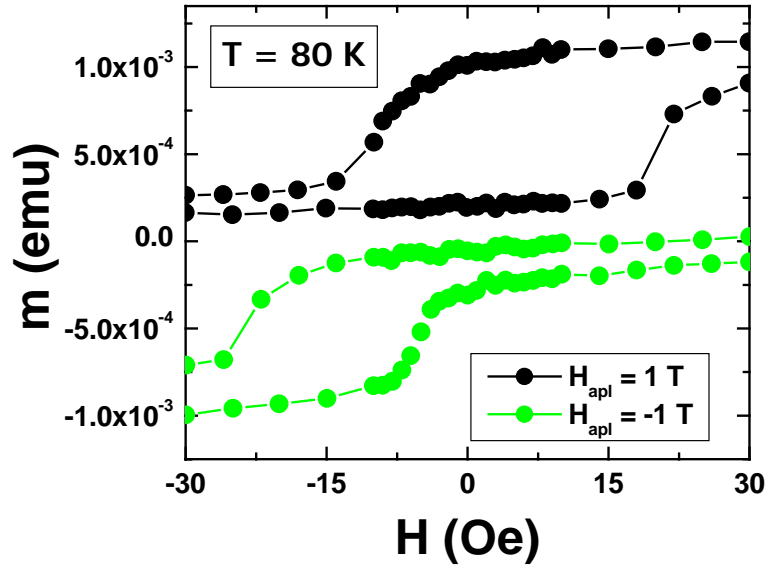
Además, en los ciclos de VSM a temperatura ambiente de estas muestras no aparecen saltos intermedios en la imanación como ocurría en las tricapas, siendo este resultado consecuencia de la no difusión de Ni (Figura 4.2). Al no haber interdifusión, todas las capas de Py tienen el mismo contenido de Ni y por tanto el mismo campo coercitivo. Se comprueba también que la aplicación de campo durante el crecimiento de las muestras permite la inducción de un claro eje de fácil imanación en las capas de Py (Figura 4.2).



**Figura 4.2.** Ciclos de VSM a temperatura ambiente medidos aplicando el campo según el eje fácil (●) y el eje difícil (▲) de la doble bicapa [Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>. El desplazamiento de los ciclos en el eje horizontal se debe a la posición de la sonda Hall en el VSM.

Por otro lado, en el estudio de las características magnéticas en función de la temperatura, se comprueba como la optimización de las estructuras basadas en Py/Gd mediante la eliminación de la capa superior de Py y la inclusión de capas espaciadoras de Mo, repercute en un mejor acoplamiento magnético.

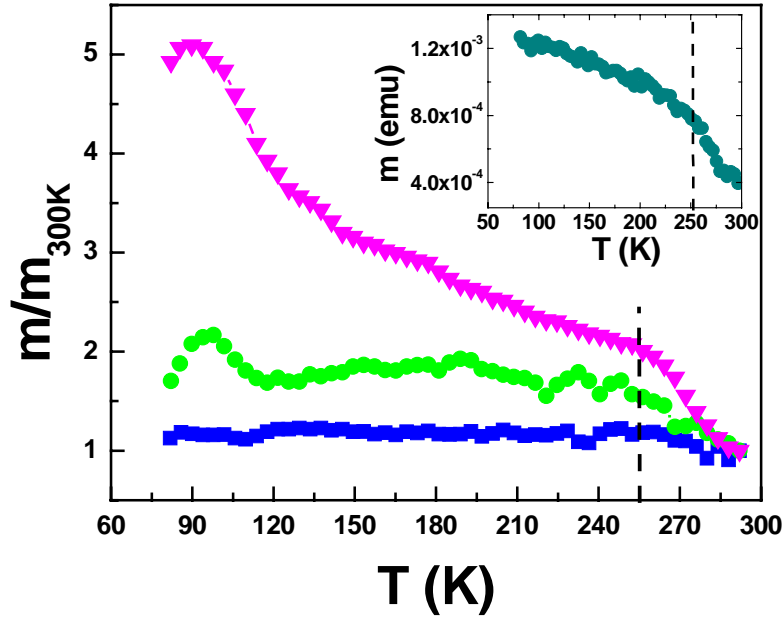
Se empezó midiendo en estas muestras el mismo tipo de ciclos menores que en las muestras reseñadas en el capítulo anterior para comprobar la existencia de acoplamiento antiferromagnético en la intercara Py/Gd. Así, primero saturamos la muestra con un campo de 10 kOe (1 T) en la dirección positiva del campo magnético, para luego realizar un ciclo en el que no se sature la muestra (ciclo menor), tomando valores del campo comprendidos entre  $\pm 30$  Oe. A continuación, se aplica un campo saturante de 10 kOe en la dirección opuesta y se realiza de nuevo otro ciclo menor.



**Figura 4.3.** Ciclos menores a 80 K para la bicapa Py(100 nm)/Gd(50 nm).

Si comparamos la figura 4.3 con la 3.29 del capítulo anterior, en la que aparecen los ciclos menores para una tricapa (Py/Gd/Py) con el mismo espesor de Py y Gd que esta bicapa (Py(100 nm)/Gd(50 nm)), vemos que en la bicapa se produce un desplazamiento mayor de los ciclos en el eje horizontal debido a un mayor acoplamiento de canje en la intercara. El desplazamiento en el eje vertical de los ciclos menores de la bicapa se debe a la mayor imanación de la capa de Gd de esta muestra ya que no aparecen aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$  en las intercaras.

El momento magnético se midió, como en casos anteriores, aplicando un campo de 1.5 kOe según el eje fácil de las muestras. En las bicapas y dobles bicapas, aparece un primer punto de inflexión a 250 K que se relaciona con la  $T_C$  de la capa de Gd (Figura 4.4) ya que una capa de Gd de 50 nm de espesor muestra el mismo comportamiento (Figura 4.4: Recuadro). El valor de esta  $T_C$  es ligeramente inferior al obtenido en el Gd masivo (290 K) ya que en las películas delgadas se rompe el orden de largo alcance. En cualquier caso, esta  $T_C$  es mayor que la obtenida en las tricapas donde la presencia de aleaciones de  $Gd_{1-x}Ni_x$  reducía la  $T_C$  de las intercaras.



**Figura 4.4.** Momento magnético en función de la temperatura obtenido para un campo aplicado de 1.5 kOe y normalizado respecto de su valor a 300 K para ( $\blacktriangledown$ ) [Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>, ( $\bullet$ ) Py(100 nm)/Gd(50 nm) y ( $\blacksquare$ ) Py(200 nm)/Gd(50 nm). Recuadro: Momento magnético en función de la temperatura para una capa de Gd de 50 nm.

Así pues, tanto las medidas de ciclos menores como las del momento magnético en función de la temperatura, nos permiten concluir que ha mejorado el acoplamiento antiferromagnético Py-Gd al reducirse la interdifusión de Ni en el sistema Py/Gd. Una vez que tenemos la estructura Py/Gd optimizada, podemos pasar a estudiar los procesos de imanación en función de la temperatura que tienen lugar en este sistema.

Para conocer los procesos de imanación en función de la temperatura, hemos estudiado la evolución de los ciclos de histéresis de las bicapas y dobles bicapas. Debido a su diferente comportamiento, estudiaremos de forma separada las bicapas, con espesores de Py de 100 y 200 nm, de las dobles bicapas, en las que los espesores de Py son de 25 y 50 nm. El espesor de la capa de Gd se ha mantenido fijo en 50 nm.

Empezaremos describiendo los procesos de imanación en las dobles bicapas con espesores de Py menor o igual a 50 nm, es decir, espesores menor o igual a longitud de canje del Py. En el rango de temperatura comprendido entre 250 K y 140 K, los ciclos de histéresis de estas muestras presentan inversión de la imanación de la capa de Py mediante desplazamiento de paredes en la región central de los ciclos mientras que la de la capa de Gd se produce a campos más elevados (Figura 4.5). La temperatura límite para este comportamiento depende del espesor de la capa de Py, desplazándose ligeramente hacia valores inferiores al aumentar éste. Tomaremos de aquí en adelante el valor de 140 K como temperatura de referencia para referirnos a este punto de cambio en el comportamiento magnético de las dobles bicapas.

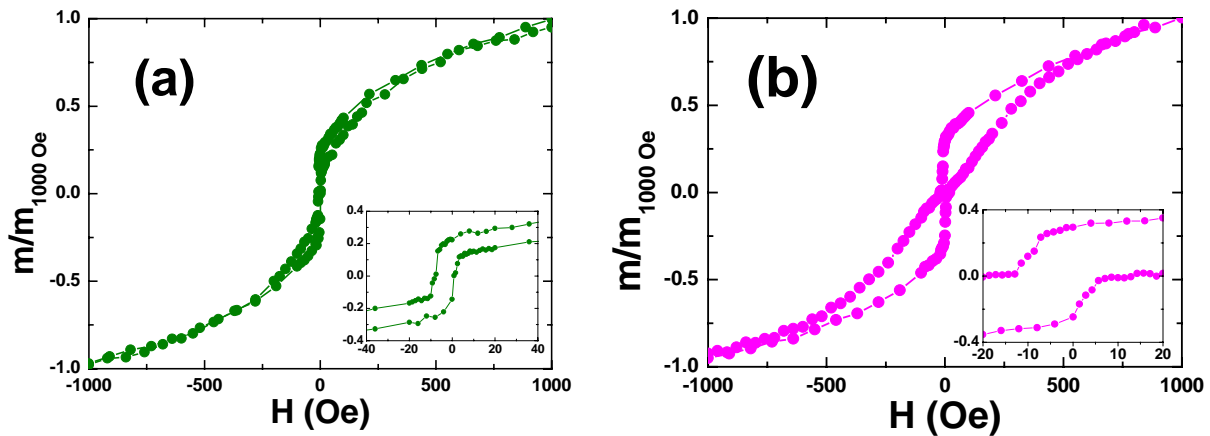


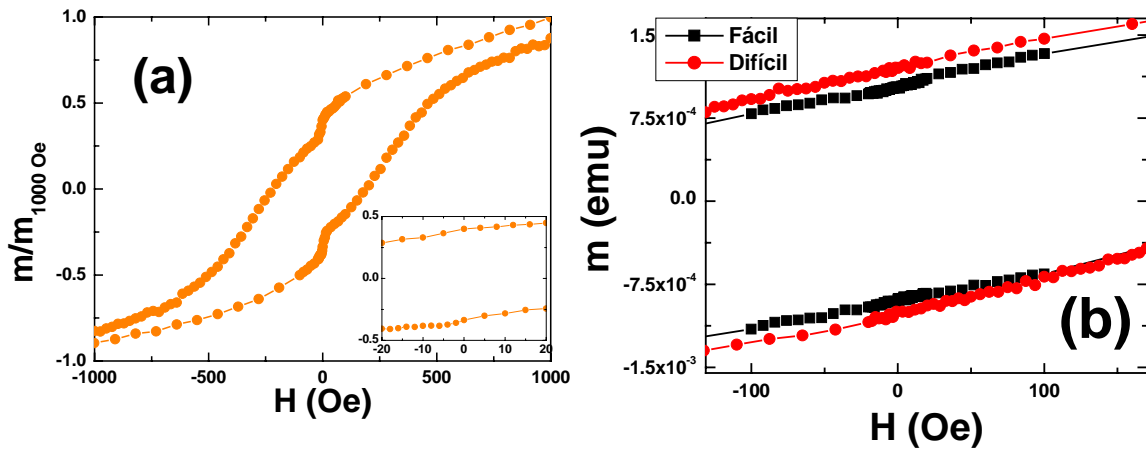
Figura 4.5. Ciclos de histéresis a distintas temperaturas para la doble bicapa [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>, (a)  $T = 240 \text{ K}$ , (b)  $T = 190 \text{ K}$ .

Sin embargo, en tricapas con espesores de Py de 25 y 50 nm este fenómeno aparecía para temperaturas inferiores a 150 K, lo que nos indica el mejor acoplamiento magnético Py-Gd, en las bicapas observamos los mismos fenómenos que obteníamos en las tricapas, pero a temperaturas más elevadas.

A temperaturas inferiores a 140 K se observa como, aunque los ciclos de las dobles bicapas se miden aplicando el campo según el eje fácil, los procesos de imanación van cambiando de desplazamiento de paredes hacia procesos de rotación (Figura 4.6 (a) y (b)). Esto da lugar a que los ejes de fácil y difícil imanación, sean indistinguibles por debajo de 140 K ya que, en ambos casos, los procesos de imanación tienen lugar por el

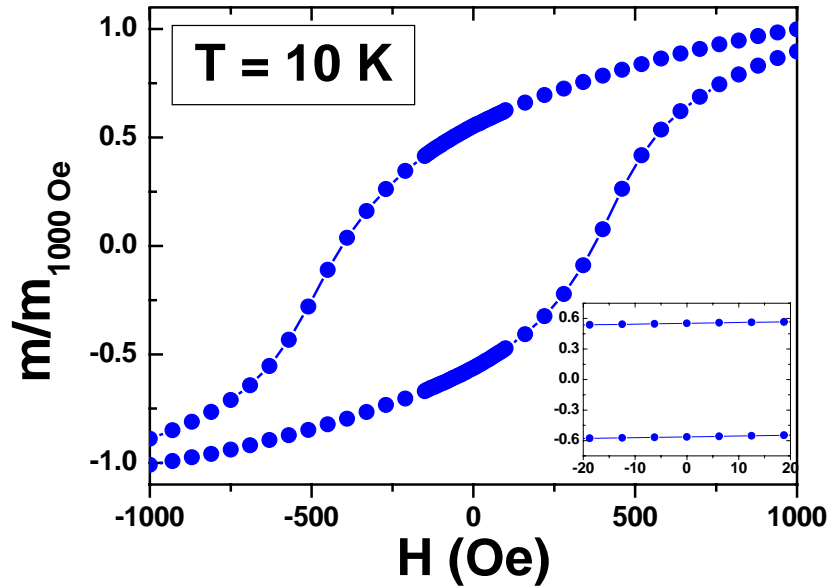


mismo mecanismo, rotación de la imanación. Este fenómeno es un indicio claro del acoplo antiferromagnético Py-Gd, ya que (como mostraban las simulaciones), al disminuir la temperatura aumenta la región en la capa de Py en la que existe rotación de los momentos magnéticos haciendo que los procesos de imanación tengan lugar por rotaciones. Además de este fenómeno, también se observa como al disminuir la temperatura se reduce la amplitud de los saltos de la imanación asociados a la inversión del Py.



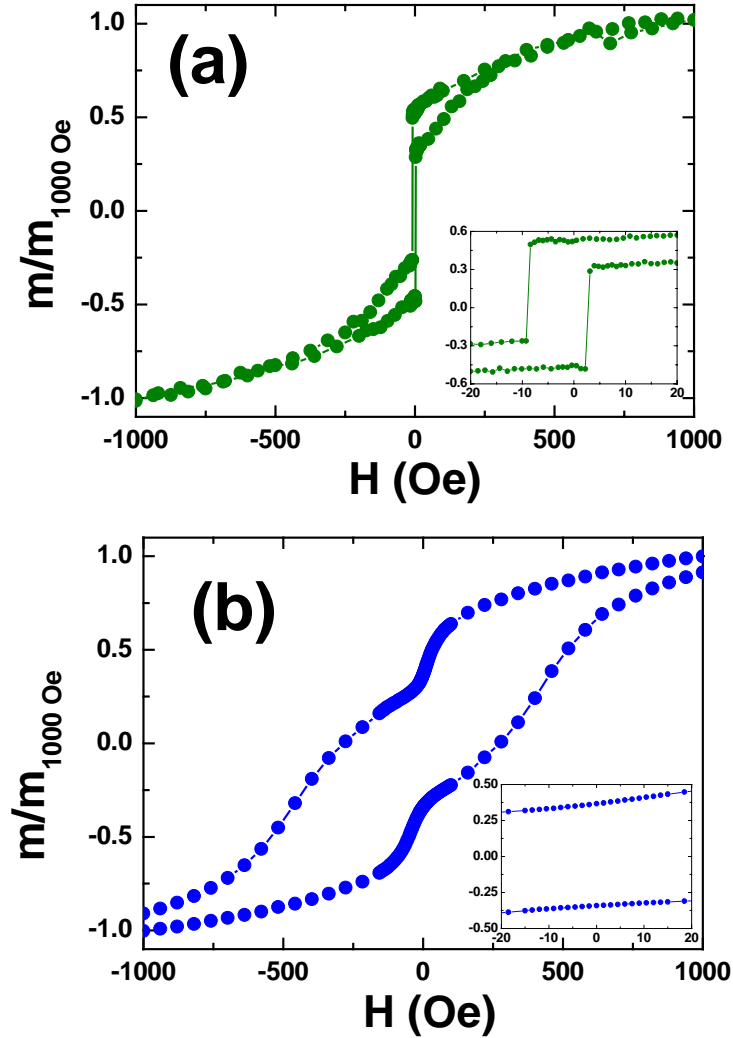
**Figura 4.6.** (a) Ciclo de histéresis a 110 K para la doble bicapa [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>. (b) Zona central de los ciclos de histéresis según el eje fácil y el difícil a 80 K para la doble bicapa [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>.

Por último, a más baja temperatura (10 K), el ciclo de histéresis (medido por SQUID) se puede relacionar únicamente con los procesos de imanación en la capa de Gd (Figura 4.7). Esto puede explicarse ya que, al reducir la temperatura, los saltos de la imanación asociados a la inversión de la capa de Py se han hecho tan pequeños en comparación con la señal magnética asociada al Gd, que finalmente quedan enmascarados por los procesos de imanación del Gd, que es la capa la que se orienta en la dirección del campo debido a su mayor momento magnético a esta temperatura. Este fenómeno no se pudo observar en las tricapas ya que las aleaciones de Gd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub> reducían la imanación de la capa de Gd impidiendo el enmascaramiento de la imanación del Py.



**Figura 4.7.** Ciclo de histéresis a 10 K de la doble bicapa [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>. Este ciclo ha sido obtenido mediante magnetometría SQUID.

En el caso de las muestras con espesores de Py de 100 y 200 nm, se puede diferenciar la inversión de la imanación del Py y de la del Gd hasta temperaturas tan bajas como 10 K (Figura 4.8 (b)). En estas muestras, el espesor de las capas de Py es mucho mayor que su longitud de canje (el espesor de Gd es mayor que su longitud de canje en todas ellas), lo que permite que incluso a 10 K aparezcan regiones de Py y Gd desacopladas dando lugar a que los procesos de imanación de cada capa se distingan por separado en todo el rango de temperatura estudiado. A pesar de que la imanación de Gd no consiga enmascarar los procesos de imanación de la capa de Py (como sucede en las muestras con menor espesor de Py), sigue existiendo acoplamiento antiferromagnético en la intercara. Esto se prueba por el hecho de que los procesos de imanación de la capa de Py en el eje fácil, pasen de ser por desplazamiento de paredes a ser procesos de rotación cuando disminuye la temperatura. Este cambio en los procesos de imanación tiene lugar a más baja temperatura que en el caso de las muestras con espesores de Py de 25 y 50 nm.



**Figura 4.8.** Ciclos de histéresis de la bicapa Py(100 nm)/Gd(50 nm) para (a)  $T = 220$  K y (b)  $T = 10$  K.

Podemos concluir que los fenómenos relacionados con el acoplamiento de canje en la intercara Py/Gd aparecen en las bicapas a temperaturas superiores que en las tricapas. Además aparecen nuevos efectos, como el enmascaramiento de los procesos de imanación asociados a la capa de Py, que en el caso de las tricapas era imposible apreciar debido a la interdifusión de Ni. Estos fenómenos son más evidentes en las muestras con espesores de Py del orden o menor que su longitud de canje ya que, a baja temperatura, se consigue que toda esta capa se encuentre acoplada por canje a la capa de Gd.

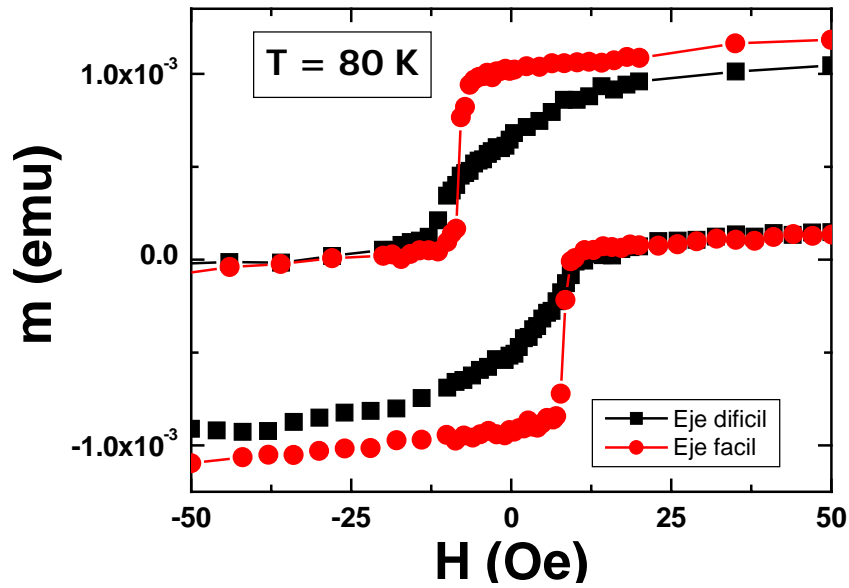
### 4.3. Procesos de acoplamiento a través de paredes en sistemas basados en bicapas de Py/Gd.

Como hemos visto en el apartado anterior, las propiedades magnéticas se encuentran optimizadas en los sistemas basados en bicapas de Py/Gd. Sin embargo, los resultados parecen indicar que el acoplamiento antiferromagnético de la intercara no es efectivo hasta temperaturas inferiores a 140 K ya que los procesos de rotación en el eje fácil típicos del acoplamiento Py-Gd sólo aparecen por debajo de esta temperatura. Para conocer y comparar el tipo de acoplamiento existente en el rango de temperatura comprendido entre 250 K y 140 K, se crecieron muestras en las que mediante la inclusión de una capa de Mo de 20 nm de espesor, se rompe el canje directo entre la capa de Py y la de Gd. Es decir, son de la forma:



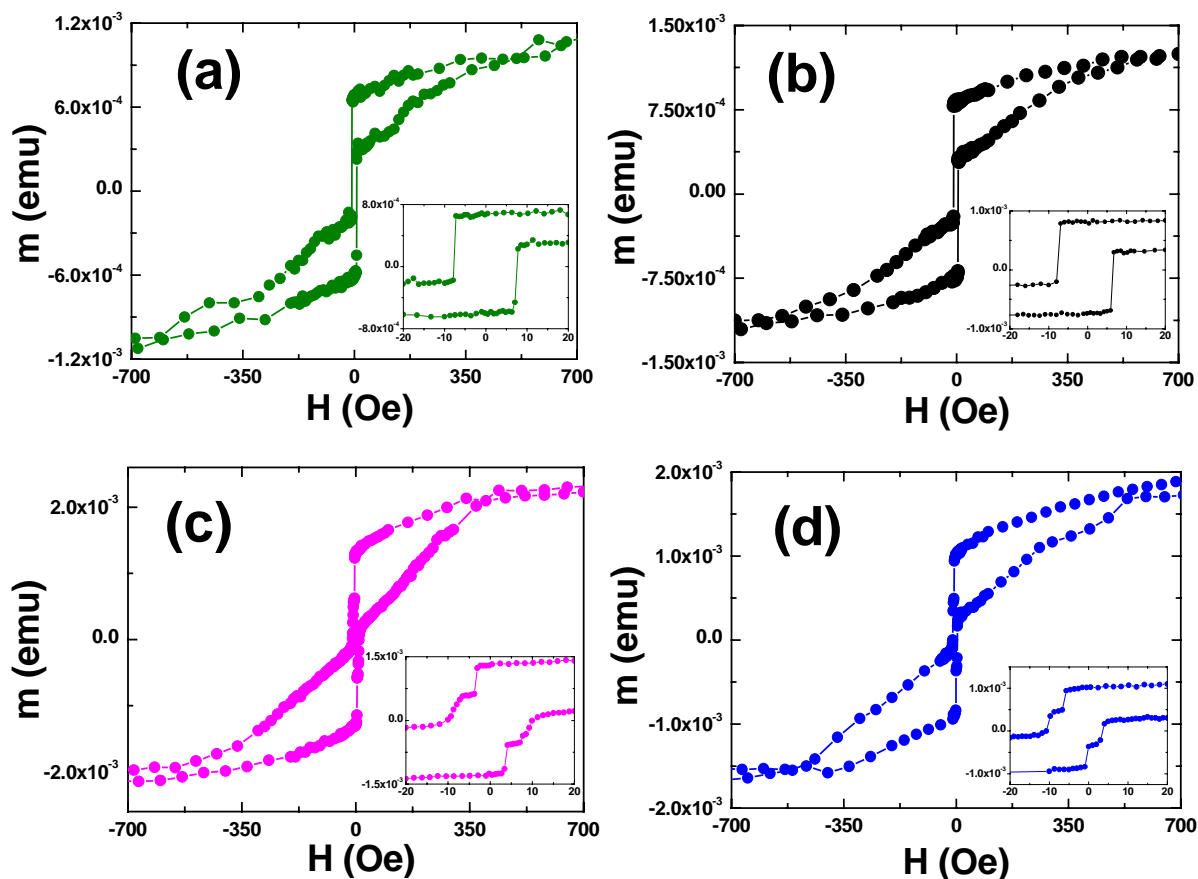
El crecimiento se realizó análogamente al de muestras anteriores, aplicando también un campo de 40 Oe en el plano de la muestra para la inducción del mismo eje de anisotropía en las capas de Py y manteniendo las capas *buffer* y *capping* de Mo, para evitar la oxidación de la estructura. La comparación de los resultados obtenidos en este tipo de muestras y las que presentan canje directo entre el Py y el Gd nos permitirá conocer la existencia de otro tipo de acoplamiento diferente al de canje directo entre el Py y el Gd.

En primer lugar, estudiamos los ciclos de histéresis de estas muestras desacopladas a distintas temperaturas. En ellos observamos que, al reducir la temperatura, no se produce ningún cambio en los procesos de imanación de los ciclos medidos en el eje fácil, de tal forma que los ejes fácil y difícil son distinguibles entre sí a cualquier temperatura (Figura 4.9). De este modo, se confirma la hipótesis de que la aparición de procesos de rotación en el eje fácil de las muestras acopladas está relacionada directamente con el acoplamiento antiferromagnético Py-Gd.



**Figura 4.9.** Ciclos de histéresis a 80 K para la bicapa desacoplada Py(100 nm)/Mo(20 nm)/Gd(50 nm) aplicando el campo según el eje fácil y el difícil de la muestra.

Si comparamos los ciclos de las muestras acopladas y desacopladas a una temperatura intermedia, 175 K, (dentro del rango comprendido entre 250 K y 140 K) se observa que son muy similares entre sí ya que, en ambos tipos de muestras, se distingue claramente el comportamiento magnético asociado a la capa de Py en la región de bajo campo y el de la capa de Gd en la región de alto campo (Figura 4.10). Es más, en este rango de temperatura, los procesos de imanación en el eje fácil en las muestras, tanto acopladas como desacopladas, tienen lugar por desplazamiento de paredes. La aparición de procesos de rotación en el eje fácil de las muestras acopladas para temperaturas inferiores a 140 K, nos indica que los procesos de imanación a partir de esta temperatura, vienen determinados por el acoplo antiferromagnético. Por tanto, se comprueba que el acoplamiento magnético entre el Py y el Gd en las bicapas y dobles bicapas estudiadas, sólo comienza a ser apreciable cuando aparecen procesos de rotación en el eje fácil de las muestras.



**Figura 4.10.** Ciclos de histéresis a 175 K. (a) Bicapa sin canje directo Py(100nm)/Mo(20 nm)/Gd(50 nm) y (b) bicapa con el mismo espesor para las capas de Py y Gd que la de la gráfica anterior pero con canje directo Py-Gd es decir, Py(100nm)/Gd(50 nm). (c) Doble bicapa sin canje directo Py-Gd [Py(50nm)/Mo(20 nm)/Gd(50 nm)]<sub>2</sub> y (d) doble bicapa con los mismos espesores que la muestra de la gráfica anterior pero con canje directo Py-Gd es decir, [Py(50nm)/Gd(50 nm) / Mo(20 nm)]<sub>2</sub>.

Como en los ciclos podemos distinguir claramente la región asociada a los procesos de imanación de la capa de Py (desde temperatura ambiente hasta 140 K), se puede definir un campo, que denominaremos campo de “switching” del Py,  $H_{SW-Py}$ . Este campo es aquel para el que se invierte la imanación del Py y se obtiene directamente de los ciclos de histéresis de las bicapas y dobles bicapas de Py/Gd.  $H_{SW-Py}$  es la semidistancia entre los valores del campo para los que se producen los saltos de la imanación que aparecen en la región central de los ciclos (Figura 4.11). Por tanto,  $H_{SW-Py}$

es simplemente el campo coercitivo de las capas de Py cuando están formando parte de las estructuras Py/Gd.

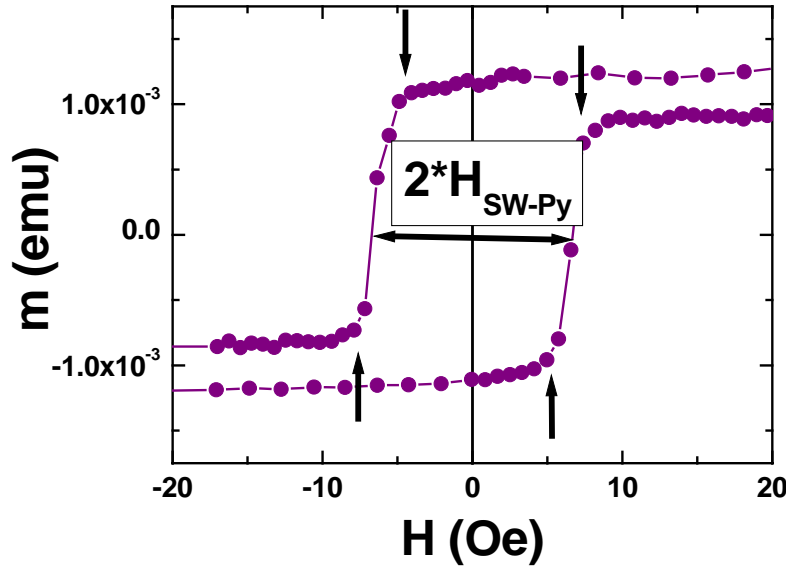
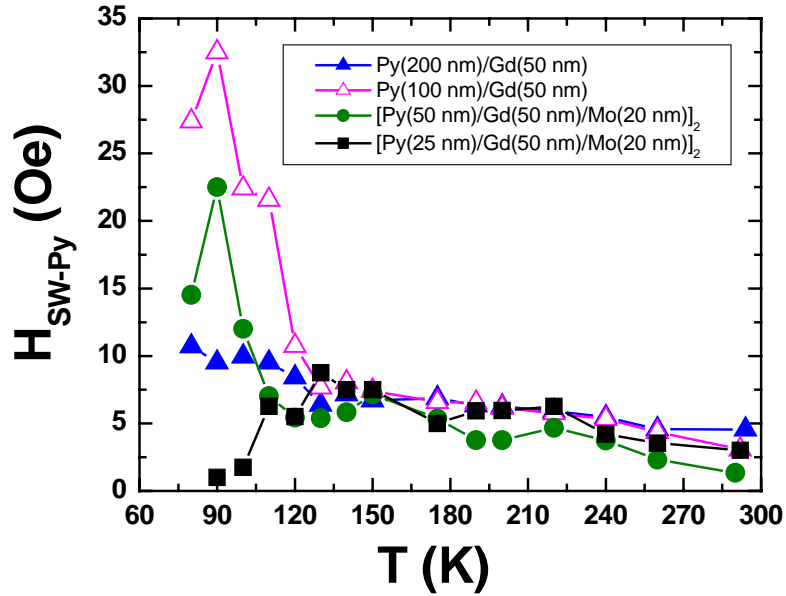


Figura 4.11. Esquema para la obtención de  $H_{SW-Py}$  a partir de los ciclos de histéresis.

Como el campo coercitivo del Gd es mucho mayor que el del Py, es de esperar que  $H_{SW-Py}$  disminuya al reducir la temperatura debido al acoplamiento antiferromagnético en la intercara de estas muestras. Sin embargo, para todas ellas se observa que  $H_{SW-Py}$  crece, de forma prácticamente lineal, desde 250 K hasta aproximadamente 140 K (Figura 4.12). Este fenómeno sólo puede explicarse si se considera que existe algún tipo de acoplamiento positivo en estas películas. Por debajo de esta temperatura, el comportamiento depende del espesor de Py. Existe un fuerte aumento de  $H_{SW-Py}$  para las muestras con espesores de 50, 100 y 200 nm de Py mientras que para las de espesor de Py de 25 nm aparece un descenso de  $H_{SW-Py}$ . Este último comportamiento indica que en esta muestra la interacción predominante por debajo de 140 K es la interacción de canje antiferromagnética Py-Gd.



**Figura 4.12.**  $H_{SW-Py}$  en función de la temperatura para muestras acopladas (▲) Py(200 nm)/Gd(50 nm), (△)Py(100 nm)/Gd(50 nm), (●) [Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub> y (■) [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>.

Para entender este comportamiento hemos estudiado la dependencia con la temperatura de  $H_{SW-Py}$  en las muestras en las que se ha roto el canje directo en la intercara entre Py y Gd. En la figura 4.13 podemos observar que no sólo estas películas presentan el mismo comportamiento que las muestras acopladas en el rango de temperatura comprendido entre 250 y 140 K sino que además, no se corresponde con el de una capa de Py. Es decir, en este rango de temperatura existe un mecanismo común de acoplamiento en muestras con y sin canje Py-Gd en la intercara.

Las muestras de Py/Gd con las que se ha trabajado en esta tesis, se caracterizan por tener espesores mayores que los de las multicapas de Fe/Gd o Co/Gd que han sido estudiadas con anterioridad en la literatura [1-6]. Esto da lugar a que, como hemos visto en las simulaciones del capítulo anterior, aparezcan zonas desacopladas en la capa de Py. Estas zonas desacopladas tienden a minimizar la energía del sistema de forma diferente a como lo hacen las zonas cercanas a las intercara, apareciendo paredes de dominio para minimizar la energía magnetostática. Debido al espesor de las capas, estas paredes serán



de tipo Néel [7]. En muestras con espesores más pequeños no es energéticamente favorable la aparición de estas paredes al ser predominante la energía de canje de la intercara.

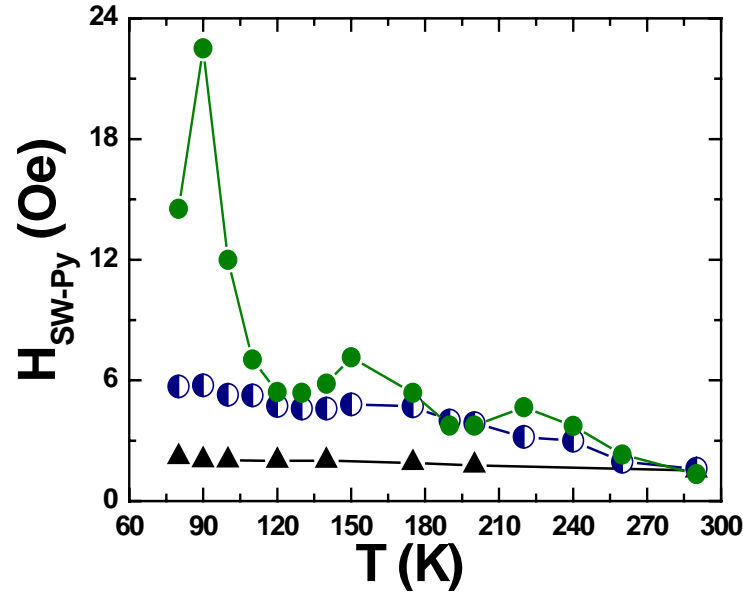


Figura 4.13.  $H_{SW-Py}$  para ( $\blacktriangle$ ) una capa de Py de 50 nm de espesor, ( $\bullet$ ) [Py(50 nm)/Mo(20 nm)/Gd(50 nm)]<sub>2</sub> y ( $\bullet$ ) [Py(50 nm)/Gd(50 nm)]<sub>2</sub>.

Los procesos de imanación asociados a desplazamiento de paredes se observan en la región central de los ciclos, ya que el menor campo coercitivo del Py y su mayor susceptibilidad magnética frente al Gd hace que las paredes aparezcan en esta capa con gran facilidad. En los ciclos de histéresis de las muestras acopladas hemos visto como aparecen procesos de imanación por desplazamiento de paredes desde temperatura ambiente hasta 140 K en la región central de los ciclos, por lo que, parece posible que hasta esta temperatura, sea energéticamente favorable la existencia de paredes en las capas de Py. En las muestras desacopladas las paredes en el Py aparecerán a cualquier temperatura. La formación de dominios debido a la existencia de paredes será similar a la obtenida tanto teórica como experimentalmente en tricapas de Py/Cu/Py [8-9]. Así, el flujo magnético asociado a las paredes de Py se cerraría por la capa de Gd en las muestras con canje directo Py-Gd y por la capa de Gd a través de la capa de Mo en las muestras sin

canje directo Py-Gd (Figura 4.14). Esto es posible ya que la interacción magnetostática es de mayor alcance que la de canje. Así, tanto en las muestras acopladas como en las desacopladas, aparecerá un acoplamiento indirecto como consecuencia de la interacción de las paredes de la capa de Py con la imanación de la capa de Gd. El aumento de  $H_{SW-Py}$  al disminuir la temperatura podría explicarse por el enganche cada vez más efectivo de las paredes de la capa Py en la de Gd al ser más ferromagnética esta capa cuando disminuye la temperatura. El campo de dispersión (*stray field*) producido por las paredes del Py produce cambios locales en la imanación del Gd que dan lugar a la formación de una cuasi-pared [10]. Por último, al disminuir suficientemente la temperatura se hace efectivo el acoplamiento antiferromagnético disminuyendo el  $H_{SW-Py}$ .

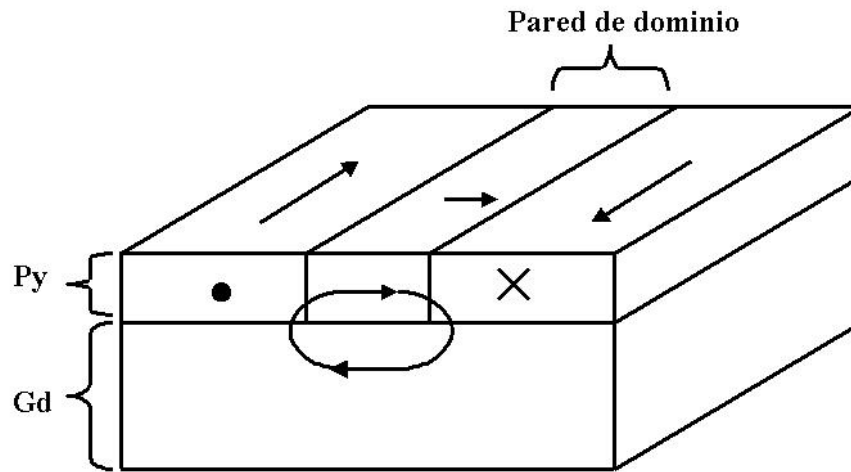
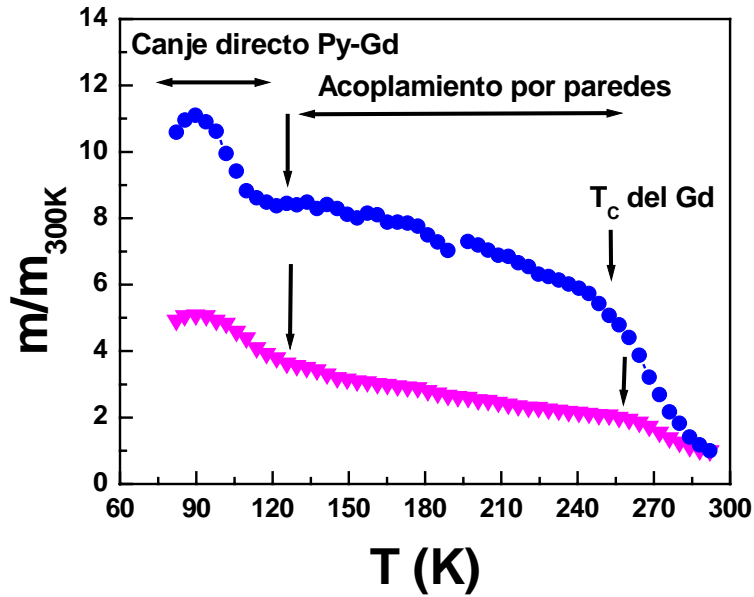


Figura 4.14. Esquema para la formación de paredes en muestras de Py/Gd.

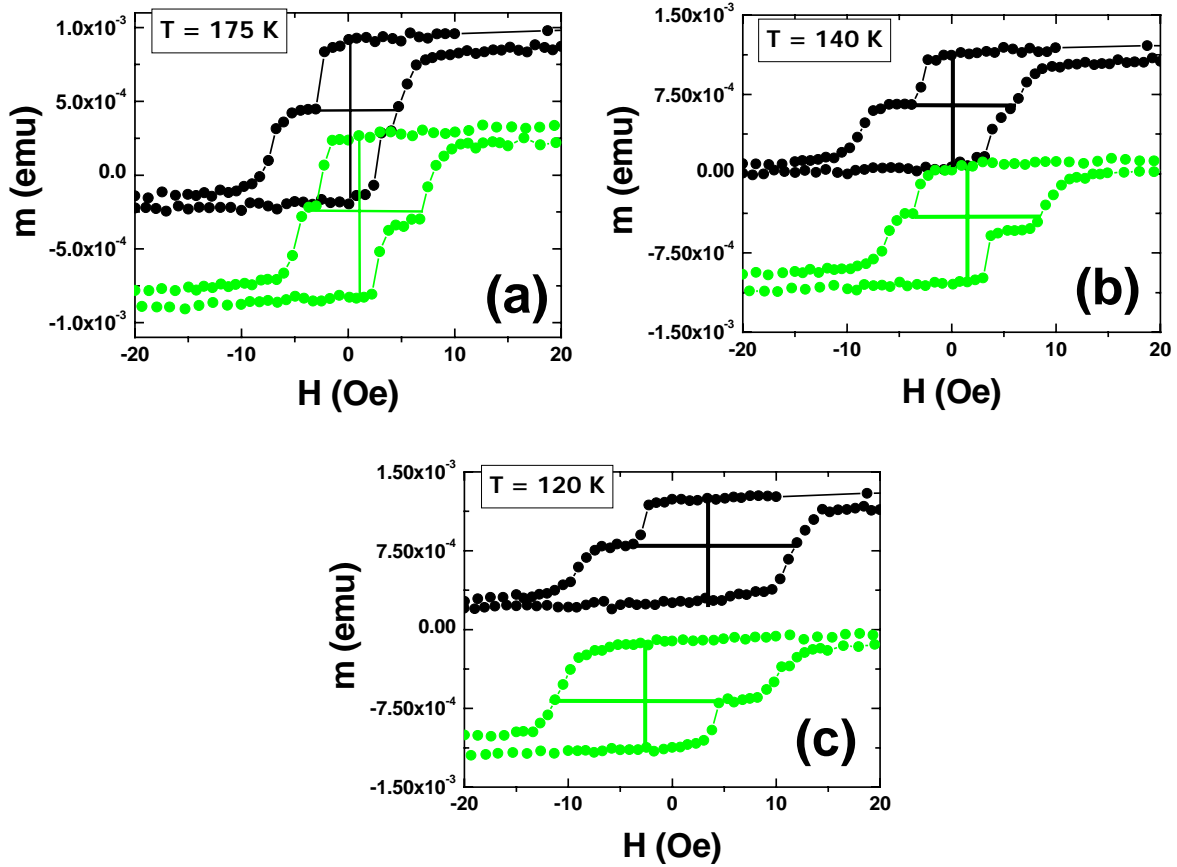
El cambio en el tipo de acoplamiento, de indirecto a través de paredes a canje directo antiferromagnético, se puede explicar también a partir de las medidas del momento magnético en función de la temperatura (Figura 4.15). Para temperaturas por debajo de la temperatura de Curie de la capa de gadolinio (250 K en estas muestras), el momento magnético aumenta de forma progresiva, pero lentamente. Este fenómeno se puede explicar si se tiene en cuenta que la imanación de la capa de Gd, que es la que se encuentra orientada en la dirección del campo magnético aplicado, se encuentra anclada de forma local debido a la formación de cuasi-paredes en su interior. Para temperaturas

inferiores a 140 K, comienza a ser efectiva la interacción de canje Py-Gd, desaparecen las cuasi-paredes y aparece un fuerte aumento del momento magnético.



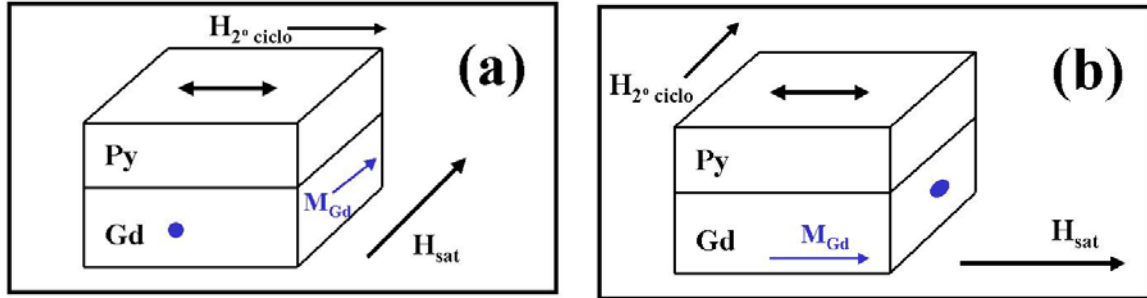
**Figura 4.15.** Momento magnético en función de la temperatura para ( $\bullet$ ) [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub> y ( $\blacktriangledown$ ) [Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>.

Para completar el estudio acerca de los procesos de acoplamiento en el rango de temperatura comprendido desde temperatura ambiente hasta 140 K, hemos medido ciclos menores similares a los realizados en apartados anteriores, es decir se han medido los ciclos después de haber saturado en la dirección positiva con 1 T y en la opuesta con un campo de también 1 T. En los ciclos menores de una bicapa [Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub> observamos claramente como a temperaturas inferiores a 140 K se invierte el sentido en el que se desplazan los ciclos menores indicando un cambio en el tipo de acoplamiento (Figura 4.16).



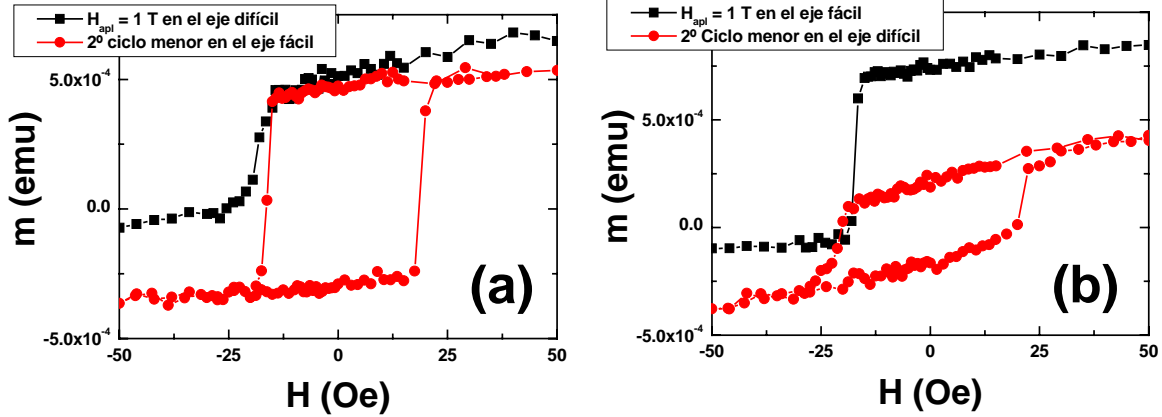
**Figura 4.16.** Ciclos menores a diferentes temperaturas para la bicapa [Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub> tras de haber aplicado 1 T en la dirección positiva (●) y 1 T en la dirección negativa (●).

Para comprobar la existencia de paredes se han medido dos tipos de ciclos: (i) Se aplica un campo saturante de 1 T en la dirección del eje difícil de la capa de Py de tal forma que la capa de Gd queda imanada en esta dirección y se mide un ciclo menor. Se gira 90° la muestra y se mide otro ciclo menor. En este segundo ciclo menor el campo está aplicado en la dirección del eje fácil del Py mientras que la imanación del Gd está en la dirección perpendicular (Figura 4.17 (a)). (ii) Se aplica un campo saturante de 1 T en la dirección del eje fácil de la capa de Py y se mide un ciclo menor de tal forma que la capa de Gd queda imanada en esta dirección. Se gira 90° y se mide un segundo ciclo menor. En este caso, el campo se encuentra aplicado en la dirección del eje difícil de la capa de Py con la imanación del Gd en la dirección perpendicular (Figura 4.17 (b)).



**Figura 4.17.** (a) Esquema de medida en el que se aplica un campo saturante de 1 T ( $H_{\text{sat}}$ ) en la dirección difícil de la capa de Py y se mide un ciclo menor. Se gira  $90^\circ$  y se mide un segundo ciclo menor aplicando el campo ( $H_{2^\circ \text{ciclo}}$ ) en la dirección del eje fácil. (b) Esquema para la medida complementaria a la anterior. Se aplica un campo saturante de 1 T ( $H_{\text{sat}}$ ) en la dirección del eje fácil de la capa de Py y se mide un ciclo menor. Se gira  $90^\circ$  y se mide un segundo ciclo menor aplicando el campo ( $H_{2^\circ \text{ciclo}}$ ) en la dirección del eje difícil de la capa de Py. La imanación de la capa de Gd queda fija en la dirección de  $H_{\text{sat}}$  al aplicar campos pequeños para medir los ciclos menores.

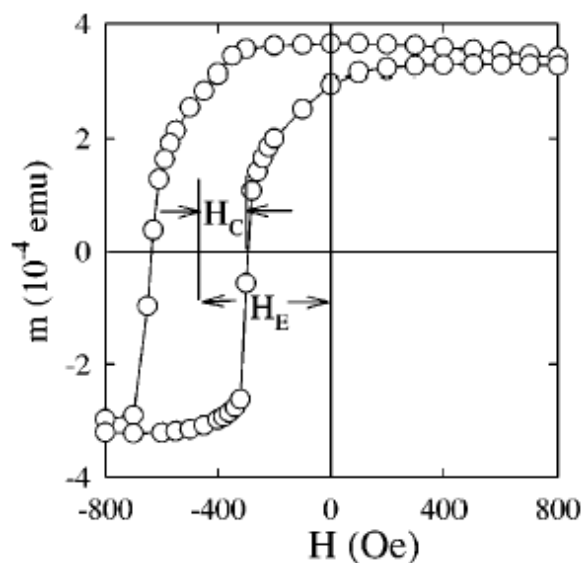
En el tipo de ciclos que hemos propuesto, la imanación de la capa de Gd se encuentra fija en la dirección perpendicular a aquella en la que se está realizando el segundo ciclo menor ya que los campos aplicados son pequeños,  $\pm 50$  Oe. Si la interacción predominante fuera el acoplamiento antiferromagnético Py-Gd debería aparecer un salto en la imanación de la capa de Py antes de que el campo se invirtiera para mantener la orientación antiparalela entre el Py y el Gd. Sin embargo, observamos que a 130 K no se produce este fenómeno en ninguno de los dos tipos de medidas (Figura 4.18). Es más, podemos comprobar como se mantienen los procesos por desplazamiento de paredes en el caso de que el segundo ciclo menor se realice en la dirección del eje fácil y los procesos de rotación en el caso de que se mida aplicando el campo en la dirección del eje difícil.



**Figura 4.18.** Ciclos menores para la bicapa Py(100 nm)/Gd(50 nm) a 130 K. (a) Se aplica un campo saturante de 1 T en el eje difícil y se mide un ciclo menor. Se gira  $90^\circ$  la muestra y se mide un segundo ciclo menor con el campo aplicado en la dirección del eje fácil de la capa de Py. (b) Se aplica un campo saturante de 1 T en la dirección del eje difícil de la capa de Py y se mide un ciclo menor. Se gira  $90^\circ$  la muestra y se mide un segundo ciclo menor con el campo aplicado en la dirección del eje difícil.

#### 4.4. *Exchange-bias* en películas de Py/Gd a campos altos.

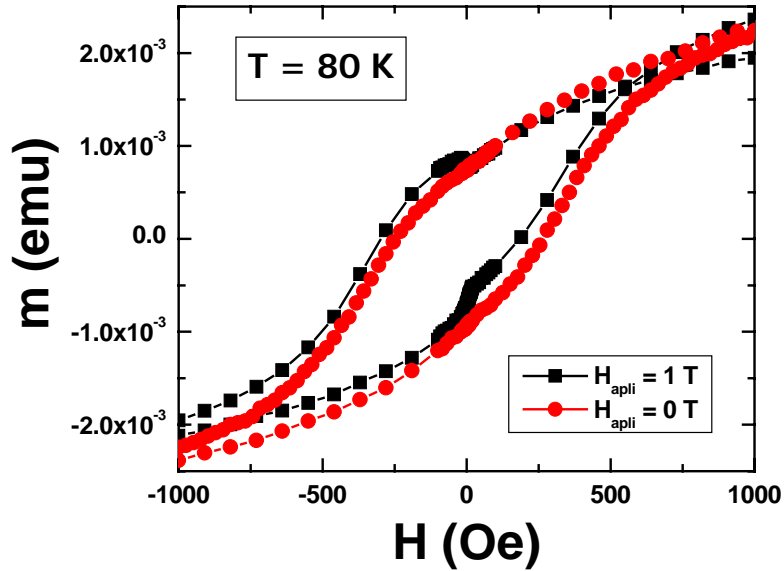
El “*exchange-bias*”, descubierto en 1956 por Meiklejohn y Bean estudiando partículas de Co embebidas en su óxido nativo [11], habitualmente se observa midiendo el desplazamiento en el eje horizontal y la asimetría de los ciclos de histéresis (Figura 4.19).



**Figura 4.19.** Esquema para la obtención del campo  $H_E$  que mide el desplazamiento de los ciclos de histéresis debido al *exchange-bias*. Ciclo obtenido a 10 K en el sistema  $\text{FeF}_2/\text{Fe}$ . Gráfica extraída de [12].

Entre los sistemas más estudiados destacan los formados por materiales ferromagnéticos interaccionando por canje con materiales antiferromagnéticos [13-15]. Sin embargo, este fenómeno puede ocurrir en cualquier sistema en el que exista una pared paralela a la intercara entre un material ferromagnético y un segundo material que sea menos sensible al campo magnético externo ya sea porque su imanación neta es nula (como un antiferromagnético) o porque tenga una anisotropía tan elevada que necesite campos magnéticos más intensos que la primera capa para poder imanarse [16], como sería el sistema Py/Gd.

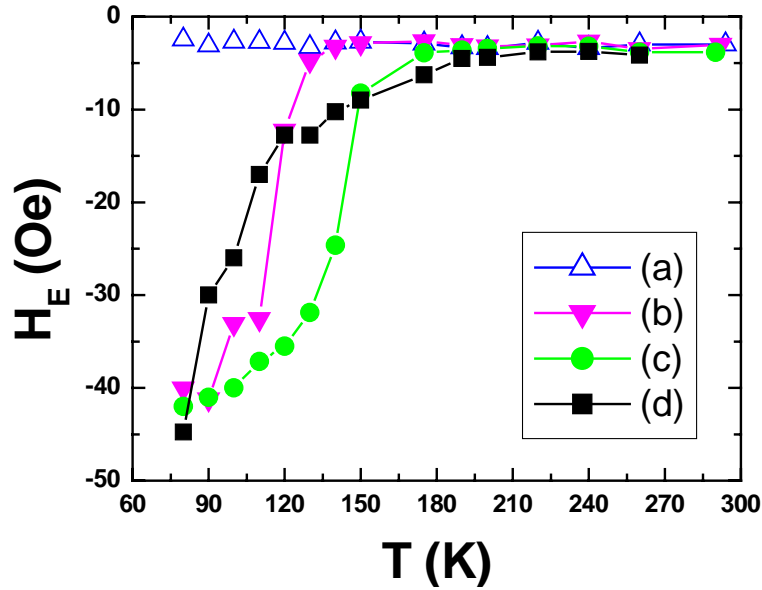
En 1968, Hayashi y colaboradores demostraron la existencia de acoplamiento antiferromagnético en la intercara Py-Gd [17] mediante la aparición de fenómenos de *exchange-bias* a 78 K en tricapas de Py/Gd/Py. Este mismo efecto también lo hemos observado en este trabajo en el sistema Py/Gd optimizado, obteniendo tanto asimetría como desplazamiento de los ciclos en el eje del campo tras haber enfriado las muestras en un campo de 1 T (Figura 4.20).



**Figura 4.20.** Ciclos de histéresis de la doble bicapa [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub> a 80 K, medidos tras haber enfriado con un campo aplicado en el plano de la muestra de 1 T (■) y tras haber enfriado con campo cero (●).

La formación de paredes en la capa de Py impide que el canje directo Py-Gd sea efectivo hasta temperaturas inferiores a 140 K, por lo que sólo aparece *exchange-bias* por debajo de esta temperatura (Figura 4.21). Comprobamos también como a mayor espesor de Py menor es la temperatura a la que el *exchange-bias* comienza a ser apreciable, ya que cuanto mayor sea el espesor de Py comparado con la longitud de correlación, más favorable es la formación de paredes debilitándose los fenómenos asociados al canje directo Py-Gd. Por ejemplo, para el caso de la bicapa con mayor espesor de Py (200 nm) observamos que, a pesar de que existe desplazamiento de los ciclos, la magnitud de  $H_E$  es mucho menor que la de las muestras con menor espesor de la capa de Py.





**Figura 4.21.**  $H_E$  obtenido de los ciclos de histéresis medidos tras haber enfriado con un campo de 1 T para (a) Py(200 nm)/Gd(50 nm), (b) Py(100 nm)/Gd(50 nm), (c) [Py(50 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub> y (d) [Py(25 nm)/Gd(50 nm)/Mo(20 nm)]<sub>2</sub>.

El sistema Py/Gd optimizado muestra valores de  $H_E$  de hasta -45 Oe a 78 K. Sin embargo, Hayashi y colaboradores obtuvieron un valor tres veces menor al más pequeño obtenido en este trabajo, -1 Oe a 78 K en tricapas con espesores de Py de 300 nm y de 30 nm de la capa de Gd. La diferencia entre nuestro valor más bajo y el obtenido por Hayashi y colaboradores puede explicarse debido a que midieron tricapas de Py/Gd/Py con un espesor de 300 nm en que, como hemos visto, los efectos asociados al acoplamiento antiferromagnético son mucho más débiles debidos a la interdifusión de Ni.

## 4.5. Referencias

- [1] J. Colino, J.P. Andrés, J.M. Riveiro, J.L. Martínez, C. Prieto, J.L. Sacedón, *Phys. Rev. B* **60**, 6678 (1999).
- [2] J.A. González, J. Colino, J.P. Andrés, M.A.L. de la Torre, J.M. Riveiro, *Physica B* **345**, 181 (2004).
- [3] J.A. González, J.P. Andrés, M.A.L. de la Torre, T.P. Hase, B.K. Tañer, *J. Appl. Phys.* **93**, 7247 (2003).
- [4] Y. Choi, D. Haskel, R.E. Camley, D. R. Lee, J.C: Lang, G. Srajer, J.S. Jiang, S.D. Bader, *Phys. Rev. B* **70**, 134420 (2004).
- [5] D. Haskel, G. Srajer, Y. Choi, D.R. Lee, J.C. Lang, J. Meersschaut, J.S. Jiang, S.D. Bader, *Phys. Rev. B* **67**, 180406 (2003).
- [6] J.L. Prieto, B.B. van Aken, G. Burnell, C. Bell, J.E. Evetts, N. Mathur, M.G. Blamire, *Phys. Rev. B* **69**, 054436 (2004).
- [7] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism* (John Wiley & Sons, New York, 1964).
- [8] J.L. Prieto, P. Sánchez, C. Aroca, M. Maicas, E. López, M.C. Sánchez, *J. Magn. Mater.* **177**, 215 (1998).
- [9] M.A. Rivero, M. Maicas, E. López, C. Aroca, M.C. Sánchez, P. Sánchez, *J. Magn. Mater.* **197**, 73 (1999).
- [10] M. Maicas, M. A. Rivero, E. López, M.C. Sánchez, C. Aroca, P. Sánchez, *J. Magn. Mater.* **203**, 289 (1999).
- [11] W. H. Meiklejohn, C. P. Bean, *Phys. Rev.* **102**, 1413 (1956).
- [12] J. Nogués, T. J. Morán, D. Lederman, I. K. Schuller, K. V. Rhao, *Phys. Rev. B* **59**, 6984 (1999).
- [13] J. Dho, C.W. Leung, M.G. Blamire, *J. Appl. Phys.* **99**, 033910 (2006).
- [14] E. Arenholz, K. Liu, Z.P. Li, I.K. Schuller, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 072503 (2006).
- [15] J. Sort, B. Dieny, J. Nogués, *Phys. Rev. B* **72**, 104412 (2005).
- [16] S. Mangin, G. Marchal, B. Barbara, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4336 (1999).
- [17] N. Hayashi, E. Goto, K. Nishimoto, *Japan. J. Appl. Phys.* **7**, 555 (1968).



## **Capítulo 5**

---

# **Optimización y estudio de películas delgadas de Co-LSTO**

---



## 5. Optimización y estudio del sistema $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ dopado con Co (Co-LSTO).

### 5.1. Introducción

En el campo de la espintrónica, una de las áreas más activas es el desarrollo de nuevos materiales a partir del dopado de materiales semiconductores con impurezas magnéticas. De esta forma se consigue tener un material ferromagnético con propiedades semiconductoras que faciliten su integración en dispositivos. Un nuevo camino para desarrollar dispositivos basados en la espintrónica es dopar con elementos ferromagnéticos sistemas de electrones altamente correlacionados. El grupo de Tokura realizó diversas investigaciones [1-4] en la serie de compuestos  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  (LSTO). Estos compuestos se comportan como sistemas de electrones altamente correlacionados en los que se puede cambiar el número de electrones en la banda 3d desde  $3d^1$  para el apenas metálico  $\text{LaTiO}_3$  hasta un valor de  $3d^0$  para el  $\text{SrTiO}_3$  que es un aislante diamagnético.

Sunstrom y colaboradores [5] estudiaron también la misma serie de materiales. Variando el contenido de Sr en el compuesto  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  en el rango comprendido entre  $0 \leq x \leq 1$  puede cambiar el tipo de magnetismo al variar el solapamiento entre los orbitales del oxígeno y del Ti. Al ir introduciendo Sr en el  $\text{LaTiO}_3$ , el ángulo del enlace Ti-O-Ti se acerca a  $180^\circ$ , y aumenta el solapamiento entre los orbitales del O y del Ti. Se pasa de un material semiconductor magnéticamente ordenado en el que aparece antiferromagnetismo por debajo de 120-150 K como el  $\text{LaTiO}_3$ , a una fase metálica con paramagnetismo de Pauli. Nos encontraríamos en esta región hasta que la concentración de Sr sea tan elevada que el número de electrones en la banda 3d se reduzca y la conducción disminuya. En el límite de  $x = 1$  se encuentra el  $\text{SrTiO}_3$  que es un aislante diamagnético. Para el caso concreto de  $x = 0.5$ , el LSTO sin dopar presenta un ligero paramagnetismo en el rango entre 10-50 K, para pasar a una región con susceptibilidad positiva, independiente de la temperatura. Los autores dan un valor de  $0.075 \cdot 10^{-3}$  emu/mol para la susceptibilidad molar en el rango de temperatura comprendido entre 50 K y 300 K [5].

En este capítulo estudiamos el  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  (LSTO) dopado con Co (Co-LSTO) que recientemente ha aparecido en la literatura como un ferromagnético con una temperatura de Curie de aproximadamente 450 K [6]. Este material resulta interesante debido a que no sólo se comporta como un sistema de electrones altamente correlacionados, sino que tiene estructura perovskita como la manganita de lantano estroncio ( $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ) en la que ya ha sido comprobado experimentalmente su carácter semi-metálico [7].

El control de la estequiometría del oxígeno es de gran importancia en los compuestos de la forma  $\text{RTiO}_3$ , siendo R una tierra rara [8] y en particular, en el caso del  $\text{LaTiO}_3$  [9]. En este último material, el electrón que se encuentra en la banda de conducción procede del ión  $\text{Ti}^{3+}$ , pero el comportamiento de ese electrón, si está localizado o no, viene determinado por la concentración de vacantes de oxígeno. En el trabajo que hemos tomado como partida para nuestro estudio [6] doparon con Co el compuesto intermedio de la serie analizada por Tokura y colaboradores [2-3] es decir, el  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ . En este trabajo [6] ya se muestra que tanto las propiedades eléctricas como las magnéticas de las muestras crecidas sobre sustratos de LAO(001), presentan una fuerte dependencia con la presión de oxígeno.

En este capítulo se estudia en primer lugar la caracterización morfológica y estructural realizada tras haber encontrado el sustrato óptimo para las capas delgadas de Co-LSTO. Para optimizar las propiedades magnéticas de las capas de Co-LSTO fue necesario estudiar la influencia de la presión de oxígeno, obteniendo un mayor momento magnético cuando las capas son crecidas a baja presión de oxígeno. La polarización de espín de estas capas de Co-LSTO crecidas a baja presión es muy elevada cuando se tiene en cuenta que el efecto túnel en uniones Co-LSTO/LAO/Co es de tipo resonante asistido a partir de niveles de impurezas. Por último, se ha visto que las condiciones de baja presión de oxígeno, inducen un estado de alta movilidad en el sustrato de STO.

El trabajo contenido en este capítulo ha sido realizado en la *Unité Mixte de Physique CNRS/Thales*, Orsay, Francia, bajo la supervisión de los Profs. Agnès Barthélémy y Albert Fert.

## 5.2. Elaboración de blancos

Se realizaron 3 blancos de Co-LSTO con dopados de Co de 0, 1.5 y 3 %, tomando como polvos de partida: **SrCO<sub>3</sub>**: MERCK 7861, **La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>**: Art 12220, **TiO<sub>2</sub>**: MERCK 100805 y **Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>**: Art 2543.

La molienda se realizó en un molino con bolas de Zirconox:  $\text{ZrO}_2/\text{MgO}/\text{ZnO}/\text{Co}_3\text{O}_4$  durante 30 minutos a 500 r.p.m. Como los polvos de partida son óxidos no sólo no es necesario realizar la molienda en atmósfera controlada, sino que además se añadieron 200 ml agua para favorecer el mezclado de los componentes. Siguiendo este procedimiento se obtuvieron 3 tipos de polvo, cada uno con una composición distinta que fueron catalogados como muestra 1710:  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ , muestra 1711:  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.015}\text{Ti}_{0.985}\text{O}_3$  y muestra 1712:  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.03}\text{Ti}_{0.970}\text{O}_3$

Una vez finalizada la molienda hubo que secar los polvos. Para ello, se introdujeron en un horno en atmósfera de aire a 90 °C durante 24 horas. La temperatura del horno es menor de 100 °C para evitar la ebullición del agua, siendo además esta temperatura suficientemente baja como para que no haya reacción entre los componentes. Una vez secados, los polvos se tamizan para obtener granos de 400 micras de diámetro.

Como el Sr se ha obtenido del  $\text{SrCO}_3$  que se encuentra en la forma  $\text{SrO} + \text{CO}_2$ , para conseguir que sólo quede Sr en la mezcla hay que eliminar el  $\text{CO}_2$  por lo que se realiza un primer recocido.

- **Recocido:** Rampa de subida 3.3 °C/min (~200 °C/h)

1050 °C durante 2 h.

Mediante difracción de rayos-X se comprobó que la temperatura de este primer recocido era lo suficientemente elevada como para que el  $\text{CO}_2$  fuera eliminado, ya que en los patrones de difracción sólo aparecen picos asociados a  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3$  y  $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ , siendo esta última fase para la que los picos son menos intensos. La aparición de estas fases nos demuestra que se ha eliminado el carbono y que se ha producido una primera reacción de los componentes ya que se cumple que:

- **$\text{La}_2\text{O}_3 + \text{SrO} + \text{TiO}_2 = \text{La}_2\text{O}_3 + \text{SrTiO}_3$**



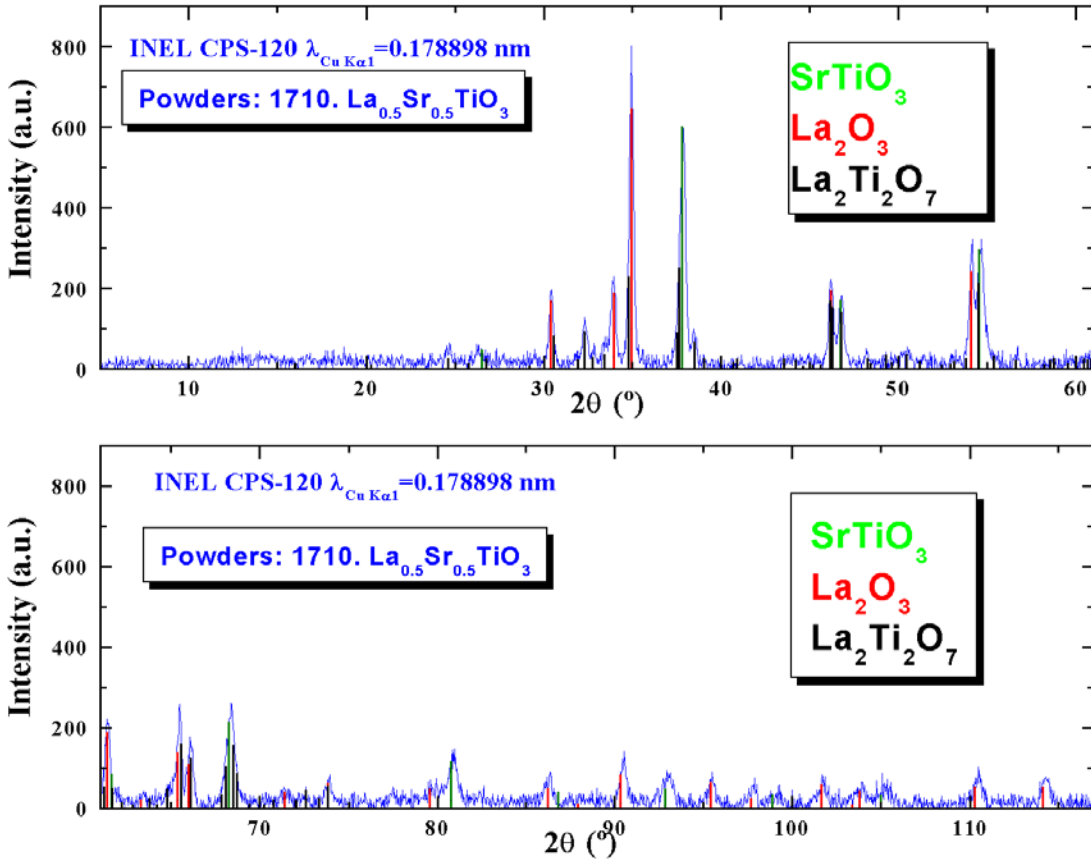


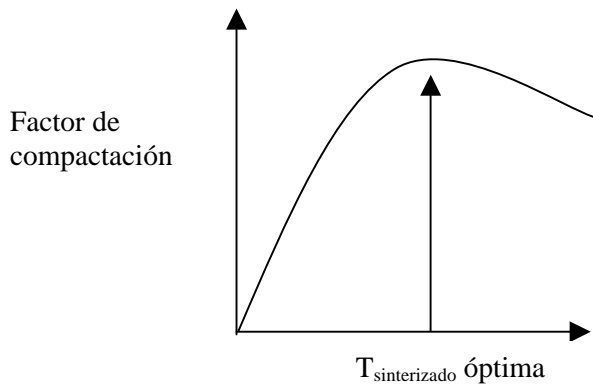
Figura 5.1. Difractograma de rayos-X del polvo 1710.

Para poder estudiar la temperatura óptima de recocido se volvieron a mezclar los polvos, de los que había sido eliminado el C, en el molino de bolas en las mismas condiciones que la primera vez, 500 r.p.m. durante 30 minutos en un molino en el que además se introdujo 200 ml de agua para favorecer la mezcla. Tras su secado en el horno durante 24 horas a  $90^\circ\text{C}$ , se tamizaron los polvos para conseguir granos de 400 micras de diámetro. Esta vez, el polvo resultante se prensó en una prensa hidrostática para favorecer durante el recocido tanto la reacción de los constituyentes como su compactación. Las condiciones del prensado fueron de:

- **Prensa hidrostática:**  $1500 \text{ bar} = 1.5 \text{ t/cm}^2$ .

Es necesario encontrar la temperatura óptima de recocido ya que en las cerámicas, no es suficiente con elevar la temperatura hasta una temperatura cercana a la de fusión del material, sino que existe una temperatura, por encima de la cual las propiedades no

sólo no se mejoran sino que se deterioran. En nuestro caso, la propiedad que se quiere optimizar es la compactación, debido a que es un factor crítico en los blancos utilizados para la deposición láser (PLD) para obtener capas de alta calidad. Si los blancos no tienen un factor de compactación superior al 90 % pueden aparecer gotas de material en la muestra evaporada. El factor de compactación se calcula comparando el valor de la densidad obtenido para cada recocido con el valor teórico. De esta manera, se estudió como evolucionó la densidad en función de la temperatura de recocido en atmósferas de aire y de nitrógeno.



El proceso de recocido consistió en una rampa de temperatura de 300 °C/hora hasta alcanzar la temperatura de recocido en la que se mantuvo estable el horno durante un determinado intervalo de tiempo. Tras cada proceso de recocido se midió la densidad usando dos métodos distintos, **método hidrostático** y con un **picnómetro**. En el **método hidrostático** se introduce la muestra en agua para obtener su volumen a partir del volumen desalojado. Si la porosidad es alta, se introduce agua en los poros y el volumen desalojado es menor que el real, por lo que se obtiene un valor de la densidad mayor que el real. Por eso, es necesario comparar los valores de densidad obtenidos con esta técnica con los medidos por un segundo método en el que no se moje la muestra. En nuestro caso, se usó el **picnómetro**. En este método, el volumen se obtiene introduciendo la muestra en un baño de mercurio. El mercurio es un líquido que no moja, por lo que esta técnica aunque da una resolución más baja que el método hidrostático, es un método más fiable para medir la densidad de muestras con porosidad elevada.

$\rho_1$  ( $\text{g/cm}^3$ ): Método hidrostático

$\rho_2$  ( $\text{g/cm}^3$ ): Método del picnómetro

	Polvos 1710		Polvos 1711		Polvos 1712	
Sinterizado	$\rho_1$ ( $\text{g/cm}^3$ )	$\rho_2$ ( $\text{g/cm}^3$ )	$\rho_1$ ( $\text{g/cm}^3$ )	$\rho_2$ ( $\text{g/cm}^3$ )	$\rho_1$ ( $\text{g/cm}^3$ )	$\rho_2$ ( $\text{g/cm}^3$ )
1300 °C, 5 horas, aire	4.79	3.49	5.09	3.29	4.94	3.39
1300 °C, 5 horas, $\text{N}_2$	5.02	3.79	4.99	3.4	5.07	3.43
1350 °C, 5 horas, aire	----	4.43	----	4.24	----	4.74
1350 °C, 5 horas, $\text{N}_2$	-----	4.47	----	4.23	-----	4.52
1400 °C, 5 horas, aire	5.25	4.83	5.27	5.09	5.37	5.30
1450 °C, 5 horas, aire	5.23	4.98	5.34	5.06	5.35	5.16

**Tabla 5.1.** Densidad de los polvos 1710, 1711 y 1712, medidos por el método hidrostático ( $\rho_1$ ) y el picnómetro ( $\rho_2$ ) después de diversos métodos de recocido.

A partir de las densidades del  $\text{SrTiO}_3$  y del  $\text{LaTiO}_3$  se estimó la densidad teórica del  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  en **5.7  $\text{g/cm}^3$** .

**STO.** Estructura cúbica.  $\rho = 5.11 \text{ g/cm}^3$

**LTO.** Estructura ortorrómbica.  $\rho = 6.25 \text{ g/cm}^3$

Se usaron atmósferas de aire y de  $\text{N}_2$ , para comprobar cual era la atmósfera con la que se conseguía un mejor cambio de valencia para el La. En los polvos de partida

( $\text{La}_2\text{O}_3$ ) el La se encontraba con valencia 2+, pero en el  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ , el La debería encontrarse con una valencia 3+. Si en el proceso de recocido no se conseguía cambiar la valencia, la densidad debería ser baja, porque nos encontraríamos cerca de la composición rica en estroncio cuya densidad es más baja de la esperada para la composición  $\text{La} = \text{Sr} = 0.5$ . Sin embargo, los valores de densidad para las diferentes atmósferas son muy parecidos por lo que parecía que la baja densidad no era problema de la valencia del La. Por el contrario, los valores de densidad que se obtenían con el método hidrostático eran más altos que los obtenidos con el picnómetro por lo que la alta porosidad sería la causa de estas diferencias. La baja compacidad de los polvos hizo necesario llegar hasta temperaturas de recocido de 1450 °C para obtener valores suficientemente buenos de densidad.

En las perovskitas se sabe que las vacantes de oxígeno juegan un papel muy importante en los procesos de conducción eléctrica. Uno de los problemas de la atmósfera de  $\text{N}_2$  es que la atmósfera en el horno es altamente reductora y se puede cambiar en exceso la concentración de oxígeno en el Co-LSTO alterando fuertemente las propiedades del material. En un trabajo anterior de Wu y colaboradores [10] obtienen blancos de LSTO (sin dopar) realizando los recocidos en atmósfera de aire a temperaturas comprendidas entre 1300-1400 °C obteniendo por PLD capas epitaxiales altamente conductoras. Por tanto, decidimos que los recocidos sucesivos se realizarían únicamente en atmósfera de aire. Los valores de densidad obtenidos a 1400 °C y 1450 °C son bastante similares entre sí lo que hace suponer que la temperatura óptima de recocido se encuentre cerca de estos dos valores. Por tanto, se realizó un recocido a una temperatura intermedia con las siguientes características:

- **Recocido:** Rampa de subida 300 °C/hora  
1425 °C durante 5 h en aire.

	<b>Polvos 1710</b>	<b>Polvos 1711</b>	<b>Polvos 1712</b>
<b>Sinterizado</b>	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> ) <b>Hidrostático</b>	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> ) <b>Hidrostático</b>	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> ) <b>Hidrostático</b>
<b>1425 °C, 5 h, aire</b>	5.27	5.34	5.39

**Tabla 5.2.** Densidad de los polvos 1710, 1711 y 1712, medidos por el método hidrostático después de un recocido a 1425°C durante 5h en aire.

Con este recocido se consigue un factor de compacidad del 93 % en el peor de los casos, suficiente como para poder usar los blancos en el sistema de PLD. Sin embargo, los polvos compactos tenían poca resistencia mecánica ya que se desmenuzaron al intentar cortarlos para conseguir blancos con las dimensiones adecuadas para el equipo de PLD. Se hizo un nuevo recocido en el que además de aumentar la temperatura de recocido en 25 °C, se pasó de 1425 °C a 1450 °C, la rampa de subida de temperatura era más lenta. Se pasó a una rampa de 50 °C/hora, mientras que en los recocidos anteriores era de 300 °C/hora. Las condiciones para este recocido fueron:

- **Recocido:** Rampa de subida 50 °C/hora  
1450 °C durante 5 h en aire.

Se obtuvieron los siguientes valores de densidad:

	<b>Polvos 1710</b>	<b>Polvos 1711</b>	<b>Polvos 1712</b>
<b>Sinterizado</b>	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> ) <b>Hidrostático</b>	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> ) <b>Hidrostático</b>	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> ) <b>Hidrostático</b>
<b>1450 °C, 5 h, aire</b>	5.26	5.35	5.4

**Tabla 5.3.** Densidad de los polvos 1710, 1711 y 1712, medidos por el método hidrostático después de un recocido a 1450°C durante 5h en aire.

Los valores de densidad son prácticamente los mismos que los obtenidos a 1425 °C con la rampa de 300 °C/hora, pero mejoró la resistencia mecánica.

Resumiendo, las condiciones para el proceso de sinterizado para blancos de PLD de Co-LSTO son prensado hidrostático a  $1.5 \text{ t/cm}^2$  seguido de un recocido en atmósfera de aire con una rampa de ascenso de 50 °C/h, para mantener posteriormente el horno a una temperatura de 1450 °C durante 5h.

### 5.3. Influencia del sustrato

En la literatura aparecen crecimientos de películas delgadas de LSTO en sustrato de  $\text{LaAlO}_3$  (LAO) [6, 10-11] pero no se ha podido encontrar ningún trabajo en el que aparecieran crecimientos realizados sobre  $\text{SrTiO}_3$  (STO) aunque el desacoplo entre los parámetros de red entre este último sustrato y las películas de LSTO es teóricamente inferior al que existe en sustratos de LAO.

**$\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ .** Estructura ortorrómbica, con una celda unidad pseudocúbica con parámetros de red,  $a = 3.941 \text{ \AA}$ ,  $b = 3.919 \text{ \AA}$  y  $c = 3.914 \text{ \AA}$  [5].

**STO.** Cúbico.  $a = 3.905 \text{ \AA}$ . Desacoplo teórico: 0.9 %

**LAO.** Romboédrico.  $a = 3.788 \text{ \AA}$ . Desacoplo teórico: 4 %

En este apartado se estudiará la influencia de los sustratos de LAO(001) y STO(001) en capas delgadas de LSTO dopadas con Co crecidas mediante PLD. El blanco a partir del cual se crecieron estas muestras fue el realizado por el profesor P. Berthet siendo la concentración de Co del 1.5 %.

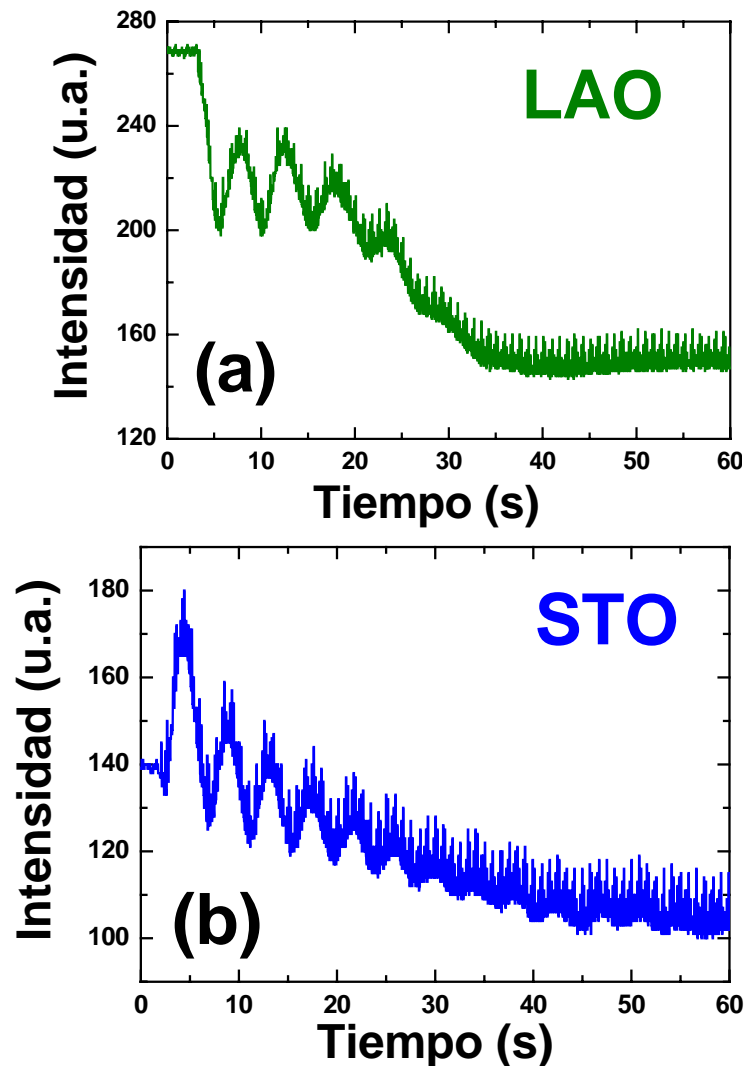
#### i. Crecimiento de las muestras

El crecimiento de todas las muestras que se presentan en este capítulo se ha realizado de la misma forma por lo que comentaremos únicamente en este apartado como se realizó este proceso. La limpieza del blanco sólo se realizaba en el caso de que se hubiera abierto la campana al aire y consistía en una pre-ablación realizada con el láser a 10 Hz y con la máxima potencia (120 mW) durante 20 minutos. Los sustratos se limpiaban dentro de la campana de crecimiento calentándolos con el *heater* del sustrato al máximo (5 A y 40.9 V) lo que supone una temperatura de aproximadamente 800 °C, durante 20 minutos y en una atmósfera de oxígeno de 0.3 Torr.

Para los crecimientos se utilizó en todos los casos una densidad de energía de  $2.8 \text{ J/cm}^2$ , con una distancia entre el blanco y el sustrato de 55 mm y con una frecuencia de 5 Hz para el láser. En las muestras utilizadas para el estudio de la influencia del sustrato, la presión de oxígeno se mantuvo en  $5 \cdot 10^{-5}$  mbar y la temperatura del sustrato en 700 °C.

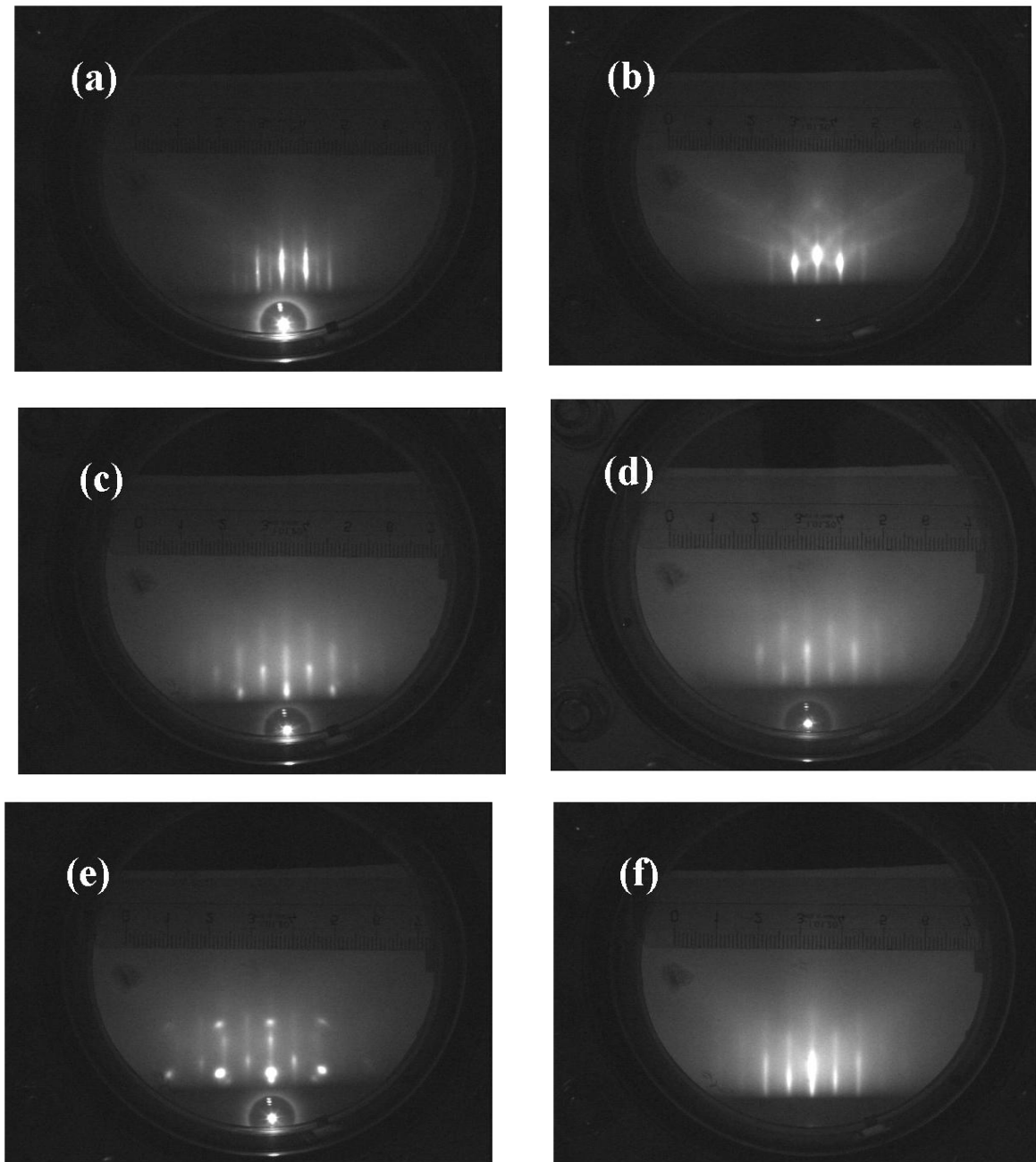
Como las muestras se crecen a alta temperatura, se dejan enfriar hasta temperatura ambiente dentro de la cámara de crecimiento a la misma presión a la que fueron crecidas para evitar que se produzcan cambios en la superficie de las capas. Los posibles cambios

que puedan aparecer en la superficie se estudian mediante RHEED. El espesor de las capas de Co-LSTO utilizadas en este estudio son 30 nm y 150 nm.



**Figura 5.2.** Patrones de oscilación RHEED para (a) Co-LSTO(25 nm)//LAO(001) y (b) Co-LSTO(25 nm)//STO(001).



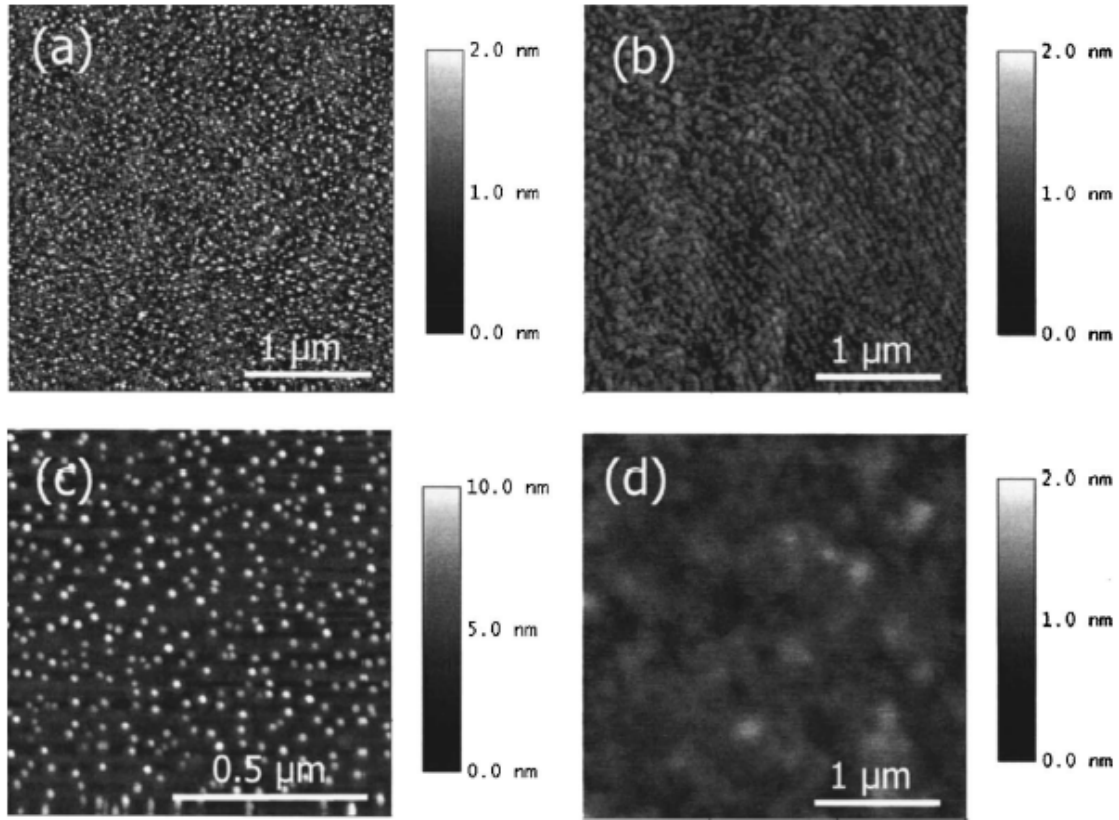


**Figura 5.3.** Imágenes de RHEED con el haz de electrones en la dirección [100] de (a) sustrato de LAO(001) y (b) sustrato de STO(001) ambos, después del proceso de limpieza realizado en la cámara de crecimiento. Las siguientes imágenes han sido tomadas después del crecimiento de las siguientes capas (c) Co-LSTO(25 nm)//LAO(001), (d) Co-LSTO(33 nm)//STO(001), (e) Co-LSTO(150 nm)//LAO(001) y (f) Co-LSTO(151 nm)//STO(001).

Las oscilaciones de RHEED obtenidas durante el primer minuto de crecimiento de las capas de Co-LSTO (Figura 5.2) muestran que los mecanismos de crecimiento sobre los sustratos de LAO y STO son distintos. Para el sustrato LAO se observa como el crecimiento “capa a capa” (*Frank-van der Merve*) sólo aparece en las primeras 5 monocapas, mientras que para el sustrato de STO este mecanismo aparece como mínimo en las primeras 14 monocapas. Al finalizar el crecimiento, en los diagramas RHEED de las capas de Co-LSTO crecidas en LAO, aparecen claros *spots* brillantes indicativos de estructuras tridimensionales en superficie. Para las muestras crecidas en STO por el contrario, los diagramas RHEED muestran un patrón asociado a crecimiento bidimensional incluso para capas de Co-LSTO con espesores de 150 nm (Figura 5.3).

## **ii. Caracterización morfológica**

La morfología de la superficie de las muestras “*as-grown*” se midió mediante un microscopio AFM en su configuración *tapping*. La rugosidad cuadrática media (rms: *root mean square*) se obtuvo en áreas de  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$  excepto para la muestra de 150 nm crecida sobre LAO en la que se midió en un área más pequeña,  $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ .

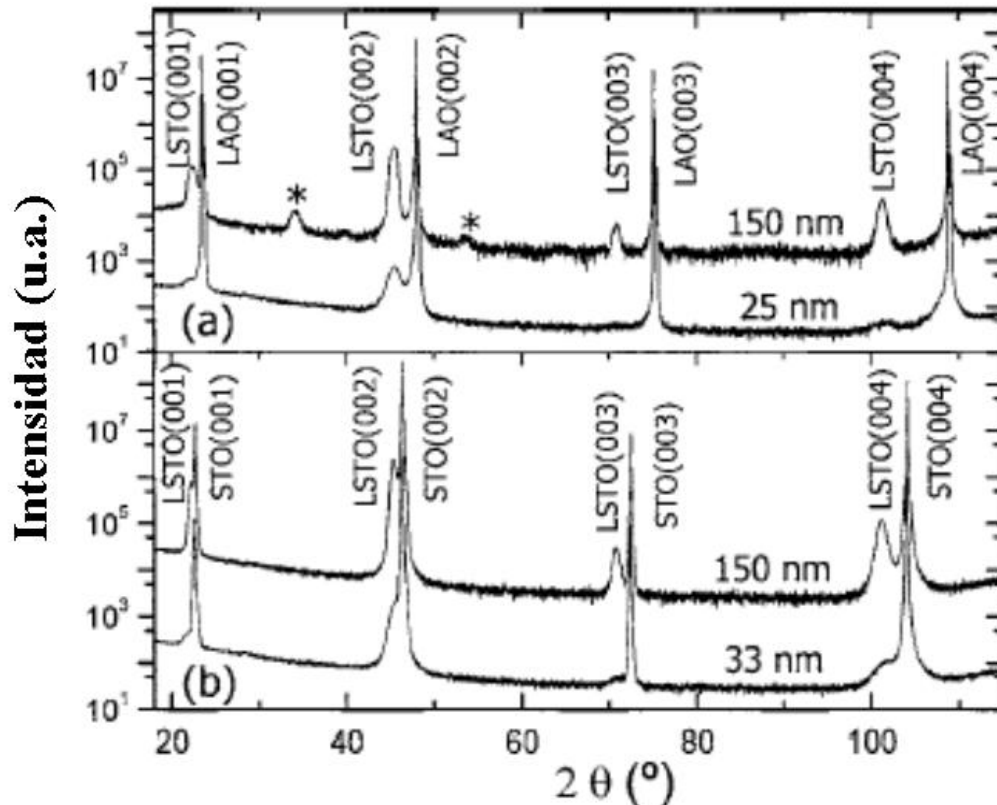


**Figura 5.4.** Imágenes de AFM de las muestras (a) Co-LSTO(25 nm)//LAO(001), (b) Co-LSTO(33 nm)//STO(001), (c) Co-LSTO(150 nm)//LAO(001) y (d) Co-LSTO(150 nm)//STO(001).

Las imágenes de AFM indican que las muestras crecidas sobre STO son muy planas independientemente de su espesor (Figura 5.4. (b) y (d)). Para cualquier espesor, las películas crecidas sobre LAO son más rugosas que las crecidas sobre STO lo que concuerda con los patrones RHEED en los que obteníamos crecimiento bidimensional para las capas crecidas sobre STO mientras que para las depositadas sobre LAO aparecía crecimiento tridimensional. En el caso de la muestra más espesa crecida sobre LAO (Figura 5.4 (d)) se observan columnas con alturas de entre 6 y 8 nm.

### iii. Caracterización estructural

Los difractogramas de alto ángulo  $\theta$ - $2\theta$ , revelan que independientemente del sustrato, todas las capas son monofásicas, con estructura perovskita. El crecimiento es texturado ya que la orientación de todas las capas es la (001), igual a la de los sustratos de partida (Figura 5.5). Las medidas de rayos-x descartan la existencia de agregados de Co y fases parásitas.



**Figura 5.5.** Difracción de rayos-x de alto ángulo de las películas de Co-LSTO crecidas sobre (a) LAO(001) y (b) STO(001). Los picos marcados con \* provienen del portamuestras.

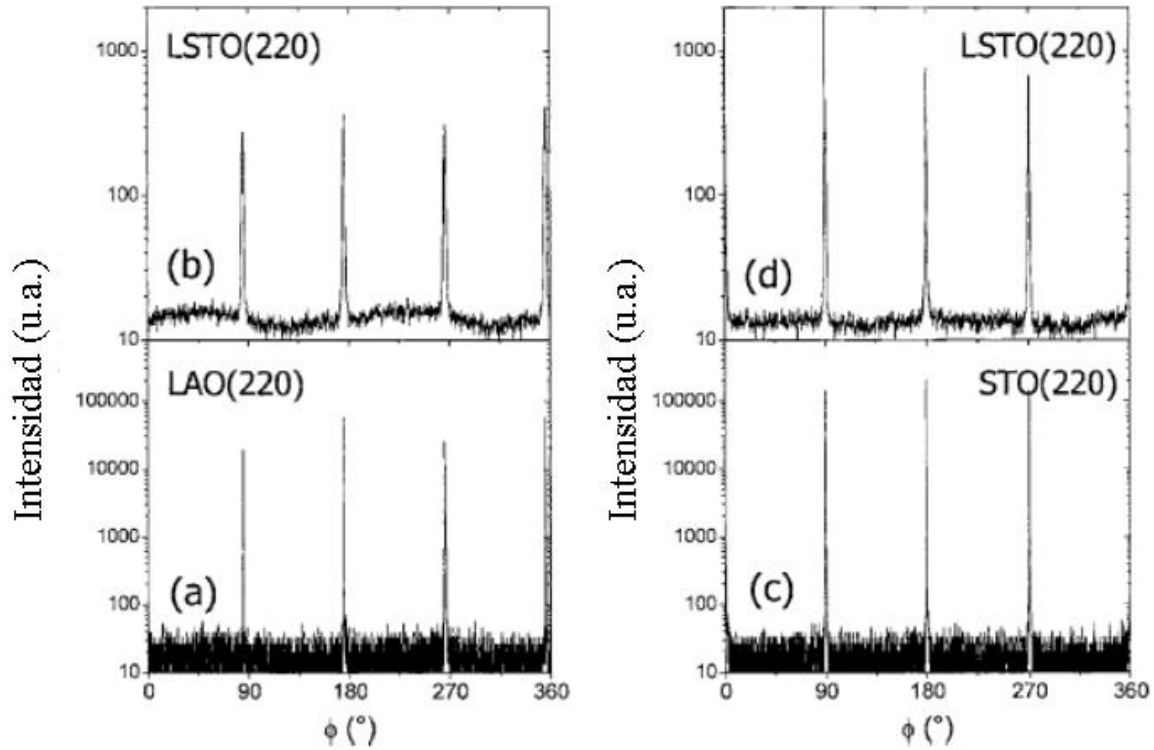
La anchura a mitad de altura (FWHM) se obtuvo a partir de las “*rocking-curves*” de la reflexión (004). Se observa que para el mismo espesor de Co-LSTO,  $\Delta\omega_{004}$  es un factor 1.5-2 veces más pequeño para las capas crecidas sobre STO que para las crecidas sobre LAO. A partir de la reflexión (004) se ha obtenido también el parámetro de red fuera del plano que ha sido utilizado para obtener el espesor de las capas a partir del

ritmo de crecimiento. El valor de este parámetro de red, es sustancialmente más grande que el valor de la estructura pseudocúbica del LSTO masivo (3.941 Å), lo que se debe a una tensión compresiva procedente del sustrato. Los datos sobre la rugosidad, la FWHM ( $\Delta\omega_{004}$ ) y el parámetro de red fuera del plano se encuentran resumidos en la Tabla 5.4.

<b>SUSTRATO</b>	<b>ESPEJOR (nm)</b>	<b>RUGOSIDAD (nm)</b>	<b>PARÁMETRO DE RED FUERA DEL PLANO (Å)</b>	<b><math>\Delta\omega_{004}</math> (°)</b>
<b>STO</b>	33	0.22	3.984	0.65
<b>STO</b>	150	0.13	3.914	0.48
<b>LAO</b>	25	0.40	3.979	1.29
<b>LAO</b>	150	1.19	3.932	0.78

**Tabla 5.4.** Parámetros morfológicos y estructurales de las capas de Co-LSTO.

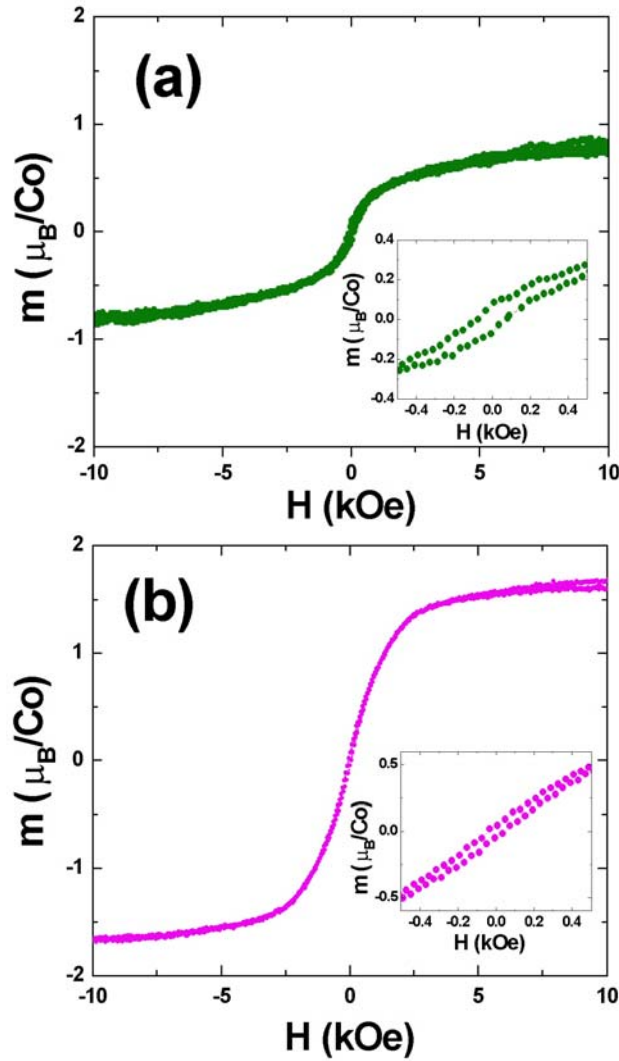
Para confirmar la estructura en el plano de las capas, se realizaron “ $\phi$ -scans” en las reflexiones (202) tanto del Co-LSTO como de los sustratos STO y LAO (Figura 5.6). Aunque en ambos sustratos, aparece crecimiento *cubo en cubo*, la FWHM de las muestras crecidas en LAO ( $\Delta\phi_{202} = 1.52^\circ$ ) es considerablemente mayor que la obtenida en las capas crecidas sobre STO ( $\Delta\phi_{202} = 0.30^\circ$ ). Esto nos indica que existe un grado elevado de mosaicidad en las capas crecidas en LAO debido a su peor calidad estructural. En el caso concreto de las muestras crecidas sobre STO, debido a la epitaxia entre el sustrato y las capas de Co-LSTO, la estructura de estas muestras se encuentra ligeramente distorsionada respecto a la del LSTO en masivo, pasando de ortorrómbica a tetragonal, debido a la estructura cúbica del sustrato STO.



**Figura 5.6.** “ $\phi$ -scans” de la reflexión (202) (a) sustrato LAO, (b) Co-LSTO, (c) sustrato STO y (d) Co-LSTO. El espesor de las capas de Co-LSTO es en ambos casos de 150 nm.

#### iv. Caracterización magnética

Tanto las muestras crecidas sobre LAO como las crecidas sobre STO presentan ferromagnetismo a temperatura ambiente (Figura 5.7), lo que concuerda con el trabajo de Zhao y colaboradores [6] en el que obtenían una  $T_C$  de 450 K en capas de Co-LSTO crecidas sobre LAO. Hemos obtenido valores para la imanación de saturación de  $0.85 \mu_B/\text{Co}$  para el sustrato de STO mientras que para la capa crecida en LAO ha sido de  $1.6 \mu_B/\text{Co}$ . J. M. D. Coey y colaboradores [12-13] proponen en sus trabajos un modelo en el que el ferromagnetismo aparece debido a la presencia de una banda de impurezas con desdoblamiento de espín que se acopla a los niveles 3d de los dopantes magnéticos. Según este modelo, la imanación estaría relacionada con los defectos del material por lo que, si este modelo es válido en el Co-LSTO, permitiría explicar el que la muestra con peor calidad cristalina, y por tanto, con mayor densidad de defectos, sea la que mayor imanación presenta.



**Figura 5.7.** Ciclos de histéresis a temperatura ambiente medidos en un AGFM para capas de Co-LSTO de 150 nm de espesor crecidas sobre (a) STO y (b) LAO.

En cualquier caso, para favorecer la integración de un material dentro de una estructura es preciso que su rugosidad sea baja. Por tanto, a pesar de que las capas de Co-LSTO crecidas sobre LAO presentan una mayor imanación de saturación, se ha elegido el sustrato de STO para realizar los sucesivos crecimientos debido a la menor rugosidad de las capas crecidas en este sustrato.

#### **5.4. Caracterización estructural y morfológica de películas delgadas de Co-LSTO.**

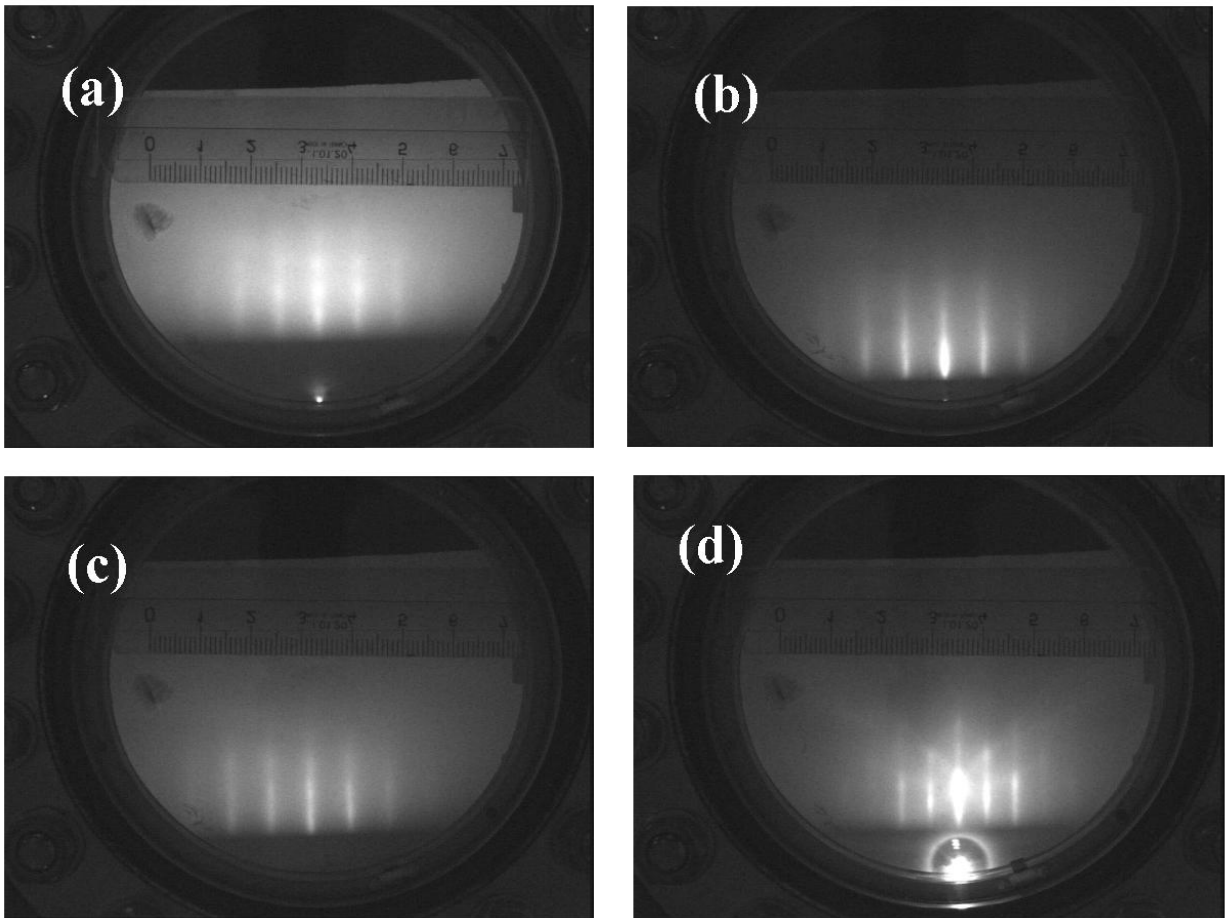
Debido a que los óxidos magnéticos diluidos (DMOS: *Diluted Magnetic Oxide System*) se obtienen a partir del dopado de una matriz no magnética con pequeñas cantidades de impurezas, es de gran importancia evitar la formación de agregados o fases parásitas. En este trabajo se ha realizado una caracterización en detalle para determinar si, dentro de los límites de resolución de las técnicas experimentales empleadas, existen agregados de Co. Estas técnicas han sido: RHEED, difracción de rayos-x, AFM, espectroscopia Auger (AES) y microscopía electrónica de transmisión (TEM).

Se utilizó el blanco elaborado por el Prof. P. Berthet con un contenido de Co del 1.5 % y los producidos en el laboratorio del Dr. R. Lebourgeois con contenidos en Co del 0, 1.5 y 3 %. Por comodidad, llamaremos al primer blanco #B y #RL a los otros. Las muestras de este apartado han sido crecidas con presiones de oxígeno menores o iguales a  $5 \cdot 10^{-6}$  mbar. Se ha trabajado en este rango debido a que en el trabajo de partida [6] se muestra que las propiedades de estas capas mejoran al crecerlas con baja presión de oxígeno.

##### **i. Caracterización por RHEED, AFM, difracción de rayos-x y TEM.**

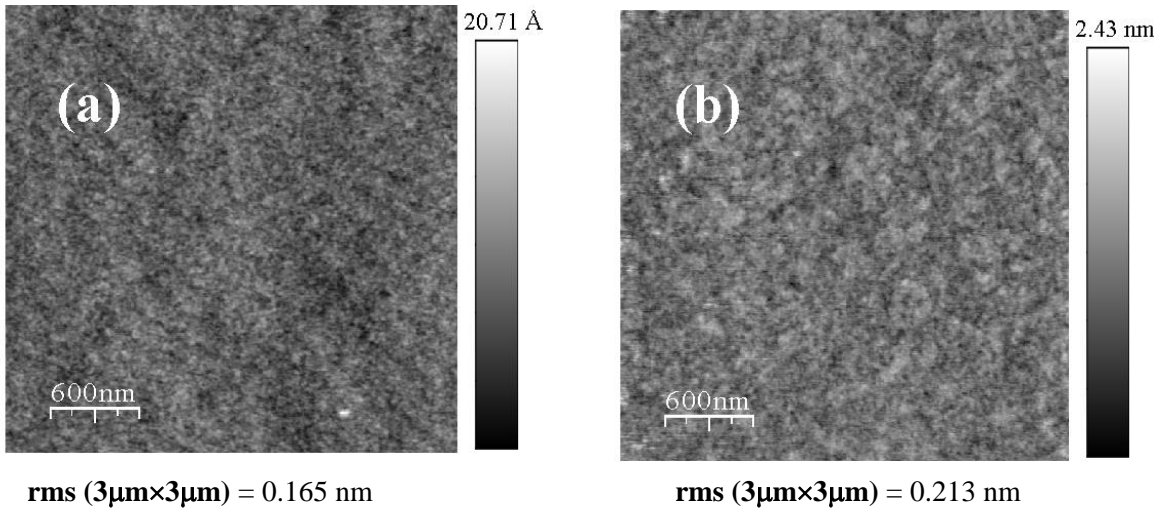
En los diagramas RHEED se observa que las capas de Co-LSTO presentan patrones característicos de crecimiento bidimensional independientemente del dopado de Co (Figura 5.8). Aún así, se observa que la muestra crecida a partir del blanco #B presenta un patrón RHEED menos difuso, indicativo de una posible menor resistividad eléctrica.



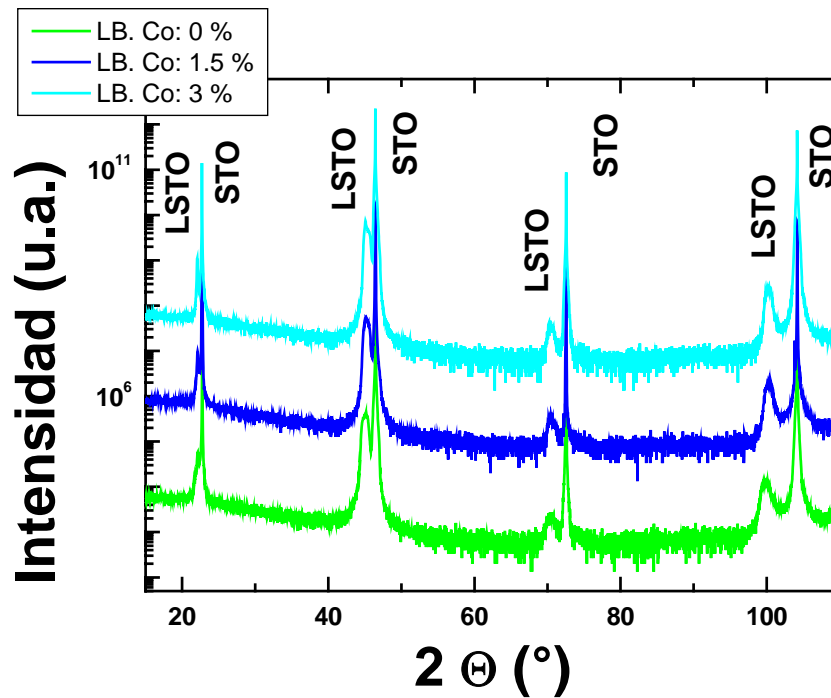


**Figura 5.8.** Imágenes de RHEED con el haz de electrones en la dirección [110] tomadas tras el crecimiento de capas de Co-LSTO con contenidos de Co de (a) Co: 0 %, (b) Co: 1.5 % y (c) Co: 3% obtenidos a partir del blanco de #RL. (d) Imagen de RHEED con el haz de electrones en la dirección [100] tomada tras el crecimiento de una capa de Co-LSTO obtenida a partir del blanco #B (Co: 1.5 %).

Las imágenes de AFM de la superficie de las capas indican que las capas son planas, sin que aparezcan evidencias de agregados de Co (Figura 5.9).



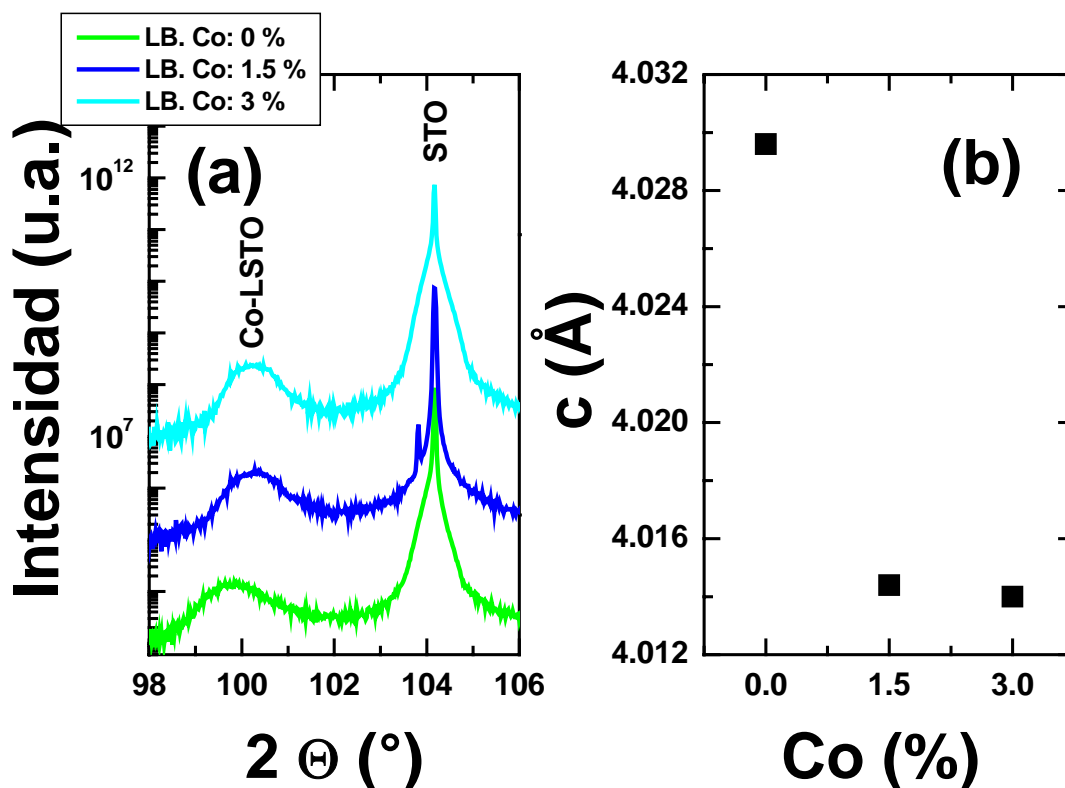
**Figura 5.9.** Imágenes de AFM de la superficie de las muestras en áreas de  $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$  con un contenido de Co (a) 0% (A12652) y (b) 3% (A12651). Estas dos muestras fueron depositadas a partir de blancos #RL.



**Figura 5.10.** Patrones de difracción de rayos-x de alto ángulo para las muestras crecidas a partir de los tres blancos #LB con dopados de 0, 1.5 y 3 %.

Como en las muestras anteriores, se realizaron medidas de difracción de rayos-x de alto ángulo para estudiar la estructura de estas capas en función de su dopado. Los patrones de difracción sólo muestran picos asociados a la estructura perovskita del Co-LSTO y al sustrato STO siendo las capas monofásicas, con textura (001) y sin indicios de agregados de Co (Figura 5.10).

En la figura 5.11 (a) se muestra los picos asociados a la reflexión (004) tanto de la estructura perovskita de la capa de LSTO como del sustrato de STO. A partir de esa reflexión se ha calculado el parámetro de red fuera del plano y la FWHM de las capas de Co-LSTO.



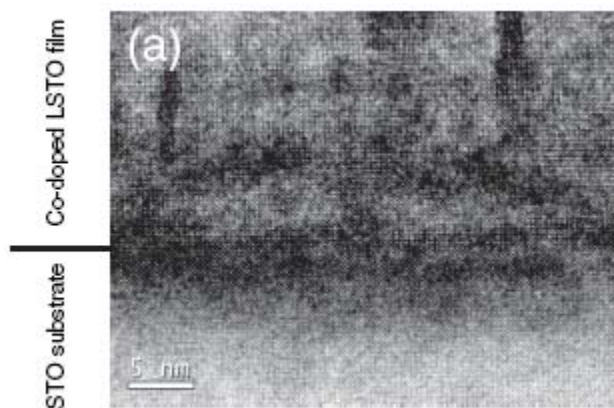
**Figura 5.11.** (a) Reflexión (004) de los difractogramas de rayos-x de alto ángulo tanto de las capas de Co-LSTO como del sustrato. (b) Parámetro de red fuera del plano obtenido a partir de la reflexión (004) en función del dopado de Co para capas de Co-LSTO crecidas a partir de distintos blancos.

Al dopar con Co, cambiamos el radio iónico de los átomos que se encuentran en las posiciones B de la estructura perovskita ( $\text{ABO}_3$ ) ya que el Co se introduce en estas posiciones que originalmente se encuentran ocupadas por Ti. La valencia de los átomos en la posición B de la estructura perovskita depende de los átomos que ocupen las posiciones A. Como tenemos una composición de  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Ti}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_3$ , eso significa que la mitad de los átomos de Ti se encuentran con una valencia 3+ y la otra mitad con una valencia 4+. Para el caso del Co está el 50% de los átomos con valencia 3+ y el otro 50% con valencia 2+. Los radios iónicos para el Ti y el Co que aparecen en el LSTO son por tanto:

$$\begin{aligned} \text{Ti}^{4+}: 0.68 \text{ \AA} \quad \text{Ti}^{3+}: 0.73 \text{ \AA} \\ \text{Co}^{3+}: 0.63 \text{ \AA} \quad \text{Co}^{2+}: 0.72 \text{ \AA} \end{aligned}$$

El radio iónico promedio para el Ti es de **0.705 Å**, mientras que para el Co es de **0.675 Å**. Al ser el radio iónico promedio del Co más pequeño que el del Ti en las capas de Co-LSTO se produce una disminución en el parámetro de red. Esta disminución se ha comprobado de forma experimental a partir de los difractogramas de rayos-x (Figura 5.11 (b)).

Las medidas de TEM fueron tomadas por el Prof. Jean-Luc Maurice perteneciente a la *Unité Mixte de Physique CNRS/Thales*. En ninguna de las medidas realizadas han aparecido fases parásitas, como  $(\text{La}, \text{Sr})\text{CoO}_3$  o agregados de Co. En la figura 5.12 se muestra una imagen de TEM de alta resolución en la dirección [100] de la intercara Co-LSTO/STO en la que se observa la buena epitaxia conseguida entre la capa y el sustrato.



**Figura 5.12.** Imagen de TEM de alta resolución para la sección de la intercara [100] Co-LSTO/STO. La capa de Co-LSTO ha sido crecida a una presión de  $6 \cdot 10^{-7}$  mbar siendo su espesor de 100 nm.

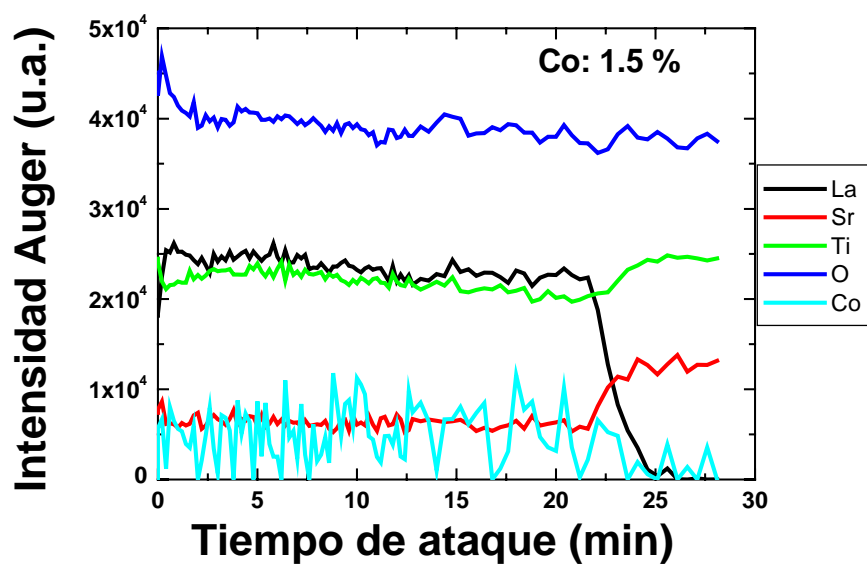
## ii. Espectroscopia electrónica Auger (AES)

Gracias a la combinación de la espectroscopia Auger y del bombardeo iónico se ha podido realizar un estudio de la composición de las muestras, tanto en su superficie como en su espesor. Mediante esta técnica se han estudiado una capa con una concentración de Co del 1.5 % obtenida a partir del blanco #B y una capa con un contenido en Co del 3 % depositada a partir de un blanco #LB. Ambas capas tienen un espesor aproximado de 130 nm, 133 nm en el caso de la muestra #B y 129 para la muestra #LB.

En la superficie de ambas muestras se encontraron trazas asociadas a elementos como Ag, S, C y Na. Estas trazas pueden deberse a contaminación superficial por el hecho de no haber almacenado las muestras en atmósfera controlada. Esta pequeña contaminación superficial desapareció tras realizar un proceso de limpieza por bombardeo iónico dentro de la campana Auger. El proceso de limpieza consiste en acelerar iones de argón que limpian la superficie de la muestra al impactar sobre ella (limpieza por sputtering). El proceso se realizó durante 90 segundos con un potencial de aceleración de 2 keV para los iones de Ar.

En estudios sobre óxidos magnéticos dopados con Co, se ha visto que aparecen agregados de Co cerca de la intercara entre la capa y el sustrato en el óxido de Ti en fase anatasa [14]. Se realizó por tanto un perfil Auger para estudiar si la composición de Co variaba a lo largo del espesor de la capa.

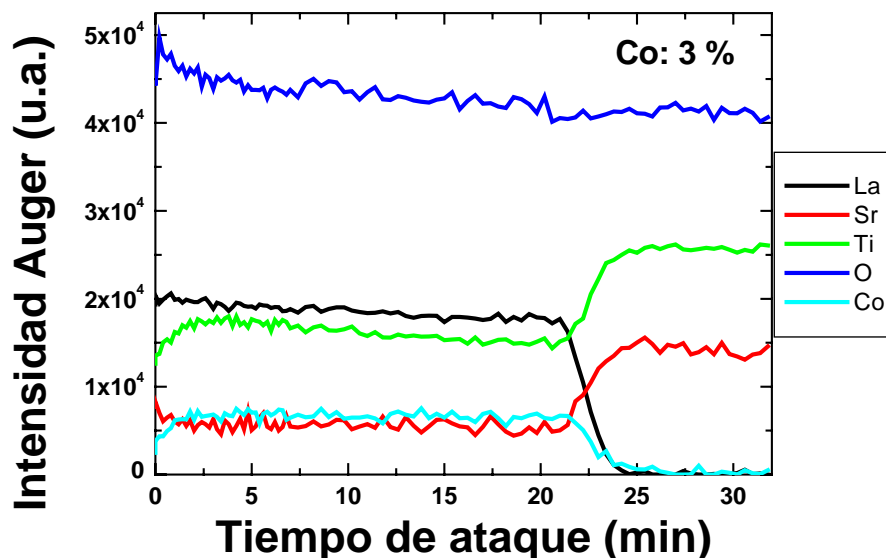
En primer lugar se estudió la muestra con un dopado del 1.5 %. Debido al bajo dopado de esta capa, la señal asociada al Co que se mide es muy ruidosa (Figura 5.13). Aun así, no hay indicios de un aumento de su concentración en ningún punto del perfil, es decir la concentración se mantiene uniforme (dentro del nivel de ruido asociado a la medida del Co) a lo largo del mismo. Estas medidas de espectroscopia Auger muestran que el contenido en Co es de aproximadamente el 1 %, siendo éste un valor ligeramente inferior al 1.5 % nominal del blanco.



**Figura 5.13.** Perfil de composición Auger obtenido a partir del tiempo de ataque por bombardeo iónico, para una capa de Co-LSTO con un espesor de 129 nm y una concentración nominal de Co del 1.5 %.

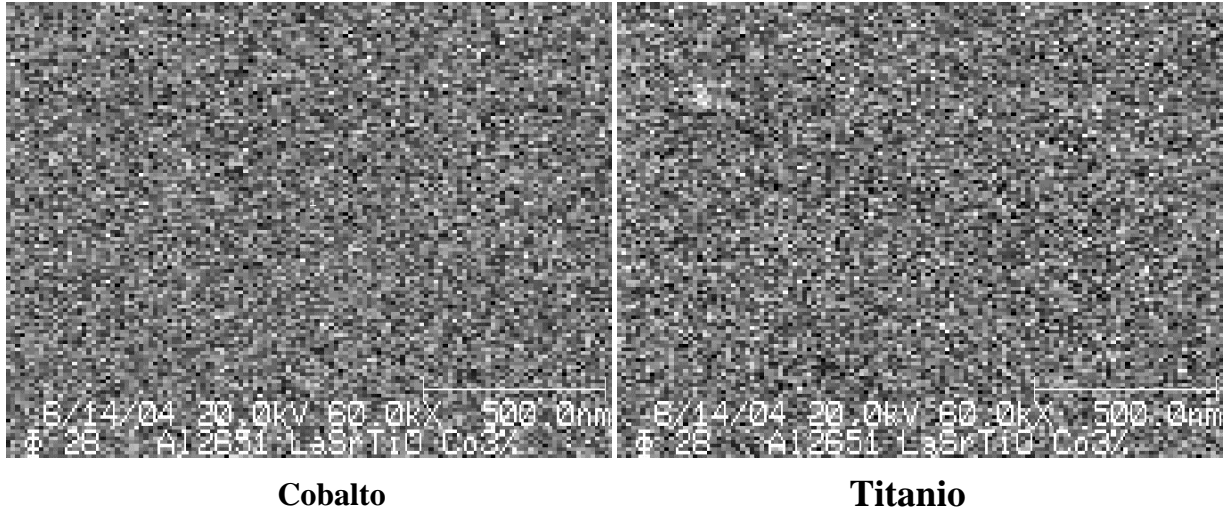
En la figura 5.13 aparece claramente un aumento brusco de la concentración de Sr y Ti, junto con un descenso en la concentración de La que se encuentra relacionado con el final del espesor de la muestra y el comienzo del sustrato.

La muestra con un dopado del 3 % fue más fácil de caracterizar debido a su mayor concentración de Co. Por esta razón, en esta muestra, no sólo se midieron perfiles de composición, sino que también se realizaron mapas de composición para estudiar su homogeneidad. En primer lugar mostramos el perfil de composición en el que se ve claramente como la concentración de Co es plana a lo largo de la muestra para descender bruscamente a cero cuando se llega al sustrato (Figura 5.14).



**Figura 5.14.** Perfil de composición Auger para la capa de Co-LSTO con un espesor de 133 nm y una concentración de Co del 3 %.

Los mapas de composición se realizaron tras haber atacado la muestra durante 7 minutos, es decir, en una posición intermedia entre su superficie y la intercara con el sustrato. Los mapas obtenidos indican que la composición de la muestra para el Ti y el Co es homogénea dentro de la resolución de la técnica (Figura 5.15). En este material se espera que los átomos de Co entren a ocupar las posiciones de la red asociadas a los átomos de Ti. Por tanto, si existieran agregados de Co debería observarse algún tipo de contraste en los mapas de composición de estos dos elementos, cosa que no sucede.



**Figura 5.15.** Mapas de composición asociados al Co y al Ti en la capa de Co-LSTO con un espesor de 133 nm y una concentración de Co del 3 %.

La resolución en la técnica Auger es algo mayor que el mínimo tamaño posible para el haz de electrones, por lo que se encuentra en torno a los 5-10 nm.

Teniendo en cuenta los resultados obtenidos en este apartado, se puede descartar la presencia de agregados de Co con un tamaño superior a 10 nm para muestras de Co-LSTO con dopados de hasta el 3 %.



## **5.5. Ferromagnetismo y polarización de espín de capas delgadas de Co-LSTO.**

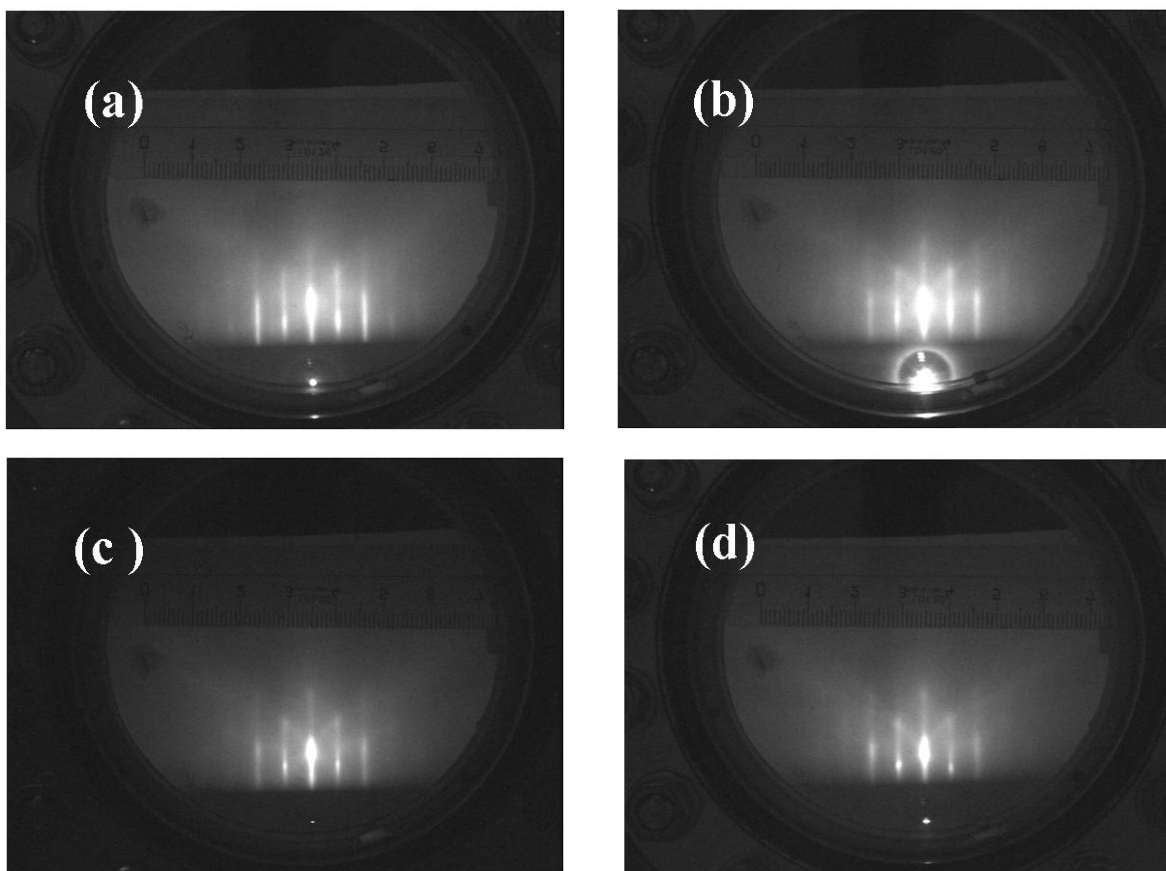
En este apartado aparecen los resultados que demuestran que el Co-LSTO es un ferromagnético con alta temperatura de Curie y con elevada polarización de espín. En primer lugar mostramos la optimización de las capas de Co-LSTO en función de la presión de oxígeno, mientras que en segundo lugar estudiaremos los fenómenos de magnetorresistencia túnel en uniones túnel magnéticas Co-LSTO/LAO/Co.

### **i. Influencia de la presión de oxígeno en las propiedades magnéticas de las películas delgadas de Co-LSTO.**

#### **a) Caracterización estructural y morfológica.**

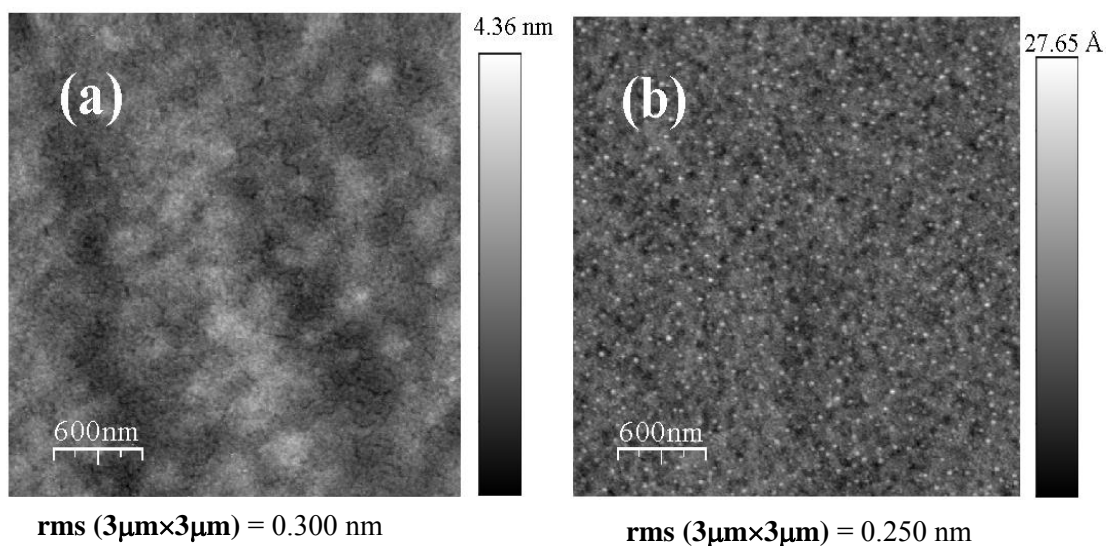
Las muestras analizadas en este apartado se depositaron siguiendo el mismo proceso que en apartados anteriores. Remarcar sin embargo, que el blanco utilizado para este estudio fue el elaborado por el Prof. P. Berthet con una concentración nominal de Co del 1.5 %. El rango de presiones de oxígeno utilizado para el crecimiento de las muestras fue desde  $2 \cdot 10^{-4}$  mbar hasta la presión residual de la campana. El espesor de las muestras en todos los casos es del orden de 130 nm.

Los diagramas de RHEED tomados tras el crecimiento de las muestras presentan el patrón asociado a crecimiento bidimensional (Figura 5.16). Sin embargo, según disminuye la presión de oxígeno, se observa un ligero cambio del patrón de RHEED hacia diagramas asociados a crecimiento tridimensional.



**Figura 5.16.** Imágenes de RHEED tomadas con el haz de electrones en la dirección [100] tras el crecimiento de las muestras crecidas a una presión de oxígeno de (a)  $p_{O_2} = 2.3 \cdot 10^{-4}$  mbar, (b)  $p_{O_2} = 5.1 \cdot 10^{-6}$  mbar, (c)  $p_{O_2} = 1.5 \cdot 10^{-6}$  mbar, (d)  $p_{O_2} = 6 \cdot 10^{-7}$  mbar, presión residual de la campana.

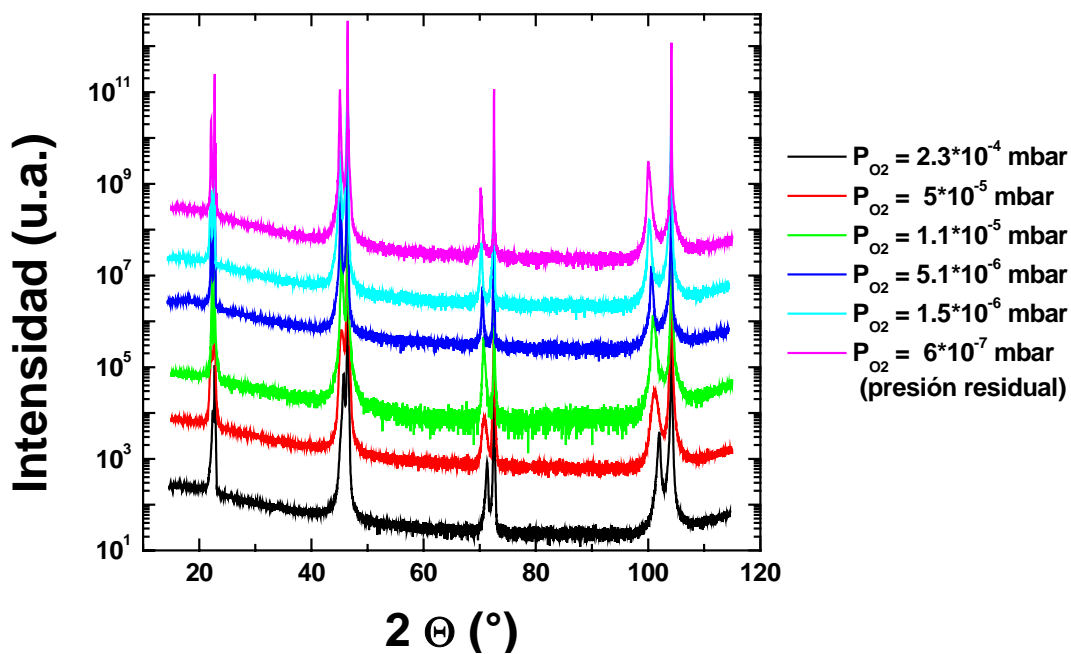
La morfología de la superficie de todas las muestras ha sido analizada mediante microscopía de fuerzas atómicas, la rugosidad cuadrática media (rms) se midió en áreas de  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$  (Figura 5.17). Los valores obtenidos para la rms oscilan entre 0.180 y 0.340 nm, sin que se haya observado ninguna relación destacable entre estos valores y la presión de oxígeno. En cualquier caso, se obtuvo un bajo valor de rugosidad en todas las capas.



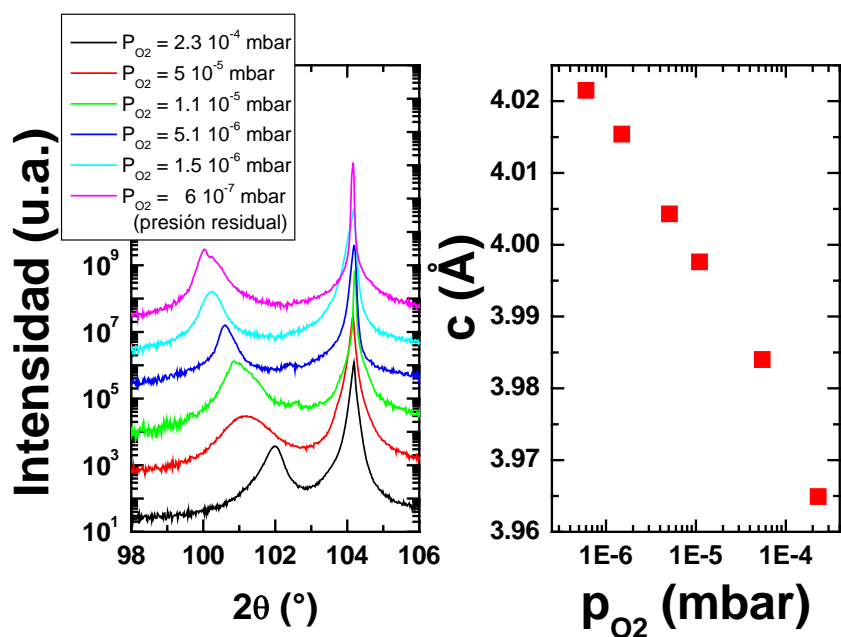
**Figura 5.17.** Imágenes de AFM de áreas de  $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$  en las muestras (a)  $p_{\text{O}_2} = 2.3 \cdot 10^{-4}$  mbar y (b)  $p_{\text{O}_2} = 1.1 \cdot 10^{-5}$  mbar.

En los difractogramas de rayos-x de alto ángulo sólo se observan los picos de difracción asociados al sustrato STO y a la estructura perovskita del LSTO, por lo que las capas son monofásicas (Figura 5.18). Dentro de la resolución de la técnica no se observan picos asociados ni a impurezas ni a agregados de Co. Las capas han crecido texturadas con la misma orientación del sustrato ya que sólo aparecen reflexiones del tipo (00l).

La FWHM oscila entre  $0.480^\circ$  y  $0.158^\circ$ , lo que indica una buena cristalinidad en todos los casos, independientemente de la presión de oxígeno. No se observa ningún tipo de relación entre la FWHM y otro tipo de características de las capas como la rugosidad o las propiedades eléctricas y/o magnéticas.



**Figura 5.18.** Difractogramas de rayos-x de alto ángulo para capas de Co-LSTO crecidas sobre sustratos de STO con distintas presiones de oxígeno. Las curvas han sido desplazadas verticalmente por claridad.

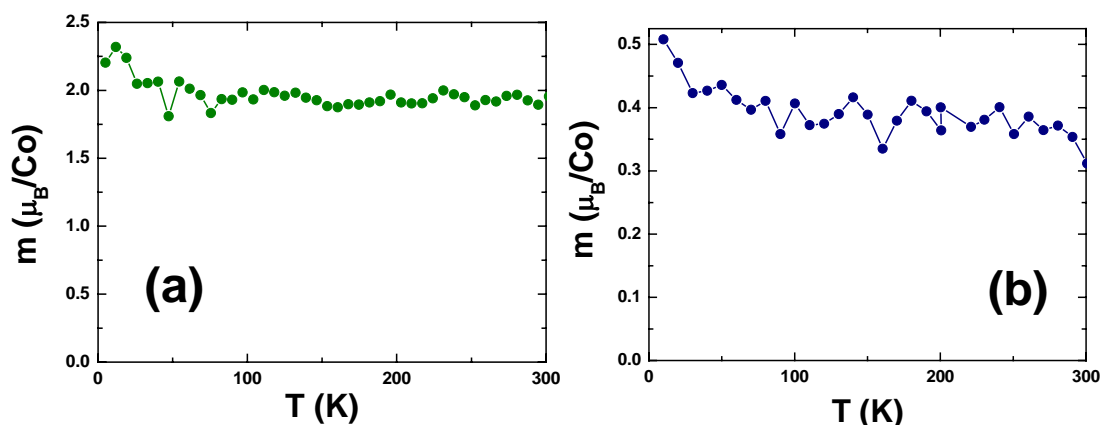


**Figura 5.19.** Reflexión (004) tanto del sustrato STO como de las capas Co-LSTO crecidas a distintas presiones de oxígeno (Izquierda). Parámetro de red fuera del plano de capas de Co-LSTO crecidas a distintas presiones de oxígeno (Derecha).

De nuevo, el parámetro de red fuera del plano ha sido calculado a través de la reflexión (004) obteniéndose un aumento de este parámetro al reducir la presión de oxígeno (Figura 5.19). Al reducir la presión de oxígeno, aumenta la concentración de vacantes de oxígeno y por tanto, crece la repulsión electrostática entre los electrones de los sitios A y B de la estructura perovskita. Es esta repulsión la responsable del incremento en el parámetro de red observado en los difractogramas de rayos-x.

### b) Caracterización magnética

Independientemente de la presión de oxígeno utilizada durante el crecimiento, todas las capas de Co-LSTO son ferromagnéticas a temperatura ambiente. Desde 10 K hasta 300 K, el momento magnético no muestra grandes variaciones con la temperatura lo que indica que la  $T_C$  se encuentra bastante por encima de 300 K (Figura 5.20).

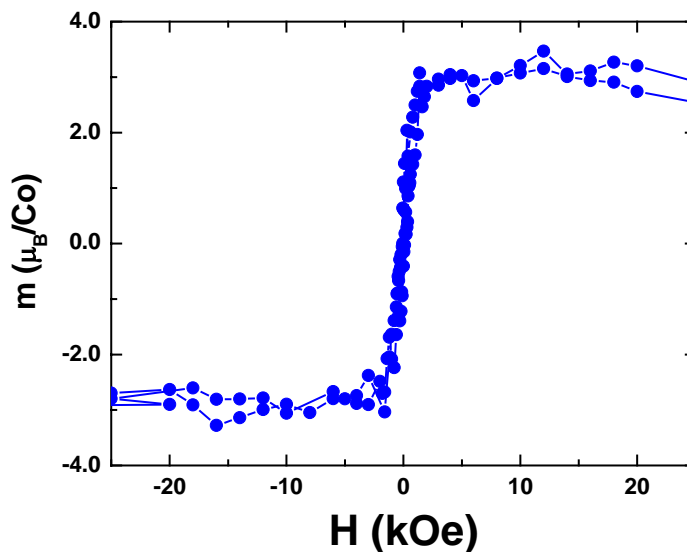


**Figura 5.20.** Momento magnético en función de la temperatura para un campo aplicado de 1 kOe, para capas de Co-LSTO crecidas con una presión de oxígeno de (a)  $1.5 \cdot 10^{-6}$  mbar y (b)  $5 \cdot 10^{-5}$  mbar.

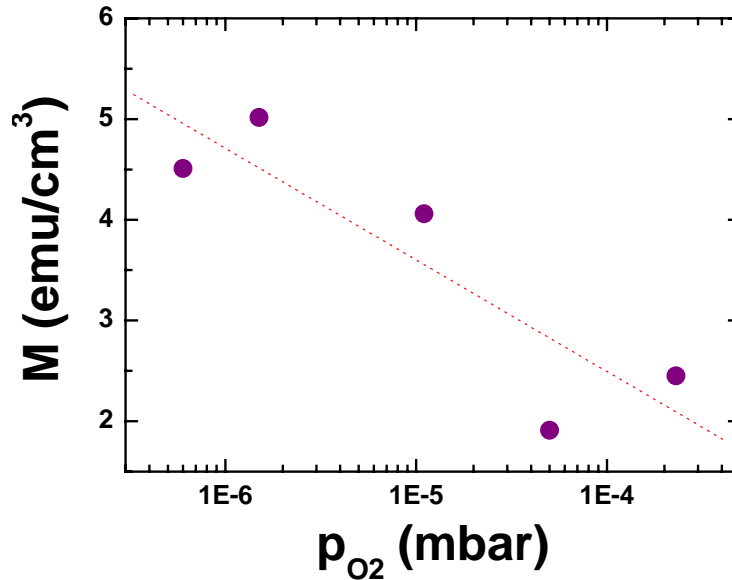
Las muestras analizadas en el SQUID generalmente son muestras de tamaño regular con dimensiones de aproximadamente  $0.5 \text{ cm} \times 0.5 \text{ cm}$ . El STO es un material diamagnético por lo que tiene una susceptibilidad negativa independiente de la temperatura. Para campos elevados, la señal magnética predominante es la procedente del sustrato, debido a que su espesor es mucho mayor que el de las capas de LSTO. Por eso,

a alto campo aparece una pendiente negativa en los ciclos de histéresis de la que se puede extraer la contribución diamagnética del sustrato y que permite su posterior eliminación. Se ha comprobado que la contribución diamagnética para todas las muestras es la misma, ya que todas presentan el mismo valor para el cociente entre la contribución diamagnética y la superficie de la muestra por lo que se puede descartar la aparición de contribuciones magnéticas espurias procedentes del sustrato. Los valores obtenidos se encuentran en torno a  $-2.4 \cdot 10^{-8}$  emu/Oe  $\text{cm}^2$ .

Los ciclos obtenidos por SQUID muestran que la remanencia a 10 K de las capas es baja (Figura 5.21). No se ha podido realizar un estudio de la anisotropía magnética a esta temperatura debido a las limitaciones de tamaño del SQUID. Los ciclos que se obtienen en general son ruidosos, debido a la baja señal magnética.



**Figura 5.21.** Ciclo de histéresis a 10 K para una capa de Co-LSTO crecida con una presión de oxígeno de  $1.5 \cdot 10^{-6}$  mbar.



**Figura 5.22.** Imanación de saturación a temperatura ambiente en función de la presión de oxígeno. El campo magnético fue aplicado en la dirección [100] del sustrato. La línea roja es un ajuste lineal a los datos experimentales.

Los valores para el momento magnético de saturación a temperatura ambiente expresados en unidades de  $\mu_B/\text{Co}$  se encuentran comprendidos entre 1.02 y 2.87  $\mu_B/\text{Co}$ . Como en ninguna de las capas se ha visto que este valor coincida con el del Co metálico (1.72  $\mu_B/\text{Co}$ ) se puede descartar la posibilidad de agregados de Co. Observamos sin embargo que existe una dependencia entre la imanación y la presión de oxígeno obteniendo un aumento de su valor al disminuir la presión utilizada en el crecimiento (Figura 5.22). Por tanto, como ya habíamos apuntado en el primer apartado de este capítulo, las vacantes de oxígeno juegan un papel muy importante en las propiedades ferromagnéticas de las capas de Co-LSTO. Los niveles de dopado utilizados en este estudio son bajos (1.5 %, 3 %), por lo que los átomos de Co se encuentran tan alejados unos de otros que se puede descartar una interacción directa entre ellos. Es decir, los átomos de Co se incorporan en la estructura perovskita ( $\text{ABO}_3$ ) en las posiciones de los átomos de Ti. En las perovskitas, los átomos de las posiciones B (en nuestro caso B = Ti) nunca se encuentran en contacto directo entre sí, sino que están rodeados de átomos de oxígeno que forman a su alrededor un entorno octaédrico. Así, las interacciones entre los

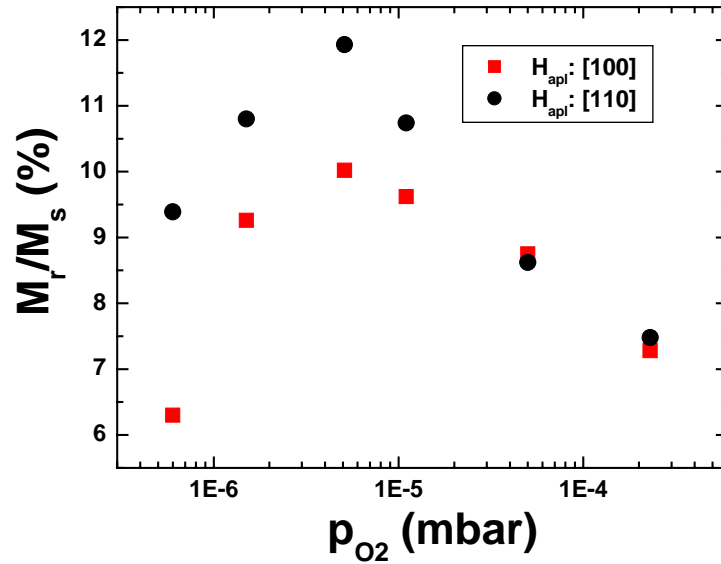
átomos de Ti y entre los átomos de Ti y los átomos de Co se realizan a través de los aniones de oxígeno. Por tanto, cualquier mecanismo que permita explicar el ferromagnetismo en este material tiene que considerar la intervención de los enlaces de oxígeno. Como se comentó en el primer apartado, un posible mecanismo para este ferromagnetismo sería el propuesto por Coey y colaboradores [12-13].

A temperatura ambiente sí se ha podido realizar un estudio de la anisotropía magnética, ya que en el AGFM existe espacio suficiente entre las piezas polares como para poder girar las muestras. En concreto, el campo externo se aplicó en las direcciones [100] y la [110] del sustrato de STO. La anisotropía se ha estudiado a partir del parámetro  $M_r/M_{sat}$ . Cuanto más cercano sea este valor a la unidad, más próxima está la dirección en la que se aplica el campo a una dirección de fácil imanación. Diferencias elevadas entre los cocientes  $M_r/M_{sat}$  obtenidos aplicando el campo en dos direcciones distintas indican una elevada anisotropía magnética. En la figura 5.23 se observa la evolución de  $M_r/M_{sat}$  con la presión de oxígeno para las direcciones [100] y [110]. Para las muestras crecidas a una presión de oxígeno inferior o igual a  $1.1 \cdot 10^{-5}$  mbar, la dirección [110] está más cerca de ser una dirección de anisotropía que la [100] mientras que para presiones de oxígeno por encima de  $1.1 \cdot 10^{-5}$  mbar, la remanencia es prácticamente la misma en las dos direcciones. Así, la anisotropía magnética al igual que la imanación de saturación, depende de la presión de oxígeno. En los dos casos la dependencia es la misma ya que se produce un aumento con la concentración de vacantes de oxígeno.

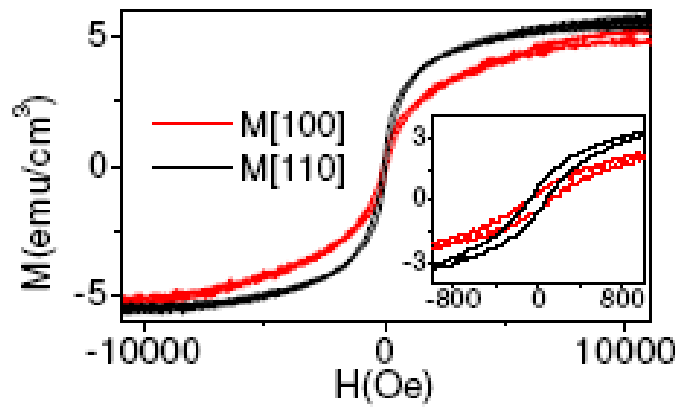
La anisotropía magnética se muestra claramente en la figura 5.24 donde se comparan dos ciclos de histéresis tomados a temperatura ambiente con el campo magnético aplicado en las direcciones [100] y [110].

Resumiendo, en este apartado hemos mostrado como las condiciones óptimas de crecimiento para capas delgadas de Co-LSTO, desde el punto de vista de las características magnéticas, son presiones bajas de oxígeno cercanas a la presión residual de la campana.





**Figura 5.23.**  $M_r/M_{sat}$  en función de la presión de oxígeno para ciclos medidos a temperatura ambiente aplicando el campo en la dirección [100] y en la [110] del sustrato de STO.

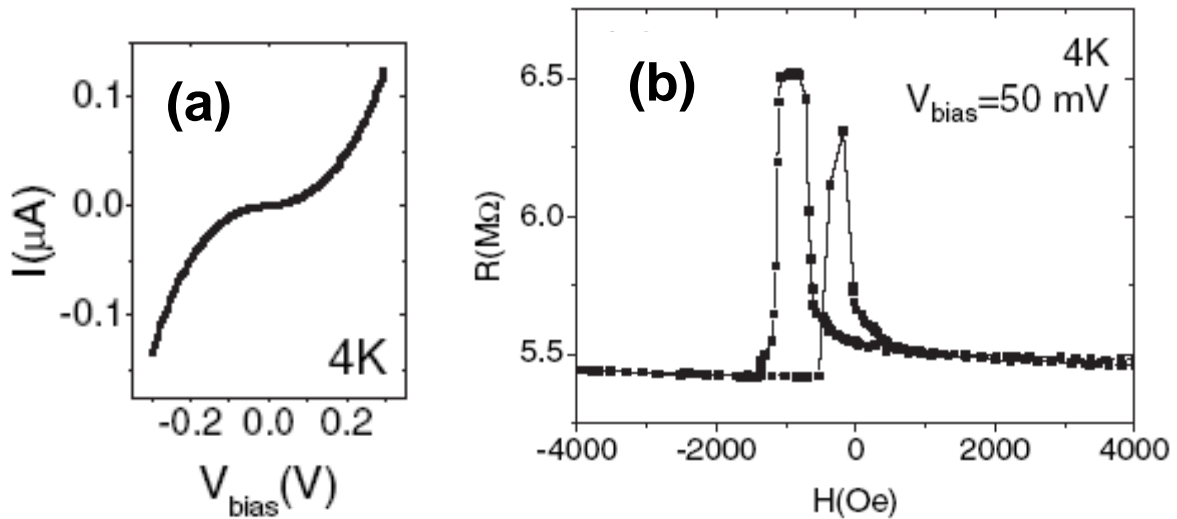


**Figura 5.24.** Ciclos de histéresis tomados a temperatura ambiente aplicando el campo en la dirección [100] y [110] del sustrato de STO, para una capa crecida con una presión de oxígeno de  $1.2 \cdot 10^{-6}$  mbar. El recuadro muestra el comportamiento para valores pequeños de campo aplicado.

## ii. Magnetorresistencia túnel (TMR)

Las medidas de TMR se realizaron en uniones magnéticas túnel de áreas comprendidas entre 6 y 128  $\mu\text{m}^2$  obtenidas a partir de procesos de fotolitografía óptica similares a los utilizados en [15]. Estas uniones son del tipo Co-LSTO(150 nm)/LAO(1.6 nm)/Co(12 nm)/CoO(3 nm)/Au(15 nm) en las que la capa de Au se utiliza para facilitar las microsoldaduras, la barrera túnel es una capa delgada de LAO y la capa de CoO se usa para anclar magnéticamente la imanación de la capa de Co y favorecer así la alineación antiparalela entre los electrodos. Se crecieron por PLD las capas de Co-LSTO y LAO para una presión de oxígeno de  $6 \cdot 10^{-7}$  mbar, mientras que las capas de Co y CoO se crecieron por sputtering. Las medidas de transporte realizadas en las uniones Co-LSTO/LAO/Co presentadas en este capítulo han sido realizadas por el Dr. Gervasi Herranz.

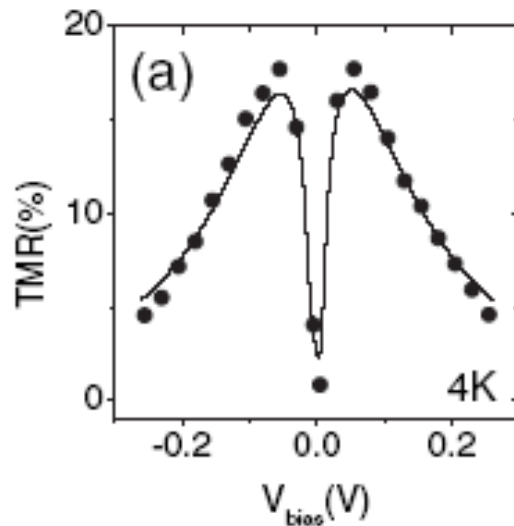
La no linealidad de la corriente en función del voltaje es indicativa del efecto túnel (Figura 5.25 (a)). La amplitud de la TMR obtenida a 4 K es de aproximadamente el 19 % (Figura 5.25 (b)).



**Figura 5.25.** (a) Curva I-V de una unión túnel Co-LSTO/LAO/STO de  $64 \mu\text{m}^2$  área medida a 4 K y con un campo magnético aplicado de 6 kOe. (b) TMR para la misma unión que en el caso anterior a 4 K y para un voltaje aplicado de 50 mV.

La asimetría en el ciclo de magnetorresistencia se puede explicar a partir del fenómeno de *exchange-bias* existente en la intercara Co/CoO y por el campo dipolar creado por la capa de Co en la estructura mesa. Utilizando la fórmula de Jullière teniendo en cuenta que la polarización en la intercara LAO/Co es -12 % [16], obtenemos una polarización en la intercara Co-LSTO/LAO de -9 %.

La expresión de Jullière proviene de un modelo fenomenológico que permite estimar de forma sencilla la polarización de espín para cada electrodo. Sin embargo, existen gran cantidad de trabajos en los que se ha estudiado la dependencia entre la TMR y diversos fenómenos como la estructura electrónica de la barrera [17-18], el grado de desorden dentro de la barrera [19] o el enlace entre la barrera y el electrodo en la intercara [20].



**Figura 5.26.** Dependencia de la TMR con el voltaje aplicado a 4 K de una unión Co-LSTO/LAO/Co con un área de  $64 \mu\text{m}^2$ . Los puntos son los datos experimentales y la línea el ajuste a la expresión teórica con  $P_L = -0.3$ ,  $P_R = -0.78$ ,  $\Gamma_L = 0.88 \text{ meV}$ ,  $\Gamma_R = 5.7 \text{ meV}$ ,  $\epsilon_C = 1.65 \text{ meV}$ .

La dependencia entre la TMR y el voltaje aplicado no presenta una curva característica (Figura 5.26). Tsymbol y colaboradores [21] explicaron este tipo de dependencia teniendo en cuenta la existencia de túnel resonante asistido a través de un

nivel de impurezas localizado. En nuestro caso, hemos ampliado el modelo presentado por Garcia y colaboradores [22] de forma que consideramos que existen niveles localizados, pero dentro de una banda. Esta banda tiene una anchura  $W$  y se encuentra centrada en un nivel de energía que está a una distancia  $\varepsilon_C$  del nivel de Fermi. La distribución de energías en esta banda se ha considerado de tipo Lorentziana. Los mejores ajustes se han obtenido en aquellos casos en los que la anchura de la banda era estrecha ( $W \rightarrow 0$ ).

$$G(\sigma, \sigma') = \frac{4e^2}{h} \frac{\Gamma_{L\sigma} \Gamma_{R\sigma'}}{\Gamma_{L\sigma} + \Gamma_{R\sigma'}} \times \frac{\Gamma_{L\sigma} + \Gamma_{R\sigma'} + W}{4(\varepsilon - \varepsilon_C)^2 + (\Gamma_{L\sigma} + \Gamma_{R\sigma'} + W)^2}$$

$\Gamma_{L\sigma}/\hbar$ ,  $\Gamma_{R\sigma'}/\hbar$  son los ritmos para el paso de un electrón desde el estado localizado hacia el electrodo izquierdo (L) o el derecho (R),  $\sigma$  y  $\sigma'$  se refieren al estado de espín ( $\uparrow, \downarrow$ ) del electrodo izquierdo y derecho respectivamente. Los parámetros de este modelo son seis,  $\Gamma_{L\sigma}$ ,  $\Gamma_{R\sigma'}$ ,  $W$ ,  $\varepsilon_C$ ,  $P_L = (\Gamma_{L\uparrow} - \Gamma_{L\downarrow})/(\Gamma_{L\uparrow} + \Gamma_{L\downarrow})$  y  $P_R = (\Gamma_{R\uparrow} - \Gamma_{R\downarrow})/(\Gamma_{R\uparrow} + \Gamma_{R\downarrow})$ . Estos últimos dos parámetros son las polarizaciones de espín de cada electrodo. Se han ajustado a la expresión anterior, distintas curvas de dependencia entre la amplitud de TMR y el voltaje aplicado, obteniendo resultados similares a partir de distintas uniones. Los ajustes nos dan valores  $P_L = -0.25 \pm 0.05$  y  $P_R = -0.80 \pm 0.02$ , ó  $P_L = 0.25 \pm 0.05$  y  $P_R = 0.80 \pm 0.02$  ya que sin más datos no podemos determinar el signo de la polarización de cada electrodo. Teniendo en cuenta que Garcia y colaboradores obtienen un valor de  $-12\%$  para la intercara Co/LAO [16], la intercara Co-LSTO/LAO, es la que presenta una polarización de spín negativa y del  $80\%$ . Este valor tan elevado no sólo resulta interesante por la alta polarización de espín que representa sino que también es indicativa de que sólo es necesaria una pequeña cantidad de Co ( $1-2\%$ ) para inducir un ferromagnetismo robusto en el LSTO.

La aparición de estados localizados de impurezas en la barrera túnel se podría explicar teniendo en cuenta que el crecimiento de la capa de LAO se realiza en condiciones de baja presión de oxígeno. Estas condiciones de crecimiento, aunque son óptimas para las propiedades magnéticas de la capa de Co-LSTO, dan lugar a la creación de vacantes de oxígeno en la capa de LAO. Los estados asociados a estos defectos están

en el gap del LAO, lo que explica que exista túnel resonante asistido por estos estados. Como trabajo futuro se plantea explicar el papel del electrodo superior de Co y cual es el papel de los niveles de impurezas de la barrera en la dependencia de la TMR con el voltaje aplicado y la temperatura.

### **5.6. Estado de alta movilidad en el sustrato STO(001)**

Como comentamos en la introducción de este capítulo, el STO es un material aislante diamagnético ya que su banda 3d se encuentra completamente vacía de portadores. Sin embargo, se ha comprobado que sus propiedades de transporte pueden ser drásticamente alteradas mediante su dopado con Nb y La o mediante la introducción de vacantes de oxígeno. En todos estos casos se ha observado una transición al estado metálico [23-25].

En este capítulo se muestran los resultados obtenidos a partir de la caracterización eléctrica de capas de Co-LSTO crecidas sobre STO y LAO realizada en el Departamento de Física de la Facultad de Ciencias en Zagreb, Croacia, por los Drs. M. Basletic, E. Tafra y el Prof. Amir Hamzic. Los resultados muestran que al utilizar condiciones de baja presión de oxígeno se induce un estado de alta movilidad en el sustrato de STO. Se han realizado medidas de resistividad desde temperatura ambiente hasta aproximadamente 2 K y medidas de efecto Hall para campos de hasta 16 T y temperaturas que en algunos casos han sido de 1.5 K. Las medidas de resistividad de Zagreb permitieron ampliar los resultados preliminares que se obtuvieron en el equipo de Orsay en el que sólo se podían alcanzar temperaturas de aproximadamente 30 K. Aunque ambas caracterizaciones muestran resultados similares, sólo mostramos los resultados obtenidos en Zagreb ya que el rango de temperatura estudiado es más amplio.

Las características de las muestras analizadas en este apartado se encuentran resumidas en la siguiente tabla.

MUESTRAS	SUSTRATO	Co %	$t_{\text{LSTO}}$ (nm)	$p_{\text{O}_2}$ (mbar)
#1	STO	0	150	$10^{-6}$
#2	STO	1.5	150	$8 \cdot 10^{-7}$
#3	STO	1.5	150	$10^{-6}$
#4	STO	1.5	20	$10^{-6}$
#5	LAO	1.5	150	$7 \cdot 10^{-7}$
#6	STO	1.5	130	$2 \cdot 10^{-4}$

Tabla 5.5. Lista de muestras analizadas en este apartado.

Definimos el parámetro  $\mathfrak{R} = R_{300\text{K}}/R_{2\text{K}}$ . A partir de este parámetro hemos comprobado como la dependencia de la resistividad de muestras crecidas sobre STO a baja presión de oxígeno, independientemente de su contenido en Co y su espesor, es completamente distinta de la obtenida en muestras sobre LAO a baja presión o sobre STO a alta presión (Figura 5.27). Para las capas crecidas sobre STO a baja presión se obtienen valores para  $\mathfrak{R}$  entre 700 y 1700, mientras que para la capa crecida sobre LAO a baja presión es de aproximadamente 1.4 y para la capa crecida sobre STO a alta presión es de 1.3.

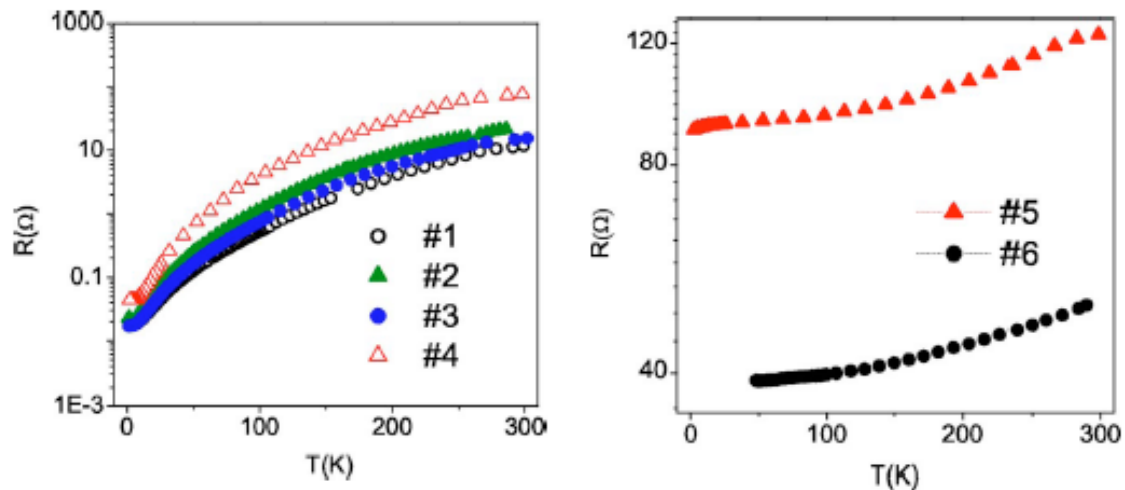
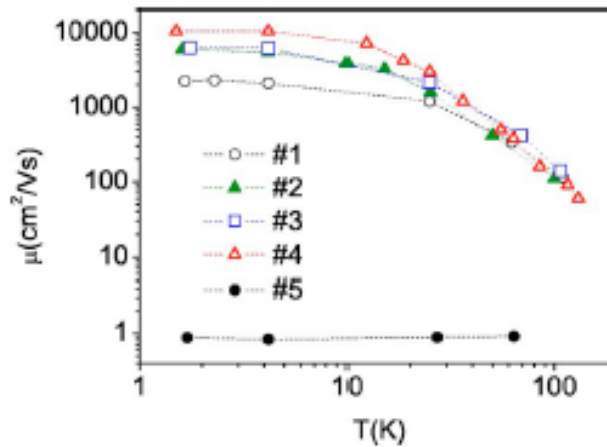


Figura 5.27. (a) Resistencia en función de la temperatura para las capas de la #1 a la #4. (b) Resistencia en función de la temperatura para las muestras #5 y #6.

La movilidad se ha obtenido de las medidas Hall a partir de la expresión:  $\mu = L/w(R_{xy}/R_{xx}B)$ , donde  $L$  es la distancia entre los contactos para medir el voltaje y  $w$  es la anchura de la muestra. Remarcar que el signo de los portadores obtenido indica que la conducción se realiza a través de electrones. Se observa que la movilidad de estas capas crecidas sobre STO a baja presión de oxígeno presentan valores de  $\mu$  del orden de  $10^4$   $\text{cm}^2/\text{Vs}$  mientras que la capa crecida sobre LAO tiene una movilidad del orden de  $1$   $\text{cm}^2/\text{Vs}$  (Figura 5.28).

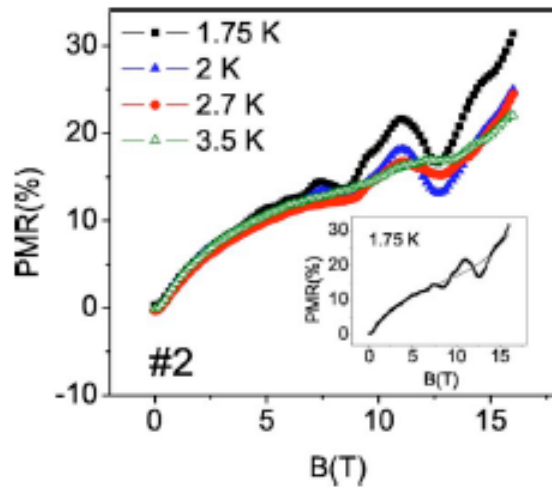


**Figura 5.28.** Movilidad electrónica en función de la temperatura para muestras crecidas a baja presión de oxígeno sobre STO y LAO.

Resumiendo, las capas crecidas a baja presión de oxígeno y sobre STO presentan los valores más grandes de  $\mathfrak{R}$  y  $\mu$ . Por tanto, no podemos asociar esta movilidad a las capas de Co-LSTO sino que es en el sustrato de STO donde se encuentran los portadores que dan lugar a esta movilidad tan elevada. Es decir, al crear vacantes de oxígeno por las condiciones reductoras utilizadas durante el crecimiento de la capa de Co-LSTO se ha inducido un estado de baja resistividad y alta movilidad en el sustrato de STO. La aparición de este estado metálico en el STO debido a la creación de vacantes de oxígeno fue mostrada anteriormente en un trabajo de Frederikse y colaboradores [26]. Cuando las capas son crecidas sobre LAO o sobre STO a alta presión de oxígeno, el sustrato mantiene sus propiedades aislantes. Por tanto, el análisis de los datos de efecto Hall nos daría la magnitud de las propiedades asociadas a la capa de Co-LSTO. Una capa de Co-

LSTO crecida sobre LAO presenta una densidad de portadores de aproximadamente  $9 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ .

Las medidas de magnetorresistencia han mostrado que cuando el STO ha alcanzado las condiciones de alta movilidad aparecen oscilaciones de Shubnikov-de Haas (SdH) a partir de 4 K y para campos magnéticos aplicados mayores o iguales a 6 T (Figura 5.29). Recordamos que estas oscilaciones son típicas de aquellos sistemas que presentan altas movilidades como el Bi o semiconductores del tipo GaAs o GaN. Hemos obtenido oscilaciones SdH tanto aplicando el campo magnético en la dirección perpendicular al sustrato como aplicándolo en el plano de la muestra, lo que indica que no es un efecto asociado a la intercara sino que el gas de electrones es tridimensional.



**Figura 5.29.** Resistencia en función del campo magnético aplicado en la configuración perpendicular (PMR: Perpendicular magnetoresistance) de la muestra #2 a diferentes temperaturas en las que se muestra las oscilaciones SdH. En el recuadro se muestra como se ha procedido a eliminar de las oscilaciones el fondo de la resistencia mediante un ajuste a un polinomio cúbico.

En la referencia [27] se puede encontrar un análisis detallado de las oscilaciones de SdH de este sistema. En ese artículo se muestra como el STO ha alcanzado un estado de alta movilidad con una densidad de portadores del orden de  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  y ritmos de dispersión del orden de  $10^{-11} \text{ s}$ . Estos valores tan bajos para la densidad de portadores (4 órdenes de magnitud inferior a los obtenidos en la capa de Co-LSTO), junto con la



elevada polarización de las capas de Co-LSTO, permite pensar en la posibilidad de inyectar portadores desde la capa ferromagnética hacia el STO de forma efectiva.

## 5.7. Referencias

- [1] K. Kumagai, T. Suzuki, Y. Taguchi, Y. Okada, Y. Fujishima, Y. Tokura, Phys. Rev. B **48**, 7636 (1993).
- [2] Y. Tokura, Y. Taguchi, Y. Okada, Y. Fujishima, T. Arima, K. Kumagai, Y. Iye, Phys. Rev. Lett. **70**, 2126 (1993).
- [3] Y. Fujishima, Y. Tokura, T. Arima, S. Uchida, Phys. Rev. B, **46**, 11167 (1992).
- [4] A. Fujimori, I. Hase, M. Nakamura, H. Namatame, Y. Fujishima, Y. Tokura, M. Abate, F.M.F. Degroot, M.T. Czyzyk, J.C. Fuggle, O. Strebelo, F. Lopez, M. Domke, G. Kaindl, Phys. Rev. B **46**, 9841 (1992).
- [5] J.E. Sunstrom, S.M. Kauzlarich, P. Klavins, Chem. Mater. **4**, 346 (1992).
- [6] Y. G. Zhao, S. R. Shinde, S. B. Ogale, J. Higgins, R. J. Choudhary, V. N. Kulkarni, R. L. Greene, T. Venkatesan, S. E. Lofland, C. Lanci, J. P. Buban, N. D. Browning, S. Das Sarma, A. J. Millis, Appl. Phys. Lett. **83**, 2199 (2003).
- [7] J.H. Park, E. Vescovo, H.J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, T. Venkatesan, Nature **392**, 794 (1998).
- [8] D. A. Crandles, Physica C **201**, 407 (1992).
- [9] D. A. Crandles, Phys. Rev. B **44**, 13250 (1991).
- [10] W. Wu, F. Lu, K. H. Wong, G. Pang, C. L. Choy, Y. Zhang, J. Appl. Phys. **88**, 700 (2000).
- [11] J. H. Cho, H. J. Cho, Appl. Phys. Lett., **79**, 1426 (2001).
- [12] J. M. D. Coey, M. Venkatesan, C. B. Fitzgerald, Nat. Mater. **4**, 173 (2005).
- [13] J. M. D. Coey, A. P. Douvalis, C. B. Fitzgerald, M. Venkatesan, Appl. Phys. Lett. **84**, 1332 (2004).
- [14] S. R. Shinde, S.B. Ogale, J.S. Higgins, H. Zheng, A.J. Millis, V.N. Kulkarni, R. Ramesh, R.L. Greene, T. Venkatesan, Phys. Rev. Lett. **92**, 166601 (2004).
- [15] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J.P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître, A. Fert, Appl. Phys. Lett. **82**, 233 (2003).
- [16] V. García, J.L. Maurice, E. Jacquet, K. Bouzehouane, J.P. Contour, A. Barthélémy, Appl. Phys. Lett. **87**, 212501 (2005).
- [17] P. Mavropoulos, N. Papanikolaou, P.H. Dederichs, Phys. Rev. Lett. **85**, 1088 (2000).

- [18] W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess, J.M. MacLaren, Phys. Rev. B **63**, 54416 (2001).
- [19] E.Y. Tsybal, D.G. Pettifor, Phys. Rev. B **58**, 432 (1998).
- [20] J. M. de Teresa, A. Barthélémy, A. Fert, J.P Contour, F. Montaigne, P. Seneor, Science, **286**, 507 (1999).
- [21] E.Y. Tsybal, A. Sokoov, I.F. Sabirianov, B. Doudin, Phys. Rev. Lett. **90**, 186602 (2003).
- [22] V. Garcia, H. Jaffrès, M. Eddrief, M. Marangolo, V. H. Etgens, J.M. George, Phys. Rev. B **72**, 081303(R) (2005).
- [23] O.N. Tufte, P. W. Chapman, Phys. Rev. **155**, 796 (1967).
- [24] H.P.R. Frederikse, W.R. Thurber, W.R. Soler, Phys. Rev. **134**, A442 (1964).
- [25] Y. Tokura, Y. Taguchi, Y. Okada, Y. Fujishima, T. Arima, K. Kumagai, Y. Iye, Phys. Rev. Lett. **70**, 2126 (2003).
- [26] H.P.R. Frederikse, W.R. Thurber, W.R. Soler, Phys. Rev. **134**, A442 (1964).
- [27] G. Herranz, M. Basletic, M. Bibes, R. Ranchal, A. Hamzic, E. Tafra, K. Bouzehouane, E. Jacquet, J.P. Contour, A. Barthélémy, A. Fert, Phys. Rev. B **73**, 064403 (2006).

# **Capítulo 6**

---

## **Conclusiones**

---



## 6. Conclusiones

### 6.1. Conclusiones

Los resultados más importantes obtenidos en este trabajo son:

- **Caracterización estructural, magnética y eléctrica de tricapas de Py/Gd/Py.**
  - La caracterización estructural de las tricapas de Py/Gd/Py ha demostrado que existe una difusión de Ni hacia la capa de Gd, preferentemente desde la capa superior de Py. El estudio morfológico de cada intercara mediante AFM ha mostrado que la rugosidad en la intercara superior es mayor que en la intercara inferior. Por todo esto, cabe esperar un peor acoplamiento magnético en la intercara Gd/Py superior.
  - El cálculo numérico muestra que las tricapas Py/Gd/Py estudiadas no presentan  $T_{Com}$  lo que puede explicarse por el elevado espesor de las capas que forman la estructura y por el bajo acoplamiento de canje Py-Gd. Sin embargo, dentro de la longitud de canje de cada material se produce un fenómeno de rotación de la imanación debido al acoplamiento antiferromagnético en las intercaras.
  - La caracterización magnética a temperatura ambiente indica que la capa superior de Py tiene mayor campo coercitivo que la inferior debido a su menor contenido en Ni.
  - La caracterización tanto magnética como eléctrica nos ha permitido determinar la temperatura de Curie de las intercaras de las tricapas, encontrándose los valores obtenidos en buen acuerdo con las temperaturas de Curie de las aleaciones de  $Gd_{1-x}Ni_x$ .
  - Hemos deducido el valor para la constante de acoplamiento Py-Gd a partir de medidas de magnetorresistencia a baja temperatura. El valor obtenido para esta constante es un orden de magnitud menor que la constante de acoplamiento entre el Fe y el Gd, ya que la existencia de las aleaciones  $Gd_{1-x}Ni_x$ .

$x\text{Ni}_x$  de baja temperatura de Curie en la intercara reduce la interacción de canje Py-Gd.

- Se ha mostrado la existencia de acoplamiento antiferromagnético en las tricapas de Py/Gd/Py, a temperaturas inferiores a la  $T_C$  de las aleaciones de  $\text{Gd}_{1-x}\text{Ni}_x$  de las intercaras.
  
- **Caracterización magnética del sistema optimizado Py/Gd.**
  - Para evitar la interdifusión del Ni, hemos propuesto una estructura basada en bicapas de Py/Gd separadas por capas espaciadoras de Mo. Estas muestras son de la forma:  $[\text{Py}/\text{Gd}/\text{Mo}]_x$ .
  - Las muestras  $[\text{Py}/\text{Gd}/\text{Mo}]_x$  presentan una intercara abrupta por lo que los fenómenos asociados al acoplamiento Py-Gd se observan a temperaturas superiores a las obtenidas en las tricapas.
  - A pesar de la mejora del acoplamiento Py-Gd, existe un rango de temperatura comprendido entre 250 K y 140 K en el que se han encontrado evidencias de que el acoplamiento magnetostático predomina frente al canje entre el Py y el Gd. Esta interacción puede explicarse a través del acoplamiento de las paredes de la capa de Py con la imanación de la capa de Gd. El espesor de las capas de Py hace energéticamente favorable la aparición de paredes en este rango de temperatura.
  - Se ha observado que el acoplamiento de canje antiferromagnético Py-Gd en la intercara aparece como predominante a temperaturas por debajo de 140 K y espesores de la capa de Py inferiores a 50 nm.
  
- **Estudio y optimización del sistema  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  dopado con Co (Co-LSTO).**
  - Las capas de Co-LSTO, crecidas tanto sobre STO(001) como sobre LAO(001), son ferromagnéticas a temperatura ambiente. Aunque las capas crecidas sobre LAO tienen mayor imanación de saturación, sólo las capas crecidas sobre STO presentan superficies suficientemente planas como para poder usar el Co-LSTO como electrodo en una unión magnética túnel.

- No se han observado agregados de Co en ninguna de las caracterizaciones realizadas (AFM, difracción de rayos-x, espectroscopia Auger, TEM de alta resolución), pudiendo concluir que no existen aglomerados de Co mayores de 10 nm en las capas de Co-LSTO estudiadas.
- Todas las capas de Co-LSTO son ferromagnéticas a temperatura ambiente, independientemente de la presión de oxígeno utilizada para el crecimiento de estas muestras. Existe un aumento en el valor de la imanación de saturación con el descenso de la presión de oxígeno que sugiere que las vacantes de oxígeno juegan un papel importante en la interacción de canje en este material.
- Los valores para la imanación de saturación son distintos que los del Co metálico lo que también apoya el que el ferromagnetismo sea intrínseco al material.
- Las medidas de magnetorresistencia túnel (TMR) en uniones túnel del tipo Co-LSTO/LAO/Co muestran que los portadores del Co-LSTO presentan una elevada polarización de espín. La dependencia de la amplitud de la TMR con el voltaje aplicado indica que existe un fenómeno de túnel asistido a través de un estado de impurezas localizado dentro de una banda.
- La caracterización eléctrica muestra que las condiciones de crecimiento a baja presión de oxígeno inducen un estado de alta movilidad en el sustrato de STO (con valores de movilidad de hasta  $\approx 10^4$  cm<sup>2</sup>/Vs) apareciendo oscilaciones de Shubnikov-de Haas a baja temperatura y altos campos magnéticos aplicados.



## 6.2. Conclusions

In this chapter the main results and conclusions of the experiments shown in this thesis will be reported.

- **Structural, electrical and magnetic characterization of Py/Gd/Py trilayers.**
  - The structural characterization has shown the existence of Ni interdiffusion from the top Py layer into the Gd layer. The morphological study of each Py/Gd interface has revealed a higher roughness in the top Gd/Py interface than in the bottom one. As a result, a weaker coupling at the top Gd/Py interface is expected.
  - The developed numerical calculus has shown the no existence of Compensation Temperature in these trilayers in spite of the Py-Gd antiferromagnetic exchange interaction at the interfaces. Nevertheless, along the exchange correlation length of each layer there is a rotation of the magnetic moments due to the Py-Gd coupling. We have used this magnetization rotation as an evidence of the Py-Gd antiferromagnetic coupling.
  - The magnetic characterization at room temperature shows that the top Py layer has a higher coercive field than the bottom layer due to its minor Ni content.
  - The Curie temperature of the interfaces has been determined by using the magnetic and electrical characterization. The experimental values are in good agreement with the  $Gd_{1-x}Ni_x$  alloys Curie temperature.
  - The Py-Gd exchange interaction constant has been deduced from the magnetoresistance measurements at low temperature. The obtained experimental value is one order of magnitude lower than Fe-Gd exchange coupling constant. This difference can be due to the  $Gd_{1-x}Ni_x$  alloys that reduce the Py-Gd exchange interaction at the interfaces.
  - These trilayers exhibit Py-Gd antiferromagnetic coupling at lower temperatures than the Curie temperature of the  $Gd_{1-x}Ni_x$  alloys. Magnetization rotation processes in the Py layer and the shift in the horizontal axis of the minor hysteresis loops show this effect.

- **Magnetic characterization of the optimized Py/Gd system.**
  - In order to avoid the Ni interdiffusion, we propose a system based on Py/Gd bilayers with a Mo spacer between these bilayers. The structure of the samples is [Py/Gd/Mo]<sub>x</sub>.
  - Samples in which the Ni interdiffusion is almost null exhibit effects related to the Py-Gd coupling at higher temperatures than in the trilayers. This effect can be explained by the improvement of the Py-Gd coupling.
  - In spite of this coupling improvement, results show that magnetostatic interaction is predominant from 250 to 140 K. This interaction can be explained by means of the coupling between the Py domain walls and the Gd magnetization. Domain walls can exist in this temperature range due to the high Py thickness of the studied samples.
  - The Py-Gd antiferromagnetic exchange coupling is effective at temperatures below 140 K and for a Py thickness lower than 50 nm.
  
- **Optimization and study of the La<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> doped with Co (Co-LSTO).**
  - Although Co-LSTO layers grown onto STO(001) and LAO(001) are ferromagnetic at room temperature, samples on LAO have a higher magnetic moment. However, only layers grown on STO have surfaces flat enough in order to use Co-LSTO thin films as an electrode of a magnetic tunnel junction.
  - No Co clusters have been observed in the structural characterization of Co-LSTO thin films (AFM, x-ray diffraction, Auger spectroscopy, high-resolution TEM). Therefore the existence of Co clusters higher than 10 nm can be ruled out in these samples.
  - All Co-LSTO layers are ferromagnetic at room temperature independently of the oxygen pressure used during their growth. Nevertheless there is an increase of the magnetic moment when the oxygen pressure is reduced suggesting that oxygen vacancies play an important role in the physical mechanism of the exchange interaction.
  - Magnetic moment values of Co-LSTO are different from that of Co metallic supporting that ferromagnetism in this material is intrinsic.

- Tunnel magnetoresistance (TMR) measurements show a high spin polarization of the Co-LSTO carriers. The bias dependence of the TMR amplitude is indicative of single-impurity-assisted tunneling being this result confirmed by means of a theoretical model.
- The electrical characterization shows that the low oxygen pressure growth conditions induce a high mobility state (up to  $\approx 10^4$  cm<sup>2</sup>/V s) on the STO substrate appearing Shubnikov-de Haas oscillations at low temperature and high applied magnetic fields.

## **Anexo**

---

# **Magnetorresistencia de películas delgadas de Py/Cu/Py**

---



## Anexo. Magnetorresistencia en películas delgadas de Py/Cu/Py.

### A.1. Introducción

En este anexo aparece el estudio realizado sobre la magnetorresistencia (MR) en tricapas de Py/Cu/Py. Esta investigación se realizó de forma previa al estudio de las estructuras Py/Gd a fin de comprobar la capacidad de nuestro sistema de sputtering para depositar capas delgadas de alta calidad, controlando de forma precisa su espesor. Se comprobó la capacidad de nuestro sistema experimental para obtener películas en las que existiera magnetorresistencia gigante (GMR: *Giant Magnetoresistance*) y se realizó un estudio sobre la influencia de la anisotropía magnética en la MR.

La GMR fue observada por primera vez en 1988 en multicapas de Fe/Cr crecidas mediante epitaxia por haces moleculares (MBE) [1], en las que se llegaba a obtener variaciones de la resistencia eléctrica cercanas al 50% a 4.2 K. Esta magnetorresistencia tan grande, no se podía explicar ni mediante la ecuación de transporte de Boltzmann ni mediante la AMR, por lo que el fenómeno se denominó magnetorresistencia gigante debido a la fuerte variación de la resistencia que aparecía (figura A.1).

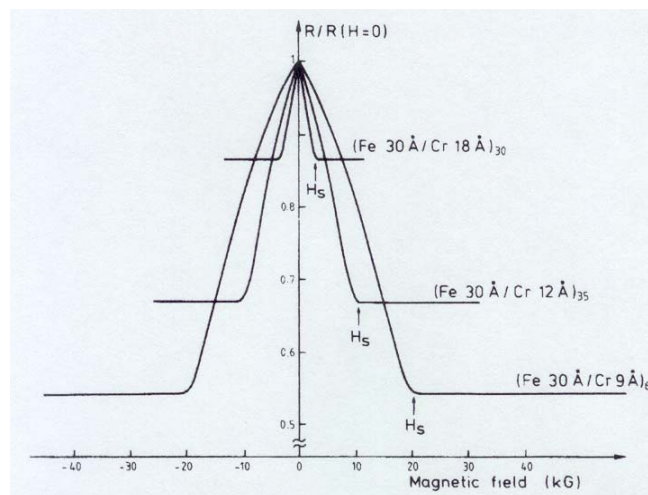
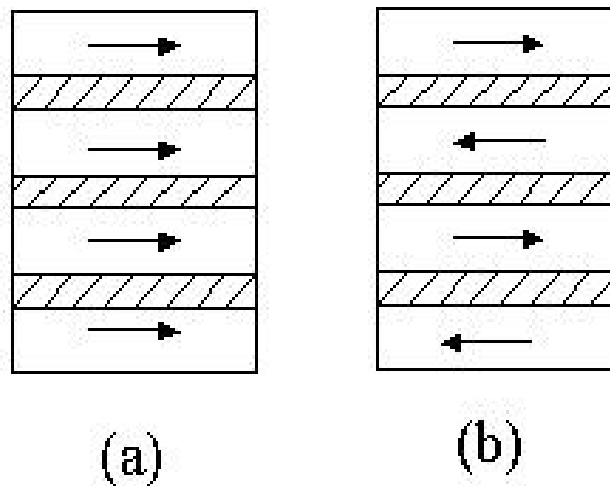


Figura A.1. Magnetorresistencia obtenida por Baibich a 4.2 K [1].

La GMR tiene su origen en los procesos de dispersión dependientes del espín. El camino libre medio de los electrones cuyo espín es antiparalelo a la imanación local es menor que el de los electrones con espín paralelo. Cuando la imanación en todas las capas magnéticas tiene el mismo sentido (configuración paralela, figura A.2. (a)), los electrones pasan de una capa magnética a otra sin que se vea alterada la orientación de su espín con respecto a la de la imanación. Sin embargo, si el sentido de las imanaciones es antiparalelo (configuración antiparalela, figura A.2 (b)), cuando un electrón pasa de una capa magnética a la siguiente, el sentido de su espín con respecto al de la imanación se encuentra invertido por lo que disminuye su recorrido libre medio [2]. Asociada a esta disminución del recorrido libre medio se encuentra un aumento la resistencia eléctrica que hace que en la configuración antiparalela la resistencia eléctrica sea mayor que en la paralela.



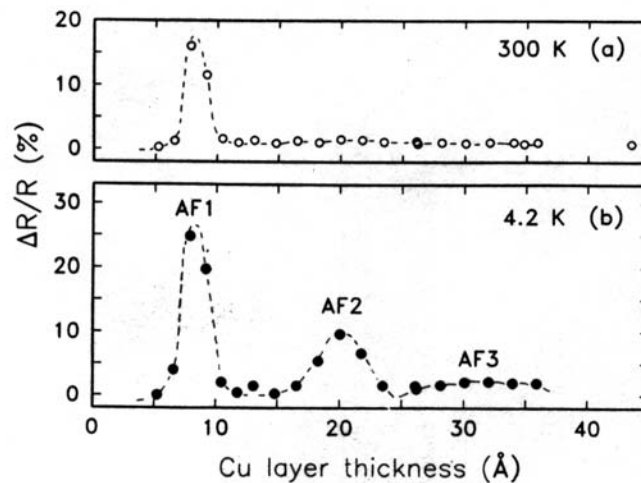
**Figura A.2.** Esquema de las configuraciones (a) paralela y (b) antiparalela para la imanación en una multicapa.

Para que exista GMR es necesario poder pasar de la configuración paralela a la antiparalela mediante la aplicación de campo magnético. En películas delgadas esto se puede conseguir en diversas estructuras:

- Multicapas acopladas antiferromagnéticamente [1, 3-6].

- Dos capas magnéticas estando una de ellas acoplada a un material antiferromagnético de tal forma que la dirección de su imanación se encuentre anclada [6-8].
- Multicapas en las que se alternan materiales magnéticos con distintos campos coercitivos [6, 9-10].

En las multicapas con acoplamiento antiferromagnético el acoplamiento oscila de ferromagnético a antiferromagnético [3] al variar el espesor de la capa no magnética (“*spacer*”) pudiendo explicarse esta oscilación mediante el modelo RKKY [11]. Utilizaremos esta fuerte dependencia entre el tipo de acoplamiento en la estructura Py/Cu/Py y el espesor de la capa no magnética [3], para comprobar que en nuestro sputtering se pueden crecer capas delgadas controlando su espesor a nivel nanométrico.



**Figura A.3.** Dependencia de la magnetorresistencia con el espesor de cobre para multicapas Si (100)/50 Å Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/[15 Å Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Cu(*t<sub>cu</sub>*)]<sub>14</sub>/25 Å para (a) 300 K y (b) 4.2 K. [3]

Estudios teóricos han mostrado que cuando la corriente circula perpendicularmente al plano (CPP: *Current Perpendicular to the Plane*) se pueden separar de forma clara las contribuciones a la magnetorresistencia procedentes del volumen de las contribuciones asociadas a las intercaras [12]. Sin embargo, debido a que en nuestro estudio estamos principalmente interesados en conocer si las tricapas Py/Cu/Py presentan GMR y para qué espesores, nos hemos limitado al estudio de la



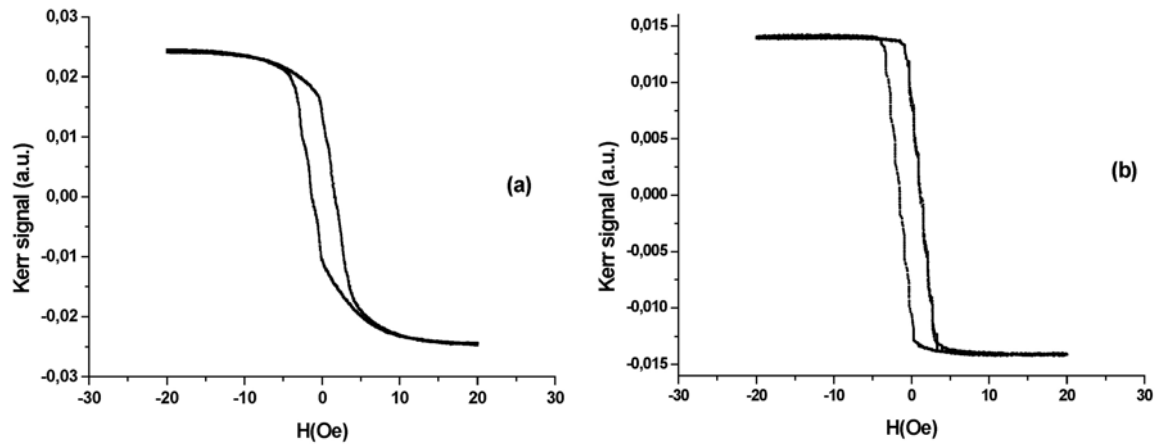
magnetorresistencia en el plano (CIP: *Current In the Plane*) ya que es un método mucho más sencillo desde el punto de vista del experimento.

## **A.2. Resultados experimentales**

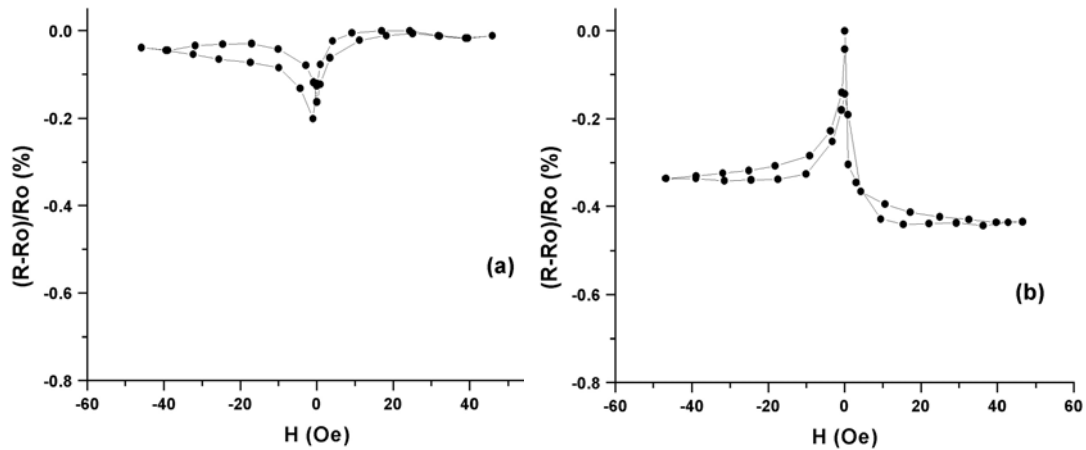
Las tricapas de Py/Cu/Py fueron crecidas mediante sputtering de magnetrón sobre sustratos de vidrio a temperatura ambiente. Ya que es necesaria una elevada precisión en el espesor de la capa de Cu para que en estas estructuras aparezca GMR, en primer lugar se estudió cuales eran las condiciones de crecimiento idóneas. Para ello, se mantuvo fija una potencia de 50 W y se varió la presión de Ar entre  $1.5 \cdot 10^{-3}$  mbar y  $3 \cdot 10^{-3}$  mbar, observándose que para esta última presión se obtenían ritmos de crecimiento suficientemente lentos como para controlar de forma precisa el espesor de las capas de Cu. La capa de Py se evaporó con una presión de Ar de  $2 \cdot 10^{-3}$  mbar y con una potencia de 50 W. Como las medidas de MR se realizaron en la configuración CIP no se depositaron capas *buffer* y/o *capping* de Mo para evitar que la corriente circulara por estas capas desvirtuando las medidas.

El espesor de las capas de Py fue de 11.3 nm mientras que el de Cu se varió entre 0.6 y 5.4 nm. En el interior de la campana de crecimiento existe un campo de aproximadamente 4 Oe procedente de los magnetrones, que origina que al rotar los sustratos durante el crecimiento aparezca una dispersión de la anisotropía.

Debido al bajo espesor de las tricapas, la técnica Kerr permite una caracterización “prácticamente” masiva de estas muestras. No se obtiene información completa de toda la tricapa ya que la profundidad de penetración de la luz (15 nm) es ligeramente inferior al espesor de las muestras ( $\sim 23$  nm). Los ciclos de histéresis a temperatura ambiente muestran que las capas no presentan un eje claro de fácil imanación debido a la alta dispersión de la anisotropía (Figura A.4).

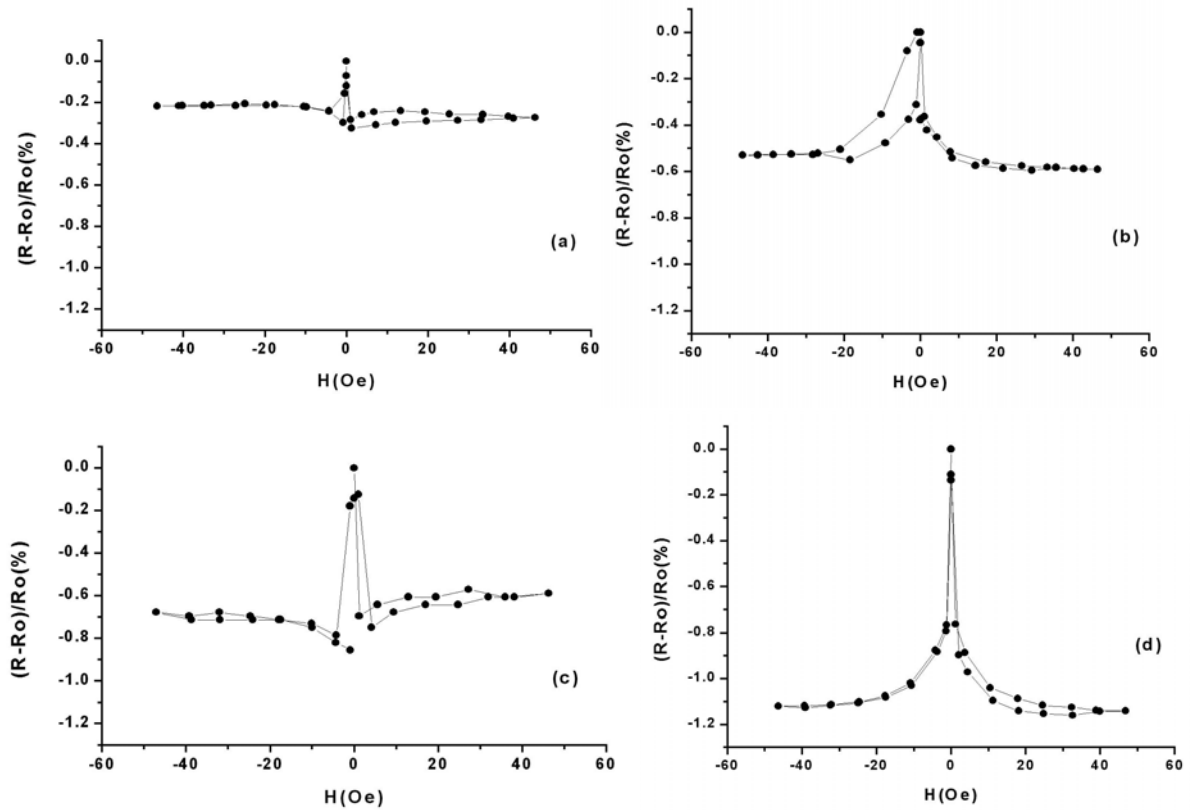


**Figura A.4.** Ciclos obtenidos por Kerr transversal para muestras con alta dispersión de la anisotropía con un espesor de cobre de 0.9 nm. El ángulo entre el campo magnético y un eje de referencia es de (a)  $90^\circ$  y (b)  $30^\circ$ .



**Figura A.5.** Magnetorresistencia para la muestra Py(11.3 nm)/Cu(1.1 nm)/Py(11.3 nm). (a) Campo paralelo a la corriente y (b) campo perpendicular a la corriente, ambas a temperatura ambiente. Esta muestra no presenta GMR.

La tricapa con un espesor de Cu de 1.1 nm no presenta GMR sino AMR como muestra la figura A.5.



**Figura A.6.** Magnetorresistencia para la muestra Py(11.3 nm)/Cu(0.9 nm)/Py(11.3 nm). (a) Campo paralelo a la corriente y (b) campo perpendicular a la corriente, ambas a temperatura ambiente. (c) Campo paralelo a la corriente y (b) campo perpendicular a la corriente, ambas a 10 K. Esta muestra presenta GMR.

Sin embargo, la tricapa con un espesor de Cu de 0.9 nm sí presenta GMR (Figura A.6.). En las configuraciones longitudinal y transversal la resistencia es elevada en la región de bajo campo magnético ya que las tricapas se encuentran en la configuración antiparalela en este intervalo de campo magnético. Al aumentar el campo aplicado se produce un descenso de la resistencia porque las capas de Py se alinean en la dirección del campo, pasando a la configuración paralela en la que la resistencia del sistema es mínima.

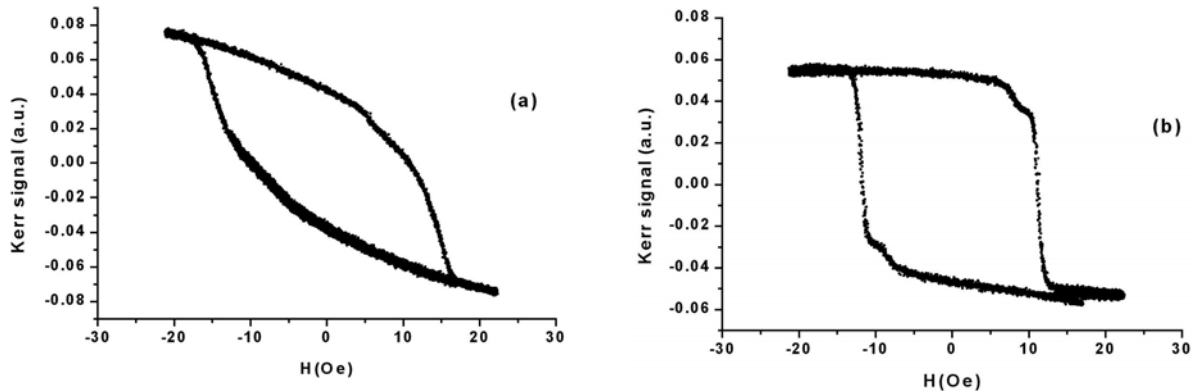
Esta tricapa presenta a 10 K un ligero aumento de la amplitud de la magnetorresistencia debido a que a baja temperatura se hacen más patentes aquellos fenómenos de dispersión que no dependen de la temperatura, como los procesos de

dispersión asociados al espín que gobiernan la GMR. La variación de la resistencia eléctrica debida a GMR es muy pequeña, 0.3 % a temperatura ambiente aumentando a 0.8 % a 10 K. Sin embargo, debido al bajo valor del campo de saturación ( $\sim 4$  Oe) se obtiene una sensibilidad (cociente entre la variación de la resistencia y el campo de saturación) de  $0.2 \text{ \%Oe}^{-1}$ . Aunque no es una sensibilidad muy elevada, es del orden de magnitud o ligeramente inferior a lo obtenido por otros autores en la época en la que se realizó este trabajo [5].

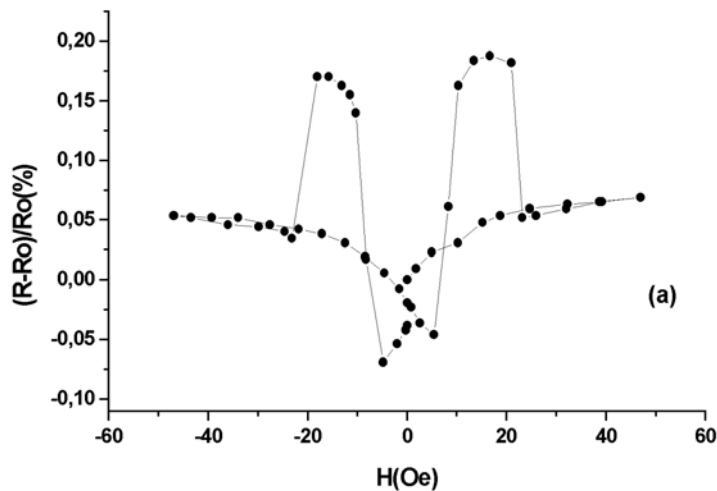
S.S. Parkin [3] mostró que las multicapas de Py/Cu presentan a baja temperatura acoplamiento antiferromagnético cuando el espesor de la capa de Cu es 0.9 y 2 nm. En nuestro estudio en tricapas de Py/Cu/Py sólo hemos observado este tipo de acoplamiento para un espesor de Cu de 0.9 nm. Una de las posibles razones para esta falta de acoplamiento para un espesor de Cu de 2 nm es que en el trabajo de S.S. Parkin el espesor de las capas de Py es un orden de magnitud más pequeño que en el nuestro, lo que permite un mejor acoplamiento magnético entre las capas de Py. Por otro lado, en la estructura multicapa existe un mayor número de intercaras que en la tricapa, lo que aumenta la importancia de los procesos de dispersión asociados al espín frente a los otros mecanismos de dispersión, favoreciendo así la observación de GMR. Estos dos efectos explican el que aparezca GMR para espesores de Cu de 2 nm en multicapas de Py/Cu.

Una vez que hemos comprobado la posibilidad de obtener muestras con GMR, se pasó a estudiar el efecto de la anisotropía en la magnetorresistencia de estas tricapas. Para ello, se creció una tricapa con las mismas condiciones de crecimiento que en el apartado anterior, con un espesor para las capas de Py de 22.6 nm y de 0.9 nm para la capa de Cu. En este caso, el sustrato no se rotó durante la evaporación de la muestra para inducir una dirección de anisotropía en las capas de Py aprovechando el campo magnético existente en la campana. Como muestran los ciclos por efecto Kerr (Figura A.7), se ha conseguido reducir la dispersión de anisotropía que aparecía en las muestras crecidas rotando el sustrato.

Aunque se volvió a obtener GMR en esta muestra, la sensibilidad se había reducido pasando del  $0.2 \text{ \%Oe}^{-1}$  al  $0.01 \text{ \%Oe}^{-1}$ , debido al aumento del campo de saturación (Figura A.8).



**Figura A.7.** Ciclos obtenidos por MOKE transversal para las muestras con baja anisotropía dispersión con un espesor de cobre de 0.9 nm. El ángulo entre el campo magnético y un eje de referencia es de (a)  $60^\circ$  y (b)  $30^\circ$ .



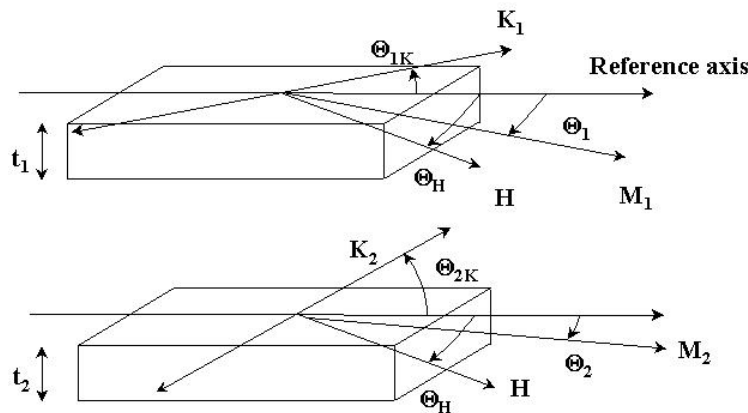
**Figura A.8.** Tricapa Py(22.6 nm)/Cu(0.9 nm)/Py(22.6 nm) con baja dispersión de la anisotropía. Magnetorresistencia en la configuración longitudinal (campo paralelo a la corriente) a temperatura ambiente.

### A.3. Estudio teórico

El cálculo numérico que aparece en este apartado fue desarrollado para entender la disminución de la sensibilidad aparecida en la tricapa con baja dispersión de la anisotropía. En nuestro modelo, se considera que los procesos de imanación tienen lugar exclusivamente por rotación ya que el bajo espesor de las capas magnéticas hace suponer que será poco favorable la aparición de paredes. En el modelo se considera que cada capa magnética de Py puede tener una anisotropía distinta, tanto en módulo como en dirección y para la imanación de las capas de Py se toma el mismo valor. La energía por unidad de área del sistema es:

$$W_s = k_C \cos(\theta_1 - \theta_2) + K_1 t \sin^2(\theta_{1K} - \theta_1) + K_2 t \sin^2(\theta_{2K} - \theta_2) - \mu_0 H M t [\cos(\theta_H - \theta_1) + \cos(\theta_H - \theta_2)]$$

Como eje de referencia se ha elegido la dirección de la corriente eléctrica que se aplica en las medidas de magnetorresistencia.  $M$  es la imanación de saturación y  $\theta_1$  y  $\theta_2$  son los ángulos entre la imanación de cada capa y el eje de referencia.  $K_1$  y  $K_2$  son las energías de anisotropía por unidad de volumen de cada capa y  $\theta_{1K}$  y  $\theta_{2K}$  los ángulos que forma cada eje fácil con el de referencia.  $H$  es el campo magnético externo aplicado y  $\theta_H$  el ángulo que forma con el eje de referencia. Por último,  $k_C$  es la energía de canje por unidad de área entre las capas magnéticas y  $t$  el espesor de las capas.



**Figura A.9.** Esquema de la configuración utilizada para el estudio teórico.

La configuración estable se obtuvo minimizando la energía mediante el método del gradiente conjugado tomando como parámetros  $K_1, K_2, \theta_{1K}, \theta_{2K}, \theta_H, k_C, t$  y  $H$ .

Para hallar los valores teóricos de magnetorresistencia se tuvo en cuenta sus dos contribuciones, la AMR y la GMR. Éstas se pueden distinguir entre sí a través de su diferente dependencia con los ángulos  $\theta_1$  y  $\theta_2$  [13].

$$R_{GMR}(\theta) = R_p + (R_{ap} - R_p)(1 - \cos(\theta_1 - \theta_2))/2$$

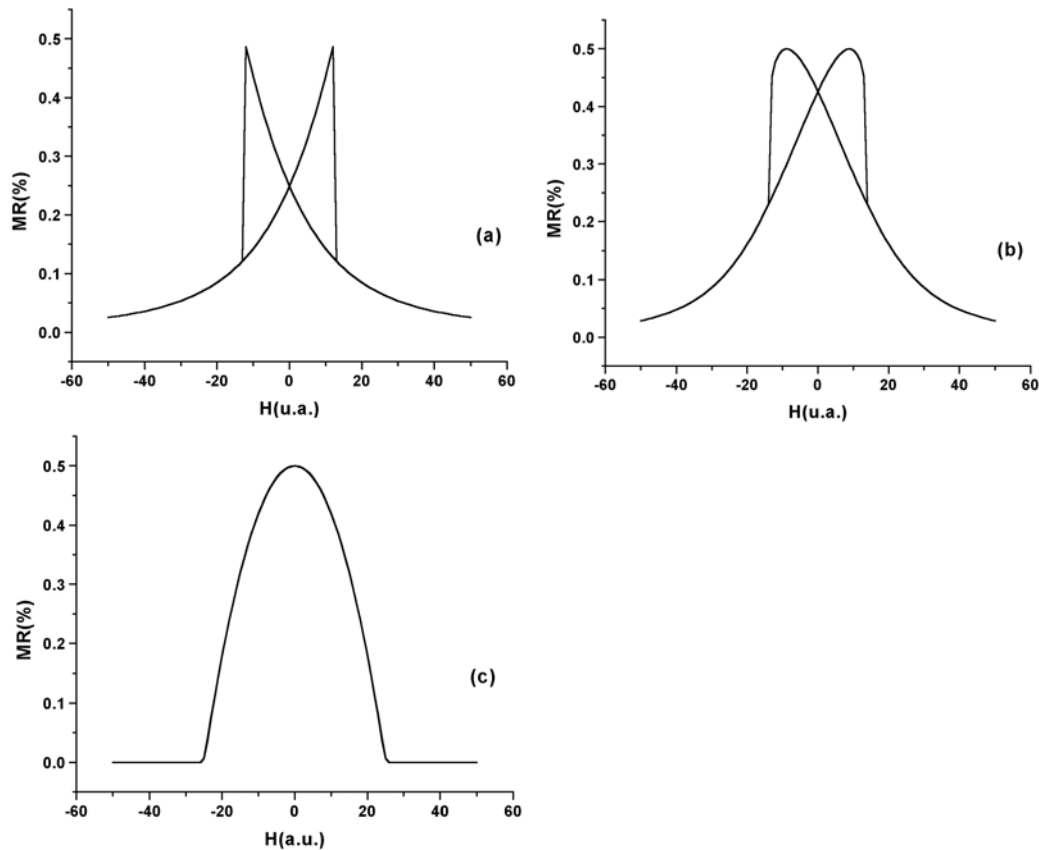
$$R_{AMR}(\theta) = R_{\parallel} + (R_{\parallel} - R_{\perp})(\cos^2 \theta_1 + \cos^2 \theta_2 - 2)/2$$

$R_p$  y  $R_{ap}$  designan la resistencia de la tricapa en las configuraciones paralela y antiparalela, respectivamente.  $R_{\parallel}$  y  $R_{\perp}$  lo hacen para los casos en los que la corriente sea paralela o perpendicular a la imanación.

Los resultados teóricos obtenidos han sido:

**a) Tricapas sin acoplamiento antiferromagnético**

Para que exista GMR es necesario que se pueda pasar de la configuración antiparalela a la paralela mediante la aplicación de campo. Para que esto fuera posible, en un principio buscamos el espesor de Cu que permitiera que existiera acoplamiento antiferromagnético entre las capas de Py. Con el modelo teórico se ha visto la posibilidad de obtener GMR sin acoplamiento, si los ejes de anisotropía de las capas magnéticas forman el ángulo adecuado ( $\theta_{1K} - \theta_{2K}$ ) (figura A.10). Otros autores [14] han llegado al mismo resultado de forma experimental pero sólo para el caso de que las anisotropías formen  $90^\circ$  ( $\theta_{1K} - \theta_{2K} = 90^\circ$ ). Nuestro modelo predice este resultado y, al ser más general, permite estudiar si este fenómeno es posible para otros ángulos. Al estudiar la magnetorresistencia en la configuración longitudinal, la GMR va a estar parcialmente enmascarada por la AMR debido a sus comportamientos opuestos.



**Figura A.10.** Magnetorresistencia en la configuración longitudinal para tricapas sin acoplamiento antiferromagnético. Las capas magnéticas tienen el mismo valor para el módulo de la anisotropía ( $K_1 = K_2$ ). (a)  $\theta_{1K} - \theta_{2K} = 90^\circ$ , (b)  $\theta_{1K} - \theta_{2K} = 135^\circ$ , (c)  $\theta_{1K} - \theta_{2K} = 180^\circ$ .

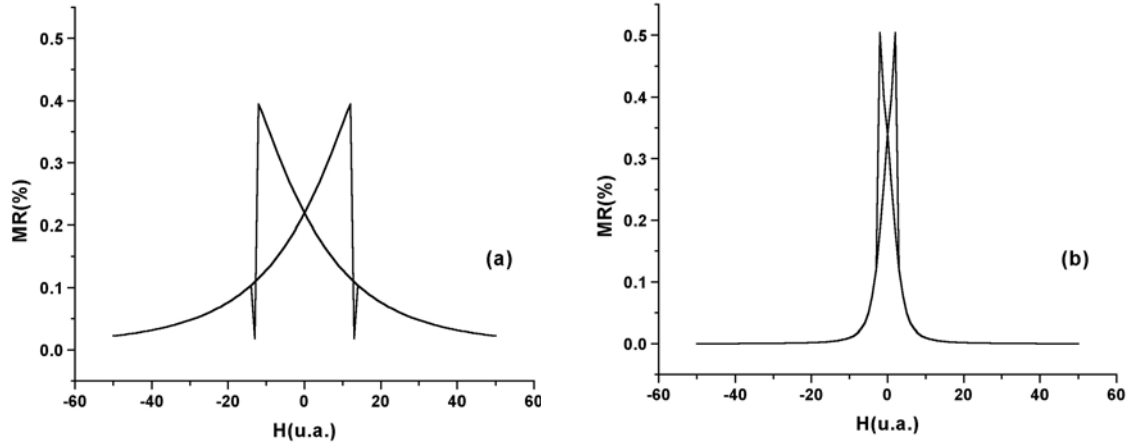
### b) Tricapas con acoplamiento antiferromagnético

En este caso va a haber GMR cuando  $\theta_{1K} = -\theta_{2K} = 0^\circ$  y  $\theta_{1K} = -\theta_{2K} = 180^\circ$ , ya que en esos dos casos la imanación de las capas se encuentra en direcciones opuestas. Los casos más interesantes serían:

**b.1)** Los ejes de anisotropía, el campo magnético y la corriente se encuentran alineados. Aquí el modelo deja de ser válido ya que los procesos de imanación van a tener lugar por desplazamiento de paredes. En todo caso, el efecto de la anisotropía es el de aumentar o reducir el campo coercitivo.



**b.2)** Misma situación que en **b.1)** pero con el campo magnético aplicado de forma perpendicular a la corriente. Aquí, la amplitud total de la magnetorresistencia aumenta debido a que la AMR y la GMR se están sumando.



**Figura A.11.** Magnetorresistencia en la configuración longitudinal para tricapas con acoplamiento antiferromagnético. El campo magnético es perpendicular a la corriente con la condición  $\theta_{1K} - \theta_{2K} = 180^\circ$ , (a)  $K_1 = K_2$ , (b)  $K_1^* = K_2^* = K_1 / 10$ .

La figura A.11 muestra como en tricapas con acoplamiento antiferromagnético se produce un aumento de la sensibilidad al reducir la constante de anisotropía. Este fenómeno concuerda con nuestros resultados experimentales, ya que las tricapas con elevada anisotropía de dispersión (que son aquellas para las que la constante de anisotropía es más pequeña) son las tricapas que presentan la sensibilidad más alta.

#### A.4. Conclusiones

Las conclusiones más importantes obtenidas en este anexo son las siguientes:

- Se ha comprobado que el espesor de cobre para el que aparece acoplamiento antiferromagnético en tricapas de Py/Cu/Py es de 0.9 nm.
- Aunque no se ha obtenido un valor elevado para la GMR, la sensibilidad es aceptable ( $0.2 \% \text{Oe}^{-1}$  en el mejor de los casos) debido al bajo campo de saturación de esta estructura.
- Se ha observado la influencia de la anisotropía en la magnetorresistencia de estas tricapas obteniéndose una disminución de la sensibilidad cuando aumenta la anisotropía.
- Se ha desarrollado un estudio teórico con el que se ha demostrado la posibilidad de obtener GMR sin necesidad de acoplamiento antiferromagnético cuando las direcciones de las anisotropías de las capas magnéticas forman ángulos adecuados.
- Los resultados teóricos muestran también que en tricapas acopladas antiferromagnéticamente se produce un aumento de la sensibilidad al reducir la anisotropía.

## Referencias

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [2] R. Gerber, C.D. Wright, and G. Asti. *Applied Magnetism*, Kluwer Academic Publishers, (1994).
- [3] S. S. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **60**, 512 (1992).
- [4] K. Matsuyama, K. Matsuo, Y. Nozaki, *J. Appl. Phys.* **87**, 5359 (2000).
- [5] S. Heitmann, A. Hütten, T. Hempel, W. Schepper, G. Reiss, *J. Appl. Phys.* **87**, 4849 (2000).
- [6] B. Dieny, *J. Magn. Magn. Mater.* **136**, 335 (1994).
- [7] F. E. Stanley, C. H. Marrows, B. J. Hickley, *J. Appl. Phys.* **87**, 4864 (2000).
- [8] W. Y. Lee, A. Samad, T. A. Moore, J. A. C. Bland, *J. Appl. Phys.* **85**, 6600(2000).
- [9] Dan Wei, *IEEE Trans. Magn.* **28**, 552 (1998).
- [10] J. Schleiweis, G. Schmitz, S. Heitmann, A. Hutten, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3439 (2001).
- [11] E. du Trémolet, *Magnétisme*, Grenoble Sciences, (2000).
- [12] T. Valet, A. Fert, *Phys. Rev. B* **48**, 7099 (1993).
- [13] B. Dieny, *J. Magn. Magn. Mater.* **136**, 335 (1994).
- [14] J. McCord, A. Hubert, J.C.S. Kools, J.J.M. Ruigrok, *IEEE Trans. Mag.* **33**, 3984 (1997).

