

EFFECTO DEL ESPESOR EN EL COMPORTAMIENTO MAGNÉTICO DE PELÍCULAS DELGADAS DE Mn₃Ga ELABORADAS POR EROSIÓN CATÓDICA SOBRE SiO₂/Si(001)

THICKNESS EFFECT ON THE MAGNETIC BEHAVIOR OF Mn₃Ga THIN FILMS SPUTTERED ON SiO₂/Si(001)

(Recibido el 09 de diciembre de 2014 - Aprobado el 27 de febrero de 2015)

Mg. Gonzalo Guízar Martínez
Universidad Tecnológica de Jalisco,
Profesor de tiempo completo asociado "C" UTJ,
Mecatrónica Área Automatización,
Guadalajara-México
gonzalo.guizar@utj.edu.mx

Mg. Carlos Alberto Partida Carvajal
Universidad Tecnológica de Jalisco,
Profesor de tiempo completo asociado "C" UTJ, Mecatrónica área Automatización,
Guadalajara-México
cpartida@utj.edu.mx

PhD. Sion Federico Olive Méndez
Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C.,
Investigador titular,
Chihuahua-México
sion.olive@cimav.edu.mx

Resumen. En este artículo se reportan los resultados obtenidos de la elaboración y caracterización de películas delgadas de Mn₃Ga sobre sustratos de SiO₂/Si(001) con diferentes espesores. La motivación para la realización de este trabajo es la contribución al campo de la nanotecnología, específicamente en el área de la espintrónica. Este material posee propiedades magnéticas únicas lo que le confiere una prometedora utilidad para la fabricación de Memorias Magnéticas de Acceso Aleatorio (MRAM, por sus siglas en inglés), siendo la mayor ventaja que almacenan la información de manera no volátil. Empleando difracción de rayos X (DRX) se determinó que las películas con espesores de 2 a 10 nm presentan la fase tetragonal del Mn₃Ga que es ferrimagnética, mientras que para espesores de 50 nm se obtienen, tanto la fase tetragonal como la hexagonal. El uso de microscopía de fuerza atómica (MFA) se utilizó para determinar la cinética del crecimiento de grano, identificando que los granos de la película de 50 nm no corresponden a la cinética de crecimiento que se encontraron en las películas de 2 a 10 nm, lo que determinó que para películas con un espesor mayor a 10 nm se muestra una fase diferente a la tetragonal. Las mediciones magnéticas realizadas determinan que las películas de 2 nm poseen mayor magnetización que las de 10 nm y que las películas de 50 nm consisten en un apilamiento de la fase ferrimagnética seguida por la fase antiferromagnética.

Palabras clave: película delgada de Mn₃Ga; sustrato de SiO₂/Si(001); erosión catódica; nucleación y estructura cristalina.

Abstract. In this paper are report the results of the synthesis and characterization of Mn₃Ga thin films grown on SiO₂/Si(001) substrates by sputtering technique, studying the thickness-dependent magnetic behavior of the film. The motivation for carrying out the reported work is the contribution in the application of this material in the field of nanotechnology, specifically in the field of Spintronics. The importance of this material is due to their unique combination of magnetic properties is its promising utility in the development of devices such as Magnetic Random Access Memory (MRAM), which allows a non-volatile data storage. Using X ray diffractometry (XRD) it was determined that films of 2 to 10 nm exhibit the tetragonal crystal structure, while 50 nm thin films exhibit additionally the hexagonal crystal structure. Atomic force microscopy (AFM) was used to measure the grain size from where the grain growth kinetics was obtained. It was found that the grain size of the 50 nm thin film do not match this kinetics demonstrating that films thicker than 10 nm exhibit a different phase that the tetragonal. Furthermore, the magnetic measurements determined that the 2 nm thin films have the largest magnetization; 50 nm thin films exhibit both ferrimagnetic as antiferromagnetic behavior.

Keywords: Mn₃Ga thin films; SiO₂/Si(001) substrate; sputtering; nucleation and crystal structure.

1. INTRODUCCIÓN

El contenido de este documento forma parte de una serie de trabajos con materiales nanoestructurados, llevados a cabo en el Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C. (CIMAV), sobre el estudio de propiedades de películas delgadas de Mn3Ga y su aplicación en el área de la Espintrónica.

Se denominan dispositivos espintrónicos aquellos que basan su funcionamiento aprovechando simultáneamente la carga del electrón y la orientación de su espín. En el diseño de estos dispositivos, una aplicación muy importante es el diseño de Memorias Magnéticas de Acceso Aleatorio (MRAM, por sus siglas en inglés). Las MRAM superan las características de otras tecnologías de memorias RAM, flash y DRAM, ya que son rápidas en velocidad de escritura y lectura, tienen alta densidad de integración, bajo consumo de energía y son del tipo no volátil, es decir la información se mantiene en la memoria sin la necesidad de suministro de energía eléctrica. En esta arquitectura la unidad que guarda la información de manera no volátil es una unión túnel magnética (UTM). Las UTM se componen de dos capas magnéticas (una fuertemente magnetizada y otra débil) que funcionan como electrodos y están separadas por una capa aislante de espesor nanométrico. La orientación magnética paralela (antiparalela) de la capa débil con respecto a la capa fuerte permite (reduce) el paso de corriente de un electrodo a otro a través del material aislante por efecto túnel (ver Fig. 1). Al cambio de resistencia del dispositivo dependiente de la configuración de las capas se le conoce como magnetorresistencia túnel (MRT).

Para realizar la escritura de datos, en dichas estructuras, se puede utilizar el fenómeno de torsión por transferencia de espín, el cual consiste en utilizar pulsos de corriente polarizada (ya sean electrones spin up o spin down) inyectados en la película libre para modificar su orientación magnética. Este proceso se ilustra en la Fig. 2.

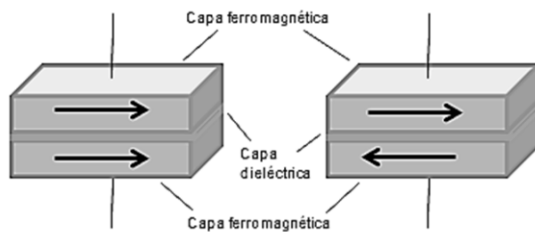


Figura 1. Representación esquemática de la UTM. La orientación a) paralela posee una baja MRT mientras que la orientación b) antiparalela tiene una MRT alta

En el proceso de lectura de la información almacenada se utiliza la medición de la MRT para identificar la configuración paralela o antiparalela que corresponde a datos digitales “1” o “0” lógicos. La configuración antiparalela produce una alta MRT mientras que la configuración paralela produce una baja MRT.

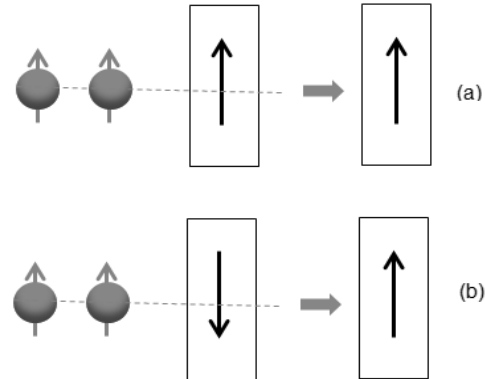


Figura 2. Diagrama de la técnica de transferencia de torsión de espín: (a) polarización coincidente, (b) polarización contraria

Por su parte, el Mn3Ga tiene una alta constante de anisotropía magnetocristalina, alta temperatura de Curie (770 K), alta coercitividad y baja magnetización. La combinación de estas propiedades hacen de este material un candidato ideal para la fabricación de la capa libre en las UTM. Además posee dos fases cristalinas, tetragonal (comportamiento ferrimagnético) y hexagonal (comportamiento antiferromagnético).

Un material antiferromagnético se utiliza para fijar la orientación de la capa fuerte de la UTM, mientras que la fase tetragonal se utiliza para construir ambos electrodos.

El principal aspecto de interés de este trabajo fue el de conocer los cambios que se presentan en la magnetización, la microestructura y el tamaño de grano a diferentes espesores de las películas, las cuales fueron de 2, 5, 10 y 50 nm.

Para la caracterización de las películas obtenidas se realizaron mediciones magnéticas, difracción de rayos X (DRX), microscopía electrónica de barrido (MEB) y microscopía de fuerza atómica (MFA).

2. METODOLOGÍA DESARROLLADA

2.1 Elaboración de películas delgadas

Se utilizaron sustratos de SiO2/Si(001), los cuales fueron limpiados para remover cualquier contaminación orgánica utilizando tricloroetileno,

acetona y etanol en baño de ultrasonido por 10 minutos, enjuagando con agua desionizada después de cada solvente. Luego, el sustrato fue introducido al equipo sputtering a través de una precámara que permite mantener un alto vacío en la cámara de crecimiento. El target utilizado se elaboró en un horno de fundición por arco eléctrico. Los pellets se pulieron para formar un target de 1" de diámetro el cual se ilustra posicionado encima del magnetrón en la Fig. 3. La técnica utilizada para el crecimiento de las películas de Mn₃Ga fue la de erosión catódica o sputtering, como se denomina en el idioma inglés. La velocidad de crecimiento para una potencia de 40 W se estimó a 3 nm/min. Para el desarrollo de este proceso se hizo un depósito durante 75 minutos y el espesor de la película obtenida se midió por MEB. Con dicha velocidad se elaboraron las películas de 2, 5, 10 y 50 nm, cuyos tiempos de crecimiento fueron de 0.67, 1.67, 3.34 y 16.7 minutos, respectivamente.

2.2 Técnicas de caracterización

La caracterización de las películas obtenidas se llevó a cabo utilizando MFA para obtener imágenes de la morfología de la superficie de las muestras y para medir el tamaño promedio del grano se utilizó el software WSXM. La DRX se utilizó para determinar las fases cristalinas presentes en el material. Finalmente las mediciones magnéticas M(H) se efectuaron a temperatura ambiente con el campo magnético aplicado paralelo y perpendiculares al plano, utilizando un magnetómetro VersaLab.

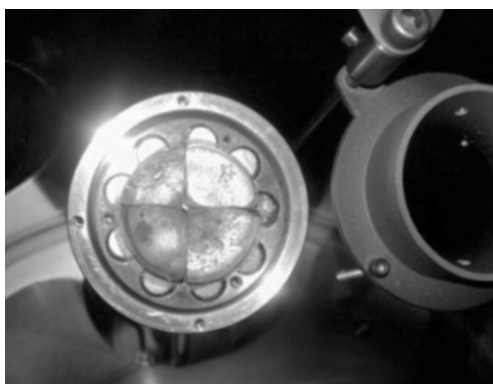


Figura 3. Target de Mn₃Ga usado en el equipo de erosión catódica

3. ANÁLISIS DE RESULTADOS

3.1 Difracción de rayos X

La obtención de patrones de DRX fue bajo la configuración de haz rasante, de la cual se obtuvieron los difractogramas mostrados en la Fig. 4.

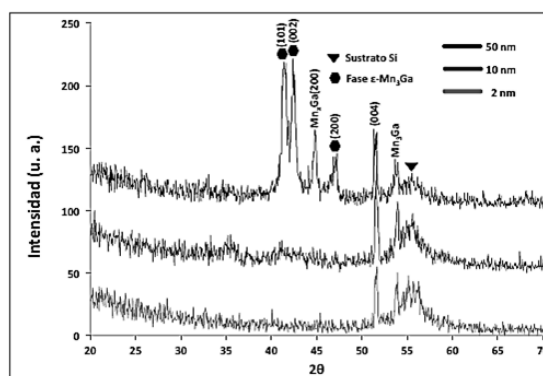


Figura 4. DRX de las películas de Mn₃Ga

De acuerdo con los patrones de DRX resultantes, se obtiene que, a partir del espesor, se determinan las fases cristalinas presentes en el material. Para este trabajo, se sugiere que las películas de 2 a 10 nm, poseen la fase tetragonal (-Mn₃Ga), mientras que para las películas de 50 nm en adelante, además de la fase tetragonal también está presente la fase hexagonal (-Mn₃Ga).

La anterior propuesta se basa en que, a cierto espesor, después de 10 nm y antes de 50 nm, la superficie metálica de la fase -Mn₃Ga favorece la nucleación de la fase -Mn₃Ga, debido a que la energía libre de superficie del compuesto metálico -Mn₃Ga es superior que la energía libre de superficie del SiO₂.

3.2 Morfología de superficie empleando Microscopía de fuerza atómica (MFA)

Las imágenes de MFA mostrando la morfología de superficie de las películas de 2, 5, 10 y 50 nm se muestran en la Fig. 5. Además, utilizando el software WSXM, se obtuvieron los valores de los tamaños promedio de grano, los cuales se muestran en la Fig. 6.

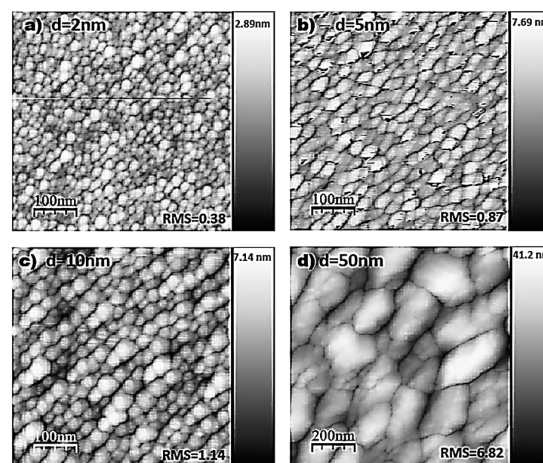


Figura 5. Imágenes obtenidas a través de MFA

Efecto del espesor en el comportamiento magnético de películas delgadas de mn3ga elaboradas por erosión catódica sobre si2o/si(001)

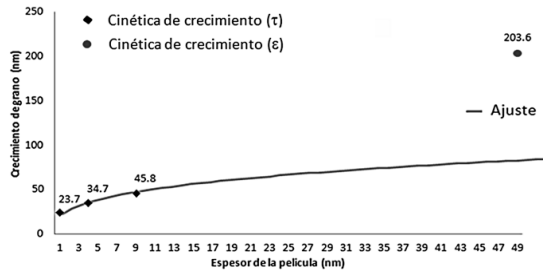


Figura 6. Curva de la cinética de crecimiento de grano

Para obtener la curva de cinética de crecimiento se utiliza la siguiente expresión:

$$G^n = K_0 t \exp(-Q/RT) \quad (1)$$

Donde G es el tamaño promedio de grano, n el valor cinético de crecimiento del grano, K_0 la constante preexponencial, Q la energía aparente del material, R la constante universal de los gases y T el valor de la temperatura absoluta a la cual se sintetiza dicho material.

De esa forma se determinó que, para el presente trabajo, existe una misma cinética de crecimiento para las películas de 2, 5 y 10 nm de espesor, con $n=0.3$ mientras que los granos de la película de 50 nm, pertenecen a otra cinética de crecimiento, ya que el tamaño de grano obtenido no encaja en la curva de ajuste.

3.3 Mediciones magnéticas

A continuación se muestran los resultados e interpretaciones obtenidas de las mediciones magnéticas de las películas con espesores de 2, 10 y 50 nm, obtenidas en configuración paralelo y perpendicular al plano.

Para las películas de 2 y 10 nm medidas en configuración perpendicular y paralela, se obtienen curvas anhisteréticas, como se muestra en la Fig. 7, atribuido a que el eje de fácil magnetización no se encuentra dirigido ni perpendicular ni paralelo al plano de la película.

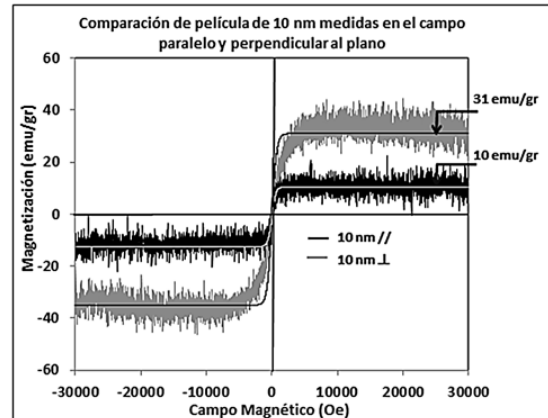
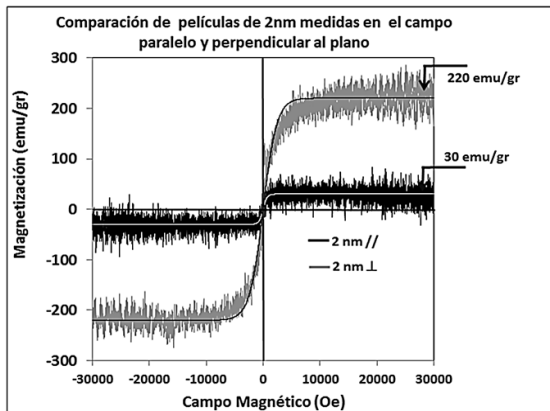


Figura 7. Medición magnética en películas con espesores de a) 2 nm y b) 10 nm medidas en configuración paralela y perpendicular

También se tiene una mayor magnetización de saturación en las mediciones perpendiculares de cada muestra, y tanto la medición paralela como la perpendicular son mayores en la muestra de 2 nm.

Es posible que para espesores muy pequeños, en la superficie de los granos exista un ordenamiento ferromagnético en vez de ferrimagnético debido al desorden de espín tanto en la superficie como en las fronteras de grano.

Este fenómeno llamado frustración de la compensación de espín no tendrá una anulación parcial de los momentos magnéticos de los átomos de Mn como en el bulto (ordenamiento ferrimagnético) y por esto, se origina un incremento importante en la magnetización de las películas ultra delgadas. Conforme aumenta el espesor, se reduce el número de fronteras de grano y de área superficial reduciendo la magnetización del material (película de 10 nm).

Para la muestra de 50 nm cuyos lazos de $M(H)$ se muestran en la Fig. 8, se aprecia un ordenamiento diferente, ya que para este espesor se tienen dos comportamientos: ferrimagnético y antiferromagnético.

En la Fig. 8-a, en los diferentes cuadrantes del plano $M(H)$, los pequeños saltos en magnetización se deben a pequeños granos de Mn_3Ga que no están bloqueados por la parte antiferromagnética, mientras que la saturación a grandes campos corresponde al cambio de orientación de la película de Mn_3Ga (ferrimagnética) que si está bloqueada por el material antiferromagnético (fase hexagonal).

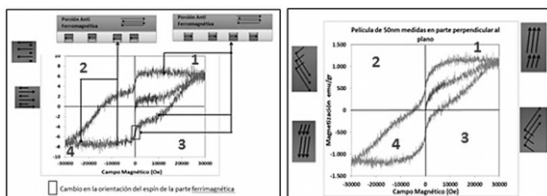


Figura 8. Análisis de comportamiento magnético en muestra de 50 nm con aplicación del campo paralelo y perpendicular al plano de la muestra.

Para la Fig. 8-b se muestra la medición realizada en el campo perpendicular. Los brincos en los cuadrantes son los mismos que para la medición paralela, con la diferencia de que las magnetizaciones son significativamente mayores. Esto atribuido a que los ejes de fácil magnetización tienen una componente importante perpendicular al plano, esto en acuerdo con películas monocristalinas reportadas por Kurt et al.

5. CONCLUSIONES

Los resultados obtenidos permiten determinar principalmente lo siguiente:

Empleando DRX se concluye que para películas de hasta 10 nm, está presente la fase tetragonal mientras que para películas de 50 nm en adelante, se encuentra tanto la tetragonal como la hexagonal.

Mediante MFA, se estipuló la cinética de crecimiento y se discierne que sobre la superficie del sustrato de SiO₂ nuclea la fase tetragonal.

A partir de cierto espesor, después de 10 nm, nuclea la fase hexagonal.

En películas de 2 nm, se percibe mayor magnetización que en las de mayor de espesor.

Para un espesor de 50 nm, se encuentran dos propiedades magnéticas, una porción ferrimagnética atrapada en una estructura antiferromagnética.

RECONOCIMIENTO

Gracias al Centro de Investigación en Materiales Avanzados, S.C. (CIMAV) y la Universidad Tecnológica de Jalisco, en México, por hacer posible esta investigación. Al Fondo Mixto Chihuahua No. CHIH-2011-C03-168831 por el financiamiento proporcionado para la compra del equipo de erosión catódica.

REFERENCIAS

- Guizar, G., Partida, C., & Cabrera, H. (2014). *Estudio de la evolución del comportamiento magnético dependiente del espesor en películas de Mn₃Ga elaboradas mediante erosión catódica* (Tesis de Maestría). Universidad Tecnológica de Jalisco. Chihuahua, México.
- Kurt, H., Rode, K., Venkatesan, M., P. Stamenov, y Coey, J.M.D. (2011). High spin polarization in epitaxial films of ferrimagnetic Mn₃Ga. *Phys. Rev. B.* 83(2), 020405-020409. doi: 10.1103/PhysRevB.83.020405
- Kurt, H., Rode, K., Venkatesan, M., P. Stamenov, y Coey, J.M.D. (2011). Mn_{3-x}Ga (0 ≤ x ≤ 1): Multifunctional thin film materials for spintronics and magnetic recording. *Phys. Status Solidi B.* (248), 2338-2344. doi: 10.1002/pssb.201147122
- Tang, D., Lee, Y.J. (2010). *Magnetic Memory: Fundamentals and Technology*. United Kingdom: Cambridge University Press.
- Hirota, E., Sakakima, H e Inomata, K. (2002). *Giant Magneto-Resistance Devices*.(Surface Sciences series) Berlin: Springer.
- Coey, J.M.D. (2010). *Magnetism and Magnetic Materials*. United Kingdom: Cambridge University Press.