

**APROXIMACION AL EFECTO EXCHANGE BIAS EN BICAPAS DE  $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$**

L. Marin<sup>1</sup>, J. –G. Ramírez<sup>1</sup>, M. E. Gómez<sup>1</sup>, A. Hoffmann<sup>2</sup>, C. A. Quinayas<sup>3</sup>, G. Bolaños<sup>3</sup>

<sup>1</sup>*Department of Physics, Universidad del Valle, A.A. 25360 Cali, Colombia*

<sup>2</sup>*Argonne National Laboratory, Materials Science Division, Argonne, Illinois 60439*

<sup>3</sup>*Department of Physics, Universidad del Cauca, Popayán, Colombia*

(Recibido 23 de Oct. 2006; Aceptado 2 de Abr. 2007; Publicado 23 de Abr. 2007)

**RESUMEN**

Se crecieron bicapas del sistema manganita tipo LaCaMnO en sus fases ferromagnética  $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$  (F-LCMO) y antiferromagnética  $\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$  (AF-LCMO) sobre sustratos monocristalinos de  $\text{SrTiO}_3$  con orientación (100). Las bicapas fueron crecidas usando la técnica de sputtering dc a altas presiones de oxígeno, a temperatura del sustrato de 850°C. Las bicapas se caracterizaron morfológicamente por imágenes de AFM; se estudió la dependencia de la resistencia con la Temperatura para determinar la temperatura de transición metal-aislante y su relación con el espesor relativo de las fases ferro y antiferro en la bicapa. . Isotermas de curvas de histéresis magnética en “*field cooling*” mostraron un efecto de *Exchange bias* a temperaturas por debajo de 200K. El análisis muestra que la magnitud del corrimiento, Hex, y el área histerética crecen con la disminución de la temperatura.

**Palabras Claves:** Efecto exchange-bias, sistema manganita, bicapas Fero-antiferromagnética

**ABSTRACT**

Bilayers of antiferromagnetic  $\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$  (AF-LCMO) and ferromagnetic  $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$  (F\_LCMO) were grown on (100)- $\text{SrTiO}_3$  substrates by using an *in-situ* dc sputtering technique at high-oxygen pressures were grown at substrate temperature of 850°C. . Samples were morphologically characterized by AFM images. Temperature dependence of the resistivity was carried out to determine the Insulator-metal transition temperature and its dependence with the ferro-antiferromagnetic layer thickness ratio. Isotherm hysteresis measurements after field cooling showed an exchange bias effect at temperatures below 200 K. The exchange-bias field magnitude and hysteresis area increase with the decreasing of the temperature

**Keywords:** exchange-bias effect, manganite system. Ferro-antiferro bilayers.

**1. Introducción**

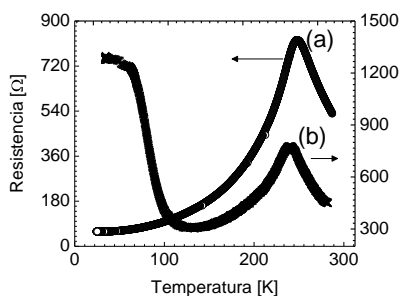
En aplicaciones modernas, la clave para modificar y controlar las propiedades magnéticas esta basada en escoger estructuras magnéticas cuya interfaz pueda ser controlada a nivel atómico, en donde aparecen diferentes mecanismos competitivos entre los momentos magnéticos de los materiales en contacto, como el de Intercambio (Exchange) por ordenamiento magnético y el de anisotropía (dirección preferencial) [1]. Una de las interfaces mas interesantes es la formada en la región limite entre un material ferromagnético (FM) y otro antiferromagnético (AF). Particularmente, una interacción de intercambio específico en la región de interfaz es dada por el com-

portamiento del material ferromagnético con un parámetro de intercambio grande y una anisotropía relativamente pequeña, mientras que el material antiferromagnético debe poseer una constante de anisotropía alta. Este fenómeno es conocido como *Exchange bias* (EB) y experimentalmente se manifiesta con un desplazamiento del centro del ciclo de histéresis magnética de su posición normal  $H = 0$  a  $H = H_{ex}$  hacia valores negativos de campo, típicamente acompañado por un incremento del campo coercitivo,  $H_c$ , es decir, un aumento del ancho del ciclo de histéresis. En este trabajo estudiamos bicapas ferro-antiferro de la manganita de lantano mediante medida de transporte y de histéresis magnética.

## 2. Detalles Experimentales

Las bicapas  $[La_{2/3}Ca_{1/3}MnO_3$  (LCMO-F) /  $La_{1/3}Ca_{2/3}MnO_3$  (LCMO-AF) /  $SrTiO_3$  fueron crecidas “*in-situ*” usando la técnica de pulverización catódica DC a altas presiones de oxígeno, sobre sustratos monocristalinos de Titanato de Estroncio ( $SrTiO_3$ ) orientados en la dirección (100). Durante el proceso de deposición la temperatura del sustrato fue de  $850^\circ C$  y la presión de oxígeno en la cámara fue de 3.5 mbars. La razón entre los espesores de la capa FM y AF es de 2/5 y 1/1. La caracterización eléctrica de las muestras mediante curvas resistencia en función de temperatura, con la técnica de cuatro puntas. La geometría de la medición es de corriente circulando en el plano de la película, CIP. La caracterización morfológica se hizo por la medio de microscopía de fuerza atómica, AFM (de sus siglas en inglés Atomic Force Microscopy). Mediante un tratamiento estadístico de la imagen se calcula la rugosidad promedio de la muestra. Las medidas magnéticas fueron realizadas en un magnetómetro SQUID (Superconducting Quantum Interferente Device), con campo magnético aplicado en el plano de la película.

## 3. Resultados



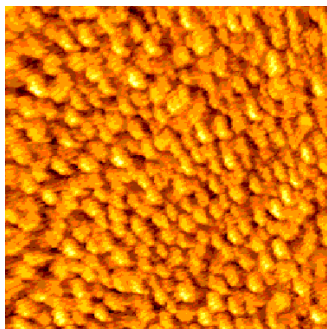
**Fig 1.** Variación de la Resistencia en función de la Temperatura para (a) una bicapa con espesores  $F_{20}AF_{50}/STO$  y para (b) bicapa con espesores  $AF_{50}F_{50}/STO$ .

las cuatro puntas es aislante. Sin embargo, la curva de resistencia presenta comportamiento predominante de la fase aislante a bajas temperaturas, mientras que se puede observar con claridad la transición IM (aislante, metal) a 263 K, por debajo de la  $T_{IM}$  de la película F-LCMO pero

### Caracterización eléctrica

Curvas características de la dependencia de la resistencia con la temperatura son mostradas en la Figura 1, para la bicapa F-LCMO (20nm)/AF-LCMO(50nm)/ $SrTiO_3$  y para la bicapa AF-LCMO(50nm)/F-LCMO(50nm)/ $SrTiO_3$ . Para la bicapa con relación de espesor 2/5, en donde las puntas están en contacto con la capa ferromagnética, la curva es típica del material ferro con una transición aislante-metálico a 249 K. Esta temperatura de transición es menor con respecto a la encontrada para películas F-LCMO (270 K) [2], crecidas bajo los mismo parámetros. Para la bicapa con relación de espesores 1/1, la capa superior en contacto directo con

por encima de la encontrada en la bicapa con relación de espesores 2/5. Este resultado indica que para medidas de resistencia con geometría CIP, esto es, corriente paralela a la interfaz hay contribución no solo de la capa superior sino de las capa inferior y la interfaz.

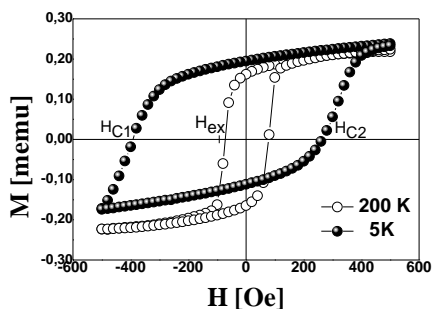


**Fig 2.** Imagen de microscopia de fuerza atómica para una bicapa de manganita  $F_{20}AF_{50}/STO$  de  $5\mu m \times 5\mu m$ . El rango en z es de  $200 \text{ \AA}$ .

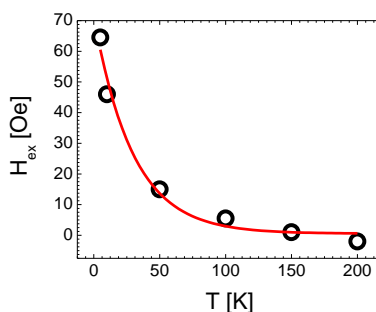
**Caracterización Morfológica:** La superficie de las películas fue observada cualitativamente usando el Microscopio de Fuerza Atómica (AFM). La Figura 2 muestra una imagen característica para la muestra con relación de espesores 2/5. Observamos una morfología uniforme, granos de tamaño regular en el área de observación, lo cual nos indica que las capas crecen con la misma textura y que el crecimiento es columnar. Por medio de un análisis estadístico [3] y utilizando el programa de análisis de imagen SPIP<sup>®</sup> se analizó cuantitativamente el parámetro de rugosidad cuadrática media con valor de  $4,18 \pm 0,03 \text{ nm}$ . Esta rugosidad, para películas crecidas por métodos PVD, crece con el espesor de las películas. En este caso tenemos una rugosidad superficial del orden del 6% con respecto al espesor total, lo cual indica que las muestras crecen con menor desorden

superficial al esperado para estos espesores en otro tipo de materiales y otros parámetros de deposición.

**Caracterización magnética:** Para observar la interacción cuantitativa en la superficie entre el material antiferromagnético y el material ferromagnético se realizaron ciclos de histéresis con un campo aplicado de 500 Oe, a temperaturas entre ambiente y 5 K. La Figura 3 muestra curvas de magnetización como función del campo aplicado para la bicapa F-LCMO (20nm)/AF-LCMO(50nm)/SrTiO<sub>3</sub> a las temperaturas de 200 K y 5 K, dos de todas las isotermas medidas.



**Fig 3.** Ciclos de Magnetización para 5K y 200K. La muestra  $F_{20}AF_{50}/STO$  fue enfriada en un campo aplicado de 500Oe.



**Fig 4.**  $H_{ex}$  extraído de los ciclos de histéresis medidos a diferentes temperaturas en un campo aplicado de 500Oe para la bicapa  $F_{20}AF_{50}/STO$ .

El ciclo de hysteresis a 200 K muestra un comportamiento típico de una muestra ferromagnética, Esto es lo esperado a altas temperatura para este sistema. A medida que la temperatura desciende el ciclo de histéresis se ancha relativamente poco, no detectable. Sin embargo para temperaturas por debajo de 150 K el ciclo de histéresis se ancha y se vuelve asimétrico con respecto al eje de magnetización. El ciclo de 5 K en la figura muestra con claridad este comportamiento. El ciclo se corre hacia valores negativos de campo, y se ancha, indicando que el efecto Exchange Bias se presenta en estas bicapas. La magnitud del corrimiento, notado  $H_{ex}$ , se mide sobre las isotermas de histéresis de acuerdo con el valor medio entre los dos campos coercitivos  $H_{C1}$  y  $H_{C2}$ , indicados en la Figura 3 para el ciclo a 5 K. La magnitud de  $H_{ex}$  es fuertemente dependiente de la temperatura. La figura 4 muestra dependencia con la temperatura de  $H_{ex}$  para la bicapa F-LCMO (20nm)/AF-LCMO(50nm)/SrTiO<sub>3</sub>, a medida que la temperatura disminuye la magnitud del campo  $H_{ex}$  aumenta.

Los datos obtenidos se ajustan a una expresión exponencial tipo:

$$H_{ex} = H_{ex}^0 \exp\left(-T/T_0\right) \quad (1)$$

Donde,  $H_{ex}^0$  es el valor de  $H_{ex}$  extrapolado a  $T=0$ , y  $T_0$  es un parámetro del decaimiento exponencial, el cual multiplicado por la constante de Boltzman puede ser relacionado con una energía característica del mecanismo por el cual se da el Exchange bias, y que no debe depender de la temperatura. La línea continua en la Fig 4. presenta la curva de ajuste de la ecuación (1) a los datos experimentales para la bicapa en estudio, el error para estos datos es del tamaño del símbolo. Los valores obtenidos del ajuste son para  $H_{ex}^0 = (71 \pm 6 \text{Oe})$ ;  $T_0 = (29 \pm 2) \text{K}$ . El valor de  $T_0$  es cercano al obtenido por otros autores [4] y para superredes [2], lo cual nos indica que estos valores obtenidos de  $T_0$  están ligados con el material y los mecanismos que permiten que el exchange bias se presente en este sistema de manganitas.

En conclusión, hemos crecido bicapas del sistema  $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$  (LCMO-F) /  $\text{La}_{1/3}\text{Ca}_{2/3}\text{MnO}_3$  (LCMO-AF), de alta calidad de acuerdo con su morfología superficial, las cuales presentan el fenómeno de Exchange bias. Las medidas de resistencia en geometría en el plano, es fuertemente dependiente de la capa que se encuentra en contacto con las puntas de medición, pero lleva información de las propiedades de transporte de las capas inferiores y de la interfaz. Es importante entonces estudiar este sistema y esta propiedad de transporte aplicando corriente en dirección perpendicular a la interfaz para poder estudiar la contribución de todas las capas e interfaces.

**Agradecimientos:** Este trabajo fue soportado por COLCIENCIAS bajo el proyecto No. 1106-05-11458 CT-046-2002 y por el Centro de Excelencia en Nuevos Materiales CENM.

## Referencias

- [1] P. Schiffer, *et. al*, Phys. Rev.Lett,75,3336 (1995)
- [2] G. Campillo Figueroa, "Magnetic And Structural Study Of Exchange-Biasing Ferro-Antiferro- $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  Manganite Superlattices" Tesis de Doctorado Universidad del valle 2006.
- [3] J. -G. Ramírez, *et. al.*, phys. stat. sol. (c) 1, No. s1-s4 (2004)
- [4] N. Moutis, *et. al.*, Phys. Rev. B, **64**, 094429, (2001)