

DEPENDENCIA DE RUGOSIDAD DE ESCALA CON LA TEMPERATURA DEL SUSTRATO EN PELICULAS DELGADAS DE MANGANITAS

C. – W. Sánchez, J. – G. Ramírez, M. E. Gómez, W. Lopera, J. C. Caicedo.
Grupo de Películas Delgadas, Departamento de Física, Universidad del Valle, A.A. 25360 Cali
(Recibido 23 de Oct. 2006; Aceptado 2 de Abr. 2007; Publicado 23 de Abr. 2007)

RESUMEN

Se realizó un estudio estadístico cuantitativo en imágenes obtenidas con un Microscopio de Fuerza Atómica (AFM) de películas delgadas de $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LCMO). Las películas fueron crecidas mediante la técnica de Sputtering DC a altas presiones oxígeno, con un espesor de 78nm sobre sustrato monocristalino de (100)- SrTiO_3 variando sistemáticamente la temperatura deposición (T_d). Las películas fueron caracterizadas por medidas resistencia en función de la temperatura para determinar la temperatura de transición metal-aislante (T_{MI}). Se realizó un análisis morfológico a las muestras mediante la técnica de Microscopía de Fuerza Atómica. De las imágenes digitalizadas se obtuvo el valor de exponente de rugosidad (α), longitud de correlación ($\xi_{//}$) y Rugosidad de saturación (σ_{sat}). A partir de la caracterización eléctrica y morfológica, se correlacionaron los parámetros de rugosidad para cada temperatura de deposición. Se encontró que al aumentar T_d , el exponente de rugosidad (α) aumenta indicando un aumento del ordenamiento estructural debido a los procesos difusivos. De la caracterización eléctrica se obtuvo que la temperatura de transición metal-aislante (T_{MI}) aumenta a medida que aumenta T_d , lo cual corrobora el aumento de ordenamiento estructural.

Palabras claves: Estructura de la interfase y rugosidad, fractales, Manganitas.

ABSTRACT

A quantitative statistical study was done on digitized atomic force microscope (AFM) images of $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LCMO) thin films. Films were grown via sputtering technique at high-oxygen pressures, with 78 nm layer thicknesses on (100) oriented SrTiO_3 substrate. We have systematically varied the substrate temperature during deposition between 700°C and 880°C, around the optimized growth temperature of 850 °C to study the influence of the growth parameters on the properties of the films. The films were characterized by thermal resistivity measurements to determine the insulator to metallic phase transition temperature existing in this material in block and in thin films. By using a specific self-designed algorithm, we can extract from digitized AFM-images the quantitative values of roughness parameters, i.e., interface width, lateral correlation length, and roughness exponent. Herein, we report substrate temperature dependence of the parameters describing roughness. We will correlate the growth parameters, roughness parameters and insulator-metal transition temperature in these ferromagnetic LCMO thin films.

Key Words: Interface structure and roughness, Fractals, Manganite.

1. Introducción

Las manganitas de Lantano con estequiometría $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ son perovskitas que exhiben propiedades ferromagnéticas tales como magnetorresistencia colosal (GMR) por lo que son de especial interés en desarrollo de dispositivos electrónicos (espintrónica), específicamente en la implementación de memorias no volátiles magnéticas. La implementación de dispositivos se hace mediante el uso del material en forma de película delgada, por lo que se hace importante la

determinación de las características óptimas de la morfología superficial de cada capa ya que con estas están relacionados diferentes fenómenos de transporte fundamentales en el funcionamiento de dichos dispositivos.

En este estudio se crecieron películas delgadas de la fase ferromagnética con composición $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LCMO), con espesores de 78nm, mediante la técnica de sputtering reactivo a altas presiones de oxígeno sobre sustratos de SrTiO_3 para diferentes T_d que variaron entre 700°C y 880°C. Las muestras se caracterizaron eléctricamente por mediciones de la resistencia en función de la temperatura determinando la temperatura de transición aislante-metal y su dependencia con la temperatura de crecimiento. Se realizó un análisis morfológico mediante un método estadístico implementado computacionalmente [1] y aplicado a las imágenes de AFM obtenidas de las muestras, el cual permite obtener de una superficie ó interfaz parámetros que nos definen el tipo de crecimiento, tales como la rugosidad de saturación, la longitud de correlación y el exponente de rugosidad. Estos parámetros son únicos para cada sistema [1].

2. Análisis Fractal de Superficies

Las películas delgadas de manganitas tipo $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ presentan un crecimiento que permite ser analizada con las herramientas usadas por la teoría fractal para el análisis de superficies.

De investigaciones previas [3] se tiene que las superficies de la manganita estudiada tienen un exponente de rugosidad α , independiente del tamaño de imagen lateral, de su espesor y del exponente multi-afín q , con un valor de $\alpha = 0,79 \pm 0,11$. La independencia de α con q implica que la superficie respeta la transformación $h(x) = b^{-\alpha} h(bx)$ para la función de altura media $h(x, y)$, es decir, su superficie es auto-afín, ver figura 1. Este resultado está de acuerdo con un crecimiento epitaxial.

Para determinar los parámetros de crecimiento que definen el proceso dinámico del mismo mediante la determinación del exponente de rugosidad, la longitud de correlación y la rugosidad local es necesario emplear un método que nos permita determinar estos parámetros a partir de la información de la superficie final (para nuestro caso imágenes digitalizadas obtenidas por la técnica de AFM).

Para el análisis de estas imágenes el procedimiento es útil estudiar el escalamiento de la rugosidad local $\sigma_l(x, y)$ con un ancho de ventana de tamaño l , figura 2, conocido como método de ventanas, y analizar el perfil de la superficie incrementando el tamaño de ventana. Para cada tamaño l se promedia la rugosidad local sobre todas las ventanas posibles dentro de los 512 x 512 píxeles. Para cada valor de l tenemos un $\sigma(l)$.

En el presente trabajo empleamos un algoritmo reportado [3] el cual emplea el método de ventanas para extraer de las imágenes de AFM la información de los parámetros que caracterizan la dinámica de crecimiento de las muestras procesadas.

3. Técnicas Experimentales

Para el crecimiento de las películas delgadas del sistema $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ se utilizó la técnica de Sputtering DC a altas presiones de oxígeno con T_d de 700°C, 780°C, 830°C, 850°C y 880°C, con una presión parcial de oxígeno de 3.5 mbar, todas con un espesor de 78nm.

Las películas fueron caracterizadas eléctricamente mediante el uso de la técnica de Van der Pauw y el uso de un criostato convencional de helio, que nos permite hacer un barrido de temperaturas entre 40K y 298 K.

Las películas fueron caracterizadas morfológicamente por medio de la técnica de Microscopía de Fuerza Atómica; para las diferentes superficies se obtuvieron imágenes 2D y 3D desde $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ hasta $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$. Se empleó un programa [1] que extrajo de las imágenes AFM, una matriz de datos que permitió tener valores de las alturas (eje z) además de un rango en escalas físicas en el eje x e y, por lo cual se obtuvo información de la superficie punto a punto (el equivalente a un píxel). La equivalencia de un píxel a escalas físicas varía de acuerdo al tamaño de la imagen. Para el caso de $L = 5\mu\text{m}$ tenemos que $1p = 5/512 = 0.00976\mu\text{m}$. Si definimos la altura media como el valor medio de la función h sobre toda la superficie, entonces se define la altura $Z(x,y)$ como:

$$Z(\vec{x}, t) = h(\vec{x}, t) - \langle h(\vec{x}, t) \rangle$$

La función $Z(x, y)$, oscila alrededor del valor promedio de h . El algoritmo empleado permite hacer iteraciones variando el tamaño de la ventana e ir calculando los distintos valores de la fluctuaciones locales de la función de altura $Z(x,y)$ dentro de una ventana de tamaño l localizada en el punto (x_0, y_0) .

4. Resultados y Análisis

La Figura 1 presenta la dependencia de la resistencia con la temperatura para las muestras crecidas. Observamos que todas las películas muestran la transición aislante metal. T_{IM} es fuertemente dependiente de la T_d . La tabla 1 resume los valores de temperatura de T_{IM} extraídos de la gráfica R vs T para las diferentes T_d . Los resultados muestran un aumento en la T_{IM} a medida que la T_d se acerca al valor óptimo para la deposición. El valor óptimo corresponde a la temperatura de deposición para la cual la T_{IM} es la más alta, en nuestro caso es $850\text{ }^\circ\text{C}$ [2].

La Figura 2 muestra la dependencia de la rugosidad con el tamaño de ventana l para las diferentes temperaturas de crecimiento. Podemos observar que la rugosidad $\sigma(l)$ crece linealmente para valores de l , para l pequeños pero tiende hacia una saturación σ_{sat} para valores de l grandes comparados con una longitud característica $\xi_{//}$. La rugosidad de saturación es fuertemente dependiente de la temperatura de deposición. La longitud característica $\xi_{//}$ se puede interpretar como el tamaño de ventana para la cual la curva comienza a saturarse. En la morfología de las películas, nos diría la longitud de correlación lateral [1]. La tabla No. 2 muestra los valores de los parámetros de rugosidad de saturación σ_{sat} , longitud de correlación lateral, $\xi_{//}$, y exponente de rugosidad α de extraídos de las curvas de la figura 5.

Se puede observar que σ_{sat} disminuye a medida que la temperatura de deposición se acerca al valor óptimo. La rugosidad presenta un aumento progresivo para temperaturas superiores e inferiores a la óptima, evidenciando un proceso de nucleación deficiente para bajas temperaturas y de re-sputering para temperaturas superiores. Para los parámetros $\xi_{//}$ no encontramos ninguna correlación con la temperatura de deposición. El parámetro α está alrededor de 0,5 lo cual nos indica un crecimiento estocástico de las capas.

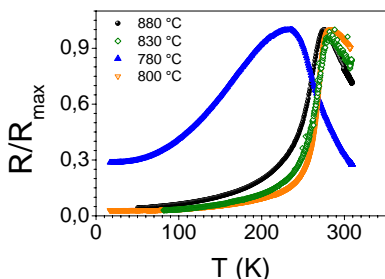


Fig.4 Curvas de resistencia vs temperatura para las muestras crecidas a diferentes temperaturas.

Tabla No.1 Variación de parámetros morfológicos en función de la temperatura de deposición

T_d (°C)	R_{Max} (Ω)	T_{MI} (°C)
780	5659,6	234,81
800	2105,5	282,9
830	6394,3	289,53
880	19668,2	275,81

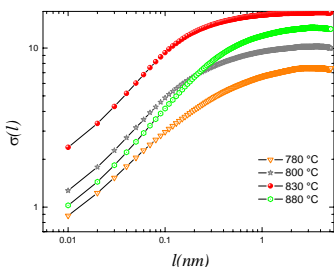


Fig.5 Dependencia de la Rugosidad con el Tamaño de Ventana para Diferentes Temperaturas de Crecimiento.

Tabla No.2 Variación de parámetros morfológicos en función de la temperatura de deposición

T_d (°C)	T_{MI} (k)	$\alpha \pm 0.05$	σ_{sat} [nm] ± 0.1	$\xi_{//}$ [nm] ± 0.1
780	234,81	0,47	7.5	7.2
800	282,9	0,53	9.2	10.2
830	289,53	0,57	16.7	15.4
880	275,81	0,63	13.4	12.1

Del presente estudio podemos concluir que los parámetros de crecimiento de una película afectan sus propiedades morfológicas y de transporte; en nuestro caso los parámetros de rugosidad σ_{sat} , $\xi_{//}$ y α , y la temperatura de transición metal aislante de las películas ferromagnéticas de manganita. En la medida que nos acercamos a la temperatura de deposición para un máximo valor de temperatura de T_{MI} los parámetros morfológicos disminuyen excepto el α que siempre crece.

Agradecimientos

Este trabajo fue apoyado por: Colciencias en el proyecto de investigación no 1106-05-11458, CT 046-2002, La Universidad del Valle en el proyecto “Determinación cuantitativa de los parámetros de rugosidad interfacial en capas y multicapas por medio de análisis estadístico de imágenes digitalizadas de microscopía de fuerza atómica”, referenciado con el código 7681 y por el Centro de Excelencia en Nuevos Materiales (CENM).

REFERENCIAS

[1] A. L. Barabasi, H.E. Stanley. "Fractal Concepts in Surface Growth". Cambridge University Press (1995). Cap. 1-5, 8,24, Apendice A
 [2] Gloria. E. Campillo. "Estudio de las Propiedades Magnéticas de Películas Delgadas Epitaxiales de La0.67Ca0.33MnO3." Tesis Magister en Física, Universidad del Valle (2001). Cap.4 y 5
 [3] Juan Gabriel Ramírez, "Escalamiento y Rugosidad Superficial" Trabajo de Grado, Universidad del Valle (2004).
 [4] G. Campillo, L. F. Castro, P. Vivas, E. Baca, P. Prieto, D. Arias, J. Santamaría, A. Berger, and S. D. Bader. Direct growth of epitaxial La0.67Ca0.33MnO3 thin films. Surface Review Letters, 9:1-4, 2002.