



Universidad
Zaragoza

Trabajo Fin de Grado

Difusión térmica de magnones en materiales magnéticos aislantes

Autor

Marta Latorre Membrado

Directores

Irene Lucas del Pozo

Luis A. Morellón Alquézar

Departamento de Física de la Materia Condensada

2016

ÍNDICE

1. Introducción	3
1.1. Marco teórico.....	4
1.1.1. Corrientes de espín.....	4
1.1.2. Efecto Seebeck de espín - SSE.....	5
1.1.3. Efecto espín Hall inverso - ISHE.....	6
1.1.4. Efecto Nernst anómalo - ANE.....	7
1.2. Materiales.....	8
2. Técnicas experimentales	9
2.1 Sistema de crecimiento por laser pulsado - PLD.....	9
2.2 Sistema de pulverización catódica - Sputtering	10
2.3. Magnetometría de muestra vibrante - VSM.....	11
2.4. Difracción y reflectividad de rayos X	12
2.5. Sistema de medida del efecto Seebeck de espín	13
3. Resultados	15
3.1 Fabricación y caracterización de las muestras.....	15
3.2 Caracterización magnética.....	17
3.3 Crecimiento de Pt por sputtering.....	18
3.4 Medidas de LSSE.....	19
4. Conclusiones	23
5. Bibliografía	25

1. INTRODUCCIÓN

Las cuasipartículas son excitaciones colectivas que aparecen en sistemas de muchas partículas, por lo que son relevantes en la descripción del comportamiento interno de diferentes materiales. Algunas cuasipartículas son los huecos presentes en semiconductores, los fonones (vibraciones de los átomos en un sólido) o los magnones [1].

Un magnón es una excitación colectiva en un sistema de espines p.ej. de los átomos/iones que forman una estructura cristalina [2]. El concepto de magnón fue introducido por Felix Bloch en 1930 para explicar la reducción de la magnetización espontánea en un ferromagnético [1].

Este tratamiento de las excitaciones colectivas de los espines de un material es muy útil en algunos campos de investigación tales como la espintrónica (del inglés, *spintronics*). La espintrónica no se basa únicamente en la manipulación del transporte de carga del electrón, sino también en la manipulación del espín en dispositivos y estructuras de materia condensada. Dentro de este campo, una de las ramas de estudio más novedosa es la caloritrónica de espín (del inglés, *spin caloritronics*) o termoespintrónica (del inglés, *thermo-spintronics*). Ésta se centra en la interacción de los espines con corrientes de calor. Existe una amplia variedad de efectos que se incluyen en esta rama de la espintrónica. Un efecto recientemente descubierto ha sido el efecto Seebeck de espín (SSE, del inglés *Spin Seebeck Effect*). [3]

El SSE genera corrientes de espín a causa de la acción de un gradiente de temperatura sobre un material ferro(i)magnético imanado. La corriente de espín puede ser detectada mediante el efecto espín Hall inverso (ISHE, del inglés *Inverse Spin-Hall Effect*), que consiste en que la corriente de espín se convierte en una corriente de carga transversal a la primera. El SSE fue descubierto en 2008 por Uchida *et al.* en un metal ferromagnético utilizando un sistema de detección basado en el efecto espín Hall en una película de platino. En un principio, como en el efecto Seebeck, se creía necesaria la movilidad de los portadores de carga para que apareciera el efecto. No obstante, en 2010, se detectó en un material aislante magnético, lo que produjo un cambio en la forma de entender el efecto. Se determinó que era fruto de corrientes de espín no asociadas al movimiento de cargas. [4][5]

Uno de los intereses principales de este efecto radica en que puede dar lugar a nuevas aplicaciones en el ámbito de la eficiencia energética dado que permite generar una corriente pura de espín que no presenta las pérdidas asociadas a corrientes de carga, mejorando así la eficiencia de los procesos en dispositivos termoeléctricos. [6]

El objetivo del presente trabajo es la fabricación y caracterización de películas delgadas para la posterior medida del SSE en éstas. Tras la medida de dicho efecto, se procederá a determinar la longitud de difusión térmica de los magnones en el material. Las películas están compuestas por un material aislante denominado YIG o granate de ytrio y hierro ($Y_3Fe_5O_{12}$) y un material metálico sin ordenación magnética que será platino.

Para poder llevar todo esto a cabo se han de adquirir previamente unas bases teóricas acerca de los efectos que se van a observar y de las características de los materiales utilizados, así como los conocimientos sobre el funcionamiento de algunas técnicas experimentales tanto de crecimiento de materiales como de su posterior caracterización.

1.1. MARCO TEÓRICO

1.1.1. CORRIENTES DE ESPÍN

Una corriente de espín se define por:

$$\vec{J}_s = \sum_k s_k^z \vec{v}_k \quad (1)$$

Donde \vec{J}_s corresponde a la densidad de corriente de espín, s_k^z es la componente z de la densidad de espín s_k (se ha escogido z como eje de espín cuantizado) y \vec{v}_k es la velocidad de las partículas o cuasipartículas que transportan el espín. Esta velocidad no implica corriente de carga [4].

Sabiendo que los electrones presentan espín, es lógico pensar que su movimiento puede dar lugar a diferencias entre la distribución de los electrones con espines *up* y *down*. La componente z de la densidad de espines viene dada por:

$$s_k^z = c_{k\uparrow}^\dagger c_{k\uparrow} - c_{k\downarrow}^\dagger c_{k\downarrow} \quad (2)$$

Donde $c_{k\sigma}^\dagger$ y $c_{k\sigma}$ son los operadores creación y destrucción del electrón con momento k y proyección de espín $\sigma = \uparrow\downarrow$. El valor de la corriente de espín vendrá dado por:

$$\vec{J}_s^{c-el} = \sum_k \vec{v}_k (\langle c_{k\uparrow}^\dagger c_{k\uparrow} \rangle - \langle c_{k\downarrow}^\dagger c_{k\downarrow} \rangle) \quad (3)$$

Donde \vec{v}_k es la velocidad de conducción de los electrones. Se ha de subrayar que el movimiento de los electrones no implica corriente de carga si el movimiento neto de ésta es nulo, por lo que puede obtenerse una corriente de espín pura. Se extrae de la ecuación que es preciso una asimetría entre la población de electrones con espín *up* y con espín *down* para que exista corriente de espín [4].

Por otra parte, es posible la aparición de una corriente de espín sin necesidad de un desplazamiento de los electrones. En su configuración de mínima energía, $T = 0$ K, un material ferromagnético se encuentra con sus espines orientados de forma paralela. Al incrementar la energía del sistema, la mínima excitación posible supone una oscilación en la dirección transversal a la orientación del espín. Un cuanto de esta excitación corresponde con un magnón [7]. La componente z de la densidad de espín vendrá dada por:

$$s_k^z = S_0 - b_k^\dagger b_k \quad (4)$$

Donde b_k^\dagger y b_k son los operadores creación y destrucción de magnones con momento k . Esta relación expresa que la densidad de espín s_k^z corresponde con el espín de la configuración en mínima energía menos el número de magnones que ha aparecido debido a la excitación. Se observa que la proyección del espín en el eje Z es menor debido a la oscilación del espín en la dirección transversal (fig. 1). Así pues, el valor esperado para la corriente de espín pura debida a magnones corresponde con la expresión:

$$\vec{J}_s^{mag} = -\frac{1}{2} \sum_k \vec{v}_k (\langle b_k^\dagger b_k \rangle - \langle b_{-k}^\dagger b_{-k} \rangle) \quad (5)$$

Donde \vec{v}_k es la velocidad de conducción de los magnones. En este caso se necesita una asimetría entre la población de magnones con momento k que viajan en direcciones opuestas [4]. Este tipo de corriente de espín puede aparecer en materiales aislantes dado que no es necesaria la movilidad de los electrones para que se produzca.

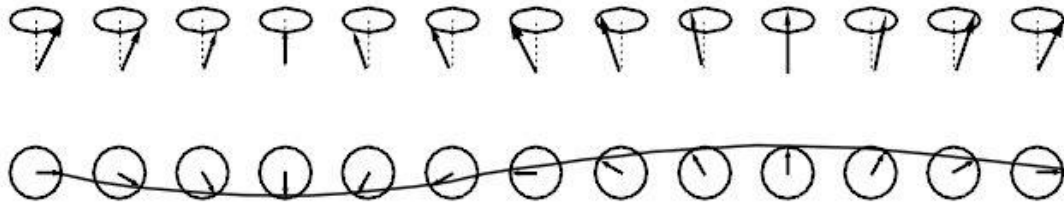


FIGURA 1. Representación de una onda de espín [7]

1.1.2. EFECTO SEEBECK DE ESPÍN-SSE

Una vez explicado el concepto de corriente de espín puede definirse el efecto Seebeck de espín o SSE. Éste consiste en la acumulación de magnones en la intercara de un ferro(i)magnético y un metal no magnético a causa de la aplicación de un gradiente de temperatura en el material ferro(i)magnético imanado. Esto se traduce en una inyección de corriente de espín en la intercara de los materiales anteriormente mencionados [4][5].

Es importante subrayar que existen dos tipos de configuraciones en las que se detectan dos tipos diferentes de SSE, el efecto Seebeck de espín longitudinal (LSSE) y transversal (TSSE).

En el efecto Seebeck de espín transversal o TSSE, la inyección de la corriente de espín es perpendicular al gradiente de temperatura (fig. 2b). En este caso el gradiente de temperatura y el campo magnético aplicado son paralelos [9]. Esta configuración presenta la ventaja de que puede detectarse tanto en ferro(i)magnéticos conductores como aislantes ya que por su configuración no aparecen otros efectos anómalos que contaminen la señal del SSE [4], pero su implementación experimental resultaría más compleja que la del efecto Seebeck de espín longitudinal.

En el efecto Seebeck de espín longitudinal o LSSE la corriente de espín es paralela al gradiente de temperatura aplicado (fig. 2a). El sistema de detección de esta configuración propicia la aparición de otros efectos que pueden contaminar la medida del LSSE, como el efecto Nernst anómalo o ANE (del inglés, Anomalous Nernst Effect), del que se hablará más adelante.

Se ha escogido esta configuración porque el *set up* de medida ha sido optimizado por el grupo de investigación.

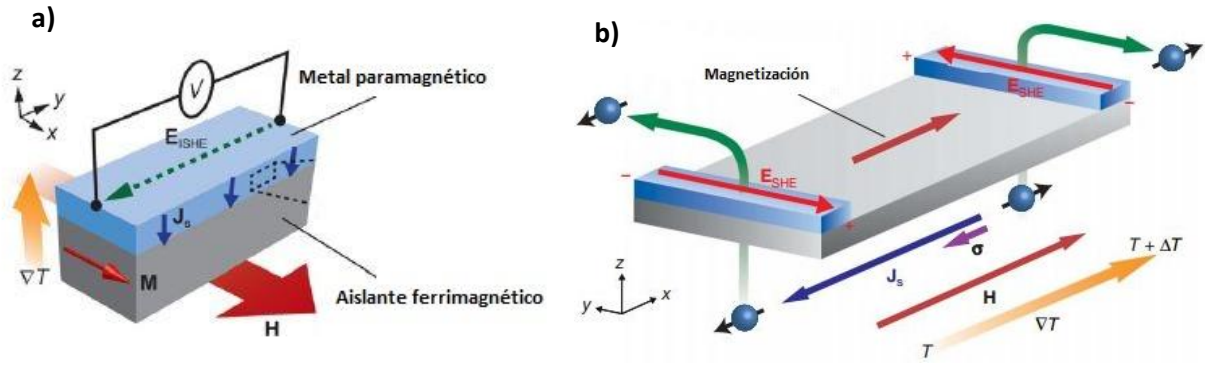


FIGURA 2. (a) Configuración del LSSE [6] (b) Configuración del TSSE [9]

Una forma de cuantificar este efecto en diferentes materiales puede ser determinar la longitud de difusión de los magnones en el material magnético que se esté utilizando. La señal debida al V_{SSE} es proporcional a la longitud característica de acumulación de magnones, típica del material utilizado (Λ) según la siguiente expresión:

$$V_{SSE} \propto \frac{\cosh(l_{FM}/\Lambda) - 1}{\sinh(l_{FM}/\Lambda)} \quad (6)$$

Donde l_{FM} es el grosor de la capa de ferro(i)magnético. Esta expresión (6) corresponde con un factor que aparece implicado en la deducción de la corriente de espín producida por SSE [10]. Dicho factor introduce el efecto de la finitud de la capa de material ferro(i)magnético en los cálculos.

1.1.3. EFECTO ESPÍN HALL INVERSO-ISHE

La detección de estas corrientes de espín se ha llevado a cabo mediante el efecto espín Hall inverso o ISHE. Este efecto permite la medida indirecta de corrientes de espín a través de su conversión en corriente de carga, lo que implica que mediante la medida de esta corriente de carga puede detectarse el SSE.

El ISHE aparece en sistemas con acoplamiento espín-órbita alto en los que la dirección de la dispersión depende de la polarización del espín. Esta dependencia provoca que los electrones con diferente proyección de espín sean dispersados en sentidos opuestos. Un electrón en presencia de interacción espín-órbita adquiere polarización del espín con vector polarización $\hat{\sigma}$ dado por:

$$\hat{\sigma} \propto \hat{k}_{in} \times \hat{k}_{out} \quad (7)$$

Donde \hat{k}_{in} y \hat{k}_{out} corresponden con el momento del electrón incidente y dispersado respectivamente. (fig. 3a). Si en electrones con diferente espín la dispersión se produce en el sentido contrario, implica que el vector polarización $\hat{\sigma}$ para dichos electrones también apunta en el sentido contrario. Conocido el vector polarización y la corriente de espín, la corriente de carga producida por este efecto puede expresarse macroscópicamente de la siguiente forma:

$$\vec{J}_s = \theta_H \hat{\sigma} \times \vec{J}_c \quad (8)$$

Donde θ_H es el ángulo de spin Hall, $\hat{\sigma}$ es el vector polarización del espín, \vec{J}_c es la corriente de carga y $\vec{J}_s = e\vec{J}_s$ siendo e la carga del electrón. El ángulo de espín Hall indica la magnitud de la conversión de corriente de espín en corriente de carga (Fig. 3b).

Debido al SSE, la corriente de espín es inyectada en la intercara entre el ferromagnético y el metal no magnético. Esta corriente de espín se propaga al metal, que en función de la magnitud del ángulo de espín Hall, transformará dicha corriente en corriente de carga. A su vez, la corriente de espín produce que electrones con espines diferentes se propaguen en una misma dirección pero con sentidos opuestos para compensar la distribución no homogénea del espín. El resultado es que electrones con espines opuestos terminan desviándose en la misma dirección, produciendo una acumulación de electrones en uno de los extremos del material y por tanto, una diferencia de potencial medible (Fig. 3c).

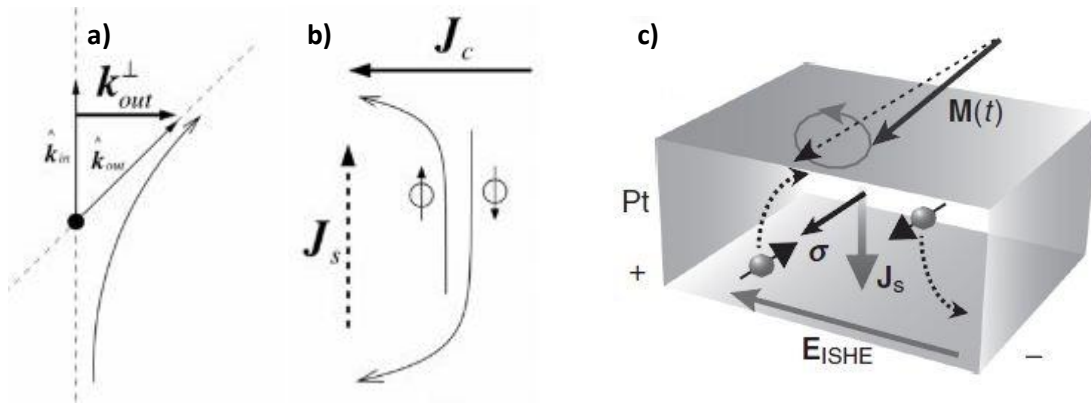


FIGURA 3. (a) Representación del momento del electrón incidente y dispersado [4] (b) Representación de dos electrones de espín opuesto bajo el efecto espín Hall inverso [4] (c) Representación del efecto espín Hall inverso en la capa de platino [5]

1.1.4. EFECTO NERNST ANÓMALO- ANE

El efecto Nernst anómalo o ANE es un efecto que aparece en conductores ferro(i)magnéticos imanados cuando se aplica sobre ellos un gradiente de temperatura perpendicular al campo magnético aplicado. Conlleva la generación de un campo eléctrico \vec{E}_{ANE} paralelo al producto vectorial de $\hat{m} \times \nabla T$. (Fig. 4)

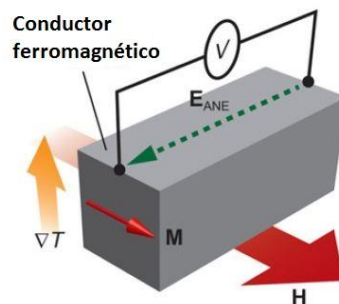


FIGURA 4. Representación de la aparición de campo eléctrico por ANE.

Sin embargo, el material ferrimagnético escogido es aislante por lo que no se producirá ningún fenómeno de conducción eléctrica que pueda contaminar la señal de SSE medida.

1.2. MATERIALES

El YIG es un granate sintético de itrio y hierro cuya composición química es $Y_3Fe_5O_{12}$. Es ferrimagnético y su temperatura de Curie es $T_C = 560 K$. Presenta valores de campo coercitivo típicamente menores que $1 Oe$ de y valores de imanación de saturación alrededor de $M_s \approx 140 emu/cm^2$. [8]

Es un material aislante, lo que evita la aparición del efecto Nernst anómalo dada la configuración del montaje como ya se ha comentado.

Tiene una estructura cristalina compleja. Presenta estructura bcc cúbica y parámetro de red $a = 12,3750 \text{ \AA}$ que contiene cuatro veces la composición química $Y_3Fe_2^{+3}Fe_3^{+3}O_{12}^{-2}$ (fig. 5a). Los iones magnéticos Fe^{+3} ocupan dos posiciones no equivalentes respecto a los átomos de oxígeno (octaédrica y tetraédrica). En el granate natural hay 8 posiciones octaédricas ocupadas por aluminio y 12 tetraédricas ocupadas por silicio. En el YIG estas han sido sustituidas por los iones de Hierro (fig. 5b). Solo estos iones presentan momento magnético en el YIG. [8]

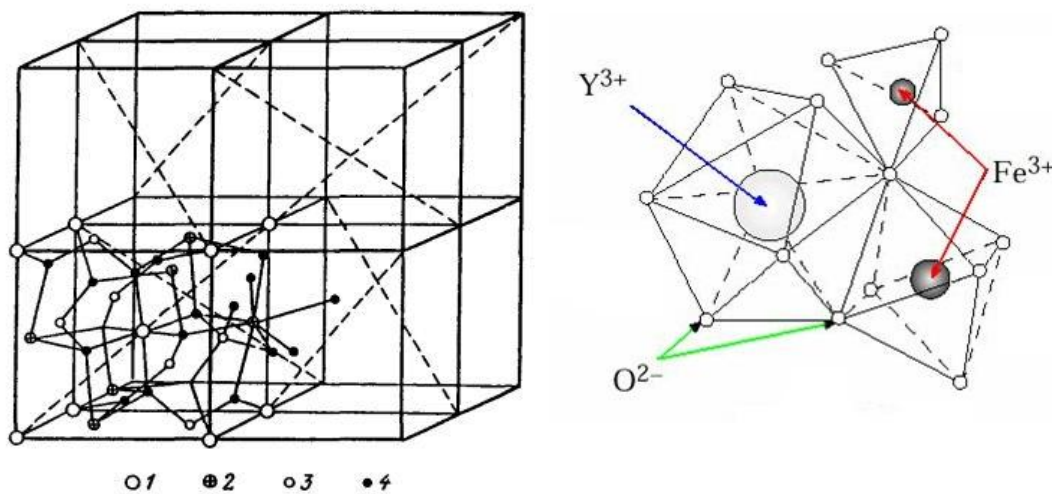


FIGURA 5. (a) Celda unitaria de YIG (b) Distribución de los átomos en la molécula

Como material para la detección del ISHE se ha utilizado platino dado que su ángulo de espín Hall (θ_H) es alto. El platino es un metal que, aunque no cumple el criterio de Stoner, se encuentra próximo a su cumplimiento, por lo que la magnetización del YIG puede inducir un débil ferromagnetismo en la capa de platino. Dado que el platino también se encuentra sometido al gradiente de temperatura, se generará un campo eléctrico $\vec{E}_{ANE} \propto \vec{M} \times \nabla T$, que es paralelo a \vec{E}_{ISHE} .

Mediante un modelo teórico puede estimarse que el campo \vec{E}_{ANE} debido a este efecto será despreciable en comparación al campo debido a espín Hall inverso \vec{E}_{ISHE} [6].

2. TÉCNICAS EXPERIMENTALES

2.1. SISTEMA DE CRECIMIENTO POR LÁSER PULSADO-PLD

La técnica de crecimiento por láser pulsado o PLD (del inglés *Pulsed Laser Deposition*) se utiliza para la fabricación de películas delgadas de elevada calidad cristalina. Consiste en la focalización mediante un sistema de lentes un haz de luz de un láser pulsado de alta frecuencia ($\lambda = 248 \text{ nm}$) en un blanco del material que se pretende depositar. El crecimiento se lleva a cabo en el interior de una cámara de alto vacío en la que puede alcanzarse una presión base de hasta 10^{-8} Torr . La interacción del láser con el blanco produce la evaporación del material por medio de un proceso de ablación que permite controlar el crecimiento a escala nanométrica en forma de capa delgada. Esta ablación genera un plasma de material denominado pluma que condensa en el sustrato formando la película. Se presenta un esquema del proceso en la figura 6a.

La técnica es muy utilizada para el crecimiento de materiales con cierta complejidad estructural ya que permite conservar la estequiometría de los compuestos en condiciones de no equilibrio termodinámico en un rango de espesores de entre los pocos nanómetros hasta cerca de la micra dependiendo del material. Además, el hecho de que la fuente de energía sea externa permite una gran versatilidad en las condiciones de crecimiento, dado que puede aplicarse un amplio rango de presiones en el interior de la cámara.

Sin embargo, esta técnica se ve condicionada por la alta direccionalidad de la pluma que produce que el crecimiento sea homogéneo únicamente sobre un área limitada. En el caso del equipo de PLD utilizado en este trabajo, el crecimiento es homogéneo en un área de $12 \text{ mm} \times 12 \text{ mm}$.

Esta técnica presenta una gran versatilidad porque sus condiciones de crecimiento pueden modificarse y optimizarse mediante un amplio rango de variables como la fluencia y la frecuencia del láser, el parámetro de red del sustrato, la presión de base, la presión y composición de atmósfera reactiva, la temperatura de crecimiento, la rotación del blanco y del sustrato, etc.

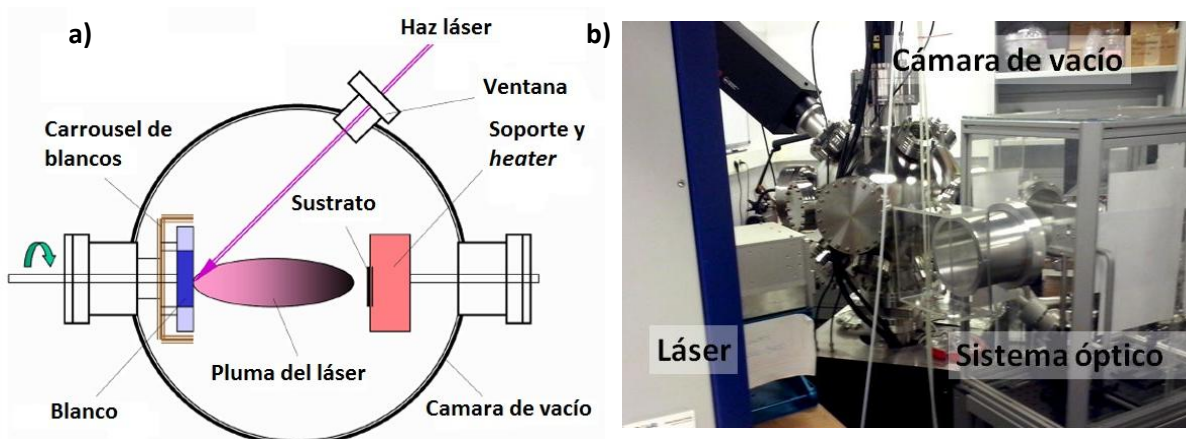


FIGURA 6. (a) Esquema del proceso de deposición de PLD (b) Equipo de PLD utilizado.

2.2. SISTEMA DE PULVERIZACIÓN CATÓDICA-SPUTTERING

La pulverización catódica o sputtering es otro proceso de deposición de películas delgadas. Esta técnica consiste en bombardear un blanco de material con partículas que han sido aceleradas hasta lograr una alta velocidad. La transferencia de momento y energía de las partículas a los átomos de la superficie del blanco producen la eyección de estos que se depositan en el sustrato en forma de película.

Normalmente, se utiliza un gas noble para producir el desprendimiento de átomos del blanco ya que no reacciona con el material a depositar. Se controla por acción de una fuerza electromagnética, por lo que el gas es ionizado para que las partículas presenten carga. Este gas débilmente cargado de partículas exhibe un comportamiento colectivo denominado plasma.

En la técnica de sputtering el blanco de material, el sustrato y el gas se encuentran en el interior de una cámara de vacío. El blanco actúa como cátodo y el sustrato como ánodo. Un voltaje es aplicado entre blanco y sustrato, de forma que un electrón cercano al cátodo se acelera y choca con un átomo de gas. El gas noble (en este caso, Argón) se ioniza liberando un electrón de su corteza electrónica. De esta forma se obtiene un ión (en este caso Ar^+) y dos electrones. El proceso se repite creando un efecto cascada hasta que el gas colapsa y se transforma en plasma. El colapso depende de las condiciones de presión de la cámara y la distancia entre ánodo y cátodo que han de optimizarse para que la formación del plasma sea sostenible. (Fig. 7a)

Para mejorar la eficiencia en la formación del plasma puede utilizarse la técnica denominada sputtering de magnetrón. Los electrones en torno al cátodo por acción de campos magnéticos se confinan para incrementar la densidad de electrones y consecuentemente la formación del plasma. Para ello, se sitúan una serie de imanes con polaridad alterna tras el blanco, de forma que se cree una curva de campo magnético que confine los electrones. (Fig. 7a)

El plasma se ve atraído hacia el cátodo por su carga positiva y choca con el blanco. Este proceso produce diferentes reacciones dependiendo de energía y el momento de las partículas incidentes. El momento siempre es conservado, la energía se conserva dependiendo de si el choque es elástico o inelástico. Así pues, la energía del haz de iones incidente es un parámetro crítico para que se produzca sputtering. Cuando los iones bombardean la superficie del blanco pueden ocurrir diferentes reacciones, la reflexión, la absorción, la implantación del ión, el proceso de sputtering.... Por lo tanto, controlar la energía transferida por las partículas permitirá que se produzca el proceso de sputtering.

Si se produce sputtering, los átomos desprendidos del blanco se difunden hacia el sustrato. El ritmo de crecimiento depende de la presión de argón, de la proporción entre el argón ionizado y el argón neutro, de la diferencia de potencial entre sustrato y blanco, de la energía que alcancen las partículas, de la temperatura del sustrato...

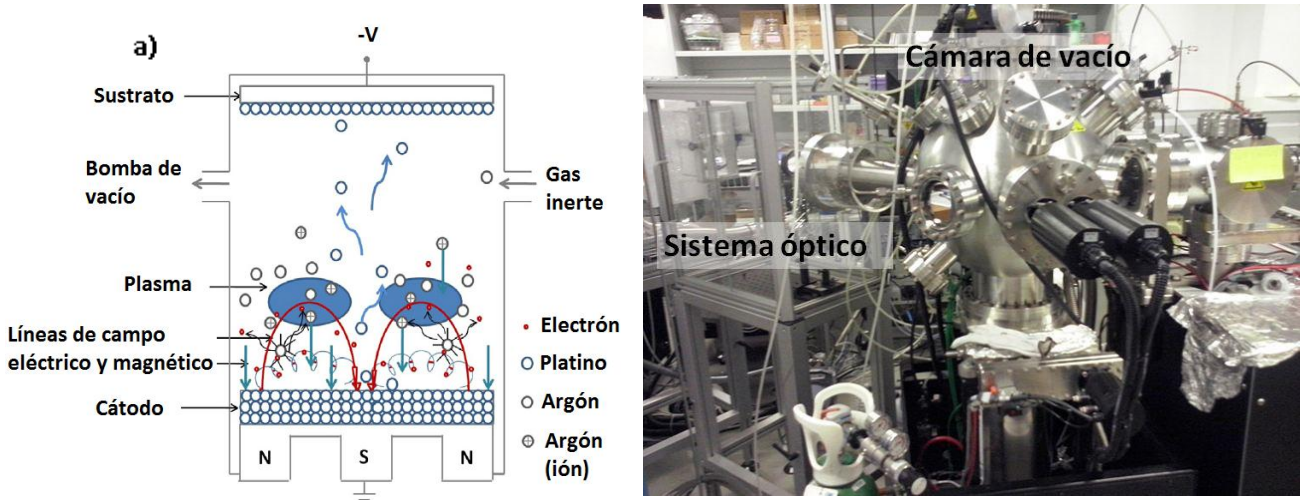


FIGURA 7. (a) Esquema del proceso de deposición de Sputtering (b) Equipo de Sputtering utilizado

2.3. MAGNETOMETRÍA DE MUESTRA VIBRANTE-VSM

La magnetometría de muestra vibrante o VSM (Vibrating Sample Magnetometry) puede utilizarse para determinar la imanación de una muestra en función del campo magnético aplicado. El aparato se compone de dos electroimanes que generan un campo magnético, un soporte capaz de vibrar en el eje Z y dos bobinas detectoras capaces de medir dicha imanación (Fig. 8a)

En un VSM, la muestra se sitúa entre dos electroimanes y se le aplica un campo magnético H de forma que un momento magnético m será inducido en la muestra. Se hace oscilar a la muestra produciendo una variación en el flujo magnético únicamente debida a la imanación. Esto induce una fuerza electromotriz en las bobinas proporcional a la amplitud y frecuencia de vibración, el campo magnético externo aplicado y la magnetización de la muestra. Con la manipulación adecuada puede obtenerse el valor de la magnetización. (Fig. 8a)

En la figura 8b se muestra el equipo utilizado.

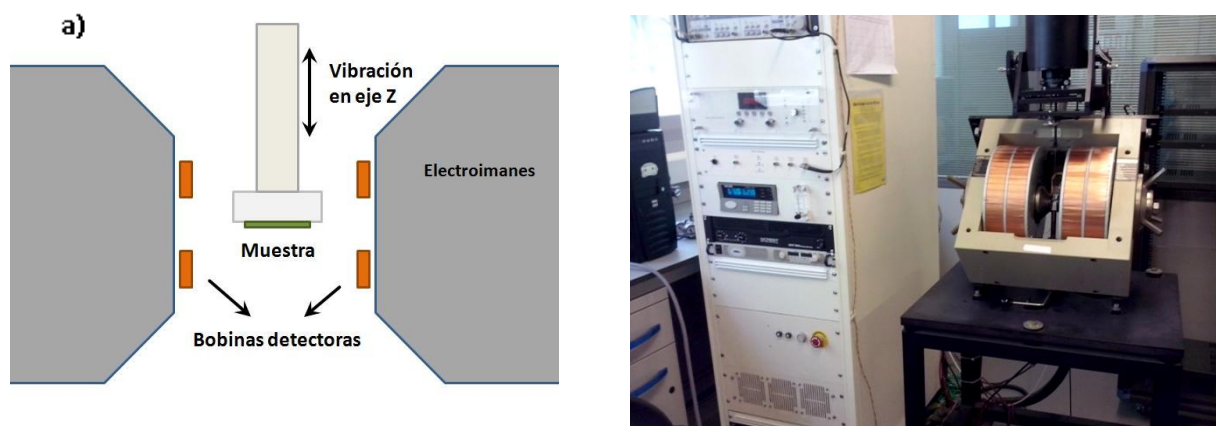


FIGURA 8. (a) Esquema del equipo de VSM (b) Equipo de VSM utilizado

2.4. DIFRACCIÓN Y REFLECTIVIDAD DE RAYOS X

Ambas técnicas se utilizan para la caracterización estructural de materiales. El sistema de medida está compuesto por una fuente de rayos X, un soporte denominado cuna euleriana y un detector. La fuente es un ánodo de cobre que junto a un monocromador produce la emisión de una longitud de onda de $\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$. La cuna euleriana permite la fijación de las muestras mediante un sistema de vacío y tiene movilidad en torno a los ejes que se muestran en la figura 9a. En ambas técnicas, el movimiento entorno a los ángulos ψ y ϕ , así como los ejes X, Y y Z de la cuna euleriana permite situar la muestra de forma que la señal que recibe el detector sea óptima. El ángulo ω de la cuna euleriana y el ángulo 2θ del detector son parámetros variables para lograr una incidencia del haz de rayos X sobre el conjunto de planos cristalográficos hkl con ángulo θ . En la figura 9b se muestra el esquema de la incidencia del haz sobre dichos planos cristalográficos (planos paralelos negros).

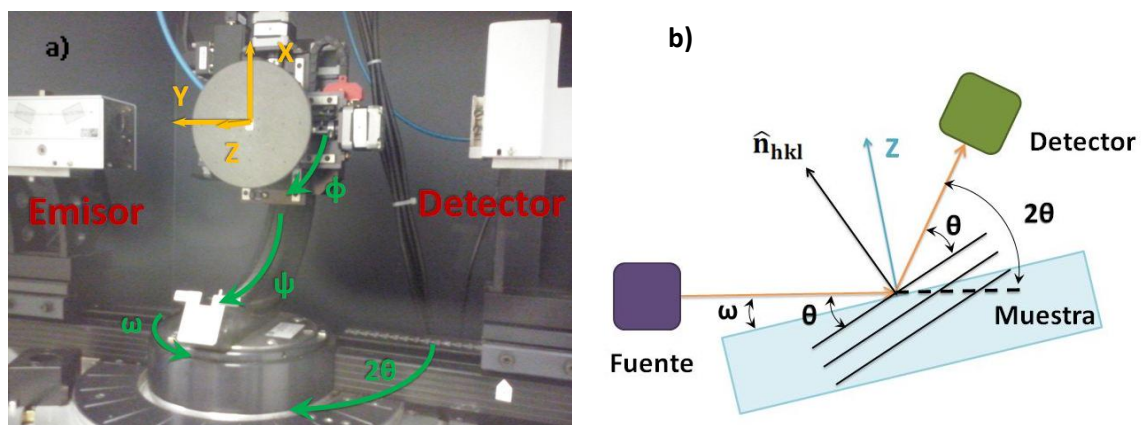


FIGURA 9. (a) Equipo de rayos X utilizado (b) Esquema de posicionamiento con ángulo ω de la cuna euleriana y con ángulo 2θ del detector respecto de la fuente para lograr la incidencia con ángulo θ del haz sobre los planos cristalográficos hkl .

La difracción de rayos X se produce por la interacción de un haz de rayos X con una estructura cristalina. Esta produce una dispersión coherente del haz de rayos X en interferencia constructiva, que puede relacionarse con la distancia interplanar mediante la ley de Bragg:

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta \quad (9)$$

Donde d_{hkl} corresponde con la distancia entre una familia de planos identificados con los índices de Miller, θ es el ángulo entre la normal al plano y el rayo incidente, λ es la longitud de onda y n un número entero (Fig 10a). La toma de medidas se ha realizado manteniendo fija la proporción $2\theta/\omega$ en la que $\omega = \theta$ de forma que la normal a la familia de planos coincide con la normal a la cuna euleriana y a la superficie de la muestra (Fig 10b).

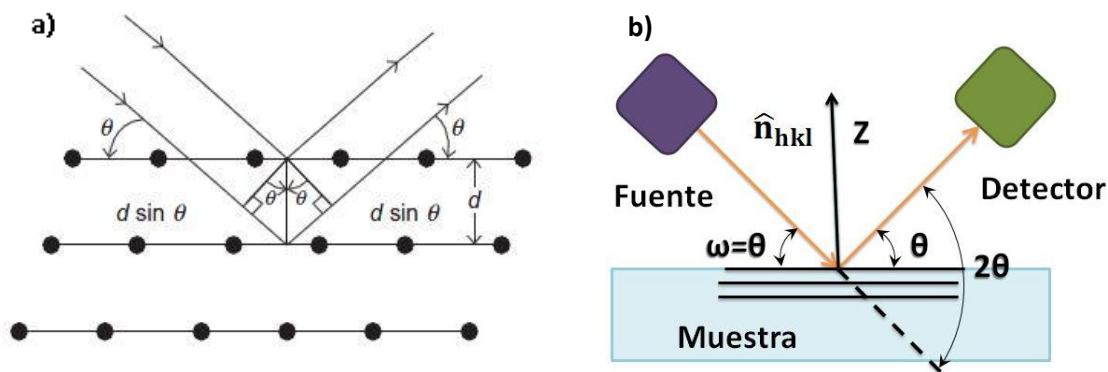


FIGURA 10. (a) Esquema de un patrón de difracción sobre una familia de planos (b) Esquema de la alineación del detector, cuna y emisor en función de los ángulos del sistema de medida.

La técnica de reflectividad o XRR, es una técnica de bajo ángulo que se basa en el estudio de las variaciones de la intensidad del haz debidas a interferencias producidas por las diferentes superficies (la de la muestra y las intercaras) de manera que pueda determinarse su morfología.

Cuando un haz de luz incide sobre la frontera entre dos medios de distinto índice de refracción su haz se divide entre el haz refractado y el reflejado. Si el segundo medio tiene menor índice de refracción, a partir de cierto ángulo crítico tendrá lugar una reflexión total del haz (Ley de Snell). Para frecuencias de onda del orden de los rayos X el índice de refracción es menor que la unidad, siendo 1 el del vacío. Por tanto, superado un ángulo crítico de incidencia aparecerá reflexión total. La dependencia del ángulo crítico con el índice de refracción y la posibilidad de su estudio a través del patrón de reflectividad es lo que ha permitido determinar la rugosidad de cada superficie, el grosor de las diferentes capas de material y la densidad de las mismas [11].

2.5. SISTEMA DE MEDIDA DEL EFECTO SEEBECK DE ESPÍN

La medida del efecto spin-Seebeck fue llevada a cabo en un sistema desarrollado en el Instituto de Nanociencia de Aragón. El sistema está compuesto por diversos dispositivos que pueden ser controlados manualmente o por ordenador mediante un programa diseñado en Labview.

Los componentes principales son los siguientes: Un electroimán serie HV-4V, capaz de alcanzar campos de hasta 1 T alimentado por una fuente TDK-Lambda; un inversor de corriente, conectado a la fuente anteriormente citada ; un multímetro *Keithley 2000* de 6 1/2 dígitos de resistencia de entrada de hasta 10 GΩ; un nanovoltímetro *Keithley 200*; una fuente de corriente *Keithley 236* y una sonda donde se sitúa el portamuestras.

El portamuestras se compone de dos piezas de Nitruro de aluminio (AlN) de baja conductividad eléctrica y alta conductividad térmica entre las cuales se sitúa la muestra y se sujeta mediante tornillos de teflón. Se aplica un conductor térmico, una grasa denominada *Apiezon* para mejorar el flujo de calor entre la muestra y el sistema de medida. Sobre la placa superior se ha posicionado una resistencia eléctrica (*heater*) alimentado por la fuente de corriente *Keithley 263* para introducir el gradiente de temperatura deseado. El portamuestras también posee un termopar que permite la lectura de dicho gradiente con el multímetro *Keithley 2000*. Por último,

para medir la corriente que se genera en la parte metálica de la muestra se realizan conexiones entre esta y los canales del nanovoltímetro *Keithley 200* mediante finos filamentos de aluminio.

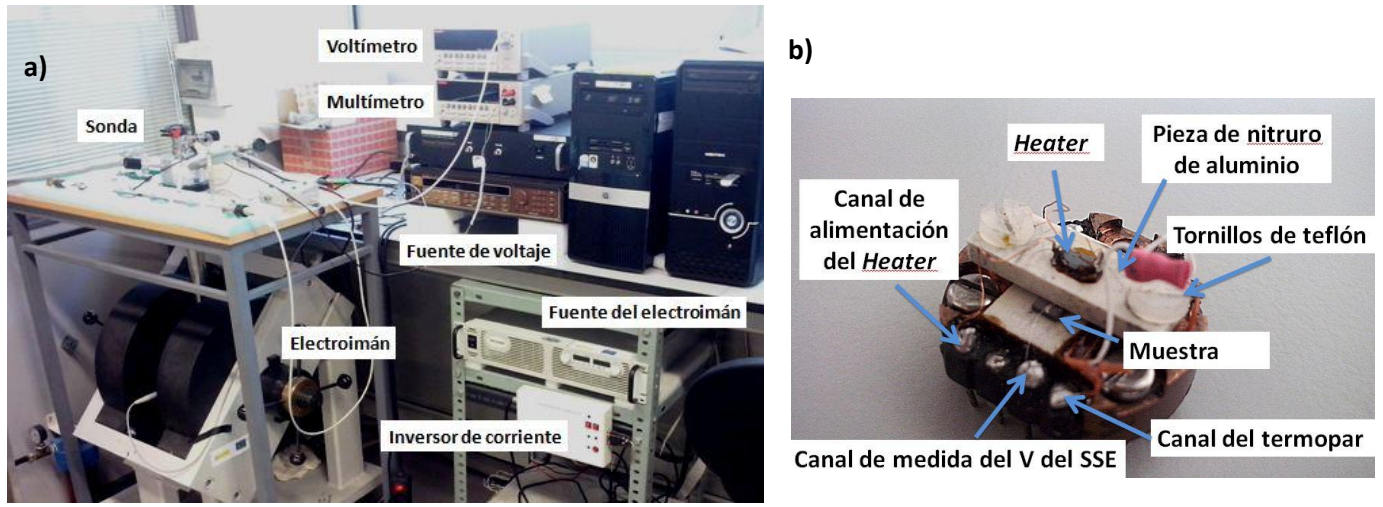


FIGURA 11. (a) Equipo utilizado (b) Portamuestras del sistema de medida

3. RESULTADOS

3.1. FABRICACIÓN Y CARACTERIZACIÓN DE LAS MUESTRAS

Se han crecido 4 muestras que denominaremos M1, M2, M3, M4 y M5 de espesores entre 7 y 400 nm de YIG mediante PLD sobre sustratos de GGG ($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$) (111) de $7 \times 2 \times 0.5 \text{ mm}^3$. La presión base del equipo es del orden de 10^{-7} torr . Todas las muestras se han depositado en atmósfera de oxígeno manteniendo la presión constante a 500 *mtorr* y a una temperatura de crecimiento 650 K. La frecuencia de repetición del láser se ha fijado en 5 Hz y la fluencia en 1.8 J/cm^2 .

Todas las muestras han sido caracterizadas estructuralmente mediante difracción y reflectividad de rayos X antes y después de depositar la capa de Pt para la detección. En primer lugar se presentan los resultados obtenidos mediante reflectividad:

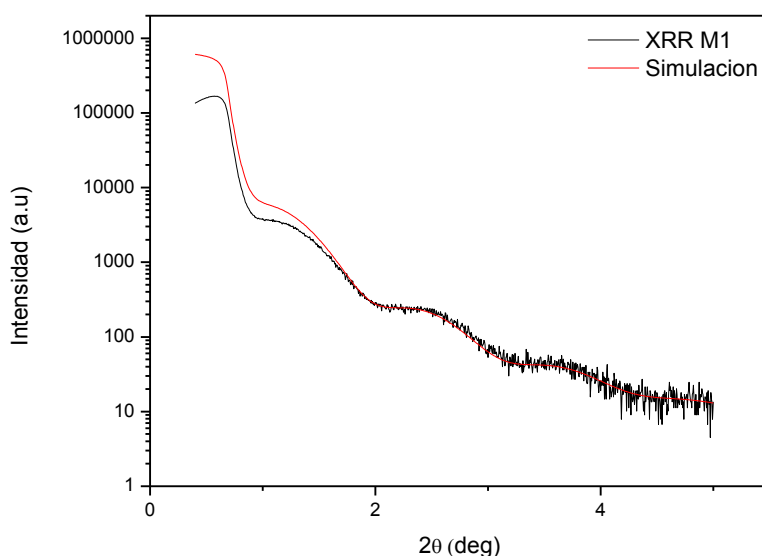


FIGURA 12. Ajuste representativo de una medida de reflectividad. En negro los datos experimentales y en rojo la simulación. Muestra M1.

Los datos experimentales se ajustan mediante un programa de simulación (*Leptos*) que permite estimar los parámetros de densidad, espesor de la capa y rugosidad en la muestra. El grosor obtenido ha sido 7.2 nm para la muestra M1, 28.6 nm para la muestra M2, 41.8 nm para la muestra M3, 140.2 nm para la muestra M4 y 426.6 nm para la muestra M5.

A continuación se presentan los resultados obtenidos por difracción con lo que se analiza la calidad de la estructura cristalina. La figura 13 muestra el patrón de difracción correspondiente a la muestra M3:

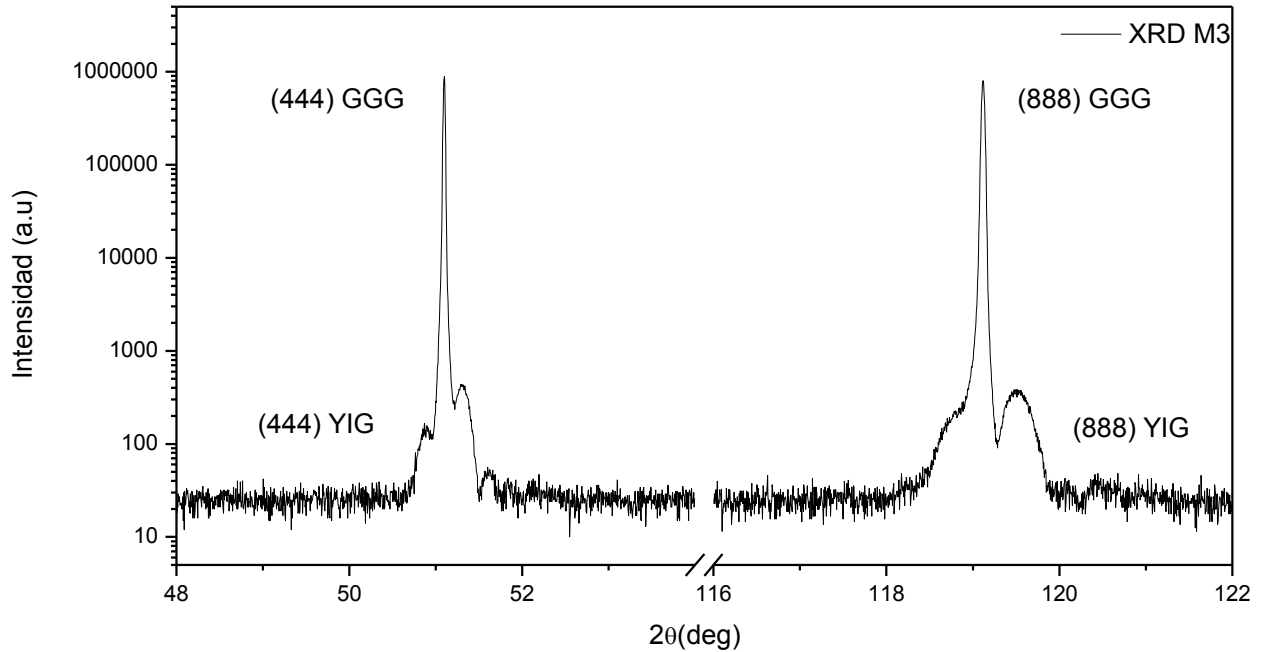


FIGURA 13. Difracción de rayos X para $2\theta = [40^\circ, 130^\circ]$ en la muestra M3

Se observa que únicamente aparecen los picos correspondientes a las direcciones principales del sustrato GGG en la posición $2\theta = 51.083^\circ$ (444) y $2\theta = 119.160^\circ$ (888) y las correspondientes a la capa delgada de YIG $2\theta = 51.093^\circ$ (444) y $2\theta = 119.195^\circ$ (888). Esto indica que el material ha crecido monocristalino, texturado en la dirección principal del sustrato (111) sin evidencia de fases espúreas. A continuación se presenta la difracción de las cuatro muestras en torno al pico principal del sustrato correspondiente a $2\theta \approx 51^\circ$, que permitirá estimar de manera más precisa la calidad del crecimiento del YIG sobre el GGG. Se presentan las medidas de todas las muestras para comentar la diferencia entre ellas (Fig. 14).

La línea roja marca el centro del pico de YIG. En torno a él, aparecen oscilaciones regulares denominadas oscilaciones de Laue, que indican la alta coherencia cristalina que presentan estas muestras. La línea discontinua azul indica el centro del pico del GGG.

Se ha obtenido que la posición de los picos es $\theta = 25.540^\circ$ para la muestra M1, $\theta = 25.510^\circ$ para la muestra M2, $\theta = 25.515^\circ$ para la muestra M3. Sabiendo que tanto el YIG como el GGG forman una red cúbica, podemos calcular el parámetro de red del YIG en cada uno de los casos mediante la ecuación que relaciona la distancia interplanar con el parámetro de red según sus índices de Miller y la ley de Bragg.

$$d_{hkl} = \frac{a_{YIG}}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (10)$$

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta \quad (11)$$

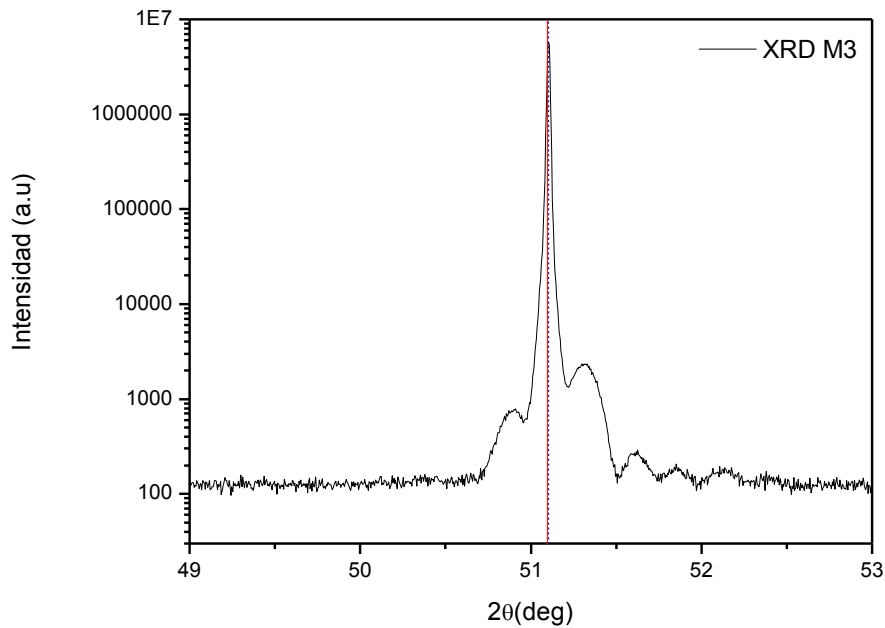


FIGURA 14. Difracción de rayos X para $2\theta = [49^\circ, 53^\circ]$ en la muestra M3.

Se obtiene que $a = 12.378 \text{ \AA}$ para la muestra M1, $a = 12.392 \text{ \AA}$ para la muestra M2 y $a = 12.389 \text{ \AA}$ para la muestra M3.

Se observa que en todos los casos el parámetro de red del YIG en película delgada es muy similar al parámetro de red del YIG en bulk, tal y como se esperaba. La similitud con el parámetro de red y la estructura del sustrato posibilita un crecimiento epitaxial sin que se vea modificada la estructura de la celda unidad del YIG.

3.2. CARACTERIZACIÓN MAGNÉTICA

La caracterización magnética se ha llevado a cabo midiendo ciclos de histéresis a temperatura ambiente de todas las muestras en un equipo VSM para determinar el valor del campo coercitivo (H_c) y la imanación de saturación (M_s) de cada una de ellas.

Es importante subrayar la dificultad que implica la caracterización de estas muestras. El YIG es un material ferrimagnético débil con valores de campo coercitivo de pocos Oersted mientras que el GGG es un paramagnético. Esto implica que la señal magnética de la capa delgada de YIG se verá apantallada por la señal del sustrato, por lo que será preciso sustraer dicha contribución.

Para ello, previamente, se ha medido un sustrato de GGG homólogo a los utilizados para el crecimiento de las capas delgadas. Esta contribución ha sido eliminada en cada una de las medidas, obteniéndose en cada caso un ciclo de histéresis típico de un ferrimagnético.

A continuación se presenta la imanación por unidad de volumen frente al campo magnético aplicado de cada muestra tras haber eliminado la contribución del sustrato (Fig. 15). Todas las demás muestras presentan ciclos similares al mostrado en la figura. El campo coercitivo H_c obtenido para la muestra M1 es $1.26 \pm 0.14 \text{ Oe}$ para la muestra M2 es $1.8 \pm 0.1 \text{ Oe}$ y para la

muestra M3 es $7.4 \pm 1.0 Oe$. La imanación de saturación M_s obtenida para la muestra M1 es $130 \pm 11 emu/cm^3$, para la muestra M2 es $129 \pm 11 emu/cm^3$ y para la muestra M3 es $127 \pm 5 emu/cm^3$.

Se observa que la imanación de saturación se encuentra en todos los casos en torno al valor esperado ($M_s \sim 140 emu/cm^3$) mientras que el valor de H_c obtenido está en el rango de unos pocos Oersted como era de esperar.

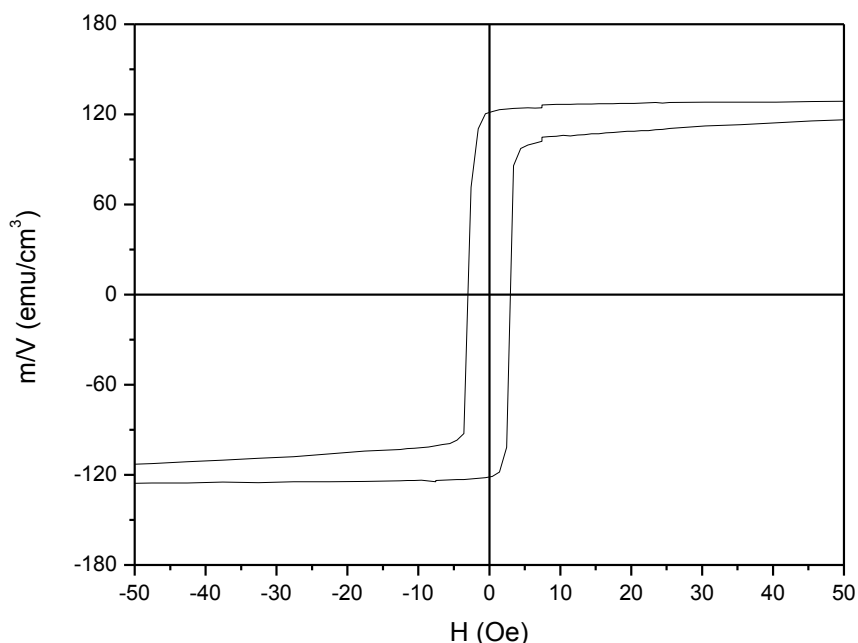


FIGURA 15. Curva de imanación por unidad de volumen frente al campo aplicado de una muestra representativa del grupo.

3.3. CRECIMIENTO DE PT POR SPUTTERING

Tras realizar una caracterización de las muestras y comprobar que estas presentan las propiedades magnéticas y estructurales buscadas correspondientes al YIG, se ha procedido al crecimiento de una capa de platino para la detección del SEE mediante ISHE.

El crecimiento de platino se ha llevado a cabo mediante Sputtering. La presión base se la cámara es del orden de $10^{-9} Torr$. Las condiciones de crecimiento utilizadas han sido: una presión de Argón de $5 \cdot 10^{-4} Torr$, potencia de $10 W$ y temperatura del sustrato de unos $23^\circ C$ (temperatura ambiente). Se ha realizado el crecimiento del platino simultáneamente en todas las muestras para evitar diferencias de espesor apreciables entre las diferentes muestras.

Tras el crecimiento, se ha determinado el grosor de la capa de Pt mediante reflectividad. El valor obtenido ha sido $5.94 nm$.

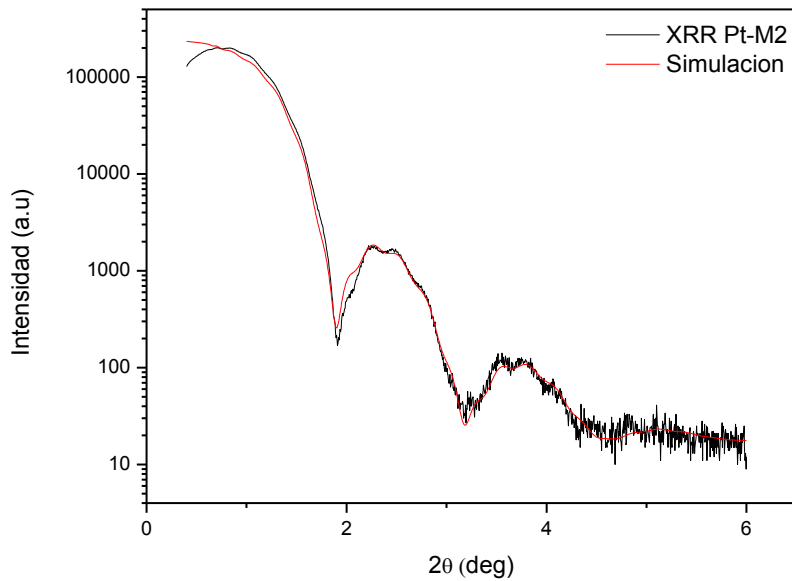


FIGURA 16. Reflectividad representativa de las muestras con platino

En la figura se observa la superposición de dos oscilaciones. Las oscilaciones de mayor tamaño corresponden a las franjas de Kiessig producidas por la capa de platino y las superpuestas a estas corresponden a las franjas producidas por la capa de YIG.

3.4. MEDIDAS LSSE

Tras realizar la caracterización se ha medido el LSSE en todas las muestras.

A continuación se muestran los resultados experimentales y se explica el procedimiento por el cual se ha llegado a determinar el coeficiente de espín Seebeck. Se ha medido la señal eléctrica que aparece en el platino frente a la aplicación de campo para diferentes gradientes de temperatura, típicamente 2,5 K, 5 K, 7,5 K y 10 K (Fig. 17). Se ha efectuado la medida para cada una de las muestras, para posteriormente representar dicho coeficiente en función del espesor.

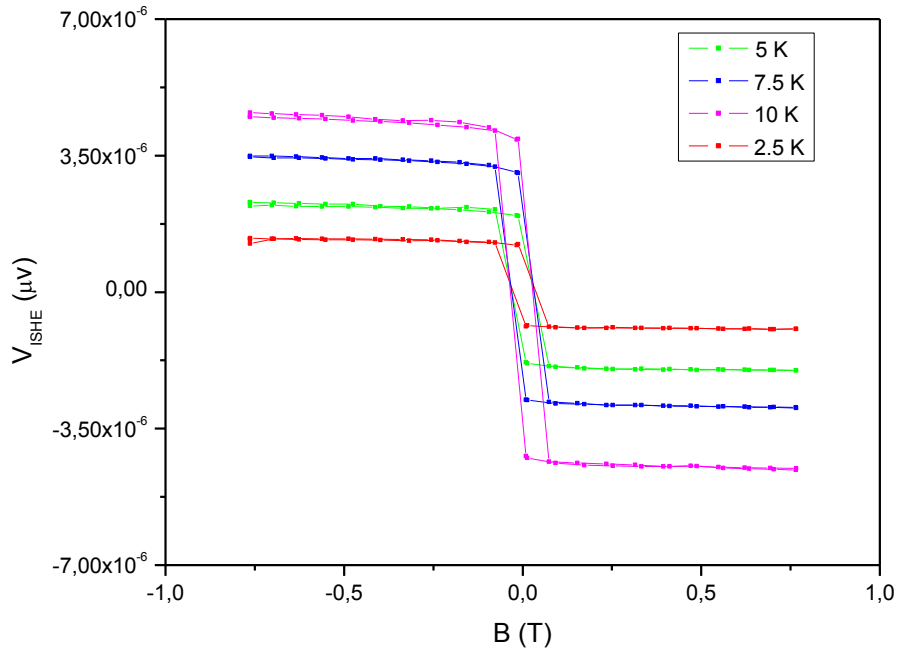


FIGURA 17. Voltaje frente a campo aplicado para diferentes gradientes de temperatura en la muestra M4

Se descompone esta señal en parte simétrica y parte antisimétrica de forma que se excluya la influencia del nivel de tierra de la medida o cualquier otro efecto (Fig 18).

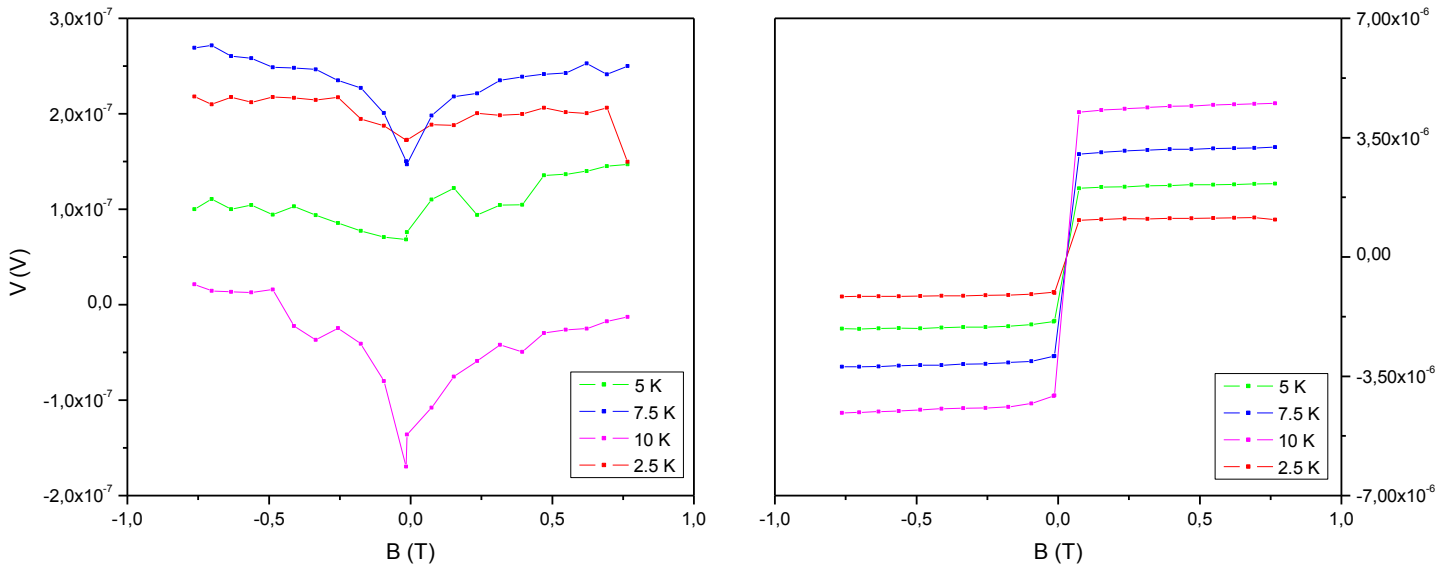


FIGURA 18. Descomposición de la señal en simétrica y antisimétrica para la muestra M4

Con la señal antisimétrica se calcula el voltaje de efecto espín Hall inverso como la diferencia del voltaje en saturación para el campo positivo y negativo dividido entre 2. Es decir:

$$V(\nabla T_z)_{ISHE} = \frac{[V(B_{m\acute{a}x}) - V(-B_{m\acute{a}x})]}{2} \quad (12)$$

A partir de este valor puede determinarse el coeficiente de espín Seebeck, representando cada potencial espín Hall medido frente al gradiente de temperatura que se estaba aplicando sobre el sistema:

$$C_{SSC} = \frac{V(\Delta T_z)_{ISHE} L_z}{\Delta T_z L_y} \quad (13)$$

Donde L_z es el grosor de la muestra y L_y es la distancia entre las conexiones que se efectuaron para medir el voltaje. Para ello se ha representado $V(\Delta T_z)_{ISHE}$ frente a ΔT_z y se ha hecho un ajuste lineal de los datos. La figura presenta los errores de la medida en el eje X e Y (Fig. 19).

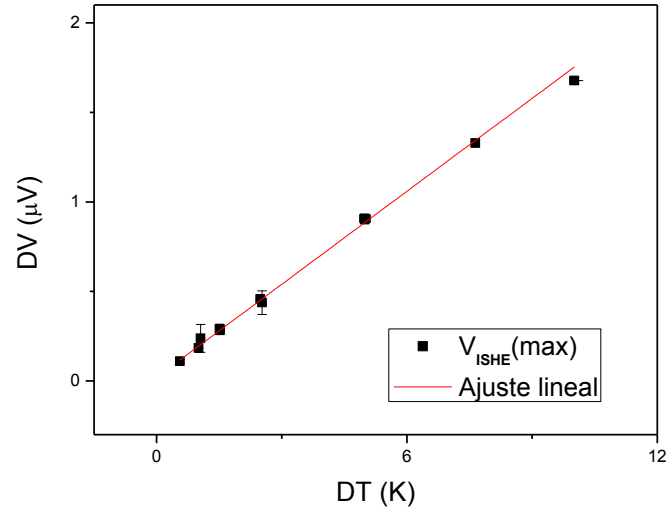


FIGURA 19. V_{ISHE} frente a gradiente de temperatura en la muestra M2

A continuación se presentan los datos calculados para el coeficiente de cada muestra. Para la muestra M1 se obtiene que $C_{SSC} = 2.9 \pm 0.5 \cdot 10^{-9}$ V/K, para la muestra M2 se obtiene que $C_{SSC} = 1.4 \pm 0.2 \cdot 10^{-8}$ V/K, para la muestra M3 se obtiene que $C_{SSC} = 2.7 \pm 0.5 \cdot 10^{-8}$ V/K, para la muestra M4 se obtiene que $C_{SSC} = 8.6 \pm 1.2 \cdot 10^{-8}$ V/K y para la muestra M5 se obtiene que $C_{SSC} = 7.1 \pm 1.3 \cdot 10^{-8}$ V/K.

Se representan gráficamente estos resultados en función del espesor de cada muestra (Fig. 20).

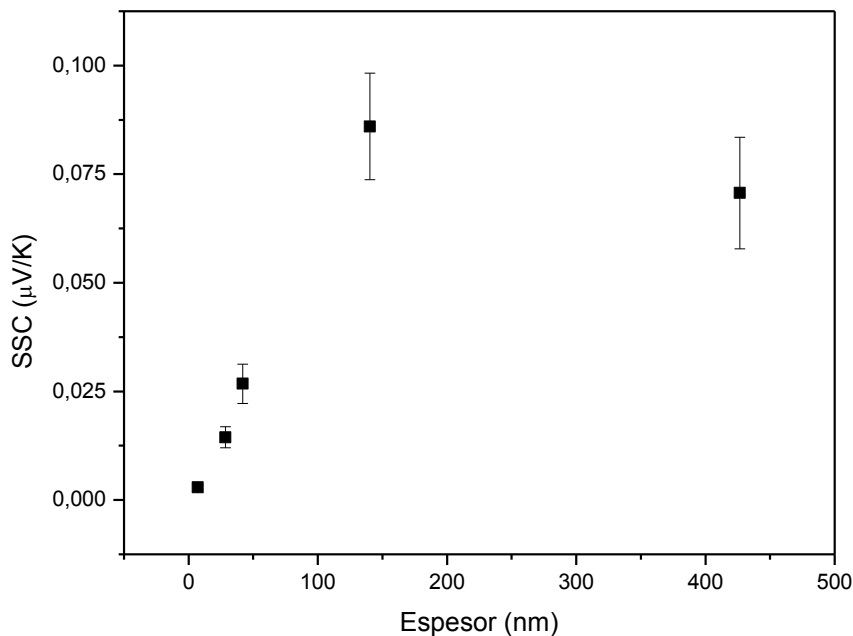


FIGURA 20. Coeficiente Seebeck de espín en función del grosor para las muestras M1, M2 M3, M4 y M5

Se observa que para espesores comprendidos entre 7 y 40nm de YIG el coeficiente de SSE aumenta de valor linealmente, pero al llegar a cierto valor de espesor el coeficiente parece tender a una saturación.

Se normalizan los coeficientes anteriores dividiendo entre el de mayor valor (SSC_{M5}) y se realiza un ajuste de los datos con la ecuación (6) presentada en el apartado 1.1.2.:

$$V_{SSE} \propto \frac{\cosh (l_{FM} / \Lambda) - 1}{\sinh (l_{FM} / \Lambda)} \quad (6)$$

Se encuentra que la longitud característica de acumulación de los magnones en el YIG es de $\Lambda = 78 \pm 27 \text{ nm}$ para temperatura ambiente $T = 300 \text{ K}$ (Fig. 21). Este valor se aproxima al valor experimental hallado en otras referencias bibliográficas [10].

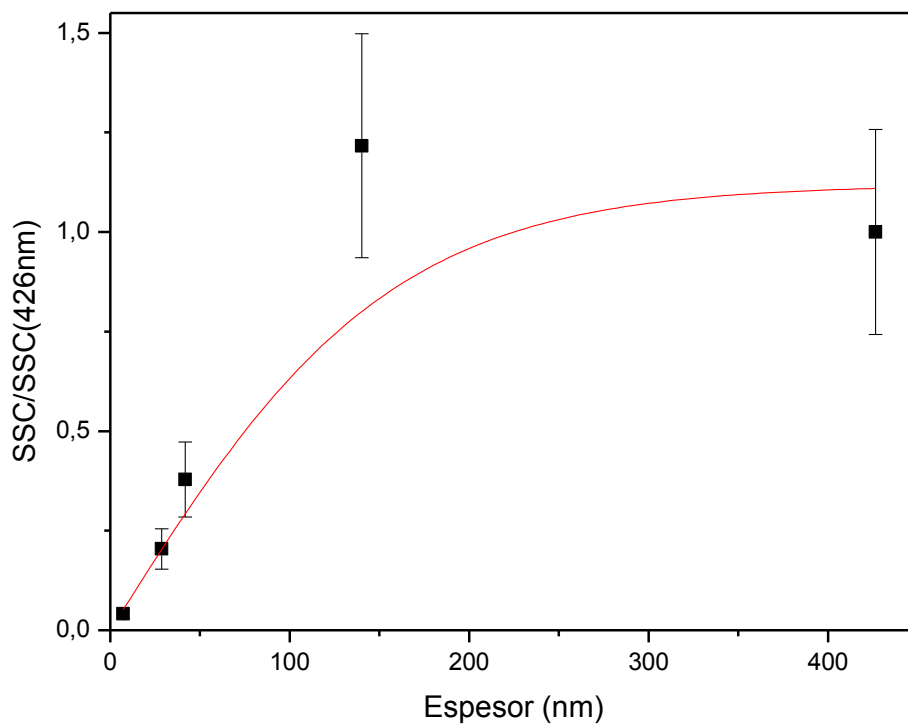


FIGURA 21. Ajuste de la longitud de acumulación de magnones

4. RESUMEN Y CONCLUSIONES

Se ha realizado un crecimiento de 4 muestras de YIG de diferentes espesores mediante PLD. Estas muestras han sido caracterizadas mediante las técnicas de difracción y reflectividad de rayos X mostrando una estructura monocristalina paralela al plano (111) y un parámetro de red semejante al YIG en bulk. La caracterización magnética muestra una imanación de saturación M_s y un campo coercitivo H_c similares también al YIG el bulk.

Con el objetivo de la detección de las corrientes de espín se ha crecido mediante *Sputtering* una película delgada de Pt de unos 7 nm sobre todas las muestras.

Una de las observaciones fundamentales es que el voltaje medido mediante ISHE aumenta linealmente conforme lo hace el gradiente de temperatura aplicado sobre el sistema, debido al aumento del efecto Seebeck de espín. Por ajuste lineal de esta dependencia se determina el coeficiente Seebeck de espín para cada una de las muestras.

Representando el coeficiente Seebeck de espín en función del espesor de cada muestra puede apreciarse que para espesores bajos dicho coeficiente sigue una tendencia lineal creciente. Sin embargo, cuando se alcanzan espesores elevados el coeficiente tiende a saturar.

Según la dependencia propuesta por la teoría de respuesta lineal del SSE, puede determinarse la longitud característica de acumulación de magnones mediante esta dependencia. Para ello se ha normalizado los coeficientes respecto del de máximo grosor, y se ha realizado un ajuste con respecto a la dependencia del V_{SSE} . El valor obtenido en el caso de nuestras muestras de YIG ha sido $\Lambda = 78 \pm 27 \text{ nm}$ que es muy similar al valor publicado en la bibliografía para este material. Concretamente, en el artículo de Rezende en el que se utiliza este mismo modelo teórico expone que la longitud de acumulación para este mismo material se encuentra en torno a los 70 nm [10]. En el artículo de Kehlberger se hallan longitudes de acumulación de entre 90 nm y 140 nm a una temperatura de 300 K, aunque se utiliza otro modelo para su cálculo [12].

Todo el proceso de medida del LSSE ha sido realizado a temperatura ambiente (300 K). Este trabajo podría ampliarse realizando estas mismas medidas para otra temperatura, lo que permitiría determinar se ve afectada la longitud de acumulación de magnones.

Subrayar que el trabajo ha presentado dificultades técnicas y teóricas a lo largo de su desarrollo. La principal dificultad técnica es la fragilidad de los sustratos utilizados. La medida del LSSE es una fase delicada del proceso y las muestras pueden dañarse. Algunas han sufrido una fractura durante el proceso de medida, por lo que ha sido preciso repetirlas con toda la problemática que ello conlleva. La repetición de una muestra puede verse condicionada por averías en la instrumentación. También se precisa realizar una nueva calibración para obtener los mismos resultados que en el primer conjunto de muestras. Además, la repetición de cualquier tipo de proceso en periodos espaciados en el tiempo puede suponer una variación en algunos parámetros de la instrumentación que a primera vista no serían perceptibles (por ejemplo, una leve variación de la posición de una sonda que mide campo magnético, un cambio en la óptica que conduce el láser a la cámara de crecimiento, etc...).

La principal dificultad teórica es que no existe un único modelo que haya sido aceptado globalmente para describir como se produce el efecto Seebeck de espín. Además, los modelos publicados son de una elevada complejidad, por lo que para entender completamente su desarrollo sería preciso una dedicación mucho más prolongada que la estipulada para realizar el trabajo.

5. BIBLIOGRAFÍA

- [1] C. T. Walker, G. A. Slack (1970) *Who named the –ON's*. American Journal of Physics
- [2] C. Kittel (2004) *Introduction to Solid State Physics*-John Wiley and Sons Ltd
- [3] G.E.W. Bauer, E. Saitoh, B. J. van Wees. (2012) *Spin caloritronics*. Nature Materials.
- [4] H. Adach, K. U. (2013). *Theory of the spin Seebeck effect*. IOP Publishing .
- [5] S. Maekawa, S. V. (2012). *Spin Current*, ISBN 978-2-19-960038-0. Oxford University Press.
- [6] K. Uchida, M. I. (2014). *Longitudinal spin Seebeck effect: from fundamentals to applications*. ISBN 978-0-521-81614-4. IOP Publishing.
- [7] J. M. D. Coey (2010). *Magnetism and magnetic materials*. Cambridge university press
- [8] V.Cherepanov, I. Kolokolov, V. L'vov (1993). *The saga of YIG: Spectra, thermodynamics, interaction and relaxation of magnons in a complex magnet*. Physics reports.
- [9] K.Uchida, S. Takahashi, K.Harii, J. Ieda, W. Koshibae, (2008). *Observation of the spin Seebeck effect*. Nature
- [10] S. M. Rezende, R.L. Rodríguez-Suarez (2014). *Magnon spin-current theory for the longitudinal spin- Seebeck effect*. Physical Review
- [11] J.M.Albella (2003). *Laminas delgadas y recubrimientos. Preparación, propiedades y aplicaciones*. ISBN 978-84-00-08166-9. Consejo Superior de investigaciones científicas.
- [12] A. Kehlberger, U. Ritzmann, D. Hinzke,(2015) *Length scale of the spin Seebeck effect*. Physical Review.