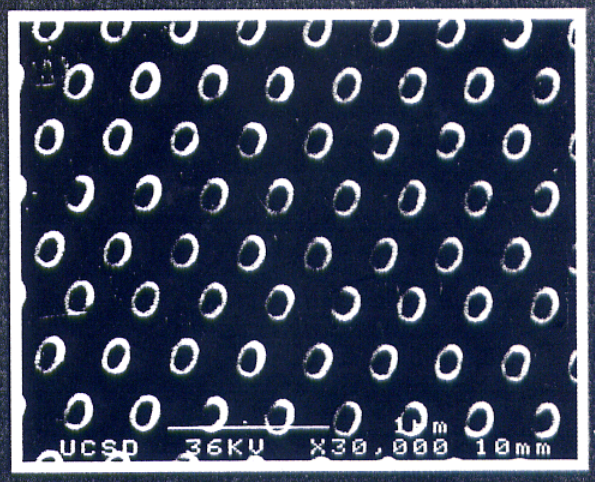
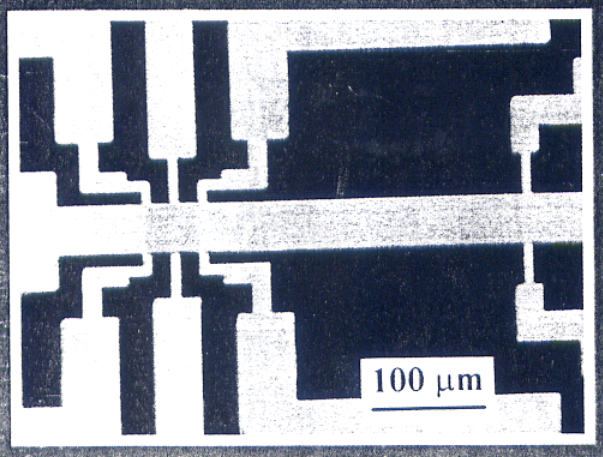
REVISTA ESPAÑOLA DE

FISICA

VOLUMEN 12, NUMERO 3, 1998



- Premios Príncipe de Asturias 1998
- Entrevista con I. K. Schuller
- Caos y mecánica cuántica
- Ciencia, Sociedad y Universidad



- Fabricación y propiedades de estructuras submicrométricas
- Rayos bola
- Mujeres científicas

REAL SOCIEDAD ESPAÑOLA DE FÍSICA

Temas de Física

Revista Española de Física 12 (3), 1998

José I. Martín

Fabricación y propiedades de estructuras submicrométricas de materiales magnéticos

José I. Martín, María Vélez, Josep Nogués e Iván K. Schuller

ABSTRACT: The method of electron beam lithography is described. This technique allows to fabricate well defined submicrometric structures of magnetic materials, that are suitable to show and study interesting physical properties by transport measurements either in Superconductivity or in Magnetism. In particular, using these structures, we have analyzed pinning effects of the vortex lattice in superconductors and magnetization reversal processes in magnetic materials.

INTRODUCCIÓN

La fabricación de estructuras en forma de lámina delgada con geometría bien definida y de reducidas dimensiones ha sido objeto de numerosos trabajos. Ello se debe principalmente a su importancia desde el punto de vista de la Física Básica, ya que permiten diseñar experimentos que pongan de relieve nuevas propiedades físicas de los materiales. Asimismo, estas estructuras son fundamentales para la Física Aplicada, debido al papel primordial que en este campo desempeña la miniaturizacion. El método convencional con el que se obtienen estas estructuras es mediante la técnica de litografía óptica, con la que se consiguen geometrías cuyos tamaños característicos son del orden de varios micrómetros. Sin embargo, recientemente, se han comenzado a desarrollar otro tipo de técnicas de litografía que permiten la obtención de estructuras de tamaño submicrométrico [1-5]. Dichas estructuras pueden poner de manifiesto nuevas propiedades físicas, ya que en ellas las dimensiones geométricas son comparables a algunas longitudes características, como pueden ser la longitud coherente superconductora o la anchura de la pared de un dominio magnético.

Entre estas nuevas técnicas de fabricación, la litografía por haz de electrones es la que está alcanzando una mayor popularidad debido a los excelentes resultados que permite obtener. En ella se lleva a cabo el diseño de las estructuras mediante un microscopio electrónico de barrido [3-5]. En nuestro trabajo hemos utilizado este tipo de litografía para fabricar diversas estructuras submicrométricas de materiales magnéticos, que han sido empleadas posteriormente para el análisis de distintas propiedades físicas. En este artículo describimos, en primer lugar, el proceso de litografía por haz de electrones que hemos llevado a cabo. Y, en segundo lugar, presentamos el interesante comportamiento que ciertas propiedades físicas muestran en algunas de estas estructuras. En concreto, se analizan la dinámica de vórtices en superconductores y los procesos de rotación de la imanación en materiales magnéticos.

PROCESO DE LITOGRAFÍA POR HAZ DE ELECTRONES

La obtención de estructuras mediante litografía por haz de electrones es un proceso relativamente complejo, ya que consta de varias etapas consecutivas tal y como se esquematizan en la figura 1.

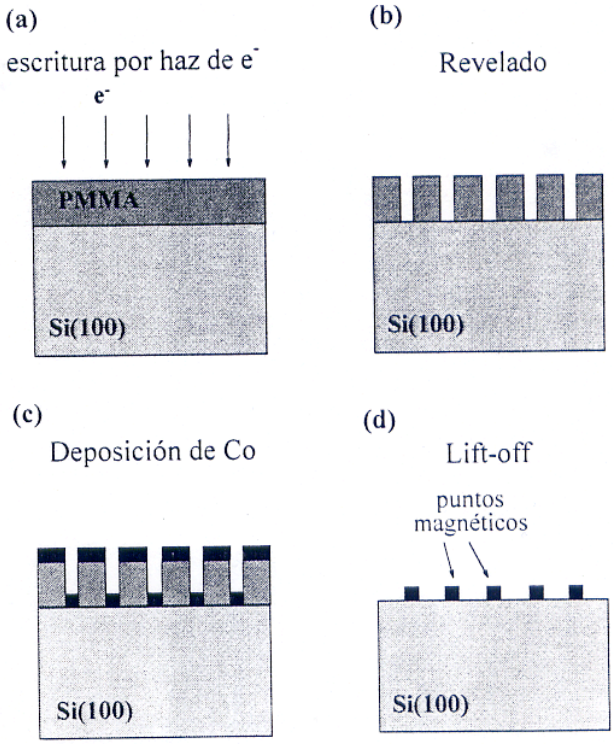


Figura 1: Esquema del proceso de litografía por haz de electrones. (a) Iluminación de la resina PMMA con el haz de electrones para dibujar el patrón deseado. (b) Revelado. (c) Deposición de la película de material magnético. (d) Eliminación del PMMA restante ("lift-off").

En primer lugar, se extiende una resina sensible a los electrones sobre el sustrato de Si(100); en concreto, la resina utilizada es una disolución al 4% de polimetilmetacrilato (conocido como PMMA) en triclorobenzeno. A continuación, en un microscopio electrónico de barrido (JEOL 6400) se expone la muestra al haz de electrones. El movimiento del haz se lleva a cabo mediante un sistema controlado por ordenador, dibujando el patrón con la geometría que se quiere obtener. De este modo se iluminan únicamente aquellas regiones de PMMA en donde posteriormente queremos obtener la estructura deseada (figura 1(a)). Ello requiere de un alineamiento lo más perfecto posible del haz sobre la muestra, así como de una calibración previa de las dosis a emplear (tiempos e intensidades).

En la segunda etapa se realiza el revelado de la resina; éste es un proceso crítico en el que se necesita un gran control sobre las condiciones de temperatura y tiempo de revelado, que típicamente son 16ºC y 30 segundos. Así, se consigue eliminar la resina de las zonas expuestas a los electrones, permaneciendo en el resto de las regiones del sustrato (figura 1(b)).

Después, se deposita una película del material con el que se quiere obtener la estructura submicrométrica sobre el sustrato con la resina PMMA restante (figura 1(c)). En general, hemos empleado materiales magnéticos: hierro, níquel o cobalto. Esta deposición se ha llevado a cabo tanto mediante pulverización catódica tipo magnetrón ("sputtering") como mediante evaporación por haz de electrones. Los espesores empleados para la fabricación de estas muestras han sido variados en el rango 30-50 nm, y han sido calibrados mediante el análisis de la difracción de rayos-X. La etapa final en la obtención de las estructuras submicrométricas consiste en un proceso de "lift-off" (figura 1(d)), es decir, en disolver la resina PMMA restante con acetona. De esta manera se quita también la película del material magnético depositada sobre ella, quedando solo en aquellas regiones en donde no había PMMA debajo (esto es, en las que había incidido el haz de electrones del microscopio).

Las estructuras obtenidas al final de este largo proceso presentan la geometría bien definida que se deseaba. En la figura 2 se muestran

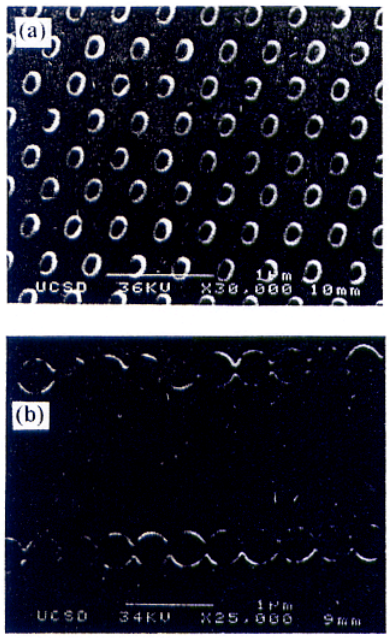


Figura 2: Imágenes de SEM de estructuras de puntos magnéticos fabricadas mediante litografía por haz de electrones. (a) Red triangular de puntos de Co con parámetro de red de 410 nm. (b) Cadenas de puntos magnéticos de Ni conectados y con diámetro de 400 nm.

dos imágenes de microscopía electrónica de barrido correspondientes a dos de las estructuras en las que se ha realizado posteriormente el estudio de propiedades físicas. Por una parte, se han fabricado redes regulares de puntos magnéticos, bien con estructura cuadrada o triangular (figura 2(a)), cuyas distancias características de red (d) han sido variadas entre 400 y 600 nm. Estos puntos se han obtenido con un diámetro en el rango 150-250 nm y su espesor es 45 nm. Este tipo de estructuras lo hemos empleado para estudiar fenómenos de anclaje de la red de vórtices en superconductores. A este respecto cabe señalar que, en trabajos previos llevados a cabo por otros autores [6], los tamaños y distancias típicas en la red de puntos magnéticos eran un orden de magnitud más grandes. Ello restringía el rango de campos magnéticos a estudiar. El análisis de los resultados obtenidos se presenta en la sección 3 del artículo.

Por otra parte, se han obtenido cadenas de puntos magnéticos conectados (figura 2(b)), con conexiones del orden de 100 nm y diámetro de 400 nm. Por lo tanto, estas distancias son comparables con los tamaños de las paredes magnéticas. El espesor de los puntos en este caso es también 45 nm. En estas cadenas hemos estudiado sus propiedades de transporte haciendo pasar a lo largo de ellas una corriente eléctrica. Algunos de los resultados más interesantes que hemos encontrado se describen más adelante.

FENÓMENOS DE ANCLAJE DE LA RED DE VÓRTICES EN SUPERCONDUCTORES

Una de las características de un material superconductor, además de su resistencia nula, es que expulsa el campo magnético de su interior (efecto Meissner). Sin embargo, en los superconductores de tipo II, para $H > H_{C1}$, el campo magnético puede penetrar en su interior en forma de vórtices. Un vórtice es un tubo de flujo magnético cuantizado (el cuanto de flujo magnético es $\Phi_0 = 2.07 \times 10^{-15}$ Tm^2), rodeado por una corriente de apantallamiento y con un núcleo de material en estado normal [7]. Estos vórtices no se encuentran al azar dentro del superconductor, sino que forman una red ordenada tal y como se esquematiza en la figura 3. En particular, la distancia entre vórtices (a_0) depende del campo magnético aplicado [7] de acuerdo con la ecuación

$$a_0 = 1.075 \times (\Phi_0/B)^{1/2}. \qquad (1)$$

Si en estas condiciones se hace pasar una corriente eléctrica por el

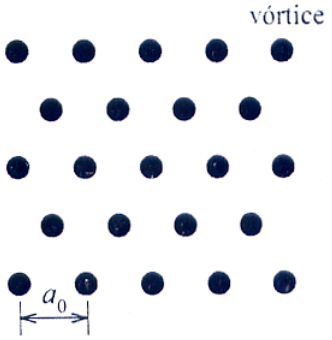


Figura 3: Esquema de la red de vórtices en un superconductor tipo II. El parámetro de red a_0 depende del campo magnético según se indica en el texto.

superconductor, la red de vórtices sufre la fuerza de Lorentz de manera que se pone en movimiento. Ello provoca la aparición de una resistencia finita, de modo que el superconductor pierde su propiedad $R = 0$. Esta disipación se puede evitar si existen en el material centros de anclaje adecuados para los vórtices que impidan que estos se pongan en movimiento. En general, en el material existen siempre distintos tipos de defectos que pueden comportarse como centros de anclaje para los vórtices, ya que es energéticamente favorable para ellos situarse sobre los defectos. Esto se debe a que se gasta menos energía de condensación superconductora cuando el vórtice se coloca en un defecto que cuando se encuentra en cualquier otro lugar del superconductor [8].

En nuestro caso, hemos empleado las redes de puntos magnéticos anteriormente descritas (figura 2(a)) como centros de anclaje para la red de vórtices en películas superconductoras de niobio [9]. Éstas han sido crecidas directamente sobre la red de puntos magnéticos mediante pulverización catódica con un espesor de 100 nm. De este modo, los puntos interaccionan con el niobio circundante debido a su carácter magnético, lo que posibilita que se comporten como defectos en el material. Cabe destacar que la técnica de litografía por haz de electrones nos ha permitido obtener las redes de puntos con una geometría que mimetiza la de la red de vórtices. Además, el radio de cada uno de ellos es del orden de la longitud coherente superconductora del niobio, es decir, del tamaño del núcleo del vórtice. Ambas circunstancias son muy relevantes de cara a que los puntos magnéticos se comporten como centros de anclaje adecuados [8].

Para realizar las medidas de magnetotransporte en la muestra, se han definido sobre la película de niobio el camino para la corriente así como varios contactos eléctricos mediante una litografía óptica convencional y un ataque por iones reactivos del niobio. La geometría final de la muestra es la que aparece en la imagen de la portada, y nos permite realizar dos medidas independientes: una en la región donde solo hay niobio, y otra en la que el niobio está crecido sobre los puntos magnéticos. Ello es importante de cara a poder comparar resultados en la misma película.

En la figura 4 se representan las curvas ρ (B) obtenidas en ambas regiones en una muestra con una red triangular de puntos de níquel de parámetro de red $d = 410$ nm. La resistividad, que en este tipo de medidas se produce por la disipación originada por el movimiento de la red de vórtices, presenta dos comportamientos claramente distintos. Por una parte, en la región en donde solo hay Nb (figura 4(a)), ρ tiene la dependencia habitual de un superconductor en el estado mixto, creciendo monótonamente con el campo magnético hasta alcanzar un valor igual al del estado normal (en el que la muestra deja de ser superconductora). Sin embargo, en la zona en donde están los puntos magnéticos de Ni (figura 4(b)), la curva muestra una estructura de mínimos a intervalos constantes de B, revelando que la disipación disminuye para dichos valores concretos de campo magnético.

El análisis de los resultados indica que los valores de B en los que hay un mínimo en la resistividad están relacionados con la red de puntos magnéticos presente en la muestra. Así, existe un mínimo para el campo en el que se cumple, de acuerdo con la ecuación (1), que el parámetro de la red de vórtices (a_0) y el de la red de puntos (d) son iguales, y para los valores de B que sean múltiplos enteros de dicho campo. Es decir, la disipación disminuye cada vez que el campo magnético proporciona un número entero de vórtices por cada celda unidad de la red de puntos magnéticos. Ello pone de manifiesto que este efecto observado esta producido realmente por la interacción entre los vórtices y los puntos. Así, estos últimos se comportan como centros de anclaje en el niobio y consiguen impedir el movimiento de los vórtices cuando existe una sincronización adecuada entre ambas redes (reduciendo la disipación y, por tanto, la resistividad).

PROCESOS DE ROTACIÓN DE LA IMANACIÓN EN CADENAS DE PUNTOS MAGNÉTICOS

Una de las propiedades más importantes a estudiar para poder entender el comportamiento de los materiales magnéticos es la relativa a los mecanismos de rotación de la imanación que tienen lugar en ellos. Estos mecanismos hacen referencia a los procesos de cambio de orientación que siguen los dominios magnéticos para invertir el signo de su imanación. En concreto, los procesos de rotación de la imanación en partículas magnéticas son fundamentales desde el punto de vista de la Física Aplicada, debido al papel primordial que juegan en los dispositivos de grabación magnéticos [10,11]. Cabe señalar que, en mu-

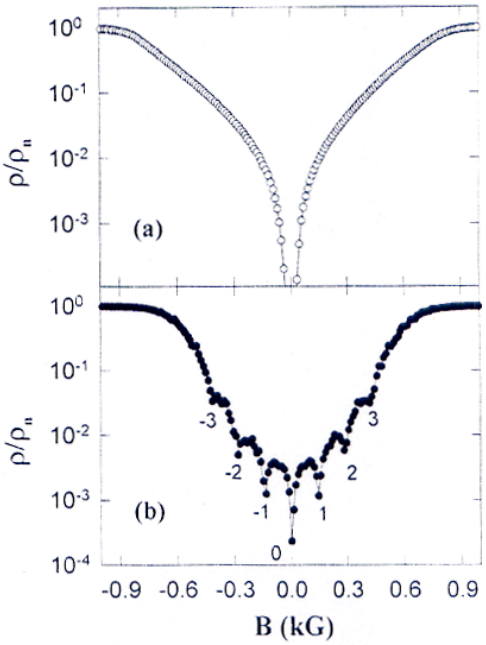


Figura 4: Resistividad en función del campo magnético de una película de 100 nm de grosor de Nb con una red triangular de puntos magnéticos de Ni de espaciado $d = 410$ nm para (a) la región de Nb de referencia, (b) la región donde se encuentra la red de puntos magnéticos. La temperatura es $T = 8.2$ K y la corriente de medida $J = 2.5\ 10^4$ A/cm^2. La resistividad está normalizada con la resistividad de estado normal ρ_n y se indica sobre la figura el orden del campo de ajuste de cada mínimo.

chas ocasiones, para el análisis de este tipo de procesos se suele acudir a una descripción teórica sencilla en la que cada partícula magnética se modeliza como una cadena de monodominios circulares [12]. Ello se hace aunque la geometría de la partícula real sea muy diferente de la del modelo.

En nuestro trabajo, la litografía por haz de electrones nos ha permitido obtener, como ya describimos anteriormente, estructuras de cadenas de puntos magnéticos (figura 2(b)). La geometría de estas estructuras es similar a la utilizada como modelo teórico para estudiar los procesos de rotación de la imanación. Con esta configuración, es posible hacer pasar una corriente eléctrica a lo largo de las cadenas de puntos y, de este modo, obtener la variación de la resistividad con el campo magnético o magnetoresistencia de las mismas [13]. Este tipo de medidas permiten analizar la inversión de la imanación de los dominios magnéticos, ya que el ciclo de histéresis de la resistividad está estrechamente relacionado con ella [14], de manera análoga a lo que sucede con el ciclo de histéresis de la imanación. Por este motivo, se han preparado en ambos extremos de las cadenas de puntos magnéticos unas regiones que permiten la deposición de los contactos de plata necesarios para realizar las medidas de magnetotransporte. Dichas regiones se han fabricado mediante el mismo procedimiento de litografía por haz de electrones. Las medidas de magnetoresistencia se han llevado a cabo con corriente continua y han sido hechas en un criostato con un imán superconductor capaz de producir un campo magnético de 80 kOe.

En la figura 5(a) se representa la variación de la resistividad con el campo magnético en cadenas de puntos de cobalto cuando el campo se aplica paralelamente al plano de la muestra pero perpendicularmente a las cadenas (o sea, a la corriente de transporte). A modo de comparación, en el recuadro de la figura se incluye la curva ρ (H) obtenida en una película delgada de cobalto simple depositada en las mismas condiciones. La medida está realizada a igual temperatura y en la misma configuración de campo que la llevada a cabo en las cadenas de puntos. Se puede apreciar que el comportamiento de ambas curvas es distinto. En el caso de la película simple, la resistividad no varía significativamente cuando se disminuye el campo magnético desde la saturación a valores positivos hasta $H = 0$. Sólo después de que el campo se invierte hacia valores negativos la resistencia aumenta considerablemente y alcanza un máximo; a continuación disminuye hasta la saturación para campos negativos (y el mismo comportamiento se obtiene variando el campo desde valores negativos hacia los positivos). Esta dependencia indica que, en este caso, la imanación en la remanencia ($H = 0$) es esencialmente la misma que en la saturación, y que sólo se produce su rotación tras invertir el signo del campo.

Por el contrario, en el caso de las cadenas de puntos de cobalto, la resistividad aumenta claramente al disminuir el campo magnético desde la saturación antes de que este cambie de signo. Ello refleja que la imanación de los puntos comienza a rotar antes de invertir el signo de H. De hecho, es precisamente en $H = 0$ donde la curva presenta el máximo, sugiriendo que en la remanencia el estado de imanación de los puntos debe de estar muy alejado de la saturación. Por otra parte, se observa como la curva medida variando el campo desde valores positivos a negativos se superpone esencialmente con la medida en sentido contrario, lo que indica que la imanación está rotando por estados semejantes. El posterior análisis mediante microscopía de fuerza magnética nos ha confirmado que esta descripción era correcta [13], y que lo que se encuentra en este caso es un proceso de rotación coherente de la imanación [15] como el que se esquematiza en la figura 5(b). De este modo, cada punto magnético se comporta como un monodominio cuyo momento magnético rota simultáneamente con los demás pasando por un estado en $H = 0$ en el que aproximadamente todos se alinean paralelamente a las cadenas.

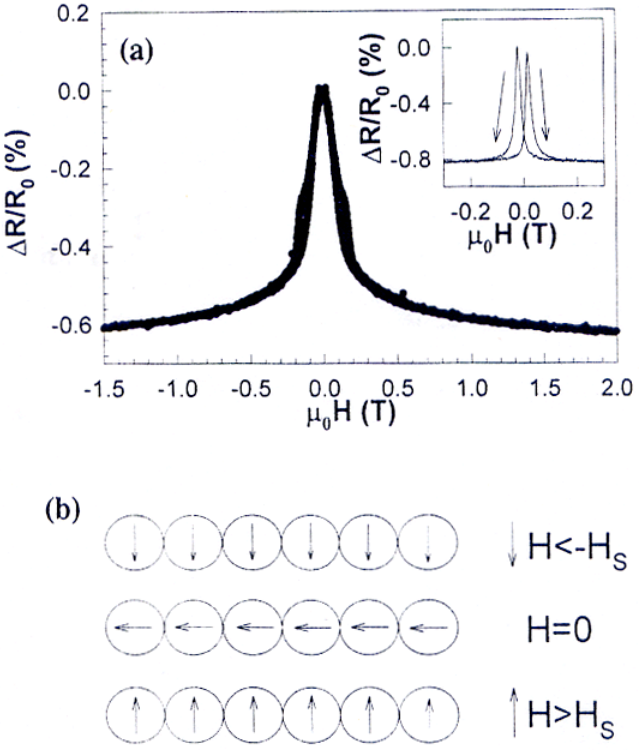


Figura 5: (a) Magnetoresistencia en cadenas de puntos de Co de diámetro 400 nm, con el campo magnético aplicado en el plano de la lámina pero perpendicular a la corriente (T=25 K). El recuadro muestra la magnetoresistencia de una película de Co depositada en las mismas condiciones que las cadenas de puntos y medida en la misma geometría y temperatura. (b) Esquema del mecanismo de rotación coherente de la imanación en las cadenas de puntos magnéticos.

En resumen, la técnica de litografía por haz de electrones permite la fabricación de estructuras de tamaño submicrométrico y geometría controlada. Ello nos ha permitido poner de manifiesto y estudiar nuevas propiedades físicas de los materiales en sistemas de geometría sencilla.

AGRADECIMIENTOS

Este trabajo ha sido posible gracias a las becas postdoctorales del Ministerio de Educación y Cultura y a la financiación obtenida del US Department of Energy. Queremos agradecer a Axel Hoffmann, Yvan Jaccard, Jean-Marie George y José L. Vicent por sus consejos científicos, que han ayudado a llevar a cabo esta investigación y a clarificar las conclusiones que se derivan de ella.

BIBLIOGRAFÍA

[1] Hehn, M., Ounadjela, K., Bucher, J. P., Rousseaux, F., Decanini, D., Bartenlian, B. y Chappert, C.: *Science* **272** (1996) 1782.

[2] Awschalom, D. D., McCord, M. A. y Grinstein, G.: *Phys. Rev. Lett.* **65** (1990) 783.

[3] Smyth, J. F., Schultz, S., Fredkin, D. R., Kern, D. P., Rishton, S. A., Schmid, H., Cali, M. y Koehler, T. R.: *J. Appl. Phys.* **69** (1991) 5262.

[4] Maeda, A., Kume, M., Ogura, T., Kuroki, K., Yamada, T., Nishikawa, M. y Harada, Y.: *J. Appl. Phys.* **76** (1994) 6667.

[5] Kirk, K. J., Chapman, J. N. y Wilkinson, C. D. W.: *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997) 539.

[6] Otani, Y., Pannetier, B., Nozieres, J. P. y Givord, D.: *J. Magn. Magn. Mater.* **126** (1993) 622.

[7] Tinkham, M.: *Introduction to Superconductivity* (McGraw-Hill, New York 1996).

[8] Campbell, A. M. y Evetts, J. E.: *Adv. Phys.* **21** (1972) 199, y sus referencias.

[9] Martín, J. I., Vélez, M., Nogués, J. y Schuller, I. K.: *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 1929.

[10] Manalis, S., Babcock, K., Massie, J., Elings, V. y Dugas, M.: *Appl. Phys. Lett.* **66** (1995) 2585.

[11] Simonds, J. L.: *Physics Today*, April 1995, 26.

[12] Jacobs, I. S. y Bean, C. P.: *Phys. Rev.* **100** (1955) 1060.

[13] Martín, J. I., Nogués, J., Schuller, I. K., Van Bael, M. J., Temst, K., Van Haesendonck, C., Moschalkov, V. V. y Bruynseraede, Y.: *Appl. Phys. Lett.* **72** (1998) 255.

[14] McGuire, T. R. y Potter, R. I.: *IEEE Trans. Magn.* **11** (1975) 1018, y sus referencias.

[15] Stoner, E. C. y Wolfarth, E. P.: *Phil. Trans. Roy. Soc. London A* **240** (1948) 599; reeditado en *IEEE Trans. Magn.* **27** (1991) 3475.

José I. Martín *y* **María Vélez**
están en el Departamento de Física de Materiales de la U.C.M.
Josep Nogués
está en la Universidad Autónoma de Barcelona y
Iván K. Schuller
está en el Physics Department de la University of California San Diego

Propósito de la Revista Española de Física

Esta revista está dedicada a aspectos académicos, pedagógicos y sociales de la física. Pretende servir de puente de comunicación entre sus distintos sectores en España, ofreciendo un canal de información, discusión y debate sobre sus problemas específicos y sobre su situación en el mundo. De manera especial intentará conseguir dos objetivos. Por un lado, acercar la enseñanza y la investigación facilitando el contacto de los profesores de física, toda clase de cursos, con las nuevas ideas y desarrollo. Por otra, terminar con las tajante separación actual entre los que trabajan en tareas académicas y los que se dedican al mundo de la empresa y la producción. Por ello, se dirige a todos los físicos españoles, profesores, estudiantes, investigadores, físicos en empresas privadas, etc.

Se publicarán artículos de física y sobre física de interés informativo o educativo, incluyendo áreas limítrofes como astronomía, geofísica, biofísica, etc. También sobre la relación entre la ciencia y la sociedad, especialmente sobre el papel de la física en la sociedad y la economía española. Se valorarán como características especialmente interesantes de los artículos que se publiquen, capacidad de promover y facilitar información sobre cualquier aspecto de la física española o su valor pedagógico en cursos de física o como complemento de ellos, tanto para profesores como para alumnos, en enseñanza media, básica o universitaria.

Se invita a someter artículos para su publicación a todos los miembros de la comuinidad física y a todos los interesados en sus problemas.

REF no se identifica necesariamente con los puntos de vista expresados en las contribuciones contenidas en ella.

Guía para los autores

Los artículos deberán estar redactados con lenguaje poco técnico y con el mínimo uso de matemáticas de manera que puedan ser leídos fácilmente por los que no son especialistas en la materia. No deben exceder de 3.000 palabras, pero se ruega a los autores que intenten ser más breves lo que aumentará la probabilidad de la aceptación de sus artículos. Normalmente actuarán como árbitros de publicación los miembros del Consejo editorial, pero se solicitará la opinión de otros expertos cuando sea conveniente.

También se publicarán cartas, notas, críticas de libros o comentarios, así como noticias.

Normalmente el idioma de la revista es el castellano, pero ocasionalmente se podrán publicar artículos en inglés u otras lenguas.

Los autores deben incluir, al enviar sus contribuciones:

Dos copias del trabajo, incluyendo cada una:

(1) *Página de portada*, con el título del artículo, nombre del o de los autores e Institución donde se ha realizado el trabajo con su dirección actual y la traducción inglesa del título.

(2) Un *resumen* de menos de 10 líneas en castellano y otro en inglés.

(3) *Texto* a doble espacio, preferentemente en papel tipo A-4. En la última página se incluirá la lista de referencias en orden alfabético de autores.

(4) *Figuras*, con lista de sus pies, y tablas. En el texto se indicará la situación más conveniente de cada una de ellas.

Se agradecerá una tercera copia del trabajo.

La sección "El ordenador y la Física" se estructura en torno a una contribución corta, de una página y media a dos páginas de extensión, impresa sobre métodos numéricos, simulaciones, experiencias pedagógicas, etc. Las subsecciones son: "Pasatiempos informáticos", "Preguntas y respuestas", "Nodos internet", "Nuevas aplicaciones", "Libros" y "Laboratorio".

Las contribuciones pueden enviarse a REF o directamente a los editores de la sección a "refccm@eucmax.sim.ucm.es".

En la meidda de lo posible se ruega que, además del artículo escrito a máquina, se envíe un disco de ordenador con un archivo que contenga el texto, escrito con un procesador compatible con IBM o Macintosh. Esto permite evitar errores y facilitar el proceso de publicación. No obstante quienes lo prefieran pueden enviar simplemente el texto escrito. También se puede transmitir mensajes o incluso el texto completo de los artículos en TEX por correo electrónico a la cuenta FITE207@SIS.UCM.ES. Dirección REF: Real Sociedad Española de Física. Facultad de Física. Universidad Complutense. 28040 Madrid.