

05

Магнетосопротивление пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, выращенных на подложке с орторомбически искаженной элементарной ячейкой

© Ю.А. Бойков, В.А. Данилов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург
E-mail: yu.boikov@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 28 февраля 2005 г.

Получены данные о структуре и магнетосопротивлении эпитаксиальных пленок (40 nm) $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, выращенных методом лазерного испарения на подложке (001) NdGaO_3 . Сформированные манганитные слои были ориентированы осью b перпендикулярно плоскости подложки и находились под действием неоднородных двухосных механических напряжений. Отрицательное магнетосопротивление пленок вблизи температуры ферромагнитного упорядочения спинов достигало 71% ($\mu_0 H = 1$ T). Наблюдавшуюся азимутальную анизотропию магнетотранспортных свойств пленок (40 nm) $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/(001)\text{NdGaO}_3$ удастся объяснить в рамках модели анизотропного магнетосопротивления, учитывая наличие преимущественной ориентации спонтанной намагниченности.

Введение. Тонкие слои перовскито-подобных манганитов $\text{La}_{1-x}(\text{Ca},\text{Sr})_x\text{MnO}_3$ перспективны для использования в магнеторезистивных сенсорах и детекторах ИК-излучения [1,2]. Электронные параметры манганитных пленок зависят от их структуры, состава (x в химической формуле), типа и величины механических напряжений и т.д. Одной из основных причин упругонапряженного состояния гетероэпитаксиальной пленки является ее жесткая связь с подложкой, выполненной из материала с отличным параметром кристаллической решетки. Использование подложек со значительным рассогласованием m в параметрах решеток приводит, как правило [3], к понижению температуры ферромагнитного упорядочения спинов в тонком манганитном слое по сравнению с соответствующей температурой для объемных кристаллов ($m = (a_L - a_S)/a_S$, где a_L и a_S — параметры кристаллических решеток пленки и подложки соответственно). До

сих пор в литературе имеются лишь отрывочные данные о влиянии азимутально-неоднородных механических напряжений на электро- и магнетотранспортные параметры манганитных пленок.

1. Эксперимент. В данной работе исследованы электро- и магнетосопротивление пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ (LCMO), выращенных методом лазерного испарения (KrF, $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$) на подложке (001) NdGaO_3 (NGO). Технологические параметры роста пленок LCMO/NGO детализированы в [4]. Данные о структуре пленок, их ориентации и параметрах кристаллической решетки в плоскости подложки и вдоль нормали к ее поверхности были получены с использованием рентгеновской дифракции ($\text{CuK}_{\alpha 1}$, $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканы, кривые качания). Сопротивление R пленок LCMO измерялось в конфигурации van der Pauw, в магнитном поле H и без него ($\mu_0 H$ до 5 Т). Магнитное поле было направлено параллельно плоскости подложки. Электросопротивление ρ пленок рассчитывалось с использованием соотношения $\rho = \pi d R / \ln 2$ [5], где $d = 40 \text{ nm}$ — толщина манганитного слоя. Толщина пленок контролировалась по ширине спутанных пиков Лауэ на рентгеновских дифрактограммах.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение. Галлат неодима и LCMO изоморфны по структуре и имеют близкие температурные коэффициенты линейного расширения [6,7]. Эпитаксиальный рост пленок LCMO (орторомбическая ячейка, $a_1 = 5.454 \text{ \AA}$, $b_1 = 7.704 \text{ \AA}$, $c_1 = 5.468 \text{ \AA}$ [8]) возможен на подложках NGO (орторомбическая ячейка, $a_2 = 5.426 \text{ \AA}$, $b_2 = 5.502 \text{ \AA}$, $c_2 = 7.706 \text{ \AA}$ [7]), ориентированных плоскостью (001) или (110). При оценке эффективного рассогласования в параметрах кристаллических решеток пленки LCMO и подложки (001) NGO обычно используются параметры псевдокубических решеток LCMO ($a_3 = 3.858 \text{ \AA}$ [7]) и NGO ($a_4 = 3.851 \text{ \AA}$ [8]), при этом величина t составляет порядка 0.2%. Чтобы определить тип и величину механических напряжений, действующих в пленке (40 nm) LCMO/NGO, необходимо четко знать ее ориентацию относительно орторомбически искаженной подложки.

Из полученных рентгеновских $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканов следует, что выращенные пленки (40 nm) LCMO/NGO были свободны от включений вторичных фаз и четко преимущественно ориентированы как в плоскости подложки, так и относительно нормали к ее поверхности. Сложной структуры рентгеновских рефлексов, указывающей на релаксацию механических напряжений в сформированных пленках, нами

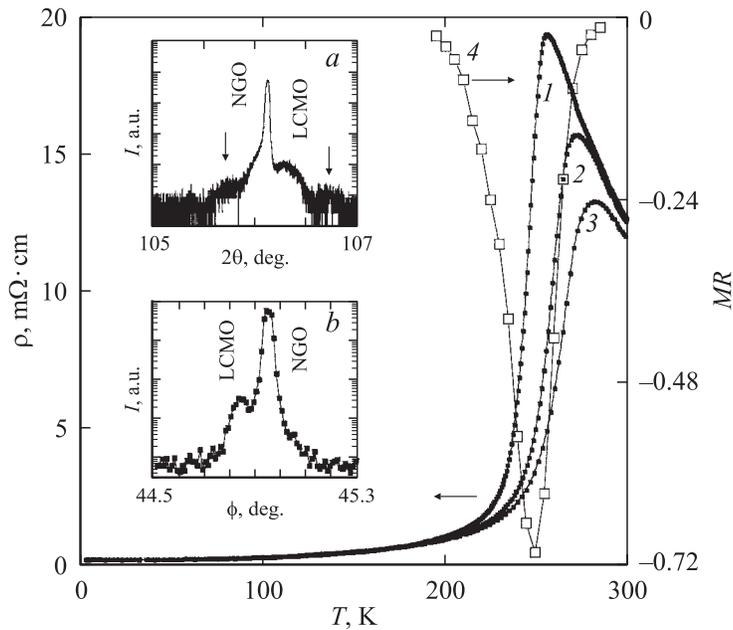


Рис. 1. Температурные зависимости электросопротивления ρ (1–3) и магнетосопротивления $MR = [\rho(\mu_0 H = 1 \text{ Т}) - \rho(\mu_0 H = 0)] / \rho(\mu_0 H = 0)$ (4) пленки (40 nm) LCMO, выращенной на подложке (001)NGO. 1 — $\mu_0 H = 0$, 2 — $\mu_0 H = 1 \text{ Т}$, 3 — $\mu_0 H = 2 \text{ Т}$. На вставке *a* показан фрагмент рентгеновского $\omega/2\theta$ -скана в окрестности брэгговского рефлекса от (008) NGO. Стрелками отмечены спутниковые пики Лауэ от манганитной пленки. На вставке *b* приведен фрагмент ϕ -скана для рефлексов (111) LCMO и (111) NGO (индексы псевдокубических решеток). Относительный сдвиг пиков от манганитной пленки и подложки составляет 0.1 град.

выявлено не было. Пики от манганитного слоя на рентгеновском $\omega/2\theta$ -скане, полученном, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки были в плоскости, нормальной к (001)NGO, наблюдались только при значениях 2θ , соответствующих параметру кристаллической решетки $a_{\perp} = 7.701 \pm 0.003 \text{ \AA}$ (a_{\perp} — параметр вдоль нормали к плоскости подложки). Фрагмент рентгеновского скана в окрестности брэгговского отражения от (008)NGO показан на вставке (*a*) на рис. 1. Значение a_{\perp}

практически совпадает с параметром b_1 элементарной ячейки LSMO, т.е. магнитные слои формировались b -ориентированными. Это хорошо согласуется с данными [9], полученными в процессе исследования пленок LSMO с использованием электронной микроскопии высокого разрешения. Таким образом, величина m для слоя LSMO, выращенного на (001) NGO, зависит от того, насколько хорошо параметры a_1 и c_1 в манганитной пленке сопрягаются с плоской решеткой ионов на поверхности подложки. Из сравнения приведенных выше значений параметров a_1 , c_1 для LSMO с параметрами a_2 и b_2 NGO следует, что наименьшие значения m могут быть обеспечены в том случае, когда направления [100] и [001] в манганитной пленке параллельны [100] и [010] в подложке. При этом вдоль направления [100] пленка будет находиться под действием сжимающих механических напряжений (рассогласование в параметрах a_1 и a_2 составляет порядка 0.5%), а вдоль направления [001] должны действовать растягивающие напряжения (рассогласование в параметрах равно 0.6%). Чтобы понизить энергию упругих напряжений в системе пленка–подложка, параметр элементарной ячейки в манганитном слое в направлении [100] несколько уменьшается, а вдоль оси [001] увеличивается. (Указанные параметры могут и не совпадать с соответствующими параметрами в NGO, кроме того, элементарная ячейка в манганитной пленке может быть азимутально повернута относительно выделенного направления в подложке). На это указывает существенный ($\sim 0.1^\circ$) относительный сдвиг пиков от манганитной пленки и подложки на полученном рентгеновском ϕ -скане (см. вставку b на рис. 1). Следует отметить, что „несимметрия“ (сжимающие в одном направлении, растягивающие в другом) механических напряжений, возникающая в пленке LSMO вследствие существенного орторомбического искажения элементарной ячейки NGO, не приводит [4] к изменению эффективного объема элементарной ячейки в манганитном слое.

Температурные зависимости электросопротивления ρ пленки (40 nm) LSMO/NGO, измеренные в магнитном поле различной напряженности, приведены на рис. 1. Резкий пик на зависимости $\rho(T, H = 0)$ наблюдался при $T_M = 255$ K, что хорошо согласуется с данными для соответствующих объемных образцов и термообработанных при высокой температуре эпитаксиальных пленок LSMO [10]. С ростом напряженности магнитного поля электросопротивление манганитной пленки понижалось, а максимум на зависимости $\rho(T)$ сдвигался в сторону высоких температур (рис. 1). Пик магнето-

сопротивления $MR = [\rho(\mu_0 H = 1 \text{ Т}) - \rho(\mu_0 H = 0)] / \rho(\mu_0 H = 0)$ пленок (40 nm) LCMO/NGO наблюдался при температуре примерно на 5 К ниже T_M , причем отрицательное MR (250 К) превышало 70% (рис. 1). При температурах, близких к T_M , магнитное поле способствует разрастанию ферромагнитных доменов в манганитном слое (за счет включений пара- и антиферромагнитных фаз) и уменьшает пространственную разориентацию спинов на ионах марганца. Понижение температуры и увеличение H сопровождаются возрастанием длины и плотности высокопроводящих ферромагнитных „каналов протекания“ в объеме манганитной пленки, что приводит к резкому падению ее электросопротивления.

На рис. 2 приведены зависимости ρ пленки (40 nm) LCMO/NGO от магнитного поля ($T = 92 \text{ К}$), полученные, когда измерительный ток I перпендикулярен или параллелен H (магнитное поле в обоих случаях параллельно цепочке Mn–O–Mn в манганитном слое). При $\mu_0 H < 0.12 \text{ Т}$ с увеличением напряженности магнитного поля электросопротивление пленок возрастало при $H \perp I$, но уменьшалось при $H \parallel I$ (рис. 2). Это указывает на существенную азимутальную анизотропию магнетосопротивления в выращенных слоях (40 nm) LCMO/NGO. Зависимость электросопротивления ферромагнитных металлов от угла γ между направлением намагниченности M и направлением электрического тока может быть представлена в виде [11]

$$\rho = \rho_1(M) + \rho_2(M) \times \sin^2 \gamma, \quad (1)$$

где $\rho_1(M)$ — изотропная составляющая электросопротивления, $\rho_2(M)$ — разница между значениями ρ , измеренными, когда намагниченность параллельна току и когда $M \perp I$. (Согласно [11,12], разница $\rho_2(M)$ для ферромагнитных металлов отрицательна, а для LCMO больше нуля). Приведенные на рис. 2 зависимости качественно согласуются с соотношением (1), принимая во внимание, что направление спонтанной намагниченности в пленках LCMO/NGO параллельно диагонали между цепочками Mn–O–Mn [13]. Полученные зависимости $\rho(H)$ (см. рис. 2 и вставку на нем) позволили экспериментально определить величину поля анизотропии $\mu_0 H_K(92 \text{ К}) \approx 0.11 \text{ Т}$ для пленки (40 nm) LCMO/NGO. В работе [13] этого сделать не удалось из-за сильного парамагнитного сигнала от подложки из галлата неодима. С понижением температуры $\mu_0 H_K$ возрастало и при $T = 4.2 \text{ К}$ достигало значения $\sim 0.2 \text{ Т}$. На зависимости $\rho(H)$, представленной на вставке на рис. 2,

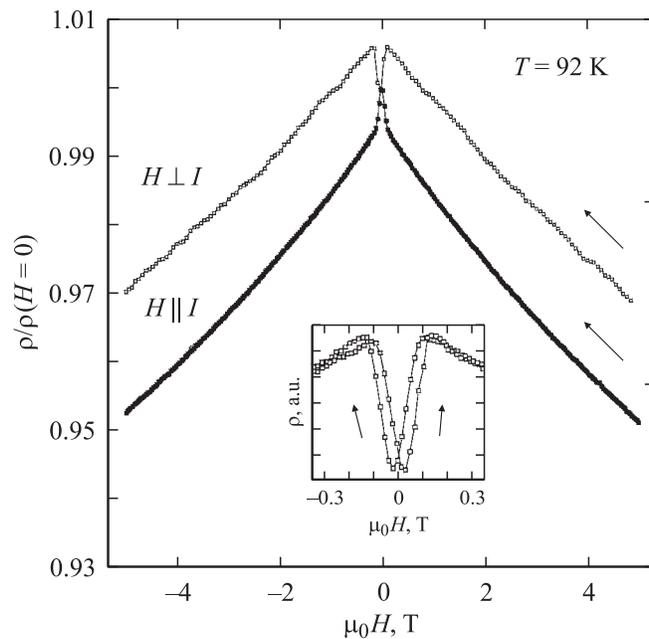


Рис. 2. Зависимости электросопротивления $\rho/\rho(H=0)$ пленки (40 nm) LCMO/NGO от магнитного поля, измеренные при $H \perp I$ или $H \parallel I$ ($T = 92$ K). Магнитное поле направлено параллельно цепочке Mn–O–Mn в манганитном слое. На вставке приведен фрагмент зависимости $\rho(H, T = 92$ K), полученный при H , близких к нулю (H перпендикулярно I).

четко прослеживается гистерезис, который указывает на существенную величину коэрцитивного поля при азимутальном развороте магнитных доменов в пленках (40 nm) LCMO/NGO.

При $0.2 \text{ T} < \mu_0 H < 2 \text{ T}$ падение ρ с ростом $\mu_0 H$ обусловлено уменьшением пространственной разориентации спинов на ионах марганца, расположенных в области малоугловых межкристаллитных границ, и ослаблением электрон-магнонного взаимодействия. (Как показано в [4], выращенные манганитные пленки состояли из кристаллических зерен с латеральным размером 20–30 nm). При $\mu_0 H > 2 \text{ T}$ электросопротивление манганитной пленки практически линейно убывало с ростом $\mu_0 H$ вследствие затухания спиновых волн [14].

В завершение мы хотели бы отметить, что из приведенного в письме анализа действующих в пленках LCMO/NGO механических напряжений следует, что преимущественная азимутальная ориентация намагниченности в исследованных пленках может быть как магнитокристаллической природы (это отмечалось в [13]), так и возникать вследствие неоднородной упругой деформации манганитного слоя подложкой.

Финансовая поддержка данной работы была частично получена из проекта 9Б19 программы президиума РАН „Низкоразмерные квантовые структуры“ и проекта 04–02–16212-а Российского фонда фундаментальных исследований.

Список литературы

- [1] *Pannetier M., Fermon C., Goff G.Le, Simola J., Kerr E.* // Science. 2004. V. 304. N 5677. P. 1648.
- [2] *Goyal A., Rajeswari M., Shreekala R., Lofland S.E., Bhagat S.M., Boettcher T., Kwon C., Ramesh R., Venkatesan T.* // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 71. N 17. P. 2535.
- [3] *Boikov Yu.A., Gunnarsson R., Claeson T.* // J. Appl. Phys. 2004. V. 96. N 1. P. 435.
- [4] *Бойков Ю.А., Данилов В.А., Бойков А.Ю.* // ФТТ. 2003. Т. 45. В. 4. С. 649.
- [5] *Kamins T.I.* // J. Appl. Phys. 1971. V. 42. N 11. P. 4357.
- [6] *Sasaura M., Miyazawa S., Mukaida M.* // J. Appl. Phys. 1990. V. 68. N 7. P. 3643.
- [7] *Dai P., Zhang J., Mook H.A., Lion S.-H., Dowben P.A., Plummer E.W.* // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. N 6. P. R3694.
- [8] *Wyckoff R.W.G.* // Crystal structures. 2nd ed. Interscience Publ., N.Y., 1960. V. 2. P. 409.
- [9] *Lebedev O.I., Van Tendeloo G., Amelinckx S., Leibold B., Habermeier H.-U.* // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. N 12. P. 8065.
- [10] *Бойков Ю.А., Клаесон Т., Бойков Ю.А.* // ЖТФ. 2001. Т. 71. В. 10. С. 54.
- [11] *Dahlberg E.D., Riggs K.* // J. Appl. Phys. 1988. V. 63. N 8. P. 4270.
- [12] *O'Donnell J., Onellion M., Rzechowski M.S., Eckstein J.N., Bozovic I.* // Phys. Rev. B. 1977. V. 55. N 9. P. 5873.
- [13] *Mathur N.D., Jo M.-H., Evetts J.E., Blamire M.G.* // J. Appl. Phys. 2001. V. 89. N 6. P. 3388.
- [14] *Raquet B., Viret M., Sondergard E., Cespedes O., Mamy R.* // Phys. Rev. B. 2002. V. 66. N 2. P. 024433.