

05

## Емкость, сосредоточенная на межфазных границах в эпитаксиальной гетероструктуре $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$

© 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 13 октября 2003 г.

Метод лазерного испарения был использован для выращивания трехслойных эпитаксиальных гетероструктур  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  на поверхности (001)  $[(\text{LaAlO}_3)_{0.3} + (\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}]$ . Реальная часть диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  и тангенс угла диэлектрических потерь для промежуточного слоя  $\text{SrTiO}_3$  толщиной 1100 нм были исследованы в интервале температур  $T = 4.2\text{--}300\text{ K}$ , при подаче напряжения смещения  $\pm 2.5\text{ V}$  на манганитные электроды и без него. Используя измеренные зависимости  $\epsilon(T)$  для слоя  $\text{SrTiO}_3$ , выращенного между манганитными электродами, оценена емкость межфазных границ  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$  ( $C_1 \approx 2\text{ }\mu\text{F}/\text{cm}^2$ ), возникающая вследствие проникновения электрического поля в  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ .

Перовскито-подобные сегнетоэлектрики  $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$  перспективны для использования в перенастраиваемых элементах СВЧ-техники [1]. Для применения в реальных устройствах сегнетоэлектрик с нелинейной зависимостью поляризации от электрического поля должен являться составной частью пленочной гетероструктуры, включающей проводящие (металлические или сверхпроводящие) электроды. Диэлектрический отклик сегнетоэлектрической пленки на изменение температуры и электрического поля резко зависит от ее структуры и свойств межфазных границ сегнетоэлектрик/электрод. Реальная часть диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  пленок  $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$  реагирует на электрическое поле, как правило, существенно слабее, чем  $\epsilon$  соответствующих объемных кристаллов.

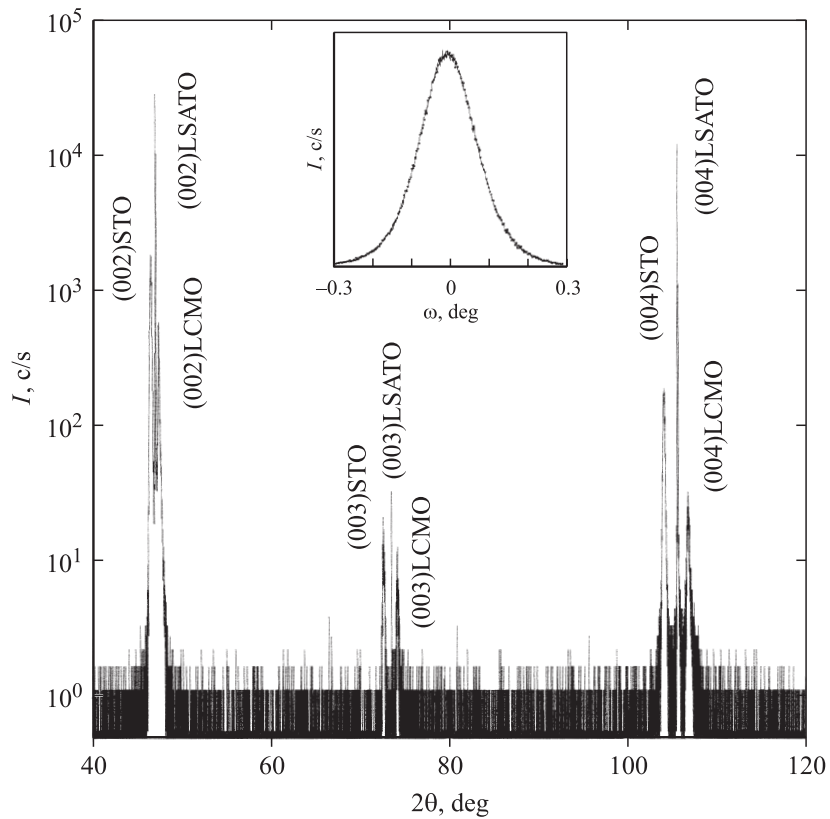
Использование тонких эпитаксиальных пленок проводящих оксидов ( $\text{SrRuO}_3$ ,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  [2]) в качестве электродов позволяет форми-

ровать многослойные гетероструктуры, включающие четко преимущественно ориентированный (азимутально и относительно нормали к плоскости подложки) сегнетоэлектрический слой, реальная часть диэлектрической проницаемости которого следует соотношению Кюри–Вейсса.

В данном письме мы представляем результаты по температурной и полевой зависимости  $\epsilon$  для слоя SrTiO<sub>3</sub> STO, выращенного между двумя манганитными La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>LCMO пленочными электродами.

Трехслойные гетероструктуры (120 nm) LCMO/(1100 nm) STO/(120 nm) LCMO выращивались методом лазерного испарения (KrF,  $\lambda = 248$  nm,  $\tau = 30$  ns). В качестве подложек использовались полированные пластины (001)[(LaAlO<sub>3</sub>)<sub>0.3</sub> + (Sr<sub>2</sub>AlTaO<sub>6</sub>)<sub>0.7</sub>] LSATO. Технологические параметры процессов получения манганитных и сегнетоэлектрических пленок приведены в [2,3]. Для формирования квадратных электродов ( $S = 200 \times 200 \mu\text{m}$ ) в верхнем манганитном слое в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO использовались фотолитография и ионное травление (Ar, 500 V, 0.2 mA). Емкость  $C$  плоскопараллельных пленочных конденсаторных структур измерялась с помощью прибора hp 4263A LCR meter ( $f = 100$  kHz) при подаче на электроды напряжения смещения  $\pm 2.5$  V и без него. Диэлектрическая проницаемость  $\epsilon$  слоя STO рассчитывалась с использованием соотношения  $C = \epsilon S/d$ . Сопротивление  $R$  манганитных электродов измерялось тем же LCR meter в геометрии Van der Pauw, удельное сопротивление  $\rho$  рассчитывалось с использованием соотношения  $\rho = R\pi d_1/\ln 2$  [4], где  $d_1$  — толщина проводящего электрода.

Проведенное рентгеновское исследование показало, что промежуточный слой STO, так же как и манганитные электроды в выращенных трехслойных плоскопараллельных гетероструктурах LCMO/STO/LCMO, четко ориентирован как в плоскости подложки, так и азимутально. Из полученных рентгеновских  $\omega/2\theta$ - и  $\phi$ -сканов следует, что плоскость (001) и направление [010] в выращенных слоях LCMO и STO были параллельны плоскости (001) и направлению [010] в подложке. Дифрактограмма, полученная, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, нормальной к плоскости подложки, приведена на рис. 1. Параметр кристаллической решетки в слое STO в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO, измеренный вдоль нормали к плоскости подложки  $a_{\perp} = 3.908 \pm 0.003$  Å, практически



**Рис. 1.** Рентгеновская дифрактограмма ( $\text{CuK}\alpha_1$ ,  $\omega/2\theta$ ) для гетероструктуры (001)LCMO|| (001)STO|| (001)LCMO, выращенной на подложке (001)LSATO. Дифрактограмма получена в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, нормальной к (001)LSATO. На вставке приведена кривая качания для рентгеновского пика (002)STO от той же гетероструктуры.

совпадал с соответствующим параметром, измеренным в плоскости подложки  $a_{\parallel} = 3.906 \pm 0.003 \text{ \AA}$ . Эффективный объем элементарной ячейки  $V_{eff} = a_{\perp} a_{\parallel}^2 = 59.62 \text{ \AA}^3$  в слое STO примерно соответствовал объему элементарной ячейки в стехиометрических монокристаллах титаната стронция ( $\approx 59.55 \text{ \AA}^3$  [5]). Полуширина (ширина, измеренная

на половине высоты) кривой качания для рентгеновского пика (002)STO от гетероструктуры LCMO/STO/LCMO равнялась  $0.17^\circ$ , что хорошо согласуется с данными для эпитаксиальных слоев титаната стронция, выращенных на поверхности электродов из  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  [2], но примерно в три раза больше полуширины соответствующей кривой для рентгеновского рефлекса (002)STO от эпитаксиальной гетероструктуры SRO/STO/SRO.

Вследствие различий в параметрах кристаллических решеток LCMO, STO, LSATO как нижний, так и верхний электроды LCMO в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO/(001)LSATO находились под действием растягивающих в плоскости подложки механических напряжений. Параметр кристаллической решетки ( $\sim 0.3868$  nm) в нижнем электроде LCMO, измеренный в плоскости подложки, был больше соответствующего параметра ( $\sim 0.3837$  nm), измеренного вдоль нормали к ее поверхности.

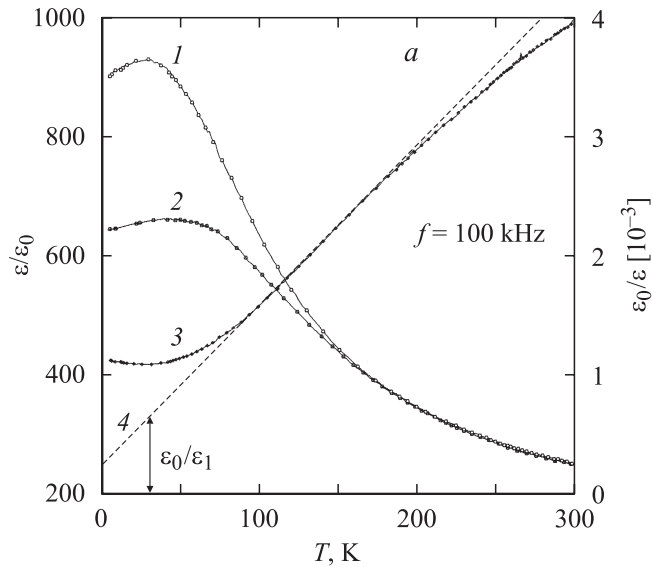
Температурная зависимость удельного сопротивления  $\rho$  для слоя LCMO, выращенного на (001)LSATO, показана на рис. 2, *b*. Как и в случае объемных стехиометрических образцов, резкий максимум на зависимости  $\rho(T)$  для слоя LCMO/(001)LSATO наблюдался при температурах 255–260 К (рис. 2). Удельное сопротивление пленки LCMO не изменялось после формирования на его поверхности слоя (1100 nm)STO.

Температурная зависимость  $\varepsilon$ , измеренная при  $V_b = 0$  для слоя STO в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO, приведена на рис. 2, *a*. В интервале температур 80–200 К  $\varepsilon$  слоя STO следовала соотношению

$$\varepsilon^{-1} = \varepsilon_0^{-1} C_0^{-1} (T - T_{Weiss}) + \varepsilon_1^{-1}, \quad (1)$$

где  $T_{Weiss} = 30$  К — температура Кюри–Вейсса для однодоменных монокристаллов титаната стронция [6], а  $C_0 \approx 0.77 \cdot 10^5$  К примерно совпадает с постоянной Кюри для объемных образцов STO [7],  $\varepsilon_1 = 1530\varepsilon_0$  — константа,  $\varepsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума.

Первое слагаемое в правой части соотношения (1) отражает вклад в измеряемую диэлектрическую проницаемость от объема сегнетоэлектрического слоя, а второе слагаемое связано с вкладом в  $\varepsilon$  от межфазных границ LCMO/STO. Появление второго слагаемого в (1) обусловлено емкостью  $C_1/2$ , сосредоточенной на межфазных границах [8] в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO вследствие проникновения



**Рис. 2.** *a* — температурные зависимости  $\varepsilon/\varepsilon_0$  (1, 2) и  $\varepsilon_0/\varepsilon$  (3) для промежуточного слоя STO в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO: 1 —  $V_b = 0$ , 2 —  $V_b = 2.5$  V, 4 — касательная к кривой  $\varepsilon_0/\varepsilon(T)$  при  $T = 80$ – $200$  K, стрелкой показано значение  $\varepsilon_0/\varepsilon_1$ . *b* — температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь  $\tan \delta$  (1, 2) для слоя STO и электросопротивления  $\rho$  (3) для нижнего слоя LCMO в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO: 1 —  $V_b = 0$ , 2 —  $V_b = 2.5$  V. На вставке показана зависимость  $\varepsilon/\varepsilon_0(V_b)$  для слоя STO в гетероструктуре LCMO/STO/LCMO (температура указана на рисунке).

электрического поля в манганитные электроды. Емкость, сосредоточенная на квадратном сантиметре межфазной границы LCMO/STO, равна  $C_1 = 2\varepsilon_1/d \approx 2 \cdot 10^{-6}$  F/cm<sup>2</sup>. Полученное значение емкости, сосредоточенной на межфазной границе LCMO/STO, незначительно отличается от емкости, сосредоточенной на межфазной границе между диэлектриком и благородным металлом [8]. Емкость  $C_1$ , сосредоточенная на межфазной границе сегнетоэлектрик/электрод, зависит от глубины проникновения  $L_e$  электрического поля в электрод и от эффективной диэлектрической проницаемости материала последнего  $\varepsilon_e$  ( $C_1 = \varepsilon_e/2.31L_e$  [8]). Глубина проникновения  $L_e$  зависит от концентрации носителей заряда в электроде и от его  $\varepsilon_e$ . При  $T < 200$  K концентрация носителей заряда

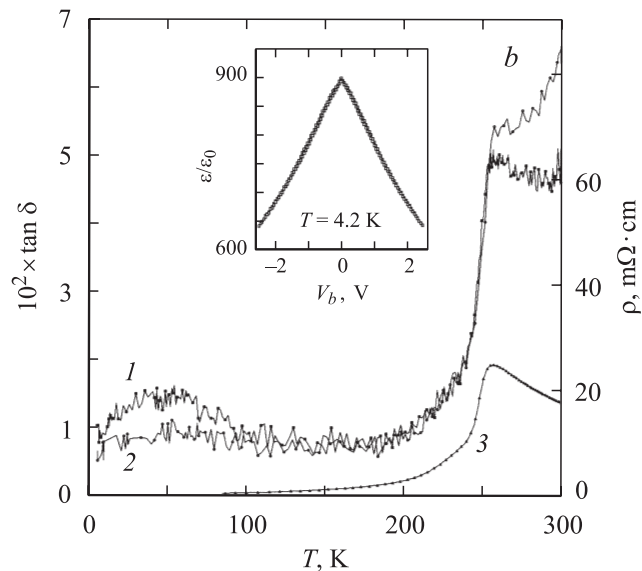


Рис. 2 (продолжение).

(дырки,  $p \approx 6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ) в LCMO примерно на порядок величины меньше, чем в благородных металлах (Au, Pt, ...), что способствует увеличению  $L_e$  в манганитных электродах по сравнению с электродами, выполненными из благородных металлов. Диэлектрическая проницаемость LCMO [9], однако, существенно выше, чем диэлектрическая проницаемость благородных металлов.

Влияние электрического поля ( $E = 25 \text{ kV/cm}$ ) на диэлектрическую проницаемость слоя STO четко проявлялось при температурах ниже 150 K. Наиболее резкое подавление  $\epsilon$  электрическим полем наблюдалось при температурах ( $\sim 25\text{--}30$  K) в окрестности максимума на зависимости  $\epsilon(T)$  (рис. 2, *a*). Зависимость  $\epsilon(V_b)$ , измеренная для слоя STO, была практически симметричной относительно точки  $V_b = 0$  (см. вставку на рис. 2, *b*), что указывает на незначительные отличия в микроструктуре и электронных параметрах нижней и верхней межфазной граница сгнетоэлектрик/электрод в выращенной гетероструктуре LCMO/STO/LCMO. На зависимостях  $\epsilon(V_b)$  нами не было обнаружено каких-либо проявлений гистерезиса.

Температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь  $\tan \delta$ , измеренные для плоскопараллельной емкостной структуры LCMO/STO/LCMO при  $V_b = 0$  и  $V_b = 2.5$  В ( $f = 100$  kHz), показаны на рис. 2, *b*. При  $T < 100$  К подача электрического напряжения на магнитные электроды приводила к понижению (при  $T \sim 50$  К примерно на 50%)  $\tan \delta$  для гетероструктуры LCMO/STO/LCMO. Наблюдавшееся уменьшение  $\tan \delta$  в электрическом поле может быть отчасти связано с изменением доменной структуры в слое STO. В интервале температур 100–250 К электрическое поле не оказывало существенного влияния на диэлектрические потери в слое STO. При температурах выше 250 К электрическое поле способствовало увеличению  $\tan \delta$ , что может быть связано с возрастанием эффективной проводимости сегнетоэлектрического слоя (эффект Пула–Френкеля [10]).

Финансовая поддержка для проведения данной работы была получена из проекта 9Б19 Президиума РАН.

## Список литературы

- [1] *Hong J.P., Lee J.S.* // Appl. Phys. Lett. 1996. V. 68. P. 3034.
- [2] *Boikov Yu.A., Claeson T.* // Physica C. 2000. V. 336. P. 300.
- [3] *Boikov Yu.A., Claeson T.* // Physica B. 2002. V. 311. P. 250.
- [4] *Kamins T.I.* // J. Appl. Phys. 1971. V. 42. N 11. P. 4357.
- [5] *Wyckoff R.W.G.* // Crystal Structure. V. 2. 2nd edn. Interscience, New York, 1964. P. 394.
- [6] *Nevile R.C., Hoeneisen B., Mead C.A.* // J. Appl. Phys. 1972. V. 43. P. 2124.
- [7] *Hilton A.D., Ricketts B.W.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 1996. V. 29. P. 1321.
- [8] *Ku H.Y., Ullman F.G.* // J. Appl. Phys. 1964. V. 35. P. 265.
- [9] *Boris A.V., Kovaleva N.N., Bazhenov A.V., Samoilov A.V., Yeh N.-C., Vasquez R.P.* // J. Appl. Phys. 1997. V. 81. P. 5756.
- [10] *Yeagan J.R., Taylor H.L.* // J. Appl. Phys. 1968. V. 39. P. 5600.