

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)  $\text{NdGaO}_3$ . 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% ( $\mu_0 H = 1 \text{ T}$ ). 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.

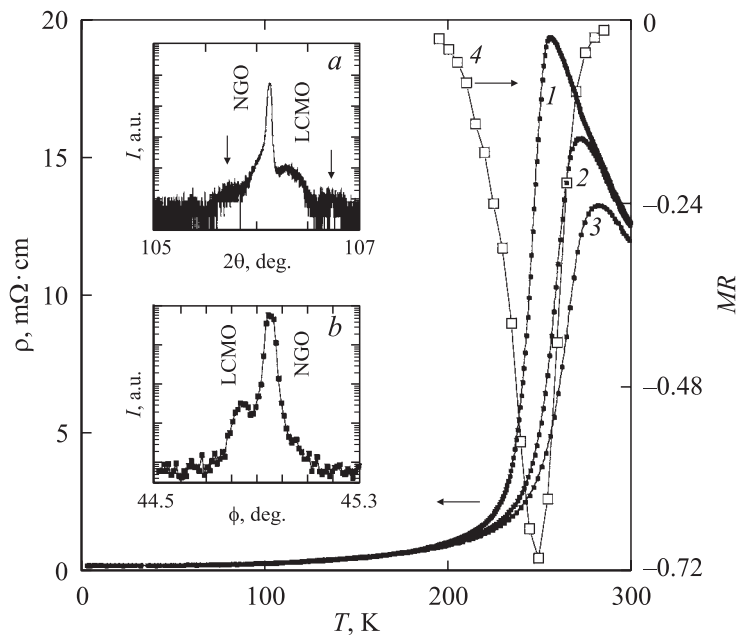
**Введение.** Тонкие слои перовскито-подобных манганитов  $\text{La}_{1-x}(\text{Ca},\text{Sr})_x\text{MnO}_3$  перспективны для использования в магнеторезистивных сенсорах и детекторах ИК-излучения [1,2]. Электронные параметры манганитных пленок зависят от их структуры, состава ( $x$  в химической формуле), 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 ( $\text{KrF}$ ,  $\lambda = 248 \text{ nm}$ ,  $\tau = 30 \text{ ns}$ ) на подложке (001)  $\text{NdGaO}_3$  (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  $\phi$ -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  $\rho$  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  $m$  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  $\phi$ -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  $\rho$  (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 спутные пики Лауэ от манганитной пленки. На вставке *b* приведен фрагмент  $\phi$ -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  $2\theta$ , 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 LCMO, т.е. магнитные слои формировались  $b$ -ориентированными. Это хорошо согласуется с данными [9], полученными в процессе исследования пленок LCMO с использованием электронной микроскопии высокого разрешения. Таким образом, величина  $m$  для слоя LCMO, 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 LCMO 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  $\phi$ -скане (см. вставку  $b$  на рис. 1). Следует отметить, что „несимметрия“ (сжимающие в одном направлении, растягивающие в другом) механических напряжений, возникающая в пленке LCMO вследствие существенного орторомбического искажения элементарной ячейки NGO, не приводит [4] к изменению эффективного объема элементарной ячейки в манганитном слое.

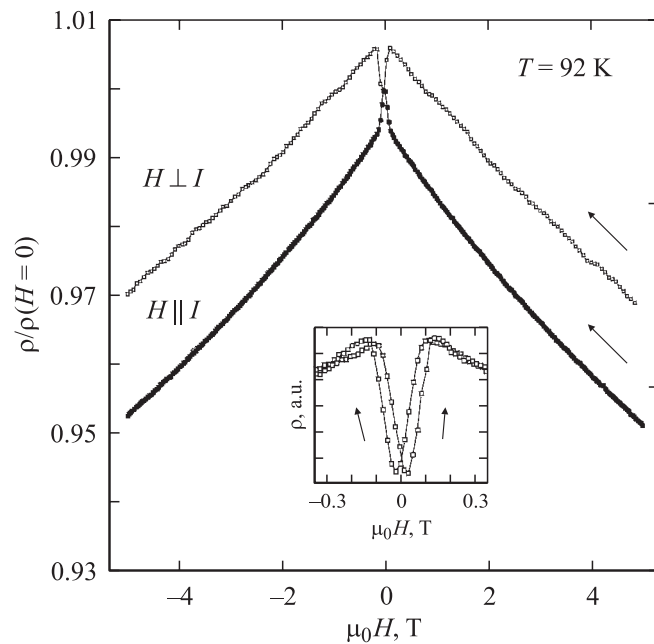
Температурные зависимости электросопротивления  $\rho$  пленки (40 nm) LCMO/NGO, измеренные в магнитном поле различной напряженности, приведены на рис. 1. Резкий пик на зависимости  $\rho(T, H = 0)$  наблюдался при  $T_M = 255$  K, что хорошо согласуется с данными для соответствующих объемных образцов и термообработанных при высокой температуре эпитаксиальных пленок LCMO [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  $\rho$  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  $\gamma$  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  $\rho$ , 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  $\rho$  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.