

05;06

Электро- и магнетосопротивление двухслойной эпитаксиальной гетероструктуры (30 nm)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃/(30 nm)La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃

© 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 7 июля 2005 г.

Методом лазерного испарения выращены эпитаксиальные гетероструктуры (30 nm)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃/(30 nm)La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃/(001)LaAlO₃. Верхний слой в двухслойных гетероструктурах находился под действием растягивающих в плоскости подложки механических напряжений, а слой (30 nm)La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃ был двухосно сжат. Формирование пленки (30 nm)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ на поверхности слоя (30 nm)La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃ способствовало возрастанию механических напряжений в последнем. Максимальные значения электросопротивления ρ выращенных двухслойных структур (30 nm)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃/(30 nm)La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃/(001)LaAlO₃ наблюдались при температурах на 25–30 К ниже, чем максимум на кривых $\rho(T)$ для пленок (30 nm)La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃/(001)LaAlO₃.

Электронные и магнитные свойства тонких слоев перовскитоподобных манганитов La_{1-x}A_xMnO₃, где A = Ba, Ca, Sr, ..., активно исследуются в последние полтора десятилетия в связи с перспективностью их использования в магнеторезистивных сенсорах [1–3]. Для применения в устройствах спинтроники наиболее привлекательны манганитные пленки, в которых ферромагнитный фазовый переход происходит при температурах, близких к комнатной. Для твердых растворов La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ (LCMO) и La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃ (LBMO) температура Кюри имеет значения 270 и 330 К соответственно [4,5]. Процесс ферромагнитного упорядочения спинов в объеме тонкопленочных образцов LCMO и LBMO резко зависит от величины и типа действующих в их объеме двухосных механических напряжений.

В данной работе исследованы структура и электросопротивление ρ двухслойных гетероструктур LCMO/LBMO, выращенных на подложках (001)LaAlO₃ (LAO). Параметр кристаллической решетки LBMO (псев-

докубическая, $a_1 = 3.910 \text{ \AA}$ [5]) больше соответствующих параметров алюмината лантана (псевдокубическая, $a_2 = 3.780 \text{ \AA}$ [6]) и LSMO (псевдокубическая, $a_3 = 3.858 \text{ \AA}$ [7]), а температурные коэффициенты линейного расширения LAO, LBMO и LSMO имеют близкие значения [7,8]. Различия в параметрах кристаллических решеток подложки и манганитных слоев в гетероструктуре LSMO/LBMO/LAO должны приводить к сжатию слоя LBMO в плоскости подложки, но к двухосному растяжению пленки LSMO. Реакция электросопротивления манганитной пленки на формирование на ее свободной поверхности тонкого слоя с существенно отличным параметром кристаллической решетки до настоящего времени практически не исследовалась.

Двухслойные гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO были выращены методом лазерного испарения (ComPex 200, KrF, $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$). Для сравнения были сформированы в идентичных условиях пленки (30 nm)LBMO/(001)LAO. Технологические параметры роста манганитных пленок детализированы в [9].

Фазовый состав и структура пленок LSMO и LBMO исследовались с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, кривые качания, ϕ - и $\omega/2\theta$ -сканы). Параметры кристаллических решеток в манганитных пленках рассчитывались с использованием значений 2θ для (004) и (303) пиков на рентгенограммах [9].

Сопротивление R сформированных гетероструктур измерялось в конфигурации Van der Pauw при протекании тока параллельно плоскости подложки, в магнитном поле и без него ($\mu_0 H$ до 5 Т). Магнитное поле было направлено параллельно плоскости подложки и направлению измерительного тока. Электросопротивление рассчитывалось с использованием соотношения $\rho = d\pi R / \ln 2$ [10] (слои LSMO и LBMO имели толщину $d = 30 \text{ nm}$).

Рентгеновская дифрактограмма, полученная для гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO, приведена на рис. 1. На рентгеновском скане присутствуют только (00n) пики от манганитных слоев и подложки. Рентгеновские пики от верхнего и нижнего слоев в гетероструктуре четко разрешались (см. вставку на рис. 1). Наличие на рентгеновской дифрактограмме сателлитных пиков Лауэ (отмечены стрелками) указывает на однородность слоев по толщине. Из полученных рентгеновских $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканов следует, что слои LSMO и LBMO в выращенных гетероструктурах были четко преимущественно ориентированы как относительно нормали к плоскости подложки, так

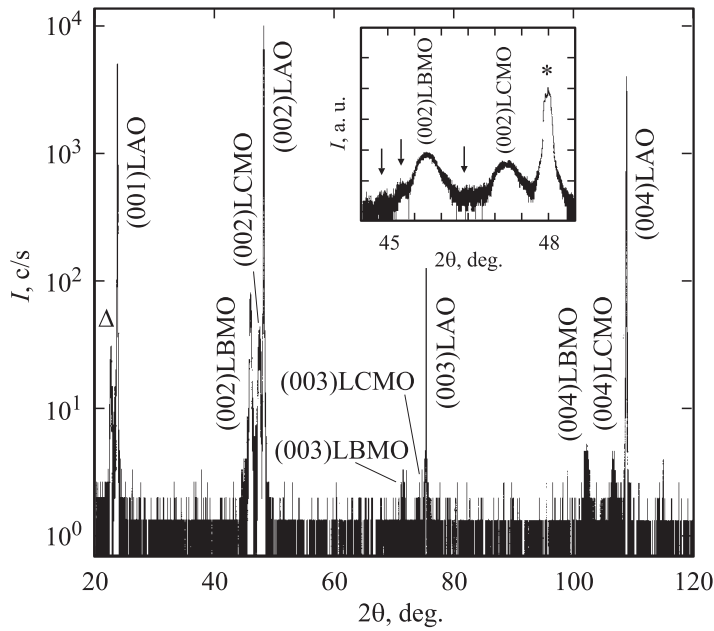


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма ($\text{CuK}\alpha_1$, $\omega/2\theta$) для гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO, полученная, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (001)LAO. Δ — пики (001) от пленок LCMO и LBMO в гетероструктуре. На вставке приведен фрагмент того же рентгеновского скана окрестности пиков (002) от манганитных пленок, * — пик от подложки. Сателлитные пики Лауэ отмечены стрелками.

и азимутально. Элементарная ячейка в слое LBMO в гетероструктуре LCMO/LBMO/LAO была существенно искажена — параметр ячейки в плоскости подложки $a_{\parallel} = 3.863 \pm 0.005 \text{ \AA}$ был значительно меньше соответствующего параметра, измеренного вдоль нормали к ее поверхности $a_{\perp} = 3.957 \pm 0.005 \text{ \AA}$ (см. таблицу). В случае пленки (30 nm) LBMO/LAO отмеченное выше искажение элементарной ячейки уменьшалось (см. таблицу). Следует отметить, что эффективный объем элементарной ячейки $V_{eff} = a_{\parallel}^2 \times a_{\perp} \approx 59.43 \text{ \AA}^3$ в слое (30 nm)LBMO/LAO был меньше V_{eff} для соответствующих

Параметры манганитных пленок в выращенных эпитаксиальных структурах

Тип гетероструктуры	Слой	Толщина d , nm	a_{\perp} , Å	a_{\parallel} , Å	V_{eff} , Å ³	FWHM, deg
LCMO/LBMO/LAO	LBMO	30	3.957	3.863	59.05	0.13
	LCMO	30	3.841	3.865	57.38	0.18
LBMO/LAO	LBMO	30	3.948	3.880	59.43	0.12

Параметр псевдокубической элементарной ячейки подложки LAO, рассчитанный на основе рентгеновских данных, равнялся $a_{LAO} = 3.786 \pm 0.005$ Å.

объемных кристаллов (≈ 59.78 Å³ [5]), но больше, чем объем ячейки в слое LBMO в гетероструктуре LCMO/LBMO/LAO (≈ 59.05 Å³) (см. таблицу). Полученные рентгеновские данные указывают на то, что слой (30 nm)LBMO в гетероструктуре LCMO/LBMO/LAO и пленка (30 nm)LBMO/LAO находились под действием двухосных сжимающих в плоскости подложки механических напряжений. Формирование на поверхности слоя (30 nm)LBMO/LAO пленки LCMO, обладающей меньшим параметром кристаллической решетки, усиливало искажение элементарной ячейки в его объеме, обусловленное жесткой связью с относительно толстой подложкой. Механизмы, ответственные за изменение V_{eff} в манганитных пленках, выращенных на подложках со значительным рассогласованием в параметрах кристаллических решеток, рассмотрены нами в [11]. В отличие от нижнего манганитного слоя, пленка LCMO в гетероструктуре LCMO/LBMO/LAO находилась под действием двухосных растягивающих механических напряжений, поэтому параметр ее элементарной ячейки, измеренный в плоскости подложки, был больше соответствующего параметра, измеренного вдоль нормали к (001)LAO (см. таблицу). Ширина кривых качания FWHM, измеренная на половине высоты для рентгеновских рефлексов (002) от манганитных слоев LCMO и LBMO в гетероструктуре LCMO/LBMO/LAO, находилась в пределах 0.12–0.18° (см. таблицу), что хорошо согласуется с соответствующими данными, полученными в [12].

Температурные зависимости электросопротивления гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO и пленки (30 nm)LBMO/LAO, измеренные при

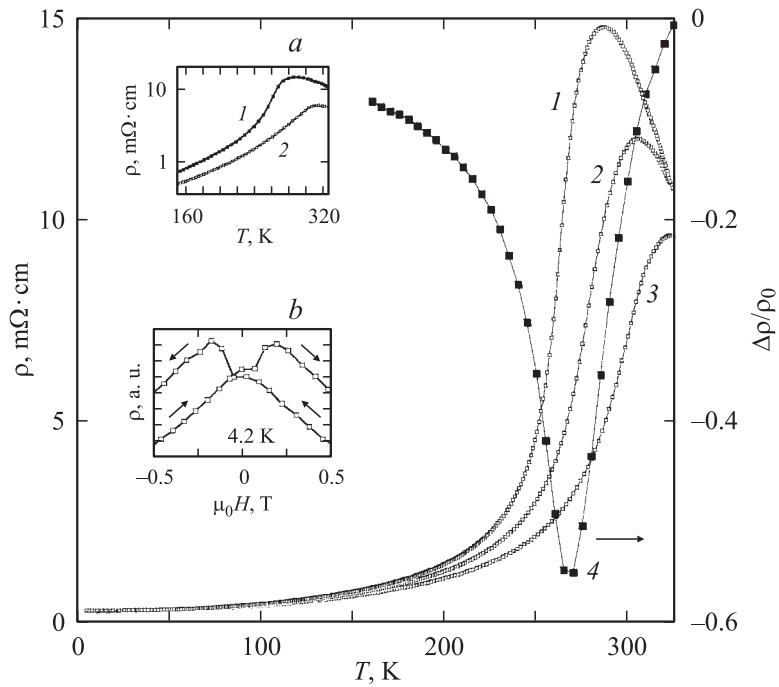


Рис. 2. Температурные зависимости ρ (1–3) и $\Delta\rho/\rho_0$ (4) для гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO. 1 — $\mu_0H = 0$, 2 — $\mu_0H = 2$ Т, 3 — $\mu_0H = 5$ Т, 4 — $\Delta\rho/\rho_0(T, \mu_0H = 2$ Т). На вставке (а) приведены кривые $\rho(T, \mu_0H = 0)$ для гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO (1) и пленки (30 nm)LBMO/LAO (2), на вставке (b) показан фрагмент зависимости $\rho(\mu_0H, T = 4.2$ К) для гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO, полученной при сканировании μ_0H в интервале 5 — –5 Т.

$\mu_0H = 0$, показаны на вставке а на рис. 2. Максимум на кривой $\rho(T, \mu_0H = 0)$ для двухслойной гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO наблюдался при температуре $T_M = 285$ К, которая примерно на 25 К меньше величины T_M для пленки (30 nm)LBMO/LAO. Кроме того, электросопротивление гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO во всем исследованном интервале температуры (4.2–325 К) было больше, чем ρ для пленки (30 nm)LBMO/LAO (см. вставку а на рис. 2). Основной

причиной понижения T_M в упругонапряженных пленках LBMO является относительно высокая, по сравнению с объемными стехиометрическими кристаллами, концентрация ионов Mn^{+4} в их объеме [11].

Магнитное поле способствовало уменьшению электросопротивления гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO, а максимум на зависимости $\rho(T, H)$ сдвинулся в сторону высоких температур с увеличением $\mu_0 H$ (рис. 2). Отрицательное магнетосопротивление $\Delta\rho/\rho_0 = [\rho(\mu_0 H = 2\text{ Т}) - \rho(H = 0)]/\rho(H = 0)$ двухслойной гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO достигало своего максимального значения (≈ -0.55) при $T \approx 270\text{ К}$ (рис. 2). Максимум $\Delta\rho/\rho_0 (\approx -0.42)$ для пленки (30 nm) LBMO/LAO наблюдался при $T \approx 300\text{ К}$. При температурах, близких к T_M , вклад в магнетосопротивление гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO вносят оба манганитных слоя. Поэтому ширина пика на температурной зависимости магнетосопротивления гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO больше, чем ширина пика на кривой $\Delta\rho/\rho_0(T)$ для отдельно выращенных эпитаксиальных пленок соответствующих перовскито-подобных манганитов [13].

На вставке (b) на рис. 2 показано изменение электросопротивления гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO в магнитном поле. При $T = 4.2\text{ К}$ и $\mu_0 H = 5\text{ Т}$ вектор намагниченности в обоих слоях гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO параллелен направлению магнитного поля. При сканировании $\mu_0 H$ в последовательности $5\text{ Т} \rightarrow 0 \rightarrow -5\text{ Т} \rightarrow 0 \rightarrow 5\text{ Т}$ на зависимости $\rho(\mu_0 H)$ наблюдался четкий гистерезис. Максимальные значения ρ были получены при $\mu_0 H \approx \pm 0.2\text{ Т}$, причем, помимо основного максимума, на зависимости электросопротивления от магнитного поля, измеренной при уменьшении $\mu_0 H$ от 5 до -5 Т , присутствовал еще один относительный максимум при напряженности магнитного поля, близкой к нулю (см. вставку (b) на рис. 2). Снижение электросопротивления гетероструктуры с увеличением напряженности магнитного поля (при $\mu_0 H > 0.2\text{ Т}$) происходило вследствие уменьшения пространственной разориентации спинов в манганитных слоях (в первую очередь, в области межкристаллитных границ). Наличие двух максимумов на зависимости $\rho(\mu_0 H)$ для гетероструктуры LSMO/LBMO/LAO обусловлено тем обстоятельством, что величина коэрцитивного поля для двухосно-сжатого слоя LBMO больше, чем соответствующая величина для двухосно-растянутой пленки LSMO. Согласно [14], вектор спонтанной намагниченности в манганитных пленках, находящихся под действием двухосных растягивающих механических напряжений (в исследованных

гетероструктурах это слой LCMO), параллелен плоскости подложки, а в случае двухосных сжимающих напряжений (это слой LBMO) он параллелен нормали к плоскости подложки. Из полученных зависимостей $\rho(\mu_0 H)$ следует, что при $\mu_0 H < 0.2$ Т относительная разориентация векторов намагниченности в верхнем и нижнем манганитных слоях гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO может существенно варьироваться в магнитном поле.

В заключение мы хотели бы отметить, что пленка (30 nm)LCMO, выращенная на поверхности слоя (30 nm)LBMO/LAO, способствует усилению искажения кристаллической решетки в нижнем слое гетероструктуры LCMO/LBMO/LAO и уменьшению объема его элементарной ячейки. Это является одной из причин сдвига максимума на температурной зависимости ρ для гетероструктуры относительно его положения на кривой $\rho(T)$ для пленки (30 nm)LBMO/LAO.

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

Список литературы

- [1] Pannetier M., Fermon C., Le Goff G., Simola J., Kerr E. // Science. 2004. V. 304. N 5677. P. 1648.
- [2] Parkin S.S.P., Roche K.P., Samant M.G., Rice P.M., Beyers R.B., Scheuerlein R.E., O'Sullivan E.J., Brown S.L., Bucchigano J., Abraham D.W., Lu Y., Rooks M., Trouilloud P.L., Wanner R.A., Gallagher W.J. // J. Appl. Phys. 1999. V. 85. N 8. P. 5828.
- [3] 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.
- [4] Snyder G.J., Hiskes R., DiCarolis S., Beasley M.R., Geballe T.H. // Phys. Rev. B. 1996. V. 53. N 1. P. 14434.
- [5] Weidenhorst B., Höfener C., Lu Y., Klein J., Alff L., Cross R., Freitag B.H., Mader W. // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 74. N 24. P. 3636.
- [6] Wyckoff R.W.J. // Crystal Structures. V. 2. 2nd Edition. Interscience. New York, 1964. P. 394.
- [7] Dai P., Zhang J., Mook H.A., Liou S.-H., Dowben P.A., Plummer E.W. // Phys. Rev. 1996. V. 54. N 6. P. R3694.

- [8] *Zuccaro C., Berlincourt H.L., Klein N., Urban K.* // J. Appl. Phys. 1997. V. 82. N 11. P. 5695.
- [9] *Бойков Ю.А., Данилов В.А.* // ЖТФ. 2005. Т. 75. В. 7. С. 75.
- [10] *Katins T.I.* // J. Appl. Phys. 1971. V. 42. N 9. P. 4357.
- [11] *Voikov Yu.A., Gunnarsson R., Claeson T.* // J. Appl. Phys. 2004. V. 96. N 1. P. 435.
- [12] *Бойков Ю.А., Клаесон Т.* // ФТТ. 2005. Т. 47. В. 2. С. 274.
- [13] *Бойков Ю.А., Данилов В.А.* // Письма в ЖТФ. 2005. Т. 31. В. 14. С. 50.
- [14] *Wang H.S., Li Q., Liu K., Chien C.L.* // Appl. Phys. Lett. 1999. V. 74. N 15. P. 2212.