

Магнитосопротивление и проводимость бикристаллических контактов из манганитов

© И.В. Борисенко, Г.А. Овсянников

Институт радиотехники и электроники Российской академии наук,
Москва, Россия

E-mail: iboris@hitech.cplire.ru

(Поступила в Редакцию 24 марта 2008 г.)

Исследованы магнитные бикристаллические контакты в эпитаксиальных пленках манганитов $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, полученные на бикристаллических подложках с разориентацией базовых плоскостей $(110)\text{NdGaO}_3$ поворотом на углы $\pm 14^\circ$ вокруг линии бикристаллической границы. Представлены результаты измерения сопротивления контактов от температуры и магнитосопротивления в полях до 1.5 кОе. Показано, что подавление ферромагнитных корреляций вблизи границы приводит к образованию слоя с существенно более низкой температурой Кюри. Получено рекордное для бикристаллических контактов магнитосопротивление 150% при $T = 4.2$ К в малом магнитном поле около 500 Ое и характерном сопротивлении границы $3 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}^2$. Малые орторомбические искажения пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, вызванные рассогласованием с кристаллической структурой подложки $(110)\text{NdGaO}_3$, приводят к образованию двухосевой магнитной анизотропии в пленке $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$.

Работа выполнена при поддержке программ ОФН РАН, Министерства образования и науки РФ, программы Европейского Союза (проект NMP3-СТ-2006-033191), программ AQDJJ и ТНЮХ Европейского научного фонда и Международного научно-технического центра (проект 3743).

PACS: 75.47.-m, 85.75.-d

1. Введение

Магнитные контакты являются основным элементом устройств спинтроники, в которых манипуляции производятся не с зарядовым, а со спиновым состоянием системы [1]. Наиболее привлекательными материалами для использования в магнитных контактах являются ферромагнетики со спиновой поляризацией носителей, близкой к 100%. При использовании таких материалов в магнитных контактах можно ожидать рекордных значений магнитосопротивления, а также наблюдать наиболее сильные эффекты, вызванные значительной спиновой инжекцией. Как было показано ранее (см., например, [2]), допированные манганиты типа $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$ (где A — Sr, Ca, Ba, ...) при оптимальном уровне допирования $x \approx 0.33$ являются ферромагнитными материалами с высокой поляризацией носителей, близкой к 100%. В ферромагнитном состоянии эти материалы являются полуметаллами, в которых только одна спиновая подзона имеет ненулевую плотность состояний на уровне Ферми. В результате сопротивление контакта двух манганитов существенным образом определяется взаимной ориентацией их намагниченностей. Однако создание магнитных контактов из манганитов осложняется их высокой чувствительностью как к деградации химического состава, так и к электронному состоянию вблизи границ раздела, что в свою очередь приводит к понижению эффективной спиновой поляризации протекающего в контакте тока. Одним из способов получения магнитных контактов с высоким качеством границы является использование бикристаллической границы в тонкой эпитаксиальной пленке, выращенной на бикристаллической подложке. В последнее время

было опубликовано несколько работ по исследованию манганитных контактов на бикристаллических границах, получаемых в эпитаксиальных пленках, выращенных на бикристаллических подложках из SrTiO_3 или LaAlO_3 с разориентацией кристаллографических осей вокруг направления [001] [3–5]. Полученные контакты обладали сравнительно низкой величиной магнитосопротивления (30–40%) и высоким омическим сопротивлением (10^{-5} – $10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}^2$). Как показало исследование бикристаллических границ из металлоксидных сверхпроводников [6,7], использование разориентации базовых плоскостей вокруг линии бикристаллической границы позволяет существенно улучшить микроструктуру границы, уменьшить характерное сопротивление границы и увеличить характерное джозефсоновское напряжение. Данный тип бикристаллической границы обладает существенно более низкой концентрацией дислокаций в плоскости границы и имеет более качественную морфологию границы [7].

Целью настоящей работы было получение магнитных контактов из $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ на бикристаллической подложке $(110)\text{NdGaO}_3$ с разориентацией базовых плоскостей вокруг линии бикристаллической границы и исследование их транспортных свойств, механизмов перемангничивания и магнитосопротивления.

2. Изготовление образцов и методика эксперимента

Эпитаксиальные пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ (LCMO) толщиной 50 nm выращивались методом лазерной абляции на бикристаллических подложках из

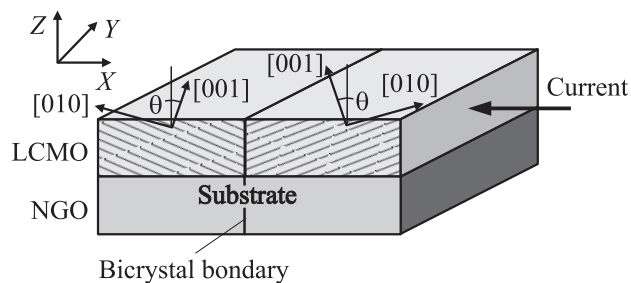


Рис. 1. Схематическое изображение бикристаллической границы в подложке NGO и пленке LCMO. Оси X , Y и Z совпадают с направлениями задания внешнего магнитного поля, вдоль которых задавалось магнитное поле при измерении магнитосопротивления. Кристаллографические направления в пленке LCMO указаны парой стрелок. Внешний ток протекает в плоскости подложки перпендикулярно границе.

(110)NdGaO₃ (NGO) с разориентацией осей вокруг направления $[1\bar{1}0]$ на углы $\pm 14^\circ$ (рис. 1). При росте LCMO на подложках из NGO выполнялись следующие эпитаксиальные соотношения: $(001)\text{LCMO} \parallel (110)\text{NGO}$, $[100]\text{LCMO} \parallel [1\bar{1}0]\text{NGO}$. Постоянная псевдокубической решетки LCMO равна $a_L = 3.858 \text{ \AA}$, в то время как постоянная решетки (110)NGO (орторомбическая ячейка $a = 5.426 \text{ \AA}$, $b = 5.502 \text{ \AA}$, $c = 7.706 \text{ \AA}$) вдоль направления $[001]$ равна $a_N = 3.853 \text{ \AA}$, а вдоль направления $[1\bar{1}0]$ $b_N = 3.863 \text{ \AA}$ [8]. Поскольку $a_N < a_L < b_N$, в пленке LCMO возникают разнополярные механические напряжения — сжимающие вдоль $[001]\text{NGO}$ и растягивающие вдоль $[1\bar{1}0]\text{NGO}$.

Рост пленок производился методом лазерной абляции в атмосфере кислорода с давлением $P = 0.2 \text{ mBar}$ при температуре подложки $T = 750^\circ\text{C}$ с последующим отжигом в кислороде при давлении 1 bar. Мостики в пленке, пересекающие бикристаллическую границу, формировались ионно-лучевым травлением с использованием маски из фоторезиста и имели ширину $7 \mu\text{m}$. Все электрофизические измерения проводились по четырехточечному методу, используя платиновые контактные площадки, нанесенные методом высокочастотного распыления через металлическую маску. При эпитаксиальном росте кристаллическая структура бикристаллической подложки повторяется в пленке LCMO и таким образом в пленке образуется бикристаллическая граница. Нарушение трансляционной симметрии на границе приводит к перестройке электронного состояния, что в свою очередь в случае с манганитами приводит к появлению тонкого разделительного слоя с высоким удельным сопротивлением (рис. 1).

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 2 показана температурная зависимость сопротивления мостика LCMO, пересекающего бикристаллическую границу (кривая 3), полученная при охла-

ждении в нулевом магнитном поле. Для того чтобы учесть вклад сопротивления подводящих берегов в общее сопротивление, было измерено сопротивление LCMO пленки в виде мостика таких же геометрических размеров, не пересекающего границ (кривая 2). Сопротивление бикристаллической границы (кривая 3) получено вычитанием из общего сопротивления образца (кривая 1) сопротивления пленки (кривая 2). Переход в ферромагнитное состояние в манганитах в окрестности температуры Кюри T_C всегда сопровождается переходом изолятор–металл, который проявляется в виде пика на температурной зависимости сопротивления при температуре T_p . Обычно T_p на несколько градусов ниже T_C [9,10]. Температура Кюри для объемных монокристаллических образцов LCMO равна $T_C \approx 250 \text{ K}$, а как видно из рис. 2, T_p пленки 210 K. Полученная температурная зависимость сопротивления самой бикристаллической границы показывает, что вблизи границы происходит подавление T_p до 130 K по сравнению с T_p в берегах 210 K. Высокое характерное сопротивление границы $R \cdot S = 3 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}^2$ (где R и S — сопротивление и площадь бикристаллического контакта соответственно) при $T = 4.2 \text{ K}$ свидетельствует о наличии барьерного слоя с прозрачностью $10^{-3} - 10^{-4}$, появление которого, скорее всего, вызвано еще более сильным обеднением зарядовой плотности до закритической концентрации, при которой происходит формирование неферромагнитного изоляторного состояния.

Измерение зависимости сопротивления от магнитного поля проводилось при температуре 4.2 K в полях до 1.5 kOe для трех взаимно перпендикулярных направлений магнитного поля: перпендикулярно плоскости подложки (ось Z), параллельно линии бикристаллической границы (ось Y) и перпендикулярно плоскости бикристаллической границы (ось X , рис. 1). Для вычисления величины относительного магнитосопротивления

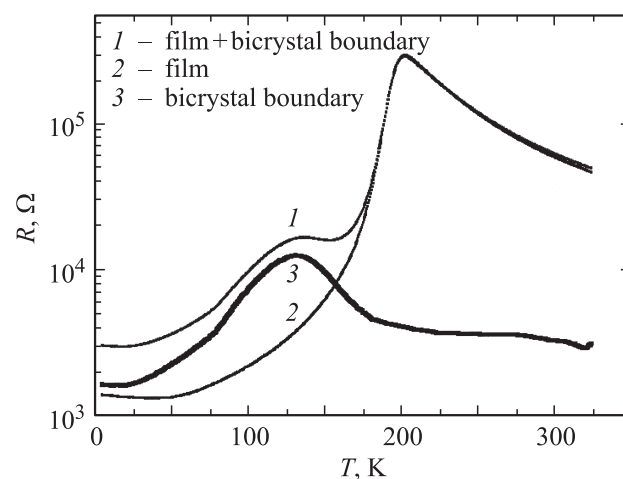


Рис. 2. Температурная зависимость сопротивления бикристаллической границы в пленке LCMO (3), полученная из измерений сопротивления всей структуры (1) и сопротивления подводящих линий (2). Измерения проводились в малом (порядка поля Земли) магнитном поле.

MR использовалось выражение

$$MR = (R^{AP} - R^P)/R^P, \quad (1)$$

где R^{AP} и R^P — сопротивления, измеренные при малых напряжениях при антипараллельной и параллельной взаимной ориентации намагниченностей в берегах контакта соответственно. Максимальное магнитосопротивление

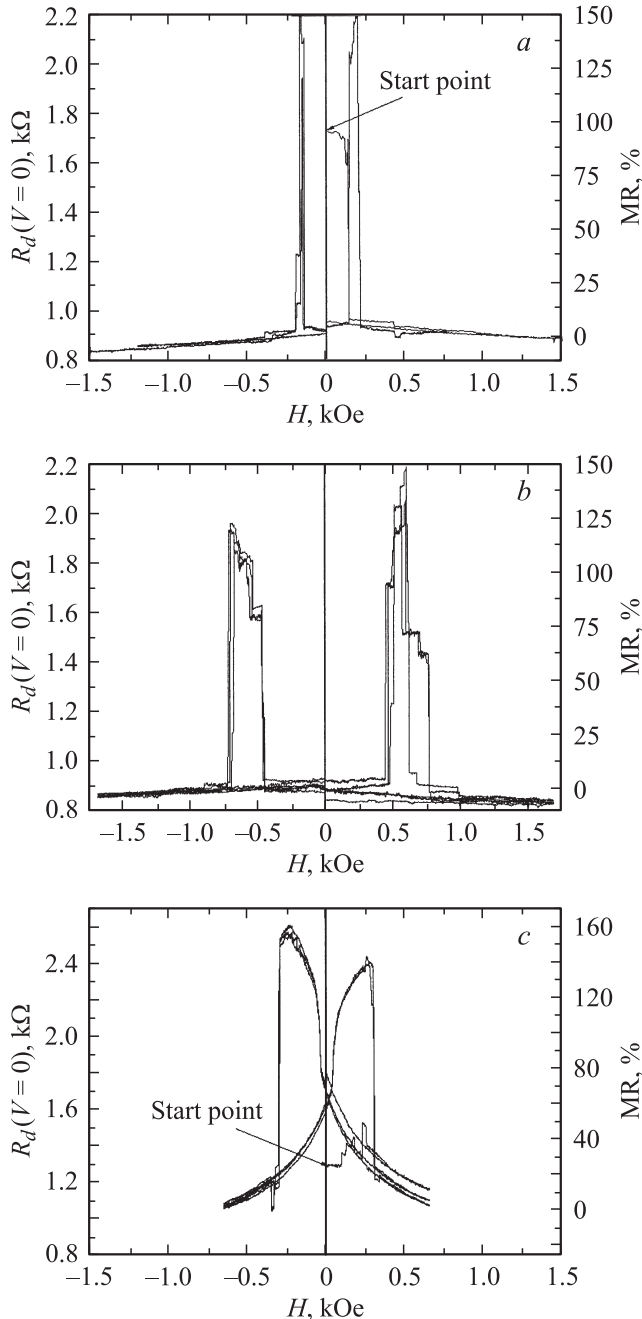


Рис. 3. Магнитосопротивление бикристаллической границы в пленке LCMO, измеренное при $T = 4.2\text{ K}$ в случае задания внешнего магнитного поля вдоль осей Y (a), Z (b) и X (c). Слева указано дифференциальное сопротивление бикристаллической границы при нулевом напряжении, справа — его изменение в процентах.

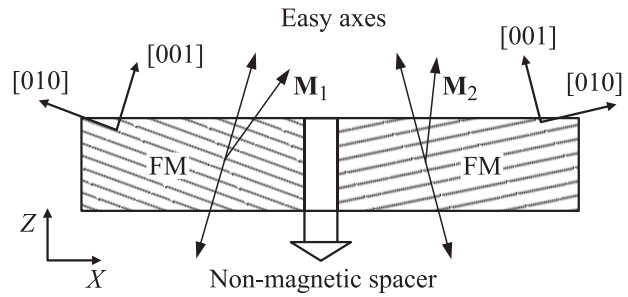


Рис. 4. Схематическое изображение модели, использованной для расчетов процессов перемагничивания бикристаллической границы. Показаны кристаллографические направления в пленке LCMO, оси легкого намагничивания, расположенные симметрично относительно плоскости контакта, и векторы магнитных моментов \mathbf{M}_1 и \mathbf{M}_2 .

составило около 150% (рис. 3, a–c), что существенно превосходит найденные ранее значения около 30%, полученные на бикристаллических контактах с разворотом осей в плоскости подложки [3–5]. Процесс перемагничивания для направлений магнитного поля вдоль осей Y и Z сопровождается скачком сопротивления в относительно узком диапазоне полей шириной 75 и 300 Oe (рис. 3, a, b), что говорит о резкой переориентации намагниченности в пленке вблизи бикристаллической границы. Для направления поля вдоль оси X зависимость сопротивления от магнитного поля имеет плавный характер, соответствующий когерентному вращению намагниченностей в берегах контакта (рис. 3, c).

В модели для анализа процессов перемагничивания в бикристаллическом контакте рассматривались два ферромагнетика прямоугольной формы с равной и однородной намагниченностью, разделенные тонкой прослойкой немагнитного материала. Взаимодействие между берегами контакта было магнитостатическим через собственные поля рассеяния. Магнитная анизотропия в ферромагнетиках задавалась по типу легкая ось первого порядка, причем расположение осей было зеркально симметрично относительно плоскости бикристаллической границы. При моделировании подгоночными параметрами являлись намагниченность ферромагнетиков, величина поля магнитной анизотропии и расположение осей легкого намагничивания (рис. 4). Для вычисления эффекта магнитосопротивления использовалась формула, в которой аддитивно учитывается проводимость контакта, не зависящая от взаимного расположения намагниченностей,

$$G(H) = G_0 + G_M(1 + \mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{m}_2), \quad (2)$$

где G_0 — не зависящая от магнитного поля часть общей проводимости контакта, G_M — амплитуда зависящей от магнитного поля части проводимости контакта, а $\mathbf{m}_i = \mathbf{M}_i/|\mathbf{M}_i|$ — единичные вектора намагниченности берегов контакта, входящие в общее выражение через их скалярное произведение.

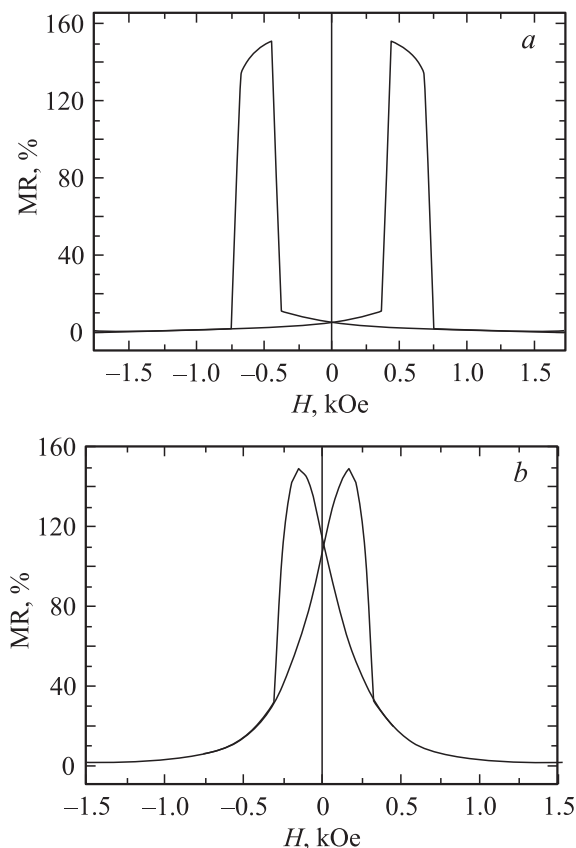


Рис. 5. Расчетные зависимости магнитосопротивления, полученные при моделировании процессов перемагничивания. Части *a* и *b* соответствуют направлениям магнитного поля вдоль осей *Z* и *X*.

Результаты моделирования для направлений магнитного поля вдоль осей *Z* и *X* представлены на рис. 5, *a*, *b*. Полученное в результате сравнения с экспериментом значение намагниченности пленки LCMO 400 emu/cm^3 хорошо согласуется с результатами измерений намагниченности эпитаксиальных пленок методом СКВИД-магнитометрии [11]. Для максимального соответствия эксперименту оси легкой намагничивания должны быть отклонены от нормали к поверхности пленки на углы $\pm 14^\circ$, что совпадает с направлением [001] пленки LCMO. Кроме этого, из результатов измерения магнитосопротивления вдоль оси *Y* видно, что существует вторая легкая ось, совпадающая с направлением [100] LCMO. Исследования влияния механических напряжений на магнитную анизотропию в пленках манганитов (см., например, [5]), выращенных на подложках SrTiO₃ и LaAlO₃, имеющих кубическую решетку, показали, что сжимающее напряжение в плоскости (001) приводит к появлению легкой оси намагничивания вдоль направления [001] LCMO (для LaAlO₃), а растягивающее напряжение в плоскости (001) LCMO приводит к появлению легких осей, лежащих в плоскости вдоль направлений [110] и [1 $\bar{1}$ 0] (для SrTiO₃). Хотя исследований влияния напряжений на магнитную анизотропию в пленке LCMO

на подложке из NGO не проводилось, опираясь на данные для подложек SrTiO₃ и LaAlO₃, можно сделать вывод о том, что растягивающее напряжение в направлении [100] LCMO \parallel [1 $\bar{1}$ 0] NGO и сжимающее напряжение в направлении [010] LCMO \parallel [001] NGO приводят к появлению легких осей намагничивания вдоль направлений [100] LCMO и [001] LCMO.

Поскольку в эксперименте для направлений магнитного поля вдоль осей *Z* и *Y* переключение сопротивления контакта между высокоомным и низкоомным состояниями происходит ступенчато и при многократном прохождении иногда не воспроизводится, можно сделать вывод, что пленка LCMO вблизи границы находится в многодоменном состоянии, и процесс перемагничивания сопровождается либо переворотом намагниченности домена, либо скачкообразным смещением доменной границы. Из сравнения ширины (по магнитному полю) ступенек перемагничивания с общей шириной пика сопротивления можно качественно оценить размер магнитного домена. Для направления магнитного поля вдоль оси *Z* общая ширина пика равна 300 Oe, а средняя ширина ступеньки составляет около 30 Oe, что при ширине контакта $7 \mu\text{m}$ дает оценку размера домена вдоль линии бикристаллической границы в $0.7 \mu\text{m}$. Образование многодоменной структуры в пленке манганита вблизи границы в высокоомном состоянии приводит к тому, что усредненная по ширине перехода величина магнитосопротивления может оказаться существенно ниже максимально достижимой локальной величины, которую можно было бы наблюдать, например, в переходах субмикронной ширины.

4. Заключение

Экспериментально показано, что в магнитных контактах, полученных на бикристаллической подложке с наклоном базовых плоскостей, наблюдается высокое магнитосопротивление до 150% в магнитных полях до 1 kOe. Однако полученные контакты имеют достаточно высокое характерное сопротивление бикристаллической границы, которое ограничивает исследование их динамических свойств и эффектов сильноточной инжекции спин-поляризованных носителей. Использование бикристаллических подложек с малыми углами разориентации, возможно, позволит решить эту проблему. Используя установленную связь магнитной анизотропии в пленках манганитов от кристаллографической ориентации подложки и соотношения параметров решетки пленки и подложки, при правильном подборе этих параметров можно создавать магниточувствительные элементы с заранее заданными свойствами.

Авторы благодарят В.В. Демидова, Д. Винклера, Т. Клаесона, А. Климова, К.И. Константинына, И.М. Котелянского, А.В. Шадрина за полезное обсуждение полученных результатов и помощь при проведении исследований.

Список литературы

- [1] I. Zutic. *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323 (2004).
- [2] M. Bowen, M. Bides, A. Barthelemy, J.-P. Contour, A. Anane, Y. Lemaitre, A. Fert. *Appl. Phys. Lett.* **82**, 233 (2003).
- [3] N.D. Mathur, G. Burnell, S.P. Isaac, T.J. Jackson, B.-S. Teo, J.L. MacManus-Driscoll, L.F. Cohen, J.E. Evetts, M.G. Blamire. *Nature* **387**, 266 (1997).
- [4] J. Klein, C. Hofener, S. Uhlenbruck, L. Alff, B. Buchner, R. Gross. *Europhys. Lett.* **47**, 371 (1999).
- [5] R. Gunnarsson, M. Hanson. *Phys. Rev. B* **73**, 014435 (2006).
- [6] I.V. Borisenko, I.M. Kotelyanski, A.V. Shadrin, P.V. Komissinski, G.A. Ovsyannikov. *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **15**, 165 (2005).
- [7] Y.Y. Divin, U. Poppe, C.L. Jia, P.M. Shadrin, K. Urban. *Physica C* **372–376**, 115 (2002).
- [8] Ю.А. Бойков, В.А. Данилов. *Письма в ЖТФ* **31**, 50 (2005).
- [9] Ю.А. Изюмов, Ю.Н. Скрыбин. *УФН* **171**, 121 (2001).
- [10] Y.P. Lee, S.Y. Park, Y.H. Hyun, J.B. Kim, V.G. Prokhorov, V.A. Komashko, V.L. Svetchnikov. *Phys. Rev. B* **73**, 224413 (2006).
- [11] T.K. Nath, R.A. Rao, D. Lavric, C.B. Eom, L. Wu, F. Tsui. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1615 (1999).