

06;11;12

## Реактивное сопротивление пленочного контакта $n$ -Au/ $p$ -La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>

© Ю.А. Бойков,<sup>1</sup> В.А. Данилов,<sup>1</sup> Т. Клаесон<sup>2</sup><sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия<sup>2</sup> Чалмерский технический университет,  
S-41296 Гетеборг, Швеция  
e-mail: yu.boikov@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 9 ноября 2005 г.)

Исследованы отклики активного и реактивного сопротивлений пленочных гетероструктур Au/(20 nm)La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> на изменение температуры и магнитное поле ( $f = 100$  kHz). При  $T = 300$  К удельная емкость границы, разделяющей золотой электрод и эпитаксиальную пленку (20 nm)La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, составляла порядка  $1 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ . Максимальные значения отрицательного реактивного магнетосопротивления ( $\approx 60\%$  при  $\mu_0 H = 0.4$  Т) выращенных гетероструктур примерно вдвое превосходили наблюдавшиеся при  $T \approx 235$  К экстремальные значения активного магнетосопротивления. Эффективная глубина проникновения электрического поля в манганитную пленку со стороны сформированного на ее поверхности золотого контакта при комнатной температуре составляла порядка 3 nm.

PACS: 73.40.Cg, 73.40.Sx

### Введение

Тонкие слои перовскитоподобных манганитов La<sub>1-x</sub>A<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub>, где  $A = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}, \dots$ , а  $x \approx 0.33$ , перспективны для применения в активных и пассивных элементах спинтроники и, в частности, в устройствах, основанных на инжекции носителей заряда с четко поляризованными спинами [1]. Для формирования таких элементов необходимо, чтобы тонкие, однородные по электронным и магнитным параметрам слои La<sub>1-x</sub>A<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> были объединены с диэлектрическими прослойками и металлическими электродами в многослойной гетероструктуре с резкими межфазными границами.

Структура манганитных пленок резко зависит от типа и величины механических напряжений, действующих в процессе их зародышеобразования и роста. Это является одной из причин деградации намагниченности в прослойках гетероэпитаксиальной манганитной пленки, прилегающих к подложке, электроду или к свободной поверхности [2].

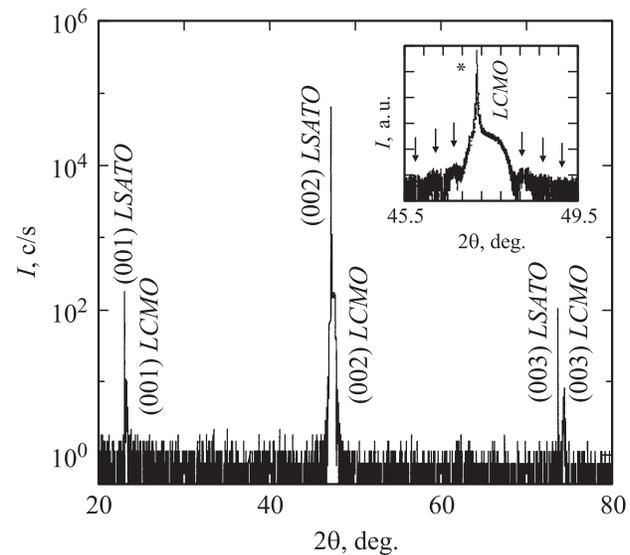
В настоящее время в литературе имеются лишь несколько статей, посвященных изучению электронных параметров манганитных пленок вблизи межфазных границ [2,3]. В данной работе исследованы температурные зависимости активного  $R$  и реактивного  $X$  сопротивлений гетероструктур, включающих в себя тонкий слой La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> ( $LCMO$ ) и золотые пленочные электроды. Полученные зависимости  $X(T)$  использованы для оценки емкости контакта Au/ $LCMO$ .

### Эксперимент

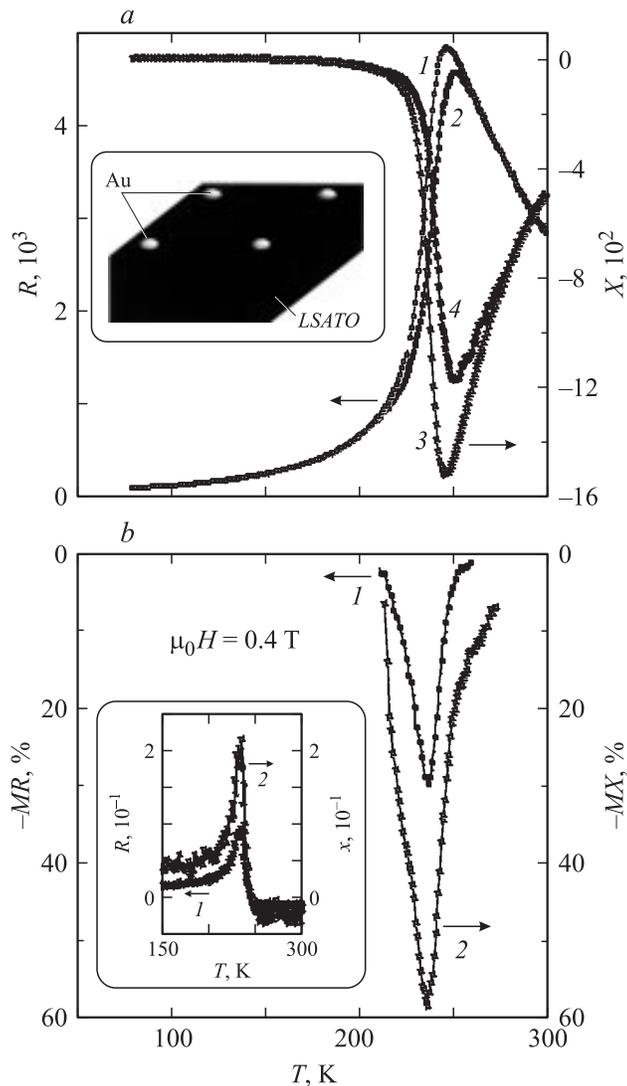
Пленки  $LCMO$  толщиной 20 nm были выращены на подложках (001)(LaAlO<sub>3</sub>)<sub>0.3</sub> + Sr<sub>2</sub>AlTaO<sub>6</sub>)<sub>0.7</sub> ( $LSATO$ )

методом лазерного испарения (ComPex 200, KrF,  $\lambda = 248$  nm,  $\tau = 30$  ns). Технологические условия роста манганитных пленок детализированы в [4].

Структура выращенных пленок  $LCMO$  исследовалась с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, (00 $l$ ) и (101)  $\omega/2\theta$  — сканы,  $\phi$  — сканы для рефлексов (111) от пленки и подложки). Параметры элементарной ячейки в пленке  $LCMO$  в плоскости



**Рис. 1.** Рентгеновская дифрактограмма ( $\text{CuK}\alpha_1$ ,  $\omega/2\theta$ ), полученная для гетероструктуры Au/(20 nm)LCMO/LSATO, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, нормальной к (001)LSATO. На вставке приведен фрагмент той же дифрактограммы в окрестности пика (002)LCMO. Сателлитные пики Лауэ отмечены стрелками, \* — пик от подложки.



**Рис. 2.** *a* — температурные зависимости активного  $R$  (1,2) и реактивного  $X$  (3,4) сопротивлений гетероструктуры  $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$ . 1,3 —  $\mu_0 H = 0$ , 2,4 —  $0.4\text{ T}$ . На вставке показан эскиз пленочной гетероструктуры  $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$ . *b* — температурные зависимости магнетосопротивления  $\Delta R/R$  (1) и реактивного магнетосопротивления  $\Delta X/X$  (2) для гетероструктуры  $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$ . На вставке приведены температурные зависимости температурного коэффициента сопротивления  $\beta_R$  (1) и температурного коэффициента реактивного сопротивления  $\beta_X$  (2) гетероструктуры  $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$  ( $\mu_0 H = 0$ ).

подложки  $a_{\parallel}$  и вдоль нормали к ее поверхности  $a_{\perp}$  рассчитывались с использованием значений  $2\theta$  для рефлексов (202) и (003) $\text{LCMO}$ . Толщина манганитных пленок контролировалась с использованием данных по ширине спутниковых пиков Лауэ на рентгенограммах (см. вставку на рис. 1).

Четыре золотых контакта (толщина слоя  $\text{Au}$   $t = 50\text{ nm}$ , площадь контакта  $S = 0.0063\text{ cm}^2$ ), расположенных на углах квадрата, напылялись термически на свободную поверхность манганитной плен-

ки через механическую маску. Эскиз гетероструктуры  $\text{Au}/\text{LCMO}/\text{LSATO}$  показан на вставке на рис. 2, *a*. Активное  $R$  и реактивное  $X$  сопротивления между двумя золотыми контактами (цепочка  $\text{Au}/\text{LCMO}/\text{Au}$ ) измерялись с использованием прибора hp 4263A LCR meter (частота  $f = 100\text{ kHz}$ ) в магнитном поле  $H$  и без него (направление магнитного поля было параллельно плоскости подложки). Разброс в измеренных значениях  $R$  и  $X$  при использовании различных пар контактов, сформированных на чипе, не превышал 8%.

## Экспериментальные результаты и их обсуждение

Пленки  $\text{LCMO}$  с толщиной в несколько десятков нм, выращенные на подложках с малым рассогласованием  $m$  в параметрах кристаллических решеток, обладают гладкой свободной поверхностью и совершенной структурой. Параметр псевдокубической элементарной ячейки  $\text{LCMO}$  ( $a_1 = 3.858\text{ \AA}$  [5]) меньше параметра псевдокубической ячейки  $\text{LSATO}$  ( $a_2 = 3.868\text{ \AA}$  [6]), причем  $m$  не превышает 0.3%. Это определило выбор  $\text{LSATO}$  в качестве материала подложки.

Активное сопротивление  $R$  гетероструктуры  $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$  зависело от удельного сопротивления манганитного слоя и контактного сопротивления двух границ  $\text{Au}/\text{LCMO}$ . Вклад золотых электродов в  $R$  незначителен вследствие малой их толщины и высокой электропроводности. Реактивное сопротивление исследованных гетероструктур имело емкостную  $X_C$  и индуктивную  $X_L$  составляющие,  $X = X_C + X_L$ .  $X_C = -1/\omega C$  определялась емкостью контактов  $n\text{-Au}/p\text{-LCMO}$ , а  $X_L = \omega L$  самоиндукцией  $L$  манганитного слоя ( $\omega = 2\pi f$ ). Следует отметить, что величина  $X_C$  зависела от электронных параметров узких прослоек в золотом электроде и манганитной пленке, прилегающих к границе  $\text{Au}/\text{LCMO}$ . Вследствие химической инертности золота деградация электронных параметров  $\text{Au}$  в приконтактной области маловероятна. Концентрация дырок в приповерхностном слое пленки  $\text{LCMO}$ , напротив, может существенно отличаться от их концентрации в объеме манганитного слоя. Это обусловлено высокой плотностью вакансий кислорода в приповерхностной области упруго напряженной пленки  $\text{LCMO}$  [2].

Структура выращенных пленок  $\text{LCMO}$

На рентгеновских  $\omega/2\theta$ - и  $\phi$ -сканах, полученных для гетероструктур  $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$ , присутствовали пики только от манганитного слоя и подложки (рис. 1). Разрешить какую-либо тонкую структуру рентгеновских пиков ( $2\theta \leq 80^\circ$ ), которая указывала бы на релаксацию механических напряжений в выращенных пленках, нам не удалось. Система спутниковых пиков Лауэ, четко разрешаемая на полученных рентгенограммах (см. вставку на рис. 1) свидетельствует о высоком качестве структуры выращенных манганитных

слоев и об их однородности по толщине. Из полученных рентгеновских данных ( $\omega/2\theta$ - и  $\phi$ -сканы) следует, что сформированные пленки (20 nm) *LCMO* были четко преимущественно ориентированы как азимутально, так и относительно нормали к плоскости подложки. Параметр  $a_{\perp} = 3.838 \pm 0.005 \text{ \AA}$  в пленке (20 nm) *LCMO* был меньше параметра  $a_{\parallel} = 3.867 \pm 0.005 \text{ \AA}$ . Последний практически совпадал с параметром решетки подложки. Таким образом, пленки (20 nm) *LCMO* были выращены когерентно на поверхности (001) *LSATO* и находились под действием слабых двухосных, растягивающих в плоскости подложки механических напряжений.

Электронные параметры гетероструктур *Au/(20 nm)LCMO/LSATO*

Температурные зависимости  $R$  и  $X$  гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO*, измеренные при  $\mu_0 H = 0$  и 0.4 Т, приведены на рис. 2, а. При  $\mu_0 H = 0$  максимальные значения  $R$  и отрицательного реактивного сопротивления  $X$  наблюдались при температуре  $T_M \approx 246 \text{ К}$ . Приведенное значение  $T_M$  хорошо согласуется с температурой, при которой наблюдался максимум электросопротивления  $\rho$  пленки (20 nm) *LCMO*, выращенной на *LSATO* в [7] ( $\rho$  измерялось на постоянном токе с использованием четырехзондовой схемы). Таким образом, зависимость  $R$  сформированных гетероструктур от температуры определялась, в первую очередь, параметрами манганитного слоя.

И активное, и реактивное сопротивления гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* существенно реагировали на внешнее магнитное поле. Максимум на кривых  $R(T)$  и  $X(T)$ , измеренных при  $\mu_0 H = 0.4 \text{ Т}$ , был сдвинут на 4–5 К в сторону высоких температур относительно  $T_M$  (см. рис. 2, а). Резкий пик отрицательного магнетосопротивления  $\Delta R/R = [R(\mu_0 H = 0.4 \text{ Т}) - R(\mu_0 H = 0)]/R(\mu_0 H = 0) \times 100\%$  наблюдался при температуре порядка 235 К [ $-\Delta R/R(235 \text{ К}) \approx 30\%$ ]. Реактивное магнетосопротивление  $\Delta X/X = [X(\mu_0 H = 0.4 \text{ Т}) - X(\mu_0 H = 0)]/X(\mu_0 H = 0) \times 100\%$  было также отрицательным и примерно вдвое превышало  $\Delta R/R$  при  $T = 235 \text{ К}$  (рис. 2, б). Следует отметить, что полуширина (ширина на половине высоты) пика на кривой  $\Delta X/X(T)$  была в полтора раза больше полуширины пика на кривой  $\Delta R/R(T)$ .

Максимальные значения температурного коэффициента сопротивления  $\beta_R(235 \text{ К}) = R^{-1} dR/dT \approx 0.10$  гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* были вдвое меньше максимальных значений температурного коэффициента реактивного сопротивления  $\beta_X(235 \text{ К}) = X^{-1} dX/dT \approx 0.22$  (см. вставку на рис. 2, б). Благодаря высоким значениям  $\beta_X$  пленочные структуры, включающие манганитные слои и контакты из благородных металлов, представляются перспективными для использования в чувствительных элементах приемников теплового потока. При сравнительном анализе температурных зависимостей  $\beta_R$  и  $\beta_X$  следует помнить, что первая из них определяется в основном электронными параметрами в объеме слоя *LCMO*, а вторая зависит от

свойств тонкой прослойки в том же слое, прилегающей к золотому электроду.

При температурах 120–300 К измеренное реактивное сопротивление гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* было отрицательным (рис. 2, а). Это является следствием того, что в указанном интервале температуры вклад емкостной составляющей реактивного сопротивления превалировал над вкладом индуктивной составляющей. В окрестности ферромагнитного фазового перехода отрицательное  $X$  достигало 1500  $\Omega$  и практически полностью определялось величиной емкости контактов *n-Au/p-LCMO*, т.е.  $X \approx -1/\omega C$ . При  $T = 300 \text{ К}$  емкость контакта *n-Au/p-LCMO* составляла  $C_K \approx -2/\omega X(300 \text{ К}) \approx 6.6 \times 10^{-9} \text{ F}$  ( $f = 100 \text{ kHz}$ ). Это соответствует удельной емкости межфазной границы *Au/LCMO*  $C_B = C_K/S \approx 1 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ . С понижением температуры в интервале 300–250 К  $C_B$  уменьшалась примерно в три раза. Поскольку концентрация электронов в *Au* ( $n_0 = 5.9 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  [8]) примерно на порядок величины больше концентрации носителей заряда в *LCMO* ( $p \approx 6 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  в соответствии с химической формулой) стехиометрического состава, эффективная глубина проникновения электрического поля в золотой электрод должна быть значительно меньше глубины его проникновения в манганитный слой. Поэтому емкость  $C_{Au}$ , индуцированная проникновением электрического поля в золотой электрод, должна быть значительно больше емкости  $C_{LCMO}$ , связанной с проникновением электрического поля в пленку *LCMO*, а  $C_B = C_{Au} \times C_{LCMO}/(C_{Au} + C_{LCMO}) \approx C_{LCMO}$ . Это хорошо согласуется с данными, приведенными в [8], где для удельной емкости, индуцированной проникновением электрического поля в *Au*, получено значение порядка  $8 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ , которое значительно больше величины  $C_B$  для границы *Au/LCMO*. Связь между эффективной глубиной проникновения  $L_M$  электрического поля в металлический электрод и индуцированной при этом емкостью  $C_I$  на межфазной границе может быть представлена в виде [8,9]

$$C_I = \epsilon_M/2.3L_M, \quad (1)$$

где  $\epsilon_M$  — диэлектрическая проницаемость электрода.

Нам, к сожалению, не удалось найти литературных данных по низкочастотной ( $f < 1 \text{ MHz}$ ) диэлектрической проницаемости *LCMO*  $\epsilon'$ .  $\epsilon' = 100\epsilon_0$  было использовано в [10] для оценки удельной емкости границы, сформированной в пленке *LCMO* на ступеньке. Для грубой оценки эффективной глубины проникновения  $L_{LCMO}$  электрического поля в манганитную пленку в гетероструктуре *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* мы использовали значение высокочастотной диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{\infty} = 8.5\epsilon_0$ , полученное в [11] для пленок *LCMO* с применением ИК-спектроскопии. Используя соотношение (1),  $C_{LCMO} = C_B = 1 \mu\text{F}/\text{cm}^2$  и  $\epsilon' = 8.5\epsilon_0$ , мы получили для  $L_{LCMO}$  значение 3.2 nm. Сравнив полученные значения  $C_B$  и  $L_{LCMO}$  для гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* с соответствующими данными, имеющимися в литературе, следует отметить, что

они хорошо согласуются с оценками емкости (на единицу поверхности  $\sim 0.5 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ ) и эффективной толщины ( $\sim 2 \text{ nm}$ ) контакта Au/Cr/(400 nm)La<sub>0.67</sub>Sr<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, приведенными в [12]. В качестве факторов, ответственных за относительно большое значение глубины проникновения электрического поля в манганитный электрод (по сравнению с глубиной проникновения поля в электрод из благородного металла [8]) в гетероструктуре Au/(20 nm)LCMO/LSATO, можно отметить следующие:

— нарушение стехиометрии манганитного слоя вследствие действующих в процессе его зарождения и роста механических напряжений, что приводит к снижению эффективной концентрации дырок в его объеме;

— наличие на межфазной границе Au/LCMO оксидных включений с низкой  $\epsilon$  (например, CaO) вследствие нарушения вакуума в ростовой камере при установке маски для напыления золотых контактов;

— присутствие в приповерхностном слое пленки (20 nm)LCMO включений плохо проводящих, не ферромагнитных фаз.

В заключение мы хотели бы отметить, что емкость, сосредоточенная на межфазной границе электрод/манганитная пленка так же, как и значительная величина  $L_{LCMO}$  могут оказывать существенное влияние на электро- и магнетотранспортные параметры многослойных гетероструктур, включающих манганитные и металлические пленки.

Исследования проводились в рамках научного сотрудничества Российской и Шведской королевской академий наук. Финансовая поддержка для проведения данной работы была частично получена из проекта 9Б19 программы президиума РАН „Низкоразмерные квантовые структуры“ и проекта № 04-02-16212 Российского фонда фундаментальных исследований.

## Список литературы

- [1] Bowen M., Bibes M., Barthelemy A., et al. // Appl. Phys. Lett. 2003. Vol. 82. N 2. P. 233.
- [2] Wad U.P., Ogale A.S., Ogale S.B., Venkatesan T. // Appl. Phys. Lett. 2002. Vol. 81. N 18. P. 3422.
- [3] Boikov Yu.A., Claeson T. // Phys. Rev. V. 2004. Vol. 70. N 18. P. 184–433.
- [4] Бойков Ю.А., Клаесон Т., Бойков А.Ю. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 10. С. 54.
- [5] Lu C.J., Wang Z.L., Kwon C., Jia Q.X. // J. Appl. Phys. 2003. Vol. 88. N 7. P. 4032.
- [6] Ziese M., Semmelhack H.C., Han K.H., Sena S.P., Blythe H.J. // J. Appl. Phys. 2002. Vol. 91. N 12. P. 9930.
- [7] Бойков Ю.А., Данилов В.А. // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30. Вып. 13. С. 12.
- [8] Ku H.Y., Ullman F.G. // J. Appl. Phys. 1964. Vol. 35. N 2. P. 265.
- [9] Simmons J.G. // Appl. Phys. Lett. 1965. Vol. 6. N 3. P. 54.
- [10] Glaser A., Ziese M. // Phys. Rev. B. 2002. Vol. 66. N 9. P. 094422.
- [11] Boris A.V., Kovaleva N.N., Bazhenov A.V., et al. // J. Appl. Phys. 1997. Vol. 81. N 8. P. 5756.
- [12] Reversat L., Crozat P., Lyonnet R., et al. // Appl. Phys. Lett. 2003. Vol. 83. N 13. P. 2596.