

05;06

## Электро- и магнетосопротивление пленок (30 nm) $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ , упругомеханически сжатых в плоскости (110)

© Ю.А. Бойков, М.П. Волков

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург

E-mail: yu.boikov@mail.ioffe.ru

Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур, Вроцлав, Польша

Поступило в Редакцию 24 марта 2008 г.

Эпитаксиальные пленки  $(110)\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  толщиной 30 nm были выращены на подложках  $(110)\text{LaAlO}_3$  методом лазерного испарения. Параметры  $a$  и  $b$  (вдоль  $[100]$  и  $[010]\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  соответственно) элементарной ячейки сформированных манганитных слоев были существенно (на  $\sim 1.2\%$ ) увеличены по сравнению с параметром псевдокубической элементарной ячейки объемных стехиометрических кристаллов  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ . При  $T < 150$  K температурная зависимость электросопротивления  $\rho$  выращенных манганитных пленок хорошо аппроксимировалась соотношением  $\rho = \rho_1 + \rho_2(H)T^{4.5}$ , причем коэффициент  $\rho_2$  уменьшался с ростом напряженности магнитного поля и имел значения, близкие к значениям соответствующего коэффициента для манганитных пленок, выращенных на подложках с малым рассогласованием в параметрах кристаллических решеток.

PACS: 73.43.Qt, 73.50.-h

Резкая зависимость электросопротивления перовскитоподобных манганитов  $\text{La}_{1-x}(\text{Ba,Ca,Sr})_x\text{MnO}_3$  от магнитного поля и температуры обуславливает перспективность их использования в головках для считывания информации с магнитных дисков [1], в ячейках магнитной памяти [2] и т.д.

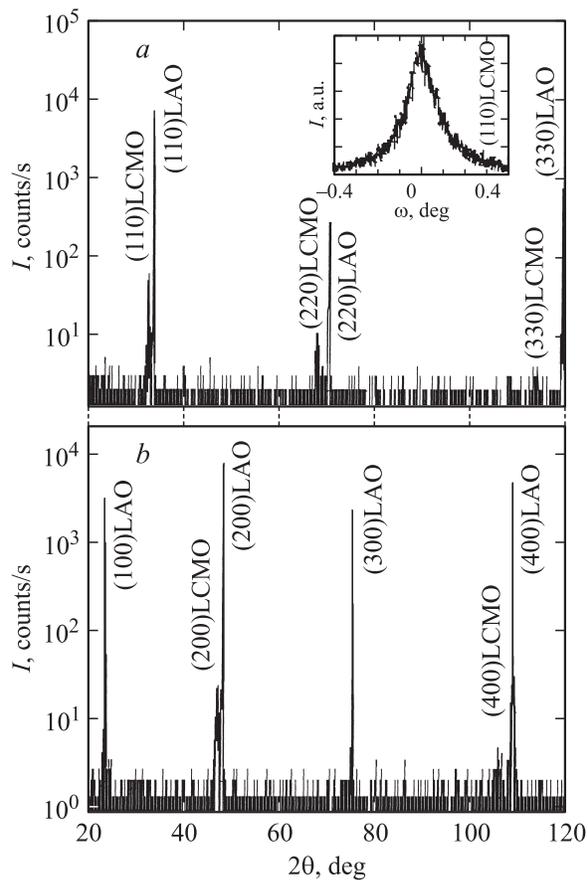
Исследованию зависимости электросопротивления и магнитных свойств манганитных пленок от двухосных механических напряжений посвящено значительное число работ [3–6]. Объектами исследования в подавляющем числе случаев были тонкие манганитные слои, двухосно

сжатые (растянутые) подложкой в плоскости (001). В данной работе сформированы и исследованы пленки  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LCMO), двухосно механически сжатые подложкой в плоскости (110).

Пленки LCMO толщиной  $d = 30$  nm были выращены методом испарения с использованием эксимерного лазера (KrF, длина волны излучения 248 nm, длительность импульса 30 ns) на подложках (110) $\text{LaAlO}_3$  (LAO). Условия роста манганитных слоев детализированы в [6]. Рассогласование  $m$  в параметрах кристаллических решеток LCMO и LAO положительно и составляет 1.7% ( $m = (a_f - a_s)/a_s$ ,  $a_f$  и  $a_s$  — параметры кристаллических решеток пленки и подложки соответственно).

Структура сформированных пленок исследовалась с использованием рентгеновской дифракции. Измерение сопротивления  $R$  пленок LCMO проводилось в конфигурации Van der Pauw на постоянном токе, в магнитном поле  $H$  ( $\mu_0 H$  до 14 Т, магнитное поле параллельно плоскости подложки, но ортогонально направлению измерительного тока,  $\mu_0$  — магнитная восприимчивость вакуума) и без него. На свободной поверхности манганитных пленок было сформировано по четыре серебряных контакта, расположенных на углах квадрата. Электросопротивление  $\rho$  манганитных пленок рассчитывалось с использованием формулы  $\rho = R\pi d / \ln 2$  [7].

На рис. 1, *a* показана рентгеновская дифрактограмма ( $\omega/2\theta$ ) для пленки (30 nm)LCMO/(110)LAO, полученная в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (110)LAO. На дифрактограмме присутствовали только пики ( $nm0$ ) от манганитного слоя и подложки. Это указывает на отсутствие в объеме выращенных манганитных слоев кристаллических макровключений вторичных фаз. На рис. 1, *b* показан рентгеновский скан для той же пленки, полученный в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (100)LAO. Рентгеновские сканы, приведенные на рис. 1, *a* и *b*, свидетельствуют о том, что пленки (30 nm)LCMO были выращены эпитаксиально на подложке (110)LAO. Рассчитанные с использованием полученных рентгеновских данных эффективные значения параметров  $a$  (вдоль [100]LCMO) и  $b$  (вдоль [010]LCMO)  $\approx 3.904 \pm 0.005$  Å (оси [100] и [010] в пленке LCMO были направлены под углом  $45^\circ$  к плоскости подложки) существенно превышали величину параметра ( $a_1 = 3.858$  Å [3]) псевдокубической элементарной ячейки стехиометрических объемных образцов LCMO. Это указывает на то, что



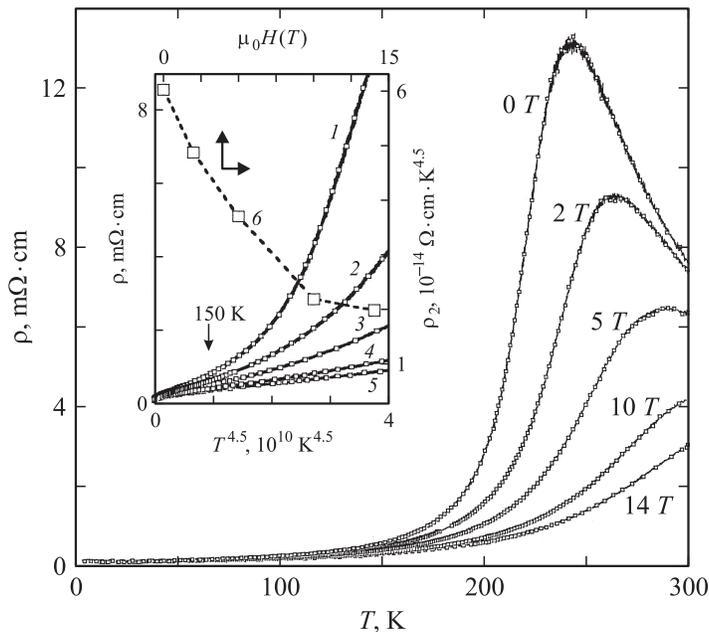
**Рис. 1.** Дифрактограмма ( $\text{CuK}\alpha_1$ ) для пленки (30 nm)LCMO/(110)LAO, полученная в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной: *a* — (110)LAO, *b* — (100)LAO. На вставке приведена кривая качания ( $\omega/2\theta$ ) для рентгеновского рефлекса (110) от той же пленки. \* — (100)LCMO пик.

элементарная ячейка в манганитном слое была упруго сжата вдоль оси *c*, которая была параллельна плоскости подложки. Нам не удалось выявить какой-либо сложной структуры пиков (*nn0*)LCMO на рентге-

новских дифрактограммах, которая бы свидетельствовала о релаксации механических напряжений в выращенных пленках. Пики (110)LCMO на дифрактограммах ( $\omega/2\theta$ ) и рентгеновские кривые качания для рефлекса (110) от пленок (30 nm)LCMO/(110)LAO (см. рис. 1, *a* и вставку) были симметричны. Сравнивая рентгеновские данные, полученные для пленок (30 nm)LCMO/(110)LAO, с соответствующими дифрактограммами [8] для „толстых“ ( $d > 100$  nm) пленок (110)LCMO/(110)LAO, механические напряжения в которых частично релаксировали, следует отметить, что пики на последних, как правило, существенно искажены или расщеплены на два. Отсутствие сложной структуры рентгеновских пиков на полученных дифрактограммах позволяет предположить, что сформированные пленки (30 nm)LCMO/(110)LAO были выращены квазикогерентно на поверхности подложек (110)LAO, т.е. параметр  $c$  в их объеме примерно совпадал с параметром псевдокубической решетки алюмината лантана.

Температурные зависимости электросопротивления пленок (30 nm)LCMO/(110)LAO, измеренные в магнитном поле различной напряженности, показаны на рис. 2. Резкий максимум на зависимости  $\rho(T, \mu_0 H = 0)$  для пленки (30 nm)LCMO/(110)LAO наблюдался при температуре  $T_M \approx 245$  K, близкой к температуре Кюри для массивных стехиометрических кристаллов LCMO [1].  $T_M$  для пленок (30 nm)LCMO/(110)LAO была на 60–70 K выше соответствующей температуры для наноразмерных пленок LCMO, выращенных при таких же условиях на (001)LAO [6]. Основной причиной снижения  $T_M$  для пленок LCMO, выращенных когерентно на подложке с положительным рассогласованием в параметрах кристаллических решеток, является их обогащение щелочно-земельным компонентом и/или кислородом. Такое нарушение стехиометрии приводит к более высокой относительной концентрации ионов  $Mn^{+4}$  в объеме манганитного слоя, чем в использованной мишени ( $\sim 33\%$ , в соответствии с химической формулой LCMO). Повышение  $T_M$  и уменьшение абсолютных значений  $\rho(T_M, \mu_0 H = 0)$  для пленок LCMO при замене подложки LAO с ориентацией (001) на подложку с ориентацией (110) обусловлены тем обстоятельством, что стехиометрия манганитного слоя (110)LCMO в процессе зародышеобразования и роста (на подложке со значительным  $m$ ) нарушена в меньшей степени, чем стехиометрия слоя (001)LCMO.

Интенсивность процесса зародышеобразования определяется в значительной степени энергией упругой деформации в системе зародыш/подложка и свободной энергией свободной поверхности зародыша.



**Рис. 2.** Температурные зависимости элетросопротивления  $\rho$  (1–5) и магнетосопротивления  $MR(\mu_0 H = 2\text{T})$  (6) пленки (30 nm)LCMO/(110)LAO. Значения  $\mu_0 H$ , при которых были измерены кривые (1–5), показаны на рисунке. На вставке показаны зависимости  $\rho(T^{4.5})$  (1–5) и  $\rho_2(\mu_0 H)$  (6) для пленки (30 nm)LCMO/(110)LAO. Значения  $\mu_0 H$  для кривых (1–5) на вставке и на рисунке одинаковые.

дыша конденсируемой фазы. Кристаллографические плоскости (110) в кристаллах перовскитоподобных оксидов обеспечивают, как правило, минимальные значения свободной энергии свободной поверхности. Кроме этого, эффективная плотность ионов кислорода в плоских прямоугольных решетках, сопрягающихся на межфазной границе (110)LCMO/(110)LAO, существенно (примерно на 50%) меньше, чем на межфазной границе (001)LCMO/(001)LAO. Это должно обеспечивать относительно низкие значения энергии упругой деформации в системе зародыш/подложка при (110)/LCMO/(110)(LAO). Указанные выше факторы способствуют интенсификации процесса зародышеоб-

разования при замене подложки (001)LAO на подложку (110)LAO. От интенсивности процесса зародышеобразования существенно зависят и структура, и стехиометрия пленок многокомпонентных материалов, диссоциирующих при испарении.

При  $T < 150$  К зависимость электросопротивления пленок (30 nm)LCMO/(110)LAO хорошо аппроксимировалась соотношением  $\rho = \rho_1 + \rho_2(H)T^{4.5}$ , где параметр  $\rho_1 = 140-160 \mu\Omega \cdot \text{cm}$  не зависел от температуры и напряженности магнитного поля. Согласно [9], электросопротивление манганитов должно возрастать с температурой как  $T^{4.5}$ , если основным процессом рассеяния носителей заряда является их взаимодействие со спиновыми волнами. Зависимости  $\rho(T^{4.5})$ , измеренные для пленки (30 nm)LCMO/(110)LAO в магнитном поле различной напряженности, показаны на вставке на рис. 2. Величина коэффициента  $\rho_2$ , определенная по тангенсу угла наклона касательной к кривой  $\rho(T^{4.5})$  при  $T < 150$  К, резко уменьшалась с увеличением  $\mu_0 H$  (см. ту же вставку). Коэффициент  $\rho_2(\mu_0 H = 5\text{T})$  для пленок (30 nm)LCMO/110(LAO) был в 2-3 раза меньше соответствующего коэффициента для наноразмерных манганитных пленок, сформированных на (001) ориентированных подложках с существенным ( $\sim 1.5\%$ ) положительным (отрицательным) рассогласованием в параметрах кристаллических решеток [10,11]. Уменьшение коэффициента  $\rho_2$  с увеличением напряженности магнитного поля (см. вставку на рис. 2) связано в первую очередь с затуханием спиновых волн в ферромагнитных доменах.

Отрицательное магнетосопротивление  $MR = [\rho(\mu_0 H = 2\text{T}) - \rho(\mu_0 H = 0)]/\rho(\mu_0 H = 0)$  пленок достигало своего максимального значения ( $\sim -0.75$ ) при температуре примерно на 10 К ниже  $T_M$  (см. рис. 2). При  $T < 150$  К  $MR$  пленок (30 nm)LCMO/(110)LAO имело величину порядка восьми процентов и слабо реагировало на изменение температуры.

В заключение мы хотели бы отметить, что (110) ориентированные подложки могут быть использованы для уменьшения нежелательного влияния механических напряжений на электро- и магнитотранспортные параметры манганитных пленок, формируемых на поверхности материалов со значительным рассогласованием в параметрах кристаллических решеток.

Финансовая поддержка для проведения данных исследований была частично получена из проекта NMP3-CN-2006-033191 Европейской программы FP6 и Государственного контракта ФАНИ № 02.513.11.3332.

## Список литературы

- [1] Tokura Y. // Colossal Magnetoresistive Oxides / Ed. By Y. Tokura, Gordon and Breach Science Publishers. Amsterdam, The Netherlands, 2000. P. 2.
- [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] Li C.J., Wang Z.L., Kwon C., Jia Q.X. // J. Appl. Phys. 2000. V. 88. N 7. P. 4032.
- [4] Valencia S., Balcells Li, Martinez B., Fontcuberta J. // J. Appl. Phys. 2003. V. 93. N 10. P. 8059.
- [5] Gommert E., Cerva H., Wecker J., Samwer K. // J. Appl. Phys. 1999. V. 85. N 8. P. 5417.
- [6] Boikov Yu.A., Gunnarsson R., Claeson T. // J. Appl. Phys. 2004. V. 96. N 1. P. 435.
- [7] Kamins T.I. // J. Appl. Phys. 1971. V. 42. N 9. P. 4357.
- [8] Бойков Ю.А., Т. Клаесон Т., Бойков А.Ю. // ФТТ. 2003. Т. 45. В. 6. С. 1040.
- [9] Kubo K., Ohata N. // J. Phys. Soc. Jpn. 1972. V. 33. N 1. P. 21.
- [10] Бойков Ю.А., Данилов В.А. // ФТТ. 2006. Т. 48. В. 8. С. 1447.
- [11] Бойков Ю.А., Клаесон Т. // ФТТ. 2005. Т. 47. В. 2. С. 274.