

13,05

Анизотропное магнетосопротивление частично релаксированных пленок SrRuO₃

© Ю.А. Бойков, В.А. Данилов

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

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

(Поступила в Редакцию 30 ноября 2010 г.)

Пленки SrRuO₃ толщиной 50 nm, выращенные методом лазерного испарения на подложках (001)(LaAlO₃)_{0,3} + (Sr₂AlTaO₆)_{0,7}, находились под действием частично релаксированных сжимающих двухосных механических напряжений. Пленки состояли из кристаллитов с латеральными размерами 40–100 nm, ориентированная азимутальная разориентация которых составляла порядка 0.9°. Ферромагнитное упорядочение спинов в пленках SrRuO₃ сопровождалось резким изменением наклона температурной зависимости их электросопротивления ρ при $T \approx 155$ K. При направлении магнитного поля H , параллельном измерительному току, максимальные значения ($\sim 7.5\%$) магнетосопротивления $MR = [\rho(\mu_0 H = 5 \text{ T}) - \rho(\mu_0 H = 0)]/\rho(\mu_0 H = 0)$ пленок наблюдались при температурах порядка 100 K. При $T = 95$ K ($\mu_0 H = 5$ T) анизотропное магнетосопротивление пленок составляло 8% и увеличивалось примерно в 1.5 раза при понижении температуры до 4.2 K.

Финансовая поддержка данных исследований частично получена из проекта МНТЦ 3743, проекта РФФИ № 08-02-01352-а и госконтракта № 02.740.11.0544.

1. Введение

В обширной группе проводящих перовскитоподобных оксидов рутенат стронция выделяется аномально высокой концентрацией $n \approx 2 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ [1] носителей заряда (примерно один электрон на орторомбическую элементарную ячейку). Именно подвижные электроны способствуют ферромагнитному упорядочению электронных спинов в SrRuO₃ (SRO) при температурах ниже $T_{\text{Curie}} \approx 160$ K [2]. Электро- и магнетотранспортные свойства SRO определяются в значительной степени параметрами узкой π^* -зоны, возникающей в результате гибридизации Ru 4*d*- и O 2*p*-орбиталей [3]. Нарушения стехиометрии, дефекты структуры и механические напряжения оказывают существенное влияние на ширину зоны и, как следствие, на интенсивность обмена электронами между ионами рутения в цепочках Ru–O–Ru.

Рутенат стронция обладает высокой химической стабильностью [4] и хорошо сопрягается по параметрам кристаллических решеток с изоморфными по структуре сегнетоэлектриками, манганитами и купратными сверхпроводниками. Это позволяет успешно использовать наноразмерные эпитаксиальные слои SRO в качестве: а) проводящих электродов в пленочных конденсаторных гетероструктурах с промежуточным слоем (Ba,Sr)TiO₃ [5]; б) ферромагнитной прослойки в SFS контактах YBa₂Cu₃O_{7- δ} /SRO/YBa₂Cu₃O_{7- δ} [6]; в) ферромагнитного электрода в инверсных туннельных магнитных контактах [7].

В настоящей работе исследованы структура, электро- и магнетосопротивление пленок SRO, механические напряжения в которых частично релаксированы. Напряжения и дефекты структуры, формирующиеся в процессе

их релаксации, могут оказывать существенное влияние на анизотропию магнетотранспортных параметров оксидов с сильно коррелированной электронной системой [8].

2. Эксперимент

Метод лазерного испарения (KrF, $\lambda = 248$ nm, $\tau = 30$ ns) был использован для выращивания пленок SRO толщиной $d = 50$ nm на подложках (001)(LaAlO₃)_{0,3} + (Sr₂AlTaO₆)_{0,7} (LSATO) (здесь и далее использованы индексы для псевдокубических элементарных ячеек SRO и LSATO). Технологические параметры роста пленок SRO приведены в [5].

Структура пленок исследовалась с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, CuK α ₁, $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканы). Рентгеновские дифрактограммы измерялись в симметричной брэгговской конфигурации, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (001) или (101)LSATO. Параметры элементарной ячейки в пленке рутената стронция рассчитывались с использованием значений 2θ для пиков (004) и (202)SRO на визуализированных рентгеновских сканах. Морфология свободной поверхности выращенных пленок исследовалась с использованием микроскопии атомных сил (AFM, Nanoscope-IIIa, режим высоты).

Сопротивление R пленок SRO измерялось на постоянном токе ($I_b = 100 \mu\text{A}$) в конфигурации van der Pauw в магнитном поле H ($\mu_0 H$ до 5 T) и без него. Магнитное поле было направлено параллельно плоскости подложки (параллельно или перпендикулярно направлению изме-

рительного тока). Четыре серебряных контакта, расположенные на углах квадрата, напылялись термически на свободную поверхность пленок. Электросопротивление ρ пленок рассчитывалось с использованием соотношения $\rho = R\pi d / \ln 2$ [9].

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Положительное рассогласование $m \approx 1.5\%$ в параметрах кристаллических решеток SRO (псевдокубическая элементарная ячейка, $a_1 = 3.928 \text{ \AA}$ [10]) и LSATO (псевдокубическая ячейка, $a_2 = 3.868 \text{ \AA}$ [11]) обусловило двухосное латеральное сжатие сформированных слоев рутената стронция [$m = (a_1 - a_2)/a_2$]. Температурные коэффициенты линейного расширения SRO и LSATO имеют близкие значения [12,13].

3.1. Структура и морфология свободной поверхности выращенных пленок. На рентгеновских сканах, визуализированных для гетероструктур SRO/LSATO (рис. 1 и вставка на нем), присутствуют пики только от подложки и сформированной на ее поверхности пленки, что указывает на отсутствие в объеме последней макровключений вторичных кристаллических фаз. Полученные рентгеновские данные свидетельствуют о том, что выращенные пленки четко преимущественно ориентированы как азимутально, так и относительно нормали к плоскости подложки. Параметр элементарной ячейки в слое SRO, измеренный вдоль норма-

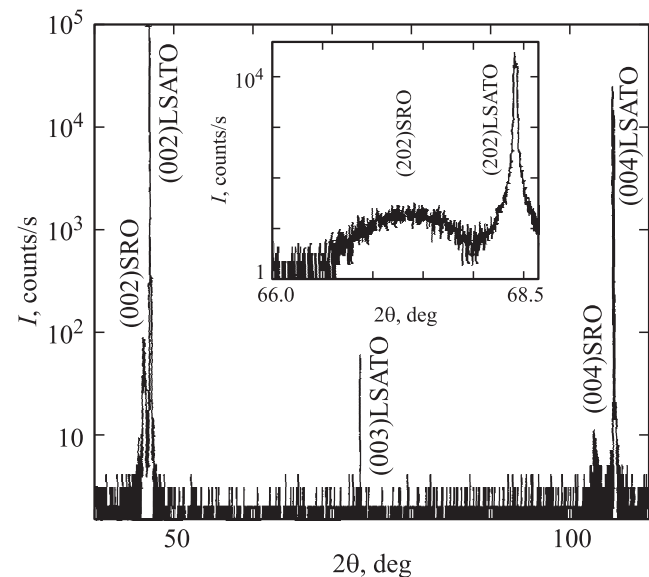


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма ($\text{CuK}\alpha_1$, $\omega/2\theta$) для пленки (50 nm)SRO/LSATO, визуализированная в условиях, когда плоскость, в которой находились падающий и отраженный рентгеновские пучки, ортогональна (001)LSATO. На вставке показан фрагмент дифрактограммы, полученный в условиях, когда плоскость, в которой находились падающий и отраженный рентгеновские пучки, ортогональна (101)LSATO.

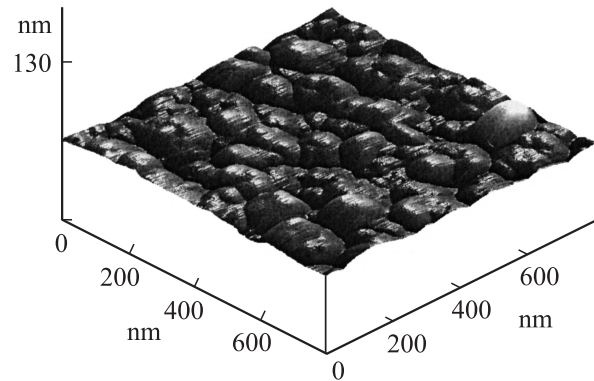


Рис. 2. Изображение свободной поверхности пленки (50 nm)SRO/LSATO, полученное с использованием AFM (режим высоты, угол обзора 45°). Наличие характерного рельефа на поверхности крупных зерен, вероятно, обусловлено тем обстоятельством, что они состоят из нескольких мелких, разделенных малоугловыми границами.

ли к плоскости подложки $a_{\perp} = 3.938 \pm 0.005 \text{ \AA}$, больше параметра ячейки той же пленки, измеренного в плоскости подложки $a_{\parallel} = 3.919 \pm 0.005 \text{ \AA}$. Эффективный объем элементарной ячейки $V_{\text{eff}} = a_{\perp} \times a_{\parallel}^2 \approx 60.48 \text{ \AA}^3$ пленок SRO незначительно отличается от соответствующего значения для массивных кристаллов рутената стронция ($\approx 60.61 \text{ \AA}^3$ [10]). Таким образом, пленки (50 nm)SRO, выращенные на LSATO, имеют состав, близкий к стехиометрическому, и находятся под действием слабых сжимающих в плоскости подложки напряжений. Полученные значения параметров a_{\perp} и a_{\parallel} для пленок SRO свидетельствуют о том, что механические напряжения в их объеме частично релаксировали в процессе формирования и последующего охлаждения в атмосфере кислорода.

Изображение свободной поверхности выращенного слоя рутената стронция показано на рис. 2. Пленка SRO/LSATO состоит из кристаллитов, латеральный размер которых находится в пределах 40–100 nm. Межкристалльные границы в выращенном слое декорированы характерными углублениями на его свободной поверхности. Эффективная разориентация кристаллитов в плоскости подложки составляет порядка 0.9° (оценка получена с использованием данных по полуширине пика на ϕ -скане, визуализированном для рефлекса (111)SRO, полуширина пика на ϕ -скане для соответствующего рефлекса от подложки LSATO равнялась 0.02°).

3.2. Температурные и полевые зависимости электро- и магнетосопротивления пленок. При комнатной температуре электросопротивление выращенных пленок SRO/LSATO находится в пределах 260–300 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$, что согласуется с соответствующими данными для гетероэпитаксиальных пленок и объемных кристаллов рутената стронция [14]. Зависимость $\rho(T, \mu_0 H = 0)$ пленки (50 nm)SRO/LSATO приведена на рис. 3. С уменьшением температуры в

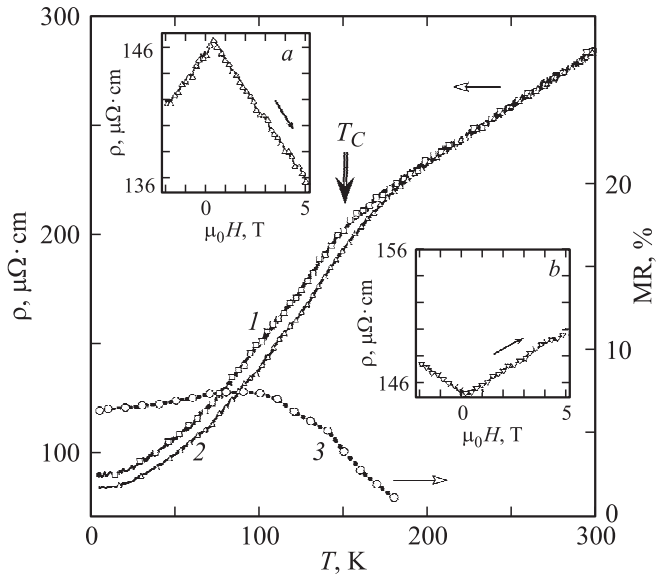


Рис. 3. Температурные зависимости электропроводности ρ (1, 2) и магнетосопротивления MR (3) для пленки SRO/LSATO. $\mu_0 H = 0$ (1) и 5 Т (2, 3) $H \parallel I_b$. На вставке *a* показано изменение ρ той же пленки при сканировании $\mu_0 H$ в последовательности $-2 \rightarrow 0 \rightarrow 5$ Т при $T = 95$ К и $H \parallel I_b$, на вставке *b* приведена аналогичная зависимость, полученная при $H \perp I_b$.

интервале 300–160 К ρ пленок убывает практически линейно. При температуре $T_C \approx 155$ К, близкой к T_{Curie} для монокристаллов SRO, наблюдается существенное изменение наклона кривой $\rho(T, \mu_0 H = 0)$, обусловленное ферромагнитным упорядочением спинов в $4d$ -электронных оболочках ионов Ru^{4+} [15]. Отношение $\rho(300 \text{ К})/\rho(4.2 \text{ К})$ для выращенных пленок рутената стронция равно 3.2, что примерно соответствует данным, полученным для гетероэпитаксиальных слоев SRO, сформированных на подложках с малым m [14]. Величина указанного отношения для монокристаллических слоев SRO, выращенных на вицинально полированных подложках SrTiO_3 , может достигать нескольких десятков [16].

При $T < T_C$ электросопротивление пленок SRO существенно понижалось в магнитном поле ($H \parallel I_b, \mu_0 H = 5$ Т) (рис. 3). При температурах ниже T_{Curie} магнитное поле демпфирует возмущения в спиновой системе ферромагнитной пленки, индуцированные наличием в ее объеме структурных дефектов, доменных стенок и т.д., что приводит к увеличению эффективной подвижности электронов. Магнитное поле способствует ферромагнитному упорядочению спинов в пленке рутената стронция и при температурах заметно выше T_C , что проявляется в уменьшении ее электросопротивления (см. тот же рисунок). Отрицательное магнетосопротивление $\text{MR} = [\rho(\mu_0 H = 5 \text{ Т}) - \rho(\mu_0 H = 0)]/\rho(\mu_0 H = 0)$ выращенных пленок возрастает с понижением температуры в интервале от $T_C + 30$ К

до 100 К. MR достигает максимума ($\sim 7.5\%$) при $T = 95\text{--}100$ К (рис. 3) и незначительно уменьшается при дальнейшем понижении T . Близкие значения магнетосопротивления были получены [15,16] для пленок SRO, выращенных на подложках SrTiO_3 методом магнетронного распыления и молекулярно-лучевой эпитаксии.

Изменение электросопротивления пленки SRO в процессе сканирования $\mu_0 H$ в последовательности $-2 \rightarrow 0 \rightarrow +5$ Т при $T = 95$ К и $H \parallel I_b$ показано на вставке *a* к рис. 3. Увеличение ρ при изменении $\mu_0 H$ от -2 до 0 Т обусловлено усилением рассеяния электронов на магнонах и доменных стенках вследствие переориентации вектора намагниченности M в ферромагнитных доменах вдоль оси легкого намагничивания. Согласно [17], ось легкого намагничивания в пленках SRO, выращенных на подложках с положительным m , отклонена от нормали к плоскости подложки на угол $\gamma \approx 30^\circ$ при низких температурах, а при T , близких к T_{Curie} , γ достигает 45° . Экстремум на кривой $\rho(\mu_0 H, T = 95 \text{ К})$ наблюдается при $\mu_0 H \approx 0.35$ Т, когда пространственная разориентация намагниченности в ферромагнитных доменах была максимальна. При увеличении $\mu_0 H$ от 0.35 до 5 Т в пленке увеличивается объемная доля доменов, в которых вектор намагниченности параллелен магнитному полю. При этом электросопротивление пленок уменьшается вследствие ослабления рассеяния электронов на доменных границах и спиновых волнах.

При $T < T_C$ и $\mu_0 H = 5$ Т электросопротивление пленок SRO, измеренное при направлении магнитного поля, перпендикулярном I_b , превышает величину ρ той же пленки при H , параллельном I_b (вставки *a* и *b* на рис. 3). Причиной наблюдавшейся зависимости ρ пленок от угла между направлением измерительного тока и направлением магнитного поля является значительное магнетосопротивление (AMR). Зависимость электросопротивления ферромагнетика от угла ϑ между вектором намагниченности M и направлением I_b следует соотношению $\rho \sim \Delta\rho \sin^2 \vartheta$ [18], где $\Delta\rho$ — разность значений электросопротивления, измеренных при направлении M , параллельном и перпендикулярном току. Учитывая, что поле анизотропии в эпитаксиальных пленках SRO, выращенных на подложках с положительным m , имеет величину порядка 2 Т [17] (при $T > 10$ К), можно полагать, что вектор намагниченности в исследованных пленках при $\mu_0 H = 5$ Т был направлен параллельно направлению поля во всем исследованном интервале температур. В [3,16] для оценки анизотропного магнетосопротивления было использовано соотношение

$$\text{AMR} = 3\Delta\rho/(\rho_{\parallel} + 2\rho_{\perp}), \quad (1)$$

где ρ_{\parallel} и ρ_{\perp} — значения электросопротивления ферромагнетика при M , параллельном и перпендикулярном направлению измерительного тока соответственно.

Используя соотношение (1) для AMR пленок SRO при 95 К и $\mu_0 H = 5$ Т, мы получили значение $\sim 8\%$, а

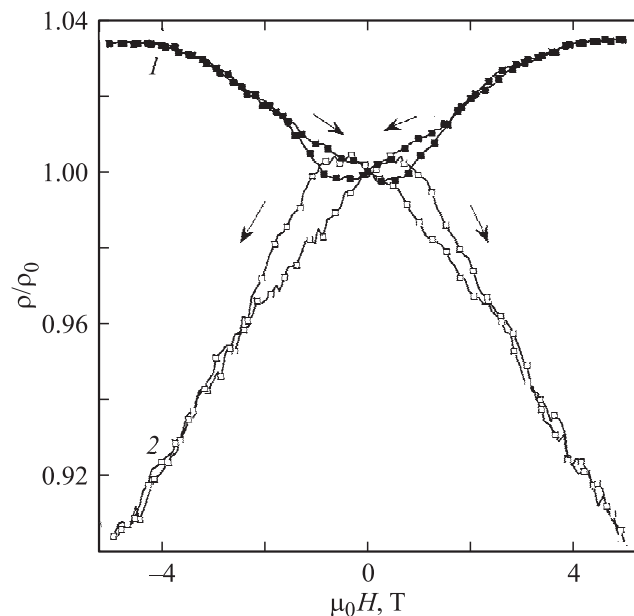


Рис. 4. Зависимости отношения ρ/ρ_0 для пленки SRO/LSATO от μ_0H при $T = 4.2$ К. 1 — $H \perp I_b$, 2 — $H \parallel I_b$. $\rho_0 \equiv \rho(\mu_0H = 0)$.

максимальные значения (до 12%) анизотропного магнетосопротивления имели место при температурах ниже 30 К. Четко выраженный гистерезис наблюдается на кривых $\rho(H, T = 4.2$ К), полученных при сканировании μ_0H в последовательности $5 \rightarrow 0 \rightarrow -5 \rightarrow 0 \rightarrow 5$ Т (рис. 4). Гистерезис прослеживался вплоть до значений $\mu_0H = \pm 2$ Т, что хорошо согласуется с величиной поля анизотропии. При $T = 4.2$ К максимум на зависимости магнетосопротивления от μ_0H сдвинут примерно на 0.5 Т относительно точки $\mu_0H = 0$, что примерно соответствует оценке эффективной величины коэрцитивного поля в эпитаксиальных пленках SRO, выращенных на подложках SrTiO₃, методом магнетронного распыления [15]. Неоднородность релаксации напряжений в выращенных пленках рутената стронция обуславливает появление различий в величине коэрцитивного поля для доменов, сформировавшихся в различных кристаллических зернах. Это является одной из причин того, что гистерезис на кривых $\rho(\mu_0H, T = 4.2$ К)/ ρ_0 четко проявляется в широком интервале изменения μ_0H (рис. 4).

4. Заключение

Сжимающие в плоскости подложки двухосные напряжения в пленках SRO, выращенных на подложках со значительным рассогласованием в параметрах кристаллических решеток, частично релаксировали. При температурах ниже температуры ферромагнитного упорядочения спинов электросопротивление рутената стронция существенно зависело от угла между направлением магнитного поля и направлением измерительного тока в пленочном образце.

Список литературы

- [1] P.A. Cox, R.G. Egdell, J.B. Goodenough, A. Hamnett, C.C. Naish. *J. Phys. C: Solid State Phys.* **16**, 6221 (1983).
- [2] I. Mazin, D.J. Singh. *Phys. Rev. B* **56**, 2556 (1997).
- [3] G. Herranz, B. Martinez, J. Fontcuberta, F. Sanchez, C. Ferrater, M.V. Garcia-Cuenca, M. Varela. *Phys. Rev. B* **67**, 174423 (2003).
- [4] C.B. Eom, R.J. Cava, R.M. Fleming, Julia M. Phillips, R.B. van Dover, J.H. Marshall, J.W.P. Hsu, J.J. Krajewski, W.F. Peck, jr. *Science* **258**, 5089, 1766 (1992).
- [5] Yu. A. Boikov, T. Claeson. *Physica B* **311**, 250 (2002).
- [6] L. Antognazza, K. Char, T.H. Geballe, L.L.H. King, A.W. Sleight. *Appl. Phys. Lett.* **63**, 7, 1005 (1993).
- [7] K.S. Takahashi, A. Sawa, Y. Ishii, H. Akoh, M. Kawasaki, Y. Tokura. *Phys. Rev. B* **67**, 094413 (2003).
- [8] J. Manhart, D.G. Schlom. *Science* **327**, 1607 (2010).
- [9] T.I. Kamins. *J. Appl. Phys.* **42**, 4357 (1971).
- [10] J.C. Jiang, W. Tian, X. Pan, Q. Gan, C.B. Eom. *Mater. Sci. Eng. B* **56**, 152 (1998).
- [11] M. Ziese, H.C. Semmelhack, K.H. Han, S.P. Sena, H.J. Blythe. *J. Appl. Phys.* **91**, 9930 (2002).
- [12] J.M. Phillips. *J. Appl. Phys.* **79**, 1829 (1996).
- [13] J.-P. Maria, H.L. McKinstry, S. Trolier-McKinstry. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3382 (2000).
- [14] M.R. Choi, W. Jo, Y.S. Oh, K.H. Kim, Y.-M. Kang, S.I. Yoo, S.H. Moon, H.S. Ha, S.S. Oh. *Physica C* **463–465**, 584 (2007).
- [15] O. Moraña, W. Saldarriagab, E. Baca. *Physica B* **390**, 281 (2007).
- [16] L. Klein, A.F. Marshall, J.W. Reiner, C.H. Ahn, T.H. Geballe, M.R. Beasley, A. Kapitulnik. *J. Magn. Magn. Mater.* **188**, 319 (1998).
- [17] L. Klein, J.S. Dodge, C.H. Ahn, J.W. Reiner, L. Mieville, T.H. Geballe, M.R. Beasley, A. Kapitulnik. *J. Phys.: Cond. Matter* **8**, 10111 (1996).
- [18] E.D. Dahlberg, K. Riggs. *J. Appl. Phys.* **63**, 4270 (1988).