

Отклик электросопротивления пленок (20 nm)La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃/(001)LaAlO₃ на магнитное поле и изменение температуры

© Ю.А. Бойков, В.А. Данилов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, Санкт-Петербург, Россия

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

(Поступила в Редакцию 21 апреля 2008 г.)

Исследованы структура, электро- и магнитотранспортные параметры эпитаксиальных пленок La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃ толщиной 20 nm, выращенных методом лазерного испарения на подложках (001)LaAlO₃. Объем элементарной ячейки $V_{\text{eff}} = 58.80 \text{ \AA}^3$ выращенных манганитных пленок был меньше соответствующего объема для массивных кристаллов La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃. Максимальные значения отрицательного магнетосопротивления $MR(\mu_0 H = 1 \text{ T}) = -0.27$ пленок La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃ наблюдались при температуре порядка 225 К. При $5 < T < 100 \text{ K}$ магнетосопротивление пленок слабо зависело от температуры и составляло порядка -0.1 . При температурах ниже 100 К и $3 < \mu_0 H < 5 \text{ T}$ электросопротивление выращенных пленок линейно убывало с ростом напряженности магнитного поля.

Финансовая поддержка для проведения настоящих исследований была частично получена из проекта NMP3-СТ-2006-033191 Европейской программы FP6, Государственного контракта ФАНИ № 02.513.11.3332 и проекта МНТЦ № 3743.

PACS: 73.43.Qt, 73.50.-h

1. Введение

Перовскитоподобные манганиты La_{1-x}(Ba, Ca, Sr)_xMnO₃ перспективны для использования в чувствительных элементах магниторезистивных сенсоров и детекторов ИК-излучения [1,2]. Для применения в реальных устройствах измерительной техники нужны тонкие слои манганитов, резкая зависимость сопротивления которых от напряженности магнитного поля и изменения температуры имеет место при значениях, близких к 300 К. До настоящего времени четко не установлено, в какой степени наблюдаемый при температурах ниже T_C (T_C — температура Кюри) резкий отклик электросопротивления манганитов на магнитное поле и изменение температуры обусловлен: а) расслоением фаз, б) наличием в их объеме ферромагнитных доменов с различной пространственной ориентацией вектора намагниченности, с) изменением интенсивности рассеяния носителей заряда на магнонах внутри ферромагнитных доменов и т.д.

Твердый раствор La_{0.67}Ba_{0.33}MnO₃ (LBMO), T_C для которого равна 340 К [3], является одним из потенциальных кандидатов для использования в чувствительных элементах манганитных болометров. В настоящей работе исследованы структура и электросопротивление ρ наноразмерных, механически напряженных подложкой пленок LBMO. На основе полученных экспериментальных данных по температурным и полевым зависимостям ρ сделаны оценки вклада различных физических механизмов в электро- и магнетосопротивление тонких слоев LBMO.

2. Эксперимент

Пленки LBMO толщиной $d = 20 \text{ nm}$ были выращены методом лазерного испарения (KrF, $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$) на подложках (001)LaAlO₃ (LAO). Плотность лазерного излучения на поверхности испаряемой керамической мишени LBMO равнялась 1.7 J/cm^2 . Температура подложки при формировании слоя LBMO поддерживалась на уровне $790 \pm 5^\circ \text{C}$, а давление кислорода в ростовой камере составляло 0.3 mbar .

Структура выращенных пленок LBMO исследовалась с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканы, кривые качания, карты обратного пространства).

Сопротивление R манганитных слоев измерялось в конфигурации van der Pauw, в магнитном поле H и без него ($\mu_0 H$ до 5 Т, направление магнитного поля параллельно плоскости подложки, но перпендикулярно направлению измерительного тока I). Электросопротивление ρ пленок LBMO/(001)LAO рассчитывалось по формуле $\rho = \pi R d / \ln 2$ [4]. Четыре серебряных контакта, расположенные на углах квадрата, формировались на свободной поверхности манганитных пленок методом термического испарения.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Рассогласование m в параметрах кристаллических решеток LBMO (параметр псевдокубической элементарной ячейки $a_1 = 3.910 \text{ \AA}$ [3]) и LAO (параметр псевдокубической элементарной ячейки $a_2 = 3.790 \text{ \AA}$ [5]) состав-

ляет порядка 3.2% [$m = (a_f - a_s)/a_s$, где a_f и a_s — параметры сопрягающихся кристаллических решеток пленки и подложки соответственно]. Вследствие значительной положительной величины m слой LBMO, сформированный на подложке (001)LAO, находился под действием двухосных, сжимающих в плоскости подложки, механических напряжений. Температурные коэффициенты линейного расширения для кристаллов LBMO и LAO имеют близкие значения [6,7].

3.1. Структура выращенных пленок LBMO. На дифрактограмме, полученной для пленки LBMO/(001)LAO в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (001)LAO, присутствовали только пики (00*n*) от манганитного слоя и алюмината лантана (рис. 1). Это свидетельствует о том, что направление [001]LBMO в выращенных слоях было параллельно [001]LAO и что макровключения вторичных кристаллических фаз в их объеме отсутствовали. Для определения азимутальной ориентации манганитной пленки и оценки параметра ее элементарной ячейки в плоскости подложки использовался скан, визуализированный в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (101)LAO. Фрагмент такого скана приведен на вставке к рис. 1. (Здесь и далее использованы индексы Мюллера для псевдокубической элементарной ячейки.)

На рис. 2 показаны двумерные изображения рентгеновских рефлексов (103) от манганитной пленки и

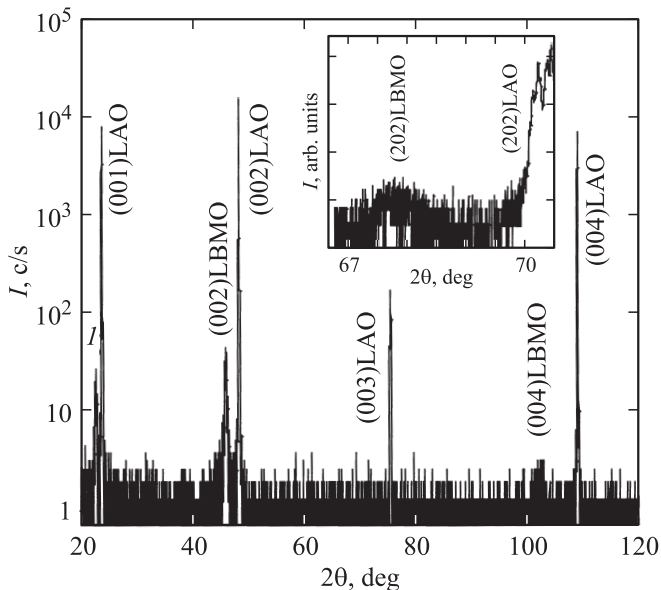


Рис. 1. Дифрактограмма ($\omega/2\theta$, $\text{CuK}\alpha_1$) для пленки (20 nm)LBMO/(001)LAO, полученная в условиях, при которых падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (001)LAO. I — (001)LBMO-пик. На вставке показан фрагмент дифрактограммы для той же манганитной пленки, визуализированный в условиях, при которых падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (101)LAO.

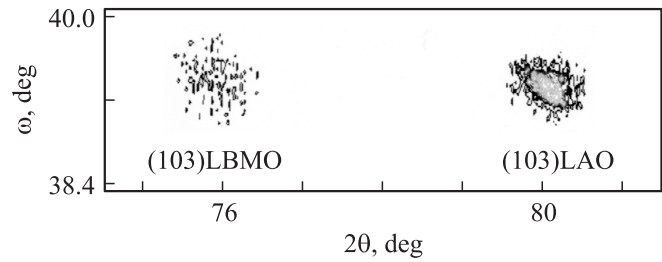


Рис. 2. Двумерные отображения рентгеновских рефлексов (103) от подложки LAO и от выращенной на ее поверхности манганитной пленки (20 nm)LBMO. Рефлекс от манганитной пленки „широкий“ и сдвинут относительно рефлекса от подложки вдоль оси ординат.

подложки. Из приведенных на рис. 1 и 2 данных следует, что манганитный слой был выращен на поверхности (001)LAO эпитаксиально, а механические напряжения в его объеме, индуцированные существенной величиной m , частично релаксированы.

Параметр элементарной ячейки пленки LBMO/(001)LAO, измеренный вдоль нормали к плоскости подложки ($a_{\perp} = 3.965 \pm 0.005 \text{ \AA}$), был существенно больше параметра той же ячейки в плоскости подложки ($a_{\parallel} = 3.851 \pm 0.005 \text{ \AA}$). Искажение (квазитетрагональное) элементарной ячейки манганитной пленки обусловлено жесткой связью последней с подложкой. Эффективный объем элементарной ячейки $V_{\text{eff}} = a_{\parallel}^2 \times a_{\perp} \approx 58.80 \text{ \AA}^3$ выращенных пленок LBMO/(001)LAO был заметно меньше объема ячейки ($\approx 59.77 \text{ \AA}^3$ [3]) монокристаллов LBMO. Физические механизмы, ответственные за изменение V_{eff} манганитных пленок, двухосно механически напряженных подложкой в процессе своего формирования, рассмотрены в [8].

Полуширина кривой качания η для рентгеновского пика (002) от пленки (20 nm)LBMO/(001)LAO равнялась 0.25° и примерно вдвое превышала величину η для соответствующего рентгеновского пика от пленки (20 nm)LBMO, выращенной на подложке с малой величиной m [9]. Уширение кривой качания для пленки (20 nm)LBMO/(001)LAO частично обусловлено неоднородной релаксацией механических напряжений в ее объеме.

3.2. Реакция электросопротивления пленок LBMO на изменение температуры. Температурные зависимости электросопротивления пленки LBMO/(001)LAO, измеренные в магнитном поле различной напряженности, показаны на рис. 3. Максимум на кривой $\rho(T, \mu_0 H = 0)$ для выращенных манганитных слоев наблюдался при температуре $T_M = 265 \text{ K}$, которая примерно на 75 K меньше соответствующей температуры для объемных стехиометрических образцов LBMO [10]. Резкое падение электросопротивления манганитных пленок с понижением температуры (при $T < T_M$) обусловлено разрастанием ферромагнитных доменов, что приводит к формированию в их объеме

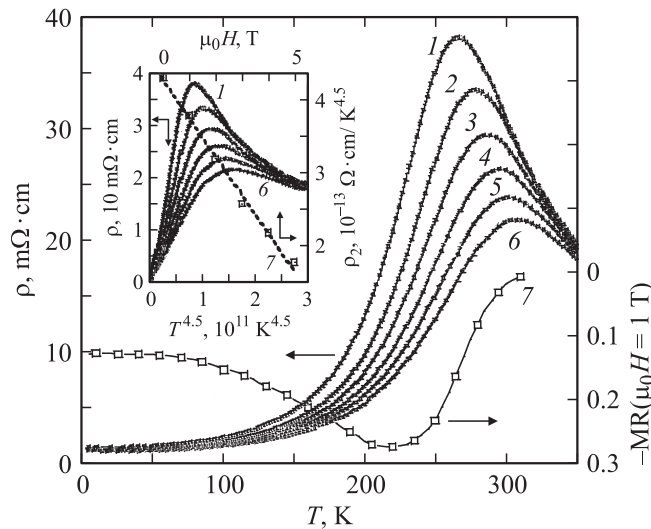


Рис. 3. Температурные зависимости электросопротивления ρ (1–6), измеренные в магнитном поле различной напряженности при понижении температуры, и магнитосопротивления $MR(\mu_0 H = 1 \text{ T})$ (7) для пленки (20 nm) LBMO/(001) LAO. $\mu_0 H$ возрастало от 0 до 5 Т с шагом 1 Т при изменении номера кривой от 1 до 6. На вставке показаны кривые $\rho(T^{4.5})$ (1–6) и зависимость $\rho_2(H)$ (7) для той же пленки. Кривые 1–6 на вставке соответствуют кривым 1–6 на основной части рисунка.

высокопроводящих каналов протекания электрического тока. Понижение T_M пленок LBMO/(001) LAO по сравнению с соответствующей температурой массивного стехиометрического кристалла LBMO связано с их обеднением щелочно-земельным компонентом и/или с обогащением кислородом [8] (на это указывает уменьшенная величина V_{eff} для пленок) вследствие двухосных сжимающих механических напряжений, действовавших в процессе их зародышеобразования и последующего роста. Указанное нарушение стехиометрии обусловило увеличение относительной концентрации трехвалентных ионов марганца в манганитной пленке по сравнению с концентрацией Mn^{3+} в исходной мишени LBMO (~ 33%, в соответствии с химической формулой), что привело к снижению эффективной концентрации подвижных носителей заряда (дырок). Магнитное поле способствовало ферромагнитному упорядочению спинов на ионах марганца, что проявилось в сдвиге максимума на зависимостях $\rho(T, H)$ в сторону высоких температур с увеличением $\mu_0 H$ (рис. 3).

При $T < T_M/4$, когда ферромагнитная фаза составляла основной объем выращенных манганитных пленок, зависимость их электросопротивления от температуры хорошо аппроксимировалась соотношением [11]

$$\rho = \rho_1 + \rho_2 T^{4.5}, \quad (1)$$

где $\rho_1 \approx 1.4 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$, а коэффициент ρ_2 не зависел от температуры, но уменьшался с увеличением напряженности магнитного поля. Согласно [11], электропроводность манганитов должна следовать соотношению (1),

когда основным механизмом рассеяния носителей заряда является взаимодействие последних со спиновыми волнами. Зависимости $\rho(T^{4.5})$, полученные для пленки LBMO/(001) LAO при различных значениях $\mu_0 H$, показаны на вставке к рис. 3. Значения коэффициента ρ_2 , определенные для пленок LBMO/(001) LAO из величины тангенса угла наклона касательной к указанным зависимостям при $T < 65 \text{ K}$, приведены на той же вставке. Коэффициент ρ_2 примерно линейно убывал с ростом $\mu_0 H$, а по абсолютной величине в 5–10 раз превышал значения соответствующего коэффициента для пленок (20 nm) LBMO, выращенных когерентно на подложках с относительно малыми значениями m [9].

3.3. Отклик электросопротивления выращенных слоев на магнитное поле. Реакция ρ манганитных пленок на магнитное поле зависит: а) от относительной концентрации включений ферромагнитной и неферромагнитной фаз в их объеме и от интенсивности взаимных превращений указанных фаз при изменении H и температуры, б) от наличия в объеме пленки областей с неколлинарным магнитным упорядочением, в) от скорости затухания спиновых волн в ферромагнитных доменах с ростом H и т.д. . .

Зависимость электросопротивления пленки (20 nm) LBMO/(001) LAO от $\mu_0 H$ при температуре 95 К показана на рис. 4. Электросопротивление манганитной пленки практически линейно возрастало с уменьшением $\mu_0 H$ от 5 до 3 Т, причем параметр $\gamma = \rho_0 \times d\rho/dH$ [где $\rho_0 = \rho(\mu_0 H = 0)$] имел значение -0.037 T^{-1} [величина $d\rho/dH$ оценена по наклону касательной к кривой $\rho(\mu_0 H, T = 95 \text{ K})$ при $\mu_0 H > 3 \text{ T}$, $\rho_0(T = 95 \text{ K}) \approx 2.08 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$].

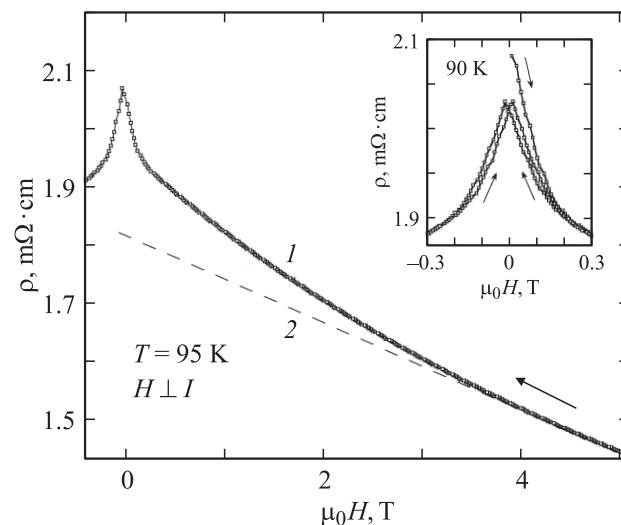


Рис. 4. Зависимость электросопротивления ρ пленки (20 nm) LBMO/(001) LAO от $\mu_0 H$ при температуре 95 К (1). 2 — касательная к кривой $\rho(\mu_0 H, T = 95 \text{ K})$ при $\mu_0 H > 3 \text{ T}$. На вставке показана зависимость $\rho(\mu_0 H, T = 90 \text{ K})$ для той же пленки, полученная при изменении $\mu_0 H$ в последовательности $0 \rightarrow 0.3 \text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow -0.3 \text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow 0.3 \text{ T}$.

Линейная зависимость электросопротивления от напряженности магнитного поля наблюдалась и для тонких слоев 3*d*-переходных ферромагнитных металлов (Fe, Co, Ni [12]) и была объяснена ослаблением рассеяния электронов на магнонах при увеличении *H*. Магнитное поле способствует затуханию спиновых волн в ферромагнитных доменах.

Значение параметра γ , полученное для пленки (20 nm)LBMO/(001)LAO из зависимости $\rho(\mu_0 H, T=95\text{ K})$, хорошо согласуется с оценкой его величины, полученной с использованием данных по температурным зависимостям ρ , измеренным в условиях, когда доминирующим механизмом рассеяния носителей заряда является их взаимодействие со спиновыми волнами. Из соотношения (1) следует, что

$$d\rho/dH = T^{4.5} \cdot d\rho_2/dH. \quad (2)$$

Из данных, представленных на вставке к рис. 3 (кривая 7), следует, что производная $d\rho_2/dH$ примерно равна $0.6 \cdot 10^{-13} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{T}^{-1} \cdot \text{K}^{-4.5}$. Используя соотношение (2), для $d\rho/dH$ при $T = 95\text{ K}$ получаем величину $0.047 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{T}^{-1}$, а для параметра γ — значение -0.023 T^{-1} , которое хорошо согласуется с оценкой величины данного параметра, полученной из полевой зависимости электросопротивления пленки (20 nm)LBMO/(001)LAO.

Рост электросопротивления пленки (20 nm)LBMO/(001)LAO при уменьшении $\mu_0 H$ от 3 до 0.25 Т обусловлен как усилением рассеяния дырок на магнонах, так и увеличением концентрации включений плохо проводящей неферромагнитной (антиферромагнитной) фазы в их объеме, которые при более высоких значениях $\mu_0 H$ находились в ферромагнитном состоянии. Присутствие включений неферромагнитной фазы в пленках (20 nm)LBMO/(001)LAO, охлажденных до 90 К при $\mu_0 H = 0$, является одной из причин того, что значения их электросопротивления $\rho(\mu_0 H = 0)$, измеренные до и после воздействия магнитного поля, существенно различаются (см. вставку на рис. 4).

Резкий скачок электросопротивления манганитных пленок, наблюдавшийся при уменьшении $\mu_0 H$ в интервале 0.2–0 Т, обусловлен разворотом вектора намагниченности *M* в ферромагнитных доменах (при $\mu_0 H > 0.3$ направление *M* было параллельно *H*) в сторону оси легкого намагничивания. Ось легкого намагничивания в манганитных пленках, двухосно механически сжатых в плоскости подложки, параллельна нормали к плоскости последней [13]. Неоднородная релаксация механических напряжений обусловила варьирование величины коэрцитивного поля H_c (характеризующего разворот *M* на 90° относительно [001]LAO) в объеме пленок (20 nm)LBMO/(001)LAO. Из-за разброса в величине H_c для различных ферромагнитных доменов петли гистерезиса, наблюдавшиеся на зависимостях $\rho(H)$, приведенных на вставке к рис. 4, были узкими.

Температурная зависимость магнетосопротивления $\text{MR} = [\rho(\mu_0 H = 1\text{ T}) - \rho(\mu_0 H = 0)] / \rho(\mu_0 H = 0)$ пленки (20 nm)LBMO/(001)LAO приведена на рис. 3. Пик отрицательного магнетосопротивления выращенных манганитных пленок наблюдался при температуре T_{MR} на 30–35 К ниже T_M , а $\text{MR}(T_{\text{MR}})$ равнялась -0.27 ± 0.02 . При $T = T_{\text{MR}}$ зависимость $\text{MR}(T)$ манганитных пленок в основном определялась динамикой взаимных превращений включений ферро- и неферромагнитных фаз. При $T < 100\text{ K}$ магнетосопротивление пленок LBMO/(001)LAO слабо зависело от температуры и имело значения порядка -0.1 (рис. 3), т.е. в несколько раз превышало величину MR для объемных кристаллов LBMO и эпитаксиальных пленок, сформированных на подложках с малой величиной *m*. Дефекты структуры и рост температуры усиливают возбуждение спиновой подсистемы в манганитных пленках. Это является одной из причин существенного различия в величине MR (при $T \ll T_c$) пленок LBMO, исследованных в настоящей работе, и таких же пленок, выращенных когерентно на подложках с малой величиной *m*.

4. Заключение

Таким образом, в настоящей работе показано, что сжимающие в плоскости подложки механические напряжения обусловили существенное искажение ($a_{\perp}/a_{\parallel} \approx 1.03$) элементарной ячейки пленок (20 nm)LBMO, выращенных эпитаксиально на (001)LAO. Максимум на зависимости электросопротивления пленок (20 nm)LBMO/(001)LAO был сдвинут (примерно на 75 К) в сторону низких температур относительно его положения на кривой $\rho(T)$ для массивных монокристаллов LBMO. При $T < 65\text{ K}$ температурная зависимость электросопротивления выращенных манганитных слоев хорошо аппроксимировалась соотношением $\rho = \rho_1 + \rho_2 \times T^{4.5}$, причем коэффициент ρ_2 линейно уменьшался с увеличением $\mu_0 H$ от нуля до 5 Т. При температурах ниже 100 К и значениях $\mu_0 H > 3\text{ T}$ реакция электросопротивления пленок на магнитное поле в значительной степени определялась рассеянием дырок на магнонах.

Список литературы

- [1] M. Pannetier, C. Fermon, G. Le Goff, J. Simola, E. Kerr. Science **304**, 5677, 1648 (2004).
- [2] A. Goyal, M. Rajeswari, R. Shreekala, S.E. Lofland, S.M. Bhagat, T. Boettcher, C. Kwon, R. Ramesh, T. Venkatesan. Appl. Phys. Lett. **71**, 17, 2535 (1997).
- [3] H.L. Ju, J. Gopalakrishnan, J.L. Peng, Qi Li, G.C. Xiong, T. Venkatesan, R.L. Greene. Phys. Rev. B **51**, 9, 6143 (1995).
- [4] T.I. Kamins. J. Appl. Phys. **42**, 9, 4357 (1971).
- [5] M. Bibes, S. Valencia, L. Balcells, B. Martinez, J. Fontcuberta, M. Wojcik, S. Nadolski, E. Jedryka. Phys. Rev. B **66**, 13, 134 416 (2002).

- [6] P. Dai, J. Zhang, H.A. Mook, S.-H. Liou, P.A. Dowben, E.W. Plummer. *Phys. Rev. B* **54**, 6, R3694 (1996).
- [7] C. Zuccaro, M. Winter, N. Klein, K. Urban. *J. Appl. Phys.* **82**, 11, 5695 (1997).
- [8] Yu.A. Boikov, R. Gunnarsson, T. Claeson. *J. Appl. Phys.* **96**, 1, 435 (2004).
- [9] Ю.А. Бойков, В.А. Данилов. *ФТТ* **49**, 8, 1451 (2007).
- [10] J. Zhang, H. Tanaka, T. Kanki, J.-H. Choi, T. Kawai. *Phys. Rev. B* **64**, 18, 184404 (2001).
- [11] K. Kubo, N. Ohata. *J. Phys. Soc. Jpn.* **33**, 1, 21 (1972).
- [12] B. Raquet, M. Viret, J.M. Broto, E. Sondergard, O. Cespedes, R. Many. *J. Appl. Phys.* **91**, 10, 8129 (2002).
- [13] H.S. Wang, E. Wertz, Y.F. Hu, Qi Li. *J. Appl. Phys.* **87**, 9, 6749 (2000).