

# Влияние кристаллической структуры подложки на магнитные, электрические и кристаллографические свойства эпитаксиальных пленок $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$

© А.И. Абрамович, О.Ю. Горбенко, А.Р. Кауль, Л.И. Королева, А.В. Мичурин, Р. Шимчак\*, С. Деев\*

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119899 Москва, Россия

\* Институт физики Польской академии наук,  
02-668 Варшава, Польша

E-mail: koroleva@ofef343.phys.msu.su

(Поступила в Редакцию 11 февраля 2000 г.  
В окончательной редакции 29 февраля 2000 г.)

Изучено электросопротивление  $\rho$ , магнитосопротивление  $\Delta\rho/\rho$  и намагниченность эпитаксиальных пленок  $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  на подложках из  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$ ,  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{LaAlO}_3$  и  $\text{MgO}$ . В первой пленке реализуются четыре эквивалентных варианта кристаллографической ориентации в плоскости образца, тогда как у трех других — одна ориентация. У первой пленки по сравнению с тремя другими максимумы  $\rho$  и  $\Delta\rho/\rho$  в районе точки Кюри  $T_C$  сильно расширены, при этом сама величина  $\rho$  на 1.5 порядка выше, а большое отрицательное магнитосопротивление ( $|\Delta\rho/\rho| \sim 10\%$  в поле 8.4 кОе) наблюдается при температурах  $80 \leq T \leq 200$  К. У всех пленок при 5 К магнитный момент на молекулу на  $\sim 46\%$  меньше чисто спинового значения, что вызвано существованием магнито-разупорядоченных областей. Повышенная величина  $\rho$  у пленки на  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  обусловлена электросопротивлением границ между областями с различной кристаллографической ориентацией, а магнитосопротивление связано с тунелированием поляризованных носителей заряда через те границы, которые совпадают с доменными стенками. Низкотемпературное магнитосопротивление в полях выше технического насыщения вызвано сильным  $p-d$  обменом внутри спин-упорядоченных областей.

Работа выполнена при поддержке ИНТАС (проекты N 97-ореп-30253 и 97-0963).

Хотя манганиты со структурой перовскита известны давно [1,2], интерес к ним резко возрос начиная с 1995 г. Это связано с обнаружением в тонких пленках некоторых составов колоссального магнитосопротивления (МС) при комнатных температурах, что крайне важно для практических применений. Колоссальное МС в этих соединениях наблюдается в районе точки Кюри  $T_C$  и заключается в большинстве случаев в подавлении пика сопротивления в районе  $T_C$ . Оно наблюдается в узком температурном интервале. Для практических применений важно расширить диапазон температур, в котором имело бы место колоссальное МС.

Самой высокой точкой Кюри, равной 370 К, обладал состав  $\text{La}_{0.3}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  [1], но он имеет металлический тип проводимости и его МС много меньше, чем у полупроводниковых составов манганитов. Представляет интерес изучить вопрос, как влияет на температуру Кюри и величину МС частичное замещение La на другие редкоземельные ионы в указанном составе.

В данной работе поставлена задача изучить влияние частичного замещения La на Nd на электрические и магнитные свойства указанного выше состава и попытаться расширить диапазон температур с колоссальным МС с помощью соответствующего выбора подложки. Ранее было обнаружено, что пленки  $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.15}\text{MnO}_3$  на подложке из монокристаллической пластины (001)  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  обладают колоссальным МС в более широком температурном интервале, чем пленки на монокристаллической пластине (001)  $\text{LaAlO}_3$  [2,3].

## 1. Получение тонких пленок и техника эксперимента

Для получения пленок был применен метод MOCVD (metal organic chemical deposition) с аэрозольным источником паров металлоорганических соединений (дипивалоилметанатов La, Nd, Sr и Mn [4]).

В качестве подложек использовались пластины толщиной 1 мм, вырезанные из кристаллов  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$ ,  $\text{LaAlO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$  и  $\text{MgO}$  таким образом, что их поверхностью являлась плоскость (001) кристалла.

Осаждение пленок проводилось в вертикальном реакторе с индуктивным нагревом подложки. После осаждения пленки подвергались дополнительному отжигу в кислороде при температуре нанесения ( $750^\circ\text{C}$ ) в течение 0.5 ч.

Рентгенографическое исследование пленок, включая определение фазового состава, ориентации и параметров решетки, было выполнено с помощью четырехкružного дифрактометра Siemens D5000 с вторичным графитовым монохроматором (излучение  $\text{CuK}_\alpha$ ). Состав пленок определялся методом рентгеноспектрального микроанализа (с использованием сканирующего электронного микроскопа CASCAN, оборудованного системой EDAX).

Намагниченность тонких пленок определялась с помощью СКВИД-магнитометра, а электросопротивление — четырехзондовым методом. МС было измерено в плоскости пленки, при этом ток через пленку был параллелен магнитному полю  $\mathbf{H}$ .

Магнитные, электрические и кристаллографические характеристики пленок  $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 

Подложка	MgO	LaAlO <sub>3</sub>	SrTiO <sub>3</sub>	ZrO <sub>2</sub> (Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )
$T_C, \text{K} (H = 10 \text{ Oe})$	242	231	219	
$T_C, \text{K} (H = 100 \text{ Oe})$		241	223	245
Магнитный момент на химическую формулу, $\mu_B$	1.7	1.6	2	1.9
Температура максимума $\rho, T_m, \text{K}$	252	252	252	225
Температура максимума $ \Delta\rho/\rho , T_{\text{max}}, \text{K} (H=8.4 \text{ kOe})$	228	223	213	225
Максимальная величина $\rho, \rho_{\text{max}}, \text{Ohm}\cdot\text{cm}$	0.085	0.13	0.084	0.63
Величина $\rho$ при 82 K, $\rho_{82\text{K}}, \text{Ohm}\cdot\text{cm}$	0.0089	0.0059	0.0040	0.19
Максимальная величина $ \Delta\rho/\rho ,  \Delta\rho/\rho _{\text{max}}$ в поле $H = 8.4 \text{ kOe}$	0.34	0.23	0.22	0.13
Величина $ \Delta\rho/\rho $ при 82 K в поле $H = 8.4 \text{ kOe},  \Delta\rho/\rho _{82\text{K}}$	0.04	0.03	0.03	0.11
Толщина пленки, $\text{Å}$	4100	5500	5500	5500
Межплоскостной параметр, $\text{Å}$	$3.882 \pm 0.001$	$3.880 \pm 0.002$	$3.872 \pm 0.001$	$3.874 \pm 0.001$
Внутриплоскостной параметр, $\text{Å}$	$3.876 \pm 0.002$	$3.875 \pm 0.002$	$3.878 \pm 0.001$	$3.881 \pm 0.002$
Объем перовскитной ячейки, $\text{Å}^3$	$58.32 \pm 0.08$	$58.26 \pm 0.09$	$58.23 \pm 0.05$	$58.25 \pm 0.06$

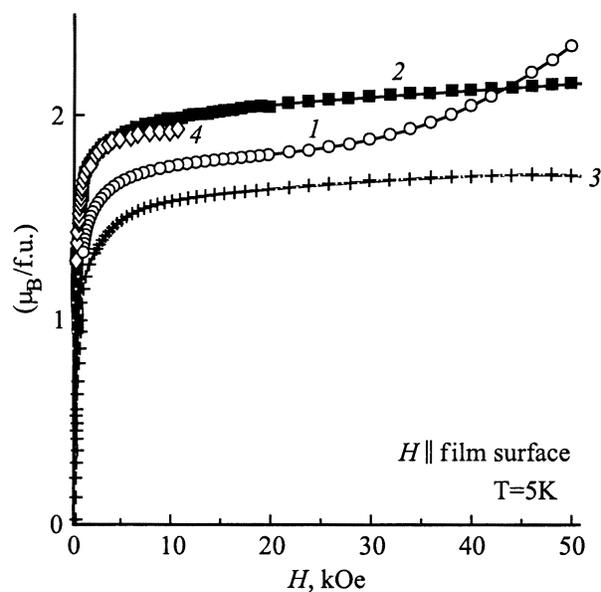
## 2. Результаты эксперимента и их обсуждение

**2.1. Кристаллографические свойства.** Исследование методом  $\theta-2\theta$  сканирования показало, что пленки на  $\text{LaAlO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$  и  $\text{MgO}$  имеют ориентацию (001), а пленка на  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  — (110). Плоскостная ориентация произведена с помощью  $\varphi$ -сканирования. У пленок на  $\text{LaAlO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$  и  $\text{MgO}$  выявлено эпитаксиальное упорядочение с подложкой, известное как мода роста "куб на кубе". Пленка на  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  также обладает плоскостной ориентацией, но более сложной. В ней объемные диагонали перовскитных кубов параллельны диагоналям граней флюоритного куба структуры  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$ , при этом имеются четыре эквивалентных варианта ориентаций: 1)  $[1-11]_f \parallel [110]_s, [-112]_f \parallel [-110]_s$ , 2)  $[1-11]_f \parallel [110]_s, [-112]_f \parallel [-1-10]_s$ , 3)  $[1-11]_f \parallel [-110]_s, [-112]_f \parallel [110]_s$ , 4)  $[1-11]_f \parallel [-110]_s, [-112]_f \parallel [-1-10]_s$ , где индексы  $f$  и  $s$  обозначают пленку и подложку соответственно. Это приводит к тому, что в цепочках Mn–O–Mn–O при переходе от одного к другому из перечисленных выше участков с различной ориентацией возникают углы, равные 19.5, 70.5 и 90°. Подобная ориентация наблюдалась ранее в пленках  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  на подложке из  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  [3].

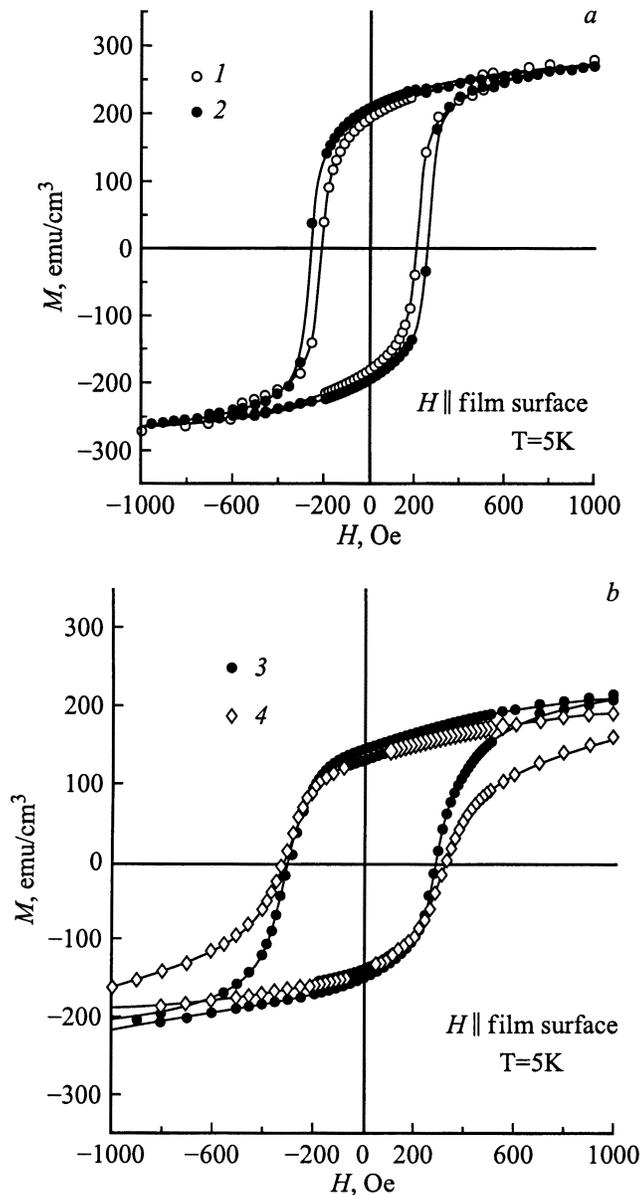
Как видно из таблицы, где представлены параметры решетки пленок, их кристаллическая структура близка к псевдокубической: межплоскостной параметр близок к внутриплоскостному параметру. Указанные параметры не различаются для пленок на разных подложках. Отражений отличных от характерных для простой структуры перовскита, не наблюдалось. Это связано с тем, что исследуемый состав  $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  со средним ионным радиусом А-катиона 1.225 Å (толеранс-фактор равен 0.922) расположен почти на морфотропной границе между орторомбической  $Pnma$  и ромбоэдрической  $R3c$  структурами. По-видимому, поэтому искажения структуры перовскита настолько малы, что ниже точности эксперимента. Очевидно, по этой причине напряжения

решетки, типичные для пленок манганитов, почти релаксируют в рассматриваемых пленках.

**2.2. Магнитные свойства.** Намагниченность  $M$  пленок была измерена в магнитном поле, приложенном параллельно плоскости пленки, при этом вводились поправки на намагниченность подложки. На рис. 1 приводится зависимость  $M(H)$  всех исследованных пленок при температуре  $T = 5 \text{ K}$ . Из рисунка видно, что намагниченность всех пленок, за исключением пленки на  $\text{MgO}$ , быстро насыщается в поле нескольких килоэрстед. У пленки на  $\text{MgO}$  после насыщения на участке 7–25 kOe наблюдается почти линейное возрастание  $M$  с дальнейшим повышением поля (максимальное поле измерения  $H = 50 \text{ kOe}$ ), при этом магнитный момент, соответствующий химической формуле, возрастает от 1.9 до 2.6  $\mu_B$ .



**Рис. 1.** Зависимость намагниченности  $M$  ( $\mu_B/f.u.$ ) от магнитного поля  $H$  тонких пленок  $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  на различных подложках. Состав пленок на следующих рисунках тот же. Подложка:  $\text{MgO}$  (1);  $\text{SrTiO}_3$  (2);  $\text{LaAlO}_3$  (3);  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  (4).



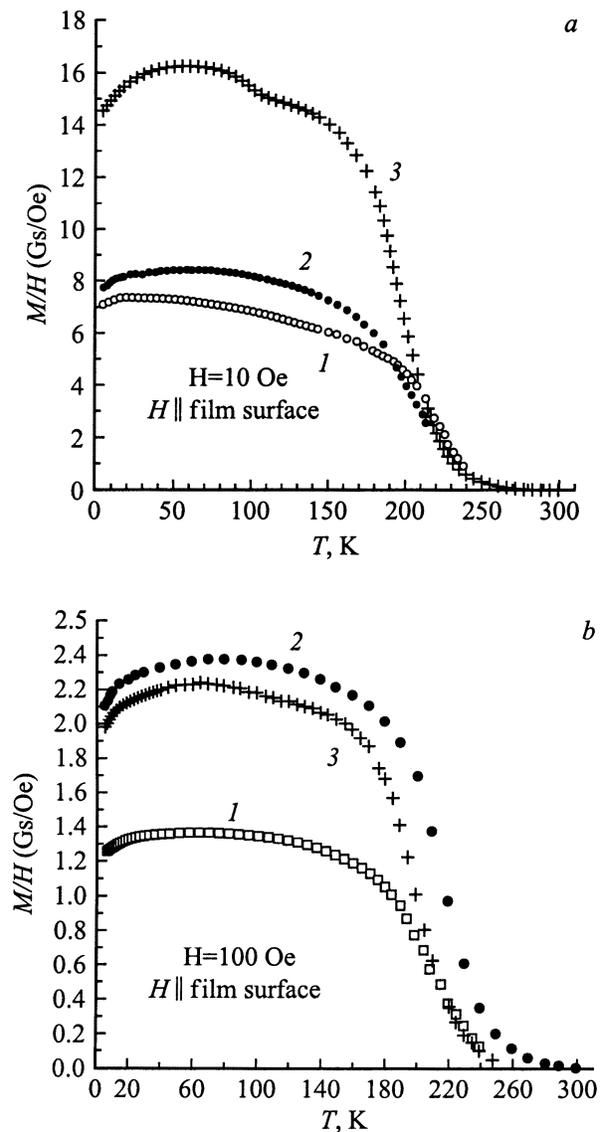
**Рис. 2.** Петли гистерезиса тонких пленок на различных подложках: *a* — SrTiO<sub>3</sub> (1); ZrO<sub>2</sub>(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) (2); *b* — MgO (3); LaAlO<sub>3</sub> (4).

На рис. 2 приводятся петли гистерезиса всех исследованных пленок при максимальном поле 1 кОе. Из рис. 2 видно, что петли довольно узкие и коэрцитивная сила не превышает 300 Ое. На рис. 3 приводится температурная зависимость начальной магнитной восприимчивости всех изученных пленок. Их точки Кюри  $T_C$ , представленные в таблице, были определены экстраполяцией наиболее крутой части кривых  $M/H(T)$  до пересечения с осью температур.

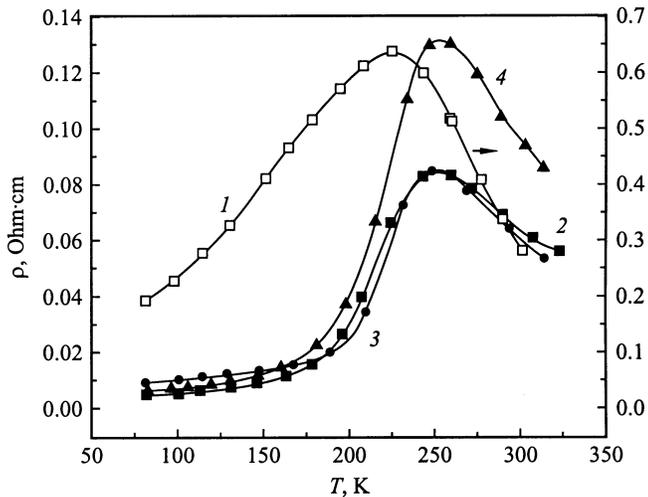
**2.3. Электрические свойства.** На рис. 4 приводится температурная зависимость удельного электросопротивления  $\rho$  всех исследованных пленок, а на рис. 5 — температурная зависимость МС  $\Delta\rho/\rho$  для

пленок на SrTiO<sub>3</sub> и ZnO<sub>2</sub>(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Здесь  $\Delta\rho = \rho_H - \rho_{H=0}$ . На рис. 6 показана зависимость  $\Delta\rho/\rho(H)$  при некоторых температурах для этих же пленок. Кривые  $\Delta\rho/\rho(T)$  и  $\Delta\rho/\rho(H)$  для пленок на MgO и LaAlO<sub>3</sub> похожи на показанные на рис. 5, *a* и 6, *a* для пленки SrTiO<sub>3</sub>. Температуры максимумов на кривых  $|\Delta\rho/\rho|(T)$  и  $\rho(T)$  для всех исследованных пленок представлены в таблице.

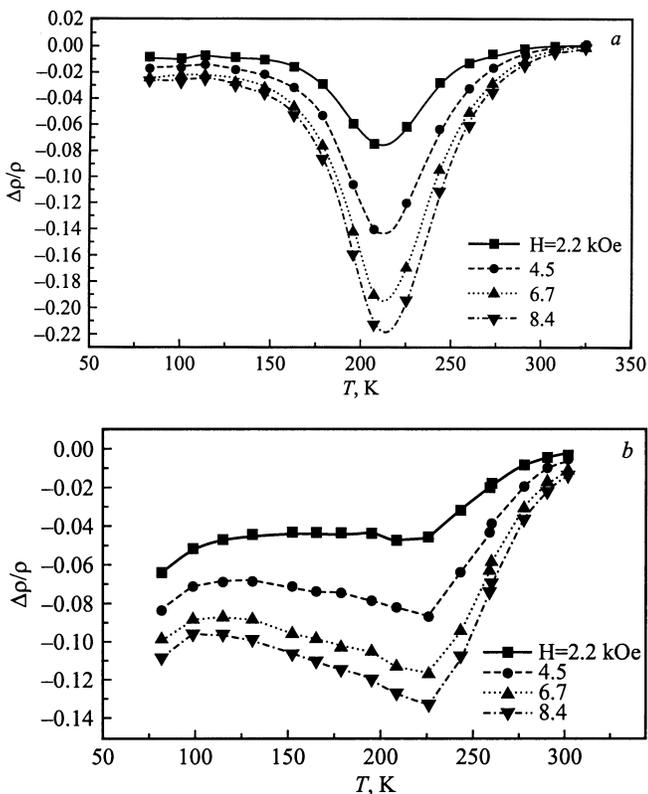
**2.4. Обсуждение результатов.** Как видно из рис. 4, на кривых  $\rho(T)$  наблюдается максимум, при этом, как следует из таблицы, температура максимума  $\rho$ ,  $T_m$ , пленки на подложке из ZnO<sub>2</sub>(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) на 20 К ниже, а у пленок на SrTiO<sub>3</sub>, MgO и LaAlO<sub>3</sub> выше  $T_C$  примерно на 20 К. МС отрицательно и кривые  $|\Delta\rho/\rho|(T)$  также проходят через максимум в районе  $T_C$  (рис. 5).



**Рис. 3.** Температурная зависимость начальной магнитной восприимчивости тонких пленок на различных подложках при  $H$ , равном: *a* — 10 Ое; *b* — 100 Ое. Подложки: *a* — MgO (1); LaAlO<sub>3</sub> (2); SrTiO<sub>3</sub> (3). *b* — LaAlO<sub>3</sub> (1); ZrO<sub>2</sub>(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) (2); SrTiO<sub>3</sub> (3).



**Рис. 4.** Температурная зависимость удельного электро-сопротивления  $\rho$  тонких пленок на различных подложках:  $ZrO_2(Y_2O_3)$  (1);  $SrTiO_3$  (2);  $MgO$  (3);  $LaAlO_3$  (4).

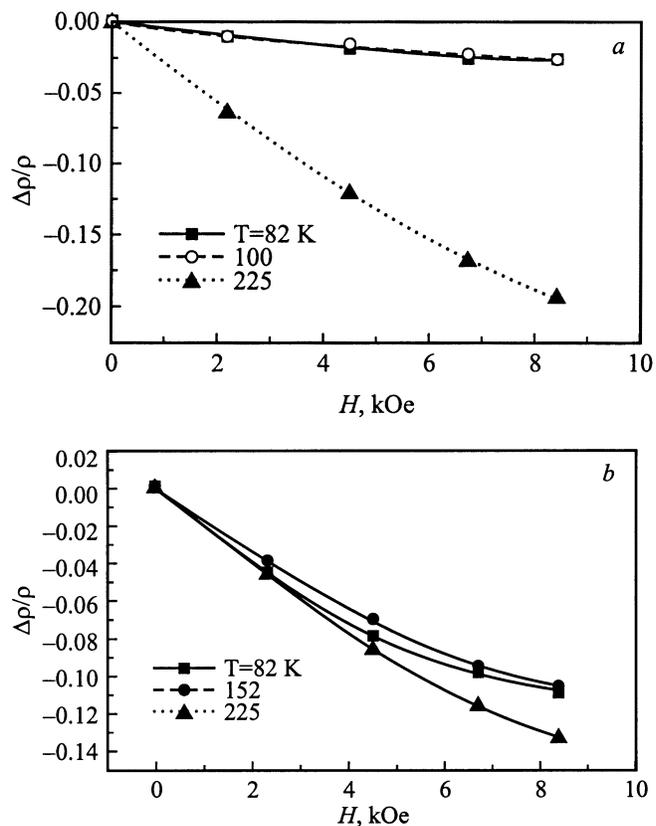


**Рис. 5.** Температурная зависимость магнитосопротивления  $\Delta\rho/\rho$ : тонкой пленки на подложке (001)  $SrTiO_3$  (a); тонкой пленки на подложке (001)  $ZrO_2(Y_2O_3)$  (b).

Изотермы МС не насыщаются во всей исследованной области температур (рис. 6). Величина МС достигает 34% при  $H = 8.4$  kOe у пленки на  $MgO$ , у других пленок она меньше и равна 23, 22 и 13% у пленок на  $LaAlO_3$  соответственно (см. таблицу). Таким образом,

у исследованных в данной работе пленок наблюдается колоссальное МС в районе  $T_C$ , подобно тому как это имеет место в магнитах других составов [5–7].

При сравнении кривых  $\rho(T)$  пленки на подложке из  $ZnO_2(Y_2O_3)$  и трех других пленок на перовскитных и  $MgO$  подложках (рис. 4) видно, что величина  $\rho$  первой пленки много выше, чем у последних. Как следует из таблицы, при 82 K она больше, чем на порядок, а в районе максимума  $\rho$  — в 4–8 раз. Различается и вид самих кривых. Так, резкое возрастание  $\rho$  с повышением температуры у пленок на  $SrTiO_3$ ,  $LaAlO_3$  и  $MgO$  происходит, начиная с  $T \sim 180$  K, тогда как у пленки на  $ZnO_2(Y_2O_3)$  монотонное возрастание  $\rho$  начинается уже при 80 K — минимальной температуре измерения, т.е. максимум на кривой  $\rho(T)$  сильно расширен. Еще разительнее различаются кривые  $|\Delta\rho/\rho|(T)$ : у первых трех пленок наблюдается резкий максимум при температуре  $T_{max}$ , которая немного ниже  $T_C$ , тогда как у последней пленки этот максимум, также расположенный немного ниже  $T_C$ , сильно размыт и со стороны низких температур едва проявляется (рис. 5). Величина  $|\Delta\rho/\rho|$  у последней пленки в области низких температур высокая: она достигает  $\sim 10\%$  в поле 8.4 kOe и начиная со 100 K слабо возрастает с дальнейшим понижением температуры. Резко различаются и кривые  $|\Delta\rho/\rho|(H)$  (рис. 6) для первых трех пленок и последней: у первых



**Рис. 6.** Изотермы магнитосопротивления  $\Delta\rho/\rho$ : тонкой пленки на подложке (001)  $SrTiO_3$  (a); тонкой пленки на подложке (001)  $ZrO_2(Y_2O_3)$  (b).

трех наблюдается почти линейный рост  $|\Delta\rho/\rho|$  с ростом поля в области температур ниже максимума на кривой  $|\Delta\rho/\rho|(T)$ , тогда как у последней в слабом поле до  $\sim 2$  kOe имеется резкое возрастание  $|\Delta\rho/\rho|$  с последующим близким к линейному возрастанием  $|\Delta\rho/\rho|$  в области более сильных полей.

Ранее похожее на описанное выше для пленки на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  поведение  $\rho$  и  $\Delta\rho/\rho$  наблюдалось у поликристаллических объемных и тонкопленочных образцов манганитов [8–22]. В то же время у монокристаллических образцов такого же состава поведение  $\rho$  и  $\Delta\rho/\rho$  походило на наблюдавшееся нами для пленок на  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{LaAlO}_3$  и  $\text{MgO}$ . Оно приписывалось спинполяризованному туннелированию между гранулами [14] или рассеянию носителей заряда внутри доменных стенок, как правило, совпадающих с межгранульными границами [9]. В работе [23] было показано, что данные ядерного резонанса на пленке  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  указывают на понижение концентрации дырок внутри доменных стенок.

Однако все исследованные в данной работе пленки — монокристаллические, в том числе и пленка на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$ . Отличие этой пленки от других исследованных в данной работе пленок в том, что, как указывалось в п. 1 данного параграфа, она состоит из микрообластей с четырьмя различными кристаллографическими ориентациями. Это приводит к существованию в ней магнитных доменов по крайней мере с четырьмя различными направлениями осей легкого намагничивания, границы между которыми составляют различные углы с направлениями намагниченности в доменах. В пленках на перовскитных и  $\text{MgO}$  подложках оси легкой намагниченности их различных частей параллельны друг другу, поэтому здесь большую часть пленки должны занимать магнитные домены со  $180^\circ$  границами.

Как видно из величин  $\rho$  при  $T < T_C$  пленок на перовскитных и  $\text{MgO}$  подложках (см. таблицу), их проводимость носит металлический характер. Отсюда следует, что в этом соединении преобладающим является обмен через носителей тока. Температура Кюри в этом случае определяется выражением [24]

$$T_C \sim zt\nu, \quad (1)$$

где  $t$  — интеграл переноса (ширина зоны проводимости  $W$  пропорциональна  $t$ ),  $z$  — координационное число магнитного иона (Mn в рассматриваемом случае) и  $\nu$  — количество носителей тока на один магнитный ион. Из таблицы видно, что температура Кюри пленки на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  примерно такая же, как у трех других пленок. Это означает, что у этой пленки также имеет место обмен через носителей тока, а повышение ее удельного электросопротивления по сравнению с тремя другими пленками более чем на порядок обусловлено границами между областями с различными кристаллографическими ориентациями. Как указывалось выше, подобные границы отсутствуют в трех других пленках, исследованных в

данной работе. Очевидно, что в этом случае удельное электросопротивление пленки на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$ , так же как и в поликристаллических образцах, состоит из двух частей: удельного электросопротивления  $\rho_1$  внутри описанных в п. 1 кристаллографических областей со средним линейным размером  $L$  (или удельного электросопротивления внутри отдельных гранул в случае поликристалла), т.е. собственного удельного электросопротивления материала, и удельного электросопротивления  $\rho_2$  внутри границ между областями с различной кристаллографической ориентацией, имеющих среднюю толщину  $L'$  (или удельного электросопротивления межгранульных границ). Величина  $\rho$  записывается в виде [25]

$$\rho \cong \rho_1 + (L'/L)\rho_2. \quad (2)$$

В пленке на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  между областями с различной кристаллографической ориентацией существуют специальные высокоугловые границы ( $9.5$ ,  $70.5$  и  $90^\circ$ ). Это означает, что углы  $\theta$  в цепочках  $-\text{Mn}-\text{O}-\text{Mn}-\text{O}-\text{Mn}-$  между линиями, соединяющими два иона марганца с ионом кислорода, близкие к  $180^\circ$  внутри кристаллографических областей, резко изменяются к указанным выше значениям внутри границ между этими областями.

Известно, что ширина зоны проводимости в манганитах (одноэлектронное приближение) пропорциональна  $\sim \cos^2\theta$  [7], поэтому резкое уменьшение  $\theta$  внутри границы между областями с различной кристаллографической ориентацией приводит к резкому уменьшению проводимости внутри нее. Как показала электронная микроскопия этой пленки, толщина границы близка к постоянной решетки [26]. В то же время все участки пленок на  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{LaAlO}_3$  и  $\text{MgO}$  имеют одну и ту же кристаллографическую ориентацию, и в них подобных границ нет. Поэтому повышение  $\rho$  в пленке на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  происходит только за счет второго члена в выражении (2). Полагая, что величина  $\rho_1$  одна и та же во всех четырех пленках и приблизительно равна  $6 \cdot 10^{-3}$  Ohm·cm (см. таблицу), и подставляя это значение, а также значения  $L' \cong 4$  и  $L \cong 400$  Å [26] в выражение (2), получаем, что при 82 K  $\rho_2 \cong 18.4$  Ohm·cm. Таким образом, удельное электросопротивление внутри границы между микрообластями с различной кристаллической ориентацией более чем на 3 порядка превышает удельное электросопротивление внутри этих микрообластей и по порядку величины является полупроводниковым.

Малая толщина этого слоя и большая величина  $\rho_2$  позволяют сделать предположение, что проводимость здесь осуществляется путем туннелирования через указанную границу. Как будет показано далее, часть этих границ совпадает с доменными границами. В этом случае туннелирование имеет свою специфику, связанную с тем обстоятельством, что туннелируют почти полностью поляризованные по спину электроны. Это случай описан в работе [14] для поликристаллических объемных образцов манганитов. Когда спин электрона сохраняется при туннелировании и магнитные моменты соседних

гранул не параллельны, для МС в [14] было получено следующее выражение:

$$\Delta\rho/\rho = -JP/(4k_B T) [m^2(H, T) - m^2(0, T)], \quad (3)$$

где  $J$  — постоянная межгранульного обмена,  $P$  — электронная поляризация и  $m$  — намагниченность, нормализованная к насыщающему значению. По-видимому, это выражение можно использовать и для пленки на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$ . Из выражения (3) видно, что при достижении технического насыщения намагниченности абсолютная величина МС также испытывает насыщение.

Однако как видно из рис. 6, у пленки на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  на изотермах МС в области низких температур насыщения не наблюдается, хотя насыщение намагниченности уже давно достигнуто (рис. 1). Как видно из рис. 6, в области низких температур на изотермах МС сначала наблюдается резкое возрастание  $|\Delta\rho/\rho|$  в полях до 2 кОе и затем более медленное, почти линейное по полю возрастание с дальнейшим ростом  $H$ . Поэтому следует полагать, что кроме указанного выше спин-поляризованного туннелирования за низкотемпературное МС в области полей, превышающих поле технического насыщения, ответственны и какие-то другие процессы.

Как указывалось выше, повышенное низкотемпературное удельное электросопротивление и МС в поликристаллических образцах связывалось также с рассеянием носителей заряда на разупорядочениях спиновой системы внутри доменных стенок. Однако это объяснение вряд ли применимо к манганитам, у которых имеет место сильный  $p-d$  обмен и большая толщина доменных стенок. Как известно, манганиты — магнитно-мягкие материалы, так как энергия магнитокристаллической анизотропии в них не превышает  $2 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$  [27], поэтому толщина доменных стенок здесь велика: по оценкам работы [28], она может достигать  $10^3$  постоянной решетки  $a$  в объемных образцах. В тонкопленочных образцах, где толщина пленки одного порядка с указанной для объемного образца толщиной доменной стенки (толщина рассмотренных в данной работе пленок  $\sim 5500 \text{ \AA}$ ), доменная структура носит более сложный характер. В настоящее время нет единого мнения о ее строении [28]. Поэтому в грубом приближении можно считать толщину доменных стенок в тонких пленках такой же, как в объемном образце. Как указывалось выше, размер кристаллографических микрообластей в пленке на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3) \sim 400 \text{ \AA}$ , или  $a \cdot 10^2$ , что на порядок меньше возможной толщины доменной стенки. Поскольку в указанной пленке осуществляется дальний магнитный порядок, в каждый магнитный домен должно входить более десяти кристаллографических микрообластей. Однако в некоторых областях пленки из-за того, что толщина доменной стенки больше размера кристаллографических микрообластей и одного порядка с толщиной пленки, дальний магнитный порядок может отсутствовать. Действительно, как видно из рис. 1 и таблицы, магнитный момент, соответствующий химической формуле, у этой пленки сильно занижен по сравнению с

ожидаемым при полном ферромагнитном упорядочении всех ионов (включая и магнитную подрешетку из ионов  $\text{Nd}^{3+}$ ), а именно составляет  $\sim 54\%$  от последнего. В такой широкой доменной границе поворот спинов происходит постепенно, и из-за сильного  $p-d$  обмена спин носителя заряда подстраивается параллельно спину того иона, на котором он находится в данный момент, при этом носитель заряда не рассеивается [24].

Как видно из рис. 5, на кривых  $|\Delta\rho/\rho|(T)$  наблюдается максимум в районе  $T_C$  у всех четырех исследованных пленок. Величина  $|\Delta\rho/\rho|_{\text{max}}$  большая: она равна 34% для пленки на  $\text{MgO}$  и 13% для пленки на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$ ; у двух оставшихся пленок — 22.5% в поле 8.4 кОе (см. таблицу). Для сравнения следует указать, что в обычных магнетиках, например ферритах, величина  $|\Delta\rho/\rho|_{\text{max}}$  в районе  $T_C$  на 2–3 порядка ниже. Соединение  $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  — сильно легированный стронцием антиферромагнитный полупроводник  $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{MnO}_3$ , в котором ниже  $T_C$  наблюдается проводимость металлического типа, а в районе  $T_C$  имеет место переход к полупроводниковому типу проводимости (рис. 4). В работе [29] показано, что в манганитах такого типа с сильным  $p-d$  обменом имеются два механизма, по которым примесно-магнитное взаимодействие влияет на сопротивление: рассеяние носителей заряда, уменьшающее их подвижность, и образование "хвоста" их зоны, состоящего из локализованных состояний. В районе  $T_C$  происходит резкое уменьшение подвижности носителей заряда и их частичная локализация в хвосте зоны. Под действием магнитного поля примесно-магнитное рассеяние носителей заряда уменьшается и происходит их делокализация из хвоста зоны.

Из рис. 4 видно, что возрастание  $\rho$  при повышении температуры у пленки на  $\text{ZnO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  происходит монотонно с самой низкой температуры измерения, тогда как у пленки на  $\text{SrTiO}_3$ , а также у пленок на  $\text{LaAlO}_3$  и  $\text{MgO}$  значительно более резкое возрастание начинается с  $T \cong 200 \text{ K}$ . Приблизительно то же самое наблюдается и для МС с той разницей, что резкое возрастание  $|\Delta\rho/\rho|$  у пленки на  $\text{SrTiO}_3$  начинается с  $T \cong 160 \text{ K}$ , но при этом и максимум  $|\Delta\rho/\rho|$  расположен при более низкой температуре, чем максимум  $\rho$ . В то же время у пленки на  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  максимум на кривой  $|\Delta\rho/\rho|(T)$  едва различается и величина  $|\Delta\rho/\rho|$  в низкотемпературной области всего на 2–3% ниже, чем в районе  $T_C$ . Это наводит на мысль, что причины МС при низких температурах в полях выше технического насыщения те же, что и в районе  $T_C$ , перечисленные выше. При низких температурах в спин-разупорядоченных микрообластях, занимающих, как указывалось выше,  $\sim 54\%$  площади пленки, носители тока находятся примерно в тех же условиях, что и в районе  $T_C$ : спины сильно разупорядочены и существует сильный  $p-d$  обмен. Но это возможно лишь тогда, когда спин-разупорядоченные области существуют в полях выше технического насыщения. Таким же образом можно объяснить и низкотемпературное МС в полях выше технического насыщения в пленках на

$\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{LaAlO}_3$  и  $\text{MgO}$ , так как у них также, по-видимому, имеются спин-разупорядоченные микрообласти. Об этом свидетельствуют заниженные, по сравнению с чисто спиновым значением при ферромагнитном упорядочении всех ионов, значения намагниченности у пленок на  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{LaAlO}_3$  и  $\text{MgO}$  (см. таблицу и рис. 1). Из рис. 1 видно, что у пленки на  $\text{MgO}$  после насыщения в полях от 10 до 25 кОе снова происходит почти линейное с полем возрастание магнитного момента.

Известно, что в пленках манганитов из-за несоответствия кристаллических структур материала и подложки существуют напряжения, увеличивающие магнитную анизотропию. Однако напряжения в пленках на подложке из  $\text{MgO}$  быстро релаксируют. Как указывалось в п. 1 данного раздела, в пленках рассматриваемого состава напряжения очень малы по причине того, что данный состав расположен вблизи морфотропной границы между орторомбической и ромбоэдрической структурами, что еще усиливает релаксацию пленки на  $\text{MgO}$ . По-видимому, эта пленка наименее напряженная из всех исследованных, и поэтому в ней происходит наблюдавшееся нами спиновое упорядочение в магнитно-разупорядоченных микрообластях.

Замещая  $\text{Nd}$  на  $\text{La}$  в  $\text{Nd}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ , мы хотели повысить температуру Кюри пленок. Мы основывались на следующих соображениях. Известно, что в неискаженной структуре перовскита угол связи  $\text{Mn}-\text{O}-\text{Mn}$  равен  $180^\circ$ . При замещении ионов  $\text{Nd}$  меньшими по размеру ионами  $\text{Sr}$  происходит искажение решетки. Можно было ожидать, что частичное замещение ионов  $\text{Nd}$  большими по размеру ионами  $\text{La}$  приблизит угол связи к  $180^\circ$ , вследствие чего зона проводимости расширится, а значит, увеличится интеграл переноса  $t$  и усилится обмен через носители тока. Вследствие этого в соответствии с выражением (1) возрастет и температура Кюри. Однако, как видно из таблицы, замещение половины ионов  $\text{Nd}$  на  $\text{La}$  не дало ожидаемого результата: величина  $T_C$ , равная 240 К для  $\text{Nd}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  [30], не изменилась у состава  $\text{La}_{0.35}\text{Nd}_{0.35}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ . По-видимому, это объясняется кристаллографическим разупорядочением  $A$ -узлов в перовските  $\text{ABO}_3$ , описанным, например, в работе [31]. Из-за указанного разупорядочения орторомбическое искажение перовскитной решетки в последнем составе такое же, как и в первом, что приводит к равенству интегралов переноса  $t$  в обоих составах, вследствие чего их точки Кюри равны в соответствии с выражением (1).

## Список литературы

- [1] G.H. Jonker, J.H. van Santen. *Physica* **16**, 3, 337 (1950).
- [2] C. Searle, S. Wang, *Can. J. Phys.* **48**, 17, 2023 (1970).
- [3] О.Ю. Горбенко, Р.В. Демин, А.Р. Кауль, Л.И. Королева, Р. Шимчак. *ФТТ* **40**, 2, 290 (1998).
- [4] О.Ю. Горбенко, А.Р. Кaul, N.A. Babushkina, L.M. Belova, *J. Mater. Chem.* **7**, 5, 747 (1997).
- [5] Э.Л. Нагаев. *УФН* **166**, 8, 833 (1996).
- [6] A.P. Ramirez. *J. Phys.: Condens. Matter.* **9**, 7, 8171 (1997).
- [7] Y. Tokura, Y. Tomioka. *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 1, 1 (1999).
- [8] H.L. Ju, J. Gopalakrishnan, J.L. Peng, Q. Li, G.C. Xiong, T. Venkatesan, R.L. Greene. *Phys. Rev.* **B51**, 9, 6143 (1995).
- [9] P. Schiffer, A.P. Ramirez, W. Bao, S.-W. Cheong. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 18, 3336 (1995).
- [10] A. Gupta, G.Q. Gong, G. Xiao, P.R. Duncombe, P. Lecoeur, P. Trouilloud, Y.Y. Wang, V.P. Dravde, J.Z. Sun. *Phys. Rev.* **B54**, 22, R15629 (1996).
- [11] H.Y. Hwang, S.-W. Cheong, N.P. Ong, B. Batlogg. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 10, 2041 (1996).
- [12] R. Shreekala, M. Rajeswari, K. Ghosh, A. Goyal, J.Y. Gu, C. Kwon, Z. Trajanovic, T. Boettcher, R.L. Greene, R. Ramesh, T. Venkatesan. *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2, 282 (1997).
- [13] R. Mahesh, R. Mahendiran, A.K. Raychaudhuri, C.N.R. Rao. *Appl. Phys. Lett.* **68**, 16, 2291 (1996).
- [14] J.-H. Park, C.T. Chen, S.-W. Cheong, W. Bao, G. Meigs, V. Chakarian, Y.U. Idzeral. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 22, 4215 (1996).
- [15] P. Raychaudhuri, T.K. Nath, A.K. Nigam, R. Pinto. *J. Appl. Phys.* **84**, 4, 2048 (1998).
- [16] E.S. Vlahov, R.A. Chakalov, R.I. Chakalova, K.A. Nenkov, K. Dorr, A. Handstein, K.-H. Muller. *J. Appl. Phys.* **83**, 4, 2152 (1998).
- [17] D.K. Petrov, A. Gupta, J.R. Kirtley, L. Krusin-Elbaum, H.S. Gill. *J. Appl. Phys.* **83**, 11, 7061 (1998).
- [18] A.K.M. Akter Hossain, L.F. Cohen, F. Damay, A. Berenov, J. Macnanus-Driscoll, N.McN. Alford, N.D. Mathur, M.G. Blamire, J.E. Evetts. *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 2, 263 (1999).
- [19] T. Walter, K. Dorr, K.-H. Muller, B. Holzapfel, D. Eckert, M. Wolf, D. Schlafer, L. Schultz, R. Grotzschel. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 15, 2218 (1999).
- [20] V.G. Bar'yakhtar, A.N. Pogorilyi, N.A. Belous, A.I. Tovstolytkin. *J. Magn. Magn. Mater.* **207**, 1, 118 (1999).
- [21] M. Ziese, S.P. Sena, H.J. Blythe. *J. Magn. Magn. Mater.* **202**, 2, 292 (1999).
- [22] Fu Yonglai, C.K. Ong. *J. Magn. Magn. Mater.* **208**, 1, 69 (2000).
- [23] G. Papavassiliou, M. Fardis, F. Milia, M. Pissas, G. Kallias, D. Niarchos, C. Dimitropoulos, P. Scherrer. *Phys. Rev.* **B58**, 18, 12237 (1998).
- [24] Э.Л. Нагаев. *Физика магнитных полупроводников*. М. (1979). 431 с.
- [25] H. Berger. *Phys. Stat. Sol.* **1**, 2, 739 (1961).
- [26] M. Bibes, O. Gorbenco, B. Martinez, A. Kaul, J. Fontcuberta. *J. Magn. Magn. Mater.* **209** (2000), in press.
- [27] Y. Suzuki, H.Y. Hwang, S.-W. Cheong, T. Siegrist, R.B. van Dover, A. Asamitsu, Y. Tokura. *J. Appl. Phys.* **83**, 11, 7064 (1998).
- [28] А. Хуберт. *Теория доменных стенок в упорядоченных средах*. М. (1977). 306 с.
- [29] E.L. Nagaev. *Phys. Lett.* **A211**, 5, 313 (1996).
- [30] L.M. Rodriguez, J.P. Attfield. *Phys. Rev.* **B58**, 5, 2426.
- [31] V.A. Bokov, N.A. Grigoryan, M.F. Bryzhina, V.V. Tikhonov. *Phys. Stat. Sol.* **28**, 2, 835 (1998).