

# Реакция электро- и магнетосопротивления пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ на двухосные растягивающие механические напряжения

© Ю.А. Бойков, Т. Клаесон\*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\* Чалмерский технический университет,  
SE-41296 Гётеборг, Швеция

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

(Поступила в Редакцию 27 мая 2004 г.)

Исследованы структура, электро- и магнетосопротивление эпитаксиальных пленок (50 nm)  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ , выращенных на подложке [(80 nm)  $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{TiO}_3/\text{La}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{Al}_{0.65}\text{Ta}_{0.35}\text{O}_3$ ] со значительным положительным рассогласованием в параметрах кристаллических решеток. Растягивающие двухосные механические напряжения обусловили увеличение объема элементарной ячейки и относительной концентрации ионов  $\text{Mn}^{+3}$  в манганитных пленках по сравнению с соответствующими параметрами для исходного материала (33%). Максимум на температурной зависимости электросопротивления  $\rho$  сформированных пленок  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  был сдвинут на 30–35 градусов в сторону низких температур относительно его положения на зависимости  $\rho(T)$  для манганитной пленки, выращенной на (001)  $\text{La}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{Al}_{0.65}\text{Ta}_{0.35}\text{O}_3$ . При  $T < 150$  К температурные зависимости  $\rho$  пленок  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{TiO}_3/\text{La}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{Al}_{0.65}\text{Ta}_{0.35}\text{O}_3$  хорошо аппроксимировались соотношением  $\rho = \rho_0 + \rho_1 T^{4.5}$ , где  $\rho = 0.35 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$ , а коэффициент  $\rho_1$  линейно убывает с ростом напряженности магнитного поля. В температурном интервале 4.2–300 К магнетосопротивление выращенных манганитных пленок находилось в пределах 15–95% ( $\mu_0 H = 5 \text{ T}$ ).

Исследования проводились в рамках научного сотрудничества Российской и Шведской королевской академии 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.

## 1. Введение

Тонкие пленки  $\text{La}_{1-x}(\text{Ca},\text{Sr})_x\text{MnO}_3$  интенсивно исследуются в последние годы в связи с перспективностью их использования в головках для считывания информации с магнитных дисков [1], в ячейках магнитной памяти [2], в детектерах ИК излучения [3], в качестве покрытий, эффективно поглощающих электромагнитные сигналы в СВЧ диапазоне [4] и т.д.

Электронный транспорт и магнитные свойства  $\text{La}_{1-x}(\text{Ca},\text{Sr})_x\text{MnO}_3$  определяются степенью зарядового и спинового упорядочения в  $3d$  электронных оболочках трех- и четырех-валентных ионов марганца. Исследование механизмов, влияющих на характер и уровень взаимозависимости электрических и магнитных свойств перовскитоподобных манганитов, относящихся к материалам с сильно коррелированными электронами, представляет значительный научный интерес.

Наряду со структурой и химическим легированием механические напряжения оказывают существенное влияние на параметры гетероэпитаксиальных пленок  $\text{La}_{1-x}(\text{Ca},\text{Sr})_x\text{MnO}_3$ . Различия в параметрах кристаллических решеток и температурных коэффициентах линейного расширения подложки и пленки являются основными причинами возникновения двухосных механических напряжений в последней. До настоящего времени влияние механических напряжений на процесс упорядочения электронных спинов в манганитных пленках

исследовано слабо. Это не позволяет целенаправленно использовать двухосные механические напряжения для оптимизации электрических и магнитных параметров тонких манганитных слоев.

В настоящей работе исследованы пленки  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LCMO), выращенные на подложке  $\text{La}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{Al}_{0.65}\text{Ta}_{0.35}\text{O}_3$  (LSATO), покрытой буферным слоем  $\text{Ba}_{0.25}\text{Sr}_{0.75}\text{TiO}_3$  (BSTO), параметр кристаллической решетки которого больше соответствующих параметров LCMO и LSATO. Ранее [5,6] нами было показано, что температурные зависимости электро- и магнетосопротивления эпитаксиальных пленок LCMO, сформированных на монокристаллических подложках (LSATO,  $\text{NdGaO}_3$ ) с малым рассогласованием в параметрах кристаллических решеток и температурных коэффициентов линейного расширения, хорошо согласуются с данными для соответствующих стехиометрических объемных образцов.

## 2. Эксперимент

Тонкий буферный слой BSTO использован для того, чтобы увеличить эффективное рассогласование в параметрах кристаллических решеток  $m$  между манганитной пленкой и подложкой ( $m = (a_S - a_L)/a_S$ , где  $a_S$  и  $a_L$  — параметры подложки и слоя соответственно). В случае пленки BSTO (при 300 К кубическая элементарная ячейка,  $a_1 = 3.930 \text{ \AA}$  [7]) и подложки LSATO

(при 300 К псевдокубическая ячейка,  $a_2 = 3.868 \text{ \AA}$  [7])  $m \approx -1.6\%$ . Параметр псевдокубической элементарной ячейки стехиометрических объемных образцов LCMO равен  $3.858 \text{ \AA}$  [8]. Температурные коэффициенты линейного расширения LCMO, BSTO и LSATO имеют близкие значения [7,9].

Метод лазерного испарения (ComPex 205, KrF,  $\lambda = 248 \text{ nm}$ ,  $\tau = 30 \text{ ns}$ ) был использован для последовательного формирования буферной прослойки (80 nm)BSTO и пленки (50 nm)LCMO на поверхности (001)LSATO. Температура подложки в процессе роста BSTO и LCMO равнялась  $760^\circ\text{C}$ . Плотность лазерного излучения на поверхности мишеней составляла  $2 \text{ J/cm}^2$ , а давление кислорода в ростовой камере поддерживалось на уровне  $p_0 = 0.3 \text{ mbar}$ . Эффективная скорость роста  $v$  пленок BSTO и LCMO составляла  $0.7$  и  $0.2 \text{ \AA/imp}$ . соответственно. После завершения процесса осаждения манганитной пленки сформированная гетероструктура охлаждалась в атмосфере кислорода ( $p_0 = 1 \text{ atm.}$ ) до комнатной температуры со скоростью  $20^\circ\text{C/min}$ .

Фазовый состав, ориентация и структура выращенных слоев исследовались с использованием рентгеновской дифракции (Philips E'pert MRD,  $2\theta$ - и  $\phi$ -сканы и кривые качания). Рентгеновские сканы были визуализированы с использованием прецизионной рентгеновской оптики (четырёхкристалльный монохроматор (220)Ge был использован при формировании падающего рентгеновского пучка, а  $2\theta$  измерялось с использованием плоского графитового монохроматора). Для определения параметров кристаллической решетки выращенных слоев в плоскости подложки и вдоль нормали к ее поверхности  $\omega/2\theta$  сканы были измерены в условиях, когда плоскость, включающая падающий и отраженный рентгеновские пучки была ортогональна (101) или (001)LSATO. Толщина буферного слоя и манганитной пленки в гетероструктуре LCMO/BSTO/LSATO контролировалась по ширине сателлитных пиков Лауэ на измеренных рентгеновских дифрактограммах.

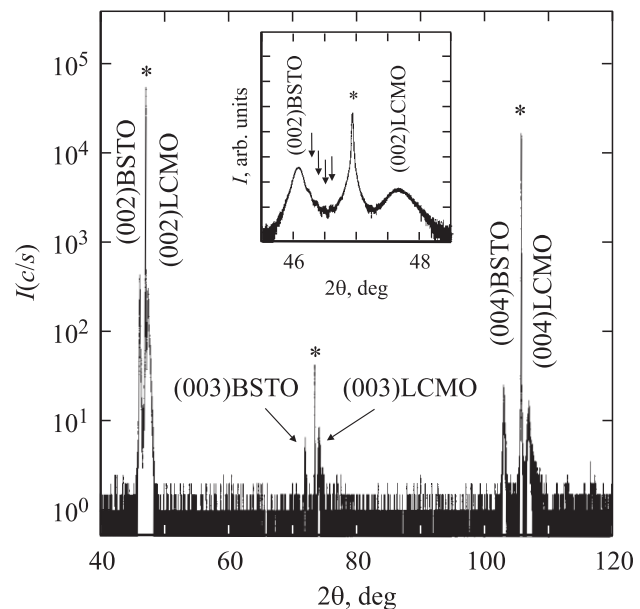
Сопротивление  $R$  пленок LCMO измерялось в конфигурации van der Pauw в интервале температур  $4.2\text{--}300 \text{ K}$ , в магнитном поле и без него ( $\mu_0 H$  до  $5 \text{ T}$ , направление магнитного поля параллельно плоскости подложки, но перпендикулярно направлению тока). На поверхность пленки LCMO напылялись четыре серебряных контакта, расположенные на углах квадрата. Удельное сопротивление  $\rho$  пленок рассчитывалось по формуле  $\rho = \pi R d / \ln 2$  [10], где  $d = 50 \text{ nm}$  — толщина манганитного слоя.

### 3. Результаты и их обсуждение

Было сформировано и исследовано пять гетероструктур LCMO/BSTO/(001)LSATO. Разброс структурных, электрических и магнитных параметров пленок LCMO

в выращенных двухслойных системах был незначительным. В частности, относительный сдвиг максимума на измеренных кривых  $\rho(T, H = 0)$  для манганитных пленок в выращенных гетероструктурах не превышал  $5 \text{ K}$ , а значения полуширины кривой качания  $\eta$  для рентгеновского пика (002) от соответствующих слоев различались не более чем на  $8\%$ .

3.1. Структура выращенных слоев BSTO и LCMO. Из полученных рентгеновских данных следует, что пленка LCMO и буферный слой BSTO в гетероструктуре LCMO/BSTO/LSATO были свободны от макровключений вторичных фаз (рис. 1). На рентгеновских  $\phi$ -сканах для рефлексов (101) от буферного слоя BSTO и пленки LCMO имелось по четыре эквидистантно (через каждые  $90$  градусов) расположенных пика. Слои, составляющие гетероструктуру, были преимущественно ориентированы как относительно нормали к плоскости подложки, так и азимутально, причем плоскости (001) и направления [010] в LCMO и BSTO были параллельны (001) и [010]LSATO, соответственно. Параметры элементарной ячейки слоя BSTO, измеренные в плоскости подложки  $a_{\parallel}$  и вдоль нормали к ее поверхности  $a_{\perp}$ , отличались незначительно (см. таблицу). Релаксация механических напряжений в буферном слое происходила в значительной степени в процессе его осаждения и насыщения кислородом. Эффективный объем  $V_{\text{eff}} = a_{\perp} \times a_{\parallel}^2 = 60.73 \text{ \AA}^3$  элементарной ячейки в буферном слое хорошо согласуется с имеющимися в



**Рис. 1.** Рентгеновская дифрактограмма ( $\text{CuK}\alpha_1$ ,  $\omega/2\theta$ -скан) для гетероструктуры (50 nm)LCMO/(80 nm)BSTO/(001)LSATO, полученная в условиях, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, перпендикулярной (001)LSATO. Звездочки — рентгеновские пики от подложки. На вставке приведен фрагмент той же дифрактограммы, содержащий рефлексы (002) от манганитной пленки, буферного слоя и подложки. Стрелками отмечены сателлитные пики Лауэ.

Параметры пленок BSTO и LCMO в гетероструктуре LCMO/BSTO/(001)LSATO

Материал пленок	Толщина слоя, nm	$\nu$ , $\text{\AA}/\text{imp.}$	$a_{\perp}$ , $\text{\AA}$	$a_{\parallel}$ , $\text{\AA}$	$V_{\text{eff}}$ , $\text{\AA}^3$	$\Delta a/a$ , $10^{-3}$	$t$ , nm	$\partial\phi$ , deg	$\eta$ , deg
BSTO	80	0.7	3.934	3.929	60.73	1.1	90	1	0.09
LCMO	50	0.2	3.812	3.883	57.48	1.6	70	1	0.17

литературе данными для соответствующих объемных образцов [11].

Располагание в параметрах кристаллических решеток LCMO и LSATO составляет  $m \approx +0.3\%$ . В случае пленки LCMO и подложки LSATO, покрытой буферным слоем (80 nm)BSTO, величина  $m$  возрастает в 6 раз, примерно до  $+1.8\%$ . Параметр элементарной ячейки в пленке LCMO, выращенной на BSTO/LSATO, измеренный вдоль нормали к плоскости подложки ( $3.812 \pm 0.003 \text{\AA}$ ), был существенно меньше параметра ячейки, измеренного в плоскости подложки ( $3.883 \pm 0.003 \text{\AA}$ ). Пленка (50 nm)LCMO, выращенная на BSTO/LSATO, находилась под действием растягивающих в плоскости подложки механических напряжений. Сравнение параметров  $a_{\parallel}$  для слоев, составляющих двухслойную гетероструктуру LCMO/BSTO, сформированную на (001)LSATO (см. таблицу), указывает на то, что механические напряжения в манганитной пленке частично релаксировали. Значительная ширина кривой качания, полученная для рентгеновского пика (002)LCMO (см. таблицу), свидетельствует о неоднородной релаксации механических напряжений в манганитной пленке. Эффективный объем ( $\sim 57.48 \text{\AA}^3$ ) элементарной ячейки в пленке LCMO/BSTO/LSATO был больше соответствующего значения для объемных стехиометрических образцов LCMO ( $\sim 57.39 \text{\AA}^3$  [9]).

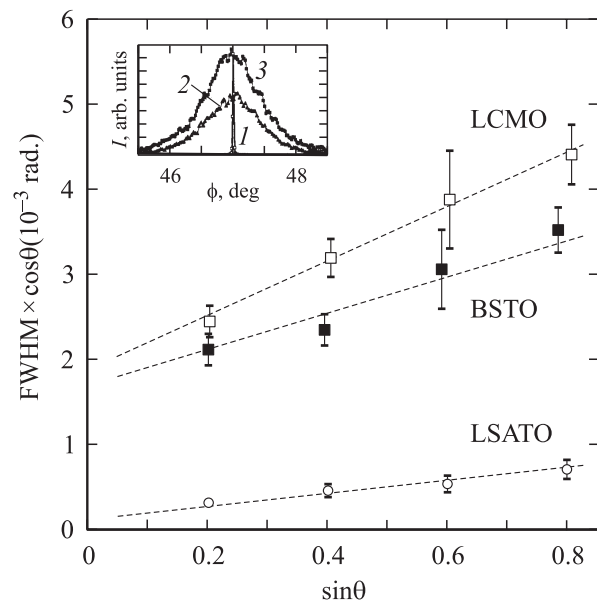
Увеличение  $V_{\text{eff}}$  в пленках LCMO, выращенных на BSTO/LSATO, обусловлено высокой концентрацией вакансий кислорода в их объеме и/или обеднением кальцием. На начальной стадии формирования манганитной пленки на поверхности BSTO/LSATO формируются зародыши стехиометрического состава так же, как и обедненные или обогащенные кислородом (кальцием). Зародыши LCMO, дефицитные по кислороду (кальцию), обладают меньшей энергией упругой деформации по сравнению с зародышами стехиометрического состава, поскольку параметр решетки перовскитоподобного манганита увеличивается при его обеднении кислородом (кальцием). По этой причине зародыши, обедненные кислородом (кальцием), становятся стабильными в первую очередь. На внешних границах разрастающихся островков LCMO может сегрегироваться фаза, обогащенная кальцием. Поэтому состав межкристаллитных прослоек в пленке LCMO/BSTO/LSATO может несколько отличаться от состава в объеме кристаллитов. Указанные особенности зародышеобразования и роста перовски-

топодобных манганитов способствуют тому, что эффективный объем элементарной ячейки пленок LCMO, выращенных на подложке со значительным положительным рассогласованием в параметрах кристаллических решеток, оказывается больше, чем  $V_{\text{eff}}$  для соответствующих монокристаллов. В соответствии с изложенной выше моделью объем элементарной ячейки в пленках (40 nm)LCMO [12], сформированных в условиях двухосных сжимающих механических напряжений, был меньше, чем значение  $V_{\text{eff}}$  для стехиометрических объемных образцов.

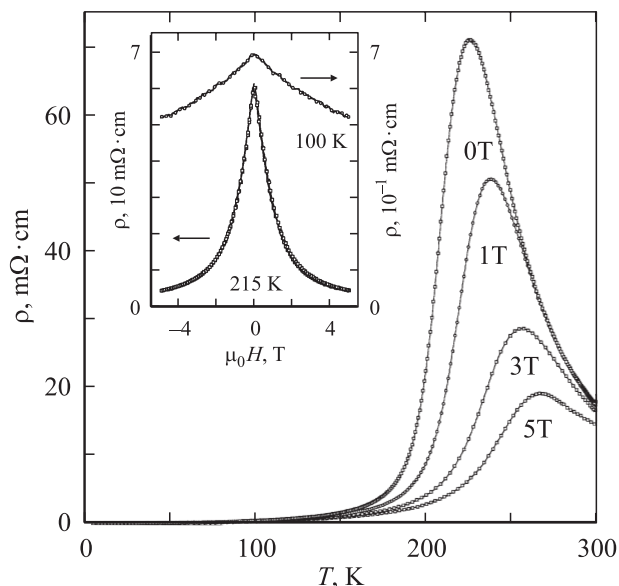
Для оценки эффективного размера кристаллических зерен  $t$  и средней величины относительного искажения параметра решетки  $\Delta a/a$  в слоях, составляющих гетероструктуру LCMO/BSTO/LSATO была использована зависимость полуширины FWHM (ширина пика, измеренная на половине высоты) пиков (00n) на рентгеновском  $\omega/2\theta$  скане от  $\theta$ , которая согласно [13] может быть представлена в виде

$$\text{FWHM} \times \cos \theta = 0.9\lambda_1/t + 2\Delta a/a \times \sin \theta, \quad (1)$$

где  $\lambda_1 = 1.54056 \text{\AA}$  — длина волны рентгеновского излучения. Из данных, представленных на рис. 2, следует, что значения  $0.9\lambda_1/t$  для слоя BSTO и пленки LCMO при  $\theta = 0$  равны  $1.6 \cdot 10^{-3}$  и  $1.9 \cdot 10^{-3}$  соответственно. Отсюда следует, что эффективный размер кристаллических зерен в буферном слое равен 90 nm, а в манганитной пленке — 70 nm. Значения  $\Delta a/a$ , определенные для слоев BSTO и LCMO из величины тангенса угла наклона зависимостей  $\text{FWHM} \times \cos \theta$



**Рис. 2.** Зависимости произведения  $\text{FWHM} \times \cos \theta$  от  $\sin \theta$  для манганитной пленки, буферного слоя и подложки в гетероструктуре (50 nm)LCMO/(80 nm)BSTO/(001)LSATO. На вставке показаны пики на рентгеновских  $\phi$ -сканах для рефлексов (101) от подложки LSATO (1), пленки LCMO (2) и буферной прослойки BSTO (3).



**Рис. 3.** Температурные зависимости электросопротивления  $\rho$  пленки (50 nm) LCMO в гетероструктуре LCMO/BSTO/(001)LSATO, измеренные при различной напряженности магнитного поля. На вставке приведены зависимости  $\rho$  от магнитного поля, полученные при температурах 100 и 215 K.

от  $\sin \theta$ , показанных на рис. 2, приведены в таблице. Средняя величина искажения параметра решетки в слое (80 nm)BSTO ( $\Delta a/a \approx 1.1 \cdot 10^{-3}$ ) примерно вдвое больше соответствующего значения, полученного для толстых эпитаксиальных пленок (700 nm)BSTO, выращенных на поверхности SrRuO<sub>3</sub> [7]. Значительная величина  $\Delta a/a \approx 1.6 \cdot 10^{-3}$  для пленки LCMO в гетероструктуре LCMO/BSTO/LSATO указывает на неоднородность механических напряжений, действующих в ее объеме.

Расогласование в параметрах кристаллических решеток BSTO и LSATO является причиной существенной азимутальной разориентации  $\Delta \phi \approx 1$  deg кристаллических зерен в буферном слое и в манганитной пленке, выращенной на его поверхности. Оценка  $\Delta \phi$  была сделана с учетом ширины (измеренной на половине высоты) пиков на  $\phi$ -сканах, полученных для рентгеновских рефлексов (101)BSTO и (101)LCMO от гетероструктуры LCMO/BSTO/LSATO. Соответствующие рентгеновские пики показаны на вставке рис. 2. На той же вставке приведен для сравнения пик на рентгеновском  $\phi$ -скане, измеренном для рефлекса (101) от монокристаллической подложки LSATO ( $\Delta \phi \approx 0.02$  deg).

**3.2. Зависимость сопротивления пленок LCMO от температуры и магнитного поля.** При  $H = 0$  максимум на температурной зависимости удельного сопротивления пленок LCMO, выращенных на BSTO/LSATO, наблюдался при температуре  $T_M = 225\text{--}230$  K (рис. 3). Указанное значение примерно на 35 K меньше температуры, при которой достигает максимума сопротивление объемных стехио-

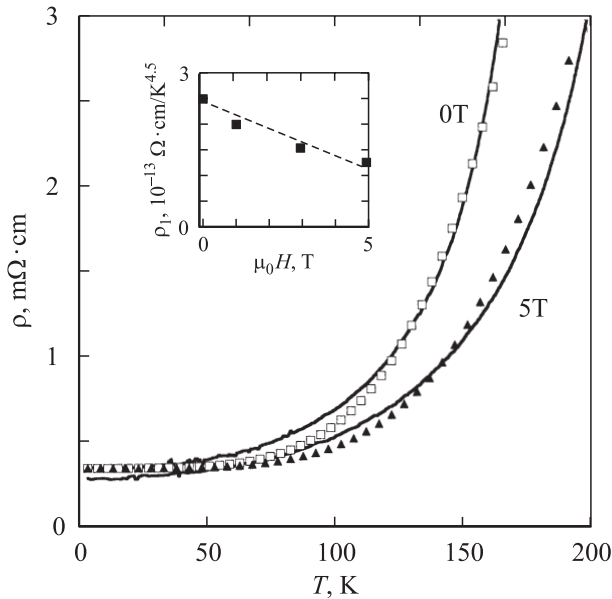
метрических образцов и эпитаксиальных пленок LCMO, сформированных на (001)LSATO [5]. ( $T_M$  для объемных кристаллов LCMO незначительно отличается от температуры Кюри  $T_C$  [14]). Понижение  $T_M$  для пленок LCMO/BSTO/LSATO может быть частично обусловлено нарушением их стехиометрии. Обеднение пленки LCMO кислородом (кальцием) сопровождается увеличением относительной концентрации ионов  $\text{Mn}^{3+}$  в ее объеме, что в соответствии с фазовой диаграммой, полученной для керамических образцов  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  [15], должно приводить к понижению температуры ферромагнитного упорядочения спинов на ионах марганца. Неоднородная упругая деформация манганитной пленки увеличивает разброс в значениях эффективной длины связей между ионами марганца и кислорода, что также вносит вклад в снижение  $T_M$  [16].

Магнитное поле способствует ферромагнитному упорядочению спинов в манганитной пленке и увеличению  $T_M$ . При возрастании  $\mu_0 H$  в интервале 0–5 T максимум на зависимостях  $\rho(T, H)$  для пленок LCMO/BSTO/LSATO сдвигался в сторону высоких температур (на 45 K при  $\mu_0 H = 5$  T), а пиковое значение электросопротивления понижалось в три–четыре раза (рис. 3).

При  $T < T_C$  наряду с электрон–электронным взаимодействием, рассеянием электронов на фононах и дефектах структуры вклад в электросопротивление  $3d$  ферромагнитных металлов вносит разупорядочение спинов [17]. Согласно данным [18], вектор спонтанной намагниченности в пленке LCMO, двухосно механически напряженной подложкой (растяжение), ориентируется преимущественно параллельно плоскости последней. Неоднородность напряжений, так же как и азимутальная разориентация кристаллических зерен, усиливает беспорядок в системе электронных спинов на ионах марганца. Вклад электрон–магнитного взаимодействия в электросопротивление манганитной пленки должен становиться существенным, когда основная часть ее объема находится в ферромагнитном состоянии, т.е. при  $T \ll T_C$ . Когда процесс релаксации носителей заряда определяется в основном их взаимодействием со спиновыми волнами, электропроводность ферромагнетика, согласно [19], должна следовать соотношению  $\rho \sim \rho_1 T^{4.5}$ , где  $\rho_1$  — коэффициент, зависящий от магнитного поля, но не зависящий от температуры. Температурные зависимости электросопротивления пленки LCMO/BSTO/LSATO, измеренные при  $\mu_0 H$ , равном 0 и 5 T, приведены на рис. 4 (сплошные кривые). При  $T < 200$  K и  $\mu_0 H = 0\text{--}5$  T экспериментально полученные зависимости  $\rho(T, H)$  могут быть хорошо аппроксимированы соотношением

$$\rho(T, H) = \rho_0 + \rho_1(H)T^{4.5}, \quad (2)$$

где  $\rho_0 = 3.5$  mΩ·cm — не зависящая от температуры и магнитного поля постоянная, значения коэффициента  $\rho_1(H)$  определены при различной напряженности магнитного поля из наклона экспериментальных зависимостей  $\rho \sim T^{4.5}$  в интервале температуры



**Рис. 4.** Температурные зависимости электросопротивления  $\rho$  пленки (50 nm)LCMO/(80 nm)BSTO/(001)LSATO, измеренные в интервале 4.2–200 К при  $\mu_0 H = 0$ ; 5 Т (сплошные кривые). Значения  $\rho$ , рассчитанные с использованием соотношения (2) для  $\mu_0 H = 0$  (квадраты) и  $\mu_0 H = 5$  Т (треугольники), хорошо согласуются с экспериментальными данными. На вставке показана зависимости коэффициента  $\rho_1$  от магнитного поля для той же пленки.

4.2–50 К.  $\rho_1$  примерно линейно убывает с увеличением напряженности магнитного поля (вставка на рис. 4). Аналогичная зависимость величины коэффициента  $\rho_1$  от магнитного поля наблюдалась в [14]. Значения  $\rho$  для пленки LCMO/BSTO/LSATO, рассчитанные с использованием соотношения (2) при  $\mu_0 H = 0$  (квадраты) и  $\mu_0 H = 5$  Т (треугольники), приведены на рис. 4. В [14] при аппроксимации кривых  $\rho(T)$ , измеренных для пленок LCMO, подвергнутых термообработке в атмосфере кислорода, в правую часть соотношения (2) был добавлен член, пропорциональный  $T^2$ , для учета вклада электрон-электронного взаимодействия в процесс релаксации носителей заряда.

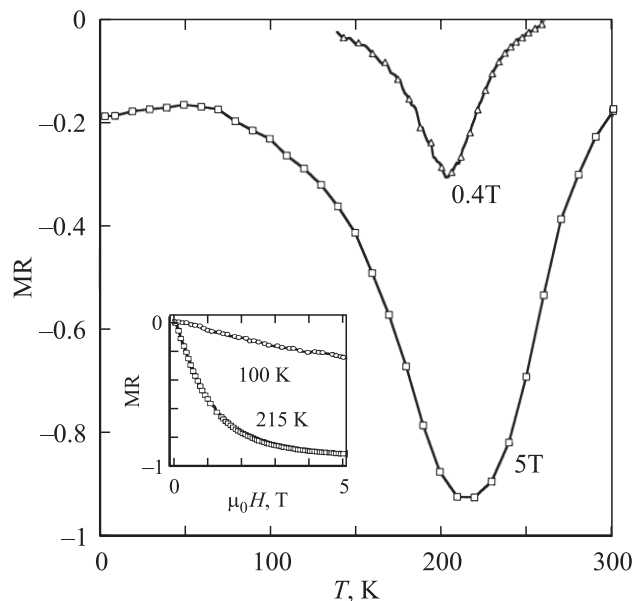
В интервале температуры 200 К– $T_M$  сопротивление пленки LCMO/BSTO/LSATO возрастало с ростом температуры быстрее, чем предсказывалось соотношением (2). Это обусловлено увеличением концентрации неферромагнитной фазы в ее объеме, что сопровождается уменьшением размеров и плотности высокопроводящих (ферромагнитных) „каналов протекания“. Существование включений ферромагнитной (с высокой проводимостью) и парамагнитной (с низкой проводимостью) фаз в объеме манганитной пленки при указанных выше температурах четко проявляется в реакции ее электросопротивления на магнитное поле. Кривые  $\rho(H)$ , измеренные для пленки LCMO/BSTO/LSATO при  $T = 215$  и 100 К, показаны на вставке рис. 3. Из представленной зависимости  $\rho(H, 215$  К) следует, что абсо-

лютная величина производной  $d\rho/dH$  при  $\mu_0 H < 1.5$  Т многократно превосходит соответствующие значения, полученные при  $\mu_0 H > 3.5$  Т. Резкое падение электросопротивления пленки LCMO/BSTO/LSATO с увеличением напряженности магнитного поля ( $\mu_0 H < 1.5$  Т) обусловлено возрастанием концентрации ферромагнитной фазы (увеличением плотности „каналов протекания“). При  $\mu_0 H > 3.5$  Т основная часть объема пленки LCMO/BSTO/LSATO находится в ферромагнитном состоянии, и наблюдаемое относительно слабое (примерно линейное) уменьшение ее электросопротивления с увеличением  $\mu_0 H$  обусловлено ослаблением электрон-магнетонного взаимодействия вследствие пространственного упорядочения электронных спинов на ионах марганца. При низких температурах ( $T \leq 150$  К) включения парамагнитной фазы составляют незначительную часть объема манганитной пленки уже при  $H = 0$ , поэтому ее электросопротивление практически линейно изменяется с увеличением  $\mu_0 H$  в интервале 0–5 Т (вставка на рис. 3). Это хорошо согласуется с соответствующими данными для объемных образцов 3d ферромагнитных металлов [17].

В интервале температуры  $T_M$ –300 К электропроводность пленки LCMO следовала соотношению  $\ln\rho(H = 0) \sim E_A/k_B T$ , где  $E_A = 0.14$  eV ( $k_B$  — постоянная Больцмана). Такой характер температурной зависимости сопротивления парамагнитной фазы манганитов ( $T > T_C$ ) может быть обусловлен формированием в их объеме малых поляронов [20,21], подвижность которых экспоненциально возрастает с температурой. Структурные исследования [22] подтверждают наличие существенных искажений кристаллической решетки в LCMO при  $T > T_C$ , которые в значительной степени исчезают при  $T < T_C$ .

Переходя к анализу полученных данных по магнетосопротивлению пленок LCMO/BSTO/LSATO, следует отметить, что интенсивность электрон-электронного и электрон-фонного взаимодействия не зависит существенно от напряженности магнитного поля [14,17]. Среди механизмов, способствующих понижению электросопротивления пленок LCMO/BSTO/LSATO с увеличением  $H$ , следует выделить следующие три: а) при  $T < T_C$ , магнитное поле усиливает затухание спиновых волн, что способствует увеличению времени релаксации носителей заряда (дырок); б) при температурах, близких к  $T_C$ , магнитное поле увеличивает плотность ферромагнитных высокопроводящих „каналов протекания“ в объеме манганитной пленки; в) магнитное поле способствует уменьшению относительной разориентации спинов в межкристаллитных прослойках относительно их ориентации в объеме кристаллитов.

Температурные зависимости магнетосопротивления  $MR = [\rho(\mu_0 H) - \rho(0)]/\rho(0)$  для пленки LCMO/BSTO/LSATO, измеренные в магнитном поле 0.4 и 5 Т, приведены на рис. 5. При  $\mu_0 H = 0.4$  Т, максимальные значения отрицательного магнетосопротивления для выращенных манганитных пленок наблюдались



**Рис. 5.** Температурные зависимости магнетосопротивления  $MR = [\rho(\mu_0H) - \rho(0)]/\rho(0)$  манганитной пленки в гетероструктуре  $(50 \text{ nm})\text{LCMO}/(80 \text{ nm})\text{BSTO}/(001)\text{LSATO}$ , измеренные при  $\mu_0H = 0.4$  и  $5 \text{ T}$ . Зависимости магнетосопротивления той же пленки от магнитного поля, полученные при температурах  $100$  и  $215 \text{ K}$ , показаны на вставке.

в окрестности  $205 \text{ K}$ . С увеличением  $H$  пик на кривой  $MR(T, H)$  сдвигался в сторону высоких температур. Ширина пика (измеренная на половине высоты) на зависимости  $MR(T, H)$  для пленок  $\text{LCMO}/\text{BSTO}/\text{LSATO}$  в несколько раз превышала соответствующее значение для пленок  $\text{LCMO}$ , выращенных на подложках с малым  $m$  [5]. Кроме того, значения  $MR$ , полученные для пленок  $\text{LCMO}/\text{BSTO}/\text{LSATO}$  при низких температурах ( $T < 10 \text{ K}$ ) значительно превосходят магнетосопротивление пленок  $\text{LCMO}$ , выращенных на подложках с малым  $m$  и подвергнутых термообработке в кислороде [6]. Данный факт отчасти может быть обусловлен наличием в пленке  $\text{LCMO}/\text{BSTO}/\text{LSATO}$  межкристаллитных границ с нарушенной стехиометрией [23].

Зависимости магнетосопротивления пленки  $\text{LCMO}/\text{BSTO}/\text{LSATO}$  от магнитного поля при  $T = 215$  и  $100 \text{ K}$  приведены на вставке рис. 5. При  $T = 100 \text{ K}$  отрицательное  $MR$  пленки  $\text{LCMO}/\text{BSTO}/\text{LSATO}$  практически линейно возрастало с увеличением  $\mu_0H$ , что хорошо согласуется с полученной зависимостью коэффициента  $\rho_1$  (см. соотношение (2)) от напряженности магнитного поля (вставка на рис. 4). Таким образом, при  $0 < \mu_0H < 5 \text{ T}$  зависимость  $MR(H, 100 \text{ K})$  в значительной степени определяется рассеянием носителей заряда (дырок) на магнонах. При температурах, близких к  $T_M$ , влияние рассеяния на магнонах на характер зависимости электросопротивления пленки  $\text{LCMO}/\text{BSTO}/\text{LSATO}$  от напряженности магнитного поля становится доминирующим только при  $\mu_0H > 3.5 \text{ T}$  (вставка на рис. 5,

$MR(H, T = 215 \text{ K})$ ). Аномально резкое возрастание отрицательного магнетосопротивления с ростом  $H$  при относительно малой напряженности магнитного поля ( $\mu_0H < 1/5 \text{ T}$ ) обусловлено в значительной степени увеличением плотности ферромагнитных высокопроводящих „каналов протекания“ в объеме манганитной пленки.

## 4. Заключение

Растягивающие механические напряжения, действующие в процессе зародышеобразования и роста манганитных пленок  $(50 \text{ nm})\text{LCMO}$ , способствуют нарушению стехиометрии последних (обеднение кислородом и/или кальцием), что проявляется в увеличении объема элементарной ячейки и приводит к уменьшению относительной концентрации четырехвалентных ионов марганца. Увеличение концентрации ионов  $\text{Mn}^{3+}$  в манганитной пленке ослабляет ферромагнитное взаимодействие между ионами марганца, реализуемое путем „двойного обмена“ электронами между  $\text{Mn}^{3+}$  и  $\text{Mn}^{4+}$  с участием иона кислорода. Это, отчасти, является причиной сдвига максимума на температурной зависимости электросопротивления пленки  $(50 \text{ nm})\text{LCMO}/(80 \text{ nm})\text{BSTO}/\text{LSATO}$  в сторону низких температур относительно его положения на кривой  $\rho(T, H = 0)$  для объемных стехиометрических образцов  $\text{LCMO}$ . При  $T < T_C$  неоднородность механических напряжений, флуктуации плотности вакансий кислорода и вакансий в катионной подрешетке так же, как и азимутальная разориентация кристаллических зерен в пленке  $\text{LCMO}/\text{BSTO}/\text{LSATO}$ , усиливают разориентацию электронных спинов на ионах марганца, что увеличивает вклад спиновых волн в процесс релаксации носителей заряда. При температурах вблизи фазового ферромагнитного перехода магнитное поле увеличивает относительную концентрацию включений ферромагнитной фазы в объеме манганитной пленки. Магнитное поле также усиливает затухание спиновых волн, уменьшает пространственную разориентацию электронных спинов на ионах марганца, расположенных в области межкристаллитных границ зерен и в объеме кристаллитов.

## Список литературы

- [1] Y. Tokura. In: Colossal Magnetoresistive Oxides / Ed. Y. Tokura. Gordon and Breach Science Publ., Amsterdam, The Netherlands (2000). P. 2.
- [2] S.S.P. Parkin, K.P. Roche, M.G. Samant, P.M. Rice, R.B. Beyers, R.E. Scheuerlein, E.J. O'Sullivan, S.L. Brown, J. Bucchigano, D.W. Abraham, Yu. Lu, M. Rooks, P.L. Trouilloud, R.A. Wanner, W.J. Gallagher. *J. Appl. Phys.* **85**, 8, 5828 (1999).
- [3] 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).

- [4] V.V. Srinivasu, S.E. Lofland, S.M. Bhagat, K. Ghosh, S.D. Tyagi. *J. Appl. Phys.* **86**, 2, 1067 (1999).
- [5] Ю.А. Бойков, Т. Клаесон, А.Ю. Бойков. *ЖТФ* **71**, 10, 54 (2001).
- [6] Ю.А. Бойков, В.А. Данилов, А.Ю. Бойков. *ФТТ* **45**, 4, 649 (2003).
- [7] Yu.A. Boikov, T. Claeson. *Physica B* **311**, 3–4, 250 (2002).
- [8] C.J. Lu, Z.L. Wang, C. Kwon, Q.X. Jia. *J. Appl. Phys.* **88**, 7, 4032 (2000).
- [9] K.H. Kim, J.Y. Gu, H.S. Choi, G.W. Park, T.W. Noh. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 9, 1877 (1996).
- [10] T.I. Kamins. *J. Appl. Phys.* **49**, 9, 4357 (1971).
- [11] A. von Hippel. *Rev. Mod. Phys.* **22**, 3, 221 (1950).
- [12] Ю.А. Бойков, Т. Клаесон, А.Ю. Бойков. *ФТТ* **45**, 6, 1040 (2003).
- [13] E.D. Specht, T.E. Clausing, L. Heatherly. *J. Mater. Res.* **5**, 11, 2351 (1990).
- [14] G.J. Snyder, R. Hiskes, S. DiCarolis, M.R. Beasley, T.H. Geballe. *Phys. Rev. B* **53**, 21, 14434 (1996).
- [15] P. Shieffer, A.P. Ramirez, W. Bao, S.-W. Cheong. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 18, 3336 (1995).
- [16] L.M. Rodriguez-Martinez, J.P. Attfield. *Phys. Rev. B* **54**, 22, R15622 (1996).
- [17] B. Raquet, M. Viret, J.M. Broto, E. Sondergard, O. Cespedes, R. Many. *J. Appl. Phys.* **91**, 10, 8129 (2002).
- [18] Y.-A. Soh, G. Aeppli, N.D. Mathur, M.G. Blamire. *J. Appl. Phys.* **87**, 9, 6743 (2000).
- [19] K. Kubo, N. Ohata. *J. Phys. Soc. Jpn.* **33**, 1, 21 (1972).
- [20] M. Jaine, M.B. Salamon, M. Rubinstein, R.E. Treece, J.S. Horwitz, D.B. Chrisey. *Phys. Rev. B* **54**, 17, 11914 (1996).
- [21] G. Zhao, Y.S. Wang, D.J. Kang, W. Prellier, M. Rajeswari, H. Keller, T. Venkatesan, C.W. Chu, R.L. Creene. *Phys. Rev. B* **62**, 18, R11949 (2000).
- [22] P.J. Radaelli, M. Marezio, H.Y. Hwang, S.-W. Cheong, B. Batlogg. *Phys. Rev. B* **54**, 13, 8992 (1996).
- [23] R. Mahesh, R. Mahendiran, A.K. Raychaudhuri, C.N.R. Rao. *Appl. Phys. Lett.* **68**, 16, 2291 (1996).