

Диэлектрический отклик на изменение температуры и электрическое поле для слоя (1000 nm)SrTiO₃, выращенного эпитаксиально на (001)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃

© Ю.А. Бойков, Т. Клаесон*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия
E-mail: Yu.Boikov@mail.ioffe.ru

* Чалмерский технический университет,
S-41296 Гётеборг, Швеция

(Поступила в Редакцию 18 сентября 2003 г.
В окончательной редакции 11 ноября 2003 г.)

Исследованы структуры и диэлектрические параметры промежуточного слоя (1000 nm)SrTiO₃ в трехслойной гетероструктуре (001)SrRuO₃ || (001)SrTiO₃ || (001)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃, сформированной на подложке (001)(LaAlO₃)_{0.3} + (Sr₂AlTaO₆)_{0.7}. Оба оксидных электрода, так же как и слой из титаната стронция, выращены эпитаксиально — „куб на куб“. Параметр элементарной ячейки в слое SrTiO₃, измеренный в плоскости подложки ($3.908 \pm 0.003 \text{ \AA}$), практически совпадал с соответствующим параметром ($3.909 \pm 0.003 \text{ \AA}$), измеренным вдоль нормали к ее поверхности. В интервале 70–180 К температурная зависимость вещественной части диэлектрической проницаемости ϵ' слоя SrTiO₃ хорошо аппроксимировалась соотношением $(\epsilon')^{-1} \sim \epsilon_0^{-1} C_0^{-1} (T - T_C)$, где C_0 и T_C — соответственно постоянная Кюри и температура Кюри-Вейса для объемных кристаллов титаната стронция, ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума. Полученные данные по зависимости диэлектрической проницаемости пленок SrTiO₃ от температуры позволили оценить эффективную глубину проникновения электрического поля в манганитный электрод ($L_e \approx 0.5 \text{ nm}$) и связанную с этим емкость ($C_e \approx 1 \cdot 10^{-6} \text{ F/cm}^2$) межфазной границы между слоем (001)SrTiO₃ и нижним электродом (001)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃.

Частичная финансовая поддержка данных исследований получена в рамках проекта „Низкоразмерные квантовые наноструктуры“.

1. Введение

Тонкие слои (Ba,Sr)TiO₃ (BSTO) перспективны для применения в микроэлектронике (ячейки оперативной памяти [1]) и СВЧ-технике (перенастраиваемые фильтры, фазовращатели, линии задержки и т.д. [2]). Диэлектрическая проницаемость $\epsilon = \epsilon' - i\epsilon''$ (ϵ' и ϵ'' — вещественная и мнимая части диэлектрической проницаемости), ток утечки и тангенс угла диэлектрических потерь $\text{tg} \delta = \epsilon''/\epsilon'$ пленки BSTO сильно зависят от ее микроструктуры, которая определяется условиями роста, параметрами подложки и проводящего материала, использованного в качестве электродов. Для тонких пленок BSTO реакция ϵ' на электрическое поле и изменение температуры, как правило, существенно слабее, чем соответствующий отклик для монокристаллов. Помимо деградации микроструктуры в качестве возможных причин резкого различия температурных и полевых зависимостей ϵ' для тонкопленочных и объемных образцов BSTO отмечались: 1) формирование на межфазной границе пленка/электрод прослойки с нарушенной стехиометрией [3]; 2) сильное электрическое поле в объеме сегнетоэлектрического слоя [4]; 3) двухосные механические напряжения [5], возникающие вследствие рассогласования в параметрах кристаллических решеток и температурных коэффициентов линейного расширения пленки и подложки и т.д.

По сравнению с поликристаллическими слоями эпитаксиальные пленки BSTO более удобны для применения, поскольку они четко ориентированы (для пара- и сегнетоэлектрической фазы BSTO характерна анизотропия параметров [6,7]) как относительно нормали к плоскости подложки, так и азимутально; кроме того, в их объеме отсутствуют большеугловые границы, в окрестности которых имеет место нарушение стехиометрии (прежде всего, по кислороду). При формировании пленочных плоскопараллельных конденсаторов с эпитаксиальным промежуточным слоем BSTO в качестве нижнего электрода успешно использовались тонкие слои проводящих перовскитоподобных оксидов SrRuO₃ (SRO), (La,Sr)CoO₃, YBa₂Cu₃O_{7- δ} [4,8].

В данной работе представлены результаты исследования структуры и диэлектрических параметров слоя SrTiO₃ (STO), выращенного на поверхности проводящей манганитной пленки (120 nm)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ (LCMO). Привлекательность использования тонких пленок перовскитоподобных манганитов в качестве электродов в емкостной гетероструктуре, включающей сегнетоэлектрический слой, обусловлена тем, что при температурах в окрестности фазового ферромагнитного перехода эффективная концентрация дырок в их объеме сильно зависит от магнитного поля, что позволяет создать перенастраиваемые элементы (речь идет об изменении импеданса гетероструктуры магнитным полем). В литературе

имеется ограниченное число работ [9], посвященных исследованию эпитаксиальных гетероструктур, включающих тонкие слои манганитов и сегнетоэлектриков.

В качестве материала верхнего электрода использовался рутенат стронция. Ранее нами было показано [10], что „паразитная“ емкость на единицу площади межфазной границы BSTO/SRO значительно больше соответствующей емкости контакта BSTO/благородный металл.

2. Эксперимент

Эксиммерный лазер (ComPex 205, KrF, $\lambda = 248$ nm, $\tau = 30$ ns) был использован для последовательного испарения исходных стехиометрических мишеней LCMO \rightarrow STO \rightarrow SRO, приготовленных по стандартной керамической технологии. Трехслойные гетероструктуры (100 nm)SRO/(1000 nm)STO/(120 nm)LCMO выращивались на поверхности монокристаллической подложки (001) $(\text{LaAlO}_3)_{0.3} + (\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}$ (LSATO) при давлении кислорода $P_{\text{O}} = 0.3$ mbar. Плотность лазерного излучения на поверхности мишеней находилась в пределах 1.8–2.0 J/cm². Температура подложки при формировании электродов (LCMO и SRO) равнялась $T_s = 760^\circ\text{C}$. Значение T_s было увеличено до 780°C при напылении слоя STO.

Фазовый состав выращенных гетероструктур, ориентация пленок, их составляющих, и параметры кристаллических решеток в электродах и промежуточном слое STO исследовались с применением рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, $\text{CuK}\alpha_1$, $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканы, кривые качания). Чтобы оценить средний размер кристаллических зерен и искажение параметра кристаллической решетки в слоях, составляющих гетероструктуру, первые четыре брэгговских пика (от каждого из слоев) на $\omega/2\theta$ -сканах были визуализированы с использованием четырехкристального германиевого монохроматора ($\{220\}\text{Ge}$) для формирования падающего рентгеновского пучка и плоского графитового монохроматора для измерения 2θ .

Морфология свободной поверхности выращенных пленок исследовалась с помощью микроскопа атомных сил (NanoScope-IIIa, tapping mode).

Квадратные контактные площадки ($S = 200 \times 200 \mu\text{m}$) в верхнем электроде SRO, так же как и „окна“ в промежуточном слое STO (для обеспечения электрического контакта с нижним общим электродом LCMO), были сформированы с использованием фотолитографии и ионного травления (Ag, 500 V, 0.2 mA).

Емкость $C = \epsilon'S/d$ и тангенс угла диэлектрических потерь $\text{tg}\delta$ сформированных плоскопараллельных конденсаторных структур SRO/STO/LCMO (рис. 1) измерялись с помощью прибора hp 4263A LCR-meter ($f = 100$ kHz) при постоянном напряжении смещения $V_b = \pm 2.5$ V на оксидных электродах и без него. Тот же LCR-meter применялся для измерения сопротивления R проводящих оксидных электродов в геометрии

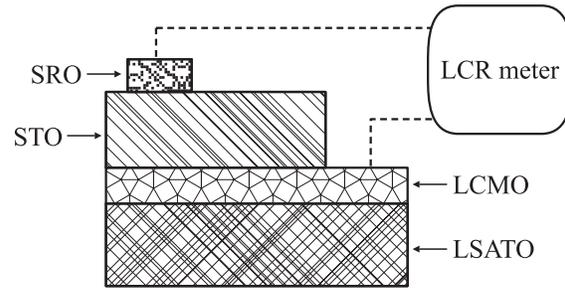


Рис. 1. Эскиз плоскопараллельной емкостной гетероструктуры, использованной для исследования диэлектрических параметров слоя (1000 nm)STO, выращенного на поверхности (001)LCMO || (001)LSATO.

Van der Pauw. Электросопротивление ρ пленочных электродов рассчитывалось с использованием соотношения $\rho = R\pi d_1 / \ln 2$ [11], где d_1 — толщина слоя проводящего оксида.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Структура, диэлектрические и электронные свойства гетероэпитаксиальных пленок перовскитоподобных оксидов сильно зависят от условий их роста и свойств подложки. Различие в температурных коэффициентах линейного расширения и рассогласование m в параметрах кристаллических решеток конденсируемого материала a_L и материала подложки a_s ($m = (a_L - a_s)/a_s \cdot 100\%$) являются основными причинами возникновения двухосных механических напряжений, которые оказывают существенное влияние на электронный транспорт, сегнетоэлектричество и ферромагнетизм в тонких слоях перовскитоподобных оксидов.

Температурные коэффициенты линейного расширения для SRO, STO, LCMO и LSATO имеют близкие значения [4]. Параметры решеток LCMO (псевдокубическая элементарная ячейка, $a_1 = 3.858 \text{ \AA}$ [12], $T = 300$ K) и LSATO (псевдокубическая, $a_2 = 3.868 \text{ \AA}$ [13], $T = 300$ K) отличаются незначительно: $m \approx -0.3\%$. Это определило выбор LSATO в качестве материала подложки. Параметр кубической элементарной ячейки STO ($a_3 = 3.905 \text{ \AA}$ [14]) больше параметра решетки LCMO ($m \approx 1\%$), по этой причине манганитная пленка, сформированная на подложке из титаната стронция, находится под действием растягивающих в плоскости подложки механических напряжений. Для тонких эпитаксиальных пленок LCMO, выращенных на поверхности монокристаллов из титаната стронция, характерны высокие значения электросопротивления ρ и низкие значения температуры фазового ферромагнитного перехода [15] (по сравнению с соответствующими данными для манганитных пленок, выращенных на (001)LSATO). Чтобы сформировать верхний электрод

с высокой проводимостью во всем исследованном интервале температур (4.2–300 К), на поверхности STO/LCMO/LSATO выращивалась эпитаксиальная пленка рутената стронция (параметр псевдокубической ячейки SRO равен 3.923 Å [16], $T = 300$ К). Применение различных проводящих оксидов в качестве материала нижнего и верхнего электродов позволило оценить (используя полученные рентгеновские данные) параметры кристаллических решеток как в плоскости подложки, так и вдоль нормали к ее поверхности для всех слоев в сформированных трехслойных гетероструктурах.

Сначала проанализируем данные по структуре и морфологии поверхности слоев, составляющих гетероструктуру SRO/STO/LCMO/(001)LSATO, а затем данные по электрическим параметрам электродов и диэлектрическим свойствам слоя STO.

3.1. Структура слоев в трехслойной системе SRO/STO/LCMO. На рентгеновских дифрактограммах от гетероструктуры SRO/STO/LCMO нами не было обнаружено пиков, которые указывали бы на присутствие в ее объеме или на свободной поверхности макровключений вторичных фаз (рис. 2). Рефлексы от электродов (SRO и LCMO), слоя STO и подложки на измеренных рентгеновских сканах четко разрешались (рис. 2). Из полученных рентгеновских данных ($\omega/2\theta$ - и ϕ -сканы) следует, что сегнетоэлектрическая пленка и оксидные электроды в выращенных гетероструктурах преимущественно четко ориентированы (как азимутально, так и относительно нормали к плоскости подложки), причем плоскость (001) и направление [010] в SRO, STO и LCMO параллельны плоскости (001) и направлению [010] в подложке LSATO.

Параметр кристаллической решетки слоя (120 nm)LCMO в гетероструктуре SRO/STO/LCMO/LSATO, измеренный вдоль нормали к плоскости подложки ($a_{\perp} = 3.837 \pm 0.003$ Å), меньше соответствующего параметра, измеренного в плоскости подложки ($a_{\parallel} = 3.866 \pm 0.003$ Å) (см. таблицу). Параметр a_{\parallel} в манганитном слое совпадал с параметром псевдокубической элементарной ячейки LSATO, т.е. пленка LCMO выращена когерентно на поверхности подложки. Из-за отрицательной величины m выращенные пленки (001)LCMO || (001)LSATO находились под действием слабых растягивающих в плоскости подложки механических напряжений. При анализе измеренных

Параметры слоев в выращенной гетероструктуре (001)SRO || (001)STO || (001)LCMO || (001)LSATO ($T = 300$ К)

Слой	d , nm	a_{\perp} , Å	a_{\parallel} , Å	V_{ef} , Å ³	t , nm	$(\Delta a/a) \cdot 10^4$
LCMO	120	3.837	3.866	57.32	150	11
STO	1000	3.908	3.909	59.72	60	3
SRO	100	3.973	3.915	60.89	40	26

Примечание. Параметр псевдокубической решетки в использованных подложках LSATO, рассчитанный с использованием полученных рентгеновских данных, равнялся 3.867 ± 0.003 Å.

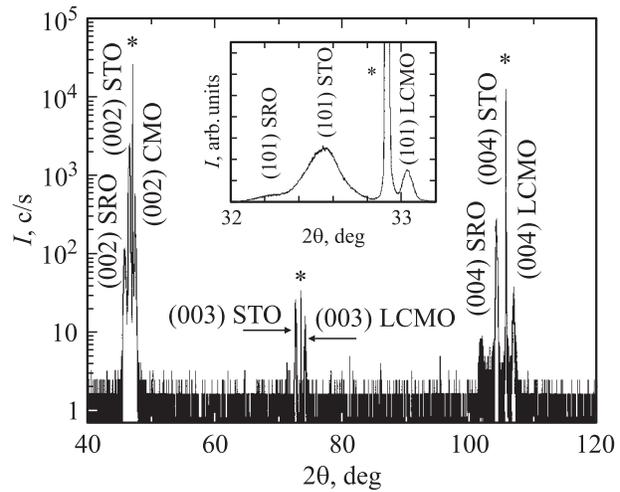


Рис. 2. Рентгеновская дифрактограмма ($CuK\alpha_1$, $\omega/2\theta$) для гетероструктуры (001)SRO || (001)STO || (001)LCMO || (001)LSATO, полученная в условиях, когда плоскость, включающая падающий и отраженный рентгеновские пучки, перпендикулярна плоскости подложки. Звездочка соответствует пикам от подложки. На вставке приведен фрагмент дифрактограммы для той же гетероструктуры, полученной в случае, когда плоскость, включающая падающий и отраженный рентгеновские пучки, перпендикулярна (101)LSATO.

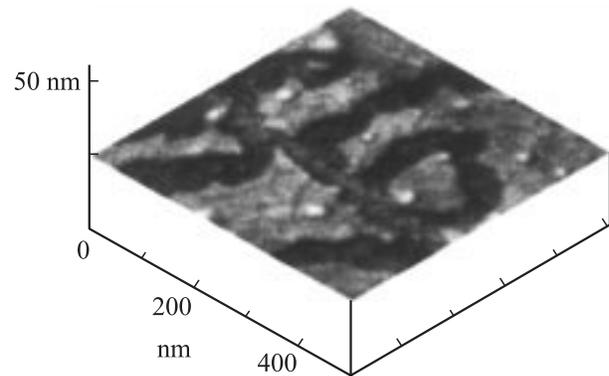


Рис. 3. Изображение свободной поверхности пленки (120 nm)LCMO, выращенной когерентно на поверхности (001)LSATO. На поверхности пленки четко видны ступени роста, высота которых кратна параметру решетки LCMO. Изображение получено с помощью микроскопа атомных сил.

дифрактограмм ($2\theta = 20-120^\circ$) нам не удалось выявить какую-либо сложную структуру рентгеновских пиков (00 n)LCMO, которая указывала бы на релаксацию механических напряжений в манганитной пленке толщиной 120 nm (или в отдельной ее части). Эффективный объем элементарной ячейки $V_{ef} = a_{\perp} a_{\parallel}^2 \approx 57.32$ Å³ в слое LCMO гетероструктуры SRO/STO/LCMO незначительно отличался от найденного для объемных стехиометрических образцов LCMO: $V_{ef} = 57.42$ Å³ [12] (см. таблицу).

Пленки LCMO, выращенные на подложке (001)LSATO, обладали гладкой поверхностью (рис. 3).

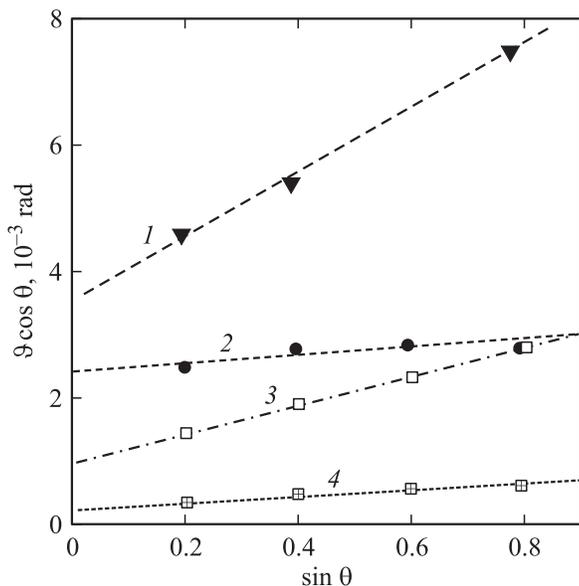


Рис. 4. Зависимость произведения $\vartheta \cos \theta$ от $\sin \theta$ для верхнего электрода SRO (1), промежуточного слоя STO (2), нижнего электрода LCMO (3) и подложки LSATO (4) в гетероструктуре (100 nm)SRO/(1000 nm)STO/(120 nm)LCMO/(500 μ m)LSATO.

На изображении свободной поверхности манганитной пленки, полученном с помощью микроскопа атомных сил, четко видны ступени роста, высота которых кратна параметру решетки LCMO. В отличие от тонких пленок LCMO, выращенных на поверхности подложек со значительным отрицательным (например, STO) или положительным (LaAlO₃) рассогласованием в параметрах кристаллических решеток, на поверхности сформированных в данной работе слоев (001)LCMO || (001)LSATO нами не было обнаружено характерных углублений [17], декорирующих малоугловые границы в манганитном слое.

Параметр кристаллической решетки в слое титаната стронция в гетероструктуре SRO/STO/LCMO, измеренный в плоскости подложки, практически совпадал с соответствующим параметром, измеренным вдоль нормали к ее поверхности (см. таблицу). Релаксация механических напряжений в слое STO происходила в процессе его осаждения и охлаждения до комнатной температуры.

Пленка (100 nm)SRO в гетероструктуре SRO/STO/LCMO/LSATO находилась под действием сжимающих в плоскости подложки механических напряжений. В случае пленки SRO, выращенной на поверхности STO, рассогласование в параметрах решеток составляет $\approx 0.7\%$. Параметр кристаллической решетки, измеренный в слое рутената стронция вдоль нормали к плоскости подложки ($3.973 \pm 0.003 \text{ \AA}$), существенно больше соответствующего параметра в плоскости подложки ($3.915 \pm 0.003 \text{ \AA}$). Для эпитаксиальных пленок SRO характерно „стремление“ расти когерентно на поверхности подложки даже с существенным значением m [18].

Для оценки средних размеров кристаллов в проводящих электродах и в промежуточном слое сегне-

тоэлектрика в гетероструктуре SRO/STO/LCMO нами были использованы данные по зависимости полуширины (ширина, измеренная на половине высоты) ϑ пиков на полученных рентгеновских дифрактограммах от θ (рис. 4). Согласно [19], зависимость ϑ от эффективного размера кристаллических зерен t и средней относительной величины искажения параметра решетки $\Delta a/a$ в пленке может быть представлена в виде

$$\vartheta \cos \theta = 0.9\lambda_1/t + 2\Delta a/a \sin \theta, \quad (1)$$

где $\lambda_1 = 1.54056 \text{ \AA}$ — длина волны рентгеновского излучения. Используя соотношение (1) и полученные из рентгеновских данных зависимости $\vartheta \cos \theta$ от $\sin \theta$, мы определили (по отрезку, отсекаемому прямой на оси ординат) значения t для всех слоев, входящих в гетероструктуру (см. таблицу). По величине тангенса угла наклона приведенных на рис. 4 зависимостей была определена величина относительного искажения параметра решетки в оксидных электродах и в промежуточном слое сегнетоэлектрика (см. таблицу). Наибольшее значение $t \approx 150 \text{ nm}$ было получено для нижнего электрода в гетероструктуре SRO/STO/LCMO, причем оно мало отличается от толщины манганитного слоя. Таким образом, если слой LCMO в гетероструктуре SRO/STO/LCMO состоит из кристаллических зерен, то средний размер последних составляет 150 nm. Механизмы, ответственные за возникновение межзеренных границ в когерентно выращенных эпитаксиальных пленках, рассмотрены нами в [20]. Средний размер кристаллических зерен в пленке STO, выращенной на LCMO/LSATO, равен 60 nm, что хорошо согласуется с соответствующими данными для слоя (700 nm)Ba_{0.25}Sr_{0.75}TiO₃, выращенного на поверхности SRO/LSATO [4]. Наибольшие значения $\Delta a/a$ были получены для верхнего электрода (SRO) в гетероструктуре SRO/STO/LCMO, который состоял из кристаллических зерен с наименьшими размерами (см. таблицу).

При указанных выше условиях роста структура слоя STO в трехслойной системе SRO/STO/LCMO в значительной степени определяется качеством структуры и морфологией свободной поверхности манганитного электрода. Малое рассогласование в параметрах кристаллических решеток LCMO и LSATO способствует формированию высокосовершенных эпитаксиальных пленок (001)LCMO на поверхности (001)LSATO [21]. Полуширина кривой качания для рентгеновского рефлекса (002) от пленки (120 nm)LCMO в гетероструктуре (001)SRO || (001)STO || (001)LCMO || (001)LSATO находилась в пределах 0.06–0.09°, что примерно вдвое меньше полуширины кривой качания для рентгеновского пика (002) от слоя STO в той же гетероструктуре (см. вставку на рис. 5). Кривая качания для рентгеновского пика (002) от монокристаллической подложки LSATO показана на том же рисунке (для сравнения).

3.2. Электросопротивление пленок SRO и LCMO в гетероструктуре SRO/STO/LCMO. Измеренные температурные зависимости ρ для слоя LCMO в

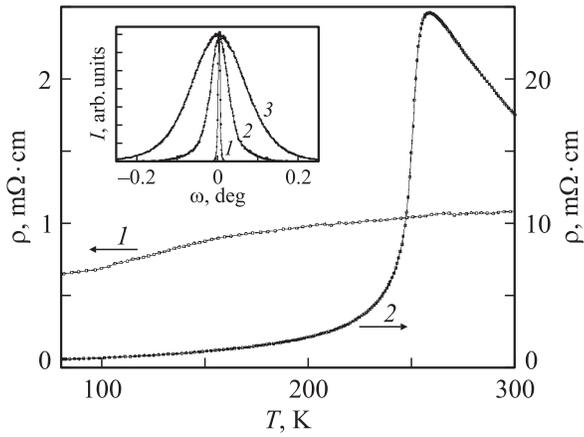


Рис. 5. Температурные зависимости электросопротивления ρ для слоя (100 nm)SRO, выращенного на (1000 nm)STO/(120 nm)LCMO/LSATO (1), и слоя LCMO в гетероструктуре (1000 nm)STO/(120 nm)LCMO/LSATO (2); $f = 100$ Hz. На вставке приведены кривые качания для рентгеновского пика (002) от подложки LSATO (1), нижнего электрода LCMO (2) и промежуточного слоя STO (3) в гетероструктуре SRO/STO/LSATO.

гетероструктуре (1000 nm)STO/(120 nm)LCMO/LSATO и слоя (100 nm)SRO, сформированного на поверхности (1000 nm)STO/(120 nm)LCMO/(001)LSATO, приведены на рис. 5. Резкий максимум на кривой $\rho(T)$ для пленки (120 nm)LCMO наблюдался при $T_R \approx 255$ K, что хорошо согласуется с соответствующими данными для объемных стехиометрических образцов LCMO [22]. Нами не выявлено какой-либо систематической разницы в значениях ρ для манганитной пленки (120 nm)LCMO/LSATO до и после формирования на ее поверхности слоя (1000 nm)STO. Ферромагнитное упорядочение спинов в слое SRO является причиной изменения наклона кривой $\rho(T)$ при $T \approx 150$ K (рис. 5). Абсолютные значения электросопротивления слоя SRO в выращенных гетероструктурах были в несколько раз больше, чем для пленки рутената стронция, сформированной на монокристаллической подложке из титаната стронция. Это связано с высокой плотностью границ зерен и вакансий кислорода в слое SRO, выращенном на STO/LSATO. При $T < 200$ K проводимость как верхнего (SRO), так и нижнего (LCMO) электрода в гетероструктуре SRO/STO/LSATO превышала $500 \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ (рис. 5).

3.3. Диэлектрические параметры пленок STO. Измеренные при $V_b = 0$ и -2.5 V температурные зависимости ϵ' для слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/LSATO приведены на рис. 6. Максимум на кривой $\epsilon'(T, V_b = 0)$ наблюдался при температуре $T_M \approx 25$ K. Реакция ϵ' для слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/LSATO на электрическое поле ($E \leq 25$ kV/cm) прослеживалась вплоть до температуры 150 K. В объемных однодоменных монокристаллах STO существенное подавление ϵ' электрическим полем наблюдалось при температурах ниже температуры фазово структурно-

го перехода T_S (~ 65 K [7]). Неоднородные двухосные механические напряжения могут являться причиной заметных флуктуаций T_S в кристаллических зернах, составляющих слой STO.

В интервале 70–180 K измеренная зависимость $\epsilon'(T)$ для слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/LSATO хорошо аппроксимировалась соотношением

$$(\epsilon')^{-1} = \epsilon_0^{-1} C_0^{-1} (T - T_C) + \epsilon_1^{-1}, \quad (2)$$

где $T_C = 30$ K — температура Кюри–Вейса для монокристаллов STO [7], $C_0 = 0.86 \cdot 10^5$ K — константа, практически совпадающая с постоянной Кюри для объемных образцов титаната стронция [23], $\epsilon_1 \approx 1100\epsilon_0$.

Появление второго слагаемого в правой части соотношения (2) естественно связать с влиянием межфазных границ STO/электрод на измеряемую в эксперименте эффективную диэлектрическую проницаемость промежуточного слоя титаната стронция. Точнее говоря, с „паразитной“ емкостью $C_1 = \epsilon_1 S/d$, возникающей вследствие проникновения электрического поля в верхний и нижний электроды, которая, согласно [24,25], не зависит ни от напряженности электрического поля, ни от температуры. Рассчитанная на единицу поверхности границы STO/электрод емкость $C_e = C_1/S \approx 1 \cdot 10^{-6}$ F/cm², появляющаяся вследствие проникновения электрического поля в электрод, может быть представлена в виде [24]

$$C_e = \epsilon_e / 2.3L_e, \quad (3)$$

где ϵ_e — диэлектрическая проницаемость материала электродов, L_e — характерная глубина проникновения электрического поля в электрод. Мы не обнаружили литературных данных по величине низкочастотной ($f < 1$ MHz) диэлектрической проницаемости LCMO. Для грубой оценки L_e в пленке перовскитоподобного манганита может быть использовано значение высокочастотной диэлектрической проницаемости $\epsilon \approx 8.5\epsilon_0$,

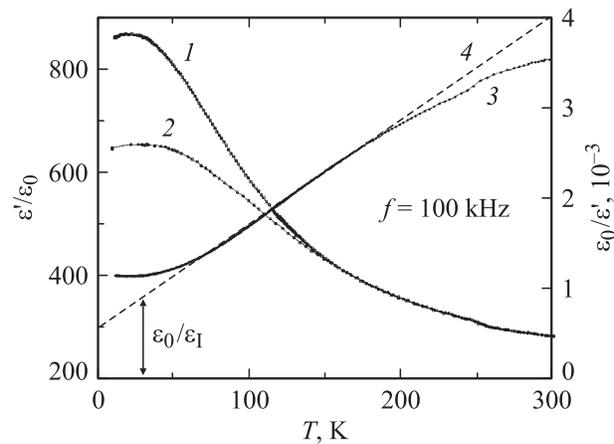


Рис. 6. Температурные зависимости ϵ'/ϵ_0 (1, 2) и ϵ_0/ϵ' (3) для слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/LSATO. $V_b = 0$ (1, 3) и -2.5 V (2). В интервале 70–180 K ϵ_0/ϵ' линейно возрастает с температурой (прямая 4).

измеренное в [26]. Предполагая, что вклады в C_e от верхней и нижней границ сегнетоэлектрик/электрод в гетероструктуре SRO/STO/LCMO примерно одинаковы, и используя соотношение (3) для характерной длины проникновения электрического поля в манганитный электрод, мы получили значение $L_e \approx 5 \text{ \AA}$. Рассчитанное с использованием (3) значение характерной глубины проникновения электрического поля в манганитный электрод почти на порядок превышает величину L_e для благородных металлов [24]. Согласно [24], L_e может быть представлена в виде

$$L_e^2 = 2\varepsilon_e E_F / 3ne^2, \quad (4)$$

где E_F — энергия Ферми, n — концентрация носителей заряда в электроде. С помощью соотношения (4) при $n \approx 6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ (концентрация дырок в электроде LCMO в соответствии с химической формулой) и значении эффективной массы дырок $m^* \approx 2.5m_0$ [22] (указанная величина m^* использована для оценки E_F ; m_0 — масса свободного электрона) для L_e получено значение 1.5 \AA . Существенное различие (в 3–4 раза) между значением L_e , полученным с использованием экспериментальных данных по температурной зависимости ε' для слоя STO, и рассчитанным на основании (4) указывает на то, что концентрация дырок в слое LCMO у границы с сегнетоэлектрическим слоем значительно ниже их концентрации в объеме манганитного слоя. Уменьшение концентрации дырок в слое LCMO у межфазной границы STO/LCMO может быть связано с его обеднением кислородом. Именно с высокой концентрацией вакансий кислорода в приповерхностном слое было связано снижение намагниченности тонких ($< 50 \text{ \AA}$) пленок LCMO при уменьшении их толщины [27].

С повышением температуры в интервале 200–255 К величина ε' для слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/LCMO убывала медленнее, чем это предсказывалось на основании соотношения (2) (см. рис. 6). Помимо изменения эффективной концентрации дырок за появление особенностей на зависимости $\varepsilon'(T)$ при температурах в окрестности ферромагнитного фазового перехода ответственны следующие факторы: 1) в указанном интервале температур происходит резкое изменение параметров кристаллической решетки в слое LCMO (искажение Яна-Теллера), что не может не сказаться на эффективной диэлектрической проницаемости манганитного электрода; 2) стенки, разделяющие ферромагнитные и антиферромагнитные домены в слое LCMO, и поляроны могут вносить вклад в ε' ; 3) в указанном интервале температур происходит резкое изменение индуктивности нижнего электрода, что может влиять на измеряемую эффективную емкость гетероструктуры SRO/STO/LCMO.

Наиболее значительное подавление ε' электрическим полем наблюдалось при температурах, близких к T_M (см. рис. 6 и вставку на рис. 7). В интервале температур 4.2–150 К гистерезиса на измеренных зависимостях

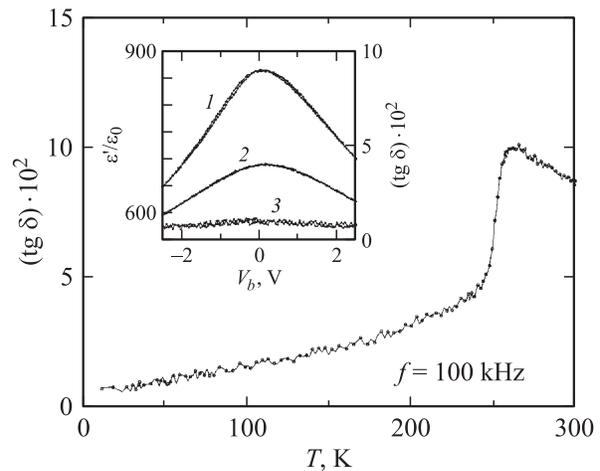


Рис. 7. Температурная зависимость $\text{tg } \delta$ для плоскопараллельной емкостной структуры SRO/STO/LCMO. На вставке приведены зависимости $\varepsilon'/\varepsilon_0(V_b)$ (1, 2) и $\text{tg } \delta(V_b)$ (3) для слоя STO в гетероструктуре SRO/STO/LCMO. T , К: 1 — 25, 2, 3 — 77.

$\varepsilon'(V_b)$ обнаружено не было (V_b изменялось в последовательности $0 \rightarrow +2.5 \text{ V} \rightarrow 0 \rightarrow -2.5 \text{ V} \rightarrow 0$ с шагом 0.05 V) (см. вставку на рис. 7). Максимум на полученных зависимостях $\varepsilon'(V_b)$ для пленок STO в выращенных гетероструктурах SRO/STO/LCMO был незначительно сдвинут в сторону положительных значений V_b . Несимметричность кривой $\varepsilon'(V_b)$ относительно точки $V_b = 0$ отчасти связана с наличием внутреннего электрического поля в объеме сегнетоэлектрического слоя, возникшего вследствие различия работ выхода для нижнего (LCMO) и верхнего (SRO) электрода.

При $T < 200 \text{ K}$ $\text{tg } \delta(V_b = 0)$ для слоя STO не превышал 0.03 и примерно линейно возрастал с температурой (рис. 7). При подаче на оксидные электроды напряжения смещения $\pm 2.5 \text{ V}$ происходило незначительное уменьшение $\text{tg } \delta$ (см. вставку на рис. 7). Резкий пик на кривой $\text{tg } \delta(T)$ обусловлен низкой проводимостью манганитного электрода при температурах в окрестности фазового ферромагнитного перехода. Максимальные значения тангенса угла диэлектрических потерь были измерены для емкостной гетероструктуры SRO/STO/LCMO при той же температуре, при которой наблюдался максимум на зависимости $\rho(T)$ для электрода LCMO.

4. Заключение

Выращенный ($T_s = 780^\circ \text{C}$, $P_O = 0.3 \text{ mbar}$) на поверхности эпитаксиальной пленки $(001)\text{LCMO} \parallel (001)\text{LSATO}$ слой титаната стронция ($d \leq 1000 \text{ nm}$) состоит из кристаллических зерен с латеральным размером $\sim 60 \text{ nm}$. Кристаллические зерна в слое STO преимущественно четко ориентированы (как азимутально, так и относительно нормали к плоскости подложки). Механические напряжения в слое $(1000 \text{ nm})\text{STO}$ гетероструктуры

SRO/STO/LCMO/LSATO релаксируют в значительной степени в процессе осаждения и охлаждения гетеро-структуры от T_s до 300 К. При $T < 180$ К характерная глубина проникновения электрического поля L_e в манганитный (LCMO) электрод составляет около 5 Å. Из-за относительно большой величины L_e „паразитная“ емкость межфазной границы STO/LCMO может оказывать существенное влияние на характер температурной зависимости ε' сегнетоэлектрического слоя.

Список литературы

- [1] C.S. Hwang. Mater. Sci. Eng. B **56**, 2–3, 178 (1998).
- [2] J.P. Hong, J.S. Lee. Appl. Phys. Lett. **68**, 21, 3034 (1996).
- [3] S.K. Streiffer, C. Basceri, C.B. Parker, S.E. Lash, A.I. Kingon. J. Appl. Phys. **86**, 8, 4565 (1999).
- [4] Y.A. Boikov, T. Claeson. Physica B **311**, 3–4, 250 (2002).
- [5] N.A. Pertsev, A.K. Tagantsev, N. Setter. Phys. Rev. B **61**, 2, R 825 (2000).
- [6] W.J. Merz. Phys. Rev. **91**, 3, 513 (1953).
- [7] R.C. Neville, B. Hoeneisen, C.A. Mead. J. Appl. Phys. **43**, 5, 2124 (1972).
- [8] Yu.A. Boikov, T. Claeson. Physica C **336**, 3–4, 300 (2000).
- [9] M. Tachiki, M. Noda, K. Yamada, T. Kobayashi. J. Appl. Phys. **83**, 10, 5351 (1998).
- [10] Yu. Boikov, T. Claeson. Appl. Phys. Lett. **80**, 24, 4603 (2002).
- [11] T.I. Kamins. J. Appl. Phys. **42**, 9, 4357 (1971).
- [12] C.J. Lu, Z.L. Wang, C. Kwon, Q.X. Jia. J. Appl. Phys. **88**, 7, 4032 (2000).
- [13] Спецификация компании Кристек, поставившей подложки LSATO.
- [14] R.W.J. Wyckoff. Crystal Structure. 2nd edition V. 2. Interscience Publ., N.Y. (1964). P. 394.
- [15] Yu.A. Boikov, D. Erts, T. Claeson. Mater. Sci. Eng. B **79**, 2, 133 (2001).
- [16] J.C. Jiang, W. Tian, X. Pan, Q. Gan, C.B. Eom. Mater. Sci. Eng. B **56**, 2–3, 152 (1998).
- [17] Ю.А. Бойков, Т. Клаесон, А.Ю. Бойков. ФТТ **45**, 6, 1040 (2003).
- [18] R.A. Rao, Q. Gan, C.B. Eom. Appl. Phys. Lett. **71**, 9, 1171 (1997).
- [19] E.D. Specht, R.E. Clausing, L. Heatherly. J. Mater. Res. **5**, 11, 2351 (1990).
- [20] Ю.А. Бойков, В.А. Данилов, А.Ю. Бойков. ФТТ **45**, 4, 649 (2003).
- [21] Ю.А. Бойков, Т. Клаесон, А.Ю. Бойков. ЖТФ **71**, 10, 54 (2001).
- [22] Y. Tokura. In: Colossal Magnetoresistive Oxides / Ed. Y. Tokura. Gordon and Breach Science Publ., Amsterdam, The Netherlands (2000). P. 1.
- [23] A.D. Hilton, B.W. Ricketts. J. Phys. D: Appl. Phys. **29**, 5, 1321 (1996).
- [24] H.Y. Ku, F.G. Ullman. J. Appl. Phys. **35**, 2, 265 (1964).
- [25] J.G. Simmons. Appl. Phys. Lett. **6**, 3, 54 (1965).
- [26] A.V. Boris, N.N. Kovaleva, A.V. Bazhenov, A.V. Samoilov, N.-C. Yeh, R.P. Vasquez. J. Appl. Phys. **81**, 8, 5756 (1997).
- [27] U.P. Wad, A.S. Ogale, S.B. Ogale, T. Venkatesan. Appl. Phys. Lett. **81**, 18, 3422 (2002).