

13,04

## Упругонапряженные и релаксированные пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ , выращенные на подложках из алюмината лантана с различной ориентацией

© Ю.А. Бойков<sup>1</sup>, И.Т. Серенков<sup>1</sup>, В.И. Сахаров<sup>1</sup>, Т. Клаесон<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Чалмерский технический университет, Гетеборг, Швеция

E-mail: Yu.Boikov@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 11 мая 2016 г.)

Методами рассеяния ионов средних энергий и рентгеновской дифракции исследована структура пленок  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LCMO) толщиной 40 нм, сформированных методом лазерного испарения на подложках (001) и (110)  $\text{LaAlO}_3$  (LAO). Выращенные манганитные слои находились под действием латеральных двухосных сжимающих механических напряжений. Напряжения релаксировали в значительной степени, когда в качестве подложек использовались пластины (110)LAO, причем релаксация сопровождалась формированием дефектов в прослойке манганитной пленки толщиной 3–4 нм, прилегающей к межфазной границе LCMO–(110)LAO. Исследование структуры выращенных слоев сопровождалось измерением их электро- и магнетотранспортных параметров. Максимальные значения электросопротивления пленок LCMO, выращенных на обоих типах подложек, наблюдались при температуре  $T_M$  порядка 250 К. При температурах, близких к  $T_M$ , магнетосопротивление пленок LCMO/(110)LAO на 20–30% превышало соответствующие данные для пленок LCMO/(001)LAO, однако при низких температурах ( $T < 150$  К) ситуация становилась обратной. При  $T < T_M$  магнетотранспорт в выращенных манганитных пленках существенно зависел от упорядочения спинов в ферромагнитных доменах, которые увеличивались с понижением температуры.

Ю.А. Бойков и Т. Клаесон признательны за частичную финансовую поддержку данных исследований РФФИ (проект № 15-02-03996), а также the Swedish Research Council, the Knut and Alice Wallenberg foundation.

### 1. Введение

Тонкие слои перовскитоподобных манганитов  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  перспективны для использования в магнеторезистивных сенсорах [1], варакторных гетероструктурах, перенастраиваемых электрическим и/или магнитным полем [2], и в чувствительных элементах [3] ИК-детекторов. Для использования в реальных устройствах манганитные пленки должны быть интегрированы с промежуточными диэлектрическими и буферными прослойками в эпитаксиальных гетероструктурах, выращенных на соответствующих подложках, которые могут оказывать существенное влияние на их параметры.

Электро- и магнетотранспортные свойства  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  существенно зависят от уровня легирования ( $x$  в химической формуле), структуры и расслоения фаз. При температурах ниже температуры фазового ферромагнитного перехода  $T_{\text{Curie}}$  в объеме манганитов наряду с ферромагнитными доменами присутствуют включения парамагнитной фазы и даже диэлектрические вкрапления, причем расслоение фаз существенно изменяется при варьировании напряженности магнитного поля и температуры [4,5]. В объемных монокристаллах манганитов магнетокристаллическая анизотропия проявляется слабо [6], однако она может быть значительной [7] в наноразмерных пленках, сформированных на подложках с заметной рассло-

сованием  $m$  в параметрах кристаллических решеток ( $m = (a_F - a_S)/a_S$ , где  $a_F$  и  $a_S$  — параметры кристаллических решеток пленки и подложки соответственно).

Когерентный рост манганитного слоя на подложке может быть реализован, если его толщина не превышает критическую толщину  $d_c$ , которая зависит от  $m$ . Релаксация механических напряжений в манганитной пленке, как правило, сопровождается изменением параметров ее элементарной ячейки в прослойке, прилегающей к ее свободной поверхности [8,9], а часть пленки у границы с подложкой остается нерелаксированной и двухосно механически напряженной.

Нарушение стехиометрии [10] зародышей на начальной стадии формирования манганитного слоя и неоднородная релаксация напряжений при толщине, большей  $d_c$ , способствуют магнитному беспорядку.

Исследование пленок  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LCMO), выращенных на различных по ориентации, но идентичных по составу подложках, позволяет выяснить степень влияния анизотропии упругих модулей подложки на микроструктуру межфазной границы манганит/подложка и, следовательно, на магнетотранспорт.

### 2. Эксперимент

Метод лазерного испарения (KrF,  $\lambda = 248$  нм,  $\tau = 30$  нс) был использован для выращивания пленок

LCMO толщиной  $d = 40$  nm на подложках  $\text{LaAlO}_3$  (LAO) с ориентацией (001) и (110). Для кристаллов LAO характерны низкие значения диэлектрических потерь ( $\tan \delta \approx 10^{-5}$ ) при высоких частотах ( $f \approx 19$  GHz,  $T < 50$  K) [11], а их относительная диэлектрическая проницаемость  $\epsilon \approx 24$ , что обуславливает привлекательность их использования в качестве подложек. Давление кислорода в ростовой камере в процессе формирования пленок поддерживалось на уровне 0.3 mbar, а температура подложки равнялась 790°C. Плотность лазерного излучения на поверхности испаряемой объемной керамической мишени была равна 1.6 J/cm<sup>2</sup>.

Для исследования структуры выращенных пленок и получения информации о релаксации механических напряжений в их объеме были использованы рассеяние ионов средних энергий (MEIS, He<sup>+</sup>,  $E = 227$  keV) и рентгеновская дифракция (Philips X'pert MRD,  $\text{CuK}\alpha_1$ , сканы  $\omega/2\theta$ , визуализированные в симметричной брэгговской конфигурации,  $\phi$ -сканы и кривые качания). Сканы  $\omega/2\theta$  для гетероструктур LCMO/(001)LAO были измерены в условиях, когда падающий и рассеянный рентгеновские пучки находились в плоскости, нормальной к плоскости (001) или (101) подложки.

Важной особенностью MEIS является высокое разрешение состава пленки по толщине [12]. Спектры MEIS были получены в условиях, когда направление пучка ионов He<sup>+</sup> было нормально к плоскости подложки (вдоль [001] или [110], каналовый режим) или когда угол между нормалью к плоскости подложки и пучком ионов составлял порядка 8° (случайный режим). Энергетический анализ обратнорассеянных ионов осуществлялся электростатическим анализатором с разрешением  $E/\Delta E \sim 200$ , угол рассеяния составлял 120°. Процедура моделирования спектров MEIS для пленок LCMO была аналогична описанной в [13]. Поскольку ионы He<sup>+</sup> с энергией 230 keV обладают значительной глубиной проникновения, из анализа спектров MEIS может быть получена информация о стехиометрии и структуре не только манганитного эпитаксиального слоя толщиной в 40 nm, но и части подложки, прилегающей к межфазной границе.

Сопrotивление пленок измерялось в конфигурации van der Pauw в магнитном поле ( $\mu_0 H$  до 5 T) и без него. Магнитное поле было направлено параллельно плоскости подложки, параллельно или нормально по отношению к направлению измерительного тока  $I_b$ . Электросопротивление  $\rho$  пленок было рассчитано с использованием соотношения  $\rho = R\pi d / \ln 2$  [14].

### 3. Результаты и их обсуждение

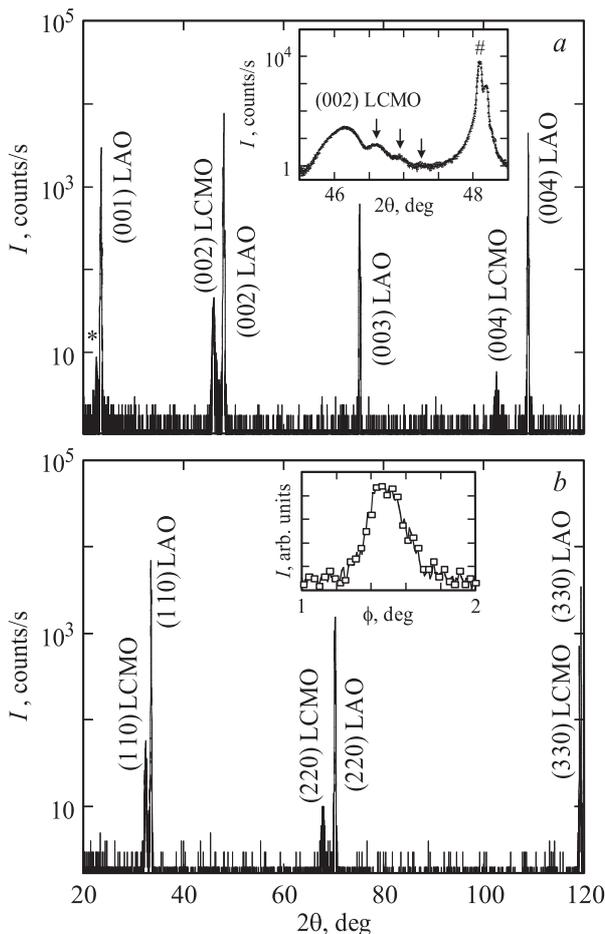
При  $T = 300$  K орторомбическая элементарная ячейка LCMO имеет следующие параметры:  $a = 5.4537$  Å,  $b = 7.7042$  Å,  $c = 5.4682$  Å [15,16]. Параметр соответствующей псевдокубической элементарной ячейки равен  $a_{\text{LCVO}} \approx 3.858$  Å;  $a_{\text{LCMO}} \approx 3.858$  Å;  $a_{\text{LCMO}}$  заметно больше параметра псевдокубической элементарной ячейки

объемного кристалла LAO ( $a_{\text{LAO}} = 3.789$  Å [17]). Положительное рассогласование  $m$  в параметрах кристаллических решеток LCMO и LAO равно примерно 0.018. Это способствует двухосному латеральному сжатию выращенного манганитного слоя. Температурные коэффициенты линейного расширения LCMO и LAO имеют близкие значения [16,18]. Сопrotивление объемных стехиометрических кристаллов LCMO уменьшается с температурой при  $T < T_{\text{Curie}}$  ( $T_{\text{Curie}} \approx 270$  K [15]).

3.1. Структура выращенных пленок. Рентгеновские сканы  $\omega/2\theta$ , визуализированные для пленок LCMO/(001)LAO и LCMO/(110)LAO в условиях, когда падающий и отраженный пучки находились в плоскости, перпендикулярной плоскости подложки, показаны на рис. 1, *a* и *b*. На полученных рентгеновских дифрактограммах присутствовали пики только от подложки и четко ориентированных манганитных слоев. Это свидетельствует об отсутствии в объеме выращенных слоев макровключений вторичных кристаллических фаз.

Направление [001] в пленке LCMO, выращенной на (001)LAO, было нормально плоскости подложки, а в манганитной пленке, сформированной на (110)LAO, ортогональным плоскости подложки было направление [110]. Фрагмент рентгеновского скана в окрестности пика (002)LCMO показан в увеличенном виде на вставке к рис. 1, *a*, толщинные сателлитные пики отмечены стрелками. На основе данных по ширине сателлитных пиков на рентгенограмме была получена оценка толщины манганитного слоя  $\sim 40$  nm. Параметр элементарной ячейки пленки LCMO/(001)LAO в плоскости подложки ( $a \approx 3.79 \pm 0.01$  Å) был существенно меньше параметра той же ячейки, измеренного вдоль нормали к плоскости подложки ( $a_{\perp} 3.95 \pm 0.01$  Å):  $a_{\perp}/a_{\parallel} = 1.04$ . Параметр  $a_{\parallel}$  практически совпадал с  $a_{\text{LAO}}$ . Используя полученные значения  $a_{\perp}$  и  $a_{\parallel}$ , мы оценили объем элементарной ячейки  $V_{\text{eff}} = 56.7$  Å<sup>3</sup> в слое LCMO/(001)LAO. Полученное значение меньше объема элементарной ячейки ( $\sim 57.42$  Å<sup>3</sup>) объемного стехиометрического кристалла LCMO. Это свидетельствует о присутствии дефектов в катионной подрешетке выращенных пленок LCMO/(001)LAO. Механизмы, ответственные за изменение  $V_{\text{eff}}$  упругонапряженных пленок LCMO, детализированы в [10]. Из полученных рентгеновских данных следует, что пленки LCMO были выращены на подложках (001)LAO когерентно и находились под действием латеральных двухосных сжимающих напряжений.

Эффективный параметр ( $\sim 3.89 \pm 0.01$  Å) элементарной ячейки пленки LCMO/(110)LAO вдоль осей [100] и [010] был немного увеличен по сравнению с  $a_{\text{LCMO}}$ . Это может быть свидетельством релаксации механических напряжений, сопровождаемой формированием дефектов. Значения  $m$  для пленок LCMO/(001)LAO и LCMO/(110)LAO эффективно одинаковы. Релаксация механических напряжений в манганитных пленках с ориентацией (110) наблюдалась [19] даже в случае, когда они были выращены на подложках с существенно меньшим рассогласованием в параметрах кристаллических решеток. Помимо  $m$  модули упругости влияют



**Рис. 1.** *a)* Рентгеновский скан ( $\text{CuK}\alpha_1$ ,  $\omega/2\theta$ ) для пленки LCMO толщиной 40 nm, выращенной на подложке (001)LAO. Звездочкой отмечен пик (001)LCMO. На вставке приведен фрагмент того же скана в окрестности пика (002)LCMO (вплоть до (002)LAO). Толщинные спутниковые пики отмечены стрелками. Символом „решетка“ отмечен пик (002)LAO. *b)* Рентгеновский скан ( $\text{CuK}\alpha_1$ ,  $\omega/2\theta$ ) для пленки LCMO, выращенной на (110)LAO. На вставке —  $\phi$ -скан для пика (111) от пленки LCMO/(001)LAO. Полуширина пика свидетельствует о том, что латеральная разориентация кристаллитов составляет  $\sim 0.2$  deg.

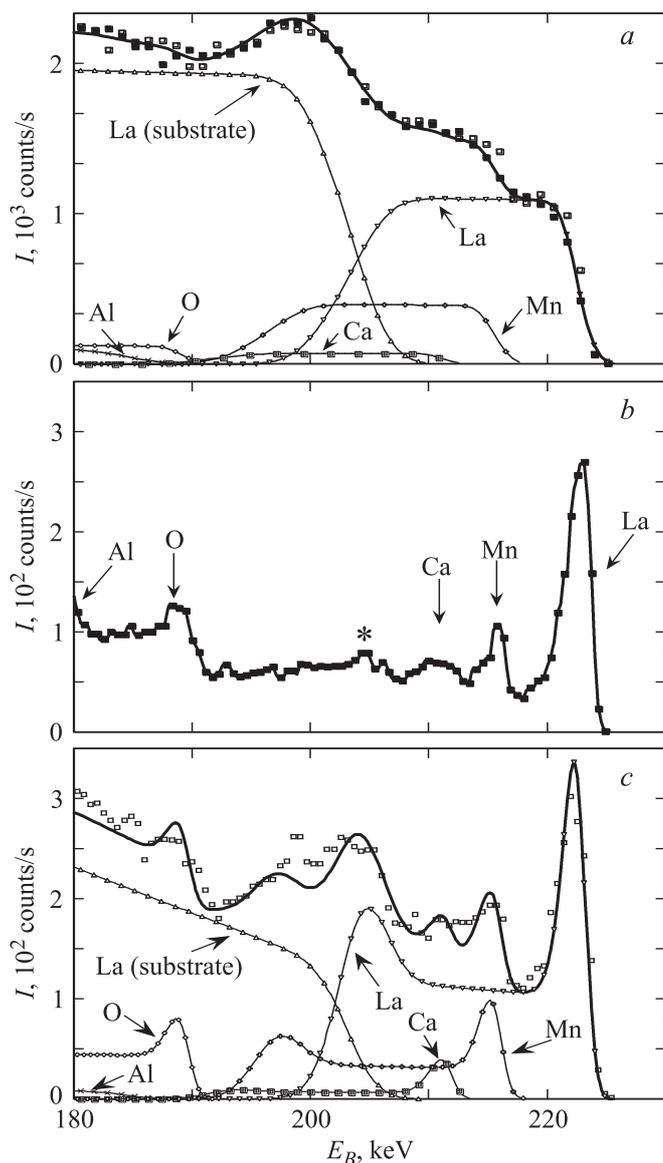
на релаксацию напряжений в пленках. В случае перовскитоподобных оксидов модули упругости являются анизотропными. Для манганитных пленок, выращенных на подложках с ориентацией (001) и (110), модули приведены в [20].

Пленки LCMO, выращенные на обоих типах подложек LAO, состояли из зерен, разделенных малоугловыми границами. Последние проявлялись как характерные углубления на свободной поверхности манганитной пленки. Латеральные размеры зерен находились в пределах 20–40 nm, а их азимутальная разориентация составляла величину порядка  $0.2^\circ$  (оценка получена с учетом полуширины пика на  $\phi$ -скане, визуализированном для рефлекса (111) от пленки LCMO/(001)LAO, см. вставку на рис. 1, *b*). Спектроскопия MEIS была использована

для получения информации о стехиометрии выращенных пленок LCMO и прояснения механизма релаксации напряжений в объеме пленок. Случайные спектры MEIS для пленок LCMO, выращенных на обоих типах подложек, практически совпадают (рис. 2, *a*). Это свидетельствует о том, что изменение элементного состава по глубине в обеих гетероструктурах практически одинаково. Из сравнения экспериментальных случайных спектров и результатов моделирования (рис. 2, *a*) следует, что толщина исследованных пленок LCMO/(001)LAO и LCMO/(110)LAO равна 38 nm, а их элементный состав соответствует формуле  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  с погрешностью, не превышающей 15%. Смоделированные парциальные вклады атомов La, Ca, Mn, Al и O в случайный спектр приведены на рис. 2, *a*.

Каналовые спектры MEIS ( $\text{He}^+$ ,  $E = 227$  keV) для манганитных пленок, выращенных на подложках (001) и (110)LAO, приведены на рис. 2, *b* и *c*. Спектр, полученный для упругонапряженной пленки LCMO/(001)LAO, кардинально отличается от соответствующего спектра MEIS, визуализированного для пленки LCMO/(110)LAO, в которой механические напряжения релаксировали. Появление на спектре, измеренном для гетероструктуры LCMO/(001)LAO пика (при  $E_B \approx 205$  keV), вероятно, связано с реконструкциями и релаксациями в наноразмерном слое подложки вследствие его деформации из-за значительного несогласования в параметрах кристаллических решеток LCMO и LAO.

Для гетероструктуры LCMO/(110)LAO интенсивность потока обратнорассеянных ионов  $\text{He}^+$  в интервале 190–220 keV более чем вдвое превышает таковую для гетероструктуры LCMO/(001)LAO (рис. 2, *b, c*). Отмеченное возрастание интенсивности может быть связано с текстурированием LCMO/(110)LAO, когда пленка представляет собой набор блоков, в каждом из которых низкоиндексное направление может иметь отклонение от низкоиндексной оси подложки в пределах нескольких градусов. Проведенные нами оценки показали, что характерный разброс угловых отклонений осей блоков в данном случае составляет величину, не превышающую  $0.5^\circ$ . Кроме того, для пленки LCMO/(110)LAO (рис. 2, *c*) в области энергий 206 и 199 keV появляются дополнительные широкие пики, обусловленные, как показало моделирование, усилением рассеяния ионов  $\text{He}^+$  атомами La и Mn, находящимися в прослойке пленки толщиной 3–4 nm, прилегающей к межфазной границе LCMO–(110)LAO, что свидетельствует о существенно повышенной дефектности кристаллической структуры пленки LCMO в указанном слое. Атомы в такой прослойке должны вносить вклад в рассеяние ионов  $\text{He}^+$ , поскольку они не экранируются атомами в верхних слоях. Моделирование каналового спектра для пленки LCMO/(110)LAO (рис. 2, *c*) было проведено аналогично моделированию случайных спектров, но при оценке интенсивностей парциальных спектров был добавлен декремент затухания в форме  $\Phi(\tau) = A\tau + B$ , где  $A$



**Рис. 2.** *a)* Случайные спектры MEIS для пленок LSMO/(001)LAO (темные символы) и LSMO/(110)LAO (светлые символы). Измерение спектра проводится в высоком вакууме при комнатной температуре. Смоделированный спектр MEIS для гетероструктур, выращенных на обоих типах подложек, показан жирной кривой. Частичные вклады различных атомов пленки и подложки в случайный спектр MEIS показаны тонкими сплошными линиями и отмечены стрелками. *b)* Канальный спектр MEIS, полученный для пленки LSMO/(001)LAO. Помимо четко разрешаемых пиков от LAO, Mn и Ca (отмеченных стрелками) на экспериментальных кривых при  $E_B \approx 205$  keV присутствует слабо выраженный пик (отмеченный звездочкой). *c)* Канальный спектр MEIS для LSMO/(110)LAO. Жирной кривой показан смоделированный спектр MEIS для пленки LSMO/(110)LAO. Показаны также смоделированные частичные спектры для элементов, формирующих марганитную пленку и подложку LAO. Из сравнения экспериментальных спектров с результатами моделирования следует, что толщина прослойки с высокой концентрацией дефектов равна 3–4 nm.

и  $B$  — подгоночные параметры,  $\tau = nl$ ,  $n$  — молекулярная концентрация,  $l$  — физическая глубина.

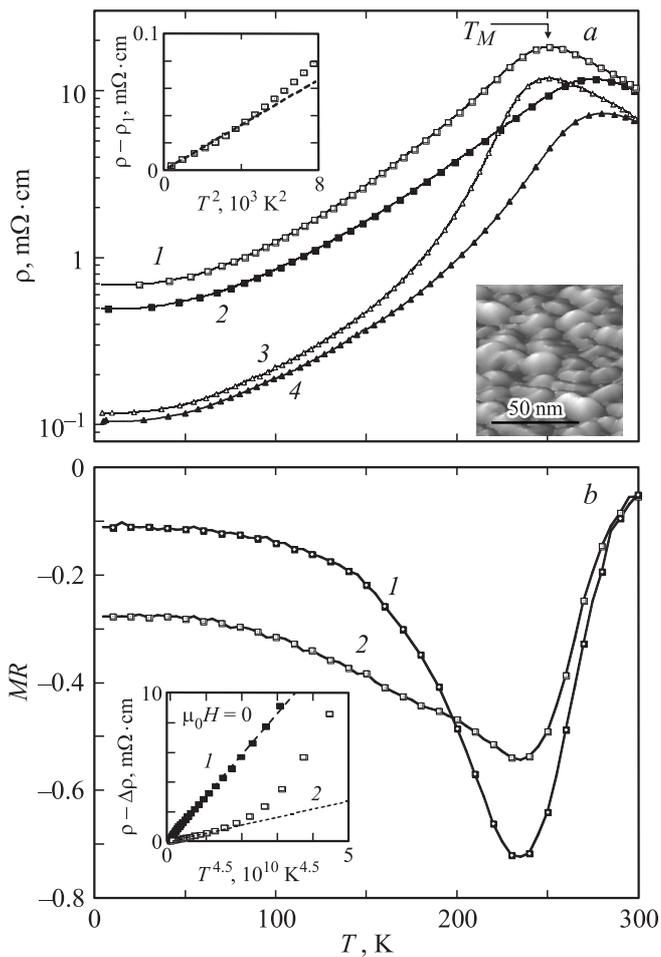
3.2. Электро- и магнетотранспортные параметры марганитных пленок. Температурные зависимости электросопротивления пленок LSMO/(001)LAO и LSMO/(110)LAO приведены на рис. 3, *a*. Максимум на кривых  $\rho(T, \mu_0 H = 0)$ , полученных для обоих типов гетероструктур, наблюдался при температурах  $T_M$  порядка 250 K ( $T_M$  имела значения, близкие к температуре Кюри для объемных кристаллов  $T_{Curie}$ ). Резкое уменьшение  $\rho$  с понижением температуры при  $T < T_M$  обусловлено увеличением объемной доли высокопроводящей ферромагнитной фазы в пленках. Падение электросопротивления пленок, сформированных на (110)LAO, более резкое, чем для пленок LSMO/(001)LAO. Это свидетельствует о том, что включения плохо проводящей фазы трансформируются с понижением температуры в ферромагнитные более интенсивно в релаксированных пленках.

Магнитное поле способствует ферромагнитному упорядочению спинов на ионах марганца. Поэтому температура ферромагнитного упорядочения становится выше, а пик на температурной зависимости электросопротивления сдвигается в сторону высоких температур (рис. 3, *a*). При температурах чуть ниже  $T_M$  отрицательное магнетосопротивление  $MR = [\rho(\mu_0 H) = 3T - \rho(\mu_0 H = 0)] / \rho(\mu_0 H = 0)$  достигало  $-0.7$  для пленки LSMO/(110)LAO. Максимальное значение MR пленки LSMO/(001)LAO было примерно на 20–30% меньше. При низких температурах ( $T < 200$  K), однако, магнетосопротивление для пленки LSMO/(001)LAO по абсолютной величине было существенно больше, чем для марганитного слоя, сформированного на (110)LAO (рис. 3, *b*).

Согласно данным, приведенным в [15], температурная зависимость электросопротивления  $\rho(T)$  объемных кристаллов и эпитаксиальных пленок LSMO при температурах существенно ниже  $T_M$  может быть аппроксимирована соотношением

$$\rho = \rho_1 + \rho_2 T^2 + \rho_3 T^{4.5}, \quad (1)$$

где  $\rho_1$  — вклад, связанный с рассеянием носителей заряда на структурных дефектах (дислокациях, включениях неферромагнитной фазы, малоугловых межзеренных границах и т.д.). Второе слагаемое в правой части соотношения (1) учитывает вклад в  $\rho$  электрон-фононного и электрон-электронного рассеяния [21–23], а третье слагаемое представляет собой вклад электрон-магнетонного взаимодействия [24].  $\rho_1$ ,  $\rho_2$  и  $\rho_3$  в (1) от температуры практически не зависят, однако  $\rho_1$  и  $\rho_3$  могут уменьшаться с увеличением  $\mu_0 H$ . Из соотношения (1) следует, что вклады второго и третьего слагаемых в его правой части существенно уменьшаются при низкой температуре; следовательно,  $\rho_1$  может быть оценено по значению электросопротивления при температуре жидкого гелия. Из данных, представленных на рис. 3, *a*, следует, что при  $\mu_0 H = 0$   $\rho_1 \equiv \rho(4.2\text{ K})$  равно примерно 690 и 120  $\mu\Omega \cdot \text{cm}$  для пленок LSMO, выращенных



**Рис. 3.** *a*) Температурные зависимости электропроводности  $\rho$  пленок LCMO/(001)LAO (1, 2) и LCMO/(110)LAO (3, 4) толщиной 40 нм. Температура  $T_M$  отмечена стрелкой. Зависимости (2, 4) измерены при  $\mu_0 H = 3$  Т.  $T_M$  увеличивается в поле. На верхней вставке приведена зависимость  $\rho - \rho_1$  от  $T^2$  для пленки LCMO/(110)LAO ( $\rho_1 \equiv \rho(4.2 \text{ К})$ ). Изображение свободной поверхности той же пленки показано на нижней вставке. Шероховатость поверхности пленки составляет порядка 1 нм. *b*) Температурная зависимость магнетосопротивления (MR) пленок LCMO/(100)LAO (1) и LCMO/(001)LAO (2) при  $\mu_0 H = 3$  Т. На вставке — зависимости  $\rho - \Delta\rho$  от  $T^{4.5}$  для пленок LCMO/(001)LAO (1) и LCMO/(001)LAO (2).  $\Delta\rho$  зависит от электрон-электронного и остаточного рассеяния (см. текст).

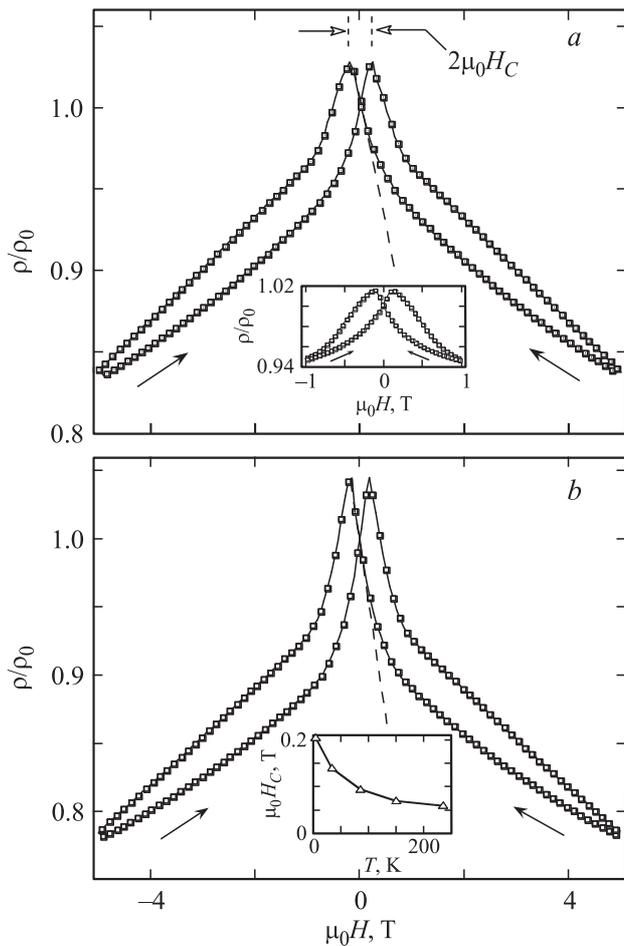
на подложках (001)LAO и (110)LAO соответственно. Вклад рассеяния носителей заряда на дефектах структуры в электропроводности пленок LCMO/(001)LAO в 5–6 раз больше, чем соответствующий вклад в  $\rho$  пленок LCMO/(110)LAO. Это является отражением того, что включения (прослойки) плохо проводящих фаз оказывают более слабое влияние на электронный транспорт в релаксированных пленках LCMO/(110)LAO. При  $T < 50$  К разность  $\rho - \rho_1$  для пленки LCMO/(110)LAO возрастала примерно пропорционально квадрату температуры (см. верхнюю вставку на рис. 3, *a*). По накло-

ну представленной зависимости мы оценили величину  $\rho_2 \approx 1 \cdot 10^{-8} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-2}$ . Примерно такое же значение было получено для  $\rho_2$  пленки LCMO/(001)LAO с использованием аналогичной процедуры. Полученная оценка  $\rho_2$  для выращенных манганитных пленок хорошо согласуется с соответствующими данными для объемного монокристалла LCMO [15].

Из соотношения (1) следует, что разность  $\rho - \Delta\rho$ , где  $\Delta\rho \equiv \rho_1 + \rho_2 T^2$ , равна вкладу электрон-магнетонного взаимодействия в электропроводности выращенных пленок. Зависимости разности  $\rho - \Delta\rho$  от  $T^{4.5}$ , полученные при  $\mu_0 H = 0$  для манганитных слоев, сформированных на обоих типах подложек, показаны на вставке к рис. 3, *b*. Зависимость линейна в интервале 50–170 К для пленки LCMO/(001)LAO, а для пленки LCMO/(110)LAO — только в низкотемпературной части указанного интервала (и с меньшим наклоном). При более высоких температурах существенный вклад в процесс релаксации носителей заряда в пленках на (110)LAO наряду с рассеянием на магнонах вносят и другие механизмы. Из наклона касательных (показаны пунктиром) к зависимостям, представленным на вставке к рис. 3, *b*, для коэффициентов  $\rho_3$  при  $\mu_0 H = 0$  были получены значения  $2.6 \cdot 10^{-13} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-4.5}$  для LCMO/(001)LAO и  $4.0 \cdot 10^{-14} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-4.5}$  для LCMO/(110)LAO. Магнитное поле способствует упорядочению спинов в увеличивающихся доменах и демпфирует спиновые возмущения. Это приводит к уменьшению вклада электрон-магнетонного рассеяния в электропроводности. Коэффициент  $\rho_3$  для пленки LCMO/(001)LAO уменьшается примерно в 2.5 раза при возрастании  $\mu_0 H$  от 0 до 5 Т, а деградация указанного коэффициента для LCMO/(110)LAO составляет только 40%.

Изменение  $\rho/\rho_0$  ( $\rho_0 \equiv \rho(\mu_0 H = 0)$ ) для пленки LCMO/(001)LAO при сканировании  $\mu_0 H$  в последовательности  $5 \text{ Т} \rightarrow 0 \rightarrow -5 \text{ Т} \rightarrow 0 \rightarrow 5 \text{ Т}$  при  $T = 4.2$  К и  $\mathbf{I}_b \perp \mathbf{H}$  показано на рис. 4, *a*. Электропроводность пленки увеличивается примерно линейно с уменьшением  $\mu_0 H$  от 5 до 0.8 Т. Это связано в основном с увеличением в пленке объемной доли фазы, которая не является ферромагнитной (плохо проводящей фазы), при низкой напряженности магнитного поля.

При уменьшении  $\mu_0 H$  от 0.8 до  $-0.2$  Т скорость увеличения  $\rho$  возрастает из-за переориентации вектора намагниченности в части ферромагнитных доменов вдоль оси легкого намагничивания. Эта переориентация увеличивает возбуждение спиновой системы, что индуцирует усиление электрон-магнетонного рассеяния. Ось легкого намагничивания в латерально двухосно сжатой пленке LCMO параллельна нормали к плоскости подложки [25]. Наивысшая степень беспорядка в спиновой системе пленки LCMO/(001)LAO достигалась при  $\mu_0 H_C \approx -0.21$  Т (при максимальном значении  $\mu_0 H$ , равном 5 Т).  $\mu_0 H_C$  является эффективным коэрцитивным полем, показанным на рис. 4, *a*.  $H_C$  зависит от напряженности магнитного поля, необходимого для переориентации вектора намагниченности в ферромагнитных доменах и динамики фазовых трансформаций



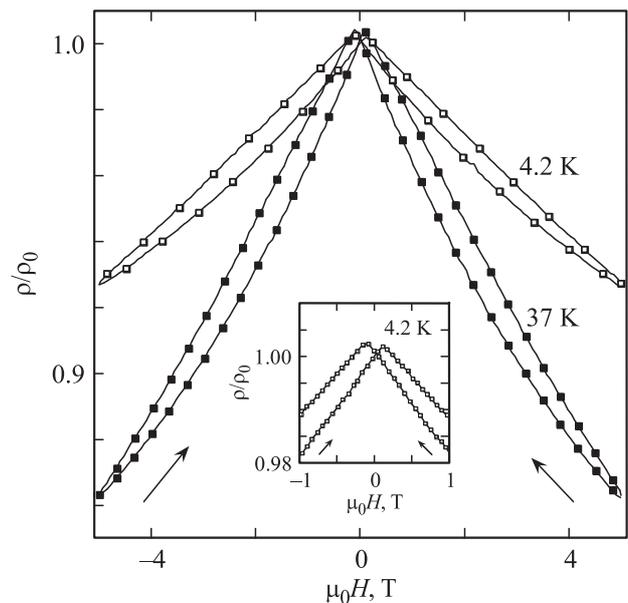
**Рис. 4.** *a)* Изменение отношения  $\rho/\rho_0$  для пленки LCMO/(001)LAO при сканировании  $\mu_0 H$  в последовательности  $5\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow -5\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow 5\text{ T}$ ,  $T = 4.2\text{ K}$ ,  $\mathbf{I}_b \perp \mathbf{H}$  (поле параллельно плоскости подложки). Эффективное коэрцитивное поле  $H_C$  оценивалось с использованием петель гистерезиса. На вставке показано изменение отношения  $\rho/\rho_0$  в процессе сканирования  $\mu_0 H$  в последовательности  $1\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow -1\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow 1\text{ T}$ . *b)* Изменение отношения  $\rho/\rho_0$  для пленки LCMO/(001)LAO при сканировании  $\mu_0 H$  в последовательности  $5\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow -5\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow 5\text{ T}$ ,  $T = 4.2\text{ K}$ ,  $\mathbf{I}_b \parallel \mathbf{H}$ . На вставке — температурная зависимость коэрцитивного поля  $H_C$  для пленки LCMO/(001)LAO.

ферромагнетик — неферромагнитная фаза в процессе изменения  $\mu_0 H$ . Температурная зависимость  $\mu_0 H_C$  для механически напряженной пленки LCMO/(001)LAO показана на вставке к рис. 4, *b*. При сканировании  $\mu_0 H$  в интервале  $\pm 1\text{ T}$  изменения  $\rho$  и гистерезис становятся меньше:  $\mu_0 H_C \sim 0.13\text{ T}$  при  $T = 4.2\text{ K}$  (см. вставку на рис. 4, *a*). При изменении  $\mu_0 H$  от  $-0.2$  до  $-5\text{ T}$  электропроводность пленки LCMO/(001)LAO уменьшается вследствие ослабления электрон-магнонного рассеяния и трансформации включений неферромагнитных фаз в ферромагнитные.

Аналогичные процессы определяют характер зависимости  $\rho/\rho_0$  от  $\mu_0 H$ , визуализированной для пленки

LCMO/(110)LAO (рис. 5). Гистерезис наблюдается на полевых зависимостях  $\rho/\rho_0$ , полученных для пленок LCMO, выращенных на обоих типах подложек. Менее ярко выраженный гистерезис имеет место в случае релаксированных пленок LCMO, причем  $\mu_0 H_C$  при  $T = 4.2\text{ K}$  для них примерно вдвое меньше, чем для упругонапряженных пленок (см. вставки на рис. 4, *b* и 5). По крайней мере два механизма ответственны за появление гистерезиса на полевых зависимостях электропроводности манганитов. При низкой напряженности магнитного поля ( $\mu_0 H < 1\text{ T}$ ) гистерезис на зависимостях  $\rho/\rho_0$  от  $\mu_0 H$  в значительной степени зависит от величины поля, которое необходимо для переориентации вектора намагниченности в ферромагнитных доменах. При высокой напряженности магнитного поля (и низкой температуре) гистерезис на указанных кривых индуцирован в значительной степени трансформацией включений неферромагнитной фазы в ферромагнитные. Относительно слабое по сравнению с наблюдаемым в случае пленок LCMO/(001)LAO проявление гистерезиса на полевых зависимостях, измеренных для пленок LCMO/(110)LAO, обусловлено релаксацией напряжений в их объеме и низкой концентрацией включений неферромагнитной фазы. Это также объясняет существенно меньшее значение коэффициента  $\rho_3$ , полученное для релаксированных пленок LCMO по сравнению с его величиной для напряженных манганитных слоев.

Чтобы четче проявить влияние анизотропного магнетосопротивления (AMR) на электронный транспорт упругонапряженных манганитных пленок, зависимости  $\rho/\rho_0$  от  $\mu_0 H$  были измерены в условиях, когда направление  $\mathbf{I}_b$  было параллельно магнитному полю



**Рис. 5.** Изменение отношения  $\rho/\rho_0$  для пленки LCMO/(110)LAO в процессе сканирования  $\mu_0 H$  в последовательности  $5\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow -5\text{ T} \rightarrow 0 \rightarrow 5\text{ T}$ ,  $T = 4.2$  и  $37\text{ K}$  ( $\mathbf{I}_b \perp \mathbf{H}$ ). На вставке показана часть кривой  $\rho/\rho_0(\mu_0 H)$  в окрестности точки  $\mu_0 H = 0$ .

(рис. 4, *b*). Из сравнения петель гистерезиса, представленных на рис. 4, *a* и *b*, следует, что в процессе уменьшения  $\mu_0 H$  от 5 до 1 Т полевые зависимости  $\rho/\rho_0$ , визуализированные для пленки LSMO/(001)LAO в условиях, когда направление  $I_b$  было перпендикулярно  $H$  и когда оно было параллельно  $H$ , различались несущественно. Однако в интервале значений  $\mu_0 H$  от 0.8 Т до  $-0.2$  Т (когда происходила переориентация вектора намагниченности в ферромагнитных доменах), отношение  $\rho/\rho_0$  для пленки LSMO/(001)LAO при  $I_b \parallel H$  увеличивалось примерно в 2 раза быстрее, чем при  $I_b \perp H$ . Касательные к кривым  $\rho/\rho_0$  ( $\mu_0 H$ ) в указанном выше интервале показаны штриховыми линиями. Вероятной причиной более резкого отклика электросопротивления манганитной пленки на изменение магнитного поля в случае  $I_b \parallel H$  по сравнению с его реакцией в случае  $I_b \perp H$  является AMR. Согласно [26], зависимость электросопротивления ферромагнитного металла от угла  $\gamma$  между направлениями измерительного тока и вектора намагниченности  $M$  может быть представлена в виде

$$\rho = \rho^*(M) + \rho^{**}(M) \sin^2 \gamma, \quad (2)$$

где  $\rho^*(M)$  — изотропная часть электросопротивления, а  $\rho^{**}(M)$  — разница между значениями  $\rho$ , измеренными при  $I_b \parallel H$  и  $I_b \perp H$ . Второе слагаемое в соотношении (2) представляет собой вклад в электросопротивление ферромагнетизма через AMR. В случае  $I_b \perp H$ , переориентация вектора намагниченности в ферромагнитных доменах вдоль оси легкого намагничивания не влияет на вклад AMR в электросопротивление, поскольку до и после переориентации направление вектора намагниченности нормально к направлению  $I_b$ . При  $H \parallel I_b$ , однако, переориентация намагниченности вдоль оси легкого намагничивания способствует увеличению вклада AMR в электросопротивление манганитной пленки. Как следует из полученных данных (рис. 4, *a* и *b*), AMR имеет положительный знак. При  $T = 4.2$  К и  $\mu_0 H = 0.2$  Т AMR пленки LSMO/(001)LAO имеет величину порядка 4%. Как и в случае объемных монокристаллов LSMO [7], влияние AMR на электросопротивление релаксированных пленок LSMO/(110)LAO не было очевидным.

В заключение отметим, что спектроскопия MEIS дает возможность установить различия в структуре и стехиометрии пленок LSMO, сформированных на подложках (001)LAO и (110)LAO с существенным рассогласованием в параметрах кристаллических решеток. В случае подложки (110)LAO, наноразмерная прослойка толщиной 3–4 nm с высокой концентрацией дефектов формируется в манганитной пленке у межфазной границы. Напряжения в остальной части пленки, прилегающей к свободной поверхности гетероструктуры, в значительной степени релаксируют. Механически напряженная пленка растет когерентно на подложке (001)LAO вплоть до значительной критической толщины (порядка 40 nm). Магнетотранспортные параметры манганитной пленки зависят от уровня напряжений. Правильный выбор ориентации подложки позволяет обеспечить формирование манганитного слоя с желательными электро- и магнетотранспортными параметрами.

## Список литературы

- [1] M. Pannetier, C. Fermon, G. Le Goff, O. Simola, T. Kerr. *Science* **304**, 1648 (2004).
- [2] Yu.A. Boikov, T. Claeson. *Phys.Rev. B* **70**, 184433 (2004).
- [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**, 2535 (1997).
- [4] E.O. Wollan, W.C. Koehler. *Phys. Rev.* **100**, 545 (1955).
- [5] M. Fäth, S. Freisem, A.A. Menovsky, Y. Tomioka, J. Aarts, J. Mydosh. *Science* **285**, 1540 (1999).
- [6] A. Urushibara, Y. Morimoto, T. Arima, A. Asamitsu, G. Kido, Y. Tokura. *Phys. Rev. B* **51**, 14103 (1995).
- [7] J.N. Eckstein, I. Bozovic, J. O'Donnell, M. Onellion, M.S. Rzchowski. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1312, 1996.
- [8] O.I. Lebedev, G. Van Tendeloo, S. Amelinckx, B. Leibold, H.-U. Habermeyer. *Phys. Rev. B* **58**, 8065 (1998).
- [9] B. Wiedenhorst, C. Höfner, Y. Lu, J. Klein, L. Alff, R. Gross, B.H. Freitag, W. Mader. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3636 (1999).
- [10] Yu.A. Boikov, R. Gunnarsson, T. Claeson. *J. Appl. Phys.* **96**, 435 (2004).
- [11] J. Krupka, R.G. Geyer, M. Kuhn, J.H. Hinken. *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* **42**, 1886 (1994).
- [12] P. Bailey, T.C.Q. Noakes, C.J. Baddeley, S.P. Tear, D.P. Woddruff. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **183**, 62 (2001).
- [13] V.V. Afrosimov, R.N. Il'in, S.F. Karmanenko, A.A. Melkov, V.I. Sakharov, I.T. Serenkov. *Thin Solid Films* **492**, 146 (2005).
- [14] T.I. Kamins. *J. Appl. Phys.* **42**, 4357 (1971).
- [15] G.J. Snyder, R. Hiskes, S. DiCarolis, M.R. Beasley, T.H. Geballe. *Phys. Rev. B* **53**, 14434 (1996).
- [16] P. Dai, J. Zhang, H.A. Mook, S.-H. Lion, P.A. Dowben, E.W. Plummer. *Phys. Rev. B* **54**, R3694 (1996).
- [17] R.W.J. Wyckoff. *Crystal structures*. 2nd ed. Interscience N.Y. (1964). V. 2. P. 394.
- [18] C. Zuccaro, H.L. Berlincourt, N. Klein, K. Urban. *J. Appl. Phys.* **82**, 5695 (1997).
- [19] I.C. Infante, F. Sánchez, J. Fontcuberta, M. Wojcik, E. Jedryka, S. Estradé, F. Peir, J. Arbiol, V. Laukhin, J.P. Espinós. *Phys. Rev. B* **76**, 224415 (2007).
- [20] L.M. Berndt, V. Balbarin, Y. Suzuki. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2903 (2000).
- [21] P. Schiffer, A.P. Ramirez, W. Bao, S.-W. Cheong. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3336 (1995).
- [22] J.M. De Teresa, M.R. Ibarra, J. Blasco, J. Garcia, C. Marquina, P.A. Algarabel, Z. Arnold, K. Kamenev, C. Ritter, R. von Helmolt. *Phys. Rev. B* **54**, 1187 (1996).
- [23] T. Zhang, X.P. Wang, Q.F. Fang, X.G. Li. *Appl. Phys. Rev.* **1**, 031302 (2014).
- [24] K. Kubo, N. Ohata. *J. Phys. Soc. Jpn.* **33**, 21 (1972).
- [25] Qi Li, H.S. Wang, Y.F. Hu, E. Wertz. *J. Appl. Phys.* **87**, 5573 (2000).
- [26] E.D. Dahlberg, K. Riggs. *J. Appl. Phys.* **63**, 4270 (1988).