

13 Магнитные свойства тонких пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, полученных магнетронным распылением

© Т.А. Шайхулов¹, К.Л. Станкевич², В.А. Лузанов⁷, В.Е. Живулин³, Д.А. Винник³, А.Р. Сафин^{1,4}, Д.В. Калябин^{1,5}, Е.Е. Козлова^{1,5}, С.А. Никитов^{1,5,6}

¹ Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия

² Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

³ Южно-Уральский государственный университет, Челябинск, Россия

⁴ Национальный исследовательский университет „МЭИ“, Москва, Россия

⁵ Московский физико-технический институт (Национальный исследовательский университет), Долгопрудный, Московская обл., Россия

⁶ Саратовский национальный исследовательский государственный университет им. Н.Г. Чернышевского, Саратов, Россия

⁷ Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия
E-mail: shcaihulov@hitech.cplire.ru

Поступило в Редакцию 3 марта 2023 г.

В окончательной редакции 25 апреля 2023 г.

Принято к публикации 25 апреля 2023 г.

Представлены результаты исследования влияния толщины пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, полученных магнетронным распылением на подложки (110) NdGaO_3 , на магнитные и кристаллографические свойства с помощью ферромагнитного резонанса и рентгеновской спектроскопии. Установлены зависимости полей одноосной и кубической анизотропии от толщины образца. Показано, что магнитные и кристаллографические свойства пленки, полученной магнетронным распылением, сильно зависят от области мишени, из которой она изготовлена. Полученные результаты будут полезны для интерпретации экспериментальных данных, а также при создании серий образцов.

Ключевые слова: ферромагнетик, магнитная анизотропия, ферромагнитный резонанс.

DOI: 10.21883/PJTF.2023.12.55568.19545

Манганиты привлекают большое внимание исследователей в силу их уникальных свойств: высокой спиновой поляризации [1,2], колоссального магнитосопротивления [3], высокой температуры Кюри [4]. Изучение магнитных свойств манганитов при изменении толщины образцов было в центре внимания нескольких исследований [5–7]. Было показано существенное увеличение анизотропии образцов при малых толщинах [6]. Исследование зависимости магнитной анизотропии от толщины пленки может дать дополнительную информацию о величинах толщин для установления объемных свойств тонких пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO). Положение и форма линий ферромагнитного резонанса могут предоставлять информацию как о магнитном состоянии, локальной анизотропии, так и о дефектах [8–10]. В [11,12] изучена зависимость магнитных свойств LSMO от степени натяжения подложкой, а в [13] — зависимость от толщины и кислородных вакансий. Однако работ, описывающих свойства пленок LSMO, полученных путем магнетронного распыления из разных частей мишени, нет. Целью настоящей работы является исследование влияния области мишени, из которой производилось распыление, на магнитные и кристаллографические свойства пленок LSMO.

Структура мишени представлена на рис. 1. Мишень изготавливалась методом твердофазного синтеза. В качестве исходных компонентов для изготовления

мишени были выбраны оксиды марганца (Mn_2O_3) и лантана (La_2O_3), а также карбонат стронция (SrCO_3). Исходные компоненты были взяты в стехиометрическом соотношении и перетерты в агатовой ступке в течение 30 min. Полученную в результате перетирания гомогенную смесь компонентов уплотняли при помощи металлической пресс-формы и гидравлического пресса. Диаметр пресс-формы составлял 25 mm. Полученную после прессования таблетку помещали на платиновый лист и спекали в трубчатой печи при температуре 1350°C в течение 5 часов.

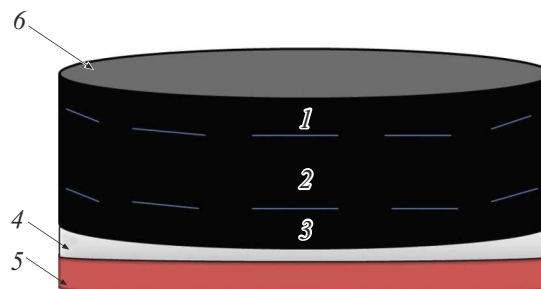


Рис. 1. Схема мишени. Мишень условно разделена на три области: 1 — „верхняя“, 2 — „центральная“, 3 — „нижняя“. При помощи материала 4 (индий) к подложке 5 (медь) припаян LSMO (6).

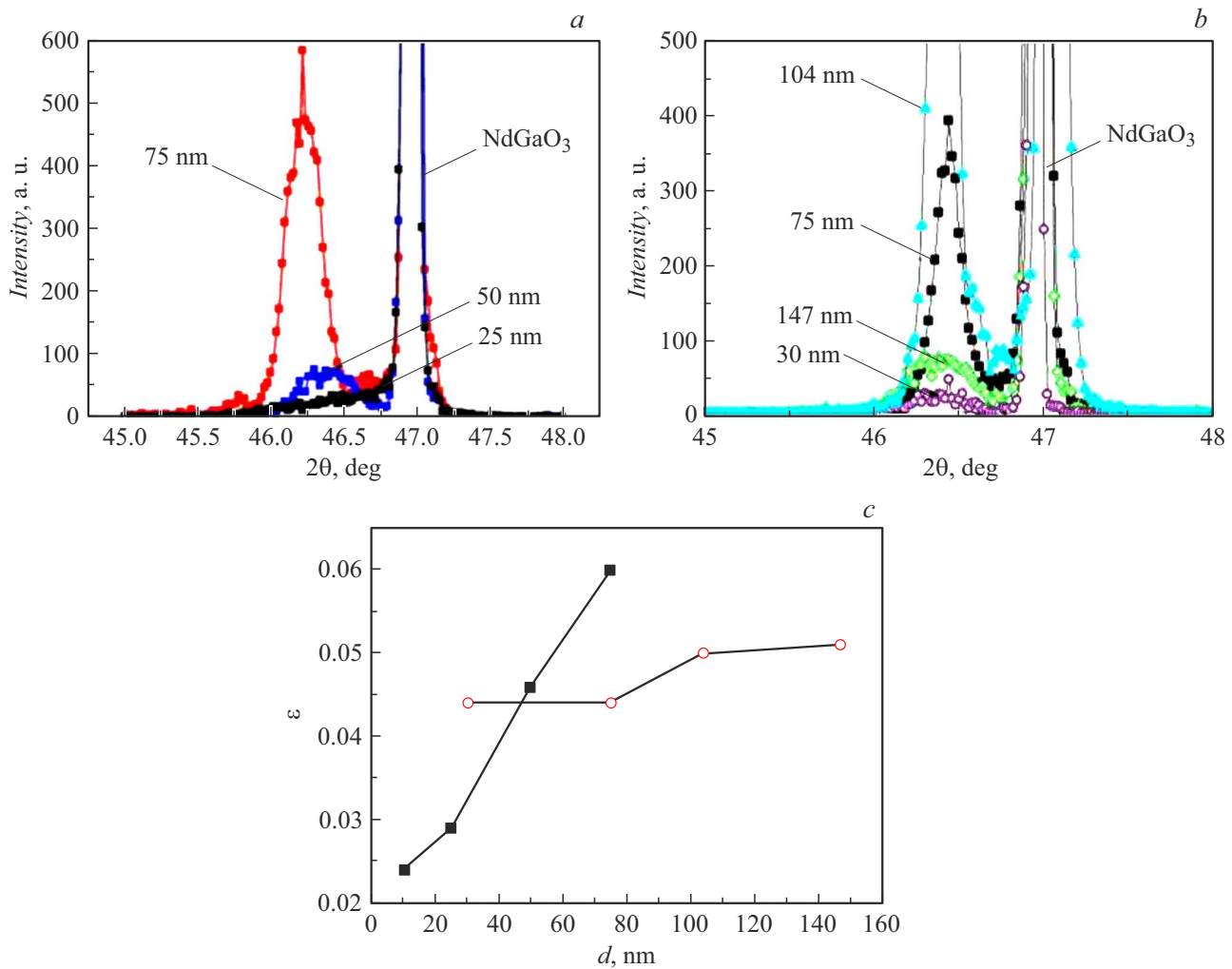


Рис. 2. Рентгенограммы пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, выращенных на подложке NGO с разной толщиной пленки (*a* — первая серия, *b* — вторая серия). *c* — зависимость несовпадения параметров решетки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ и подложки в перпендикулярном направлении от толщины пленок для образцов первой (квадраты) и второй серии (кружки).

Фазовый состав полученной мишени контролировался методом рентгеновской дифракции. Рентгенофазовый анализ показал, что полученная мишень имеет одну кристаллическую фазу, соответствующую соединению $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Методом рентгеноспектрального анализа было выявлено, что состав мишени совпадает с изначально заданным элементным составом.

Тонкие пленки LSMO были нанесены на монокристаллические полированные плоскости (110) подложек из монокристаллического NdGaO_3 (NGO) размером 5×5 mm и толщиной 0.5 mm. Предварительная подготовка подложек заключалась в их очистке в органическом растворителе (аcetone) в ультразвуковой ванне, промывке дистиллированной деионизированной водой и сушке в потоке сжатого воздуха. Эпитаксиальный рост пленок манганитов стронция и лантана происходил при температуре подложки 800°C в смеси газов Ar и O_2 (3:2) при давлении 0.5 mbar и мощностях высокочастотного генератора и магнетронной пушки 50 W. Под эпитак-

сиальным ростом мы понимаем рост пленки, ориентированной монокристаллической подложкой, на поверхность которой происходит осаждение. Эпитаксия происходит таким образом, чтобы суммарная энергия границы, состоящей из участков подложка–кристалл, кристалл–среда и подложка–среда, была минимальной. В настоящей работе исходя из рис. 2 можно судить о том, что кристаллическая структура всех рассматриваемых пленок имеет одну фазу, а их параметры определяются кристаллической структурой подложки NGO.

Скорость роста при указанных параметрах составляет 0.25 nm/min. После нанесения пленки необходимой толщины в камеру нагнетали кислород при давлении потока в 1 atm с постепенным снижением температуры до 500°C и последующим естественным охлаждением до комнатной температуры.

Для исследования магнитных параметров пленок LSMO разной толщины были созданы две серии образцов, нанесенных из разных частей мишени. Первая

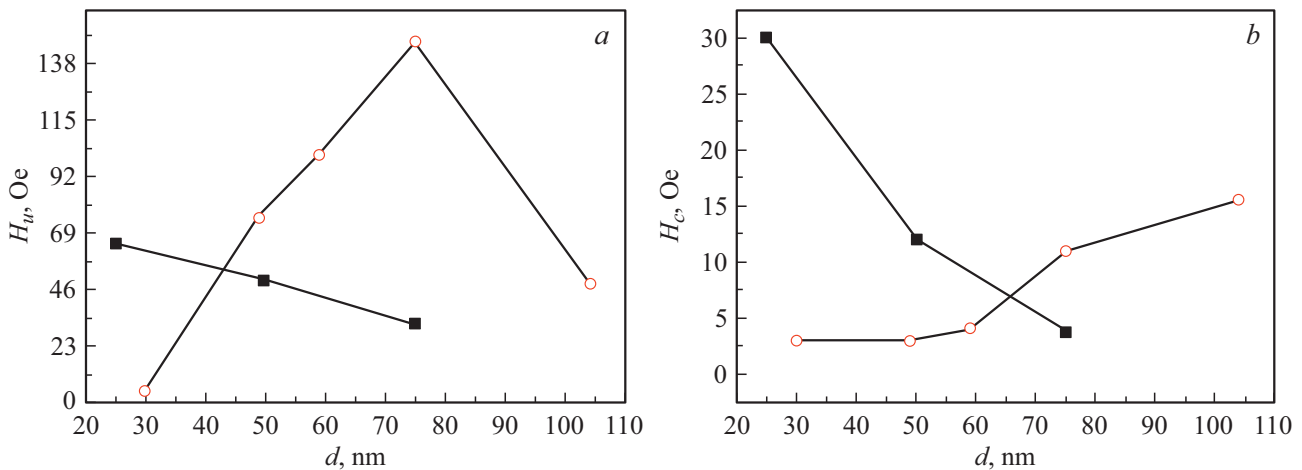


Рис. 3. Зависимости поля одноосной магнитной анизотропии H_u (а) и поля кубической магнитной анизотропии H_c (б) от толщины пленок для образцов первой (квадраты) и второй серии (кружки).

серия была напылена из „нижней“ части мишени, вторая серия получена из „центральной“ части мишени. На рис. 2, *a, b* представлены дифрактограммы брэгговского отражения $2\theta/\omega$ тонких пленок LSMO двух серий, нанесенных на подложку NGO. По положению пиков определялись структура и параметры ячейки. Измерение характеристик происходило при комнатной температуре. Исходя из полученных результатов структуру пленки LSMO можно считать „псевдокубической“ [14].

На рис. 2, *c* представлены результаты рентгеноструктурных измерений параметров решетки двух серий пленок LSMO. По оси абсцисс отложена толщина образца, а по оси ординат — разница между постоянными решетки LSMO и подложки в перпендикулярном направлении $\varepsilon = \frac{a_{\text{LSMO}} - a_{\text{NGO}}}{a_{\text{NGO}}}$ (где a — внеплоскостная постоянная решетки). Структура и параметры решетки определялись по положениям пиков. При толщине пленки 75 nm максимальное значение внеплоскостной постоянной решетки слоя LSMO наблюдается для первой серии образцов, которая получена из „нижней“ части мишени. Отметим, что зависимость ε от толщины для пленок второй серии не является линейной в отличие от зависимости для пленок первой серии.

На рис. 3 показаны зависимости от толщины магнитных параметров LSMO, а именно полей одноосной (а) и кубической (б) магнитной анизотропии. Измерения проводились на стандартном спектрометре Bruker ER 200 на частоте 9.2 GHz при комнатной температуре [15]. Метод определения параметров магнитной анизотропии заключался в обработке угловых зависимостей резонансных полей спектров ферромагнитного резонанса. Использовалось решение уравнения Ландау–Лифшица для эволюции намагниченности M во внешнем постоянном магнитном поле H под действием магнитной составляющей радиочастотного поля, которое дает аналитическое соотношение для резонансного поля H_0 и частоты ω для системы с одним ферромагнитным слоем [16]. Для

первой серии образцов, полученной из „нижней“ части мишени, отчетливо виден провал на всех зависимостях для пленки толщиной 75 nm, тогда как для второй серии в точке 75 nm наблюдается пик, но только для одноосной анизотропии. Похожая ситуация показана в [6], но для толщин пленок от 11 до 22 nm. Резкое увеличение магнитной анизотропии в пленках LSMO толщиной 11 nm было связано с анизотропной деформацией. По мере увеличения толщины LSMO образование сателлитных доменов в пленке с однонаправленной модуляцией решетки должно объяснять заметное подавление плоскостной магнитной анизотропии. На первый взгляд данное объяснение не подходит для нашего случая, поскольку во второй серии образцов, относящейся, как мы полагаем, к „правильному“ $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, пик одноосной анизотропии приходится на толщину 75 nm, т. е. на толщину, при которой должно произойти снятие напряжения с пленки. Мы предполагаем, что в отличие от работы [6] в нашем режиме распыления сателлитные пики образуются при толщинах выше 75 nm. Рост кубической анизотропии, обусловленный кристаллографией пленки, объясняет заметное подавление плоскостной магнитной анизотропии, поскольку по мере увеличения толщины пленки LSMO образуются сателлитные ростовые домены, вызывающие снятие анизотропного напряжения.

Важно отметить, что пленки были выращены в одинаковых условиях (давление, температура). Данный факт исключает возможность возникновения вакансий по кислороду, которые в свою очередь могли бы повлиять на параметр анизотропии. Помимо этого для образцов всей серии использовались подложки NGO ориентации (110), так что о разных напряжениях, возникающих в эпитаксиальных пленках [12], также не приходится говорить. Сами по себе оксиды типа LSMO рассматриваются как соединения со смешанной валентностью, представляющие собой твердые растворы между LaMnO_3 и SrMnO_3 . Мы предполагаем, что различие в магнитных свойствах

тонких пленок LSMO, полученных из разных частей мишени путем магнетронного распыления, связано с тем, что стехиометрия мишени не выдерживается по всей толщине. Иными словами, несмотря на то что фазовый состав полученной мишени контролировался методом рентгеновской дифракции, возможная причина изменения стехиометрии заключается в ионно-электронной эмиссии под действием ионной бомбардировки в ходе распыления. Таким образом, в первой серии получен манганит неопределенной фазы, что в свою очередь затрудняет интерпретацию полученных результатов в этой серии. Мы предполагаем, что уменьшение одноосной анизотропии связано с тем, что при толщинах порядка 75 нм с точки зрения кристаллографии пленка сближается по своим параметрам с кристаллом, вследствие чего перестает испытывать напряжение, вызванное подложкой NGO.

Исходя из полученных данных можно сделать вывод, что поле одноосной анизотропии эпитаксиальных пленок $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, выращенных на подложках NdGaO_3 ориентации (110), растет с увеличением толщины пленки до значения 75 нм, а затем наблюдается резкое уменьшение его значения вследствие образования сателлитных ростовых доменов. Также можно предположить, что режим напыления влияет на изменение максимума одноосной анизотропии. Отметим, что совпадение свойств пленок, сформированных магнетронным распылением из мишени, достижимо лишь при изготовлении серии из одной области мишени. Причина заключается в неоднородности стехиометрического состава мишеней по толщине.

Финансирование работы

Измерения резонансных характеристик образцов поддержаны грантом РФФИ № 21-79-10396, обработка результатов эксперимента выполнена в рамках гранта РФФИ № 19-19-00607-П.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J.H. Park, E. Vescovo, H.J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, T. Venkatesan, *Nature*, **392**, 794 (1998). DOI: 10.1038/33883
- [2] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthelemy, J.P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître, A. Fert, *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 233 (2003). DOI: 10.1063/1.1534619
- [3] S. Jin, T.H. Tiefel, M. McCormack, R.A. Fastnacht, R. Ramesh, L.H. Chen, *Science*, **264**, 413 (1994). DOI: 10.1126/science.264.5157.413
- [4] Y. Tokura, Y. Tomioka, *J. Magn. Magn. Mater.*, **200**, 1 (1999). DOI: 10.1016/S0304-8853(99)00352-2
- [5] W. Dong, Y. Zhang, R. Qi, R. Huang, J. Yang, W. Bai, Y. Chen, G. Wang, X. Dong, X. Tang, *Ceram. Int.*, **43**, 493 (2017). DOI: 10.1016/j.ceramint.2017.05.223
- [6] D. Lan, P. Chen, C. Liu, X. Wu, P. Yang, X. Yu, J. Ding, J. Chen, G.M. Chow, *Phys. Rev. B*, **104**, 125423 (2021). DOI: 10.1103/PhysRevB.104.125423
- [7] P. Chen, Z. Huang, M. Li, X. Yu, X. Wu, C. Li, N. Bao, S. Zeng, P. Yang, L. Qu, J. Chen, J. Ding, S.J. Pennycook, W. Wu, T.V. Venkatesan, A. Ariando, G.M. Chow, *Adv. Funct. Mater.*, **30**, 1909536 (2020). DOI: 10.1002/adfm.201909536
- [8] A. Gurevich, A. Melkov, *Magnetization oscillations and waves*, 1st ed. (1996).
- [9] B. Heinrich, J.F. Cochran, *Adv. Phys.*, **42**, 523 (1993). DOI: 10.1080/00018739300101524
- [10] M. Farle, *Rep. Prog. Phys.*, **61**, 755 (1998). DOI: 10.1088/0034-4885/61/7/001
- [11] Y. Wu, Y. Suzukia, U. Rüdiger, J. Yu, A.D. Kent, T.K. Nath, C.B. Eom, *Appl. Phys. Lett.*, **75**, 2295 (1999). DOI: 10.1063/1.124995
- [12] S.K. Chaluvadi, F. Ajejas, P. Orgiani, S. Lebargy, A. Minj, S. Flament, J. Camarero, P. Perna, L. Méchin, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **53**, 375005 (2020). DOI: 10.1088/1361-6463/ab8e7b
- [13] J. Dho, N.H. Hur, I.S. Kim, Y.K. Park, *J. Appl. Phys.*, **94**, 7670 (2003). DOI: 10.1063/1.1628831
- [14] Т.А. Шайхулов, Г.А. Овсянников, В.В. Демидов, Н.В. Андреев, *ЖЭТФ*, **156** (1), 135 (2019). DOI: 10.1134/S0044451019070149 [T.A. Shaikhulov, G.A. Ovsyannikov, V.V. Demidov, N.V. Andreev, *JETP*, **129** (1), 112 (2019). DOI: 10.1134/S1063776119060153].
- [15] V.V. Demidov, N.V. Andreev, T.A. Shaikhulov, G.A. Ovsyannikov, *J. Magn. Magn. Mater.*, **497**, 165979 (2020). DOI: 10.1016/j.jmmm.2019.165979
- [16] Т.М. Василевская, Д.И. Семенов, *ФММ*, **108** (4), 339 (2009). [T.M. Vasilevskaya, D.I. Sementsov, *Phys. Metals Metallogr.*, **108** (4), 321 (2009). DOI: 10.1134/S0031918X09100019].