

05

Магнетотранспортные параметры пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$, выращенных на подложке из галлата неодима

© Ю.А. Бойков¹, М.П. Волков^{1,2}

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур, Вроцлав, Польша

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

(Поступила в Редакцию 31 мая 2012 г.)

Слабо механически напряженные пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ толщиной 40 нм выращены когерентно на подложке $(001)\text{NdGaO}_3$ методом лазерного испарения. Максимум электросопротивления ρ пленки $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ наблюдается при температуре $T_C \approx 255$ К. При температурах ниже $0.6T_C$ полученные температурные зависимости ρ хорошо аппроксимируются соотношением $\rho = \rho_{\text{def}} + C_1 T^2 + C_2 T^{4.5}$, первое слагаемое в правой части которого учитывает вклад в электросопротивление дефектов структуры, а второе и третье — вклады электрон-электронного и электрон-магнонного взаимодействий соответственно. Величины $\rho_{\text{def}} \approx 1 \cdot 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ и $C_1 \approx 7.7 \cdot 10^{-9} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-2}$ не зависят от температуры и напряженности магнитного поля H . Коэффициент C_2 уменьшается с ростом H и при $\mu_0 H = 14$ Т имеет величину порядка $4.9 \cdot 10^{-15} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-4.5}$.

Финансовая поддержка проведенных исследований частично получена из проекта РФФИ № 11-02-00609а, госконтракта № 02.740.11.0544 и гранта Президиума РАН.

1. Введение

Наноразмерные пленки перовскитоподобных манганитов $\text{La}_{1-x}(\text{Ca},\text{Sr})_x\text{MnO}_3$ перспективны для использования в ячейках магнитной памяти [1], чувствительных элементах магнеторезистивных сенсоров [2] в варакторных структурах, перенастраиваемых электрическим и магнитным полями [3]. Температура Кюри T_{Curie} , электро- и магнетотранспортные параметры манганитных пленок зависят от уровня легирования (x в химической формуле) [4], качества структуры [5] и механических напряжений [6]. Тип и величина последних в значительной степени определяются рассогласованием параметров кристаллических решеток и температурных коэффициентов линейного расширения манганита и материала, использованного в качестве подложки.

В настоящей работе измерены температурные ($T = 4.2\text{--}300$ К) и полевые ($\mu_0 H \leq 14$ Т) зависимости электросопротивления пленок $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ (LCMO), выращенных на подложке NdGaO_3 (NGO). LCMO изоморфен по структуре с галлатом неодима и хорошо сопрягается с последним по параметрам кристаллических решеток.

2. Эксперимент

Пленки LCMO толщиной $d = 40$ нм выращивались на пластинах $(001)\text{NGO}$ методом лазерного испарения (KrF , $\lambda = 248$ нм, $\tau = 30$ нс). В процессе формирования манганитного слоя плотность лазерного излучения на поверхности испаряемой керамической мишени NGO составляла 1.7 J/cm^2 , а давление кислорода в ростовой

камере поддерживалось на уровне 0.3 mbar. После воздействия десяти лазерных импульсов на мишень толщина манганитного слоя увеличивается примерно на 2 Å.

Структура сформированных пленок исследовалась с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, $\text{CuK}\alpha_1$ -излучение, $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканы, кривые качения, двумерные изображения рефлексов). Рентгеновские сканы визуализировались в симметричной брэгговской конфигурации в условиях, когда плоскость, включающая падающий и отраженный рентгеновские пучки, нормальна к (001) или $(101)\text{NGO}$ (здесь и далее используются индексы для псевдокубической элементарной ячейки). Контроль за толщиной выращенных пленок осуществлялся с использованием данных по ширине спутанных пиков на рентгенограммах. Морфология поверхности манганитных слоев исследовалась с использованием микроскопа атомных сил (AFM, Nanoscope-IIIa).

Сопротивление R выращенных пленок измерялось в конфигурации van der Pauw в магнитном поле H и без него. Магнитное поле направлено параллельно плоскости подложки и измерительному току I_b . Электросопротивление ρ пленок LCMO рассчитывалось с использованием соотношения $\rho = R\pi d / \ln 2$ [7]. Четыре серебряных пленочных контакта, расположенных на углах квадрата, формировались на свободной поверхности манганитной пленки методом термического испарения.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Малое рассогласование $m \approx 0.2\%$ в параметрах кристаллических решеток LCMO (псевдокубическая эле-

ментарная ячейка, $a_{\text{LCMO}} = 3.858 \text{ \AA}$ [8]) и NGO (псевдокубическая ячейка, $a_{\text{NGO}} = 3.851 \text{ \AA}$ [9]) способствует формированию на подложках из галлата неодима пленок манганита с низким уровнем механических напряжений ($m = 100\% \cdot (a_{\text{LCMO}} - a_{\text{NGO}})/a_{\text{NGO}}$). Температурные коэффициенты линейного расширения LCMO и NGO имеют близкие значения [10,11].

3.1. Структура выращенных слоев LCMO. Рентгеновская дифрактограмма, полученная для пленки LCMO/NGO в условиях, когда плоскость, включающая падающий и отраженный рентгеновские пучки, ортогональна плоскости подложки, приведена на рис. 1. На дифрактограмме присутствуют только пики $(00n)$ от подложки и пленки. Это свидетельствует об отсутствии в объеме манганитных пленок макровключений вторичных кристаллических фаз. Вследствие малой величины m пики от манганитной пленки и подложки частично перекрываются (см. вставку *a* на рис. 2). Многочисленные спутательные толщинные пики (см. ту же вставку) свидетельствуют о высокой однородности пленки LCMO/NGO по толщине. Параметры элементарной ячейки пленки LCMO в плоскости подложки ($a_{\text{LCMO}}^{\parallel} = 3.852 \pm 0.005 \text{ \AA}$) и вдоль нормали к ее поверхности ($a_{\text{LCMO}}^{\perp} = 3.848 \pm 0.005 \text{ \AA}$), рассчитанные с использованием значений 2θ для пиков (004) и (303) LCMO, близки к параметру a_{NGO} . Это обстоятельство свидетельствует о том, что пленки LCMO выращены когерентно на поверхности (001) NGO и находятся под действием слабых растягивающих латеральных механических напряжений. На когерентность сопряжения кристаллических решеток пленки и подложки указывает также двумерное изображение рефлек-

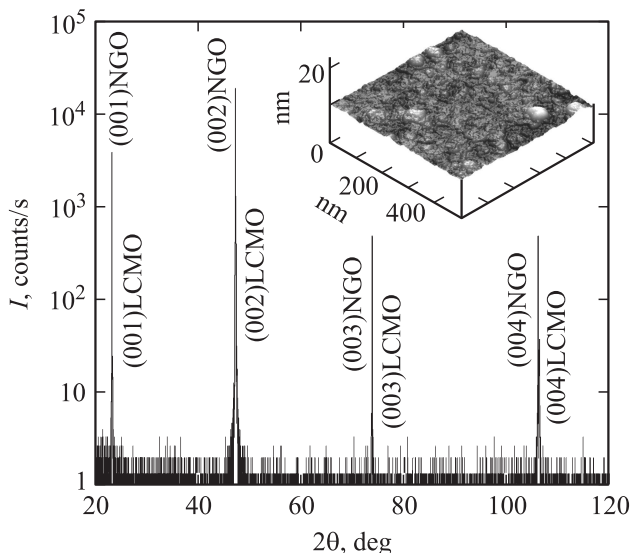


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма ($\omega/2\theta$) для пленки LCMO/NGO, полученная в условиях, когда плоскость, включающая падающий и отраженный рентгеновские пучки, нормальна к плоскости подложки. На вставке приведено изображение свободной поверхности той же пленки, визуализированное с использованием микроскопа атомных сил (режим высоты).

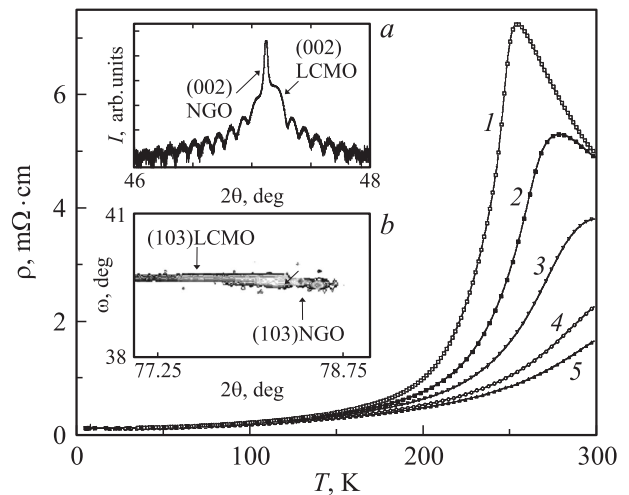


Рис. 2. Температурные зависимости электросопротивления ρ пленки LCMO/NGO, измеренные в магнитном поле различной напряженности $\mu_0 H$, T : 1 — 0, 2 — 2, 3 — 5, 4 — 10, 5 — 14. На вставке *a* показан фрагмент рентгеновского скана ($\omega/2\theta$), измеренный в окрестности пика (002) LCMO от той же пленки. На фрагменте четко видны многочисленные толщинные спутательные пики. На вставке *b* приведены двумерные изображения рефлексов (103) LCMO и (103) NGO от гетероструктуры (40 nm) LCMO/NGO. Рефлексы от манганитной пленки и подложки частично перекрываются.

сов (103) LCMO и (103) NGO, приведенное на вставке *b* на рис. 2. Малая полуширина ($\sim 0.04^\circ$) кривой качения ($\omega - 2\theta$), измеренной для рентгеновского рефлекса (002) LCMO, свидетельствует о высоком качестве структуры манганитного слоя.

Изображение поверхности пленки LCMO/NGO, полученное с использованием AFM, показано на вставке на рис. 1. На свободной поверхности манганитной пленки хорошо разрешаются кристаллические блоки с размерами 20–500 nm. Азимутальная разориентация блоков составляет порядка 0.05° (оценка получена с учетом полуширины пика на ϕ -скане для рентгеновского рефлекса (111) LCMO).

3.2. Электро- и магнетотранспортные параметры пленок LCMO. Температурные зависимости электросопротивления пленки LCMO, измеренные при различной напряженности магнитного поля, приведены на рис. 2. При $\mu_0 H = 0$ максимум на кривой $\rho(T)$ наблюдается при температуре $T_C \approx 255 \text{ K}$, которая близка к T_{Curie} [8] для объемных стехиометрических кристаллов LCMO. Магнитное поле стимулирует ферромагнитное упорядочение спинов в манганитном слое, что наглядно проявляется в сдвиге максимума на зависимостях $\rho(T)$ в сторону высоких температур с ростом $\mu_0 H$.

Зависимости отношения ρ/ρ_0 от $\mu_0 H$ ($\rho_0 \equiv \rho(\mu_0 H = 0)$), измеренные для пленки LCMO при различных температурах, показаны на рис. 3. При $\mu_0 H < 5 \text{ T}$ наиболее резкое падение электросопротивления манганитной пленки с увеличением напряженности магнитного поля

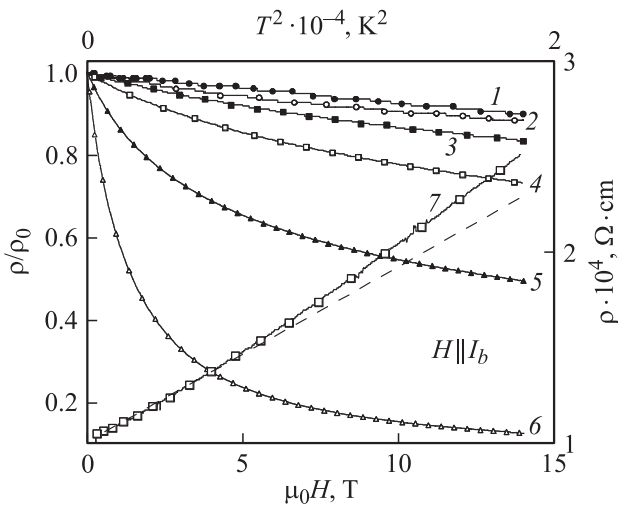


Рис. 3. Зависимости отношения ρ/ρ_0 от μ_0H (1–6) для пленки LCMO/NGO, измеренные при различных температурах, и низкотемпературный фрагмент зависимости $\rho(T^2, \mu_0H = 14\text{ T})$ (7) для той же пленки. T, K : 1 — 4.2, 2 — 50, 3 — 100, 4 — 150, 5 — 200, 6 — 250. Касательная к кривой 7 при низких температурах показана штриховой линией.

наблюдается (кривая 6 на рис. 3) при температурах чуть ниже T_C , когда в объеме манганитного слоя наряду с ферромагнитными доменами присутствуют включения неферромагнитных (антиферромагнитной, парамагнитной) фаз. Магнитное поле подавляет спиновые флуктуации в объеме доменов и способствует трансформации включений неферромагнитных фаз в ферромагнитные. Это приводит к увеличению эффективных размеров и удельной проводимости перколяционных каналов в объеме манганитного слоя. Отрицательное магнетосопротивление $MR(\mu_0H = 1\text{ T}) = 100\% \times (\rho/\rho_0 - 1)$ достигает примерно 45% при $T = 250\text{ K}$, но понижается до 1% при температуре жидкого гелия. С понижением температуры влияние расслоения фаз на магнетотранспорт в пленках LCMO ослабевает, что обуславливает уменьшение абсолютных значений производной $d\rho/dH$ (рис. 3). При $T = 4.2\text{ K}$ величина указанной производной практически не изменяется при увеличении μ_0H от 0 до 14 Т. Линейная зависимость электросопротивления металлических ферромагнетиков (Ni, Co,...) от напряженности магнитного поля, как правило наблюдаемая при низких температурах, связана [12] с изменением интенсивности электрон-магнного рассеяния.

При $T < 0.5T_C$ основную часть объема манганитной пленки занимает ферромагнитная фаза, подвижность носителей заряда в которой определяется в значительной степени их рассеянием на дефектах структуры (дислокации, границы блоков и т.д.), электрон-магнным и электрон-электронным взаимодействиями [13–15]. Зависимость электросопротивления манганитной пленки от температуры и магнитного поля при этом может быть представлена в виде

$$\rho = \rho_{\text{def}} + C_1 T^2 + C_2 T^{4.5}. \quad (1)$$

Первое слагаемое в правой части соотношения (1) учитывает вклад в электросопротивление дефектов структуры, а второе и третье — вклады электрон-электронного и электрон-магнного взаимодействий соответственно. Величина ρ_{def} и коэффициент C_1 не зависят от температуры и напряженности магнитного поля. Коэффициент C_2 также не зависит от температуры, но, как правило, уменьшается с ростом напряженности магнитного поля из-за изменения жесткости спиновой системы.

Для оценки вклада электрон-электронного рассеяния в электросопротивление пленки LCMO/NGO может быть использована зависимость ее электросопротивления от температуры при максимальной напряженности магнитного поля. Относительная роль электрон-электронного взаимодействия в процессах релаксации носителей заряда в манганитной пленке увеличивается с ростом напряженности магнитного поля, поскольку последнее демпфирует спиновые волны. В интервале 4.2–80 К электросопротивление пленки LCMO/NGO квадратично возрастает с ростом температуры (кривая 7 на рис. 3). Из наклона касательной к кривой 7 при $T < 100\text{ K}$ мы получили оценку для коэффициента $C_1 \approx 7.7 \cdot 10^{-9} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-2}$. Полученное значение для C_1 хорошо согласуется с величиной соответствующего коэффициента, использованного при аппроксимации температурных зависимостей электросопротивления высокосовременных эпитаксиальных пленок LCMO [13], выращенных методом MOCVD и подвергнутых высокотемпературному отжигу в кислороде.

Для оценки коэффициентов ρ_{def} и C_2 в соотношении (1) может быть использована зависимость разности $\rho - \rho_{\text{el}}$ от $T^{4.5}$, где $\rho_{\text{el}} \equiv C_1 T^2$ — вклад электрон-электронного рассеяния в электросопротивление манганитной пленки. Зависимости $\rho - \rho_{\text{el}}$ от $T^{4.5}$, полученные

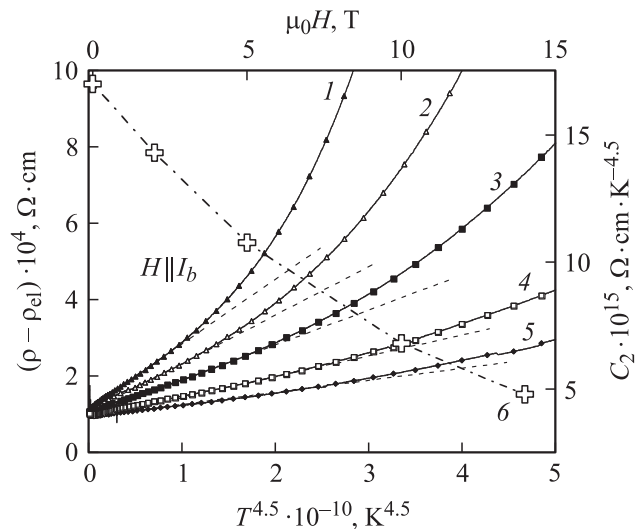


Рис. 4. Зависимости разности $\rho - \rho_{\text{el}}$ от $T^{4.5}$ (1–5) и значения коэффициента C_2 (6) для пленки LCMO/NGO, полученные при различных значениях μ_0H . μ_0H, T : 1 — 0, 2 — 2, 3 — 5, 4 — 10, 5 — 14. Касательные к экспериментальным кривым 1–5 при низких температурах показаны штриховыми линиями.

для пленки LCMO/NGO при различной напряженности магнитного поля, показаны на рис. 4. В температурном интервале 4.2–160 К ($\mu_0 H = 0$) разность $\rho - \rho_{el}$ хорошо описывается соотношением

$$\rho - \rho_{el} \sim C_2 T^{4.5}. \quad (2)$$

Коэффициент $C_2(\mu_0 H = 0)$, рассчитанный по наклону касательной к кривой I при низких температурах (рис. 4), имеет величину порядка $1.7 \cdot 10^{-14} \Omega \cdot \text{cm} \cdot \text{K}^{-4.5}$. Полученное значение $C_2(\mu_0 H = 0)$ для пленки LCMO/NGO хорошо согласуется с оценкой соответствующего параметра, приведенной в [13]. Наблюдаемое при $T > 170$ К и $\mu_0 H = 0$ более резкое, чем предсказанное соотношением (2), увеличение $\rho - \rho_{el}$ с ростом температуры обусловлено увеличением относительной доли неферромагнитной фазы в объеме манганитной пленки. Магнитное поле способствует трансформации включений неферромагнитной фазы в ферромагнитные. Вследствие этого верхняя граница температурного интервала, в котором разность $\rho - \rho_{el}$ описывается соотношением (2), достигает 200 К при $\mu_0 H = 14$ Т. При дальнейшем повышении температуры ($200 < T < T_C$) наряду с электрон-магнетонным взаимодействием и расслоением электронных фаз существенное влияние на электросопротивление пленки LCMO/NGO оказывает рассеяние носителей заряда на фононах [14]. В соответствии с ожиданиями коэффициент C_2 резко уменьшается с увеличением напряженности магнитного поля (кривая b на рис. 4). С увеличением $\mu_0 H$ от 0 до 5 Т величина C_2 уменьшается примерно линейно, что хорошо согласуется с данными, приведенными в [16]. При дальнейшем росте напряженности магнитного поля зависимость $C_2(\mu_0 H)$ ослабевает без явных признаков насыщения. Учитывая высокое совершенство структуры пленок LCMO/NGO и низкий уровень напряжений в их объеме, можно полагать, что величина и характер полевой зависимости коэффициента C_2 для стехиометрических объемных кристаллов LCMO приблизительно соответствуют данным, представленным на рис. 4.

Оценка $\rho_{def} \approx 1 \cdot 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ получена по отрезку, отсекаемому на оси ординат (левая ось на рис. 4) касательной к низкотемпературной части зависимости $\rho - \rho_{el}$ от $T^{4.5}$ для пленки LCMO/NGO при $\mu_0 H = 0$. Следует отметить, что величина указанного отрезка практически (в пределах 5%) не зависит от напряженности магнитного поля при измерении электропроводности манганитной пленки. Это является подтверждением слабой зависимости ρ_{def} от магнитного поля.

4. Заключение

Использование подложки из галлата неодима позволяет вырастить высокосоввершенные по структуре, слабо напряженные пленки LCMO с толщиной в несколько десятков нанометров. При $T < 150$ К зависимость электросопротивления пленки от температуры определяется в

основном электрон-электронным и электрон-магнетонным взаимодействиями. Реакция электросопротивления пленки на магнитное поле при указанных выше температурах зависит от интенсивности рассеяния носителей заряда на спиновых волнах.

Список литературы

- [1] 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, Y. Lu, M. Rooks, P.L. Trouilloud, R.A. Wanner, W.G. Gallagher. *J. Appl. Phys.* **85**, 8, 5828 (1999).
- [2] M. Pannetier, C. Fermon, G. Le Goff, J. Simola, E. Kerr. *Science* **304**, 5677, 1648 (2004).
- [3] Yu.A. Boikov, T. Claeson. *Phys. Rev. B* **70**, 18, 184433 (2004).
- [4] E.O. Wollan, W.C. Koehler. *Phys. Rev.* **100**, 545 (1955).
- [5] N.-C. Yeh, R.P. Vasquez, J. Huynh, S.M. Maurer, G. Beach, D.A. Beam. *J. Appl. Phys.* **81**, 8, 5499 (1997).
- [6] N.D. Nathur, P.B. Littlewood. *Solid State Commun.* **119**, 271 (2001).
- [7] T.I. Kamins. *J. Appl. Phys.* **42**, 9, 4357 (1971).
- [8] C.J. Lu, Z.L. Wang, C. Kwon, Q.X. Jia. *J. Appl. Phys.* **88**, 7, 4032 (2000).
- [9] R.W.G. Wyckoff. *Crystal structures*. 2nd ed. Interscience Publ., N.Y. (1960). V. 2. P. 409.
- [10] M. Sasaura, S. Miyazawa, M. Mukaida. *J. Appl. Phys.* **68**, 7, 3643 (1990).
- [11] P. Dai, J. Zhang, H.A. Mook, S.-H. Lion, P.A. Dowben, E.W. Plummer. *Phys. Rev. B* **54**, 6, R3694 (1996).
- [12] B. Raquet, M. Viret, E. Sondergard, O. Cespedes, R. Mamy. *Phys. Rev. B* **66**, 2, 024433 (2002).
- [13] G.J. Snyder, R. Hiskes, S. DiCarolis, M.R. Beasley, T.H. Geballe. *Phys. Rev. B* **53**, 21, 14434 (1996).
- [14] P. Schiffer, A.P. Ramirez, W. Bao, S.-W. Cheong. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 18, 3336 (1995).
- [15] K. Kubo, N. Ohata. *J. Phys. Soc. Jpn.* **33**, 1, 21 (1972).
- [16] Ю.А. Бойков, Т. Клаэсон. *ФТТ* **47**, 2, 274 (2005).