

06;11;12

Реактивное сопротивление пленочного контакта n -Au/ p -La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃

© Ю.А. Бойков,¹ В.А. Данилов,¹ Т. Клаесон²¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия² Чалмерский технический университет,
S-41296 Гетеборг, Швеция
e-mail: yu.boikov@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 9 ноября 2005 г.)

Исследованы отклики активного и реактивного сопротивлений пленочных гетероструктур Au/(20 nm)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ на изменение температуры и магнитное поле ($f = 100$ kHz). При $T = 300$ К удельная емкость границы, разделяющей золотой электрод и эпитаксиальную пленку (20 nm)La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃, составляла порядка $1 \mu\text{F}/\text{cm}^2$. Максимальные значения отрицательного реактивного магнетосопротивления ($\approx 60\%$ при $\mu_0 H = 0.4$ Т) выращенных гетероструктур примерно вдвое превосходили наблюдавшиеся при $T \approx 235$ К экстремальные значения активного магнетосопротивления. Эффективная глубина проникновения электрического поля в манганитную пленку со стороны сформированного на ее поверхности золотого контакта при комнатной температуре составляла порядка 3 nm.

PACS: 73.40.Cg, 73.40.Sx

Введение

Тонкие слои перовскитоподобных манганитов La_{1-x}A_xMnO₃, где $A = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}, \dots$, а $x \approx 0.33$, перспективны для применения в активных и пассивных элементах спинтроники и, в частности, в устройствах, основанных на инжекции носителей заряда с четко поляризованными спинами [1]. Для формирования таких элементов необходимо, чтобы тонкие, однородные по электронным и магнитным параметрам слои La_{1-x}A_xMnO₃ были объединены с диэлектрическими прослойками и металлическими электродами в многослойной гетероструктуре с резкими межфазными границами.

Структура манганитных пленок резко зависит от типа и величины механических напряжений, действующих в процессе их зародышеобразования и роста. Это является одной из причин деградации намагниченности в прослойках гетероэпитаксиальной манганитной пленки, прилегающих к подложке, электроду или к свободной поверхности [2].

В настоящее время в литературе имеются лишь несколько статей, посвященных изучению электронных параметров манганитных пленок вблизи межфазных границ [2,3]. В данной работе исследованы температурные зависимости активного R и реактивного X сопротивлений гетероструктур, включающих в себя тонкий слой La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ ($LCMO$) и золотые пленочные электроды. Полученные зависимости $X(T)$ использованы для оценки емкости контакта Au/ $LCMO$.

Эксперимент

Пленки $LCMO$ толщиной 20 nm были выращены на подложках (001)(LaAlO₃)_{0.3} + Sr₂AlTaO₆)_{0.7} ($LSATO$)

методом лазерного испарения (ComPex 200, KrF, $\lambda = 248$ nm, $\tau = 30$ ns). Технологические условия роста манганитных пленок детализированы в [4].

Структура выращенных пленок $LCMO$ исследовалась с использованием рентгеновской дифракции (Philips X'pert MRD, (00 l) и (101) $\omega/2\theta$ — сканы, ϕ — сканы для рефлексов (111) от пленки и подложки). Параметры элементарной ячейки в пленке $LCMO$ в плоскости

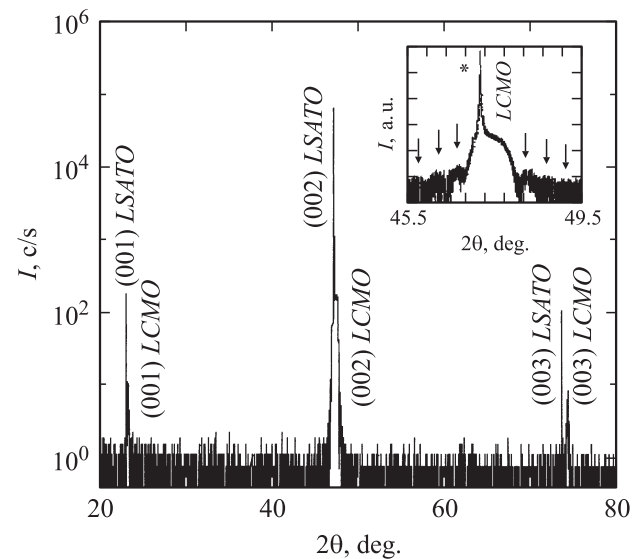


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма ($\text{CuK}\alpha_1$, $\omega/2\theta$), полученная для гетероструктуры Au/(20 nm)LCMO/LSATO, когда падающий и отраженный рентгеновские пучки находились в плоскости, нормальной к (001)LSATO. На вставке приведен фрагмент той же дифрактограммы в окрестности пика (002)LCMO. Сателитные пики Лауэ отмечены стрелками, * — пик от подложки.

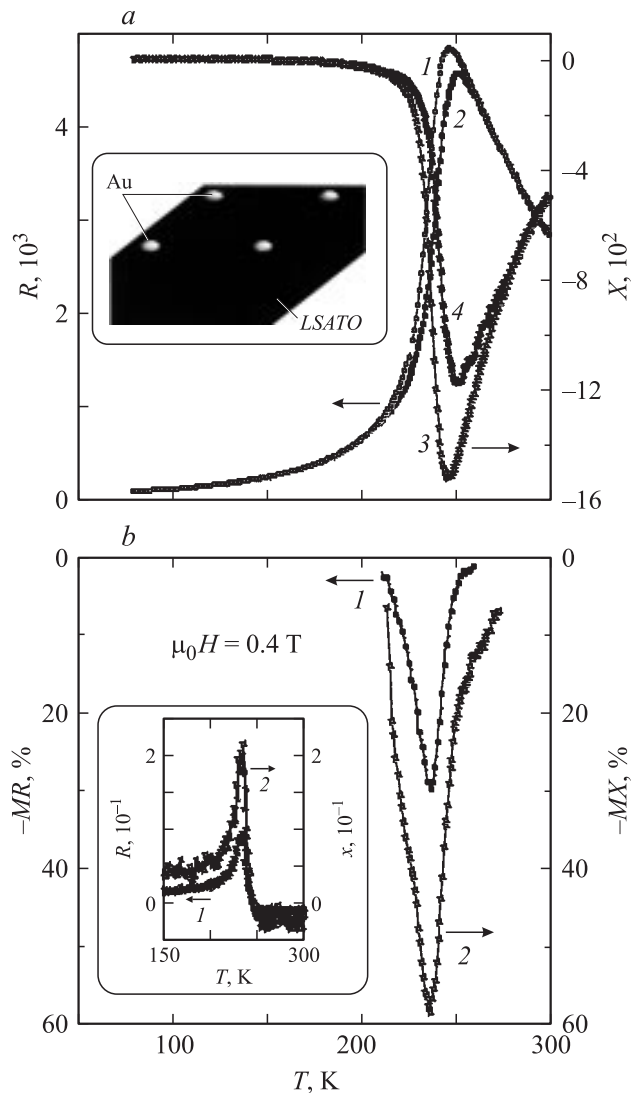


Рис. 2. *a* — температурные зависимости активного R (1,2) и реактивного X (3,4) сопротивлений гетероструктуры $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$. 1,3 — $\mu_0 H = 0$, 2,4 — 0.4 T . На вставке показан эскиз пленочной гетероструктуры $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$. *b* — температурные зависимости магнетосопротивления $\Delta R/R$ (1) и реактивного магнетосопротивления $\Delta X/X$ (2) для гетероструктуры $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$. На вставке приведены температурные зависимости температурного коэффициента сопротивления β_R (1) и температурного коэффициента реактивного сопротивления β_X (2) гетероструктуры $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$ ($\mu_0 H = 0$).

подложки a_{\parallel} и вдоль нормали к ее поверхности a_{\perp} рассчитывались с использованием значений 2θ для рефлексов (202) и (003) LCMO . Толщина манганитных пленок контролировалась с использованием данных по ширине спутниковых пиков Лауэ на рентгенограммах (см. вставку на рис. 1).

Четыре золотых контакта (толщина слоя Au $t = 50\text{ nm}$, площадь контакта $S = 0.0063\text{ cm}^2$), расположенных на углах квадрата, напылялись термически на свободную поверхность манганитной плен-

ки через механическую маску. Эскиз гетероструктуры $\text{Au}/\text{LCMO}/\text{LSATO}$ показан на вставке на рис. 2, *a*. Активное R и реактивное X сопротивления между двумя золотыми контактами (цепочка $\text{Au}/\text{LCMO}/\text{Au}$) измерялись с использованием прибора hp 4263A LCR meter (частота $f = 100\text{ kHz}$) в магнитном поле H и без него (направление магнитного поля было параллельно плоскости подложки). Разброс в измеренных значениях R и X при использовании различных пар контактов, сформированных на чипе, не превышал 8%.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Пленки LCMO с толщиной в несколько десятков нм, выращенные на подложках с малым рассогласованием m в параметрах кристаллических решеток, обладают гладкой свободной поверхностью и совершенной структурой. Параметр псевдокубической элементарной ячейки LCMO ($a_1 = 3.858\text{ \AA}$ [5]) меньше параметра псевдокубической ячейки LSATO ($a_2 = 3.868\text{ \AA}$ [6]), причем m не превышает 0.3%. Это определило выбор LSATO в качестве материала подложки.

Активное сопротивление R гетероструктуры $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$ зависело от удельного сопротивления манганитного слоя и контактного сопротивления двух границ Au/LCMO . Вклад золотых электродов в R незначителен вследствие малой их толщины и высокой электропроводности. Реактивное сопротивление исследованных гетероструктур имело емкостную X_C и индуктивную X_L составляющие, $X = X_C + X_L$. $X_C = -1/\omega C$ определялась емкостью контактов $n\text{-Au}/p\text{-LCMO}$, а $X_L = \omega L$ самоиндукцией L манганитного слоя ($\omega = 2\pi f$). Следует отметить, что величина X_C зависела от электронных параметров узких прослоек в золотом электроде и манганитной пленке, прилегающих к границе Au/LCMO . Вследствие химической инертности золота деградация электронных параметров Au в приконтактной области маловероятна. Концентрация дырок в приповерхностном слое пленки LCMO , напротив, может существенно отличаться от их концентрации в объеме манганитного слоя. Это обусловлено высокой плотностью вакансий кислорода в приповерхностной области упруго напряженной пленки LCMO [2].

Структура выращенных пленок LCMO

На рентгеновских $\omega/2\theta$ - и ϕ -сканах, полученных для гетероструктур $\text{Au}/(20\text{ nm})\text{LCMO}/\text{LSATO}$, присутствовали пики только от манганитного слоя и подложки (рис. 1). Разрешить какую-либо тонкую структуру рентгеновских пиков ($2\theta \leq 80^\circ$), которая указывала бы на релаксацию механических напряжений в выращенных пленках, нам не удалось. Система спутниковых пиков Лауэ, четко разрешаемая на полученных рентгенограммах (см. вставку на рис. 1) свидетельствует о высоком качестве структуры выращенных манганитных

слоев и об их однородности по толщине. Из полученных рентгеновских данных ($\omega/2\theta$ - и ϕ -сканы) следует, что сформированные пленки (20 nm) *LCMO* были четко преимущественно ориентированы как азимутально, так и относительно нормали к плоскости подложки. Параметр $a_{\perp} = 3.838 \pm 0.005 \text{ \AA}$ в пленке (20 nm) *LCMO* был меньше параметра $a_{\parallel} = 3.867 \pm 0.005 \text{ \AA}$. Последний практически совпадал с параметром решетки подложки. Таким образом, пленки (20 nm) *LCMO* были выращены когерентно на поверхности (001) *LSATO* и находились под действием слабых двухосных, растягивающих в плоскости подложки механических напряжений.

Электронные параметры гетероструктур *Au/(20 nm)LCMO/LSATO*

Температурные зависимости R и X гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO*, измеренные при $\mu_0 H = 0$ и 0.4 Т, приведены на рис. 2, а. При $\mu_0 H = 0$ максимальные значения R и отрицательного реактивного сопротивления X наблюдались при температуре $T_M \approx 246 \text{ К}$. Приведенное значение T_M хорошо согласуется с температурой, при которой наблюдался максимум электросопротивления ρ пленки (20 nm) *LCMO*, выращенной на *LSATO* в [7] (ρ измерялось на постоянном токе с использованием четырехзондовой схемы). Таким образом, зависимость R сформированных гетероструктур от температуры определялась, в первую очередь, параметрами манганитного слоя.

И активное, и реактивное сопротивления гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* существенно реагировали на внешнее магнитное поле. Максимум на кривых $R(T)$ и $X(T)$, измеренных при $\mu_0 H = 0.4 \text{ Т}$, был сдвинут на 4–5 К в сторону высоких температур относительно T_M (см. рис. 2, а). Резкий пик отрицательного магнетосопротивления $\Delta R/R = [R(\mu_0 H = 0.4 \text{ Т}) - R(\mu_0 H = 0)]/R(\mu_0 H = 0) \times 100\%$ наблюдался при температуре порядка 235 К [$-\Delta R/R(235 \text{ К}) \approx 30\%$]. Реактивное магнетосопротивление $\Delta X/X = [X(\mu_0 H = 0.4 \text{ Т}) - X(\mu_0 H = 0)]/X(\mu_0 H = 0) \times 100\%$ было также отрицательным и примерно вдвое превышало $\Delta R/R$ при $T = 235 \text{ К}$ (рис. 2, б). Следует отметить, что полуширина (ширина на половине высоты) пика на кривой $\Delta X/X(T)$ была в полтора раза больше полуширины пика на кривой $\Delta R/R(T)$.

Максимальные значения температурного коэффициента сопротивления $\beta_R(235 \text{ К}) = R^{-1} dR/dT \approx 0.10$ гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* были вдвое меньше максимальных значений температурного коэффициента реактивного сопротивления $\beta_X(235 \text{ К}) = X^{-1} dX/dT \approx 0.22$ (см. вставку на рис. 2, б). Благодаря высоким значениям β_X пленочные структуры, включающие манганитные слои и контакты из благородных металлов, представляются перспективными для использования в чувствительных элементах приемников теплового потока. При сравнительном анализе температурных зависимостей β_R и β_X следует помнить, что первая из них определяется в основном электронными параметрами в объеме слоя *LCMO*, а вторая зависит от

свойств тонкой прослойки в том же слое, прилегающей к золотому электроду.

При температурах 120–300 К измеренное реактивное сопротивление гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* было отрицательным (рис. 2, а). Это является следствием того, что в указанном интервале температуры вклад емкостной составляющей реактивного сопротивления превалировал над вкладом индуктивной составляющей. В окрестности ферромагнитного фазового перехода отрицательное X достигало 1500 Ω и практически полностью определялось величиной емкости контактов *n-Au/p-LCMO*, т.е. $X \approx -1/\omega C$. При $T = 300 \text{ К}$ емкость контакта *n-Au/p-LCMO* составляла $C_K \approx -2/\omega X(300 \text{ К}) \approx 6.6 \times 10^{-9} \text{ F}$ ($f = 100 \text{ kHz}$). Это соответствует удельной емкости межфазной границы *Au/LCMO* $C_B = C_K/S \approx 1 \mu\text{F}/\text{cm}^2$. С понижением температуры в интервале 300–250 К C_B уменьшалась примерно в три раза. Поскольку концентрация электронов в *Au* ($n_0 = 5.9 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ [8]) примерно на порядок величины больше концентрации носителей заряда в *LCMO* ($p \approx 6 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ в соответствии с химической формулой) стехиометрического состава, эффективная глубина проникновения электрического поля в золотой электрод должна быть значительно меньше глубины его проникновения в манганитный слой. Поэтому емкость C_{Au} , индуцированная проникновением электрического поля в золотой электрод, должна быть значительно больше емкости C_{LCMO} , связанной с проникновением электрического поля в пленку *LCMO*, а $C_B = C_{Au} \times C_{LCMO}/(C_{Au} + C_{LCMO}) \approx C_{LCMO}$. Это хорошо согласуется с данными, приведенными в [8], где для удельной емкости, индуцированной проникновением электрического поля в *Au*, получено значение порядка $8 \mu\text{F}/\text{cm}^2$, которое значительно больше величины C_B для границы *Au/LCMO*. Связь между эффективной глубиной проникновения L_M электрического поля в металлический электрод и индуцированной при этом емкостью C_I на межфазной границе может быть представлена в виде [8,9]

$$C_I = \epsilon_M/2.3L_M, \quad (1)$$

где ϵ_M — диэлектрическая проницаемость электрода.

Нам, к сожалению, не удалось найти литературных данных по низкочастотной ($f < 1 \text{ MHz}$) диэлектрической проницаемости *LCMO* ϵ' . $\epsilon' = 100\epsilon_0$ было использовано в [10] для оценки удельной емкости границы, сформированной в пленке *LCMO* на ступеньке. Для грубой оценки эффективной глубины проникновения L_{LCMO} электрического поля в манганитную пленку в гетероструктуре *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* мы использовали значение высокочастотной диэлектрической проницаемости $\epsilon_{\infty} = 8.5\epsilon_0$, полученное в [11] для пленок *LCMO* с применением ИК-спектроскопии. Используя соотношение (1), $C_{LCMO} = C_B = 1 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ и $\epsilon' = 8.5\epsilon_0$, мы получили для L_{LCMO} значение 3.2 nm. Сравнив полученные значения C_B и L_{LCMO} для гетероструктуры *Au/(20 nm)LCMO/LSATO* с соответствующими данными, имеющимися в литературе, следует отметить, что

они хорошо согласуются с оценками емкости (на единицу поверхности $\sim 0.5 \mu\text{F}/\text{cm}^2$) и эффективной толщины ($\sim 2 \text{ nm}$) контакта Au/Cr/(400 nm) $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$, приведенными в [12]. В качестве факторов, ответственных за относительно большое значение глубины проникновения электрического поля в манганитный электрод (по сравнению с глубиной проникновения поля в электрод из благородного металла [8]) в гетероструктуре Au/(20 nm) LCMO/LSATO , можно отметить следующие:

— нарушение стехиометрии манганитного слоя вследствие действующих в процессе его зарождения и роста механических напряжений, что приводит к снижению эффективной концентрации дырок в его объеме;

— наличие на межфазной границе Au/ LCMO оксидных включений с низкой ϵ (например, CaO) вследствие нарушения вакуума в ростовой камере при установке маски для напыления золотых контактов;

— присутствие в приповерхностном слое пленки (20 nm) LCMO включений плохо проводящих, не ферромагнитных фаз.

В заключение мы хотели бы отметить, что емкость, сосредоточенная на межфазной границе электрод/манганитная пленка так же, как и значительная величина L_{LCMO} могут оказывать существенное влияние на электро- и магнетотранспортные параметры многослойных гетероструктур, включающих манганитные и металлические пленки.

Исследования проводились в рамках научного сотрудничества Российской и Шведской королевской академий наук. Финансовая поддержка для проведения данной работы была частично получена из проекта 9Б19 программы президиума РАН „Низкоразмерные квантовые структуры“ и проекта № 04-02-16212 Российского фонда фундаментальных исследований.

Список литературы

- [1] Bowen M., Bibes M., Barthelemy A., et al. // Appl. Phys. Lett. 2003. Vol. 82. N 2. P. 233.
- [2] Wad U.P., Ogale A.S., Ogale S.B., Venkatesan T. // Appl. Phys. Lett. 2002. Vol. 81. N 18. P. 3422.
- [3] Boikov Yu.A., Claeson T. // Phys. Rev. V. 2004. Vol. 70. N 18. P. 184–433.
- [4] Бойков Ю.А., Клаесон Т., Бойков А.Ю. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 10. С. 54.
- [5] Lu C.J., Wang Z.L., Kwon C., Jia Q.X. // J. Appl. Phys. 2003. Vol. 88. N 7. P. 4032.
- [6] Ziese M., Semmelhack H.C., Han K.H., Sena S.P., Blythe H.J. // J. Appl. Phys. 2002. Vol. 91. N 12. P. 9930.
- [7] Бойков Ю.А., Данилов В.А. // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30. Вып. 13. С. 12.
- [8] Ku H.Y., Ullman F.G. // J. Appl. Phys. 1964. Vol. 35. N 2. P. 265.
- [9] Simmons J.G. // Appl. Phys. Lett. 1965. Vol. 6. N 3. P. 54.
- [10] Glaser A., Ziese M. // Phys. Rev. B. 2002. Vol. 66. N 9. P. 094422.
- [11] Boris A.V., Kovaleva N.N., Bazhenov A.V., et al. // J. Appl. Phys. 1997. Vol. 81. N 8. P. 5756.
- [12] Reversat L., Crozat P., Lyonnet R., et al. // Appl. Phys. Lett. 2003. Vol. 83. N 13. P. 2596.