05

Электронный транспорт в манганитных бикристаллических контактах

© А.М. Петржик¹, Г.А. Овсянников^{1,2}, В.В. Демидов¹, А.В. Шадрин^{1,2}, И.В. Борисенко¹

¹ Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН,

Москва, Россия

² Чалмерский технологический университет, Гётеборг, Швеция

E-mail: petrzhik@hitech.cplire.ru

(Поступила в Редакцию 3 сентября 2012 г.)

Исследованы транспортные и магнитные свойства контактов, созданных в тонких пленках La_{0.67}Sr_{0.33}MnO₃, эпитаксиально выращенных на подложках с бикристаллической границей. Использовались наклонные бикристаллические подложки из галлата неодима, в которых плоскости (110)NdGaO₃ наклонены на утлы 12 и 38°. Измерены и проанализированы температурные зависимости сопротивления, магнитосопротивления и дифференциальной проводимости контактов при различном напряжении. Обнаружено, что магнитосопротивление и сопротивление контакта существенно увеличиваются с ростом угла разориентации, хотя разориентация легких осей намагниченностей существенно не меняется. Отношение спин-зависимого и спиннезависимого вкладов в проводимость бикристаллического контакта увеличивается почти на порядок при изменении угла от 12 до 38°. Магнитосопротивление контакта увеличивается с понижением температуры, что, скорее всего, связано с ростом магнитной поляризации электронов. Показано, что при низких (гелиевых) температурах проводимость зависит от напряжения V по закону V^{1/2}, что свидетельствует о преобладании вклада электрон-электронного взаимодействия в сопротивление контакта. При увеличении температуры величина этого вклада уменьшается, возрастает вклад, пропорциональный V^{3/2}, характерный для механизма, предполагающего неупругое рассеяние спинов на антиферромагнитных поверхностных магнонах.

Работа выполнена при поддержке программ ОФН РАН, Министерства образования и науки РФ (02.740.11.0795), гранта Президента России (Ведущая научная школа НШ-2456.2012.2), проектов РФФИ № 11-02-01234а и 11-02-00349а.

1. Введение

Манганиты — перовскитные вещества на основе оксида марганца MnO₃, представители класса оксидов переходных металлов. Помимо открытого сравнительно недавно (в 1994 г.) колоссального магнитосопротивления (CMR), связанного с высокополевым поведением манганитов, существует большое низкополевое (туннельное) магнитосопротивление, возникающее на границах гранул [1]. Эффект наблюдается как в поликристаллах, так и в искусственных бикристаллических границах, которые образуются при росте пленок на бикристаллических подложках или в многослойных структурах [2]. Интерес к туннельному магнитосопротивлению во многом обусловлен возможностью его использования в различных устройствах: магниторезистивных считывающих головках, магнитных сенсорах, устройствах памяти и т.д.

Электронный транспорт в манганитных бикристаллических контактах обычно рассматривается как перенос заряда и спина через барьер, соединяющий два ферромагнетика. Тип транспорта определяется структурой, составом и размерами барьерной области. Большинство механизмов транспорта основано на туннелировании спин-поляризованных носителей через барьер. Более детальный анализ показывает необходимость учитывать немагнитные [1,3] и магнитные [4–6] примеси в барьере, наличие приграничной области с измененными магнитными параметрами [5,7]. Также рассмотрена модель, в которой учитывается прыжковый механизм переноса электронов через барьерную область [5,8].

В отличие от большинства работ, авторы которых изучали бикристаллические границы магнитных материалов, нанесенных на подложки с разориентацией кристаллографических осей поворотом вокруг нормали к плоскости подложки (разориентированные бикристаллические контакты — РБК), мы использовали наклонные бикристаллические контакты (НБК). Магнитополевая зависимость проводимости РБК, изготовленных из эпитаксиальных пленок La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃, напыленных на подложки из SrTiO₃, обсуждается в работах [5,6]. Отмечается сильное влияние напряженности манганитных пленок вблизи бикристаллической границы на магнитосопротивление границы. Наличие неупругого туннелирования с участием магнонов в туннельных магнитных переходах было теоретически рассмотрено в работах [9,10].

НБК в большинстве случаев позволяют существенно улучшить по сравнению с РБК микроструктуру границы и уменьшить концентрацию дислокаций в плоскости границы [11–14]. Обычно величину магнитосопротивления определяют как $MR = (R_{max} - R_0)/R_0$, где R_{max} — максимальное сопротивление контакта, наблюдаемое при малых магнитных полях, соответствующее противоположной ориентации намагниченностей образующих контакт частей пленки, а R_0 — сопротивление контакта при H = 0. С использованием НБК нам удалось получить значение MR величиной более 150% для контактов La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃ с углом разориентации 24° [12] и око-

ло 6% для La_{0,67}Sr_{0,33}MnO₃ (LSMO) с углом разориентации 38° [13,14]. Целью настоящей работы является исследование магнитосопротивления и проводимости бикристаллических контактов LSMO при низких температурах и определение механизма спинового транспорта.

2. Образцы и методика измерений

Рост пленок LSMO толщиной 120 nm на бикристаллических подложках из NdGaO3 (NGO) с симметричным поворотом плоскостей (110)NGO вокруг направления $[1\overline{1}0]$ NGO на углы $2\theta = 12$ и 38° производился лазерным напылением в атмосфере кислорода с давлением $P = 0.2 \,\mathrm{mbar}$ при температуре подложки $T = 750^\circ\mathrm{C} \,\mathrm{c}$ последующим охлаждением в кислороде при давлении 1 bar [14,15]. При росте манганитных пленок на наклонных подложках из NGO выполнялись следующие эпитаксиальные соотношения: (001)LSMO||(110)NGO, [100]LSMO [[110]NGO. Постоянная псевдокубической решетки для LSMO $a_L = 0.388 \, \text{nm}$, в то время как постоянная решетки (110)NGO (орторомбическая ячейка a = 0.5426 nm, b = 0.5502 nm, c = 0.7706 nm) вдоль направления [001] равна $a_N = 0.3853$ nm, а вдоль направления $[1\overline{1}0]$ $b_N = 0.3863$ nm [15,16]. При эпитаксиальном росте кристаллическая структура подложки повторяется в манганитной пленке, в результате чего в ней и образуется бикристаллическая граница. В результате напряжения пленки из-за сжатия в плоскости подложки возникает одноосная магнитная анизотропия, легкая ось которой, согласно [16], направлена вдоль [110]NGO.

Пересекающие бикристаллическую границу мостики формировались ионно-лучевым травлением с использованием маски из фоторезиста и имели ширину 8 μ m (рис. 1). Все электрофизические измерения проводились по четырехточечному методу с использованием платиновых или золотых контактных площадок. Постоянный ток протекал по мостику в плоскости пленки перпендикулярно границе, а направление внешнего магнитного поля варьировалось в плоскости пленки и задавалось углом α , отсчитываемым от направления протекания тока (рис. 1).

Направления легкой оси магнитной анизотропии пленок LSMO определялись с помощью методик, основанных на резонансном поглощении ферромагнитными пленками электромагнитного облучения. Измерялись угловые зависимости спектров ферромагнитного резонанса в X-диапазоне и высокочастотного поглощения в параллельной ориентации, когда образцы поворачивались на 360° вокруг нормали к поверхности подложки, а постоянное магнитное поле и магнитная составляющая электромагнитного поля все время были взаимно перпендикулярны и оставались в плоскости пленки [14,15].

3. Магнитосопротивление

На рис. 2 представлено семейство кривых магнитосопротивления бикристаллического контакта при четырех



Рис. 1. Центральная часть образца с пленочным LSMO-мостиком, пересекающим бикристаллическую границу; ширина мостика $w = 8 \,\mu$ m. Угол α определяет направление приложенного магнитного поля **H** относительно направления протекания тока **I**. Разориентация кристаллографических направлений двух частей пленки определяется углом 2θ . I - LSMO-мостик, пересекающий границу, 2 -бислой Au/LSMO, который используется для четырехточечного измерения сопротивления, 3 -бикристаллическая NGO-подложка. Бикристаллическая граница в подложке показана пунктиром.



Рис. 2. Зависимости магнитосопротивления, нормированного на сопротивление в поле H = 750 Ое, для бикристаллического LSMO-контакта с углом разориентации $2\theta = 38^{\circ}$ при четырех значениях температуры.

значениях температуры. Видно, что низкополевой вклад меняет форму кривой в зависимости от температуры и максимум магнитосопротивления достигается при низкой (гелиевой) температуре. При увеличении внешнего магнитного поля сопротивление спадает. Такая высокополевая зависимость характерна для манганитов и объясняется наличием эффекта CMR в этих веществах [2], заметно влияющего на магнитосопротивление контакта в сильных магнитных полях (для наших образцов начиная с полей порядка 1–2 kOe). В низких магнитных



Рис. 3. Температурные зависимости магнитосопротивления MR' (точки). Сплошная линия — расчетная температурная зависимость MR'(T). На вставке — зависимость MR от температуры для того же контакта.

полях (порядка сотен эрстед) наблюдается гистерезис по магнитному полю, характерный для ферромагнетиков.

Для нормировки магнитосопротивления обычно используют $R_{H=0}$ — сопротивление контакта при H = 0. Однако сопротивление при H = 0 изменяется в зависимости от предыстории измерения, что вносит неопределенность в значение магнитосопротивления (см. вставку к рис. 3). В настоящей работе в качестве меры магнитосопротивления было выбрано $MR' = (R_{max} - R_H)/R_H$, где *R_H* — сопротивление контакта при конечном магнитном поле. Мы выбрали магнитное поле $H = 0.75 \, \text{kOe}$, превышающее величину поля анизотропии, — поле, при котором гистерезисные эффекты исчезают. На рис. 3 показана зависимость MR'(T), которая в отличие от MR(T) (см. вставку к рис. 3) монотонно увеличивается с понижением температуры. В выбранном нами определении магнитосопротивления существует ошибка, вызванная наличием колоссального магнитосопротивления в манганитных пленках. Однако известно, что при низких температурах и малых магнитных полях порядка сотен эрстед вклад CMR от пленок, образующих контакт, мал [2].

При низких магнитных полях и гелиевых температурах, где поляризация близка к 100%, а СМR мало ввиду удаленности по температуре от точки Кюри, основной вклад дает магнитосопротивление границы. Для оценки величины вклада проводимости бикристаллического контакта в общую проводимость образца мы использовали подход, предложенный в [17,18]. Рассматривается туннельная проводимость поляризованных по спину носителей между двумя ферромагнитными средами, разделенными туннельным барьером. Необходимо учесть, что намагниченности по разные стороны от барьера направлены под разными углами β_1 и β_2 относительно границы. Аналитическое выражение для спиновой проводимости G_{sp} в такой ситуации выглядит следующим образом [17,18]:

$$G_{\rm sp} = G_{\rm sp}^0 \left[1 + P^2 \cos(\beta_1 - \beta_2) \right].$$
 (1)

Здесь G_{sp}^0 — проводимость поляризованных спинов, а P — поляризация этих спинов. Учитывая для полноты картины вклад в проводимость неполяризованных носителей G_{ns} , можно записать выражение для сопротивления туннельного барьера [10,19]

$$R = \frac{1}{G_{\rm sp} + G_{\rm ns}} = \frac{R_{\rm sp}}{1 + P^2 \cos(\beta_1 - \beta_2) + g}.$$
 (2)

Здесь $R_{\rm sp} = 1/G_{\rm sp}$, а $g \equiv G_{\rm ns}/G_{\rm sp}$.

Наши измерения НБК-контактов с помощью методик, основанных на резонансном поглощении электромагнитного облучения, показали, что разориентация легких осей намагниченностей двух частей контакта мала (примерно 1°). Но в то же время значения полей анизотропии заметно различаются. Для грубой оценки дальше будем считать, что автономные (в отсутствие поля) намагниченности M_1 и M_2 направлены параллельно. При достаточно большой величине внешнего магнитного поля намагниченности параллельны друг другу и направлены вдоль внешнего поля. Согласно нашим расчетам для пленок с одноосной анизотропией, максимум магнитосопротивления наблюдается в окрестности полей анизотропии, где происходит переориентация намагниченностей двух частей контакта. Именно в этой точке по внешнему магнитному полю (примерно вблизи поля анизотропии) наблюдается максимум сопротивления R_{max}. Известно, что поляризация манганитов при низких температурах близка к 100%. Будем считать P = 1. Тогда, исходя из (2), для максимального сопротивления справедливо равенство $R_{\text{max}} = R_{\text{sp}}/(1 - P^2 + g)$. Для больших полей, когда направления M_1 и M_2 параллельны и совпадают с полем, $R_H = R_{\rm sp}/(1 + P^2 + g)$. С учетом определенной выше величины MR' оценим соотношение поляризованных и неполяризованных носителей

$$MR' = (R_{\max} - R_H)/R_H = 2P^2/(1 - P^2 + g). \quad (3)$$

Подставив в (3) 100% поляризацию, получим

N

$$MR' = 2/g. \tag{4}$$

Из данных, приведенных на рис. 3, с помощью (4) получим $g = G_{\rm ns}/G_{\rm sp} = 6.7$. Следовательно, измеренная на постоянном токе проводимость контакта в основном определяется переносом неполяризованных носителей. Предполагается, что температурная зависимость поляризации имеет степенную форму [10,20,21]

$$P(T) = P_0(1 - \varepsilon T^{3/2}).$$
 (5)

Подставляя выражение (5) вместо *P* в (3) и учитывая экспериментальное значение MR' = 6.5%, получим $\varepsilon = 2 \cdot 10^{-4} \, \mathrm{K}^{-3/2}$. Это значение ε по порядку величины близко к литературным данным, полученным с помощью фотоэмиссионной спектроскопии для свободной поверхности LSMO-пленок: $\varepsilon = 4 \cdot 10^{-4} \, \mathrm{K}^{-3/2}$ [20],

но почти на порядок отличается от $\varepsilon = 4 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-3/2}$ для магнитных туннельных структур на базе LSMOпленок с прослойками из STO [20,21]. Для контактов с малым углом разориентации ($2\theta = 12^{\circ}$) величина магнитосопротивления составляет доли процента, при этом уменьшается характерное сопротивление контакта *RA* (где *A* — площадь контакта), хотя разориентация легких осей намагниченностей существенно не меняется [14]. Отметим, что магнитосопротивление существенно выше в бикристаллических контактах из La_{0.67}Ca_{0.33}MnO₃ (LCMO), где наблюдается переходный слой с меньшей температурой Кюри и характерное сопротивление границы больше [12].

Зависимость проводимости контактов от приложенного электрического напряжения

Для определения механизма переноса носителей было измерено семейство зависимостей проводимости контактов от напряжения при разных температурах в диапазоне от 4.2 до 300 К. Далее выбирается модель, которая лучше всего описывает перенос носителей в нашем эксперименте.

Бикристаллический контакт рассматривается как туннельный переход с двумя металлическими ферромагнитными электродами и прямоугольным потенциальным барьером между ними. Электронный транспорт можно описать механизмом упругого туннелирования через прямоугольный барьер [22]. Но такая модель применима лишь для низких температур и малых напряжений. В рамках данной модели в отсутствие переноса спина зависимость сопротивления от магнитного поля отсутствует. Изменение зависимости проводимости от напряжения возникает из-за изменения формы барьера при наличии напряжения на контакте и имеет следующий вид: $G(V) = G_0 + G_2 |V^2|$, где вклад $G_0 \gg G_2 |V^2|$. Учитывая тот факт, что G(V) в наших экспериментах (рис. 4) в каком-либо широком диапазоне не описывается законом V² и сильно отличается от линейной функции $G = G_0$, а также то, что мы наблюдаем сильные зависимости сопротивления от магнитного поля уже при десятках эрстед, данный механизм проводимости рассматривать не будем.

Развитием предыдущей модели является модель, учитывающая наличие приграничного слоя. Свойства такого слоя могут отличаться от свойств электродов за счет дополнительных центров рассеяния и малой длины свободного пробега. Наиболее отчетливо наличие приграничных слоев наблюдается в бикристаллических контактах из LCMO-пленок, где происходит уменьшение температуры Кюри [12]. В приграничном слое возможно усиление электрон-электронного взаимодействия, например из-за диффузной природы движения электронов в неупорядоченном грязном металле [23,24]. В манганитах сильное электрон-электронное взаимодействие



Рис. 4. Проводимость G(V) бикристаллического LSMO-контакта с углом разориентации 38° при различных температурах (экспериментальные кривые). Штриховыми линиями показаны аппроксимации экспериментальных кривых степенными зависимостями.

является причиной возникновения металлической проводимости. Зависимость проводимости от напряжения имеет вид $G(V, T) = G_0 + G_{1/2}|V^{1/2}|$. G_0 зависит от H, а $G_{1/2}|V^{1/2}|$ быстро спадает при увеличении температуры, что наблюдалось в разупорядоченных металлических оксидах [24] при температурах вплоть до 10 К. Действительно, в нашем эксперименте при низких температурах ($T \le 18$ K) на G(V) явно выделяется вклад, пропорциональный $V^{1/2}$. При более высоких температурах этот вклад уменьшается и на полевой зависимости проводимости уже практически незаметен (при T = 64 K и выше).

Прыжковый механизм проводимости контакта с неоднородным барьером, рассмотренный Глазманом и Матвеевым [25], предполагает температурную зависимость $G(T) \sim T^{4/3}$, которая в нашем случае не наблюдается. Кроме того, в теории [25] отсутствует зависимость проводимости от магнитного поля.

В работах [9,26] рассмотрено рассеяние носителей на магнитных возбуждениях, которое вызывает нелинейную полевую зависимость. Модель рассеяния спинполяризованных носителей [26] предполагает зависимость $G(V) = G_0 + G_2|V^2| + G_{3/2}|V^{3/2}|$ для проводимости магнитного контакта. Член $G_2|V^2|$ определяется объемными магнонами, а $G_{3/2}|V^{3/2}|$ — поверхностными антиферромагнитными магнонами. Вклад $G_{3/2}|V^{3/2}|$ становится определяющим для G(V) при температурах выше 50 К.

Следовательно, из анализа зависимости проводимости бикристаллических контактов от смещения по напряжению следует, что в наших контактах преобладают два механизма: электрон-электронное взаимодействие при низких температурах, предполагающее наличие приграничного слоя, и рассеяние спин-поляризованных носителей на антиферромагнитных магнонах приграничной



Рис. 5. Зависимость проводимости от температуры для 38° бикристаллической пленки (пунктир), автономной пленки (штриховая линия) и бикристаллического контакта (сплошная линия). На вставке показана проводимость бикристаллического контакта при низких температурах.

области в интервале более высоких температур [27]. Увеличение магнитосопротивления с понижением температуры обусловлено увеличением магнитной поляризации и ослаблением механизма спинового рассеяния.

Наличие двух механизмов рассеяния спинов подтверждается температурной зависимостью проводимости LSMO бикристаллического контакта и автономной пленки того же состава (рис. 5). Видно, что при уменьшении температуры меняется характер температурной зависимости проводимости бикристаллического контакта в области 30 К. Если ниже 30 К наблюдался рост проводимости с увеличением температуры, то выше наблюдается явный спад.

5. Заключение

Измерение угловой зависимости магнитного поля, соответствующего ферромагнитному резонансу в бикристаллических контактах, показало наличие двух ферромагнитно-упорядоченных спиновых подсистем с мало различающимися (порядка 1°) направлениями легких осей намагниченности. Оси направлены вдоль бикристаллической границы и практически не зависят от угла кристаллографической разориентации частей бикристаллической подложки. Величина магнитосопротивления (MR') увеличивается с уменьшением температуры, однако даже при T = 4.2 K, когда в LSMO-пленках поляризация близка к 100%, MR' составляет лишь 30% для контактов с разориентацией плоскостей 38°. С уменьшением угла разориентации MR' сильно уменьшается и при $2\theta = 12^{\circ}$ составляет доли процента. Показано, что малое значение магнитосопротивления может быть вызвано рассеянием спин-поляризованных носителей из-за сильного электрон-электронного взаимодействия в приграничном неупорядоченном слое при низких температурах и рассеянием на антиферромагнитных магнонах при высоких.

Авторы благодарны В.А. Ацаркину, Р. Гуннарсону, А.А. Климову, К.И. Константиняну, И.М. Котелянскому, В.А. Лузанову и С.А. Никитову за полезное обсуждение полученных результатов и помощь при проведении исследований.

Список литературы

- [1] I. Zutic. Rev. Mod. Phys. 76, 323 (2004).
- [2] J. O'Donnel, M. Onellion, M.S. Rzchowski. Phys. Rev. B 55, 5873 (1997).
- [3] N.D. Mathur, G. Burnell, S.P. Isaac, T.J. Jackson, B.-S. Teo, J.L MacManus-Driscoll, L.F. Cohen, J.E. Evetts, M.G. Blamire. Nature 387, 266 (1997).
- [4] Y. Soh, P.G. Evans, Z. Cai, B. Lai, C.-Y. Kim, G. Aeppli, N. D Mathur, M.G. Blamire, E.D. Isaacs. J. Appl. Phys. 91, 7742 (2002).
- [5] M.r Paranjape, J. Mitra, A.K. Raychaudhuri, N.K. Todd, N.D. Mathur, M.G. Blamire. Phys. Rev. B 68, 144 409 (2003).
- [6] N.K. Todd, N.D. Mathur, S.P. Isaac, J.E. Evetts, M.G. Blamire. J. Appl. Phys. 85, 7263 (1999).
- [7] K. Steenbeck, T. Eick, K. Kirsch, H.G. Schmidt, E. Steinbeiß. Appl. Phys. Lett. 73, 2506 (1998).
- [8] C. Höfener, J.B. Philipp, J. Klein, L. Alff, A. Marx, B. Buchner, R. Gross. Europhys. Lett. 50, 681 (2000).
- [9] C.A. Dartora, G.G. Cabrera. J. Appl. Phys. 95, R11 (2004).
- [10] C.H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, J.S. Moodera. Phys. Rev. B 58, R2917 (1998).
- [11] I.V. Borisenko, I.M. Kotelyanski, A.V. Shadrin, P.V. Komissinski, G.A. Ovsyannikov. IEEE Trans. Appl. Supercond. 15, 165 (2005).
- [12] И.В. Борисенко, Г.А. Овсянников. ФТТ 51, 292 (2009).
- [13] G. Alejandro, L.B. Steren, H. Pastoriza, D. Vega, M. Granada, J.C. Royas Sánchez, M. Sirena, B. Alascio. J. Phys.: Cond. Matter 22, 346 007 (2010).
- [14] А.М. Петржик, В.В. Демидов, Г.А. Овсянников, И.В. Борисенко, А.В. Шадрин. ЖЭТФ 142, 994 (2012).
- [15] В.В. Демидов, И.В. Борисенко, А.А. Климов, Г.А. Овсянников, А.М. Петржик, С.А. Никитов. ЖЭТФ 139, 943 (2011).
- [16] H. Boschker, M. Mathews, E.P. Houwman, H. Nishikawa, A. Vailionis, G. Koster, G. Rijnders, D.H.A. Blank. Phys. Rev. B 79, 214425 (2009).
- [17] M. Julliere. Phys. Lett. A 54, 225 (1975).
- [18] J.C. Slonczewski. Phys. Rev. B 39, 6995 (1989).
- [19] R. Gunnarsson, Z.G. Ivanov, C. Dobourdieu, H. Russel. Phys. Rev. B 69, 054 413 (2004).
- [20] J.-H. Park, E. Vescovo, H.-J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, T. Venkatesan. Phys. Rev. Lett. 81, 1953 (1998).
- [21] V. Garcia, M. Bibes, A. Barthélémy, M. Bowen, E. Jacquet, J.-P. Contour, A. Fert. Phys. Rev. B 69, 052 403 (2004).
- [22] W. Westerburg, F. Martin, S. Freiedrich, M. Maier, G. Jakob. J. Appl. Phys. 86, 2173 (1999).
- [23] P.A. Lee, T.V. Ramakrishnan. Rev. Mod. Phys. 57, 287 (1985).
- [24] М.Е. Гершензон, В.Н. Губанков, М.И. Фалей. ЖЭТФ 90, 2196 (1986).
- [25] Л.И. Глазман, К.А. Матвеев. ЖЭТФ 94, 332 (1988).
- [26] F. Guinea. Phys. Rev. B 58, 9212 (1998).
- [27] N. Khare, U.P. Moharil, A.K. Gupta, A.K. Raychaudhuri, S.P. Pai, R. Pinto. Appl. Phys. Lett. 81, 325 (2002).