

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
ИНСТИТУТ РАДИОТЕХНИКИ И ЭЛЕКТРОНИКИ им. В.А. КОТЕЛЬНИКОВА  
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

На правах рукописи

ПЕТРЖИК Андрей Михайлович

МАГНИТОТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА МАНГАНИТНЫХ ТОНКИХ ПЛЁНОК,  
БИКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ КОНТАКТОВ И МНОГОСЛОЙНЫХ ФЕРРОМАГНИТНЫХ  
СТРУКТУР

Специальность 01.04.07 «Физика конденсированного состояния»

Диссертация на соискание учёной степени кандидата  
физико-математических наук

Научный руководитель

д.ф.-м.н.

Г.А. Овсянников

Москва 2014

## Оглавление

Введение .....	3
Глава 1. Обзор литературы	
1.1. Монокристаллы редкоземельных магнитных перовскитов $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$ .....	5
1.2. Эпитаксиальные тонкие плёнки манганитов .....	8
1.3. Магнетосопротивление эпитаксиальных тонких плёнок манганитов .....	9
1.4. Магнитные туннельные переходы на основе манганитов .....	11
1.5. Эффект близости в структуре сверхпроводник – манганит .....	14
1.6. Постановка задачи .....	15
Глава 2. Экспериментальные образцы и методика эксперимента	
2.1. Изготовление эпитаксиальных тонких плёнок манганитов, гетероструктур и бикристаллических контактов .....	16
2.2. Электрофизические измерения экспериментальных образцов .....	19
2.3. Измерение магнитных свойств тонких плёнок, гетероструктур и меза-структур .....	21
2.4. Рентгеновские измерения экспериментальных образцов .....	24
2.5. Рефлектометрия поляризованных нейтронов .....	26
Глава 3. Влияние механических напряжений на магнитное состояние манганитных тонких плёнок	
3.1. Влияние механических напряжений в манганитных плёнках на температуру перехода в ферромагнитное состояние .....	29
3.2. Магнитная анизотропия эпитаксиальных манганитных плёнок .....	32
3.3. Температурное поведение сопротивления эпитаксиальных плёнок .....	34
3.4. Краткие выводы .....	35
Глава 4. Магнитотранспортные свойства бикристаллических контактов из $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$	
4.1. Магнитная анизотропия бикристаллических образцов .....	37
4.2. Магнетосопротивление бикристаллических контактов .....	39
4.3. Зависимость проводимости бикристаллических контактов от приложенного электрического напряжения .....	43
4.4. Краткие выводы .....	47

Глава 5. Магнитотранспортные свойства гетероструктур манганит / рутенат	
5.1. Анализ качества гетероструктур .....	48
5.2. Магнитные свойства гетероструктур .....	51
5.3. Меза-структуры манганит/рутенат .....	56
5.4. Магнетосопротивление меза-структур .....	59
5.5. Краткие выводы .....	61
Глава 6. Эффект близости в гибридных гетероструктурах купратный сверхпроводник / ниобий с манганитной прослойкой	
6.1. Температурные зависимости сопротивления меза-структур .....	63
6.2. Зависимость проводимости меза-структуры с прослойкой из манганита от напряжения .....	65
6.3. Сравнение измеренной проводимости гетероструктуры, имеющей манганитную прослойку, с теоретическими расчётами .....	66
6.4. Краткие выводы .....	69
Основные результаты работы .....	70
Список цитированной литературы .....	73

## Введение

Редкоземельные магнитные перовскиты со структурой  $\text{Re}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$  (Re – редкоземельные материалы типа La или Nd, а A – щелочноземельные металлы типа Sr или Ca) демонстрируют широкий набор необычных электрических и магнитных свойств, включая эффект колоссального магнетосопротивления. Параметры эпитаксиальных плёнок существенно отличаются от свойств монокристаллов, в первую очередь из-за возникающих напряжений в плёнках, вызванных рассогласованием параметров кристаллографической решетки плёнки и подложки, на которую нанесена плёнка. Определение электрических и магнитных характеристик эпитаксиальных магнитных плёнок актуально при выборе оптимальной подложки для дальнейшего создания устройств микроэлектроники и спинтроники на основе манганитов.

Помимо колоссального магнетосопротивления, связанного с высокополевым поведением манганитов, существует большое низкополевое (туннельное) магнетосопротивление, возникающее на границах гранул. Эффект наблюдается как на поликристаллических плёнках, так и на искусственных границах, которые образуются при росте пленок на бикристаллических подложках, или в многослойных структурах. Интерес к туннельному магнетосопротивлению во многом обусловлен возможностью его использования в различных устройствах: магниторезистивных считывающих головках, магнитных сенсорах, устройствах памяти и т. д. 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 (РБК), в работе соискателя рассматриваются наклонные бикристаллические контакты (НБК). НБК в большинстве случаев позволяют существенно улучшить по сравнению с РБК микроструктуру границы и уменьшить концентрацию дислокаций в плоскости границы. Таким образом, выше описанные исследования могут

быть полезны для создания спинтронных устройств на основе манганитов, что несомненно является актуальной задачей.

Для получения высокого туннельного магнетосопротивления наряду с бикристаллическими контактами часто используются структуры из двух эпитаксиальных ферромагнитных плёнок, разделённых между собой слоем изолятора. В качестве ферромагнетиков в настоящей работе были выбраны  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  (LSMO) и  $\text{SrRuO}_3$  (SRO). Если в LSMO плёнке намагниченность, как правило, лежит в плоскости подложки, то в SRO она направлена под углом к этой плоскости. Как следует из теоретической модели Джульера, это обеспечивает существенный начальный сдвиг углов направлений намагниченности, что влияет на возникновение туннельного магнетосопротивления. Исследования гетероструктур LSMO/SRO с помощью аномального эффекта Холла и сдвиг петли гистерезиса двухслойной структуры при приложении внешнего магнитного поля указывают на сильную связь этих ферромагнетиков. Для получения высокого магнетосопротивления следует уменьшить обменную связь между двумя ферромагнетиками за счёт использования неферромагнитной прослойки, обычно выбирается  $\text{SrTiO}_3$ . В нашем случае в качестве разделительной прослойки использовалась тонкая плёнка из непроводящего манганита  $\text{LaMnO}_3$ . Определение направлений намагниченности двухслойных структур LSMO/SRO с разными значениями дополнительной прослойки из  $\text{LaMnO}_3$  (LMO), а также измерение магнетосопротивления в этих структурах позволяет определить оптимальное значение прослойки для создания спинтронных устройств на основе двух ферромагнитных эпитаксиальных плёнок.

Другим актуальным направлением исследований в физике твёрдого тела, привлекающим к себе в последнее время повышенный интерес, является проблема взаимодействия сверхпроводимости и магнетизма. Эта проблема изучалась как для магнитных сверхпроводников, так и для гибридных структур, содержащих сверхпроводники и магнитные материалы. Эффект близости в таких гибридных структурах обладает рядом нетривиальных особенностей. Эти особенности приводят, в

частности, к немонотонной зависимости критической температуры от толщины ферромагнитного слоя в многослойных и двухслойных структурах сверхпроводник/ферромагнетик. Несмотря на большое количество экспериментальных работ по данной тематике, большинство исследований структур сверхпроводник/ферромагнетик проводилось на поликристаллических плёнках, в которых отсутствует влияние кристаллической структуры контактирующих материалов и в силу этого не может наблюдаться ряд интересных эффектов. Например, в поликристаллических переходах с антиферромагнитной прослойкой отсутствовал аномально большой эффект близости, который проявляется в эпитаксиальной структуре. Изучение структур, содержащих сверхпроводящий купрат и манганит, учитывая высокую степень поляризации манганита и его хорошую химическую совместимость с купратами, интересно для создания элементов сверхпроводящей памяти.

## Глава 1. Обзор литературы

### 1.1. Монокристаллы редкоземельных магнитных перовскитов $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$

Наибольший интерес представляют манганиты (окислы марганца) типа  $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$ , где А — двухвалентный элемент (Ca, Ba, Sr, ...). Концентрация x элемента А может меняться от 0 до 1, при этом физические свойства манганитов сильно изменяются. Система переходит через цепочку фазовых переходов с разнообразными типами упорядочения: магнитного, структурного, электронного.

Манганиты активно исследуются уже более 60 лет и получили известность из-за открытия в 1994 году колоссального магнетосопротивления [1]. Этот эффект может служить основой технических приложений, он наблюдается в интервале концентраций x,

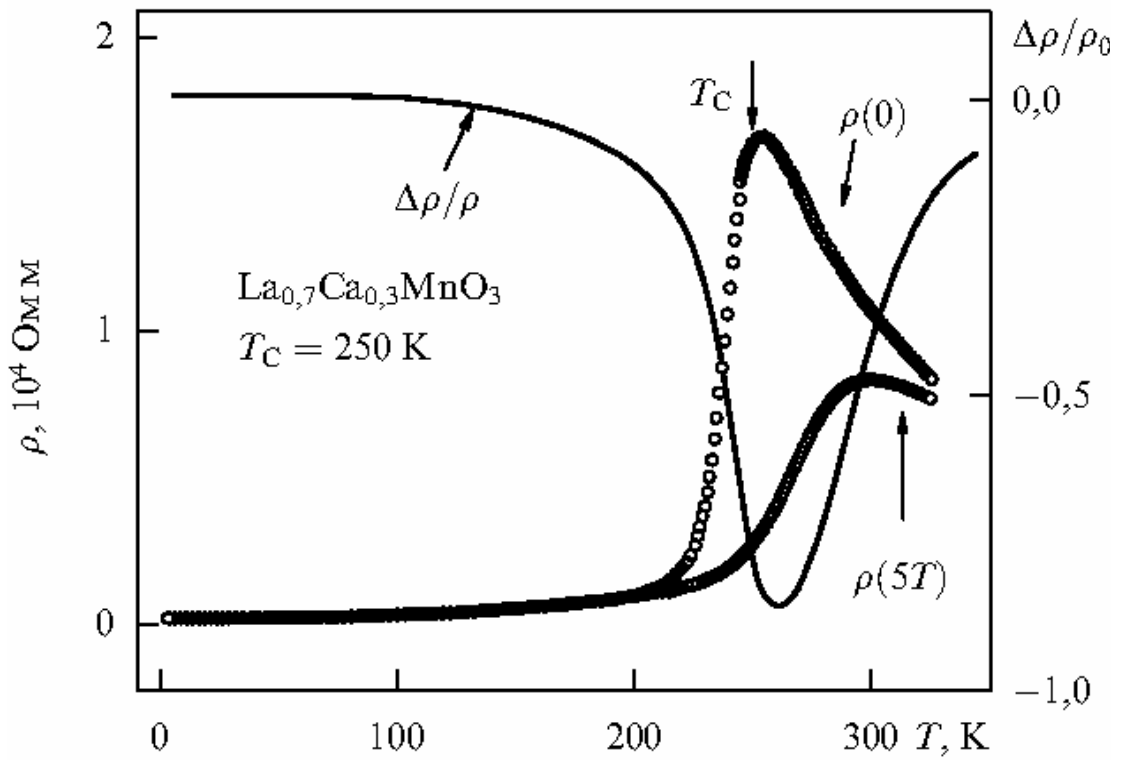


Рисунок 1.1. Температурная зависимость сопротивления и магнетосопротивления в манганитах на примере монокристалла  $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ .  $T_C$  – точка Кюри,  $\rho(5T)$  и  $\rho(0)$  – удельное сопротивление в поле 5 Тл и нулевом внешнем магнитном поле соответственно.

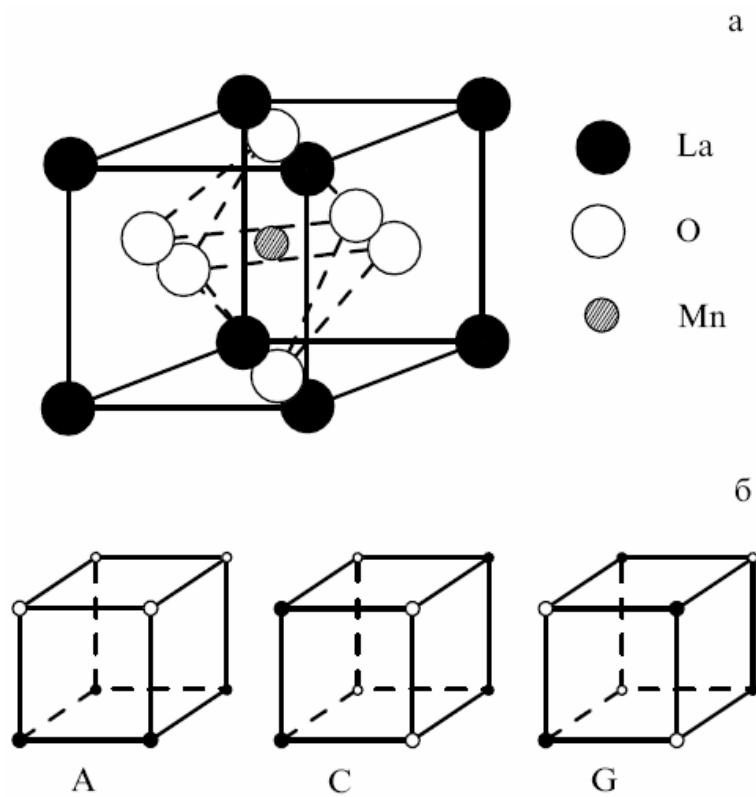


Рисунок 1.2. (а) - Кристаллическая структура манганитов (перовскит). (б) – Магнитная структура манганитов типа А, С и G, чёрные и белые кружки обозначают противоположно ориентированные спины.

где существует ферромагнитная металлическая фаза, и состоит в том, что сопротивление  $R$  уменьшается при приложении магнитного поля. Величина эффекта  $\Delta R/R$  в магнитных полях порядка 1 Тл при комнатной температуре может достигать десятков процентов. Максимальный эффект наблюдается в окрестности температуры Кюри (см. рис. 1.1).

Если говорить о кристаллах, исходное (до замещения) соединение манганита  $\text{LaMnO}_3$  является антиферромагнитным диэлектриком с магнитной структурой типа А (рис. 1.2). При замещении лантана, например, кальцием или стронцием до уровня  $x \sim 0.3$  (так называемое оптимальное допирование, при котором температура точка Кюри максимальна), система становится ферромагнитным металлом с магнитной структурой типа С, а при  $x > 0,5$  — снова антиферромагнитным диэлектриком с магнитной структурой типа G. Для оптимально допированных манганитов при повышении температуры в точке Кюри наблюдается смена ферромагнитной фазы на парамагнитную, с практически одновременным увеличением электросопротивления и переходом металл-изолятор (см. рис. 1.3). Зависимость электросопротивления от температуры сильно зависит от степени замещения исходного соединения двухвалентным элементом. Появление металлического состояния ниже точки Кюри и сильное магнетосопротивление – явления, тесно связанные друг с другом.

Возникновение металлической ферромагнитной фазы в манганитах было объяснено ещё в 1951 г. Зинером на основе предположения о сильном внутриатомном обмене между локализованным спином и делокализованным электроном. Благодаря этой связи спин электрона выстраивается параллельно спину иона. Электрон, таким образом, способен передвигаться от узла к узлу решётки, понижая полную энергию системы. В этом случае ферромагнитное состояние возникает не из-за обменного взаимодействия ионов, а из-за кинетического эффекта. Такой механизм назвали двойным обменом:  $\text{Mn} \rightarrow \text{O} \rightarrow \text{Mn}$  (двойной переход электрона через промежуточный ион кислорода).



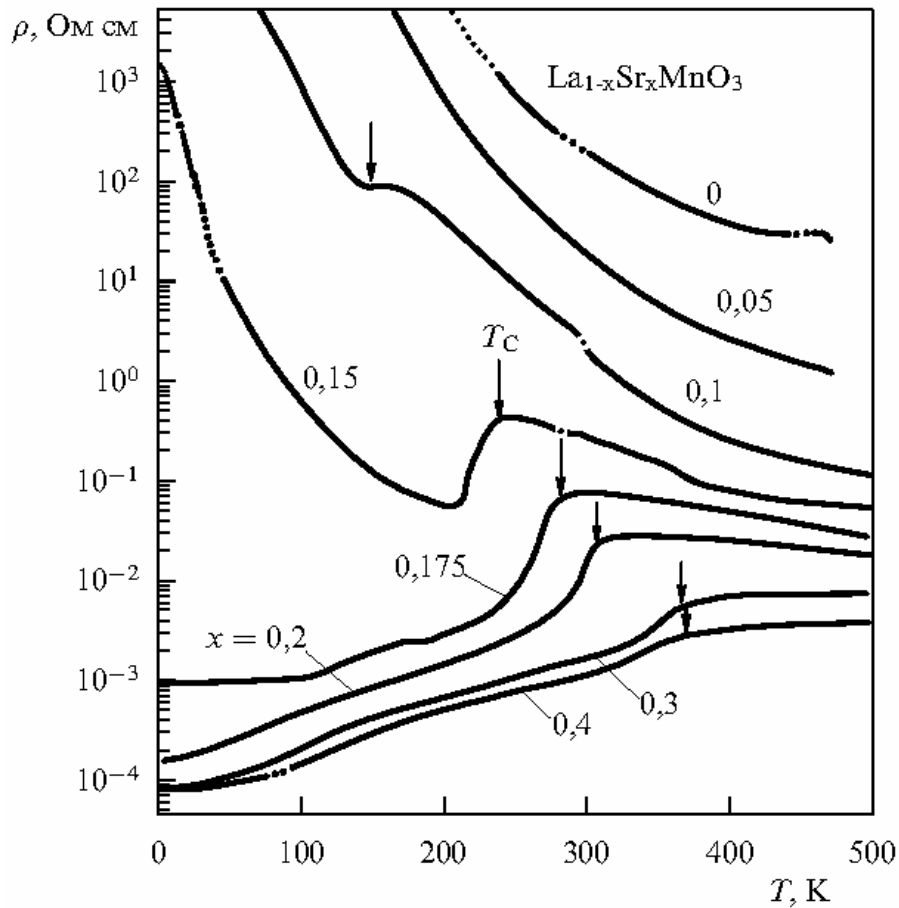


Рисунок 1.3. Температурная зависимость сопротивления монокристаллического  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  при различных концентрациях Sr. Стрелками изображена точка перехода металл-изолятор.

## 1.2. Эпитаксиальные тонкие плёнки манганитов

Выше были рассмотрены основные свойства монокристаллических манганитов, однако эпитаксиальные тонкие плёнки этих материалов существенно отличаются от монокристаллов. Основной причиной такого несоответствия является рассогласование параметров решетки подложки и выращиваемой на ней манганитной плёнки. В [2] было показано, что трёхмерное сжатие кристаллической решетки увеличивает амплитуду перескока в модели двойного обмена, что ведёт к увеличению температуры Кюри. В то же время двусонные искажения вызывают усиление локализации электронов и уменьшают температуру Кюри [3]. Существенное влияние на магнитные свойства плёнок оказывают эффекты фазового расслоения и наличие немагнитного слоя на границе подложка-плёнка, которые наиболее сильно проявляются в плёнках тоньше 10 нм. Также очень важным

является стехиометрия соединения по кислороду. В [4] показано, что наличие избыточного кислорода и кристаллических напряжений может существенно влиять на соотношение концентраций ионов  $Mn^{4+}/Mn^{3+}$  в пленке и таким образом приводить к появлению перехода металл-изолятор даже в недопированных плёнках  $LaMnO_{3+\delta}$ . Зависимость сопротивления от температуры идентичных по химическому составу плёнок  $LaMnO_3$  представлена на рисунке 1.4.

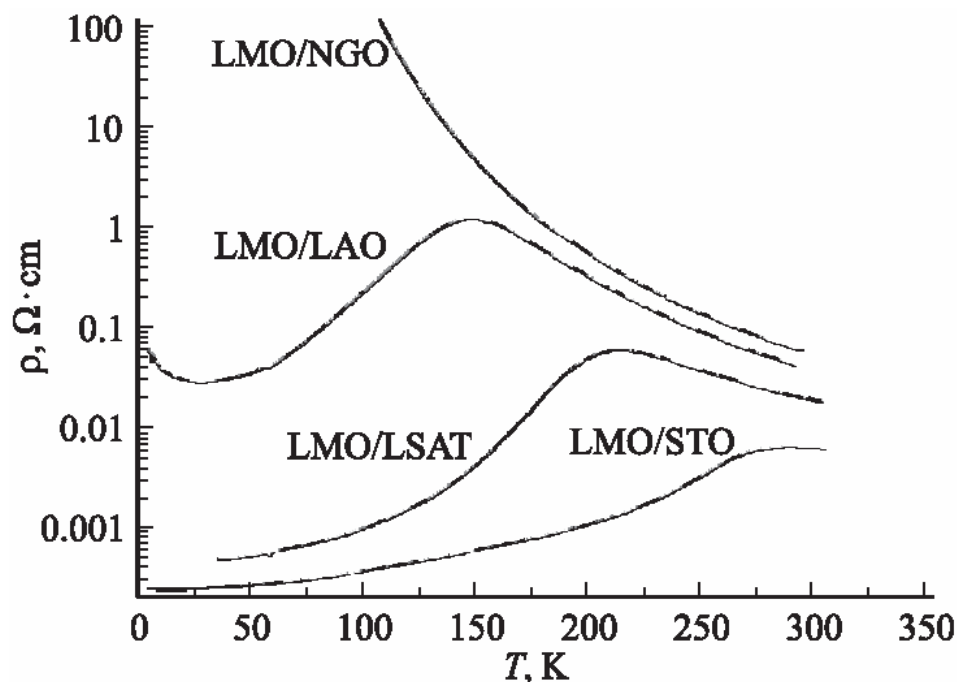


Рисунок 1.4. Зависимость сопротивления от температуры пленок  $LaMnO_3$  (LMO) толщиной 11 нм, выращенных на подложках с различной симметрией кристаллической структуры — кубической  $(001)LaAlO_3$  (LAO),  $(001)SrTiO_3$  (STO) и  $(001)(LaAlO_3)_{0.3}(Sr_2AlTaO_6)_{0.7}$  и орторомбической  $(110)NdGaO_3$  (NGO).

### 1.3. Магнетосопротивление эпитаксиальных тонких плёнок манганитов

Магнетосопротивлением называют величину увеличения (уменьшения) электрического сопротивления образца при приложении внешнего магнитного поля:  $MR = (R_H - R_0)/R_0$ . Здесь  $R_H$  - значение сопротивления образца в магнитном поле напряженностью  $H$ , а  $R_0$  - значение сопротивления в нулевом внешнем магнитном поле.

Не смотря на то, что манганиты стали активно изучаться сразу после открытия колоссального магнетосопротивления, сам по себе эффект в настоящее время широкого

применения не имеет, главным образом из-за необходимости использования достаточно сильных магнитных полей, необходимых для наблюдения больших величин этого эффекта.

Наряду с рассмотренным выше колоссальным магнетосопротивлением, в манганитах, как и в любом ферромагнетике, может наблюдаться и анизотропное магнетосопротивление, связанное с зависимостью электрического сопротивления от угла между направлением движения носителей тока и направлением намагниченности в образце вследствие спин-орбитального взаимодействия. В 1857 году британский физик Уильям Томпсон (лорд Кельвин) опубликовал статью, в которой описал как изменяется сопротивление железа в зависимости от направления магнитного поля. Оказалось, что, если пропускать электрический ток вдоль магнитного поля, сопротивление возрастает, если поперек — уменьшается. Эффект является довольно слабым (изменение сопротивления не превышает нескольких процентов). Тем не менее этот эффект активно использовался в датчиках магнитного поля до открытия гигантского магнетосопротивления [5].

Гигантское магнетосопротивление наблюдается в многослойных структурах (сверхрешетках), состоящих из чередующихся ферромагнитных и немагнитных слоев. Подбором толщины немагнитного слоя можно достичь того, что основным состоянием будет являться антипараллельная направленность намагниченности соседних магнитных слоев (антиферромагнитная структура). При приложении внешнего магнитного поля намагниченность выстраивается параллельно. Объясняется эффект [1, 5] на основе модели свободных электронов следующим образом: электрическое сопротивление проводника тем выше, чем чаще электроны, перемещающиеся под действием электрического поля, сталкиваются с препятствиями (неоднородностями кристаллической решетки, примесями) и отклоняются от прямого пути.

Туннельное магнетосопротивление так же, как и гигантское, наблюдается в многослойных структурах ферромагнитных материалов, где в качестве прослойки между

ними используется диэлектрик, через который происходит туннелирование электронов при приложении электрического напряжения. Эффект был открыт Мишелем Жюльером в 1975 году, однако в то время не привлек к себе внимания, так как проявлялся лишь при гелиевых температурах. В настоящее время, после создания плёнок магнитных материалов с высокой температурой Кюри, датчики на основе туннельного магнетосопротивления постепенно заменяют приборы, использующие гигантское магнетосопротивление. Вероятно, будущее магниторезистивных устройств, в том числе на основе обладающих высокой поляризацией манганитов, принадлежит именно схемам, реализуемым в туннельных переходах разной топологии с использованием спин-зависимого транспорта [6].

#### 1.4. Магнитные туннельные переходы на основе манганитов

Магнитный туннельный переход [7] состоит из двух ферромагнитных плёнок, отделённых друг от друга тонким изолирующим барьером, через который туннелируют электроны. Направления намагниченности верхнего и нижнего слоёв задаёт внешнее магнитное поле, а вероятность туннелирования частиц при совпадении этих направлений превышает ту же вероятность, рассчитанную в случае антипараллельного (встречного) намагничивания. Следовательно, у перехода появляются два состояния с большим и малым электрическим сопротивлением, что даёт возможность его использования для создания спинтронной энергонезависимой магниторезистивной памяти — MRAM. Это быстродействующая память с низким электропотреблением, высоким быстродействием и высокой плотностью записи. Поскольку работа MRAM зависит только от намагниченности ферромагнитного слоя, то ее содержимое не исчезает при отключении электропитания.

В последнее время появился целый ряд работ, авторам которых удавалось получать очень высокое значение магнетосопротивления, более 1000% при температуре жидкого

гелия, при использовании манганитных электродов и барьера из SrTiO<sub>3</sub> [8]. Такие высокие значения туннельного магнетосопротивления (TMR) можно связать с практически 100% поляризацией в манганитах при гелиевых температурах (в металлах поляризация достигает как правило не более 10%). M. Julliere показал [7], что в предельных случаях антиферромагнитного (антипараллельного) и ферромагнитного (параллельного) направлений намагниченностей двух ферромагнитных электродов TMR определяется только поляризацией носителей двух ферромагнетиков:

$$TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (1.1)$$

Здесь  $R_{AP}$  и  $R_P$  – сопротивление туннельного перехода при антипараллельном и параллельном упорядочении, а  $P$  – значение поляризации двух электродов.

Традиционно диэлектрик, расположенный между ферромагнитными плёнками, играет вспомогательную роль, обеспечивая возможность протекания самого процесса туннелирования. В последние годы появились работы по исследованию новых материалов для использования в качестве тонкой прослойки между ферромагнитными электродами. В работе [9] теоретически показано, что замена прослойки SrTiO<sub>3</sub> на LaMnO<sub>3</sub> (LMO) в магнитных туннельных структурах из манганитов существенно увеличивает магнетосопротивление из-за лучшего кристаллографического и магнитного (отсутствие мертвого слоя на границе) согласования между слоями. Отметим, что в теоретических расчетах предполагалось, что LMO является антиферромагнитным диэлектриком. Однако не всегда диэлектрическая прослойка играет пассивную роль. Авторы работы [10] создали магнитный переход на основе двух ферромагнетиков (Co и LSMO) с сегнетоэлектрическим изолирующим слоем из PZT, который имеет два стабильных и переключаемых состояния электрической поляризации. От этой поляризации зависит высота туннельного барьера, вследствие чего структура с сегнетоэлектриком получает уже не два (как в традиционном туннельном переходе), а четыре энергонезависимых состояния с разными сопротивлениями.

Эффект туннельного магнетосопротивления наблюдается как в многослойных структурах, так и в искусственных бикристаллических границах. Причём бикристаллические границы позволяют получать более низкоомные переходы, что положительным образом сказывается на быстродействии создаваемой на их основе магнитно-резистивной памяти. Одним из способов получения магнитных контактов с высоким качеством границы является использование бикристаллической границы в тонкой эпитаксиальной пленке, выращенной на бикристаллической подложке. В последнее время было опубликовано несколько работ по исследованию манганитных контактов на бикристаллических границах, получаемых в эпитаксиальных пленках, выращенных на бикристаллических подложках из  $\text{SrTiO}_3$  или  $\text{LaAlO}_3$  с разориентацией кристаллографических осей вокруг направления  $[001]$  [11–13]. Полученные контакты обладали сравнительно низкой величиной магнетосопротивления (30–40%) и высоким омическим сопротивлением ( $10^{-5}\dots 10^{-2}$  Ом·см<sup>2</sup>). Как показало исследование бикристаллических границ из металлоксидных сверхпроводников [14,15], использование разориентации базовых плоскостей вокруг линии бикристаллической границы позволяет существенно улучшить микроструктуру границы, уменьшить характерное сопротивление границы и увеличить характерное сверхпроводящее напряжение. Данный тип бикристаллической границы обладает существенно более низкой концентрацией дислокаций в плоскости границы и имеет более качественную морфологию границы [15]. В работе [18] экспериментально показано, что в магнитных контактах на основе манганита  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ , полученных на бикристаллической подложке из  $\text{NdGaO}_3$  с наклоном базовых плоскостей, наблюдается высокое магнетосопротивление величиной до 150% в магнитных полях до 1 кЭ. Однако полученные контакты имели достаточно высокое характерное сопротивление бикристаллической границы, которое ограничивает использование высокой плотности тока для создания сильно неравновесного состояния. Использование бикристаллических подложек с малыми углами разориентации, предположительно, может позволить решить эту проблему.

## 1.5. Эффект близости в структуре сверхпроводник – манганит

Одним из актуальных направлений исследований в физике твердого тела, привлекающим к себе в последнее время повышенный интерес, является вопрос взаимодействия сверхпроводимости и магнетизма. Этот вопрос изучается как для магнитных сверхпроводников, так и для гибридных структур, содержащих сверхпроводники и магнитные материалы [17-19]. Эффект близости - проникновение конденсатной волновой функции из сверхпроводника в нормальный металл - в таких гибридных структурах обладает рядом особенностей. Эти особенности приводят, в частности, к немонотонной зависимости критической температуры от толщины F-слоя в многослойных и двухслойных S/F (сверхпроводник/ферромагнетик) структурах. Также появляется возможность реализации джозефсоновских  $\pi$ -переходов, содержащих магнитный материал в качестве слабой связи [19-21], равно как и возможность увеличения критического тока, индуцированного обменным полем, в слабых связях, содержащих два и более F-слоев [22-24]. Пространственно неоднородное распределение обменного поля в ферромагнетике при неколлинеарной его ориентации может приводить к аномальному эффекту близости, определяемому триплетной компонентой конденсатной волновой функции [22]. Аномальный эффект близости может быть связан и с синглетной компонентой конденсатной волновой функции – в таком случае эффект может реализоваться в контактирующей со сверхпроводником многослойной ферромагнитной структуре при антиферромагнитном упорядочении намагниченностей в слоях [25-27].

Отметим, что большая часть исследований F/S структур проводилась на поликристаллических пленках, в которых влияние кристаллической структуры контактирующих материалов отсутствует, и в силу этого не может наблюдаться ряд интересных эффектов. Например, в поликристаллических переходах с антиферромагнитной (AF) прослойкой отсутствовал аномально большой эффект близости,

который проявляется в магнитной слоистой структуре при AF-упорядочении прослойки [26,27].

Схожая кристаллическая структура манганитов и сверхпроводящих купратов ( $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ ), близкие параметры кристаллической решетки, а также хорошая химическая совместимость позволяет создавать качественные эпитаксиальные гетероструктуры. Как показали исследования [28-32], тонкопленочные границы манганит/купрат  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  (LCMO/YBCO) и  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  (LSMO/YBCO) являются когерентными, свободными от дефектов. Химическая диффузия элементов границы отсутствовала в пределах экспериментальной ошибки [31]. Более точные измерения [33] показали миграцию ионов марганца в пределах 1 нм.

Указанные выше причины, а также высокая степень поляризации манганитов делают сверхпроводниковые структуры, содержащие эти материалы, интересными для исследования спин-зависимого электронного транспорта и сверхпроводящего эффекта близости. Действительно, в работах [28,30] было обнаружено уменьшение температуры сверхпроводящего перехода двухслойной структуры LCMO/YBCO при толщинах YBCO пленки менее 10 нм. Предполагается, что причиной такой зависимости является диффузия спин-поляризованных носителей. В тоже время наблюдалось уменьшение температуры Кюри для толщин LCMO менее 10 нм [28-30]. Исследования гетероструктур с границами манганит/купрат показали большое многообразие электрофизических свойств, которые не были объяснены в рамках известных моделей [34-36].

## 1.6. Постановка задачи

1. Создание экспериментальной установки для измерения магнитно-резистивных свойств тонких плёнок манганитов и многослойных гетероструктур при низких температурах под воздействием внешнего магнитного поля величиной до 1 Тл. Отработка методики



- измерения кристаллографических и магнитных параметров многослойных тонкопленочных структур.
2. Определение влияния механических напряжений, вызванных рассогласованием кристаллических параметров подложки и выращенной на ней манганитной плёнки LSMO, на магнитные свойства манганитной плёнки.
  3. Изучение магнетосопротивления и магнитных параметров манганитных бикристаллических контактов в широком интервале температур и магнитных полей. Определение причин ограничения величины магнетосопротивления.
  4. Изучение магнетосопротивления ферромагнитных двухслойных структур манганит/рутенат, разделённых прослойкой из недопированного манганита. Выяснение влияния прослойки на величину магнетосопротивления.
  5. Экспериментальное исследование эффекта близости в сверхпроводящих структурах с манганитными прослойками, сравнение полученных экспериментальных данных с существующими теоретическими расчётами.

## **Глава 2. Экспериментальные образцы и методика эксперимента**

### **2.1. Изготовление эпитаксиальных тонких плёнок манганитов, гетероструктур и бикристаллических контактов**

Объектом исследований являлись тонкие (20-120нм) эпитаксиальные плёнки [A2] и многослойные структуры (гетероструктуры), выращенные методом лазерной абляции на различных подложках размером 5x5x0.5мм. Напыление всех образцов производилось в атмосфере кислорода при давлении  $P = 0.2 \dots 0.3$  мБар и при температуре подложки  $T = 700-800$  °С. Последующее охлаждение производилось в атмосфере кислорода при давлении  $P = 1$  мБар [A3, A4, A5, A6, A7].<sup>1</sup>

---

<sup>1</sup> Напыление тонких эпитаксиальных плёнок проводилось Г.А. Овсянниковым.

Наклонные бикристаллические контакты (НБК) [A5, A6, A7] создавались путём напыления манганитной плёнки LSMO на бикристаллическую подложку из NdGaO<sub>3</sub> (NGO) с симметричным поворотом плоскостей (110)NGO вокруг направления [1 1̄ 0] NGO на углы  $2\theta = 6^\circ, 12^\circ$  и  $38^\circ$ <sup>2</sup>. При росте манганитных пленок на подложках из NGO выполнялись следующие эпитаксиальные соотношения: (001)LSMO|| (110)NGO, [100]LSMO|| [1 1̄ 0] NGO. Постоянная псевдокубической решетки для LSMO  $a_L = 0,388$  нм, в то время как постоянная решетки (110)NGO (орторомбическая ячейка  $a = 0,5426$  нм,  $b = 0,5502$  нм,  $c = 0,7706$  нм) вдоль направления [001] равна  $a_N = 0,3853$  нм, а вдоль направления [1 1̄ 0]  $b_N = 0,3863$  нм [A2, A3]. При эпитаксиальном росте кристаллическая структура подложки повторяется в манганитной пленке, в результате чего и образуется бикристаллическая граница в пленке.

Эпитаксиальные гетероструктуры LSMO/LMO/SrRuO<sub>3</sub> толщиной порядка 100 нм выращивались на подложке NdGaO<sub>3</sub> (NGO) в вакуумной камере при давлении 0.3 мБар, а после охлаждения в атмосфере кислорода до комнатной температуры закрывались тонким (20-30 нм) слоем золота.

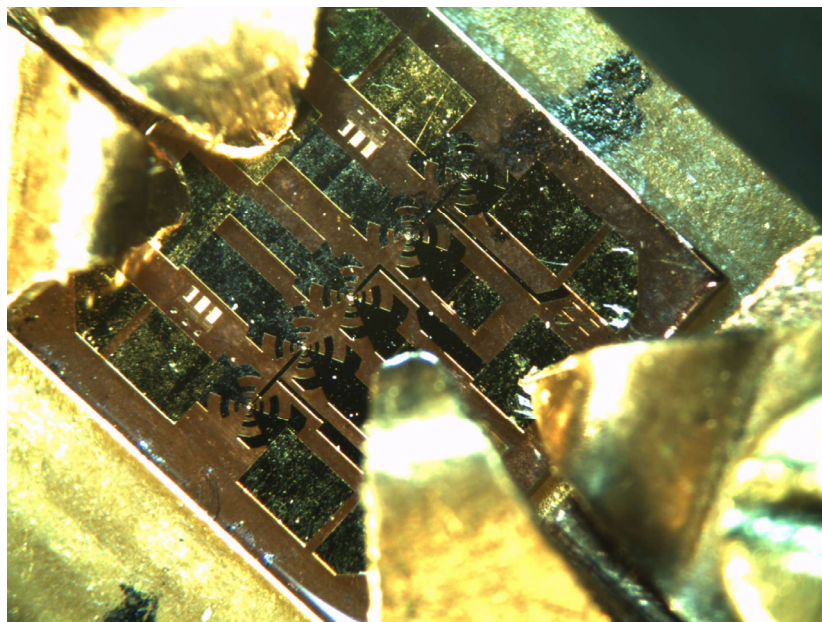


Рисунок 2.1. Фотография экспериментального 5x5мм образца – меза-структуры, установленной в держатель, помещаемый в магнитный соленоид для проведения электрофизических измерений с прикладыванием магнитного поля.

<sup>2</sup> Бикристаллические подложки из NdGaO<sub>3</sub> были изготовлены в лаборатории И.М. Котелянского ИПЭ им. В.А.Котельникова РАН.

Гибридные гетероструктуры состава Nb-Au/манганит/YBCO изготавливались схожим с LSMO/LMO/SrRuO<sub>3</sub> гетероструктурами образом [A4]. Сверхпроводниковая купратная эпитаксиальная пленка YBCO с критической температурой T<sub>c</sub>=88-89 К изготавливалась методом лазерной абляции при температуре 700-800°С на подложке (110)NdGaO<sub>3</sub> (NGO). Тонкая d<sub>M</sub>=5...20 нм пленка M-прослойки из LMO, LSMO или LCMO эпитаксиально выращивалась в той же вакуумной камере при высокой температуре, а потом закрывалась тонким (20-30 нм) слоем золота (Au) после охлаждения до комнатной температуры. Последующий слой ниобия (Nb) напылялся методом магнетронного распыления. Защитная пленка Au использовалась для уменьшения диффузии кислорода из оксидов.

Для проведения электрофизических измерений однослойных тонких плёнок на поверхность образца напылялись контакты из Pt толщиной порядка 100нм, а для измерения гетероструктур с помощью литографии и последующего ионного травления изготавливались меза-структуры с целью обеспечить протекание тока перпендикулярно плоскости плёнки<sup>3</sup>. Пять меза-структур квадратной формы размерами от 10x10 до 50x50 мкм<sup>2</sup> соединялись с контактными площадками миллиметровых размеров с помощью пленки из Nb/Au (см. рис.2.1). Преимущественное протекание тока в меза-структуре по направлению нормали к плоскости подложки обеспечивалось изоляцией боковых граней меза-структуры с помощью слоя SiO<sub>2</sub>.

Пересекающие бикристаллическую границу мостики формировались ионно-лучевым травлением с использованием маски из фоторезиста и имели ширину 8 мкм. Электрофизические измерения проводились с использованием золотых контактных площадок. Постоянный ток протекал по мостику в плоскости плёнки перпендикулярно границе, а направление внешнего магнитного поля варьировалось в плоскости плёнки и задавалось углом  $\alpha$ , отсчитываемым от направления протекания тока.

---

<sup>3</sup> Меза-структуры были изготовлены А.В. Шадриним.

## 2.2. Электрофизические измерения экспериментальных образцов

Ввиду большого контактного сопротивления между оксидными пленками и пленками нормальных металлов типа золото, платина, серебро для измерения сопротивления использовался 4-точечный метод Монтгомери [37]. Через первую пару зондов подаётся ток, через вторую снимается напряжение (см. вставку к рис. 2.2а). В [37] было показано, что для прямоугольного образца толщины  $d$  при условии соотношения  $l_1, l_2 \gg d$  верно следующее определение удельного сопротивления:

$$\rho = \gamma \cdot E \cdot V / I = \left\{ \text{если } d \ll (l_1 l_2)^{1/2} \right\} = \gamma \cdot d \cdot V / I \quad (2.1)$$

Здесь  $\gamma$  – функция, зависящая от соотношения  $l_2 / l_1$  (см. рис. 2.2а),  $E$  – эффективная толщина измеряемого образца,  $V$  – измеряемое напряжение,  $I$  – задаваемый ток. При пересчёте измеряемого сопротивления наших образцов квадратной формы ( $l_1 = l_2$ ) следует использовать величину  $\gamma = 4.531$ , т.е.  $\rho_{\text{квадратного образца}} = 4.531 \cdot d \cdot R$ , где  $\rho_{\text{квадратного образца}}$  имеет размерность Ом·м, а измеряемая  $R$  – Ом. Из-за того, что контакты к измеряемому образцу нельзя рассматривать как точечные, возникает некоторая ошибка, которая, однако, несущественна при сравнении образцов идентичной топологии.

Для измерения сопротивления  $R$  и снятия ВАХ был использован малошумящий блок задания тока и снятия напряжения, изготовленный фирмой Криотон. Блок позволяет задавать постоянные токи величиной от 2мкА до 10мА и снимать напряжения величиной от 0.1мкВ до 100мВ. При измерении дифференциального сопротивления малый ток величиной 1-10 мкА подмешивается к постоянному току от генератора синхронного усилителя Lock-In Amplifier 5301A на частоте 1 кГц. Сигнал, пропорциональный дифференциальному сопротивлению, усиливается и синхронно детектируется на частоте модуляции. Шумы системы при этом на частоте модуляции составляют  $2\text{нВ}/\sqrt{\text{Гц}}$ . Для измерения высокоомных образцов с сопротивлением более 100 Ом·см вместо блока фирмы Криотон использовался программируемый источник тока Keithley 224 и нановольтметр Keithley 181. При этом шумы в системе возрастают на порядок.

Электросопротивление, ВАХ и дифференциальное сопротивление может сниматься при различных температурах (4...350К), температура образца определяется с помощью контроллера Neosera LTC-21 и находящихся рядом с образцом двух калиброванных температурных датчиков (резистивного для  $T=4...77\text{K}$  и диодного для  $T=77...350\text{K}$ ). Внешнее магнитное поле задаётся с помощью магнитных катушек, погруженных либо в гелиевый, либо в азотный дьюары.

Практически все измерения проводились в автоматизированном режиме с использованием плат National Instruments: платы ЦАП/АЦП PCI-6221 и преобразователя интерфейса PCI-GPIB. Управление экспериментом производилось программами, написанными в среде LabView И.В. Борисенко.

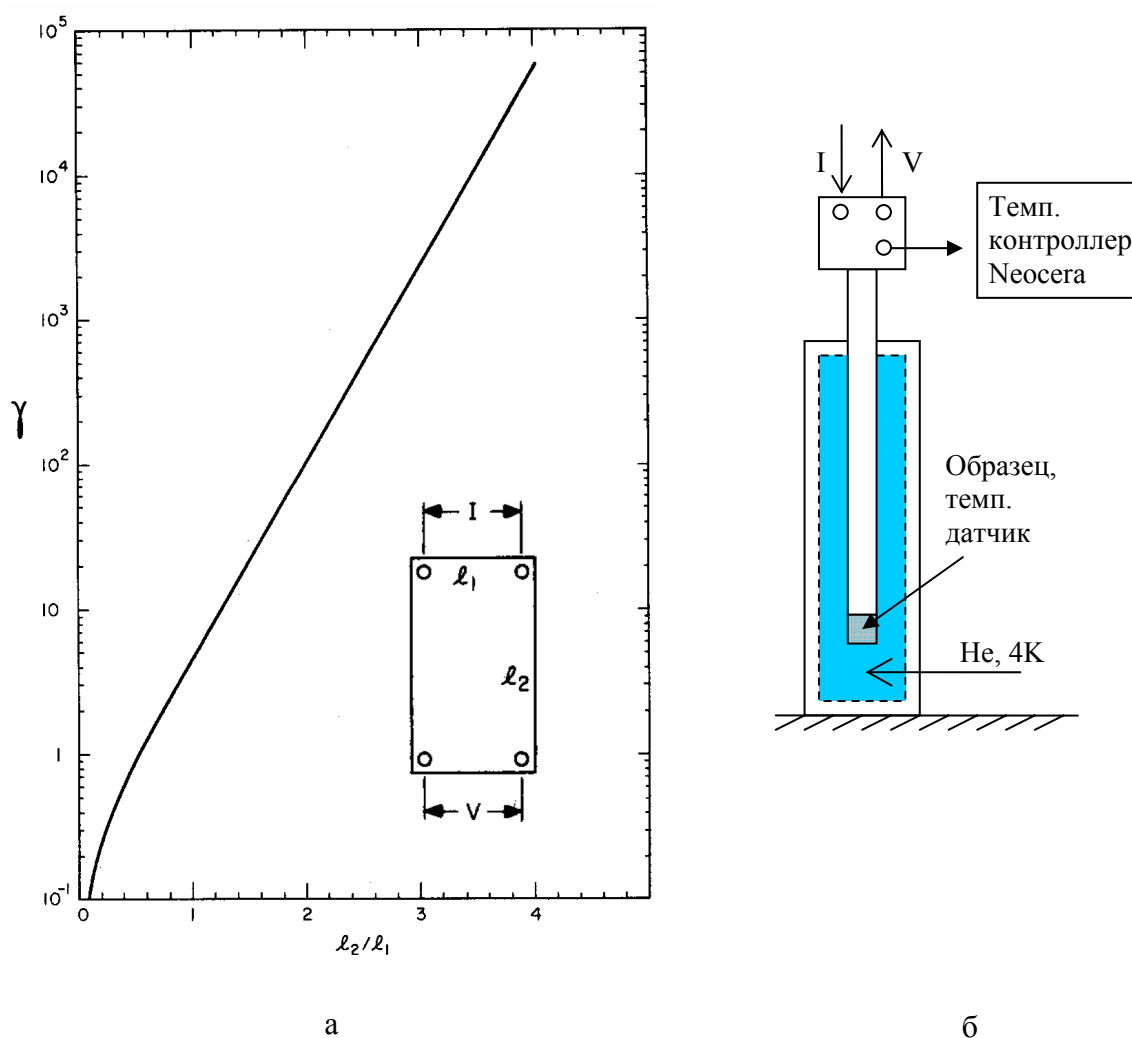
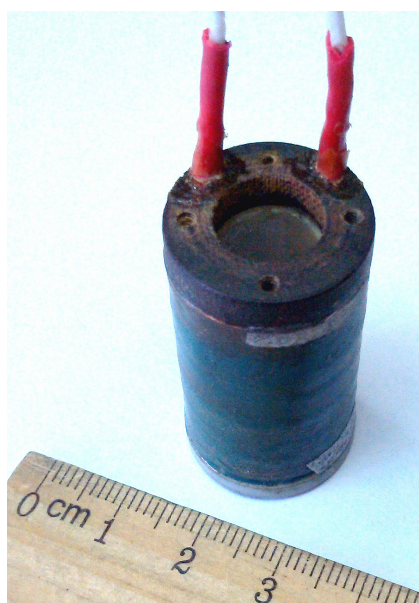


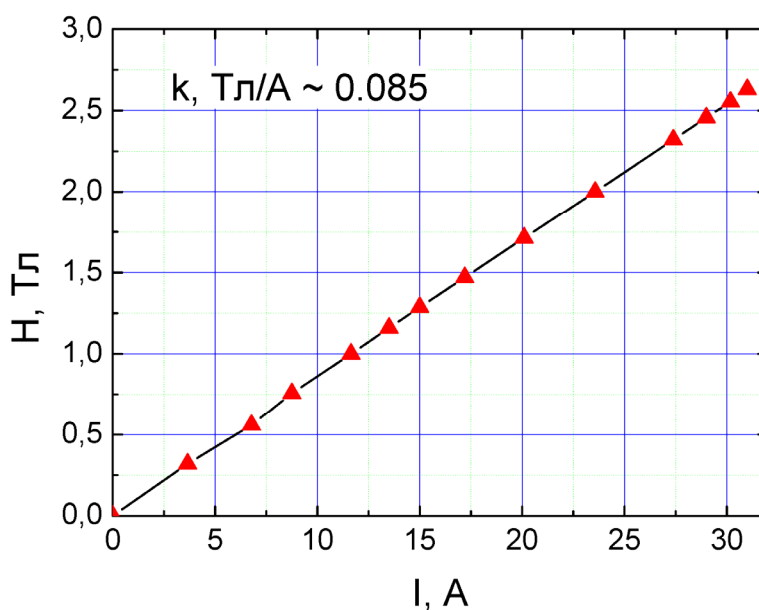
Рисунок 2.2. а) Поправочная функция  $\gamma$  в зависимости от соотношения  $l_2/l_1$ . Схематическое изображение измеряемого образца показано на вставке; б) Схема эксперимента.

### 2.3. Измерение магнитных свойств тонких плёнок, гетероструктур и меза-структур

Для исследования влияния магнитного поля на электрический транспорт в эпитаксиальных тонкоплёночных образцах использовались два магнитных соленоида, изготовленные из медной и сверхпроводящей проволоки. В последнем случае использовался провод из  $Nb_3Sn$  диаметром 0.1мм. Катушка была изготовлена во ВНИИКП. Сверхпроводящий соленоид (см. рис. 2.3а), имея внутренний диаметр катушки 1.3см и внешний диаметр 2.05см, позволяет в жидком гелии достичь 2.63Тл при силе тока 31А. При чуть большем токе магнит переходит в резистивное состояние. Оптимальный размер сверхпроводящего магнита с одной стороны позволяет проводить измерения в стандартном транспортном дьюаре с жидким гелием, а с другой – разместить держатель с  $5 \times 5 \text{ мм}^2$  образцом внутри катушки. Калибровка магнита датчиком Холла ПХЭ 60 6118А №295 дала практически линейную зависимость магнитного поля от тока питания с коэффициентом 0.0844Тл/А (рис.2.3б).



а



б

Рисунок 2.3. а) Фотография сверхпроводящего соленоида, помещаемого в транспортный гелиевый дьюар.  $H = 0.0844 \text{ Тл/А}$ . Сверхпроводящий провод  $Nb_3Sn$  сечением  $1 \text{ мм}^2$ ; б) калибровка сверхпроводящей магнитной катушки.

Чувствительность оксидных плёнок к водяному конденсату при нагреве образца определяет необходимость нахождения образца (а соответственно и катушки) в парах жидкого гелия, что не позволяет подавать большие токи питания из-за плохого теплообмена. Практически все эксперименты проводились при  $H \leq 1$  Тл, что соответствует току питания  $I \leq 12$  А. Измерения при полях до 1.5 Тл проводились исключительно при быстром свипировании магнитным полем. Для защиты от квенч-эффекта (выброса энергии при переходе магнита в резистивное состояние) дополнительно устанавливался шунт, представляющий собой обратно включённый полупроводниковый диод Д112-16-16, к тому же проводился постоянный контроль температуры образца. Источником тока служил Keithley 2440 для подачи токов от -5 до +5 А и АКПП-1116 для подачи токов от 0 до 27 А (0...27 В) с переключателем полярности. Источники тока управлялись через GPIB интерфейс, используя написанные в среде LabView программы для автоматизации измерений.

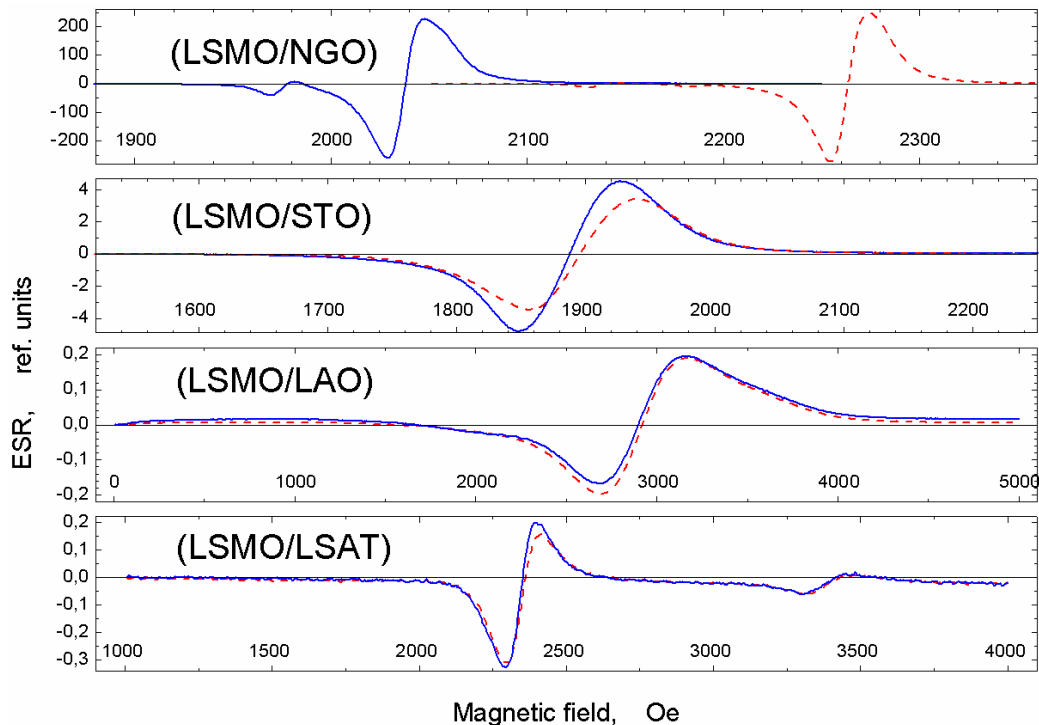


Рисунок 2.4. Спектры ферромагнитного резонанса для четырёх исследованных структур, измеренные при комнатной температуре и двух взаимно перпендикулярных ориентациях лежащего в плоскости подложки внешнего магнитного поля – соответственно сплошная и штриховая кривые.

Для определения магнитной анизотропии, а также значения температуры Кюри тонких плёнок манганитов и ферромагнитных слоёв гетероструктур использовался метод ферромагнитного резонанса (ФМР)<sup>4</sup>. Метод основан на свойстве ферромагнетиков резонансно поглощать СВЧ излучение. Спектры магнитного резонанса снимались на ЭПР спектрометре ER-200 фирмы Bruker, работающем в 3-см диапазоне электромагнитных волн (частота 9.76 ГГц), генератором СВЧ служил клистрон. Записывались производные линий ФМР в зависимости от внешнего магнитного поля. Зная величину центрального поля ферромагнитного резонанса исследуемого соединения, можно судить об изменении магнитного состояния конкретно этого соединения. Характерный вид спектров ФМР представлен на рисунке 2.4. Температура Кюри может быть определена нахождением точки максимума производной резонансного магнитного поля ФМР  $dH_0/dT$ . Площадь под кривыми производной резонансного магнитного поля в зависимости от температуры пропорциональна модулю намагниченности.

Зафиксировав температуру и сняв несколько спектров ФМР при различном угле поворота образца в магнитном поле, можно судить о магнитной анизотропии (см. верхнюю пару кривых на рис. 2.4). Исследуемые образцы располагаются в СВЧ резонаторе спектрометра таким образом, что плоскость образца всегда оказывается параллельна силовым линиям как постоянного внешнего магнитного поля, так и магнитной составляющей поля СВЧ. Параллельность плоскости образцов постоянному магнитному полю контролируется по минимуму резонансного значения поля линий ферромагнитного резонанса. Такое расположение образцов исключает изменение спектров магнитного резонанса из-за анизотропии формы. Вращение образцов осуществляется вокруг оси, перпендикулярной плоскости образцов.

При записи линий ферромагнитного резонанса используется синхронное детектирование на частоте модуляции внешнего магнитного поля, величина которой составляет 100 кГц. Более подробно методика изложена в работах [A3, A9, A10].

---

<sup>4</sup> Измерения ФМР проводились В.В. Демидовым.



## 2.4. Рентгеновские измерения экспериментальных образцов

Межплоскостное расстояние в эпитаксиальных тонких пленках и гетероструктурах определялось с помощью рентгеновского дифрактометра Bruker D8 Advance XRD. Измерялись дифрактограммы в режиме “locked coupled” сканирования с помощью программы управления Diffrac Plus XRD Commander 2.3. Использовалось k-альфа рентгеновское излучение, длина волны  $\lambda_k = 1.54 \cdot 10^{-10}$  м. Межплоскостное расстояние исследуемых плёночных слоёв определялось по положению Брегговских пиков согласно условию Вульфа-Брегга:  $n \cdot \lambda_k = 2d \cdot \sin(2\theta)$ . Здесь  $n$  – порядок Брегговского пика,  $\theta$  – угол между падающим или отраженным лучом и плоскостью образца, а  $d$  – межплоскостное расстояние (см. рис. 2.5).

Наиболее известный метод определения толщины тонкой плёнки нм размеров – использование контактного профилометра, или другого устройства, которое способно проанализировать изменение высоты образца в интересующей нас области. Если в одной части этой области с помощью литографии и последующего химического или ионного травления удалить плёнку, а в другой – оставить, образуется «ступенька» на границе стравленной и не стравленной частей. Высоту этой ступеньки и определяет профилометр однако использовать такой метод представляется возможным далеко не всегда. Главным минусом является то, что он применим только в случае возможности селективного травления.

Рефлектометрия – совокупность методов анализа зеркально отраженных от поверхности образца пучков рентгеновского, нейтронного или какого-либо другого излучения - лишена этих недостатков. Далее рассмотрим метод рентгеновской рефлектометрии по определению толщины каждого слоя многослойной эпитаксиальной оксидной плёнки. Падающий под малым углом  $\theta$  к поверхности образца пучок рентгеновских лучей (см. рис. 2.5) отражается от плоских границ раздела слоев, в том числе и от раздела воздух – образец.

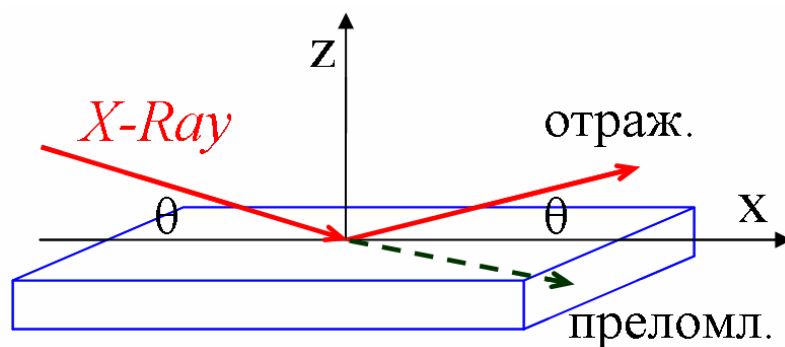


Рисунок 2.5. Рефлектометрия рентгеновских лучей. Схема эксперимента.

Отношение зеркально отразившихся и падающих (углы падения и отражения равны) лучей измеряют в зависимости от угла  $2\theta$ , который в дальнейшем для анализа пересчитывается в модуль вектора рассеяния  $Q = |k_{\text{отраж}}^{\rightarrow} - k_{\text{пад}}^{\rightarrow}| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta$ , для рентгеновских лучей  $\lambda = 0.154$  нм.

Для структур с несколькими слоями происходит интерференция, и мы можем видеть периодические колебания коэффициента отражения в зависимости от  $Q$ . Далее методом Парратта [38] строится аппроксимационная кривая на основе теоретической модели, в которой каждому слою гетероструктуры соответствует своя толщина, среднеквадратичная высота шероховатостей на верхней границе раздела и плотность длины рассеяния (ПДР). Под ПДР следует понимать произведение атомной плотности  $N$  на ядерную длину рассеяния  $b$ , определяющее величину коэффициента преломления:

$$n = \sqrt{1 - \frac{\lambda^2}{\pi} Nb}. \text{ Подобрвав ПДР, толщину и шероховатости поверхности слоев, методом}$$

Парратта удается описать экспериментальные кривые. В настоящее время написан целый ряд программ, позволяющих автоматизировать расчет, предложенный Парраттом. Нами использовалась программа Parratt 32 версии 1.6, автор программы Christian Braun.

## 2.5. Рефлектометрия поляризованных нейтронов

Под нейтронной рефлектометрией будем понимать совокупность методов изучения слоистых структур, в основе которых лежит анализ зеркального отражения пучка низкоэнергетических нейтронов ( $\sim 0.1\text{эВ}$ ), падающих под малыми углами скольжения к поверхности образца. Нейтронную рефлектометрию разделяют по типу изучаемых объектов на рефлектометрию немагнитных и рефлектометрию магнитных сред. В первом случае используются пучки неполяризованных, во втором - поляризованных нейтронов. Методика неполяризованной нейтронной рефлектометрии практически идентична рентгеновской рефлектометрии, рассмотренной выше, и служит для решения сходных задач. Важной особенностью нейтронного излучения является случайная зависимость значения ПДР от положения исследуемого элемента в таблице Менделеева. Например, изотоп одного и того же элемента может иметь существенную разницу в ПДР.

Возможности рефлектометрии поляризованных нейтронов весьма широки. Нас же будет интересовать главным образом возможность определения модуля и направления намагниченности каждого магнитного слоя многослойной гетероструктуры в отдельности. Величину намагниченности магнитных тонких плёнок достаточно точно можно определить и с помощью различных видов магнитометров, а в особенности – магнитометров на основе СКВИДа. Но это будет величина суммарной намагниченности образца, включая намагниченность подложки. Если же нас интересует, например, изменение намагниченности тонкой магнитной прослойки, расположенной между двумя относительно толстыми ферромагнетиками, анализ результатов СКВИД измерений не сможет дать исчерпывающей информации, в отличие от метода рефлектометрии поляризованных нейтронов. Рассмотрим это метод ниже.

Пучок нейтронов падает на образец под малым углом  $\theta$  к поверхности образца (так же как и рентгеновский пучок на рис. 2.5), внешнее магнитное поле направлено перпендикулярно пучку в плоскости поверхности образца. При фиксированной

температуре снимаются 4 канала интенсивности малоуглового отражения:  $R^{++}(\theta)$ ,  $R^{--}(\theta)$ ,  $R^{+-}(\theta)$ ,  $R^{-+}(\theta)$ . Под + и – следует понимать знак проекции спина нейтрона на внешнее магнитное поле. Для примера, в канале  $R^{++}(\theta)$  детектируется количество нейтронов, которые падали на образец, имея спин «вверх», и попали на детектор после отражения от образца с тем же направлением спина (т.е. отразились без переворота спина). Изменяя угол падения пучка  $\theta$ , можно просканировать образец по глубине. Сняв все 4 канала отражения нейтронов и используя подход, принципиально сходный с методом Паррата [38], можно получить проекцию модуля и направления намагниченности на плоскость подложки каждого магнитного слоя гетероструктуры. ПДР для нейтронов, в отличие от рентгеновских лучей, не зависит от положения элемента (на котором происходит рассеяние) в периодической системе Менделеева. Этот факт позволяет обнаружить, например, границу изотопов одного и того же элемента.

Предварительный качественный анализ экспериментальных данных, до проведения сложного фита, может быть основан на следующих пропорциональностях:  $R^{++} \sim | \text{ПДР}(z) + M_{\parallel}(z) |^2$ ,  $R^{--} \sim | \text{ПДР}(z) - M_{\parallel}(z) |^2$ ,  $R^{+-} \sim R^{-+} \sim M_{\perp}(z)^2$ . Спиновая асимметрия  $SA = (R^{++} - R^{--}) / (R^{++} + R^{--}) \sim M_{\parallel}(z)$ . Здесь  $M_{\parallel}$  и  $M_{\perp}$  обозначает намагниченность в параллельном и перпендикулярном направлении относительно направления приложения внешнего магнитного поля, а  $z$  – глубину погружения нейтронного пучка в образец. Сильное изменение спиновой асимметрии при изменении температуры показывает увеличение намагниченности в направлении приложения внешнего магнитного поля, что может служить индикацией, например, перехода исследуемого слоя в ферромагнитное состояние (см. рис. 2.6). При более точном количественном анализе необходимо решать матричные уравнения Шредингера для того, чтобы по зависимостям  $R^{++}(Q)$ ,  $R^{+-}(Q)$ ,  $R^{-+}(Q)$  и  $R^{--}(Q)$  установить профили по толщине образца:  $\text{ПДР}(z)$ ,  $|M|(z)$  и  $\alpha(z)$ , где  $|M|$  и  $\alpha$  – величина и направление намагниченности. Основные принципы количественного анализа подробно описаны в [39].

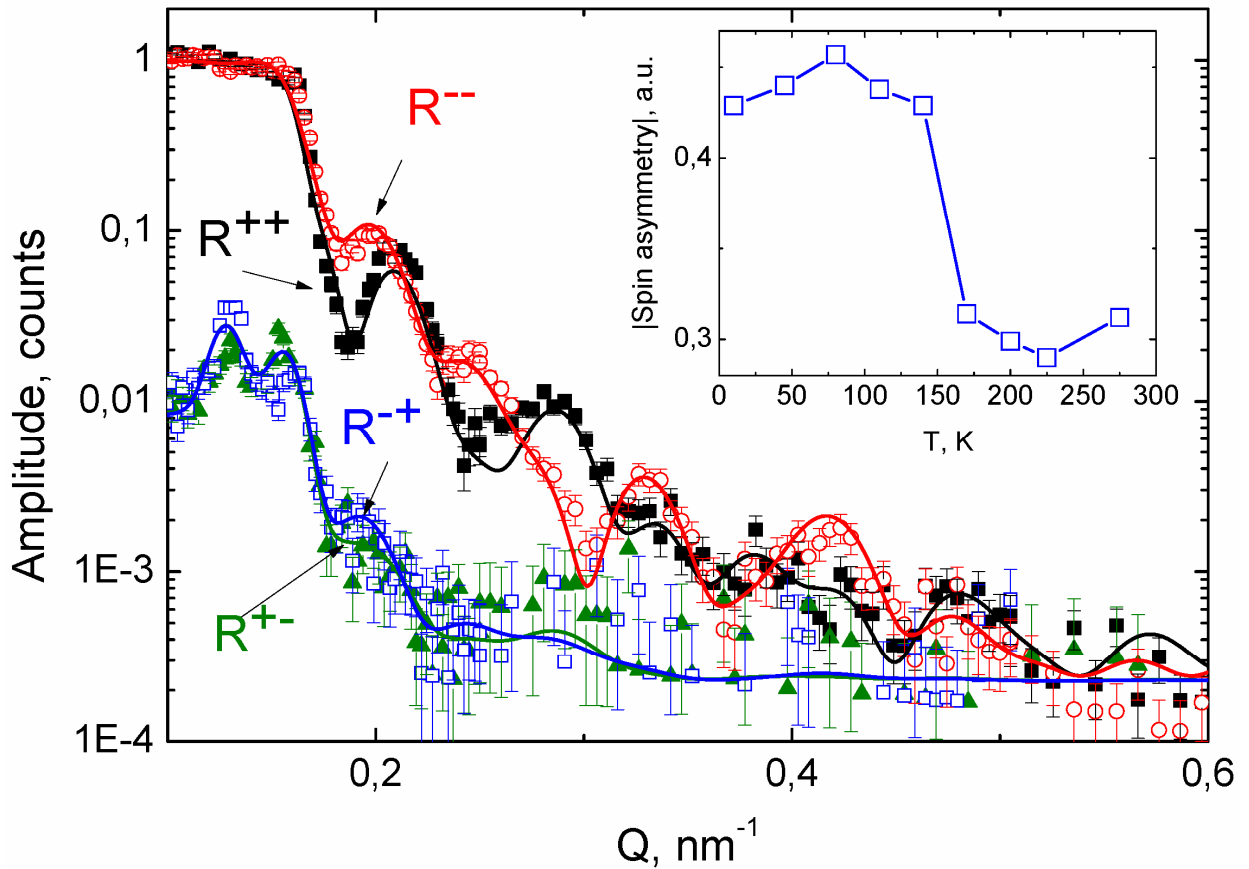


Рисунок 2.6. Кривые малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов в зависимости от Q-вектора для гетероструктуры с 13нм слоем  $\text{LaMnO}_3$ , внешнее магнитное поле 30Э,  $T=200\text{K}$ . На вставке представлен модуль спиновой асимметрии в зависимости от температуры, увеличение которого ниже  $T = 150\text{K}$  свидетельствует о переходе одного или нескольких слоёв гетероструктуры в ферромагнитное состояние. Более сложный количественный анализ экспериментальных кривых показал, что при 150K переходит в ферромагнитное состояние слой  $\text{LaMnO}_3$ .

### Глава 3. Влияние механических напряжений на магнитное состояние манганитных тонких плёнок

Как уже отмечалось выше, электротранспортные и магнитные свойства эпитаксиальных тонких плёнок манганитов сильно отличаются от свойств монокристаллов. В частности, такое различие связано с механической напряжённостью кристаллической структуры манганитной плёнки, возникающей в результате несоответствия параметров решетки подложки и выращиваемой на ней плёнки. В своей теоретической работе Миллис [40] предлагает учитывать влияние сильного электрон-решеточного взаимодействия в дополнение к традиционно рассматриваемому электрон-

электронному взаимодействию, приводящему к эффекту двойного обмена, для определения положения точки Кюри в зависимости от амплитуды механических напряжений. Экспериментальной проверке применимости такой зависимости к плёнкам манганитов и изучению возникающей магнитной анизотропии и посвящена эта глава. Также обсуждаются особенности зависимости электросопротивления напряженных плёнок от температуры.

### 3.1. Влияние механических напряжений в манганитных плёнках на температуру перехода в ферромагнитное состояние

Миллис разделяет 2 типа искажений кристаллической решетки относительно исходного «ненапряженного» состояния: объёмные ( $\epsilon_b$ ) и двуосные ( $\epsilon^*$ ). Под объёмными искажениями следует понимать изменение объёма элементарной ячейки, а под двуосными - разницу между параметром решетки в направлении, перпендикулярном поверхности плёнки ( $\epsilon_{\perp}$ ), и параметром решетки в направлении, параллельном поверхности плёнки ( $\epsilon_{\parallel}$ ). Согласно зависимости, полученной в работе [40], температуру Кюри напряженной плёнки можно определить следующим образом:

$$T_{CM}(\epsilon_b, \epsilon^*) = T_{C0} \cdot \left[ 1 - \alpha \cdot \epsilon_b - \frac{1}{2} \delta \cdot (\epsilon^*)^2 \right] \quad (3.1)$$

Здесь  $\alpha$ ,  $\delta$  и  $T_{C0}$  фактически играют роль подгоночных коэффициентов,  $\epsilon_b = 2\epsilon_{\parallel} + \epsilon_{\perp}$ ,

$$\epsilon^* = (\epsilon_{\perp} - \epsilon_{\parallel}) \cdot \sqrt{\frac{2}{3}}.$$

Для экспериментальной проверки зависимости (3.1) с помощью лазерной абляции были выращены эпитаксиальные тонкие плёнки  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$  (LSMO) на различных монокристаллических подложках: (001) $\text{LaAlO}_3$  (LAO), (001) $\text{SrTiO}_3$  (STO), (110) $\text{NdGaO}_3$  (NGO) и  $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}$  (LSAT). Кристаллографические параметры решетки подложек отличались от табличного значения для кристалла LSMO как в большую, так и в меньшую сторону. Из рентгеновских дифрактограмм (см. рис. 3.1) определялось значение

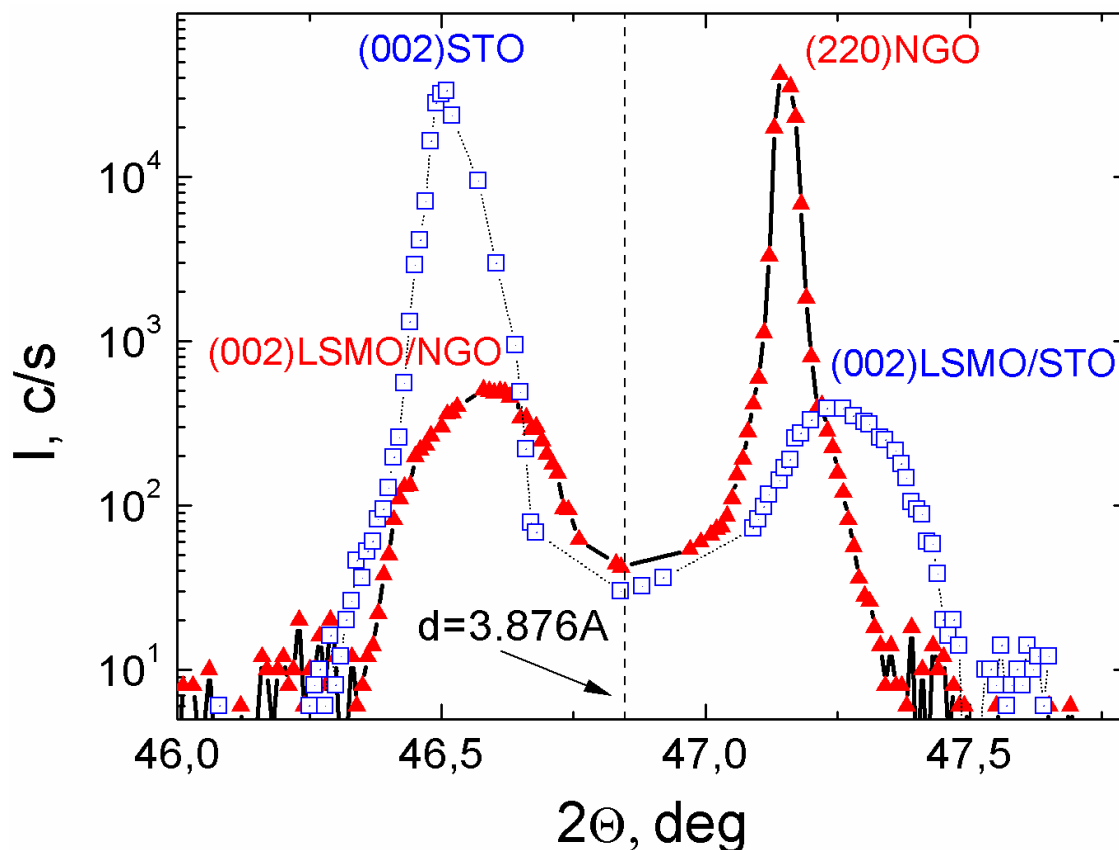


Рисунок 3.1. Рентгеновские дифрактограммы для пленок LSMO, напыленных на подложки NGO и STO. Пунктирной линией показано положение предполагаемого рефлекса (002)LSMO для объемного (без учета напряжений) материала.

параметра решетки в направлении, перпендикулярном плоскости поверхности плёнки ( $a_{\perp}$ ). Значение параметра решетки в плоскости поверхности плёнки ( $a_{\parallel}$ ) бралось равным табличному значению параметра решетки подложки, возможность такого приближения подтверждается исследованиями дифрактограмм косых срезов тонких ( $<100\text{nm}$ ) плёнок и результатами [41]. Таким образом были определены величины кристаллографических искажений, необходимых для определения теоретической температуры Кюри  $T_{CM}$  согласно формуле 3.1. Теоретически рассчитанные температуры сравнивались с экспериментально измеренными температурами Кюри  $T_C$ , определёнными методом ФМР путём нахождения точки максимума производной резонансного магнитного поля ФМР  $dH_0/dT$  (см. рис. 3.2 и методику в главе 2.3).

Кристаллографические параметры напряженных плёнок LSMO, возникающие в них напряжения, а также экспериментально и теоретически определённые температуры Кюри представлены в таблице 3.1.

Таблица 3.1. Кристаллографические параметры плёнок, величины возникающих в них напряжений, а также теоретически и экспериментально определённая температура Кюри. Растягивающие напряжения показаны с положительным знаком, сжимающие имеют знак минус.

Подложка	Кристаллографические параметры плёнок (нм)		Величина возникающих напряжений (%)		Температура Кюри (К)	
	$a_{\parallel}$	$a_{\perp}$	$\varepsilon_b$	$\varepsilon^*$	ФМР	Теория
NGO	0.3862	0.3906	-0.10	0.53	335	335
LAO	0.3787	0.4003	-1.32	2.63	315	316
STO	0.3903	0.3845	0.59	-0.71	333	334
LSAT	0.38748	0.38753	-0.08	0.01	336	336

$a_{\parallel}$  - параметр решетки в плоскости поверхности плёнки,  $a_{\perp}$  - параметр решетки в перпендикулярном к плоскости поверхности плёнки направлении,  $\varepsilon_b = 2\varepsilon_{\parallel} + \varepsilon_{\perp}$ ,

$\varepsilon^* = (\varepsilon_{\perp} - \varepsilon_{\parallel}) \cdot \sqrt{\frac{2}{3}}$ , где  $\varepsilon_{\perp}$  - напряженность пленки в перпендикулярном поверхности плёнки направлении, а  $\varepsilon_{\parallel}$  - в направлении, параллельном поверхности плёнки.

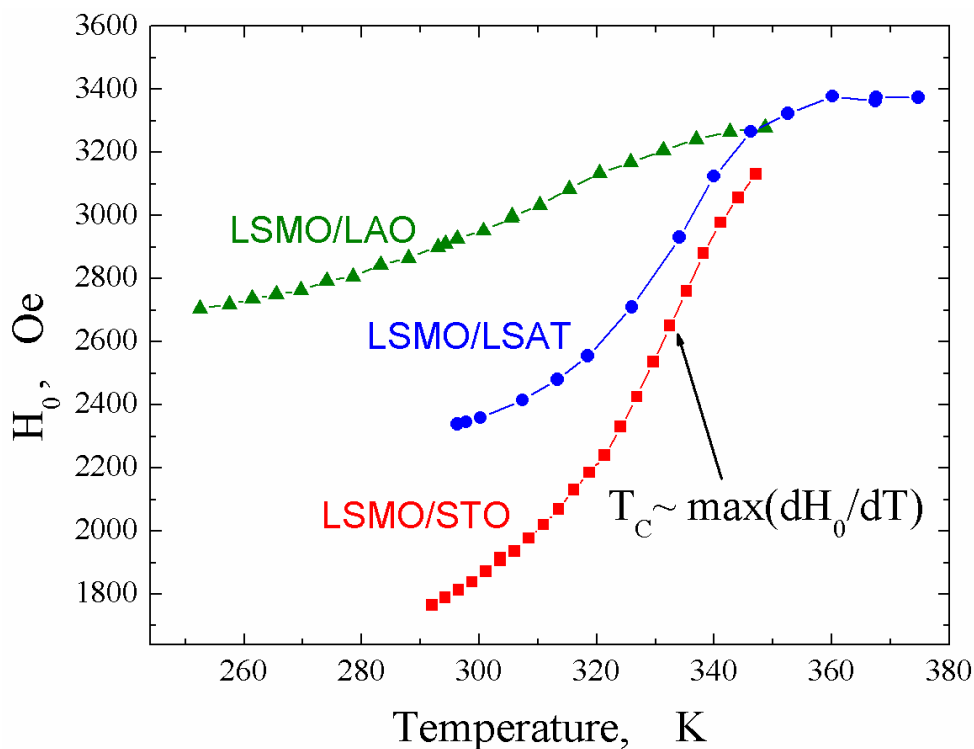


Рисунок 3.2. Температура Кюри, определённая нахождением точки максимума производной резонансного магнитного поля ФМР  $dH_0/dT$ . Приведены данные по трём плёнкам LSMO, напыленным на различные подложки: ● – LSMO/LSAT, ■ – LSMO/STO, ▲ – LSMO/LAO.



Температуры Кюри, рассчитанные согласно формуле 3.1, наилучшим образом согласуются с данными, полученными с помощью метода ФМР, при  $\alpha = 0.66 \pm 0.07$ ,  $\delta = 103 \pm 2$  и  $T_{C0} = 336 \pm 0.2 \text{ K}$  (см. рис. 3.3). Наши параметры несколько отличаются от параметров  $\alpha = 2.2$ ,  $\delta = 70$  и  $T_{C0} = 334 \text{ K}$ , обеспечивающих наилучшее согласование с теорией Милиса в работе [41]. Вероятно, такое несоответствие может быть связано с различной технологией напыления плёнок, а значит и с некоторым отличием в их свойствах: в [41] использовалась технология магнетронного распыления.

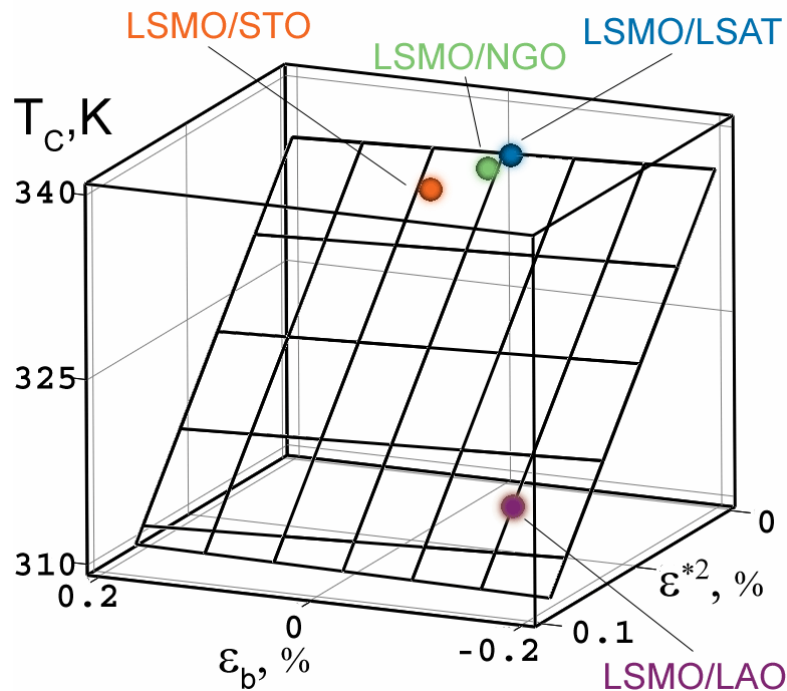


Рисунок 3.3. Зависимость температуры Кюри  $T_C$  от объёмного  $\epsilon_b$  и квадрата двусосного  $(\epsilon^*)^2$  напряжений LSMO плёнок. Плоскость проведена по формуле 3.1.

### 3.2. Магнитная анизотропия эпитаксиальных манганитных плёнок

Магнитная анизотропия - зависимость магнитных свойств ферромагнетика от направления намагниченности по отношению к его кристаллографическим осям - сильно зависит от механических напряжений. Величина и тип магнитной анизотропии, наряду с температурой Кюри, являются определяющими параметрами, описывающими магнитные

свойства изучаемого ферромагнетика. Рассмотрим влияние возникающих механических напряжений на магнитную анизотропию.

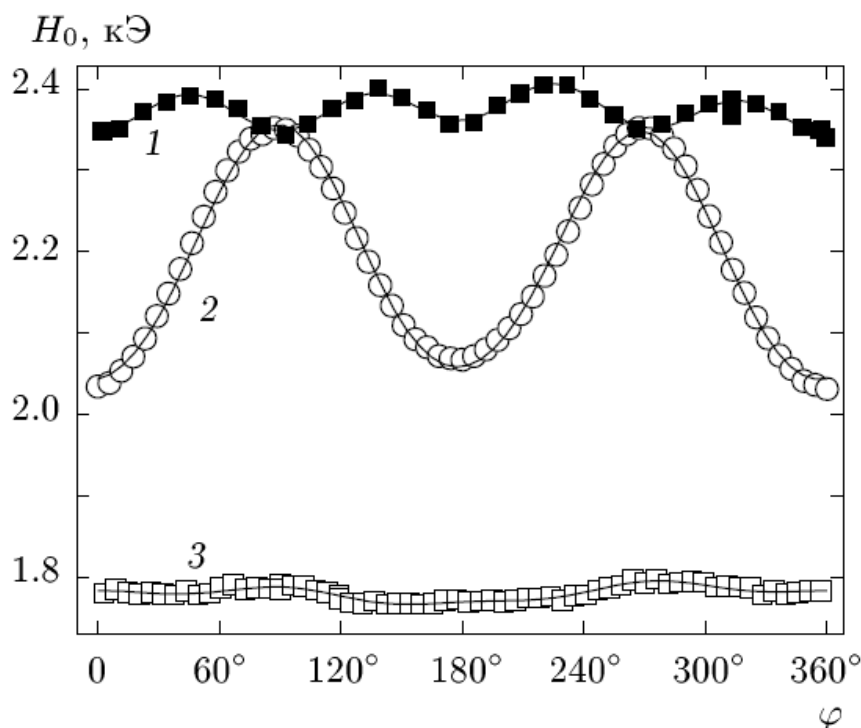


Рисунок 3.4. Угловые зависимости центрального поля ФМР плёнок LSMO, напыленных на различные подложки: LSAT (1), NGO (2) и STO (3), снятые при комнатной температуре.

Спектры ФМР снимались в плоскости плёнок. Для каждой из плёнок, выращенных на различных подложках, снимались 2 спектра ФМР, условия измерения которых отличались друг от друга поворотом подложки на  $90^\circ$  вокруг её нормали. Из рисунка 3.4 видно, что максимальное изменение резонансного значения магнитного поля  $H_0$  при повороте образца на  $90^\circ$  наблюдается на плёнках LSMO/NGO.

Формы всех кривых ФМР при комнатной температуре удаётся описать двумя линиями Лоренца. Этот факт однозначно указывает на неоднородность ферромагнитных фаз во всех плёнках. Поскольку напряжение плёнок может постепенно убывать с увеличением толщины, а  $T_C$  и g-фактор зависят от напряжений  $\varepsilon$ , две ферромагнитные фазы скорее всего относятся к слоям плёнки с разной напряженностью.

### 3.3. Температурное поведение сопротивления эпитаксиальных плёнок

Все исследованные пленки LSMO имели резкое уменьшение сопротивления с уменьшением температуры при  $T < T_C$ . При низких температурах ( $T < 10K$ ) удельное сопротивление всех образцов приближалось к асимптотическому значению  $\rho = \rho_0$ . Не зависящий от температуры член  $\rho_0$  определяется процессами рассеяния на примесях, дефектах, границах зерен и доменных стенках [42]. Наименьшее значение  $\rho_0 = 8 \cdot 10^{-5}$  Ом·см наблюдалось для плёнок LSMO/NGO и LSMO/LSAT, которые имеют наиболее

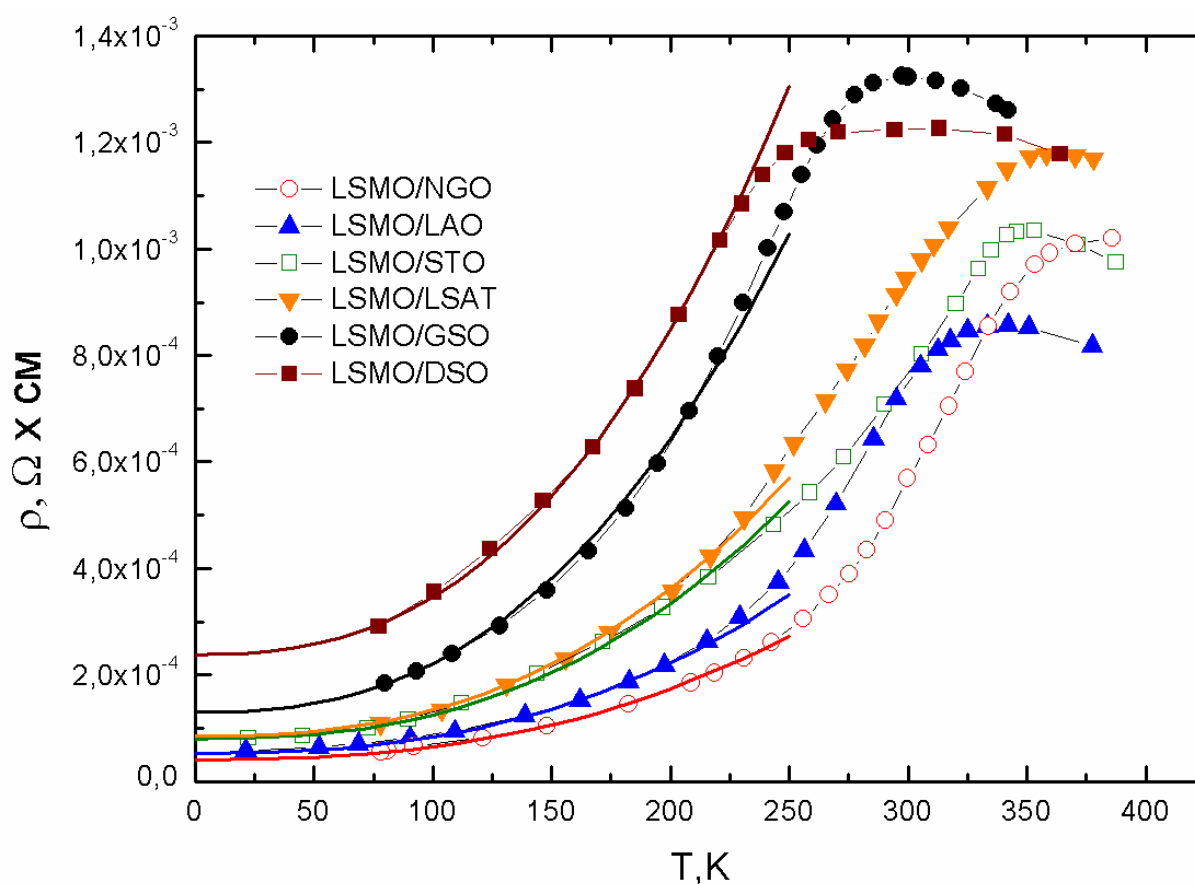


Рисунок 3.5. Температурные зависимости удельного сопротивления плёнок LSMO, напыленных на различные подложки, обеспечивающие механические напряжения в плёнках LSMO. Подложки GSO и DSO –  $(110)\text{GdSrO}_3$  и  $(110)\text{DyScO}_3$  соответственно. Сплошными линиями показаны приближения  $\rho(T) = \rho_0 + \rho_1 \cdot T^{2.5}$ .

совершенную кристаллографическую структуру, что подтверждается минимальной шириной рентгеновских кривых качания ( $0.05 \dots 0.06^\circ$ ). Полученные значения практически совпадают с  $\rho_0 = 1.1 \cdot 10^{-4}$  Ом·см для высококачественных плёнок LSMO/LSAT [42], но

несколько больше, чем для монокристаллов [43]. Если в плёнках LSMO/LAO причиной увеличения остаточного сопротивления может быть двойникование подложки, приводящее к увеличению кривой качания ( $0.15^\circ$ ), то в LSMO/STO причины повышения  $\rho_0$  не выявлены. Температурные зависимости  $\rho(T)$ , наблюдаемые в манганитах при низких температурах, можно объяснить в рамках модели двойного обмена [1, 43].

Сильное электрон-электронное рассеяние обычно даёт член  $\rho_1 \sim T^2$ . Согласно расчётам Кубо [1], рассеяние электронов на магнонах определяется пропорциональностью  $\rho_2 \sim T^{4.5}$ . Анализ температурных зависимостей наших пленок путём построения  $R(T)$  в двойном логарифмическом масштабе показал, что в области низких температур (4.2...200К)  $\rho(T)$  пленок с хорошей точностью описывается выражением  $\rho(T) = \rho_0 + T^n$  (см. рис. 3.5), где  $n = 2.5 \pm 0.1$ , которое также наблюдалось в [42] для этого материала.

Вызванная электрон - магнонным взаимодействием зависимость  $\rho(T) \sim T^{4.5}$  [43] не описывает экспериментальную  $\rho(T)$ , но может модифицировать степень в температурной зависимости. Теоретический анализ низкотемпературной зависимости сопротивления манганитных пленок [44] показал, что вследствие механизма двойного обмена связь статистических флуктуаций проводимости со спиновыми флуктуациями даёт температурную зависимость сопротивления  $\rho(T) \sim T^{2.5}$ , что и наблюдается в нашем эксперименте.

### 3.4. Краткие выводы

С помощью метода рентгеновской дифракции показано, что при использовании подложек, кристаллографические параметры которых отличаются от параметров кристалла LSMO, удастся получить эпитаксиальные плёнки LSMO, кристаллографические параметры которых отличаются от табличного значения для кристалла LSMO. Магнитные свойства этих плёнок также отличаются от монокристаллов LSMO. Наибольшее значение одноосной магнитной анизотропии было зафиксировано с помощью метода ФМР в плёнке

LSMO, выращенной на орторомбической подложке из NGO, причём другие более напряженные плёнки, но напыленные на кубические подложки, подобного эффекта не показывают. Показано, что зависимость Миллиса для определения температуры Кюри по величине возникающих напряжений может быть применима для эпитаксиальных плёнок LSMO, изготовленных методом лазерной абляции. Температурная зависимость сопротивления всех плёнок при низкой температуре хорошо описывается степенной зависимостью  $T^{2.5}$ , которая следует из результатов расчета проводимости манганитов с использованием теории двойного обмена.

#### **Глава 4. Магнитотранспортные свойства бикристаллических контактов из $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$**

В литературном обзоре было отмечено, что бикристаллическая граница в наклонных бикристаллических контактах имеет более низкую концентрацию дислокаций в плоскости границы и более качественную морфологию, что ведёт к уменьшению сопротивления границы. Ранее было экспериментально показано, что в магнитных контактах на основе манганита LSMO, полученных на бикристаллической подложке из  $\text{NdGaO}_3$  с наклоном базовых плоскостей, наблюдается высокое магнетосопротивление величиной до 150% в магнитных полях до 1 кЭ. Однако полученные контакты имели достаточно высокое характерное сопротивление бикристаллической границы, которое ограничивает использование высокой плотности тока для создания сильно неравновесного состояния. В данной главе представлены результаты экспериментальных исследований бикристаллических контактов из LSMO, изготовленных на наклонных бикристаллических подложках. Известно, что LSMO плёнки более устойчивы к возникновению неоднородного магнитного состояния, к тому же ферромагнитная фаза в LSMO, находясь выше комнатной температуры, облегчает изучение и последующее использование магнитных свойств таких бикристаллических переходов.

Полученные данные сравниваются с результатами для разориентированных бикристаллических контактов (РБК), которые создавались путём напыления манганитной плёнки LSMO на бикристаллическую подложку из  $\text{NdGaO}_3$  (NGO) с симметричным поворотом направлений  $[1\bar{1}0]$  NGO вокруг нормали к подложки на угол  $2\theta' = 90^\circ$ .

На рис. 4.1. показано направление кристаллографических осей, направления внешнего магнитного поля и протекающего тока в наклонном бикристаллическом контакте, а также фото центральной части образца.

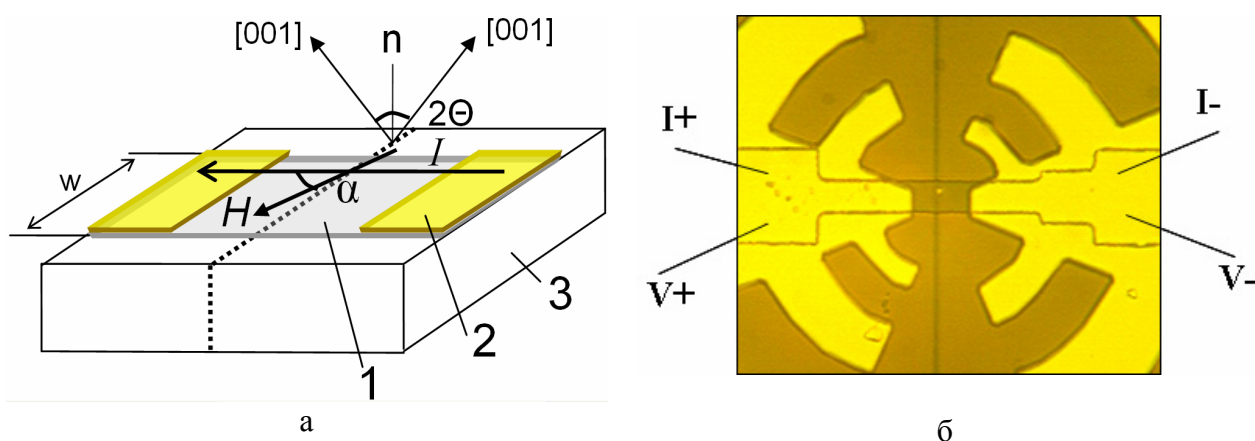


Рисунок 4.1. а) Центральная часть образца с пленочным LSMO мостиком, пересекающим бикристаллическую границу, ширина мостика  $w = 8\text{ мкм}$ . Угол  $\alpha$  определяет направление приложенного магнитного поля  $H$  относительно направления протекания тока  $I$ . Разориентация кристаллографических направлений двух частей плёнки определяется углом  $2\theta$ . 1 - LSMO мостик, пересекающий границу, 2 – бислоем Au/LSMO, который используется для четырёхточечного измерения сопротивления, 3 - бикристаллическая NGO подложка. Бикристаллическая граница в подложке показана пунктиром.

б) Фотография центральной части образца, схематичное изображение которого представлено на рисунке «а», тёмная линия – бикристаллическая граница.

#### 4.1. Магнитная анизотропия бикристаллических образцов

С помощью метода ферромагнитного резонанса (см. главу 2.3) был определен угол разворота лёгких осей намагничивания двух частей плёнки LSMO, расположенных по разные стороны от бикристаллической границы (см. схему на рис. 4.1а). Обнаружено, что угол разворота легких осей практически не зависит от кристаллографической разориентации плоскостей  $(110)$  NGO подложки и составляет  $\sim 1$  градус.

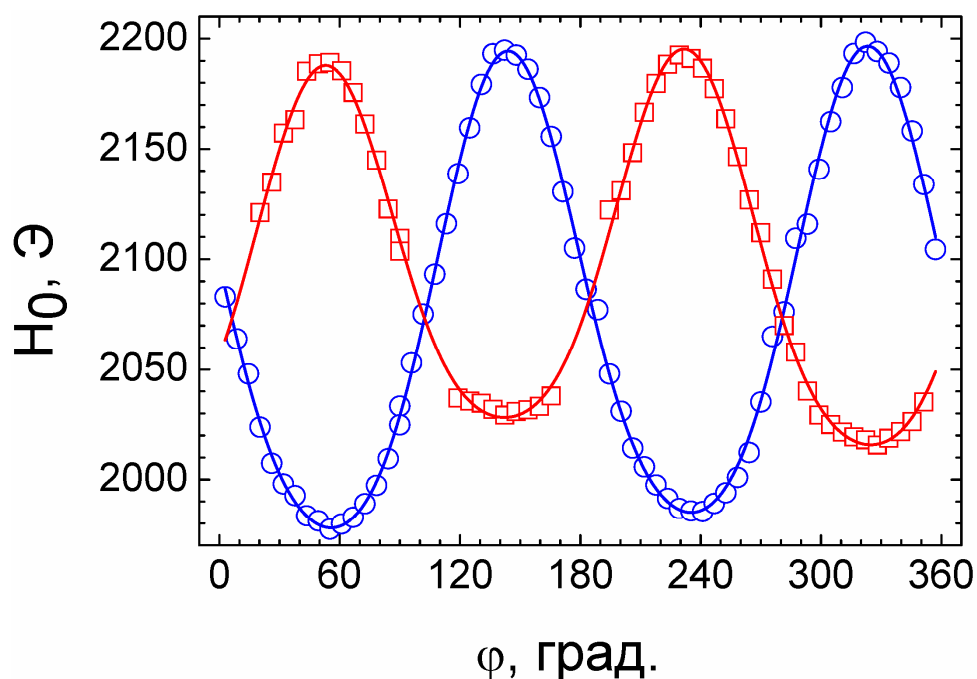


Рисунок 4.2. Угловая зависимость резонансных полей двух линий ФМР в кристаллографически разориентированных на  $90^\circ$  бикристаллических контактах на основе пленки LSMO. Видно, что лёгкие оси намагниченности двух магнитных подсистем (красная и чёрная кривые), расположенных по разные стороны от бикристаллической границы, смещены на угол, близкий к  $90^\circ$ . Подобные кривые были сняты и для наклонных бикристаллических контактов, но они показали смещение лишь на  $1^\circ$  вне зависимости от кристаллографической разориентации.

Следует отметить, что разворот лёгких осей намагничивания в ранее изученных РБК изменялся пропорционально углу разориентации кристаллографических осей подложки. На рисунке 4.2 показана угловая зависимость резонансных полей двух линий ФМР в РБК структурах с  $2\theta' = 90^\circ$ . Видно, что лёгкие оси намагничивания двух магнитных подсистем (красная и чёрная кривые), расположенных по разные стороны от бикристаллической границы, смещены на угол, близкий к  $90^\circ$ . Подобные кривые были сняты и для наклонных бикристаллических контактов, но они показали смещение лишь на  $1^\circ$  вне зависимости от кристаллографической разориентации. Угол  $\varphi$  отсчитывался от бикристаллической границы,  $\varphi = \alpha + 90^\circ$  (см. рис. 4.1). Характерные параметры магнитной анизотропии разориентированных и наклонных бикристаллических контактов, созданных в плёнке LSMO, сравниваются в таблице 4.1.

Таблица 4.1. Характерные параметры магнитной анизотропии разориентированных (РБК) и наклонных (НБК) бикристаллических контактов.

Тип бикристаллического контакта	Поле одноосной анизотропии двух частей плёнки, Эрстед		Угол магнитной разориентации намагниченностей в плоскости подложки, °
РБК 90°	154	248	92.1±0.1
НБК 12°	90	137	1.2±0.1
НБК 38°	-	-	1±0.1

#### 4.2. Магнетосопротивление бикристаллических контактов

На рис. 4.3 представлено семейство зависимостей магнетосопротивления бикристаллического контакта  $2\theta = 38^\circ$  от внешнего магнитного поля при четырех разных температурах. Видно, что низкополевой вклад меняет форму кривой в зависимости от температуры, и максимум магнетосопротивления достигается при низкой (гелиевой) температуре. При увеличении внешнего магнитного поля сопротивление спадает. Такая высокополевая зависимость характерна для манганитов и объясняется наличием эффекта колоссального магнетосопротивления в этих веществах (см. главу 1.1), заметно влияющего на магнетосопротивление контакта в сильных магнитных полях (для наших образцов начиная с полей порядка 1...2 кЭ). В низких магнитных полях (порядка сотен Эрстед) наблюдается гистерезис по магнитному полю, характерный для ферромагнетиков.

Для нормировки магнетосопротивления обычно используют  $R_{H=0}$  – сопротивление контакта при  $H=0$ . Однако сопротивление при  $H=0$  изменяется в зависимости от предыстории измерения, и это вносит некоторую неопределенность в значение магнетосопротивления (см. вставку к рис. 4.4). В данной главе в качестве меры



магнетосопротивления было выбрано  $MR' = (R_{max} - R_H)/R_H$ , где  $R_H$  – сопротивление контакта при конечном магнитном поле. Мы выбрали магнитное поле  $H = 0.75$  кЭ, которое превышает величину поля анизотропии, поля, при котором гистерезисные эффекты в наших образцах исчезают. На рис. 4.4 показана зависимость  $MR'(T)$  от температуры, которая в отличие от  $MR(T)$  (см. вставку к рис. 4.4) монотонно увеличивается с понижением температуры. В выбранном нами определении магнетосопротивления существует ошибка, вызванная наличием колоссального магнетосопротивления в манганитных пленках. Однако известно, что при низких температурах и малых магнитных полях порядка сотен Эрстед, вклад КМС от пленок, образующих контакт, мал [45].

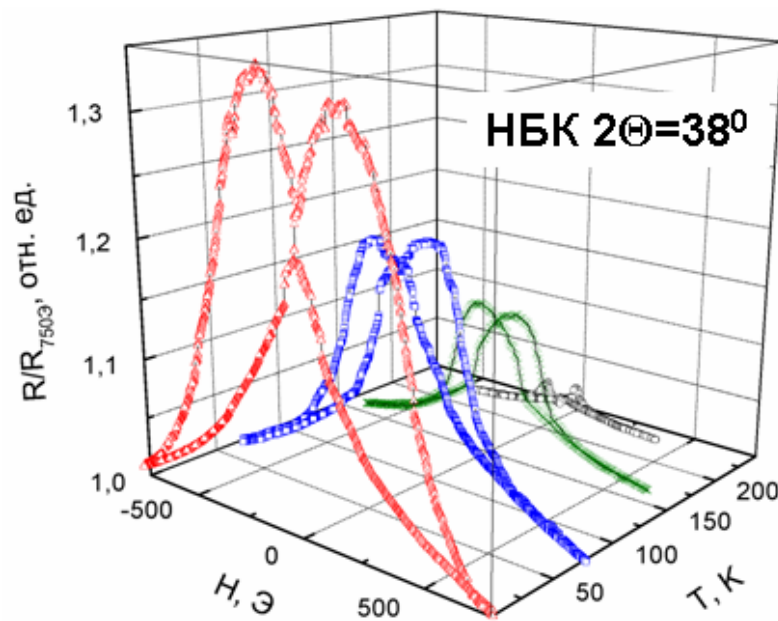


Рисунок 4.3. Зависимости магнетосопротивления, нормированного на сопротивление в поле  $H = 750$  Э, для LSMO НБК с углом разориентации  $2\theta = 38^\circ$  при четырех значениях температуры.

При низких магнитных полях и гелиевых температурах, где поляризация близка к 100%, а колоссальное магнетосопротивление мало ввиду удалённости по температуре от точки Кюри, основной вклад даёт магнетосопротивление бикристаллической границы. Для оценки величины вклада проводимости бикристаллического контакта в общую проводимость образца мы использовали подход, предложенный в [7, 46, глава 1.4].

Рассматривается туннельная проводимость поляризованных по спину носителей между двумя ферромагнитными средами, разделёнными туннельным барьером. Причём учитывается, что намагниченности по обе стороны от барьера направлены под разными углами  $\beta_1$  и  $\beta_2$  относительно границы. Аналитическое выражение для спиновой проводимости  $G_{sp}$  в такой ситуации выглядит следующим образом [7, 46]:

$$G_{sp} = G_{sp}^0 [1 + P^2 \cos(\beta_1 - \beta_2)] \quad (4.1)$$

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 так [47, 48]:

$$R = \frac{1}{G_{sp} + G_{ns}} = \frac{R_{sp}}{1 + P^2 \cos(\beta_1 - \beta_2) + g} \quad (4.2)$$

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

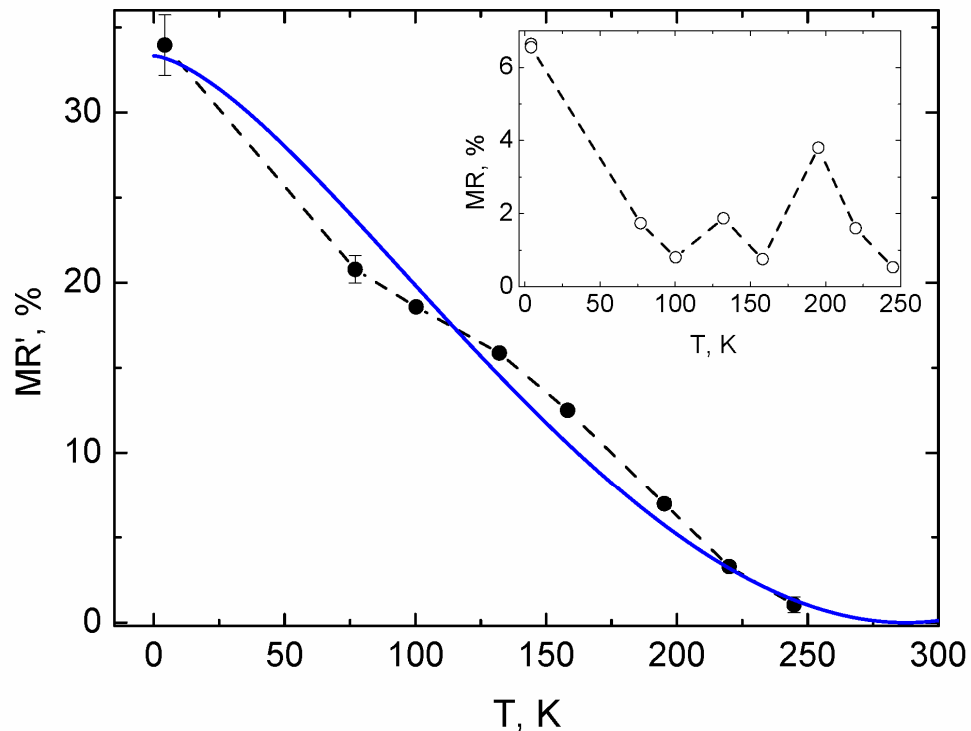


Рисунок 4.4. Температурные зависимости магнетосопротивления  $MR'$  (заполненные кружки). Синяя кривая – расчётная температурная зависимость  $MR'(T)$ . Зависимость традиционно определённого  $MR$  от температуры для того же контакта дана на вставке.

Наши измерения наклонных бикристаллических контактов с помощью методик, основанных на резонансном поглощении электромагнитного облучения, показали, что разориентация легких осей намагниченностей двух частей контакта мала (примерно  $1^\circ$ ). Но в то же время значения полей анизотропии заметно отличаются. 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 между собой и направлены вдоль внешнего поля. Согласно нашим расчетам для пленок с одноосной анизотропией, максимум магнетосопротивления наблюдается в окрестности полей анизотропии, где происходит переориентация намагниченностей двух частей контакта. Именно в этой точке по внешнему магнитному полю, примерно равной полю анизотропии, наблюдается максимум сопротивления  $R_{\max}$ . Известно, что поляризация манганитов при низких температурах близка к 100%. Будем считать  $P = 1$ . Тогда, исходя из (4.2), для максимального сопротивления справедливо равенство:  $R_{\max} = R_{sp} / (1 - P^2 + g)$ . Для больших полей, когда направления  $M_1$  и  $M_2$  параллельны и совпадают с полем:  $R_H = R_{sp} / (1 + P^2 + g)$ . Зная выше определенную величину  $MR'$ , оценим соотношение поляризованных и неполяризованных носителей:

$$MR' = (R_{\max} - R_H) / R_H = 2P^2 / (1 - P^2 + g) \quad (4.3)$$

Подставив в (4.3) 100% поляризацию, получим:

$$MR' = 2/g \quad (4.4)$$

Из данных, приведенных на рис. 4.3, и выражения (4.4) получим  $g = 6.7 = G_{ns} / G_{sp}$ . Следовательно, измеренная на постоянном токе проводимость контакта в основном определяется переносом неполяризованных носителей. Предполагается, что температурная зависимость поляризации имеет степенную форму [47, 49, 50]:

$$P(T) = P_0(1 - \varepsilon T^{3/2}) \quad (4.5)$$

Подставляя выражение (4.5) вместо  $P$  в (4.3), и учитывая экспериментальное значение  $MR' = 6,5 \%$ , получим  $\varepsilon = 2 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-3/2}$ . Полученное значение  $\varepsilon$  по порядку величины близко к литературным данным, полученным с помощью фотоэмиссионной спектроскопии для свободной поверхности LSMO пленок:  $\varepsilon = 4 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-3/2}$  [49], но почти на порядок отличается от  $\varepsilon = 4 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-3/2}$  для магнитных туннельных структур на базе LSMO пленок с прослойками из STO [49, 50]. Для контактов с малым углом разориентации ( $2\theta = 12^\circ$ ) величина магнетосопротивления составляет доли процента, при этом уменьшается характерное сопротивление контакта  $R \cdot A$  (где  $A$  – площадь контакта), хотя разориентация легких осей намагниченностей существенно не меняется. Отметим ещё раз, что магнетосопротивление существенно выше в бикристаллических контактах из LSMO, где наблюдается переходный слой с меньшей температурой Кюри и характерное сопротивление границы больше [16].

#### 4.3. Зависимость проводимости бикристаллических контактов от приложенного электрического напряжения

Для определения механизма переноса носителей заряда было измерено семейство зависимостей проводимости контактов от напряжения при разных температурах в диапазоне от 4.2 до 300К (рис. 4.5.). Проведено сравнение эксперимента с известными теоретическими моделями.

Модель 1. Обычно бикристаллический контакт рассматривается как туннельный переход с двумя металлическими ферромагнитными электродами и прямоугольным потенциальным барьером между ними. Электронный транспорт описывается механизмом

упругого туннелирования через прямоугольный барьер [51]. 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 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 (см. рис. 4.5) в каком-либо широком диапазоне не описывается степенью  $V^2$ , имеет сильное отличие 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 рассматриваться не будет.

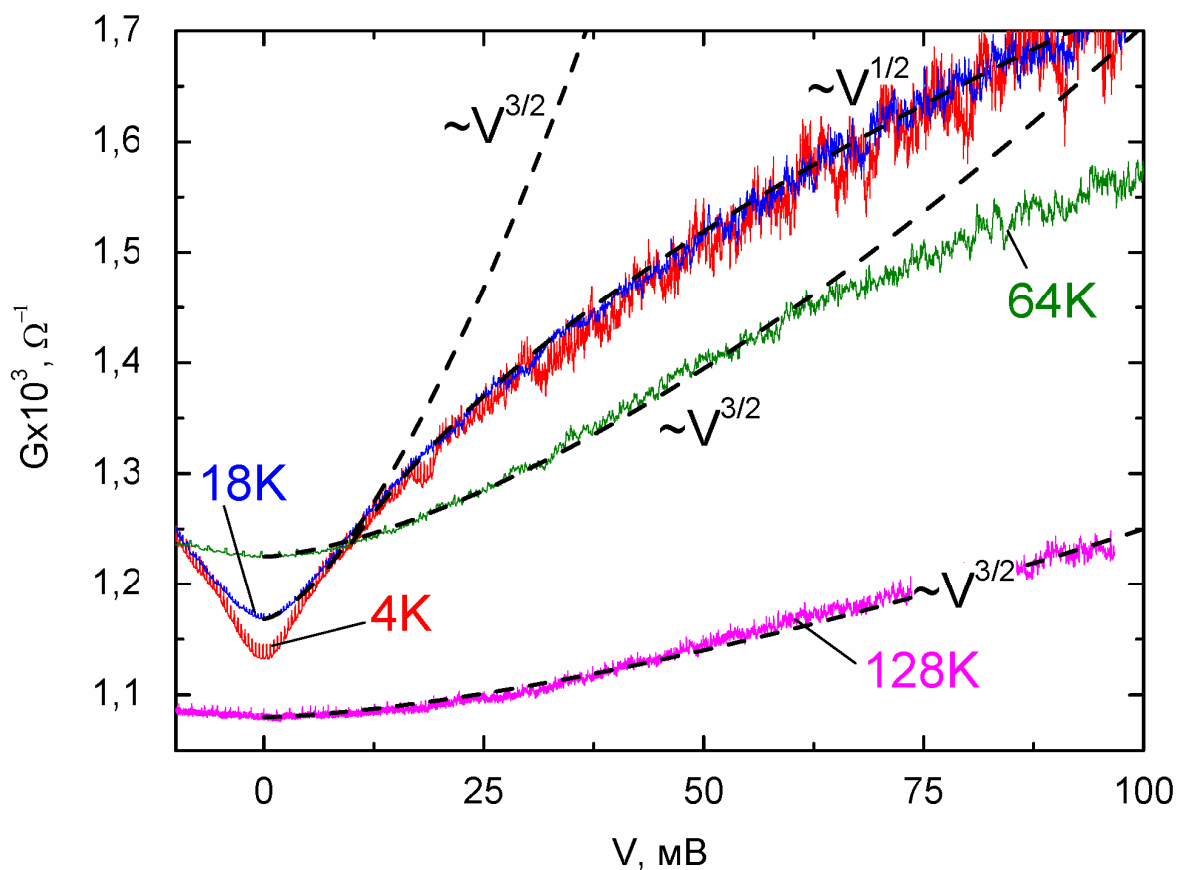


Рисунок 4.5. Экспериментальные кривые - проводимость  $G(V)$  LSMO бикристаллического контакта с углом разориентации  $38^\circ$  при четырех температурах  $T=4\text{K}$ ,  $18\text{K}$ ,  $64\text{K}$  и  $128\text{K}$ . Пунктирными линиями показаны аппроксимации экспериментальных кривых степенными зависимостями.

Развитием предыдущей модели является модель 2, учитывающая наличие приграничного слоя. Свойства такого слоя могут быть отличны от свойств самих 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 локальное уменьшение температуры Кюри в приграничной области [16]. В приграничном слое возможно усиление электрон - электронного взаимодействия, например, из-за диффузной природы движения электронов в неупорядоченном грязном металле [52, 53].

В манганитах сильное электрон-электронное взаимодействие 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 [53] при температурах вплоть до 10К. Действительно, в нашем эксперименте при низких температурах ( $T \leq 18K$ ) на  $G(V)$  явно выделяется вклад, пропорциональный  $V^{1/2}$ . При повышении температуры вклад уменьшается, а при  $T = 64K$  и выше уже практически незаметен.

Прыжковый механизм проводимости контакта с неоднородным барьером (модель 3), рассмотренный Глазманом и Матвеевым [54], предполагает температурную зависимость  $G(T) \sim T^{4/3}$ , которая в нашем случае не наблюдается. Кроме того, в теории [54] не предполагается зависимости проводимости от магнитного поля.

В работах [55, 56] рассмотрено рассеяние носителей на магнитных возбуждениях, которое вызывает нелинейную полевую зависимость. Модель рассеяния спин - поляризованных носителей [56] предполагает зависимость  $G(V) = G_0 + G_2|V^2| + G_{3/2}|V^{3/2}|$  для проводимости магнитного контакта (модель 4). Член  $G_2|V^2|$  определяется объёмными магнонами, а  $G_{3/2}|V^{3/2}|$  - поверхностными антиферромагнитными магнонами. Из рис. 4.5. видно, что вклад  $G_{3/2}|V^{3/2}|$  становится определяющим на  $G(V)$  при температурах выше 50К.

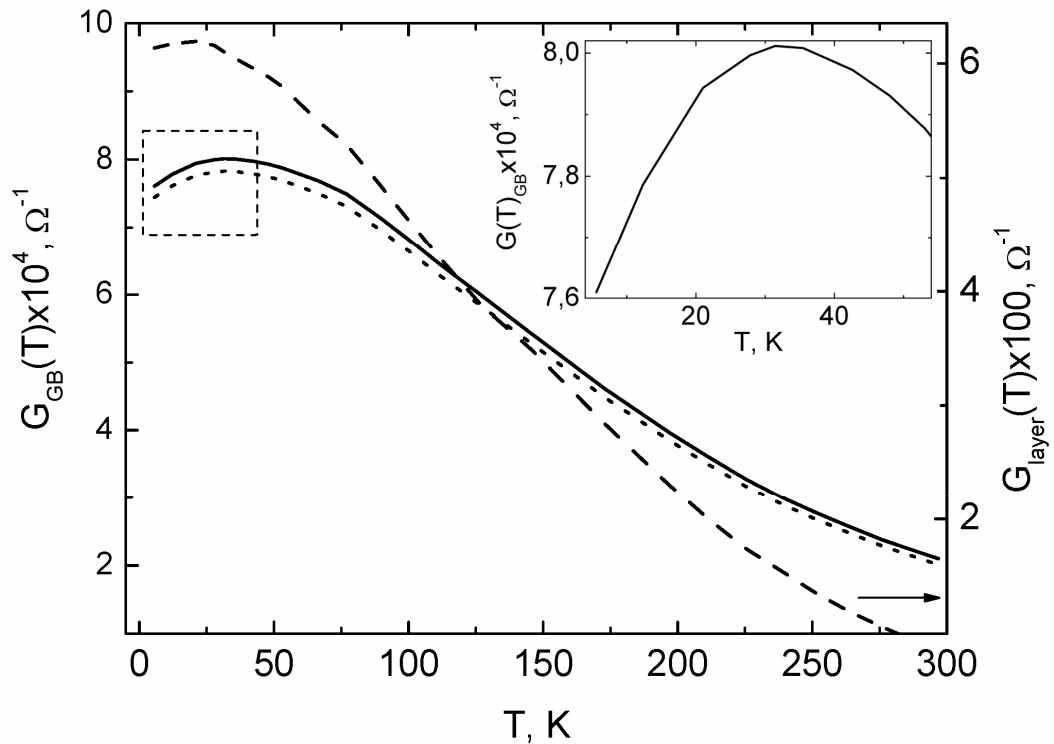


Рисунок 4.6. Зависимость проводимости от температуры для 38-градусной бикристаллической плёнки (точки), автономной плёнки (пунктир) и бикристаллического контакта (сплошная линия). На вставке показана проводимость бикристаллического контакта при низких температурах.

Следовательно, из анализа зависимости проводимости бикристаллических контактов от смещения по напряжению следует то, что в наших контактах преобладают два механизма, определяющих перенос электрического заряда: электрон - электронное взаимодействие при низких температурах, предполагающее наличие приграничного слоя и рассеяние спин - поляризованных носителей на антиферромагнитных магнонах приграничной области в области более высоких температур [57]. Увеличение магнетосопротивления с понижением температуры обусловлено увеличением магнитной поляризации и ослаблением механизма спинового рассеяния с понижением температуры.

Наличие двух механизмов рассеяния спинов подтверждается температурной зависимостью проводимости LSMO бикристаллического контакта и автономной плёнки того же состава (рис. 4.6). Видно, что при уменьшении температуры меняется характер температурной зависимости проводимости бикристаллического контакта в области 30К. Если ниже 30К наблюдался рост проводимости с увеличением температуры, то выше наблюдается явный спад.

#### 4.4. Краткие выводы

Измерение угловой зависимости магнитного поля, соответствующего ферромагнитному резонансу в бикристаллических контактах, показало наличие двух ферромагнитно упорядоченных спиновых подсистем с мало различающимися (порядка 1 градуса) направлениями лёгких осей намагниченности. Оси направлены вдоль бикристаллической границы, и практически не зависят от угла кристаллографической разориентации частей бикристаллической подложки. С уменьшением угла разориентации  $MR'$  сильно уменьшается, при  $2\theta = 12^\circ$  составляет доли процента. Величина магнетосопротивления ( $MR'$ ) увеличивается с уменьшением температуры, что вызвано ростом магнитной поляризации в LSMO пленке. При  $T = 4.2\text{K}$ , когда в LSMO пленках поляризация близка к 100%,  $MR'$  составляет 30% для НБК с  $38^\circ$  разориентацией, что соответствует большому количеству неполяризованных носителей: согласно представленному расчёту, их в 6.7 раз больше, чем поляризованных. В результате выявления соответствия экспериментальных зависимостей проводимости НБК существующим теоретическим моделям было обнаружено, что малое значение магнетосопротивления 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.

### **Глава 5. Магнитотранспортные свойства гетероструктур манганит / рутенат**

В предыдущей главе рассматривались магнитные туннельные контакты, созданные на основе бикристаллического перехода в эпитаксиальной плёнке LSMO. В этой же главе будет рассмотрен более технологичный вариант: магнитные переходы на основе многослойных гетероструктур. Известно, что гетероструктура



$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{SrRuO}_3$  (LSMO/STO/SRO) даёт очень высокое магнетосопротивление [8], однако в теоретической работе [9] показано, что замена прослойки  $\text{SrTiO}_3$  на  $\text{LaMnO}_3$  (LMO) позволит ещё больше увеличить значение магнетосопротивления из-за лучшего кристаллографического и магнитного (отсутствие мертвого слоя на границе) согласования между слоями. Экспериментальной проверке этого утверждения главным образом и посвящена настоящая глава. Для этого были изготовлены гетероструктуры LSMO/LMO/SRO. Технология изготовления описана в главе 2.1.

### 5.1. Анализ качества гетероструктур

Эпитаксиальный рост гетероструктур подтверждается рентгеновскими дифрактограммами и измерениями на просвечивающем электронном микроскопе. На рисунке 5.1 показано семейство рентгеновских дифрактограмм для гетероструктуры LSMO/SRO, автономной пленки SRO и автономной пленки LSMO, напыленных на подложки из (110)NGO.

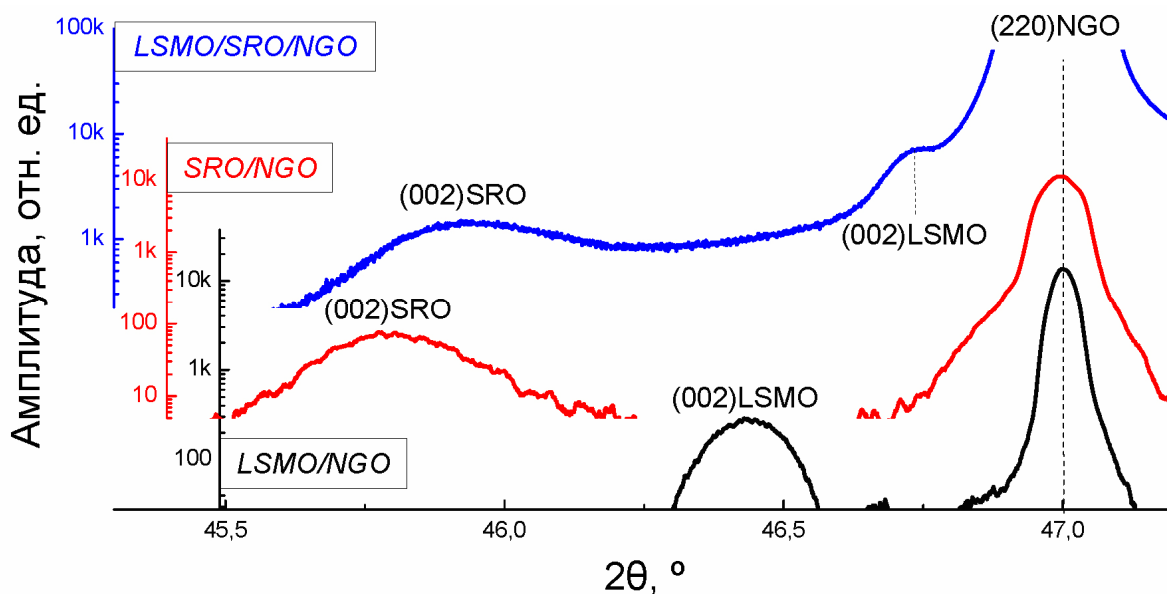


Рисунок 5.1. Рентгеновские дифрактограммы в режиме брегговского отражения, снятые на гетероструктуре LSMO/SRO и на автономных SRO и LSMO плёнках, выращенных на подложке (110)NGO.

Из рисунка видно, что в гетероструктуре наблюдается уменьшение параметра решетки LSMO вдоль нормали к подложке  $a_{\perp}$ , что вызвано растяжением кристаллической решетки LSMO в плоскости подложки  $a_{\parallel}$ . Растяжение  $a_{\parallel}$  предположительно вызвано ростом LSMO слоя на SRO.

Толщины слоев и границ раздела, а также их магнитные свойства были исследованы методами рентгеновской и нейтронной рефлектометрии. Суть методов состоит в измерении коэффициентов зеркального отражения рентгеновского или нейтронного излучения при изменении угла скольжения падающего на образец пучка, более подробно методики описаны в 2.4 и 2.5.

На рисунке 5.2 представлены экспериментальная и модельная рефлектограммы рентгеновского излучения, измеренные на дифрактометре Bruker D8. Полученный в результате подгонки профиль плотности длины рассеяния в глубину представлен на вставке. Как видно из полученного профиля, наибольший контраст для рентгеновского излучения имеют границы раздела «воздух/золото» и «золото/LSMO», то есть рентгеновская рефлектограмма наиболее чувствительна к слою золота. Подгонка экспериментальной кривой дает для толщины слоя золота и шероховатости на поверхности величины 21 нм и 2 нм соответственно. Отметим, что толщина слоя согласуется с калибровками используемой установки лазерной абляции. Ввиду слабой чувствительности рентгеновской рефлектометрии к толщинам оксидных слоев, толщины этих слоёв определялись из фита нейтронных рефлектограмм.

Из исходной гетероструктуры, выращенной на подложке размером  $5 \times 5 \times 0.5$  мм<sup>3</sup>, методом фокусированного ионного травления была вырезана тонкая пластина, которая далее исследовалась с помощью просвечивающей микроскопии. На рисунке 5.3 показано поперечное сечение гетероструктуры SRO/LSMO, полученное с помощью просвечивающего электронного микроскопа Jeol JEM-2100<sup>5</sup>. Видно, что на расстоянии в

---

<sup>5</sup> Измерения сделаны при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ с привлечением уникальным научным оборудованием в области нанотехнологий (ЦКП МФТИ).

несколько десятков нм не наблюдается сбоев кристаллических структур границах материалов.

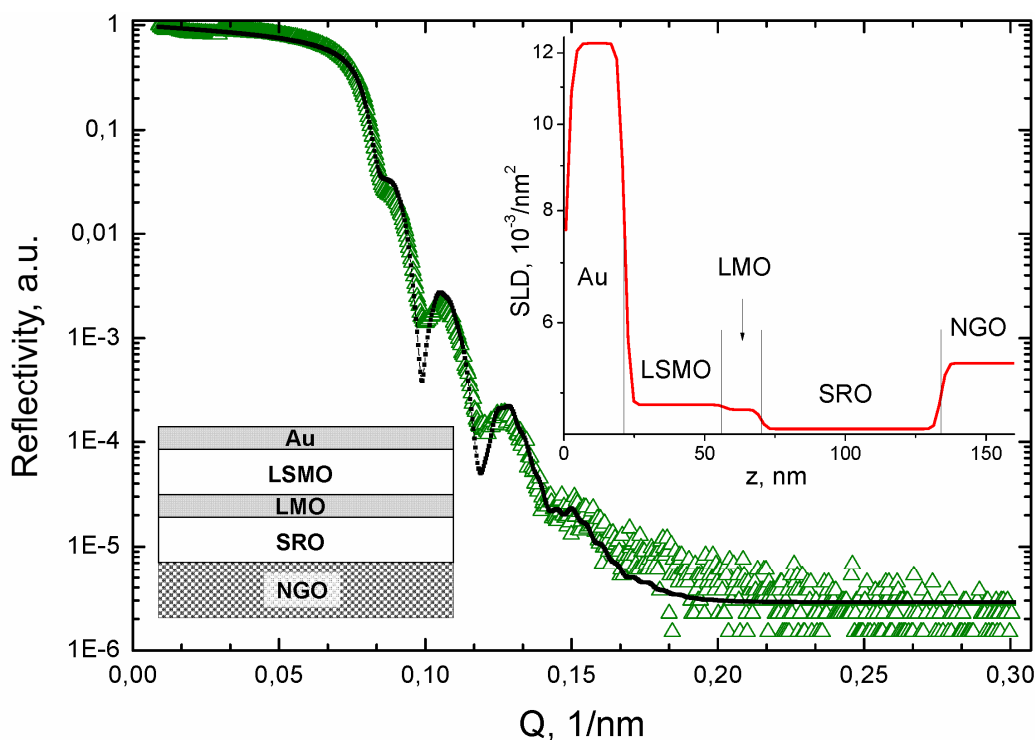


Рисунок 5.2. Зависимость кривой малоуглового рентгеновского отражения (Reflectivity) для гетероструктуры Au/La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>/LaMnO<sub>3</sub>/SrRuO<sub>3</sub> с прослойкой из LaMnO<sub>3</sub> толщиной 13 нм от вектора рассеяния Q. Треугольники – эксперимент, точки – модель. На вставке показан профиль плотности длины рассеяния (ПДР) в зависимости от глубины проникновения рентгеновского излучения в гетероструктуру.

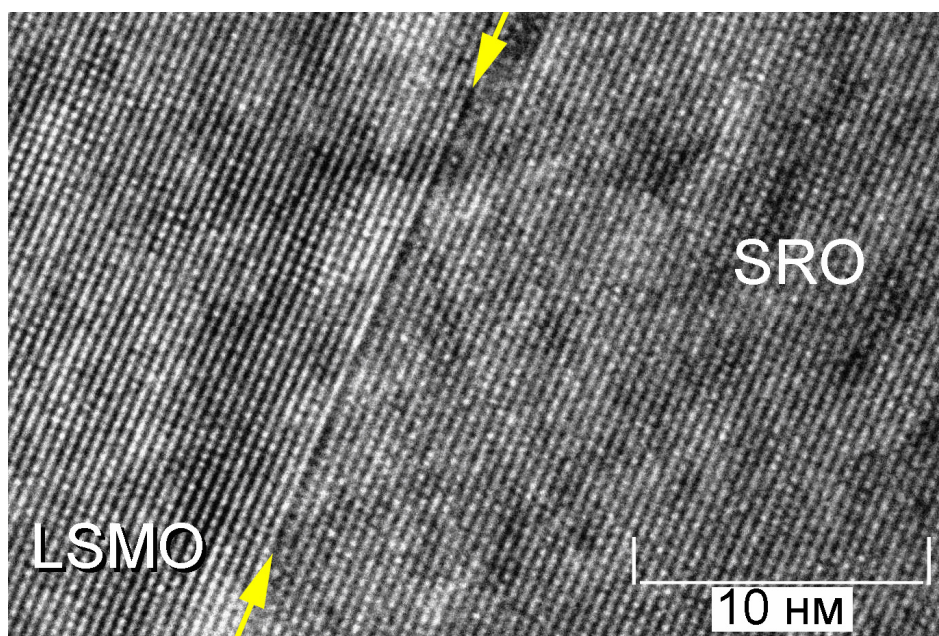


Рисунок 5.3. Изображение границы раздела SrRuO<sub>3</sub> (SRO) и La<sub>0.7</sub> Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO), полученное с помощью просвечивающего микроскопа JEM-2100, увеличение 800000. Расположение границы отмечено стрелками.

## 5.2. Магнитные свойства гетероструктур

Магнитные свойства гетероструктур были измерены методом СКВИД магнитометрии и методом рефлектометрии поляризованных нейтронов в диапазоне температур 4...300 К с приложением внешнего магнитного поля в плоскости подложки, а также методом ФМР. Температурные зависимости намагниченности гетероструктуры, измеряемые при нагреве образца после предварительного охлаждения в магнитном поле, представлены на рис. 5.4.

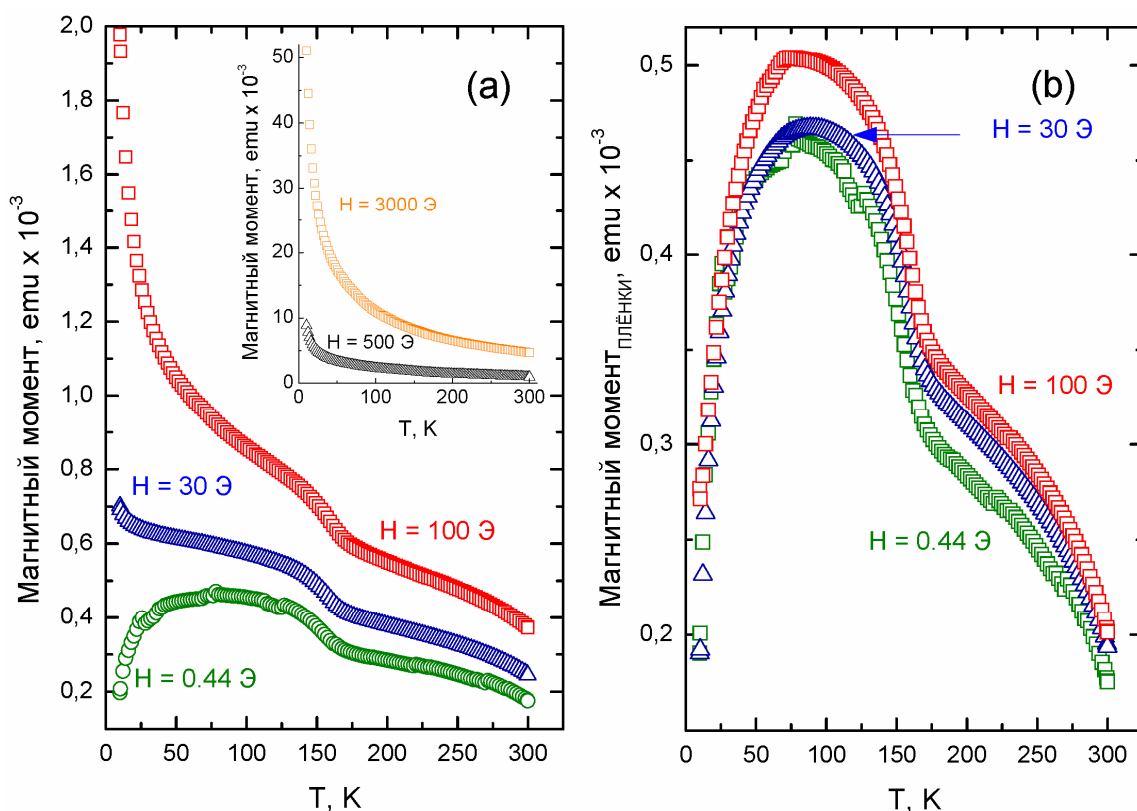


Рисунок 5.4. (a) Магнитный момент в плоскости подложки в зависимости от температуры для эпитаксиальной гетероструктуры LSMO/LMO/SRO, выращенной на подложке (110)NGO,  $d_{LMO}=13$  нм. (b) Магнитный момент гетероструктуры LSMO/LMO/SRO за вычетом парамагнитной составляющей NGO подложки.

Как видно из рис. 5.4а, большой вклад в магнитный момент гетероструктуры дает парамагнитная подложка из NGO<sup>6</sup>. Эффект становится наиболее сильным при низких

<sup>6</sup> Измерения намагниченности на СКВИДе были сделаны в Институте Макса Планка (Германия) Мустафой Лукманом

температурах, что затрудняет оценку намагниченности тонких пленок. Для вычета вклада подложки использовалась температурная кривая, измеренная при  $H=3000\text{Э}$ . Результат вычета при условии, что вклад от парамагнитной подложки NGO при  $3000\text{Э}$  существенно выше вклада от эпитаксиальных плёнок, представлен на рис. 5.4b. Правомерность такого условия подтверждается зависимостью  $M(H)$ , имеющей форму петли гистерезиса с полем насыщения  $400\text{Э}$  при  $10\text{К}$ , выше  $400\text{Э}$  наблюдается линейное изменение  $M(H)$ , что связано со вкладом NGO подложки.

Как видно из рис. 5.4b, в диапазоне температур  $170\text{К} < T < 300\text{К}$  происходит рост магнитного момента с уменьшением температуры, что характерно для намагниченности LSMO слоя, находящегося ниже температуры Кюри. Далее, при температуре ниже  $170\text{К}$ , наблюдается рост магнитного момента. Согласно [4] такое поведение вероятно связано с переходом слоя SRO в ферромагнитное состояние. Возможно, одновременно увеличивается вклад и от намагниченности LMO слоя. При температурах ниже  $100\text{К}$  наблюдается падение намагниченности. Снижение магнитного момента при температуре ниже  $100\text{К}$  мы пока не можем однозначно интерпретировать. Однако в работе [58] сообщалось о подобном возникновении антиферромагнитной составляющей в двухслойных гетероструктурах LSMO/SRO при их заморозке в малых магнитных полях.

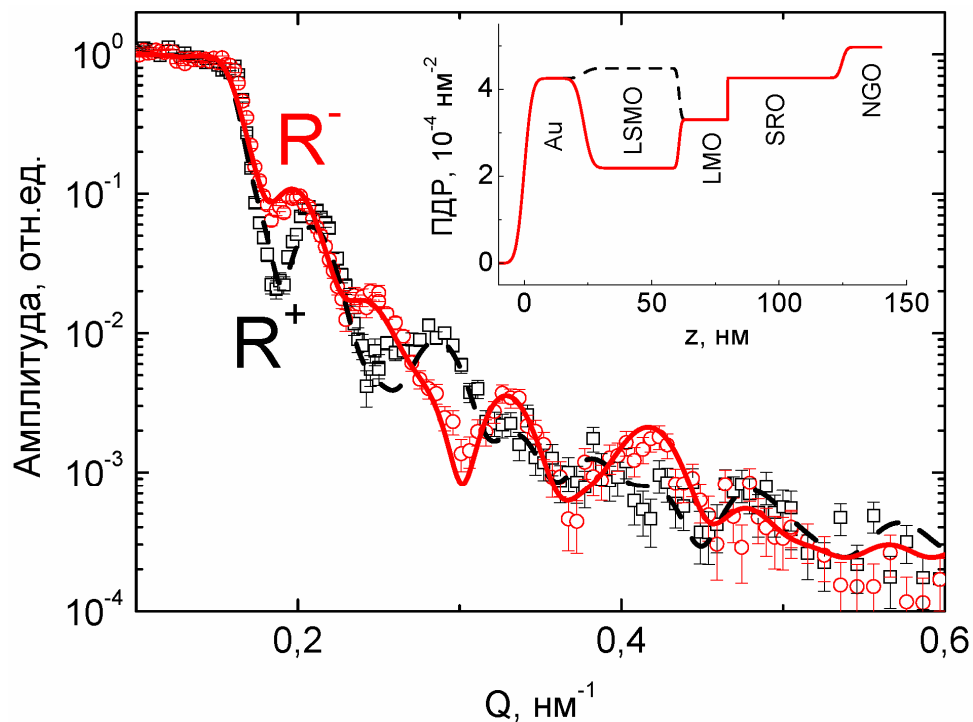
Данные, полученные с помощью СКВИД магнитометра, были дополнены данными, полученными с помощью метода рефлектометрии поляризованных нейтронов (РПН)<sup>7</sup>. Отметим, что поскольку РПН - это методика основанная на магнитном контрасте границ раздела, проблем с парамагнитным сигналом от подложки у этой методики, в отличие от СКВИД магнитометрии, нет. Измерения проводились на рефлектометре поляризованных нейтронов NREX исследовательского реактора FRM II (Мюнхен, Германия) на образце с толщиной прослойки  $d_{\text{LMO}} = 13\text{нм}$  в диапазоне температур  $4 - 300\text{К}$  в магнитном поле  $H=30\text{Э}$  после заморозки образца до  $3.5\text{К}$  в магнитном поле  $H = 4\text{кЭ}$ . На рис. 5.5a

---

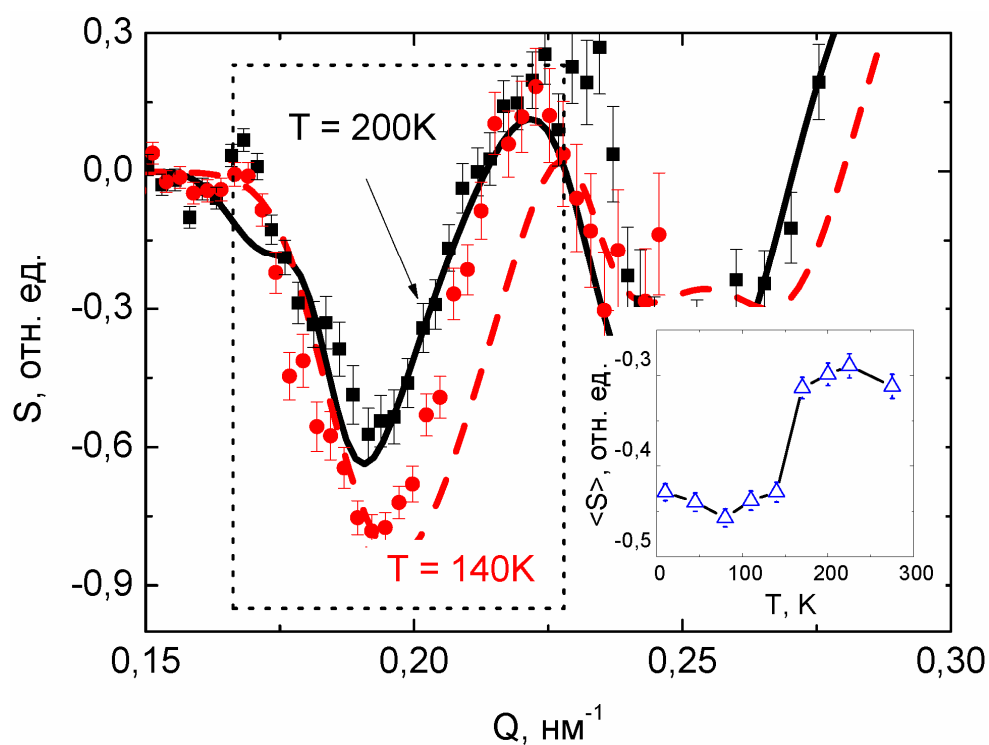
<sup>7</sup> Нейтронные измерения были сделаны на рефлектометре поляризованных нейтронов NREX исследовательского реактора FRM II Института Макса Планка, Мюнхен, Германия совместно с Ю. Хайдуковым.

представлены  $R^+$  и  $R^-$  кривые зеркального отражения поляризованных нейтронов, измеренные при температуре  $T=200\text{K}$ , выше температуры Кюри SRO слоя и гораздо ниже температуры Кюри LSMO слоя. Анализ кривых зеркального отражения поляризованных нейтронов позволил восстановить профили длины рассеяния для нейтронов, поляризованных по полю и против поля (пунктирная и сплошная кривые на вставке к рис. 5.5a). Как видно из полученных ПДР, наличие магнитного контраста в слоях LSMO и LMO позволяет различить эти слои. Толщины слоев, полученные из подгонки кривых нейтронной рефлектометрии для гетероструктуры с 13нм (согласно калибровке напылительной установки) слоем LMO составляют:  $d_{\text{LSMO}} = 37.4 \pm 0.3\text{нм}$ ,  $d_{\text{LMO}} = 19.1 \pm 0.3\text{нм}$ ,  $d_{\text{SRO}} = 44.9 \pm 3\text{нм}$ . Намагниченность в слое LSMO при 200K согласно фиту составляет величину  $4\pi M_{\text{LSMO}} = 5.00 \pm 0.03\text{ кГс}$ , что соответствует 2.7 магнетонам Бора на атом марганца. Отметим, что величины ПДР оксидных слоев и магнитного момента атомов марганца согласуется с литературными значениями [59,60]. При понижении температуры ниже 150K наблюдается сильное увеличение амплитуды осцилляций спиновой асимметрии вблизи  $Q = 0.2\text{нм}^{-1}$  (рис. 5.5b). Количественный расчет показывает, что спиновую асимметрию при 140K можно описать введением дополнительной намагниченности в LMO слое  $4\pi M_{\text{LMO}} = 4.2\text{кГс}$  ( $2.4\text{ мВ/Мн}$ ). Полученный при этом рост магнитного момента согласуется с данными СКВИД магнитометрии, изображенными на рис. 5.4b.

Также магнитные свойства гетероструктур были исследованы методом ФМР. Производные линий ФМР для гетероструктуры, содержащей прослойку LMO толщиной 25нм, представлены на рисунке 5.6 для двух температур. Зная величину центрального поля ферромагнитного резонанса исследуемого соединения, можно судить об изменении магнитного состояния конкретно этого соединения. На рис. 5.6a обнаруживаются 3 линии: от LSMO (центральное поля ФМР  $\sim 1100\text{Э}$ ), от парамагнитной примеси подложки в районе g-фактора 2 (центральное поле  $\sim 3200\text{Э}$ ) и от LMO слоя (центральное поле для температур 117 - 127K от 2650 до 2800Э соответственно). Температура Кюри может быть определена



(a)



(b)

Рисунок 5.5. (а) Экспериментальные (точки) и расчетные (сплошные линии) кривые зеркального отражения поляризованных нейтронов для гетероструктуры с 13нм слоем LMO, измеренные при  $H=30\text{Э}$ ,  $T=200\text{К}$ . На вставке показан профиль в глубину плотности длины рассеяния для нейтронов поляризованных по полю (пунктирная кривая) и против поля (сплошная кривая). (б) Экспериментальная (точки) и расчетная (линии) спиновая асимметрия рассеяния, измеренная при температуре 200К (пунктирная кривая) и 140К (сплошная кривая). На вставке дана температурная зависимость средней спиновой асимметрии в диапазоне  $0.17\text{-}0.23\text{ нм}^{-1}$ .

нахождением точки максимума производной резонансного магнитного поля ФМР  $dH_0/dT$ . Для конкретного образца, судя по кривой на рисунке 5.6б, температура Кюри LMO находится в районе 130К. Площадь под кривыми, изображенными на рисунке 5.6б, пропорциональна модулю намагниченности данного слоя. Относительные величины намагниченности LMO и LSMO слоёв представлены на рисунке 5.6в.

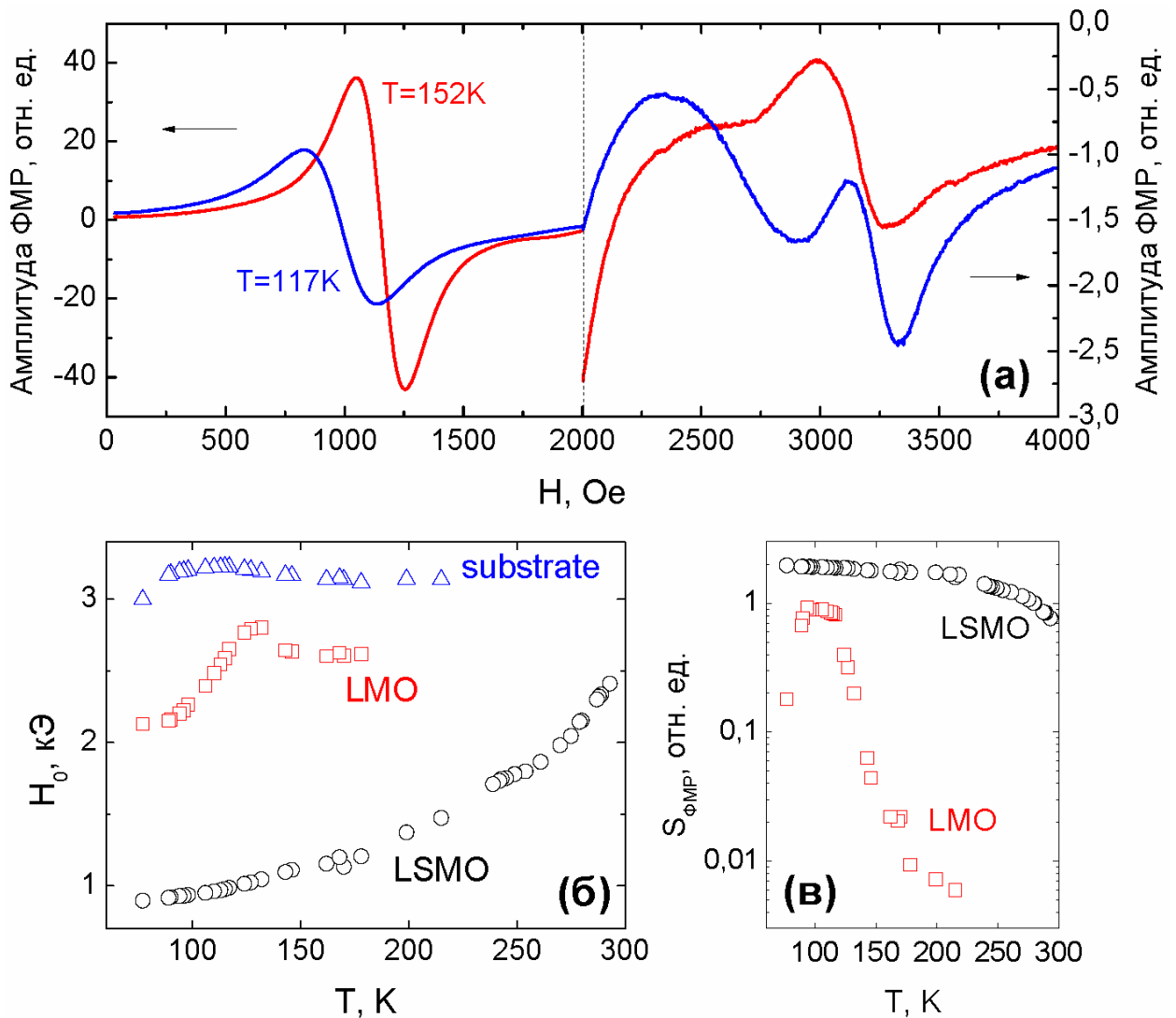


Рисунок 5.6. (а) – производная линий ферромагнитного резонанса в зависимости от магнитного поля при разных температурах для гетероструктуры, содержащей LMO прослойку толщиной 20нм; (б) – зависимость центрального поля МР от температуры для слоёв LMO (квадраты), LSMO (кружки) и парамагнитной примеси подложки (треугольники); (в) – площадь резонансных линий поглощения от LSMO и LMO.



### 5.3. Меза – структуры манганит/рутенат

Изготовленная из гетероструктуры меза-структура схематически представлена на вставке к рисунку 5.7. Задаваемый ток протекает через SRO пленку и границы раздела LMO/SRO, LMO/LSMO и Au/LSMO. На рисунке 5.6 представлена зависимость характерного сопротивления меза-структуры  $R_n A$  ( $A = L^2$ ,  $R_n$  - сопротивление меза-структуры) при напряжении 1.5 мВ и  $T = 4$  К в зависимости от ее линейного размера  $L$ . В случае однородного протекания тока в меза-структуре с границами раздела значение  $R_n A$  не должно изменяться. В нашем случае  $R_n A$  увеличивается с линейным размером, что свидетельствует о наличии неоднородного растекания тока в меза-структуре. Дополнительные измерения границ Au/SRO и Au/LSMO показали, что основной вклад в сопротивление дает граница Au/LSMO. Учитывая, что удельные сопротивления пленок SRO и Au существенно меньше, чем LSMO, можно оценить длину растекания тока в меза-структуре по следующей формуле [60]:

$$L_S = \frac{R_n A \times d_{LSMO}}{\rho_{LSMO}} \quad (5.1)$$

Подставляя значение  $R_n A = 1.5 \times 10^{-5} \text{ } \Omega \cdot \text{см}^2$ ,  $\rho_{LSMO} = 10^{-4} \text{ } \Omega \cdot \text{см}$ , получим  $L_S \approx 8$  мкм при толщине LSMO пленки  $d_{LSMO} = 40$  нм для меза-структур с LMO прослойкой. Для меза-структур без LMO прослойки  $L_S$  несколько увеличивается из-за увеличения  $R_n A$ . Следовательно, в большинстве измеренных меза-структур наблюдается неоднородное распределение тока в плоскости подложки.

На рисунке 5.8 показаны кривые проводимости меза-структуры в зависимости от приложенного напряжения для меза-структур с  $d_{LMO} = 0$  и 13 нм. Уменьшение проводимости ( $\sigma$ ) при малых напряжениях ( $V$ ) свидетельствует о туннельном характере протекания тока через меза-структуру без LMO прослойки [27].

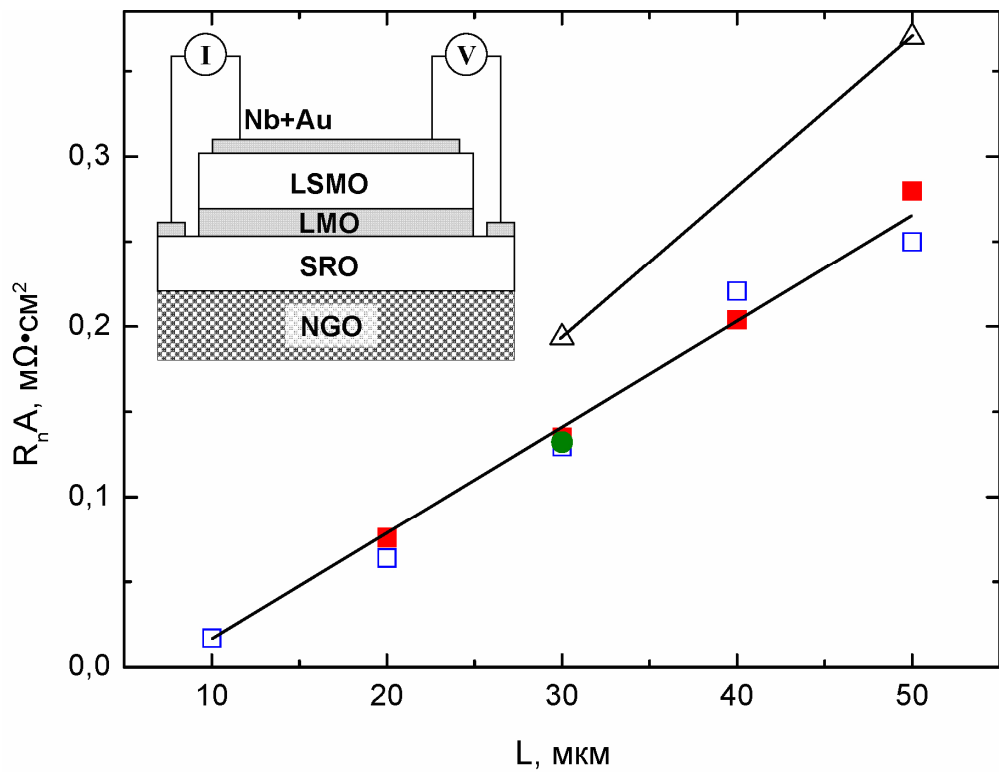


Рисунок 5.7. Произведение сопротивления ( $R_n$ ) на площадь меза-структуры ( $A$ ) в зависимости от ее линейного размера  $L$  при  $T = 4$  К. Сплошные линии соответствуют линейной аппроксимации. Для треугольников, незаполненных квадратов, заполненных квадратов, заполненные кругов, толщина LMO составляет 0, 4, 7 и 35 нм, соответственно. На вставке схематически показан поперечный разрез меза-структуры.

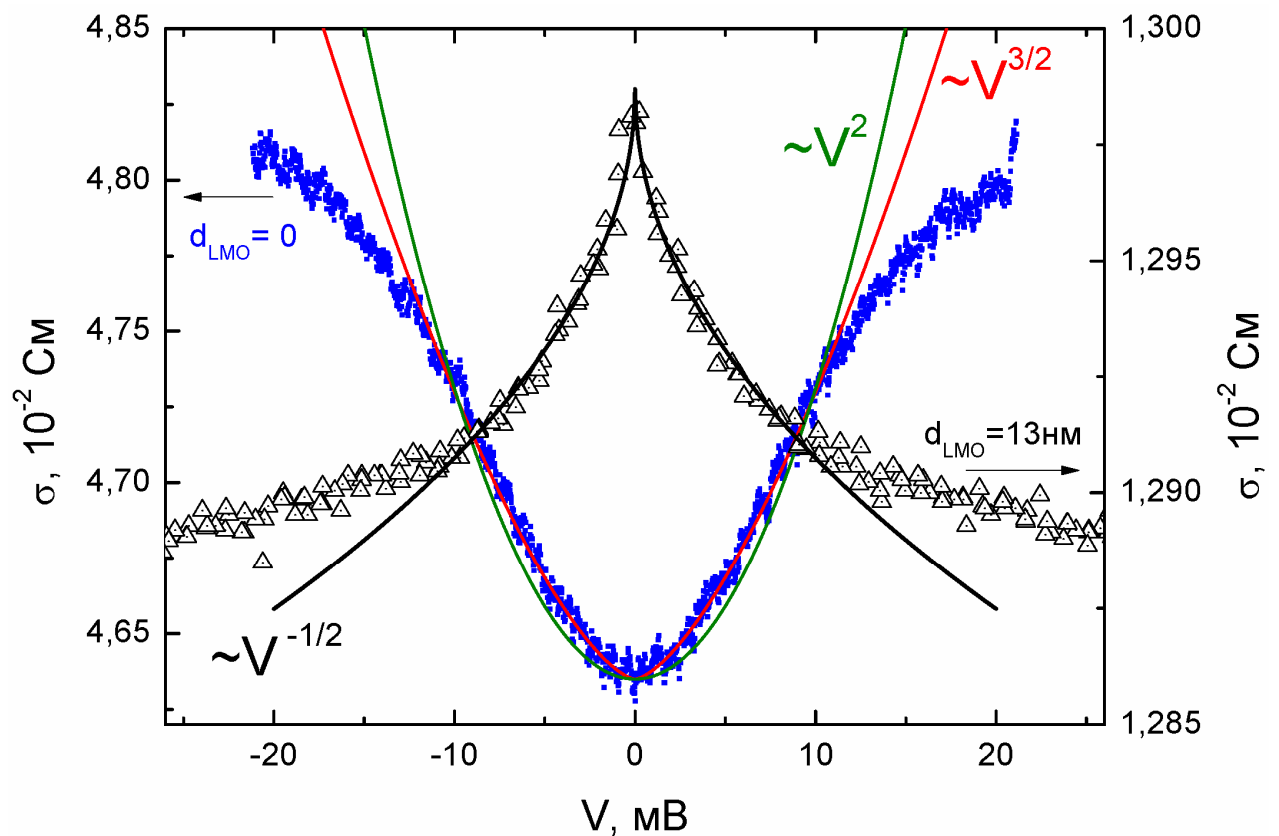


Рисунок 5.8. Дифференциальная проводимость в зависимости от напряжения смещения для меза-структур со значениями  $d_{LMO} = 0$  (точки) и 13 нм (треугольники).

Действительно, усредненные (по направлению импульса квазичастиц) прозрачности границ, оцененные из  $R_{nA}$  по формуле [60]

$$\bar{D} = \frac{2\pi^2\eta^3}{e^2 p_F^2} \frac{1}{R_{nA}} = \frac{2\rho^{LSMO}l^{LSMO}}{3R_{nA}}, \quad (5.2)$$

оказываются достаточно малыми:  $D = 10^{-4}-10^{-5}$ . Здесь  $p_F$  - наименьшее значение Ферми-импульса из LSMO и Au при следующих параметрах:  $\rho^{LSMO}l^{LSMO} \approx 10^{-10} \Omega \cdot \text{см}^2$  и

$R_{nA} = 1.5 \times 10^{-5} \Omega \cdot \text{см}^2$ . В работе [61] рассмотрено рассеяние носителей на магнитных возбуждениях, которое вызывает нелинейную полевую зависимость. Модель рассеяния спин - поляризованных носителей [61] предполагает следующую зависимость для проводимости магнитного контакта:

$$\sigma(V) = \sigma_0 + \sigma_2|V^2| + \sigma_{3/2}|V^{3/2}| \quad (5.3)$$

где член  $\sigma_2|V^2|$  определяется объёмными магнонами, а  $\sigma_{3/2}|V^{3/2}|$  - поверхностными антиферромагнитными магнонами. Из рисунка 5.8 видно, что оба члена зависимости  $\sigma(V)$  удовлетворительно описывают рассматриваемый эксперимент при напряжениях менее 10 мВ. При больших напряжениях наблюдается сильное отклонение экспериментальной зависимости  $\sigma(V)$  от (5.3).

Структуры с  $d_{\text{LSMO}} \geq 10$  нм показывают принципиально иную зависимость проводимости от напряжения  $\sigma(V)$ , которая не может быть описана туннельным переходом с двумя металлическими ферромагнитными электродами. В данном случае наиболее подходящей может быть модель двух ферромагнетиков, разделённых нормальным металлом [62]. При малых напряжениях  $V < 10$  мВ проводимость от напряжения  $\sigma(V)$  хорошо описывается зависимостью  $\sigma(V) \sim V^{-1/2}$ .

#### 5.4. Магнетосопротивление меза-структур

На рисунке 5.9 показано семейство магнитно-полевых зависимостей сопротивления меза-структуры  $R(H)$ , нормированное на сопротивление  $R_0$ , измеренное в отсутствие внешнего магнитного поля ( $H=0$ ). Толщины LMO прослойки: 0 - 13 нм. Видно, что сопротивление меза-структуры  $MR^*=(R_0-R)/R_0$  уменьшается с увеличением магнитного поля и толщины прослойки LMO (см. также вставку к рис.5.9). При  $d_{LMO}=0$   $MR^*$  имеет максимальное значение, наблюдается слабый гистерезис зависимости  $R(H)$ , т.е.  $R(H)$  зависит от направления изменения магнитного поля (см. рис. 5.10). Поскольку для  $d_{LMO}=0$  магнетосопротивление при антипараллельном расположении намагниченностей  $R_{AP}$  оказывается меньше сопротивления при ферромагнитном упорядочении  $R_P$ , то, исходя из формулы 1.1., можно утверждать о наличии отрицательной магнитной поляризации в одном из слоёв меза-структуры. Определенное из (1.1) абсолютное значение величины поляризации плёнки SRO составляет  $P=-0.35\%$ , в предположении  $P=100\%$  для поляризации LSMO пленки при низких температурах. Полученная величина оказывается существенно меньше поляризации SRO, наблюдающейся в структурах с прослойкой из  $SrTiO_3$  [63,64]. Неоднородное распределение тока в меза-структуре, вероятно, уменьшает влияние отрицательной магнитной поляризации SRO на зависимость  $R(H)$ . При  $d_{LMO}>10$  нм отрицательная магнитная поляризация SRO на экспериментальной зависимости  $R(H)$  не наблюдается.

В работе [9] теоретически показано, что использование LMO как прослойки в магнитных туннельных структурах существенно увеличивает магнетосопротивление из-за лучшего кристаллографического согласования и отсутствия мертвого (немагнитного) слоя на границе между слоями структуры. Основным предположением в теоретических расчетах является то, что LMO является антиферромагнитным изолятором. Однако в реальных эпитаксиальных пленках LMO появляется ферромагнетизм с температурой Кюри  $\sim 150$  К [4]. В результате все три слоя в структуре LSMO/LMO/SRO оказываются

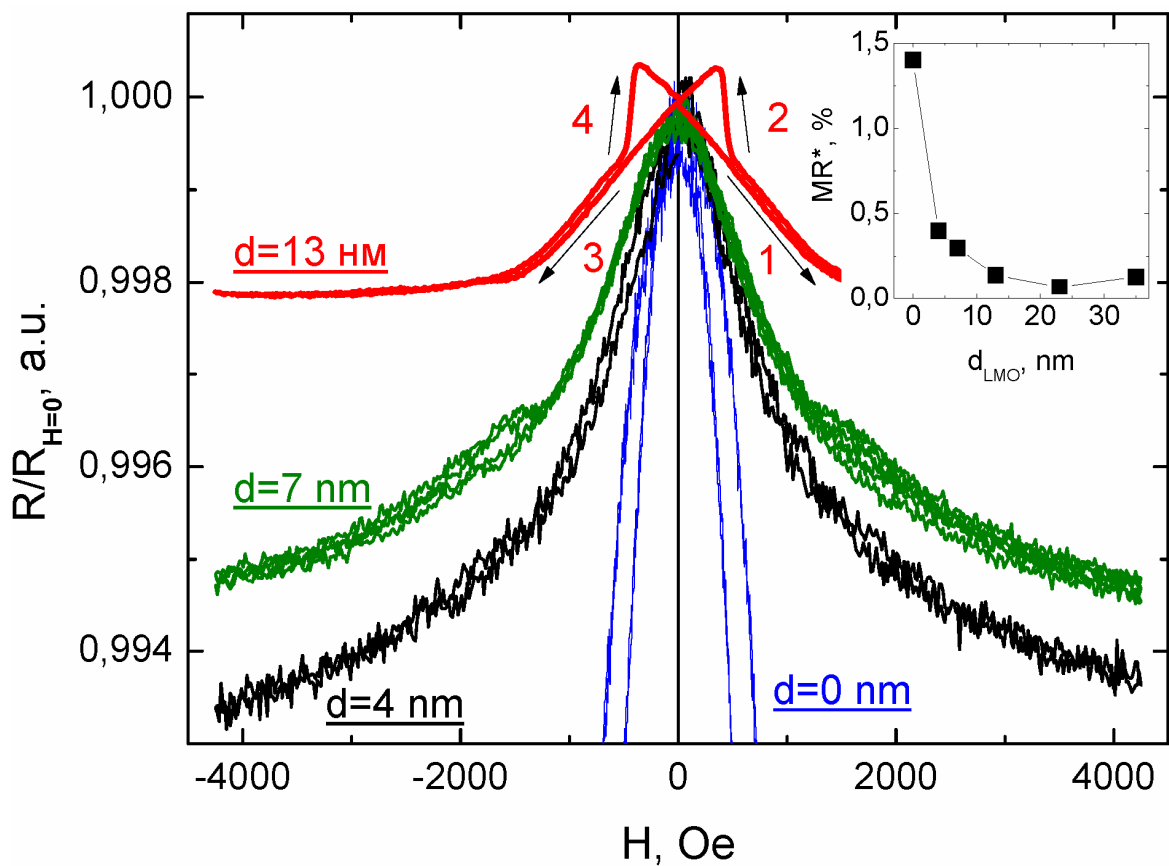


Рисунок 5.9. Магнетосопротивление гетероструктур  $R/R_0$  в зависимости от приложенного магнитного поля.  $d$  – толщина прослойки LMO.  $T = 4.2$ К.

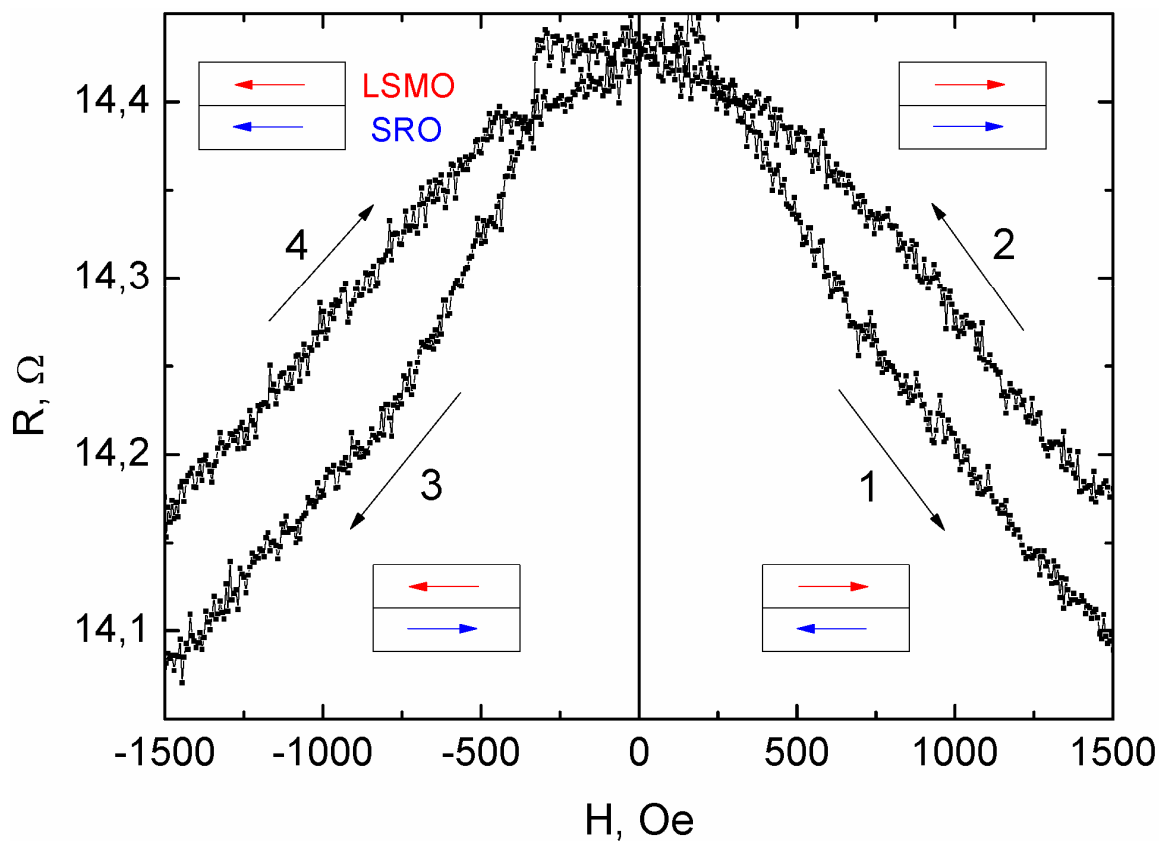


Рисунок 5.10. Магнетосопротивление гетероструктуры без манганитной прослойки,  $d_{LMO} = 0$ ,  $T=4.2$ К. Стрелками обозначена предполагаемая проекция намагниченности слоёв на плоскость подложки.

ферромагнитными. Предположительно именно ферромагнетизм в LMO прослойке в нашем случае уменьшает  $MR^*$  с увеличением  $d_{LMO}$ . При  $d_{LMO}=13$  нм наблюдается гистерезис на зависимости  $R(H)$  при малых магнитных полях.

### 5.5. Краткие выводы

С помощью СКВИД магнитометра и рефлектометрии поляризованных нейтронов были исследованы магнитные свойства гетероструктур  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3/LaMnO_3/SrRuO_3$  (LSMO/LMO/SRO). При толщине прослойки  $LaMnO_3$  6.5 и 13 нм обнаружено резкое увеличение магнитного момента в плоскости подложки при температурах  $T \leq 170K$ , что скорее всего связано с увеличением намагниченности в SRO и LMO слоях. Величина намагниченности ниже 150K в слое LMO достигает  $4\pi M_{LMO} = 4.2 kGc$  ( $2.4 \mu_B/Mn$ ).

При температурах  $T \leq 100K$  измерения восприимчивости с помощью СКВИДа показали уменьшение магнитного момента в плоскости подложки. Это можно связать с обменным взаимодействием, наблюдающимся в структурах SRO/LSMO, и приводящим к антиферромагнитному упорядочению на границе. Магнетосопротивление меза-структуры LSMO/LMO/SRO уменьшается с увеличением толщины прослойки LMO, однако при толщине прослойки  $d_{LMO} = 13$  нм наблюдается гистерезис по магнитному полю в полях порядка сотен Эрстед. В отсутствие LMO прослойки на зависимости  $R(H)$  наблюдается магнетосопротивление, вызванное отрицательной намагниченностью SRO пленки. Полученное значение магнетосопротивления, вероятно, во многом определяется нестехиометрией прослойки LMO по кислороду, в результате чего она становится ферромагнитной и проводящей, и с неоднородным растеканием тока в изготовленных меза-структурах микронных размеров.

## Глава 6. Эффект близости в гибридных гетероструктурах купратный сверхпроводник / ниобий с манганитной прослойкой

В настоящей главе приводятся результаты экспериментальных исследований гибридных сверхпроводниковых меза-структур (ГСМ) с прослойкой из манганита Nb/Au/M/YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub>, (S'/M/S<sub>d</sub>) в которых в качестве S' сверхпроводника с s-симметрией параметра порядка использовалась двухслойная структура Nb/Au, а в качестве S<sub>d</sub> сверхпроводника - эпитаксиальная пленка из YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> (YBCO) с доминирующим параметром порядка, имеющим d-симметрию. Магнитоактивная прослойка (M) изготавливалась из манганитной пленки оптимального допирования La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub> или La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>, либо из недопированной манганитной пленки LaMnO<sub>3</sub>. Методика изготовления гетероструктур описана в главе 2.1.

На рис.6.1 изображены сечение меза-структуры, созданной из гетероструктуры, и схема задания тока и регистрации напряжения, а в таблице 6.1 – основные параметры рассматриваемых структур.

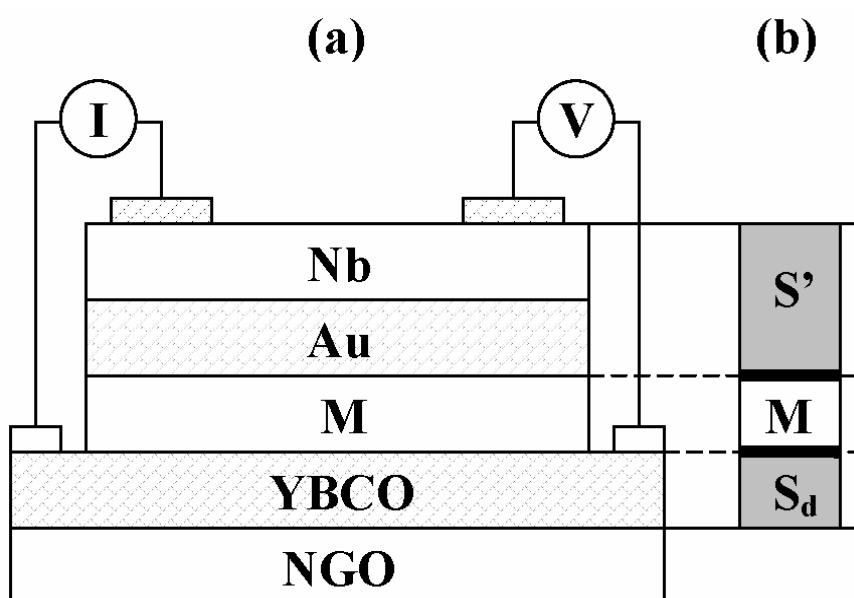


Рисунок 6.1. Поперечное сечение и схема задания тока (I) через меза-структуру (а). Справа (b) показана теоретическая модель меза-структуры с учетом барьеров (показанных жирными линиями), образующихся на границах раздела материалов.

Таблица 6.1. Основные параметры исследованных меза-структур.

Прослойка	R, Ом	dM, нм	A, мкм
LMO	210	5.6	20x20
LCMO	180	10	30x30
LSMO	800	5	10x10

Сопротивление R, толщина прослойки  $d_M$ , A-площадь сформированной меза-структуры

### 6.1. Температурные зависимости сопротивления меза-структур

На рисунке 6.2 представлены температурные зависимости сопротивления гетероструктур, снятые при малых напряжениях. При повышении температуры, для диапазона температур выше 150К, сопротивление увеличивается практически линейно и главным образом определяется температурной зависимостью электрода YBCO, хотя для гетероструктуры с прослойкой из LSMO наблюдается некоторое искажение линейной зависимости, что связано с влиянием LSMO прослойки в районе перехода металл-изолятор в районе комнатных температур. Более явные пики в районе 100-150К для гетероструктур с прослойкой из LMO и LCMO также связаны с переходом металл-изолятор соответствующих прослоек. Типичные зависимости сопротивления от температуры для манганитных плёнок LMO, LSMO и LCMO, из которых определяется температура перехода металл-изолятор, изображены на вставке к рисунку 6.2. На другой вставке к рисунку 6.2 дана зависимость центрального поля ФМП от температуры, из которой по максимуму производной  $dH/dT$  можно определить температуру перехода из парамагнитного в ферромагнитное состояние – температуру Кюри. Как правило, значения температуры Кюри и температуры перехода металл-изолятор в плёнках манганитов различаются в пределах нескольких градусов.  $R(T)$  не всегда имеет явный характерный



максимум сопротивления, по которому однозначно определяется переход металл-изолятор. Косвенно об этом переходе можно судить по значению температуры Кюри.

Падение сопротивления в районе 80К связано с переходом в сверхпроводящее состояние YBCO электрода, а в районе 10К – Nb/Au электрода. Причем для прослойки из LSMO переход электрода Nb/Au в сверхпроводящее состояние не наблюдается из-за высокого сопротивления границы LSMO/YBCO.

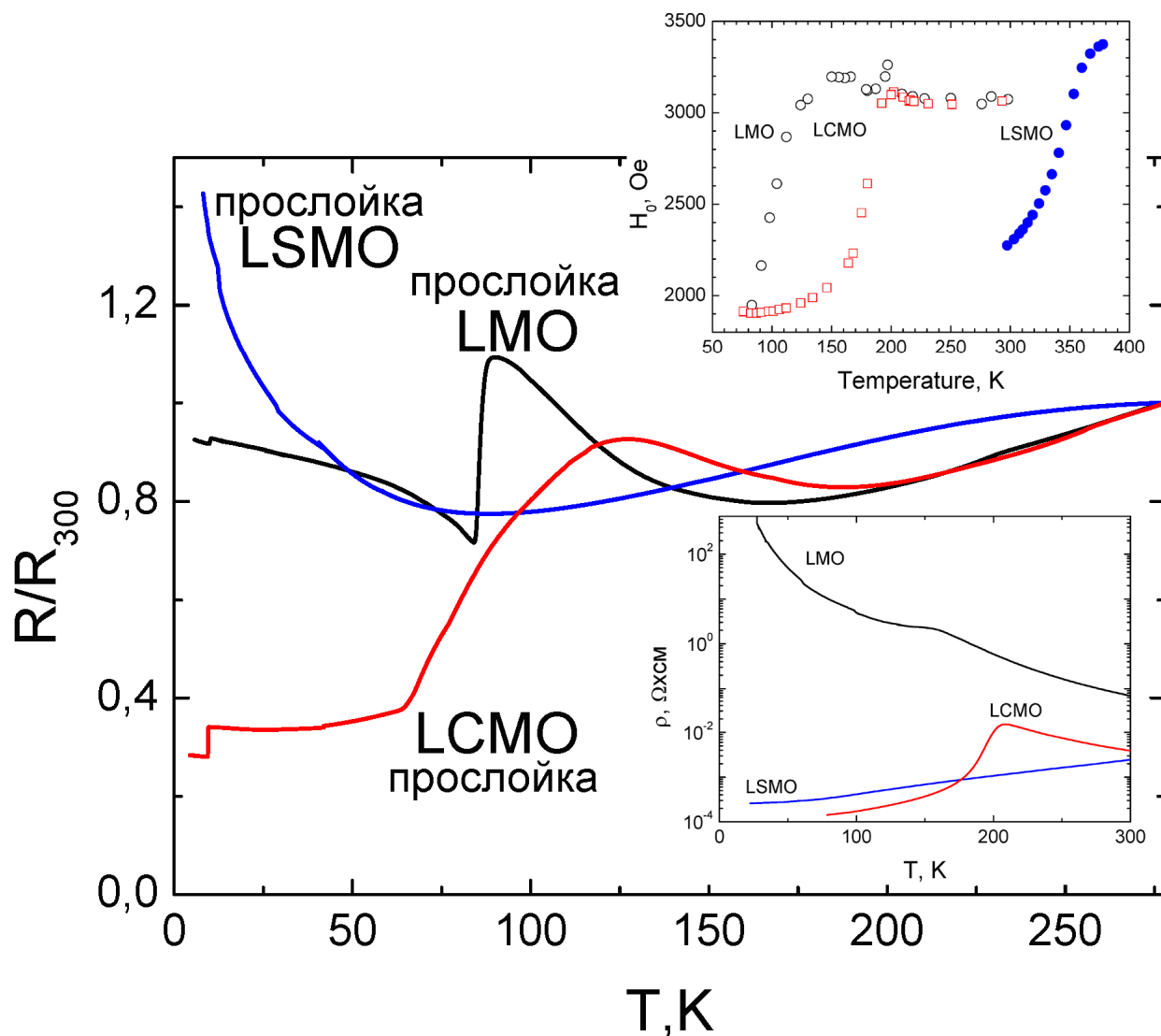


Рисунок 6.2. Температурные зависимости сопротивления гетероструктур для трех типов М-прослоек: LMO, LCMO и LSMO. Локальные максимумы на зависимостях  $R(T)$  соответствуют переходу металл-изолятор соответствующих прослоек. Сопротивления нормированы на значения при  $T=300K$ .  $R(T)$  автономных плёнок манганитов состава LMO, LCMO и LSMO представлены на вставке в правом нижнем углу рисунка. На вставке сверху представлена зависимость центрального поля ФМП от температуры для тех же автономных плёнок манганитов: LMO, LCMO и LSMO.

Удельное сопротивление автономной LСМО пленки, напыленной непосредственно на подложку, при  $T=4.2\text{K}$  составляло значение  $\rho_M=10^{-4}$  Ом·см. (см. нижнюю вставку к рис. 6.2). Вклад манганитной прослойки с таким удельным сопротивлением в характерное сопротивление ГГС очень мало:  $R_M A = \rho_M d_M = 10^{-10}$  Ом·см<sup>2</sup> (при  $d_M = 10$  нм). Однако измеренное сопротивление меза-структуры оказалось значительно выше:  $R_N A \approx 2 \cdot 10^{-4}$  Ом·см<sup>2</sup>. Следовательно, при низких температурах сопротивление гетероструктуры с LСМО прослойкой определяется сопротивлениями барьеров  $I_1$  и  $I_2$  между слоями Au+Nb/M и M/YBCO соответственно, а вкладом сопротивления прослойки можно пренебречь.

## 6.2. Зависимость проводимости меза-структуры с прослойкой из манганита от напряжения

На рис. 6.3 показана трансформация проводимости  $\sigma(V)$  ГГС с прослойкой из LСМО толщиной 10 нм при увеличении температуры выше гелиевой. Видно, что наблюдается уменьшение проводимости при малых напряжениях и перегиб зависимости  $\sigma(V)$  при напряжениях, соответствующих щели ниобия. Сверхпроводящие корреляции проникают из сверхпроводника (Nb/Au) в M-прослойку и модифицируют плотность состояний.

Сверхпроводящий ток в структуре отсутствует вплоть до температуры 0.3 К и толщины  $d_M = 5$  нм, что может быть обусловлено пренебрежимо малым влиянием эффекта близости, связанным с проникновением конденсатной волновой функции из YBCO в M-прослойку. Это обстоятельство может быть обусловлено d-волновой симметрией конденсатной волновой функции в YBCO (точнее пренебрежимо малой величиной ее s-волновой компоненты), проникающей в M-прослойку на глубину свободного пробега, малую по сравнению с ее толщиной [65]. Таким образом, проводимость  $\sigma(V)$  структуры определяется эффектом близости в M-прослойке, связанным с проникновением

конденсатной волновой функции из сверхпроводника (Nb/Au). Появление критического тока при малых значениях толщины прослойки  $d_M < 5$  нм обусловлено короткими в структуре: осцилляционные зависимости критического тока от магнитного поля отсутствуют.

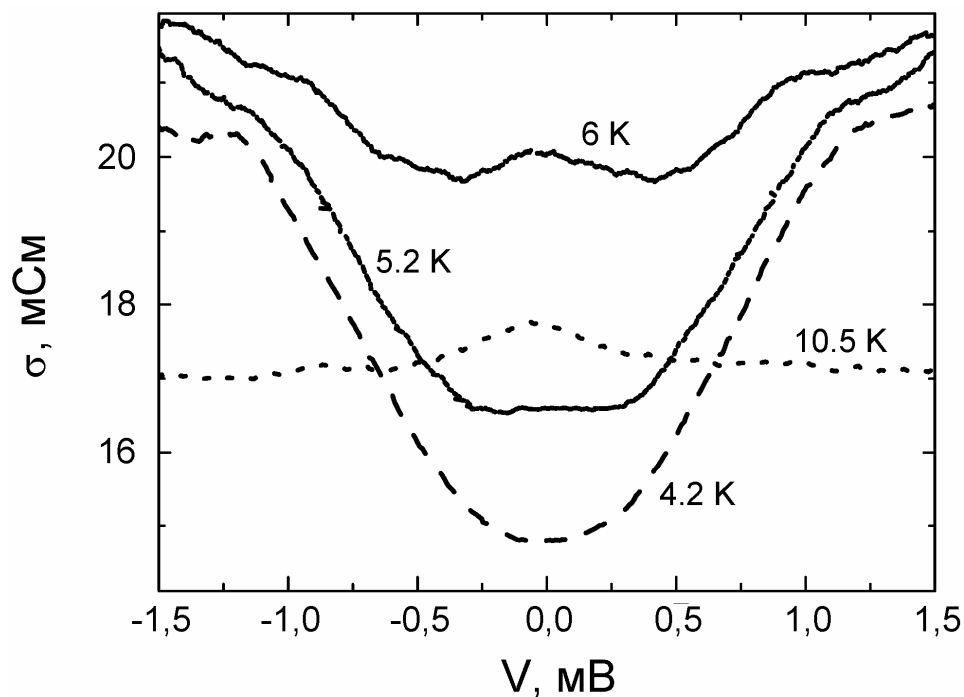


Рисунок 6.3. Семейство зависимостей проводимости от напряжения. Гетероструктура с прослойкой из LCMO  $d_M = 10$  нм,  $L = 30$  мкм в температурном диапазоне  $4,2 < T < 10,5$  К.

При увеличении температуры  $T \geq 6$  К (см. рис.6.3) наблюдается слабый рост  $\sigma(V)$  в области малых напряжений, который может быть связан с эффектом близости.

### 6.3. Сравнение измеренной проводимости гетероструктуры, имеющей манганитную прослойку, с теоретическими расчётами

На рис.6.5 представлена экспериментальная зависимость  $\sigma(V)$ , нормированная на асимптотическое значение проводимости, и результаты расчета проводимости структуры  $S'-I_1-M-I_2-N$  в рамках квазиклассических уравнений сверхпроводимости<sup>8</sup> при нескольких

<sup>8</sup> Расчёт проведён А.В. Зайцевым.

значениях параметра  $\varepsilon_{b2}/\Delta'(0)$ , где  $\Delta'(0)$ -параметр порядка в Nb/Au при  $T=0$ , а  $\varepsilon_{b2}$  – характерная энергия системы. Теоретическая модель подробно изложена в [A4]. Наилучшее соответствие теории и эксперимента реализуется при  $\varepsilon_{b2}/\Delta'(0)=0.01$ . Отметим, что изменение обменной энергии  $H_{ex}$  в пределах  $(1...10)\Delta'(0)$  не изменяет форму кривой при нормированных температурах  $t=T/T_c' \geq 0.4$ .

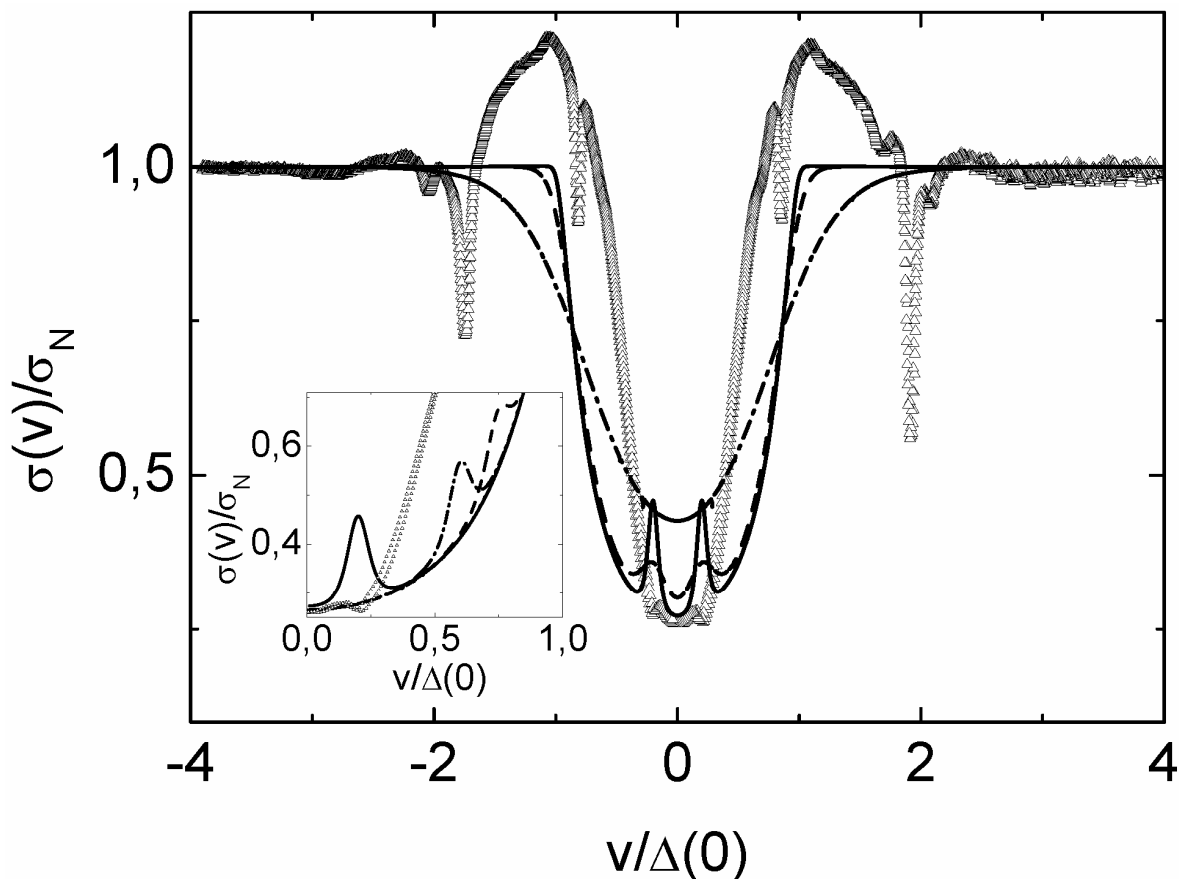


Рисунок 6.5. Теоретическая зависимость проводимости  $S'-I_1-M-I_2-N$  структуры от напряжения для разных температур:  $T=0,3K$  -сплошная линия,  $1K$  -пунктир,  $4.2K$  (точка-тире). Треугольниками показаны экспериментальные данные для ГГС размером  $40 \times 40$   $\mu m^2$  с прослойкой из LCMO толщиной  $d_M=20$  нм. При построении теоретических кривых использовались следующие параметры: сопротивление барьера  $r_{b1}=2.8 \cdot 10^{-3}$ ,  $\gamma/\Delta'(0)=10^{-3}$  ( $\gamma$  характеризует неупругие процессы в  $S'$ ), обменная энергия  $H_{ex}=0.2\Delta'(0)$ . На вставке для  $T=0,3K$  показана трансформация  $\sigma(V)$  для нескольких значений  $H_{ex}$ :  $0.2\Delta'(0)$  - сплошной линией,  $0.6$  – точкой-тире,  $0.75$  – пунктиром, экспериментальная зависимость – треугольники.

Поскольку прозрачность барьера  $D$  на границе раздела определяется ее сопротивлением  $R_b A$  (см, например, [66]), то

$$D \approx \frac{\rho l}{R_b A} \quad (6.1),$$

где  $\rho$  и  $l$  - удельное сопротивление и длина свободного пробега в манганитной пленке соответственно. Значит, прозрачности границ двух барьеров связаны соотношением для полного сопротивления ГГС  $R_N=R_{b1}+R_{b2}$ . При  $\rho(\text{LCMO})=0.1$  мОм·см, длине свободного пробега  $l=10$  нм и  $R_N A \approx 2 \cdot 10^{-4}$  Ом·см<sup>2</sup>  $D \approx 3 \cdot 10^{-7}$  для  $T = 4.2\text{K}$ . В результате для  $\epsilon_{b2}$  получаем значение  $1.4 \cdot 10^{-6}$ , что заметно отличается от значения, полученного наложением теоретической кривой на эксперимент ( $10^{-2}$ , см. рис. 6.5). Однако согласно независимым измерениям [67], характерное сопротивление границы раздела LSMO/Au существенно меньше:  $R_N A = 8 \cdot 10^{-7}$  Ом см<sup>2</sup>. Следовательно, в нашем случае имеет место существенная асимметрия прозрачностей границ раздела. Используя данные [67] для оценки границы LSMO/Au, получаем  $\epsilon_{b2} = 3.6 \cdot 10^{-4}$ , что уже ближе к результату, полученному наложением теории на экспериментальную зависимость (см. рис.6.5).

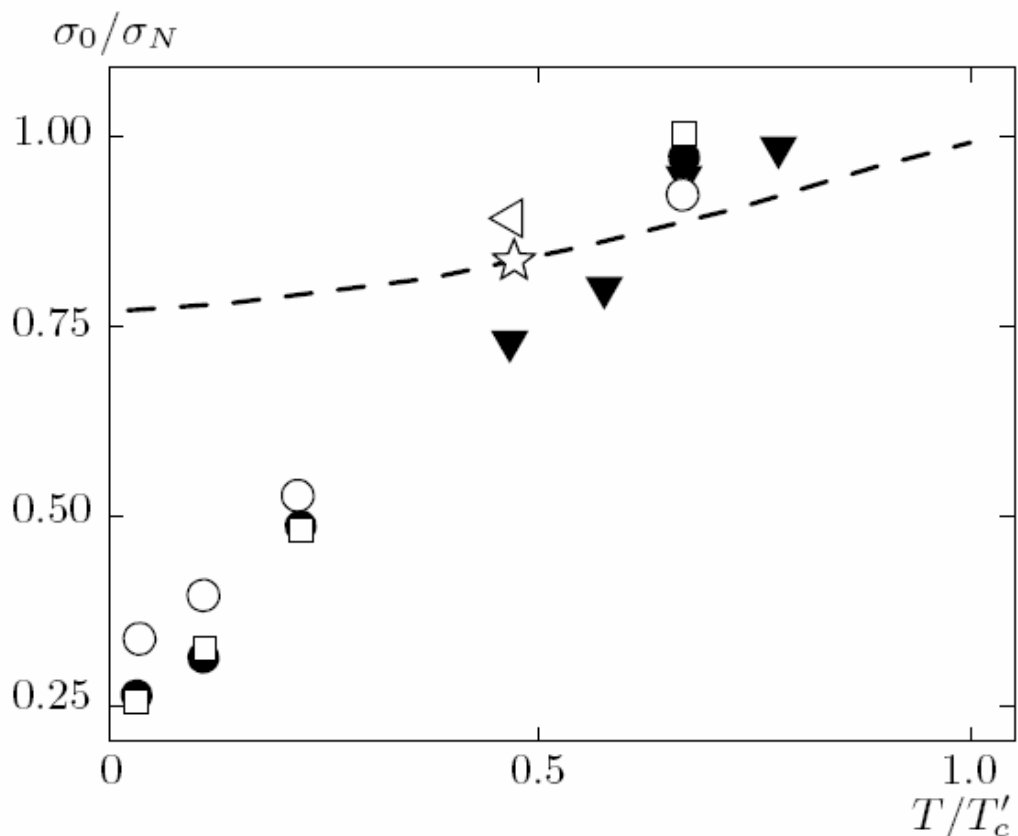


Рисунок 6.6. Экспериментальная зависимость проводимости меза-структуры с LSMO прослойкой (линейные размеры структуры 10, 20, 30, 40 и 50 мкм) при нулевом напряжении в зависимости от температуры  $T/T_c'$ , где  $T_c'$  – температура сверхпроводящего перехода слоя Nb. Штриховой линией дана теоретическая зависимость.

На рисунке 6.6. представлены зависимости проводимости меза-структур, созданных на основе ГГС с LCMO прослойкой, от температуры при нулевом смещении по напряжению.

При высоких температурах,  $t < 0.5$ , температурная зависимость соответствует рассчитанной зависимости при величине обменной энергии  $N_{ex}/\Delta' = 2$ ,  $T_c' = 9\text{K}$ . Здесь  $\Delta'$  – ширина щели Nb, а  $T_c'$  – температура его сверхпроводящего перехода. В этом диапазоне температур влияние обменного поля на величину проводимости в нуле  $\sigma_0$  мало. При низких температурах,  $t < 0.4$ , наблюдается сильное уменьшение  $\sigma_0(T)$ , которое не описывается рассматриваемой теорией. Возможно, это обстоятельство связано с магнито-активной природой барьеров, не учитывавшейся в расчётах.

#### 6.4. Краткие выводы

Сравнение экспериментальных исследований гибридных гетероструктур, созданных на основе купратных и низкотемпературных сверхпроводников, разделенных манганитной прослойкой, и теоретических расчетов, выполненных с использованием квазиклассических уравнений теории сверхпроводимости, показало наличие на зависимости проводимости от напряжения особенностей, обусловленных эффектом близости. В наших экспериментах определяющим является эффект близости, связанный с проникновением конденсатной волновой функции в манганитную прослойку из низкотемпературного сверхпроводящего электрода Au/Nb. Отклонение проводимости гетероструктур от результатов расчета скорее всего обусловлено магнито-активной природой барьеров, возникающих на границах манганитной прослойки со сверхпроводящими электродами.

## Основные результаты работы

1. Создана экспериментальная установка измерения магнетосопротивления тонких плёнок во вставке в транспортный дьюар. В гелиевом дьюаре при температурах 4.2-8К достигаются магнитные поля до 1Тл, а при работе в азотном криостате (температурный диапазон 77-300К) – до 0.5Тл. Разработана методика определения кристаллографических и магнитных параметров многослойных структур с помощью рентгеновского и нейтронного излучений.
2. Исследованы магнитно-транспортные характеристики напряженных эпитаксиальных плёнок  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ . Показано, что слабое рассогласование (порядка 0.3%) кристаллографических параметров орторомбической подложки ( $\text{NdGaO}_3$ ) и плёнки ( $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ), приводит к наблюдаемой сильной одноосной анизотропии магнитных свойств плёнки в плоскости подложки. Температурная зависимость сопротивления эпитаксиальных пленок  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  при низкой температуре хорошо описывается степенной зависимостью  $T^{2.5}$ , которая объясняется в рамках модели двойного обмена.
3. Изменение температуры Кюри напряженных плёнок  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ , определенной по спектрам ферромагнитного резонанса, качественно описывается теорией Миллиса, учитывающей электрон-решеточное взаимодействие в дополнение к электрон-электронному взаимодействию в модели двойного обмена. Теория Миллиса учитывает как объемную, так и двухосную напряженность LSMO пленок.
4. Исследованы наклонные бикристаллические контакты на основе манганитной плёнки  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  с углом разворота частей бикристаллической подложки на угол до 38 градусов. Экспериментально показано, что величина магнетосопротивления увеличивается с ростом угла разворота плоскостей пленки, однако угол (порядка 1 градуса) разворота легких осей двух ферромагнитно упорядоченных спиновых подсистем существенно не изменяется. Наблюдаемое в эксперименте магнетосопротивление определяется спиновым рассеянием за счет сильного электрон-электронного взаимодействия в соседней с бикристаллической границей области при низких температурах, а при высоких – рассеянием на антиферромагнитных магнонах.
5. Исследованы магнитные параметры гетероструктур  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{SrRuO}_3$  (LSMO/LMO/SRO). При температурах ниже 170К обнаружено резкое возрастание намагниченности, вызванное переходом слоёв LMO и SRO в ферромагнитное

- состояние. Магнетосопротивление меза-структуры микронных размеров в плане уменьшается с увеличением толщины прослойки LMO, при толщине прослойки в 13 нм наблюдается гистерезис по магнитному полю в полях порядка сотен Эрстед. В отсутствие LMO прослойки на зависимости  $R(H)$  наблюдается магнетосопротивление, вызванное отрицательной намагниченностью SRO пленки.
6. Показано, что наличие особенностей на зависимости проводимости меза-структур с манганитной прослойкой от напряжения обусловлено эффектом близости на границе ниобий/манганит. Однако в эксперименте сверхпроводящий ток не наблюдается, скорее всего из-за присутствия барьера на границе купратный сверхпроводник/манганит. Отклонение температурной зависимости проводимости меза-структур от результатов расчёта вызвано магнито-активной природой барьеров, возникающих на границе манганитной прослойки и сверхпроводящих электродов.

**Результаты диссертации опубликованы в следующих работах:**

- A1. А.М. Петржик, И.В. Борисенко, К.И. Константибян, Г.А. Овсянников "Оксидные манганитные тонкоплёночные структуры для детектирования электромагнитного излучения терагерцового диапазона длин волн", Нелинейный мир №4, т.6, стр. 280-281 (2008).
- A2. Г.А. Овсянников, А.М. Петржик, И.В. Борисенко, А.А. Климов, Ю.А. Игнатов, В.В. Демидов, С.А. Никитов "Магнито-транспортные характеристики напряженных эпитаксиальных магнитных плёнок  $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$ ", Журнал экспериментальной и теоретической физики, том 134, вып. 6(12), стр. 1-9 (2008).
- A3. Демидов В.В., Борисенко И.В., Климов А.А., Овсянников Г.А., Петржик А.М., Никитов С.А. Магнитная анизотропия напряженных эпитаксиальных манганитных пленок; Журнал экспериментальной и теоретической физики, Том 139, Вып. 5, стр. 943 – 951 (2011).
- A4. Петржик А.М., Овсянников Г.А., Шадрин А.В., Константибян К.И., Зайцев А.В., Демидов В.В., Кислинский Ю.В. Электронный транспорт в гибридных сверхпроводниковых гетероструктурах с манганитной прослойкой; Журнал экспериментальной и теоретической физики, Том 139, Вып. 5, стр. 1-9 (2011).
- A5. А.М. Петржик, В.В. Демидов, Г.А. Овсянников, И.В. Борисенко, А.В. Шадрин, Спин-зависимый электронный транспорт в манганитных бикристаллических контактах, Журнал экспериментальной и теоретической физики, 142, вып. 3 (9), стр. 1-11 (2012).



- A6. А.М. Петржик, Г.А. Овсянников, В.В. Демидов, А.В. Шадрин, И.В. Борисенко, Электронный транспорт в манганитных бикристаллических контактах, Физика твердого тела, том 55, выпуск 4, стр. 697 - 701 (2011).
- A7. А.М. Петржик, Г.А. Овсянников, Магнитные бикристаллические переходы в плёнках  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_3\text{MnO}_3$ , Нелинейный мир, т.12, №2,, стр.26-27 (2014).
- A8. T. Nurgaliev, V.V. Demidov, A.M. Petrzhik, G. A. Ovsyannikov, S. Miteva, B. Blagoev, "Microwave losses in ferromagnetic thin LSMO films", Journal of optoelectronics and advanced materials, Vol. 10, No. 2, p. 273 – 276 (2008).
- A9. V. A. Atsarkin, V. V. Demidov, L. V. Levkin, and A. M. Petrzhik, Effect of resonance microwave irradiation on manganite film conductivity around the ferromagnetic transition, Physical review B 82, 144414, p. 1 - 8 (2010).
- A10. V. V. Demidov, G. A. Ovsyannikov, A. M. Petrzhik, I. V. Borisenko, A. V. Shadrin, and R. Gunnarsson, Magnetic anisotropy in strained manganite films and bicrystal junctions, J. Appl. Phys. 113, 163909, p. 1 –10 (2013).

В заключение мне хотелось бы поблагодарить научного руководителя зав. лаб. 233 д.ф.-м.н. Г.А. Овсянникова за знания и экспериментальный опыт, которые мне удалось получить во время работы в лаборатории под его научным руководством. Также хочется выразить благодарность всему отзывчивому коллективу нашей лаборатории: к.ф.-м.н. И.В. Борисенко и к.ф.-м.н. К.И. Константиану – за мудрые советы при проведении и анализе эксперимента, к.ф.-м.н. Ю.В. Кислинскому – за готовность ответить на любые вопросы по приборной части и к.ф.-м.н. А.В. Шадрину за обучение работе в чистой зоне и всяческие подсказки, связанные с технологией изготовления образцов.

Я благодарен всему коллективу лаборатории 234, в особенности к.ф.-м.н. М.Ю. Торгашину и д.ф.-м.н. В.П. Кошельцу за постоянную готовность помочь советом и делом.

Отдельную благодарность я хотел бы выразить Юрию Хайдукову из Института Макса Планка за обучение работе на установке нейтронной рефлектометрии NREX в Гархинге, Германия, и последующие обсуждения полученных результатов.

Также хочу сказать отдельное спасибо В.В. Демидову за полезные консультации по физике магнитных явлений и критическое отношение к полученным результатам, что помогало делать более взвешенное толкование полученных экспериментальных данных.

## Список цитированной литературы

1. Изюмов Ю.А., Скрябин Ю.Н., УФН, **171**, 121 (2001),
2. Zhi-Hong Wang, G. Cristiani and H.-U. Habermeier, Appl. Phys. Lett **82**, 3731 (2003),
3. P. Dey, T. K. Nath and A. Taraphder, Appl. Phys. Lett **91**, 012511 (2007),
4. И.В. Борисенко, М.А. Карпов, Г.А. Овсянников, Письма в ЖТФ, 2013, том **39**, вып. 23, стр. 1-7,
5. Claude Chappert, Albert Fert & Frédéric Nguyen Van Dau, Nature Materials **6**, 813 - 823 (2007),
6. Я.М. Муковский, Рос. хим. ж., т. XLV, № 5-6 (2001),
7. M. Julliere, Phys. Lett. **54A**, 225 (1975),
8. R. Werner et al., Appl. Phys. Lett. **98**, 162505 (2011),
9. S. Yunoki, E. Dagotto, S. Costamagna and J. A. Riera Phys. Rev B **78**, 024405 (2008),
10. D. Pantel, S. Goetze, D. Hesse & M. Alexe, Nature Materials **11**, 289–293 (2012),
11. 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),
12. J. Klein, C. Hofener, S. Uhlenbruck, L. Alff, B. Buchner, R. Gross. Europhys. Lett. **47**, 371 (1999),
13. R. Gunnarsson, M. Hanson. Phys. Rev. B **73**, 014435 (2006),
14. I.V. Borisenko, I.M. Kotelyanski, A.V. Shadrin, P.V. Komissinski, G.A. Ovsyannikov, IEEE Trans. Appl. Supercond. **15**, 165 (2005),
15. Y.Y. Divin, U. Poppe, C.L. Jia, P.M. Shadrin, K. Urban. Physica C **372–376**, 115 (2002),
16. И.В. Борисенко, Г.А. Овсянников, Физика твёрдого тела, **51**, 292 (2009),
17. A.Buzdin, Rev. Mod., Phys. Rev. Mod.Phys., **77**, 935 (2005),
18. F. S. Bergeret, A. F. Volkov and K. V. Efetov, Rev. Mod.Phys., **77**, 1321 (2005),
19. A.A. Golubov, M.Yu. Kupriyanov, E. Il'ichev, Rev.Mod.Phys., **76**, 411-489, (2004),
20. Л.Н. Булаевский, В.В. Кизий, А.А. Собянин, Письма в ЖЭТФ, **25**, 314 (1977),

21. V.V. Ryazanov, V.A. Oboznov, A.V. Veretennikov, A.Yu. Rusanov, A.A. Golubov, and J. Aarts, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2426-2430 (2001),
22. F.S.Bergeret, A.F.Volkov, and K.B.Efetov, *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 3140 (2001),
23. Yu.S.Barash, I.V.Bobkova, *Phys. Rev.*, B **65**, 144502 (2002),
24. А.В.Зайцев, *Письма в ЖЭТФ*, **88**, 521 (2008),
25. А В. Зайцев, *Письма в ЖЭТФ*, **90**, 475 (2009),
26. А.В. Зайцев, Г.А. Овсянников, К.И. Константибян, Ю.В. Кислинский, А.В. Шадрин, И.В. Борисенко, Ф. В. Комиссинский *ЖЭТФ*, **137**, 380 (2010),
27. L. Gor'kov, V. Kresin, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3657 (2001),
28. M. Varela, A.R. Lupini, S. Pennycook et al., *Solid-State Electronics* **47** 2245 (2003),
29. V. Pena, C. Visani, J. Garcia-Barriocanal et *Phys. Rev B* **43**, 104513 (2006),
30. O. Moran, E. Vasab, F.A. Perez, *Microelectronics Journal*, **39**, 556 (2008),
31. S. Stadler, Y.U. Idzerda, Z. Chen et al., *Appl Phys. Lett.* **75**, 3384 (1999),
32. V. Peña, Z. Sefrioui, D. Arias, et al., *Phys. Rev. B* **69**, 224502 (2004),
33. M. B. Salamon, M. Jaime, *Rev. Mod. Phys.* **77**, 1321 (2005),
34. P. A. Kraus, A. Bhattacharya, and A. M. Goldman, *Phys. Rev. B* **64**, 220505 (2001),
35. Z. Y. Chen, A. Biswas, I. Zutic' et al, *Phys.Rev. B* **64**, 220505 (2001),
36. A.Tiwari, K/P/Rajeev, *Phys. Rev. B* **60**, 10591 (1999),
37. H.C. Montgomery, *Journal of Appl. Phys.* **42**, number 7, 2971 (1971),
38. L.G. Parrat, *Phys. Rev.*, **95**, p.359 (1954),
39. Jean Daillant, Alain Gibaud, *X-Ray and Neutron Reflectivity Principles and Applications*, ISSN 0940-7677, Springer, 1999,
40. A.J. Millis, *Nature*, 392, 147 (1998),
41. P. Dey, T.K. Nath, and A. Tarapher, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 012511 (2007),
42. Ю.А. Бойков, Т.Класон, В.А. Данилов, *ФТТ* **47**, 2189 (2005),
43. M.Ziese, *Rep. Prog. Phys.* 65, **143** (2002),
44. M.J. Calderon and L. Brey, *Phys. Rev. B* **64**, 140403 (2001),

45. J. O'Donnel, M. Onellion, and M. S. Rzchowski. *Phys. Rev. B* **55**, 5873 (1997),
46. J. C. Slonczewski. *Phys. Rev. B* **39**, 6995 (1989),
47. C.H. Shang, J.Nowak, R.Jansen, J.S.Moodera *Phys.Rev.B*58, R2917 (1998),
48. R. Gunnarsson, Z. G. Ivanov, C. Dobourdieu, and H. Russel. *Phys. Rev B* **69**, 054413 (2004),
49. J.-H. Park, E. Vescovo, H.-J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, and T. Venkatesan *Phys. Rev. Lett.* **81**, (1998),
50. V. Garcia, M. Bibes, A. Barthe'le'my, M. Bowen, E. Jacquet, J.-P. Contour, and A. Fert *Phys. Rev. B.* **69**, 052403 (2004),
51. W. Westerburg, F. Martin, S. Freiedrich, M. Maier, and G. Jakob *J. Appl. Phys.* **86**, 2173 (1999),
52. P.A. Lee and T.V. Ramakrishnan, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 287 (1985),
53. М.Е. Гершензон, В.Н. Губанков и М.И. Фалей, *ЖЭТФ* **90**, 2196-2207 (1986),
54. L.I. Glazman and K.A. Matveev, *Sov. Phys. JETP* **67**, 1276 (1988),
55. C.A. Dartora and G. G. Cabrera *J. App Phys* **95**, R11 (2004),
56. F. Guinea, *Phys. Rev. B* **58**, 9212 (1998),
57. Khare, U.P. Moharil, A.K. Gupta, A.K. Raychaudhuri, S.P. Pai and R. Pinto, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 325 (2002),
58. X. Ke et al., *PRL* **110**, 237201 (2013),
59. X. Ke, L.J. Belenky, C.B. Eom, M.S. Rzchowski, *J. Appl. Phys.* **97**, 10K115 (2005),
60. Ф.В.Комиссинский, Г.А. Овсянников, Н.А. Тулина, В.В. Рязанов. *ЖЭТФ*, **116**, 2140 (1999),
61. F. Guinea, *Phys. Rev. B* **58**, 9212 (1998),
62. Yu.G. Naidyuk, O.P. Balkashin, V.V. Fisun, I.K. Yanson, A. Kadigrobov, R.I. Shekhter, M. Jonson, V. Neu, M. Seifert, S. Andersson and V. Korenivski., *New Journal of Physics* **14**, 093021 (2012),
63. D.C. Worledge and T.H. Geballe, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5182 (2000),

64. K. S. Takahashi, A. Sawa, Y. Ishii, H. Akoh, M. Kawasaki, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **67**, 094413 (2003),
65. Satoshi Kashiwaya and Yukio Tanaka, *Rep. Prog. Phys.* **63**, 1641–1724 (2000),
66. P.V. Komissinskiy, G.A. Ovsyannikov, K.Y. Constantinian, Y.V. Kislinski, I.V. Borisenko, I.I. Soloviev, V.K. Kornev, E. Goldobin, and D. Winkler, *Phys. Rev* **B78**, 024501 (2008),
67. L. Mieville et al, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1736 (1998).