

МАГНИТНО-РЕЗОНАНСНАЯ ЭДС В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ МАНГАНИТА

В. А. Ацаркин^{a,}, Б. В. Сорокин^{a,b}*

*^a Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова Российской академии наук
125009, Москва, Россия*

*^b Московский физико-технический институт
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 13 марта 2014 г.

На тонких эпитаксиальных пленках редкоземельных манганитов $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ обнаружен и исследован эффект магнитно-резонансной ЭДС (МРЭДС). Эффект состоит в возникновении постоянного напряжения под действием СВЧ-накачки в магнитных полях, соответствующих условиям ферромагнитного резонанса. Сигнал магнитно-резонансной ЭДС включает симметричную и антисимметричную компоненты и меняет свою полярность при переключении внешнего магнитного поля. Исследована температурная зависимость эффекта, в том числе и в окрестности фазового перехода. Полученные экспериментальные данные, включая форму сигнала и его зависимость от ориентации поля, хорошо согласуются с результатами теоретической модели, основанной на механизме анизотропного магнитосопротивления. Показано, что анизотропия магнитосопротивления в исследованном манганите отрицательна и резко ослабевает с приближением к точке Кюри, практически обращаясь в нуль в парамагнитной фазе.

DOI: 10.7868/S0044451014090247

1. ВВЕДЕНИЕ

Взаимодействие между спиновыми (магнитными) и зарядовыми (транспортными) свойствами и явлениями — одна из центральных тем современных исследований в физике твердого тела. Среди наиболее значительных достижений в этой области можно отметить открытие и многочисленные применения эффектов гигантского и колоссального магнитосопротивления, разработку наноразмерных устройств для магнитного управления током, возникновение и развитие спинтроники. Свое место в этой обширной области занимают и магнитно-резонансные методы. Впервые влияние магнитно-резонансной накачки на электрические свойства проводящих ферромагнетиков было теоретически предсказано и экспериментально обнаружено еще в 60-х гг. прошлого века [1, 2]. В последние годы интенсивность таких исследований резко возросла в связи с прогрессом нанотехнологии и перспективами спинтроники [3–15].

Данная статья посвящена одному из спин-заря-

довых явлений — возникновению постоянной разности потенциалов под действием СВЧ-облучения в условиях ферромагнитного резонанса (ФМР). В дальнейшем будем называть этот эффект магнитно-резонансной электродвижущей силой (МРЭДС); его также называют микроволновым фотоэффектом, спиновым выпрямлением, спиновым динамо и т. п. Физическая природа МРЭДС в проводящих ферромагнетиках подробно обсуждалась уже в первых работах [1, 2], где были выделены два механизма возникновения эффекта: анизотропное магнитосопротивление и аномальный эффект Холла. Впоследствии к ним добавился так называемый обратный спиновый эффект Холла [3], связанный с возникновением спинового тока через границу ферромагнитного и нормального металлов в условиях ФМР («спиновая накачка») [4]. Характерной особенностью всех этих механизмов является смена полярности МРЭДС при переключении направления постоянного магнитного поля. В дальнейшем теоретическое описание этих явлений было модифицировано и приближено к экспериментальным условиям [6, 12], а сам эффект нашел целый ряд применений, от характеристики параметров СВЧ-поля [10]

*E-mail: atsarkin@cplire.ru

до детектирования магнитного резонанса в устройствах спинтроники [15].

В отличие от предыдущих исследований МРЭДС, выполненных на стандартных ферромагнитных металлах, данная работа выполнялась на образцах допированных редкоземельных манганитов, обладающих уникальными магнитно-резистивными свойствами и необычной фазовой диаграммой (см. обзоры [16, 17]). Целью исследования было выяснение физической природы эффекта и, в особенности, проявления и характеристики анизотропного магнитосопротивления манганитовых пленок в температурном диапазоне, включающем магнитный фазовый переход (точку Кюри T_C). Эта задача особенно актуальна в связи с той ролью, которую играет анизотропное магнитосопротивление в физике и приложениях пленочных наноструктур, в том числе с использованием манганитов $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$, для которых T_C лишь немного превышает комнатную температуру [17–19].

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследовались эпитаксиальные пленки состава $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ толщиной от 50 до 140 нм, выращенные методом лазерной абляции на различных монокристаллических подложках [20]. При комнатной температуре пленки находились в ферромагнитной фазе; температура Кюри T_C составляла 345–350 К.

Геометрия эксперимента представлена на рис. 1, где показана также принятая в дальнейшем декартова система координат. Пленка на подложке (размер поверхности 5×5 мм²) размещалась горизонтально в центральной пучности магнитного СВЧ-поля \mathbf{h} прямоугольного объемного резонатора с модой типа TE_{102} (нагруженная добротность резонатора с образцом $Q \approx 400$). Разность потенциалов измерялась вдоль оси z , параллельной широкой стенке резонатора, с помощью платиновых контактов, напыленных на противоположные края пленки. Резонатор помещался между полюсами электромагнита, способного вращаться вокруг вертикальной оси, так что постоянное магнитное поле \mathbf{H} оставалось в плоскости пленки (xz), составляя с осью z угол α . Напряжение U между контактами выводилось тонкими горизонтальными проводами, выходящими из резонатора через малые отверстия в его узких стенках. Номинально в центральной части полости высокочастотное поле \mathbf{h} для данной моды также должно быть параллельно оси z . Однако, как будет видно

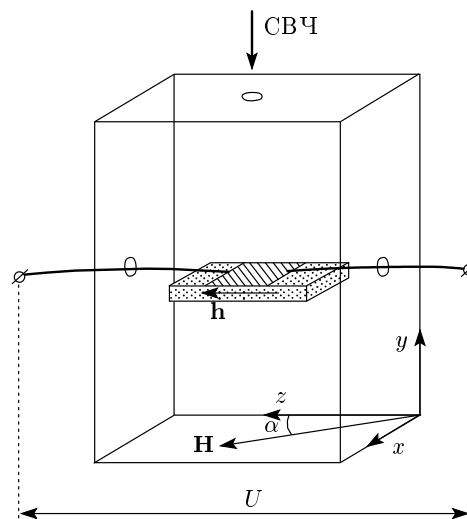


Рис. 1. Схема расположения исследуемого образца в прямоугольном резонаторе и использованная система координат. Векторы \mathbf{H} и \mathbf{h} указывают направления постоянного и высокочастотного магнитных полей

ниже, наличие ферромагнитной пленки с присоединенными к ней контактными проводами вносит в эту геометрию некоторые искажения. Электромагнит содержал ключ для изменения полярности, что использовалось для записи сигнала при противоположных направлениях постоянного магнитного поля.

Толщина пленок была много меньше толщины скин-слоя на частоте резонансной накачки $f = \omega/2\pi \approx 9$ ГГц, что гарантировало однородность поля \mathbf{h} в объеме образца. СВЧ-накачка (до 400 мВт) обеспечивалась диодами Ганна или магнетроном. Поступающая в резонатор мощность модулировалась меандром с частотой модуляции $f_m = 100$ кГц и глубиной около 100%. Напряжение U с потенциальных контактов пленки подавалось на вход синхронного усилителя SR844, который выделял переменную составляющую напряжения на частоте f_m . После синхронного детектирования относительно опорного напряжения той же частоты сигнал накапливался при периодическом прохождении магнитного поля H через область ФМР (период 16 с, число накоплений от 10 до 1000).

Наряду с основными измерениями в тех же условиях регистрировались стандартные спектры ФМР исследуемых образцов. Положение центра (H_0) и полуширина (ΔH) линии ФМР сопоставлялись с сигналами МРЭДС и использовались при интерпретации результатов. В частности, равновесная намагни-

Таблица. Некоторые параметры исследованных образцов при $T = 295$ К

№ образца	Подложка*	Толщина пленки, нм	R , Ом	M_0 , Э	ΔH , Э
1	NGO	80	70	303	10
2	LSAT	140	101	319	55

*NGO = NdGaO₃; LSAT = (LaAlO₃)_{0.3} + (Sr₂AlTaO₆)_{0.7}.

ченность M_0 при каждой заданной температуре T вычислялась по сдвигу резонансной линии, обусловленному размагничивающим полем пленки, в соответствии с известной формулой [21]

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_0(H_0 + 4\pi M_0), \quad (1)$$

где γ — гиромагнитное отношение.

Отметим, что применение формулы (1) предполагает коллинеарность векторов \mathbf{H} и \mathbf{M}_0 , лежащих в плоскости пленки. Это означает пренебрежение полями осевой магнитной анизотропии ($H_u \approx 100$ – 200 Э), возникающей при выращивании пленок [20, 22], а также еще более слабыми полями кристаллической (кубической) анизотропии по сравнению с полем размагничивания $4\pi M_0$. Использование более точной формулы [22], учитывающей указанные малые поправки, не приводит к существенным изменениям результата.

Для изменения температуры образца использовался проволочный электронагреватель, намотанный на СВЧ-резонатор. Датчиком температуры служила сама исследуемая пленка, электрическое сопротивление которой было предварительно откалибровано с точностью ± 1 К в температурном диапазоне 295–365 К. Типичные зависимости $R(T)$ и $M_0(T)$ для подобных пленок приведены в работах [11, 20].

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Основная серия измерений проводилась на двух образцах, обладающих при комнатной температуре относительно узкими линиями ФМР. Это свидетельствовало о хорошем качестве пленок и обеспечивало наилучшее отношение сигнала МРЭДС к шуму. Некоторые параметры исследованных пленок приведены в таблице. Результаты, полученные на обоих образцах, качественно не различались, но на образце № 1, обладавшем более узкой линией, величина эффекта была значительно выше.

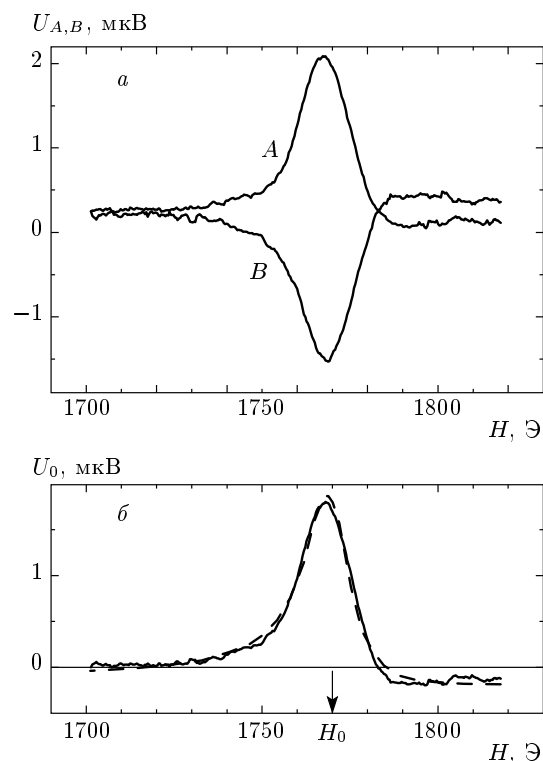


Рис. 2. *a* — Сигналы МРЭДС (*A* и *B*), записанные при противоположных направлениях постоянного магнитного поля; *b* — их полуразность (штриховая линия — аппроксимация с помощью формулы (4)). Стрелкой указано положение линии ФМР. Образец № 1, $T = 309$ К, $P = 400$ мВт, $\alpha = 45^\circ$

На рис. 2*a* изображены типичные сигналы МРЭДС, полученные при прохождении магнитного поля через резонанс. Сигналы, записанные при противоположных направлениях постоянного магнитного поля, обозначены здесь как *A* и *B*. Видно, что при переключении полярности поля сигнал меняет знак, как и ожидается для эффекта МРЭДС. Более детальный анализ показывает, однако, что форма сигнала при его инверсии несколько меняется. Это свидетельствует о примеси сигнала, не зависящего от направления \mathbf{H} . Причиной его возникновения может быть, в частности, некоторая нелинейность измерительных контактов, приводящая к тривиальному выпрямлению СВЧ и, как следствие, к обычному детектированию линии магнитного резонанса. Очевидно, что этот «паразитный» вклад не может меняться при переключении полярности постоянного магнитного поля, поэтому его легко исключить, используя полуразность сигналов *A* и *B*, $U_0(H) = (A - B)/2$, см. рис. 2*b*. Этот «очищенный» сигнал и использовался нами для дальнейшего анализа.

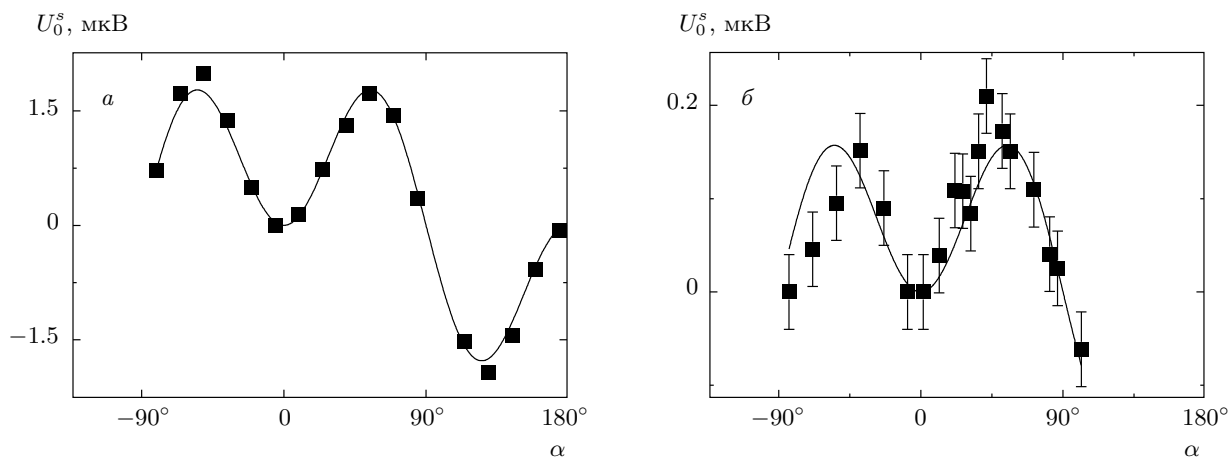


Рис. 3. Зависимость амплитуды симметричной части сигналов МРЭДС в образцах № 1 (а) и № 2 (б) от угла между постоянным магнитным полем и направлением измерения разности потенциалов при $T = 310$ К, $P = 400$ мВт. Кривые — зависимость типа $\sin \alpha \sin(2\alpha)$

Как видно из рис. 2, сигнал МРЭДС асимметричен и напоминает суперпозицию магнитно-резонансных линий поглощения и дисперсии. Разделение $U_0(H)$ на симметричную и антисимметричную части, $U_0^s(H)$ и $U_0^{as}(H)$, проводилось с помощью формул, основанных на лоренцевой аппроксимации формы линии (см. ниже разд. 4). Как правило, компонента $U_0^s(H)$ была преобладающей.

Исследование зависимости сигнала $U_0(H)$ от мощности P СВЧ-накачки показало, что его форма остается неизменной, а амплитуда U_0 пропорциональна мощности облучения.

Угловые зависимости амплитуды U_0^s для двух образцов представлены на рис. 3. Видно, что амплитуда сигнала проходит через максимумы при $\alpha \approx \pm 55^\circ$ и обращается в нуль при $\alpha = 0$ и $\alpha = 90^\circ$. Угловая зависимость хорошо аппроксимируется функцией, пропорциональной $\sin \alpha \sin(2\alpha)$ (кривые на рис. 3).

Температурная зависимость амплитуды U_0^s представлена на рис. 4. Как видно из графика, при приближении к критической температуре ($T_C = 347$ К) сигнал МРЭДС резко уменьшается и практически исчезает в парамагнитной фазе. В следующем разделе будет показано, как эти данные могут быть пересчитаны в температурную зависимость анизотропной части магнитосопротивления (см. рис. 4).

Отметим, что анизотропная часть магнитосопротивления образцов (R_a), определяемая как разность сопротивлений, измеренных при параллельной и перпендикулярной ориентациях внешнего магнитного поля \mathbf{H} по отношению к измерительному току, непосредственно оценивалась при комнатной температуре. Для обоих образцов величина R_a оказалась

отрицательной, причем по модулю отношение R_a/R не превышало десятых долей процента. В связи с большой погрешностью подобные измерения при повышенных температурах не проводились.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Рассмотрим механизм возникновения МРЭДС за счет анизотропного магнитосопротивления, приняв за основу достаточно простой подход, предложенный в работе [6]. Напомним, что явление анизотропного магнитосопротивления выражается в зависимости электрического сопротивления R материала от угла θ между вектором намагниченности \mathbf{M} и направлением тока \mathbf{I} согласно формуле [1, 2]

$$R = R_0 + R_a \cos^2 \theta, \tag{2}$$

где R_0 — изотропная часть сопротивления. В условиях эксперимента, включающего резонансное облучение с частотой ω , разность потенциалов на измеряемом участке образца равна

$$U(t) = I(t)R(t), \tag{3}$$

где $I(t) = I_1 \sin \omega t$ — СВЧ-ток в образце, а $R(t) = R_0 + R_1 \sin(\omega t + \varphi)$ — сопротивление, состоящее из постоянного и осциллирующего слагаемых. Последнее обусловлено анизотропным членом в формуле (2), поскольку в условиях ФМР угол θ осциллирует из-за прецессии вектора \mathbf{M} вокруг направления магнитного поля. Из формулы (3) следует, что $U(t)$ содержит постоянную составляющую $U_{dc} = \langle U(t) \rangle$, где угловые скобки означают усреднение по времени.

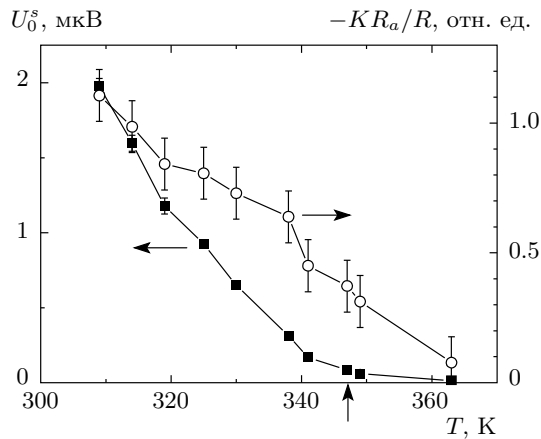


Рис. 4. Температурные зависимости амплитуды симметричной части сигнала МРЭДС (■) и относительной величины анизотропного магнитосопротивления (○; K — произвольный положительный коэффициент). Образец № 1, $P = 400$ мВт, $\alpha = 45^\circ$. Стрелкой показана температура Кюри

В работах различных авторов [1, 2, 6, 12] был выполнен подробный расчет величины и формы сигналов МРЭДС с учетом механизмов анизотропного магнитосопротивления, аномального эффекта Холла и спиновой накачки для различных вариантов геометрии эксперимента. Сравнивая их теоретические формулы с экспериментальными данными, приведенными на рис. 3, можно убедиться, что единственный вариант, обеспечивающий наблюдаемую угловую зависимость вида $\sin \alpha \sin(2\alpha)$, обусловлен механизмом анизотропного магнитосопротивления с направлением магнитного СВЧ-поля вдоль оси z . Соответствующую формулу для постоянного напряжения, возникающего вдоль той же оси в условиях ФМР в тонкой пленке [6], можно представить в виде

$$U_{dc}(H) = \frac{R_a I_1 (H_0 + M_0)}{2(2H_0 + M_0)} \sin \alpha \sin(2\alpha) \times g(H) \left(-h_z^i + h_z^r \frac{H - H_0}{\Delta H} \right), \quad (4)$$

где h_z^r и h_z^i — амплитуды действительной (синфазной) и мнимой (квадратурной по отношению к току) частей z -проекции магнитного СВЧ-поля и

$$g(H) = \frac{\Delta H}{\Delta H^2 + (H - H_0)^2}$$

— лоренцев форм-фактор линии ФМР-поглощения.

Подчеркнем, что учет других компонент СВЧ-поля приводит к существенно иной угловой зависимости эффекта. Так, для проекции h_x множитель $\sin \alpha$ в правой части выражения (4)

заменяется на $\cos \alpha$, что решительно расходится с результатами, приведенными на рис. 3. Вместе с тем существование z -компоненты СВЧ-тока не согласуется со структурой моды TE_{102} , если не учитывать искажений, вносимых исследуемым образцом и соединительными проводами. Мы предполагаем, что основную роль в формировании z -компоненты СВЧ-тока в наших образцах играют горизонтальные отрезки тонкого медного провода, выводящего постоянное напряжение U от потенциальных контактов (см. рис. 1). При этом СВЧ-токи наводятся в проводах за счет возмущений в структуре резонансной моды, а цепь замыкается через емкости, образующиеся при проходе проводов через малые отверстия в стенках резонатора.

Продолжим сопоставление формулы (4) с экспериментальными данными. Прежде всего отметим, что произведения $I_1 h_z^i$, $I_1 h_z^r$ в правой части пропорциональны мощности СВЧ-накачки. Такая зависимость U_0 от мощности подтвердилась в эксперименте. Далее, формула (4) содержит симметричный и антисимметричный вклады, причем их относительный вес определяется сдвигом фазы поля $h(t)$ относительно СВЧ-тока. Аппроксимация формы сигнала $U_0(H)$ с помощью выражения (4), показанная на рис. 2б, соответствует отношению $h_z^i/h_z^r = 3.0$ (фазовый сдвиг 72°); как видно из рисунка, она хорошо согласуется с экспериментом. Отметим, что относительный вклад антисимметричной компоненты в наших экспериментах не был строго постоянным, несколько варьируясь в зависимости от угла α и температуры. Не исключено, что это связано с проявлениями других компонент СВЧ-поля, однако малость эффекта не позволяет сделать окончательный вывод.

Специфическая угловая зависимость $\sin \alpha \times \sin(2\alpha)$ является убедительным свидетельством в пользу механизма анизотропного магнитосопротивления как главной причины возникновения МРЭДС в наших образцах. Отсутствие вклада аномального эффекта Холла, для которого характерны угловая зависимость иного вида и преобладание антисимметричной составляющей резонансного сигнала [1, 2], связано, очевидно, с подавлением y -компоненты вектора \mathbf{M} из-за сильного размагничивающего поля тонкой пленки [12]. Что же касается эффекта спиновой накачки [3, 4, 12], то для его проявлений необходима двуслойная структура ферромагнетик/нормальный металл. В принципе, эту роль могли бы играть платиновые контакты, напыленные на поверхность манганитовой пленки, однако их площадь мала, а толщина (порядка

100 нм) значительно превышает оптимальные значения [12]. Тем не менее этот вопрос заслуживает дальнейшего изучения.

Перейдем теперь к обсуждению температурной зависимости МРЭДС. Для этого сопоставим экспериментальные данные по температурной зависимости U_0^s (см. рис. 4) с формулой (4). Поскольку входящие в (4) параметры M_0 , H_0 и ΔH известны из эксперимента, появляется возможность рассчитать температурную зависимость произведения $R_a I_1$. К сожалению, определить таким путем абсолютные значения R_a не удастся, поскольку остается неизвестной амплитуда высокочастотного тока I_1 . Можно, однако, предположить, что она меняется с температурой обратно пропорционально полному сопротивлению R пленки, так что произведение $R_a I_1$ пропорционально относительной величине анизотропного магнитосопротивления R_a/R . Температурная зависимость этой величины, рассчитанная с точностью до постоянного множителя $K > 0$ с помощью формулы (4), показана на том же рис. 4. Учитывая приведенную в предыдущем разделе экспериментальную оценку R_a при комнатной температуре, можно заключить, что анизотропия магнитосопротивления в ферромагнитной фазе манганита отрицательна и не превышает десятых долей процента; она убывает с приближением к точке Кюри и практически исчезает при переходе вещества в парамагнитное состояние.

Таким образом, на тонких эпитаксиальных пленках редкоземельных манганитов обнаружено и исследовано возникновение постоянной разности потенциалов под действием СВЧ-накачки в условиях ферромагнитного резонанса — эффект МРЭДС. Установлено согласие экспериментальных данных с теоретической моделью, основанной на зависимости электрического сопротивления образца от проекции намагниченности на направление электрического тока (анизотропное магнитосопротивление). Форма сигнала МРЭДС и зависимость его амплитуды от ориентации внешнего магнитного поля согласуются с теорией. Впервые была исследована температурная зависимость эффекта. Полученные данные продемонстрировали резкое уменьшение коэффициента анизотропного магнитного сопротивления в окрестности фазового перехода.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 11-02-00349, 14-02-00165). Авторы благодарны В. В. Демидову за помощь и полезные обсуждения, Г. А. Овсянникову и А. М. Петржику за предоставление образцов для исследования.

ЛИТЕРАТУРА

1. H. J. Juretschke, J. Appl. Phys. **31**, 1401 (1960).
2. W. G. Egan and H. J. Juretschke, J. Appl. Phys. **34**, 1477 (1963).
3. E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima et al., Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).
4. A. Brataas, Y. Tserkovnyak, G. E. W. Bauer et al., Phys. Rev. B **66**, 060404 (2002).
5. M. V. Costache, M. Sladkov, C. H. van der Wal et al., Appl. Phys. Lett. **89**, 192506 (2006).
6. N. Mecking, Y. S. Gui, and C.-M. Hu, Phys. Rev. B **76**, 224430 (2007).
7. Y. S. Gui, N. Mecking, X. Zhou et al., Phys. Rev. Lett. **98**, 107602 (2007).
8. S. T. B. Goennenwein, S. W. Schink, A. Brandlmaier et al., Appl. Phys. Lett. **90**, 162507 (2007).
9. X. Hui, A. Wirthmann, Y. S. Gui et al., Appl. Phys. Lett. **93**, 232502 (2008).
10. L. H. Bai, Y. S. Gui, A. Wirthmann et al., Appl. Phys. Lett. **92**, 032504 (2008).
11. V. A. Atsarkin, V. V. Demidov, L. V. Levkin et al., Phys. Rev. B **82**, 144414 (2010).
12. A. Azevedo, L. H. Vilela-Leão, R. L. Rodríguez-Suárez et al., Phys. Rev. B **83**, 144402 (2011).
13. M. Harder, Z. X. Cao, Y. S. Gui et al., Phys. Rev. B **84**, 054423 (2011).
14. В. А. Ацаркин, В. В. Демидов, ЖЭТФ **143**, 109 (2013).
15. X. Cheng, J. A. Katine, G. E. Rowlands et al., Appl. Phys. Lett. **103**, 082402 (2013).
16. M. B. Salamon and M. Jaime, Rev. Mod. Phys. **73**, 583 (2001).
17. W. Prellier, Ph. Lecoeur, and B. Mercey, J. Phys.: Condens. Matter **13**, R915 (2001).
18. А.-М. Нажери-Госнет and J.-П. Ренард, J. Phys. D **36**, R127 (2003).
19. А. М. Петржик, В. В. Демидов, Г. А. Овсянников и др., ЖЭТФ **142**, 994 (2012).
20. Г. А. Овсянников, А. М. Петржик, И. В. Борисенко и др., ЖЭТФ **135**, 56 (2009).
21. А. Г. Гуревич, Г. А. Мелков, *Магнитные колебания и волны*, Наука, Москва (1994), гл. 1.
22. В. В. Демидов, И. В. Борисенко, А. А. Климов и др., ЖЭТФ **139**, 943 (2011).