

Спектроскопия бозонных возбуждений в гетероструктурах на основе манганитов

М.А. Белоголовский, Ю.Ф. Ревенко, А.Ю. Герасименко, Ю.В. Медведев,
О.И. Черняк, В.М. Свистунов

*Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАНУ,
Р. Люксембург, 72, г. Донецк, 83114, Украина
E-mail: vlamis@hsts.fti.ac.donetsk.ua*

Дж. Плитник

Frostburg State University, Frostburg, MD 21532, USA

Статья поступила в редакцию 8 января 2003 г.

Исследован туннельный токоперенос в слоистых структурах на основе манганита лантана. Восстановлена спектральная функция электрон-бозонного взаимодействия в широком диапазоне энергий. Обнаружены высокоэнергетические возбуждения, локализованные в барьерной и прибарьерной областях. Неупругое рассеяние носителей заряда на этих состояниях может приводить к подавлению магнитосопротивления туннельных переходов с ростом приложенных напряжений.

Досліджено тунельне струмоперенесення у шаруватих структурах на основі манганіту лантану. Відновлено спектральну функцію електрон-бозонної взаємодії у широкому діапазоні енергій. Виявлено високоенергетичні збудження, що локалізуються у бар'єрній та прибар'єрній областях. Непружне розсіювання носіїв заряду на цих станах може приводити до подавлення магнітоопору тунельних переходів із ростом прикладених напруг.

PACS: 75.70.Cn, **73.40.-c**, 72.10.Fk

Обнаружение гигантского магнитосопротивления в ферромагнитных гетероструктурах стимулировало детальное исследование физики явления спин-зависимого туннелирования электронов в таких системах [1]. Одним из наиболее интересных эффектов, как с фундаментальной, так и прикладной точки зрения, является зависимость магнитосопротивления от приложенного к переходу напряжения. Установлено, что магниторезистивный эффект монотонно уменьшается с ростом напряжения, при этом его величина существенно зависит от структуры барьерного слоя (см. данные работ [2,3]). Попытки объяснить указанное явление искажением барьерного потенциала в области туннельного перехода приводят к значениям магнитосопротивления намного меньшим наблюдаемых [4]. Альтернативное объяснение может заключаться в том, что рассеяние туннелирующих электронов на магнитных состояниях в барьере преворачивает электронный

спин и тем самым подавляет эффект магнитосопротивления [4,5]. Обратим внимание в этой связи на спектры неупругого рассеяния туннелирующих электронов в контактах $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ [6]. Они отчетливо демонстрируют острую особенность при ± 100 мВ, интенсивность которой резко возрастает по мере понижения температуры от комнатной до 1 К. Однако наблюдение данной аномалии еще не может служить доказательством того, что в процессах неупругого туннелирования часть энергии электрона передается возбуждению именно в барьерном слое. Для обоснования предположения о связи зависимости магнитосопротивления от напряжения с интенсивностью неупругих процессов в околосбарьерной области и внутри него необходимо учесть два обстоятельства: а) в спектре исследуемых гетероструктур с большим магнитосопротивлением действительно присутствуют возбуждения с высокими энергиями (~ 100 мэВ и выше); б) эти воз-

буждения локализованы внутри барьера и/или приборьерной области. Заметим, что, согласно работе [7], кроме процессов с переворотом спина электрона на магнитных примесях внутри перехода заметную роль в подавлении эффекта магнитосопротивления при увеличении напряжения может играть и рассеяние на фононах.

В настоящей работе исследованы туннельные контакты на основе манганита лантана. Как показано нами ранее [8], проводимость таких структур обладает высокой чувствительностью к магнитному полю даже тогда, когда только один из электродов изготовлен из легированного манганита лантана. Наблюдаемый эффект был объяснен реализацией магнитно-двухфазного состояния в приконтактной области и туннелированием электронов через спин-поляризованные локализованные состояния в туннельном барьере. При этом магнитосопротивление исследуемых в [8] контактов, аналогично традиционным структурам с двумя ферромагнитными электродами, понижалось с ростом напряжения смещения на контакте. Цель данной работы — измерение и анализ спектров элементарных возбуждений несимметричной структуры $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3\text{-Ag}$ в широком диапазоне энергий, значительно превышающем 100 мэВ, с помощью разработанного нами подхода к исследованию туннельной спектроскопии нормальных контактов типа металл — изолятор — металл [9], который был успешно применен для объяснения результатов, полученных для нормального свинца, висмута [10] и магнитных металлов — гадолиния и хрома [11,12]. Его суть состоит в изучении тонкой структуры четного $\sigma_+(V) = [dI(+V)/dV + dI(-V)/dV]/2$ и нечетного (по напряжению) $\sigma_-(V) = [dI(+V)/dV - dI(-V)/dV]/2$ вкладов в дифференциальную проводимость контакта. Как показано в [9], величина $\sigma_-(V)$ пропорциональна вещественной части собственно-энергетической добавки $\Sigma(\omega)$ к электронной энергии в металлических обкладках и позволяет восстановить форму спектральной функции электрон-бозонного взаимодействия $g(\omega)$ нормального металла:

$$g(\omega) = \frac{2\omega}{Ce\sigma(0)\pi^2} \int_0^\infty \frac{d\sigma_-(V)/dV}{V^2 - (\omega/e)^2} dV. \quad (1)$$

Заметим, что функция электрон-фононного взаимодействия $g(\omega)$ для манганита $\text{La}_{0,75}\text{Ca}_{0,25}\text{MnO}_3$ с очень близким химическим составом восстановлена в работе [13] с помощью метода микроконтактной спектроскопии Янсона [14]. Однако в этом подходе барьер практически отсутствует, поэтому данная методика позволяет получать информацию только об объемных свойствах материала. Действительно,

восстановленная в [13] $g(\omega)$ демонстрирует особенности, местоположения которых по энергии хорошо согласуются с данными, полученными из других объемных экспериментов. Нас же интересует приборьерная область, по этой причине нами использован метод, основанный на исследовании туннельных структур.

Манганиты $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3$ получены методом стандартного твердофазного синтеза из исходных оксидов La_2O_3 , CaO и MnO при температуре $T_s = 1200\text{--}1250$ °С в атмосфере воздуха с повторным измельчением, прессованием и отжигом. Время синтеза и спекания составляло 12 часов. Полоски размерами $8 \times 1,5 \times 0,4$ мм, использованные в качестве исследуемого электрода туннельного контакта, приготавливали прессованием полученного измельченного порошка манганита на наковальнях между направляющими из медных или алюминиевых проволок с последующим спеканием в течение 12 часов при температуре $1200\text{--}1250$ °С. Насыщение кислородом происходило при естественном охлаждении в лабораторной печи до комнатной температуры. Как известно, на поверхности приготовленных таким образом манганитов возникает естественный слой с более низким содержанием кислорода, служащий в данном случае потенциальным барьером для туннелирующих электронов. Электрические контакты формировали путем вжигания серебряной пасты при температуре ~ 450 °С. В качестве инжектора использовали серебро в виде заостренной проволоки, прижим которой регулировался юстировочным механизмом, или пленки, напыленной на исследуемую керамику. Сопротивление полученных туннельных контактов в нуле напряжения смещения при температуре 77 К колебалось от десятков до сотен Ом. Восстановление спектральной функции и последующий анализ проведены для контактов с нулевым сопротивлением, не превышающим 100 Ом, в которых, по нашему мнению, более вероятна реализация ферромагнитного металлического состояния для исследуемого манганита.

Производные вольт-амперных характеристик туннельных контактов измерены с помощью стандартной модуляционной методики в режиме заданного напряжения. Постоянная времени выходной цепи составляла 100 мс, основная фильтрация сигнала осуществлялась численно с использованием гауссиана в качестве весовой функции, что позволило минимизировать динамическую погрешность. Вторая производная $d^2I(V)/dV^2$, используемая для выделения спектроскопической информации, получена численным дифференцированием экспериментально измеренной и численно сглаженной дифференциальной проводимости $dI(V)/dV$.

На рис. 1, *a* приведена производная от нечетной части дифференциальной проводимости туннельного контакта при температуре 77 К, а на рис. 1, *b* (сплошная линия) — функция электрон-бозонного взаимодействия $\tilde{g}(\omega)$, восстановленная из нее по методу, изложенному в [9]. Обращает на себя внимание существование (в отличие от данных работы [13]) отрицательных значений функции $\tilde{g}(\omega)$ при энергии выше 100 мэВ. Естественно, что сама функция всегда является положительной. Наблюдаемое противоречие снимается при рассмотрении суммарного вклада собственно-энергетической и «интерференционной» добавок к упругому каналу туннелирования. В нижайшем порядке по константе взаимодействия электронов с бозонными состояниями собственно-энергетический вклад возникает в результате испускания и поглощения возбуждений внутри электрода, а «интерференционная» добавка отвечает «переодеванию» туннелирующего электрона в области между электродом и диэлектриком. Эта добавка противоположна по знаку собствен-

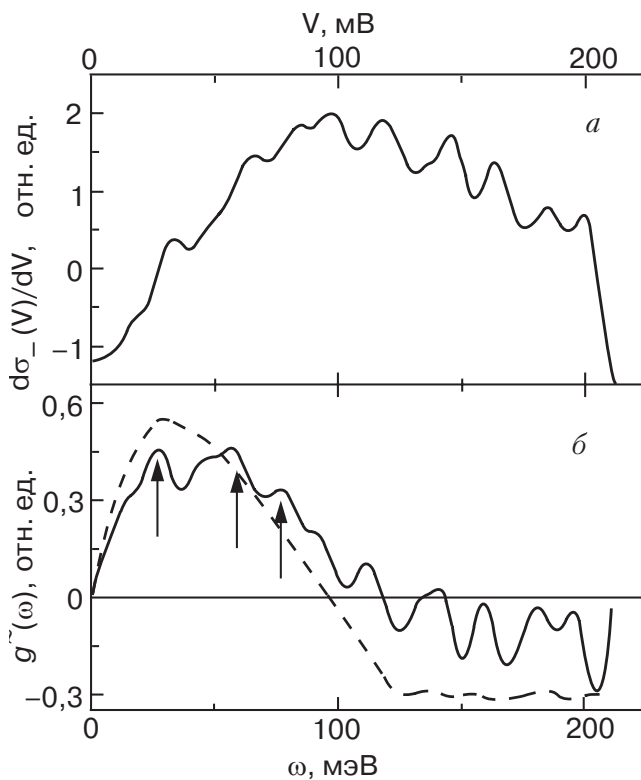


Рис. 1. Производная от нечетной части дифференциальной проводимости несимметричного туннельного контакта $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3\text{-Ag}$ (*a*) и восстановленная из нее спектральная функция электрон-бозонного взаимодействия (сплошная линия), штриховая линия — спектральная функция, полученная согласно выражению (2) (*b*). Стрелками отмечены особенности в спектре комбинационного рассеяния поликристаллического $\text{La}_{0,75}\text{Ca}_{0,25}\text{MnO}_3$ [17].

но-энергетическому вкладу, а ее тонкая структура определяется спектром элементарных возбуждений в барьерной и прибарьерной областях. В случае такого полного учета многочастичных эффектов при туннелировании, согласно [15], функция электрон-бозонного взаимодействия в объеме исследуемого проводника $g_v(\omega)$, восстановленная из нечетной части проводимости, будет модулироваться множителем $1-\varphi(\omega)$. Функция $\varphi(\omega)$ представляет собой усредненное по углам векторов туннелирующего электрона произведение матричных элементов классического туннельного гамильтониана, описывающего упругое туннелирование, и модифицированной добавки к нему, учитывающей взаимодействие электронов с другими возбуждениями перехода. Появление этого множителя отражает тот простой факт, что электрон при туннелировании не может без изменения протащить за собой облако поляризации, которое формируется вокруг него при движении в глубине электрода, и частично «раздевается» [15]. Поскольку малым частотам соответствуют большие длины волн (для акустической ветви колебаний), которые едины для всего туннельного контакта, при малых частотах «переодевание» происходить не будет и, следовательно, функция $\varphi(\omega)$ должна непрерывно увеличиваться с ростом частоты. В то же время внутрибарьерные и приповерхностные возбуждения, описываемые функцией $g_s(\omega)$, проявляют себя в нечетной части проводимости только посредством «интерференционной» добавки, отрицательной по знаку. Итоговая функция $\tilde{g}(\omega)$ представляет собой алгебраическую сумму этих вкладов:

$$\tilde{g}(\omega) = g_v(\omega)[1 - \varphi(\omega)] - g_s(\omega)\varphi(\omega). \quad (2)$$

Естественно, что при энергиях, отвечающих колебаниям кристаллической решетки манганита, эта функция положительна, однако там, где присутствует только барьерный вклад, она формально является отрицательной и тем самым демонстрирует наличие внутрибарьерных состояний, на которых рассеиваются туннелирующие электроны. Заметим, что, согласно стандартной теории туннелирования [16], они проявляют себя также в неупругом канале, причем производная по напряжению от четной части проводимости пропорциональна плотности состояний для всех бозонных возбуждений, существующих в системе, в том числе и локализованных внутри барьера и приконтактной области.

Рассмотрим с этих позиций приведенные на рис. 1 результаты. Для этого на рис. 2 приведена производная по напряжению от четной части проводимости, измеренная при 77 К, а стрелками показаны местоположения особенностей спектра, которые

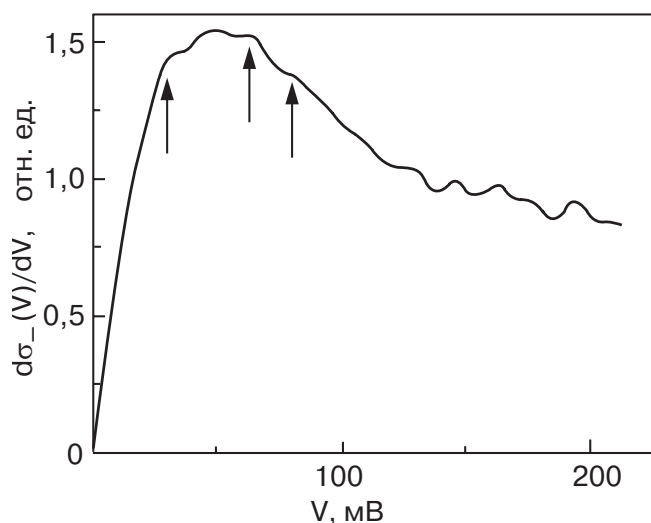


Рис. 2. Производная по напряжению от четной части проводимости туннельного контакта $\text{La}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{MnO}_3\text{-Ag}$. Стрелками отмечены особенности в спектре комбинационного рассеяния поликристаллического $\text{La}_{0,75}\text{Ca}_{0,25}\text{MnO}_3$ [17].

проявляются в экспериментах по комбинационному рассеянию в поликристаллическом $\text{La}_{0,75}\text{Ca}_{0,25}\text{MnO}_3$ [17]. Из этой и других экспериментальных работ (см., например, [13]) известно, что спектр бозонных возбуждений манганитов заканчивается в районе 100 мэВ. Более высокоэнергетические особенности, отчетливо наблюдаемые на рис. 2, следует отнести к состояниям в барьере и приборьерной области. Это предположение сразу же объясняет отрицательный участок в восстановленной функции $\tilde{g}(\omega)$ на рис. 1,б, поскольку, как уже указано выше, взаимодействие туннелирующего электрона с такими возбуждениями приводит к отрицательному вкладу в восстанавливаемую функцию электрон-бозонного взаимодействия. Проиллюстрируем это обстоятельство еще раз, предположив, как это следует из формулы (2), что приведенный на рис. 2 спектр состоит из двух составных частей: спектра $g_v(\omega)$, соответствующего бозевским состояниям в самом манганите (до 100 мэВ), и спектра приповерхностных возбуждений $g_s(\omega)$ (выше 100 мэВ). Вид функции $\varphi(\omega)$ в (2) определяется свойствами туннельного перехода и, вообще говоря, изменяется от образца к образцу. В настоящей работе мы воспользовались формой $\varphi(\omega)$, полученной для свинцовых переходов в работе [15]. Соответствующая кривая для полной $\tilde{g}(\omega)$ (штриховая линия на рис. 1,б), полученная согласно формуле (2), которую, конечно же, следует рассматривать как некоторый качественный результат, согласуется с поведением функции $\tilde{g}(\omega)$, восстановленной из нечетной части дифференциальной проводимости.

Нами экспериментально обнаружено наличие широкого континуума высокоэнергетических бозонных возбуждений, локализованных в барьерной и приборьерной областях туннельных переходов на основе манганитов. Энергии этих особенностей слишком велики для фононов и, согласно анализу, указывают на их магнитное происхождение. Дело в том, что рассеяние туннелирующего электрона на таких возбуждениях должно приводить к перевороту его спина и, в конечном счете, к подавлению магнитосопротивления. Нижний предел энергий обнаруженных нами состояний составляет около 100 мэВ, что хорошо согласуется с данными по зависимости магнитосопротивления туннельных переходов на основе магнитных материалов от приложенного напряжения [2,3,8]. Полученные данные являются существенным аргументом в пользу предположения о магнитной природе такого поведения [4,5].

1. J.S. Moodera, J. Nassar, and G. Mathon, *Annu. Rev. Mater. Sci.* **29**, 381 (1999).
2. L.P. Shelp, A. Fert, F. Fettar, P. Holody, S.F. Lee, J.L. Maurice, F. Petroff, and A. Vaures, *Phys. Rev.* **B56**, R5747 (1997).
3. J.S. Moodera, L.R. Kinder, T.M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273 (1995).
4. A.M. Bratkovsky, *Phys. Rev.* **B56**, 2344 (1997); X. Zhang, B.Z. Li, G. Sun, and F.C. Pu, *Phys. Rev.* **B56**, 5484 (1997).
5. S. Zhang, P.M. Levy, A.C. Marley, and S.S.P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3744 (1997).
6. J.S. Moodera, J. Nowak, and R.J.M. van de Veerdonk, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2941 (1998).
7. A.M. Bratkovsky, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2334 (1998).
8. В.М. Свистунов, Ю.В. Медведев, В.Ю. Таренков, А.И. Дьяченко, И. Хатта, К. Мукаса, Р. Локи, Г. Шимчак, С. Левадовский, Я. Лецинский, *ЖЭТФ* **118**, 629 (2000).
9. В.М. Свистунов, М.А. Белоголовский, *Туннельная спектроскопия квазичастичных возбуждений в металлах*, Наукова думка, Киев (1986).
10. В.М. Свистунов, М.А. Белоголовский, О.И. Черняк, А.И. Хачатуров, А.П. Квачев, *ЖЭТФ* **84**, 1781 (1983).
11. E. Hattata, T. Sasaki, V. Svistunov, M. Belogolovskii, O. Chernyak, A. Khachaturov, A. Gerasimenko, *JPSJ* **70**, 1865 (2001).
12. А.Ю. Герасименко, М.А. Белоголовский, Ю.Ф. Ревенко, О.И. Черняк, В.М. Свистунов, В.Е. Шатерник, Э.М. Руденко, Э. Хатта, Т. Сасаки, *ФТТ* **44**, 1158 (2002).
13. J. Mitra, A.K. Raychaudhuri, N. Gayathri, and Ya.M. Mukovskii, *Phys. Rev.* **B65**, 140406 (2002).
14. И.К. Янсон, *ЖЭТФ* **66**, 1035 (1974); И.К. Янсон, А.В. Хоткевич, *Атлас микроконтактных спектров электрон-фононного взаимодействия в металлах*, Наукова думка, Киев (1986).

15. М.А. Белоголовский, Ю.М. Иванченко, Ю.В. Медведев, *Письма в ЖЭТФ* **21**, 701 (1975).
16. Ю.М. Иванченко, Ю.В. Медведев, *ФНТ* **2**, 141 (1976).
17. Jian-Min Li, C.H.A. Huan, You-Wei Du, Duan Feng, and Z.X. Shen, *Phys. Rev.* **B63**, 024416 (2000).

Spectroscopy of bosonic excitations in
manganite-based heterostructures

M.A. Belogolovskii, Yu.F. Revenko, A.Yu.
Gerasimenko, Yu.V. Medvedev, O.I. Chernyak,
V.M. Svistunov, and G. Plitnik

The tunnel current transport in layered structures based on lanthanum manganites has been

investigated. A spectral function of the electron-boson interaction in a wide energy range is reconstructed. High-energy excitations localized in barrier and near-barrier regions are found. The charge carrier inelastic scatterings on these states can lead to a suppression of tunnel junction magnetoresistance with increasing applied voltages.