

TRANSICIÓN METAL-AISLANTE INDUCIDA POR CAMPO ELÉCTRICO EN LÁMINAS DELGADAS DE $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$

G. Bridoux¹, M. Villafuerte¹, S. Duhalde², D. Rubi², S. P. Heluani¹

¹Laboratorio de Física del Sólido, Dpto. de Física, Facultad de Ciencias Exactas y Tecnología, Universidad Nacional de Tucumán. Tucumán, Argentina.

²Laboratorio de Ablación Láser, Dpto. de Física, Facultad de Ingeniería, Universidad de Buenos Aires, Argentina.
e-mail: mvillafuerte@herrera.unt.edu.ar

En este trabajo se presentan resultados del comportamiento eléctrico de películas delgadas de $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ depositadas por ablación láser sobre sustratos de silicio (100). Las láminas resultaron policristalinas pero texturadas y con espesores entre 37 y 77 nm. Se midió la respuesta eléctrica de las láminas en función de la temperatura cuando se aplica un rango de tensiones eléctricas entre 1 y 50 Voltios. Las curvas de resistencia en función de la temperatura, para diferentes valores de tensión y espesor, muestran un "plateau" para tensiones altas. Los efectos observados pueden ser interpretados en términos de una competencia fuerte entre el orden de carga y el orden ferromagnético

In this work experimental results on the electrical behavior in thin films of $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ deposited by pulsed laser deposition on silicon (100) substrates are reported. The films results polycrystalline although textured with thickness between 37 and 77 nm. We performed measurements of the electrical response as a function of the temperature when electric fields, between 1 and 50 Volts, are applied on the thin films. The curves of the resistance as a function of the temperature, for different electric field and thickness values, show a plateau for high voltages. The results can be interpreted in terms of a strong competition between the charge-ordered and the ferromagnetic ordered phases.

I. Introducción

Las manganitas del tipo $\text{L}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$, donde L es un elemento lantánido y A es un alcalino térreo divalente, presentan una notable sensibilidad a diversas perturbaciones tales como campo magnético, campo eléctrico, dimensionalidad, desorden cristalino, etc.⁽¹⁻³⁾ El compuesto $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ presenta a $T_c = 225$ K una transición ferromagnética (FM) y a $T_{CO} = 155$ K una transición antiferromagnética con orden de carga (AFM-CO)⁽⁴⁾. A bajas temperaturas se ha comprobado la coexistencia de las fases FM-metálica (FMM) y AFM+CO-aislante a un nivel microscópico lo que se ha denominado separación de fases⁽⁵⁾. La competencia entre estas fases da origen a extraordinarias propiedades de estos compuestos. En este marco, el transporte electrónico, a bajas temperaturas, se produce a través de una red percolativa de la fase FM-metálica en la matriz aislante⁽¹⁾.

Las películas delgadas de manganitas normalmente presentan propiedades diferentes a las de las muestras en volumen y existe consenso en que estas diferencias se originan en las tensiones mecánicas inducidas por el sustrato⁽⁶⁾. Consecuentemente, se ha encontrado que la estabilidad de la fase CO depende fuertemente del espesor de la película. En efecto, Prellier y col. observaron que en películas epitaxiales de $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ el campo magnético necesario para producir la transición metal-aislante debía incrementarse sustancialmente a medida que el espesor de la misma disminuía^(2,7).

Otro tipo de perturbación que desestabiliza la fase CO es el campo eléctrico. Las manifestaciones notables de los efectos de campos eléctricos en las manganitas toman la forma de una electrorresistencia

colosal y de estados metaestables de resistividad inducidos por corriente^(8,9). Asamitsu y colab.⁽³⁾ muestran que en cristales de $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$, se observa la transición de estados resistivos altos a bajos ($\sim 10^8 \Omega \rightarrow \sim 10^5 \Omega$) cuando aplican tensiones del orden de los cientos de voltios. Sugieren que el ordenamiento en el espacio real de planos que contienen iones Mn^{3+} y Mn^{4+} , en la manganita con CO, se puede romper si se fuerza la circulación de corriente entre ellos a través de la aplicación de un campo eléctrico intenso.

Estos primeros resultados muestran la necesidad de profundizar estudios sistemáticos de la influencia del campo eléctrico en las manganitas.

El objetivo de este trabajo es el de estudiar la influencia del campo eléctrico sobre las propiedades de transporte en películas delgadas de $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ de distintos espesores.

II. Experimental

Las películas delgadas de $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ (LCMO) se depositaron sobre sustratos de silicio (100) por ablación láser. Se usó un láser de Nd: YAG operando a 266 nm con una fluencia de 2,5 J/cm². Durante el depósito se mantuvo la temperatura del sustrato a 700° C bajo una presión de oxígeno de 10 Pa. Las películas fueron enfriadas lentamente hasta temperatura ambiente bajo una presión de oxígeno de 10⁵ Pa. Los espesores de las películas, medidos por elipsometría, fueron de: 37,3 nm (LCMO1); 56,8 nm (LCMO2) y 77,3 nm (LCMO3).

El análisis por RX de la película de mayor espesor, muestra que la capa resultó policristalina aunque texturada en la dirección [001]_c. Los difractogramas de las otras capas presentan similares

características aunque la relación señal-ruido es muy baja debido a sus pequeños espesores.

Para medir la resistencia eléctrica de las películas se empleó la configuración de medición de corriente a dos puntas utilizando tensión constante. La distancia entre contactos fue de 2,5 mm. Consideramos que este método es el más conveniente ya que los valores de resistencia exceden los $10^9 \Omega$ a bajas temperaturas y además permite mantener constante el voltaje aplicado a la muestra. Las curvas de enfriamiento y calentamiento se midieron a una velocidad de 2 K/min.

III. Resultados y discusión

En la figura 1 se muestra la resistencia de las películas policristalinas de $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ en función de la temperatura. Estos resultados se grafican para distintos voltajes aplicados: 1; 2,7; 30 y 50 Voltios.

Observamos que para tensiones bajas (1 y 2,7 V) todas las películas muestran un comportamiento tipo aislante. Sin embargo, para tensiones altas (30 y 50 V) y películas de mayor espesor (LCMO2 y LCMO3) se observa una transición aislante-metal (A-M) alrededor de los 150K. En estas condiciones, es notable la escasa dependencia en temperatura observada para la resistencia en un amplio rango de temperaturas. Para las tensiones aplicadas en este trabajo, no se observa la transición A-M en la película más delgada (LCMO1). La transición en las películas LCMO2 y LCMO3 puede explicarse por la fusión de la fase aislante CO o por la inhibición de su estabilidad termodinámica, debida al campo eléctrico, lo que permitiría la percolación de zonas FMM. Ya que la estabilidad o robustez de la fase CO aumenta a medida que el espesor de la película disminuye^(2,7), es razonable que en la película más delgada no se la observe.

Otra característica notable de estos resultados es la histéresis térmica de la resistencia cuando se mide enfriando y calentando. Esta histéresis se hace más importante a medida que el espesor de las películas disminuye (ver figura 1). Durante el enfriamiento no hay señales de las transiciones FM o CO en las curvas de resistencia, mientras que en el calentamiento se observa en todas las curvas que la histéresis desaparece abruptamente a 235 K. Esta temperatura de transición, que no presenta dependencia con los campos eléctricos aplicados ni con el espesor de las películas, está asociada a la temperatura de Curie del material.

Por otro lado, cuando el material se presenta en forma de película delgada es habitual que la resistencia por debajo de T_C y por encima de T_{CO} no muestre un comportamiento metálico o al menos un cambio de pendiente. Esto está relacionado con las tensiones impuestas por el sustrato. Estas tensiones en general darían lugar a una fase metaestable con desorden de carga (CD) intermediaria entre la CO y la FM, con características similares a la fase paramagnética de alta temperatura. La fase CD, menos robusta que la CO, evoluciona hacia la CO o a la FM dependiendo de la

historia impuesta durante la medición de la resistencia de la película.

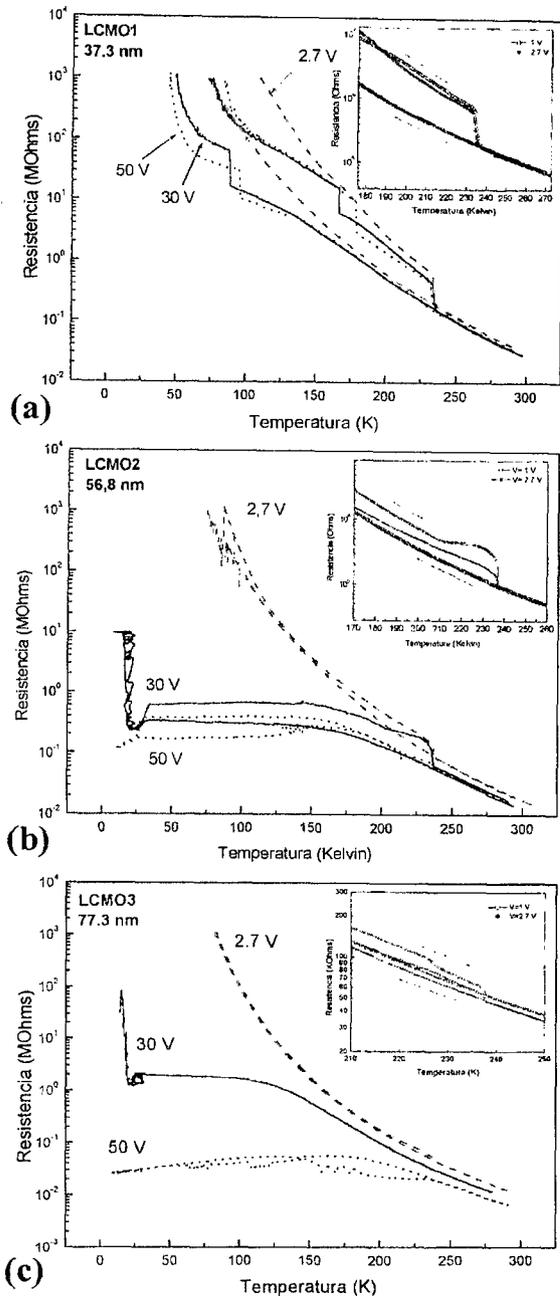


Figura 1: Resistencia en función de la temperatura para tres tensiones: 2,7; 30 y 50 V. a) Muestra LCMO1, espesor 37,3 nm. b) LCMO2 de 56,8 nm y c) LCMO3 de 77,3 nm. En los gráficos insertos se muestra una ampliación en la zona de la Temperatura de Curie para tensiones de medición 1 y 2,7 V.

Notamos que las curvas de calentamiento tienen resistencias mayores a las de enfriamiento, a excepción de las curvas en las que se ha producido la transición A-M (50V aplicados, figuras 1b y 1c). Estos resultados se pueden interpretar asumiendo que a bajas temperaturas y con bajos campos eléctricos el estado fundamental corresponde mayoritariamente a una fase CO y por lo tanto, en el calentamiento las resistencias

son mayores. En los casos en los que el enfriamiento se realiza con una tensión de 50V, se observa la percolación eléctrica a través de una red metálica. Esto indica que el estado fundamental es mayoritariamente de fases FMM, o al menos el campo aplicado ha disminuido la fracción de fases aislantes CD y CO. En este caso, durante el calentamiento el transporte eléctrico se realiza por resistencias menores a las correspondientes a la curva de enfriamiento.

Cuando se aplica una tensión de 50V a la lámina más gruesa (LCMO3), se observan inestabilidades y oscilaciones tanto durante el enfriamiento como en el calentamiento (Figura 2). Las inestabilidades encontradas durante el enfriamiento por debajo de la temperatura de transición A-M podrían estar relacionadas con el aumento del tamaño de los clusters FM a expensas de las fases CO y CD, forzado por el campo eléctrico aplicado. Este proceso puede pensarse que sucede por la superación, por parte de los portadores, de las barreras de potencial que separan las fases. En este escenario es razonable pensar que se alcancen transitoriamente estados metaestables de baja resistencia.

Durante el calentamiento y para temperaturas por encima de la temperatura de transición A-M, se observan oscilaciones de la resistencia. Estas oscilaciones en la resistencia eléctrica muestran una periodicidad notable con la temperatura y preceden a la transición FM.

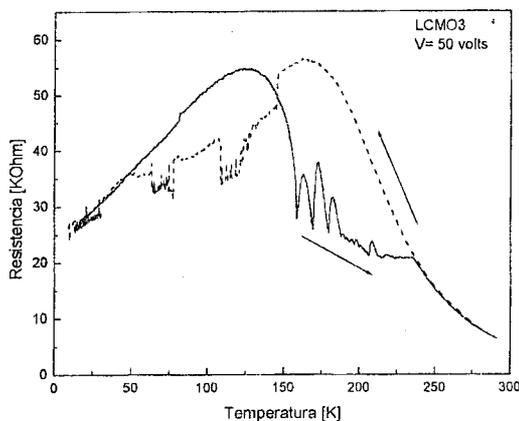


Figura 2: Resistencia en función de la temperatura para la muestra LCMO3 medida con una tensión de 50 V. Se observa durante el calentamiento oscilaciones en la resistencia.

El origen de estas oscilaciones podría estar causado por un efecto de calentamiento localizado en las regiones donde se produce la percolación sin modificar la temperatura promedio de la muestra⁽¹⁰⁾. Al bajar la resistencia se incrementa sensiblemente la potencia disipada lo que favorecería las fluctuaciones termodinámicas de la fase FM con la consiguiente reducción espacial de estas zonas en favor de la fase CO. De este modo, el deterioro de la percolación incrementa la resistencia con lo que la disipación disminuye y el sistema restablece el equilibrio,

regenerándose la percolación e iniciando así nuevamente el proceso. Estudios sistemáticos con el fin de una mejor interpretación de estos resultados son necesarios y están en progreso.

IV. Conclusiones

Se ha medido la resistencia en función de la temperatura de películas policristalinas de $\text{La}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$ de diferentes espesores usando campos eléctricos constantes. Se encuentra que a mayor campo eléctrico y mayor espesor se desestabiliza la fase CO produciéndose una transición A-M. Los efectos observados pueden ser interpretados en términos de una competencia fuerte entre el orden de carga y el orden ferromagnético. Existe un valor de campo eléctrico umbral, dependiente del espesor de la muestra, por encima del cual se favorecería el aumento de la fase FMM a expensas de las fases aislante CO o CD. Se hace necesario realizar mediciones magnéticas complementarias a fin de interpretar más profundamente los datos de transporte de estas películas.

Referencias

- [1] E. Dagotto, T. Hotta and A. Moreo, Phys. Rep. **344** (2001) 1.
- [2] W. Prellier, Ch. Simon, A. M. Haghiri-Gosnet, B. Mercey, and B. Raveau, Phys. Rev B **62** (2000) R16337.
- [3] Asamitsu et al., Nature **388** (1997) 50.
- [4] P. Radaelli, Phys. Rev. B **55** (1999) 3015.
- [5] M. Uehara, S. Mori, C.H. Chen y S.W. Cheong, Nature **399** (1999) 560.
- [6] D. Rubi, S. Duhalde, M.C. Terzzoli and M. Villafuerte, Appl. Surf. Science, **197-198** (2002) 441-446.
- [7] W. Prellier, A. Biswas, M. Rajeswari, T. Venkatesan and R.L. Greene, xxx.lanl.gov cond-mat/ 9903178 v1 (1999).
- [8] V. Ponnambalam, S. Parashar, A.R. Raju and C.N. Rao, Appl. Phys. Lett. **74** (2), (1999) 206.
- [9] Y. Yuzhelevski, V. Markovich, V. Dikovski, E. Rozenberg, G. Gorodetsky and G. Jung, Phys. Rev. B **64** (2001) 224428.
- [10] V. Podzorov et al., Europhys. Lett. **55** (3), (2001) 411-417.