

# АНОМАЛЬНЫЙ АКУСТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ И ТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПЛЕНОК

 $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ 

**Ю. В. Илисавский**, **А. В. Гольцев**, **К. В. Дьяконов\***,  
**Н. Ф. Карченко**, **В. В. Попов**, **Э. З. Яхкинд**

*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия*

**В. П. Дьяконов, А. В. Климов**

*Физико-технический институт им. А. А. Галкина  
340114, Донецк, Украина*

*Институт физики Польской академии наук  
02-668, Варшава, Польша*

Поступила в редакцию 6 февраля 2002 г.

Проведен комплекс исследований физических свойств тонких пленок мanganита лантана  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  в монолитной слоистой структуре, состоящей из  $\text{LiNbO}_3$  и тонкой эпитаксиальной пленки  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ . Впервые наблюдался не только обычный акустоэлектрический (АЭ) ток носителей заряда, которые увлекаются поверхностной акустической волной (ПАВ), но и продольный аномальный АЭ-ток, текущий в выделенном направлении независимо от направления распространения ПАВ вдоль оси  $z$ . Аномальный АЭ-эффект доминирует вблизи перехода металл–диэлектрик, тогда как нечетный АЭ-эффект превалирует при высоких и низких температурах. Знак обычного нечетного АЭ-эффекта соответствует дырочной проводимости пленки. Теоретический анализ показал, что аномальный АЭ-эффект вызван сильной модуляцией проводимости пленки вследствие деформации, создаваемой ПАВ. Результаты теории находятся в хорошем согласии с экспериментом. Изучено температурное поведение удельного сопротивления  $\rho$  (как без магнитного поля, так и в полях напряженностью примерно до 3 Тл), а также высокочастотной магнитной восприимчивости и термоэдс.

PACS: 43.35.+d, 72.50.+b, 73.50.Rb, 77.65.Dq

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В течение последних лет как экспериментально, так и теоретически интенсивно изучаются перовскитные мanganиты  $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$ , где  $R = \text{La}$ ,  $\text{Nd}$ ,  $\text{Pr}$ , а  $A = \text{Ca}$ ,  $\text{Sr}$ ,  $\text{Ba}$ . Эти соединения привлекают внимание не только широким разнообразием магнитных, структурных, электронных свойств, но также весьма заманчивыми возможностями их технических применений.

Исследования показали, что свойства мanganитов определяются не только механизмом двойного

обмена [1], но и сильным электрон-фононным взаимодействием [2] ян-теллеровского типа. Сильное электрон-фононное взаимодействие формирует полляронные состояния, поэтому в парамагнитной фазе транспортные свойства определяются термически активированными прыжками поляронов. Двойной обмен, ответственный за ферромагнитный переход с критической температурой  $T_c$ , вызывает изменение полупроводникового поведения удельного сопротивления  $\rho(T)$  выше  $T_c$  на металлическое ниже  $T_c$ . Существует ряд прямых экспериментальных свидетельств, подтверждающих эту физическую картину: гигантский изотопный сдвиг  $T_c$ , термически активированный транспорт в парамагнитном состоя-

\*E-mail: K.Dyakonov@pop.ioffe.rssi.ru

нии, аррениусовское поведение дрейфовой и холловской подвижностей, сравнительно небольшая величина энергии активации при термоэлектрическом эффекте и т. п. (см., например, обзоры [3–6]).

Недавно было обнаружено [7] сильное влияние давления на транспортные и магнитные свойства, что дает еще одно свидетельство в пользу наличия сильной электрон-фононной связи в этих материалах. Тем не менее существует целый ряд открытых и до сих пор не решенных дискуссионных проблем о физических свойствах мanganитов. В частности, недавние измерения [8] проводимости показали, что полярный эффект представляется достаточно важным и в низкотемпературной металлической фазе. Особое внимание привлекает не только проблема механизма проводимости в различных температурных интервалах, но и определение типа носителей заряда. Измерения эффекта Холла и термоэлектрического эффекта дают противоречивую информацию о знаке носителей заряда. Например, термоэдс в  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  во всем исследованном температурном интервале имеет отрицательный знак, что свидетельствует в пользу электронной проводимости [9, 10], тогда как холловские измерения демонстрируют смену знака коэффициента Холла [11]. Эти расхождения трудно интерпретировать в рамках простой однозонной модели с дырками как носителями заряда.

Мы считаем, что для более глубокого понимания физических свойств мanganитов необходимы дальнейшие детальные исследования, использующие новые экспериментальные методики. Особый интерес в этом отношении, на наш взгляд, представляет изучение акустоэлектрического (АЭ) эффекта, который дает важную и независимую информацию о свойствах системы носителей заряда.

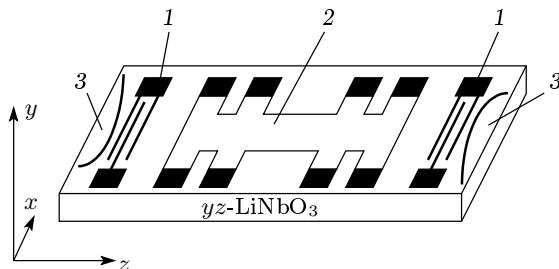
В своей работе мы сообщаем о первых исследованиях АЭ-эффекта в монолитной слоистой структуре пьезодиэлектрик  $\text{LiNbO}_3$ —тонкая эпитаксиальная пленка  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  в широком температурном интервале, включающем и область перехода металл–диэлектрик. В такой структуре на носители заряда действует как деформация, создаваемая поверхностной акустической волной (ПАВ), так и пьезоэлектрическое поле, сопровождающее распространение акустической волны по пьезодиэлектрической подложке. ПАВ увлекает свободные носители заряда в пленке, вызывая либо акустоэлектрическое напряжение, если электрическая цепь, включающая пленку, разомкнута, либо акустоэлектрический ток, если цепь замкнута. Поскольку энергия ПАВ, распространяющейся по пьезоподложке, в основном со-

редоточена в поверхностном слое толщиной порядка длины волны, деформация, создаваемая ПАВ, может достигать очень большой величины порядка  $10^{-3}$ , что в данном случае эквивалентно давлению порядка 1 кбар. В свою очередь, как уже отмечалось выше, большое давление способно существенно изменять проводимость пленки мanganита. Этим наш подход существенно отличается от ранних экспериментов, в которых пленка подвергалась воздействию только электрического поля [12].

Мы обнаружили, что продольный АЭ-ток имеет сильную температурную зависимость с максимумом вблизи перехода металл–диэлектрик. Однако наиболее интересным в наших результатах является наблюдение двух вкладов в АЭ-ток. Кроме обычного АЭ-тока, который является нечетным относительно волнового вектора ПАВ, т. е. он меняет свой знак при обращении волнового вектора, мы также обнаружили аномальную компоненту тока, четную относительно волнового вектора ПАВ. Знак обычного АЭ-тока соответствует дырочной проводимости во всем исследованном температурном интервале от 300 до 77 К. Аномальный АЭ-ток сильно отличается от обычного АЭ-тока абсолютной величиной и температурным поведением и, как мы покажем ниже, имеет другую природу, обусловленную сильной зависимостью проводимости пленки мanganита от давления. Четный продольный АЭ-эффект ранее наблюдался в других объектах, например, в пьезополупроводниках с ловушками [13], в асимметричных баллистических контактах [14]. Однако, в отличие от этих объектов, наши пленки мanganита лантана не содержали ловушек и являлись пространственно-однородными. Кое-что общее можно найти только с первыми теоретическими работами по четному АЭ-эффекту в кристаллах без центра инверсии, впервые рассмотренному в [15]. Наши пленки мanganита лантана имеют центр инверсии, но находятся в механическом контакте с пьезодиэлектрической подложкой, в которой центр инверсии отсутствует. Роль механического контакта и свойств слоев в возникновении аномального АЭ-эффекта обсуждается нами ниже в разд. 5 и 6. Краткое сообщение о наблюдении аномального АЭ-тока опубликовано в [16].

## 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследованные пленки мanganита лантана были нанесены на  $yz$ -срез оптически полированной пьезоподложки  $\text{LiNbO}_3$  путем импульсного лазерного напыления с использованием стехиометрической кера-



**Рис. 1.** Схема монолитной слоистой структуры из подложки  $\text{LiNbO}_3$ , тонкой пленки  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ : 1 — ВШП, 2 — исследуемая пленка с контактами, 3 — поглотители ПАВ. Оси на рисунке показывают ориентацию подложки

ники  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  в качестве мишени. В процессе напыления температура подложки составляла  $730^\circ\text{C}$ , а давление кислорода — 300 мТорр. После напыления пленка охлаждалась до комнатной температуры при сохранении установленного кислородного давления. Затем из пленки методом оптической фотолитографии и химического травления формировался четырехзондовой образец для измерений, при этом длина пленки составляла 10 мм, ширина — 2 мм, а толщина — 100–200 нм. Сопротивление  $R$  образца измерялось четырехзондовым методом с постоянным стабилизированным транспортным током 10 мА, не создающим заметного нагрева пленки.

АЭ-эффект изучался посредством возбуждения рэлеевской ПАВ, распространяющейся по поверхности пьезодиэлектрика  $\text{LiNbO}_3$ . Импульсы ПАВ генерировались и принимались встречно-штыревыми преобразователями (ВШП), расположенными на противоположных концах подложки ниобата лития. Апертура звукового пучка равнялась 3 мм, т. е. во всех опытах она была больше ширины исследуемой пленки. Измерения проводились на резонансной частоте преобразователя 87 МГц (длина акустической волны  $\lambda = 40$  мкм). Геометрия образцов, использованных в эксперименте, представлена на рис. 1.

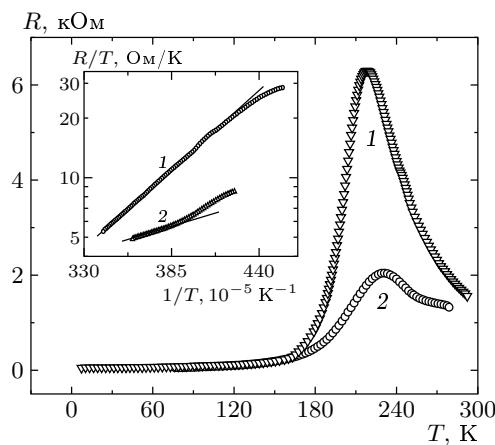
В процессе измерений образцы помещались в криостат, наполняемыйарами гелия или азота, а температура регулировалась нагревателем, магнитным полем которого можно пренебречь ( $H < 0.1$  Э), и измерялась термопарой с точностью не хуже 0.05 К. ПАВ возбуждались в импульсном режиме с частотой следования 50 Гц. При этом длительность  $\tau$  импульса звука зависела от вида эксперимента и могла быть изменена от 1 до 4 мкс. В случае изучения АЭ-эффекта длительность импульса ПАВ рав-

нялась времени прохождения звуком всей пленки, если в измерениях участвовала вся пленка, или того ее участка, который изучался в эксперименте. Интенсивность ПАВ на входе в образец,  $\Phi$ , регулировалась аттенюатором с шагом 1 дБ и не зависела от длительности импульса звука. Во всех измерениях, связанных с АЭ-эффектом, транспортный ток через образец был равен нулю.

Так как тривиальным источником четного АЭ-эффекта могла бы быть пространственная неоднородность электрических свойств пленки, однородность исследованных пленок тщательно проверялась с помощью различных методик. Рентгенографические исследования показали, что пленка является эпитаксиальной и однофазной, имеет постоянную псевдокубическую решетку  $a = 0.3853$  нм и ориентацию параллельную плоскости (211). Химический состав и однородность пленки подтверждалась микроанализом, проводившимся в различных областях пленки электронным зондированием. Химический анализ показал, что состав пленки отличается от состава керамической мишени не более чем на 2 %. Электрическая однородность пленок проверялась измерением сопротивления различных областей пленки. Кроме того, результаты измерений термоэдс наших пленок также находятся не только в качественном, но и в хорошем количественном согласии с известными в литературе данными. Таким образом, эти исследования позволяют нам сделать вывод о пространственной однородности структурных, магнитных и электрических свойств исследованных пленок мanganита лантана.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ ТРАНСПОРТНЫХ И МАГНИТНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

На рис. 2 приведены зависимости  $R(T)$  в нулевом магнитном поле и в поле  $H_\perp = 25.5$  кЭ, перпендикулярном к поверхности пленки. Максимум криевой  $R(T)$  приходится на  $T \approx 224$  К. Приложение магнитного поля  $H$  сдвигает пик зависимости  $R(T)$  в область более высоких температур до величины  $T \approx 231$  К, существенно увеличивая проводимость образца и создавая тем самым эффект колоссального магнитосопротивления, составляющий в данном случае величину около 80 % при 25.5 кЭ в полном согласии с литературными данными [3–5]. Достаточно резкая форма пика свидетельствует о хорошем качестве пленки и отсутствии заметного вклада гранул в проводимость. На вставке к рис. 2 представлена



**Рис.2.** Температурная зависимость сопротивления пленки в различных магнитных полях, перпендикулярных к поверхности пленки: 1)  $H = 0$ ; 2)  $H = 25.5$  кЭ. На вставке приведена зависимость  $\ln(R/T)$  как функция от  $1/T$ : 1 —  $H = 0$ , энергия активации  $E_a = 142$  мэВ; 2 —  $H = 25.5$  кЭ, энергия активации  $E_a = 52$  мэВ

зависимость  $R/T$  в логарифмическом масштабе как функция от  $1/T$ .

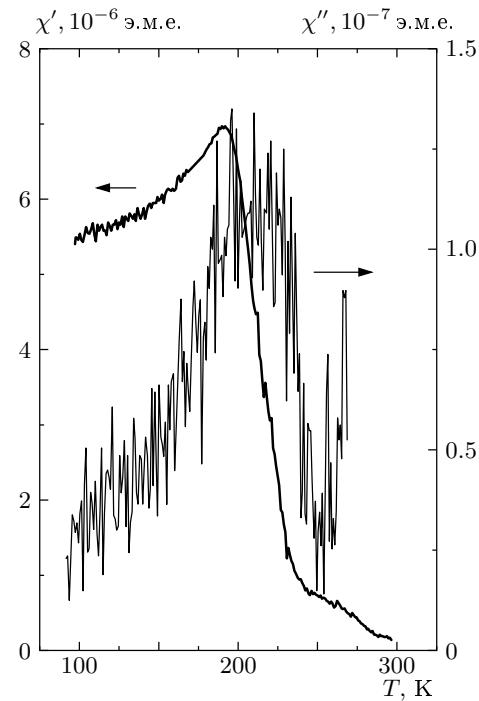
В теории адиабатических прыжков поляронов малого радиуса [17] температурная зависимость удельного сопротивления определяется выражением

$$\rho(T) \equiv \rho_0 T^\alpha \exp(E_A/k_B T), \quad (1)$$

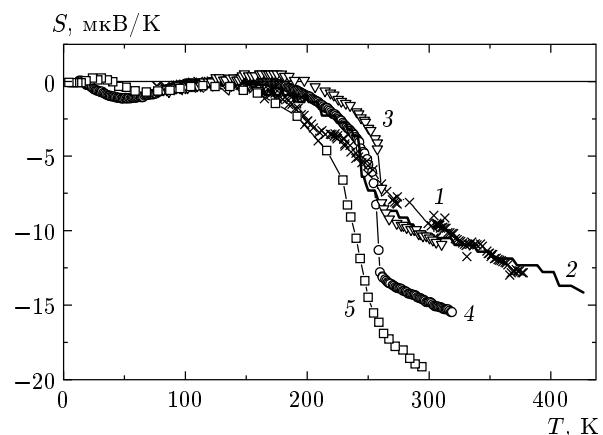
где  $E_A$  — энергия активации прыжков,  $k_B$  — постоянная Больцмана. Полагая  $\alpha = 1$ , из наших данных для области парамагнитного состояния мы получили  $E_A = 142$  мВ для  $H = 0$  и  $E_A = 52$  мВ в поле  $H_\perp = 25.5$  кЭ (см. вставку на рис. 2, соответственно кривые 1 и 2). Следовательно, магнитное поле резко уменьшает энергию активации, следствием чего и является уменьшение  $R(T)$  в магнитном поле в области перехода металл–диэлектрик. Этот результат достаточно хорошо совпадает с известными данными [18].

В измерениях высокочастотной магнитной восприимчивости, представленной на рис. 3, переменное магнитное поле амплитудой 5 Э и частотой  $f = 625$  Гц прикладывалось параллельно плоскости пленки. Измерялись как вещественная ( $\chi'$ ), так и мнимая ( $\chi''$ ) части восприимчивости. Температура Кюри определялась как точка перегиба кривой  $\chi'(T)$  и равнялась примерно  $T = 215$  К. Согласно полученным данным, пик сопротивления находится вблизи ферромагнитного фазового перехода.

На рис. 4 показана температурная зависимость



**Рис.3.** Температурная зависимость действительной  $\chi'$  и мнимой  $\chi''$  составляющих магнитной восприимчивости пленки  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$



**Рис. 4.** Температурная зависимость коэффициента Зеебека  $S$  для соединений  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ : наши экспериментальные данные для пленок мanganитов (1) и данные из работ [10] (2), [19] (3), [20] (4), [21] (5)

коэффициента Зеебека  $S$  при  $H = 0$ , измеренная стандартным методом. Один конец подложки ниобата лития с напыленной пленкой закреплялся между двумя массивными сапфировыми блоками для отвода тепла. Термический градиент вдоль пленки создавался миниатюрным нагревателем, смонтирован-

ным на противоположном конце подложки, и контролировался двумя термопарами. Из рисунка видно, что наибольшую абсолютную величину термоэдс имеет в области активационного характера проводимости с участием поляронов малого радиуса и уменьшается почти до нуля по мере приближения к области металлической фазы. Характерно, что во всем измеренном диапазоне температур, в том числе и при  $T = 300$  К, коэффициент Зеебека  $S$  имеет отрицательный знак, хотя согласно измерениям эффекта Холла и существующим теоретическим представлениям носителями заряда в мanganите лантана в высокотемпературной области должны быть дырки. На этом рисунке также приведены данные измерений температурной зависимости коэффициента Зеебека для манганита лантана, взятые из литературы [10, 19–21]. Все они демонстрируют отрицательный знак и практически такой же температурный ход, лишь слабо отличаясь по величине от наших данных. Отметим, что во многих случаях из данных измерения термоэдс нельзя сделать однозначный вывод о типе проводимости, так как знак термоэдс определяется не только знаком носителей заряда, но и особенностями рассеяния и энергетического спектра этих квазичастиц.

#### 4. РЕЗУЛЬТАТЫ АКУСТОЭЛЕКТРОННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

На рис. 5 $a$  представлены результаты измерения продольного АЭ-эффекта в пленках  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  в нулевом магнитном поле для волнового вектора звука  $\mathbf{q}$ , как в положительном (кривая 1), так и в отрицательном (кривая 2) направлениях вдоль оси  $z$  подложки ниобата лития (этота ось выделена вследствие отсутствия центра инверсии подложки). В первую очередь следует отметить большую величину наблюдаемого АЭ-тока по сравнению не только с нормальными металлами, где АЭ-эффект очень мал, но и с полупроводниками. Оценки вклада термоэдс, который мог бы возникнуть в результате поглощения звука в образце, в наблюдаемое АЭ-напряжение показывают, что он пренебрежимо мал, так как для исследуемых образцов величина термоэдс достаточно мала. Кроме того, для отвода тепла с целью уменьшения паразитной термоэдс подложка с пленкой помещалась на массивное оптически полированное медное основание через слой эвтектики In–Ga. Это обеспечивало величину паразитного температурного градиента на пленке не более 0.05 К.

В случае возбуждении ПАВ с  $\mathbf{q}$  в положительном направлении вдоль оси  $z$ , как видно из рис. 5 $a$  (кривая 1), при  $T = 300$  К АЭ-ток  $I_{AE}$  положителен и равен примерно 2 мА при интенсивности ПАВ  $\Phi \approx 3$  Вт/см. С понижением температуры АЭ-ток растет и достигает максимума (примерно 25 мА) вблизи перехода металл–диэлектрик. При дальнейшем понижении температуры АЭ-ток уменьшается до величины порядка 1 мА при  $T = 77$  К.

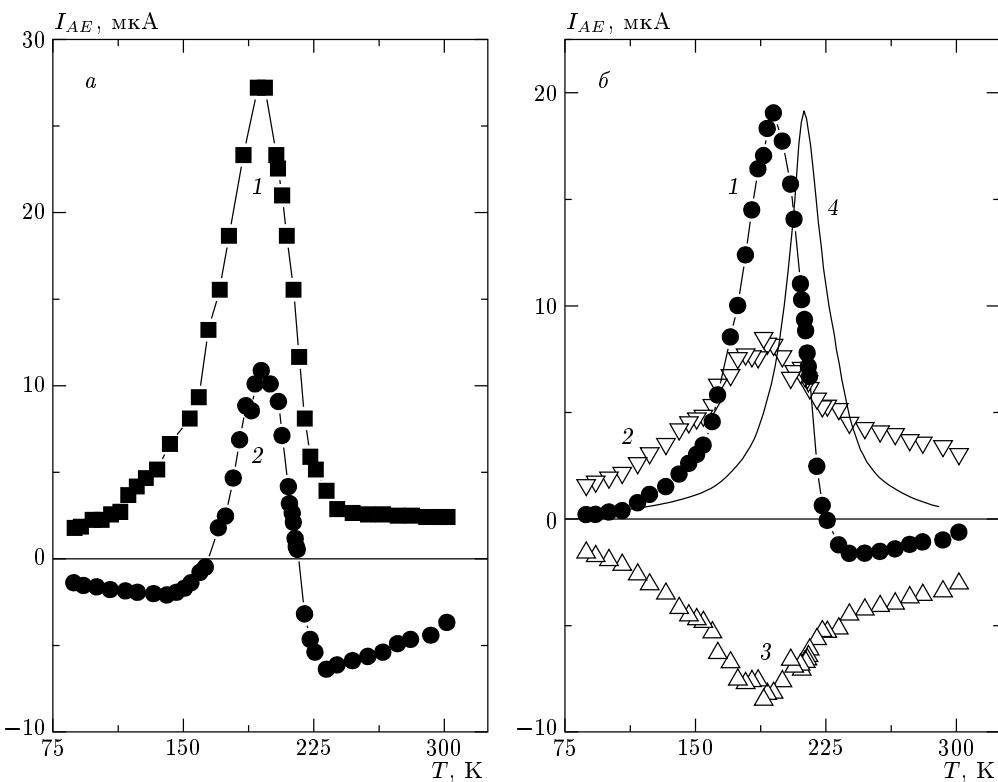
Как мы уже отмечали во Введении, обычный продольный АЭ-эффект является нечетным по отношению к вектору ПАВ  $\mathbf{q}$ . Поэтому при возбуждении ПАВ с  $\mathbf{q}$  в отрицательном направлении оси  $z$  мы ожидали увидеть лишь смену знака АЭ-тока. Однако, вопреки ожиданиям, мы наблюдали удивительное поведение АЭ-тока, который дважды менял знак вблизи перехода металл–диэлектрик. А именно, при уменьшении температуры от 300 К АЭ-ток сначала был отрицательным, рос по абсолютной величине, затем резко менял знак, достигал максимума, и далее убывал по величине и, наконец, еще раз менял знак. Результаты измерений показаны на рис. 5 $a$  (кривая 2).

Такую неожиданную зависимость АЭ-тока от направления волнового вектора ПАВ можно объяснить, если предположить, что существуют два вклада в АЭ-ток:  $I_{AE} = I_{even} + I_{odd}$ . Первый вклад ( $I_{even}$ ) является аномальным и четным относительно волнового вектора ПАВ  $\mathbf{q}$ , второй вклад ( $I_{odd}$ ) является обычным (нечетным) АЭ-током. Мы разделили два этих вклада, используя экспериментальные данные и следующие соотношения:

$$I_{odd}(-\mathbf{q}) = -I_{odd}(\mathbf{q}), \quad I_{even}(-\mathbf{q}) = I_{even}(\mathbf{q}).$$

Полученные результаты показаны на рис. 5 $b$ . Видно, что аномальный продольный АЭ-эффект доминирует вблизи перехода металл–диэлектрик и превышает обычный АЭ-эффект примерно в два раза (см. кривую 1 на рис. 5 $b$ ). Подчеркнем еще раз, что наблюдавший нами аномальный четный АЭ-ток ( $I_{even}$ ) всегда течет в положительном направлении вдоль оси  $z$  подложки. Обычный нечетный АЭ-эффект ( $I_{odd}$ ) (см. кривые 2, 3 на рис. 5 $b$ ) преобладает как при высоких, так и при низких температурах, а его знак соответствует дырочной проводимости во всем исследованном температурном интервале, что и следовало ожидать для данного состава  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ .

Следует отметить, что нами была проведена тщательная проверка того факта, что наблюдаемый эффект действительно является акустоэлектрическим. Для этого мы детально исследовали зависимость



**Рис. 5.** Температурные зависимости АЭ-тока: *а* — экспериментальные данные в случаях  $\mathbf{q} \parallel +z$  (1) и  $\mathbf{q} \parallel -z$  (2); *б* — составляющие АЭ-тока: 1 — четная (аномальная); 2 — нечетная (обычная) при  $\mathbf{q} \parallel +z$ ; 3 — нечетная при  $\mathbf{q} \parallel -z$ ; 4 — теоретический расчет четной компоненты из уравнения (6)

АЭ-тока как от мощности ПАВ,  $W$ , так и от длительности  $\tau$  импульса ПАВ во всем температурном интервале. Типичные результаты, полученные при  $T = 300$  К, представлены на рис. 6. Эти измерения демонстрируют линейную зависимость  $I_{AE}$  от  $W$ . Зависимость  $I_{AE}(\tau)$  также имеет линейный характер до тех пор, пока длительность импульса ПАВ не достигает величины  $\tau \approx 2.5$  мкс, что соответствует условию, при котором пространственная длительность звукового импульса становится примерно равной длине нашей пленки. Естественно, что при дальнейшем увеличении  $\tau$  должно наблюдаться насыщение зависимости  $I_{AE}(\tau)$ , как это и имеет место в эксперименте. Такая зависимость  $I_{AE}$  от  $W$  и  $\tau$  полностью соответствует тому, что следует ожидать в случае импульсного классического АЭ-эффекта [22].

## 5. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Для теоретического изучения взаимодействия ПАВ с тонкой металлической пленкой, нанесенной на подложку ниобата лития и находящейся в меха-

ническом контакте с подложкой, выбрана система координат с положительным направлением оси  $y$ , нормальным к поверхности подложки (см. рис. 1). Границная поверхность подложка–пленка является плоскостью  $xz$ . Пленка имеет толщину  $a$ , поэтому свободная поверхность есть плоскость  $y = a$ . ПАВ с частотой  $\omega$  распространяется вдоль оси  $z$  и сопровождается как электрическим полем  $\mathbf{E}(y, z, t)$ , так и деформацией  $S_{ij}(y, z, t)$ . В нашей геометрии ненулевые являются только  $y$ - и  $z$ -компоненты электрического поля  $\mathbf{E}$  и решеточного смещения. В свою очередь, электрическое поле  $\mathbf{E}$  создает в пленке локальную плотность тока

$$J_i(y, z, t) = \sigma_{ij}(y, z, t)E_j(y, z, t),$$

где  $\sigma_{ij}$  — тензор проводимости пленки (в длинноволновом пределе диффузионный вклад в ток может быть опущен). Отметим, что на используемых акустических частотах ( $\omega \sim 10^8$  с<sup>-1</sup>) зависимостью  $\sigma$  от  $\omega$  можно пренебречь, так как сильная частотная зависимость полярной проводимости возникает лишь в области частот  $\omega \sim (4/\hbar)E_a \sim 10^{13}$  с<sup>-1</sup> для энергии активации  $E_a \approx 142$  мэВ (см., напри-

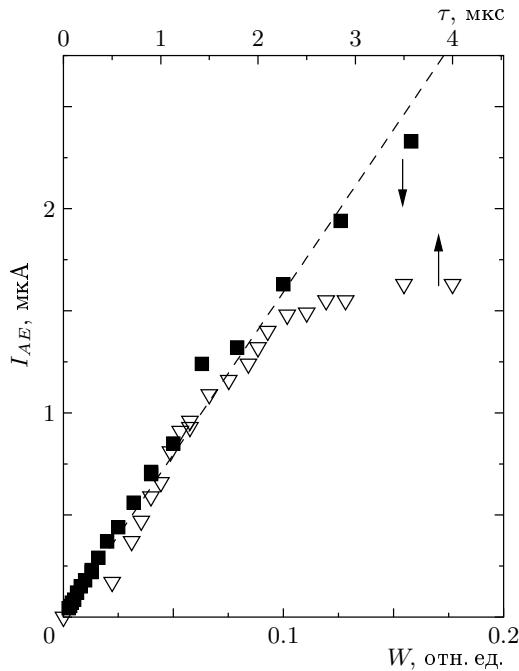


Рис. 6. Зависимость АЭ-тока от мощности  $W$  и длительности  $\tau$  импульса ПАВ

мер, [23]) Электрическое поле  $\mathbf{E}$  и деформация  $S_{ij}$  индуцируют локальную модуляцию компонент тензора проводимости  $\sigma_{ij}$ :

$$\sigma_{zz}(y, z, t) = \sigma_0 + \sigma_1(y, z, t) + \sigma_2(y, z, t),$$

где  $\sigma_0$  — невозмущенная проводимость, слагаемое

$$\sigma_1(y, z, t) = n_s(y, z, t) \frac{\partial \sigma_0}{\partial n}$$

описывает влияние электрического поля  $\mathbf{E}$  и является следствием модуляции концентрации носителей заряда  $n = n_0 + n_s$ , где  $n_0$  — невозмущенная концентрация носителей заряда,  $n_s$  — изменение концентрации ( $n_s \ll n_0$ ) электрическим полем  $\mathbf{E}$  (влиянием поля  $\mathbf{E}$  на дрейфовую подвижность можно пренебречь), а последний член,

$$\sigma_2(y, z, t) = \sigma_0 [\Pi_{3333} S_{zz} + \Pi_{3322} S_{yz} + \Pi_{3323} S_{yz}],$$

описывает модуляцию компоненты  $\sigma_{zz}$  под влиянием деформации. Тензор  $\Pi_{ijkl} \equiv \partial \ln \sigma_{ij} / \partial S_{kl}$ , вычисляемый при  $S_{kl} = 0$  и фиксированной температуре, описывает влияние деформации на  $\sigma_{ij}$ . Изменения дрейфовой подвижности и концентрации электронов также дают вклад и учитываются в  $\Pi_{ijkl}$ . Псевдокубическая симметрия мanganитов лантана позволяет положить  $\Pi_{3323} = 0$ , а для двух других

тензорных компонент мы упрощаем обозначения:  $\Pi_{3333} \equiv \Pi_{33}$  и  $\Pi_{3322} \equiv \Pi_{32}$ .

Продольный АЭ-ток, возбуждаемый ПАВ в пленке на единицу длины в  $x$ -направлении, определяется как

$$\begin{aligned} j_{AE} &= \frac{1}{\theta} \int_0^\theta dt \int_0^a dy J_z(y, z, t) = \\ &= \frac{1}{\theta} \int_0^\theta dt \int_0^a dy (\sigma_1 E_z + \sigma_2 E_z) \equiv j_{AE}^{(1)} + j_{AE}^{(2)}, \end{aligned} \quad (2)$$

где  $\theta = 2\pi/\omega$ . Чтобы найти  $j_{AE}$ , необходимо определить соотношения между  $E_z$ ,  $S_{ij}$  и  $n_s$ , накладываемые уравнениями Максвелла и пьезоэлектрическими уравнениями, а также граничными условиями на поверхностях  $y = 0$  и  $y = a$ . Мы не приводим здесь этих уравнений, а также метод их решения. Они хорошо известны и могут быть найдены, например, в [24]. В нашем случае толщина  $a$  нашей пленки мала по сравнению с длиной акустической волны  $\lambda$ , но много больше дебаевской длины  $\lambda_D$ , т. е.  $\lambda_D \ll a \ll \lambda$ . Кроме того, в широком температурном интервале вблизи пика сопротивления проводимость мanganитной пленки мала и близка к полупроводниковой. Это позволяет использовать подход Ингебригтсена [24] для изучения взаимодействия ПАВ с носителями заряда в пленке. Прежде всего, в рамках этого подхода необходимо описать проникновение электрического поля ПАВ в пленку и образование на поверхностях  $y = 0$  и  $y = a$  поверхностных зарядов вследствие экранировки. В свою очередь, движение поверхностных зарядов создает поверхностные электрические токи. Постоянная компонента полного поверхностного электрического тока на единицу длины в  $x$ -направлении есть ток  $j_{AE}^{(1)}$ :

$$j_{AE}^{(1)} = q\Gamma\Phi\sigma_0/e\omega n_0, \quad (3)$$

где  $e$  — заряд носителей заряда,  $\Phi$  — интенсивность ПАВ,  $\Gamma$  — коэффициент поглощения ПАВ ( $\Phi = \Phi_0 e^{-\Gamma z}$ ):

$$\Gamma = \frac{2\pi K^2}{\lambda} \frac{\sigma_\square / \sigma_m}{1 + \sigma_\square / \sigma_m}, \quad (4)$$

где  $K^2$  — квадрат коэффициента электромеханической связи,  $\sigma_\square = a\sigma_0$  — проводимость «на квадрат»,  $\sigma_m$  — материальная константа подложки [24]. Ток  $j_{AE}^{(1)}$  является обычным продольным АЭ-током, нечетным по  $\mathbf{q}$  [22, 24, 25]. Подстановка в уравнение (4) экспериментально наблюдаемой температурной зависимости проводимости пленки,  $\sigma_\square(T)$ , дает для коэффициента поглощения хорошее качественное и

количественное согласие с измеренным нами поглощением ПАВ.

Для того чтобы вычислить аномальную компоненту АЭ-тока  $j_{AE}^{(2)}$ , возникающую вследствие деформации пленки, необходимо найти величины  $S_{zz}$ ,  $S_{yy}$  и  $E_z$ . Так как пленка тонкая ( $aq \ll 1$ ), мы предполагаем, что  $S_{zz}$  и  $S_{yy}$  слабо изменяются по толщине пленки, т. е.  $S_{zz}(y, z, t) \approx S_{zz}(0, z, t)$  при  $0 < y < a$ . Деформация  $S_{yy}$  может быть оценена из соотношения  $S_{yy}(y, z, t) \approx -\nu S_{zz}(0, z, t)$ , которое является точным на свободной поверхности  $y = a$ , где  $\nu = c_{12}/c_{11} \approx 0.4$  согласно измерениям [26],  $c_{11}$  и  $c_{12}$  — компоненты тензора упругости магнитной пленки.

В ниобате лития деформация  $S_{zz}$  связана с электрическим смещением  $D_z$  и электрическим полем  $E_z$  соотношением

$$D_z = \varepsilon_{33} E_z + p_{33} S_{zz},$$

где  $\varepsilon_{33}$  и  $p_{33}$  — компоненты соответственно диэлектрического и пьезодиэлектрического тензоров (для простоты мы полагаем  $p_{32} = 0$ , так как этот параметр мал для ниобата лития и его учет дает поправку не более 1 % к нашим результатам). Таким образом, из уравнения (2) получаем

$$\begin{aligned} j_{AE}^{(2)} &= \frac{a\sigma_0}{p_{33}} (\Pi_{33} - \nu\Pi_{32}) \frac{1}{\theta} \times \\ &\times \int_0^\theta dt [D_z(+0, z, t) - \varepsilon_{33} E_z(0, z, t)] \bar{E}_z(z, t), \end{aligned} \quad (5)$$

где  $\bar{E}_z(z, t)$  — электрическое поле, усредненное по толщине пленки. При  $aq \ll 1$  имеем  $\bar{E}_z(z, t) \approx E_z(0, z, t)$ . Оценка вклада индукции  $D_z$  в  $j_{AE}^{(2)}$  в уравнении (5) показывает, что величиной  $D_z$  можно пренебречь, если  $1 \ll \sigma_0/\varepsilon\omega \ll 1/q\lambda_D$ , где  $\varepsilon$  — статическая диэлектрическая постоянная пленки. Это условие хорошо выполняется в нашем случае. Используя соотношение  $E_z(0) = iq\varphi(0)$  и выражая поверхностный потенциал  $\varphi(0)$  через  $\Phi$  и  $\Gamma$ , из уравнения (5) получаем

$$j_{AE}^{(2)} = -\Gamma\Phi\varepsilon_{33} (\Pi_{33} - \nu\Pi_{32}) / p_{33}. \quad (6)$$

Этот результат ясно показывает, что ток  $j_{AE}^{(2)}$  является четным по  $\mathbf{q}$ , а его направление определяется знаками  $p_{33}$  и  $\Pi_{3i}$ . Интересно отметить, что ток  $j_{AE}^{(2)}$  является объемным, в отличие от поверхностного тока  $j_{AE}^{(1)}$ , так как деформация и продольная компонента  $E_z$  электрического поля проникают на всю толщину тонкой пленки. Коэффициенты  $\Pi_{3i}$  определяют зависимость проводимости от давления:

$$2\Pi_{32} + \Pi_{33} = -\frac{3}{k} \frac{\partial \ln \sigma_0}{\partial P},$$

где  $k$  — коэффициент сжимаемости пленки. В соответствии с результатами экспериментов по давлению в манганитах [7], величина  $\partial \ln \sigma_0 / \partial P$  положительна и имеет резко выраженную температурную зависимость. А именно, этот параметр мал как при высоких, так и низких температурах и достигает максимальной величины около  $3.5 \text{ ГПа}^{-1}$  при температуре несколько ниже температуры максимума сопротивления. Из положительности  $\partial \ln \sigma_0 / \partial P$  следует, что коэффициенты  $\Pi_{3i}$  отрицательны. Для численных оценок мы полагаем  $\Pi_{33} \approx \Pi_{32}$ . Используя  $k^{-1} = 85 \text{ ГПа}$  [27], мы находим  $\max \Pi_{ij} \approx -300$ .

Из уравнения (6) следует, что для наблюдения аномального четного АЭ-эффекта необходимы следующие условия: зависимость проводимости пленки от давления ( $\Pi_{3i} \neq 0$ ); пьезоэлектрические свойства подложки ( $p_{33} \neq 0$ ) и наличие в ней выделенного направления. Более подробно мы обсудим эти условия в следующем разделе.

Развитая выше теория дает хорошее согласие с экспериментальными данными. В рамках выбранной системы координат константа  $p_{33}$  положительна [28]. Поэтому в соответствии с уравнением (6) АЭ-ток  $j_{AE}^{(2)}$  течет в направлении  $+z$ . Подставляя хорошо известные параметры ниобата лития и полученные нами экспериментальные данные для максимума поглощения ( $\Gamma \sim 2 \text{ см}^{-1}$ ) в уравнение (6), получаем значение в максимуме  $j_{AE}^{(2)} \approx 30 \text{ мкА/см}$  при интенсивности ПАВ  $\Phi \approx 3 \text{ Вт/см}$ . Наши экспериментальные данные (кривая 1 на рис. 5б) дают в максимуме величину  $j_{AE}^{(2)} \approx 100 \text{ мкА/см}$ . Учитывая приблизительный характер наших оценок величин  $\Gamma$ ,  $\Phi$  и  $\Pi_{3i}$ , мы рассматриваем согласие между теорией и экспериментом как удовлетворительное. Кроме того, уравнение (6) очень хорошо описывает температурное поведение  $j_{AE}^{(2)}$ , как показано на рис. 5б (кривая 4). Теоретическая кривая на этом рисунке, нормированная на экспериментальное значение в максимуме, вычислялась из уравнения (6) с использованием экспериментальной зависимости  $\Gamma(T)$  и температурной зависимости  $\partial \ln \sigma_0 / \partial P$ , полученной из экспериментальных данных по давлению [7]. Экспериментально наблюдаемый максимум тока  $j_{AE}^{(2)}$  сдвинут в сторону низких температур примерно на 15 К по сравнению с теоретическими расчетами. Этот сдвиг может быть вызван возможным различием в температурах максимума параметра  $\partial \ln \sigma_0 / \partial P$  для наших пленок и для объемного образца магнитита лантана [7]. Следует отметить также, что по по-

рядку максимум величины нечетного АЭ-тока  $j_{AE}^{(1)}$ ,  $\max j_{AE}^{(1)} \approx 10$  мкА/см, оцененный из уравнения (3), также достаточно хорошо согласуется с экспериментальными данными:  $\max j_{AE}^{(1)} \approx 50$  мкА/см (кривые 2, 3 на рис. 5б). Согласие теории с экспериментом можно улучшить, если предположить, что тонкие пленки мanganита имеют несколько большую чувствительность к давлению, чем объемные материалы. Это предположение, однако, требует дополнительных исследований.

## 6. ОБСУЖДЕНИЕ И ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе мы исследовали АЭ-эффект, возникающий в монолитной слоистой структуре, состоящей из пьезодиэлектрической подложки  $\text{LiNbO}_3$  и тонкой пленки мanganита  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  под действием поверхностной акустической волны (ПАВ). Возбуждая ПАВ на поверхности подложки в направлении  $+z$  (кристаллографическая ось  $z$  в пьезодиэлектрике  $\text{LiNbO}_3$  выделена), мы ожидали, что АЭ-ток в пленке лишь изменит свой знак, если возбудить ПАВ в противоположном ( $-z$ ) направлении, как это следует из общепринятых представлений о природе обычного АЭ-эффекта. Вместо этого мы обнаружили необычный эффект: в изучаемой слоистой структуре АЭ-токи, текущие в направлениях  $+z$  и  $-z$ , не только сильно различаются по абсолютной величине, но имеют разные температурные зависимости. Оказалось, что отсутствие симметрии в АЭ-эффекте между направлениями  $+z$  и  $-z$  вызвано появлением аномального АЭ-тока, который течет только в направлении  $+z$  при любом направлении распространения ПАВ вдоль оси  $z$ . В разд. 5 мы развили подробную теорию аномального АЭ-эффекта. Здесь мы суммируем результаты теории и даем простую качественную физическую картину этого явления в сравнении с обычным АЭ-эффектом.

Сначала рассмотрим природу АЭ-эффекта в монолитной слоистой структуре. Для этого полезно напомнить, что ПАВ, распространяющаяся по поверхности пьезодиэлектрической подложки из ниобата лития, создает области высокого и низкого давления, которые соответствуют областям отрицательной деформации (сжатия) и положительной деформации (растяжения). В свою очередь, вследствие пьезоэффекта деформации создают переменное в пространстве (и во времени) электрическое поле. Соотношение между знаком деформации и знаком компо-

ненты электрического поля вдоль оси  $z$  определяется только знаком соответствующей компоненты пьезодиэлектрического тензора и поэтому не зависит от того, распространяется ПАВ в направлении  $+z$  или  $-z$ . В случае ниобата лития  $z$ -компоненты электрического поля в области сжатия положительны, а в области растяжения отрицательны.

Теперь рассмотрим взаимодействие ПАВ с проводящей пленкой, помещенной на поверхность пьезодиэлектрической подложки. Если между пленкой и подложкой имеется механический контакт, то пленка подвергается воздействию как электрического поля, так и механических деформаций. Электрическое поле, сопровождающее ПАВ, проникает в пленку и вследствие эффекта экранировки создает на поверхности пленки экранирующие поверхностные заряды. ПАВ увлекает за собой эти заряды, в результате чего возникают поверхностные токи. Постоянная составляющая полного поверхностного тока представляет собой обычный АЭ-ток (см. уравнение (3)) [24]. Это квазиклассическая картина обычного АЭ-эффекта. В рамках квантовой теории, ПАВ может быть рассмотрена как поток фононов. Два описанных выше механизма обеспечивают взаимодействие этих фононов с носителями заряда в пленке, что дает два аддитивных вклада в АЭ-ток. Фононы передают импульс непосредственно носителям заряда, генерируя обычный АЭ-ток. Этот эффект существует, если имеется по крайней мере один из двух механизмов взаимодействия (например, при отсутствии механического контакта между исследуемой пленкой и подложкой носители заряда будут увлекаться только электрическим полем).

Рассмотрим теперь природу аномального АЭ-эффекта в пленке мanganита. Теоретическое рассмотрение в разд. 5 показало, что аномальный АЭ-эффект обусловлен тем, что при распространении ПАВ в пьезодиэлектрической подложке  $\text{LiNbO}_3$  как в направлении  $+z$ , так и в направлении  $-z$ , между знаком деформации и знаком  $z$ -компоненты электрического поля имеется строгая корреляция, описанная выше, а именно: в тех областях волны, где переменное электрическое поле ПАВ направлено вдоль  $+z$ , подложка (и вместе с ней пленка) сжимается, там же, где электрическое поле направлено вдоль  $-z$ , подложка (а следовательно, и пленка) расширяется. В области сжатия пленки подвижность носителей заряда увеличивается, а следовательно, увеличивается и проводимость пленки. В области расширения проводимость и подвижность носителей заряда уменьшаются. Поэтому средний ток (как по времени, так и по всему объему пленки),

производимый переменным электрическим полем ПАВ, в направлении  $+z$  оказывается больше тока в направлении  $-z$  вследствие большей подвижности электронов. В результате в пленке появляется постоянная (аномальная) составляющая полного тока вдоль направления  $+z$ . Таким образом, для возникновения аномального АЭ-эффекта необходимо одновременное и согласованное по фазе воздействие механических деформаций и электрического поля, а также чувствительность металлической пленки к деформациям. Такой эффект можно ожидать и в других проводящих материалах, в которых проводимость зависит от давления. Наблюдение нами аномального АЭ-эффекта в мanganите является независимым подтверждением очень сильной чувствительности этих соединений к внешнему давлению.

Основываясь на описанном выше механизме аномального АЭ-эффекта, можно сделать предсказание такого необычного явления как генерация АЭ-тока стоячей ПАВ, когда обычный АЭ-эффект отсутствует.

Авторы признательны С. Левандовскому и Г. Шимчаку (S. J. Levandowski and H. Szymczak, Institute of Physics, Warsaw, Poland) за плодотворное обсуждение результатов и активное содействие работе.

Работа частично поддержана Правительством Польши (KBN, Grants 2 PO3 139 18 and PBZ-KBN-013/T08/19) и РФФИ (проекты 99-02-18333 и 01-02-17479).

## ЛИТЕРАТУРА

1. C. Zener, Phys. Rev. **82**, 403 (1951).
2. A. J. Millis, P. B. Littlewood, and B. I. Schairman, Phys. Rev. Lett. **75**, 5144 (1995).
3. J. M. D. Coey, M. Viret, and S. von Molnàr, Adv. Phys. **48**, 167 (1999).
4. Л. П. Горьков, УФН **168**, 665 (1998).
5. Э. Л. Нагаев, УФН **166**, 833 (1996).
6. D. L. Khomski and G. A. Sawatzky, Sol. St. Comm. **102**, 87 (1997).
7. Y. S. Wang, A. K. Heilman, B. Lorentz, Y. Y. Xue, and C. W. Chu, Phys. Rev. B **60**, R14998 (1999); J. J. Neumeier, M. F. Hundley, Y. D. Thompson, and R. H. Heffer, Phys. Rev. B **52**, R7006 (1995).
8. Guo-meng Zhao, V. Smolyaninova, W. Prellier, and H. Keller, Phys. Rev. Lett. **84**, 6086 (2000).
9. M. F. Hundley and J. J. Neumeier, Phys. Rev. B **55**, 11511 (1997).
10. T. T. M. Palstra, A. P. Ramirez, S.-W. Cheong, and B. R. Zegarski, Phys. Rev. B **56**, 5104 (1997).
11. G. Jakob, F. Martin, W. Westerburg, and H. Adrian, Phys. Rev. B **57**, 10252 (1998); S. H. Chun, M. B. Salamon, Y. Lyanda-Geller, P. M. Goldberg, and P. D. Han, Phys. Rev. Lett. **84**, 757 (2000).
12. Li Wang, J. Yin, S. Huang, X. Huang, J. Xu, Z. Liu, and K. Chen, Phys. Rev. B **60**, R6976 (1999).
13. А. И. Морозов, Письма в ЖЭТФ **2**, 362 (1965).
14. O. Entin-Wohlman, Y. Levinson, and Yu. M. Galperin, Phys. Rev. B **62**, 7283 (2000).
15. В. Л. Гуревич, А. Л. Эфрос, ЖЭТФ **44**, 2131 (1963); В. Л. Гуревич, ФТП **2**, 1557 (1968).
16. Y. Ilisavskii, A. Goltsev, K. Dyakonov, V. Popov, E. Yakhkind, V. P. Dyakonov, P. Gierlowski, A. Klimov, S. J. Lewandowski, and H. Szymczak, Phys. Rev. Lett. **87**, 146602 (2001).
17. D. Emin and T. Holstein, Ann. Phys. **53**, 439 (1969).
18. G. Jakob, W. Westerburg, F. Martin, and H. Adrian, J. Appl. Phys. **85**, 4803 (1999).
19. P. Mandal, Phys. Rev. B **61**, 14675 (2000).
20. A. K. Heilman, Y. Y. Xue, Y. Y. Sun, R. L. Meng, Y. S. Wang, B. Lorenz, C. W. Chu, J. P. Franck, and W. Chen, Phys. Rev. B **61**, 8950 (2000).
21. B. Chen, C. Vher, D. R. Morelli, J. V. Mantence, A. M. Mance, and A. L. Micheli, Phys. Rev. B **53**, 5094 (1996).
22. G. Weinreich, Phys. Rev. **107**, 317 (1957).
23. H. G. Reik, Sol. St. Comm. **1**, 67 (1963); M. I. Klinger, Phys. Lett. **7**, 102 (1963).
24. K. A. Ingebrigtsen, J. Appl. Phys. **41**, 454 (1970).
25. A. R. Hutson and D. L. White, J. Appl. Phys. **33**, 40 (1962).
26. C. Zhu and R. Zheng, J. Appl. Phys. **87**, 3579 (2000).
27. C. Zhu, R. Zheng, J. Su, and J. He, Appl. Phys. Lett. **74**, 3504 (1999).
28. R. T. Smith and F. S. Welsh, J. Appl. Phys. **42**, 2219 (1971); R. A. Graham, J. Appl. Phys. **48**, 2153 (1977).