

La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃/Eu₂CuO₄/La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃ 磁性 隧道结的制备与表征^{*}

唐为华^{1,2)†} 李培刚¹⁾ L.H. Li³⁾ J. Gao²⁾

¹⁾ 中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100080)

²⁾ 香港大学物理系, 香港, 中国)

³⁾ Department of Physics, University of Rhode Island, Kingston, RI 02881, USA)

(2004 年 3 月 12 日收到, 2004 年 5 月 8 日收到修改稿)

采用磁控溅射、紫外线光刻和离子束刻蚀制备了 La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃/Eu₂CuO₄/La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃ 磁性隧道结. 通过对获得的磁性隧道结的 $I-V$ 特性测量, 发现非线性的 $I-V$ 特性, 显示结样品的隧穿特性. 有趣的是发现在电极材料 La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃ 的金属-绝缘体转变温度 (T_p) 以下, $I-V$ 曲线出现一个跳变. 随着温度降低, 开始出现跳变的临界电流增大, 但是跳变都发生在同样的电压下 ~ 209 mV. 当电流增大或减小在跳变点附近出现回滞. 这一跳变只发生在铁磁金属态, 表明这是一个磁性相关联的效应, 可能对应一种新的磁性开关过程. 虽然, 目前对这一现象背后的物理机理还不清楚, 但是, 这一现象有可能在未来自旋电子学器件方面具有潜在的应用价值.

关键词: 庞磁电阻, 磁性隧道结, 开关效应

PACC: 6855, 7200, 7340L

1. 引 言

钙钛矿结构及其衍生的氧化物表现出丰富多彩的热动力学和电磁学特性, 如铁电, 高温超导 (HTSC) 庞磁电阻特性 (CMR) 等. 掺杂稀土锰氧化物的 CMR 效应是近年来凝聚态物理学的研究热点之一^[1]. 自旋、电荷、轨道自由度之间强的耦合导致 CMR 材料新颖电磁特性, 如随着载流子浓度的变化出现铁磁金属转变和电荷有序化等^[2-5]. 从晶体结构的观点来看, CMR 锰氧化物和高 T_c 超导体铜氧化物具有相似的晶体结构, 因此, 对 CMR/HTSC 异质外延薄膜的结构和物理界面的研究具有重要的学术意义, 同时也可能开发产生新的电子学器件^[6]. La_{2/3}Ca_{1/3}MnO₃ (LCMO) 表现出 CMR 效应, 其导电载流子为 p 型, Eu₂CuO₄ (ECO) 可通过 Ce⁴⁺ 替代部分 Eu 获得 n 型的超导体. 利用 ECO 作为缓冲层, 可以生长获得优质的高温超导 YBa₂Cu₃O_y 薄膜^[7,8].

LCMO 和 ECO 的晶格匹配较好, 我们尝试利用这两种材料, 制备磁性隧道结, 同时尝试制备 p-n 结, 这种 p-n 结的特性将受磁场影响, 可实现磁场控制的 p-n 结. 最近, 钙钛矿结构氧化物的 p-n 结引起人们的研究兴趣^[9-12]. 本文将报道 LCMO/ECO/LCMO 磁性隧道结的制备与表征.

2. 实 验

LCMO 和 ECO 薄膜采用离轴磁控溅射技术生长^[13]. 基片为 (100) 取向的 SrTiO₃ (STO) 单晶. 沉积气体为高纯氧和氩混合气体, 气压为 (1-2) × 10⁻³ Pa. 通过插入加热器内的 k-type 热偶测量衬底温度, 衬底温度为 740-780 °C. 溅射功率为 75 W, 平均功率密度约为 4 W/cm². 沉积后的薄膜在氧气氛 700-1000 °C 下原位退火 30 min. 获得的 LCMO/ECO 薄膜通过 x 射线电子能谱 (EDAX), x 射线衍射 (XRD), 表面形貌仪 (surface profiler) 和扫描电子显微镜 (SEM) 对其成分、结构和表面特性进行表征. 表面平整度极

^{*} 中国科学院百人计划基金资助的课题.

[†] E-mail: whtang@aphy.iphy.ac.cn; 电话: 010-82648051.

高(平均表面粗糙度 $R_a < 5\text{nm}$)的高质量的外延薄膜用来制备隧道结样品^[14,15].

本文的 LCMO/ECO/LCMO 隧道结样品采用紫外线光刻和离子束刻蚀技术加工获得,制备过程如图 1 所示.首先,溅射获得 LCMO/ECO 两层薄膜(图 1 (a));然后,通过光刻和离子束刻蚀获得一斜坡面

(图 1(b)和(c));其次,在有斜坡面薄膜上再溅射生长阻挡层和上电极(图 1(d));最后,通过光刻和离子束刻蚀获得最终 LCMO/ECO/LCMO 隧道结(图 1 (e)和(f)).结区的面积为 $5\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$ 和 $5\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$,阻挡层(ECO)的厚度为 5—30nm,上下电极的厚度约为 150nm.

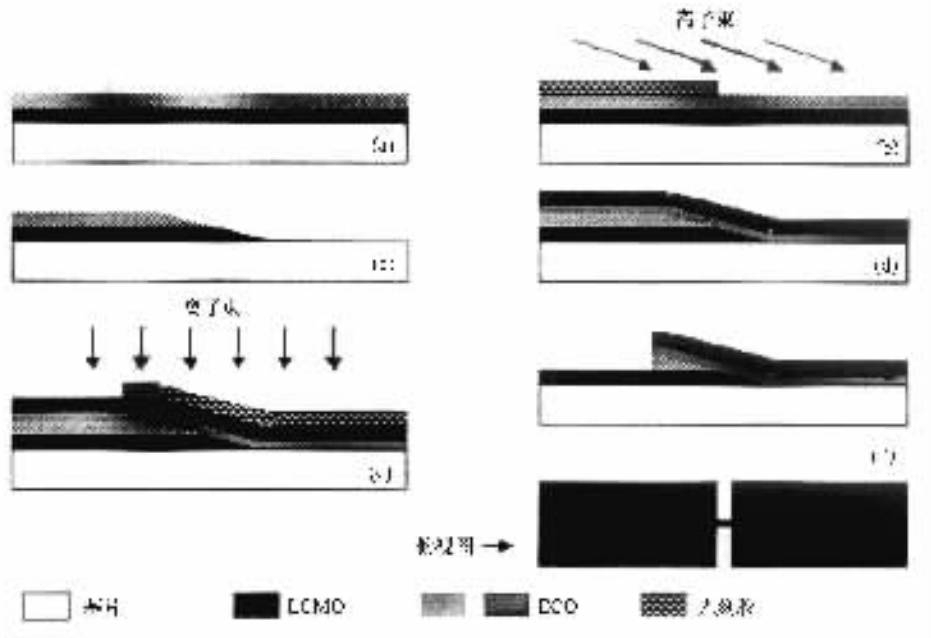


图 1 LCMO/ECO/LCMO 隧道结制备过程图示

LCMO/ECO/LCMO 结的 $R-T$ 和 $I-V$ 特性采用标准的直流四引线法测量,低温测量在 He 密闭循环压缩致冷的低温系统内进行.采用一个 100Ω 串联电阻实时监控样品电流,温度测量采用 Pt 电阻温度计.

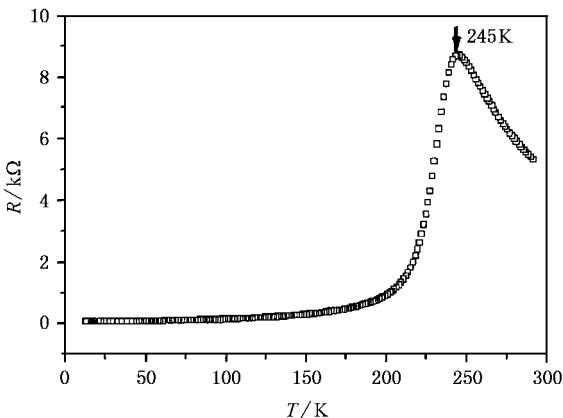


图 2 典型的 LCMO/ECO/LCMO 结的跨结电阻随温度的变化曲线

3. 结果与讨论

图 2 是一个典型的 LCMO/ECO/LCMO 结的跨结电阻随温度的变化曲线,跨结测量电阻时样品电流小于 $50\mu\text{A}$.从图 2 可以看出,LCMO/ECO/LCMO 结在高温区显示半导体行为,当温度降低到 245K 左右有一半导体—金属转变,转变温度称为 T_p .这一特性与单层薄膜的 LCMO 一致,表明上下 LCMO 电极之间存在着耦合.LCMO 表现出的金属—半导体转变直接与铁磁性转变关联.

图 3 是一个典型 LCMO/ECO/LCMO 隧道结不同温度下的 $I-V$ 特性.当温度高于 T_p 时, $I-V$ 曲线为线性特性,说明不存在载流子的隧穿效应.当温度低于 T_p 时,发现当电流从零开始增大时,结两端电压首先线性增加,接着偏离线性变化,结电阻变小.结电阻变小表明电子输运过程有隧穿效应的贡献.根据我们的了解,到目前为止 CMR 隧道结的隧道效应很少报道.当电流增大到某一临界值时,电压出现一个

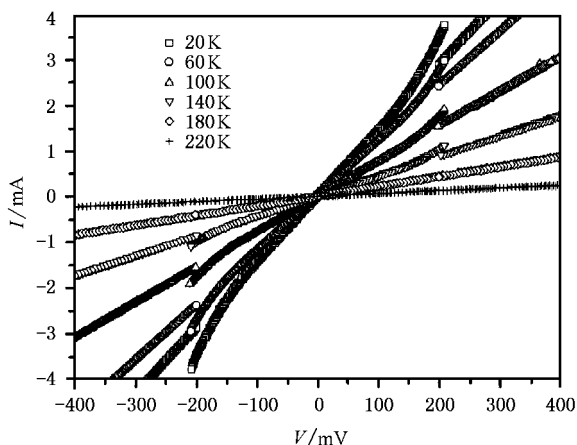


图3 典型的 LCMO/ECO/LCMO 隧道结不同温度下的 $I-V$ 曲线

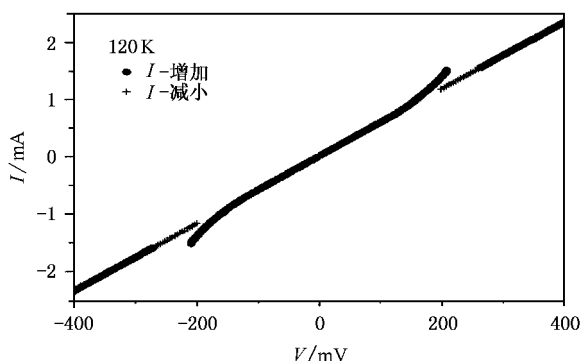


图4 LCMO/ECO/LCMO 隧道结电流增加和减小一个循环的 $I-V$ 曲线

不连续跳变. 跳变出现后, 结电压继续随电流增大非线性增加. 当电流减小时, 以上过程重复出现, 但是跳变向低电流方向移动, 出现一个回滞(如图4所示). 为了排除热效应的影响, 我们连续测量几个循环的 $I-V$ 曲线, 没有发现任何可测量得到的差别. 随

着温度的减低, 出现跳变的临界电流增大, 表明温度越低, 隧道效应越明显. 从电压坐标看, 随着温度的变化, 跳变发生在相同的电压下, 大约 209mV. 这表明这一跳变过程可能与 LCMO 和 ECO 的能带结构直接相关.

到目前为止, 我们还不清楚这一跳变所反映的物理本质, 这种跳变可能对应一种新的开关过程 (switching process). 这种开关现象只发生在铁磁金属态, 表明它是一种磁性相关联的开关效应. 这种开关效应有可能在自旋电子器件应用方面具有潜在的价值.

最近, 研究 CMR 材料在电场或电流驱动下的效应成为一个研究热点. 电流引起的电阻突变有很多报道. Wu 等用 CMR 材料和铁电材料 PZT 或介电材料 STO 构造的场效应器件, 发现大的电致电阻效应^[16]. Tulina 等^[17]在正常金属和 CMR 锰氧化物单晶体构成的点接触结构和 Sun^[18]在锰氧化物磁性三层隧道结结构中观察到电阻的电流引起的开关效应. Gao 等^[19]发现电流的大小对 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 和 $\text{La}_{0.85}\text{Ba}_{0.15}\text{MnO}_3$ 薄膜的金属—绝缘体转变的峰值电阻值有很大的影响. 所有这些现象的物理原因目前还不太清楚, 可能与相不稳定性和电流引起的自旋转移有关.

4. 结 论

我们成功的制备了 $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{Eu}_2\text{CuO}_4/\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ 隧道结, 观察到隧道效应, 发现一种新的磁性相关联的开关效应. 虽然这种新的开关效应的物理背景还不清楚, 但是这种效应有可能在自旋电子器件应用方面具有潜在的价值.

[1] Salamom M B and Jaime M 2001 *Rev. Mod. Phys.* **73** 583
 [2] Von. Helmut R, Wecker J, Holzapfel B, Chultz M, Schultz K and Samwer K 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 2331
 [3] Jin S, Tile T H, McCormack M, Fastnacht R A, Ramesh R A and Chen L H 1994 *Science* **264** 413
 [4] Zhao G M, Conder K, Keller H and Muller K A 1996 *Nature* **381** 676
 [5] Millis A J 1998 *Nature* **392** 147
 [6] Si Q 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1767
 [7] Tang W H et al 2001 *J. Mater Research* **16** 2864

[8] Gao J, Kang L, Wong H Y, Cheung Y L and Yang J 2003 *Int. J. Mod. Phys. B* **17** 3695
 [9] Mita C, Raychaudhuri P, Kobernik G, Dorr K, Muller K H, Schultz L and Pinto R 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 2408
 [10] Tanaka H, Zhang J and Kawai T 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 027204
 [11] Mita C, Raychaudhuri P, Dorr K, Muller K H, Schultz L, Oppeneer P M and Wirth S 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 017202
 [12] Lu H B, Dai S Y, Chen Z H, Liu L F, Guo H Z, Xiang W F, Fei Y Y, He M, Zhou Y L and Yang G Z 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 137

- [13] Tang W H and Gao J 1999 *Physica C* **313** 115
Rev. Lett. **86** 5998
- [14] Tang W H , Kam T L , Gao J 2001 *Materials Research Bulletin* **36** 1463
 [17] Tulina N A , Zver'kov S A , Mukovskii Y M and Shulyatev D A 2001
Europhys. Lett. **56** 836
- [15] Tang W H *et al* 2002 *Materials Research Bulletin* **37** 2531
 [18] Sun J Z 2001 *Physica C* **350** 215
- [16] Wu T , Ogale S B , Garrison J E , Nagaraj B , Biswas A , Chen Z ,
 Greene R L , Ramesh R , Venkatesan T and Millis A J 2003 *Phys.*
 [19] Gao J , Shen S Q , Li T K and Sun J R 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82**
 4732

Fabrication and characterization of $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{Eu}_2\text{CuO}_4/\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ magnetic tunneling junctions^{*}

Tang Wei-Hua^{1,2†} Li Pei-Gang¹⁾ L. H. Li³⁾ J. Gao²⁾

¹ *Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

² *Department of Physics, the University of Hong Kong, Hong Kong, China*

³ *Department of Physics, University of Rhode Island, Kingston, RI 02881, USA*

(Received 12 March 2004; revised manuscript received 8 May 2004)

Abstract

Magnetic tunneling junctions of $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3/\text{Eu}_2\text{CuO}_4/\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ have been fabricated by RF-magnetron sputtering, photolithography and ion beam etching. Tunneling effect was observed in these junctions by measuring their I - V curves. Interestingly, a discontinuity was observed in the I - V curves below the metal-insulator transition temperature (T_p) of $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$. By changing temperatures, the discontinuity in I - V curves happens at the same voltage of 209mV, but starts at different currents. The discontinuity starting current (I_c) decreases with increasing temperature. There is a hysteresis near the discontinuity when the current increases and decreases. The discontinuity in I - V curves could indicate a novel switching process. This switching phenomenon occurs only in the ferromagnetic metal state and strongly suggesting a magnetic related effect. The physics of the switching process has not been understood yet, but it could be of interest for potential applications in spintronic devices.

Keywords: colossal magnetoresistance, magnetic tunneling junction, switching effect

PACC: 6855, 7200, 7340L

^{*} This work was supported by the '100-outstanding Talents Project' of Chinese Academy of Sciences.

[†] E-mail: whtang@aphy.iphy.ac.cn; Tel: 010-82648051.