

不同氮流量制备 Mn_3CuN_x 薄膜及其电、磁输运性质的研究*

纳元元 王聪[†] 褚立华 丁磊 闫君

(北京航空航天大学物理系, 凝聚态物理与材料物理研究中心和微纳测控与低维物理教育部重点实验室, 北京 100191)

(2011年4月1日收到; 2011年5月30日收到修改稿)

采用对靶磁控溅射方法在单晶 Si (100) 基片上制备了反钙钛矿结构的 Mn_3CuN_x 薄膜. 通过控制制备过程中的反应气体氮气 (N_2) 流量 ($\text{N}_2/\text{Ar}+\text{N}_2$), 研究了氮含量对 Mn_3CuN_x 薄膜结构及物理性能的影响. 分别利用 X 射线衍射仪、俄歇电子能谱、原子力显微镜、X 射线光电子能谱、物理性能测试系统和超导量子干涉仪, 对所制备薄膜的晶体结构、成分、表面形貌和电、磁输运性质进行了测试. 结果表明: 制备的薄膜均为反钙钛矿立方结构, 且沿 (200) 晶面择优生长. 随着氮含量的增大, 薄膜表面粗糙度和颗粒度尺寸逐渐增大, 导致电阻率增加. 氮含量对薄膜的电输运性质没有影响, 所有薄膜电阻率均随着温度的降低逐渐增大, 呈现半导体型导电行为, 这与对应的块体材料结果相反. Mn_3CuN_x 薄膜随着测试温度的增大发生了亚铁磁到顺磁的磁转变, 且 N 含量的增大降低了磁有序转变温度, 主要是由于 N 缺陷对 Mn_6N 八面体结构中磁交换作用的影响所致.

关键词: 反钙钛矿结构, Mn_3CuN_x 薄膜, 氮含量, 电输运性质

PACS: 68.55.-a, 73.50.-h

1 引言

$\text{Mn}_3\text{XN}(\text{C})$ (X : Zn, Ga, Cu, Al, In, Sn 等) 化合物的晶体结构属反钙钛矿型立方结构 (空间群为 $Pm-3m$). 此类材料因具有负热膨胀、磁致伸缩、磁卡效应、巨磁阻效应和近零电阻温度系数等物理性质而备受瞩目^[1-11]. 研究发现, 与一般的反钙钛矿 Mn_3XN ($X = \text{Zn}, \text{Sn}$ 等) 材料不同, Mn_3CuN 材料在居里温度以下为铁磁性或亚铁磁性, 在 150 K 处经历立方到四方的相变, 并且表现出较大的磁致伸缩^[4]. Chi 等^[9] 还研究了 Mn_3CuN 的电阻随温度的变化规律, 在居里温度以上, Mn_3CuN 的电阻几乎不随温度而变化, 材料的电阻温度系数几乎为零, 称为近零电阻温度系数 (NZ-TCR). 当温度接近 150 K 时电阻出现拐点, 而高于 150 K, 电阻几乎不随温度的变化而变化. 研究同时发现, 在磁相变温度附近材料的磁阻值为 4%. 这些有趣的物理现象引起了学术界的关注. 目前此类材料的大部

分研究都集中于围绕块体的物理性质及 X 位置不同元素的掺杂效应进行的. 由于薄膜制备的困难性, 关于反钙钛矿结构 Mn_3XN 薄膜的研究至今报道很少, 目前三元化合物薄膜只有如 Mn_3GaC ^[12], Mn_3CuN ^[13,14]. 但基于反钙钛矿 Mn_3CuN 块体材料中发现的大量有趣的物理特性如: 磁阻、磁致伸缩效应、近零电阻温度系数现象等, 在低维材料中, 其电磁特性会发生什么样的变化, 将是一个很有意义的研究方向. 我们知道, 由于低维效应, 二维薄膜材料与块材的物理性质会有很大差异, 而且薄膜材料在很多领域有其独特的应用. 因此, 开展三元反钙钛矿结构 Mn_3XN 化合物薄膜的研究是非常有必要的.

我们曾报道过磁控溅射制备 Mn_3CuN 薄膜及其物性的研究^[13,14], 发现随着基底温度的升高, Mn_3CuN 薄膜呈现出从 (111) 转变为 (200) 择优生长的变化趋势, 尤其发现其电、磁输运和热膨胀性质与块体材料相比确实存在较大的差别. N 含量是

* 国家自然科学基金 (批准号: 50772008, 51172012) 资助的课题.

[†] E-mail: congwang@buaa.edu.cn

薄膜材料物理性能的一个重要参数^[15]. 从结构上看, $Mn_3XN(C)$ 结构与 ABO_3 型结构是相对应的. ABO_3 中占据立方体心位置的 O 起着重要作用, 其富氧或缺氧产生明显不同的物性; 而 $Mn_3XN(C)$ 中占据立方体心位置的 N(C) 元素同样起着重要的作用, 不同 N(C) 含量的变化表现出很有规律的物性调控^[16]. 通过之前的研究工作^[14,17-20], 发现不同制备工艺对薄膜物性的调控十分关键. 我们知道电输运性质在材料物性研究中是一个非常重要的研究方向, 具有丰富的物理内涵, 但针对反钙钛矿结构薄膜相关方面的研究鲜有报道. 在本文中, 我们运用对靶磁控溅射方法, 采用 Mn-Cu 合金靶在不同 Ar:N₂ 比的条件下, 在单晶 Si 基片上制备了不同 N 含量的 Mn_3CuN_x 薄膜, 并对该薄膜的结构和成分进行分析表征, 首次探讨了该材料中表面形貌以及电、磁输运性质随 N 含量的变化.

2 实验

采用对靶磁控溅射系统制备 Mn_3CuN_x 薄膜. 靶材选用纯度为 99.99% 的高纯 Mn-Cu 合金靶, 直径 100 mm, 厚度 3 mm. 基片使用单面抛光的单晶 Si (100), 尺寸为 25 mm×25 mm×0.5 mm, 放置在垂直于靶表面 10 cm 的地方. 溅射前分别用丙酮和去离子水超声波清洗各 15 min. 预留本底真空度至 6.5×10^{-5} Pa, 后通入反应和溅射气体混合气 (Ar 气和 10% N₂ 气, 纯度 99.99%) 和 Ar 气 (纯度 99.99%). 为了除去靶材表面的污染物和氧化层, 在沉积薄膜之前, 靶表面在 Ar 气氛中预溅了 40 min. 制备工艺见表 1. 以前的实验表明, 用磁控溅射法制备薄膜, 可以通过改变 N₂ 流量来调控薄膜中 N 的含量, 即随着 N₂ 流量的增大, 薄膜中的 N 含量逐渐增加^[19,20]. 因此本工作通过固定其他工艺参数, 调节 Ar:N₂ 比例来制备不同 N 含量的具有反钙钛矿结构的 Mn_3CuN_x 薄膜 (分别记

为 N1, N2 和 N3 样品). 为了在分析时避免厚度对形貌的影响, 我们通过控制溅射时间将不同薄膜的厚度调整在 300 nm 左右.

采用 X 射线衍射仪 (XRD, BrukerAXS (Siemens) D5005, Cu K α 射线源, 波长为 1.5406 Å, 管压 40 kV, 管流 40 mA) 对 Mn_3CuN_x 薄膜进行物相及晶体结构分析, 并利用 CMPR 软件处理实验数据及计算晶格常数. 采用 α 台阶仪对薄膜的厚度进行测量. 采用原子力显微镜 (AFM, China Sunnylink SPFO-I-A) 对薄膜的表面形貌和粗糙度进行测试. 用俄歇电子能谱仪 (AES) 和 X 射线光电子能谱 (XPS) 对薄膜进行元素成分分析和深度剖析. 利用物理性质测量系统 (PPMS) 结合四探针法在不同温度 (5 K—300 K) 和不同磁场条件下 (0 T 和 5 T) 对薄膜的电输运性质进行了测试. 最后在外磁场 6000 Oe 条件下利用超导量子干涉仪 (SQUID) 对样品的磁场强度随温度变化关系进行了测试, 此处升温速率为 5 K/min.

3 结果与讨论

3.1 X 射线衍射结果分析

首先, 我们对不同 N 含量的 Mn_3CuN_x 薄膜进行了 XRD 分析, 如图 1 所示. 由图谱可以明显地看出, 所有薄膜在 $2\theta = 46.4^\circ$ 附近有一较强的衍射峰, 该峰与标准 XRD 卡片 (23-0220) 上反钙钛矿结构 Mn_3CuN 的 (200) 衍射峰对应, 另外 33° 和 69° 附近的两个峰分别属于基底 Si 的 (200) 和 (400) 衍射峰. 此外, 该图谱上没有出现 Mn 或 Cu 元素单质的衍射峰, 也没有其他氧化物、氮化物衍射峰等其他杂峰出现. 这表明: 该薄膜形成了反钙钛矿结构相, 并且沿 (200) 晶面择优生长. 利用 CMPR 软件计算出 N1, N2 和 N3 样品的晶格常数分别为: $a = 3.8769 \text{ \AA}$, 3.8944 \AA , 3.9158 \AA ($\pm 0.0002 \text{ \AA}$).

表 1 Mn_3CuN_x 薄膜制备工艺参数

样品号	真空度/Pa	气体流量比		功率/W	溅射气压/Pa		基底温度/ $^\circ\text{C}$
		Ar + 10%N ₂	Ar		Ar + 10%N ₂	Ar	
N1	6.5×10^{-5}	6	9	100	2.7	0.9	180
N2	6.5×10^{-5}	6	6	100	2.7	0.9	180
N3	6.5×10^{-5}	6	3	100	2.7	0.9	180

另外,我们发现所制备的 N3 样品的晶格常数明显大于 Mn_3CuN 块体的晶格常数 ($a = 3.9051 \text{ \AA}$), 呈现张应力状态. 而 N1 和 N2 样品的晶格常数小于 Mn_3CuN 块体的晶格常数, 呈现压应力状态. 利用 Scherrer 公式: $D = K\lambda/\beta\cos\theta$ (其中 D 为晶粒尺寸; K 为常数, 等于 0.89; λ 为 X 射线波长等于 0.154 nm; β 为峰的半高宽; θ 为衍射角) 和 Mn_3CuN (200) 衍射峰数据, 我们对 Mn_3CuN_x 薄膜沿 (200) 晶面的晶粒尺寸进行了计算, 其平均晶粒尺寸均小于 100 nm. 这也间接表明我们成功地制备出了反钙钛矿结构的 Mn_3CuN_x 纳米薄膜.

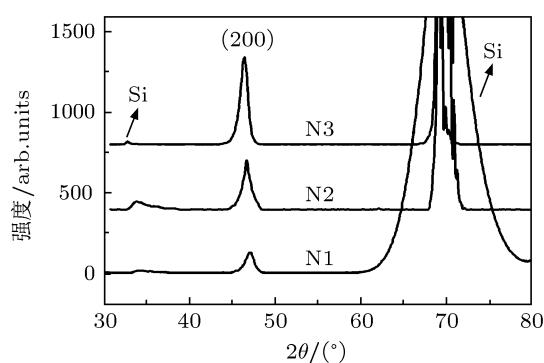


图1 不同 N_2 流量下制备的 Mn_3CuN_x 薄膜的 XRD 图

3.2 AES 和 XPS 结果分析

为了分析 Mn_3CuN_x 薄膜的成分, 我们选择了 N 含量最大的 N3 样品, 采用 AES 对其进行成分分析和深度剖析, 成分深度分析使用 Ar^+ 枪, 溅射速率为 20 nm/min. 图 2 为 Mn_3CuN_x 薄膜 (N3 样品) 的 AES 谱图. 为减少样品表面吸附氧和水的影响, 首先对样品表面进行了刻蚀. 从深度谱图可以看出: 薄膜表面富含大量的 O 元素, 在 20 nm 处 Mn, Cu, N 元素的含量开始增多, 并一直保持均匀分布于整个薄膜, 说明本文制备的薄膜成分均匀. 三元素 N : Cu : Mn 的含量比接近于名义成分计量比, 为 0.96 : 1.1 : 3 (定义 Mn 为 3). 为了进一步了解 Mn_3CuN_x 薄膜的结构与成分, 我们也对薄膜 N1 和 N2 样品进行了 XPS 检测. 如图 3 所示. 为减少样品表面吸附氧和水的影响, 首先对样品表面进行了 Ar^+ 溅射刻蚀 21 nm. 从图中可以看出随着名义 N 含量的增大, N 1s 峰强增大. 通过 XPS 定量分析得出 N1 和 N2 样品中 Mn 和 N 的原子比约为 3 : 0.93 和 3 : 0.94 (定义 Mn 为 3). 综合 XRD,

AES 和 XPS 测试结果, 我们认为, 通过对靶磁控溅射方法改变 N_2 流量可以制备出不同 N 含量的反钙钛矿立方结构的 Mn_3CuN_x 薄膜.

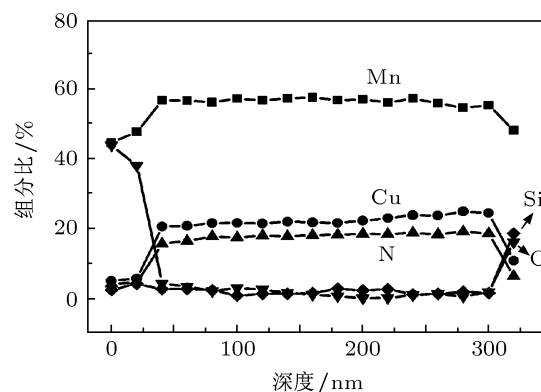


图2 不同 N_2 流量下制备的 Mn_3CuN_x 薄膜 (N3 样品) 的成分深度 AES 谱分析

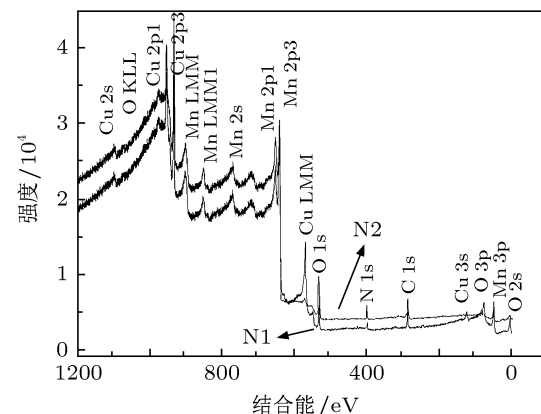


图3 Mn_3CuN_x 薄膜 N1 和 N2 样品 XPS 全谱图 (1200—0 eV)

3.3 AFM 结果分析

图 4 为不同 N 含量 Mn_3CuN_x 薄膜样品的表面和三维形貌图 ($1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$). 由图可以看出: 所有薄膜表面比较光滑, 结构较致密. 这说明利用本技术制备的 Mn_3CuN_x 薄膜均匀致密, 晶粒均匀性好. 在 AFM 图像分析中, 均方根粗糙度 (root mean square roughness (R_q)) 是用来表征薄膜表面平整程度的主要指标 [21]. 若薄膜表面低凹处和突起处的起伏越大则 R_q 就越大, 薄膜表面就越粗糙. 通过 imager 软件计算得到相应的 N1, N2 和 N3 样品的表面均方根粗糙度 R_q 值分别为 2.0 nm, 2.8 nm 和 5.5 nm; 颗粒尺寸分别为 61 nm, 73 nm 和 106 nm, 即随着 N 含量的增大, 薄膜颗粒尺寸和表面粗糙度都增大. 我们分析, 在低 N_2 流量条件下, 薄膜生长速率相对较高, 因此薄膜生长表面成核速率高但是

晶核难以长大, 薄膜晶粒尺寸偏小. 随着 N_2 流量的增加, 薄膜生长速率逐渐降低, 这将有利于沉积原子在薄膜生长表面扩散, 释放自由能量, 导致薄膜

生长表面成核密度降低而晶核逐渐长大, 因此薄膜晶化强度越来越好, 且晶粒尺寸长大, 从而表面粗糙度增大.

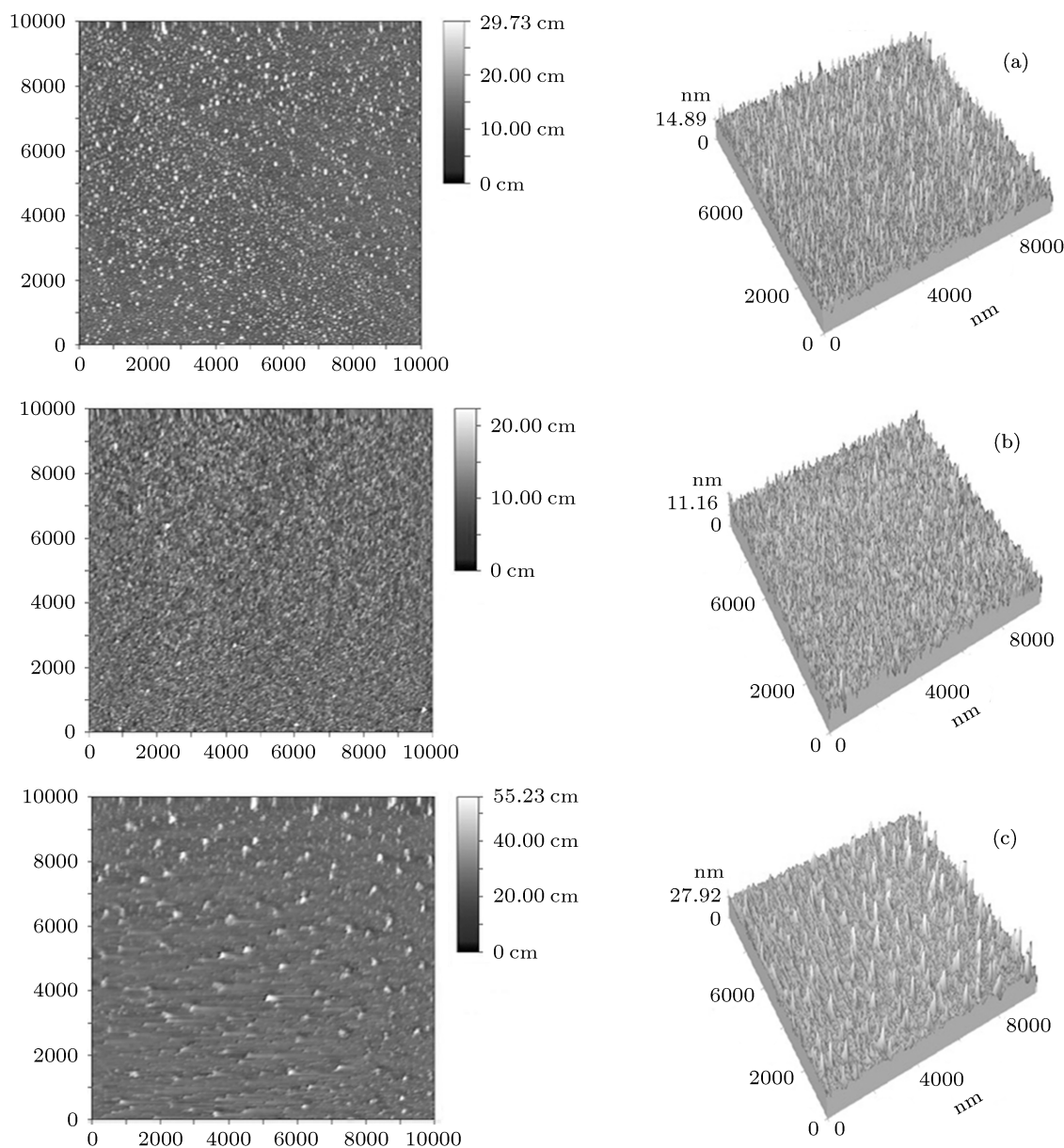


图 4 不同 N_2 流量下制备的 Mn_3CuN_x 薄膜的 AFM 图 (a) N1; (b) N2; (c) N3

3.4 Mn_3CuN_x 薄膜的电输运性质

图 5 给出了不同 N 含量的 Mn_3CuN_x 薄膜电阻率随温度的变化关系. 从图中可以看出: 随着 N 含量的增加, 薄膜电阻率逐渐增大. 这归因于薄膜的电阻与表面粗糙度和颗粒度大小有关. 从前面的分析可知, 随 N 含量的增大, Mn_3CuN_x 薄膜的表面粗糙度和颗粒度大小均逐渐增大, 自由电子的散射效

应增强, 导致迁移率降低, 从而导致了电阻率逐渐增大. 但是总的来说, 所有薄膜电阻率在整个测量温区内均随温度的升高而不断下降, 呈现半导体型导电行为. 为了便于研究薄膜的输运特性, 对薄膜的 $\rho-T$ 曲线用多项式 $\rho = \rho_0\rho_1T^2 + \rho_2T^4$ 进行了拟合分析, 见图 5 中的内嵌图. 电阻输运特性受杂质、能带结构、电子-电子和电子-磁振子散射等因素的影响. 其中 ρ_0 是剩余电阻率, 来源于杂质、晶

界、缺陷、畴壁等与温度无关的散射, $\rho_1 T^2 + \rho_2 T^4$ 分别来源于电子-电子散射和电子-磁振子散射对电阻率的贡献^[22]. 结果显示电阻率用此多项式拟合得很好, N1, N2 和 N3 样品的电阻率-温度关系拟合式分别为: $\rho = 1.0224 + 1.094E-6T^2 + 1.7057E-12T^4$, $\rho = 2.0426 + 3.9874E-6T^2 + 4.0603E-11T^4$, $\rho = 5.7259 + 6.1704E-7T^2 + 6.7557E-11T^4$. 我们发现电子-磁振子散射系数 ρ_2 远小于 ρ_1 , 反映了 Mn_3CuN_x 薄膜的电阻率主要来源于电子-电子的散射. 另外通过对比发现, 薄膜与粉体材料的导电行为发生了较大改变. 过去 Mn_3CuN 粉体材料中报道了有趣的电输运性质, 即在 150 K 以上呈现近零电阻温度系数现象. 但是在该薄膜材料中并没有获得这一性质, 说明该薄膜与粉体材料的散射机制可能具有较大的区别. 晶界对块体材料电阻率影响较小, 因为块体中晶粒尺寸通常比电子的平均自由程大得多. 然而, 在(多晶)薄膜的情况下, 晶界散射对电阻率的影响却是不容忽视的. 因此, 我们认为不同的散射机制、低维效应、成分化学计量

比、结晶度以及基底与薄膜之间的应力等对薄膜的电输运性质有显著的影响^[13,14].

另外, 选取 N3 样品在不同磁场条件下测试了电阻率-温度曲线, 如图 6 所示. Chi 等^[9] 报道了 Mn_3CuN 粉体在磁转变温度附近出现了磁阻现象, 峰值达到 4%. 通过之前的研究^[14], Mn_3CuN_x 薄膜在 225 K 附近发生了亚铁磁到顺磁的磁相变. 但是如图 6 所示, 在外加磁场 5 T 条件下, 整个测试温区范围的薄膜电阻率都没有明显的变化, 依然重复无磁场时的变化趋势, 也间接说明电阻-温度关系的重复性很好, 即在 Mn_3CuN_x 薄膜中, 应用了 5 T 的强磁场, 即使是在磁转变温度 225 K 附近也没有发现磁阻现象. 我们认为粉体和薄膜材料由于在化学计量比、择优取向、结晶度、尺寸效应和应力效应等方面难以等同考虑, 其散射机制也存在差异. 因此, 与之前报道的不同, 本文工作中 N 含量对薄膜电输运性质没有发生显著的影响, 在磁相变附近也没有发生磁阻现象.

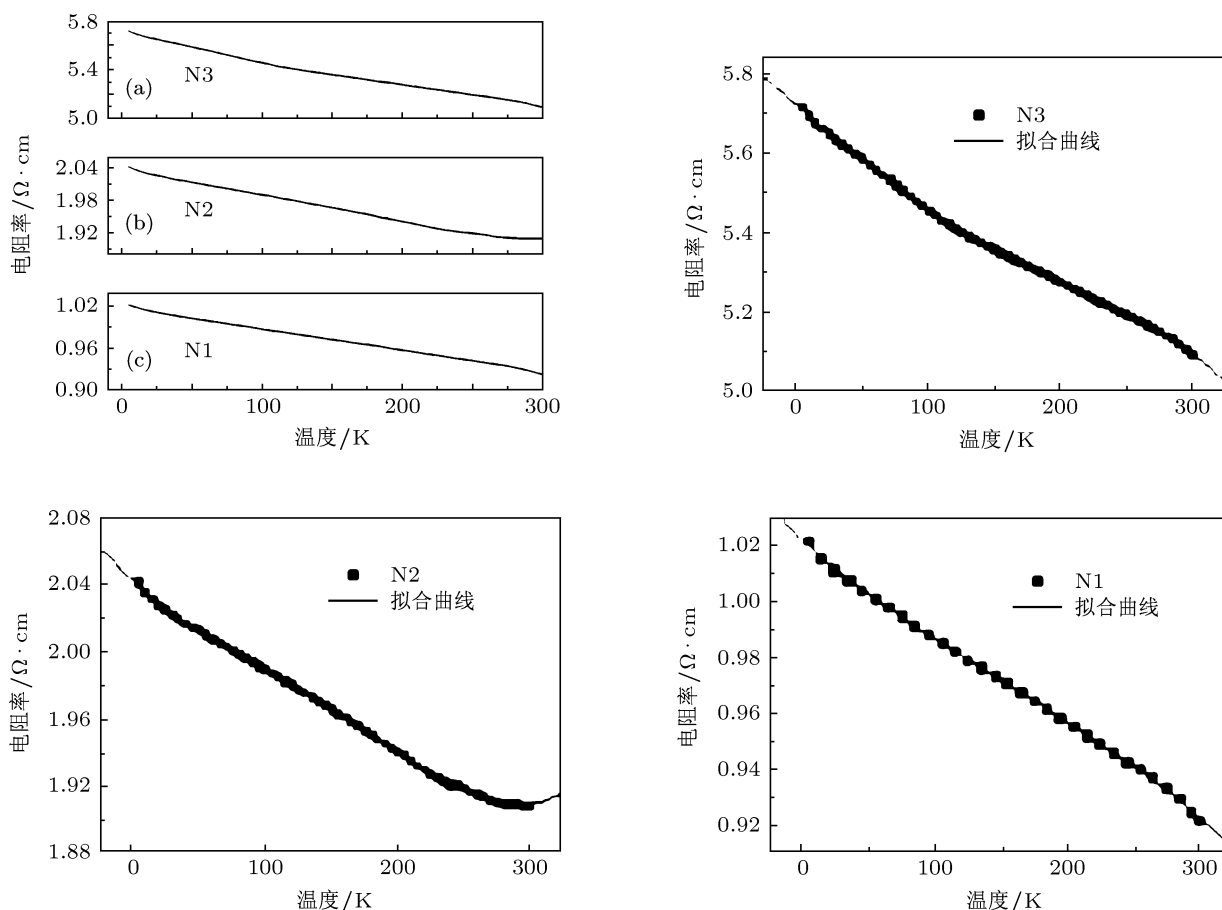


图 5 不同 N_2 流量下制备的 Mn_3CuN_x 薄膜的电阻率-温度曲线 (a1), (b1), (c1) 分别为不同 N_2 流量下制备的 Mn_3CuN_x 薄膜的电阻率-温度曲线拟合结果

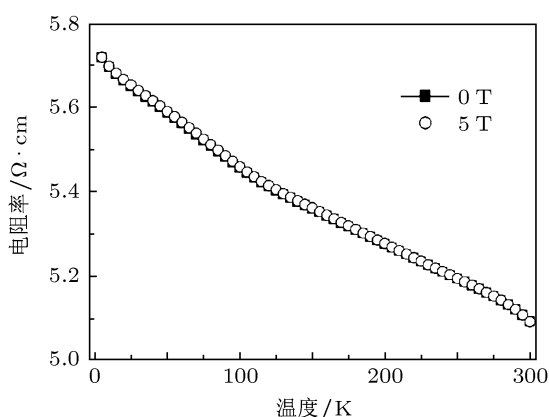


图6 无磁场和施加 5 T 磁场下 Mn_3CuN_x 薄膜 (N3 样品) 的电阻率 - 温度曲线对比

3.5 Mn_3CuN_x 薄膜的磁性质

图 7 给出了不同 N 含量的 Mn_3CuN_x 薄膜磁场强度随温度的变化曲线. 从图中可以看出, 随着测试温度的升高 Mn_3CuN_x 薄膜发生了亚铁磁到顺磁的磁相变, 并且随着 N 含量的增加, 居里温度 T_C 降低. 由图中切线相交可得 N1, N2 和 N3 样品的 T_C 分别大约为 275 K, 245 K 和 225 K. 这个变化趋势与 Koshi 等^[23] 报道的 N 含量对 Mn_3CuN 和 $\text{Mn}_3\text{CuN}_{0.8}$ 块体材料磁性的影响是一致的, 即 N 缺陷的增大导致了 T_C 的增大. 另外, 从我们的结果中发现, Mn_3CuN_x 薄膜磁有序转变温度处于 Koshi 等^[21] 报道的 Mn_3CuN 和 $\text{Mn}_3\text{CuN}_{0.8}$ 块体材料的居里温度之间. 进一步证实 N 含量对 Mn_3CuN 化合物磁性的影响显著, 即随着 N 含量的增大, 磁有序转变温度 T_C 降低. 正如前面所提到, 位于体心位置的 N 或者 C 与 Mn 形成 $\text{Mn}_6\text{N}(\text{C})$ 八面体, 从而对 $\text{Mn}_3\text{XN}(\text{C})_x$ 材料的物性具有显著的影响. N 缺陷会破坏最近邻交换作用 J_1 和次近邻交换作用 J_2

之间的平衡, 从而导致 T_C 的变化^[23].

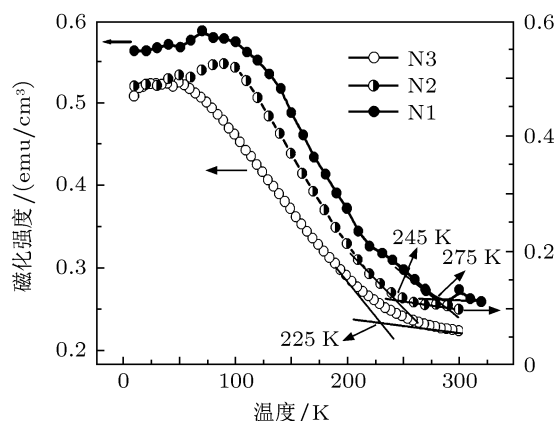


图7 Mn_3CuN_x 薄膜的磁化强度随温度变化曲线

4 结论

在不同 N_2 流量条件下制备了沿 (200) 晶面择优生长的 Mn_3CuN_x 薄膜, 随着薄膜中 N 含量的增多, 表面粗糙度和颗粒尺寸也随之增大, 从而导致薄膜电阻率增大. 但是 N 含量并没有影响薄膜的电输运性质, 所有薄膜在整个测试温区均呈现半导体型导电行为, 即随着温度的升高, 电阻率逐渐下降. 同时, 施加外磁场, Mn_3CuN_x 薄膜在磁相变附近也并没有出现磁阻现象. 研究表明, Mn_3CuN_x 薄膜材料与相应块体材料的电输运性质截然不同, 这主要是由于散射机制、低维效应、成分化学计量比、结晶度以及薄膜与基底之间应力等方面都会影响薄膜的电输运性质. 值得注意的是, N 含量的增大降低了 Mn_3CuN_x 薄膜的磁有序转变温度, 因为 N 缺陷会破坏 Mn_6N 八面体中最近邻交换作用 J_1 和次近邻交换作用 J_2 之间的平衡, 从而导致 T_C 的变化.

- [1] Takenaka K, Takagi H 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 261902
- [2] Sun Y, Wang C, Wen Y C, Zhu K G, Zhao J T 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 231913
- [3] Huang R J, Li L F, Cai F S, Xu X D, Qian L H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 081902
- [4] Asano K, Koyama K, Takenaka K 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 161909
- [5] Tohei T, Wada H, Kanomata T 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 1800
- [6] Wang B S, Tong P, Sun Y P, Luo X, Zhu X B, Li G, Zhu X D, Zhang S B, Yang Z R, Song W H, Dai J M 2009 *Europhys. Lett.* **85** 47004
- [7] Kamishima K, Goto T, Nakagawa H, Miura N, Ohashi M, Mori N, Sasaki T, Kanomata T 2000 *Phys. Rev. B* **63** 024426
- [8] Wang B S, Tong P, Sun Y P, Li L J, Tang W, Lu W J, Zhu X B, Yang Z R, Song W H 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 222509
- [9] Chi E O, Kim W S, Hur N H 2001 *Solid State Commun.* **120** 307
- [10] Feng W J, Zhang D, Li Q, Deng Y F, Ma S, Zhang Z D 2009 *Mater. Sci. Poland* **27** 33
- [11] Sun Y, Wang C, Chu L H, Wen Y C, Nie M, Liu F S 2010 *Scr. Mater.* **62** 686
- [12] Choi H S, Kim W S, Kim J C, Hur N H 2002 *J. Mater. Res.* **17** 2640

- [13] Sun Y, Wang C, Na Y Y, Chu L H, Wen Y Ch, Nie M 2010 *Mater. Res. Bull.* **45** 1230
- [14] Na Y Y, Wang C, Sun Y, Chu L H, Ji N, Wang J P 2011 *Mater. Res. Bull.* **46** 1022
- [15] Ding W Y, Xu J, Li Y Q, Piao Y, Gao P, Deng X L, Dong C 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1363 (in Chinese) [丁万昱, 徐军, 李艳琴, 朴勇, 高鹏, 邓新绿, 董闯 2006 物理学报 **55** 1363]
- [16] Wen Y C, Wang C, Nie M, Sun Y, Chu L H, Liu F S 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 041903
- [17] Ding W Y, Wang H L, Ju D Y, Chai W P 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 028105 (in Chinese) [丁万昱, 王华林, 巨东英, 柴卫平 2008 物理学报 **60** 028105]
- [18] Li Y P, Liu Z T, Liu W T, Yan F, Chen J 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6587 (in Chinese) [李阳平, 刘正堂, 刘文婷, 闫峰, 陈静 2008 物理学报 **57** 6587]
- [19] Wang X, Jia H, Zheng W T, Chen Y, Feng S H 2009 *Thin Solid Films* **517** 4419
- [20] Li H K, Lin G Q, Dong C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6636 (in Chinese) [李红凯, 林国强, 董闯 2008 物理学报 **57** 6636]
- [21] Cao Y H, Di G Q 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 037702 (in Chinese) [曹月华, 狄国庆 2011 物理学报 **60** 037702]
- [22] Han L A, Chen C L 2007 *Rare Metal. Mater. Eng.* **36** 2027 (in Chinese) [韩立安, 陈长乐 2007 稀有金属材料与工程 **36** 2027]
- [23] Koshi T, Takashi S, Kazuko A, Keiichi K 2010 *J. Phys. Soi. Jpn.* **79** 073706

Study on electronic transport and magnetic properties for antiperovskite Mn_3CuN_x thin films fabricated with different N_2 flow rates*

Na Yuan-Yuan Wang Cong[†] Chu Li-Hua Ding Lei Yan Jun

(Center for Condensed Matter and Materials Physics, Key Laboratory of Micro-Nano Measurement, Manipulation and Physics, Beihang University, Beijing 100191, China)

(Received 1 April 2011; revised manuscript received 30 May 2011)

Abstract

The antiperovskite Mn_3CuN_x thin films are successfully deposited on single crystal Si (100) substrates using facing target magnetron sputtering. The effects of nitrogen content on the structures and physical properties of the Mn_3CuN_x thin films are investigated. The crystal structure, composition, surface morphology and the temperature dependence of resistivity and magnetization are characterized by X-ray diffraction, Auger electron spectroscopy, atomic force microscope, X-ray photoelectron spectroscopy, physical property measurement systems and superconducting quantum interference device. It is found that the thin film has an antiperovskite structure and a preferred orientation along (200) plane. The surface roughness and particle size increase with N content increasing. N content has little influence on the electronic transport behavior of the film. All the films display semiconductor-like behaviors, i.e. their resistivities monotonically decrease considerably, which is different from the bulk counterpart. The film undergoes a magnetic transition from ferrimagnetic to paramagnetic with the increase of temperature. Moreover, the Curie temperature (T_C) increases as the N content decreases, owing to the effect of N deficiency on the interaction of Mn_6N octahedron.

Keywords: antiperovskite, Mn_3CuN_x thin film, nitrogen content, electronic transport property

PACS: 68.55.-a, 73.50.-h

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50772008, 51172012).

[†] E-mail: congwang@buaa.edu.cn