

复杂氧化物中电子相分离的量子调控

王文彬 朱银燕 殷立峰 沈健

Quantum manipulation of electronic phase separation in complex oxides

Wang Wen-Bin Zhu Yin-Yan Yin Li-Feng Shen Jian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 227502 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20182007

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20182007>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I22>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[过渡金属掺杂的扶手椅型氮化硼纳米带的磁电子学特性及力-磁耦合效应](#)

Magneto-electronic properties and mechano-magnetic coupling effects in transition metal-doped armchair boron nitride nanoribbons

物理学报.2017, 66(23): 238501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.238501>

[石墨烯沟道全自旋逻辑器件开关特性](#)

Switching characteristics of all-spin logic devices based on graphene interconnects

物理学报.2017, 66(20): 208501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.208501>

[三角形石墨烯量子点阵列的磁电子学特性和磁输运性质](#)

Magneto-electronic and magnetic transport properties of triangular graphene quantum-dot arrays

物理学报.2017, 66(13): 138501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.138501>

[基于钴和坡莫合金纳米磁体的全自旋逻辑器件开关特性研究](#)

Switching characteristics of all spin logic devices based on Co and Permalloy nanomagnet

物理学报.2016, 65(9): 098501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.098501>

[界面铁掺杂锯齿形石墨烯纳米带的自旋输运性能](#)

Spin transport properties for iron-doped zigzag-graphene nanoribbons interface

物理学报.2016, 65(6): 068503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.068503>

专题: 单量子态探测及其相互作用

## 复杂氧化物中电子相分离的量子调控\*

王文彬<sup>1)</sup> 朱银燕<sup>2)</sup> 殷立峰<sup>2)3)</sup> 沈健<sup>1)2)3)†</sup>

1)(复旦大学微纳电子器件与量子计算机研究院, 上海 200433)

2)(应用表面物理国家重点实验室, 复旦大学物理系, 上海 200433)

3)(人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

(2018年11月12日收到; 2018年11月19日收到修改稿)

复杂氧化物可以呈现出高温超导、庞磁阻以及多铁效应等诸多新奇的物理现象. 这类材料中的电荷/自旋/轨道和晶格自由度之间的强耦合相互作用, 可以导致多种相互竞争且能量非常接近的电子态的空间共存, 这就是电子相分离现象. 如果可以将材料的空间尺寸缩小到电子相分离的特征长度, 其物理性质甚至电子关联作用本身都会发生根本的变化, 从而有可能实现复杂氧化物中的量子调控. 本文综述了我们课题组在过去几年中针对复杂氧化物中电子相分离的量子调控取得的进展, 内容包括: 发现了锰氧化物边缘电子态, 通过氧化物微纳加工技术, 实现了量子态空间分布的调控, 提高了庞磁阻锰氧化物的临界温度; 研究了当材料空间尺度小于其电子相分离特征尺度时电子相分离的表现, 确定了在电子相分离消失以后体系的磁结构; 通过超晶格生长技术调控了材料中的掺杂有序度, 对锰氧化物中大尺度的电子相分离的物理机理从实验上给出了解释.

关键词: 复杂氧化物, 电子相分离, 量子调控, 自旋电子器件

PACS: 75.47.Gk, 85.75.-d, 75.47.Lx

DOI: 10.7498/aps.67.20182007

## 1 引言

复杂氧化物体系具有引人注目的可调控性, 在这类体系中, 由于电子之间的强相互作用和维度限制, 自旋、轨道、电荷与晶体结构之间紧密关联, 呈现出了包括高温超导电性、金属绝缘体相变 (metal-insulator transition)、相分离 (phase separation) 和多铁性 (multiferroic) 等极其丰富的物理特性, 是应用前景最为广阔的材料体系之一<sup>[1-4]</sup>. 其中, 庞磁阻效应 (colossal magnetoresistance, CMR)<sup>[5,6]</sup> 的发现, 使得锰氧化物体系作为复杂氧化物体系中极具特色的一类材料而备受关注<sup>[5]</sup>. 在该体系中, 各种序参量之间的强相互作用, 导致多种相互竞争

的、能量非常接近的电子态在空间共存, 这就是电子相分离现象<sup>[7,8]</sup>. 一方面电子态在空间的分布是非常不均匀的, 会形成具有特征尺度的电子畴, 这些电子畴的存在往往会直接减弱材料对外界物理参数的响应敏感度, 削弱其宏观物性的可调控性. 另一方面, 当材料的空间尺寸接近电子之间的相互作用的特征长度时, 其物理性质甚至电子关联作用本身都可能发生根本变化, 从而出现新的物性, 产生新的调控机理. 因此在具有电子相分离现象的锰氧化物材料中, 如果能将这类体系空间尺度缩小到电子相分离的尺度, 就可以充分发挥其材料的调控能力, 在真正意义上实现该类材料中的量子调控<sup>[9]</sup>.

在器件应用方面, 由于复杂氧化物体系具有丰

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0300702)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2014CB921104)、国家自然科学基金 (批准号: 11504053)、上海市学术带头人项目 (批准号: 18XD1400600, 17XD1400400) 和上海市科委基础研究项目 (批准号: 18JC1411400, 18ZR1403200) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: shenj5494@fudan.edu.cn

富的自旋序, 可以出现铁磁、反铁磁、亚铁磁以及螺旋磁有序等, 这些不同的自旋态间能量相差极小, 在外场驱动下可以历经不同的自旋态, 因此相对于存在化学界面的传统异质结结构, 复杂氧化物体系具有独特的无化学界面的自旋/电子界面. 在锰氧化物体系中, 电子相分离畴的尺度与空间分布具有很强的随机性, 如果可以人工控制电子畴的空间分布, 并通过外场限域调控, 就有可能实现无化学界面的不同自旋序结构的空问可控排列, 这不仅避免了复杂化学界面对器件性能的影响, 而且能够对器件单元进行实时构筑、擦除及修改, 实现在同一关联电子材料上制备自旋存储和逻辑运算相结合的原型自旋电子器件.

在小尺度下的量子调控研究和器件制备中, 最关键的是要制备高质量的低维可控的单晶材料. 研究者利用微纳加工技术的进步, 制备了小尺度的复杂电子体系, 研究了复杂电子体系在小尺度下的新奇量子现象以及量子调控效应.

## 2 锰氧化物中的铁磁金属边缘态及其量子调控

对称性破缺及其相关的边缘态现象是凝聚态物理中一个非常重要的概念和领域, 原子的周期性有序排列形成了物质的晶格, 原子的电子态在空间的周期性叠加形成了物质的能带结构, 给出了物质材料多样的物理特性. 这些原子的排布与能带结构在材料的内部都具有高度的对称性. 然而随着维度的降低, 在三维材料的二维界面或表面、二维材料的一维边界或者一维材料的端点都会产生相应的对称性破缺现象, 有可能诱导出许多与其内部特性不同的新奇物性.

近些年来, 针对锰氧化物等复杂关联体系中的对称性破缺相关现象, 对薄膜样品和多晶晶粒的表面态已经有了一定的研究. 例如  $\text{La}_{0.65}\text{Sr}_{0.35}\text{MnO}_3$  薄膜中产生的表面再构和表面偏析<sup>[10]</sup>, 以及双钙钛矿结构的层状锰氧化物中由于表面晶格参数改变和 Jahn-Teller 畸变减弱带来的绝缘性的表面态<sup>[11,12]</sup>. 同时, 在多晶颗粒锰氧化物中, 由于晶界边缘的缺陷等因素而导致的晶粒表面类似的反铁磁绝缘倾向也有报道<sup>[13,14]</sup>. 这些表面态都呈现了一种相较于体材料而言更加绝缘和非铁磁性的倾向, 大大降低了材料的金属-绝缘体转变温度, 使其

在应用方面受到了很大的制约与影响. 在物理成因方面, 由于氧化物的复杂性和各物理量间的强相互关联, 上述体系的表面效应虽然都可能起源于对称性的破缺, 但往往还伴随着许多诸如化学偏析、晶格参数的改变以及表面再构的产生等复杂的综合效应, 因而很难十分清楚地辨明由其本征的对称性破缺效应带来的影响. 此外, 在复杂氧化物这一庞大而复杂的材料体系中是否会存在由于对称性破缺而产生的边缘态效应还未见有相关的研究与报道.

在众多锰氧化物材料中,  $\text{La}_{0.325}\text{Pr}_{0.3}\text{Ca}_{0.375}\text{MnO}_3$  (LPCMO) 具有亚微米到微米量级的相分离尺度, 是目前已知的锰氧化物材料中相分离尺度最大的<sup>[15]</sup>. 因其大尺度相分离畴拥有良好的可观测性, LPCMO 已成为研究观测对称性破缺效应及其尺度效应的最为理想的材料. 我们制备了生长在  $\text{SrTiO}_3(001)$  (STO) 衬底上的钙钛矿锰氧化物  $\text{La}_{0.325}\text{Pr}_{0.3}\text{Ca}_{0.375}\text{MnO}_3$  薄膜材料, 利用变温强场磁力显微镜和输运测量技术, 实空间观测研究了其边界上的边缘态及其对输运特性的影响.

我们通过激光脉冲分子束外延方法生长出了高质量的 LPCMO 单晶薄膜, 利用传统光刻与 KI/HCl/H<sub>2</sub>O (1 : 1 : 1) 湿法刻蚀技术, 进一步将制备好的薄膜样品加工成不同宽度的条带状样品. 通过原子力显微镜 (AFM) 和磁力显微镜 (MFM) 在实空间观测并研究了 LPCMO 样品的形貌与磁畴结构, 以及其相分离特性. 图 1(a) 和图 1(b) 分别是在室温零磁场下, 10  $\mu\text{m}$  宽的 LPCMO 条带样品 (80 nm 厚) 的 AFM 和 MFM 图像. 由于 LPCMO 样品的居里温度 ( $T_C$ ) 远远低于 300 K (80 nm 薄膜样品约为 210 K), 所以 MFM 图像呈现均一的信号. 对比图 1(a) 和图 1(b) 可以看出, 利用磁力显微镜的抬起模式, 以 100 nm 的抬起高度并适当地调整扫描面的反馈参数, 已经可以在 MFM 图像中很好地去除样品的形貌信息.

在条带样品的两侧边界, 可以看到非常明显的铁磁边缘态的存在. 与此同时, 如图 1(c) 中黑色虚框区域的放大图所示, 在样品的中间区域依然存在着通常可观测到的  $\mu\text{m}$  尺度的相分离磁畴<sup>[15-17]</sup>. 样品中心区域内散布的磁性较强的信号来源于样品生长时散落的多晶靶材颗粒. 图 1(c) 中黑色虚线所示部分的谱线及其相应的磁畴结构示意图 1(d) 和图 1(e). 可以看到, 边缘态的铁磁信号

的强度是样品中心区域的相分离磁畴信号的10倍. 当扫描方向旋转90°沿着条带样品走向进行扫描时,并不影响样品边缘态的信号,由此可以排除样品的边缘态信号是由扫描和针尖效应带来的.在

10 K下,该研究对样品边缘态信号随磁场的变化进行了观测.样品边缘态磁信号呈现出明显的磁滞和剩余磁化等现象,也进一步证实了样品边缘态具有铁磁性.

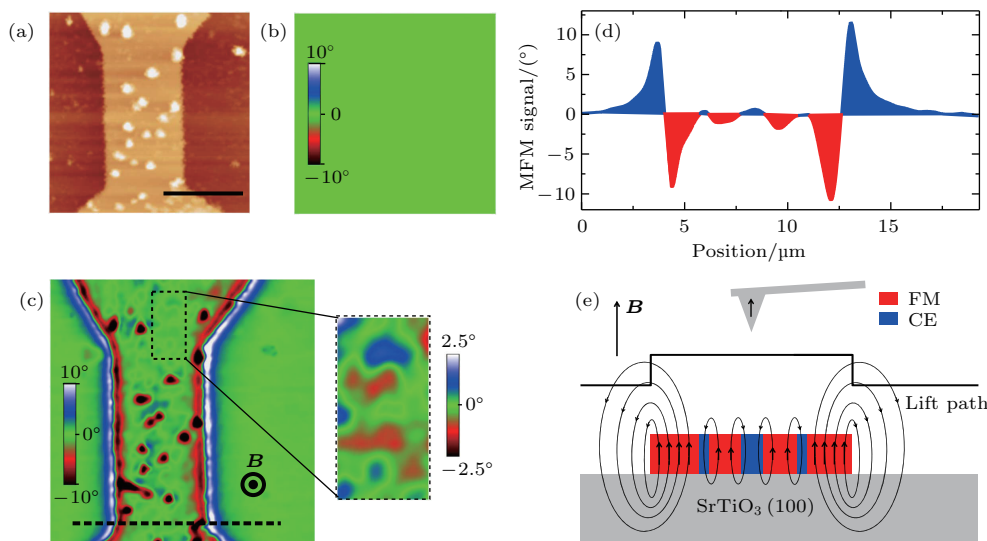


图1 条带 LPCMO/STO 样品的几何形貌与磁畴结构<sup>[16]</sup> (a), (b) 300 K 零场下, 10 μm 条带 LPCMO 样品的 AFM 和 MFM 图像 (25 μm × 25 μm); (c) 120 K, 9 T 磁场 (垂直样品表面) 下, 10 μm 条带 LPCMO 样品的 MFM 图像 (25 μm × 25 μm) 以及虚框区域的放大图像 (3 μm × 6 μm); (d) 图 (c) 中黑色虚线框所示部分的谱线; (e) 图 (d) 中谱线所对应的磁畴结构示意图, 图中铁磁金属态标注为红色, 反铁磁电荷有序态标注为蓝色; 针尖抬起高度 100 nm

Fig. 1. The geometry and magnetic structures of LPCMO strip on SrTiO<sub>3</sub> (100)<sup>[16]</sup>: (a) Atomic force microscopy and (b) MFM images of the 10 μm LPCMO strip at 300 K under zero field. (c) The MFM image of the 10 μm LPCMO strip at 120 K under magnetic field ( $B = 9$  T, pointing out of the sample surface) and the zoom-in of the dotted areas (3 μm × 6 μm). Scanned areas in (a)–(c) are 25 μm × 25 μm. The black scale bar in Fig. (a) is 10 μm. (d) Line profile of the dashed black line in Fig. (c). (e) Its corresponding schematic of the magnetic structures during the MFM imaging process.

与此同时,该研究还表征了边缘态在不同尺度样品中的表现.图2为不同宽度下条带状样品随温度变化的MFM图像.对于10 μm宽的样品,随着温度的降低,铁磁边缘态信号的强度和横向尺寸不断增长,但是依然可以和样品中央区域的电子相分离磁畴明显区分开来.对3 μm宽的样品,边缘态信号在200 K时依然可以与中央区域的相分离磁畴明显区分.但是在低温下,随着其横向尺寸不断扩展,铁磁相最终合并在一起.在1.5 μm宽的样品中这一现象则更为明显,两侧的边缘态在200 K时就连接在一起并占据了整个样品.这说明当样品较窄、边缘态相隔较近时,两侧边缘态的连接使得在较窄样品中的铁磁信号相比薄膜样品中的边缘态信号显著地增强.

为了进一步研究边缘态及其尺度效应对样品宏观运输特性的影响,我们对薄膜样品和1.5 μm宽

的条带样品的运输特性进行了对比测量.从图3(a)和图3(b)可以明显看到,当磁场小于7 T时,条带状样品的低温电阻率要远低于薄膜样品的低温电阻率,并且表现出了更高的金属-绝缘体转变温度.这一结果也和MFM图像中得到的结果相符合.运输测量的结果说明了条带状样品边缘态不仅是铁磁性的,并且也是金属性的.当磁场大于7 T时,反铁磁电荷有序态被磁场所压制,整个样品呈现更强的金属性.所以高场低温下薄膜的金属态电阻率会低于条带状样品的金属态电阻率,如图3(c)和图3(d)所示.在9 T磁场下,条带样品依然给出了较薄膜样品更高的金属-绝缘体转变温度.这也与图2中的MFM观测结果相一致.图3(e)对条带样品和薄膜样品的金属-绝缘体转变(MIT)温度随磁场的变化进行了比较,5 T磁场下条带状样品的金属-绝缘体转变温度相较薄膜高出100 K以上.

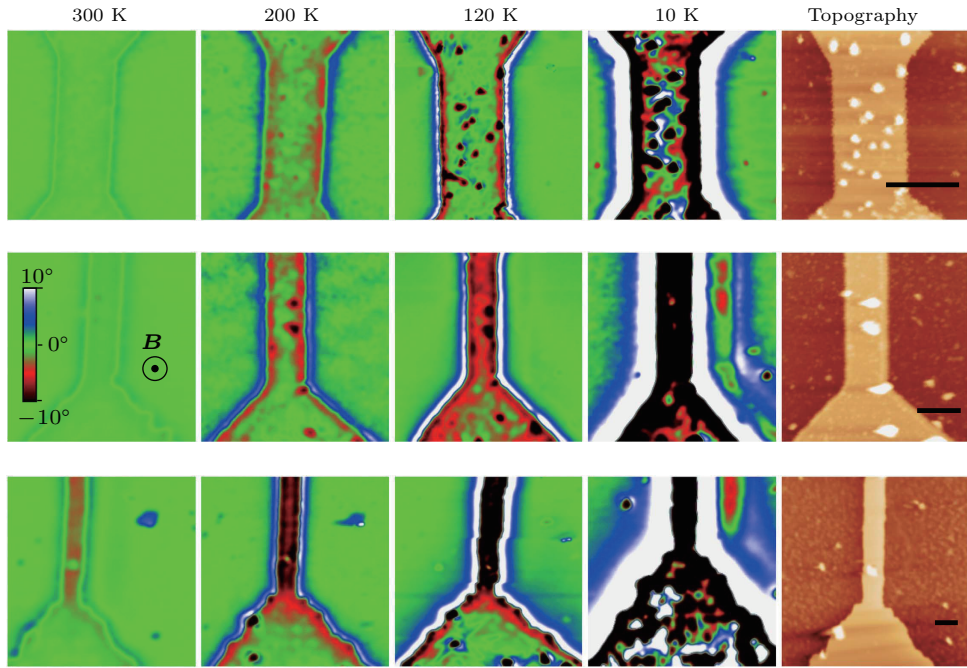


图2 LPCMO 边缘态随条带宽度和温度的变化<sup>[16]</sup> 9 T 磁场下, (a) 10  $\mu\text{m}$ , (b) 3  $\mu\text{m}$  和 (c) 1.5  $\mu\text{m}$  宽条带样品的 MFM 图像及其形貌: (a) 扫描范围 20  $\mu\text{m}$   $\times$  20  $\mu\text{m}$ ; (b), (c) 扫描范围 15  $\mu\text{m}$   $\times$  15  $\mu\text{m}$ ; (a), (b), (c) 图中的标尺分别为 10, 3 和 1.5  $\mu\text{m}$ ; 铁磁边缘态在较窄的样品边缘得到显著增强, 给出了更强的 MFM 信号

Fig. 2. Strip width and temperature dependence of LPCMO edge phases<sup>[16]</sup>. The MFM images of LPCMO under 9 T field ( $B$  is pointing out of the sample surface) with (a) 10  $\mu\text{m}$ , (b) 3  $\mu\text{m}$  and (c) 1.5  $\mu\text{m}$  strips, followed by their topography images. Scanned areas are 20  $\mu\text{m}$   $\times$  20  $\mu\text{m}$  in (a), and 15  $\mu\text{m}$   $\times$  15  $\mu\text{m}$  in (b), (c). The black scale bars are 10  $\mu\text{m}$  in (a), 3  $\mu\text{m}$  in (b) and 1.5  $\mu\text{m}$  in (c). In narrow strips, the edge phases show great enhancement of magnetic signals and give much higher Curie temperatures.

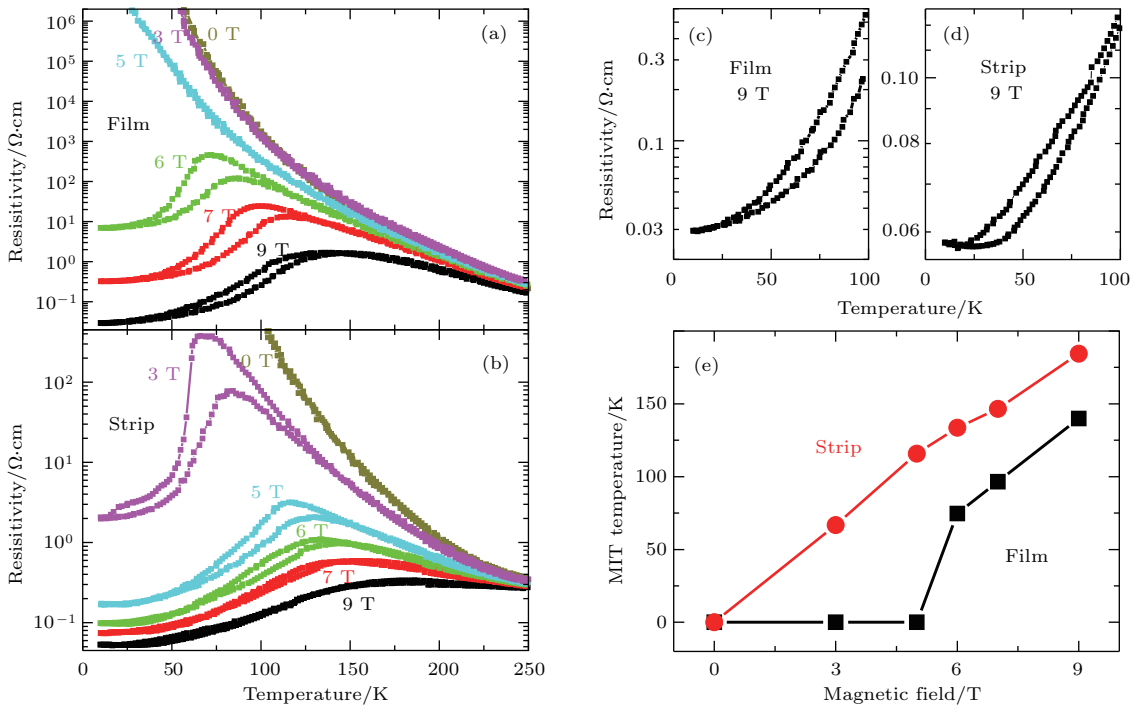


图3 LPCMO 薄膜样品 (a) 和 1.5  $\mu\text{m}$  宽条带样品 (b) 的输运特性; (c), (d) 低温 9 T 下 (a), (b) 样品输运特性的放大图; (e) 不同磁场下, 薄膜样品与条带样品金属-绝缘体转变温度 (降温过程) 的比较, 较窄的条带样品呈现更高的金属-绝缘体转变温度<sup>[16]</sup>

Fig. 3. The transport properties of LPCMO. The transport data of (a) the LPCMO film and (b) the 1.5  $\mu\text{m}$  strip under magnetic fields of 0 T (dark yellow), 3 T (magenta), 5 T (cyan), 6 T (green), 7 T (red) and 9 T (black). (c), (d) Magnification of the film and 1.5  $\mu\text{m}$  strip transport data under 9 T at low temperatures. (e) The comparison of metal-insulator transition (MIT) temperatures between the film (black squares) and the 1.5  $\mu\text{m}$  strip (red dots) derived from the cooling curve in (a), (b)<sup>[16]</sup>.

值得注意的是, 图3中两块样品来源于同一块均匀的母体样品, 两者仅仅在几何尺寸上有一定的差别, 就产生了超过6个数量级的低温电阻率的变化, 同时整个样品的金属-绝缘体转变行为也有显著改变. 由此可知, 在小尺度时, 边缘态效应可以对样品的整个宏观物性产生巨大的影响.

在该工作中, 还通过各种实验排除了样品边缘损伤、化学偏析以及衬底应力效应等对边缘态信号的影响[13,14,18-20], 并通过模型化计算和Monte Carlo模拟从理论上给出了边缘态的来源和形成机理. 利用低温Monte Carlo模拟, 在二维的 $16 \times 8$ 晶格上分别运用完整的周期性边界条件和半周期性边界条件模拟了没有边缘的薄膜材料和有两个边缘的条带样品. 运用周期性边界条件的自旋结构在整个晶格中呈现完好的zig-zag链[21], 而边缘处的对称性破缺会打破原有的自旋结构, 形成铁磁的边缘态[22,23]. 相较于面内亚稳态的自旋结构, 由于反铁磁结构在层间是以更加稳固的反铁磁耦合形式存在, 因而材料在对称性破缺的表面处未能形成相应的表面态, 而仅在面内边缘处破坏了其自旋结构, 形成了更倾向于铁磁性的边缘态. 模型化模拟证实了LPCMO体系中铁磁边缘态的产生很可能是反铁磁电荷有序态在样品边缘的对称性破缺所导致的.

由于边缘态的存在能够极大地改善材料的宏观物性, 操控边缘态的空间分布将为其物性的调控提供一个全新的途径. 通过在LPCMO薄膜上制备一系列的孔洞(antidots)阵列[24-26], 生成了有序的、微米尺度的铁磁金属环, 并以此调控了锰氧化物的金属-绝缘体转变温度以及电阻率.

在 $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的LPCMO的薄膜样品上, 微加工出了不同密度的直径为 $1.2 \mu\text{m}$ 的antidot孔洞阵列, 密度从小到大, 依次标记为D1—D5 (对应的圆心间距分别为20, 10, 5, 4.1,  $3.3 \mu\text{m}$ ). 系统性的测量了这一系列样品在不同磁场下的性质[27,28]. 零磁场下的电运输结果如图4所示.

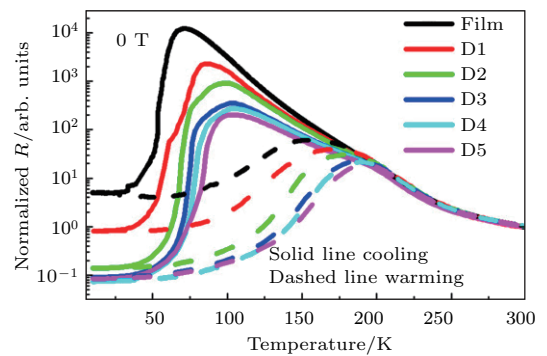


图4 零磁场下样品的运输性质 [29]

Fig. 4. Temperature dependence of normalized resistance for different density samples measured at 0 T [29].

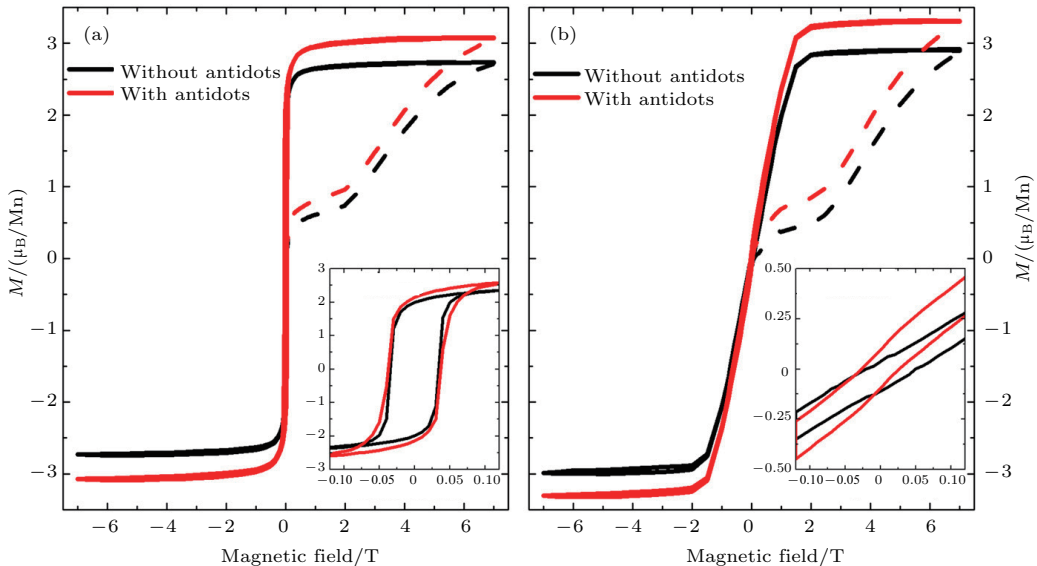


图5 (a) 薄膜样品与antidot样品面内测量初始磁化(虚线)与磁滞回线; (b) 薄膜样品与antidot样品面外测量初始磁化(虚线)与磁滞回线; (a)和(b)插图为零场附近磁滞回线的细节信息 [29]

Fig. 5. Hysteresis loop (solid line) and initial magnetization (dashed line) of a 60-nm LPCMO film is measured in the in-plane (a) and out-of-plane (b) direction, before and after the highest density antidots (D5) fabricated in it. Stronger magnetizations in antidot samples than in the film in both directions are shown. (a) and (b) Insets are detailed information of the hysteresis loop around zero field [29].

图中实线为降温的过程, 虚线为升温的过程, 在本实验中关注其降温过程. 在零外场下, 最高密度的 antidots 样品 (D5) 的金属-绝缘体转变温度比对照的参考薄膜高了 40 K 左右. 这一金属-绝缘体转变温度的提高是非常巨大的, 因为这是在没有对样品做任何掺杂改变或者施加外磁场的情况下的结果. 此外, 随着 antidots 密度的增加, 样品在金属-绝缘体转变温度下的电阻率 (即最大电阻率) 也大幅下降, 最高密度的样品 D5 的金属-绝缘体转变电阻率比参考薄膜下降了 60 多倍.

Antidots 样品的面内 (in-plane) 和面外 (out-of-plane) 的磁性测量, 结果如图 5 (a) 和图 5 (b) 所示. 可以看到, antidot 阵列的样品磁矩都比薄膜样品的饱和磁矩要大<sup>[15,17]</sup>, 通过计算发现 antidot 阵列样品在面内与面外的饱和磁矩分别比薄膜样品高 12% 和 13%. 而从初始磁化曲线 (图 5 (a) 和图 5 (b) 中的虚线) 可以看出小场下磁矩快速上升的一个平台, antidot 阵列样品的磁性比薄膜样品要大许多, 这也说明了 antidot 样品在电子相分离时铁磁金属态的比例更高<sup>[30,31]</sup>.

由此可见, 利用 antidots 来操控边缘态的空间分布是一种既不需要改变掺杂、也不需要引入新材料或者外磁场就可以改变复杂氧化物性质的方法.

### 3 锰氧化物中空间尺度限制对相分离的量子调控

小于锰氧化物电子相分离尺度的纳米颗粒的物性已经得到广泛的研究, 但是电子相分离现象随空间尺度限制的变化过程仍然是未知的, 而发生变化的临界尺度是否与电子相分离特征尺度有关也是未知的. 人们普遍认为, 在具有大尺度电子相分离的体系中, 相互竞争的电子相具有不同的电荷密度, 由于长程库仑相互作用, 大尺度电子相分离会消耗很高的库仑相互作用能, 因此它的存在必然有其他的物理机理存在<sup>[5,8,32-34]</sup>.

该工作在一系列具有大尺度电子相分离特征尺度的 LPCMO 材料的不同直径的圆盘结构中, 通过宏观磁性测量和 MFM 扫描, 观察了电子相分离在不同直径 LPCMO 圆盘中的表现, 得到了电子相分离随空间尺度的变化过程, 结合微磁学模拟, 得到了在电子相分离消失后, LPCMO 圆盘体系所处的磁结构.

在 LPCMO 薄膜样品上, 通过微纳加工技术制备了半径分别为 500 nm, 800 nm, 1  $\mu\text{m}$ , 2  $\mu\text{m}$ ,

3.8  $\mu\text{m}$ , 7  $\mu\text{m}$  和 20  $\mu\text{m}$  的圆盘阵列. 首先, 对每一个直径的 LPCMO 圆盘样品进行了磁化强度随温度变化的测量 (magnetization vs temperature, MT 曲线), 如图 6 所示, 所加外磁场为 1000 Oe, 薄膜样品的数据也作为参考列在其中. 在直径大于 1  $\mu\text{m}$  的样品中可以观察到明显的热滞现象, 磁性和输运性质中的热滞现象是电子相分离体系的重要特征之一. 为了更仔细地观察 MT 曲线, 将 500 nm 和 800 nm 直径样品的数据放大, 并用不同颜色表示其降温 and 升温过程, 可以发现在 800 nm 直径样品中仍然存在微小的热滞现象<sup>[35]</sup>, 但是 500 nm 直径样品热滞已经完全消失, 很可能说明在 500 nm 样品中不存在电子相分离态, 电子相分离消失的临界尺寸可能介于 500 nm 和 800 nm 之间.

800 nm 直径及以上的样品的磁化曲线分别在 220 K 和 50 K 左右存在两个拐点, 220 K 处的拐点对应的是反铁磁电荷有序相开始出现的温度, 50 K 的拐点对应的是铁磁态的转变温度. 在 500 nm 直径样品的磁化曲线中, 220 K 处的拐点消失, 由此推测在该样品中可能不存在反铁磁电荷有序相<sup>[5,36]</sup>.

初始磁化曲线和 MH 曲线之间的区别是判断一个体系是否存在电子相分离的有效判据. 图 6 (e)–(h) 展示了 5 K 下各个直径的 LPCMO 圆盘的磁化强度随外加磁场的变化曲线, 曲线分为两个部分, 红色的曲线为初始磁化曲线, 黑色的是磁滞回线. 在直径大于 800 nm 的样品中, 初始磁化曲线和 MH 曲线有明显的区别, 导致这个现象的原因是在这些体系中铁磁金属相和反铁磁电荷有序相的共存. 样品由零场降温至 5 K 后, 慢慢增加外磁场, 样品中初始状态的铁磁相被迅速地拉动, 磁化方向沿外磁场方向排列. 随着磁场继续增大, 体系中的反铁磁电荷有序相转变成铁磁相, 从而使初始磁化曲线继续随磁场增大. 电荷有序相一旦被转变为铁磁相, 即使外磁场减小, 依然保持铁磁相, 进而得到了在图中看到的磁滞回线. 因此, 800 nm 直径及以上 LPCMO 圆盘体系中同时出现了铁磁金属相和反铁磁电荷有序相, 即处于电子相分离态. 在 500 nm 直径的 LPCMO 圆盘样品中, 初始磁化曲线和磁滞回线完全重合, 表明在该样品的初始状态中并不存在电荷有序相, 只存在铁磁相<sup>[35,37,38]</sup>. 同时实验还观察到, 随着样品空间尺寸的减小, 样品的饱和场慢慢增大. 这是因为空间形状发生了改变, 面内尺寸的减小增加了样品在外加磁场方向的退磁场而导致的.

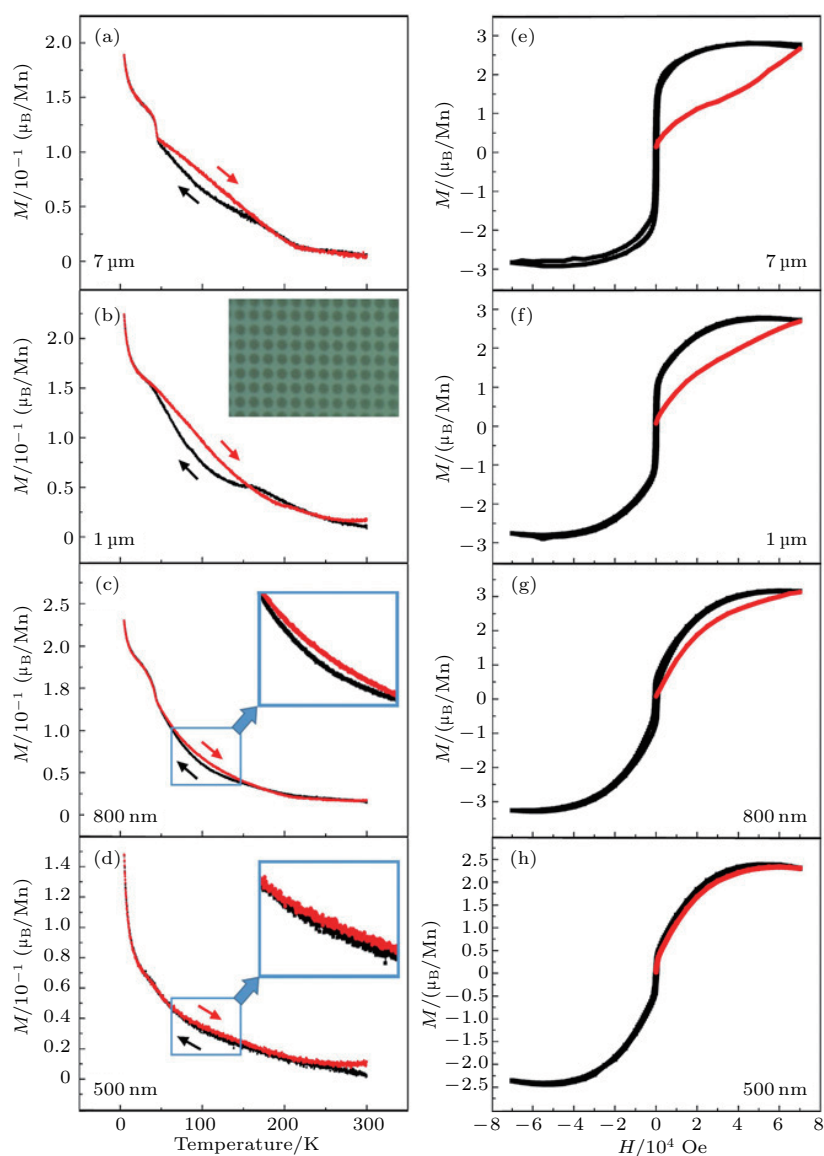


图6 (a)–(d) 不同直径 LPCMO 圆盘磁化强度 (磁场为 1000 Oe) 随温度变化的关系, 黑线为降温曲线, 红线为升温曲线; (e)–(h) 不同直径 LPCMO 圆盘在 5 K 下的初始磁化曲线和 MH 曲线, 红线为初始磁化曲线, 黑线为磁滞回线<sup>[37]</sup>

Fig. 6. (a)–(d) Temperature dependence of magnetization (black lines for cooling and red lines for warming) under 1000 Oe. (e)–(h) Initial magnetization (red lines) and hysteresis loop (black lines) at 5 K of arrays of LPCMO disks<sup>[37]</sup>.

通过宏观磁性测量的结果推断该体系存在一个由空间尺度限制诱导的由电子相分离态向铁磁单相的转变. 对 LPCMO 圆盘在 10, 100 和 180 K 三个温度进行 MFM 的测量. 这三个温度分别对应了 MFM 测量系统能稳定扫描的最低温度、LPCMO 薄膜样品金属-绝缘体相变温度以及电荷有序相开始出现的温度. 图 7(a) 为 AFM 扫描得到的形貌图, 图 7(b)–(d) 为三个温度的 MFM 扫描图. 在扫描过程中, 外磁场方向垂直于样品表面, 大小为 1 T. MFM 图中的红色和黑色代表铁磁相; 而绿色

和蓝色的部分代表非铁磁相, 此非磁相即为反铁磁电荷有序绝缘相<sup>[15,16]</sup>.

如图 7 所示, 在除 500 nm 直径以外的 LPCMO 圆盘样品中, 均存在铁磁金属相和反铁磁电荷有序绝缘相共存的电子相分离态<sup>[15,39]</sup>, 虽然铁磁相的比例和强度随着温度的下降有比较明显的增强, 但是在 10 K 处依然保持着电子相分离态. 而这样的电子相分离态在 500 nm 直径样品中始终没有观测到, 整个圆盘都呈现铁磁相. 对 MFM 图像进一步的研究发现, 除了各个 LPCMO 圆盘的铁磁相强度



随温度降低变强外, 通过计算 100 K 时各个样品中的铁磁相的比例, 可以看到随着样品圆盘直径的减小, 铁磁相比例逐渐上升, 直至整个圆盘呈现出铁磁相. 因此, 样品圆盘的直径越小, 对电子相分离的空间限制就越大, 当临近电子相分离的特征长度时, 这种效应最为明显.

为了进一步证明 500 nm 直径的 LPCMO 圆盘不存在电子相分离态, 该工作在不同温度下进行了 MFM 测量. 由于体系在在 220 K 以下才会出现电子相分离态, 因此实验中选取了 20—200 K 的温度

区间对 500 nm 直径的圆盘进行 MFM 表征.

从图 8 中可以看到, 在整个测量的温区内 500 nm 直径的 LPCMO 圆盘样品中只有铁磁金属相单独存在, 没有发现电子相分离态. 随着温度的上升, 铁磁信号强度逐渐减弱, 这与之前测量的 MT 曲线提供的信息是一致的. 接着, 该工作通过微磁学模拟的方法模拟了 500 nm 直径、60 nm 高的圆盘的 MFM 测量结果, 从变化的趋势和变化的数量上, 模拟的结果和实际 MFM 扫描结果都符合得很好.

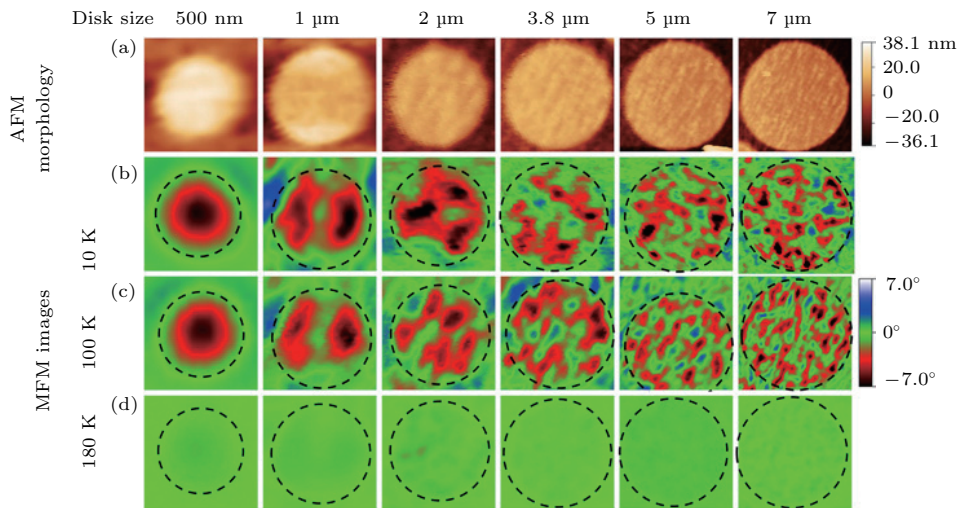


图 7 (a) 500 nm, 1 μm, 2 μm, 3.8 μm, 5 μm 和 7 μm LPCMO 圆盘的 AFM 图像; (b)—(e) 10, 100 和 180 K, 1 T 磁场下不同直径 LPCMO 圆盘的 MFM 图像 [37]

Fig. 7. (a) AFM images of LPCMO disks with sizes of 500 nm, 1 μm, 2 μm, 3.8 μm, 5 μm, and 7 μm in diameter. (b)–(d) The MFM images of LPCMO disks under 1 T field (external magnetic field direction is pointing perpendicularly to the sample surface plane) taken at 10 K (b), 100 K (c), and 180 K (d) [37].

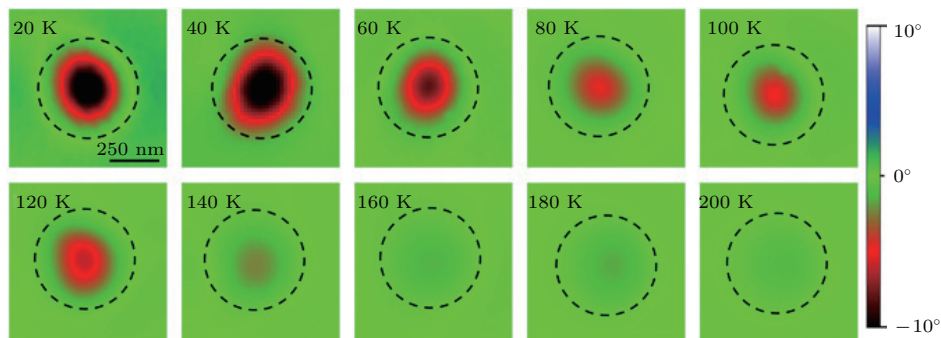


图 8 500 nm 直径 LPCMO 圆盘在不同温度下的 MFM 图像 [37]

Fig. 8. MFM images of 500-nm disks taken from 20 K to 200 K [37].

结合宏观磁性的测量、MFM 扫描和微磁学模拟结果, 可以看到一个由空间尺度限制诱导的由铁磁金属态和反铁磁电荷有序绝缘相共存的电子相分离态到铁磁金属态单相的转变. 这个转变的空间临界尺度在 500 nm 至 800 nm 之间, 此范围正好符

合 LPCMO 体系的电子相分离的特征尺度. 同时根据 MFM 扫描和微磁学模拟的结果推断出当不存在电子相分离态时, 体系的基态磁结构为铁磁单畴, 这是由于当样品的空间尺度减小到小于电子相分离尺度时, 系统必须选择一个能量更低的状态, 而

铁磁单畴由于前文提到的铁磁边缘态的存在, 是一个更低的能量态. 同时, 这个结果证明了锰氧化物中的大尺度的电子相分离不消耗库仑相互作用能, 否则, 空间尺度的减小会产生更小尺度的电子相分离而不是转变为单相的铁磁金属态 [9].

#### 4 锰氧化物中化学有序掺杂对相分离的量子调控

化学掺杂是影响电子相分离的一个重要因素, 掺杂元素的空间分布往往是无序的, 如果能实现对掺杂元素在空间排列的调控, 做到空间有序排列, 就可以去除晶体结构在空间的不均匀性, 并由此实现对复杂氧化物中电子畴空间排列的人工调控 [40-42]. 利用超晶格生长技术, 该工作制备了 Pr 元素有序掺杂的 LPCMO 体系 (O-LPCMO), 并与常规的 Pr 元素无序掺杂的 LPCMO 薄膜 (R-LPCMO) 进行了比较, 研究了化学有序掺杂对锰氧化物体系的电子相分离尺度和宏观物性的影响 [43,44].

该工作用激光分子束外延技术, 在 (100) 晶向的钛酸锶 ( $\text{SrTiO}_3$ ) 衬底上外延生长了  $[(\text{LCMO})_2/(\text{PCMO})_1]$  超晶格薄膜样品 [45], 整个生长过程中通过反射高能电子衍射仪 (RHEED) 严格控制了每一层的激光脉冲数量, 使得 LCMO 层和 PCMO 层的界面非常清晰, 如图 9 所示.

O-LPCMO 和 R-LPCMO 两块薄膜样品的电输运性质如图 10 所示. 图中黑线是 O-LPCMO 的  $R-T$  曲线, 红线是 R-LPCMO 的  $R-T$  曲线, 箭头标出了降温 and 升温过程.

可以看到, 两块样品的电阻率随温度变化的曲线具有显著的差别. 首先 O-LPCMO 薄膜的金属-绝缘体相变温度 ( $T_P$ ) 比 R-LPCMO 薄膜提高了近 100 K. 此外, O-LPCMO 薄膜在  $T_P$  处的电阻率比 R-LPCMO 薄膜在  $T_P$  处的电阻率小了近 3 个量级, 低温电阻率小了两个量级. 相比于 O-LPCMO 薄膜, R-LPCMO 具有明显的热滞现象, 说明 R-LPCMO 样品的电子相分离尺度比较大. 同时, O-LPCMO 薄膜在金属-绝缘体相变过程中, 直接由顺磁绝缘态转变到铁磁金属态, 而 R-LPCMO 薄膜在降温过程中有一个明显的电阻率上扬的过程, 说明 R-LPCMO 薄膜经历了顺磁绝缘态先变成电荷有序态再转变为铁磁金属态的过程.

在电阻率随温度变化的曲线中表现出来的  $T_P$  的显著升高以及金属性的显著提升, 预示着 O-LPCMO 薄膜中的铁磁性可能比 R-LPCMO 薄膜有所增加. 在对三块样品的磁性研究中, 从室温 (300 K) 施加一个平行于样品表面的小磁场 (100 Oe), 降温测磁矩随温度变化.

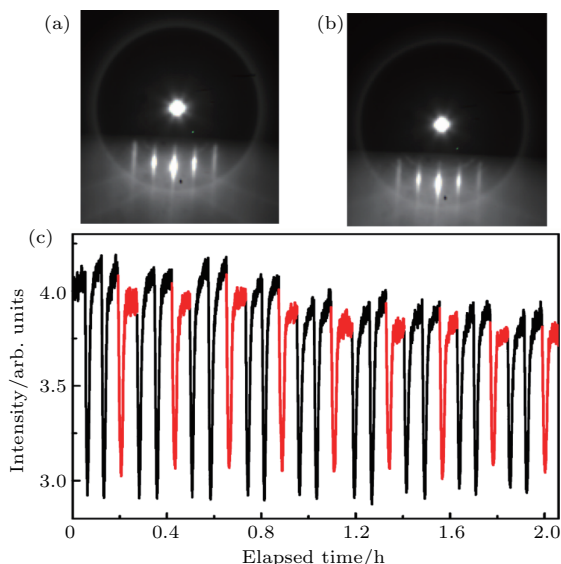


图 9 (a) STO 衬底的 RHEED 衍射斑; (b) 样品的 RHEED 衍射斑; (c) 样品生长过程中 RHEED 衍射斑的振荡曲线, 黑色为 LCMO 层的振荡, 红色 PCMO 层的振荡 [46]

Fig. 9. (a), (b) RHEED image for the substrate and the sample; (c) RHEED intensity oscillation during the unit cell by unit cell growth of LCMO (black) and PCMO (red) [46].

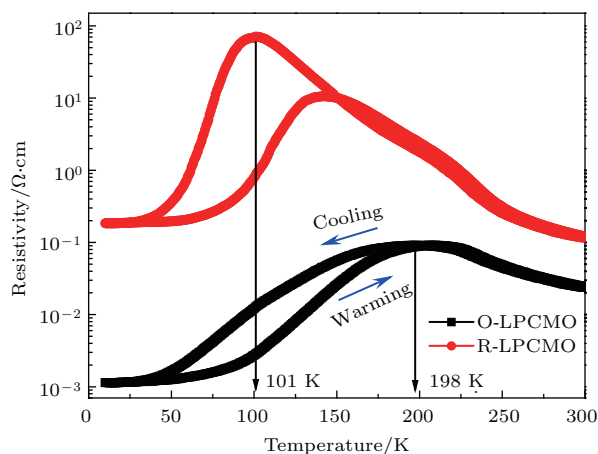


图 10 O-LPCMO 和 R-LPCMO 薄膜在零场下的  $R-T$  曲线 [46]

Fig. 10. Temperature-dependent resistivity measurement at zero magnetic field [46].

从图 11 可以看出, O-LPCMO 样品先表现出铁磁性, 在同样外场条件下 (100 Oe) 降温到 10 K,

R-LPCMO 表现出较小的磁矩. 这里要说明是, 两个样品都在 230 K 以上就开始表现出铁磁性, 但  $T_P$  都低于 200 K. 说明样品开始产生铁磁性的温度远远高于样品的金属-绝缘性转变温度. 其原因是由于  $M-T$  曲线的测量过程中外加了一个磁场, 降温 and 加磁场都会促进样品转变为铁磁金属态. 而在  $R-T$  曲线测量中并没有加外磁场. 此外, 测  $M-T$  曲线时, 只要样品开始产生磁性就可以探测到, 磁矩就开始慢慢增加; 但是  $R-T$  曲线要从绝缘态变成金属态, 必须有一个导通的过程, 在降温过程中, 铁磁畴不断新增并慢慢长大, 当样品中的铁磁体积占比达到一定值, 超过逾渗临界值, 电阻才会突然变小, 从绝缘态转变到金属态. 从图 11 的初始磁化曲线中可以看出, 在外磁场的作用下, O-LPCMO 样品比 R-LPCMO 更容易磁化变成铁磁态, 且铁磁体积含量占比是 R-LPCMO 的三倍左右. 这在  $M-T$  曲线中也得到了很好的体现, 在  $T_C$  以下, O-LPCMO 的磁化强度是 R-LPCMO 磁化强度的 2—3 倍. 所以, O-LPCMO 中铁磁性占主导, 在电输运中的表现就是具有更高的金属-绝缘体相变温度和更小的电阻率.

前面的电输运结果和磁性测量结果都证明, O-LPCMO 体系的铁磁性比 R-LPCMO 要强, 相同

温度下铁磁体积含量占比更高. 为了更加直观地给出证据, 该工作中用 MFM 测试了两块样品在磁场下降温的磁畴变化情况, 如图 12(a) 和图 12(b) 所示. 测试过程中, 样品上施加另外一个与样品表面垂直的 1 T 磁场. 作为参考, 图 12(c) 给出了样品施加 1 T 垂直磁场下测得的降温电输运结果.

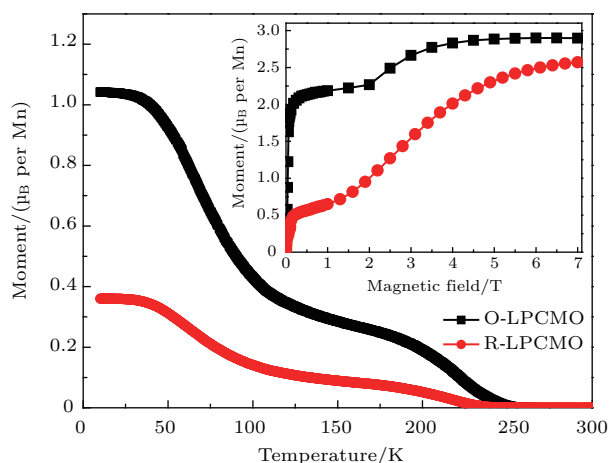


图 11 O-LPCMO 和 R-LPCMO 薄膜的  $M-T$  曲线和初始磁化曲线 [46]

Fig. 11. Temperature-dependent magnetization measurement at 100 Oe. The insert shows the initial magnetization curves measured at 10 K after cooling from room temperature under zero magnetic field [46].

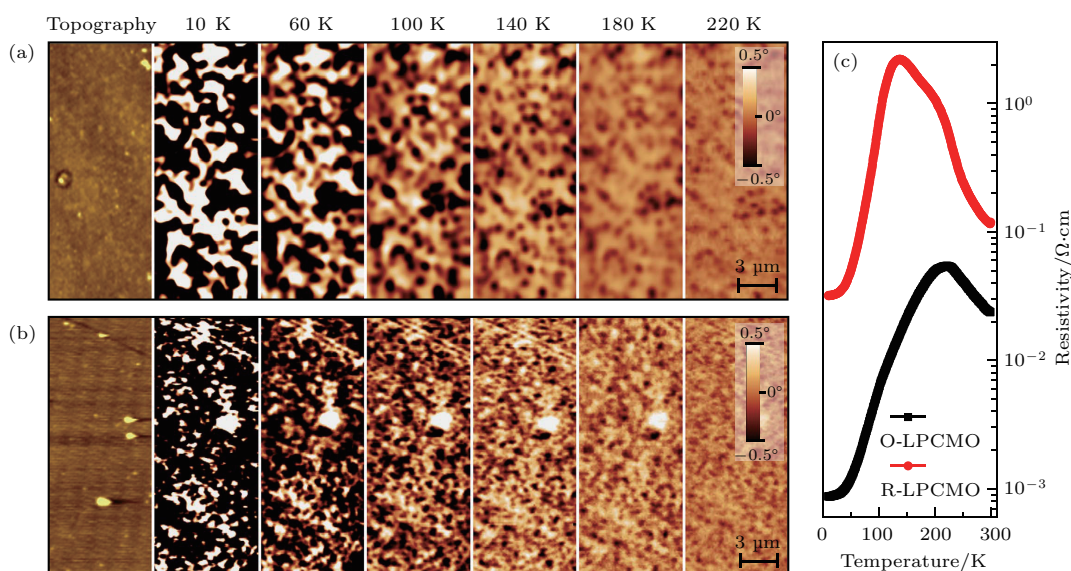


图 12 R-LPCMO (a) 和 O-LPCMO (b) 的 MFM 测试结果及 1 T 降温的  $R-T$  曲线 (a), (b) 分别是 R-LPCMO 和 O-LPCMO 在 1 T 垂直磁场下降温变化的 MFM 图; 扫描区域为  $7 \mu\text{m} \times 14 \mu\text{m}$ , 图中的信号为负 (棕色  $\rightarrow$  暗黑色) 的是铁磁金属态, 信号为正 (棕色  $\rightarrow$  亮白色) 的是反铁磁电荷有序态; (c) 薄膜样品在 1 T 磁场下降温的  $R-T$  曲线 [46]

Fig. 12. MFM images of R-LPCMO and O-LPCMO. Temperature-dependent MFM images of (a) R-LPCMO and (b) O-LPCMO under 1 T field cooling (the magnetic field was applied perpendicular to sample surface). Scanning areas are  $7 \mu\text{m} \times 14 \mu\text{m}$ . The negative signal indicates FMM state, while positive signal is AFM-CO state. The AFM morphological images are measured from the same area as the MFM scan. (c) Temperature dependent resistivity measured under 1 T field cooling [46].

从MFM图上可以看出, O-LPCMO的铁磁畴比较细碎, 且铁磁相的比例比较高, 随着降温过程较早地连成一片. 而R-LPCMO的铁磁畴相对较大, 且铁磁相的比例较低, 到较低的温度才连成片, 这与电输运中的O-LPCMO具有较高的金属-绝缘相变温度和较小的电阻率的结果是一致的. 通过图12的MFM图像, 可以直接估算样品的铁磁相体积百分比, 以及这个比值随温度的变化情况. 对于O-LPCMO薄膜, 220 K是它在1 T磁场下的金属-绝缘体相变温度, 到140 K时已经过了其相变温度, 铁磁畴都已经连成片, 所以它具有几个面积非常大的畴. 尽管大部分铁磁畴还分布在面积较小的区域, 但因为这几个超级大的连成片的畴的存在, 使得O-LPCMO在140 K的铁磁畴平均面积大大提高. 而对于R-LPCMO, 220 K还处于绝缘态, 直到140 K才是它在1 T磁场下降温的金属-绝缘体相变温度. 基于上述分析, 对比了两块样品在相变温度处的磁畴大小发现, Pr的有序掺杂, 大大地缩小了LPCMO体系的电子相分离.

为了验证R-LPCMO体系中有大尺度的电子相分离, 而O-LPCMO体系的电子相分离已经显著减小, 实验中分别对两块样品进行了空间尺度受限的电输运测试. 利用微纳加工技术, 将两块薄膜都加工成1  $\mu\text{m}$ 宽度的细线, 图13为O-LPCMO和R-LPCMO细线样品的电输运性质, 可以看到R-LPCMO的R-T曲线上在相变温度附近有明显的跳变<sup>[47,48]</sup>, 而O-LPCMO的R-T曲线相当光滑. 改变磁场或者降温都会引起一级相变, 而一级相变对于一个单独的畴来说, 会引起R-T曲线上明显的跳变, 这就是R-LPCMO发生跳变的原因. 而对于Q-LPCMO样品来说, 电子相分离尺度远远小于细线的宽度, 所以其在相变过程中的跳变被平均了, 导致R-T曲线比较光滑. R-T曲线上的跳变再次证明了R-LPCMO体系具有大尺度的电子相分离, 而Pr有序掺杂的O-LPCMO体系的电子相分离尺度已大大减小.

基于随机场Ising模型的蒙特卡罗模拟, 该工作数值模拟了化学掺杂对电子相分离的影响. 模拟结果显示, Pr元素的无序掺杂是诱导大尺度电子相分离的主要原因. 当用超晶格结构实现Pr元素层状有序时, 这种纳米尺度的有序调制, 最终会对大尺度的电子相分离产生影响<sup>[49,50]</sup>.

该工作利用超晶格生长实现了Pr元素在

LPCMO体系中的空间有序排列, 并通过MFM直接观察到Pr元素的有序掺杂不仅大幅地减小了LPCMO体系的电子相分离尺度, 而且在同等温度下使铁磁金属畴的体积占比明显增加. 这种电子相分离的改变, 在宏观物性上也有强烈体现. 从测量结果上看, Pr元素有序掺杂的LPCMO比常规LPCMO体系表现出更强的铁磁金属性, 其中金属-绝缘体相变温度提高了近100 K.

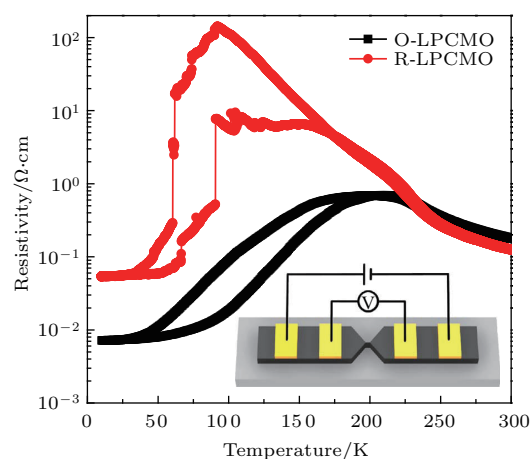


图13 O-LPCMO和R-LPCMO加工成1  $\mu\text{m}$ 细线的R-T曲线<sup>[46]</sup>

Fig. 13. Temperature-dependent resistivity of O-LPCMO strip (black) and R-LPCMO strip (red)<sup>[46]</sup>.

## 5 总结与展望

本文回顾了我们课题组在过去几年中针对复杂氧化物体系LPCMO体系的量子调控方面开展的研究工作. 研究发现: 在强关联锰氧化物纳米带中存在着由于对称性破缺而产生的铁磁金属边缘态, 该边缘态具有比母体材料明显更高的金属-绝缘体转变温度、更低的电阻率和更强的磁矩; 该边缘态具有很强的尺度效应, 随着纳米带宽度的减小, 边缘态效应逐渐增强, 对材料宏观物性的影响越来越大. 通过微纳加工, 在薄膜样品中引入了密度、尺度可调的纳米孔阵列, 不仅将体系的相变温度提高了110 K, 还实现了人工调控量子态的空间有序排布. 在此基础上, 研究了LPCMO中当空间尺度小于电子相分离的特征尺度时电子相分离的行为, 发现了一种由空间尺度限制诱导的、铁磁金属相和反铁磁电荷有序绝缘相共存的电子相分离态到铁磁金属相纯相的转变, 推断出当不存在电子相分离态时, 体系的基态磁结构为铁磁单畴. 此外, 对LPCMO体系的大尺度电

子相分离的物理机理从实验上给出了解释,证明了Pr元素随机分布引起的无序性是LPCMO体系中尺度电子相分离的根本起因. 通过以上一系列的研究,实现了对电子畴的本征尺度以及空间排列方式的调控. 后续将研究如何对电子畴的形状、密度、位置、尺寸、空间排列同时进行调控,尤其是研究多场联动下调控电子相分离的机理与技术,通过无化学界面的不同自旋序结构的空问可控排列,最终构筑基于同一材料的原型自旋电子器件.

感谢复旦大学物理系杜恺博士、张凯博士、邵剑博士以及东南大学董帅教授的讨论.

## 参考文献

- [1] Lu D H, Yi M, Mo S K, Erickson A S, Analytis J, Chu J H, Singh D J, Hussain Z, Geballe T H, Fisher I R, Shen Z X 2008 *Nature* **455** 81
- [2] Dai P C, Hu J P, Dagotto E 2012 *Nat. Phys.* **8** 709
- [3] Kimura T, Goto T, Shintani H, Ishizaka K, Arima T, Tokura Y 2003 *Nature* **426** 55
- [4] Eerenstein W, Mathur N D, Scott J F 2006 *Nature* **442** 759
- [5] Dagotto E, Hotta T, Moreo A 2001 *Physics Reports* **344** 1
- [6] Tokura Y 2006 *Rep. Prog. Phys.* **69** 797
- [7] Moreo A, Yunoki S, Dagotto E 1999 *Science* **283** 2034
- [8] E D 2003 *Springer, Heidelberg* pp 313
- [9] Liang L Z, Li L, Wu H, Zhu X H 2014 *Nanoscale Research Letters* **9** 1
- [10] Dulli H, Dowben P A, Liou S H, Plummer E W 2000 *Phys. Rev. B* **62** 14629
- [11] Nascimento V B, Freeland J W, Saniz R, Moore R G, Mazur D, Liu H, Pan M H, Rundgren J, Gray K E, Rosenberg R A, Zheng H, Mitchell J F, Freeman A J, Veltruska K, Plummer E W 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 227201
- [12] Freeland J W, Gray K E, Ozyuzer L, Berghuis P, Badica E, Kavich J, Zheng H, Mitchell J F 2005 *Nat. Mater.* **4** 62
- [13] Podzorov V, Kim B G, Kiryukhin V, Gershenson M E, Cheong S W 2001 *Phys. Rev. B* **64** 140406
- [14] Bingham N S, Lampen P, Phan M H, Hoang T D, Chinh H D, Zhang C L, Cheong S W, Srikanth H 2012 *Phys. Rev. B* **86** 064420
- [15] Uehara M, Mori S, Chen C H, Cheong S W 1999 *Nature* **399** 560
- [16] Du K, Zhang K, Dong S, Wei W G, Shao J, Niu J B, Chen J J, Zhu Y Y, Lin H X, Yin X L, Liou S H, Yin L F, Shen J 2015 *Nat. Commun.* **6** 6179
- [17] Zhang L W, Israel C, Biswas A, Greene R L, de Lozanne A 2002 *Science* **298** 805
- [18] Soh Y A, Aeppli G, Mathur N D, Blamire M G 2000 *Phys. Rev. B* **63** 020402
- [19] Soh Y A, Evans P G, Cai Z, Lai B, Kim C Y, Aeppli G, Mathur N D, Blamire M G, Isaacs E D 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 7742
- [20] Gillaspie D, Ma J X, Zhai H Y, Ward T Z, Christen H M, Plummer E W, Shen J 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 08S901
- [21] Wollan E O, Koehler W C 1955 *Phys. Rev.* **100** 545
- [22] Taran S, Chaudhuri B K, Das A, Nigam A K, Kremer R K, Chatterjee S 2007 *Journal of Physics-Condensed Matter* **19** 216217
- [23] Ma J X, Gillaspie D T, Plummer E W, Shen J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 237210
- [24] Martin J I, Nogues J, Liu K, Vicent J L, Schuller I K 2003 *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **256** 449
- [25] Li H, Li L, Liang H X, Cheng L, Zhai X F, Zeng C G 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 082414
- [26] Kovylyna M, Erekhinsky M, Morales R, Villegas J E, Schuller I K, Labarta A, Batlle X 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 152507
- [27] Frankovsky R, Luetkens H, Tambornino F, Marchuk A, Pascua G, Amato A, Klauss H H, Johrendt D 2013 *Phys. Rev. B* **87** 174515
- [28] Salamon M B, Jaime M 2001 *Reviews of Modern Physics* **73** 583
- [29] Zhang K, Du K, Liu H, Zhang X G, Lan F L, Lin H X, Wei W G, Zhu Y Y, Kou Y F, Shao J, Niu J B, Wang W B, Wu R Q, Yin L F, Plummer E W, Shen J 2015 *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **112** 9558
- [30] Urushibara A, Moritomo Y, Arima T, Asamitsu A, Kido G, Tokura Y 1995 *Phys. Rev. B* **51** 14103
- [31] Mahendiran R, Maignan A, Hebert S, Martin C, Hervieu M, Raveau B, Mitchell J F, Schiffer P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 286602
- [32] Burgy J, Moreo A, Dagotto E 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 097202
- [33] Ahn K H, Lookman T, Bishop A R 2004 *Nature* **428** 401
- [34] Schmalian J, Wolynes P G 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 836
- [35] Demko L, Kezsmarki I, Mihaly G, Takeshita N, Tomioka Y, Tokura Y 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 037206
- [36] Ghivelder L, Parisi F 2005 *Phys. Rev. B* **71** 184425
- [37] Shao J, Liu H, Zhang K, Yu Y, Yu W C, Lin H X, Niu J B, Du K, Kou Y F, Wei W G, Lan F L, Zhu Y Y, Wang W B, Xiao J, Yin L F, Plummer E W, Shen J 2016 *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **113** 9228
- [38] Ward T Z, Gai Z, Guo H W, Yin L F, Shen J 2011 *Phys. Rev. B* **83** 125125
- [39] Fath M, Freisem S, Menovsky A A, Tomioka Y, Aarts J, Mydosh J A 1999 *Science* **285** 1540
- [40] Moshnyaga V, Sudheendra L, Lebedev O I, Koster S A, Gehrke K, Shapoval O, Belenchuk A, Damaschke B, van Tendeloo G, Samwer K 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 107205

- [41] RodriguezMartinez L M, Attfield J P 1996 *Phys. Rev. B* **54** 15622
- [42] Moreo A, Mayr M, Feiguin A, Yunoki S, Dagotto E 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5568
- [43] Gibert M, Zubko P, Scherwitzl R, Iniguez J, Triscone J M 2012 *Nat. Mater.* **11** 195
- [44] Rogdakis K, Viskadourakis Z, Petrovic A P, Choi E, Lee J, Panagopoulos C 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 023120
- [45] May S J, Ryan P J, Robertson J L, Kim J W, Santos T S, Karapetrova E, Zarestky J L, Zhai X, te Velthuis S G E, Eckstein J N, Bader S D, Bhattacharya A 2009 *Nat. Mater.* **8** 892
- [46] Zhu Y Y, Du K, Niu J B, Lin L F, Wei W G, Liu H, Lin H X, Zhang K, Yang T Y, Kou Y F, Shao J, Gao X Y, Xu X S, Wu X S, Dong S, Yin L F, Shen J 2016 *Nat. Commun.* **7** 11260
- [47] Zhai H Y, Ma J X, Gillaspie D T, Zhang X G, Ward T Z, Plummer E W, Shen J 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 167201
- [48] Ward T Z, Liang S, Fuchigami K, Yin L F, Dagotto E, Plummer E W, Shen J 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 247204
- [49] Bouzerar G, Cepas O 2007 *Phys. Rev. B* **76** 020401
- [50] Dong S, Yu R, Yunoki S, Alvarez G, Liu J M, Dagotto E 2008 *Phys. Rev. B* **78** 201102

SPECIAL TOPIC — Quantum states generation, manipulation and detection

# Quantum manipulation of electronic phase separation in complex oxides\*

Wang Wen-Bin<sup>1)</sup> Zhu Yin-Yan<sup>2)</sup> Yin Li-Feng<sup>2)3)</sup> Shen Jian<sup>1)2)3)†</sup>1) (*Institute for Nanoelectronics Devices and Quantum Computing, Fudan University, Shanghai 200433, China*)2) (*State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China*)3) (*Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, Nanjing 210093, China*)

( Received 12 November 2018; revised manuscript received 19 November 2018 )

## Abstract

Complex oxides system displays exotic properties such as high temperature superconductivity, colossal magnetoresistance and multiferroics. Owing to the strong correlation between lattice, spin, charge and orbital degrees of freedom, competing electronic states in complex oxides system often have close energy scales leading to rich phase diagrams and spatial coexistence of different electronic phases known as electronic phase separation (EPS). When the dimension of complex oxides system is reduced to the length scale of the correlation length of the EPS, one would expect fundamental changes of the correlated behavior. This offers a way to control the physical properties in the EPS system. In this paper, we review our recent works on electronic phase separation in complex oxide systems. We discovered a pronounced ferromagnetic edge state in manganite strips; by using lithographic techniques, we also fabricated antidot arrays in manganite, which show strongly enhanced metal-insulator transition temperature and reduced resistance. Moreover, we discovered a spatial confinement-induced transition from an EPS state featuring coexistence of ferromagnetic metallic and charge order insulating phases to a single ferromagnetic metallic state in manganite. In addition, by using unit cell by unit cell superlattice growth technique, we determined the role of chemical ordering of the dopant in manganite. We show that spatial distribution of the chemical dopants has strong influence on their EPS and physical properties. These works open a new way to manipulate EPS and thus the global physical properties of the complex oxides systems, which is potentially useful for oxides electronic and spintronic device applications.

**Keywords:** complex oxides system, electronic phase separation, quantum manipulation, spintronic device**PACS:** 75.47.Gk, 85.75.-d, 75.47.Lx**DOI:** [10.7498/aps.67.20182007](https://doi.org/10.7498/aps.67.20182007)

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2016YFA0300702), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2014CB921104), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11504053), the Program of Shanghai Academic Research Leader, China (Grant Nos. 18XD1400600, 17XD1400400), and Shanghai Municipal Natural Science Foundation, China (Grant Nos. 18JC1411400, 18ZR1403200).

† Corresponding author. E-mail: [shenj5494@fudan.edu.cn](mailto:shenj5494@fudan.edu.cn)