

階梯式穿隧磁阻陣列之製作與特性研究

連栓興、王立民

E-mail: 9419748@mail.dyu.edu.tw

摘要

本論文主要是利用高角度的階梯製作出穿隧元件，並且加上形貌的改變，探討溫度與形貌對穿隧元件特性的影響。本論文主要包含三個主要的部分：1. 類鑽石（Diamond-Like Carbon, DLC）薄膜的成長與特性分析—利用磁控濺鍍的方式於室溫成長DLC薄膜，並且利用高真空熱退火處理來增加其硬度。2. 高角度階梯的製作—利用DLC薄膜的高硬度特質，製作出品質良好又筆直陡峭的高角度階梯。3. 製作穿隧磁阻元件—利用形貌的改變造成磁異向性來增加穿隧磁阻的大小。結果顯示，我們利用700 在10-5 torr壓力下，進行3小時的高真空熱退火處理，降低了DLC薄膜的蝕刻速率，而且也利用反應式離子蝕刻技術製作出階梯角度大於50°且品質優良的高角度階梯。我們利用此高角度階梯成功製作出穿隧元件，且利用形貌的改變造成晶界兩側之磁化不同向增加穿隧磁阻的大小，其中形貌比例1：10的樣品磁阻變化率在5 K時可以達到5 %以上，其自旋極化率可以達到30%。

關鍵詞：鑽錫錳氧、穿隧磁阻、類鑽石薄膜、階梯

目錄

| | |
|---|---|
| 封面內頁 簽名頁 授權書 | iii 中文摘要 |
| iv 英文摘要 | v 謝謝 |
| vi 目錄 | vii 圖目錄 |
| x 表目錄 | xiii 第 |
| 第一章 序論 1.1 前言 | 1 1.2 研究背景 |
| 1.2.1 研究目的與方法 | 3 1.4 相關材料與穿隧元件技術 |
| 龐磁阻材料-鈣鈦礦氧化物的介紹 | 4 1.4.2 類鑽石薄膜的介紹 |
| 7 第二章 理論基礎 2.1 磁阻的介紹 | 6 1.4.3 穿隧接面的介紹 |
| 11 2.2 自旋極化率之計算 | 11 2.1.1 穿隧磁阻 |
| 14 2.4 電阻-磁場關係圖形探討 | 13 2.3 磁異向性 |
| 19 第三章 理論基礎 3.1 真空鍍膜系統與離子蝕刻系統 | 17 2.5 穿隧障壘之計算 |
| 25 3.3 反應式離子蝕刻 | 21 3.2 黃光微影製程 |
| 29 3.5 原子力顯微鏡 | 28 3.4 薄膜分析 |
| 31 3.7 拉曼光譜的介紹 | 30 3.6 薄膜測厚儀 |
| 35 4.2 高角度階梯的製作 | 33 第四章 實驗步驟與方法 4.1 類鑽石薄膜的磊晶成長 |
| 41 4.3.1 鑽錫錳氧薄膜的成長 | 38 4.3 鑽錫錳氧薄膜的成長與形貌圖型的製作 |
| 41 4.3.2 形貌之製作 | 41 4.3.2 形貌之製作 |
| 第五章 數據分析與討論 5.1 DLC薄膜的成長與退火處理之研究 | 46 5.1.1 室溫成長DLC薄膜之AFM表面影像與拉曼光譜 |
| 46 5.1.2 高真空熱退火處理之DLC薄膜的AFM表面影像與拉曼光譜 | 46 5.1.3 退火溫對蝕刻速率之影響 |
| 47 5.1.3 退火溫對蝕刻速率之影響 | 51 5.2 高角度階梯的製作 |
| 52 5.3 利用形貌造成磁阻改變之探討 | 55 5.3.1 鑽錫錳氧薄膜的結構分析 |
| 55 5.3.2 階梯式LSMO穿隧元件之電阻率與溫度變化關係 | 56 5.3.3 磁阻與外加磁場之變化關係 |
| 57 5.3.4 不同溫度各樣品的磁阻綜合比較 | 58 5.3.5 不同方式製作階梯之穿隧磁阻比較 |
| 59 5.3.6 不同形貌對穿隧磁阻之影響 | 62 5.3.7 溫度效應對穿隧磁阻之影響 |
| 65 5.3.8 穿隧障壘與厚度之討論 | 65 5.3.8 穿隧障壘與厚度之討論 |
| 71 第六章 結論 | 74 參考文獻 |
| 75 圖目錄 圖1-1 穿隧位障波函數示意圖 | 8 |
| 圖1-2 不同的穿隧接面 | 9 圖2-1 電子狀態密度之示意圖 |
| 13 圖2-2 軸較長的橢球體 | 16 圖2-3 形貌構想圖 |
| 16 圖2-4 R-H關係圖之butterfly特性曲線 | 17 圖2-5 WKB穿隧能障示意圖 |
| 19 圖2-6 穿隧障壘V _{bi} 與R _{jA} 之關係圖 | 20 圖3-1 本實驗磊晶與蝕刻製程系統之實體照片圖 |
| 22 圖3-2 本實驗磊晶與蝕刻製程系統之示意圖 | 23 圖3-3 DLC與LSMO薄膜的濺鍍腔體 |
| 23 圖3-4 離子束蝕刻系統內部架構圖 | 24 圖3-5 黃光製程的步驟 |
| 25 圖3-6 本實驗所使用之曝光機台 | 27 圖3-7 本 |

| | | | |
|--|----|--|----|
| 實驗所使用之RIE系統示意圖 | 28 | 圖3-8 (a) 為本實驗所用之XRD系統 (b) 為內部裝置圖 | 29 |
| 圖3-9 布拉格晶格繞射示意圖 | 30 | 圖3-10 為AFM原理的簡單示意圖 | |
| 31 圖3-11 -Step量測的示意圖 | 32 | 圖3-12 DLC薄膜的拉曼光普分析圖 | |
| 34 圖4-1 第一階段流程圖 | 36 | 圖4-2 量測DLC薄膜蝕刻速率的方法 | |
| 37 圖4-3 利用lift off方式製作階梯 | 39 | 圖4-4 利用RIE方式製作階梯 | |
| 40 圖4-5 蝕刻角度示意圖 | 41 | 圖4-6 穿隧磁阻陣列示意圖 | |
| 42 圖4-7 樣品光罩圖 | 43 | 圖4-8 成長LSMO前後之示意圖 | |
| 43 圖4-9 實際樣品圖 | 44 | 圖5-1 DLC薄膜之Raman光譜分析圖 | |
| 47 圖5-2 利用AFM量測之DLC薄膜表面圖 | 47 | 圖5-3 不同溫度高真空熱退火後的Raman光譜圖 | 50 |
| 49 圖5-4 不同溫度高真空熱退火後的AFM量測圖 | 51 | 圖5-6 退火溫度對蝕刻速率之關係圖 | |
| 52 圖5-7 利用lift-off方式製作的階梯 | 53 | 圖5-8 利用RIE方式製作的階梯 | |
| 53 圖5-9 舉離示意圖 | 54 | 圖5-10 利用RIE製作階梯示意圖 | |
| 54 圖5-11 LSMO薄膜的X光繞射圖 | 55 | 圖5-12 無外加磁場下，1：10形貌各樣品電阻率與溫度的關係圖 | 56 |
| 55 圖5-13 低溫低外加磁場下L10、LF10、RIE10磁阻變化率與外加磁場關係圖 | 58 | 圖5-14 5 K LF10與RIE10磁阻變化率與外加磁場的關係圖 | |
| 59 圖5-15 5 K時LF01與RIE01磁阻變化率與外加磁場的關係圖 | 59 | 圖5-15 5 K時LF01與RIE01磁阻變化率與外加磁場關係圖 | 60 |
| 60 圖5-16 1：10形貌下，不同溫度與MRmax間的關係圖 | 61 | 圖5-17 1：1形貌下，不同溫度與MRmax間的關係圖 | 62 |
| 62 圖5-18 5 K下LF10、LF03、LF01的磁阻變化率與外加磁場之關係圖 | 63 | 圖5-19 5 K時RIE01、RIE10的磁阻變化率與外加磁場之關係圖 | 63 |
| 63 圖5-20 LF01、LF03、LF10不同溫度間MRmax的比較圖 | 64 | 圖5-21 RIE01、RIE10不同溫度間MRmax的比較圖 | |
| 64 圖5-22 各樣品於不同溫度下之最大磁阻圖 | 65 | 圖5-22 各樣品於不同溫度下之最大磁阻圖 | 66 |
| 66 圖5-23 LF01、LF03、LF10之TMR與溫度關係圖 | 68 | 圖5-23 LF01、LF03、LF10之TMR與溫度關係圖 | 68 |
| 68 圖5-24 RIE01、RIE10之TMR與溫度關係圖 | 69 | 圖5-24 RIE01、RIE10之TMR與溫度關係圖 | 70 |
| 69 圖5-25 LF01、LF03、LF10之自旋極化率與溫度的關係圖 | 71 | 圖5-25 LF01、LF03、LF10之自旋極化率與溫度的關係圖 | 71 |
| 70 圖5-26 RIE01、RIE10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 72 | 圖5-26 RIE01、RIE10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 72 |
| 72 圖5-27 LF01、LF03、LF10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 73 | 圖5-27 LF01、LF03、LF10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 73 |
| 73 圖5-28 RIE01、RIE10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 74 | 圖5-28 RIE01、RIE10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 74 |
| 74 圖5-29 LF01、LF03、LF10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 75 | 圖5-29 LF01、LF03、LF10穿隧障壘與溫度間的關係圖 | 75 |
| 75 圖5-30 RIE01、RIE10穿隧厚度與溫度間的關係圖 | 76 | 圖5-30 RIE01、RIE10穿隧厚度與溫度間的關係圖 | 76 |
| 76 表2-1 推測LSMO微米線在R-H圖各位置磁矩變化 | 77 | 表2-1 推測LSMO微米線在R-H圖各位置磁矩變化 | 77 |
| 77 表4-1 DLC薄膜磊晶成長之條件 | 78 | 表4-1 DLC薄膜磊晶成長之條件 | |
| 78 表4-2 高真空熱退火之條件 | 79 | 表4-2 高真空熱退火之條件 | |
| 79 表4-3 RIE蝕刻條件 | 80 | 表4-3 RIE蝕刻條件 | |
| 80 表5-1 不同溫度各樣品MRmax之比較表 | 58 | 表5-1 不同溫度各樣品MRmax之比較表 | |

參考文獻

- [1] C. Kwon, Q. X. Jia, Y. Fan, M. F. Hundley, D. W. Reagor, J. Y. Coulter, and D. E. Peterson, *Appl. Phys. Lett.* 72, 486(1998).
- [2] S. P. Isaac, N. D. Mathur, J. E. Evetts, and M. G. Blamire, *Appl. Phys. Lett.* 72, 2038(1998).
- [3] X. W. Li, A. Gupta, Gang Xiao and G. Q. Gong, *Appl. Phys. Lett.* 71, 1124(1997); K. Hamaya, T. Taniyama, and Y. Yamazaki, *J. Appl. Phys.* 89, 6320(2001).
- [4] M. Ziese, G. Heydon, R. Hohne, P. Esquinazi, and J. Dienelt, *Appl. Phys. Lett.* 74, 1481(1999).
- [5] Takeshi Obata, Takashi Manako, Yuichi Shimakawa, and Yoshimi Kubo, *Appl. Phys. Lett.* 74, 290(1999); Moon-Ho Jo, N. D. Mathur, N. K. Todd, and M. G. Blamire, *Phys. Rev. B* 61, 14905(2000).
- [6] J. B. Philipp, C. Hofener, S. Thienhaus, J. Klein, L. Alff, and R. Gross, *Phys. Rev. B* 62, R9248(2000).
- [7] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthelemy, J.-P. Contour, A. Anane, Y. Lemaitre, and A. Fert, *Appl. Phys. Lett.* 82, 233(2003).
- [8] F. Guinea, *Phys. Rev. B* 58, 9212(1998).
- [9] Pin Lyu, D. Y. Xing, and Jinming Dongee, *Phys. Rev. B* 60, 4235(1999).
- [10] H. Itoh, T. Ohsawa, and J. Inoue, *Phys. Rev. Lett.* 84, 2501(2000).
- [11] J. - H. Park, E. Vescovo, H. - J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, and T. Venkatesan, *Phys. Rev. Lett.* 81, 1953(1998).
- [12] Jagadeesh S. Moodera, Janusz Nowak, and Rene J. M. van de Veerdonk, *Phys. Rev. Lett.* 80, 2941(1998).
- [13] H. Q. Yin, J. - S. Zhou, and J. B. Goodenough, *Appl. Phys. Lett.* 77, 714(2000).
- [14] Y. Moritomo, A. Asamitsu, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* 51, 16491(1995).
- [15] Yu Lu, X. W. Li, G. Q. Gong, Gang Xiao, A. Gupta, P. Lecoeur, J. Z. Sun, Y. Y. Wang, and V. P. Dravid, *Phys. Rev. B* 54, 8357(1996); X. W. Li, Yu Lu, G. Q. Gong, Gang Xiao, A. Gupta, P. Lecoeur, J. Z. Sun, Y. Y. Wang, and V. P. Dravid, *J. Appl. Phys.* 81, 5509(1997); F. J. Cadieu, Li Chen, Biao Li, and T. Theodoropoulos, *Appl. Phys. Lett.* 75, 3369(1999). Only the third article showed room temperature MR devices using LSMO polycrystalline films.

- [16] J. Z. Sun, W. J. Gallagher, A. C. Callegari, V. Foglietti and R. H. Koch " Improved process for high-T_c superconducting step-edge junctions " , Appl. Phys. Lett. 63, 1561(1993) [17] L.M. Wang et al. / Thin Solid Films 457 (2004) 359 – 364 " Effects of step-edge conditions on the magnetoresistance of La0.7Sr0.3MnO₃ tunneling junctions " .
- [18] L.M. Wang et al. / J. Appl. Phys., Vol. 95, No. 9, 1 May 2004, " Room-temperature tunneling magnetoresistance in La0.7Sr0.3MnO₃ step-edge junctions " .
- [19] C. Zener, Phys. Rev. 81, 440 (1951) [20] C. Zener, Phys. Rev. 82, 403 (1951) [21] H. A. John and E. Teller, Proc. R. Soc. London A, 166.220,(1937) [22] S. Jin, T. H. Tiefel, M. Me Cormak, R. A. Fastnacht, R. Ramesh and L. H. Chen, Science 264. 413 (1994) [23] Young Suk Cho, " Magnetoresistance of La_{1-x}Sr_xMnO₃ films deposited by RF magnetron co-sputtering " , Journal of Magnetism and Magnetic Materials 226-230(2001) p.754-756 [24] K. Char, M. S. Colclough, S. M. Garrison, N. Newman, and G. Zaharchuk, " Bi-epitaxial grain boundary junctions in YBa₂Cu₃O₇ " , Appl. Phys. Lett. 59, 733 (1991) .
- [25] K. Char, M. S. Colclough, L. P. Lee, and G. Zaharchuk, " Extension of bi-epitaxial Josephson junction process to various substrates " , Appl. Phys. Lett., 59, 2177 (1991) .
- [26] Yu. A. Boikov, A. L. Vasiliev, and T. Claeson, " Bi-epitaxial Josephson junctions with high current density based on YBa₂Cu₃O₇- films on silicon sapphire " , J. Appl. Phys. 77, 1654 (1995) .
- [27] Kiejin Lee and Lenair Iguchi, " Josephson effects in YbaCuO grain boundary junctions on (100) MgO bicrystal substrates " , Appl. Phys. Lett. 66, 769 (1995) .
- [28] I. V. Borisenco, P. B. Mozhaev, G. A. Ovsyannikov, K. Y. Constantinian, E. A. Stepantsov, " Superconducting current-phase relation in high-T_c symmetrical bicrystal junction " , Physica C 368, 328 (2002) .
- [29] Gensoh Matsubara, Katsumi Eikyu, Masayuki Miyazaki, Hiroshi Kimura, and Yoichi Okabe, " Fabrication of YBCO/PBCO/SrTiO₃/PBCO/YBCO Layered Structure for Superconductor-Insulator-Superconductor Tunnel-Type Josephson Junction " , Jpn. J. Appl. Phys. 32, L1324 (1993) .
- [30] Toshiyuki Matsui, Takeshi Suzuki, Akihiko Ohi, Hiroshi Kimura, and Kazuo Mukae, " Fabrication of Tunnel Junctions with YBCO/Insulator/YBCO Layered Structure Using (013)-Oriented Films as Base Layer " , Jpn. J. Appl. Phys. 32, L1218 (1993) .
- [31] L. C. Ku, H. M. Cho, J. H. Lu, S. Y. Wang, W. B. Jian, H. C. Yang, and H.E. Horng, " Characteristics of YBa₂Cu₃O_x step-edge Josephson junctions on MgO substrate " , Physica C 229, 320 (1994) .
- [32] 楊鴻昌，物理專文『認識超導量子干涉元件SQUID』，物理雙月刊11卷5期。
- [33] 楊鴻昌，超導、超導—應用篇『最敏感的感測元件SQUID及其前瞻性應用』，物理雙月刊24卷5期。
- [34] 張慶瑞,中華民國磁性技術協會會訊,第十九期 , 1999,p.5 [35] Phys. Rev. Lett. 77, 2041 (1996) [36] M. Julliere, Phys. Lett. 54A, 225(1975)
- [37] B. D. Cullity, " Introduction to Magnetic Materials " , ADDISON-WESLEY Publishing Company(1972), p. 49.
- [38] 許樹恩,吳泰伯,X光繞射原理與材料結構分析,中國材料科學學會,1993,頁121 [39] B. D. Cullity, Elements of X-ray Diffraction (Addison -Wesley, Massachusetts,1977) p.81.
- [40] H. Nakazawa, Y. Yamagata, M. Suemitsu, M. Mashita, Thin Solid Film 467(2004) 98.
- [41] S. Y. Yang, C. H. Chen, H. E. Horng, W. L. Lee and H.C. Yang, " Characteristics of YBCO SQUIDs with Step-edge And Bi-epitaxial Grain Boundaries " , IEEE. Vol. 9, 3121, 1999.
- [42] K. Hamaya, T. Taniyama, Y.Y amazaki, J. Appl.Phys.89 (2001) 6320.
- [43] K.Steenbeck, T.Eick, K.Kirsch, and K.O'Donnells " magneto- resistance of La0.8Sr0.2MnO₃ single crystal films " , Appl. Phys. Lett. 71(7),25 August (1997), p. 968-970 [44] S. P. Isaac, N. D. Mathur, J. E. Evetts, and M. G. Blamire Department of Materials Science, University of Cambridge, Pembroke Street, Cambridge CB2 3QZ United Kingdom, " Magnetoresistance of artificial La0.7Sr0.3MnO₃ grain boundaries as a function of misorientation angle " , Applied Physics Letters Volume 72, Number 16, 20 April (1998),p.2038-2040 [45] J. B. Philipp, L. Alff, A. Marx, and R. Gross, Phys. Rev. B 66,224417(2002).
- [46] C. H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, and J. S. Moodera, Phys. Rev. B 58, R2917(1998).