

双势垒磁性隧道结中量子阱共振隧穿效应的第一性原理理论*

王琰¹ 韩秀峰^{1,†} 卢仲毅² 张晓光³

(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 中国科学院理论物理研究所 北京 100080)

(3 美国橡树岭国家实验室 田纳西州 37831—6164)

摘要 磁性隧道结材料中自旋相关的量子阱态所导致的共振隧穿现象具有很重要的研究和应用价值. 文章介绍了最近在 $\text{Fe}(001)/\text{MgO}/\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$ 双势垒磁性隧道结中存在的量子阱共振隧穿效应的理论研究工作. 通过量子阱态的第一性原理的计算以及结合对中间 Fe 薄膜孤岛结构所导致 Coulomb 阻塞效应的分析,证实了最近 Nozaki 等人 (Nozaki T *et al.* Phys. Rev. Lett., 2006 96 027208) 实验中得到的振荡效应确实来源于中间 Fe 层多数自旋电子在 Γ 点处形成的 Δ_1 对称性的量子阱态. Coulomb 阻塞效应的存在正是导致实验中低温下量子阱共振隧穿效应不够明显的主要原因.

关键词 双势垒磁性隧道结, 量子阱态, 共振隧穿, 第一性原理计算

First – principles theory of quantum well resonance in double barrier magnetic tunnel junctions

WANG Yan¹ HAN Xiu-Feng^{1,†} LU Zhong-Yi² ZHANG Xiao-Guang³

(1 Institute of Physics, Beijing National Laboratory of Condensed Matter Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(2 Institute of Theoretical Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(3 Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee 37831 – 6164, USA)

Abstract Resonant tunneling due to spin-dependent quantum well (QW) states in magnetic tunnel junctions have significant potential in research and applications. We discuss recent theoretical research on QW resonances in $\text{Fe}(001)/\text{MgO}/\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$ double barrier magnetic tunnel junctions. By calculating these QW states from first – principles and including the Coulomb blockade energy due to the finite size islands of the middle Fe film, we confirm that the oscillatory differential resistance observed in a recent experiment (Nozaki T *et al.* Phys. Rev. Lett., 2006 96 :027208) originates from the QW resonances from the Δ_1 band of the Fe majority – spin channel. The primary source of smearing at low temperatures is shown to be the variation of the Coulomb blockade energy.

Keywords double barrier magnetic tunnel junctions, quantum well states, resonant tunneling, first – principles calculation

1 引言

自 1975 年 Jullière 在 $\text{Fe}/\text{Ge}/\text{Co}$ 多层膜中^[1]发现隧穿磁电阻效应 (tunneling magnetoresistance, TMR) 特别是 1995 年 Miyazaki 等人在铁磁性隧道结材料中发现室温的高隧穿磁电阻效应^[2,3]以后,

这种以铁磁层/势垒层/铁磁层三明治结构为核心的

* 国家重点基础研究发展计划(批准号:2006CB93200)、国家杰出青年基金(批准号:50325104,50528101)、国家自然科学基金(批准号:10574156)、中国科学院知识创新工程重大课题和王宽诚基金

2006 – 11 – 12 收到初稿,2006 – 12 – 28 收到修改稿

† 通讯联系人. Email: xfhan@aphy.iphy.ac.cn

磁性隧道结(magnetic tunnel junction, MTJ)材料以及其中自旋相关电子的隧穿输运性质,引起了实验和理论学者们广泛的研究兴趣.这些研究工作不仅迅速推动了近10年中凝聚态物理新兴学科——磁电子学(magneto-electronics)和自旋电子学(spin-electronics/spintronics)的形成与快速发展,也极大地促进了信息工业中磁电阻材料和新型自旋电子学器件的研制和应用.如基于磁性隧道结材料的磁随机存储器(magnetic random access memory, MRAM)已成为国际上众多公司和科研机构大力研发的目标,如目前Motorola和IBM等公司以及中国科学院物理研究所已经开发研制出相关的MRAM演示器件.

近年来在磁性隧道结的实验制备方面,研究人员一直致力于得到完好的界面以及更薄的膜厚度.随着各层薄膜厚度的不断减小,可能产生的量子效应已经成为一个重要的研究课题.在不同磁性隧道结结构中,通过量子阱态所导致的自旋相关共振隧穿问题也激起了实验学者们广泛的研究兴趣,如2002年Yuasa等人^[4]在Al-O单势垒磁性隧道结Co/Cu/Al-O/Ni-Fe结构中,发现了由Cu层中电子的量子禁闭所导致的TMR随着Cu层厚度变化的振荡现象;Nagahama等人^[5]在Cr/Fe/Al-O/FeCo结构的单势垒隧道结中,也发现了通过Fe层中电子的量子阱态导致的隧穿电导随着外加偏压变化的振荡效应.然而这些实验中所观测到共振效应的信号相对比较微弱,这被认为是由所用的非晶结构势垒层所导致^[6].2004年,国际上有两个实验小组分别利用分子束外延和磁控溅射沉积两种方法,成功制备出了单晶MgO(001)势垒的隧道结材料^[7,8],室温下TMR能够达到200%,突破了传统非晶势垒隧道结的磁电阻仅依赖于磁电极自旋极化率大小的限制,验证了第一性原理计算预言的MgO(001)电子结构也对隧道结的磁电阻有重要贡献,从而大幅度提高了隧穿磁电阻值的比值.并且,单晶结构的MgO(001)作为势垒层也对观测量子阱共振效应提供了可能性.如最近日本Nozaki等^[9]报道了用分子束外延方法成功制备了Fe/MgO/Fe/MgO/Fe双势垒隧道结的,并且观测到 dI/dV 曲线中随着外加偏压的变化而振荡的现象.然而该振荡效应仍然比较微弱,并且对隧穿磁电阻没有影响.

在此之前,人们对双势垒磁性隧道结中共振隧穿效应的理论分析还仅局限于通过唯象模型来进行定性描述上^[10],但是对Fe(001)电极和MgO(001)势垒的外延单晶结构,需要基于第一性原理的计算

来分析Fe在费米能级附近的能带结构以及准确地计算出量子阱态的能级. Butler等人的第一性原理计算^[11]已阐明了Fe(001)的 Δ_1 能带的隧穿是Fe/MgO/Fe单势垒隧道结中具有高隧穿磁电阻的主要原因,因为Fe费米面多数自旋电子 Δ_1 能带的对称性与MgO能隙(001)方向的复能带相符,具有较大的隧穿几率,并且该能带也能够有一些特殊结构中导致量子阱共振隧穿效应^[6].与单势垒隧道结类似,我们认为采用第一性原理理论来研究和分析双势垒隧道结中是否存在量子阱共振隧穿效应,将会是一个非常有效的重要途径.

因此,我们对Fe(001)/MgO/Fe/MgO/Fe双势垒磁性隧道结中可能存在的量子阱共振效应进行了系统的研究^[12],并取得了重要进展.通过第一性原理计算以及结合对中间Fe层中Coulomb阻塞效应的分析,从理论上证实了Nozaki等人实验中的振荡效应确实来源于中间Fe层在 Γ 点处形成的 Δ_1 对称性的量子阱态,并且Coulomb阻塞效应的存在正是导致实验中共振效应不够明显的主要原因.

2 计算方法

具体对Fe(001)/MgO/Fe/MgO/Fe双势垒隧道结的电子结构计算方法与以前的一些工作^[6,11]基本类似,两端电极和中间Fe层的晶格常数取为 2.86\AA ,而势垒层MgO的晶格常数则取为Fe的 $\sqrt{2}$ 倍.对双势垒之间Fe层的厚度我们分别计算了从5ML到35ML之间的各种情况.计算程序使用了第一性原理的Layer Korringa-Kohn-Rostoker(KKR)方法,采用密度函数理论(density functional theory, DFT)的局域自旋密度近似(local spin density approximation, LSDA).自洽(self-consistent)计算收敛以后,我们计算了二维布里渊区中 Γ 点处的电子态密度.

3 结果与讨论

我们知道, Γ 点处 Δ_1 能带主要是s电子(角动量 $l=0$),而在 Γ 点其他能带都没有s分量,所以我们只用对s电子进行分析.对于中间Fe层厚度取为9个原子层的Fe(001)/MgO/Fe9/MgO/Fe双势垒隧道结,图1(a)显示了计算出的中间Fe层在 Γ 点处多数自旋(即自旋向上,以下简称多子)s电子的态密度.我们可以看到在多子能带中形成了数个分

立能级的尖峰,它们就是在中间 Fe 层中形成的多子量子阱态. 如果和块体材料 Fe 的 s 多子电子能带作比较(如图 1(b)所示),可以看到这些量子阱态就是从双势垒材料中间 Fe 薄膜的 Δ_1 能带衍化形成. 通过分析这些态在 9 个原子层中的态密度大小,可以得到它们各自波函数的节点数 n ,可以看到它们确实是有序排列的,而在 -0.9 V 附近 $n=0$ 和 $n=1$ 的态在图中并不明显,其原因是它们的位置非常接近 Δ_1 能带的边缘.

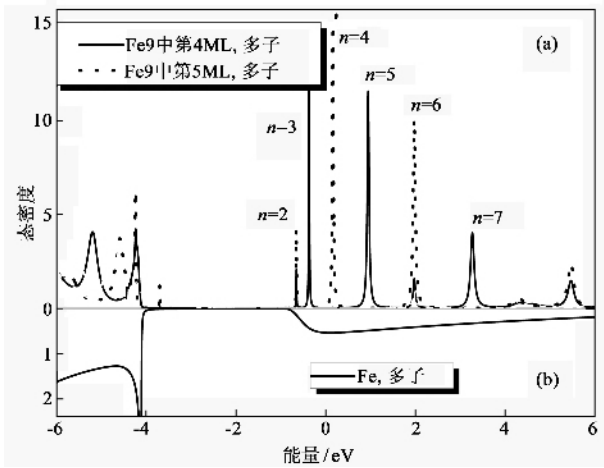


图 1 Γ 点处自旋向上(多子)s 电子的态密度 (a) 对于 Fe(001)/MgO/Fe9/MgO/Fe 结构中间 Fe 层的情况:第四原子层(实线)和第五原子层(虚线) (b) 对于块体 Fe 材料的情况

我们将计算出的量子阱共振偏压位置(对应于量子阱态能级)与实验^[9]中得到的共振偏压位置进行了比较,如图 2 所示. 我们规定实验中的共振偏压取为所测 $dI/dV-V$ 曲线中峰尖和紧邻的峰谷之间的中点,也就是随着偏压变化下所得到隧穿电流的极大值. 我们将实验中 4 种不同厚度情况下得到的结果分别对应我们用 Layer KKR 的计算结果. 实验中 Fe 薄膜厚度不一定均匀,所以测量可能得到的是两个邻近厚度都有的情况,每种情况的对应如图 2 中虚线方框所示.

根据比较,我们发现计算结果与实验中的共振位置能够一一对应,但它们的位置存在一个有规律性的差异,如图 2 中箭头所示. 我们认为,这是由中间 Fe 薄膜的 Coulomb 电荷能量所导致的. 因为实际实验中得到的中间 Fe 薄膜是不连续的,有限大小的 Fe 颗粒导致了电子隧穿过程中伴随着 Coulomb 阻塞效应,也就是说,隧穿电子需要克服一个额外的 Coulomb 能量才能够完成隧穿. 我们可以用一个简单的平板电容模型来描述. 通过分析电子隧穿需要

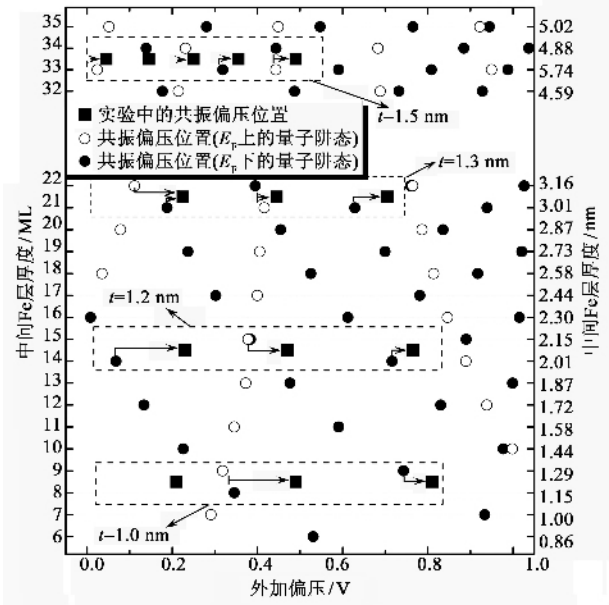


图 2 不同厚度情况下计算得到的共振偏压位置与实验结果对比(之间的箭头表示由 Coulomb 阻塞效应导致的差异)

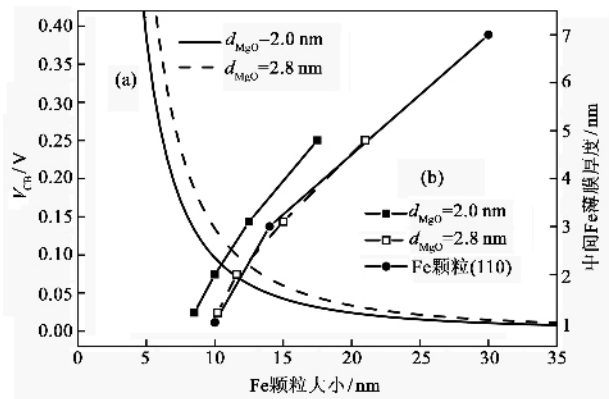


图 3 (a)Coulomb 电势与颗粒直径大小的关系 (b)Fe 颗粒大小与 Fe 薄膜厚度的关系:双势垒隧道结中间 Fe 层与 Fe(110)颗粒膜的 AFM 分析结果

克服的额外 Coulomb 电势 V_{CB} 与颗粒直径大小的关系,进而可以推算出各情况下相应的 Fe 孤岛直径大小,如图 3(a)所示. 我们惊奇地发现,有人对 Fe(110)颗粒膜的原子力显微镜(AFM)分析也给出了非常相似的颗粒直径与高度(薄膜厚度)的关系^[13]. 如果稍增大 MgO 势垒层厚度 $d_{MgO} = 2.8$ nm,可以发现这个关系与 AFM 的分析完全一致,如图 3(b)所示. MgO 层有效电容厚度增加的一个可能原因是薄膜中介电常数应该比块体材料稍小. 另外一个非常可能的原因是由于 FeO 层的形成^[14]或者界面粗糙区域所导致的,进而增加了 MgO 层电容的有效厚度.

从图 3 中可以看到,如果颗粒大小不一致, V_{CB} 的大小有很大差异. 这也是导致输运曲线中共振隧

穿现象的信号变得微弱的原因. 如果我们将不同厚度情况下 dI/dV 曲线中共振峰的宽度和推算出的 Coulomb 电势 V_{CB} 对比, 可以看到它们呈现明显的线性关系. 也就是说, 如果能够减小 Coulomb 电势, 就有可能增大共振信号的强度. 这个关系也证明, 正是因为 Coulomb 阻塞效应的存在, 才使得低温下量子阱共振隧穿现象的信号变得不容易分辨.

4 总结

具有共振隧穿效应的双势垒磁性隧道结材料在自旋晶体管和磁逻辑器件等方面将具有很大的潜在应用价值. 我们在 $Fe(001)/MgO/Fe/MgO/Fe$ 双势垒磁性隧道结实验中发现的共振隧穿现象与第一性原理计算出的中间 Fe 层中形成的多量子态进行了比较与分析, 结果证明, Coulomb 阻塞效应在该实验中扮演了十分重要的角色, 它的大小决定了共振位置以及信号的强弱. 因此增强共振信号的一个决定性因素是有效地减小 Coulomb 能量, 即要求在此类实验中, 必须制备得到连续平整的 Fe 薄膜中间层. 这项研究结果对发展基于双势垒磁性隧道结和量子阱共振隧穿效应的自旋电子学器件, 特别是对今后研制能具有放大作用的共振隧穿二极管、自旋

场效应晶体管、实用型的磁存储器 and 磁逻辑等器件, 具有重要参考价值.

参 考 文 献

- [1] Julliere M. Phys. Lett. ,1975 ,54A :225
- [2] Miyazaki T ,Tezuka N. J. Magn. Mater. ,1995 ,139 : L231
- [3] Moodera J S ,Kinder L R ,Wong T M *et al.* Phys. Rev. Lett. , 1995 ,74 3273
- [4] Yuasa S ,Nagahama T ,Suzuki Y. Science 2002 297 234
- [5] Nagahama T ,Yuasa S ,Suzuki Y *et al.* J. Appl. Phys. 2002 , 91 7035
- [6] Lu Z Y ,Zhang X G ,Pantelides S T. Phys. Rev. Lett. 2005 , 94 207210
- [7] Yuasa S ,Nagahama T ,Fukushima A *et al.* Nat. Mater. , 2004 3 868
- [8] Parkin S S P ,Kaiser Ch ,Panchula A *et al.* Nat. Mater. , 2004 3 862
- [9] Nozaki T ,Tezuka N ,Inomata K. Phys. Rev. Lett. 2006 96 : 027208
- [10] Zhang X ,Li B Z ,Sun G *et al.* Phys. Rev. B ,1997 56 5484
- [11] Butler W H ,Zhang X G ,Schulthess T C *et al.* Phys. Rev. B , 2001 63 054416
- [12] Wang Y ,Lu Z Y ,Zhang X G *et al.* Phys. Rev. Lett. 2006 , 97 087210
- [13] Navarro E ,Huttel Y ,Clavero C *et al.* Phys. Rev. B ,2004 , 69 224419
- [14] Meyerheim H L ,Popescu R ,Kirschner J *et al.* Phys. Rev. Lett. 2001 87 076102

· 物理新闻和动态 ·

在强关联金属中电子的向列相

最近, 苏格兰大学物理学院的 Borzi R A 等, 在超纯 $Sr_3Ru_2O_7$ 晶体中观察到一个不寻常的金属相——电子的向列(nematic, 英文词源于希腊文的“线”)相. 电子的向列相, 类似于经典液晶的向列状态. 在他们的实验中, 电子聚积成一条条线段, 这些线段质量中心的空间位置是随机起伏的, 但它们保持着一个共同的择优取向. 这也可看作是“条纹相”因量子涨落发生了熔化.

Borzi 等的发现, 是电子强关联导致对称破缺的又一个例子. 晶体中相互关联的电子, 如果其 Fermi 能(量子动能)占支配地位, 一般可用 Fermi 液体理论描述; 如果其间的库仑相互作用占支配地位, 则将形成绝缘的电子晶体. 在强关联金属中(如 $Sr_3Ru_2O_7$), 电子的量子动能和库仑相互作用都不占支配地位, 因此有可能出现介于 Fermi 液体和电子晶体之间的中间相.

(戴闻 编译自 Science 2007 315 :196 214)