

Nederlands Tijdschrift voor

Natuurkunde

februari 2008-jaargang 74-nummer 2



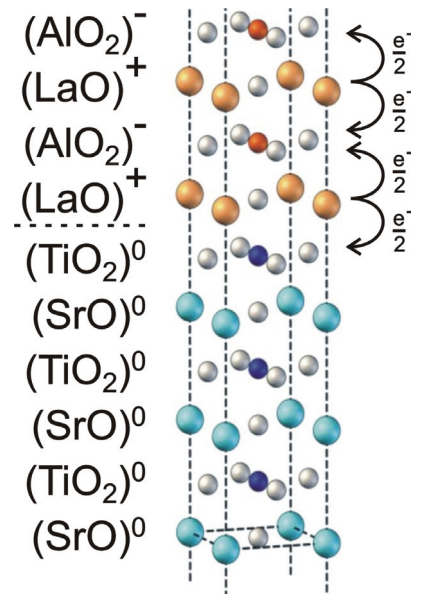
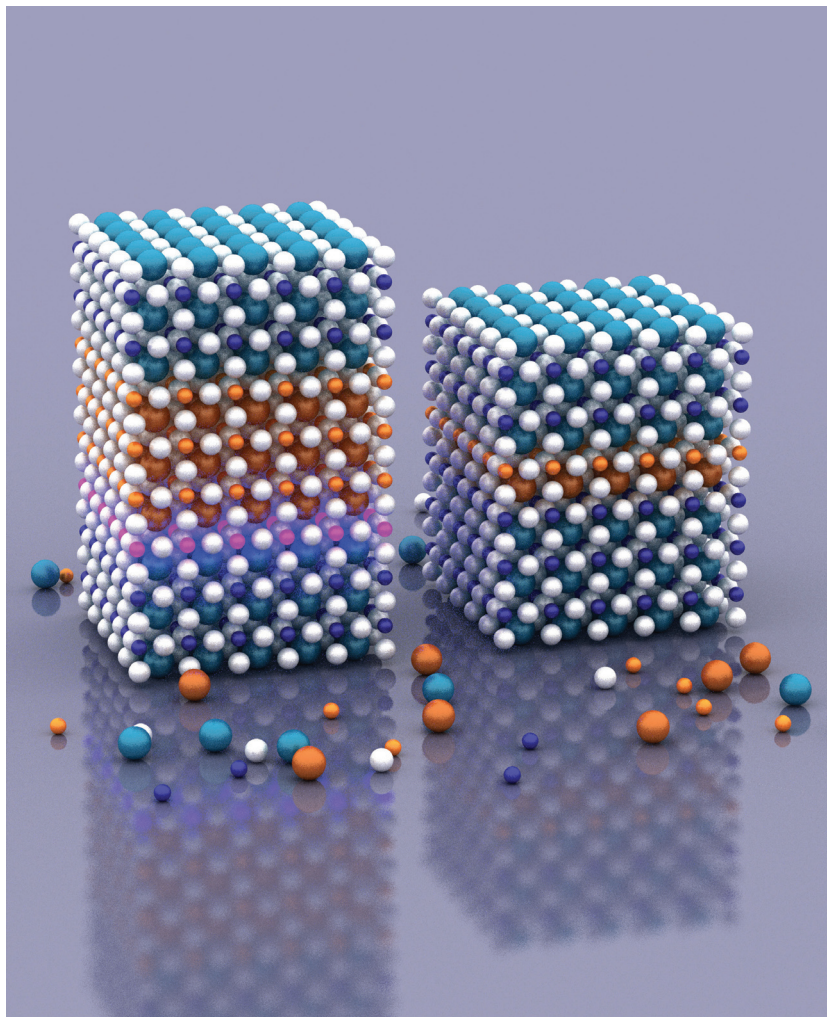
Magnetisme tussen niet-magnetische materialen

De vierde ferroïsche toestand
... en veel onderwijs

Magnetisme op het raakvlak tussen twee niet-magnetische materialen

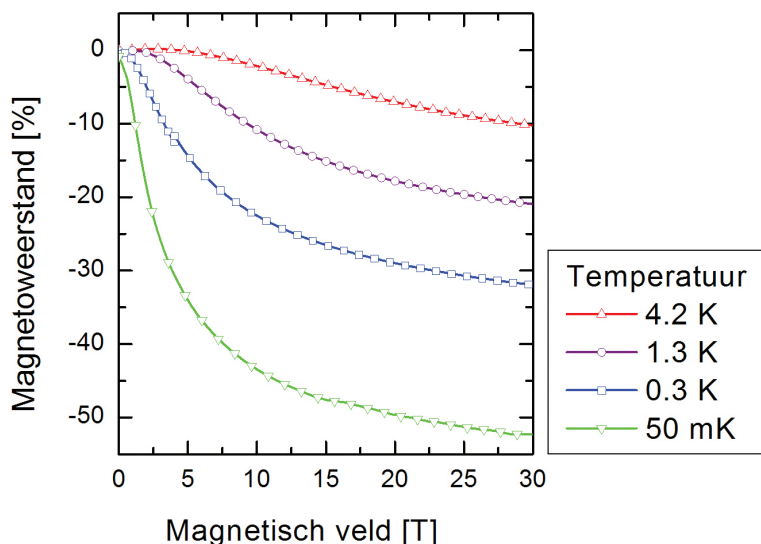
Een materiaal kan elektrische stroom geleiden of juist isolerend zijn. Maar op het raakvlak tussen twee isolatoren blijkt ook geleiding op te kunnen treden. Dit bijzondere verschijnsel werd onlangs waargenomen nadat de isolatoren SrTiO_3 en LaAlO_3 met atomaire precisie op elkaar waren gestapeld. Dit grensvlakeffect blijkt nu nog vreemder dan eerst gedacht. Het grensvlak is namelijk magnetisch, terwijl de materialen zelf helemaal niet magnetisch zijn. Maarten van Zalk, Jeroen Huijben en Alexander Brinkman

36



Figuur 1 Links: schematische weergave van een multilaagstructuur van de isolerende, niet-magnetische materialen SrTiO_3 en LaAlO_3 . Het grensvlak kan geleidend en magnetisch worden, hier schematisch aangegeven met oplichtende kleuren.

Boven: de ladingen van de sub-eenheidscellen waaruit de materialen SrTiO_3 en LaAlO_3 zijn opgebouwd, laten zien waarom aan het grensvlak lading 'overblijft' en voor geleiding en magnetisme kan zorgen.



Figuur 2 De magnetoweerstand van een SrTiO_3 - LaAlO_3 grensvlak als functie van het aangelegde magnetische veld bij verschillende temperaturen.

De materiaalklasse van de complexe oxides wordt gekenmerkt door een rijk palet aan mogelijke elektronische verschijnselen zoals hoge-temperatuur-supergeleiding, ferromagnetisme en ferro-elektricititeit. En daar kunnen sinds enkele jaren ook bijzondere elektronische grenslaageffecten aan worden toegevoegd.

In 2004 ontdekten de Japanners Ohtomo en Hwang geleiding op het raakvlak tussen de isolerende complexe oxides SrTiO_3 en LaTiO_3 [1]. Terwijl de elektronen normaalgesproken 'vast' zitten in de atoomroosters, blijken er op het grensvlak mobiele elektronen voor een ultradunne metallische laag te zorgen. Zo'n mobiel tweedimensionaal elektronengas is erg interessant voor toepassingen (denk aan snelle transistoren) en sindsdien probeert men wereldwijd te verklaren waar de geleiding vandaan komt. Een mogelijke verklaring schuilt in de ladingsopbouw van het materiaal LaAlO_3 . De eenheidscel is eigenlijk opgebouwd uit afwisselend positief geladen LaO - en negatief geladen AlO_2 -lagen (zie figuur 1). De positieve laag heeft per eenheidscel gemiddeld een half elektron aan de laag erboven en beneden afgestaan. Op het grensvlak met SrTiO_3 blijft er gemiddeld een half elektron per eenheidscel over en die kan vervolgens voor geleiding zorgen.

Dit jaar bleek het grensvlak tussen de materialen SrTiO_3 en LaAlO_3 nog interessanter dan gedacht. Onderzoek-

kers van de Universiteit Twente en de Radboud Universiteit Nijmegen ontdekten dat het grensvlak sterke magnetische effecten vertoont, terwijl de materialen dat zelf 'in de bulk' niet doen [2,3].

Negatieve magnetoweerstand

Wanneer een magnetisch veld wordt aangebracht blijkt de elektrische weerstand van het SrTiO_3 - LaAlO_3 grensvlak sterk te veranderen. Die verandering van de weerstand wordt magnetoweerstand genoemd. Vaak wordt deze relatief ten opzichte van de weerstand zonder magnetisch veld uitgedrukt. Bij een temperatuur van 50 mK en een veld van 30 T is een negatieve magnetoweerstand van 50% gemeten. Dit houdt in dat de weerstand met de helft is afgenomen. In figuur 2 is voor verschillende temperaturen de magnetoweerstand tegen het aangelegde veld uitgezet. Een dergelijk sterk weerstandseffect wordt ook wel gigantische magnetoweerstand genoemd, naar het Engelse *giant magnetoresistance*, ofwel GMR. De Nobelprijs voor de natuurkunde ging dit jaar naar Albert Fert en Peter Grünberg voor de ontdekking van GMR en het effect wordt bijvoorbeeld al toegepast in de leeskop van een harde schijf.

Om te verklaren waarom de weerstand van het grensvlak sterk afneemt in een aangelegd veld moet wat gedetailleerder naar de magnetische eigen-

Maarten van Zalk (1980) heeft technische natuurkunde gestudeerd aan de Universiteit Twente. Na een stage in Forschungszentrum Jülich en een afstudeeronderzoek op het gebied van magnesiumdiboride tunneljunctions heeft hij als promovendus in de leerstoel Lage Temperaturen van de Universiteit Twente de overstap gemaakt naar de oxidische hoge-temperatuursupergeleiders en grensvlakfysica in oxidische materialen.



M.vanZalk@tnw.utwente.nl

Jeroen Huijben (1980) sloot zijn studie technische natuurkunde aan de Universiteit Twente af met een stage in Stanford en een afstudeeronderzoek naar de geleidingseigenschappen van platina nanodraden bij de leerstoel Solid State Physics. Hierna is hij als promovendus in de leerstoel Lage Temperaturen van de Universiteit Twente gaan werken aan de elektronische en magnetische eigenschappen van grensvlakken in oxidische materialen.



J.Huijben@tnw.utwente.nl

Alexander Brinkman (1975) is universitair docent in de leerstoel Lage Temperaturen van de Faculteit Technische Natuurwetenschappen en het MESA+ Instituut voor Nanotechnologie van de Universiteit Twente. Naast zijn studie en promotie aan de Universiteit Twente deed hij onderzoek aan het Massachusetts Institute of Technology en de Université de Genève.



A.Brinkman@tnw.utwente.nl

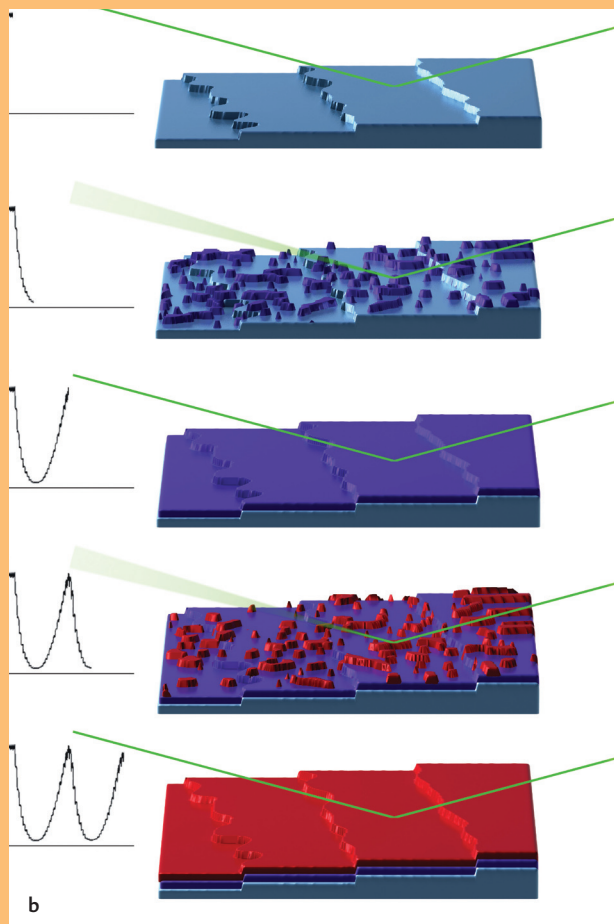
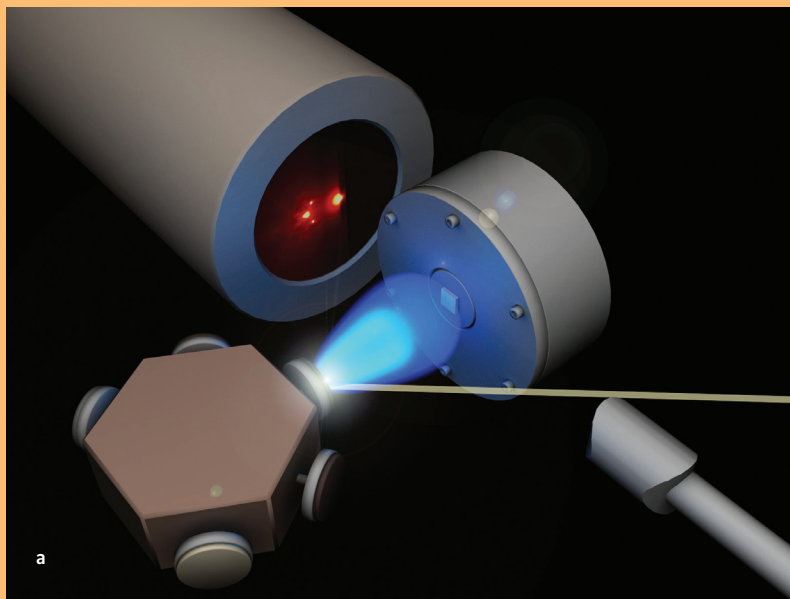
schappen van de elektronen aan het grensvlak worden gekeken. Van andere materialen is bekend dat de spin van een geleidingselektron interactie kan hebben met een gelokaliseerd magnetisch moment (bijvoorbeeld een magnetische onzuiverheid). Wanneer een extern magneetveld de gelokaliseerde magnetische momenten uitlijnt, wordt het voor de geleidings-elektronen makkelijker hierdoorheen te bewegen.

Iets dergelijks lijkt voor het grensvlak dus ook te gebeuren. De vraag is alleen waar de gelokaliseerde magnetische momenten vandaan komen. In SrTiO_3

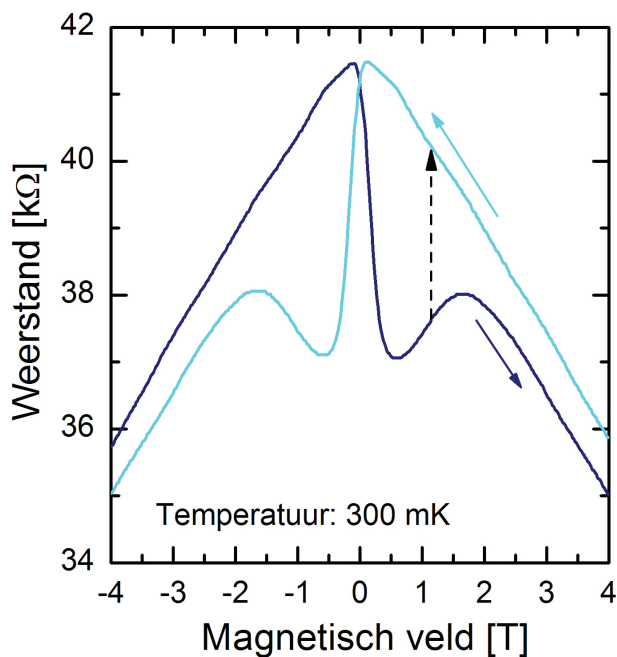
Hoe maak je een SrTiO_3 - LaAlO_3 grensvlak?

Door middel van een chemisch ets-proces en rekristallisatie bij zeer hoge temperaturen is het mogelijk om een draagkristal van SrTiO_3 zo te prepareren dat zich alleen TiO_2 aan het oppervlak bevindt en geen SrO . Het SrTiO_3 - LaAlO_3 grensvlak wordt dan vervolgens gemaakt door het deponeren van een zeer dunne laag van enkele nanometers LaAlO_3 op het SrTiO_3 draagkristal. Deze depositie vindt plaats door middel van gepulseerde laserdepositie. Door ultraviolette laserpulsen op LaAlO_3 targetmateriaal te schieten wordt dit zo heet dat zich een plasma vormt dat in de depositiekamer expandeert. Het plasma slaat vervolgens neer op het SrTiO_3 draagkristal dat recht tegenover het target geplaatst is (zie figuur 3a). Het aangroei van het LaAlO_3 wordt gevolgd door middel van Reflectieve Hoge Energie Elektronen Diffractie. Bij deze techniek wordt een smalle bundel elektronen met hoge snelheid en onder een kleine hoek op het kristaloppervlak geschoten. Deze elektronen reflecteren aan het atomair gladde oppervlak van het draagkristal waarna ze zichtbaar gemaakt worden met behulp van een fosforschermb. Zodra de groei begint, zullen er eilanden van één atoomlaag dik gaan ontstaan, die de invallende elektronenbundel verstrooien, wat tot een intensiteitsdaling leidt van de gereflecteerde elektronen op het fosforschermb (zie figuur 3b). Gedurende de depositie groeien de eilanden verder en langzamerhand vormen de eilanden een gesloten atoomlaag, wat te zien is als een maximum in de intensiteit van de gereflecteerde bundel. Tijdens de depositie zal men dus maxima in de oscillerende elektronenintensiteit zien, wat je direct het aantal aangebrachte atoomlagen geeft.

Op deze manier is het in het algemeen mogelijk om dunne lagen van enkele atomen dik zeer gecontroleerd op te bouwen en kan men door het type targetmateriaal te variëren zelf materiaalcombinaties ontwerpen [4], zoals een dunne laag met meerdere interfaces [5]. Gepulseerde laserdepositie werkt goed bij de hoge zuurstofdruk die vaak nodig is bij het groeien van complexe oxiden. Ook bij het SrTiO_3 - LaAlO_3 grensvlak blijkt het cruciaal te zijn om de zuurstofdruk tijdens depositie voldoende hoog te houden om te voorkomen dat er zuurstofvacatures aan het grensvlak ontstaan. Zuurstofvacatures kunnen in SrTiO_3 namelijk ook voor geleiding zorgen, wat het echte grensvlakeffect zou kunnen maskeren.



Figuur 3 a) Een laserstraal verhit LaAlO_3 targetmateriaal, waarna een expanderend plasma ontstaat dat neerslaat op een draagkristal van SrTiO_3 . b) Het materiaal LaAlO_3 groeit op het draagkristal door eerst enkele eilanden te vormen van één atoomlaag dik. Hierdoor gaat de intensiteit van de gereflecteerde elektronenbundel omlaag. Wanneer de eilanden verder uitgroeien tot een gesloten laag, neemt de intensiteit weer toe.



Figuur 4 De weerstand van een $\text{SrTiO}_3\text{-LaAlO}_3$ grensvlak als functie van het aangelegde magnetische veld bij een temperatuur van 300 mK vertoont hysteresis. De verandering van het magnetische veld is met pijlen aangegeven in de figuur. De gestippelde pijl geeft aan hoe de weerstand verandert als het veld wordt stilgehouden.

heeft het Ti-ion de valentie 4+ (Sr is 2+ en O is 2-). Dit betekent dat de *d*-schil van het Ti-atoom helemaal geen elektronen bevat. De extra lading van het grensvlak zou enkele Ti-atomen 3+ kunnen maken, met een elektron in de *d*-schil. Elektronen in een niet volledig gevulde *d*-schil hebben een klein magnetisch moment, hetgeen de magnetoweerstand van het grensvlak inderdaad zou kunnen verklaren.

Magnetische hysteresis

Een ander interessant magnetisch effect dat is waargenomen, is het openen van een hystereselus in de weerstand bij zeer lage temperaturen (beneden 300 mK). In figuur 4 is dit weergegeven. De gemeten weerstand is nu niet meer direct van het veld afhankelijk, maar ook van de geschiedenis van het daarvoor aangebrachte veld.

Hysteresis speelt over het algemeen een rol bij ferromagnetische materialen. Het aangebrachte veld veroorzaakt dan een magnetisatie van het materiaal, dat blijft bestaan wanneer het veld naar nul wordt gebracht (alle interne lokale magnetische momenten zijn uitgelijnd). Pas wanneer het veld in tegengestelde richting over een bepaalde kritische waarde gaat, zal de magnetisatie veranderen en zich opnieuw naar het veld gaan richten. Maar bij het grensvlak is iets bijzonders aan de hand. De richting waarin

de hystereselus wordt doorlopen is precies tegenovergesteld aan die van normale ferromagnetische materialen.

Een tweede hint dat het grensvlak geen normale ferromagneet is, komt van de tijdsafhankelijkheid van de metingen. Wanneer het aangebrachte veld constant wordt gehouden op een bepaalde waarde in de hystereselus, blijkt de weerstand langzaam toe te nemen, tot een bepaalde bovengrens bereikt wordt. Dit wordt aangegeven met de pijl in figuur 4. De tijdschaal waarop dit gebeurt is erg lang: tientallen seconden. Er bestaat een klasse materialen waarin dergelijke relaxatietijden heel normaal zijn, namelijk de spinglazen. Ook bij spinglazen is de aanwezigheid van lokale magnetische momenten cruciaal. Deze momenten zijn op een zodanig complexe wijze gekoppeld dat het totale systeem vastzit in een wanordelijke toestand.

Open vragen

Kort samengevat geven beide typen metingen duidelijke aanwijzingen voor de aanwezigheid van lokale magnetische momenten op het grensvlak van LaAlO_3 en SrTiO_3 . De precieze magnetische toestand is echter nog niet helemaal duidelijk. Directe magnetisatiemetingen zouden in de toekomst meer duidelijkheid moeten geven. Maar dat deze qua gevoeligheid

een grote uitdaging zijn, is wel duidelijk wanneer je bedenkt om hoe weinig magnetische momenten het uiteindelijk gaat op een grensvlak.

Het $\text{SrTiO}_3\text{-LaAlO}_3$ grensvlak blijkt nog meer verrassingen in petto te hebben. Recent is beneden 200 mK supergeleiding aangetoond [6]. Normaal gesproken zijn supergeleiding en magnetisme niet compatibel en dus rijst hier de vraag waarom in het grensvlak de toestanden blijkbaar beiden kunnen voorkomen. Misschien zijn beide effecten wel sterk gerelateerd.

Het grensvlak tussen oxidische materialen blijkt dus een heel nieuw modelsysteem te zijn om lokaal lading te induceren en dus om fundamentele elektronische en magnetische effecten in materialen te bestuderen.

Referenties

- 1 A. Ohtomo and H.Y. Hwang, *Nature* **427**, 423 (2004).
- 2 A. Brinkman, M. Huijben, M. van Zalk, J. Huijben, U. Zeitler, J.C. Maan, W.G. van der Wiel, G. Rijnders, D.H.A. Blank, en H. Hilgenkamp, *Nature Materials* **6**, 493 (2007).
- 3 B.G. Levi, *Physics Today* **60**, 23 (2007).
- 4 G. Rijnders and D.H.A. Blank, *Nature* **433**, 369 (2005).
- 5 M. Huijben, G. Rijnders, D.H.A. Blank, ttS. Bals, S. Van Aert, J. Verbeeck, G. Van Tendeloo, A. Brinkman, H. Hilgenkamp, *Nature Materials* **5**, 556 (2006).
- 6 N. Reyren et al., *Science* **317**, 1196 (2007).