

CrCl₃ 隧穿磁阻的界面效应与多场效应调控*

樊译颖¹⁾²⁾ 张阮¹⁾²⁾ 陈宇¹⁾²⁾ 蔡星汉^{1)†}

1) (上海交通大学, 微米纳米加工技术全国重点实验室, 上海 200240)

2) (上海交通大学电子信息与电气工程学院, 微纳电子学系, 上海 200240)

(2024年3月25日收到; 2024年5月7日收到修改稿)

磁隧道结是研究磁性材料自旋结构、输运特性、磁相变和磁各向异性的重要实验平台. 本研究基于干法转移技术制备了以机械剥离的少层范德瓦耳斯反铁磁绝缘体三氯化铬 (CrCl₃) 为势垒层、少层石墨烯为电极的磁隧道结原型器件结构, 并进行了低温电磁输运测量, 除观测到自旋过滤效应引起的隧穿磁阻外, 还发现多种由非传统效应引起的磁阻变化. 基于对隧道结自旋结构和能带结构的分析, 本文将之归因于由磁近邻效应引起的隧穿机制改变, 以及石墨烯电极态密度在高磁场下出现的量子振荡行为. 本文报道了在二维磁隧道结中与隧穿磁阻相关且此前未被广泛关注的物理现象, 加深了对此类二维异质结构中载流子输运特性的理解, 为二维磁性材料的物理性质研究及其自旋电子学应用拓展了新的途径.

关键词: 磁隧道结, CrCl₃, 负隧穿磁阻, 栅极可调性**PACS:** 73.43.Jn, 73.43.Qt**DOI:** 10.7498/aps.73.20240431

1 引言

使用二维层状磁性材料构筑磁隧道结 (magnetic tunnel junction, MTJ), 可充分利用材料表面的原子级平整度和自清洁特性, 避免层间晶格失配和污染问题, 实现高质量的异质结堆叠, 提升对应自旋电子器件的性能^[1]. 传统磁隧道结通常使用一对铁磁性电极, 中间夹以非磁性绝缘势垒层 (构成所谓铁磁-绝缘体-铁磁 (F-I-F) 结) 以实现磁场对隧穿磁阻 (tunneling magneto-resistance, TMR) 的调控^[2]. 如果使用非磁性材料作为两侧电极, 而使用零场下具有层间反铁磁耦合的范德瓦耳斯磁性绝缘材料作为势垒层, 则可构建新型“自旋过滤隧道结” (spin-filtering MTJ, sf-MTJ)^[3], 产生自旋过滤效应^[4,5], 即载流子在穿过磁性绝缘层时因自旋和磁矩的方向是否平行而面对不同高度

的势垒, 导致隧穿概率产生显著差异^[3], 进而引起隧穿电阻的变化. 定量而言, 磁隧道结的隧穿磁阻 (TMR) 定义如下^[4]:

$$\text{TMR}(\mu_0 H) = \frac{I_t(\mu_0 H) - I_t(0)}{I_t(0)}, \quad (1)$$

式中, μ_0 是真空中磁导率, H 是外加磁场强度, $I_t(\mu_0 H)$ 为依赖于磁场的隧穿电流. 通常情况下, 自旋过滤磁隧道结在低磁场下势垒层处在反铁磁构型, 自旋过滤效应较强因而电流较小, 而高磁场下势垒层被饱和磁化, 自旋过滤效应减弱, 因而电流增大, 器件表现为具有正的 TMR.

然而, 近年来研究显示, 在磁隧道结中, 传统的自旋过滤效应可能并非唯一调制隧穿磁阻的方式, 包括磁交换相互作用、电极态密度谱 (density of state, DOS) 波动以及栅极电压的施加在内的多种界面效应和多场调控机制都可能引起隧穿磁阻的改变. 其中, 界面效应的一个典型例子是磁性电

* 国家重点研发计划 (批准号: 2020YFA0309200)、上海交通大学基础研究特区计划 (批准号: 21TQ1400206) 和国家自然科学基金 (批准号: 92064013, 11904226) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xhcai@sjtu.edu.cn

极通过近邻相互作用,在非磁性势垒层(或导电间隔层)中引入自旋极化,导致势垒(或间隔层)中不同极化方向的载流子态密度发生改变,影响隧穿磁阻的大小,甚至可以观测到负隧穿磁阻^[6,7].而栅极电压则是外物理场用于调控隧穿电阻的一种常用手段,其主要是通过显著影响隧穿势垒或非磁性电极的载流子浓度(或费米面高度)造成器件磁阻特性的变化.对势垒层,栅极电压的施加能够改变自旋极化能带的相对填充水平,造成包括磁相变临界场、饱和磁化强度、磁有序温度等的改变^[8];同时,对于使用低载流子浓度电极材料(如石墨烯)的磁隧道结,栅极电压可有效调节电极费米能的位置,改变费米面附近的载流子态密度,甚至在垂直方向的强磁场下形成朗道能级等新的能带形状和态密度分布^[9-11].这样的一种由外加栅极电压引起的费米面附近载流子态密度的改变可能显著影响隧穿电流的大小.

本文以二维层状反铁磁绝缘体三氯化铬(CrCl_3)为基础,采用少层石墨烯作为接触电极,构筑了磁隧道结原型器件结构,并开展了对器件低温电磁输运特性的表征.作为最早被发现的本征二维磁体之一, CrCl_3 具有层状磁性材料中极少同时存在的A型反铁磁特性和易平面各向异性^[12],这使其成为二维自旋电子学研究的重要模式平台,被成功应用于交换偏置^[13]、磁近邻效应^[14,15]、磁热效应^[16]、磁斯格明子^[17]等特性的研究中.由于磁各向异性较弱, CrCl_3 隧道结中的自旋过滤效应并不明显(即自旋过滤引起的磁阻变化较小),这使得其适合于研究其他影响磁阻率的因素.在实验中,我们观测到多种可能来自界面效应和多场调控机制引起的隧穿磁阻变化,这些效应包括少层石墨烯电极受交换相互作用、栅极电压和磁场调控引起的载流子态密度变化,以及隧道结整体隧穿机制的改变.上述现象在二维层状材料磁隧道结的研究中尚未得到广泛关注,因而该工作有望拓展基于二维磁性材料的隧道结研究的维度,并在材料基础物性表征和异质结构的器件应用方面开拓新的道路.

2 实验

2.1 器件制备

通过微机械剥离法在285 nm SiO_2/Si 衬底上获取氮化硼纳米薄片.使用标准电子束光刻工艺在氮化硼所在区域制备预镀电极,衬底的重掺杂p型

硅兼作器件底栅使用.体块 CrCl_3 晶体通过化学气相输运(chemical vapor transport, CVT)方法制备,并在氮气氛围手套箱(氧气和水含量均低于 10^{-7})内机械剥离到90 nm SiO_2/Si 衬底上以获得少层样品,随后使用光学显微镜观察对比度以筛选出合适厚度的样品.使用基于聚(双酚A碳酸酯)(PC)/聚二甲基硅氧烷(PDMS)印章(Stamp)的标准干法转移工艺制备磁隧道结原型器件^[18]:由上至下依次将氮化硼、少层石墨烯、 CrCl_3 、少层石墨烯样品逐层提取在印章上,然后通过热熔和冷凝PC薄膜将异质结构一次性转移到衬底电极上.随后将样品从手套箱中取出,使用氯仿溶解PC薄膜,即完成原型器件制备.本文制备的典型器件结构及测量电路示意图如图1(a)所示.

2.2 电学测量

所有电学测量在无液氦综合物性测量系统(PPMS, Quantum Design, Inc.)中进行,该系统可提供最低1.8 K的基准温度和最高 ± 9 T的外磁场.MTJ器件装载在样品杆上的可旋转样品托内,样品托所在平面的法线与磁场的夹角可在 0° — 360° 范围内连续变化,电信号通过样品杆上端引出到开关盒.直流电压激励施加在器件的上下两个少层石墨烯电极之间,以电流从上电极流入为正方向,使用前置电流放大器(DL Instruments, Model 1211)放大隧穿电流信号提升信噪比.直流电压输出和电流信号采集均使用数据采集卡(DAQ, National Instruments, USB-6212).

本实验所涉及的电学测试均使用直流两探针测量法.对单个器件,首先在室温时测量隧穿电流的伏安特性,并选定适合的偏置电压激励施加到器件两端,然后在温度变化过程中监测电流大小,以测试隧穿电导随温度的变化关系.待温度降至 $T = 2$ K后,进行低温电磁输运测量,包括:1)在零磁场及不同大小的面外磁场下器件 I - V 曲线的测量;2)选择合适的偏置电压施加在器件两端,设置垂直磁场在 ± 9 T之间扫描,以测量隧穿电流对不同大小面外磁场的响应;3)固定栅极电压和直流偏置电压的大小,扫描磁场,得到一定栅压下隧穿电流随磁场的变化关系;4)固定磁场和直流偏置电压大小,在一定范围内扫描栅极电压,以探究一定磁场下器件的转移特性.

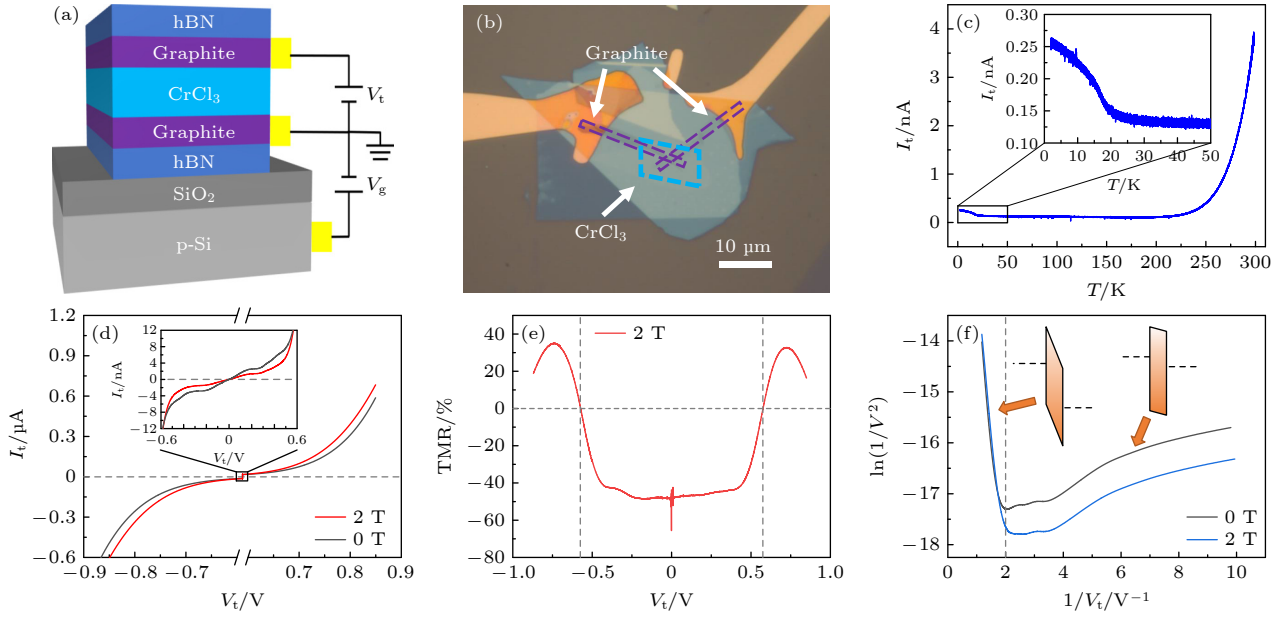


图 1 器件的电输运表征测试 (a) 器件结构示意图; (b) 器件光学显微照片, 其中石墨电极和 CrCl_3 的位置使用虚线框示意标出; (c) 隧穿电流随温度的变化, 插图是对 2—50 K 区域的放大; (d) 低温伏安特性曲线, 插图是对 -0.6 — 0.6 V 区域的放大; (e) 根据图 (d) 计算的隧穿磁阻曲线; (f) 根据图 (d) 计算的 F-N 图, 插图为两种隧穿机制下的能带图

Fig. 1. Transport characterizations of the device: (a) Schematic of the device, with the positions of the graphite electrodes and CrCl_3 indicated by dashed boxes; (b) optical micrograph of the device; (c) tunneling current as a function of the temperature. Inset: zoom-in plot of the range between 2–50 K; (d) low-temperature I - V characteristic, inset: zoom-in plot of the range between -0.6 – 0.6 V; (e) TMR as a function of the bias voltage derived from (d); (f) F-N plot derived from panel (d), insets are band diagram under two tunneling regimes.

3 结果与讨论

3.1 负隧穿磁阻及其偏置电压依赖

图 1(b) 为本实验所制备的典型少层 CrCl_3 磁隧道结原型器件的光学显微照片. 根据光学显微照片中薄层样品与衬底间的对比度, 以及后文 (图 1(d)) 对低温下电流密度与偏置电压依赖关系 (J - V 特性) 和电流对磁场依赖关系 (I_t - $\mu_0 H$ 关系, 图 2(a)) 的表征及其与文献 [19] 的对比, 可判定该器件所使用的势垒层为 3 层 CrCl_3 纳米薄片. 器件的隧穿电流随温度的依赖关系如图 1(c) 所示, 此处所用偏置电压为 $V_t = 20$ mV. 在 20 K 以上温度区间, 隧穿电流随温度降低而下降, 符合传统隧穿结构的电流-温度关系 [20], 但在 $T = 20$ K 以下, 电流随温度下降开始上升. 这一现象与自旋过滤效应所对应的实验现象并不一致, 不符合由于 CrCl_3 晶体发生顺磁-反铁磁转变而导致隧穿电流骤降的预期 [21]. 该现象可能与低偏置电压下, 磁近邻效应导致的石墨烯电极自旋极化有关 (详见图 2 及后文讨论). 图 1(d) 展示了在 $T = 2$ K 下, 器件在零场 (黑色曲线) 和外加 2 T 垂直磁场 (红色曲线) 时的隧穿电流与偏置电压关系曲线, 曲线大致

符合隧道结伏安特性的指数依赖关系 [4]. 根据 (1) 式所计算得到的 TMR 曲线随偏置电压的变化关系如图 1(e) 所示, 可明显注意到, TMR 在较低的偏置电压变化范围 ($|V_t| < 0.57$ V) 内为负值, 意味着此时当 3 层 CrCl_3 中磁矩成反平行时的隧穿电流大于磁矩完全平行状态下的隧穿电流值. 随着偏置电压的上升, TMR 逐渐增加, 并重新转为正值, 但在 $|V_t| > 0.75$ V 之后, 其出现随偏置电压的升高而下降的趋势. TMR 随偏置电压改变符号的现象促使我们联想到可能存在的直接隧穿和 F-N 隧穿机制的转变. 根据偏置电压的大小不同, 隧道结隧穿电流的产生存在直接隧穿和 Fowler-Nordheim (F-N) 型隧穿两种不同机制. 在较小的偏压下, 载流子通过直接隧穿到达对侧电极, 势垒层的能带形状与热平衡状态几乎一致 (如图 1(f) 右侧插图所示), 此时依赖于自旋过滤效应的隧穿电流可反映势垒层的完整磁结构. 器件处在直接隧穿状态时, 伏安特性表现为近似的线性, 可定性按照 (2) 式和 (3) 式描述 [22,23]:

$$I \propto V \exp\left(-\frac{2d\sqrt{2m^*\Phi}}{\hbar}\right), \quad (2)$$

$$\ln \frac{I}{V^2} \propto \ln \frac{1}{V}, \quad (3)$$

式中 I , V 分别为隧穿电流和偏置电压, e 为单位电荷, d 为势垒层厚度, m^* 为载流子有效质量, Φ 为势垒大小, \hbar 为约化普朗克常量. 而当外加较大偏压时, 将发生 F-N 型隧穿, 势垒层能带发生显著倾斜, 势垒形状变成三角形, 造成其等效厚度减小以及自旋过滤效应的减弱^[22,23], 如图 1(f) 左侧插图所示. 此时器件的伏安特性可近似描述为

$$I \propto V^2 \exp\left(-\frac{4d\sqrt{2m^*\Phi^3}}{3\hbar eV}\right), \quad (4)$$

$$\ln \frac{I}{V^2} \propto -\frac{1}{V}, \quad (5)$$

根据 (3) 式和 (5) 式, 只要以器件的伏安特性为基础绘制 $\ln(I/V^2) - 1/V$ 曲线 (F-N 图), 即可根据曲线转折判断器件发生隧穿机制转变的临界电压大小. 根据图 1(d) 中数据绘制的 F-N 图如图 1(f)

所示, 注意到分界点位于 $1/V_1 = 2V^{-1}$ 左右, 这与 TMR 曲线从负值开始快速上升的位置较为接近.

在针对伏安特性测量的基础上, 我们进一步表征了不同偏置电压下, 隧穿电流随磁场的变化关系, 如图 2(a) 所示, 其中每条曲线已关于零场电流大小进行归一化处理以方便观察. 我们注意到, 当偏置电压较大时 ($V_1 = 0.58 - 0.8$ V), 器件表现出符合反铁磁势垒隧穿行为的经典预期, TMR 表现为正值. 而对较低的偏置电压 ($V_1 \leq 0.56$ V), 在同样的磁场范围内器件表现负 TMR 的特性.

根据上述实验现象, 我们提出对该结构依赖于偏置电压的负 TMR 现象的一种可能的模型解释: 少层石墨烯电极与磁性材料接触后可产生磁近邻效应, 使得靠近界面的几个原子层发生自旋极化, 极化方向与相邻磁性材料磁化方向相反, 如图 2(b) 所示^[7,24,25], E_F 表示费米能级, $CNP_{\uparrow(\downarrow)}$ 代表上(下)自旋能带的电荷中性点 (charge neutrality point,

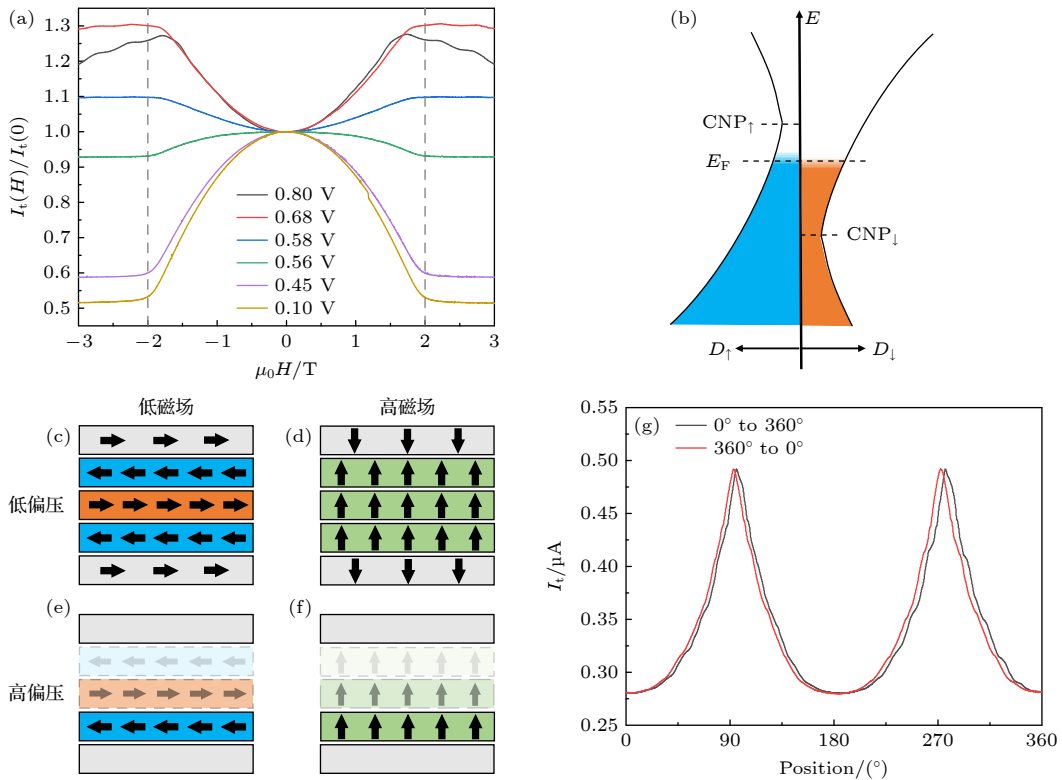


图 2 对器件 TMR 特性的实验和理论解释 (a) 不同偏置电压下的归一化隧穿电流曲线; (b) 石墨电极态密度的自旋劈裂示意图, 着色区域表示电子布居数. (c)–(f) 磁隧道结自旋结构示意图, 分别对应 (c) 低偏压、低磁场, (d) 低偏压、高磁场, (e) 高偏压、低磁场, (f) 高偏压、高磁场. (g) 隧穿电流随磁场方向与样品法向夹角的变化

Fig. 2. Experimental and theoretical explanation of TMR characteristics of the device: (a) Normalized tunneling current as a function of the out-of-plane magnetic field under different dc bias voltages; (b) schematic of spin splitting of graphite's DOS, with the shaded area representing population of electrons. (c)–(f) Schematics of spin configuration of the MTJ, with each plot corresponding to the regime of (c) low bias, low magnetic field, (d) low bias, high magnetic field, (e) high bias, low magnetic field and (f) high bias, high magnetic field, respectively. (g) Tunneling current as a function of the angle between the magnetic field and the normal direction of the sample.

CNP), $D_{\uparrow(\downarrow)}$ 代表上(下)自旋电子的态密度. 由于磁近邻效应作用距离极短, 类似的情况可能只发生于少层石墨烯电极与反铁磁 CrCl_3 的接触界面上, 此时自旋极化方向只依赖于 CrCl_3 表面一层的磁化^[26]. 同时, 这一近邻效应诱导的自旋极化强度可能随偏压升高而降低^[7]. 在图 2(c) 中给出了 3 层 CrCl_3 处于反铁磁基态下器件的自旋结构示意图, 并给出了石墨烯电极(靠近界面的几层)发生自旋极化的状态. 在这种情况下, 外加电场时, 石墨电极向势垒层注入的载流子也将会是自旋极化的.

在磁隧道结中, 导电通路可看作由多数自旋和少数自旋各自的隧穿通路并联组成^[3], 当自旋极化率较高时, 少数自旋贡献的电导率几乎可以忽略, 因此我们以石墨烯电极中多数自旋为研究对象讨论隧穿电导随磁场的变化. 首先考虑低偏置电压的情况, 在低磁场下(图 2(c)), 石墨烯电极中的多数自旋需隧穿过两个相反方向磁化和一个相同方向磁化的势垒层, 而在饱和磁场下(图 2(d)), 石墨烯中的多数自旋需穿过 3 个相反方向磁化的势垒层, 显然后者具有更大的等效势垒高度, 这导致了饱和磁化下隧穿电流反而低于反铁磁基态的结果. 在高偏压下, 石墨烯的自旋极化程度大幅降低, 因此器件整体特性将回归于传统自旋过滤磁隧道结的表现. 同时, 由于器件在高偏置电压下处在 F-N 隧穿状态, 等效势垒厚度会有所降低, 如图 2(e), (f) 所示, 因而在低场下(图 2(e)), 反铁磁基态造成更强的自旋过滤和更高的隧穿电阻, 而在高场下(图 2(f)), 饱和磁化使得自旋过滤磁阻减小. 随着偏压进一步升高, TMR 再次下降的原因可能来自 CrCl_3 的各向异性磁阻. 在 CrCl_3 等磁性绝缘体中, 隧穿电阻大小可能与电流和磁化方向的夹角有关^[5]. 为验证这一猜想, 我们使用较高的偏置电压 ($V_t = 800$ mV) 和磁场 ($|\mu_0 H| = 9$ T), 测量了隧穿电流随磁场方向各向异性, 如图 2(g) 所示, 其中横坐标的角度是磁场方向与材料 ab 面法线间的夹角. 在高偏置电压下, 3 层 CrCl_3 中可能只有一层能够实现自旋过滤, 此时施加面内磁场时所得到的 CrCl_3 自旋结构将与零场时的自旋基态高度一致. 从图中可以看到, 施加面内磁场对应的隧穿电阻小于施加面外磁场的情况, 这说明 CrCl_3 单层可能存在各向异性磁阻, 结合 F-N 隧穿对应的势垒减薄, 这一各向异性磁阻可导致高偏压下 TMR 的下降甚至变号.

3.2 隧穿电流的振荡与栅极电压调控

在更大的磁场范围内进行隧穿电流的测量时, 我们观察到隧穿电流随磁场存在明显的振荡现象, 一个代表性的结果如图 3(a) 所示, 此时偏置电压为 $V_t = 580$ mV. 在 $|\mu_0 H| > 2$ T 时, 隧穿电流明显偏离平滑背底的位置已用黑色箭头标出. 在该磁场范围内, CrCl_3 样品已经完全饱和磁化, 因此, 隧穿电流的变化与 CrCl_3 的磁结构无关, 而很可能来自少层石墨烯电极能带结构受磁场的影响. 对于一般的隧道结结构, 其弹性隧穿电流可描述为^[27,28]

$$I \propto \int_{-\infty}^{\infty} D_B(E) f_B(E) \times D_T(E) [1 - f_T(E)] |T|^2 dE, \quad (6)$$

式中, $D_B(E)$ 和 $D_T(E)$ 分别为底电极和顶电极的态密度分布, $f_B(E)$ 和 $f_T(E)$ 分别为底电极和顶电极的费米分布函数, T 是弹性隧穿的转移矩阵元. 对本实验所制备的 MTJ 器件中使用的厚度为 5—10 nm 的少层石墨烯, 其能带结构已接近体块石墨的情形, 我们可使用简单双带模型 (simple two band model, STB) 进行描述, 其示意图如图 3(b) 所示^[10]. 在 STB 模型中, 少层石墨烯的导带和价带具有一定程度的交叠(图 3(b) 中 $|E| < \pm E_0$ 的区域), 当费米能级位于电荷中性点时, 电子和空穴浓度相等. 根据这一结构计算出的态密度谱 (DOS) 在电荷中性点处具有非零的最小值, 并随能量绝对值增大而超线性增大^[10,29], 如图 3(c) 中虚线所示. 当外加垂直于少层石墨烯薄片的磁场时, 其能带可发生有限程度的朗道量子化, 其结果是使得少层石墨烯电极的态密度谱呈现依赖于磁场大小的波动, 如图 3(c) 中实线及阴影区域所示. 基于这一图像, 可解释隧穿电流随磁场扫描发生振荡的行为. 首先, MTJ 处在热平衡状态时的能带结构示意图如图 3(d) 所示, 此时两侧少层石墨烯电极费米能相等, 系统中无净电流流动. 当施加底栅电压时, 底侧石墨电极掺杂情况会发生改变, 由于该电极接地, 因此能带图表现为该侧费米能级固定, 而 DOS 谱发生移动, 如图 3(e) 所示. 在此基础上进一步改变偏置电压时, 上下层石墨烯电极的费米面将发生相对移动, 使得两侧费米面的高度差变为 eV_t , 其中 V_t 为所加偏置电压大小, 如图 3(f) 所示. 回到图 3(a) 的测量条件, 在 $|\mu_0 H| > 2$ T 时, 由于 CrCl_3 已经饱和磁化, 因此隧穿电流变化主要由

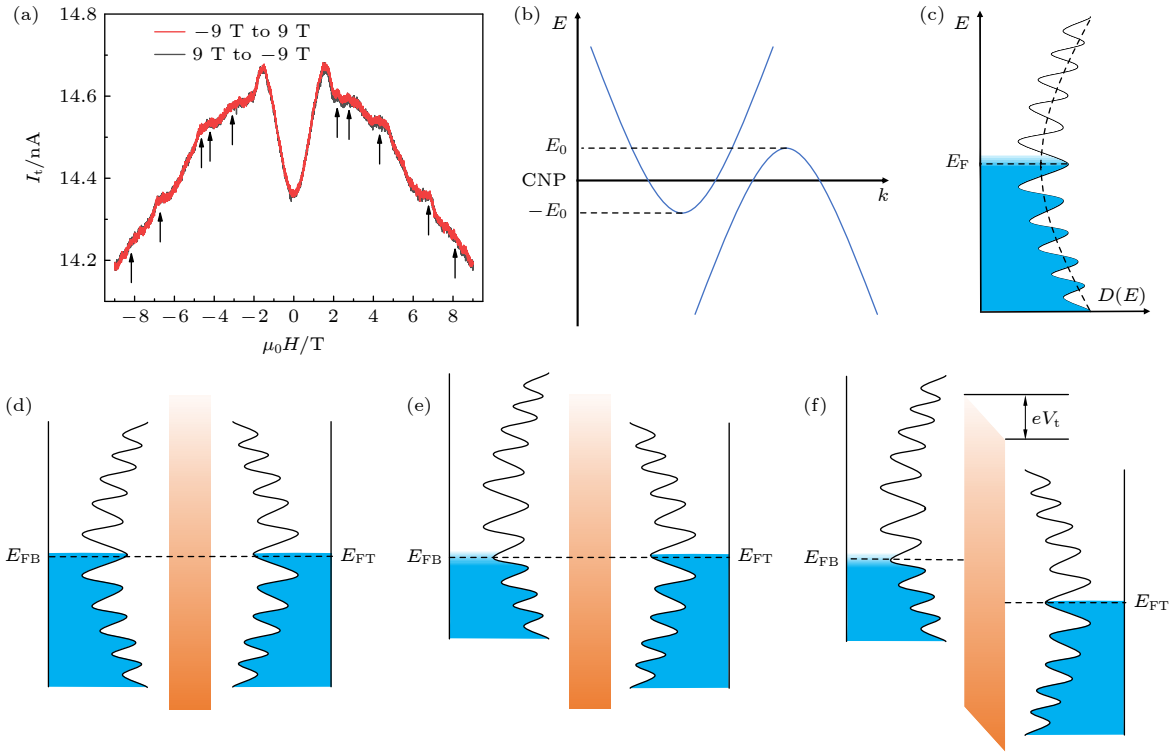


图 3 隧穿电流的量子振荡 (a) 隧穿电流随垂直方向磁场的变化关系曲线, 测试在 $T = 2$ K 下进行; (b) 少层石墨烯能带的 STB 模型; (c) 少层石墨烯态密度发生部分量子化的示意图. (d)–(f) MTJ 器件的能带图 (E_{FB} 和 E_{FT} 分别代表底电极和顶电极的费米能级) (d) 热平衡情况; (e) 施加一定负栅极电压的情况; (f) 同时施加负栅极电压和正向偏置电压的情况

Fig. 3. Quantum oscillation of the tunneling current: (a) Tunneling current as a function of the out-of-plane magnetic field, at the temperature of $T = 2$ K; (b) STB model showing the band structure of few-layer graphene; (c) schematic of partial quantization of DOS in few-layer graphene. (d)–(f) Band structures of MTJ device (E_{FB} and E_{FT} represents the Fermi level of bottom and top graphite electrode, respectively): (d) in thermal equilibrium; (e) with an applied negative gate voltage; (f) with both an applied negative gate voltage and a positive bias voltage, respectively.

电极情况决定. 随磁场增大, 相邻朗道能级的能量间距也会增大. 在一定偏置电压下, 由于上下电极的 DOS 谱存在一定的偏移, 因此根据 (6) 式, 在能量宽度为 eV_t 的积分区间内, 两侧电极 DOS 乘积的积分可呈现周期性变化, 从而造成电流的振荡. 我们还注意到图 3(a) 中, 在 $|\mu_0H| > 2$ T 时, 隧穿电流随磁场绝对值升高而小幅下降, 这一现象只在较高的偏置电压下被观察到, 并且发生该效应的临界偏置电压与器件隧穿机制由直接隧穿转为 F-N 隧穿的偏置电压值 (~ 0.5 V) 接近. 因此我们判断这一现象仍有可能可在 (6) 式所描述的弹性隧穿框架下, 解释为态密度乘积的积分随磁场升高而下降所导致, 不过对不同偏压下电流随磁场变化的曲线斜率进行具体解算则需要更深入的理论研究.

图 4 给出了对隧穿电流栅极可调性的测试结果. 图 4(a) 展示了不同栅极电压下, 隧穿电流随面外磁场的变化关系, 实验所使用的偏置电压为 $V_t = 750$ mV. 可以看到, 在 $|\mu_0H| < 1$ T 时, 栅极电

压对隧穿电流的调控效果并不明显; 而在 $|\mu_0H| \geq 2$ T 时, 随着栅极电压绝对值的增加, 隧穿电流明显增大. 在 CrCl_3 已发生饱和磁化的磁场范围 ($|\mu_0H| \geq 2$ T) 内, 器件隧穿电流随栅极电压变化可能的原因是少层石墨烯电极本身的电阻受到了调制. 然而, 以 $V_g = 0$ V 和 4 V 曲线为例, 在 $|\mu_0H| = 3$ T 时, 隧穿电阻的变化达到 100 M Ω 量级, 这已经远高于实验使用的石墨样品典型的电阻大小 (1 k Ω 量级). 因此, 这里观察到的隧穿磁阻随栅极电压的变化仍有可能是电极态密度的改变通过 (6) 式反映到隧穿电流上的结果. 参考图 3(f) 的能带图, 当 E_{FB} 位于电荷中性点时, 载流子的态密度较低, 因而利用 (6) 式计算隧穿电流时会得到较低的态密度乘积积分; 而当 E_{FB} 远离电荷中性点时, $D_B(E)$ 超线性增大, E_{FB} 附近的态密度将明显高于电荷中性点处, 因此能够获得较高的态密度乘积积分, 进而导致隧穿电流的增大. 在外加磁场导致 DOS 谱发生有限程度量子化时, 以上讨论原则上仍然成

立. 图 4(b) 给出了不同磁场下, 隧穿电流的转移特性曲线, 图上各曲线间设有垂直偏移量以方便观察. 图中较高磁场下 ($|\mu_0 H| \geq 1$ T) 的曲线符合上述讨论描述的趋势. 然而, 也注意到在零磁场下, 隧穿电流的栅极可调性几乎被“冻结”. 这可能是由于此时器件电阻主要决定于势垒层, 使得栅极电压调制造成的影响几乎无法被观测到, 但这一现象仍有待更进一步的研究探索.

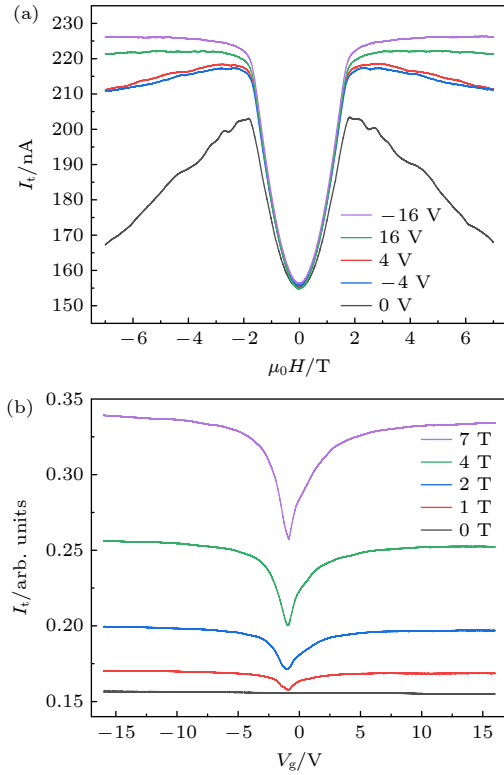


图 4 隧穿电流的栅极电压依赖性 (a) 不同栅极电压下隧穿电流随磁场的变化关系; (b) 不同磁场下器件的转移特性, 所有测试在 $T = 2$ K 下进行

Fig. 4. Gate dependence of the tunneling current: (a) Tunneling current as a function of the out-of-plane magnetic field with different applied gate voltages; (b) transfer characteristics of the device at selected out-of-plane magnetic fields, all measurements are carried out at the temperature $T = 2$ K.

4 结 论

我们在以二维反铁磁绝缘体 CrCl_3 为势垒层构筑的隧道结原型器件中, 通过低温强磁场下的隧道输运测量, 观察到多种由非自旋过滤效应导致的磁阻现象, 包括随偏压在大小和符号上发生改变的隧穿磁阻、隧穿电流在高磁场下的振荡特性、以及隧穿电流的高度栅极电压可调性等. 针对 TMR 的

反常行为, 提出了一种基于石墨电极受磁近邻效应影响产生自旋极化的模型, 指出电极向势垒层注入的电流本身存在自旋极化可以导致负 TMR 的产生, 而在较高偏压下, 石墨烯电极的自旋极化减弱, 使得器件表现回归传统的自旋过滤效应. 根据对弹性隧穿电流的定性计算, 我们发现高磁场下隧穿电流的振荡行为以及栅极电压可调性可以用少层石墨烯电极的态密度受垂直磁场影响发生有限程度量子化进行解释. 本文报道了在二维材料磁隧道结研究中未获广泛关注的几种磁阻现象, 为基于此类异质结构的材料物性探索和自旋电子学应用提供了一定的研究基础.

参考文献

- [1] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [2] Moodera J S, Kinder L R, Wong T M, Meservey R 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3273
- [3] Worledge D C, Geballe T H 2000 *J. Appl. Phys.* **88** 5277
- [4] Cai X H, Song T C, Wilson N P, Clark G, He M H, Zhang X O, Taniguchi T, Watanabe K, Yao W, Xiao D, McGuire M A, Cobden D H, Xu X D 2019 *Nano Lett.* **19** 3993
- [5] Song T C, Cai X H, Tu M W Y, Zhang X O, Huang B, Wilson N P, Seyler K L, Zhu L, Taniguchi T, Watanabe K, McGuire M A, Cobden D H, Xiao D, Yao W, Xu X D 2018 *Science* **360** 1214
- [6] Zeng X, Ye G, Huang S, Ye Q, Li W, Chen C, Kuang H, Li M, Liu Y, Pan Z, Hasan T, Luo J, Lu X, Wang X 2022 *Nano Today* **42** 101373
- [7] Zlatko V, Dubois S M M, Godel F, Galbiati M, Peiro J, Sander A, Carretero C, Vecchiola A, Collin S, Bouzehouane K, Servet B, Petroff F, Charlier J C, Martin M B, Dlubak B, Senor P 2022 *ACS Nano* **16** 14007
- [8] Jiang S W, Li L Z, Wang Z F, Mak K F, Shan J 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 549
- [9] Zhang Y B, Tan Y W, Stormer H L, Kim P 2005 *Nature* **438** 201
- [10] Zhang Y B, Small J P, Amori M E S, Kim P 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 176803
- [11] Li G H, Andrei E Y 2007 *Nat. Phys.* **3** 623
- [12] McGuire M A, Clark G, KC S, Chance W M, Jellison G E, Cooper V R, Xu X D, Sales B C 2017 *Phys. Rev. Mater.* **1** 014001
- [13] Zhu R, Zhang W, Shen W, Wong P K J, Wang Q, Liang Q, Tian Z, Zhai Y, Qiu C W, Wee A T S 2020 *Nano Lett.* **20** 5030
- [14] Tseng C C, Song T, Jiang Q, Lin Z, Wang C, Suh J, Watanabe K, Taniguchi T, McGuire M A, Xiao D, Chu J H, Cobden D H, Xu X, Yankowitz M 2022 *Nano Lett.* **22** 8495
- [15] Jiang D, Yuan T Z, Wu Y Z, Wei X Y, Mu G, An Z H, Li W 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 49252
- [16] Liu Y, Petrovic C 2020 *Phys. Rev. B* **102** 014424
- [17] Sun W, Wang W X, Zang J D, Li H, Zhang G B, Wang J L, Cheng Z X 2021 *Adv. Funct. Mater.* **31** 2104452
- [18] Zomer P J, Guimarães M H D, Brant J C, Tombros N, van Wees B J 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 013101

- [19] Wang Z, Gibertini M, Dumcenco D, Taniguchi T, Watanabe K, Giannini E, Morpurgo A F 2019 *Nat. Nanotechnol.* **14** 1116
- [20] Wang Z, Gutiérrez-Lezama I, Ubrig N, Kroner M, Gibertini M, Taniguchi T, Watanabe K, Imamoğlu A, Giannini E, Morpurgo A F 2018 *Nat. Commun.* **9** 2516
- [21] Klein D R, MacNeill D, Song Q, Larson D T, Fang S, Xu M, Ribeiro R A, Canfield P C, Kaxiras E, Comin R, Jarillo-Herrero P 2019 *Nat. Phys.* **15** 1255
- [22] Liehr M, Hazra J, Beckmann K, Mukundan V, Alexandrou I, Yeow T, Race J, Tapily K, Consiglio S, Kurinec S K, Diebold A C, Cady N 2023 *J. Vac. Sci. Technol. B* **41** 012805
- [23] Wang J, Ahmadi Z, Lujan D, Choe J, Taniguchi T, Watanabe K, Li X, Shield J E, Hong X 2023 *Adv. Sci.* **10** 2203548
- [24] Ghiasi T S, Kaverzin A A, Dismukes A H, de Wal D K, Roy X, van Wees B J 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 788
- [25] Jeong J, Kiem D H, Guo D, Duan R, Watanabe K, Taniguchi T, Liu Z, Han M J, Zheng S, Yang H 2024 *Adv. Mater.* **36** 2310291
- [26] Wu Y F, Cui Q R, Zhu M Y, Liu X J, Wang Y, Zhang J Y, Zheng X Q, Shen J X, Cui P, Yang H X, Wang S G 2021 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13** 10656
- [27] Britnell L, Gorbachev R V, Jalil R, Belle B D, Schedin F, Mishchenko A, Georgiou T, Katsnelson M I, Eaves L, Morozov S V, Peres N M R, Leist J, Geim A K, Novoselov K S, Ponomarenko L A 2012 *Science* **335** 947
- [28] Xie B H, Ji Z J, Wu J X, Zhang R, Jin Y M, Watanabe K, Taniguchi T, Liu Z, Cai X H 2023 *ACS Nano* **17** 18352
- [29] McClure J W 1957 *Phys. Rev.* **108** 612

Tuning magnetoresistance of chromium chloride tunnel junction through the interface and multi-field effect*

Fan Yi-Jie¹⁾²⁾ Zhang Ruan¹⁾²⁾ Chen Yu¹⁾²⁾ Cai Xing-Han^{1)†}

1) (*National Key Laboratory of Advanced Micro and Nano Manufacture Technology, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

2) (*Department of Micro/Nano Electronics, School of Electronic Information and Electrical Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

(Received 25 March 2024; revised manuscript received 7 May 2024)

Abstract

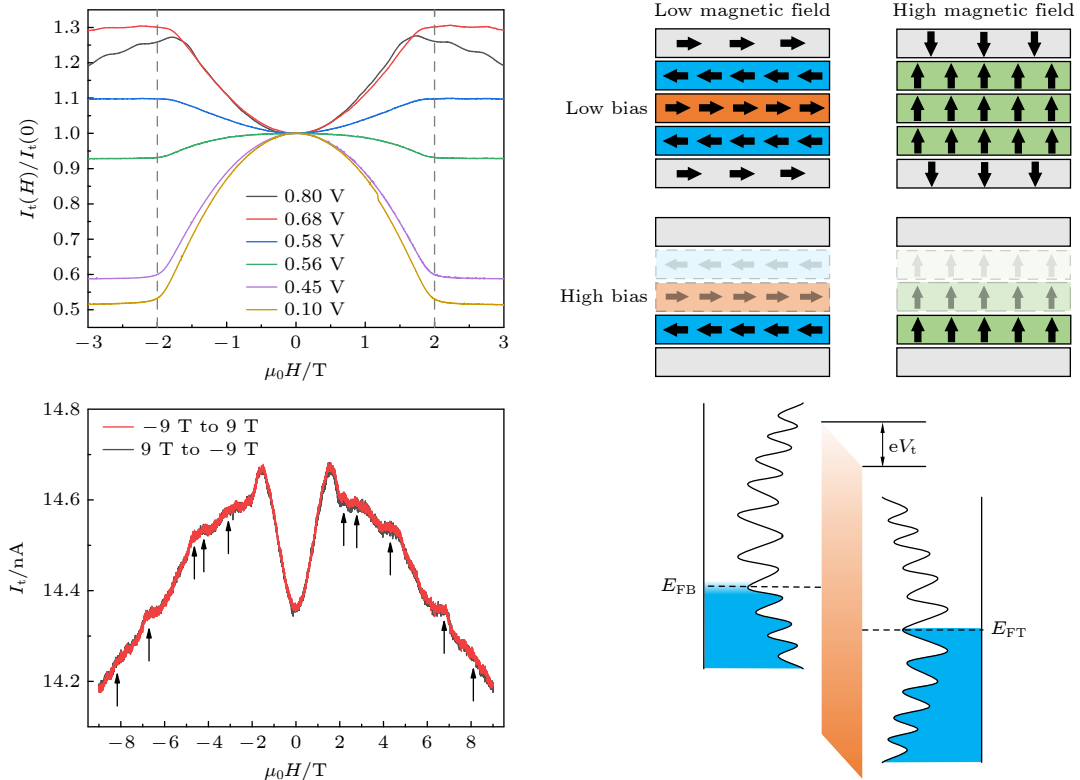
Magnetic tunnel junctions (MTJs) serve as essential platforms for investigating spin transport properties, magnetic phase transitions, and anisotropy in magnetic materials. Recently two-dimensional van der Waals antiferromagnetic insulators like chromium chloride (CrCl_3) or chromium iodide (CrI_3) have been used to develop spin-filtering magnetic tunnel junctions (sf-MTJs), improving the device performance for material property exploration and spintronic applications. However, it is crucial to recognize that the spin-filtering effect is not the sole determining factor of tunneling magnetoresistance (TMR) in these junctions; the interface magnetic exchange interactions and adjustable electrode density of states (DOS) fluctuations, response to applied electric or magnetic fields, can also influence the tunneling current.

In this study, we fabricate MTJ devices by using mechanically-exfoliated few-layer CrCl_3 as the tunnel barrier and few-layer graphene (FLG) as electrodes through dry transfer technique. Conducting low-temperature quantum transport measurements, we observe unconventional TMR behaviors, including bias-voltage-dependent TMR, oscillatory tunneling current under high magnetic fields, and tunable tunneling current via gate voltage.

A qualitative model of elastic tunneling current is employed to analyze the spin and band characteristics of the MTJ device. The observed bias-voltage-dependent TMR is attributed to the changes in the tunneling mechanism due to magnetic proximity effect, which induces magnetization in the FLG electrode near the FLG/ CrCl_3 interface. The antiparallel alignment of polarized spin to CrCl_3 's magnetization results in injected charge carriers facing a higher tunnel barrier, leading to negative TMR at lower bias voltages. As the bias voltage increases, the magnetic proximity effect lessens, and the device reverts to its conventional spin-filtering functionality. The oscillatory tunneling current is explained by the graphene electrode's quantum oscillatory density of states behavior under vertical magnetic fields, which can be controlled by the applied gate voltage.

This study contributes to the understanding of previously unexplored TMR phenomena in two-dimensional

MTJs, deepening our insights into carrier transport properties in these heterostructures and broadening avenues for investigating the physical properties of two-dimensional magnetic materials and their spintronic applications.



Keywords: magnetic tunnel junction, CrCl_3 , negative tunneling magneto-resistance, gate tunability

PACS: 73.43.Jn, 73.43.Qt

DOI: 10.7498/aps.73.20240431

* Project supported by the National Key Research & Development Program (Grant No. 2020YFA0309200), the Shanghai Pilot Program for Basic Research—Shanghai Jiao Tong University (Grant No. 21TQ1400206), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92064013, 11904226).

† Corresponding author. E-mail: xhcai@sjtu.edu.cn

CrCl₃隧穿磁阻的界面效应与多场效应调控

樊译颖 张阮 陈宇 蔡星汉

Tuning magnetoresistance of chromium chloride tunnel junction through the interface and multi-field effect

Fan Yi-Jie Zhang Ruan Chen Yu Cai Xing-Han

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 137302 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240431

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240431>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于工艺偏差的自旋转移矩辅助压控磁各向异性磁隧道结电学模型及其应用研究

Process deviation based electrical model of spin transfer torque assisted voltage controlled magnetic anisotropy magnetic tunnel junction and its application

物理学报. 2022, 71(10): 107501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211700>

基于工艺偏差的电压调控磁各向异性磁隧道结电学模型及其在读写电路中的应用

Process deviation based electrical model of voltage controlled magnetic anisotropy magnetic tunnel junction and its application in read/write circuits

物理学报. 2020, 69(19): 198502 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200228>

基于MgO磁性隧道结的五种隧穿磁电阻线性传感单元性能比较

Comparison of performance among five types of tunneling magnetoresistance linear sensing units based on MgO magnetic tunnel junction

物理学报. 2022, 71(23): 238502 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221278>

基于磁性隧道结的群体编码实现无监督聚类

Implementation of unsupervised clustering based on population coding of magnetic tunnel junctions

物理学报. 2022, 71(14): 148506 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220252>

隧穿磁阻传感器研究进展

Research progress of tunneling magnetoresistance sensor

物理学报. 2022, 71(5): 058504 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211883>

纳米线环栅隧穿场效应晶体管的电容模型

Capacitance model for nanowire gate-all-around tunneling field-effect-transistors

物理学报. 2021, 70(21): 218501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211128>