

专题: 二维及拓扑自旋物理

二维及拓扑自旋物理专题编者按

DOI: [10.7498/aps.73.010101](https://doi.org/10.7498/aps.73.010101)

自旋电子学主要研究固体中电子自旋的相关物理, 目标是利用电子自旋来进行信息的探测、存储、处理和传输. 自旋电子学研究不仅推动了凝聚态物理领域基础和前沿研究的快速发展, 而且持续开发出的自旋电子器件也促使信息技术领域发生了深刻的变革. 由于电子具有非平庸几何位相, 一些特殊材料会产生新奇拓扑物性, 有望用于实现新型拓扑量子器件. 巨磁电阻效应以及拓扑相变和拓扑态的发现分别于 2007 年和 2016 年被授予了诺贝尔物理学奖. 近年来, 拓扑磁性材料和拓扑磁结构, 以及具有原子层厚度长程磁有序的二维磁性材料的发现, 极大地丰富了磁学和自旋电子学物理的研究内容, 也为研制新原理自旋信息器件提供了新的研究平台, 相关领域的研究受到了国际上的广泛关注. 我国学者在新兴的二维及拓扑自旋物理方面做出了很多有特色的研究工作, 与其他发达国家基本处于同一水平.

当前二维磁性材料和拓扑自旋物态方面的研究还存在很多挑战, 包括: 高性能二维磁性材料和异质结构的构筑、新型拓扑自旋物态及其调控、磁与拓扑、磁与声子耦合物理等. 为进一步促进该研究领域的发展, 特组织出版“二维及拓扑自旋物理”专题, 邀请部分活跃在本领域研究前沿的专家, 撰写研究论文、综述文章与观点展望等文章, 介绍和关注二维及拓扑自旋物理各个方面的研究进展. 希望本专题能够为国内二维及拓扑自旋物理、及相关研究领域的学术交流做出贡献.

(客座编辑: 王开友 中国科学院半导体研究所; 袁喆 复旦大学; 于国强 中国科学院物理研究所)

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Preface to the special topic: Two-dimensional magnetism and topological spin physics

DOI: [10.7498/aps.73.010101](https://doi.org/10.7498/aps.73.010101)

专题: 二维及拓扑自旋物理 • 封面文章

磁子霍尔效应*

金哲珺雨 曾钊卓 曹云姗 严鹏†

(电子科技大学物理学院, 电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 成都 611731)

(2023年9月29日收到; 2023年11月29日收到修改稿)

霍尔效应是凝聚态领域中古老却又极具潜力的研究领域, 其起源可以追溯到数百年前. 1879年, 霍尔发现将载流导体置于磁场中时, 磁场带来的洛伦兹力将使得电子在导体的一侧积累, 这一新奇的物理现象被命名为霍尔效应. 之后, 一系列新的霍尔效应被发现, 包括反常霍尔效应、量子霍尔效应、自旋霍尔效应、拓扑霍尔效应和平面霍尔效应等. 值得注意的是, 霍尔效应能够实现不同方向的粒子流之间的相互转化, 因此在信息传输过程中扮演着重要的角色. 在玻色子体系(如磁子)中, 相应的一系列磁子霍尔效应也被发现, 他们共同推动了以磁子为基础的自旋电子学的发展. 本文回顾了近年来在磁子体系中的霍尔效应, 简述其现代半经典的处理方法, 包括虚拟电磁场理论和散射理论等. 并进一步介绍了磁子霍尔效应的物理起源, 概述了不同类型磁子的霍尔效应. 最后, 对磁子霍尔效应的发展趋势进行了展望.

关键词: 磁子, 霍尔效应, 非线性霍尔效应, 自旋电子学**PACS:** 75.40.Gb, 75.78.-n, 75.78.Cd, 11.15.-q**DOI:** 10.7498/aps.73.20231589

1 引言

自旋电子学 (spintronics) 是以自旋为基础, 研究对固态系统中自旋的主动控制和操纵的一个多学科领域^[1]. 传统的自旋电子学以电子自旋为研究对象, 但是电荷在移动过程中会带来不可避免的焦耳热, 使得电子体系中难以实现信息的低能耗传输. 自旋波 (spin wave) 是由于电子自旋之间交换作用而在磁体中自发产生的一种元激发, 因其具有波的形式而被称为自旋波, 其量子化的准粒子又被称为磁子 (magnon). 由于磁子在传输信息的过程中不需要电荷的移动, 因此也不存在现代电子技术固有的缺点. 此外, 磁子的粒子自由度, 如自旋角动量、动量和能量以及自旋波的波动自由度, 如相位、频率和振幅等都可以用于传输信息. 这些特性使得基于磁子(或自旋波)的自旋电子学器件在传输信息的过程中具有诸多优点, 如低能耗、较长的

传输距离以及丰富的信息自由度等. 这也催生了一个年轻领域——磁子学 (magnonics)^[2-4].

霍尔效应 (Hall effect) 一直是信息传输过程和设计自旋电子学存储器件的核心. 不同类型的霍尔效应可以实现电子的电荷流和自旋流在不同传播方向之间的转化. 具体来说, 传统的霍尔效应通过外磁场实现纵向电场和横向电流之间的转变^[5]. 反常霍尔效应 (anomalous Hall effect) 则是不需要外磁场作用的情况下实现自旋极化电流之间的相互转化^[6-9]. 自旋霍尔效应 (spin Hall effect) 通过自旋-轨道耦合来实现纵向电荷流和横向自旋流之间的转变^[10-13]. 拓扑霍尔效应 (topological Hall effect) 则描述了实空间拓扑诱导的纵向电荷流转变为横向自旋流这一现象^[14-17]. 另一方面, 霍尔效应分为由外禀因素诱导的非本征霍尔效应和内禀因素主导的本征霍尔效应. 其中本征霍尔效应强烈依赖于电子自旋和倒空间的贝里曲率 (Berry curvature). 贝里曲率最初起源于微分几何, 它表

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1402802) 和国家自然科学基金 (批准号: 12074057, 12374103) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yan@uestc.edu.cn

征了波函数随波矢 \mathbf{k} 的变化速度与 \mathbf{k} 空间能带结构的关联性. 自 20 世纪 70 年代以来, 这种贝里曲率一直在反常霍尔效应的背景下进行讨论, 但当时它并不被称为贝里曲率. 直到 Berry^[18] 在 1984 年发表了开创性的工作, 它的数学性质和在物理现象中的作用才进一步得到了澄清. 除了倒空间拓扑之外, 实空间拓扑也会诱导霍尔效应, 具体来讲, 当电子经过拓扑磁织构时, 其自旋会沿着磁结构的自旋进行绝热演化, 相应的角动量转移过程诱导了一个虚拟磁场的产生, 继而使得电子或者磁子发生偏转, 这被称为拓扑霍尔效应. 该现象最早在 MnSi 体系中被观测到, 被证明是来自一种拓扑磁孤子——斯格明子 (skyrmion) 的贡献^[14]. 斯格明子的概念起源于由 Skyrme^[19] 提出的非线性 σ 模型, 随后在中心反演对称破缺磁性材料中被发现^[20-22], 被认为是一种具有拓扑保护的磁结构. 但自旋和 \mathbf{k} 空间的能带拓扑并不是电子体系的专属, 作为一类典型的玻色子, 磁子也具有自旋角动量和相应的能带拓扑, 而磁子与广泛存在的拓扑缺陷之间的相互作用更是难以避免. 探索由倒空间和实空间拓扑引起的磁子霍尔效应是磁子学的重要研究方向.

本综述将回顾磁子霍尔效应的发展历程, 介绍由自旋-轨道耦合诱导的磁子霍尔效应, 以及基于拓扑磁孤子的拓扑霍尔效应, 还有同贝里曲率偶极子 (Berry curvature dipole) 相关联的非线性霍尔效应和最新报道的基于三磁子过程的磁子非线性拓扑自旋霍尔效应. 最后简要讨论该领域的未来, 并探讨一些潜在的研究方向和尚未解决的问题.

2 磁子霍尔效应

无论是玻色子还是费米子, 其本征自旋霍尔效应通常都来自于贝里相位 (Berry phase) 诱导的虚拟磁场, 即贝里曲率. 具体来说, 类似于电动力学中利用矢势构建电磁场, 贝里相位可以被近似为动量空间的磁通量, 而贝里曲率则对应着动量空间的磁场. 该等效磁场将对运输电子产生一个正比于贝里曲率的横向速度, 这便是导致电子霍尔效应的内禀机制. 其在粒子运输方程中的作用可以通过将玻色子或费米子的波函数近似为波包的方法得到. 这种半经典的方法最早应用在电子体系, 具体来说, 在周期性系统中, 电子波函数可以表示为布洛赫波函数: $\psi_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$. 尽管这个布洛赫波

函数是空间扩展的, 但电子波包可以被构造为布洛赫波的线性组合, 其在参数空间 (\mathbf{k}, \mathbf{r}) 的半经典运动方程为^[23]

$$\dot{\mathbf{r}} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial E_n(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{k}} - \dot{\mathbf{k}} \times \boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{k}), \quad \hbar \dot{\mathbf{k}} = -e\mathbf{E}, \quad (1)$$

其中, E_n 是电子第 n 个本征态的本征值, e 是电子电荷, \hbar 是约化普朗克常数, $\boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{k})$ 为电子的贝里曲率. (1) 式第一个等号右边的第二项垂直于电场 \mathbf{E} 方向, 这正是电子本征霍尔效应的来源.

2.1 交换自旋波的磁子霍尔效应

在不考虑偶极相互作用的情况下, 类比电子的半经典运动方程, 构造出短波长自旋波的波包运动方程^[24]:

$$\dot{\mathbf{r}} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon_n(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{k}} - \dot{\mathbf{k}} \times \boldsymbol{\Omega}_n(\mathbf{k}), \quad \hbar \dot{\mathbf{k}} = -\nabla U(\mathbf{r}), \quad (2)$$

其中 ε_n 是磁子第 n 个本征态的本征值, $U(\mathbf{r})$ 为体系的势能. 同样地, 倒空间的贝里曲率

$$\boldsymbol{\Omega}_n = -\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \text{Im} \left\langle \frac{\partial u_{n,\mathbf{k}}}{\partial k_\alpha} \left| \frac{\partial u_{n,\mathbf{k}}}{\partial k_\beta} \right. \right\rangle,$$

也是决定磁子霍尔效应的关键因素, 其中 $u_{n,\mathbf{k}}$ 是布洛赫函数的周期部分, $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$ 为反对称张量. 由于磁子不存在电荷, 因此不受电场的调控, 但是磁体系中的能量变化可以形成有效的电场力: $\nabla U(\mathbf{r})$. 对于共线磁体而言, 磁子在体系边界处会受到不为零的有效电场力, 这直接导致了在边界处磁子的反常速度 $\dot{\mathbf{k}} \times \boldsymbol{\Omega}_n$, 和相应的边界磁子流

$$I_y = - \int_a^b dx \partial_x U \left\{ \frac{1}{\hbar V} \sum_{n,\mathbf{k}} \rho[\varepsilon_{n,\mathbf{k}} + U(\mathbf{r})] \Omega_{n,z}(\mathbf{k}) \right\},$$

其中 $x = a$ 和 $x = b$ 分别代表体系内和体系外, $\rho(\varepsilon)$ 为磁子的分布函数. 该磁子流和边界的形状无关, 因此其具有极强的鲁棒性, 可围绕整个边界运动, 如图 1(b) 和图 1(c) 所示^[24].

与电子体系类似, 除了围绕边界的运动外, 磁子波包在运动过程中也会经历所谓的自转. 类比于电子的自转角动量的表达式, 可以得到磁子波包的自转角动量:

$$l_z^{\text{self}} = - \frac{2}{\hbar V} \text{Im} \sum_{n,\mathbf{k}} \rho_n \left\langle \frac{\partial u_n}{\partial k_x} \left| (H - \varepsilon_{n\mathbf{k}}) \right| \frac{\partial u_n}{\partial k_y} \right\rangle. \quad (3)$$

考虑波函数的归一化条件: $\sum_n |u_n(\mathbf{k})\rangle \langle u_n(\mathbf{k})| = 1$, 方程 (3) 可以重写为

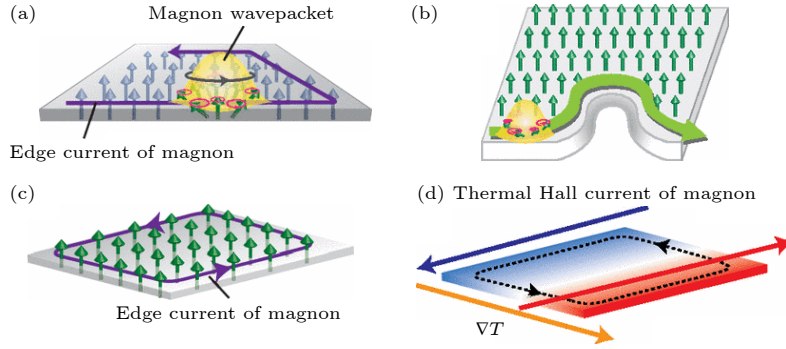


图 1 (a) 磁子波包的自转和绕着系统边界的磁子流; (b) 沿着边界传输且与边界形状无关的磁子流; (c) 平衡态时的边界磁子流; (d) 温度梯度导致的有限热霍尔磁子流^[24]

Fig. 1. (a) Self-rotation of a magnon wave packet and a magnon edge current; (b) the magnon near the boundary proceeds along the boundary, irrespective of the edge shape; (c) magnon edge current in equilibrium; (d) under the temperature gradient, a finite thermal Hall current will appear^[24].

$$I_z^{\text{self}} = -\frac{2}{\hbar V} \text{Im} \sum_{n, n', \mathbf{k}} \rho_n \times \frac{\left\langle u_n \left| \frac{\partial H}{\partial k_x} \right| u_{n'} \right\rangle \left\langle u_{n'} \left| \frac{\partial H}{\partial k_y} \right| u_n \right\rangle}{\varepsilon_{n'} - \varepsilon_n}. \quad (4)$$

贝里曲率可表示为

$$\Omega_n = -\frac{2}{\hbar V} \text{Im} \sum_{n, n', \mathbf{k}} \rho_n \times \frac{\left\langle u_n \left| \frac{\partial H}{\partial k_x} \right| u_{n'} \right\rangle \left\langle u_{n'} \left| \frac{\partial H}{\partial k_y} \right| u_n \right\rangle}{(\varepsilon_{n'} - \varepsilon_n)^2},$$

方程 (4) 和贝里曲率有着极高的相似性.

因此, 磁子波包的自转行为和绕边界的旋转过程都由动量空间有限的贝里曲率决定. 图 1(a) 给出了磁子的自旋运动和绕边界的运动^[24]. 当系统处于平衡态时, 磁子流沿着系统边界循环传播, 其在两个相反边界处的大小相等, 导致通过磁体的总热流为零. 在施加温度梯度 (图 1(d)) 后, 磁子将从高温区流向低温区, 这就打破了两个相反边界处的热流平衡, 从而导致横向非零热霍尔磁子流的产生^[24]. 此外, Zhang 等^[25] 研究表明, 这些边界磁子流实际上是由非平凡的拓扑磁子能带所导致的手性边界态. 这些边界态存在单向传播和拓扑保护的特性, 因而能够免疫缺陷和无序的干扰. 总之, 具有鲁棒特性的磁子霍尔效应起源于磁子的非平凡能带结构.

在电子体系中, 电子的自旋霍尔效应通常来自于由自旋-轨道耦合诱导的贝里曲率. 在中心反演对称性破缺的体系中, 自旋-轨道耦合通常会在自旋哈密顿量中引入 Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用^[26,27]. 2010 年, Katsura 等^[28] 预测了在具

有 DM 相互作用的 Kagome 晶格体系中磁子流的热霍尔效应, 该效应同年被 Onose 等^[29] 在共线铁磁绝缘体 $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ 中所证实. $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ 体系可以由以下哈密顿量来描述:

$$H = \sum_{\langle i, j \rangle} [-J \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)] - \mathbf{h} \cdot \sum_i \mathbf{S}_i, \quad (5)$$

式中, 第一项代表海森伯交换能, 第二项代表 DM 相互作用, 第三项则是磁场导致的塞曼能. DM 相互作用的强度和形式由 $D_{ij} = \mathbf{D}_{ij} \cdot \mathbf{n}$ 决定, 其中 \mathbf{D}_{ij} 为体系 DM 矢量的方向, \mathbf{n} 代表沿磁场方向的单位矢量. 为了计算不同磁子态之间的传输矩阵元, 将哈密顿量转变为自旋算符的表达式:

$$H = -J \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) = -\frac{J}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) + i \frac{D_{i,j}}{2} (S_i^+ S_j^- - S_i^- S_j^+), \quad (6)$$

其中, $S_i^+ = S_{i,x} + iS_{i,y}$, $S_i^- = S_{i,x} - iS_{i,y}$ 分别对应自旋的升降算符; J 为交换能的大小. 由于该体系具有平移对称性, 因此可以将磁子态拟设为布洛赫态 $|k\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \times \sum_i e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_i} |i\rangle$, 不同磁子态之间的传输由以下矩阵元决定:

$$\langle i | -J \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) | j \rangle = \langle i | -\frac{J}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) + i \frac{D_{i,j}}{2} (S_i^+ S_j^- - S_i^- S_j^+) | j \rangle = A e^{i\phi_i}, \quad (7)$$

式中 $A e^{i\phi_i} = J + iD_{ij}$, 其幅角 ϕ_i 由 DM 相互作用

的强度所决定.

(7) 式中矩阵元的虚部表明了 DM 相互作用在磁子输运过程中类似于一个矢势, 并且作为一个“轨道磁场” (orbital magnetic field), 其产生一个作用于磁子的有效洛伦兹力, 继而诱导磁子的霍尔效应. 值得注意的是该矢势一方面依赖于 DM 矢量的方向, 即当 DM 矢量和自旋平衡态垂直时不会对矢势有所贡献, 另一方面也强烈依赖于材料的晶格类型. 若要保证 DM 相互作用诱导的有效磁通不会被抵消, 则需要单位晶格内的有效磁通不为零^[30]. 以烧绿石和钙钛矿结构为例, DM 相互作用诱导的幅角 ϕ_i 在烧绿石的晶胞内不抵消, 继而诱导了有限的总磁通, 如图 2(a) 所示. 而在扭曲的钙钛矿结构中, DM 相互作用诱导的总幅角为零, 其相应的总磁通也为零, 如图 2(b) 所示.

上述结果表明了电子的自旋-轨道耦合会同时诱导电子和磁子的霍尔效应. 但是电子和磁子的自旋角动量存在一定的差别, 在磁子体系中是否存在对应的自旋-轨道耦合? 即随动量空间变化的磁子极化, 并且相应的耦合能否诱导磁子的霍尔效应? 为了解决这些问题, Shen^[31] 研究了反铁磁体系中偶极相互作用对磁子极化和输运的影响, 通过在哈密顿量中考虑偶极相互作用并考虑长波近似条件, 可以求得磁子在该体系中的本征函数:

$$\psi_{\mathbf{k}}^{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\alpha_{\mathbf{k}} \pm e^{2i\phi_{\mathbf{k}}} \beta_{\mathbf{k}}), \quad (8)$$

式中, $\alpha_{\mathbf{k}}$ 和 $\beta_{\mathbf{k}}$ 分别对应反铁磁中的左旋和右旋磁子波函数, $\phi_{\mathbf{k}}$ 为波矢在 x - y 平面的方位角. 该本征波函数表明了左旋和右旋磁子的耦合, 产生了波矢 \mathbf{k} 依赖的自旋进动轨迹 (即波矢依赖的磁子极化), 如图 3(a) 所示. 这类似于电子体系的自旋-轨道耦合. 考虑磁子沿着面内方向传播, 并参考电子体系中诱导自旋霍尔效应的贝里曲率表达式^[11], 可以得到两种磁子模式的贝里曲率:

$$\Omega_z^{\pm} = \pm \frac{c_s^2}{\Delta_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}}} \sin^2(\phi_{\mathbf{k}}), \quad (9)$$

其中, c_s 由海森伯交换能和体系晶格参数决定, $\Delta_{\mathbf{k}}$ 则由磁子色散和 c_s 决定. 由方程 (9) 可知, 两种磁子会获得相反的贝里曲率, 继而导致磁子自旋霍尔效应, 如图 3(b) 所示.

2.2 静磁自旋波的磁子霍尔效应

上述的磁子霍尔效应都是基于短波长自旋波, 即交换自旋波的霍尔效应. 然而, 磁性体系中广泛存在着的偶极相互作用在长波长自旋波的输运过程中扮演着极为重要的角色. 根据波长的不同, 自旋波可以分为静磁自旋波、交换静磁自旋波和交换自旋波^[32,33], 如图 4(a) 所示. 根据静磁自旋波的平

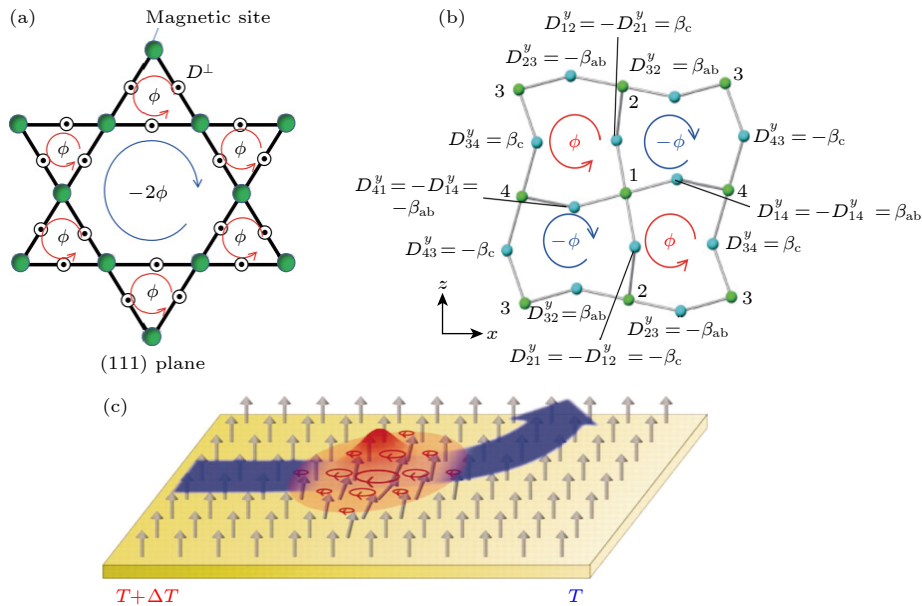


图 2 DM 相互作用在烧绿石 (111) 平面中诱导的幅角 ϕ_i 分布 (a) 和在扭曲的钙钛矿的 z - x 平面中诱导的幅角分布 (b)^[30]; (c) 磁子的霍尔效应示意图^[29]

Fig. 2. Spital distribution of ϕ_i induced by DM interaction in the (111) plane of the pyrochlore lattice (a) and the z - x plane of the distorted perovskite structure (b)^[30]; (c) schematic of magnon Hall effect^[29].

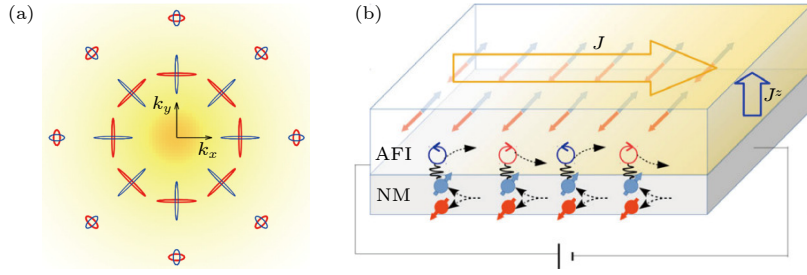


图 3 (a) 磁子的极化, 即自旋的进动轨迹和波矢的关系; (b) 偶极-偶极相互作用力在反铁磁体系中诱导的磁子自旋霍尔效应的示意图^[31]

Fig. 3. (a) The polarization, i.e., the trajectory of the spin precession as a function of wave vectors; (b) schematic of magnon spin Hall effect induced by the dipolar interaction^[31].

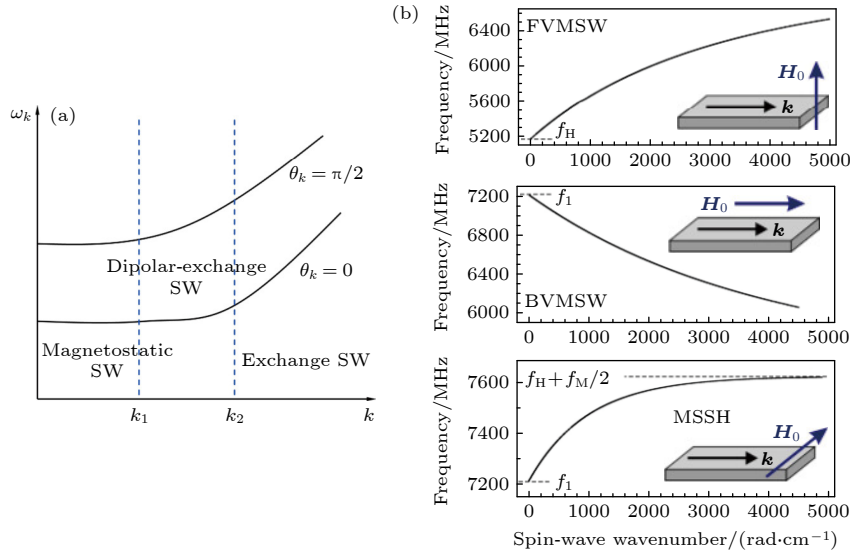


图 4 (a) 磁椭球中磁子的色散关系; (b) 钇铁石榴石 (YIG) 中不同类型的静磁模自旋波^[35]

Fig. 4. (a) Dispersion relation of SW for a magnetic ellipsoid; (b) different types of magnetostatic SWs in yttrium iron garnet (YIG)^[35].

平衡态和波矢的相对方向, 其也可以分为三种类型, 如图 4(b) 所示. 与交换自旋波类似, 静磁自旋波同样能经历由贝里曲率诱导的磁子霍尔效应. 但不同的是, 其贝里曲率的表达式需要重写为 $-\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \text{Im} \times \left\langle \frac{\partial \mathbf{m}_{n,\mathbf{k}}}{\partial k_\alpha} \middle| \sigma_y \middle| \frac{\partial \mathbf{m}_{n,\mathbf{k}}}{\partial k_\beta} \right\rangle$ ^[34], 其中 $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$ 是反对称张量, 这是由静磁自旋波特殊的归一化关系所决定的, 即 $\langle \mathbf{m}_{n,\mathbf{k}} | \sigma_y | \mathbf{m}_{n,\mathbf{k}} \rangle = 1$. 当自旋平衡态 \mathbf{M}_0 躺在面内时 ($\theta = \pi/2$) 系统在时间反演操作和面内旋转 180° 的联合操作下保持不变, 使得贝里曲率为零. 这对应着静磁后向体模式 (BVMSW) 和静磁表面自旋波 (MSSW) 模式. 另一方面, 对于静磁前向体模式 (FVMSW), 由于其饱和磁化强度是面外方向的 ($\theta = 0$)^[35], 所以贝里曲率不为零.

当只存在偶极相互作用时, 系统第 n 个本征值 (n 为整数) 对应的静磁自旋波波函数为

$$\mathbf{m}_{n,\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} i\kappa k_x + vk_y \\ -vk_x + i\kappa k_y \end{pmatrix} \cos\left(\sqrt{p}kz + \frac{n\pi}{2}\right), \quad (10)$$

其中, $\kappa = \frac{\omega_M \omega_H}{\omega_H^2 - \omega_n^2}$, $v = \frac{\omega_M \omega_n}{\omega_H^2 - \omega_n^2}$, $p = -1 - \kappa > 0$. $\omega_H = \gamma H_0$ 由静磁场决定, $\omega_M = \gamma M_s$ 由体系的饱和磁化强度 M_s 决定, ω_n 则是其倒空间第 n 个本征值. 将对应的波函数代入静磁波的贝里曲率表达式, 可以得到第 n 个静磁波模式的贝里曲率:

$$\Omega_{n,z}(\mathbf{k}) = \frac{1}{2\omega_H k} \frac{\partial \omega_n}{\partial k} \left(1 - \frac{\omega_H^2}{\omega_n^2}\right). \quad (11)$$

图 5(a) 和图 5(b) 分别给出了在 $H_0 = M_s$ 的情况下, 静磁前向体模式的本征值和贝里曲率对 \mathbf{k} 和 n 的依赖性.

根据静磁自旋波的贝里曲率, 也可以估计其在 $k_B T \gg \hbar \omega_H$ 情况下的热霍尔电导^[34]:

$$\kappa_{xy} \approx \frac{k_B \omega_M N}{8\pi} \left[1 - r \log\left(1 + \frac{1}{r}\right)\right], \quad (12)$$

其中, $r = H_0/M_s$, $N = L/l_{\text{ex}}$, l_{ex} 是交换长度, L 则为磁体的层厚度. (12) 式表明静磁自旋波的热霍尔电导与温度无关.

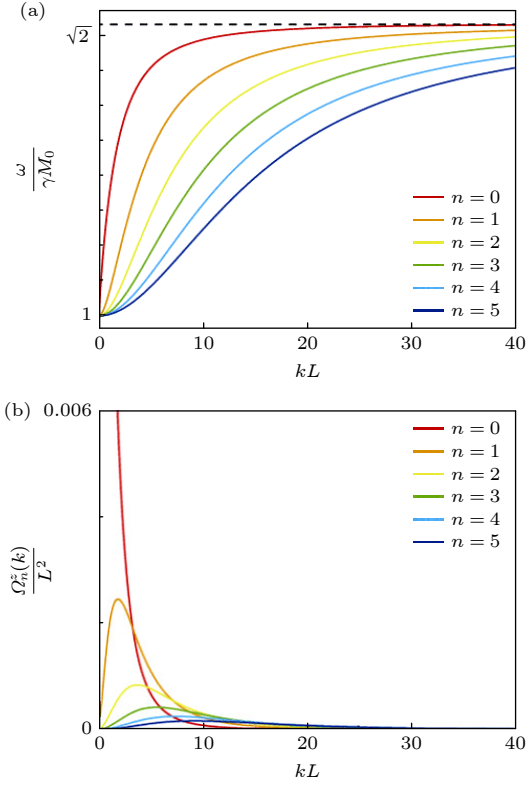


图 5 在 $H_0 = M_0$ 情况下, 静磁前向体模式的色散关系 (a) 和贝里曲率分布 (b)^[34]

Fig. 5. Dispersion (a) and Berry curvature (b) for the magnetostatic forward volume-wave mode for $H_0/M_0 = 1$ ^[34].

3 拓扑磁子霍尔效应

除倒空间拓扑之外, 实空间拓扑也同样可以诱导出携带自旋的粒子的霍尔效应. 具体来讲, 当携带自旋角动量的粒子经过空间非共线磁织构时, 由于自旋角动量的转移, 粒子会经历一个感生磁场, 在有效洛伦兹力的作用下, 粒子运动轨迹发生偏转, 这一现象被称为拓扑霍尔效应. 该效应最早在电子体系中被报道^[14]. 同样, 携带自旋角动量的磁子在经过实空间的拓扑磁织构时也会经历由虚拟磁场诱导的有效洛伦兹力, 这一现象被称为拓扑磁子霍尔效应^[36].

3.1 虚拟电磁场理论

磁子在经过拓扑磁织构时感受到的有效磁场的来源可以这样来理解: 当把非共线磁织构中的自

旋通过局域旋转矩阵变换到 z 轴时, 规范变换会将原本的空间导数转变为协变导数的形式 $\partial_\mu + \mathbf{A}_\mu$, $\mu = x, y$. 这里, $\mathbf{A}_\mu = \mathbf{R}^{-1}\partial_\mu\mathbf{R}$ 是一个 3×3 的反对称矩阵, \mathbf{R} 是旋转矩阵:

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} \cos\theta \cos\phi & -\sin\phi & \cos\phi \sin\theta \\ \cos\theta \sin\phi & \cos\phi & \sin\phi \sin\theta \\ -\sin\theta & 0 & \cos\theta \end{pmatrix}. \quad (13)$$

式中, θ 和 ϕ 分别代表自旋的极化角和方位角. 对自旋应用 Holstein-Primakoff (HP) 变换^[37]:

$$\begin{aligned} S_x &= \frac{1}{\sqrt{2S}} \left(a + a^\dagger - \frac{a^\dagger a a + a^\dagger a^\dagger a}{4S} \right), \\ S_y &= -\frac{i}{\sqrt{2S}} \left(a - a^\dagger - \frac{a^\dagger a a - a^\dagger a^\dagger a}{4S} \right), \\ S_z &= 1 - a^\dagger a / S, \end{aligned} \quad (14)$$

代入磁体系的拉氏量:

$$\mathcal{L} = \int \mathbf{A} \cdot \dot{\mathbf{S}} - [A(\nabla \mathbf{S})^2 + D\mathbf{S} \cdot (\nabla \times \mathbf{S}) - K S_z^2] d\mathbf{r}, \quad (15)$$

其中 $\mathbf{A} = (\boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{S}) / (1 + \mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\Omega})$ 是沿着方向 $\boldsymbol{\Omega}$ 的磁单极的磁矢量. 保留到玻色算子 a , a^\dagger 的二阶项, 可以得到不考虑磁子-磁子相互作用的二阶哈密顿量:

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_2 &= \int [-iA(a^\dagger \partial_r a - a \partial_r a^\dagger) - a^\dagger a (\cos\theta \partial_t \phi) \\ &\quad + ia^\dagger \dot{a} - A \partial_r a^\dagger \cdot \partial_r a - K a^\dagger a] d\mathbf{r}. \end{aligned} \quad (16)$$

进一步地, 假设磁子呈现波包的形式, 并且假设其波型在经过斯格明子时近似不变, 进而可以对磁子波包应用集体坐标理论^[38,39]. 在该近似下, 自旋波波函数对时间的偏导转变为 $\partial_t \psi = \partial_r \psi \cdot \mathbf{v}$, 其中 $\mathbf{v} = \partial\omega/\partial\mathbf{k}$ 为磁子群速度, 这一近似在描述斯格明子和畴壁的动力学中被广泛使用^[40,41]. 通过这一假设可以进一步简单地将体系的拉氏量写作波包的位置和动量的函数^[38]:

$$\mathcal{L}_2 = 2a^\dagger a \int \left[\mathbf{v} \cdot \left(\mathbf{k} - \mathbf{A}_{12} + \frac{D\mathbf{S}_0}{2J} \right) - Ak^2 \right] d\mathbf{r}, \quad (17)$$

其中, ω 为磁子频率, \mathbf{S}_0 为自旋平衡态, $\mathbf{A}_{12} = -\nabla\phi \cos\theta$ 代表来自交换能的有效矢量. 值得注意的是磁子的产生湮灭算符通常和磁子在某个态下的占据数有关, 而拉氏量中的 $a^\dagger a$ 就对应着磁子的粒子数. 本文认为磁子的粒子数和自旋波振幅的平方相关. 随后对体系拉氏量应用欧拉-拉格朗日方程, 可以得到如下的动力学方程:

$$a^\dagger a m_{\text{sw}} \dot{\mathbf{v}} - a^\dagger a \omega \mathbf{v} \times \mathbf{B} = 0, \quad (18)$$

式中, $m_{\text{sw}} = 1/2A$ 代表归一化的磁子波包有效质量. 方程 (18) 表明磁子在经过斯格明子时会经历来自交换能和 DM 相互作用诱导的虚拟磁场 $\mathbf{B} = B_z \mathbf{e}_z$ 的作用, 其中

$$B_z = \frac{\hbar}{e} \left[\nabla \times \left(\mathbf{A}_{12} + \frac{D\mathbf{S}_0}{2J} \right) \right]_z \\ = \frac{\hbar}{e} \left[\mathbf{S}_0 \cdot (\partial_x \mathbf{S}_0 \times \partial_y \mathbf{S}_0) + \left(\nabla \times \frac{D\mathbf{S}_0}{2J} \right)_z \right].$$

通常来讲, 由交换能诱导的虚拟磁场的总磁通等于斯格明子的拓扑荷, 而 DM 相互作用诱导的虚拟磁场的总磁通近似为零^[36]. 因此, 磁子的运动轨迹主要取决于磁织构的拓扑荷. 当拓扑荷不为零时, 磁子会经历一个斜散射 (skew scattering) 过程. 而当拓扑荷为零时, 磁子则会经历一个边跳跃 (side jump) 过程^[38], 这类似于电子被杂质散射后导致的反常霍尔效应, 如图 6(a) 所示.

在反铁磁或者亚铁磁中, 由于体系具有相反自旋的两套子晶格, 使得磁子的极化会拥有全自旋自由度. 因此, 磁子会经历所谓的拓扑磁子自旋霍尔效

应, 即具有相反极化的磁子流经历自旋依赖的相反的有效洛伦兹力, 继而被斯格明子分离^[42-45], 如图 6(b) 和图 6(c) 所示.

3.2 散射理论

3.1 节的虚拟电磁场理论适用于斯格明子尺寸大于磁子波长的情况, 并且忽略了一些粒子数不守恒的项, 如 $a^\dagger a^\dagger$ 和 aa 等. 当磁子的波长大于斯格明子直径时, 可以采用散射理论去处理该情况下的磁子-斯格明子散射行为. 该方法最早于 2014 年由 Iwasaki 等^[46] 用于研究磁子和斯格明子的耦合体系. 同年由 Schütte 等^[47] 完成了更系统的研究. 考虑包含交换能、体 DM 相互作用和塞曼能的系统的哈密顿量为

$$\mathcal{H} = \frac{A}{2} (\nabla \mathbf{S})^2 + D \mathbf{S} \cdot (\nabla \times \mathbf{S}) - h S_z. \quad (19)$$

为了描述磁子, 可以使用由 3 个相互正交的单位向量 ($\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2, \mathbf{e}_3$) 定义的局域坐标系, 其中 $\mathbf{e}_3 = \mathbf{S}_0 / |\mathbf{S}_0| = \mathbf{e}_1 \times \mathbf{e}_2$, \mathbf{S}_0 代表自旋的平衡态. 相应的

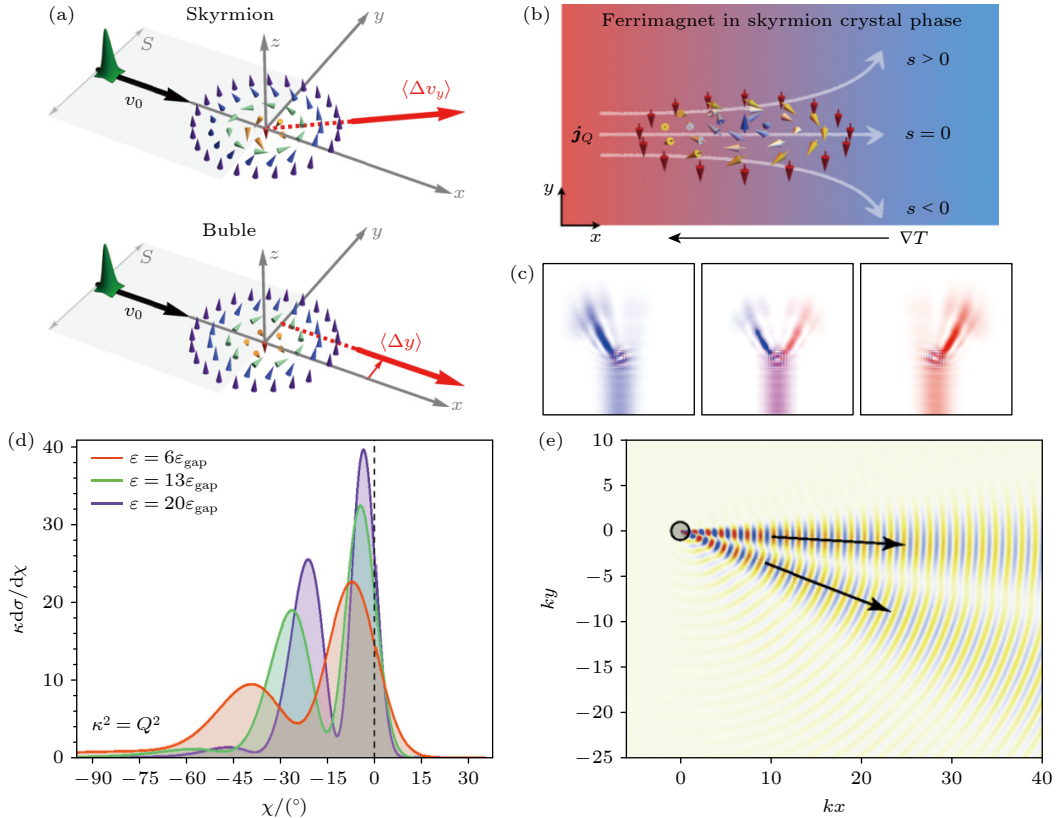


图 6 (a) 磁子经过磁织构之后的斜散射和边跳跃行为^[38]; 磁子经过 (b) 亚铁磁和 (c) 反铁磁斯格明子之后的偏转轨迹^[42,43]; (d) 散射理论计算得到的不同入射磁子能量下的微分散射截面, ϵ_{gap} 为 $\mathbf{k} = 0$ 时的磁子能量^[47]; (e) 磁子的彩虹散射过程^[47]

Fig. 6. (a) Skew scattering and side jump of spin wave across magnetic texture^[38]; the trajectories of spin wave across (b) antiferromagnetic and (c) ferrimagnetic skyrmion^[42,43]; (d) differential cross section evaluated from scattering theory for various energies, ϵ_{gap} is the magnon gap^[47] at $\mathbf{k} = 0$; (e) the rainbow scattering process of magnons^[47].

磁子波函数为 $\psi = (\delta_1 \pm i\delta_2)/\sqrt{2}$, 其中 $\delta_{1(2)}$ 描述了自旋波在两个正交方向的振幅分量. 将自旋哈密顿量表达为磁子波函数的函数, 并保留其二阶微扰部分, 可以得到相应的本征方程:

$$H(m)\psi = \varepsilon\tau^z\psi, \quad (20)$$

式中, m 代表散射磁子携带的轨道角动量, 哈密顿量 $H(m) = H_0(m) + V(m)$, $H_0(m)$ 和 $V(m)$ 分别为不存在斯格明子时系统的哈密顿量和斯格明子带来的有效散射势, 分别表示为

$$H_0(m) = A \left[\mathbf{I} \left(-\partial_\rho^2 - \frac{\partial_\rho}{\rho} + \frac{m^2+1}{\rho^2} + \frac{\hbar}{A} \right) - \tau^z \frac{2m}{\rho^2} \right], \quad (21)$$

$$V(m) = A[v_z\tau^z + v_0\mathbf{I} + v_x\tau^x],$$

$$v_z = -2m \left(\frac{\cos\theta - 1}{\rho^2} - \frac{D \sin\theta}{A\rho} \right),$$

$$v_0 = \frac{3[\cos(2\theta) - 1]}{4\rho^2} - \frac{3D \sin(2\theta)}{2A\rho} + \frac{\hbar(\cos\theta - 1)}{A} - \frac{D\theta'}{A} - \frac{\theta'^2}{2},$$

$$v_x = \frac{\sin^2(\theta)}{2\rho^2} + \frac{D}{A \sin(2\theta)} 2\rho - \frac{D\theta'}{A} - \frac{\theta'^2}{2}, \quad (22)$$

式中, $\tau^{x(z)}$ 代表泡利矩阵, \mathbf{I} 代表单位矩阵, ρ 为自旋和斯格明子中心的距离. 在没有斯格明子的情况下, 方程 (22) 的本征值和波函数分别为 $\varepsilon = A\left(\frac{\hbar}{A} + k^2\right)$, $\psi_{m,0} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{Aa}} J_{m-1}(k\rho)$, 本征函数中的 J_m 为贝塞尔函数, a 为体系晶格参数. 对应的本征值代表了基态情况下铁磁磁子的色散关系. 在能散射的情况下 (磁子频率较高的情况), 非对角元的散射矩阵可以忽略 (v_x), 可以只考虑 v_z 和 v_0 带来的影响. 而在非高能散射的情况下 (磁子频率较低的情况), 由于斯格明子势是空间依赖的, 则需要对实空间上每个位置的本征方程进行对角化, 求得对应的本征值和波函数. 在远离斯格明子的区域, 磁子的波函数可以写为

$$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \left[e^{ik \cdot r} + f(\chi) \frac{e^{ik\rho}}{\sqrt{\rho}} \right], \quad (23)$$

其中, χ 为斯格明子所在平面的方位角, $f(\chi)$ 代表方向依赖的磁子的散射强度, 通常由无穷远处散射波的相移决定. 采用半经典的散射理论可以计算 $f(\chi)$ 以及对应的微分散射截面和散射角的依赖性^[48], 如图 6(d) 所示. 显而易见, 相对于磁子入射方向 ($\chi = 0$), 微分散射截面具有很强的非对称性, 代表

着明显的偏向散射过程. 通过计算该体系波函数在实空间的分布, 可以明显看到磁子经过斯格明子之后的多峰散射过程, 即彩虹散射过程 (rainbow scattering), 如图 6(e) 所示.

3.3 磁子的朗道能级

当在二维电子气中施加外磁场时, 会出现分立的量子化能级, 称为朗道能级 (Landau level). 与之对应的, 磁子在经过由斯格明子诱导的虚拟磁场时, 也可能出现对应的磁子朗道能级. Kim 等^[43] 考虑磁子在斯格明子晶体中的情况, 并将斯格明子诱导的虚拟磁场做一个空间平均化处理. 此时, 在斯格明子体系中的磁子可由如下薛定谔方程描述:

$$i\hbar\partial_t\psi = \left[\frac{1}{2m} \left(\frac{\hbar}{i}\nabla - q\mathbf{A}_{12} \right)^2 \right] \psi, \quad (24)$$

其中 q 对应磁子的手性, 类比为磁子的有效电荷. 有效磁场 $\mathbf{B} = B_z\mathbf{e}_z = \int \frac{\hbar}{e} [\nabla \times (\mathbf{A}_{12})]_z \mathbf{dr} / V \mathbf{e}_z$ 可以近似为斯格明子拓扑荷对空间的平均, 其中 V 是系统的体积. 相应的磁子回旋频率为 $\omega_c = B_z/m$, 其本征值给出磁子体系中的朗道能级 $\varepsilon_n = \hbar\omega_c(n + 1/2)$, n 为整数.

4 磁子的非线性霍尔效应

前两节的磁子霍尔效应和拓扑霍尔效应都对应着霍尔磁子流对外界激励的线性响应. 2015 年, Sodemann 和 Fu^[49] 在理论上首次预测了存在于时间反演对称性体系中的霍尔电流, 该电流与外界电场有二阶响应关系. 由于这种非线性响应, 他们将其命名为非线性霍尔效应. 为了求得非线性霍尔电流的表达式, 可从霍尔电流的密度 $j_a = -e \int_k f(k) v_a \mathbf{dk}$ 出发, 其中 $f(k)$ 为电子分布函数, v_a 为电子速度. 分布函数 $f(k)$ 可以通过级数展开至电场的二阶项:

$$f = \text{Re}\{f_0 + f_1 + f_2\}, \quad (25)$$

其中, f_0 是没有外场下的电子分布函数, f_1 和 f_2 为

$$f_1 = f_1^\omega e^{i\omega t}, \quad f_1^\omega = \frac{e\tau\varepsilon_a\partial_a f_0}{1 + i\omega\tau},$$

$$f_2 = f_2^0 + f_2^{2\omega} e^{2i\omega t}, \quad f_2^0 = \frac{(e\tau)^2 \varepsilon_a^* \varepsilon_b \partial_{ab} f_0}{2(1 + i\omega\tau)},$$

$$f_2^{2\omega} = \frac{(e\tau)^2 \varepsilon_a \varepsilon_b \partial_{ab} f_0}{2(1 + i\omega\tau)(1 + 2i\omega\tau)}, \quad (26)$$

式中, τ 为电子的弛豫时间. 相应地, 可以得到保留到电场二阶项的霍尔电流 $j_a = \text{Re}(j_a^0 + j_a^{2\omega} e^{2i\omega t})$, 其中,

$$j_a^0 = \frac{e^2}{2} \int_k \varepsilon_{abc} \Omega_b \varepsilon_c^* f_1^\omega \mathbf{d}k - e \int_k f_2^0 \partial_a \varepsilon(k) \mathbf{d}k,$$

$$j_a^{2\omega} = \frac{e^2}{2} \int_k \varepsilon_{abc} \Omega_b \varepsilon_c f_1^\omega \mathbf{d}k - e \int_k f_2^{2\omega} \partial_a \varepsilon(k) \mathbf{d}k. \quad (27)$$

(27) 式中的第二项是完全和贝里曲率无关的项, 当考虑时间反演对称的体系时, 该项也会消失. 因此可以着重于与拓扑相关的第一项, 将霍尔电流重写为 $j_a^0 = \chi_{abc} \varepsilon_b \varepsilon_c^*$ 以及 $j_a^{2\omega} = \chi_{abc} \varepsilon_b \varepsilon_c$, 其中

$$\chi = -\varepsilon_{abc} \frac{e^3 \tau}{2(1 + i\omega\tau)} \int_k f_0(\partial_b \Omega_d) \mathbf{d}k.$$

显而易见, 在存在时间反演对称性的体系中, 电子的霍尔电流由贝里曲率偶极子 $\int_k f_0(\partial_b \Omega_d) \mathbf{d}k$ 决定. 图 7(a) 给出了由贝里曲率诱导的反常霍尔效应和贝里曲率偶极子诱导的非线性霍尔效应^[50].

相应地, 类似的处理方法可以映射到磁子体系. 以由温度梯度诱导的反常能斯特效应为例, 其对应的霍尔磁子流的表达式为

$$J_y = -\frac{1}{\hbar V} \sum_{n, \mathbf{k}} \Omega_n(\mathbf{k}) \int d\varepsilon \frac{\partial}{\partial x} \rho[E_n(\mathbf{k}) + \varepsilon, T(x)], \quad (28)$$

其中 $E_n(\mathbf{k})$, $\Omega_n(\mathbf{k})$, $\rho(E, T(x))$ 分别代表能量本征值、第 n 条能带的贝里曲率和能量为 E 的磁子在温度 T 下的分布函数, $T(x) = T_0 - x \nabla T$ 是随空间变化的温度分布. 为了获得和温度梯度呈现非线性关系的贝里曲率, 可从体系的玻尔兹曼输运方程出发:

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \dot{\mathbf{x}} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} + \dot{\mathbf{k}} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{k}} \right) \rho[E_n(\mathbf{k}) + \varepsilon, T(x)] = -\frac{\rho[E_n(\mathbf{k}) + \varepsilon, T(x)] - \rho_0[E_n(\mathbf{k}) + \varepsilon, T(x)]}{\tau}, \quad (29)$$

其中, τ 和 ρ_0 分别代表磁子的弛豫时间和平衡分布函数. 考虑这是一个没有外场的稳态系统, 上述方程可以进一步约化为

$$\rho[E_n(\mathbf{k}) + \varepsilon, T(x)] = \rho_0[E_n(\mathbf{k}) + \varepsilon, T(x)] - \tau \dot{\mathbf{x}} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \rho[E_n(\mathbf{k}) + \varepsilon, T(x)]. \quad (30)$$

将 $\dot{\mathbf{x}}$ 重写为 $(1/\hbar) \partial_{\mathbf{k}_x} E_n(\mathbf{k})$, $\partial/\partial x$ 重写为 $-\nabla T \partial/\partial T_0$, 并将 (29) 式代入磁子流的表达式, 可

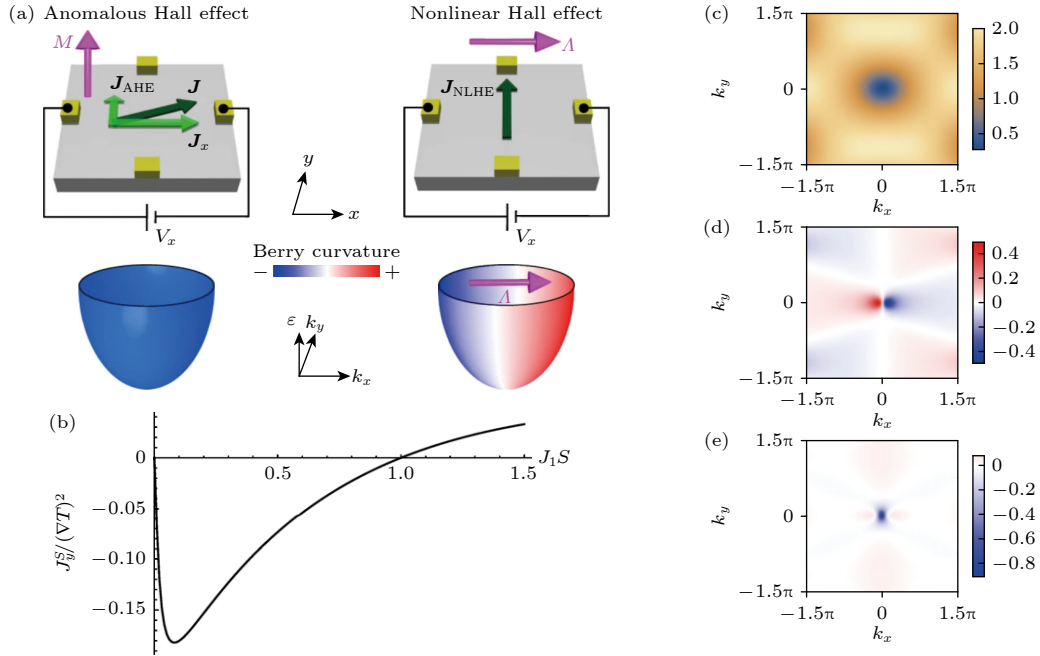


图 7 (a) 由贝里曲率诱导的反常霍尔效应和贝里曲率偶极子诱导的非线性霍尔效应示意图^[50]. (b) 非线性磁子流和交换系数 J_1 的关系^[51]. 磁子的 (c) 能带、(d) 贝里曲率和 (e) 贝里曲率偶极子在动量空间的分布^[51]

Fig. 7. (a) Schematics of the anomalous Hall effect induced by the finite Berry curvature and the nonlinear Hall effect induced by the finite Berry curvature dipoles in the entire space, respectively^[50]. (b) Nonlinear magnon current as a function of exchange constant J_1 ^[51]. Distribution of (c) the band structure, (d) berry curvature, and (e) berry curvature dipole of magnons in the momentum space^[51].

以得到与温度梯度呈现二阶响应的磁子流表达式:

$$\begin{aligned}
 J_y = & \frac{\nabla T}{\hbar V} \sum_n \int_{\text{BZ}} d^2 k c_1 \{ \rho_0 [E_n(k), T_0] \} \Omega_n(\mathbf{k}) \\
 & + \frac{\tau(\nabla T)^2}{\hbar^2 V T_0} \sum_n \int_{\text{BZ}} d^2 k c_1 \{ \rho_0 [E_n(k), T_0] \} \\
 & \times \frac{\partial}{\partial k_x} [E_n(\mathbf{k}) \Omega(\mathbf{k})], \quad (31)
 \end{aligned}$$

其中, $c_1(\rho_0) = (1 + \rho_0) \ln(1 + \rho_0) - \rho_0 \ln(\rho_0)$, 方程 (30) 的第一项对应线性磁子的能斯特效应; 第二项则代表磁子流对温度梯度的非线性响应 (二阶), 其和磁子的贝里曲率偶极子相关联. 如果考虑方程更高的阶数, 可以得到磁子流对温度梯度的三阶、四阶响应. 图 7(b) 给出了反铁磁蜂巢晶格中的非线性磁子流和交换系数的关系^[51]. 非线性磁子流由其在 \mathbf{k} 空间的能带分布 (图 7(c))、贝里曲率 (图 7(d)) 和贝里曲率偶极子 (图 7(e)) 决定^[51].

5 磁子非线性拓扑自旋霍尔效应

当自旋波的激发振幅较大时, 线性化方程已不足以描述磁子行为, 需要讨论自旋波高阶相互作用项的影响. 这些非线性高阶项通常表述为磁子-磁子散射过程 (magnon-magnon scattering). 其中最常见非线性过程是三磁子和四磁子散射过程. 三磁子散射包括三磁子融合和三磁子分裂两种类型,

一般情况下是由磁偶极相互作用或者非共线磁织构诱导^[52]. 三磁子融合是指两个磁子融合为一个磁子, 其逆过程为三磁子分裂, 对应一个磁子分裂为两个磁子 (图 8(a)), 三磁子过程可以用于产生磁子频率梳^[53,54], 如图 8(b) 所示. 四磁子散射主要是指两个磁子转变为另外两个磁子^[55], 主要由交换相互作用诱导产生, 如图 8(c) 所示. 需要指出的是, 磁子作为玻色子, 在磁子-磁子散射过程中粒子数可以不守恒, 但需要遵循能量和动量守恒.

在光学体系中, 非线性光在传输过程中和线性光一样会获得贝里相位^[56-58]. 而在磁子体系中, 非线性磁子也同样可能会经历由非共线磁织构导致的虚拟磁场. 最近, Jin 等^[59] 系统研究了由于三磁子过程诱导的磁子非线性拓扑霍尔效应, 揭示了非线性磁子在经过斯格明子时会感受到额外的规范场, 继而具有更大的霍尔角, 如图 9(a) 所示. 具体来说, 该工作考虑了在反铁磁系统中入射磁子和斯格明子呼吸模之间的相互作用, 并以此来诱导三磁子过程, 产生磁子频率梳. 为了考虑哈密顿量中不同磁子模式的贡献, 将玻色算子展开为 $a = a_s e^{i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}} + a_p e^{i\mathbf{k}_p \cdot \mathbf{r}} + a_q e^{i\mathbf{k}_q \cdot \mathbf{r}} + a_r \psi_r$, 其中 \mathbf{k}_s , \mathbf{k}_p 和 \mathbf{k}_q 分别为入射模 a_s 、合频模 a_p 和差频模 a_q 在无穷远处的波矢, ψ_r 为呼吸模 a_r 的波函数. 相应的哈密顿量为 (考虑归一化的自旋矢量 $S = 1$) $\mathcal{H} = \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_3$. 其中代表磁子线性过程的二阶哈密顿量为

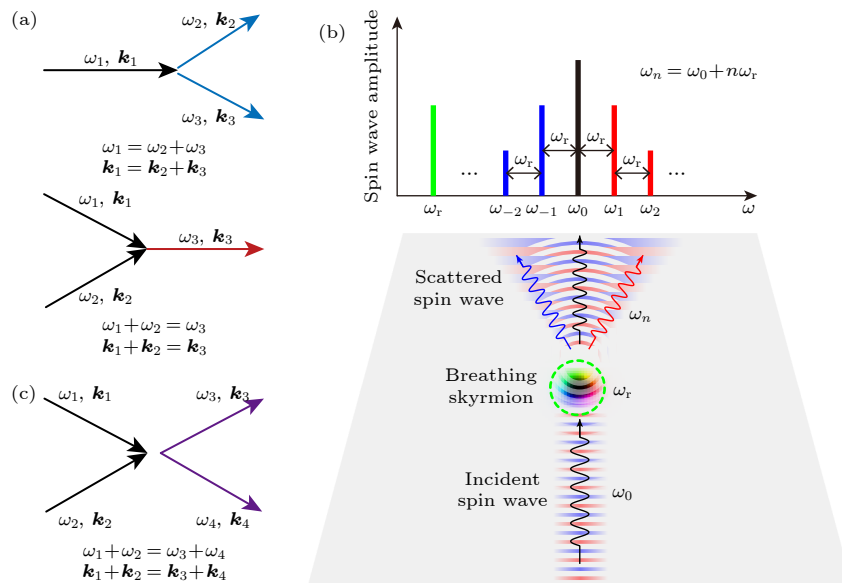


图 8 (a) 非线性三磁子过程示意图; (b) 三磁子散射诱导的磁子频率梳示意图^[53]; (c) 非线性四磁子过程示意图

Fig. 8. (a) Schematic diagram of the nonlinear three-magnon process; (b) schematic diagram of three-magnon scattering induced magnon frequency comb^[53]; (c) schematic diagram of the nonlinear four-magnon process.

$$\mathcal{H}_2 = \sum_{i=s,p,q} 2a_i^\dagger a_i \int \left[\frac{1}{J} \omega_i^2 \mathbf{v}_i^2 - \left(2\mathbf{A}_{12} + \frac{D\mathbf{l}_0}{J} \right) \cdot \omega_i \mathbf{v}_i \right] d\mathbf{r}. \quad (32)$$

哈密顿量中的 \mathbf{l}_0 为平衡态下反铁磁体系的奈尔矢量. 而代表非线性过程的三阶哈密顿量为 $\mathcal{H}_3 = \mathcal{H}_{3s} + \mathcal{H}_{3p} + \mathcal{H}_{3q}$, 其中 \mathcal{H}_{3s} , \mathcal{H}_{3p} 和 \mathcal{H}_{3q} 分别表示入射、融合和分裂磁子模所贡献的哈密顿量, 具体表达式为

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{3s} &= \int \omega_s \mathbf{v}_s \cdot \left\{ -\frac{1}{\sqrt{2}} \left[(i\mathbf{A}_{13} + \mathbf{A}_{23}) + \frac{D}{2J} (i\mathbf{e}_\phi + \mathbf{e}_\theta) \right] \left[3a_q a_r a_s^\dagger e^{i(-\mathbf{k}_s + \mathbf{k}_q) \cdot \mathbf{r}} + a_p^\dagger a_r a_s e^{i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_p) \cdot \mathbf{r}} \right] \psi_r + \text{H.c.} \right\} d\mathbf{r}, \\ \mathcal{H}_{3p} &= \int \omega_p \mathbf{v}_p \cdot \left\{ -\frac{3}{\sqrt{2}} \left[(i\mathbf{A}_{13} + \mathbf{A}_{23}) + \frac{D}{2J} (i\mathbf{e}_\phi + \mathbf{e}_\theta) \right] a_s a_r a_p^\dagger e^{i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_p) \cdot \mathbf{r}} \psi_r + \text{H.c.} \right\} d\mathbf{r}, \\ \mathcal{H}_{3q} &= \int \omega_q \mathbf{v}_q \cdot \left\{ -\frac{1}{\sqrt{2}} \left[(i\mathbf{A}_{13} + \mathbf{A}_{23}) + \frac{D}{2J} (i\mathbf{e}_\phi + \mathbf{e}_\theta) \right] a_s a_r^\dagger a_q^\dagger e^{i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_q) \cdot \mathbf{r}} \psi_r^* + \text{H.c.} \right\} d\mathbf{r}, \end{aligned} \quad (33)$$

其中, $\mathbf{A}_{\nu\nu'} = \mathcal{A}_{x,\nu\nu'} \mathbf{e}_x + \mathcal{A}_{y,\nu\nu'} \mathbf{e}_y$ 代表由局域坐标变换带来的规范场 ($\nu, \nu' = 1, 2, 3$); \mathbf{e}_θ 和 \mathbf{e}_ϕ 为极坐标系中的两个单位矢量; 而 ω_s , ω_p , ω_q 和 ω_r 是入射模、融合模、分裂模和斯格明子呼吸模的频率, 并且符合能量守恒 $\omega_{p(q)} = \omega_s \pm \omega_r$. 显而易见, 传统的规范场 \mathbf{A}_{12} 只出现在二阶哈密顿量中, 而规范场 \mathbf{A}_{13} 和 \mathbf{A}_{23} 则出现在磁子的非线性过程中. 对体系的总拉氏量运用欧拉-拉格朗日方法, 可以得到不同模式波包的运动方程:

$$a_i^\dagger a_i \frac{\hbar \omega_i^2}{eJ} \dot{\mathbf{v}}_i - a_i^\dagger a_i \omega_i \mathbf{v}_i \times \mathbf{B} - \mathbf{F}_i^{\text{nl}} = 0, \quad i = s, p, q, \quad (34)$$

其中 \mathbf{B} 与方程 (17) 中的虚拟磁场等价, 是导致传统磁子霍尔效应的虚拟磁场. 这里 \hbar 和 e 是约化普朗克常数和单位电荷, 而 \mathbf{F}_i^{nl} 代表来自于三磁子非线性过程的额外的有效洛伦兹力:

$$\mathbf{F}_i^{\text{nl}} = c_i \mathbf{v}_i \times \mathbf{B}', \quad i = s, p, q, \quad (35)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{B}' &= B'_z \mathbf{e}_z, \\ B'_z &= \frac{\hbar}{e} (\nabla \times \mathbf{A}_{23})_z + \frac{\hbar D}{2Je} (\nabla \times \mathbf{e}_\theta)_z \\ &= \frac{\hbar}{e} \left[\partial_y l_0 \cdot \partial_x \left(\mathbf{n} \times \frac{\mathbf{e}_z}{\sin \theta} \right) - \partial_x l_0 \cdot \partial_y \left(\mathbf{n} \times \frac{\mathbf{e}_z}{\sin \theta} \right) \right] \\ &\quad + \frac{\hbar D}{2Je} \left(\nabla \times \frac{\mathbf{e}_z + \cos \theta \mathbf{l}_0}{\sin \theta} \right)_z \end{aligned}$$

代表来自于三磁子过程贡献的额外虚拟磁场. 由于斯格明子的旋转对称性, 矢势 \mathbf{A}_{13} 的贡献为零. 这里

$$\begin{aligned} c_s &= (\omega_s/4) (g_p a_p^\dagger a_r a_s + 3g_q a_q^\dagger a_r^\dagger a_s + \text{H.c.}), \\ c_p &= (3\omega_p/4) (g_p a_s a_r a_p^\dagger + \text{H.c.}), \\ c_q &= (\omega_q/4) (g_q a_s a_r^\dagger a_q^\dagger + \text{H.c.}), \\ g_p &= \frac{1}{\sqrt{2SV}} \int e^{i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_p) \cdot \mathbf{r}} \psi_r d\mathbf{r}, \\ g_q &= \frac{1}{\sqrt{2SV}} \int e^{i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_q) \cdot \mathbf{r}} \psi_r^* d\mathbf{r}, \end{aligned}$$

代表了磁子的重叠积分, 其中 V 是系统的体积. 在整个磁子和斯格明子的散射过程中, 自旋波波包可以看作是在虚拟磁场 \mathbf{B} 和 \mathbf{B}' 下运动的点粒子. 进一步考虑 4 种磁子模式之间的关系:

$$\begin{aligned} a_p &= \frac{g}{\varepsilon + i\alpha(\omega_s + \omega_r)} a_s a_r, \\ a_q &= \frac{g}{\varepsilon - i\alpha(\omega_s - \omega_r)} a_s a_r^\dagger, \end{aligned} \quad (36)$$

可以将方程 (33) 转变为

$$m_{\text{sw},i} \dot{\mathbf{v}}_i - e \mathbf{v}_i \times \sigma (\mathbf{B} + \lambda_i \mathbf{B}') = 0, \quad i = s, p, q. \quad (37)$$

这里, $m_{\text{sw},i} = \hbar \omega_i / J$ 为反铁磁中自旋波波包的有效质量, $\sigma = \mp 1$ 表示左右旋磁子, e 为元电荷, $\lambda_s = n_r \left(\frac{gg_p}{4\varepsilon} + \frac{3gg_q}{4\varepsilon} + \text{H.c.} \right)$, $\lambda_p = \frac{3}{4} \left(\frac{\varepsilon g_p}{g} + \text{H.c.} \right)$, $\lambda_q = \frac{1}{4} \left(\frac{\varepsilon g_q}{g} + \text{H.c.} \right)$, 其中 $n_r = \langle a_r^\dagger a_r \rangle$ 为斯格明子呼吸模的粒子数, g 为三磁子耦合强度, $\varepsilon = \omega - \omega_r$. 图 9(b) 给出了虚拟磁场 B_z/B_0 和 B'_z/B_0 的空间分布, 其中 $B_0 = \hbar/a^2 e$, a 是体系的晶格参数. 可以看出它们的大小在同样的数量级. 通过数值求解方程 (35) 在 $\mathbf{B}' = 0$ 和 $\mathbf{B}' \neq 0$ 的情况, 可以得到对应的磁子运动轨迹 (图 9(b)). 显而易见, 三磁子过程诱导的虚拟磁场会诱导更大的磁子霍尔角. 进一步, 微磁学模拟也论证了上述的理论分析, 即相较于入射波模式, 差频和合频模式具有更为显著的磁子霍尔角, 如图 9(c) 所示. 值得注意的是, 随着非线性阶数 m 的增加, 磁子的霍尔角也几乎呈现线性增加的趋势, 如图 9(d) 所示. 这一过程可以类比为光经过大气层之后经历的多次折射现象.

在该体系中, 散射磁子流和入射磁子流之间存在非线性响应. 具体来说, 当磁子经过斯格明子时, 通过三磁子过程激发出斯格明子的呼吸模式. 随后入射磁子和斯格明子呼吸模耦合产生融合与

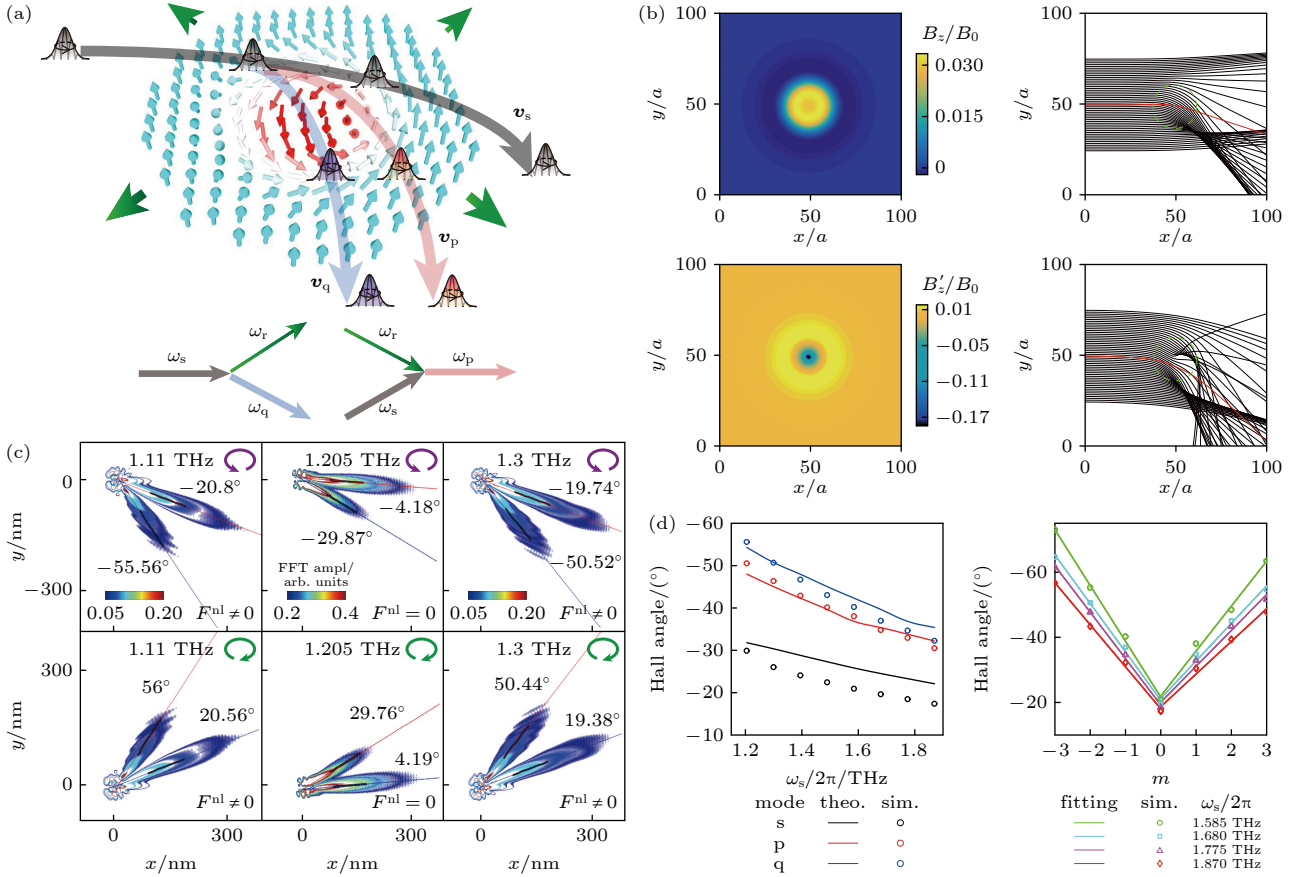


图 9 (a) 磁子非线性拓扑自旋霍尔效应示意图; (b) 虚拟磁场 \mathbf{B} 和 \mathbf{B}' 的空间分布以及对应磁子的运动轨迹 (分别在 \mathbf{B} 和 $\mathbf{B}+\mathbf{B}'$ 作用下); (c) 不同磁子模式的波函数的等值线分布; (d) 线性非线性霍尔角和入射磁子频率 ω_s 以及非线性阶数 m 的关系^[50]

Fig. 9. (a) Schematic illustration of the nonlinear topological magnon spin Hall effect in magnon-AFM skyrmion scattering; (b) spatial distribution of dimensionless field \mathbf{B} and \mathbf{B}' as well as the corresponding spin wave trajectories in real space; (c) isoline maps for different magnon modes; (d) the Hall angle as a function of the incident magnon frequency ω_s and mode index m ^[50].

分裂模. 假设呼吸模的磁子数正比于入射波的磁子数即 $a_r = ca_s$, 根据方程 (35), 相应的融合和分裂模式的磁子数可以表示为

$$n_p = \frac{(cg)^2}{\varepsilon^2 + \alpha^2(\omega_s + \omega_r)^2} n_s^2,$$

$$n_q = \frac{(cg)^2}{\varepsilon^2 + \alpha^2(\omega_s - \omega_r)^2} n_s^2, \quad (38)$$

其中 n_s , n_p 和 n_q 分别代表入射磁子、融合和分裂模式磁子的磁子数. 显而易见, 其散射磁子数和入射磁子数确实呈现非线性的关系. 这种全新的非线性霍尔效应起源于四点. 1) 玻色子粒子数不守恒的内禀性质: 单个磁子可以分裂为多个磁子, 也可以与其他磁子合并成一个磁子, 这在低能费米子体系中是没有对应. 2) 非线性三磁子散射形成的磁子频率梳: 频域上一串离散的具有相同频率间隔的自旋波谱线. 3) 隐藏的规范场: 分析表明剩下的两个规范场矩阵元出现在磁结构的非线性磁子输运中,

它们作用在磁子频率梳上, 产生巨大的磁子霍尔角. 4) 反铁磁磁子具有的两种自旋态: 分别对应右旋和左旋的磁矩进动模式.

6 总结与展望

本文回顾了磁子霍尔效应最新的研究进展. 以电子霍尔效应为起点, 介绍了由能带拓扑和实空间拓扑引起的磁子霍尔效应和磁子拓扑霍尔效应. 进一步地, 考虑磁子流对外界刺激的二阶响应, 可以得到由贝里曲率偶极子诱导的磁子非线性霍尔效应. 而这一非线性效应也可以推广到由实空间磁结构引起的拓扑霍尔效应当中, 导致磁子非线性拓扑自旋霍尔效应. 值得指出的是, 近年来, 磁子霍尔效应家族正在不断发展壮大. 除了本文主要介绍的霍尔效应外, 还包括磁子能斯特效应和磁子塞贝克效应等^[60,61]. 隐藏在磁子传输过程中更多新奇的物理效应值得进一步挖掘. 具体来说, 斯格明子晶体

中磁子的朗道能级通常具有非零的陈数, 继而对磁子的霍尔效应产生贡献. 但是目前大部分基于磁子朗道能级的研究都局限于线性区域, 不涉及非线性效应. 单个斯格明子的存在破坏了体系的空间平移对称性, 而大量斯格明子构成的斯格明子周期结构(斯格明子晶体)能恢复这种对称性. 在磁子体系中, 三磁子相互作用所主导的非线性哈密顿量会对磁子能带引入厄密和非厄密的自能修正. 其中厄密的自能项会对磁子能带进行重整化而非厄密自能则会影响磁子能带的展宽^[62]. 基于上述磁子非线性作用对倒空间拓扑可能带来的影响, 斯格明子晶体中隐藏在磁子-磁子相互作用中的规范场对磁子朗道能级的影响也值得进一步探索.

在真实材料中, 磁子-声子散射通常是不可避免的, 其可以通过两种不同的方式去影响磁子. 首先, 声子激发造成的晶格畸变可能会影响磁矩之间交换作用的大小和各向异性. 其次, 晶格振动可能会产生显著的磁子-声子耦合形成磁子极化子, 并在耦合体系的能谱中形成反交叉. 在磁性绝缘体中, 由温度梯度形成的热霍尔流可以由磁子或声子单独携带, 也可以由新的准粒子-磁子极化子携带^[63]. 具体来说, 当磁化方向上的镜像对称性被破坏时, 自旋-晶格相互作用将会引起热霍尔效应, 并且热霍尔电导率由磁子和声子之间的耦合强度决定. 但是这种磁体系中的非本征霍尔效应都集中在磁子的线性输运过程中. 非本征磁子非线性霍尔效应的理论也值得进一步的发展和探索.

迄今为止, 磁子霍尔效应的研究对象大多局限于传统的铁磁或反铁磁材料体系. 近年来, 转角范德瓦耳斯层因为其中的拓扑平带具有诸多新奇拓扑物态现象, 包括非平凡超导体和 Mott 绝缘态等^[64,65]而广受关注. 如在转角石墨烯中, 无序散射和贝里曲率偶极子均会诱导电子的非线性霍尔效应^[66,67]. 而转角体系也会形成特殊的磁子拓扑保护态, 继而对磁子的霍尔效应产生影响^[68]. 另外, 由于转角体系中的摩尔超晶格也存在斯格明子等拓扑磁结构, 其中的非线性磁子输运会受到倒空间和实空间拓扑的共同调制, 其背后的物理机制有待进一步探索和阐明. 此外, 也可以考虑偶极-偶极相互作用对非线性霍尔效应的影响, 探索线性霍尔磁子流和非线性磁子流对于翻转磁矩的作用, 利用非线性霍尔磁子流的巨大霍尔角设计相关的磁子学器件, 挖掘在不同对称性磁体中磁子的非线性霍尔效应, 探索静

磁自旋波的拓扑霍尔效应等. 总之, 对磁子霍尔效应的研究为理解相关的基本物理概念和现象提供了新的视角. 可以断定, 对凝聚态物理和拓扑物理等领域中不同物理机制诱导的霍尔效应的研究以及相关应用的开拓方兴未艾, 有着诱人的前景.

参考文献

- [1] Žutić L, Fabian J, Sarma S D 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323
- [2] Lenk B, Ulrichs H, Garbs F, Münzenberg M 2011 *Phys. Rep.* **507** 107
- [3] Chumak A V, Vasyuchka V I, Serga A A, Hillebrands B 2015 *Nat. Phys.* **11** 453
- [4] Yuan H Y, Cao Y, Kamra A, Duine R A, Yan P 2022 *Phys. Rep.* **965** 1
- [5] Hall E H 1879 *Am. J. Math.* **2** 287
- [6] Nagaosa N, Sinova J, Onoda S, MacDonald A H, Ong N P 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 1539
- [7] Jungwirth T, Niu Q, MacDonald A H 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 207208
- [8] Liang T, Lin J, Gibson Q, Kushwaha S, Liu M, Wang W, Xiong H, Sobota J A, Hashimoto M, Kirchmann P S, Shen Z, Cava R J, Ong N P 2018 *Nat. Phys.* **14** 451
- [9] Tian Y, Ye L, Jin X 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 087206
- [10] Hirsch J E 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1834
- [11] Sinova J, Culcer D, Niu Q, Sinitsyn N A, Jungwirth T, MacDonald A H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 126603
- [12] Kato Y K, Myers R C, Niu Q, Gossard A C, Awschalom D D 2004 *Science* **306** 1910
- [13] Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, Back C H, Jungwirth T 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 1213
- [14] Neubauer A, Pfleiderer C, Binz B, Rosch A, Ritz R, Niklowitz P G, Böni P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 186602
- [15] Yin G, Liu Y, Barlas Y, Zang J, Lake R K 2015 *Phys. Rev. B* **92** 024411
- [16] Göbel B, Mook A, Henk J, Mertig I 2017 *Phys. Rev. B* **96** 060406
- [17] Akosa C A, Tretiakov O A, Tataru G, Manchon A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 097204
- [18] Berry M V 1984 *Proc. R. Soc. A* **392** 45
- [19] Skyrme T H R 1962 *Nucl. Phys.* **31** 556
- [20] Mühlbauer S, Binz B, Jonietz F, Pfleiderer C, Rosch A, Neubauer A, Georgii R, Böni P 2009 *Science* **323** 915
- [21] Yu X Z, Onose Y, Kanazawa N, Park J H, Han J H, Matsui Y, Nagaosa N, Tokura Y 2010 *Nature* **465** 901
- [22] Heinze S, Bergmann K V, Menzel M, Brede J, Kubetzka A, Wiesendanger R, Bihlmayer G, Blügel S 2011 *Nat. Phys.* **7** 713
- [23] Sundaram G, Niu Q 1999 *Phys. Rev. B* **59** 14915
- [24] Matsumoto R, Murakami S 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 197202
- [25] Zhang L, Ren J, Wang J, Li B 2013 *Phys. Rev. B* **87** 144101
- [26] Dzyaloshinsky I 1958 *J. Phys. Chem. Solids* **4** 241
- [27] Moriya T 1960 *Phys. Rev.* **120** 91
- [28] Katsura H, Nagaosa N, Lee P A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 066403
- [29] Onose Y, Ideue T, Katsura H, Shiomi Y, Nagaosa N, Tokura Y 2010 *Science* **329** 297
- [30] Ideue T, Onose Y, Katsura H, Shiomi Y, Ishiwata S, Nagaosa N, Tokura Y 2012 *Phys. Rev. B* **85** 134411
- [31] Shen K 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 077201

- [32] Yu H, Xiao J, Schultheiss H 2021 *Phys. Rep.* **905** 1
- [33] Li Z X, Cao Y, Yan P 2021 *Phys. Rep.* **915** 1
- [34] Murakami S, Okamoto A 2017 *J. Phys. Soc. Jpn.* **86** 011010
- [35] Serga A A, Chumak A V, Hillebrands B 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** 264002
- [36] van Hoogdalem K A, Tserkovnyak Y, Loss D 2013 *Phys. Rev. B* **87** 024402
- [37] Holstein T, Primakoff H 1940 *Phys. Rev.* **58** 1098
- [38] Lan J, Xiao J 2021 *Phys. Rev. B* **103** 054428
- [39] Lan J, Yu W, Xiao J 2021 *Phys. Rev. B* **103** 214407
- [40] Thiele A A 1973 *Phys. Rev. Lett.* **30** 230
- [41] Iwasaki J, Mochizuki M, Nagaosa N 2013 *Nat. Commun.* **4** 1463
- [42] Daniels M W, Yu W, Cheng R, Xiao J, Xiao D 2019 *Phys. Rev. B* **99** 224433
- [43] Kim S K, Nakata K, Loss D, Tserkovnyak Y 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 057204
- [44] Jin Z, Meng C Y, Liu T T, Chen D Y, Fan Z, Zeng M, Lu X B, Gao X S, Qin M H, Liu J M 2021 *Phys. Rev. B* **104** 054419
- [45] Liu Y, Liu T T, Jin Z, Hou Z P, Chen D Y, Fan Z, Zeng M, Lu X B, Gao X S, Qin M H, Liu J M 2022 *Phys. Rev. B* **106** 064424
- [46] Iwasaki J, Beekman A J, Nagaosa N 2014 *Phys. Rev. B* **89** 064412
- [47] Schütte C, Garst M 2014 *Phys. Rev. B* **90** 094423
- [48] Berry M V, Mount K E 1972 *Rep. Progr. Phys.* **35** 315
- [49] Sodemann I, Fu L 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 216806
- [50] Ma Q, Xu S Y, Shen H, MacNeill D, Fatemi V, Chang T R, Valdivia A M M, Wu S, Du Z, Hsu C H, Fang S, Gibson Q D, Watanabe K, Taniguchi T, Cava R J, Kaxiras E, Lu H Z, Lin H, Fu L, Gedik N, Herrero P J 2019 *Nature* **565** 337
- [51] Kondo H, Akagi Y 2022 *Phys. Rev. Res.* **4** 013186
- [52] Schultheiss H, Janssens X, Kampen M V, Ciubotaru F, Hermsdoerfer S J, Obry B, Laraoui A, Serga A A, Lagae L, Slavin A N, Leven B, Hillebrands B 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 157202
- [53] Wang Z, Yuan H Y, Cao Y, Li Z, Duine R A, Yan P 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 037202
- [54] Wang Z, Yuan H Y, Cao Y, Yan P 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 107203
- [55] Schultheiss H, Vogt K, Hillebrands B 2012 *Phys. Rev. B* **86** 054414
- [56] Tymchenko M, Gomez-Diaz J S, Lee J, Nookala N, Belkin M A, Alù A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 207403
- [57] Li G, Chen S, Pholchai N, Reineke B, Wong P W H, Pun E Y B, Cheah K W, Zentgraf T, Zhang S 2015 *Nat. Mater.* **14** 607
- [58] Li Y, Yesharim O, Hurvitz I, Karnieli A, Fu S, Porat G, Arie A 2020 *Phys. Rev. A* **101** 033807
- [59] Jin Z, Yao X, Wang Z, Yuan H Y, Zeng Z, Wang W, Cao Y S, Yan P 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 166704
- [60] Zyuzin V A, Kovalev A A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 217203
- [61] Xiao J, Bauer G E W, Uchida K, Saitoh E, Maekawa S 2000 *Phys. Rev. B* **61** 214418
- [62] Mook A, Plekhanov K, Klinovaja J, Loss D 2021 *Phys. Rev. X* **11** 021061
- [63] Zhang X, Zhang Y, Okamoto S, Xiao D 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 167202
- [64] Cao Y, Fatemi V, Demir A, Fang S, Tomarken S, Luo J, Sanchez-Yamagishi J, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Ashoori R, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 80
- [65] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [66] Duan J, Jian Y, Gao Y, Peng H, Zhong J, Feng Q, Mao J, Yao Y 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 186801
- [67] Huang M, Wu Z, Zhang X, Feng X, Zhou Z, Wang S, Chen Y, Cheng C, Sun K, Meng Z Y, Wang N 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 066301
- [68] Wang H, Madami M, Chen J, et al. 2023 *Phys. Rev. X* **13** 021016

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics •
COVER ARTICLE

Magnon Hall effect^{*}

Jin Zhe-Jun-Yu Zeng Zhao-Zhuo Cao Yun-Shan Yan Peng[†]

(*State Key Laboratory of Electronic Thin Films and Integrated Devices, School of Physics, University of
Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China*)

(Received 29 September 2023; revised manuscript received 29 November 2023)

Abstract

Hall effect is an ancient but highly potential subfield in condensed matter physics, and its origin can be traced back hundreds of years. In 1879, Hall made a momentous discovery that when a current-carrying conductor is placed in a magnetic field, the Lorentz force pushes its electrons to one side of the conductor. This intriguing phenomenon was dubbed Hall effect. Since then, a series of novel Hall effects have been discovered, including anomalous Hall effect, quantum Hall effect, spin Hall effect, topological Hall effect, and planar Hall effect. Notably, Hall effects play an important role in realizing the information transport, since it can realize the mutual conversion of current in different directions. In bosonic systems such as magnons, a series of magnon Hall effects have been found, jointly driving the development of the magnon-based spintronics. In this perspective, we review the researches of the Hall effect in magnonic system in recent years, and briefly introduce its modern semi-classical theories, including virtual electromagnetic field theory and scattering theory. Furthermore, we introduce the different magnon Hall effects and clarify the physics behind them. Finally, the prospect of magnon Hall effect is discussed.

Keywords: magnon, Hall effect, nonlinear Hall effect, spintronics

PACS: 75.40.Gb, 75.78.-n, 75.78.Cd, 11.15.-q

DOI: [10.7498/aps.73.20231589](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231589)

^{*} Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2022YFA1402802) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12074057, 12374103).

[†] Corresponding author. E-mail: yan@uestc.edu.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理

磁序与拓扑的耦合: 从基础物理到拓扑磁电子学*

刘恩克[†]

(中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

(2023 年 10 月 26 日收到; 2023 年 12 月 23 日收到修改稿)

磁学与拓扑物理是两大较为成熟的学科, 二者的结合是新一代磁电子学的需求和基础. 磁性拓扑材料是磁序与拓扑物理耦合的重要产物, 为新兴的拓扑物理提供了材料载体和调控自由度. 磁性外尔半金属实现了时间反演对称破缺下的外尔费米子拓扑物态, 通过拓扑增强的贝利曲率产生了一系列新奇的磁/电/热/光效应; 而外尔电子与磁序的相互作用也使得拓扑电子物理有望成为磁电子学应用的新原理和驱动力. 当前, 新物态与新效应的发现是磁性拓扑材料第一阶段的主要任务和特征, 而动量空间拓扑电子与实空间磁序的相互作用已经开始进入人们的视野. 这两个阶段的深入发展, 将为拓扑磁电子学积累必要的物理基础和应用尝试. 本文着眼于磁性拓扑材料发展的两个阶段, 讲述磁性拓扑材料的提出和实现、均一磁序下的拓扑电子态及新奇物性、局域磁态与拓扑电子的相互作用 3 个方面, 阐述当前领域内的热点内容和发展趋势, 并对拓扑磁电子学的未来发展进行了思考和展望, 以助力未来拓扑自旋量子器件的快速发展.

关键词: 拓扑物理, 磁性外尔半金属, 拓扑磁电子学**PACS:** 71.55.Ak, 75.47.-m, 72.25.Ba, 72.80.-r**DOI:** 10.7498/aps.73.20231711

1 引言

面向人工智能与大数据的下一代电子功能器件是未来智能社会的重要基石. 这些电子器件涉及运算、存储、传感、传输等核心层面, 其高速度、高密度、高灵敏和高能效是未来智能社会大幅超越现阶段技术的迫切需求和重要特征. 而基于当前常规电路的电子学器件的速度和能效在面临高速处理和海量数据等需求中的制约已日趋严重. 过去十多年间, 以拓扑绝缘体、拓扑半金属为代表的拓扑电子物理的繁荣发展, 产生了拓扑表面态、狄拉克费米子、外尔费米子等一类拓扑电子态, 表现出高迁移率、低散射、高灵敏、手性保护、拓扑保护等一系列特性, 为未来功能器件的升级换代奠定了新的物

质基础. 相比于半导体物理近二十年的发展沉淀期, 拓扑物理也即将迎来类似的历史节点. 目前, 如何获得有效的应用出口是拓扑物理正面临的重大问题. 在磁学领域, 磁学与自旋电子学经历了长期的发展, 获得了丰富的成果和认知, 正朝着高密度、低能耗、高灵敏的目标前进, 对高性能应用的需求迫切而明确. 作为实空间中的拓扑磁态, 磁斯格明子也经历了十年的并行发展, 有望应用于新一代磁存储或逻辑运算.

这些学科的发展为拓扑物理与磁电子学的结合积累了成熟的基础. 目前, 磁序与拓扑物理的结合产生了两类有代表性的磁性拓扑材料, 即磁性外尔半金属和磁性拓扑绝缘体. 如果这些材料能够得到应用, 在拓扑磁电子器件及电路中, 常规性质的电子(载流子)将被拓扑电子所替代, 信息存储或

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2022YFA1403800, 2019YFA0704900)、国家自然科学基金基础科学中心(批准号: 52088101)、国家自然科学基金(批准号: 11974394)、中科院战略性先导科技专项 B 类(批准号: XDB33000000)和中国科学院依托大科学装置开展建制化科研(SECUF)项目资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: ekliu@iphy.ac.cn

逻辑运算的传输效率将得到大幅提升,而成本和能耗也将得到大幅降低.

2 磁性拓扑材料的提出与实现

外尔半金属中的外尔费米子是一类重要的拓扑态,它由德国物理学家 Hermann Weyl 于 1929 年提出,长期以来未得到证实.直到 2011 年, Wan 等^[1]和 Xu 等^[2]在磁性材料中预测了一种遵循外尔方程的低能激发准粒子电子态.这种电子表现出零质量、高迁移率、具有手性、受能带的拓扑稳定性保护等新奇特征,在未来先进量子功能应用方面表现出潜在优势.外尔费米子的产生需要打破空间反演对称或者时间反演对称.在凝聚态物理中,前者对应非中心对称体系,而后者则对应自旋极化的磁性体系.在磁性材料中,存在着更多的相互作用,可以衍生出更丰富的拓扑相关物理行为.而磁学与自旋电子学长期以来的成熟积累和性能需求可与拓扑物理产生良好的对接.与此同时,磁性的引入也为拓扑物态的外磁场调控提供了一个有效而便利的手段.

2015 年,外尔费米子在中心对称破缺的非磁性半金属 TaAs 中被预测并证实^[3-5].这是自 80 多年前被提出后,首次被确认的外尔费米子.在拓扑材料的发展历程中,从拓扑绝缘体到拓扑半金属,非磁性拓扑材料的实现得到了理论的准确预测和实验的完美确证,而磁性外尔材料的发现则遇到了前所未有的困难.磁性材料中的绝大部分磁态都属于低能标物态,会形成复杂多样的磁结构和磁畴结构,使理论预测和实验表征面临很大挑战.因此,在一个体系中同时获得单一、简洁、可控的磁结构、畴结构和电子结构,是磁性外尔半金属实现的关键.

2018 年,磁性外尔半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 被提出并被实验证实^[6-9].它是一类具有低载流子浓度半金属特征的铁磁材料,构成 Kagome 晶格的 Co 原子同时承载了体系的磁序和外尔电子.在这类材料的体内,载流子由外尔费米子承担,而材料的表面则因表面态的存在而导电.这是第一个在实验上被证实的磁性外尔半金属,具有最为完备的实验证据和典型的拓扑特征.这也是继 2013 年实验上实现量子反常霍尔效应 (QAHE)^[10]之后,在块体材料中首次实现的磁序和拓扑物理的耦合 (图 1).同时,室温铁磁体 $\text{Co}_2\text{MnGa}/\text{Al}$ 、室温反铁磁体

$\text{Mn}_3\text{Sn}/\text{Ge}$ 等也被陆续发现为磁性外尔材料^[11,12].2019 年,发现本征磁性拓扑绝缘体 MnBi_2Te_4 , 其在拓扑绝缘体中实现了本征长程磁序^[13,14].研究者们在其单层和少层样品中陆续发现了 QAHE^[15-18],并提出了轴子绝缘体的概念^[19].

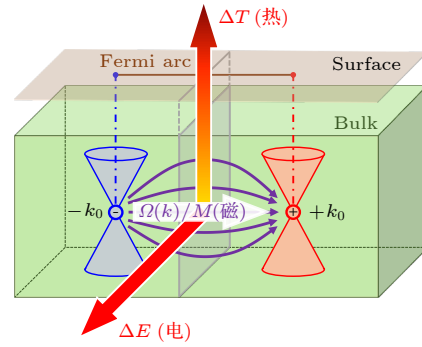


图 1 磁性拓扑材料及其物性自由度
Fig. 1. Magnetic topological material and the degrees of freedom of physical properties.

磁性拓扑材料的发现实现了本征磁序与拓扑物理在块体材料中的耦合,使得磁性拓扑材料成为多自由度的天然本征耦合体.这是磁学与拓扑物理学两大学科的融合,将带来丰富多样的新物态新效应,并将产生磁性拓扑物理与材料这一新方向.

3 均一磁序下的拓扑电子态及新奇物性

首个磁性外尔半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 的发现,开启了磁性拓扑物理发展的第一个阶段,它为诸多期待中的实验研究提供了优异的材料基础.在自旋轨道耦合作用下,由能带翻转形成的线性交叉的电子结构是外尔半金属的重要特征之一.这里既能产生非平庸的外尔电子,也能产生极强的贝利曲率效应,是许多优异物性或全新效应的起源 (图 2).

除了体态外尔费米子和拓扑表面态费米弧,研究者们还在磁性拓扑材料中发现了更新的物态.如, $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中因硫原子缺位而引发的自旋-轨道极化子,未来有望作为功能基元而进行量子拓扑态的原子级定向构建和有序编织^[20],而某些特定的电子结构也为新材料和新器件的设计提供了理想的物质基础^[21].

特殊的能带结构导致了磁性拓扑半金属在电子输运上表现出优异的性能.在纵向输运上,低有效质量、高迁移率的载流子为电子的高速度、低能

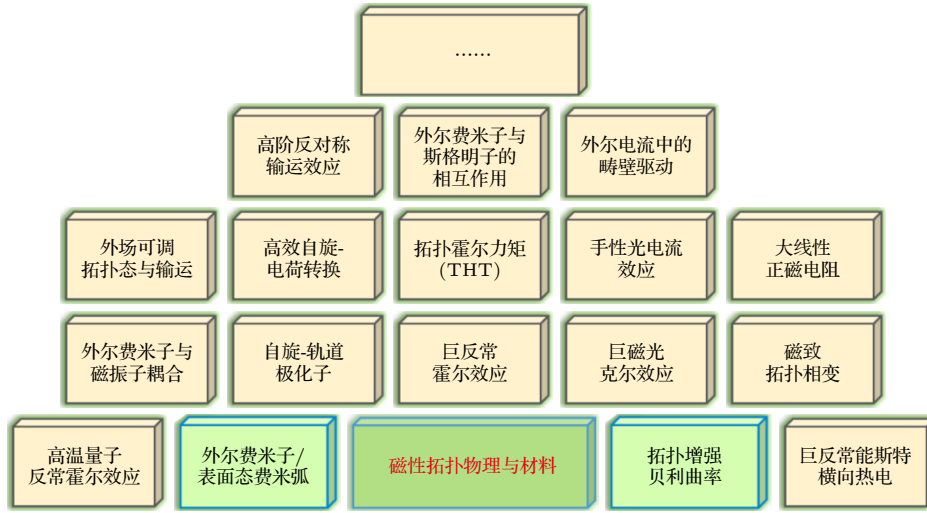


图 2 基于磁性拓扑物理与材料的丰富物性

Fig. 2. Rich effects based on the magnetic topological semimetal.

耗传输奠定了基础. 在横向输运上, 拓扑增强的贝利曲率带来了高的反常霍尔电导和大反常霍尔角^[6], 为反常霍尔电子器件和磁场传感器提供了候选. 同时, 强贝利曲率驱动的反常能斯特效应也比常规的磁性材料高出 1—2 个数量级^[22], 产生了拓扑热电新方向. 巨磁光克尔效应^[23] 也与磁性外尔的强贝利曲率密切相关. 由于拓扑能带主导了费米面, 掺杂的异类原子还可以对磁性拓扑体系拓扑能带的精细结构和贝利曲率进行调制, 从而引起内禀反常霍尔电导的显著提升^[24]. 拓扑增强的贝利曲率使得可以在大内禀反常霍尔效应的基础上, 大幅引入外禀贡献, 获得了高达 33% 的巨反常霍尔角^[25]. 这些都得益于磁性拓扑材料的大内禀反常霍尔电导的特点. 磁性拓扑材料中强贝利曲率的存在, 还产生了一系列非常规的输运行为^[26]. 在磁性外尔半金属 CoS_2 中, 费米能级处的贝利曲率可以导致纵向磁电阻随磁场线性增大, 产生线性正磁电阻^[27]. 由于磁性拓扑体系中外尔锥的倾斜, 还会出现奇对称的霍尔响应和纵向磁电阻行为, 呈现出磁场的一次方关系^[28,29]. 这是因为适用于磁性金属的半经典方程中一直被忽略的项, 在拓扑增强的贝利曲率作用下开始凸显出来, 产生了传统输运中罕见的新奇物理行为. 迹象表明, 更多的非常规输运行为将会被人们发现.

在磁性外尔半金属中, 磁与拓扑的相互作用还可以表现在动态的磁结构演化中. 磁性外尔半金属 EuB_6 磁矩转动过程中可能产生自旋倾斜效应, 对拓扑电子态和宏观电输运行为产生了同步调制^[30].

而在磁性外尔半金属 Co_2MnAl 中, 则出现了磁场引导磁矩转动导致外尔点出现和运动的现象^[31]. 这些都证实了在拓扑态与磁性共存的体系中, 磁态的演化对拓扑态可产生显著的调制. 室温反铁磁外尔材料在电控磁方面也取得了重要进展. 在 Mn_3Sn 作为核心层的异质结薄膜中, 利用其自身产生的自旋极化电流实现了电流驱动的磁畴翻转, 获得了反铁磁拓扑态的零磁场、全电学操控^[32-34]. 同时, 在 Mn_3Sn 全反铁磁隧道结中也实现了显著的室温隧穿磁电阻效应^[35], 而进一步的研究也在该体系中实现了斯格明子拓扑磁态^[36]. 这些研究为拓扑自旋电子学产生了重要成果.

磁性二维材料与拓扑物理的结合有望是磁电子学的一个新方向. 一个典型体系就是范德瓦耳斯磁性材料 Fe_3GeTe_2 , 它表现出了拓扑增强的输运行为^[37]、门电压可调的居里温度^[38] 和电流驱动的磁畴翻转^[39]; 而同家族的磁性二维材料 Fe_3GaTe_2 则展现出了室温本征铁磁性^[40], 在其异质结中发现了高达 85% 的室温隧穿磁电阻^[41], 有望获得拓扑相关的优异自旋电子学性能.

本征磁性拓扑绝缘体也获得了系统研究. 在 MnBi_2Te_4 家族中, 研究者们预测发现了多种拓扑物态, 包括量子反常霍尔态和轴子绝缘体^[42]. 伴随着 15 K 的较高居里温度, 奇数层的 Mn-Bi-Te 表现出铁磁序, 可以在几十开尔文的温区内观察到 AHE^[17]. 而在二维极限下, 磁性外尔半金属也有望打开外尔能带形成能隙出现高温 QAHE. 目前, 理论计算支持这一猜想^[43], 而扫描隧道谱研究也发现

了 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 解理晶面的台阶处存在手性边缘态形成的驻波信息, 这对应着二维极限下的 QAHE 态^[44].

磁性拓扑材料自实现以来, 经历了第一阶段的发展. 这一阶段的主要特征是在静态或准静态的均一磁序环境中, 由时间反演对称破缺而产生的丰富拓扑电子态和优异物理性能. 而第二阶段的一些特征, 如拓扑电子对局域磁态的影响, 已经开始浮现出来.

4 局域磁态与拓扑电子的相互作用

在自旋电子学材料中, 磁畴壁、斯格明子以及空间变化中的磁结构等局域磁态对载流子行为可以产生重要的影响, 而拓扑态电子对特定磁态的状态也会产生显著调制. 这进入了磁性拓扑物理发展的第二个阶段.

基于磁性外尔半金属的实现, 研究者们很快从理论上提出了诸多输运物理新效应. 研究发现, 基于外尔方程, 将局域磁态的磁矩写入哈密顿量后, 在运动的磁畴壁上会产生一个等效的电磁场, 泵浦出一个无损耗的电流, 而等效电磁场的方向与外尔电子的手性相关 (图 3)^[45]. 在磁性外尔半金属中, 相邻磁畴中外尔点的手性相反, 会导致费米面上的传导电子因手性失配而被显著散射, 可在畴壁区形成高达 100% 的畴壁磁电阻^[46]. 目前该效应尚未得到实验的证实.

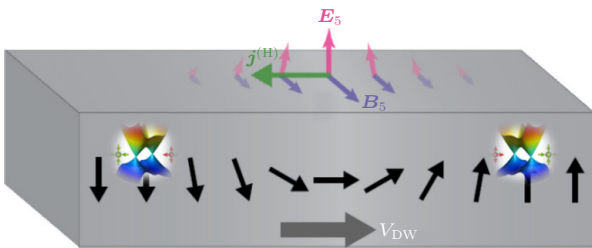


图 3 磁性外尔体系中磁畴壁上产生的轴向电磁场 (E_5 , B_5) 及诱发的霍尔电流 $j^{(H)}$ ^[45]
Fig. 3. Schematic showing the axial electromagnetic fields (E_5 , B_5) and the Weyl-induced Hall current $j^{(H)}$, along with a Néel domain wall moving with velocity V_{DW} ^[45].

已有研究指出外尔电子可以对体系的螺旋磁结构产生调制^[47]. 更重要的是, 拓扑电子还可以对磁畴壁产生作用. 研究人员利用外尔电子的哈密顿量及半经典的输运方程, 获得了外尔体系中传导电子对局域磁矩的自旋力矩作用, 可以促进磁矩和磁

畴的高效翻转. 计算发现其磁畴驱动效率相比于传统金属材料有望高出一个数量级^[48,49].

2022 年, Wang 等^[50] 利用霍尔测量发现了 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 器件中的电流驱动磁畴翻转行为. 在磁场辅助下, 驱动磁畴运动的临界电流密度可低至 $1.5 \times 10^5 \text{ A} \cdot \text{cm}^{-2}$, 自旋力矩效率高达 2.4—5.6 kOe/MA·cm², 这些性能指标均为目前最优, 在自旋电子学应用上表现出了巨大的潜力. 但因为 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 同时具备高磁各向异性、低饱和磁矩及高自旋极化率等特点, 采用经典模型即可解释磁畴翻转的优异性能, 尚不能证明外尔物理在其中的直接作用. 因此, 外尔物理驱动磁畴翻转的预期还需要进一步证实. 基于磁性外尔半金属, Araki 和 Ieda^[51] 还提出了拓扑霍尔力矩这一新效应. 该效应是外尔电子的有效磁场作用在畴壁中磁矩上的力矩, 它来源于动量空间的贝利曲率与实空间的局域磁态的相互作用, 是一种内禀属性, 对无序和热涨落不敏感. 相对于传统的自旋转移力矩和自旋轨道力矩, 该力矩有望表现出更高的驱动效率, 有望应用于高能效的新一代拓扑自旋电子学. 该效应自提出后, 已经得到了实验的初步验证^[52].

拓扑电子与局域磁态的相互作用是拓扑自旋电子学的核心内容, 它也使拓扑电子的物理行为和图像从动量空间进入了实空间范畴, 这将直接对自旋电子学产生重要影响.

5 拓扑磁电子学的兴起和思考

磁性拓扑材料及其应用是拓扑物理的一个重要出口, 也是磁学与磁性材料的一个前沿拓展, 目前已经在第一阶段产生了丰富的结果. 磁性拓扑物理最重要的发展方向之一是拓扑磁电子学 (图 4). 拓扑物理的到来为自旋电子材料的物性提升提供了新的原理, 为磁电子学在发展中积累的诸多基础问题的解决带来了原理性可能, 使得人们可以从底层物理层面思考其制约因素和突破口, 并形成新的物理机制和实验方案, 推动磁电子学的长足发展和高性能应用.

基于磁性拓扑材料, 动量空间中的拓扑电子态 (狄拉克费米子、外尔费米子、拓扑表面态、节线态、高阶拓扑态等) 与实空间非平庸磁态 (磁畴壁、手性磁结构、磁斯格明子等, 含均一磁序) 发生结合和相互作用, 产生演生的量子现象, 以及拓扑

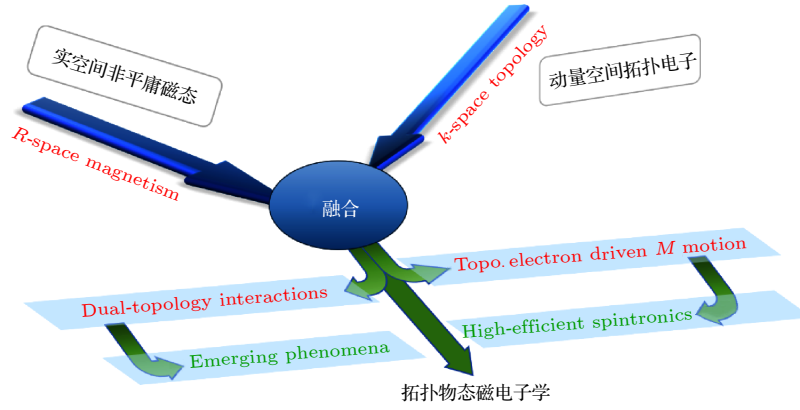


图 4 动量空间拓扑电子态与实空间非平庸磁态的耦合与作用

Fig. 4. Coupling and interaction between momentum-space topological electronic states and real-space nontrivial magnetic states.

电子驱动下的高能效磁电效应. 这其中包含三大类重要的形式: 均一磁序与拓扑电子的耦合和效应、拓扑电子与磁畴壁的耦合和驱动、外尔电子与斯格明子的耦合和驱动. 这三种形式将是未来重要的研究内容和方向.

1) 第一种作用. 作为磁性拓扑材料第一阶段的主要研究对象, 已产生了大量的新物态和新效应, 使得自旋电子材料原有物性得到了跨数量级的提升, 也产生了全新的物理效应. 基于第一种作用, 在块体材料、异质结及单层膜中开展研究, 探索磁电、光电、热电、磁光等磁电子学及其他功能应用, 将成为未来的研究热点. 同时, 寻找具有综合优异性能的新材料将是一个长期的重要任务.

2) 第二种作用. 在磁性外尔输运新理论的推动下, 有望最终实现超低临界电流密度、极高磁矩翻转效率, 甚至在单一材料器件中实现功能应用. 这将是未来拓扑电子在磁电子学领域中极其重要的作用形式.

3) 第三种作用. 外尔电流将与斯格明子产生作用, 并驱动其运动, 形成动量空间和实空间中双拓扑耦合新形态, 为拓扑自旋电子学的发展提供新的原理. 这需要研究双拓扑耦合的可能性、机制与形式, 以及外尔电子在斯格明子非共线局域磁态中的能量色散与拓扑稳定性等科学问题.

第二种作用和第三种作用将成为磁性拓扑物理在第二发展阶段的重要内容.

在此过程中, 磁学中一些新兴方向与拓扑物理的融合也将会继续发展. 磁性二维材料与拓扑物理的耦合有望出现更多的体系和效应, 成为拓扑磁电子学的一个重要组成. 交错磁性拓扑物理也有望

产生结合, 将与已有的反铁磁拓扑材料一起, 在反铁磁自旋电子学中发挥重要作用. 而基于高居里温度磁性拓扑材料的高温 QAHE 的实现, 则是基础物理领域和拓扑量子器件领域的共同期待.

借助拓扑物理的非传统电子行为, 磁性拓扑物理有望成为支撑未来磁电子学的重要基础和新一代拓扑物态磁电子学的鲜明特征. 未来, 研究者们需要进一步理解磁序与拓扑物理的作用机制和形式, 挖掘新的磁性拓扑物态与量子衍生效应, 突破现有磁电子学材料的性能极限, 探索磁电光热响应卓越的磁性拓扑材料和器件在信息存储、逻辑运算、信号传感、功率传输等方面的应用, 推动未来智能技术与智能社会的发展.

参考文献

- [1] Wan X, Turner A M, Vishwanath A, Savrasov S Y 2011 *Phys. Rev. B* **83** 205101
- [2] Xu G, Weng H, Wang Z, Dai X, Fang Z 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 186806
- [3] Weng H M, Fang C, Fang Z, Bernevig B A, Dai X 2015 *Phys. Rev. X* **5** 011029
- [4] Lü B Q, Xu N, Weng H M, Ma J Z, Richard P, Huang X C, Zhao L X, Chen G F, Matt C E, Bisti F, Strocov V N, Mesot J, Fang Z, Dai X, Qian T, Shi M, Ding H 2015 *Nat. Phys.* **11** 724
- [5] Xu S Y, Belopolski I, Alidoust N, Neupane M, Bian G, Zhang C L, Sankar R, Chang G Q, Yuan Z J, Lee C C, Huang S M, Zheng H, Ma J, Sanchez D S, Wang B K, Bansil A, Chou F C, Shibaev P P, Lin H, Jia S, Hasan M Z 2015 *Science* **349** 613
- [6] Liu E K, Sun Y, Kumar N, Muechler L, Sun A L, Jiao L, Yang S Y, Liu D F, Liang A J, Xu Q N, Kroder J, Süß V, Borrmann H, Shekhar C, Wang Z S, Xi C Y, Wang W H, Schnelle W, Wirth S, Chen Y L, Goennenwein S T B, Felser C 2018 *Nat. Phys.* **14** 1125
- [7] Wang Q, Xu Y F, Lou R, Liu Z H, Li M, Huang Y B, Shen D W, Weng H M, Wang S C, Lei H C 2018 *Nat. Commun.* **9** 3681

- [8] Liu D F, Liang A J, Liu E K, Xu Q N, Li Y W, Chen C, Pei D, Shi W J, Mo S K, Dudin P, Kim T, Cacho C, Li G, Sun Y, Yang L X, Liu Z K, Parkin S S P, Felser C, Chen Y L 2019 *Science* **365** 1282
- [9] Morali N, Batabyal R, Nag P K, Liu E, Xu Q, Sun Y, Yan B, Felser C, Avraham N, Beidenkopf H 2019 *Science* **365** 1286
- [10] Chang C Z, Zhang J S, Feng X, Shen J, Zhang Z C, Guo M H, Li K, Ou Y B, Wei P, Wang L L, Ji Z Q, Feng Y, Ji S H, Chen X, Jia J F, Dai X, Fang Z, Zhang S C, He K, Wang Y Y, Lu L, Ma X C, Xue Q K 2013 *Science* **340** 167
- [11] Sakai A, Mizuta Y P, Nugroho A A, Sihombing R, Koretsune T, Suzuki M T, Takemori N, Ishii R, Nishio-Hamane D, Arita R, Goswami P, Nakatsuji S 2018 *Nat. Phys.* **14** 1119
- [12] Nakatsuji S, Kiyohara N, Higo T 2015 *Nature* **527** 212
- [13] Gong Y, Guo J W, Li J H, et al. 2019 *Chinese Phys. Lett.* **36** 076801
- [14] Otrokov M M, Klimovskikh I I, Bentmann H, et al. 2019 *Nature* **576** 416
- [15] Li J H, Li Y, Du S Q, Wang Z, Gu B L, Zhang S C, He K, Duan W H, Xu Y 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw5685
- [16] Chen B, Fei F C, Zhang D Q, Zhang B, Liu W L, Zhang S, Wang P D, Wei B Y, Zhang Y, Zuo Z W, Guo J W, Liu Q Q, Wang Z L, Wu X C, Zong J Y, Xie X D, Chen W, Sun Z, Wang S C, Zhang Y, Zhang M H, Wang X F, Song F Q, Zhang H J, Shen D W, Wang B G 2019 *Nat. Commun.* **10** 4469
- [17] Deng Y J, Yu Y J, Shi M Z, Guo Z X, Xu Z H, Wang J, Chen X H, Zhang Y B 2020 *Science* **367** 895
- [18] Sun H Y, Xia B W, Chen Z J, Zhang Y J, Liu P F, Yao Q S, Tang H, Zhao Y J, Xu H, Liu Q H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 096401
- [19] Liu C, Wang Y C, Li H, Wu Y, Li Y X, Li J H, He K, Xu Y, Zhang J S, Wang Y Y 2020 *Nat. Mater.* **19** 522
- [20] Xing Y Q, Shen J L, Chen H, Huang L, Gao Y X, Zheng Q, Zhang Y Y, Li G, Hu B, Qian G J, Cao L, Zhang X L, Fan P, Ma R S, Wang Q, Yin Q W, Lei H C, Ji W, Du S X, Yang H T, Wang W H, Shen C M, Lin X, Liu E K, Shen B G, Wang Z Q, Gao H J 2020 *Nat. Commun.* **11** 5613
- [21] Huang L, Kong X H, Zheng Q, Xing Y Q, Chen H, Li Y, Hu Z X, Zhu S Y, Qiao J S, Zhang Y Y, Cheng H X, Cheng Z H, Qiu X G, Liu E K, Lei H C, Lin X, Wang Z Q, Yang H T, Ji W, Gao H J 2023 *Nat. Commun.* **14** 5230
- [22] Guin S N, Vir P, Zhang Y, Kumar N, Watzman S J, Fu C, Liu E, Manna K, Schnelle W, Gooth J, Shekhar C, Sun Y, Felser C 2019 *Adv. Mater.* **31** 1806622
- [23] Okamura Y, Minami S, Kato Y, Fujishiro Y, Kaneko Y, Ikeda J, Muramoto J, Kaneko R, Ueda K, Kocsis V, Kanazawa N, Taguchi Y, Koretsune T, Fujiwara K, Tsukazaki A, Arita R, Tokura Y, Takahashi Y 2020 *Nat. Commun.* **11** 4619
- [24] Shen J L, Yao Q S, Zeng Q Q, Sun H Y, Xi X K, Wu G H, Wang W H, Shen B G, Liu Q H, Liu E K 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 086602
- [25] Shen J L, Zeng Q Q, Zhang S, Sun H Y, Yao Q S, Xi X K, Wang W H, Wu G H, Shen B G, Liu Q H, Liu E K 2020 *Adv. Funct. Mater.* **30** 2000830
- [26] Yang J Y, Wang B B, Liu E K 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 177103 (in Chinese) [杨金颖, 王彬彬, 刘恩克 2023 物理学报 **72** 177103]
- [27] Zhang S, Wang Y, Zeng Q Q, Shen J L, Zheng X, Yang J, Wang Z, Xi C, Wang B B, Zhou M, Huang R, Wei H, Yao Y, Wang S, Parkin S S P, Felser C, Liu E K, Shen B G 2022 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **119** e2208505119
- [28] Zeng Q Q, Yi C, Shen J L, Wang B B, Wei H, Shi Y, Liu E K 2022 *Appl. Phys. Lett.* **121** 162405
- [29] Jiang B Y, Wang L, Bi R, Fan J W, Zhao J L, Yu D P, Li Z L, Wu X S 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 236601
- [30] Shen J L, Gao J C, Yi C J, Li M, Zhang S, Yang J Y, Wang B B, Zhou M, Huang R J, Wei H X, Yang H T, Shi Y G, Xu X H, Gao H J, Shen B G, Li G, Wang Z J, Liu E K 2023 *The Innovation* **4** 100399
- [31] Li P G, Koo J, Ning W, Li J G, Miao L X, Min L J, Zhu Y L, Wang Y, Alem N, Liu C X, Mao Z Q, Yan B H 2020 *Nat. Commun.* **11** 3476
- [32] Tsai H, Higo T, Kondou K, Nomoto T, Sakai A, Kobayashi A, Nakano T, Yakushiji K, Arita R, Miwa S, Otani Y, Nakatsuji S 2020 *Nature* **580** 608
- [33] Xie H, Chen X, Zhang Q, Mu Z Q, Zhang X H, Yan B H, Wu Y H 2022 *Nat. Commun.* **13** 5744
- [34] Deng Y C, Liu X H, Chen Y Y, Du Z Z, Jiang N, Shen C, Zhang E Z, Zheng H Z, Lu H Z, Wang K Y 2023 *Natl. Sci. Rev.* **10** nwac154
- [35] Chen X Z, Higo T, Tanaka K, Nomoto T, Tsai H S, Idzuchi H, Shiga M, Sakamoto S, Ando R, Kosaki H, Matsuo T, Nishio-Hamane D, Arita R, Miwa S, Nakatsuji S 2023 *Nature* **613** 490
- [36] Liu X H, Feng Q, Zhang D, Deng Y C, Dong S, Zhang E Z, Li W, Lu Q, Chang K, Wang K Y 2023 *Adv. Mater.* **35** 2211634
- [37] Kim K, Seo J, Lee E, Ko K T, Kim B S, Jang B G, Ok J M, Lee J, Jo Y J, Kang W, Shim J H, Kim C, Yeom H W, Min B I, Yang B J, Kim J S 2018 *Nat. Mater.* **17** 794
- [38] Deng Y J, Yu Y J, Song Y C, Zhang J Z, Wang N Z, Sun Z Y, Yi Y F, Wu Y Z, Wu S W, Zhu J Y, Wang J, Chen X H, Zhang Y B 2018 *Nature* **563** 94
- [39] Wang X, Tang J, Xia X X, et al. 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw8904
- [40] Zhang G J, Guo F, Wu H, Wen X K, Yang L, Jin W, Zhang W F, Chang H X 2022 *Nat. Commun.* **13** 5067
- [41] Zhu W K, Xie S H, Lin H L, Zhang G J, Wu H, Hu T G, Wang Z A, Zhang X M, Xu J H, Wang Y J, Zheng Y H, Yan F G, Zhang J, Zhao L X, Patané A, Zhang J, Chang H X, Wang K Y 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 128501
- [42] Wang P Y, Ge J, Li J H, Liu Y Z, Xu Y, Wang J 2021 *The Innovation* **2** 100098
- [43] Muechler L, Liu E K, Gayles J, Xu Q N, Felser C, Sun Y 2020 *Phys. Rev. B* **101** 115106
- [44] Howard S, Jiao L, Wang Z Y, Morali N, Batabyal R, Kumar-Nag P, Avraham N, Beidenkopf H, Vir P, Liu E K, Shekhar C, Felser C, Hughes T, Madhavan V 2021 *Nat. Commun.* **12** 4269
- [45] Araki Y, Nomura K 2018 *Phys. Rev. Appl.* **10** 014007
- [46] Kobayashi K, Ominato Y, Nomura K 2018 *J Phys Soc Jpn* **87** 073707
- [47] Gaudet J, Yang H Y, Baidya S, Lu B Z, Xu G Y, Zhao Y, Rodriguez-Rivera J A, Hoffmann C M, Graf D E, Torchinsky D H, Nikolic P, Vanderbilt D, Tafti F, Broholm C L 2021 *Nat. Mater.* **20** 1650
- [48] Kurebayashi D, Nomura K 2019 *Sci. Rep.* **9** 5365
- [49] Kurebayashi D, Araki Y, Nomura K 2021 *J Phys Soc Jpn* **90** 084702
- [50] Wang Q Y, Zeng Y, Yuan K, Zeng Q Q, Gu P F, Xu X L, Wang H W, Han Z, Nomura K, Wang W H, Liu E K, Hou Y L, Ye Y 2022 *Nat. Electron.* **6** 119
- [51] Araki Y, Ieda J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 277205
- [52] Yamanouchi M, Araki Y, Sakai T, Uemura T, Ohata H, Ieda J 2022 *Sci. Adv.* **8** eabl6192

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Coupling between magnetism and topology: From fundamental physics to topological magneto-electronics*

Liu En-Ke[†]*(State Key Laboratory for Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Science, Beijing 100190, China)*

(Received 26 October 2023; revised manuscript received 23 December 2023)

Abstract

Magnetism and topological physics are both well-developed disciplines, and their combination is a demand and foundation for the development of next-generation magneto-electronics. Magnetic topological materials are important products of coupling between magnetic order and topological physics, providing material carrier and regulatory degrees of freedom for novel topological physics. Magnetic Weyl semimetals realize Weyl fermion states under time-reversal symmetry breaking, leading to a host of novel magnetic, electric, thermal, and optical effects through enhanced Berry curvature originating from topology. The interaction between Weyl electrons and magnetic order also establishes topological electronic physics as a new principle and driving force for magneto-electronic applications. At present, the primary task and characteristic of the first development stage of magnetic topological materials is to discover new states and effects, while the understanding of interaction between topologically nontrivial electrons in momentum space and magnetic order in real space has received attention of researchers. The comprehensive advances of these two stages will accumulate the physical foundation and application explorations for topological magneto-electronics. This paper focuses on the two development stages of magnetic topological materials and discusses three aspects: (i) proposal and realization of strategy for magnetic topological materials; (ii) exploration of electronic states with nontrivial topology under uniform magnetic order and their associated novel physical properties; (iii) the interaction between localized magnetic states and topological electrons. It provides an in-depth discussion on current hot topics and development trends in the field, and future development in topological magneto-electronics, thereby assisting in the future development of topological spin quantum devices.

Keywords: topological physics, magnetic Weyl semimetals, topological magneto-electronics**PACS:** 71.55.Ak, 75.47.-m, 72.25.Ba, 72.80.-r**DOI:** [10.7498/aps.73.20231711](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231711)

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2022YFA1403800, 2019YFA0704900), the Fundamental Science Center of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52088101), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11974394), the Strategic Priority Research Program (B) of the Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. XDB33000000), and the Synergetic Extreme Condition User Facility (SECUF) of the Chinese Academy of Sciences, China.

[†] Corresponding author. E-mail: ekliu@iphy.ac.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理

基于二维磁性材料的自旋轨道力矩研究进展*

熊宜浓¹⁾²⁾ 吴闯文¹⁾²⁾ 任传童¹⁾²⁾ 孟德全¹⁾²⁾ 陈是位^{1)2)†} 梁世恒^{1)2)‡}

1) (湖北大学物理与电子科学学院, 武汉 430062)

2) (智能感知系统与安全教育部重点实验室, 武汉 430062)

(2023年7月31日收到; 2023年9月15日收到修改稿)

信息技术的高速发展对信息处理与存储器件的性能提出了更高的要求. 同时, 随着器件尺寸不断减小, 传统基于电子电荷属性的半导体器件面临热耗散和量子尺寸效应的难题与挑战, 半导体技术也由此进入后摩尔时代. 区别于传统基于电荷的电子器件, 基于自旋属性的非易失性自旋电子器件不但具有较高的集成度、读写速度及读写次数, 而且可有效避免热耗散, 为信息存储、处理和通信等领域的发展构建了新的技术平台. 近年来, 二维材料凭借其独特的能带结构和丰富的物理性质而备受关注, 特别是二维磁性材料体系在自旋电子学领域展现出极大的研究潜力和应用价值. 本文首先介绍了二维材料常见制备方法, 聚焦概述了二维磁性材料在自旋轨道电子学领域中的研究进展, 最后对本领域研究进行了展望.

关键词: 自旋电子学, 二维磁性材料, 自旋轨道力矩**PACS:** 75.47.-m, 85.75.-d, 73.63.-b, 75.70.Tj**DOI:** 10.7498/aps.73.20231244

1 引言

随着信息技术的高速发展, 尤其是近些年来“大数据”时代的到来, 全球信息总量呈现出爆炸式增长的趋势, 这对信息的处理与存储都提出了更高的要求, 同时也推动着微电子学器件朝着小尺寸化、高集成化、高读写速度方向发展. 然而, 器件低尺寸化和高集成化的发展愿景却面临着以下3个方面的挑战: 1) 物理基础层面, 当器件制备尺寸小于载流子的平均自由程时, 一些传统物理规律将不再适用; 2) 工艺设计层面, 随着半导体技术微型化的高速发展, 传统的半导体设计与制备工艺面临着越来越多的技术难题, 其中包括越来越显著的能耗消耗等难以解决的问题; 3) 经济效益层面, 研发新的半导体制备技术与工艺所需的经济成本将会接

近甚至是超过这些新技术所带来的经济产出效益. 因此, 迫切需要寻找新的思路, 来构建一种存储密度高、读写速度快、稳定性高、能耗低的物理构架. 与此同时, 研究人员越来越意识到如果电子的自旋属性能够像电荷属性一样被有效利用, 无疑将会极大拓展微电子器件的性能, 解决微电子器件的基本瓶颈问题, 为探索未来用于集成电路的新材料、新器件提供更多可能. 其中, 基于自旋轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC) 机制的自旋霍尔效应^[1]和 Rashba-Edelstein 效应^[2,3]是激发自旋流的主要方法. 通过产生的自旋流扩散到临近磁性层中, 并与磁性层中的局域磁矩进行角动量交换, 产生力矩作用, 从而可以高效、快速地调控磁矩方向. 上述这种基于自旋轨道耦合机制的力矩物理效应, 被称为自旋轨道力矩 (spin orbit torque, SOT) 效应^[4,5]. 特别是, 在磁性隧道结 (magnetic tunneling junction, MTJ) 结构和 SOT 效应基础上制备的磁性随机存

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFE0103300)、国家自然科学基金 (批准号: 12274119)、湖北省自然科学基金 (批准号: 2022CFA088) 和松山湖材料实验室开放研究基金 (批准号: 2022SLABFN04) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: chenshw@hubu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: shihengliang@hubu.edu.cn

存储器 (magnetic random access memory, MRAM) 具有非易失性、高读写速率、耐久性强、抗离子辐射等优势, 被认为是下一代通用存储器主要路径之一 [6,7].

目前, 关于 SOT 的研究多集中于 5d 重金属 (如 Pt, W, Ta, Hf 等)/铁磁金属异质结. 但是, 现有研究表明, 基于传统 5d 重金属材料的电荷流-自旋流转换效率仍然偏低, 意味着需要较高的电流密度才能产生足够的自旋轨道力矩来驱动磁矩翻转, 因此会使得此类自旋轨道力矩器件具有较高的功耗并对器件稳定性带来挑战 [8,9]. 其次, 在 5d 重金属/铁磁金属异质结中, 基于自旋霍尔效应或界面 Rashba 效应产生的面内极化自旋流或自旋累积, 在驱动垂直磁矩翻转的过程中需要引入额外的辅助磁场以打破磁矩的空间对称性, 这不但额外增加了自旋轨道力矩器件的功耗和制备复杂度, 也不利于自旋轨道力矩器件高密度、高集成度化的发展目标, 阻碍了其实用化发展进程 [10-12].

2004 年, Novoselov 等 [13] 通过机械剥离法从石墨中成功制得原子级厚度的石墨烯, 揭开了二维材料研究的序幕. 相比传统块体材料, 二维材料的原子级厚度 [14]、超净的界面和灵活的堆叠方式 [15] 为新颖物理效应和超低功耗器件的探索提供了巨大的机遇. 与此同时, 随着拓扑材料 (topological materials, TMs) 的兴起 [16], 其具有拓扑保护的能带结构, 多样化的晶体结构和对称性, 强自旋-轨道耦合 [17] 以及可调节的电导率 [18] 为自旋电子学研究提供了理想的物理研究平台. 因此, 基于二维拓扑材料的 SOT 研究逐渐成为了重点探索方向. 例如,

基于二维过渡金属硫族化合物 (transition-metal dichalcogenides, TMDs) 材料 WTe_2 制备的磁性异质结, 可产生非传统的面外自旋轨道力矩并实现全电学调控垂直磁矩翻转 [19]. 可见, 探索二维拓扑材料对自旋电子器件的发展有着非常重要的意义.

本文将介绍二维材料制备方案和物性表征, 并概述近年来二维磁性材料应用在自旋轨道力矩实验方面的研究工作, 最后对本领域研究进行展望.

2 二维材料的制备

目前已经被理论预言并通过实验制备出的若干新型二维拓扑材料, 已然成为当前凝聚态物理和新材料领域重要材料载体. 如何制备出物理性能匹配、晶相可控、高质量新型二维拓扑材料, 更是开展基于二维材料的自旋电子学前沿探索的基础. 目前, 制备二维拓扑材料的方法多种多样, 其中, 机械剥离法 (mechanical exfoliation)、液相剥离法 (liquid exfoliation)、化学气相沉积法 (chemical vapor deposition, CVD) 和分子束外延法 (molecular beam epitaxy, MBE) 是制备二维拓扑材料最常见和有效的方法.

2.1 机械剥离法

2004 年, Hashimoto 等 [20] 通过剥离方法成功制备出石墨烯和薄层石墨烯. 机械剥离技术 (图 1) 作为最流行的二维材料的制备方法之一 [21], 已广泛应用于二维晶体的制备, 如 MoS_2 , WS_2 , WTe_2 , MoTe_2 , SnS_2 和 BP 等材料.

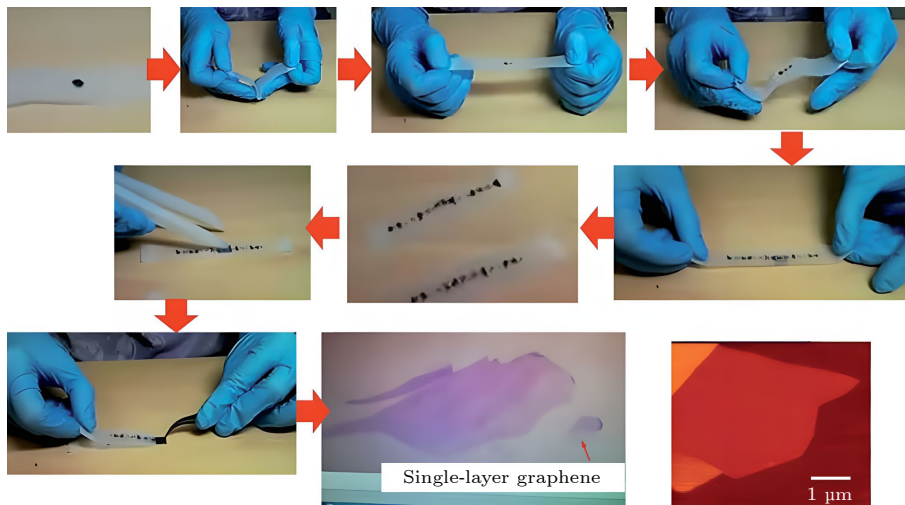


图 1 基于苏格兰胶带的高度定向热解石墨的微机械剥离示意图 [21]

Fig. 1. An illustrative procedure of the Scotch-tape based micro mechanical cleavage of highly oriented pyrolytic graphite [21].

以 MoTe_2 的制备为例, Yi 和 Shen^[21] 利用胶带机械剥离方法, 获得薄层甚至单层结构, 进而将其转移到目标衬底上进行后续测试研究. Ruppert 等^[22] 通过机械剥离制备超薄的半导体 MoTe_2 晶体. Jiang 等^[23]、Wang 等^[24] 利用胶带将 MoTe_2 单晶从块状晶体剥离到硅晶片上, 并利用光学显微镜对比识别具有不同厚度的薄片样品. 此外, 机械剥离法还可用来制备 WTe_2 , 可参考 Lee 等^[25]、Woods 等^[26] 的研究, 先通过化学气相传输 (chemical vapor transportation, CVT) 方法生长 WTe_2 晶体, 然后使用标准胶带法在 Si/SiO_2 衬底上机械剥离块状晶体获得 WTe_2 薄片, 并对这些薄片进行光学显微镜测试以分析其剥离效果. 其中 Ali 等^[27] 利用双面胶将单晶剥离至几微米, 并通过蒸发、化学气相沉积、激光烧蚀生长以及后退火等手段提高单晶样品的质量.

然而, 传统的机械剥离方法存在一些不足之处. 二维材料剥离后的样品尺寸通常在几微米到几十微米之间, 难以满足大规模、大面积器件制备需求. 为此, 人们也在不断开发高质量、高效率、大面积制备二维材料的方法.

2.2 液相剥离法

液相剥离法 (liquid-phase exfoliation) 是指在液相环境中, 在超声辅助作用下, 采用合适的溶剂对层状材料进行剥离, 并借助离子进入块状材料层间, 通过降低层间范德瓦耳斯力作用得到单层或薄层二维材料结构. Cunningham 等^[28] 通过反相液相色谱法对液相剥离后的 MoTe_2 单层结构的表面张力进行测量, 证明该类材料的表面能可作为有机溶剂中分散的溶解度参数, 从而达到液相剥离的目的. Coleman 等^[29] 利用异丙醇等有机溶剂对 MoTe_2 进行剥离, 并获得单层及多层二维 MoTe_2 薄膜. Mao 等^[30] 通过液体剥离法, 即块晶体与溶剂混

合、超声、离心, 然后收集上清液以去除聚合物, 制得了多层的 $\text{MoTe}_2/\text{WTe}_2$ 异质结构, 如图 2 所示. Yu 等^[31] 利用丙酮液体浸泡、排氧、超声、离心等一系列步骤将批量的 WTe_2 , 剥离成质量良好的单层结构, 并用于进一步表征和实验.

机械剥离和液相剥离是获得高质量少层或单层碲属化合物的最常见方法, 也适用于其他二维层状材料. 然而对于空气中暴露易于降解的二维材料体系则受到一定限制. 此外, 该方法不易应用于规模化制备, 有时剥离后的试样形状不规则、层数难分辨.

2.3 化学气相沉积法

自化学气相沉积 (chemical vapor deposition, CVD) 法首次成功地在 Cu 箔上生长单层石墨烯以来, 便逐渐成为制备各种二维材料的主要方法, 包括石墨烯、金属二硫化物 (MX_2 , $M = \text{Mo}, \text{W}, \text{Ta}, \text{Cr}, \text{Nb}, \text{Re}$ 等, $X = \text{Se}, \text{S}, \text{Te}$) 以及二维材料基异质结构. 二维材料的性能和应用高度依赖于厚度、几何形貌和晶体取向、缺陷密度和掺杂剂类型等参数性质, 其可通过优化 CVD 生长参数来控制. CVD 的具体制备原理是通过将前驱物加热至汽化, 然后利用载气将蒸发的几种原子或分子混合进行化学反应, 最后在衬底表面沉积材料. CVD 制备方法具有制备可控性高、薄膜质量高、成本低的优势.

如对于一些金属二硫化物 MX_2 , 其生长通常需要两种固体前体, 含金属前体 (如金属箔、金属氧化物、金属氯) 和非金属前体 (如 $\text{S}, \text{Se}, \text{Te}$), 二者位于不同的加热区域. 在这种情况下, 金属和非金属前驱体通过加热分别挥发, 并在载气的辅助下在高温反应区输送到衬底. 随后发生化学反应, 在基质上形成 MX_2 . 可见, 仅通过设定温度来精确控制挥发性固体前驱体的数量仍然具有挑战性, 这使

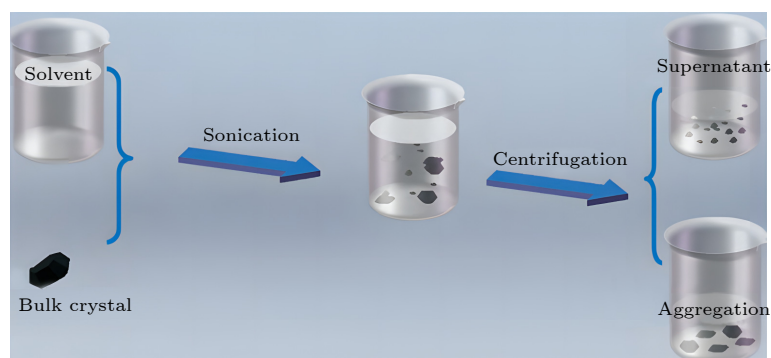


图 2 利用液相剥离方法制备 $\text{MoTe}_2/\text{WTe}_2$ 示意图^[30]

Fig. 2. Schematic diagram of liquid exfoliation method for preparing $\text{MoTe}_2/\text{WTe}_2$ nanosheets^[30].

得有效调节 MX_2 的生长过程变得相当困难. 为此, 金属有机前驱体在控制合成二维材料方面具有广阔的前景. 在这方面, Kang 等^[32] 分别以 $Mo(CO)_6$ 和 $W(CO)_6$ 为金属前驱体, 以 $(C_2H_5)_2S$ 为非金属前驱体, 制备了连续的 4 英寸晶圆级 MoS_2 和 WS_2 薄膜. Wu 和 Zeng^[33] 利用 Bi_2O_3 和 Bi_2Se_3 作为两种分离前驱体成功制备了超薄的 Bi_2O_2Se 薄片, 其表现出优异的空气稳定性和高迁移率的半导体行为. 在最近的另一项工作中, Hong 等^[34] 利用 CVD 在 Cu/Mo 双层衬底上生长了二维层状 $MoSi_2N_4$, 其中 N 源采用 NH_3 气体, Si 源采用纯 Si 板, 所制备的 $MoSi_2N_4$ 具有半导体性能, 机械强度高, 环境稳定性好等特点.

在常规的 CVD 系统中, 二维材料的厚度和畴宽只能通过调节相关的生长参数来控制, 包括生长温度、载气和前驱体的气体流量以及腔室压力. 然而, 复杂的中间反应不可避免地导致了膜厚的不均匀性、杂质的吸附和吸附的不均匀性.

2.4 分子束外延制备方法

分子束外延 (molecular beam epitaxy, MBE) 的生长过程是在高真空中进行的, 通常包括衬底选择、初始表面钝化、衬底温度控制和原子通量比优化. 因此, 可利用 MBE 制备诸多二维薄膜, 如对于 Bi_2Te_3 , Bi_2Se_3 和 Sb_2Te_3 的伪六方结构, 考虑薄膜与衬底之间的晶格匹配, 大多通过 MBE 在 Si(111) 衬底进行外延生长制备. 此外, 其他衬底如 Al_2O_3 和 GaAs 也适合直接生长不同形貌和晶体的二维薄膜. 衬底温度是另一个可能影响生长动力学、成分、薄膜质量和表面形貌的关键参数, 为此对于一些具有多种晶相的二维薄膜体系的制备, 则可通过改变生长温度实现晶相的调控.

MBE 生长二维薄膜材料具有一定的优势: 制备的样品外来杂质少, 纯度高; 可生长出极薄的材料, 对于范德瓦耳斯层状材料可以实现单层生长制备; 相比于大气压, 超高真空环境降低了材料的结合能, 成膜温度较低. MBE 技术经过多年发展已经可以制备多种不同二维材料异质结结构, 为丰富的物理性质研究提供了材料结构载体.

3 二维磁性材料在自旋轨道电子学中的研究

二维磁性材料在自旋轨道电子学中具有重要

的研究价值. 这种材料具有超薄层厚、表面洁净无悬挂键、可旋转堆垛等特性, 同时具有独特的电子输运和自旋性质. 这为研究自旋态以及磁性调控提供了良好的载体. 二维磁性材料在自旋轨道电子学中展现了广泛的研究前景和应用价值, 为新型自旋电子学器件的发展提供更多的可能性.

2013 年, Butler 等^[35] 提出了二维磁性材料在单原胞层厚度具有长程磁序, 且层间以弱的范德瓦耳斯作用力结合, 易与其他二维材料堆叠形成异质结. 2017 年, *Nature* 杂志刊登了两篇关于 $Cr_2Ge_2Te_6$ ^[36] 和 CrI_3 ^[37] 本征磁性的工作, 首次观察到了少层 $Cr_2Ge_2Te_6$ 中本征长程铁磁序和单层 CrI_3 中 Ising 本征铁磁性能, 证实了二维材料本征磁性的存在. 基于二维铁磁材料的范德瓦耳斯异质结具有许多超越传统体材料的优势, 比如丰富的磁性调控特性等. Fe_3GaTe_2 在室温下展现出优良的室温垂直磁各向异性表现, 最近 Li 等^[38] 在研究基于 Fe_3GaTe_2 的二维磁性材料的自旋轨道矩实验中, 成功实现了低至 1.3×10^7 A/cm² 的自旋轨道矩驱动翻转电流密度. 在 Fe_3GaTe_2/Pt 的结构中, 该团队发现自旋轨道矩效率约高达 0.22, 为实现室温下基于自旋轨道矩驱动的二维磁性材料的磁矩翻转提供了物理基础, 同时也为推动基于二维磁性材料的自旋存储器、逻辑器和器件的技术发展提供了新的思路. 这些优势使得二维铁磁材料在自旋电子学的逻辑和存储应用方面具有极大的潜力, 其中 $Cr_2Ge_2Te_6$ 和 Fe_3GeTe_2 两种材料是最早被研究的二维磁性材料, 为此对以二者为代表的磁性二维材料的最新发现和研究进展进行概述.

3.1 $Cr_2Ge_2Te_6$ 二维磁性材料

2017 年, Gong 等^[36] 报道了基于双层二维 $Cr_2Ge_2Te_6$ (CGT) 材料的磁性研究. 他们首次发现了在 CGT 材料体系中的本征磁性, 其铁磁转变温度随着厚度的减薄而降低, 块材样品的铁磁转变温度约为 68 K, 而双层样品的铁磁转变温度约为 30 K, 并且可通过外加一小磁场来实现对居里温度的调控. 2019 年, Wang 等^[39] 对单层 CGT 磁各向异性及其在电场作用下的调制进行了研究, 施加垂直于单层 CGT 膜面的外加电场, 观察到磁晶各向异性能 (magnetic anisotropy energy, MAE) 对外加电场的响应, 如图 3(a) 所示. 由于 CGT 具有空间反演对称性, 正负电场对系统的影响完全相同. 外加电场和磁晶各向异性能之间的关系可以用抛

物线拟合, 并发现增加外加电场会降低磁晶各向异性性能, 但变化幅度与绝对值相比非常小, 因此易轴在大范围内较稳定. 图 3(b) 表征了在外加电场作用下沿 (001) 轴和 (100) 轴的铁磁态 (ferromagnetic, FM) 和反铁磁态 (antiferromagnetic, AFM) 之间的相对能量差, 发现沿 (001) 方向的能量差比沿 (100) 方向的能量差略大约 3 meV/f.u., 且外加电场会增强 AFM 和 FM 磁态之间的能量差, 并与易轴无关. 由此可见, 单层 CGT 的磁性能在电场下是可调的^[40].

2013 年, Chen 等^[41] 利用 CGT 二维磁性材料, 开展了基于 CGT/Pt 和 CGT/Ta 异质结电流诱导的热电效应和自旋轨道矩的研究. 经机械剥离法制得的二维范德瓦耳斯 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 材料作为磁性层, 后采用直流磁控溅射在其上覆盖 Pt 和 Ta 重金属层提供自旋源, 并将它们制成 Hall bar 用于

输运测量 (图 4(a))^[41]. 图 4(b) 展示了电流产生的类阻尼矩 ΔB_{DL} 和类场矩 ΔB_{FL} 以及磁矩 m 方向^[41]. 图 4(c) 显示了 CGT(8.9 nm)/Ta(6.0 nm) 异质结中, 在同时施加平行于电流方向的恒定面内磁场 (比各向异性磁场小, $B_k \approx 360$ mT) 和沿 x 方向的扫描直流电流时, 在低至 1.5×10^5 A/cm² 的电流密度下, 磁矩可在 $+z$ 和 $-z$ 方向之间翻转, 证明了 CGT/HM (heavy metal) 样品中电流诱导的自旋轨道力矩可以改变 vdW 磁铁的垂直磁矩状态. 与重金属作用于具有垂直各向异性的三维铁磁体薄膜上的自旋轨道力矩^[4,42,43] 相比, 实现 CGT 磁矩翻转的临界电流密度至少要小 1 个数量级.

实验上, 可通过测量反常霍尔电阻来表征垂直磁矩的取向^[44,45]. 图 5(a) 和图 5(b) 显示了不同厚度的 CGT/Pt 及 CGT/Ta 异质结的低温霍尔

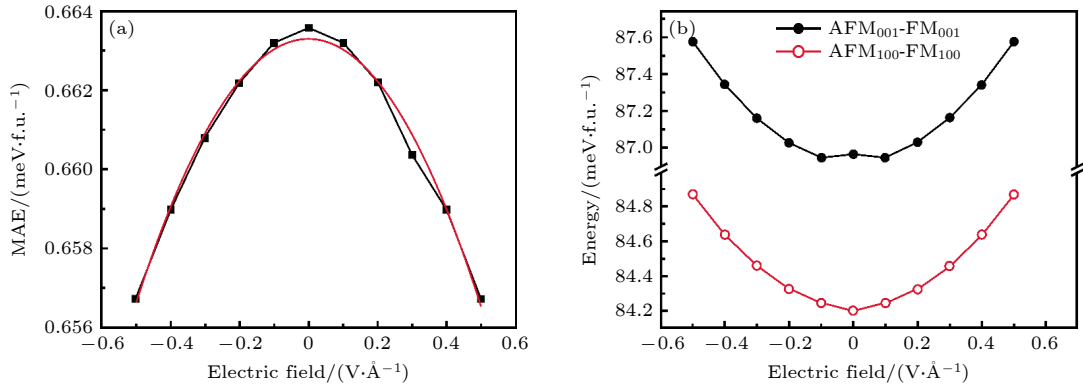


图 3 (a) 外加垂直于 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 层平面的电场与引起的磁各向异性能量的依赖关系^[39]; (b) 在面内和面外易轴条件下, 反铁磁和铁磁态之间的能量差异^[40]

Fig. 3. (a) Dependence of the magnetic anisotropy energy on the externally applied electric field which is perpendicular to the CGT layer plane^[39]; (b) energy difference of the AFM and FM configurations with the in-plane and out-of-plane easy axes^[40].

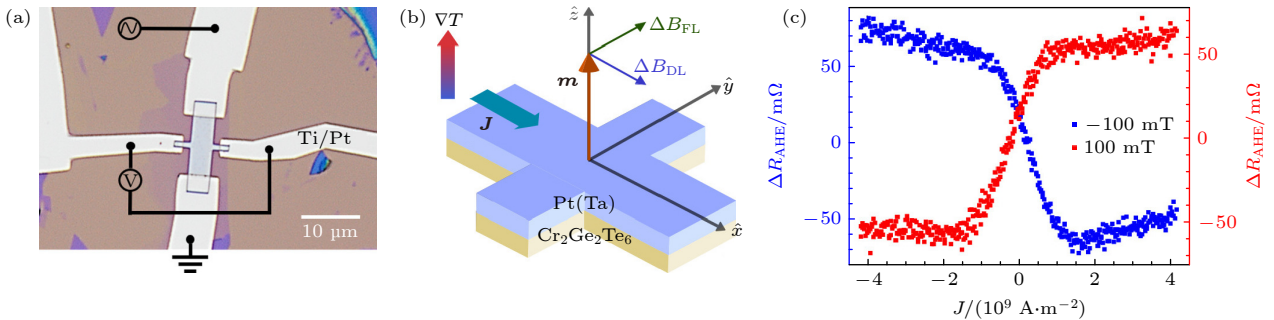


图 4 (a) 被制备成 Hall bar 形状的用于输运测量的 CGT/Pt 异质结构的光学图像^[41]; (b) 由电流产生的类阻尼力矩 (ΔB_{DL}) 和类场力矩 (ΔB_{FL}) 作用于磁化矢量 m 而产生的有效场方向^[41]; (c) 面内场 $B_x = \pm 100$ mT 时, CGT (8.9 nm)/Ta (6 nm) 样品中电流驱动磁矩翻转曲线^[41]

Fig. 4. (a) Optical image of a CGT/Pt heterostructure patterned into a Hall bar geometry ($4 \mu\text{m} \times 11 \mu\text{m}$) for transport measurements^[41]; (b) orientation of effective fields due to current-induced damping-like torque (ΔB_{DL}) and field-like torque (ΔB_{FL}) acting on the magnetization vector m ^[41]; (c) spin-orbit-torque switching of the magnetization in a CGT(8.9 nm)/Ta(6 nm) sample in the presence of an in-plane field $B_x = \pm 100$ mT^[41].

电阻与面外磁场的关系曲线^[41]. 图 5(c) 显示了不同温度下 CGT/Ta 样品中磁圆二色性 (magnetic circular dichroism, MCD) 测量的磁滞回线^[41]. 之后, 利用角度相关的二次谐波霍尔技术定量测量自旋轨道力矩. 对于 CGT/Pt 异质结, 类阻尼自旋轨道力矩效率为 0.25 ± 0.09 , 与之前测量的 Pt 作用

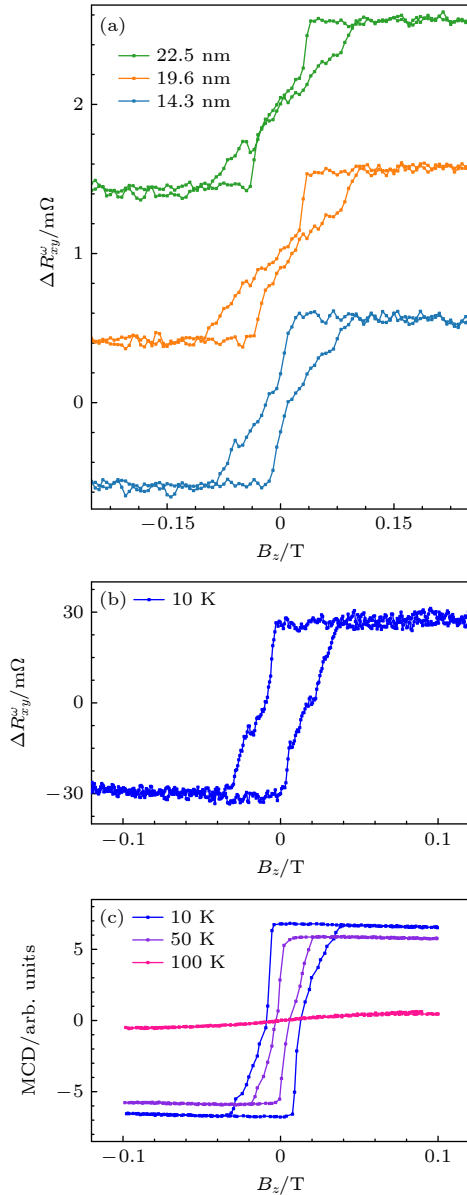


图 5 (a) 具有不同 CGT 厚度的 CGT/Pt(10 nm) 异质结在 5 K 条件下测量的反常霍尔电阻; (b) 在 CGT(10.5 nm)/Ta(6 nm) 样品中观察到的反常霍尔电阻; (c) 不同温度下 CGT(10.5 nm)/Ta(6 nm) 异质结磁化强度的光学 MCD 测试结果^[41]

Fig. 5. (a) Anomalous Hall resistance observed in CGT/Pt(10 nm) heterostructures at 5 K, for different CGT thicknesses; (b) anomalous Hall resistance observed in a CGT(10.5 nm)/Ta(6 nm) sample; (c) optical MCD detection of magnetization in the same CGT(10.5 nm)/Ta(6 nm) sample at different temperatures^[41].

于传统金属磁体的自旋轨道力矩非常相似, 该结果很好地呈现了将二维磁体用于实现低功耗自旋电子设备的前景.

然而 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 的居里温度 (Curie temperature, T_C) 均远低于室温, 可见实现在室温下维持铁磁有序且可以进行大面积制备的二维磁性材料仍是现阶段的关键问题. 近期, 研究人员利用电荷掺杂将 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 单层磁性的铁磁交换常数从 6.874 meV 提高到 10.202 meV, 同时居里温度从 ~ 85 K 增大到 ~ 123 K^[46]. 这一发现指出电荷掺杂是提高二维磁体磁稳定性的一条有效途径, 有利于克服二维磁体在自旋电子学中应用的障碍.

3.2 Fe_3GeTe_2 二维磁性材料

在 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 作为本征磁体被发现不久^[36], Liu 等^[47] 证实另一种范德瓦耳斯层状材料 Fe_3GeTe_2 (FGT) 中也存在二维本征铁磁性, 且与 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 相似, Fe_3GeTe_2 具有垂直于原子层的磁性各向异性. 通过借助锂离子插层技术, 可将薄层二维 Fe_3GeTe_2 的铁磁转变温度提高至室温以上, 进一步推动了范德瓦耳斯二维本征磁性材料在自旋电子学领域的研究.

2019 年, Alghamdi 等^[48] 采用磁控将 Pt 溅射到刚剥离的具有原子级平坦表面 FGT 薄片上, 得到了 FGT/Pt 异质结 (图 6), 同时研究了其自旋轨

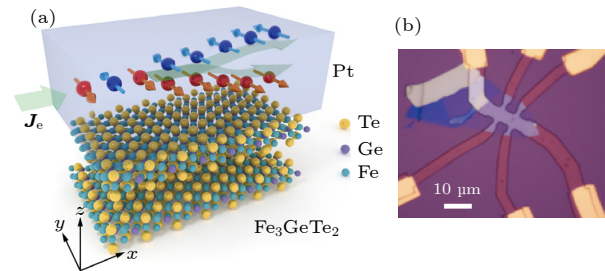


图 6 (a) FGT/Pt 双层结构示意图, 其中 Pt 层 (顶部) 被溅射在剥离的 FGT (底部) 上. 绿色箭头表示在 Pt 层内的面内电流可产生沿 z 方向的自旋流, 底部 (顶部) Pt 表面积累的自旋由红色 (蓝色) 箭头表示, 自旋流会对 FGT 的磁矩施加力矩, 并在存在平面磁场的情况下将其翻转^[50]. (b) 用于运输测量的 Hall bar 器件的光学图像^[50]

Fig. 6. (a) Schematic view of the FGT/Pt bilayer structure, Pt layer (top) is sputtered on top of the exfoliated FGT (bottom). The green arrow represents the in-plane current flowing in the z direction, the accumulated spins at the bottom (top) Pt surface are indicated by the red (blue) arrows, the spin current exerts torques on the magnetization of FGT and can switch it in the presence of an in-plane magnetic field^[50]. (b) Optical image of the measured Hall bar device^[50].

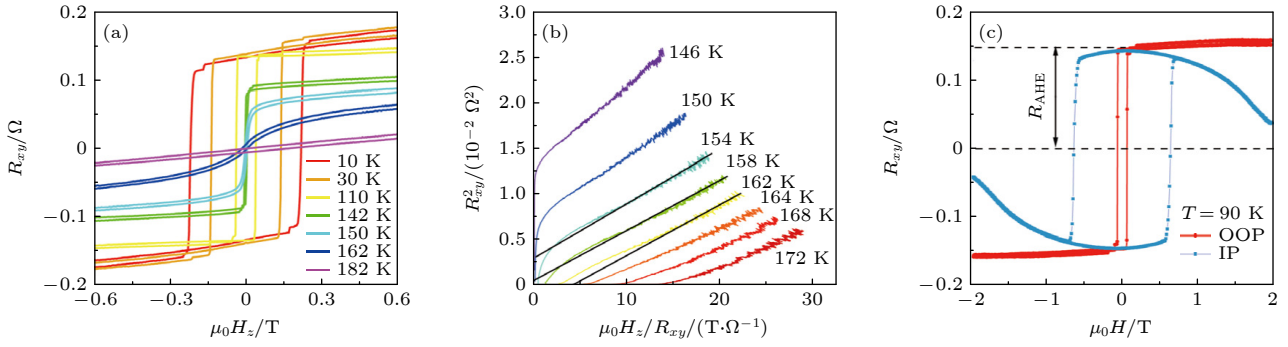


图 7 FGT/Pt 双层薄膜的磁性性质 (a) 不同温度下, 霍尔电阻随磁场的变化曲线; (b) FGT/Pt 器件的阿罗特图, 其临界温度为 158 K; (c) 90 K 下, 反常霍尔电阻随面内 (IP) 和面外 (OOP) 磁场的变化曲线^[50]

Fig. 7. Magnetic properties of FGT/Pt bilayer: (a) Hall resistance as a function of magnetic field at different temperatures; (b) arrott plots of the Hall resistance of the FGT/Pt device, and the determined T_C is 158 K; (c) R_{AHE} as a function of in-plane (IP) and out-of-plane (OOP) magnetic field at 90 K^[50].

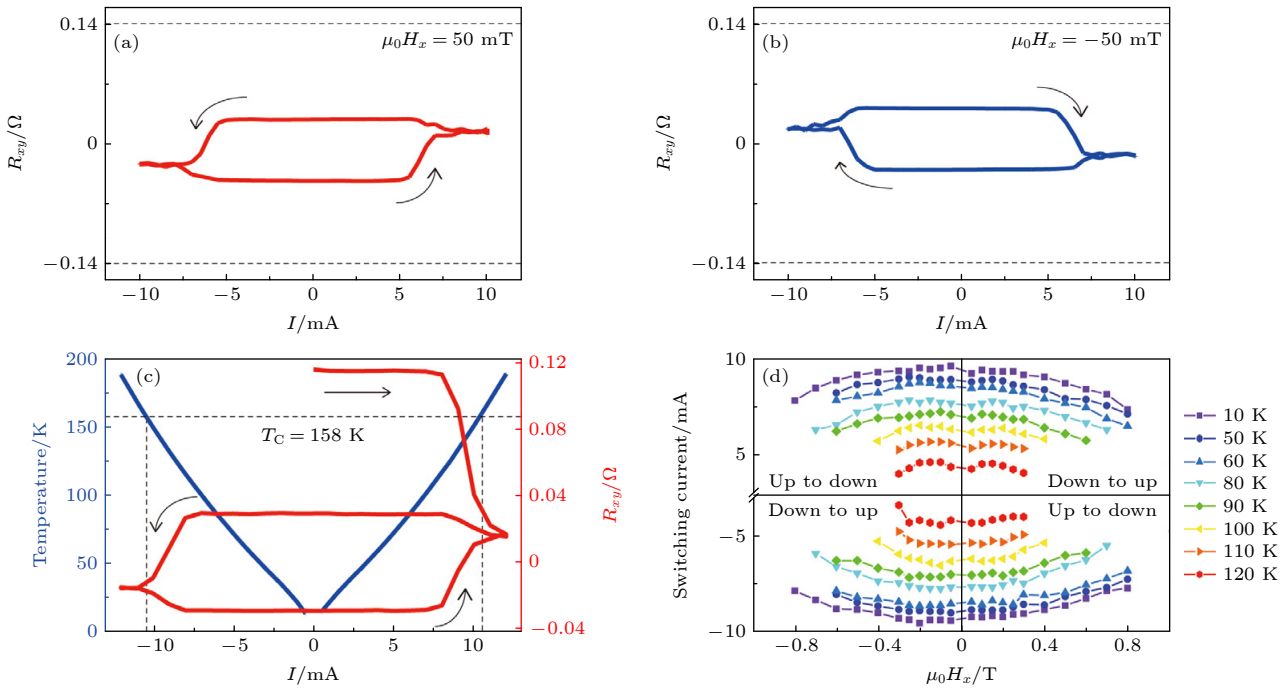


图 8 FGT/Pt 双层膜器件中的自旋轨道力矩驱动的垂直磁矩翻转^[50] (a), (b) 100 K 温度下, 50 mT (a) 和 -50 mT (b) 面内磁场辅助时实现的电流驱动的垂直磁矩翻转, 其翻转极性分别为逆时针和顺时针, 虚线对应饱和磁化状态下的 R_{AHE} ; (c) 10 K 温度下, 300 mT 面内辅助磁场下实现的电流驱动的垂直磁矩翻转 (红色曲线), 箭头表示扫描电流方向; (d) 不同温度下, 面内磁场和临界翻转电流的相图

Fig. 8. SOT-driven perpendicular magnetization switching in the FGT/Pt bilayer device^[50]: (a), (b) Current-driven perpendicular magnetization switching for in-plane magnetic fields of 50 mT (a) and -50 mT (b) at 100 K, the switching polarity is anticlockwise and clockwise, respectively, the dashed lines correspond to the R_{AHE} at saturated magnetization states; (c) current-driven perpendicular magnetization switching with a 300 mT in-plane magnetic field at 10 K (red), the arrows indicate the current sweeping direction; (d) switching-phase diagram with respect to the in-plane magnetic fields and critical switching currents at different temperatures.

道力矩效应, 其中 FGT 大的反常霍尔电阻使其成为一个可量化自身磁化状态的敏感探测器^[48,49]. 为进一步量化自旋轨道力矩的影响, 对其分别进行了脉冲电流驱动磁矩翻转和二次谐波霍尔测量. 单分子层 FGT 的磁化翻转可以在较低的临界电流密

度下实现, 从而便于制备出更高效的自旋电子纳米器件^[50].

2019 年, Wang 等^[50] 另辟蹊径设计了一种 Fe_3GeTe_2/Pt 双层结构 (图 6(a)). 通过测量霍尔电阻对器件的磁性进行了表征, 得到了不同温度下霍

尔电阻与面外磁场的关系曲线(图 7(a)), 并确定了器件的居里温度 (T_C) 为 158 K(图 7(b)). 当 $T < T_C$ 时, 器件表现出明显的垂直磁各向异性, 且面内方向的饱和场比面外方向的饱和场大得多(图 7(c)). 进一步, 使用二次谐波测量进一步定量表征与自旋轨道力矩相对应的有效磁场. 最后, 证明了在面内磁场的辅助下, 所产生的自旋轨道力矩可以用来翻转 FGT/Pt 双层器件中的垂直磁矩, 如图 8(a) 和图 8(b) 所示^[50]. 其中, 当施加正(负)面内辅助磁场, 自旋轨道力矩驱动磁矩翻转的极性为逆时针(顺时针)方向, 表明 Pt 的自旋霍尔角为正, 与前人的工作一致.

磁各向异性或矫顽力的电调控特性对于实现低功耗自旋电子器件较为重要. 而对于低能耗的信息写入来说需要很小的磁各向异性, 然而这会不可避免地增加热扰动引起的信息损失. 2021 年, Zhang 等^[51] 发现面内电流可以让 Fe_3GeTe_2 产生一个巨大的自旋轨道矩, 且面内电流可以将纳米薄范德瓦耳斯 Fe_3GeTe_2 二维材料的磁学性质进行调

控. 其中样品制备与输运测量如图 9 所示, 电调制的磁性表征如图 10 所示. 实验中, 他们发现在面内施加约 0.1 mV/nm 的小电场可以使 FGT 的矫顽场降低约 50%, 这比使用大几个数量级的面外电场(通常在 0.1 V/nm 范围内)来诱导的调制更为高效.

4 总结与展望

本文介绍了当前二维层状材料的几种常用制备方法, 聚焦概述了二维磁性材料在自旋轨道电子学领域中的研究进展. 特别是以 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 和 Fe_3GeTe_2 两种材料为代表, 重点阐述了基于二维磁性材料异质结构中的 SOT 及电流驱动磁矩翻转的研究进展. 当前, 大多数二维磁性材料的居里温度都在室温以下, 相对限制了其在自旋电子器件中的应用. 虽然近来已经成功通过磁性掺杂^[52]、近邻效应^[53] 缺陷调控^[54,55] 等人为方式引入磁性, 但引入的磁性特征难以满足自旋电子器件的要求. 因此,

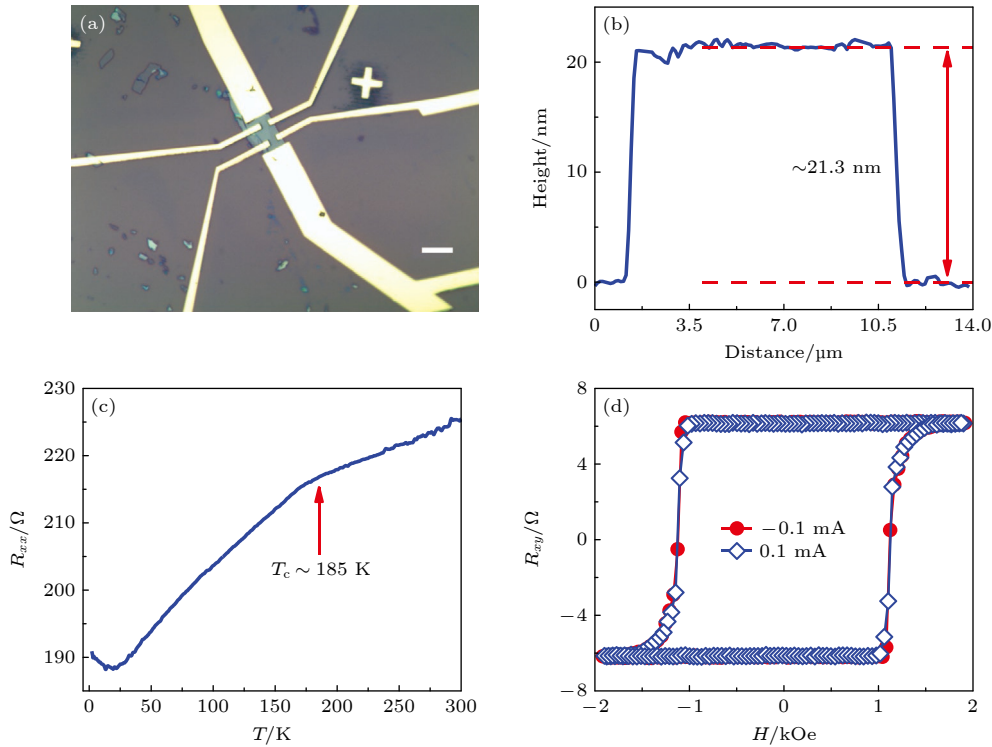


图 9 (a) 基于二维 Fe_3GeTe_2 薄膜的 Hall bar 结构器件光学图像, 比例尺为 $10 \mu\text{m}$ ^[51]; (b) 经原子力显微镜测试, 样品厚度为 21.3 nm^[51]; (c) 纵向电阻 R_{xx} 随温度 T 的变化, 红色箭头表示由自旋翻转散射引起的磁性转变, 从中确定转变温度 $T_c = 185 \text{ K}$ ^[51]; (d) 2 K 下, 霍尔电阻 R_{xy} 随磁场 H 的变化^[51]

Fig. 9. (a) Optical image of a typical Fe_3GeTe_2 nanoflake sample with a Hall-bar geometry electrode, and the white scale bar represents $10 \mu\text{m}$ ^[51]; (b) thickness of sample is 21.3 nm as measured by AFM^[51]; (c) longitudinal resistance R_{xx} as a function of temperature T with current = 0.05 mA, the red arrow indicates the magnetic transition due to spin-flip scattering, from which $T_c = 185 \text{ K}$ is determined^[51]; (d) Hall resistance R_{xy} as a function of magnetic field H at 2 K^[51].

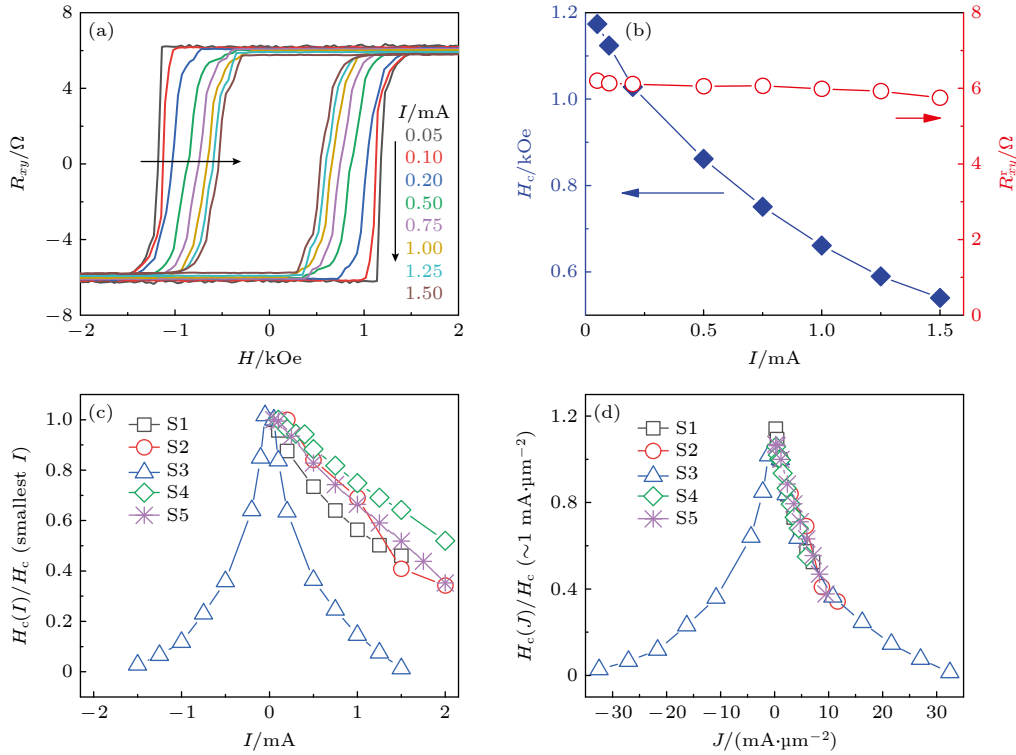


图 10 (a) 2 K 温度下, 当施加电流从 0.05 变化到 1.5 mA 时 S1 样品的霍尔曲线^[51]; (b) 2 K 温度下, S1 样品的矫顽场 H_c 和剩余霍尔电阻 R_{xy}^r 随施加电流的变化曲线^[51]; (c) 2 K 温度下, 样品 S1 (21.3 nm), S2 (16.7 nm), S3 (6 nm), S4 (42 nm) 和 S5 (17.5 nm) 的 $H_c(I)/H_c$ (其中 I 为最小电流) 随施加电流的变化曲线^[51]; (d) 2 K 温度下, 样品 S1, S2, S3, S4 和 S5 的 $H_c(j)/H_c$ (其中 $j \approx 1 \text{ mA}/\mu\text{m}^2$) 随电流密度 j 变化^[51]

Fig. 10. (a) R_{xy} - H curves of sample S1 at 2 K with applied current varying I from 0.05 to 1.5 mA^[51]; (b) extracted coercive field H_c and remnant Hall resistance R_{xy}^r of sample S1 as a function of applied current I at 2 K^[51]; (c) $H_c(I)/H_c$ (smallest I) as a function of applied current for sample S1 (21.3 nm), S2 (16.7 nm), S3 (6 nm), S4 (42 nm), and S5 (17.5 nm) at 2 K^[51]; (d) $H_c(j)/H_c$ ($j \approx 1 \text{ mA}/\mu\text{m}^2$) as a function of current density j for sample S1, S2, S3, S4, and S5 at 2 K^[51].

寻找在室温下具有铁磁有序的新型二维磁性材料仍是目前关键性问题之一。

另外, 基于二维磁性材料的异质结构的物理性质较为丰富. 除了二维磁性异质结构中自旋轨道转矩效应实现的磁性调控研究外, 还有许多物理性质尚待探究. 例如基于二维磁性材料异质结构的磁电输运性质, 以及二维磁性材料的界面态、磁性特性的调控研究. 深入理解二维磁性异质结构的物理性质, 对于设计和发展新型自旋电子器件的理解至关重要. 此外, 如何制备层数可控的高质量、晶圆级的二维磁性薄膜对于自旋电子器件的大面积集成应用具有极其重要的意义. 实现二维磁性薄膜的高质量制备以及可控的界面性质, 才能满足二维磁性自旋电子器件的稳定性和高性能要求. 实现晶圆级大面积二维磁性薄膜的制备, 才能满足自旋电子器件的高集成要求.

未来随着对二维磁性材料制备、物理性质和器件应用的研究不断深入, 二维磁性材料在自旋电子

学领域将展现出更加广泛的研究前景和应用价值, 二维磁性材料将为自旋电子学领域发展提供更多的材料体系.

参考文献

- [1] Hirsch J E 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1834
- [2] Bychkov Y A 1984 *Jetp Lett.* **39** 78
- [3] Edelstein V M 1990 *Solid State Commun.* **73** 233
- [4] Miron I M, Garello K, Gaudin G, Zermatten P J, Costache M V, Auffret S, Bandiera S, Rodmacq B, Schuhl A, Gambardella P 2011 *Nature* **476** 189
- [5] Liu L, Lee O J, Gudmundsen T J, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 096602
- [6] Cubukcu M, Boule O, Mikuszeit N, Hamelin C, Bracher T, Lamard N, Cyrille M C, Buda-Prejbeanu L, Garello K, Miron I M, Klein O, de Loubens G, Naletov V V, Langer J, Ocker B, Gambardella P, Gaudin G 2018 *IEEE T. Magn.* **54** 1
- [7] Hsu W H, Bell R, Victora R H 2018 *IEEE T. Magn.* **54** 1
- [8] Shao Q, Li P, Liu L, Yang H, Fukami S, Razavi A, Wu H, Wang K, Freimuth F, Mokrousov Y, Stiles M D, Emori S, Hoffmann A, Akerman J, Roy K, Wang J P, Yang S H, Garello K, Zhang W 2021 *IEEE T. Magn.* **57** 800439
- [9] Han X, Wang X, Wan C, Yu G, Lü X 2021 *Appl. Phys. Lett.*

118 120502

- [10] Miron I M 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 502
- [11] Song C, Zhang R, Liao L, Zhou Y, Zhou X, Chen R, You Y, Chen X, Pan F 2021 *Prog. Mater. Sci.* **118** 100761
- [12] Liu L, Zhao T, Lin W, Shu X, Zhou J, Zheng Z, Chen H, Jia L, Chen J 2023 *Appl. Phys. Rev.* **10** 021319
- [13] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D E, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [14] Koppens F H, Mueller T, Avouris P, Ferrari A C, Vitiello M S, Polini M 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 780
- [15] Chen W, Sun Z, Wang Z, Gu L, Xu X, Wu S, Gao C 2019 *Science* **366** 983
- [16] Yan B, Zhang S C 2012 *Rep. Prog. Phys.* **75** 096501
- [17] Jiang J, Tang F, Pan X C, Liu H M, Niu X H, Wang Y X, Xu D F, Yang H F, Xie B P, Song F Q, Dudin P, Kim T K, Hoesch M, Das P K, Vobornik I, Wan X G, Feng D L 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 166601
- [18] Thoutam L R, Wang Y L, Xiao Z L, Das S, Luican-Mayer A, Divan R, Crabtree G W, Kwok W K 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 046602
- [19] MacNeill D, Stiehl G M, Guimaraes M H D, Buhrman R A, Park J, Ralph D C 2016 *Nat. Phys.* **13** 300
- [20] Hashimoto A, Suenaga K, Gloter A, Urita K, Iijima S 2004 *Nature* **430** 870
- [21] Yi M, Shen Z 2015 *J. Mater. Chem. A* **3** 11700
- [22] Ruppert C, Aslan B, Heinz T F 2014 *Nano Lett.* **14** 6231
- [23] Jiang C, Liu F, Cuadra J, Huang Z, Li K, Rasmita A, Srivastava A, Liu Z, Gao W B 2017 *Nat. Commun.* **8** 802
- [24] Wang J, Luo X, Li S, Verzhbitskiy I, Zhao W, Wang S, Quek S Y, Eda G 2017 *Adv. Funct. Mater.* **27** 1604799
- [25] Lee C H, Silva E C, Calderin L, Nguyen M A T, Hollander M J, Bersch B, Mallouk T E, Robinson J A 2015 *Sci. Rep.* **5** 10013
- [26] Woods J M, Shen J, Kumaravadivel P, Pang Y, Xie Y, Pan G A, Li M, Altman E I, Lu L, Cha J J 2017 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 23175
- [27] Ali M N, Xiong J, Flynn S, Tao J, Gibson Q D, Schoop L M, Liang T, Haldolaarachchige N, Hirschberger M, Ong N P 2014 *Nature* **514** 205
- [28] Cunningham G, Lotya M, Cucinotta C S, Sanvito S, Bergin S D, Menzel R, Shaffer M S, Coleman J N 2012 *ACS Nano* **6** 3468
- [29] Coleman J N, Lotya M, O'Neill A, Bergin S D, King P J, Khan U, Young K, Gaucher A, De S, Smith R J 2011 *Science* **331** 568
- [30] Mao D, Du B, Yang D, Zhang S, Wang Y, Zhang W, She X, Cheng H, Zeng H, Zhao J 2016 *Small* **12** 1489
- [31] Yu P, Fu W, Zeng Q, Lin J, Yan C, Lai Z, Tang B, Suenaga K, Zhang H, Liu Z 2017 *Adv. Mater.* **29** 1701909
- [32] Kang K, Xie S, Huang L, Han Y, Huang P Y, Mak K F, Kim C J, Muller D, Park J 2015 *Nature* **520** 656
- [33] Wu M, Zeng X C 2017 *Nano Lett.* **17** 6309
- [34] Hong Y L, Liu Z, Wang L, Zhou T, Ma W, Xu C, Feng S, Chen L, Chen M L, Sun D M 2020 *Science* **369** 670
- [35] Butler S Z, Hollen S M, Cao L, Cui Y, Gupta J A, Gutiérrez H R, Heinz T F, Hong S S, Huang J, Ismach A F 2013 *ACS Nano* **7** 2898
- [36] Gong C, Li L, Li Z, Ji H, Stern A, Xia Y, Cao T, Bao W, Wang C, Wang Y, Qiu Z Q, Cava R J, Louie S G, Xia J, Zhang X 2017 *Nature* **546** 265
- [37] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H 2017 *Nature* **546** 270
- [38] Li W H, Zhu W K, Zhang G J, Wu H, Zhu S G, Li R Z, Zhang E Z, Zhang X M, Deng Y C, Zhang J, Zhao L X, Chang H X, Wang K Y 2023 arXiv: 2304.10718 [physics.app-ph]
- [39] Wang K Y, Hu T, Jia F H, Zhao G D, Liu Y Y, Solov'yev I V, Pyatakova A P, Zvezdin A K, Ren W 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 092405
- [40] Gupta V, Cham T M, Stiehl G M, Bose A, Mittelstaedt J A, Kang K, Jiang S, Mak K F, Shan J, Buhrman R A 2020 *Nano Lett.* **20** 7482
- [41] Chen B, Yang J, Wang H D, Imai M, Ohta H, Michioka C, Yoshimura K, Fang M H 2013 *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** 124711
- [42] Zhang C, Fukami S, Sato H, Matsukura F, Olmo H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 012401
- [43] Emori S, Bauer U, Ahn S M, Martinez E, Beach G S 2013 *Nat. Mater.* **12** 611
- [44] Lohmann M, Su T, Niu B, Hou Y, Alghamdi M, Aldosary M, Xing W, Zhong J, Jia S, Han W 2019 *Nano Lett.* **19** 2397
- [45] Ostwal V, Shen T, Appenzeller J 2020 *Adv. Mater.* **32** 1906021
- [46] Hou Y, Wei Y, Yang D, Wang K, Ren K, Zhang G 2023 *Molecules* **28** 3893
- [47] Liu B, Zou Y, Zhou S, Zhang L, Wang Z, Li H, Qu Z, Zhang Y 2017 *Sci. Rep.* **7** 6184
- [48] Alghamdi M, Lohmann M, Li J, Jothi P R, Shao Q, Aldosary M, Su T, Fokwa B P, Shi J 2019 *Nano Lett.* **19** 4400
- [49] Shao Q, Yu G, Lan Y W, Shi Y, Li M Y, Zheng C, Zhu X, Li L J, Amiri P K, Wang K L 2016 *Nano Lett.* **16** 7514
- [50] Wang X, Tang J, Xia X, He C, Zhang J, Liu Y, Wan C, Fang C, Guo C, Yang W 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw8904
- [51] Zhang K, Han S, Lee Y, Coak M J, Kim J, Hwang I, Son S, Shin J, Lim M, Jo D 2021 *Adv. Mater.* **33** 2004110
- [52] Miao Y, Huang Y, Fang Q, Yang Z, Xu K, Ma F, Chu P K 2016 *J. Mater. Sci.* **51** 9514
- [53] Kaloni T P 2014 *J. Phys. Chem. C* **118** 25200
- [54] Mao Y, Guo G, Yuan J, Zhong J 2019 *Appl. Surface Sci.* **464** 236
- [55] Ersan F, Arkin H, Aktürk E 2017 *RSC Adv.* **7** 37815

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Research progress of spin orbit torque of two-dimensional magnetic materials*

Xiong Yi-Nong¹⁾²⁾ Wu Chuang-Wen¹⁾²⁾ Ren Chuan-Tong¹⁾²⁾
Meng De-Quan¹⁾²⁾ Chen Shi-Wei^{1)2)†} Liang Shi-Heng^{1)2)‡}

1) (*Faculty of Physics and Electronic Science, Hubei University, Wuhan 430062, China*)

2) (*Key Laboratory of Intelligent Sensing System and Security, Ministry of Education, Wuhan 430062, China*)

(Received 31 July 2023; revised manuscript received 15 September 2023)

Abstract

The rapid development of information technology has put forward higher requirements for the performance of information processing and storage devices. At the same time, with the continuous reduction of device size, traditional semiconductor devices based on electron charge properties face the problems and challenges of thermal dissipation and quantum size effect, and semiconductor technology has entered the post-molar era. Unlike traditional charge-based electronic devices, spin-based non-volatile spintronic devices not only have high integrated density, read and write speed and read and write time, but also can effectively avoid heat dissipation, establishing a new technical platform for developing the information storage, processing and communication. In recent years, two-dimensional materials have attracted a lot of attention due to their unique band structures and rich physical properties. Two-dimensional magnetic materials have shown great research and application potential in the field of spintronics. Compared with traditional block materials, the two-dimensional materials can provide great opportunities for exploring novel physical effects and ultra-low-power devices due to their atomic thickness, ultra-clean interface and flexible stacking. At the same time, with the rise of topological materials (TMs), their topological protected band structures, diversified crystal structures and symmetries, strong spin-orbit coupling and adjustable electrical conductivity provide an ideal physical research platform for studying spintronics. In this paper, we first introduce the common methods of preparing two-dimensional materials, then focus on the research progress of two-dimensional magnetic materials in the field of spin-orbit electronics, and finally look forward to the research challenges in this field. In the future, with continuous in-depth research on the preparation, physical properties and device applications of two-dimensional magnetic materials, two-dimensional magnetic materials will show more extensive research prospects and application value in the field of spintronics. Two-dimensional magnetic materials will provide more material systems for spintronics development.

Keywords: spintronics, two-dimensional magnetic materials, spin orbit torque

PACS: 75.47.-m, 85.75.-d, 73.63.-b, 75.70.Tj

DOI: 10.7498/aps.73.20231244

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2022YFE0103300), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12274119), the Natural Science Foundation of Hubei Province, China (Grant No. 2022CFA088), and the Open Research Fund of Songshan Lake Materials Laboratory, China (Grant No. 2022SLABFN04).

† Corresponding author. E-mail: chenshw@hubu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: shihengliang@hubu.edu.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理

磁畴壁拓扑结构研究进展*

张颖[†] 李卓霖 沈保根

(中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

(2023年10月7日收到; 2023年12月21日收到修改稿)

拓扑磁性斯格明子作为信息载体单元具备高可靠性、高集成度、低能耗等优势, 有望提高数据读写精度、降低功耗, 从而研发新型拓扑自旋电子学材料与原理型器件, 为信息技术、5G通信和大数据等的高速发展提供材料与技术支持. 但磁性斯格明子同时存在需要磁场稳定以及电流驱动下斯格明子霍尔效应引起偏转等缺点, 严重阻碍了其在实际器件中的应用, 因此探索新型拓扑磁畴结构和适宜应用的材料体系成为研究的关键. 本文将重点介绍自2013年理论预言磁畴壁斯格明子以来, 利用高分辨率洛伦兹透射电子显微镜原位实空间发现并研究磁畴壁拓扑麦纫和磁畴壁斯格明子的实验工作. 首次在范德瓦耳斯 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 二维磁性材料中发现温度诱发的 180° 磁畴壁转变为拓扑麦纫链, 研究了磁畴壁麦纫态在外界电场、磁场作用下的集体运动行为, 揭示了基于自旋重取向、磁畴壁限域效应以及弱相互作用下生成磁畴壁拓扑态的机制. 在该机制指导下, 设计制备了具有自旋重取向的 GdFeCo 非晶亚铁磁薄膜, 不仅获得了磁畴壁麦纫, 验证了生成机制的普适性, 还成功实现了畴壁麦纫对到畴壁斯格明子的可逆拓扑转变, 开辟了基于磁畴壁等内禀限域效应开展拓扑磁性物态探索和研究的新方向.

关键词: 磁畴壁麦纫, 磁畴壁斯格明子, 自旋重取向, 洛伦兹透射电子显微镜, 二维磁性材料**PACS:** 75.60.Ch, 68.37.Lp, 75.78.Cd, 75.70.Ak**DOI:** 10.7498/aps.73.20231612

1 引言

用数学上拓扑不变量的概念描述电子态、磁有序以及电荷分布等物理量, 从而重新定义拓扑磁畴结构、拓扑铁电畴、拓扑绝缘体、拓扑半金属、拓扑超导体、拓扑光子晶体等拓扑物态和拓扑材料, 极大拓展了对凝聚态物理和自然界的认识. 理论上发现拓扑相变和拓扑相的工作在2016年获得了诺贝尔物理学奖, 也充分说明拓扑在物理研究领域具有非常重要的科学意义. 此外, 拓扑非平庸的物态表现出许多新奇的拓扑量子现象, 以及全局稳定性、低耗散、对光、电、磁等外场独特的响应等显著优点, 因此如何调控拓扑物态、利用拓扑物性在拓

磁性材料中开发全新的功能性量子器件具有巨大的应用前景.

数字化、智能化的信息时代, 需要更低能耗、更高速度和更高密度的信息存储和处理载体, 世界各国对新型磁性存储材料以及技术的发展极其重视. 突破传统磁性信息存储技术面临的超顺磁物理极限、焦耳热、摩尔定律等应用瓶颈, 实现新一代超高密度、超低功耗的新型自旋电子学器件, 是极具前瞻性的重大基础科学问题和关键技术问题. 在探索新型磁性信息材料和技术解决方案的过程中, 研究人员发现以磁性斯格明子 (skyrmions) 为代表的磁矩空间排列具有拓扑性质的磁畴结构, 亦即拓扑磁畴结构, 其尺寸可至 10 nm 量级, 远低于现有的磁性信息存储单元的尺寸, 可以大幅度提高磁性

* 中国科学院先导计划 (批准号: XDB33030100)、国家自然科学基金科学中心 (批准号: 52088101)、国家自然科学基金 (批准号: 52271195, 52130103) 和中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划 (批准号: YSBR-084) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: zhangy@iphy.ac.cn

信息存储密度, 而且其磁性状态能够被磁场、电流等多物理场有效调控, 实现信息读写技术方法多样性, 尤其特有的拓扑稳定性, 有望成为新一代高密度、高速度、低能耗自旋电子器件的信息载体单元.

拓扑磁畴结构是一种具有局域手性自旋结构的特殊磁畴结构, 是“对称性破缺理论”所描述的局域序参量的长程有序态, 可以用拓扑数 Q 来描述^[1]:

$$Q = \frac{1}{4} \int \mathbf{m} \cdot (\partial_x \mathbf{m} \times \partial_y \mathbf{m}) dx dy, \text{ 其中 } \mathbf{m} \text{ 是实空间 } (x, y) \text{ 自旋单位矢量, } Q \text{ 描述自旋环绕单位球面的倍数, 表现为不同的拓扑自旋组态, 在凝聚态物理和材料科学中以磁性斯格明子为典型代表. 当 } Q = \pm 1 \text{ 时自旋环绕单位球面完成一周, 此时磁结构通常称为 (反) 斯格明子}^{[2,3]}. \text{ 斯格明子根据其磁矩旋转方式可分为奈耳 Néel 型 (平行径向) 和布洛赫 Bloch 型 (垂直径向)}^{[1]}. \text{ 当 } Q = 2 \text{ 时为两个斯格明子的耦合, 称为双斯格明子}^{[4]}; \text{ 当 } Q = 1/2 \text{ 时, 磁矩仅完成半周环绕, 此时磁结构称为麦切 (meron)}^{[5,6]}. \text{ 图 1 为典型拓扑磁畴结构的自旋分布示意图. 拓扑磁畴结构拓扑数不随局域磁矩变化而改变, 相应的拓扑物性对缺陷、微扰和细节不敏感, 具有独特全局稳定性, 可实现能量和信息的无损传播. 另一方面, 从基础研究的角度, 拓扑磁畴结构的生成和调控与 Berry 相效应、拓扑霍尔效应、自旋转移力矩效应、自旋-轨道耦合效应等丰富的物理现象密切关联}^{[7-9]}, \text{ 从微观角度揭示拓扑磁畴结构的生成以及外场下的动力学行为, 有助于深入理解奇异物理性能的微观机制, 促进磁性新物态的探索和拓扑磁性器件的开发.}$$

当 $Q = \pm 1$ 时自旋环绕单位球面完成一周, 此时磁结构通常称为 (反) 斯格明子^[2,3]. 斯格明子根据其磁矩旋转方式可分为奈耳 Néel 型 (平行径向) 和布洛赫 Bloch 型 (垂直径向)^[1]. 当 $Q = 2$ 时为两个斯格明子的耦合, 称为双斯格明子^[4]; 当 $Q = 1/2$ 时, 磁矩仅完成半周环绕, 此时磁结构称为麦切 (meron)^[5,6]. 图 1 为典型拓扑磁畴结构的自旋分布示意图. 拓扑磁畴结构拓扑数不随局域磁矩变化而改变, 相应的拓扑物性对缺陷、微扰和细节不敏感, 具有独特全局稳定性, 可实现能量和信息的无损传播. 另一方面, 从基础研究的角度, 拓扑磁畴结构的生成和调控与 Berry 相效应、拓扑霍尔效应、自旋转移力矩效应、自旋-轨道耦合效应等丰富的物理现象密切关联^[7-9], 从微观角度揭示拓扑磁畴结构的生成以及外场下的动力学行为, 有助于深入理解奇异物理性能的微观机制, 促进磁性新物态的探索和拓扑磁性器件的开发.

斯格明子的研究经历: 1962 年英国粒子物理学家 Skyrme^[12] 提出拓扑孤子概念, 2006 年 Rößler 等^[13] 首次理论预言其存在, 2009 年德国物理学家 Mühlbauer 等^[14] 利用中子散射在手性单晶 MnSi 磁体中首次实验证实磁性斯格明子的存在. 2010 年, Yu 等^[2] 利用洛伦兹透射电子显微镜 (L-TEM) 首次实空间直接观察到磁性斯格明子稳定存在于 FeCoSi 单晶中, 解析的斯格明子拓扑自旋结构与模拟结果一致, 极大地促进了拓扑磁畴结构的高分辨率解析以及原位外场调控研究. 之后在拓扑磁性材料发现、物性研究、物态调控以及探索方面发展迅速, 发现的新型拓扑磁畴结构如反斯格明子^[3]、磁麦切^[5]、双斯格明子^[15]、磁浮子等^[16] 可以由拓扑数进行统一表征. 拓扑磁性材料体系也由最初的体 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用 (DMI) 手性磁体 (MnSi^[14], Fe_{0.5}Co_{0.5}Si^[2], FeGe^[17] 等) 发展到界面 DM 作用薄膜 (Pt/Co/MgO^[18], Pt/Co/Ta^[19], Ir/Co/Pt^[20] 等)、中心对称偶极作用磁体 (NiMnGa^[21], La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn₂O₇ ($x = 0.315$)^[15] 等) 以及 Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 相互作用稀土磁体 (Gd₂PdSi₃^[22], Gd₃Ru₄Al₁₂^[23], TbMn₆Sn₆^[24]) 等. 不同材料体系中的斯格明子各具特点, 但需要磁场稳定、温度低、密度低等不足无疑制约了相关器件的发展和应用. 理论和实验已证实, 电流驱动拓扑磁畴结构时受斯格明子霍尔效应^[1,25,26] (skyrmions Hall effect) 的影响, 拓扑磁畴结构会在侧向方向上发生偏转, 甚至在样品边缘处湮灭, 极大限制了其在自旋电子器件中的应用. 图 2 为斯格明子霍尔效应示意图以及实验观测结果.

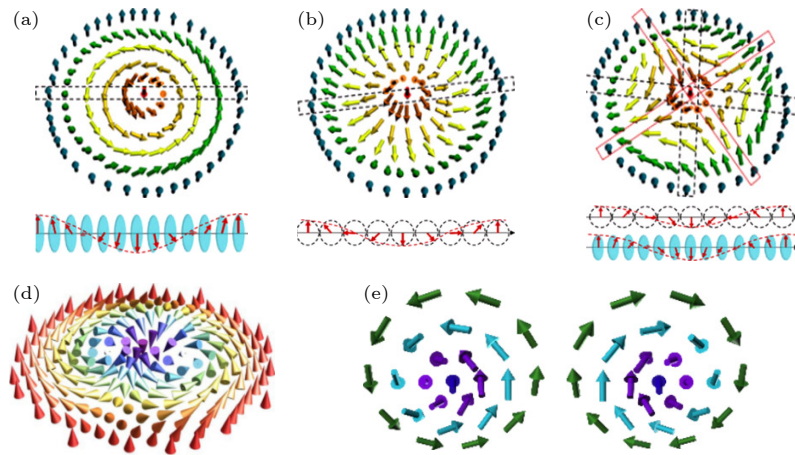


图 1 常见的拓扑磁畴结构自旋分布图 (a) 布洛赫型斯格明子^[3]; (b) Néel 型斯格明子^[3]; (c) 反斯格明子^[3]; (d) 双斯格明子^[10]; (e) 麦切^[11]

Fig. 1. Schematics of typical topological domain structures: (a) Bloch-type skyrmions^[3]; (b) Néel-type skyrmions^[3]; (c) anti-skyrmions^[3]; (d) biskyrmions^[10]; (e) meron^[11].

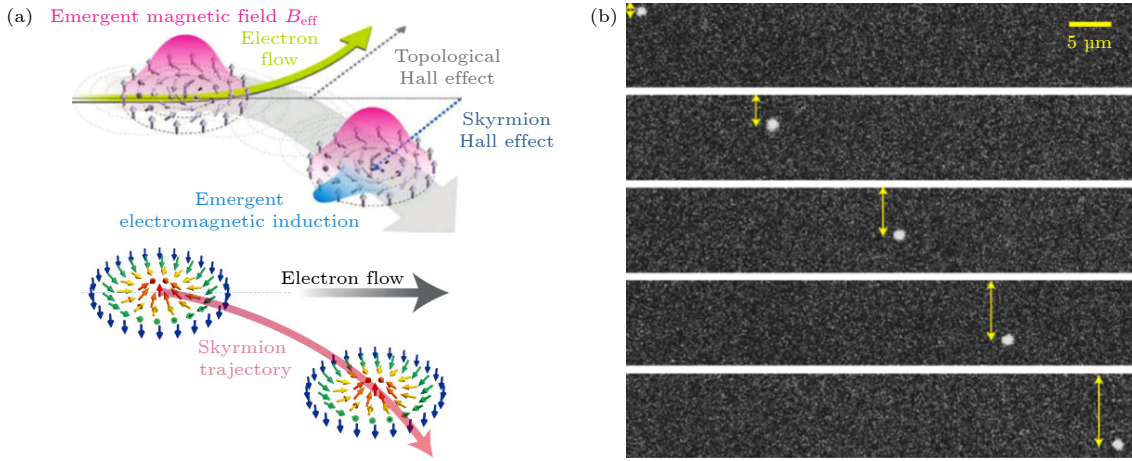


图 2 (a) 拓扑霍尔效应示意图^[1,27]; (b) 实验结果^[26]
 Fig. 2. (a) Schematics of topological Hall effect^[1,27]; (b) experiment results^[26].

上述不同材料体系中, 虽然导致拓扑磁畴结构生成的主要磁相互作用机制不同, 但我们发现各种磁相互作用竞争下产生长周期螺旋磁矩排列是形成拓扑磁畴结构的直接原因. 利用磁学领域中面内磁矩与垂直磁矩过渡时的自旋重取向 (spin reorientation transition, SRT) 有利于倾角磁矩生成的特性, 我们设计制备了系列 Pt/Co/Ta 多层膜样品, 通过增大铁磁 Co 层的厚度使样品磁各向异性经历由垂直到面内磁矩 SRT 转变, 发现斯格明子密度逐渐增大的同时, 其构型由 Néel 型到 Bloch 型过渡^[19], 充分验证了自旋重取向生成斯格明子的机制. 为了验证该机制的普适性, 我们在多种稀土磁体材料中也发现了自旋重取向诱发生成的拓扑磁畴结构^[24,28]. 除此之外, 我们还注意到传统的 180° 磁畴壁具有天然的磁矩螺旋过渡区域, 正好为半个周期的螺旋磁矩构型排布. 虽然未见磁畴壁拓扑结构的实验研究, 但 2013 年磁畴壁斯格明子的理论预测^[29,30] 为拓扑结构的研究提供了更多可能性.

2021 年在二维范德瓦耳斯 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 磁性材料中, 研究了温度降低过程中垂直/面内磁矩自旋重取向引起的磁畴结构变化, 实验发现无需磁场稳定的新型磁畴壁拓扑麦切链, 是由自旋重取向、天然螺旋磁矩排列的磁畴壁限域效应以及弱范德瓦耳斯力共同作用下由 180° 磁畴壁自发演变形成, 开辟了基于自旋重取向以及畴壁本征限域效应开展拓扑磁性物态探索和研究的新方向. 在该研究思路指导下, 进一步设计制备了不同成分的非晶亚铁磁 GdFeCo 薄膜, 可以通过调节稀土元素和过渡

金属元素的比例获得 SRT 温度在室温附近的样品, 温度变化过程中不仅再现零场磁畴壁麦切态, 还实现了磁畴壁拓扑麦切态与磁畴壁斯格明子在自旋重取向附近的可逆演变, 为研究新型畴壁拓扑态提供了更加便捷的材料体系. 新型磁畴壁拓扑态和独特外场动力学行为在与当前微电子工艺兼容性高的二维材料及薄膜材料中的实验发现, 有望实现未来自旋电子学信息技术的突破.

2 二维磁性材料 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中磁畴壁麦切链的研究

近几年, 二维范德瓦耳斯材料由于其新奇的物理特性和丰富的应用前景受到广泛关注^[31,32]. 在单层或少层二维材料中发现的长程磁有序为二维材料在未来自旋电子学设备中的应用提供了更多的可能性, 但 CrI_3 ^[33], $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ^[34] 和 VSe_2 ^[35] 材料的居里温度 (T_C) 较低, 而 Fe_nGeTe_2 ($n = 3, 4, 5$) 系列二维材料^[36-38] 居里温度接近室温并且具有大的反常霍尔效应^[39], Kondo 晶格^[40] 以及各向异性^[37] 等优异性能引起了极大的关注. 在探索新型拓扑磁畴结构和材料体系的过程中, 我们发现范德瓦耳斯二维磁体 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 在室温附近 ($T_C \sim 260-310$ K) 具有自旋重取向特征, 磁性测量结果显示了 ab 面和 c 方向磁矩随温度的变化, 进一步利用 L-TEM 研究了二维磁体 $(1\bar{1}0)$ 截面的磁畴随温度降低的演变行为, 发现 c 方向连续的 180° 畴壁在自旋重取向附近演变为孤立的麦切链 (meron chain), 如图 3 所示.

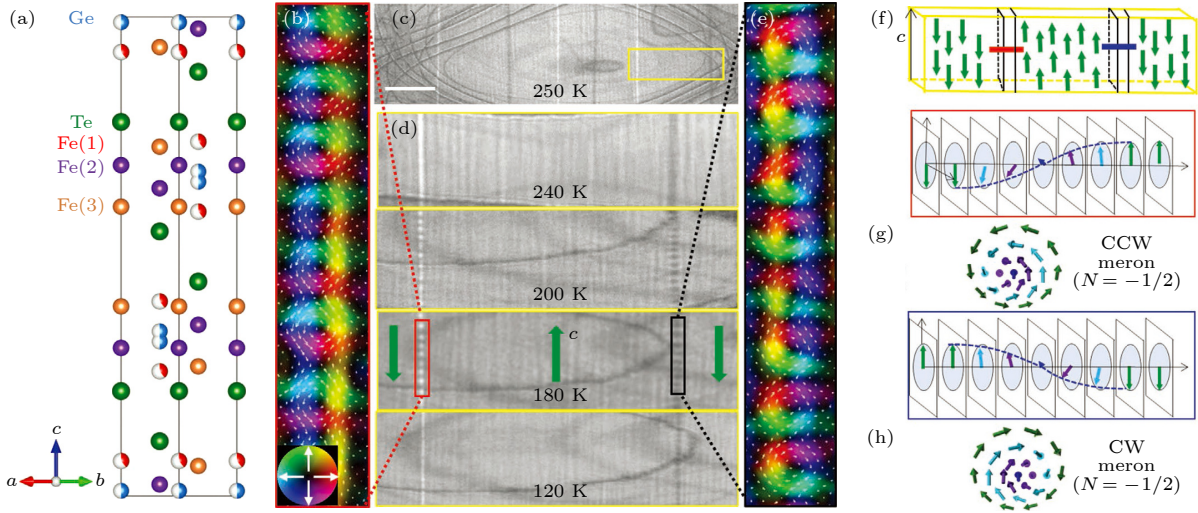


图 3 二维磁体 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 畴壁中的麦切链^[11] (a) $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 的晶体结构示意图, Fe(1) 和 Ge 位置被部分占据 (用色差表示); (b), (e) 180 K 下两条畴壁对中选定区域的 TIE 解析面内磁化分布 (箭头和颜色分别表示平面内磁化的方向和强度); (c) 250 K 面内 180° 畴壁的 L-TEM 图像衬度 (标尺为 $1\ \mu\text{m}$); (d) 麦切对在温度降低过程中的衬度演化; (f) 180° 畴壁的三维内部磁矩排布示意图; (g), (h) 两种手性 (顺时针和逆时针) 的麦切结构

Fig. 3. Meron chains inside domain walls in 2D ferromagnets $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ ^[11]: (a) Crystal structures of $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$, and the positions of Fe(1) and Ge is partially occupied (labelled by color difference); (b), (e) the in-plane magnetization resolved by TIE in the selected regions of two domain walls at 180 K (arrow and color represents direction and amplitude of in-plane magnetization respectively); (c) the L-TEM contrast of in-plane 180° domain walls at 250 K (the scale is $1\ \mu\text{m}$); (d) evolution of meron pair contrast during cooling process; (f) 3D distribution of magnetization inside 180° domain walls; (g), (h) merons with two different chirality (clockwise and anti-clockwise).

二维材料 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 具有中心对称的 $R\bar{3}m$ 空间群晶体结构 (图 3(a)), 其中沿 c 轴堆叠的 Fe-Ge-Te 层以较弱的层间范德瓦耳斯相互作用耦合. 在 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中, Fe(2) 和 Fe(3) 位置被完全占据, 但 Fe(1) 位置有明显的铁空位^[38,41]. 室温附近 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 为 c 轴磁各向异性, 磁畴结构以沿着 c 轴排列的传统 180° 磁畴为主 (图 3(c)). 降温过程中自旋重取向作用下诱发了 180° 畴壁逐渐断裂, 并在 180 K 时形成完全的畴壁麦切链 (图 3(d)), 表现出小尺寸 ($\approx 20\ \text{nm}$) 和高密度 ($\approx 24\ \mu\text{m}^{-1}$) 的特性. 通过欠焦和过焦时畴壁衬度的变化进一步利用强度输运方程 (transport of intensity equation, TIE) 解析, 在衬度明暗相反衬度的磁畴壁上分别得到逆时针和顺时针旋转排布的涡旋状面内磁矩构型 (图 3(b), (e)), 颜色和箭头分别表示面内磁矩方向和相对大小, 中间黑色区域代表中心磁矩朝向面外, 而边缘磁矩朝 c 方向, 与主体 180° 面内磁畴方向一致. 因此, 实空间解析获得的畴壁处由中间面外分布的磁矩到边缘面内磁矩过渡的涡旋型自旋结构, 是典型的麦切结构, 其非线性磁矩周期为正弦螺旋型的一半, 不同于整个正弦周期螺旋磁矩结构演变而来的斯格明子, 因此其具有的

拓扑数为 $-1/2$ ^[6,42]. 尽管根据 L-TEM 的解析结果不能确定中心面外磁矩的绝对极性, 但根据麦切的定义, 两处畴壁链的极性应该分别具有相同的朝内 (麦切) 或朝外 (反麦切) 的磁矩方向, 在这里统一用麦切对来表示. 麦切链的自发形成不需额外的磁场或 DM 相互作用, 是由于 Bloch 型 180° 畴壁本身具有天然半周期螺旋自旋构型 (图 3(f)), 同时受到垂直磁矩到面内磁矩过渡时的自旋重取向和 c 方向较弱的范德瓦耳斯力共同作用下的结果. 逆时针和顺时针两种手性麦切链成对出现, 单一畴壁上的麦切具有相同的手性和极性, 符合中心对称 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中的手性守恒 (图 3(g), (h)), 此处只给出中心磁矩朝内方向的结果. 畴壁麦切链的稳定温度区间在 $230\text{--}130\ \text{K}$, 温度继续降低时断开的麦切链衬度进一步演变为连续的 180° 畴壁衬度.

进一步通过物理性能测量研究了各向异性变化与上述麦切链形成过程的关联, 沿 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 单晶两个不同方向 ($H//c$ 和 $H//ab$) 的磁化率 ($\chi_c(T)$ 和 $\chi_{ab}(T)$) 温度依赖曲线 (图 4) 表明, 沿 c 轴方向的 $\chi_c(T)$ 在居里温度 T_C 附近突变, 之后进一步降低温度呈现出较弱的温度依赖性 (图 4(a)); 而 ab 方向的 $\chi_{ab}(T)$ 随温度变化明显, 在温度约为

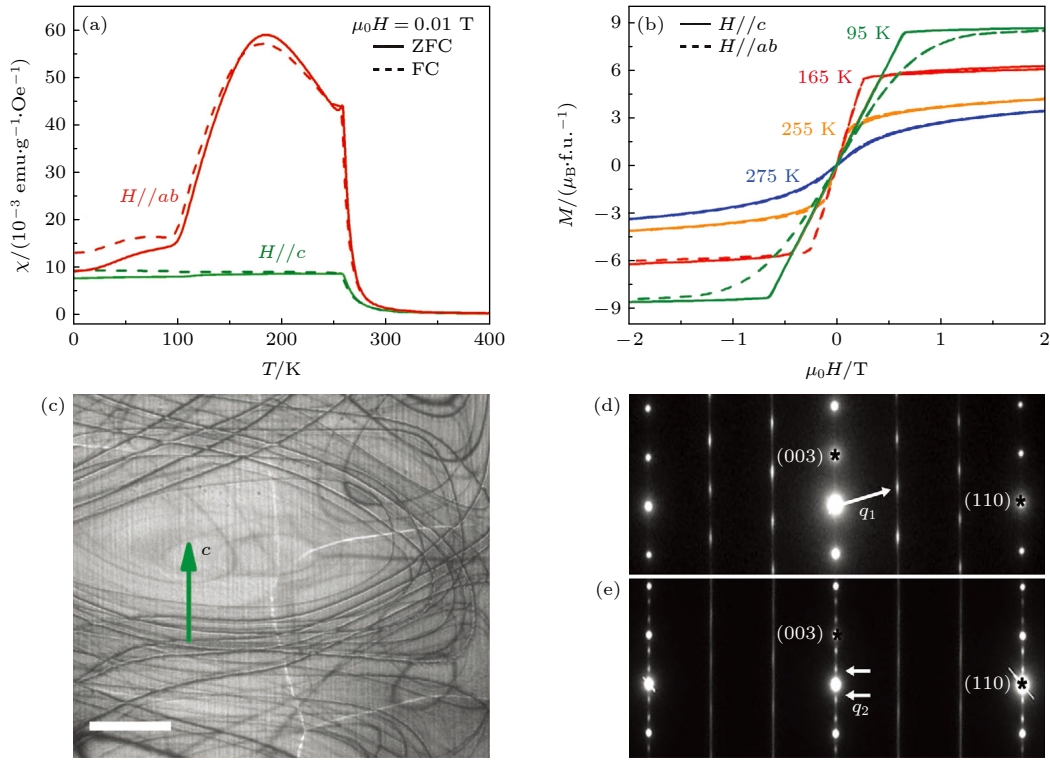


图 4 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中畴壁麦纳链生成的物理机制^[11] (a) 磁化率 χ 在磁场沿两个方向 ($H//c$ 和 $H//ab$) 时的温度依赖曲线; (b) 不同温度下磁场沿垂直方向和面内方向 ($H//c$ 和 $H//ab$) 的 $M-H$ 曲线; (c) 自旋重取向区间存在的平行和垂直于 c 轴的磁畴结构; (d), (e) 温度高于 100 K (d) 和低于 100 K (e) 时, $[110]$ 晶带轴的选区电子衍射图

Fig. 4. Origin of domain wall meron chains in $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ ^[11]: (a) Temperature dependence of magnetic susceptibility χ as the magnetic field along two directions ($H//c$ and $H//ab$); (b) $M-H$ curve as magnetic fields along out-of-plane and in-plane direction ($H//c$ and $H//ab$) at different temperature; (c) directions of domains parallel and perpendicular to c axis during SRT; (d), (e) SAED patterns of $[110]$ ribbon axis at temperature above 100 K (d) and below 100 K (e).

258 K 处开始出现尖峰, 该温度正好为畴壁麦纳链出现的温度点, 同时尖峰顶端对应温度 $T \approx 180$ K 处与图 3(d) 中麦纳对完全分离稳定的温度点吻合. 随着温度进一步降低至 $T < 100$ K, $\chi_{ab}(T)$ 曲线陡然下降, 并与 $\chi_c(T)$ 数值相当, 此时对应磁畴壁上的麦纳链消失. 此外, 两个方向测量的等温 $M-H$ 曲线 (图 4(b)) 可以看出, 275 K 时 $M_{ab}(\mu_0H)$ 和 $M_c(\mu_0H)$ 的饱和场大小 μ_0H_s 基本相同, 而在 100—260 K 温区内, ab 方向的饱和场小于 c 方向, 说明磁矩排布逐渐由 c 方向逐渐转到 ab 面内, 样品面内磁各向异性占主导, 由于热扰动以及高温磁矩变弱, 两个方向磁矩在磁滞回线上的差别表现并不显著, 但自旋重取向转变过程中原位观察两个方向出现的磁畴结构清楚直观显示了自旋重取向转变过程, 如图 4(c) 所示. 温度低于 100 K, 两个方向的 $M-H$ 曲线变化趋势相反且差异变得更加明显, 此时 c 方向的饱和场变得更小, 即易磁化轴变为 c 轴. 综合上述测量结果可以确定降温过程中自旋重取向的转变与倾角的麦纳态出现有直接的关

联, 与之前的理论和实验研究结果一致^[5,6]. 相比于手性磁体中需要 DMI 以及外磁场辅助才能产生拓扑磁畴结构, 中心对称二维范德瓦耳斯材料 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中, 通过降温自发形成的畴壁麦纳链结构将极大推进器件应用.

变温过程中面内磁化率随温度的剧烈变化可能与 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中 Fe(1) 位置的局部结构和磁性演化密切相关. 图 4(d), (e) 分别为温度高于和低于 100 K 时 $[110]$ 晶带轴选区电子衍射 (selected area electron diffraction, SAED) 结果. 温度在 100 K 以上时调制矢量为 $\mathbf{q}_1 = \pm 1/3 (1, 1, 3)$ 的电子衍射斑点和沿 $1/3 (1, 1, 1)$ 方向的弥散衍射线出现. 电子衍射调制结构主要是由较为无序的层内 Fe(1) 空位引入, 最终导致了面内磁化分量的显著增强, 此时 c 方向的原子有序调制结构还未形成. 当温度低于 100 K 时 c 方向额外出现的 $\mathbf{q}_2 = \pm 3/10 (0, 0, 31)$ 调制结构电子衍射斑点揭示了该方向 Fe 空位的长程有序, 与 100 K 附近的一级相变一致. Fe(1) 位在层间空位有序导致磁矩沿 c 轴

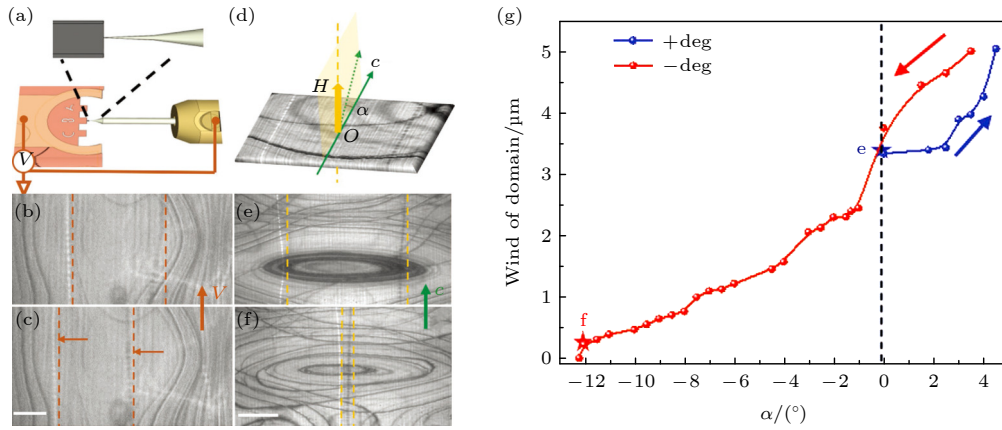


图 5 麦勃链的动力学行为^[11] (a) 样品施加电压的电路结构示意图; (b), (c) 麦勃链在电压作用后的位置变化; (d) 沿 c 轴倾斜样品引入磁场的示意图; (e), (f) 固定垂直磁场为 0.02 T 下, 畴壁麦勃链在样品倾斜角度为 4° 和 -12° 的位置分布; (g) 畴壁麦勃链间距随倾斜角的变化 (标尺为 500 nm)

Fig. 5. Dynamic behavior of meron chains^[11]: (a) Schematics of circuit when applying; (b), (c) position change of meron chains after applying voltage; (d) schematics of introduced magnetic field with sample tilted along c -axis; (e), (f) distribution of domain wall meron chain positions at the sample tilted angle of 4° and -12° with fixed perpendicular field of 0.02 T; (g) interval between domain wall meron chains with the variation of tilted angle (The scale bar is 500 nm).

长程有序排列, 此时 c 轴各向异性明显增强, 最终导致了麦勃链的消失. 这些实验结果表明, 自旋重取向过程中磁矩的重排, 沿 c 轴范德瓦尔斯弱相互作用以及畴壁本身独特的螺旋有序排列特征共同导致了畴壁 (反) 麦勃链的产生. 相应的电学测试结果也表明 Fe(1) 亚晶格的有序排列不仅改变了磁各向异性还导致了电子自旋散射速率、电子结构和费米表面的剧烈变化. $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中麦勃链的产生与其晶体结构、磁性和电子结构的变化之间存在很强的耦合关系.

进一步实验研究了沿 c 轴的畴壁麦勃链在电压和磁场等外场作用下的动力学行为. 图 5(a) 为对样品施加电压的示意图, 探针接触样品后施加电压. 图 5(b) 为从低温原位施加电压的视频中提取出的洛伦兹透射电子显微镜图. 将样品降温至 200 K 形成完全麦勃链后施加电压, 电压加到 5 V 时, 观察到麦勃链对沿着垂直于电场方向的集体位移, 之间的距离由开始的 $1.4 \mu\text{m}$ (图 5(b)) 缩减为 $1.1 \mu\text{m}$ (图 5(c)). 麦勃链横向移动可能由电压作用在具有相同拓扑数的麦勃对上产生的马格努斯力导致, 其表现出的集体运动与理论预测畴壁斯格明的行为一致^[29,30]. 畴壁麦勃链的电学驱动行为展示了其与器件应用的兼容性, 麦勃链受斯格明子霍尔效应影响下的集体运动行为也保证了信息的完整性.

沿 c 轴方向磁场的引入可以通过在施加垂直

方向磁场的前提下倾斜样品实现. 图 5(d) 为样品、 c 轴方向和外磁场三方相对夹角示意图 (定义为 α). 垂直方向磁场通过增加透射电子显微镜的物镜电流施加, 大小约为 0.02 T, 倾斜样品引入磁场在样品面内的分量进而调控畴壁麦勃链之间的间距. 图 5(d)–(f) 展示了倾斜角度增大过程中磁性麦勃链位置的显著变化, 图 5(g) 定量记录了不同旋转倾角下两条麦勃链的相对位置. 由图中可看出畴壁麦勃链的临界交换长度决定了其能稳定存在的最小相对距离, 约为 200 nm. 在临界距离以上麦勃链的相对距离可以通过改变 c 方向的磁场大小来实现重复调节, 而在该距离以下麦勃对发生耦合湮灭. 畴壁拓扑磁畴结构随外场尤其与器件兼容性好的电压下的集体运动行为, 可以保证信息的完整性, 其临界交换长度对畴壁结构动力学进一步的理论计算和实验应用提供了研究基础.

3 非晶亚铁磁薄膜 GdFeCo 中磁畴壁拓扑磁畴结构的研究

现有电子器件的构建主要基于薄膜材料体系, 在薄膜中研究拓扑磁畴结构更方便未来信息技术的集成和应用. 薄膜体系具有制备便捷, 表征手段丰富等优势, 可以通过改变薄膜材料的制备条件、薄膜厚度、结构单元、重复周期等方法, 更灵活地控制材料的磁性能参数、自旋重取向转变温区等特

性从而调控拓扑磁畴结构的稳定区间、尺寸密度等特性. 基于前期二维材料 FeGeTe 中总结的磁矩自旋重取向, 弱相互作用以及畴壁位置独特的螺旋自旋排列特征共同作用产生畴壁麦顿的机制, 设计制备了系列具有自旋重取向的 GdFeCo 非晶亚铁磁薄膜, 拓展到器件集成技术更兼容的磁性薄膜体系. GdFeCo 具有垂直磁各向异性和较高的载流子噪声比, 被广泛应用于热辅助磁记录 (HAMR)、超快磁开关和逻辑存储器等领域^[43-45]. 稀土元素和过渡金属元素两套磁矩子晶格组成的磁矩反平行排列, 温度诱导的自旋重取向及可能的体 DMI 使得 GdFeCo 材料成为拓扑磁畴结构研究的热点, 通过调节稀土元素 Gd 和过渡金属元素 FeCo 之间的相对比例, 可以很方便地调控其垂直各向异性和自旋重取向温区.

磁控溅射过程中调节稀土和过渡金属之间的成分比例, 生长了一系列具有不同自旋重取向温区的 GdFeCo 非晶薄膜样品, 样品厚度为 40 nm, 利用 L-TEM 进行了系统的磁畴结构研究, 温度升高过程中样品的各向异性由面内向垂直方向转变, 在各个样品的自旋重取向温区内都观测到了畴壁麦顿对与斯格明子之间的可逆转化. 低于自旋重取向

转变温度时, 样品为面内磁各向异性, 磁畴结构以面内畴为主, 所以两畴分界处呈现出单色的电镜畴壁衬度 (黑或白), 即 180°畴壁衬度, 利用强度输运方程解析, 得到较强的面内磁矩分布 (图 6(f)), 证实了样品在该温度下较强的面内各向异性^[46]. 随着温度上升, 样品的磁各向异性向面外方向转变, 如图 6(a)–(e) 所示^[46]. 对图 6(e) 中畴壁两侧的磁畴结构进行相同条件下的磁结构解析, 发现图 6(j) 中的面内磁矩分量相较于 243 K 明显减弱, 表明磁矩偏向面外方向. 与传统 180°畴壁不同, 该样品的磁畴壁位置出现了成对的亚结构, 分别为黑色圆形衬度以及白色条状衬度, 如图 6(a) 所示^[46]. 温度升高的过程中白色衬度逐渐消失. 由强度输运方程解出的面内磁矩分量排布和变化表明磁畴壁亚结构磁矩的涡旋状排列方式以及磁矩在 z 方向上的连续性旋转, 证实了麦顿对与斯格明子之间的转变. 即在相互作用较弱的非晶薄膜中实现了磁畴壁麦顿链的生成, 验证了前期在 FeGeTe 中总结的实验规律和结论, 并且利用自旋重取向转变, 进一步实现了畴壁麦顿对与畴壁斯格明子不同拓扑态间的可逆转化, 其他组分中出现了同样的现象, 这表明该方法的普遍性和可靠性.

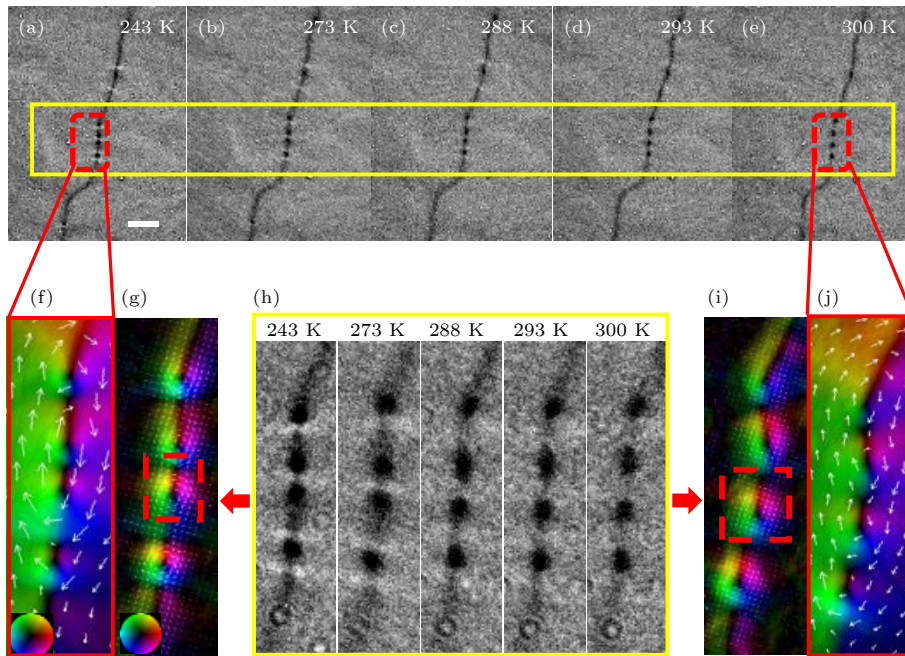


图 6 随温度变化畴壁麦顿对与畴壁斯格明子之间转化^[46] (a)–(e) 不同温度时, 样品 $\text{Gd}_{15+x}(\text{Fe}_{94}\text{Co}_6)_{85-x}$ ($x = 0.2$) 在 L-TEM 下的磁畴壁衬度; (f), (g) 243 K 畴壁两侧和内部磁矩强度输运方程解析结果; (h) 图 (a)–(e) 中黄框部分放大; (i), (j) 300 K 畴壁两侧和内部磁矩强度输运方程解析结果 (标尺为 2 μm)

Fig. 6. Meron pair contrast change with temperature^[46]: (a)–(e) Evolution of domain wall L-TEM contrast with temperature in $\text{Gd}_{15+x}(\text{Fe}_{94}\text{Co}_6)_{85-x}$ ($x = 0.2$); (f), (g) TIE results inside and outside domain walls at 243 K; (h) enlarged part of yellow box in panels (a)–(e); (i), (j) TIE results inside and outside domain walls at 300 K (The scale bar is 2 μm).

利用 OOMMF 软件进行微磁学数值模拟计算, 进一步总结了畴壁处拓扑磁畴结构转变的规律. 首先利用实验测得的 $M-H$ 曲线提取出自旋重取向转变温区附近的饱和磁化强度 M_s 和垂直各向异性常数 K_u (图 7(a))^[46]. 此处讨论的 K_u 为薄膜在制备工艺过程中引入的本征垂直各向异性常数, 不包含退磁能的影响, 故其数值始终大于零. 以麦切对为初始态, 研究不同 K_u 和 M_s 下涡旋状麦切的拓扑数 (N_s) 变化, 得到了如图 7(b) 所示的相图, 其中颜色越深的部分代表磁畴结构的拓扑数越高^[46]. 图 7(a) 中 4 个温度对应的实验 M_s 和 K_u 值刚好位于相图中麦切向斯格明子转变的区域 (图 7(b) 的红色菱形标志). 说明磁畴壁处拓扑结构的转变是由自旋重取向转变过程中垂直各向异性和饱和磁化强度变化共同决定的, 微磁学模拟相对应的 270—300 K 麦切对 (图 7(d)) 到斯格明子 (图 7(g))

的磁结构演化可以清楚表明拓扑数由麦切态 -0.5 到斯格明子 1 的变化过程, 并且磁性麦切态和斯格明子态的洛伦兹图像衬度的模拟结果也与实验结果一致 (图 7(c), (h))^[46].

不同品质因子 F_q 下磁畴壁的系统演变模拟结果如图 8 所示, 其中 $F_q = 2K_u/\mu_0 M_s^2$, F_q 为垂直各向异性和饱和磁化强度影响的形状各向异性的相对大小. 可以看到在 $F_q = 1$ 的两侧, 两者能量上分别占据主导地位, 对应面内和垂直两个方向自旋重取向转变的整个过程, 图 7(a) 中实验测量的 K_u 和 M_s 值对应 F_q 值及磁畴结构演变被重点标出, 在 F_q 趋近于 1 时, 磁矩更易处于倾角的状态, 有利于斯格明子的稳定^[47]. 当 F_q 值大于 1 时自旋重取向到垂直磁各向异性, 磁矩主要沿垂直方向排列, 磁畴壁结构消失, 垂直方向的传统磁畴出现, 拓扑数为 0.

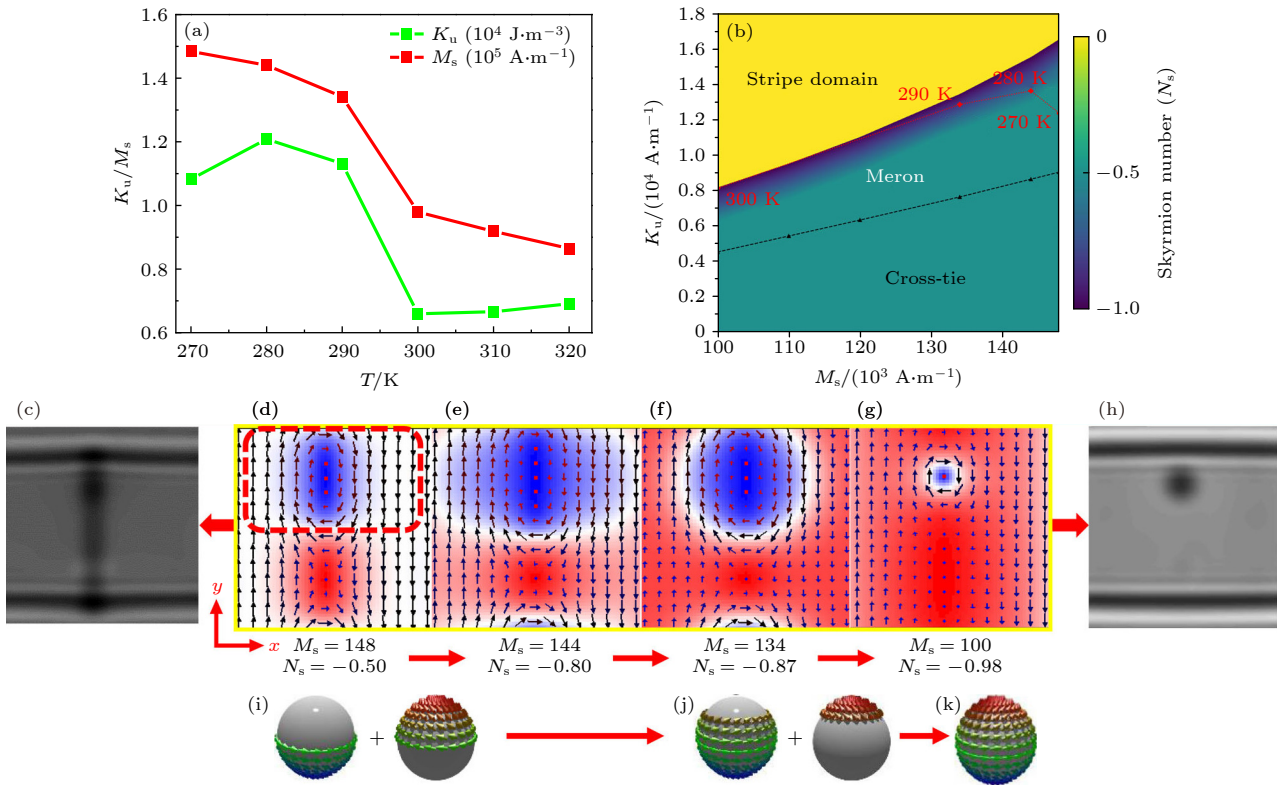


图 7 磁性参数变化决定的磁畴壁拓扑结构演变及微磁学模拟结果^[46] (a) $\text{Gd}_{15+x}(\text{Fe}_{90}\text{Co}_6)_{85-x}$ ($x = 0.2$) 样品不同温度下的单轴各向异性常数 K_u 和饱和磁化强度 M_s 实验数据; (b) 不同 K_u 和 M_s 下麦切对拓扑数演化结果相图及实验中自旋重取向转变温区所在区域; (c), (h) L-TEM 衬度模拟结果; (d)–(g) 270—300 K 麦切对到斯格明子的模拟畴壁演化, 面外磁化由红色 ($+m_z$) 和蓝色 ($-m_z$) 表示, 面内磁化由白色区域和黑色箭头表示; (i)–(k) 对应的自旋结构示意图立体投影

Fig. 7. Micromagnetic simulation results of domain wall topological transition^[46]: (a) Experimental data of anisotropy constant K_u and saturation magnetization M_s at different temperature in $\text{Gd}_{15+x}(\text{Fe}_{90}\text{Co}_6)_{85-x}$ ($x = 0.2$); (b) the phase diagram of topological transition starting from meron pair at different K_u and M_s value and the SRT regions observed in experiment; (c), (h) simulation results of corresponding L-TEM contrast; (d)–(g) evolution from meron pairs to skyrmions by simulation at 270–300 K, the out-of-plane magnetization is indicated by red ($+m_z$) and blue ($-m_z$), the in-plane magnetization is indicated by white region and black arrows; (i)–(k) 3D schematics of corresponding spin structures.

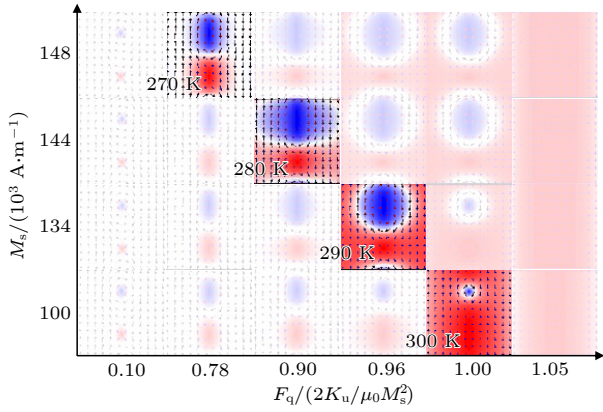

 图 8 不同 F_q 值下畴壁拓扑结构演化的微磁学模拟结果^[46]

Fig. 8. Simulated topological domain evolution in domain wall for different value of F_q ^[46].

进一步对磁畴壁拓扑结构形成机制进行分析, 我们认为低温下畴壁麦柯对的稳定和形成与畴壁中的布洛赫线 (Bloch line) 有关. 在缺乏 DMI 的材料体系中, 同一条畴壁上的手性不一致会导致布洛赫线的产生. 布洛赫线的间距由材料本身的参数决定, 该薄膜体系中高密度的布洛赫线将面内的布洛赫畴壁切割, 分割的部分组成一系列麦柯和反麦柯亚结构, 如图 9 所示. 麦柯的尺寸由布洛赫线间距和畴壁的宽度决定, 以 270 K 的 M_s 和 K_u 的值为初始值, 以随机态为初始态的微磁学模拟结果如图 9(b), (e) 所示, 磁畴壁内部极性相反的麦柯对结构会自然交替出现, 且麦柯的尺寸固定, 与实验及理论分析结果一致.

磁畴壁拓扑磁畴结构在电流下的动力学行为

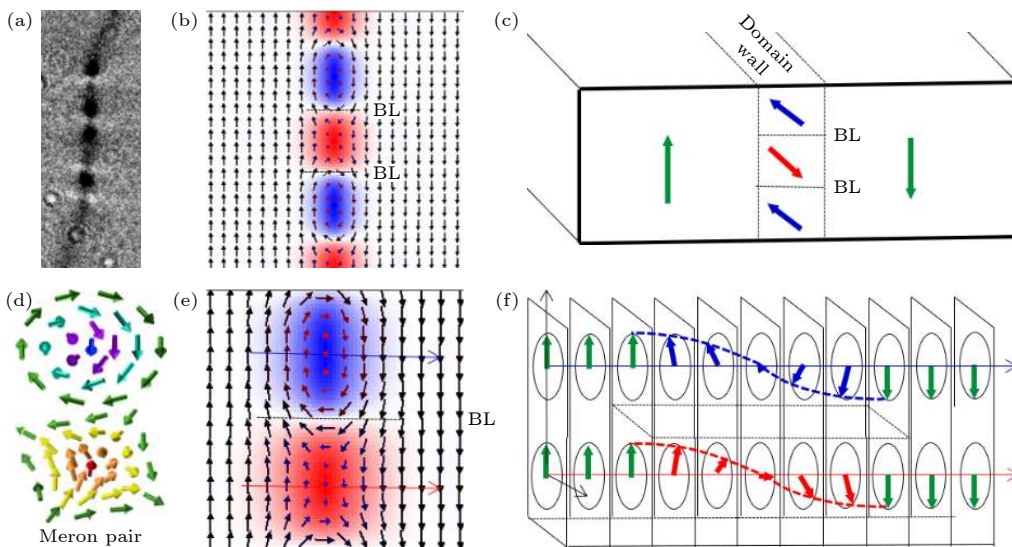

 图 9 畴壁麦柯链结构及生成机理示意图^[46]

Fig. 9. Schematics of domain meron pair and its forming mechanism^[46].

有望克服斯格明子霍尔效应引起的偏转. 在 OOMMF 利用带有绝热和非绝热自旋转移力矩项的 LLG 方程^[48] 构建微磁学模拟模型:

$$\dot{\mathbf{m}} = \gamma_0 \mathbf{H} \times \mathbf{m} + \alpha \mathbf{m} \times \dot{\mathbf{m}} - (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{m} + \beta \mathbf{m} \times [(\mathbf{u} \cdot \beta) \mathbf{m}],$$

式中, γ_0 为旋磁比常数; \mathbf{H} 代表微磁学中总的有效场, 包括外部磁场、交换作用场、各向异性场等; \mathbf{m} 单位矢量表示局部磁化强度; α 和 β 分别是 Gilbert 阻尼因子和非绝热系数; \mathbf{u} 定义为电子的速度矢量. \mathbf{u} 的幅值与电流密度 J 和极化 P 的大小成正比, 其对应的换算关系为

$$u = JPg\mu_B / (2eM_s),$$

其中, $M_s = 1 \times 10^5$ A/m, $A = 7$ pJ/m, $P = 0.4$, 阻尼系数 $\alpha = 0.1$, $\beta = 0.04$. 电子极化率极化 P 、阻尼系数 α 和非绝热自旋转移力矩系数 β 选取 OOMMF 求解器中默认数值. 图 10 为微磁学模拟结果, 在电流密度为 10^{11} A/m², 对应电子速度为 100 m/s 的恒定电流影响下, 斯格明子受 STT 驱动沿磁畴壁运动, 侧向偏转角度仅为 0.03° , 说明畴壁的限制作用有效地克服了斯格明子霍尔效应, 有望应用在磁性信息器件.

为验证理论模拟结果, 在实验中施加 32 mA 直流电, 首次观测到畴壁斯格明子在电流作用下沿着畴壁方向蠕动, 并在电流关闭后能被明显观察到与初始态的相对位移, 即图 11 中红色、黄色和绿色圆框分别标注的畴壁上 3 个斯格明子在不同时间段的位置变化. 但由于样品中缺陷等因素对畴壁

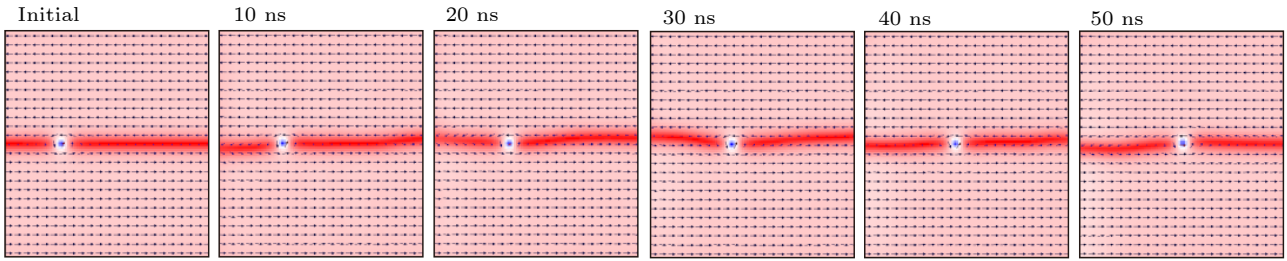


图 10 微磁学模拟下电流驱动下畴壁斯格明子随时间的位移^[46]
 Fig. 10. Simulated drift of domain wall skyrmions with time under applied current^[46].

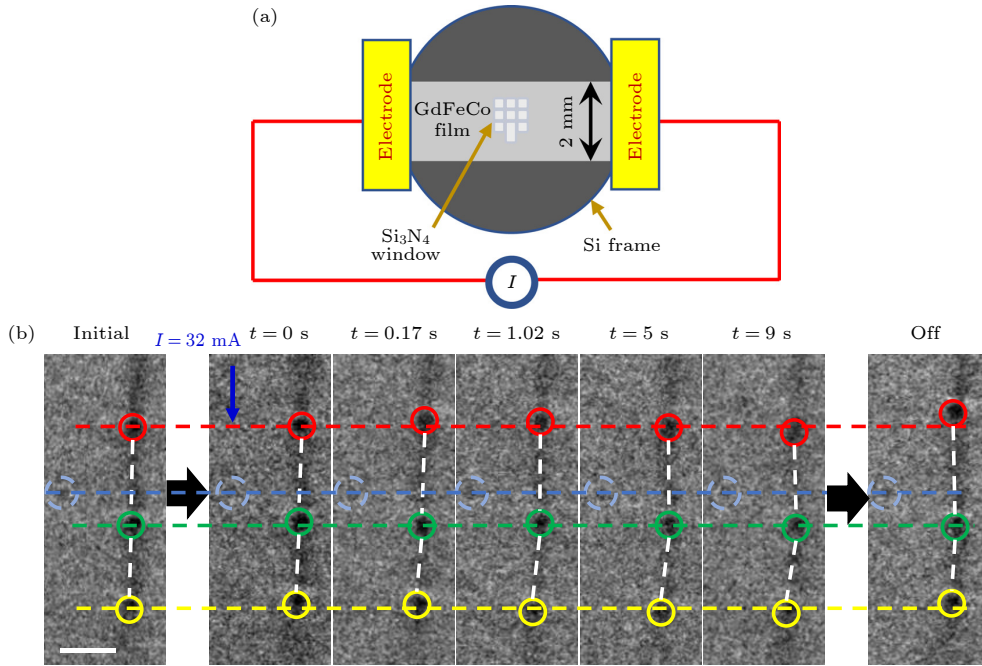


图 11 电流调控实验结果^[46] (a) 原位电流实验示意图; (b) 畴壁斯格明子在 32 mA 直流下不同时间点的位置变化 (标尺为 500 nm)
 Fig. 11. Experimental results under electric stimulus^[46]: (a) Schematics of *in-situ* current experiments; (b) position change of domain wall skyrmions at different time under 32 mA DC (The scale bar is 500 nm).

结构的钉扎效应, 我们并未观察到微磁学模拟中的斯格明子连续长距离的移动. 如果进一步增大电流幅值, 就会实现了 STT 诱导的自旋重取向转变. 因此, 如何设计材料和器件从而有效克服钉扎效应实现斯格明子沿磁畴壁的信息传输是下一步要解决的重要问题.

4 总结与展望

利用洛伦兹透射电子显微技术及多场辅助调控, 系统研究了二维材料中磁畴壁处拓扑磁畴结构的生成和转化, 并利用磁性测量、微磁学模拟等手段对其物理机理进行了深入探讨. 在范德瓦耳斯中心对称二维磁体 $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ 中, 通过降温诱发自旋重取向, 实现了零场下 180° 磁畴壁到 (反) 麦

链的转变, 揭示了一种新颖的磁畴壁限域效应生成新型拓扑磁畴结构的机制. 依据自旋重取向、弱相互作用和磁畴壁限制对畴壁拓扑结构的关键机制, 设计制备非晶亚铁磁 GdFeCo 薄膜, 实现了畴壁麦韧对的可控生成以及与斯格明子之间的拓扑转变, 为基于磁畴壁限制作用以及天然磁畴壁螺旋磁矩排列生成畴壁拓扑结构提供了重要实验及理论依据, 在自旋电子学及存储领域具有潜在的应用价值. 理论提出磁畴壁斯格子数年之后^[31], 新型磁畴壁拓扑态在与当前微电子工艺兼容性高的二维材料中的实验发现, 有望实现未来自旋电子学信息技术的突破. 磁畴壁特有的外场调控下集体行为的实验研究, 对畴壁内拓扑结构动力学的理解及其在电子学、自旋电子学存储中的应用创造了更多机遇.

参考文献

- [1] Nagaosa N, Tokura Y 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 899
- [2] Yu X Z, Onose Y, Kanazawa N, Park J H, Han J H, Matsui Y, Nagaosa N, Tokura Y 2010 *Nature* **465** 901
- [3] Nayak A K, Kumar V, Ma T, Werner P, Pippel E, Sahoo R, Damay F, Rossler U K, Felser C, Parkin S S P 2017 *Nature* **548** 561
- [4] Lin S Z, Hayami S 2016 *Phys. Rev. B* **93** 064430
- [5] Yu X Z, Koshibae W, Tokunaga Y, Shibata K, Taguchi Y, Nagaosa N, Tokura Y 2018 *Nature* **564** 95
- [6] Lin S Z, Saxena A, Batista C D 2015 *Phys. Rev. B* **91** 224407
- [7] Fert A, Cros V, Sampaio J 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 152
- [8] Jonietz F, Mühlbauer S, Pfleiderer C, Neubauer A, Münzer W, Bauer A, Adams T, Georgii R, Böni P, Duine R A, Everschor K, Garst M, Rosch A 2010 *Science* **330** 1648
- [9] Lin S Z, Reichhardt C, Batista C D, Saxena A 2013 *Phys. Rev. B* **87** 214419
- [10] Irolart E, Rosales H D 2023 *J. Phys. Condens. Matter* **35** 045601
- [11] Gao Y, Yin Q W, Wang Q, Li Z L, Cai J W, Zhao T Y, Lei H C, Wang S G, Zhang Y, Shen B G 2020 *Adv. Mater.* **32** e2005228
- [12] Skyrme T H R 1962 *Nucl. Phys.* **31** 556
- [13] Rößler U K, Bogdanov A N, Pfleiderer C 2006 *Nature* **442** 797
- [14] Mühlbauer S, Binz B, Jonietz F, Pfleiderer C, Rosch A, Neubauer A, Georgii R, Boni P 2009 *Science* **323** 915
- [15] Yu X Z, Tokunaga Y, Kaneko Y, Zhang W Z, Kimoto K, Matsui Y, Taguchi Y, Tokura Y 2014 *Nat. Commun.* **5** 3198
- [16] Zheng F, Rybakov F N, Borisov A B, Song D, Wang S, Li Z A, Du H, Kiselev N S, Caron J, Kovacs A, Tian M, Zhang Y, Blugel S, Dunin-Borkowski R E 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 451
- [17] Yu X Z, Kanazawa N, Onose Y, Kimoto K, Zhang W Z, Ishiwata S, Matsui Y, Tokura Y 2011 *Nat. Mater.* **10** 106
- [18] Boulle O, Vogel J, Yang H, et al. 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 449
- [19] He M, Li G, Zhu Z Z, Zhang Y, Peng L, Li R, Li J, Wei H, Zhao T Y, Zhang X G, Wang S G, Lin S Z, Gu L, Yu G, Cai J W, Shen B G 2018 *Phys. Rev. B* **97** 174419
- [20] Moreau-Luchaire C, Mouta S C, Reyren N, Sampaio J, Vaz C A, van Horne N, Bouzehouane K, Garcia K, Deranlot C, Warnicke P, Wollhüter P, George J M, Weigand M, Raabe J, Cros V, Fert A 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 444
- [21] Peng L C, Zhang Y, Wang W H, He M, Li L L, Ding B, Li J Q, Sun Y, Zhang X G, Cai J W, Wang S G, Wu G H, Shen B G 2017 *Nano Lett.* **17** 7075
- [22] Kurumaji T, Nakajima T, Hirschberger M, Kikkawa A, Yamasaki Y, Sagayama H, Nakao H, Taguchi Y, Arima T H, Tokura Y 2019 *Science* **365** 914
- [23] Hirschberger M, Nakajima T, Gao S, Peng L, Kikkawa A, Kurumaji T, Kriener M, Yamasaki Y, Sagayama H, Nakao H, Ohishi K, Kakurai K, Taguchi Y, Yu X, Arima T H, Tokura Y 2019 *Nat. Commun.* **10** 5831
- [24] Li Z L, Yin Q W, Jiang Y, Zhu Z Z, Gao Y, Wang S G, Shen J, Zhao T Y, Cai J W, Lei H C, Lin S Z, Zhang Y, Shen B G 2023 *Adv. Mater.* **35** 2211164
- [25] Schulz T, Ritz R, Bauer A, Halder M, Wagner M, Franz C, Pfleiderer C, Everschor K, Garst M, Rosch A 2012 *Nat. Phys.* **8** 301
- [26] Jiang W J, Zhang X C, Yu G Q, Zhang W, Wang X, Jungfleisch M B, Pearson J M, Cheng X M, Heinonen O, Wang K L, Zhou Y, Hoffmann A, te Velthuis S G E 2016 *Nat. Phys.* **13** 162
- [27] Chen G 2017 *Nat. Phys.* **13** 112
- [28] Shelukhin L A, Gareev R R, Zbarsky V, Walowski J, Münzenberg M, Pertsev N A, Kalashnikova A M 2022 *Nanoscale* **14** 8153
- [29] Cheng R, Li M, Sapkota A, Rai A, Pokhrel A, Mewes T, Mewes C, Xiao D, De Graef M, Sokalski V 2019 *Phys. Rev. B* **99** 184412
- [30] Jennings P, Sutcliffe P 2013 *J. Phys. A Math. Theor.* **46** 465401
- [31] Han W, Kawakami R K, Gmitra M, Fabian J 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 794
- [32] Ohno H, Chiba D, Matsukura F, Omiya T, Abe E, Dietl T, Ohno Y, Ohtani K 2000 *Nature* **408** 944
- [33] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H, Yao W, Xiao D, Jarillo-Herrero P, Xu X D 2017 *Nature* **546** 270
- [34] Gong C, Li L, Li Z L, Ji H W, Stern A, Xia Y, Cao T, Bao W, Wang C Z, Wang Y, Qiu Z Q, Cava R J, Louie S G, Xia J, Zhang X 2017 *Nature* **546** 265
- [35] Bonilla M, Kolekar S, Ma Y, Diaz H C, Kalappattil V, Das R, Eggers T, Gutierrez H R, Phan M H, Batzill M 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 289
- [36] Seo J, Kim D Y, An E S, Kim K, Kim G Y, Hwang S Y, Kim D W, Gyu J B, Kim H, Eom G, Seo S Y, Stania R, Muntwiler Ms, Lee J, Watanabe K, Taniguchi T, Jo Y J, Lee J, Min B I, Jo M H, Yeom H W, Choi S Y, Shim J H, Kim J S 2020 *Sci. Adv.* **6** eaay8912
- [37] Deng Y J, Yu Y J, Song Y C, Zhang J Z, Wang N Z, Sun Z Y, Yi Y F, Wu Y Z, Wu S W, Zhu J Y, Wang J, Chen X H, Zhang Y B 2018 *Nature* **563** 94
- [38] May A F, Ovchinnikov D, Zheng Q, Hermann R, Calder S, Huang B, Fei Z Y, Liu Y H, Xu X D, McGuire M A 2019 *ACS Nano* **13** 4436
- [39] Kim K, Seo J, Lee E, Ko K T, Kim B S, Jang B G, Ok J M, Lee J, Jo Y J, Kang W, Shim J H, Kim C, Yeom H W, Il Min B, Yang B J, Kim J S 2018 *Nat. Mater.* **17** 794
- [40] Zhang Y, Lu H Y, Zhu X J, Tan S Y, Feng W, Liu Q, Zhang W, Chen Q Y, Liu Y, Luo X B, Xie D H, Luo L Z, Zhang Z J, Lai X C 2018 *Sci. Adv.* **4** eaao6791
- [41] Zhuang H L, Kent P R C, Hennig R G 2016 *Phys. Rev. B* **93** 134407
- [42] Gao N, Je S G, Im M Y, Choi J W, Yang M, Li Q, Wang T Y, Lee S, Han H S, Lee K S, Chao W, Hwang C, Li J, Qiu Z Q 2019 *Nat. Commun.* **10** 5603
- [43] Radu I, Vahaplar K, Stamm C, Kachel T, Pontius N, Durr H A, Ostler T A, Barker J, Evans R F, Chantrell R W, Tsukamoto A, Itoh A, Kirilyuk A, Rasing T, Kimel A V 2011 *Nature* **472** 205
- [44] Stanciu C D, Hansteen F, Kimel A V, Kirilyuk A, Tsukamoto A, Itoh A, Rasing T 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 047601
- [45] Meiklejohn W 1986 *Proc. IEEE* **73** 1570
- [46] Li Z L, Su J, Lin S Z, Liu D, Gao Y, Wang S G, Wei H X, Zhao T Y, Zhang Y, Cai J W, Shen B G 2021 *Nat. Commun.* **12** 5604
- [47] Yu G, Upadhyaya P, Li X, Li W, Kim S K, Fan Y, Wong K L, Tserkovnyak Y, Amiri P K, Wang K L 2016 *Nano Lett.* **16** 1981
- [48] Sampaio J, Cros V, Rohart S, Thiaville A, Fert A 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 839

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Research progress in the magnetic domain wall topology*Zhang Ying[†] Li Zhuo-Lin Shen Bao-Gen*(State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)*

(Received 7 October 2023; revised manuscript received 21 December 2023)

Abstract

Topological magnetic skyrmions, as information units, possess distinct advantages such as high reliability, enhanced integration, and low energy consumption. These novel topological characteristics offer critical material and technological support for the rapid development of information technology, 5G communication, and big data. However, the application of magnetic skyrmions in practical devices is severely impeded by certain limitations, including their stability dependence on magnetic field and the deflection caused by the skyrmion Hall effect under electric current. Consequently, exploring new topological magnetic domain structures and material systems suitable for application becomes a pivotal area of research. This paper primarily focuses on experimental studies utilizing high-resolution Lorentz transmission electron microscopy for *in situ* real-space observation and manipulation of topological merons and skyrmions inside the magnetic domain wall, confirming the theoretical prediction of magnetic domain wall skyrmions in 2013. We have firstly achieved topological meron chains inside the domain walls by using the spin reorientation transition in two-dimensional van der Waals $\text{Fe}_{5-x}\text{GeTe}_2$ magnets, and systematically studied the dynamic behavior of domain wall topological magnetic domain structures under external electric and magnetic fields, filling the blanks in this research area. The important and special roles of magnetic domain walls are revealed at the same time. Then the GdFeCo amorphous ferrimagnetic thin film was designed and prepared based on the summarized mechanism with the domain wall meron pairs successfully reproduced. Moreover, the reversible topological transformation from domain wall meron pair to domain wall skyrmions has also been realized without external magnetic field during spin reorientation transformation as temperature changing. The results of micromagnetic simulation and electric experiments on the topological domains in domain walls would provide a strong basis and support for the future research.

Keywords: magnetic domain wall meron, magnetic domain wall skyrmion, spin reorientation transition, Lorentz transmission electron microscopy, two-dimensional magnet

PACS: 75.60.Ch, 68.37.Lp, 75.78.Cd, 75.70.Ak**DOI:** 10.7498/aps.73.20231612

* Project supported by the Strategic Priority Research Program of the Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. XDB33030100), the Science Centre of the National Science Foundation of China (Grant No. 52088101), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52271195, 52130103), and the Project for Young Scientists in Basic Research of the Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. YSBR-084).

[†] Corresponding author. E-mail: zhangy@iphy.ac.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理

基于拓扑/二维量子材料的自旋电子器件*

江龙兴¹⁾²⁾ 李庆超²⁾³⁾ 张旭²⁾ 李京峰^{2)†}张静²⁾ 陈祖信¹⁾ 曾敏³⁾ 吴昊^{2)‡}

1) (华南师范大学半导体科学与技术学院, 广州 510631)

2) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

3) (北京航空航天大学材料科学与工程学院, 北京 100191)

(2023年7月19日收到; 2023年8月28日收到修改稿)

拓扑材料和二维材料等新型量子材料, 为自旋电子器件的研究与发展提供了新契机. 这些量子材料不但有助于提高电荷-自旋转换效率及提供高质量异质结界面, 从而改善器件表现, 更由于它们丰富的相互作用和耦合关系, 能提供新奇物理现象和新的物性调控机制, 在自旋电子器件方面具有潜在的应用价值. 拓扑材料和二维材料, 尤其是层状拓扑材料、二维磁性材料以及它们组成的异质结的相关研究, 取得了丰硕的成果, 兼顾了启发性与及时的实用性. 本文将综述这些新型量子材料的近期研究成果: 首先重点介绍拓扑材料在自旋轨道力矩器件中实现的突破; 其次着重总结二维磁性材料的特性及其在自旋电子器件中的应用; 最后将进一步讨论由拓扑材料/二维磁性材料组成的全范德瓦耳斯异质结的研究进展.

关键词: 自旋电子器件, 拓扑材料, 二维材料, 全范德瓦耳斯异质结**PACS:** 75.76.+j, 75.70.AK, 73.43.Qt, 85.75.-d**DOI:** 10.7498/aps.73.20231166

1 引言

传统电子器件的发展长时间以来遵循摩尔定律, 随着器件尺寸不断减小与集成度不断提高, 无论是日常生活的改善还是科技技术的进步, 都经历着从量变到质变的过程. 然而近年来传统电子器件进一步降低器件尺寸的成本和难度大大增加, 对信息处理能力的提高需要另辟蹊径. 自旋电子学由此成为新的研究热点, 自旋电子学器件利用电子自旋作为信息载体, 可以使信息处理增加一个维度. 此外它还有集成密度高、响应快等优势, 并且能和传统电子器件兼容, 充分利用电子器件的现有框架, 因此成为了下一代信息器件最具潜力的发展方向

之一.

自旋电子器件的核心功能是实现自旋的注入及自旋或磁性状态的调控和存储. 目前自旋的电流注入是主流的研究重点, 传统的自旋电流注入由强自旋-轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC) 材料, 如重金属材料铂、钨、钽等, 通过自旋霍尔效应或 Rashba-Edelstein 效应实现. 由于较短的平均自由程和散射时间, 其电流-自旋转换效率比较有限 (< 0.1)^[1-3], 需要较大的电流密度来驱动磁矩翻转, 因此器件的功耗比较高. 另一方面, 器件中各功能层, 如 SOC 层与负责自旋/磁状态存储的磁性材料层, 面临界面的晶格失配产生的应力、缺陷、重构以及电子结构失配产生的高电子注入势垒等问题. 解决这些问题是进一步提高自旋器件性能, 走向

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1402801)、国家自然科学基金 (批准号: 52271239) 和广东省基础与应用基础研究基金 (批准号: 2022B1515120058, 2022A1515110648) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lijingfeng@sslslab.org.cn

‡ 通信作者. E-mail: wuhao1@sslslab.org.cn

实际应用的关键. 新型量子材料, 如拓扑材料、二维材料等, 由于它们独特的量子特性与结构特征, 为解决上述问题提供了潜在的新途径, 成为自旋电子学的研究热点.

拓扑绝缘体 (topological insulators, TIs) 其体态呈绝缘体相, 但同时拥有受时间反演对称性保护的导电表面态. 该表面态由材料中强 SOC 导致的价带和导带反转形成, 其能带结构呈 Dirac 线性散射关系. 拓扑表面态能提供自旋-动量锁定, 并且由于受时间反演对称性保护, 表面态传输电子将不会受非磁性缺陷、杂质等散射中心影响, 形成背散射. 这些特性使得利用拓扑绝缘体作为 SOC 层的自旋电子器件可以大大提高电荷-自旋转换效率, 降低临界翻转电流密度. 除此之外, 拓扑金属材料如 Dirac 半金属、Weyl 半金属等, 也能提供自旋-动量锁定的表面态, 并且其电子有更高的迁移率, 有望进一步提高自旋器件的能量效率. 最近, 反铁磁材料由于对太赫兹具有超快的动力学响应, 以及不产生杂散场等特点, 呈现出相较于铁磁材料的优势. 反铁磁材料体系磁序的丰富性, 结合拓扑材料拓扑序的多样性, 能产生独特新奇的物理现象, 从而给操控拓扑态、磁序提供了更多途径, 并催生出了拓扑反铁磁自旋电子学的研究方向^[4,5]. 目前大多数拓扑材料的拓扑性体现在其能带结构具有拓扑特征, 而磁斯格明子则是一种自旋结构体现拓扑特征的准粒子拓扑 j 结构^[6,7], 其拓扑特性同样使得它不易受散射中心影响, 另一方面其对自旋力矩十分敏感, 因此对其操控所需的功耗极低; 与磁畴相比, 它拥有更小的尺寸, 可使存储密度大大提高. 磁斯格明子的稳定借助于非共线 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用, 而该相互作用的前提之一是需要强 SOC 作用, 所以拓扑材料的强 SOC 特征在稳定及操控磁斯格明子方面也将发挥重要作用.

异质结器件的另一大问题来源于传统磁性材料与 SOC 材料形成的低质量界面. 二维材料表面不含悬挂键, 靠范德瓦耳斯层间相互作用形成界面, 不但避免了晶格失配带来的困难, 还能形成原子级平整的高质量界面. 目前已有研究人员利用 hBN 材料作为中间势垒层, 改善界面从而提高器件效率的报道^[8-10]. 随着越来越多的二维磁性材料被发掘^[11-16], 用二维磁性材料代替传统磁性材料成为目前的另一研究热点. 二维磁性材料不但能改

善界面问题, 其本身的磁性也表现出新奇特性, 如磁性强度的层数调制, 铁磁性和反铁磁性可随层数切换等^[11,17,18]. 二维材料的低维性也使得磁性的调控, 如通过场效应等, 更加有效. 除此之外, 二维材料的独特结构与能带特征, 使它拥有诸多优秀特质, 如出色的电子传输特性、机械特性、化学稳定性等. 同时二维材料是一个庞大的家族, 可以提供物性的多样性. 对自旋电子学而言, 二维材料不但可以提供良好的自旋输运载体, 如拥有较弱 SOC 的材料石墨烯等^[19], 还可以提供用以进行自旋操控的强 SOC 材料如过渡金属硫族化合物 (transition metal dichalcogenides, TMDs) 等^[20,21]. 此外它的自旋特性可有效响应光、应力、电场、磁场等多种外部激励, 实现基于自旋信号的传感器件.

二维材料层间为范德瓦耳斯相互作用, 使得研究者们可以自由得堆叠不同二维材料形成异质结. 前文讨论的拓扑材料, 大多也都是范德瓦耳斯层状材料, 例如 Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3 , $\text{T}_d\text{-WTe}_2$, PtSe_2 , PtTe_2 等. 可以将二维磁性材料与拓扑材料堆叠在一起, 制备成具有原子级平整界面的二维异质结器件, 不但能大幅提高器件效率、大大降低器件的尺寸, 更重要的是通过层间耦合、近邻效应等相互作用, 有望在二维异质结器件中获取新的拓扑态、磁序, 以及新的相互作用模式, 从而激发功能实现的新逻辑. 更进一步来讲, 利用二维材料的多功能性, 可以通过堆叠不同功能材料, 实现集传感-运算-存储于一身的多功能集成器件, 实现“全二维自旋电子器件”.

本综述将总结和讨论最近拓扑材料及二维材料在自旋电子器件研究中取得的进展. 第 2 节着重介绍拓扑材料/磁性异质结器件; 第 3 节讨论二维磁性材料与相关自旋电子器件的研究; 第 4 节主要总结目前全范德瓦耳斯层状材料组成的拓扑材料/二维磁性材料器件的发展. 最后, 将总结拓扑材料、二维材料在自旋电子器件应用中面临的主要挑战及未来展望.

2 拓扑/磁性异质结的自旋器件

近年来, 拓扑绝缘体已经成为了自旋电子学的新兴材料^[4,22-28]. 拓扑绝缘体的一个显著特征是其表面态电子的动量和自旋被锁定为相互垂直的方向. 由外加电流引起的费米面平移可以在拓扑

绝缘体的表面产生净自旋极化,如图1所示.自旋积累扩散到相邻的磁性层,其自旋角动量可以在磁体上施加自旋轨道力矩^[29,30],从而操控磁性材料的磁矩.除本征拓扑绝缘体以外,研究表明在具有手性边缘态的磁性拓扑绝缘体中,当存在类手性对称时,这种边缘态在边界处表现出拓扑稳定的自旋纹理^[31].

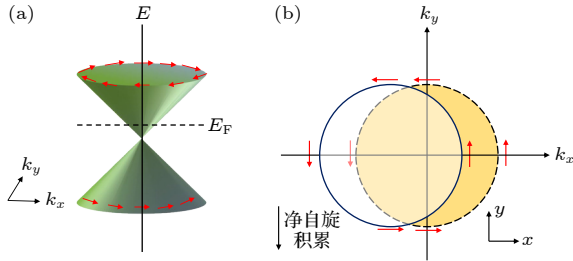


图1 (a) 拓扑绝缘体表面态中自旋动量锁定引起的螺旋自旋结构. 箭头表示每个波矢 k 中的自旋磁矩 σ 方向, 其方向与自旋角动量相反; (b) 沿 $+x$ 方向施加电流, 将在电子的自旋和波矢处于正交方向的位置产生非平衡自旋积累^[29,30]

Fig. 1. (a) Spiral spin structure caused by spin momentum locking in the surface state of topological insulator. Arrow indicates the direction of the spin magnetic moment σ of each wave vector k , which is opposite to the spin angular momentum; (b) applying current in the $+x$ direction will generate non equilibrium spin accumulation at the position where the electron's spin and wave vector are orthogonal^[29,30].

传统 SOC 层常用的自旋流材料是 Pt, Ta, Hf, W^[1,2,32-36]. 后来研究发现合金可以提高体系的自旋霍尔角 (spin Hall angle, SHA), 比如 AuW, AuPt, CuBi 等^[37-43]. 除了单层金属和合金外, 还可通过在重金属双层或多层的结构中使用插入层来修饰

界面的方法实现对整体 SHA 的提升. 但是, 由于重金属本身的自旋霍尔效应比较弱, 受杂质散射的影响较大, 因此 SHA 的提高也遇到了很大的瓶颈. 拓扑表面态由于自旋-动量锁定效应, 且受时间反演保护, 能有效抑制散射, 单位电流可以对磁性材料产生的自旋轨道矩 (spin-orbit torque, SOT) 比重金属要大很多^[44,45]. 基于拓扑绝缘体的 SOT 效应在面内各向异性磁性金属 (包括 NiFe 和 CoFeB) 的异质结中首先发现^[46-48]. 后来, 研究人员采用了具有体垂直磁各向异性 (perpendicular magnetic anisotropy, PMA) 的铁磁和亚铁磁以及具有缓冲层的磁性多层作为磁性层, 在具有 PMA 的异质结中也观测到了高的 SOT, 并且临界翻转电流密度的量级为 10^5-10^6 A/cm², 与传统重金属体系相比, 临界翻转电流密度降低了 1 个量级^[49-53]. 人们通过利用自旋矩-铁磁共振 (ST-FMR, S-F)、反常霍尔回线偏移 (loop shift, L-S) 和二次谐波测量 (second harmonic, S-H) 等测量方法在各种拓扑绝缘体/磁性异质结中得到了体系 SHA, 但是 SHA 存在很大的差异 (0.1—425)^[46,49-51,53-57], 见表 1. 这些差异的基本物理原理仍然没有定论, 通常归因于: 1) 拓扑绝缘体的高电阻可能会引起自旋电流分流效应; 2) 拓扑绝缘体与磁性层界面处的能带杂化或者磁近邻效应; 3) 拓扑绝缘体的质量, 包括结晶度, 表面缺陷, 载流子浓度等; 4) 测量温度以及界面自旋透明度等.

实验上得到的转换效率存在巨大差异, 以及其不清晰的原理机制, 也使人们对于拓扑表面态在

表 1 不同异质结构的自旋霍尔角 (θ_{SH}), 临界翻转电流密度 (J_c)

Table 1. Spin Hall angles (θ_{SH}) and critical switching current density (J_c) of different heterostructures.

异质结构	θ_{SH}	$J_c/(10^4 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2})$	生长方法	测试方法
(CrBiSb) ₂ Te ₃ /(BiSb) ₂ Te ₃ ^[58]	140—425 (1.9 K)	8.9	MBE	S-H
Bi ₂ Se ₃ /CoFeB ^[47]	1—1.75	60.0	MBE	S-F
Bi ₂ Se ₃ /Ag/CoFeB ^[48]	0.1—0.5	58.0	MBE	S-F
(BiSb) ₂ Te ₃ /GdFeCo ^[53]	3.0	12.0	MBE	S-H
(BiSb) ₂ Te ₃ /Ti/CoFeB ^[54]	2.5	52.0	MBE	S-H
BiSb/MnGa ^[51]	52	150.0	MBE	L-S
(BiSb) ₂ Te ₃ /Mo/CoFeB ^[50]	2.66	30.0	MBE	S-H
(BiSb) ₂ Te ₃ /Ti/CoFeB ^[64]	1.16	10.0	MBE	S-H
BiSe/CoFeB ^[52]	18.62	23.0	Sputter	S-H
Bi ₂ Se ₃ /NiFe ^[60]	2.18	—	Sputter	S-H
Pt/Co/Bi ₂ Se ₃ ^[63]	0.35	350.0	Sputter	S-H
Pt/Co/(BiSb) ₂ Te ₃ ^[62]	0.77	83.0	Sputter	S-H

提高电荷-自旋转换效率方面发挥的实质作用产生了一定的争议. 研究人员通过调控费米能级位置, 研究费米能级与拓扑表面态间相对关系对电荷-自旋转换效率的影响. Fan 等^[57]通过栅压调控费米能级位置, 研究了磁性掺杂拓扑绝缘体的 SOT, 发现当费米能级在狄拉克点 (Dirac point, DP) 附近时能得到最大的净自旋电流/总电流比, 且该比值与所测的 SOT 有效场随栅压的调控呈一致的演化, 如图 2(a) 所示. Wu 等^[54]通过改变 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 中 Sb 成分的浓度来调控费米面的位置, 如图 2(b) 所示, 发现当拓扑绝缘体的费米面接近 DP 时, 块

体的绝缘性能和拓扑表面态的数量达到最大值的同时, 系统拥有最强的 SOT 有效场及翻转效率. Kondou 等^[22]同样利用改变 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 中 Sb 成分的浓度来调控费米面的位置, 利用 ST-FMR 研究了界面电荷-自旋转换效率与费米能级位置的关系. 然而其结果表明, 当 E_F 穿过 DP 时, 在低温 (10 K) 下 SOT 效率显著降低, 如图 2(c) 所示, 并将其归因于 DP 附近费米动量的不均匀以及螺旋自旋结构不稳定. 拓扑表面态在提高电荷-自旋转换效率及 SOT 效率方面的具体物理过程和物理机制还需要更深入的研究.

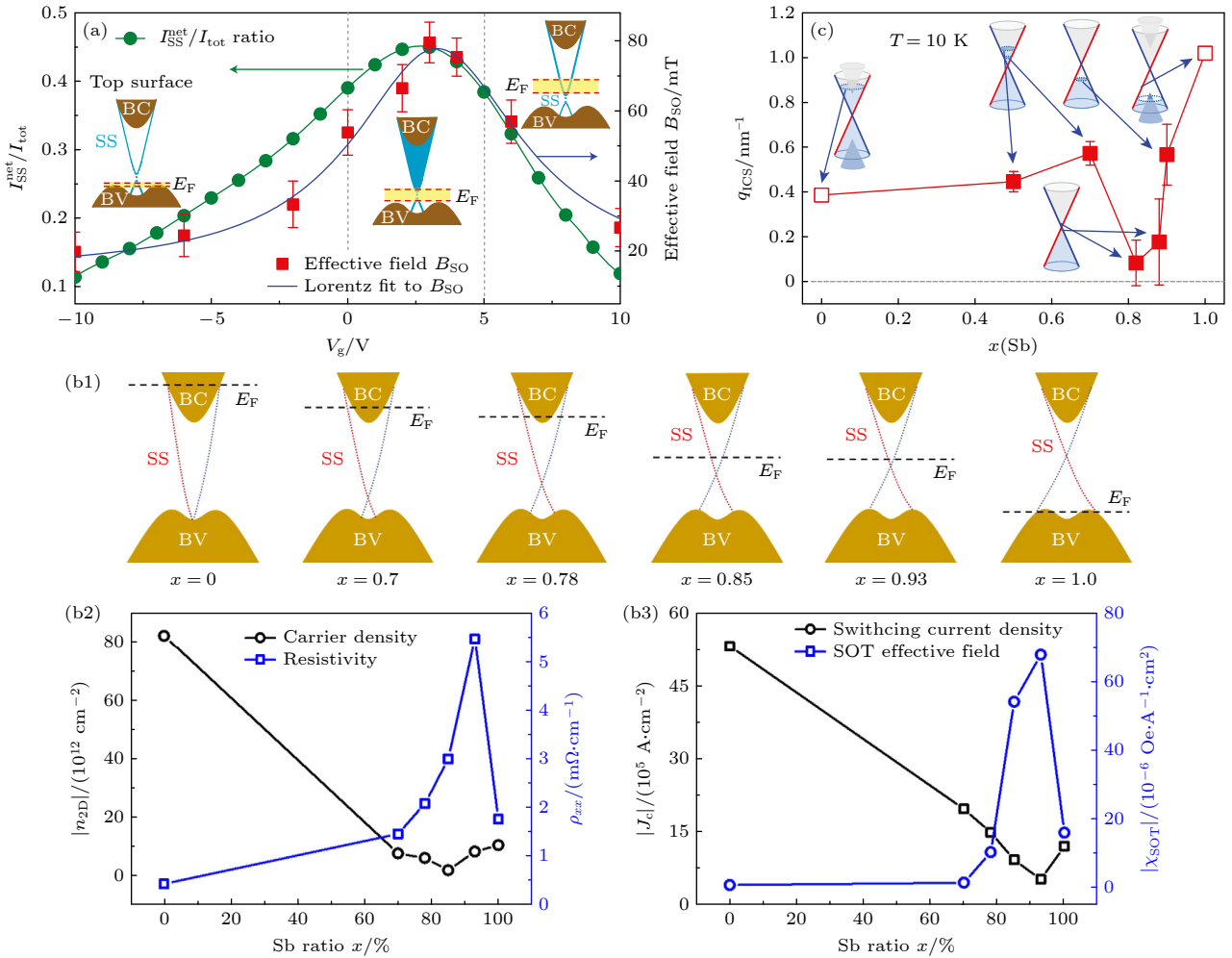


图 2 (a) 通过栅压调控费米能级示意图, 净自旋极化电流/总电流比 (左纵轴) 与 SOT 有效场 (右纵轴) 随栅压的演化^[57]; (b1) $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$ 中不同 Sb 浓度的费米能级位置示意图; (b2) 二维载流子密度 n_{2D} 和电阻率 ρ_{xx} 作为 $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$ 中 Sb 浓度的函数; (b3) J_c 和 SOT 有效场与 Sb 浓度的函数关系^[54]; (c) $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$ 中不同 Sb 浓度的费米能级位置示意图以及界面电荷-自旋转换效率与 Sb 成分的函数关系^[22]

Fig. 2. (a) Schematic view of Fermi level regulation by gate voltage and corresponding evolution of net spin polarization current/total current ratio (left longitudinal axis) and SOT effective field (right longitudinal axis) with gate voltage^[57]; (b1) Fermi energy level positions of different Sb concentrations in $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$; (b2) two-dimensional carrier density n_{2D} and resistivity ρ_{xx} , as a function of Sb concentration in $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$; (b3) correlation between the effective fields of SOT and J_c and the concentration of Sb^[54]; (c) schematic diagram of Fermi energy level positions at different Sb concentrations in $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$, and correlation between interface charge spin conversion efficiency and Sb concentration^[22].

此外,在具有磁性拓扑绝缘体 (MTI) 的系统中也有基于 TI 的 SOT 的相关研究. Fan 等^[58] 设计制备出了拓扑绝缘体/磁性拓扑绝缘体 $[(\text{Bi}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_2\text{Te}_3/(\text{Cr}_{0.08}\text{Bi}_{0.54}\text{Sb}_{0.38})_2\text{Te}_3]$ 异质结,并在低于 10 K 的工作温度下成功实现了 SOT 驱动的磁化翻转,在极低温度 1.9 K 下获得的临界翻转电流密度为 $8.9 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$,测得的 SHA 高达 425. 随后,科研人员发现在 MTI 系统中的非对称磁振子散射引起的电流非线性霍尔效应可能导致 MTI 体系的 SHA 偏大 (临界翻转电流密度为 $2.5 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$,与基于重金属的系统相当)^[59]. 此外,由于 MTI 还保留了能带反转特征,因此拓扑表面状态也应该存在于 MTI 的表面中,科研人员在 GaAs/MTI/ AlO_x 异质结中,采用加栅压的方法厘清了表面电子密度和 SOT 效率之间的关系,揭示了拓扑表面态在 TI 基结构中 SOT 产生的关键作用^[55].

到目前为止,实验室中制备高质量 TI 基的异质结薄膜的方法多数为分子束外延 (molecular beam epitaxy, MBE),但是 MBE 设备造价昂贵且不能大规模运用至工业化生产,同时 TI 的电阻率太大,不符合工业应用的节能要求. 因此,科研人员考虑是否可以利用工业生产中成熟的磁控溅射技术 (sputter) 制备出高质量的拓扑绝缘体材料,随后 Dc 等^[52] 率先使用磁控溅射技术沉积了 $\text{Bi}_x\text{Se}_{1-x}$ 薄膜拓扑绝缘体材料并且获取巨大的 SHA,此外该工作也实现了室温 SOT 翻转. 溅射多晶 Bi_2Se_3 也被证明可以产生大的 θ_{SH} ,同时实现较低临界翻转电流密度^[60-64]. 溅射薄膜方法可能是当前半导体制造中采用的实用方法之一.

3 二维磁性材料与相关自旋电子器件

自从石墨烯被发现以来^[65],二维范德瓦耳斯 (van der Waals, vdW) 材料家族不断壮大,迅速的扩展到各种具有奇异性质的材料,一系列新颖的物理现象不断被发现. 但二维 vdW 磁性材料在十多年间一直是该家族缺失的一员. 直到 2016 年,二维反铁磁性才在单层 FePS_3 中被发现^[66]. 随后, Huang 等^[11] 于 2017 年发现单层 CrI_3 和双层 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 被具有铁磁性. 紧接着, Deng 等^[67] 证实另一种 vdW 层状材料 Fe_3GeTe_2 中也存在二维本征铁磁性. 并且他们还通过锂离子插层技术将少层 Fe_3GeTe_2 的居里温度 (Curie temperature, T_C) 提高至室温以上,打开了二维本征磁性材料的研究

大门,也为自旋电子学的发展拓宽了道路.

二维 vdW 磁性材料具有原子级平坦表面、表面无悬挂键等特点,且层间只存在范德瓦耳斯力,可以提供高质量界面,增加构建异质结的自由度,从而提高器件性能. 其低维的特征可以大幅度降低自旋电子器件的尺寸,是实现全二维自旋电子器件的基石. 此外二维磁性材料最大的优势在于它有更高效的磁性可控性,如界面调控、磁电调控、应变调控等. 这些调控方式一般通过改变二维材料或异质结的对称性、电荷分布、费米能级、价态、轨道占据、轨道杂化等性质实现.

二维磁性材料层间虽只存在范德瓦耳斯力,然而层间仍有可观的耦合相互作用,其磁性对不同的堆叠方式、层数、异质结构界面等较为敏感. 如 CrI_3 中发现的随层数变化,材料在铁磁和反铁磁性间交替变化的现象^[17,18]. Fe_3GeTe_2 的 T_C 随层数不同而变化等^[12]. 在转角 CrI_3 中,还观测到了由摩尔超晶格提供的周期性堆叠顺序变化引起的铁磁与反铁磁结构交替出现^[68]. 此外,在异质结构界面中也观测到了明显的二维磁性的界面耦合调控效果. Liu 等^[69] 发现 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{CrSb}$ 超晶格结构中,通过界面 Cr 层自旋极化电子掺杂引起 Fe_3GeTe_2 的 T_C 增强. Wu 等^[70] 构造了 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 异质结,通过异质结构界面处的 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用在界面两侧磁性材料同时诱导出了不同的磁斯格明子结构,如图 3(a) 和图 3(b) 所示,其研究表明通过合理的设计多层二维 vdW 磁性材料堆叠,可以在垂直方向上形成不同的磁斯格明子结构,为基于磁斯格明子的自旋电子学器件设计提供了新的角度.

利用电场对二维材料中的磁性进行调控引起了许多人的关注和兴趣,因为电流不通过材料,从而不会产生热量和干扰在磁性非易失存储器中的写入. 而二维材料比普通薄膜对电场更加敏感,因此在磁电调控方面具有巨大的潜力. Jiang 等^[71] 以反铁磁双层 CrI_3 作为基态构建了场效应器件,通过在器件中施加栅极电压进行磁性调控并结合磁圆二色性显微镜检测磁性,证明外加电场可以产生层间电势差,从而实现线性磁电耦合,进而在恒定磁场下通过电场实现铁磁态和反铁磁态的相互转变 (图 3(c)). 此外,二维磁体还能通过静电掺杂实现磁电调控. Wang 等^[72] 对 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 进行了静电掺杂,使 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 饱和磁化强度上升; Verzhbitskiy 等^[73] 也进行了相同的工作,发现当电子掺杂浓度

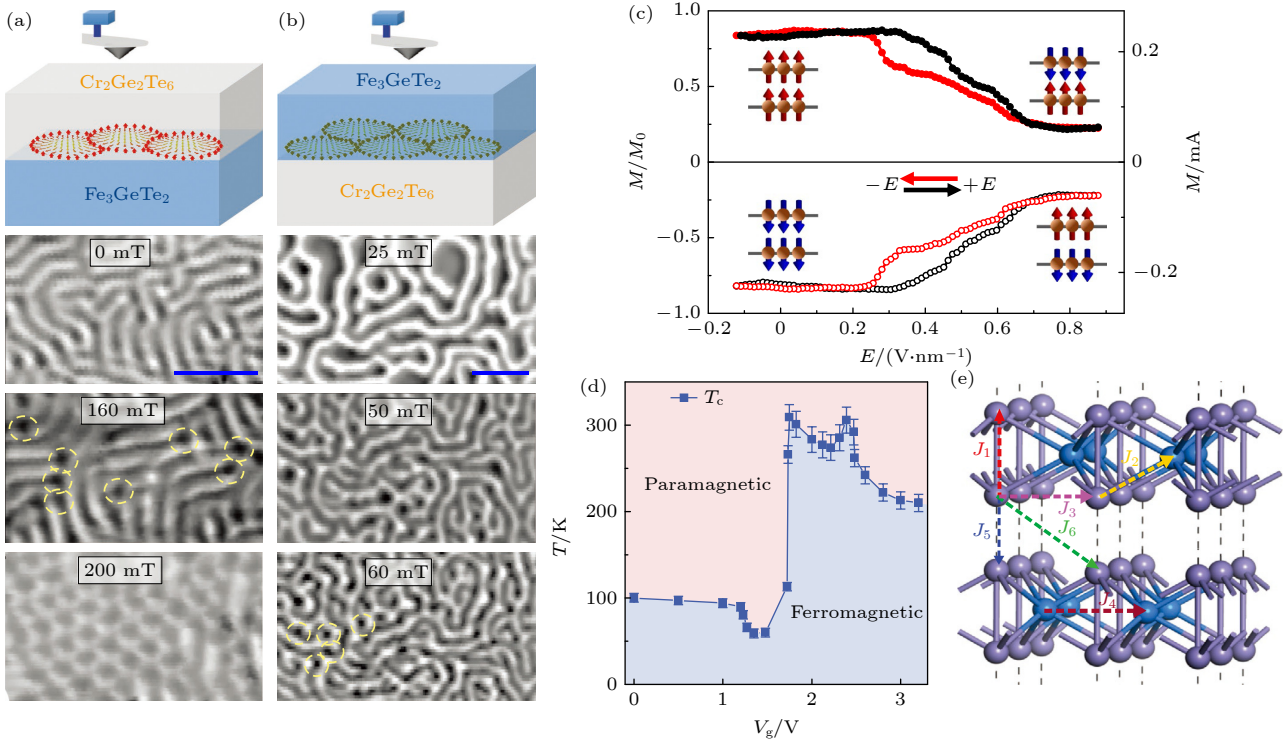


图 3 (a) $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 侧观测到的磁斯格明子; (b) Fe_3GeTe_2 侧观测到的磁斯格明子^[70]; (c) 双层 CrI_3 磁序的电切换, 插图描述了不同磁场和电场作用下磁状态^[71]; (d) 三层 Fe_3GeTe_2 中, 以栅压和温度为函数的磁相图^[67]; (e) Fe_3GeTe_2 的透视图 (石板蓝色和蓝色球分别代表 Fe^{3+} 和 Fe^{2+} ; 虚线箭头表示铁原子间的自旋交换耦合)^[74]

Fig. 3. (a) Skyrmion lattice observed on the $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ side; (b) skyrmion lattice observed on the Fe_3GeTe_2 side^[70]; (c) electrical switching of the magnetic order in bilayer CrI_3 , and the insets depict the magnetic states under different magnetic and electric fields^[71]; (d) phase diagram of the trilayer Fe_3GeTe_2 sample as the gate voltage and temperature are varied^[67]; (e) perspective view of Fe_3GeTe_2 (The slate-blue and blue balls represent the Fe^{3+} and Fe^{2+} ; Dashed arrows indicate spin exchange coupling between Fe atoms)^[74].

为 $4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 时, T_C 从 61 K 提高至 200 K, 且磁各向异性由面外变为面内. 通过锂离子插层技术, Deng 等^[67] 研究发现高浓度的电子掺杂 (每层 10^{14} cm^{-2}) 会导致 Fe_3GeTe_2 电子能带的偏移, 费米能级上的电子态密度的大幅度变化导致铁磁性的明显调制, 图 3(d) 为 T_C 与栅压相关的磁相图, 可以看出施加 2 V 的栅压 V_g 时, T_C 从 100 K 提升至 300 K.

应变调控是一种简单而有效的磁性调控方式. 应力可以改变二维磁性材料层间距和晶格结构, 改变磁耦合方式, 从而实现对磁性的调控. Wang 等^[74] 研究发现通过对 Fe_3GeTe_2 施加单向拉伸应力, 可以改变该晶体的结构 (图 3(e)), 进而影响其磁晶各向异性, 当施加的应变为 0.32% 时, 矫顽场显著增加, 且随着应力的增大, Fe_3GeTe_2 的 T_C 呈线性增加. 值得注意的是, 实验还证实了对 Fe_3GeTe_2 施加的应变从 0.65% 提升至 0.71% 时可以实现磁化翻转. Chen 等^[75] 将单层 CrI_3 和单层 MoTe_2 组

成异质结, 将 CrI_3 的 T_C 提升至 60 K, 并通过施加 4.2 GPa 的面外压力, 减小了界面的层间距, 引入了额外的自旋超交换 (Cr-Te-Cr) 路径, 使 T_C 可以进一步提高到 85 K.

除了上述对磁性调控的研究, 基于二维磁性材料的各种自旋电子器件的研究也引起了大量关注. Song 等^[76] 研究了使用 CrI_3 薄片作为自旋过滤层的二维材料磁性隧道结, 器件结构如图 4(b) 所示, CrI_3 夹在少层石墨烯之间. 图 4(a) 为双层 CrI_3 磁性状态的示意图, 左图为层状反铁磁态, 其在零磁场下抑制隧穿电流, 中间和右边两图分别为面外磁化和面内磁化的完全自旋极化态, 不抑制隧穿电流. 低温下, 在具有 4 层 CrI_3 势垒的磁性隧道结中观测到高达 19000% 的磁电阻比, 远高于传统自旋电子学器件. Lan 等^[77] 使用二维反铁磁体 CrSbR 作为中间层构造了磁性隧道结, 在 5 K 下观测到了高达 47000% 的隧穿磁阻比, 在 130 K 也观测到 50% 的隧穿磁阻比. Wang 等^[78] 则构造了如图 4(c)

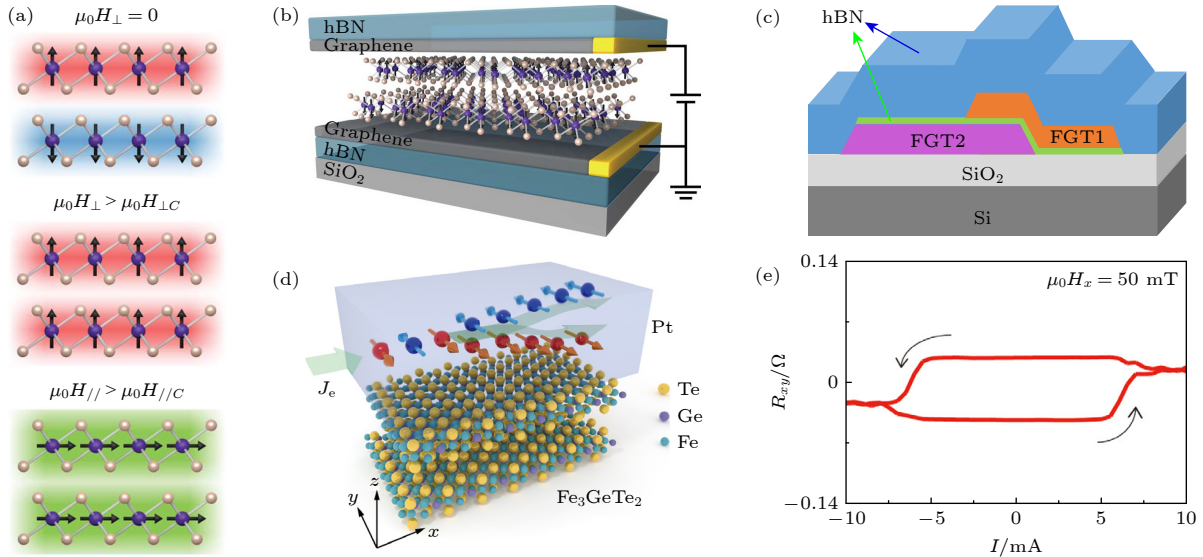


图 4 (a) 双层 CrI_3 的磁状态示意图; (b) 二维自旋过滤磁性隧道结示意图^[76]; (c) $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{hBN}/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 的磁性隧道结示意图^[78]; (d) $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Pt}$ 双层结构示意图; (e) $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Pt}$ 双层器件中 SOT 驱动的垂直磁化翻转^[83]

Fig. 4. (a) Schematic view of magnetic states in bilayer CrI_3 ; (b) schematic view of 2D spin-filter magnetic tunnel junction^[76]; (c) schematic view of magnetic tunnel junction for $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{hBN}/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ ^[78]; (d) schematic view of the bilayer structure for $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Pt}$; (e) SOT-driven perpendicular magnetization switching in the $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Pt}$ bilayer device^[83].

所示的 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{hBN}/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 异质结, 通过反常霍尔测试观测到低温下 160% 的隧穿磁电阻. Albarakati 等^[79] 在 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{graphite}/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 异质结中发现了罕见的反对称磁阻, 相比于传统的巨磁阻器件只有两个阻态, 此器件实现了高、中、低三个阻态. 此外, TMDs 也常被用做异质结中间层. Zheng 等^[80] 构造了 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{WSe}_2/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 异质结, 通过减小 WSe_2 厚度实现了负磁阻 (-4.3%) 到正磁阻 ($+25.8\%$) 的变化; Lin 等^[81] 构造了 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{MoSe}_2/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 自旋阀器件, 观察到 3.1% 的磁电阻, 为传统铁磁电极自旋阀的 8 倍; Zhu 等^[82] 构造了 $\text{Fe}_3\text{GaTe}_2/\text{WSe}_2/\text{Fe}_3\text{GaTe}_2$ 异质结, 其磁电阻在 10 K 时达到了 164%, 并且在室温下具有 85% 的磁电阻信号, 首次在全二维范德瓦耳斯磁性隧道结中实现了巨大的室温隧穿磁电阻. 除了各类磁异质结, 基于二维磁性材料的 SOT 器件的磁性调控研究也引起了广泛的兴趣. 如图 4(d) 所示^[83], 在 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Pt}$ 异质结构中, Pt 中 x 方向的电荷电流由于自旋霍尔效应产生 z 方向的自旋流, 该自旋流在界面产生自旋积累, 从而对 Fe_3GeTe_2 产生力矩作用. 图 4(e) 为温度为 100 K 时在 50 mT 面内磁场辅助下实现电流驱动的磁化翻转, 值得注意的是, SOT 操纵的两种霍尔电阻态不是完全饱和的, 研究人员将其归因于热效应. 电流驱动磁化翻转同样也能在绝缘二维铁磁体 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 中实现,

例如 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 和 Pt 或 Ta 的双层器件^[84,85], 电流通过 Pt 或 Ta 产生自旋极化, 在 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ /重金属界面产生自旋积累, 使 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 磁化翻转. 此外, 通过电流感生 SOT 产生磁化翻转的实验已在全 vdW 异质结上实现, 将在第 4 节讨论.

4 全范德瓦耳斯拓扑/磁性异质结和自旋器件

目前大多数热点拓扑材料均为 vdW 材料, 随着近年来越来越多高性能二维 vdW 磁性材料的发现, 全 vdW 拓扑/磁性异质结和自旋器件成为了新的研究前沿. 全 vdW 材料间只存在范德瓦耳斯力, 组装工艺不受限于晶格匹配或加工相容性^[86], 能充分发挥拓扑材料及二维磁性材料的潜力, 进一步提高器件表现. 此外 vdW 拓扑材料及二维磁性材料拥有强烈层间耦合作用, 使异质结展现出奇特的层间及界面调控现象; 异质结具有原子级光滑界面能高效的发挥近邻效应^[87,88]. 综上, 全 vdW 拓扑/磁性异质结不单单是对两者的简单功能组合, 两者的相互作用或能激发新奇的物理现象, 产生新的功能实现机制.

如前文所述, 目前已有部分基于全 vdW 材料的拓扑/磁性异质结和自旋器件被报道, 如 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ ^[89] 和 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ ^[90]

等, 它们的典型临界电流密度为 10^6 — 10^7 A·cm⁻², 与重金属/铁磁异质结构中的临界电流密度大小相当. 其中, (Bi_{1-x}Sb_x)₂Te₃/Fe₃GeTe₂ 双层器件的临界翻转电流密度随 Sb 浓度的增加而增大 (图 5(a)), 而该双层器件的临界翻转电流密度在 10^6 A·cm⁻² 量级 (图 5(b)). Wang 等^[90] 利用 MBE 技术制备出具有高界面质量的 Bi₂Te₃/Fe₃GeTe₂ 异质结构, 不但提高了 FGT 的 T_C 而且在低电流密度约为 2.2×10^6 A/cm² 下实现了电流驱动的磁化翻转, 其类阻尼 SOT 效率高约 0.7. 此外, 传统的重金属/铁磁双层膜结构受限于对称性, 通常产生的类阻尼力矩只能是面内方向, 因此很难高效的驱动 PMA 磁结构器件进行磁化翻转. 通过构建低对称性的异质结构, 利用对称性破缺能更有效的驱动二维 PMA 磁性材料的 SOT 磁化翻转. Shao 等^[91] 研究了 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 结构中电流驱动的磁化翻转, 发现由 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 界面低导热而产生的焦耳热可以有效地调制 Fe₃GeTe₂ 的矫顽力大小, 在 10 K 时, Fe₃GeTe₂ 的矫顽场大小随电流大小 (焦耳热) 的变化梯度 ($\Delta H_c/\Delta J_{\text{FGT}}$) 高达 0.55 kOe·MA⁻¹ cm². Shin 等^[92] 在全二维体系异质结构 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 中实现了 SOT 磁化翻转, 利用电荷流经异质结的低对称面而产生面外的类阻尼力矩, 在面内磁场的辅助下实现了对磁性层

Fe₃GeTe₂ 的磁矩翻转; 此外, 在 150 K 时该异质结的翻转电流密度显著降低, 达到 3.90×10^6 A·cm⁻², 比传统的重金属/铁磁薄膜的翻转电流密度小了一个数量级 (图 5(c) 和图 5(d)). Kao 等^[93] 通过实验证明, 当施加强电流时, WTe₂ 可以提供足够强的平面外抗阻尼 SOT, 进而在 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 中实现热辅助的无外磁场的 SOT 驱动磁性翻转, 其中临界电流密度为 10^{10} A·m⁻² 量级. 这些结果表明, 二维材料的低对称性能有效帮助产生面外抗阻尼力矩, 为非传统 SOT 驱动的高效磁化翻转提供了一条有前景的研究线路.

除了基于电学调控的二维自旋电子器件, 超快太赫兹光自旋电子器件也是当前的研究热点之一. 由于拓扑绝缘体具有自旋动量锁定的表面态, 从而成为研究太赫兹自旋流的候选材料之一, 也因此促进了二维 vdW 异质结构的太赫兹光自旋电子学研究. Chen 等^[94] 研究了 Fe₃GeTe₂/Bi₂Te₃ 异质结构中太赫兹自旋流的产生与控制, 其数据如图 6(a)—(c) 所示, 实验证明 Fe₃GeTe₂ 增强了 Bi₂Te₃ 辐射的太赫兹光谱强度. 图 6(d) 显示, 样品方向的翻转, 会导致太赫兹光谱极性反转, 进而证明是电偶极子而非异质结中的超快磁偶极子打破了空间反转对称性, 引起自旋-电荷转换 (spin-to-charge conversion, SCC), 从而辐射太赫兹波.

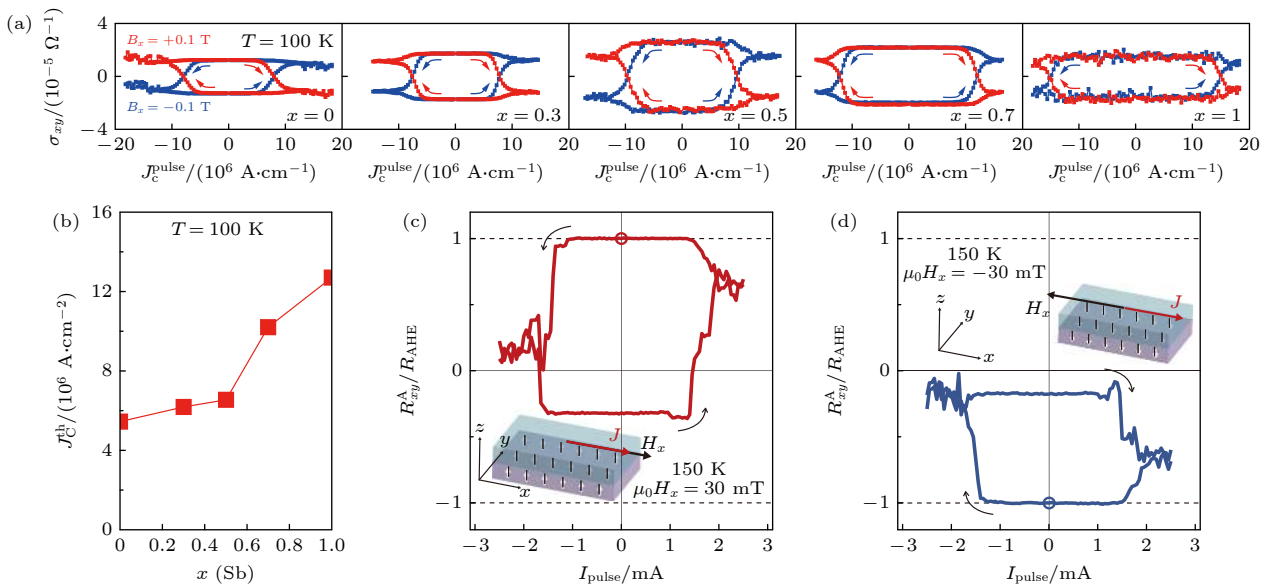


图 5 (a) 不同 Sb 组分下的 SOT 驱动磁矩翻转的电流密度^[89]; (b) Sb 组分与 SOT 驱动磁矩翻转的电流密度依赖关系^[89]; (c), (d) 30 mT 面内场辅助下的 SOT 驱动的磁矩翻转^[92]

Fig. 5. (a) Current density of SOT switching with different Sb component^[89]; (b) dependence of SOT switching current density on Sb composition^[89]; (c), (d) 30 mT in-plane field assisted SOT switching^[92].

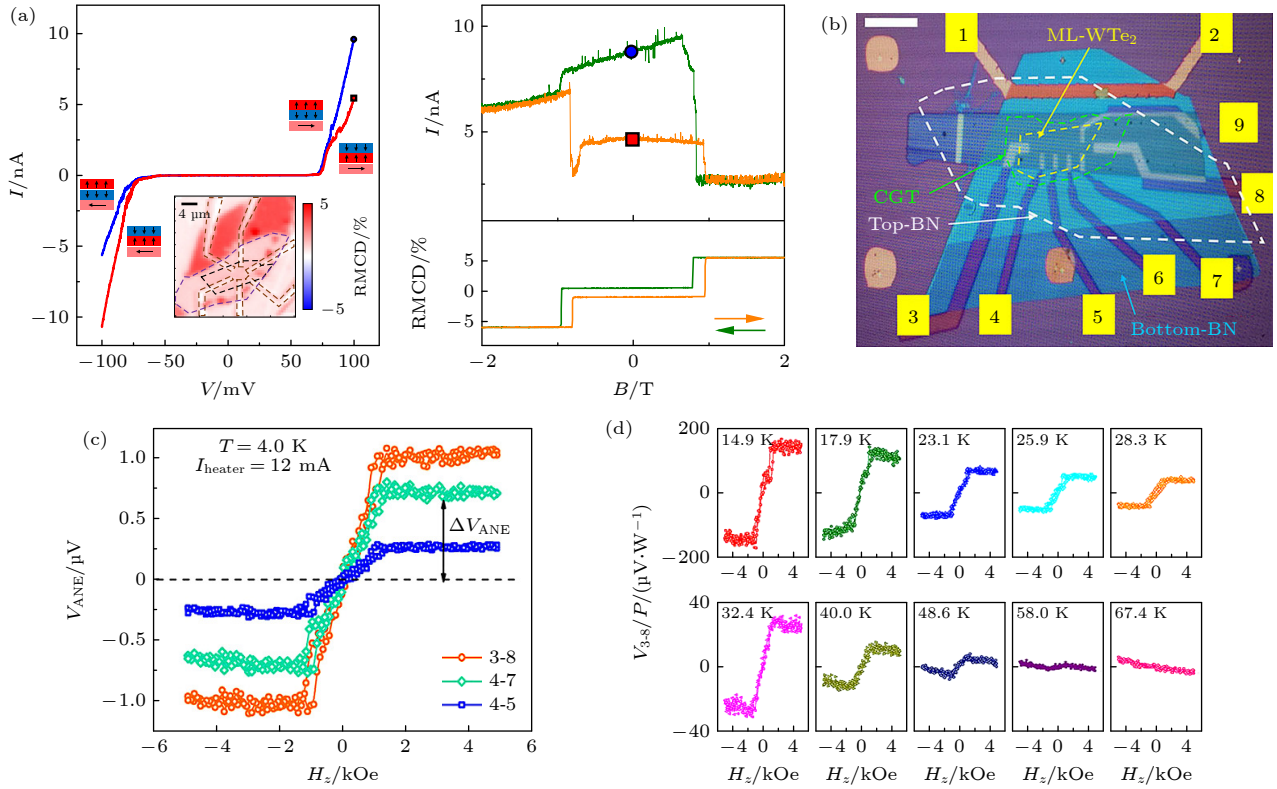


图 7 (a) 反铁磁状态控制的大非互易电流^[88]; (b) ML-WTe₂/CGT 异质结构器件的光学图像^[97]; (c) 不同测试通道的反常能斯特电压与磁场的依赖关系^[97]; (d) 归一化后的反常能斯特电压与温度的依赖关系^[97]

Fig. 7. (a) Large nonreciprocal current controlled by the antiferromagnetic state^[88]; (b) optical image of the ML-WTe₂/CGT heterostructure device^[97]; (c) dependence of abnormal Nernst voltage on magnetic field in different test channels^[97]; (d) dependence of normalized anomalous Nernst voltage on temperature^[97].

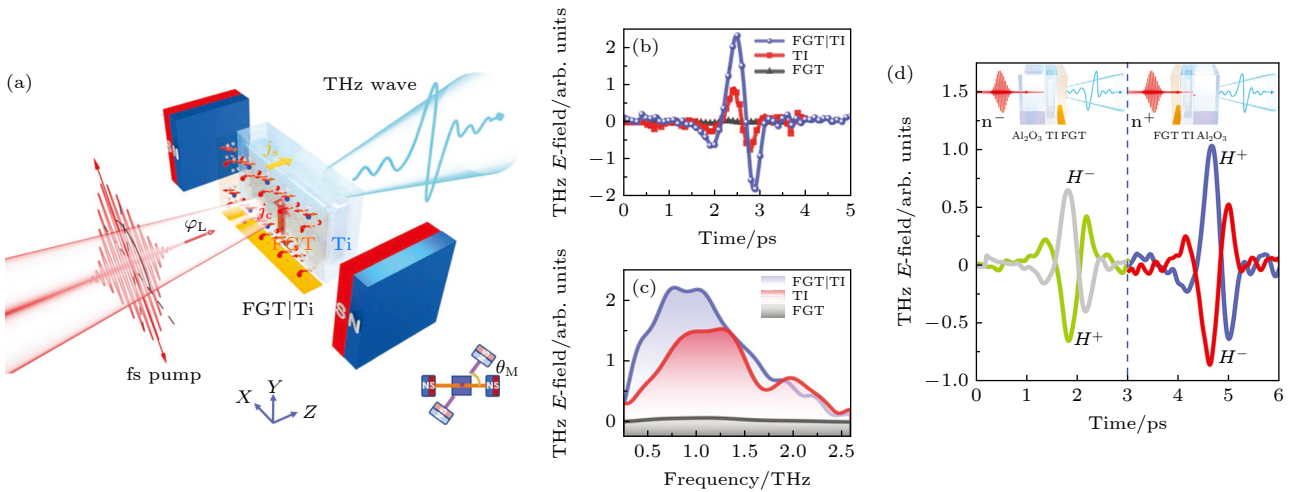


图 6 (a) 飞秒激光脉冲激发和 Fe₃GeTe₂/Bi₂Te₃ 异质结构太赫兹辐射示意图^[94]; (b) 在太赫兹时域波形图中, Fe₃GeTe₂/Bi₂Te₃ 异质结构的太赫兹波明显增强^[94]; (c) 图 6(b) 的傅里叶变换图谱; (d) Fe₃GeTe₂/Bi₂Te₃ 异质结构的太赫兹波极性翻转^[94]

Fig. 6. (a) Femtosecond laser pulse excitation and terahertz radiation schematic diagram of Fe₃GeTe₂/Bi₂Te₃ heterostructure^[94]; (b) in typical THz temporal waveforms, the terahertz wave of the Fe₃GeTe₂/Bi₂Te₃ heterostructure is significantly enhanced^[94]; (c) Fourier transform spectrum of Fig. 6(b); (d) terahertz polarity reversal of Fe₃GeTe₂/Bi₂Te₃ heterostructures^[94].

全 vdW 拓扑/磁性异质结和自旋器件除了上文介绍的具有自旋注入等功能外, 异质结界面还具有丰富的相互作用, 能实现高效的磁性调控和新奇的物性及现象. 如 Bi₂Te₃/Fe₃GeTe₂ 异质结中^[95],

Bi₂Te₃ 的拓扑表面态和 Fe₃GeTe₂ 产生的界面耦合, 增强了 Fe₃GeTe₂ 的磁序, 使 Fe₃GeTe₂ 的 T_C 由 230 K 提升至 400 K. 此外, 全 vdW 异质结具有的原子级光滑的界面可以产生高效的近邻效应,

如二维铁磁性材料可通过近邻效应, 在二维非磁性拓扑材料中引入铁磁序等. Zhong 等^[96] 在全 vdW 异质结 $\text{CrI}_3/\text{WSe}_2$ 中实现了具有层分辨的磁近邻效应, 实验上通过外磁场控制 CrI_3 中单层的磁化状态, 发现 CrI_3 的界面主导了 $\text{CrI}_3/\text{WSe}_2$ 之间的自旋相关电荷输运, 而近邻交换场对整体层状磁结构高度敏感. Zhao 等^[88] 研究了全 vdW 的反铁磁 CrI_3 与量子自旋霍尔绝缘体 (quantum spin Hall insulators, QSHIs) WTe_2 螺旋边缘态的磁近邻耦合, 在 WTe_2 的边缘态中发现了对磁化状态敏感的非互易电流, 非线性的边缘电导取决于最近邻层 CrI_3 的磁化强度与电流的相对方向 (图 7(a)), 即通过改变 CrI_3 的反铁磁状态, 可以产生较大的非互易电流. Li 等^[97] 将铁磁绝缘体 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 与单层的 WTe_2 组成异质结, 通过磁近邻效应诱导 WTe_2 产生铁磁性 (图 7(b)), 在这种磁化 QSHIs 中, 明确地从局部输运探测中分离出了边缘和内部输运. 此异质结边缘处非零的反常霍尔效应和反常能斯特效应响应 (图 7(c) 和图 7(d)) 表明, 磁化量子自旋霍尔绝缘体的边缘状态是部分自旋极化的, 与量子反常霍尔绝缘体 (quantum anomalous Hall insulators, QAHIs) 的一维弹道手性边和 QSHIs 的螺旋边有质的区别.

5 总结和展望

本文系统回顾了拓扑材料、二维材料和全范德瓦耳斯异质结等量子材料体系在自旋电子器件中的研究和潜在应用价值. 相比金属材料体系, 量子材料体系具有独特优势, 比如拓扑保护性、强自旋轨道耦合和比较长的自旋散射长度等. 但是, 面向未来大规模的自旋电子器件和芯片的工业级应用, 还有一些关键性的科学和技术问题有待解决: 如何实现大尺寸的高质量拓扑/二维材料制备; 如何将拓扑/二维材料与现有自旋电子器件相集成; 拓扑/二维自旋器件在尺缩极限下 ($< 10 \text{ nm}$) 的性能; 具有稳定性能和一致性的高密度阵列型拓扑/二维自旋器件和电路的设计和制备等.

参考文献

- [1] Liu L, Pai C F, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Science* **336** 555
- [2] Pai C F, Liu L, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 122404
- [3] Pai C F, Ou Y, Vilela-Leão L H, Ralph D C, Buhrman R A 2015 *Phys. Rev. B* **92** 064426
- [4] Šmejkal L, Mokrousov Y, Yan B, MacDonald A H 2018 *Nat. Phys.* **14** 242
- [5] Šmejkal L, Jungwirth T, Sinova J 2017 *Phys. Status Solidi RRL* **11** 1700044
- [6] Fert A, Reyren N, Cros V 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17031
- [7] Nagaosa N, Tokura Y 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 899
- [8] Gurram M, Omar S, Wees B J van 2017 *Nat. Commun.* **8** 248
- [9] Zhang L, Chen Y, Pan D, Huang S, Zhao J, Xu H Q 2022 *Nanotechnology* **33** 325303
- [10] Zhang L, Pan D, Chen Y, Zhao J, Xu H 2022 *Chin. Phys. B* **31** 098507
- [11] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H, Yao W, Xiao D, Jarillo-Herrero P, Xu X 2017 *Nature* **546** 270
- [12] Fei Z, Huang B, Malinowski P, Wang W, Song T, Sanchez J, Yao W, Xiao D, Zhu X, May A F, Wu W, Cobden D H, Chu J H, Xu X 2018 *Nat. Mater.* **17** 778
- [13] Bonilla M, Kolekar S, Ma Y, Diaz H C, Kalappattil V, Das R, Eggers T, Gutierrez H R, Phan M H, Batzill M 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 289
- [14] Ganguli S C, Vaño V, Kezilebieke S, Lado J L, Liljeroth P 2022 *Nano Lett.* **22** 1845
- [15] Wen Y, Liu Z, Zhang Y, Xia C, Zhai B, Zhang X, Zhai G, Shen C, He P, Cheng R, Yin L, Yao Y, Getaye Sendeku M, Wang Z, Ye X, Liu C, Jiang C, Shan C, Long Y, He J 2020 *Nano Lett.* **20** 3130
- [16] Zhang G, Guo F, Wu H, Wen X, Yang L, Jin W, Zhang W, Chang H 2022 *Nat. Commun.* **13** 5067
- [17] Jiang S, Li L, Wang Z, Mak K F, Shan J 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 549
- [18] Huang B, Clark G, Klein D R, MacNeill D, Navarro-Moratalla E, Seyler K L, Wilson N, McGuire M A, Cobden D H, Xiao D, Yao W, Jarillo-Herrero P, Xu X 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 544
- [19] Han W, Kawakami R K, Gmitra M, Fabian J 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 794
- [20] Manzeli S, Ovchinnikov D, Pasquier D, Yazyev O V, Kis A 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17033
- [21] Wang Z, Gibertini M, Dumcenco D, Taniguchi T, Watanabe K, Giannini E, Morpurgo A F 2019 *Nat. Nanotechnol.* **14** 1116
- [22] Kondou K, Yoshimi R, Tsukazaki A, Fukuma Y, Matsuno J, Takahashi K S, Kawasaki M, Tokura Y, Otani Y 2016 *Nat. Phys.* **12** 1027
- [23] Tokura Y, Yasuda K, Tsukazaki A 2019 *Nat. Rev. Phys.* **1** 126
- [24] Roschewsky N, Walker E S, Gowtham P, Muschinske S, Hellman F, Bank S R, Salahuddin S 2019 *Phys. Rev. B* **99** 195103
- [25] He M, Sun H, He Q L 2019 *Front. Phys.* **14** 43401
- [26] Li P, Kally J, Zhang S S L, Pillsbury T, Ding J, Csaba G, Ding J, Jiang J S, Liu Y, Sinclair R, Bi C, DeMann A, Rimal G, Zhang W, Field S B, Tang J, Wang W, Heinonen O G, Novosad V, Hoffmann A, Samarth N, Wu M 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw3415
- [27] Wang H, Kally J, Şahin C, Liu T, Yanez W, Kamp E J, Richardella A, Wu M, Flatté M E, Samarth N 2019 *Phys. Rev. Res.* **1** 012014
- [28] Culcer D, Cem Keser A, Li Y, Tkachov G 2020 *2D Mater.* **7**

022007

- [29] Mellnik A R, Lee J S, Richardella A, Grab J L, Mintun P J, Fischer M H, Vaezi A, Manchon A, Kim E A, Samarth N, Ralph D C 2014 *Nature* **511** 449
- [30] Yu R, Zhang W, Zhang H J, Zhang S C, Dai X, Fang Z 2010 *Science* **329** 61
- [31] Wu J, Liu J, Liu X J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 136403
- [32] Zhang C, Fukami S, Watanabe K, Ohkawara A, DuttaGupta S, Sato H, Matsukura F, Ohno H 2016 *Appl. Phys. Lett.* **109** 192405
- [33] Liu L, Lee O J, Gudmundsen T J, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 096602
- [34] Ramaswamy R, Qiu X, Dutta T, Pollard S D, Yang H 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 202406
- [35] Kim J, Sinha J, Hayashi M, Yamanouchi M, Fukami S, Suzuki T, Mitani S, Ohno H 2013 *Nat. Mater.* **12** 240
- [36] Akyol M, Jiang W, Yu G, Fan Y, Gunes M, Ekicibil A, Khalili Amiri P, Wang K L 2016 *Appl. Phys. Lett.* **109** 022403
- [37] Laczkowski P, Rojas-Sánchez J C, Saverio-Torres W, Jaffrès H, Reyren N, Deranlot C, Notin L, Beigné C, Marty A, Attané J P, Vila L, George J M, Fert A 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 142403
- [38] Laczkowski P, Fu Y, Yang H, Rojas-Sánchez J C, Noel P, Pham V T, Zahnd G, Deranlot C, Collin S, Bouard C, Warin P, Maurel V, Chshiev M, Marty A, Attané J P, Fert A, Jaffrès H, Vila L, George J M 2017 *Phys. Rev. B* **96** 140405
- [39] Zhu L, Ralph Daniel C, Buhrman R A 2018 *Phys. Rev. Appl.* **10** 031001
- [40] Nguyen M H, Shi S, Rowlands G E, Aradhya S V, Jermain C L, Ralph D C, Buhrman R A 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 062404
- [41] Yamanouchi M, Chen L, Kim J, Hayashi M, Sato H, Fukami S, Ikeda S, Matsukura F, Ohno H 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 212408
- [42] Wen Y, Wu J, Li P, Zhang Q, Zhao Y, Manchon A, Xiao J Q, Zhang X 2017 *Phys. Rev. B* **95** 104403
- [43] Zhang X, Mao J, Chang M X, Yan Z, Zuo Y, Xi L 2020 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 225003
- [44] Deorani P, Son J, Banerjee K, Koirala N, Brahlek M, Oh S, Yang H 2014 *Phys. Rev. B* **90** 094403
- [45] Wu C N, Lin Y H, Fanchiang Y T, Hung H Y, Lin H Y, Lin P H, Lin J G, Lee S F, Hong M, Kwo J 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 17D148
- [46] Wang Y, Deorani P, Banerjee K, Koirala N, Brahlek M, Oh S, Yang H 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 257202
- [47] Wang Y, Zhu D, Wu Y, Yang Y, Yu J, Ramaswamy R, Mishra R, Shi S, Elyasi M, Teo K L, Wu Y, Yang H 2017 *Nat. Commun.* **8** 1364
- [48] Shi S, Wang A, Wang Y, Ramaswamy R, Shen L, Moon J, Zhu D, Yu J, Oh S, Feng Y, Yang H 2018 *Phys. Rev. B* **97** 041115
- [49] Han J, Richardella A, Siddiqui S A, Finley J, Samarth N, Liu L 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 077702
- [50] Shao Q, Wu H, Pan Q, Zhang P, Pan L, Wong K, Che X, Wang K L 2018 *IEEE International Electron Devices Meeting San Francisco, CA*, 2018-12 pp36.3.1-36.3. 4
- [51] Khang N H D, Ueda Y, Hai P N 2018 *Nat. Mater.* **17** 808
- [52] De M, Grassi R, Chen J Y, Jamali M, Reifsnnyder Hickey D, Zhang D, Zhao Z, Li H, Quarterman P, Lü Y, Li M, Manchon A, Mkhoyan K A, Low T, Wang J P 2018 *Nat. Mater.* **17** 800
- [53] Wu H, Xu Y, Deng P, Pan Q, Razavi S A, Wong K, Huang L, Dai B, Shao Q, Yu G, Han X, Rojas-Sánchez J, Mangin S, Wang K L 2019 *Adv. Mater.* **31** 1901681
- [54] Wu H, Zhang P, Deng P, Lan Q, Pan Q, Razavi S A, Che X, Huang L, Dai B, Wong K, Han X, Wang K L 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 207205
- [55] Che X, Pan Q, Vareskic B, Zou J, Pan L, Zhang P, Yin G, Wu H, Shao Q, Deng P, Wang K L 2020 *Adv. Mater.* **32** 1907661
- [56] Jamali M, Lee J S, Jeong J S, Mahfouzi F, Lü Y, Zhao Z, Nikolić B K, Mkhoyan K A, Samarth N, Wang J P 2015 *Nano Lett.* **15** 7126
- [57] Fan Y, Kou X, Upadhyaya P, Shao Q, Pan L, Lang M, Che X, Tang J, Montazeri M, Murata K, Chang L T, Akyol M, Yu G, Nie T, Wong K L, Liu J, Wang Y, Tserkovnyak Y, Wang K L 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 352
- [58] Fan Y, Upadhyaya P, Kou X, Lang M, Takei S, Wang Z, Tang J, He L, Chang L T, Montazeri M, Yu G, Jiang W, Nie T, Schwartz R N, Tserkovnyak Y, Wang K L 2014 *Nat. Mater.* **13** 699
- [59] Yasuda K, Tsukazaki A, Yoshimi R, Kondou K, Takahashi K S, Otani Y, Kawasaki M, Tokura Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 137204
- [60] Lu Q, Li P, Guo Z, Dong G, Peng B, Zha X, Min T, Zhou Z, Liu M 2022 *Nat. Commun.* **13** 1650
- [61] De M, Chen J Y, Peterson T, Sahu P, Ma B, Mousavi N, Harjani R, Wang J P 2019 *Nano Lett.* **19** 4836
- [62] Zhang X, Zhang J, Zhai Y, Bai Q, Chang M, Yan Z, Zuo Y, Xi L 2021 *Phys. Status Solidi RRL* **15** 2100327
- [63] Zhang X, Cui B, Mao J, Yun J, Yan Z, Chang M, Zuo Y, Xi L 2020 *Phys. Status Solidi RRL* **14** 2000033
- [64] Cui B, Chen A, Zhang X, Fang B, Zeng Z, Zhang P, Zhang J, He W, Yu G, Yan P, Han X, Wang K L, Zhang X, Wu H 2023 *Adv. Mater.* **35** 2302350
- [65] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [66] Wang X, Du K, Fredrik Liu Y Y, Hu P, Zhang J, Zhang Q, Owen M H S, Lu X, Gan C K, Sengupta P, Kloc C, Xiong Q 2016 *2D Mater.* **3** 031009
- [67] Deng Y, Yu Y, Song Y, Zhang J, Wang N Z, Sun Z, Yi Y, Wu Y Z, Wu S, Zhu J, Wang J, Chen X H, Zhang Y 2018 *Nature* **563** 94
- [68] Song T, Sun Q C, Anderson E, Wang C, Qian J, Taniguchi T, Watanabe K, McGuire M A, Stöhr R, Xiao D, Cao T, Wrachtrup J, Xu X 2021 *Science* **374** 1140
- [69] Liu S, Yang K, Liu W, Zhang E, Li Z, Zhang X, Liao Z, Zhang W, Sun J, Yang Y, Gao H, Huang C, Ai L, Wong P K J, Wee A T S, N'Diaye A T, Morton S A, Kou X, Zou J, Xu Y, Wu H, Xiu F 2020 *Natl. Sci. Rev.* **7** 745
- [70] Wu Y, Francisco B, Chen Z, Wang W, Zhang Y, Wan C, Han X, Chi H, Hou Y, Lodesani A, Yin G, Liu K, Cui Y tao, Wang K L, Moodera J S 2022 *Adv. Mater.* **34** 2110583
- [71] Jiang S, Shan J, Mak K F 2018 *Nat. Mater.* **17** 406
- [72] Wang Z, Zhang T, Ding M, Dong B, Li Y, Chen M, Li X, Huang J, Wang H, Zhao X, Li Y, Li D, Jia C, Sun L, Guo H, Ye Y, Sun D, Chen Y, Yang T, Zhang J, Ono S, Han Z, Zhang Z 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 554
- [73] Verzhbitskiy I A, Kurebayashi H, Cheng H, Zhou J, Khan S, Feng Y P, Eda G 2020 *Nat. Electron.* **3** 460
- [74] Wang Y, Wang C, Liang S J, Ma Z, Xu K, Liu X, Zhang L, Admasu A S, Cheong S W, Wang L, Chen M, Liu Z, Cheng B, Ji W, Miao F 2020 *Adv. Mater.* **32** 2004533
- [75] Chen S, Huang C, Sun H, Ding J X, Jena P, Kan E 2019 *J. Phys. Chem. C* **123** 17987
- [76] Song T, Cai X, Tu M W Y, Zhang X, 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 2018 *Science* **360** 1214
- [77] Lan G B, Xu H J, Zhang Y, Cheng C, He B, Li J H, He C L, Wan C H, Feng J F, Wei H X, Zhang J, Han X F, Yu G Q 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 058501
- [78] Wang Z, Sapkota D, Taniguchi T, Watanabe K, Mandrus D, Morpurgo A F 2018 *Nano Lett.* **18** 4303
- [79] Albarakati S, Tan C, Chen Z J, Partridge J G, Zheng G, Farrar L, Mayes E L H, Field M R, Lee C, Wang Y, Xiong Y, Tian M, Xiang F, Hamilton A R, Tretiakov O A, Culcer D, Zhao Y J, Wang L 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw0409
- [80] Zheng Y, Ma X, Yan F, Lin H, Zhu W, Ji Y, Wang R, Wang K 2022 *NPJ 2D Mater. Appl.* **6** 62
- [81] Lin H, Yan F, Hu C, Lü Q, Zhu W, Wang Z, Wei Z, Chang K, Wang K 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 43921
- [82] Zhu W K, Xie S H, Lin H L, Zhang G J, Wu H, Hu T G, Wang Z, Zhang X M, Xu J H, Wang Y J, Zheng Y H, Yan F G, Zhang J, Zhao L X, Patane A, Zhang J, Chang H X, Wang K Y 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 128501
- [83] Wang X, Tang J, Xia X, He C, Zhang J, Liu Y, Wan C, Fang C, Guo C, Yang W, Guang Y, Zhang X, Xu H, Wei J, Liao M, Lu X, Feng J, Li X, Peng Y, Wei H, Yang R, Shi D, Zhang X, Han Z, Zhang Z, Zhang G, Yu G, Han X 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw8904
- [84] Gupta V, Cham T M, Stiehl G M, Bose A, Mittelstaedt J A, Kang K, Jiang S, Mak K F, Shan J, Buhrman R A, Ralph D C 2020 *Nano Lett.* **20** 7482
- [85] Ostwal V, Shen T, Appenzeller J 2020 *Adv. Mater.* **32** 1906021
- [86] Liu Y, Huang Y, Duan X 2019 *Nature* **567** 323
- [87] Li Q, He C, Wang Y, Liu E, Wang M, Wang Y, Zeng J, Ma Z, Cao T, Yi C, Wang N, Watanabe K, Taniguchi T, Shao L, Shi Y, Chen X, Liang S J, Wang Q H, Miao F 2018 *Nano Lett.* **18** 7962
- [88] Zhao W, Fei Z, Song T, Choi H K, Palomaki T, Sun B, Malinowski P, McGuire M A, Chu J H, Xu X, Cobden D H 2020 *Nat. Mater.* **19** 503
- [89] Fujimura R, Yoshimi R, Mogi M, Tsukazaki A, Kawamura M, Takahashi K S, Kawasaki M, Tokura Y 2021 *Appl. Phys. Lett.* **119** 032402
- [90] Wang H, Wu H, Liu Y, Chen D, Pandey C, Yin J, Lei N, Zhang J, Lu H, Shi S, Li P, Fert A, Wang K L, Nie T, Zhao W 2021 arXiv: 2111.14128 [physics. app-ph]
- [91] Shao Y, Lü W, Guo J, Qi B, Lü W, Li S, Guo G, Zeng Z 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 092401
- [92] Shin I, Cho W J, An E, Park S, Jeong H, Jang S, Baek W J, Park S Y, Yang D, Seo J H, Kim G, Ali M N, Choi S, Lee H, Kim J S, Kim S D, Lee G 2022 *Adv. Mater.* **34** 2101730
- [93] Kao I H, Muzzio R, Zhang H, Zhu M, Gobbo J, Yuan S, Weber D, Rao R, Li J, Edgar J H, Goldberger J E, Yan J, Mandrus D G, Hwang J, Cheng R, Katoch J, Singh S 2022 *Nat. Mater.* **21** 1029
- [94] Chen X, Wang H, Liu H, Wang C, Wei G, Fang C, Wang H, Geng C, Liu S, Li P, Yu H, Zhao W, Miao J, Li Y, Wang L, Nie T, Zhao J, Wu X 2022 *Adv. Mater.* **34** 2106172
- [95] Wang H, Liu Y, Wu P, Hou W, Jiang Y, Li X, Pandey C, Chen D, Yang Q, Wang H, Wei D, Lei N, Kang W, Wen L, Nie T, Zhao W, Wang K L 2020 *ACS Nano* **14** 10045
- [96] Zhong D, Seyler K L, Linpeng X, Wilson N P, Taniguchi T, Watanabe K, McGuire M A, Fu K M C, Xiao D, Yao W, Xu X 2020 *Nat. Nanotechnol.* **15** 187
- [97] Li J, Rashetnia M, Lohmann M, Koo J, Xu Y, Zhang X, Watanabe K, Taniguchi T, Jia S, Chen X, Yan B, Cui Y T, Shi J 2022 *Nat. Commun.* **13** 5134

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Spintronic devices based on topological and two-dimensional materials*

Jiang Long-Xing¹⁾²⁾ Li Qing-Chao²⁾³⁾ Zhang Xu²⁾ Li Jing-Feng^{2)†}
Zhang Jing²⁾ Chen Zu-Xin¹⁾ Zeng Min³⁾ Wu Hao^{2)‡}

1) (*School of Semiconductor Science and Technology, South China Normal University, Guangzhou 510631, China*)

2) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

3) (*School of Materials Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China*)

(Received 19 July 2023; revised manuscript received 28 August 2023)

Abstract

Novel quantum materials such as topological materials, two-dimensional materials, create new opportunities for the spintronic devices. These materials can improve the charge-spin conversion efficiency, provide high-quality interface, and enhance the energy efficiency for spintronic devices. In addition, they have rich interactions and coupling effects, which provides a perfect platform for finding new physics and novel methods to control the spintronic properties. Many inspiring results have been reported regarding the research on topological materials and two-dimensional materials, especially the layered topological and two-dimensional magnetic materials, and their heterostructures. This paper reviews the recent achievements of these novel quantum materials on spintronic applications. Firstly the breakthroughs that topological materials have been made in spin-orbit torque devices is introduced, then two-dimensional magnetic materials and their performances in spintronic devices are presented, finally the research progress of topological materials/two-dimensional magnetic materials heterostructures is discussed. This review can help to get a comprehensive understanding of the development of these novel quantum materials in the field of spintronics and inspire new ideas of research on these novel materials.

Keywords: spintronic devices, topological materials, two-dimensional materials, all van-der-Waals heterostructures

PACS: 75.76.+j, 75.70.AK, 73.43.Qt, 85.75.-d

DOI: 10.7498/aps.73.20231166

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2022YFA1402801), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52271239), and the Basic and Applied Basic Research Foundation of Guangdong Province, China (Grant Nos. 2022B1515120058, 2022A1515110648).

† Corresponding author. E-mail: ljingfeng@sslslab.org.cn

‡ Corresponding author. E-mail: wuhao1@sslslab.org.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理

基于外尔半金属 WTe_2 的自旋-轨道矩 驱动磁矩翻转*

魏陆军 李阳辉 普勇†

(南京邮电大学理学院, 江苏省新能源技术工程实验室, 南京 210023)

(2023年11月21日收到; 2024年1月3日收到修改稿)

外尔半金属 WTe_2 有强自旋轨道耦合且能产生新奇非常规面外极化的自旋流, 是近几年的新兴热点. 同时 WTe_2 还具有高的电荷-自旋转换效率, 能在无外磁场辅助的情况下实现垂直磁矩确定性的翻转, 这对于高密度集成低功耗磁随机存取存储器至关重要. 本文回顾了近几年 WTe_2 与铁磁层组成异质结构中自旋轨道矩研究的最新进展, 包括用不同方法制备的 WTe_2 (例如机械剥离和化学气相沉积) 与铁磁层 (例如 FeNi 和 CoFeB 等)、二维磁体 (例如 Fe_3GeTe_2 等) 组成异质结的自旋轨道矩探测和磁矩翻转的电调控研究进展. 最后, 对相关研究的发展提出展望.

关键词: WTe_2 , 自旋轨道矩, 磁矩翻转的电调控**PACS:** 85.75.-d, 71.70.Ej, 77.80.Fm**DOI:** 10.7498/aps.73.20231836

1 引言

在过去三十年中, 巨磁电阻和隧穿磁电阻的发现已经显著提高了硬盘存储密度^[1-3]. 随着自旋电子学的快速发展, 新型的自旋电子器件, 如赛道存储器和磁随机存取存储器 (magnetic random accessory memory, MRAM) 等, 在后摩尔时代展现出了巨大的潜力^[4,5]. 这些自旋电子器件的功耗和存储速度取决于调控磁矩翻转的方法. 最传统的方法是利用外加电流产生磁场来调控磁矩翻转, 然而由于其功耗高、密度低且伴随有杂散场产生, 因此不利于高性能器件实际的应用. 为了解决这个难题, 在过去的二十多年里, 研究者们利用电流诱导的力矩来操控磁矩翻转^[6-10]. 最初是利用自旋转移矩 (spin-transfer torque, STT) 效应, 即电子被一层铁磁层自旋极化, 自旋极化的电子影响另一铁磁

层的磁化翻转的现象^[8,11]. 现在已被用于制造商用 STT-MRAMs. 尽管 STT 有很多优点, 然而, 过高的临界翻转电流密度会增加绝缘隧穿层击穿的风险, 从而对器件的稳定性产生负面影响^[12,13].

另一种方法是电流诱导的自旋轨道矩 (spin-orbit torque, SOT), 这最近已成为一种很有前途的高效操控磁化翻转的技术^[9,10,14]. 最典型的 SOT 结构包括铁磁 (ferromagnetic, FM)/非磁金属 (normal metal, NM) 异质结. 当电流在 FM/NM 中流动时, 由于体或界面自旋轨道耦合作用, NM 中电流会转化为自旋流, 然后在 FM/NM 界面聚积, 并扩散到相邻的 FM 层, 使自旋流通过角动量传递对局部磁矩施加力矩. SOT 的根本起源在于 NM 层的强自旋轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC), 且广泛用于磁矩的电调控, 如快速磁化开关、高速磁畴壁运动和自旋波激发^[9,10,14-18]. 与 STT 器件相比, 电流不需要经过隧道结层, 且自旋转换效率较

* 国家自然科学基金 (批准号: 52001169, 61874060, U1932159, 61911530220) 和南京邮电大学引进人才科研启动基金 (批准号: NY219164, NY217118) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yongpu@njupt.edu.cn

高. 因此 SOT 器件具有稳定性更高、响应速度更快和能耗更低等优点. 为了更高效地产生自旋流和实现磁矩翻转的电调控, 必须增强 NM 层的 SOC 强度. 同时, 为了构建具有强 SOC 的 NM/FM 异质结, 过去人们探索了大量的 NM 材料. 在先前的研究中, Pt, W 和 Ta 等 5d 重金属因具有较强的 SOC 而被广泛用作自旋源材料^[10,14,19]. 然而, 这些材料的自旋霍尔角 (spin Hall angle, SHA) 通常小于 1^[20,21]. 对于 SOT 翻转垂直磁化而言, 这些材料通常需要打破对称性才能实现^[22-28]. 然而, 克服这一限制通常采用复杂的制造工艺或额外的磁性层, 这会降低存储密度和器件的耐久性. 因此, 迫切需要寻找具有强 SOC 的新型材料来提高 SOT 效率, 同时能实现零磁场垂直磁化翻转.

作为一种替代方案, 二维范德瓦耳斯 (van der Waals, vdW) 层状材料最近被提出可以作为 SOT 器件的自旋源材料. 在各种 vdW 材料中, 过渡金属硫族化合物 (transition metal dichalcogenides, TMDs) 因其具有非平凡的能带结构、可调电导率和强 SOC 而成为有前途的候选材料^[29-31]. TMDs 在 SOT 应用中表现出诸多优势, 如设计晶体对称和电场来调控 SOT 的强度、SOT 效率高于 NMs 及其可以扩展到原子层极限^[32,33]. 最近的研究表明外尔半金属也具有非平凡能带结构^[34,35], 可引起明

显的 Edelstein 效应, 且其比拓扑绝缘体或 Rashba 体系的强一个数量级. 同时在外尔半金属中, 体态产生的强烈本征自旋霍尔效应也有助于自旋流的产生^[36]. 与其他新型的二维自旋源材料 (如 MoS₂, WSe₂ 和 WS₂ 等) 相比, 二维外尔半金属材料具备更低的对称性, 以满足产生非传统 SOT 所需的对称性要求, 并且拥有更高的电导率, 从而可能降低磁矩翻转操作的功耗. 尤其 Td 相的 WTe₂ 具有很强的 SOC 和在表面态和体态中都具有受时间反演对称性保护的大自旋极化的非平凡能带结构^[34,37]. 同时对于低对称性结构的 WTe₂ 具有更强的 SOC, 既可以产生常规的面内类阻尼矩 (τ_S), 也可以产生非常规的面外类阻尼矩 (τ_B)^[32,38]. 最近研究者利用 WTe₂ 已经实现了零磁场低温和室温下磁矩翻转的电调控^[39-44], 这为研究新型自旋电子器件提供了很有价值的参考. 表 1 汇总了已报道的实验研究工作中 WTe₂ 晶体的制备方法、铁磁层材料以及 WTe₂/FM 异质结的 SOT 的表征方法、测试温度和自旋霍尔电导率^[32,38-43,45-47].

本综述首先总结了基于 WTe₂ 的异质结的自旋轨道矩的研究的最新实验进展, 然后介绍了 WTe₂/FM 异质结的自旋轨道矩的探测和磁矩翻转的电调控相关工作, 最后提出 WTe₂ 实际应用要求, 并进行总结和展望.

表 1 实验研究工作中 WTe₂ 晶体的制备方法、铁磁层材料和 WTe₂/FM 异质结的 SOT 的表征方法、测试温度和自旋霍尔电导率

Table 1. Preparation method of WTe₂ crystal, FM material, measurement method, experimental temperature and spin Hall conductivity for SOT in WTe₂/FM heterostructures.

制备方法	铁磁层材料	表征方法	测试温度/K	自旋霍尔电导率/ $10^3 (h/2e)(\Omega \cdot m)^{-1}$	文献
Exfoliation	Py	ST-FMR	300	$\sigma_S = 8 \pm 2$ $\sigma_A = 9 \pm 3$ $\sigma_B = 3.6 \pm 0.8$	[38]
	Py	SHH/ST-FMR	300	$\sigma_S, \sigma_T, \sigma_A, \sigma_B$ observed	[32]
	Py	ST-FMR/SHH	300	$\sigma_S, \sigma_A, \sigma_B$ observed	[45]
	Fe _{2.78} GeTe ₂	AHE loop shift	150—190	σ_B observed	[39]
	Fe ₃ GeTe ₂	Current-driven MS	110—135	σ_B observed	[40]
	Fe ₃ GeTe ₂	AHE loop shift	120	σ_B observed	[41]
	SrRuO ₃	AHE loop shift	40	σ_B observed	[43]
CVD	CoTb	SHH	300	σ_S, σ_T observed	[46]
	FeNi	ST-FMR	300	$\sigma_{OP} = 1.76$ $\sigma_{IP} = 7.36$	[47]
	CoFeB	AHE loop shift/SHH	300	$\sigma_{OP} = 2.05 \pm 0.39$ $\sigma_{IP} = 3.58 \pm 0.12$	[42]

注: $\sigma_S, \sigma_T, \sigma_B$ 和 σ_A 分别表示面内类阻尼SOT、面内类场SOT、面外类阻尼SOT和面外类场SOT相关的自旋霍尔电导率; σ_{OP} 和 σ_{IP} 分别表示面外和面内自旋霍尔电导率; ST-FMR, SHH, AHE loop shift和Current-driven MS分别表示自旋力矩-铁磁共振、二次谐波测量技术、反常霍尔效应回线偏移和电流驱动的磁化开关测试测试方法; CVD表示化学气相沉积.

2 WTe₂/FM 异质结自旋轨道矩的研究

外尔半金属 WTe₂ 具有很强的 SOC^[37,48,49] 和较高的电子迁移率^[50], 这使其成为一种极具潜力的自旋源材料. WTe₂ 和其他过渡金属二硫化物一样具有层状结构, 但由于其额外的结构畸变导致较低的晶体对称性, 即缺乏反演对称性, 其空间群为 $Pmn2_1$ ^[51]. 对于 WTe₂/FM 异质结构中, 旋转轴和滑移面对称在界面处被打破, 因此它只有一种对称, 即相对于 bc 平面的镜像对称 (图 1). 在 ac 平面上没有镜像对称, 因此没有关于 c 轴的 180° 旋转对称 (垂直于 ab 平面).

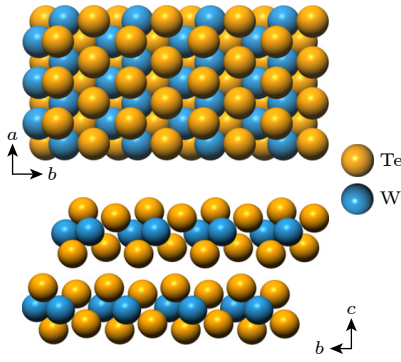


图 1 WTe₂ 晶体结构
Fig. 1. Crystal structure of WTe₂.

在 2016 年, MacNeill 等^[38] 利用自旋力矩-铁磁共振 (spin-torque ferromagnetic resonance, ST-FMR) 技术首次在机械剥离的 WTe₂/Py (Py = Ni₈₁Fe₁₉) 异质结构中发现存在面外类阻尼矩 (τ_B). 他们在研究中发现, 当微波电流沿 a 轴 (低对称轴) 时, 公式 $V_A(\phi) = A \cos(\phi) \sin(2\phi) + B \sin(2\phi)$ 能很好地拟合反对称电压信号 V_A 的角度依赖特性, 表明产生的面外 SOT 除了有传统的面外类场矩 (τ_A), 还有 τ_B 的贡献. 然而, 当微波电流沿着 b 轴 (高对称轴) 时, 额外项 ($B \sin(2\phi)$) 消失, 说明此时只存在传统的 τ_A . 当微波电流从 a 轴逐渐变到 b 轴时, τ_B/τ_A 逐渐减小甚至为零, 这证明了观察到面外 SOT 与 WTe₂ 晶体中的对称性相关. 进一步研究发现, τ_B/τ_A 和 τ_S/τ_A (τ_S 表示面内类阻尼矩) 都与 WTe₂ 的厚度无关, 表明这 3 个力矩 (τ_S , τ_A 和 τ_B) 的产生主要是 WTe₂/Py 异质结的界面效应引起的. 此外, 当微波电流沿着低对称轴时, 他们还得到:

$$\sigma_S = (8 \pm 2) \times 10^3 (\hbar/2e) (\Omega \cdot \text{m})^{-1},$$

$$\sigma_A = (9 \pm 3) \times 10^3 (\hbar/2e) (\Omega \cdot \text{m})^{-1},$$

$$\sigma_B = (3.6 \pm 0.8) \times 10^3 (\hbar/2e) (\Omega \cdot \text{m})^{-1}.$$

2017 年, MacNeill 等^[32] 利用二次谐波霍尔 (second-harmonic Hall, SHH) 和 ST-FMR 技术也研究了 WTe₂/Py 异质结中 SOT 与 WTe₂ 厚度的关系, 进一步证实了面外类阻尼矩的存在, 且其大小与 WTe₂ 厚度几乎没有关系 (图 2(a)), 即使是单层 WTe₂ 样品也能提供与更厚的样品相当的 SOT. 然而, 面外类场矩与 WTe₂ 厚度具有显著的关系, 主要起源于奥斯特场. 同时, 在具有单层台阶 WTe₂ 的样品中发现符号相反的面外类阻尼矩. 在 WTe₂/Py 器件中, SHH 电压的角度依赖性表明单层和双层 WTe₂ 的样品的 τ_B 符号相反 (图 2(b)), 这些发现与 WTe₂ 晶体的非对称性相一致.

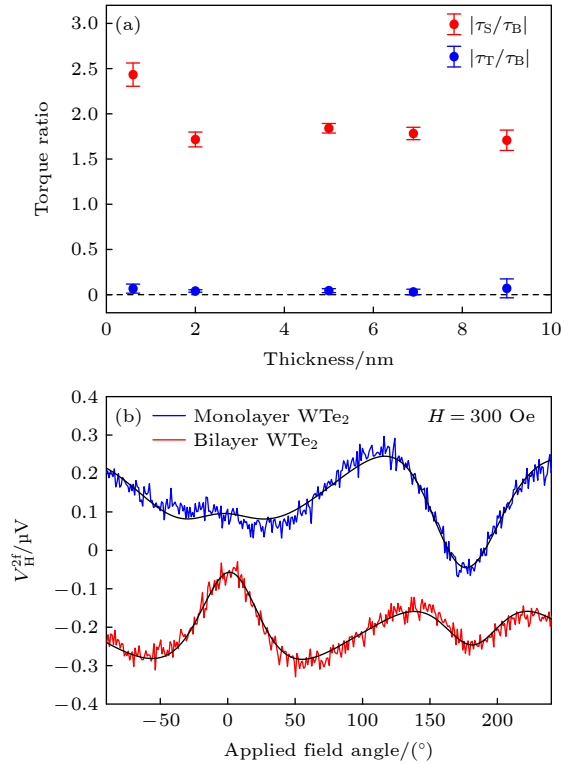


图 2 (a) τ_S/τ_B 和 τ_T/τ_B 分别与 WTe₂ 厚度的关系; (b) 单层和双层的 WTe₂/Py 器件的二次谐波霍尔电压与外加磁场角度关系, τ_B 的符号反转反映在发现峰值信号的不同角度上^[32]

Fig. 2. (a) Ratios of the τ_S/τ_B and τ_T/τ_B as a function of WTe₂ thickness; (b) second-harmonic Hall data for a WTe₂/Py device with a monolayer bilayer WTe₂, as a function of the angle of the applied magnetic field. The sign reversal of τ_B is reflected in the different angles at which the peak signals are found^[32].

2019年, Shi等^[45]也利用ST-FMR技术测量了机械剥离的WTe₂/Py异质结的SOT,发现当*b*轴通电流时SOT明显依赖于厚度变化,且SOT的效率随着厚度的增大而增大.他们还通过ST-FMR和电流诱导的磁化开关方法分别测量不同厚度的WTe₂器件中的有效自旋霍尔角,结果都表现出类饱和的体效应特性,这表明SOT的起源是体效应,也就是自旋霍尔效应.由于机械剥离的WTe₂仅为微米尺寸,不利于器件实际的应用.于是在2021年,Shi等^[47]采用CVD方法生长了厘米尺寸的Td相的WTe₂薄膜,并利用ST-FMR研究了5 nm厚的WTe₂与FeNi组成异质结的自旋轨道矩,得到面内和面外的自旋霍尔电导率分别为 $7.36 \times 10^3 (\hbar/2e) (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$, $1.76 \times 10^3 (\hbar/2e) (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$,这与机械剥离WTe₂得到的结果相吻合.与此同时,还有很多研究者努力用磁控溅射的方法生长WTe₂,但只能制备到WTe_x非晶体,仅观察到有常规的面内类阻尼矩,而没有面外类阻尼矩^[52-54].

3 WTe₂/FM 异质结磁矩翻转的电调控

3.1 WTe₂和普通铁磁异质结

2019年, Shi等^[45]首次报道了在机械剥离的WTe₂/Py异质结中室温下电流驱动面内的磁化翻转的现象,并通过磁光克尔显微镜对WTe₂(80 nm)/Py(6 nm)器件的电流驱动的面内磁畴翻转进行表征,测得临界翻转电流密度为 $2.96 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$.这一数值比拓扑绝缘体/铁磁金属(Bi₂Se₃/Py)($\sim 6 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$)^[55]和Pt(6 nm)/Py(6 nm)($\sim 2.80 \times 10^7 \text{ A/cm}^2$)异质结的临界翻转电流密度小.由于WTe₂的电阻率($\sim 580 \mu\Omega \cdot \text{cm}$)低于Bi₂Se₃拓扑绝缘体的(8层样品的电阻率约为 $2600 \mu\Omega \cdot \text{cm}$),因此在WTe₂/Py异质结中电流驱动磁化翻转的功耗比Bi₂Se₃/Py异质结的小19倍,也比Pt(6 nm)/Py(6 nm)的小350倍.此外,他们还观察到WTe₂/Py中的手性磁畴壁倾斜,这归因于界面诱导Dzyaloshinskii-Moriya相互作用.之后,他们又利用CVD生长了WTe₂,并与NiFe组成异质结^[47],测得临界翻转电流密度为 $2.53 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$,这与机械剥离的WTe₂的结果基本一致.

2021年, Xie等^[43]构建了氧化物SrRuO₃和机械剥离WTe₂的异质结,在40 K下实现了电流诱导垂直磁化的确定性翻转,这归因于范德瓦耳斯

材料WTe₂产生的面外自旋极化.他们通过反常霍尔效应回线偏移(AHE loop shift)方法进一步证实了面外自旋极化的存在.同年, Zhao等^[56]也报道了在室温下WTe₂可以通过电流诱导产生自旋极化及在石墨烯通道中的实现高效自旋注入和检测.实验结果表明, WTe₂中存在一种非常规的电荷-自旋转换现象,这与传统的自旋霍尔效应和Rashba-Edelstein效应相反.这种现象主要是由于系统晶体的对称性所限制而产生的.由于WTe₂晶体对称性的降低以及具有大的自旋贝里曲率(spin Berry curvature)和新费米态的自旋结构自旋轨道相互作用,使得它可以产生较大的自旋极化.这些发现为利用外尔半金属材料作为全范德瓦耳斯自旋电子电路中的非磁性自旋源以及低功耗和高性能非易失性自旋电子技术提供了机会.

近期, Wang等^[42]利用CVD技术生长了晶圆级、高质量的少层WTe₂,之后在其表面利用磁控溅射沉积了垂直磁化的多层膜Ti(1.5 nm)/Co₂₀Fe₆₀B₂₀(1.2 nm)/MgO(2 nm)/Ta(3 nm).他们观测到了室温下无外场辅助的电流驱动的磁化翻转现象(图3(a)).通过SHH结合AHE loop shift的方法,他们测量了该样品面内和面外的自旋霍尔电导率分别为 $(3.58 \pm 0.12) \times 10^3 (\hbar/2e) (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$ 和 $(2.05 \pm 0.39) \times 10^3 (\hbar/2e) (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$,并估算出其面内和面外的电荷-自旋转换效率分别为 0.36 ± 0.01 和 0.02 ± 0.004 .他们指出自旋极化的面外和面内分量比约为5%,足以实现无外场辅助的确定性磁化翻转.该样品的临界翻转电流密度为 $3.25 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$,比控制样品W/Ti/CoFeB/MgO($13.69 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$)更低.这些实验结果为WTe₂作为自旋源材料在磁矩翻转的电调控技术中的应用提供了有益的实验支持,并对其进一步的研究具有重要的参考价值.

3.2 WTe₂/二维铁磁异质结

2022年, Kao等^[39]利用机械剥离制备了全vdW WTe₂/Fe_{2.78}GeTe₂异质结,并在温度为100—200 K之间实现了零磁场下电流驱动的垂直磁化确定性的翻转.由于二维Fe_{2.78}GeTe₂的居里温度($T_C < 230 \text{ K}$)远低于室温,因此只能在低温下研究电流驱动的磁化翻转行为.他们通过测试AHE loop shift证明了当电流应用于WTe₂的*a*轴时存在非零面外类阻尼矩,且AHE loop shift是突然变化的,而不是一个线性的偏移,这表明系统中不存

在明显的面外类场矩. 在 170 K 时器件的临界翻转电流密度约为 6.5×10^6 A/cm².

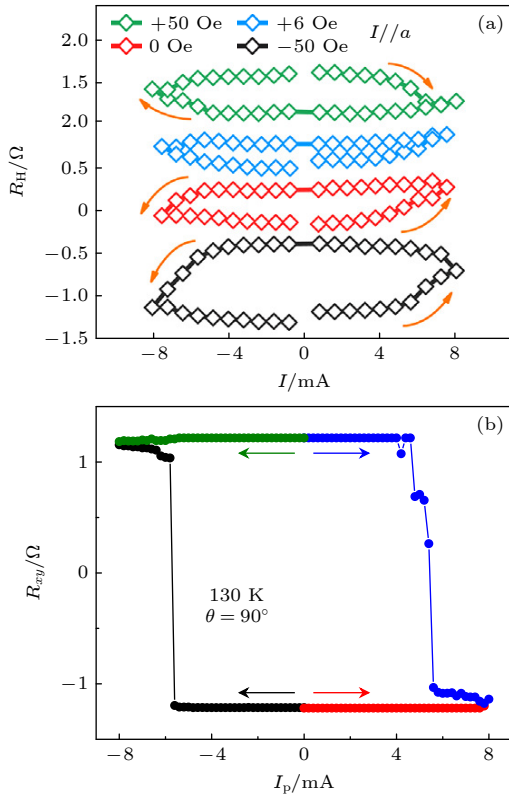


图 3 (a) 电流沿 WTe₂ *a* 轴诱导磁化翻转特性^[42]; (b) 在 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 异质结中 SOT 诱导的无场磁化翻转^[40]
 Fig. 3. (a) The current-induced magnetization switching behavior along the *a* axis of WTe₂^[42]; (b) SOT-induced field-free switching in WTe₂/Fe₃GeTe₂ bilayers^[40].

同年, Ye 等^[40] 提出并实现了轨道转移矩 (orbit-transfer torque, OTT), 即利用轨道磁矩对磁化强度施加力矩, 从而提出了一种无外加磁场的电流驱动垂直磁化翻转的新策略. 由于在 WTe₂ 中存在非零贝里曲率偶极子 (Berry curvature dipole), 施加电流可以产生轨道磁矩的垂直极化, 并且通过改变电流极性可以改变极化方向. 在此原理的指导下, 他们构建了 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 异质结构, 实现了 OTT 驱动零场下的电流诱导磁化翻转 (图 3(b)). 在温度为 120 K 时, 对于不同厚度的 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 样品, 临界翻转电流密度约为 6.5×10^6 — 8.6×10^6 A/cm². 此外, Wang 等^[41] 也在二维 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 异质结中利用非常规的电荷-自旋转换实现垂直磁化零磁场的确定性翻转, 并提出了一种以前未实现的对称写入和读出机制. 这种机制可以在基于垂直各向异性自旋轨道量子材料 WTe₂ 和 Fe₃GeTe₂ 的体系中实现, 并且可以实现功能完整

的逻辑内存操作集和更复杂的非易失性半加法器逻辑功能. 同时, Shin 等^[57] 也利用 WTe₂/Fe₃GeTe₂ 全范德瓦耳斯异质结中观测到了电流诱导的磁化翻转特性, 估算出 WTe₂ 的 SOT 效率为 4.6. 值得一提的是, 在 150 K 时获得的临界翻转电流密度为 3.90×10^6 A/cm², 比传统重金属/铁磁体薄膜的小一个数量级. 这些研究成果为基于自旋电子学的新型器件的设计和制备提供了有益的参考, 并为未来的研究提供了新的思路 and 方向.

4 结论和展望

本文综述了基于二维外尔半金属 WTe₂ 的自旋轨道矩的最新研究进展, 介绍了 WTe₂ 与普通铁磁及二维铁磁组成异质结的研究现状和自旋轨道矩诱导磁矩翻转的研究进展. 外尔半金属 WTe₂ 作为一种能产生非常规面外 SOT 的新型量子材料, 将会构建很多新的自旋电子器件. 对于其应用还存在以下几个方面的挑战.

1) 面外类阻尼 SOT 产生的机制不够清楚. 利用自旋霍尔效应和 Rashba-Edelstein 效应很难解释 WTe₂ 产生非常规的面外极化的自旋流, 需要进一步的实验结合理论来阐明本质机制.

2) 室温全二维异质结的磁矩翻转的电调控. 器件室温工作可以拓宽实际应用的价值. 这需要新发现的或寻找新的室温二维磁性材料, 如 Fe₅GeTe₂^[58-60], CrTe₂^[61] 和 Fe₃GaTe₂^[62,63] 等. 同时还要求制备出室温高质量原子层级别异质结的磁矩翻转的电调控器件, 这更有利于提高下一代高性能自旋电子器件的集成密度.

3) 大面积生长高质量的 WTe₂ 晶体及室温二维铁磁体. 在 SOT 器件中, 二维材料通常采用机械剥离的方法制备, 难以与现代半导体技术相结合. 虽然用 CVD 方法能长出厘米尺寸的 WTe₂, 还需要进一步优化实验条件生长均匀、原子层、高质量和晶圆尺寸的二维 WTe₂ 晶体. 此外, Liu 等^[64] 利用分子束外延获得晶圆级二维 Fe₃GeTe₂ 晶体, 这为大面积和均匀可控层数生长二维材料的制备提供重要的参考.

4) 兼容问题. 二维材料必须转移到硅基上, 与其他薄膜形成高质量的异质结组装. 另外与传统的隧道结或者全二维隧道结组装也是当前面临的一大挑战.

基于二维外尔半金属 WTe_2 的 SOT 器件在基础研究和技术应用方面吸引了越来越多研究者的关注,并在 SOT 效率和磁矩的电调控等方面取得了一些进展.最近,研究者发现另外一种新的外尔半金属材料 TaIrTe_4 , 它的电阻率比 WTe_2 低,能够产生面外的类阻尼矩,且自旋霍尔电导率高于 WTe_2 .此外,它还实现了室温下零磁场高效的磁化翻转的电调控^[65,66].这些发现将促进外尔半金属材料在下一代高性能自旋电子器件的发展,我们期望基于外尔半金属的 SOT 器件未来能够得到广泛应用.

参考文献

- [1] Baibich M N, Broto J M, Fert A, Nguyen V D F, Petroff F, Etienne P, Creuzet G, Friederich A, Chazelas J 1988 *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472
- [2] Binasch G, Grünberg P, Saurenbach F, Zinn W 1989 *Phys. Rev. B* **39** 4828
- [3] Moodera J S, Kinder L R, Wong T M, Meservey R 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3273
- [4] Parkin S S, Hayashi M, Thomas L 2008 *Science* **320** 190
- [5] Claude C, Albert F, Frédéric N V D 2007 *Nature* **6** 813
- [6] Albert F J, Katine J A, Buhrman R A, Ralph D C 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 3809
- [7] Katine J A, Albert F J A, Buhrman R A 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3149
- [8] Brataas A, Kent A D, Ohno H 2012 *Nat. Mater.* **11** 372
- [9] Liu L, Lee O J, Gudmundsen T J, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 096602
- [10] Liu L, Pai C F, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Science* **336** 555
- [11] Slonczewski J C 1996 *J. Magn. Magn. Mater.* **159** L1
- [12] He C L, Xu H J, Tang J, Wang X, Wei J W, Shen S P, Chen Q Q, Shao Q M, Yu G Q, Zhang G Y, Wang S G 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 127501 (in Chinese) [何聪丽, 许洪军, 汤建, 王潇, 魏晋武, 申世鹏, 陈庆强, 邵启明, 于国强, 张广宇, 王守国 2021 物理学报 **70** 127501]
- [13] Tang W, Liu H L, Li Z, Pan A L, Zeng Y J 2021 *Adv. Sci.* **8** 2100847
- [14] Miron I M, Garello K, Gaudin G, Zermatten P J, Costache M V, Auffret S, Bandiera S, Rodmacq B, Schuhl A, Gambardella P 2011 *Nature* **476** 189
- [15] Miron I M, Moore T, Szabolcs H, Buda-Prejbeanu L D, Auffret S, Rodmacq B, Pizzini S, Vogel J, Bonfim M, Schuhl A, Gaudin G 2011 *Nat. Mater.* **10** 419
- [16] Demidov V E, Urazhdin S, Ulrichs H, Tiberkevich V, Slavin A, Baither D, Schmitz G, Demokritov S O 2012 *Nat. Mater.* **11** 1028
- [17] Yang S H, Ryu K S, Parkin S 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 221
- [18] Tang W, Zhou Z W, Nie Y Z, Xia Q L, Zeng Z M, Guo G H 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 172402
- [19] Avci C O, Quindeau A, Pai C F, Mann M, Caretta L, Tang A S, Onbasli M C, Ross C A, Beach G S D 2016 *Nat. Mater.* **16** 309
- [20] Ryu J, Lee S, Lee K J, Park B G 2020 *Adv. Mater.* **32** 1907148
- [21] Liu L, Moriyama T, Ralph D C, Buhrman R A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 036601
- [22] Fukami S, Zhang C, DuttaGupta S, Kurenkov A, Ohno H 2016 *Nat. Mater.* **15** 535
- [23] Cai K M, Yang M Y, Ju H L, Wang S M, Ji Y, Li B H, Edmonds K W, Sheng Y, Zhang B, Zhang N, Liu S, Zheng H Z, Wang K Y 2017 *Nat. Mater.* **16** 712
- [24] Baek S C, Amin V P, Oh Y W, Go G, Lee S J, Lee G H, Kim K J, Stiles M D, Park B G, Lee K J 2018 *Nat. Mater.* **17** 509
- [25] Ma Q, Li Y, Gopman D B, Kabanov Y P, Shull R D, Chien C L 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 117703
- [26] Sheng Y, Edmonds K W, Ma X, Zheng H, Wang K Y 2018 *Adv. Electron. Mater.* **4** 1800224
- [27] Bekele Z A, Liu X H, Cao Y, Wang K Y 2020 *Adv. Electron. Mater.* **7** 2000793
- [28] Cao Y, Sheng Y, Edmonds K W, Ji Y, Zheng H, Wang K Y 2020 *Adv. Mater.* **32** e1907929
- [29] Yuan H, Bahramy M S, Morimoto K, Wu S, Nomura K, Yang B J, Shimotani H, Suzuki R, Toh M, Kloc C, Xu X, Arita R, Nagaosa N, Iwasa Y 2013 *Nat. Phys.* **9** 563
- [30] Jungfleisch M B, Zhang W, Sklenar J, Ding J, Jiang W, Chang H, Fradin F Y, Pearson J E, Ketterson J B, Novosad V, Wu M, Hoffmann A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 057601
- [31] Deng K, Wan G L, Deng P, Zhang K N, Ding S J, Wang E Y, Yan M Z, Huang H Q, Zhang H Y, Xu Z L, Denlinger J, Fedorov A, Yang H T, Duan W H, Yao H, Wu Y, Fan S S, Zhang H J, Chen X, Zhou S Y 2016 *Nat. Phys.* **12** 1105
- [32] MacNeill D, Stiehl G M, Guimarães M H D, Reynolds N D, Buhrman R A, Ralph D C 2017 *Phys. Rev. B* **96** 054450
- [33] Lü W M, Jia Z Y, Wang B C, Lu Y, Luo X, Zhang B S, Zeng Z M, Liu Z Y 2018 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **10** 2843
- [34] Li Q, Yan J Q, Yang B, Zang Y Y, Zhang J J, He K, Wu M H, Zhao Y F, Mandrus D, Wang J, Xue Q K, Chi L F, Singh D J, Pan M 2016 *Phys. Rev. B* **94** 115419
- [35] Johansson A, Henk J, Mertig I 2018 *Phys. Rev. B* **97** 085417
- [36] Sun Y, Zhang Y, Felser C, Yan B H 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 146403
- [37] Jiang J, Tang F, Pan X C, Liu H M, Niu X H, Wang Y X, Xu D F, Yang H F, Xie B P, Song F Q, Dudin P, Kim T K, Hoesch M, Das P K, Vobornik I, Wan X G, Feng D L 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 166601
- [38] MacNeill D, Stiehl G M S, Guimarães M H D, Buhrman R A, Park J, Ralph D C 2016 *Nat. Phys.* **13** 300
- [39] Kao I H, Muzzio R, Zhang H, Zhu M, Gobbo J, Yuan S, Weber D, Rao R, Li J, Edgar J H, Goldberger J E, Yan J, Mandrus D G, Hwang J, Cheng R, Katoch J, Singh S 2022 *Nat. Mater.* **21** 1029
- [40] Ye X G, Zhu P F, Xu W Z, Shang N Z, Liu K H, Liao Z M 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 037303
- [41] Wang L Z, Xiong J L, Cheng B, Dai Y D, Wang F Y, Pan C, Cao T J, Liu X W, Wang P F, Chen M Y, Yan S N, Liu Z L, Xiao J J, Xu X H, Wang Z L, Shi Y G, Cheong S W, Zhang H J, Liang S J, Miao F 2022 *Sci. Adv.* **8** 6833
- [42] Wang X R, Wu H, Qiu R Z, Huang X H, Zhang J R, Long J W, Yao Y X, Zhao Y R, Zhu Z F, Wang J Y, Shi S Y, Chang H X, Zhao W S 2023 *Cell Rep. Phys. Sci.* **4** 101468
- [43] Xie Q, Lin W, Sarkar S, Shu X, Chen S, Liu L, Zhao T, Zhou C, Wang H, Zhou J, Gradečak S, Chen J 2021 *APL Mater.* **9** 051114
- [44] Wei L J, Yin X M, Liu P, Zhang P C, Niu W, Liu P, Yang J J, Peng J C, Huang F, Liu R B, Chen J R, Chen L, Zhou S, Li F, Niu X H, Du J, Pu Y 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 252404
- [45] Shi S Y, Liang S H, Zhu Z F, Cai K M, Pollard S D, Wang Y, Wang J Y, Wang Q S, He P, Yu J W, Eda G, Liang G C,

- Yang H 2019 *Nat. Nanotechnol.* **14** 945
- [46] Lü W X, Xue H W, Cai J L, Chen Q, Zhang B S, Zhang Z Z, Zeng Z M 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 052406
- [47] Shi S Y, Li J, Hsu C H, Lee K, Wang Y, Yang L, Wang J Y, Wang Q S, Wu H, Zhang W, Eda G, Liang G C, Chang H, Yang H 2021 *Adv. Quantum Technol.* **4** 2100038
- [48] Rhodes D, Das S, Zhang Q R, Zeng B, Pradhan N R, Kikugawa N, Manousakis E, Balicas L 2015 *Phys. Rev. B* **92** 125152
- [49] Zhao B, Khokhriakov D, Zhang Y, Fu H, Karpiak B, Hoque A M, Xu X, Jiang Y, Yan B, Dash S P 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 013286
- [50] Ali M N, Xiong J, Flynn S, Tao J, Gibson Q D, Schoop L M, Liang T, Haldolaarachchige N, Hirschberger M, Ong N P, Cava R J 2014 *Nature* **514** 205
- [51] Brown B E 1966 *Acta Cryst.* **20** 264
- [52] Hang X, Talapatra A, Chen X, Luo Z Y, Wu Y H 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 042401
- [53] Peng C W, Liao W B, Chen T Y, Pai C F 2021 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13** 15950
- [54] Li X, Li P, Hou V D H, De M, Nien C H, Xue F, Yi D, Bi C, Lee C M, Lin S J, Tsai W, Suzuki Y, Wang S X 2021 *Matter* **4** 1639
- [55] Wang Y, Zhu D, Wu Y, Yang Y, Yu J, Ramaswamy R, Mishra R, Shi S, Elyasi M, Teo K L, Wu Y, Yang H 2017 *Nat. Commun.* **8** 1364
- [56] Zhao B, Karpiak B, Khokhriakov D, Johansson A, Hoque A M, Xu X, Jiang Y, Mertig I, Dash S P 2020 *Adv. Mater.* **32** 2000818
- [57] Shin I, Cho W J, An E S, Park S, Jeong H, Jang S, Baek W J, Park S Y, Yang D, Seo J H, Kim G, Ali M N, Choi S, Lee H, Kim J S, Kim S D, Lee G H 2022 *Adv. Mater.* **34** 2101730
- [58] Tian C K, Pan F H, Xu S, Ai K, Xia T L, Cheng P 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 202402
- [59] Alahmed L, Nepal B, Macy J, Zheng W, Casas B, Sapkota A, Jones N, Mazza A R, Brahlek M, Jin W, Mahjouri-Samani M, Zhang S S L, Mewes C, Balicas L, Mewes T, Li P 2021 *2D Mater.* **8** 045030
- [60] Zhao B, Ngaloy R, Ghosh S, Ershadrad S, Gupta R, Ali K, Hoque A M, Karpiak B, Khokhriakov D, Polley C, Thiagarajan B, Kalaboukhov A, Svedlindh P, Sanyal B, Dash S P 2023 *Adv. Mater.* **35** 2209113
- [61] Zhang X Q, Lu Q S, Liu W Q, Niu W, Sun J B, Cook J, Vaninger M, Miceli P F, Singh D J, Lian S W, Chang T R, He X Q, Du J, He L, Zhang R, Bian G, Xu Y B 2021 *Nat. Commun.* **12** 2492
- [62] Zhang G J, Guo F, Wu H, Wen X K, Yang L, Jin W, Zhang W F, Chang H X 2022 *Nat. Commun.* **13** 5067
- [63] Pan H Y, Zhang C S, Shi J Y, Hu X Q, Wang N Z, An L H, Duan R H, Deb P, Liu Z, Gao W B 2023 *ACS Mater. Lett.* **5** 2226
- [64] Liu S S, Yuan X, Zou Y C, Sheng Y, Huang C, Zhang E Z, Ling J W, Liu Y W, Wang W Y, Zhang C, Zou J, Wang K Y, Xiu F X 2017 *npj 2D Mater. Appl.* **1** 30
- [65] Liu Y K, Shi G Y, Kumar D, Kim T, Shi S Y, Yang D S, Zhang J T, Zhang C H, Wang F, Yang S H, Pu Y C, Yu P, Cai K M, Yang H 2023 *Nat. Electron.* **6** 732
- [66] Zhang Y, Xu H J, Jia K, Lan G B, Huang Z H, He B, He C L, Shao Q M, Wang Y Z, Zhao M K, Ma T Y, Dong J, Guo C Y, Cheng C, Feng J F, Wan C H, Wei H X, Shi Y G, Zhang G Y, Han X F, Yu G Q 2023 *Sci. Adv.* **9** eadg9819

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Magnetization switching driven by spin-orbit torque of Weyl semimetal WTe_2 *

Wei Lu-Jun Li Yang-Hui Pu Yong†

(School of Science & New Energy Technology Engineering Laboratory of Jiangsu Province,
Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, China)

(Received 21 November 2023; revised manuscript received 3 January 2024)

Abstract

The Weyl semimetal WTe_2 exhibits significant spin-orbit coupling characteristics and can generate unconventional spin current with out-of-plane polarization, which has become a hotspot in recent years. Meanwhile, WTe_2 also has high charge-spin conversion efficiency, allowing perpendicular magnetization to be switched deterministically without the assistance of an external magnetic field, which is critical for the high-density integration of low-power magnetic random-access memories. The purpose of this paper is to review the recent advances in the research on spin orbit torque in heterostructures composed of WTe_2 and ferromagnetic layers, focusing on progress of research on the detection and magnetization switching in the spin orbit torque of heterojunctions composed of WTe_2 prepared by different methods (e.g. mechanical exfoliation and chemical vapor deposition) and ferromagnetic layers such as conventional magnets (e.g. FeNi and CoFeB, etc.) and two-dimensional magnets (e.g. Fe_3GeTe_2 , etc.). Finally, the prospect of related research is discussed.

Keywords: WTe_2 , spin-orbit torque, current-driven magnetization switching

PACS: 85.75.-d, 71.70.Ej, 77.80.Fm

DOI: [10.7498/aps.73.20231836](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231836)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52001169, 61874060, U1932159, 61911530220) and the Introduction Talent Research Launch Fund of Nanjing University of Posts and Telecommunications, China (Grant Nos. NY219164, NY217118).

† Corresponding author. E-mail: yongpu@njupt.edu.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理

基于符号回归方法探索磁性斯格明子结构近似解析式*

史猛¹⁾²⁾ 王伟伟³⁾ 杜海峰^{1)†}

1) (中国科学院合肥物质科学研究院, 强磁场科学中心, 合肥 230031)

2) (中国科学技术大学, 合肥 230026)

3) (安徽大学物质科学与信息技术研究院, 合肥 230601)

(2023年9月12日收到; 2023年11月15日收到修改稿)

磁性斯格明子是一种非平庸的拓扑磁结构, 它能够在具有 Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用的手性磁体中稳定存在, 其静态以及动态特性与其结构特征息息相关. 然而, 一般情况下斯格明子结构解析式并不存在. 因此, 许多研究者给出了近似解析式. 本文介绍了使用符号回归算法探索磁性斯格明子结构解析式的新方法, 在考虑 DM 相互作用和外部磁场对磁性斯格明子结构的影响下, 使用符号回归算法得到了两个较为合适的近似解析式, 其适用范围与占主导地位的相互作用有关. 研究结果验证了符号回归算法在探索磁性斯格明子结构解析式的强大能力, 为磁结构的解析式探索提供了新思路.

关键词: 磁性斯格明子, 符号回归, 磁性斯格明子结构, Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用

PACS: 12.39.Dc, 02.70.Wz, 83.60.Np

DOI: 10.7498/aps.73.20231473

1 引言

磁性斯格明子是一种特殊的拓扑磁结构^[1], 如图 1(a) 和图 1(b) 所示, 存在于具有由反转对称性破缺诱导的 Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用的手性铁磁材料或多层膜体系中^[2-5]. 由于其独特的拓扑保护性、非易失性、小尺寸以及低能耗的驱动特性, 磁性斯格明子在自旋电子器件领域具有广泛的应用前景, 尤其是在不同条件下的静态与动态特性引起了广泛兴趣. 磁性斯格明子的特性与其自身的结构密切相关, 因此研究其在不同相互作用下的结构变化具有重要意义.

目前, 一般的磁结构如磁畴壁 (图 1(c)) 已经

有了精确且普适的结构解析式, 这些解析式可以直观地展现不同相互作用对磁畴壁结构的影响. 然而, 对于磁性斯格明子而言, 并不存在这样一般性的精确解析式. 研究者们提出了一些近似公式来描述其基本结构. 例如, 对于较大半径的磁性斯格明子, Braun^[6] 基于显式一维畴壁结构提出了初步模拟方法, 这在结构和动力学特性的检测中得到了广泛应用^[7-10]. 在易轴磁各向异性模型的情况下, Komineas 等^[11,12] 针对不同半径的磁性斯格明子获得了渐进意义上精确的结构图像, 甚至扩展到中等半径大小的磁性斯格明子^[13]. 然而, 上述结果仍然是基于经验性公式的近似推导. 随着对磁性斯格明子的实验研究日益精细, 上述公式逐渐难以满足解释实验现象的需求. 因此, 如何更高效地获取更精确、更普适的磁性斯格明子结构解析式, 以及这

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1403603)、中国科学院战略性先导科技专项 (批准号: XDB33030100)、国家自然科学基金 (批准号: 12241406)、国家杰出青年科学基金 (批准号: 52325105)、中国科学院装备发展项目 (批准号: YJKYYQ20180012) 和中国科学院青年基础研究项目 (批准号: YSBR-084) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: duhf@hmf.ac.cn

些解析式的具体形式, 都迫切需要研究者的深入探讨.

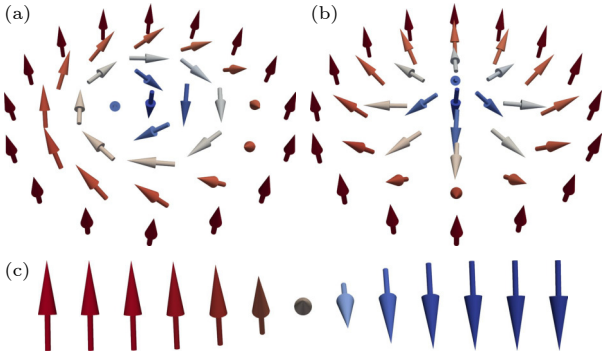


图 1 磁性斯格明子结构 (a) 布洛赫型斯格明子; (b) 奈尔型斯格明子; (c) 单磁畴壁

Fig. 1. Magnetic skyrmion structures: (a) Bloch-type skyrmion; (b) Néel-type skyrmion; (c) magnetic domain wall.

当前, 随着人工智能技术的迅猛发展, 利用机器学习等人工智能技术从实验和计算模拟产生的数据中捕捉不同物理量之间的关系^[14-17], 构建能够合理解释体系变化的模型和公式, 在物理研究领域得到了广泛应用^[18-21]. 在众多机器学习方法中, 符号回归方法是一种强大的数据驱动模型构建方法. 与一般的参数回归方法不同, 符号回归方法无需预先指定模型或公式的初始结构. 它通过遗传规划等方法, 能够同时搜索数学解析式的形式以及内部参数的数值, 因此在很大程度上不依赖于既有知识, 却能够生成一系列在理解物理体系方面具有参考价值的公式. 对于那些变量之间联系模糊、整体变化理解不够深刻的物理体系, 符号回归方法成为一项强有力的工具.

本文一方面提供了通过符号回归方法处理磁结构数据, 获得更精确、更普适的描述磁性斯格明子的结构解析式的新思路; 另一方面将符号回归方法实际运用到由微磁学模拟以及数值计算得到磁结构数据处理中, 获得描述二维磁性斯格明子的结构近似解析式. 首先概述研究所需的磁性斯格明子理论研究成果以及符号回归方法的整体框架构建; 其次描述并讨论通过符号回归方法处理磁结构数据的结果; 最后做出总结.

2 模型与方法

2.1 磁性斯格明子理论模型

本文考虑了具有交换相互作用、DM 相互作

用、磁各向异性以及外部静磁场的二维铁磁性材料薄膜. 微磁结构通过单位磁化矢量 $\mathbf{m} = \mathbf{m}(x, y)$ 描述, 即 $\mathbf{m}^2 = 1$, 其体系能量表达式为^[13]

$$E = A \int (\partial_\mu \mathbf{m} \cdot \partial_\mu \mathbf{m}) dx dy + D \int \mathbf{e}_{\text{DM}} dx dy + K \int (1 - m_3^2) dx dy - \mu_0 M_s^2 \int \mathbf{h} \cdot \mathbf{m} dx dy, \quad (1)$$

其中, A , D 和 K 分别是交换相互作用常数; DM 相互作用常数以及磁性各向异性常数, 外部静磁场 $\mathbf{h} = H/M_s$, 其中 M_s 为饱和磁化强度, \mathbf{e}_{DM} 为块体形式下的 DM 相互作用单位矢量: $\mathbf{e}_{\text{DM}} = \hat{\mathbf{e}}_\mu \cdot (\partial_\mu \mathbf{m} \times \mathbf{m})$, $\mu = 1, 2$. 同时, 引入特征长度^[13,22]:

$$l_{\text{ex}} = \sqrt{\frac{2A}{\mu_0 M_s^2}}, \quad l_w = \sqrt{A/K}, \quad l_D = 2A/D, \quad (2)$$

其中, l_{ex} 为交换长度; l_w 为畴壁宽度; l_D 给出了强 DM 相互作用的螺旋畴周期. 在微磁模拟或数值计算中, 为了简化问题和降低运算成本, 通常将所研究的体系划分成一个个的网格且一个网格区域内的所有磁矩被简化为一个磁矩, 而交换长度 l_{ex} 决定了相邻磁矩之间存在相互作用的最大距离, l_w 和 l_D 则给出了一个具体磁结构的大小, 因此为了计算结果符合实际, 网格尺寸不能大于以上三个特征长度. 由于在参数设置符合实际的情况下, 三个特征长度中最小的通常是交换长度 l_{ex} , 因此本文使用 l_{ex} 作为长度的单位, 并依此将磁各向异性常数和 DM 相互作用常数无量纲化, 且假设外部静磁场垂直于铁磁性材料薄膜表面:

$$\lambda = \frac{l_{\text{ex}}}{l_D} = \frac{D}{\sqrt{2A\mu_0 M_s^2}}, \quad \kappa = \frac{l_{\text{ex}}^2}{l_w^2} = \frac{2K}{\mu_0 M_s^2}, \quad h = h\hat{\mathbf{e}}_3. \quad (3)$$

从而体系能量表达式修正为

$$E = \frac{1}{2} \int (\partial_\mu \mathbf{m} \cdot \partial_\mu \mathbf{m}) dx dy + \lambda \int \mathbf{e}_{\text{DM}} dx dy + \frac{\kappa}{2} \int (1 - m_3^2) dx dy - h \int (1 - m_3) dx dy, \quad (4)$$

其中, 假设在薄膜均匀磁化中, $\mathbf{m} = \hat{\mathbf{e}}_3$.

使用磁化矢量的球面角 (Θ, Φ) , 具有轴对称的磁性斯格明子解可以通过极坐标 (r, φ) 来表示, 其中角 Θ 满足下列方程:

$$\Theta'' + \frac{\Theta'}{r} - \frac{\sin(2\Theta)}{2r^2} + 2\lambda \frac{\sin^2 \Theta}{r} - \frac{\kappa}{2} \sin(2\Theta) - h \sin \Theta = 0. \quad (5)$$

下文将使用这样的约定: 在斯格明子中心 $\Theta(r=0) = \pi$, 在空间无穷大 $r \rightarrow \infty$ 处, $\Theta = 0$.

2.2 符号回归方法

随着二十世纪末计算机技术和机器学习的迅猛发展, 当时的研究者开始探索一种能够自动编写软件代码的编程解决方案, 而符号回归方法是其中相对较新的算法结构之一. 这一方法最初是由 John Koza^[23] 基于他的导师 John Holland 所提出的遗传算法改进而来. 遗传算法基于达尔文的进化论, 采用种群进化和优胜劣汰的方式来选择最优模型. 然而, 遗传算法主要用于参数优化, 需要预先提供一个已知的公式形式, 因此难以解决寻找未知公式以描述数据内在联系的问题. John Koza 创新地采用二叉树结构来表示公式形式 (图 2(a)), 并通过遗传算法对公式形式和内部参数进行优化, 从而找到最佳解. 因此, 符号回归方法无需预先设定公式形式, 研究者只需提供一组数据, 该方法便能从数据中总结出能够描述数据内在联系的表达式.

符号回归方法搜索最优公式的大致流程如图 3 所示, 具体步骤如下:

- 1) 设定初始算术符号集, 确定运行过程中的设置条件如结束条件等;
- 2) 生成初始种群 (即初始公式集);

3) 按预测结果与数据结果之间的误差大小以及公式的复杂度来评估初始种群;

4) 通过复制、交叉以及变异操作 (图 2(b)—(d)) 从原种群中生成新的种群;

5) 重复步骤 3) 和步骤 4), 直至满足结束条件, 并根据评估结果将生成的公式集进行排序.

采用 SymbolicRegression.jl 包 (SR.jl)^[24] 来搜索磁性斯格明子结构解析式, 并用均方差来评估所得公式对于数据的符合度, 其形式为

$$MSE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [y_{i,o} - y_{i,p}]^2, \quad (6)$$

其中, N 为样本数量; $y_{i,o}$ 与 $y_{i,p}$ 分别为样本真实值与预测值. 同时根据公式复杂度, 即

$$C(E) = N_{var} + N_{const} + N_{op}, \quad (7)$$

式中, N_{var} , N_{const} 与 N_{op} 分别为一个公式中的变量数量、常数数量与算符数量, E 为所评估的公式. 从低到高列出每个公式复杂度下符合度最高的公式与其对应的均方根误差大小, 来对搜索到的公式进行筛选, 即帕累托最优分析, 从而避免过拟合的出现.

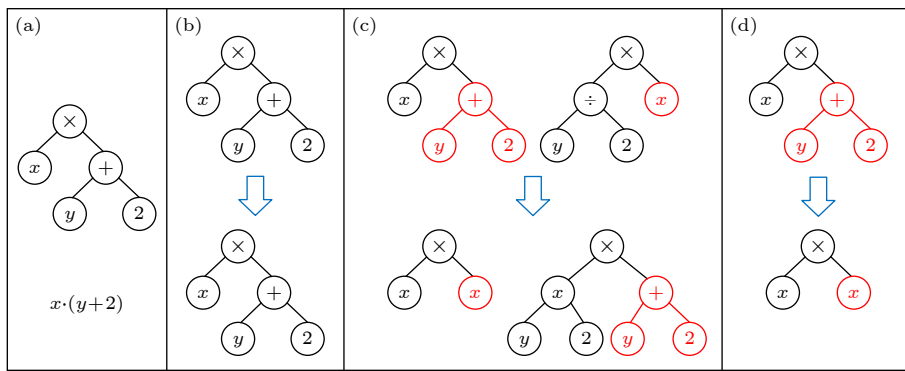


图 2 符号回归算法中二叉树结构与遗传操作示意图 (a) 用二叉树表示公式形式; (b) 复制操作; (c) 交叉操作; (d) 变异操作

Fig. 2. Binary tree structure and schematic diagrams of genetic operations in symbolic regression: (a) Representing the formula in binary tree form; (b) copy operation; (c) crossover operation; (d) mutation operation.

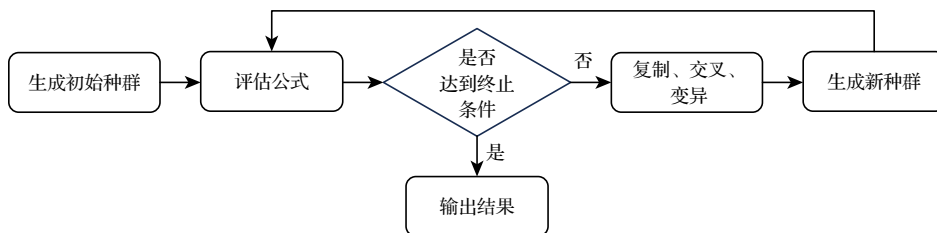


图 3 符号回归方法流程图

Fig. 3. Flowchart of the symbolic regression.

3 利用符号回归算法求解磁性斯格明子结构近似解析式

3.1 通过搜索一维单磁畴壁结构解析式验证符号回归算法

首先为了验证符号回归算法对于搜寻具体磁结构解析式的能力,使用一维单磁畴壁解析式:

$$\cos\Theta = -\tanh(z/\delta_0), \quad (8)$$

$$\delta_0 = \sqrt{A/K}, \quad (9)$$

可以得到磁畴壁的结构数据,并用符号回归算法基于该结构数据来搜索公式,结果显示,符号回归算法成功搜索到了(8)式.

为进一步增加挑战,采用 JuMag 微磁学模拟程序,通过改变交换相互作用常数和磁各向异性常数,生成了一系列的一维单磁畴壁结构数据,以供符号回归算法进行公式搜索.然而,微磁学模拟得到的磁畴位置是未对齐的,通过中心校准算法与符号回归算法的耦合,运用符号回归算法进行公式搜

索,结果显示符号回归算法成功地搜索出(8)式.图4展示了符号回归算法搜索得到的(8)式与经过处理的一维单磁畴壁结构数据的拟合情况.

3.2 使用符号回归算法搜索磁性斯格明子结构近似解析式

关于磁性斯格明子结构数据,通过 Matlab 软件中的 bvp4c 函数求解二阶常微分方程((5)式)来获取.边值条件为 $\Theta(r=0) = \pi$; $r \rightarrow \infty$ 处, $\Theta = 0$,其中 $r \rightarrow \infty$ 在实际计算中用 $r = 5$ 来替代.同时,为了简化问题的复杂度并考虑到磁各向异性对于磁性斯格明子结构的影响较为特殊,因此在生成磁性斯格明子结构数据时,未将磁各向异性作用考虑在内,即 $\kappa = 0$.通过改变 DM 相互作用以及外部静磁场的大小,生成了 56 组二维磁性斯格明子结构数据,并分别运用符号回归算法来搜索解析式.根据结果以及帕累托最优分析(图5),总共发现了两个相对合适的磁性斯格明子结构近似解析式,这两个解析式的形式为

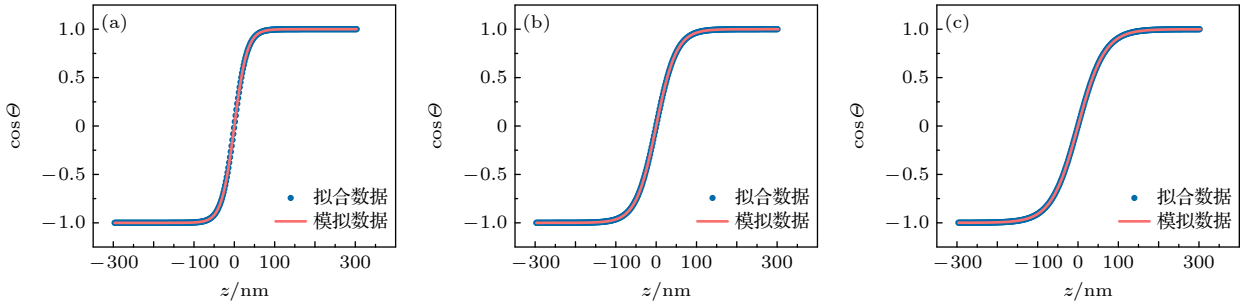


图4 不同 A 与 K 值下, (8) 式拟合结果与一维单磁畴壁结构模拟数据比较图 (a) $A = 1 \times 10^{-12} \text{ J/m}$, $K = 1 \times 10^3 \text{ J/m}^3$; (b) $A = 5 \times 10^{-12} \text{ J/m}$, $K = 2 \times 10^3 \text{ J/m}^3$; (c) $A = 13 \times 10^{-12} \text{ J/m}$, $K = 3 \times 10^3 \text{ J/m}^3$

Fig. 4. Comparison between the fitting results of Eq. (8) and simulation data of one-dimensional magnetic domain wall under various values of A and K : (a) $A = 1 \times 10^{-12} \text{ J/m}$, $K = 1 \times 10^3 \text{ J/m}^3$; (b) $A = 5 \times 10^{-12} \text{ J/m}$, $K = 2 \times 10^3 \text{ J/m}^3$; (c) $A = 13 \times 10^{-12} \text{ J/m}$, $K = 3 \times 10^3 \text{ J/m}^3$.

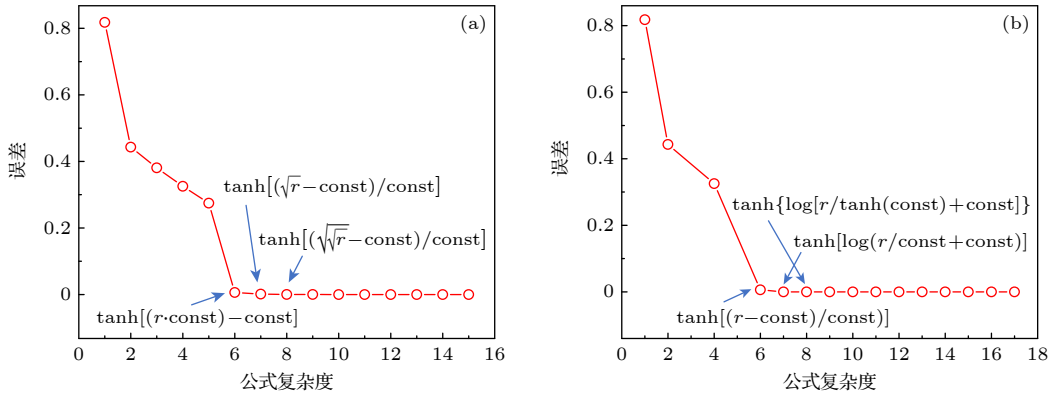


图5 $\lambda^2/h = 0.01$ 时的帕累托最优 (a) (10a) 式; (b) (10b) 式

Fig. 5. Pareto optimum when $\lambda^2/h = 0.01$: (a) Eq. (10a); (b) Eq. (10b).

$$m_z = \cos\Theta = \tanh\left(\frac{\sqrt{r}-c}{c}\right), \quad (10a)$$

$$m_z = \cos\Theta = \tanh\left[\log\left(\frac{r}{c}+c\right)\right], \quad (10b)$$

其中, c 表示任意常数. 在不同参数下, 搜索到的两个解析式在磁性斯格明子结构数据的符合度方面互有胜负. 为了进一步深入研究这两个解析式谁更符合磁结构数据的条件, 对所获得到的数据做了综合分析. 发现在特定情况下, 即 $\lambda^2/h \leq 0.16$ 时, (10b) 式符合更好; 而在另一情况下, 即 $\lambda^2/h > 0.16$ 时, (10a) 式更为吻合. 具体结果如图 6 所示.

接着, 基于参数的设定对搜索的公式进行初步分析. 首先, 两个解析式共同的特点是它们都包含双曲正切函数, 且这一函数位于解析式计算的最后一步, 这一点确定了磁性斯格明子的基本结构, 与磁性材料中的交换相互作用相关联; 这两个解析式的不同点是双曲正切函数中包含的另外一种一元函数. 在 DM 相互作用与外部静磁场相比较小时, 该一元函数为对数函数, 该函数在拐点处的变化较为急剧, 表明虽然 DM 相互作用导致了磁性斯格明子的生成, 但由于外部静磁场是主要因素, DM 相互作用的影响受到压制, 从而导致磁性斯格明子尺寸较小. Romming 等^[7]的研究中也展示了斯格明子尺寸随着垂直外磁场的增大会逐渐减小的现象. 而在 DM 相互作用与外部静磁场比较大时,

该一元函数为平方根函数, 其在拐点处的变化较为平缓, 这表明随着 DM 相互作用的增大, 其影响范围扩大, 逐渐占据主导地位, 因此磁性斯格明子尺寸增大. 在 Wu 等^[25]的研究中, 表明了斯格明子的尺寸与 A 和 D 的比值大小有关, 随着 A/D 值的减小, 斯格明子尺寸逐渐增大, 即意味着 D 的增大会导致斯格明子尺寸的增大, 这和本文的结果是一致的.

随后, 再次运用符号回归算法, 针对先前搜索出的两个解析式中的常数项关于 λ 和 h 来进行公式搜索, 从而探寻两个解析式中的常数项与这两者之间的关系. 将得到的关系式分别代入 (10a) 式与 (10b) 式中, 其结果为

$$m_z = \cos\Theta = \tanh\left(\frac{\sqrt{r}-\sqrt{A}}{\sqrt{\frac{\lambda}{h}} \cdot 0.3474965857}\right), \quad (11a)$$

$$m_z = \cos\Theta = \tanh\left[\log\left(\frac{r}{B}+0.0037792543\right)\right], \quad (11b)$$

其中,

$$A = \lambda h / \sqrt{\frac{\sqrt{h}}{\tan(\lambda)}}, \quad (12a)$$

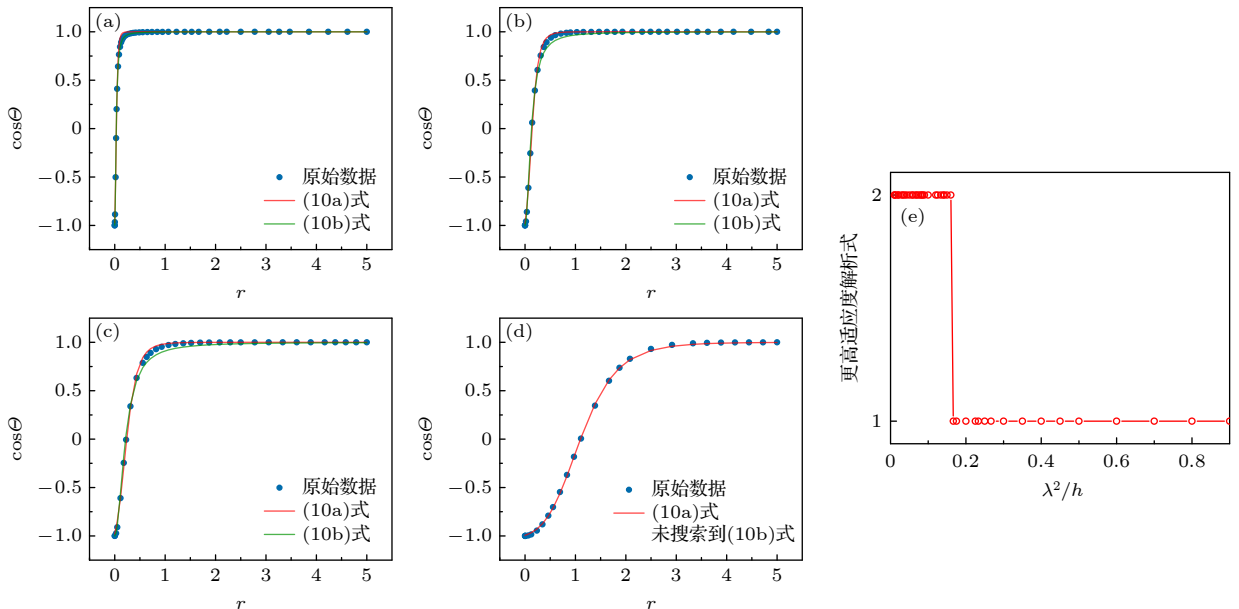


图 6 不同 λ^2/h 大小下 (10a) 式与 (10b) 式的拟合情况 (a) 0.01; (b) 0.16; (c) 0.167; (d) 0.9. (e) 不同 λ^2/h 大小下, 更高适应度解析式统计图 (1 代表 (10a) 式, 2 代表 (10b) 式)

Fig. 6. Fitting results of equations (10a) and (10b) under various λ^2/h values: (a) 0.01; (b) 0.16; (c) 0.167; (d) 0.9. (e) Statistical chart of equations with higher fitness under various λ^2/h values (1 represents equation (10a), 2 represents equation (10b)).

$$B = \sqrt{\frac{\lambda}{\sqrt{h}}} \cdot \sin\left(\frac{\lambda}{h}\right). \quad (12b)$$

接下来, 选取了 4 个 λ^2/h 的关键数值所对应的磁性斯格明子结构数据, 分别代入 (11a) 式与 (11b) 式, 如图 7 所示, 拟合结果仍然相当良好. 因此, 将 DM 相互作用、外部静磁场以及磁性斯格明子结构近似解析式紧密联系起来, 得到了一个更为

普适的结论.

最后为了检验所得 (11a) 式与 (11b) 式的泛化能力, 本文又另外生成 6 组数据进行拟合, 其结果如图 8 所示. (11a) 式与 (11b) 式仍然拟合得较好, 说明符号回归算法搜索到的这两个公式具有较强的泛化能力, 这进一步证实了符号回归方法在搜索磁性斯格明子结构近似解析式方面的强大能力.

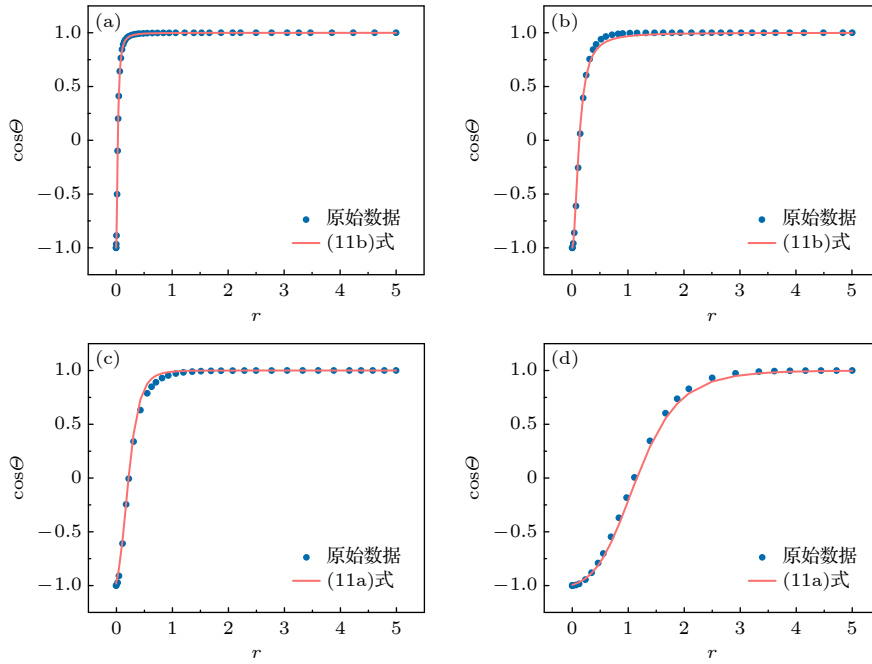


图 7 不同 λ^2/h 大小下 (11a) 式或 (11b) 式的拟合情况 (a) 0.01; (b) 0.16; (c) 0.167; (d) 0.9

Fig. 7. Fitting results of Eq. (11a) or Eq. (11b) under various λ^2/h values: (a) 0.01; (b) 0.16; (c) 0.167; (d) 0.9.

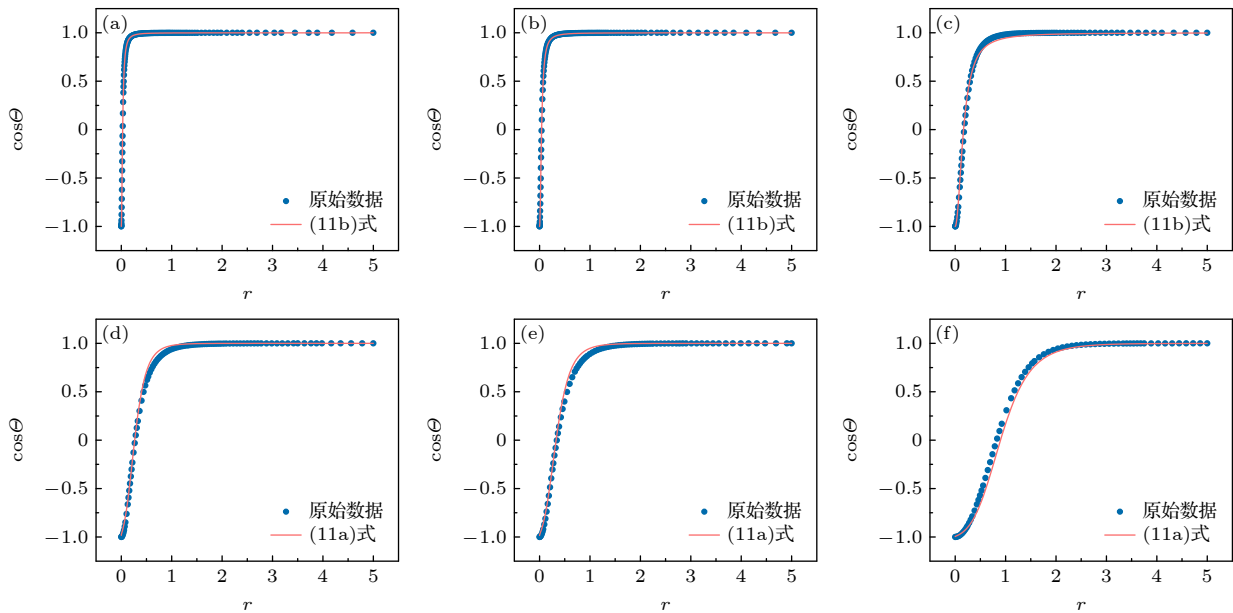


图 8 不同 λ^2/h 大小下, (11a) 式或 (11b) 式的拟合情况 (a) 0.009; (b) 0.015; (c) 0.139; (d) 0.192; (e) 0.227; (f) 0.769

Fig. 8. Fitting results of Eq. (11a) or (11b) under various λ^2/h values: (a) 0.009; (b) 0.015; (c) 0.139; (d) 0.192; (e) 0.227; (f) 0.769.

4 结 论

本文首先通过搜索一维单磁畴壁结构解析式,初步验证了符号回归算法的应用潜力,随后通过求解二阶常微分方程,获取不同 DM 相互作用和外部静磁场大小下的磁性斯格明子结构数据.借助符号回归算法,对这些数据进行公式搜索,得到了两个适合的结构近似解析式:在 $\lambda^2/h \leq 0.16$ 时, (8b) 式拟合效果更佳;在 $\lambda^2/h > 0.16$ 时, (8a) 式表现更优.同时,对解析式中函数的构成进行了分析:当 DM 相互作用与外部静磁场相比较小时,磁性斯格明子结构与对数函数相联系;在 DM 相互作用与外部静磁场比较大时,磁性斯格明子结构与平方根函数相联系.不过,无论何种情况,双曲正切函数始终决定了磁斯格明子的基本结构.最后,再次运用符号回归算法,将上述两个解析式中的常数项与 DM 相互作用以及外部静磁场相关联,以使上述两个解析式具有普适性.本文提出了使用符号回归算法研究磁性斯格明子结构的新方法,同时通过符号回归算法初步探索了磁性斯格明子结构近似解析式,验证了符号回归算法在该研究领域中的强大能力.

参考文献

- [1] Abanov Ar, Pokrovsky V L 1998 *Phys. Rev. B* **58** R8889
- [2] Rößler U K, Bogdanov A N, Pflüderer C 2006 *Nature* **442** 797
- [3] Heinze S, von Bergmann K, Menzel M, Brede J, Kubetzka A, Wiesendanger R, Bihlmayer G, Bluegel S 2011 *Nat. Phys.* **7** 713
- [4] Wei W S, He Z D, Qu Z, Du H F 2021 *Rare Met.* **40** 3076
- [5] Ye C, Li L L, Shu Y, Li Q R, Xia J, Hou Z P, Zhou Y, Liu X X, Yang Y Y, Zhao G P 2022 *Rare Met.* **41** 2200
- [6] Braun H 1994 *Phys. Rev. B* **50** 16485
- [7] Romming N, Kubetzka A, Hanneken C, von Bergmann K, Wiesendanger R 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 177203
- [8] Rohart S, Thiaville A 2013 *Phys. Rev. B* **88** 184422
- [9] Zhou Y, Iacocca E, Awad A A, Dumas R K, Zhang F C, Braun H B, Akerman J 2015 *Nat. Commun.* **6** 8193
- [10] Buttner F, Lemesh I, Beach G S D 2018 *Sci. Rep.* **8** 4464
- [11] Komineas S, Melcher C, Venakides S 2020 *Nonlinearity* **33** 3395
- [12] Komineas S, Melcher C, Venakides S 2021 *Physica D* **418** 132842
- [13] Komineas S, Melcher C, Venakides S 2023 *New J. Phys.* **25** 023013
- [14] Udrescu S M, Tegmark M 2020 *Sci. Adv.* **6** eaay2631
- [15] Kim S, Lu P Y, Mukherjee S, Gilbert M, Jing L, Ceperic V, Soljagic M 2021 *IEEE Trans. Neural Networks Learn. Syst.* **32** 4166
- [16] Raissi M, Perdikaris P, Karniadakis G E 2019 *J. Comput. Phys.* **378** 686
- [17] Sun S, Ouyang R, Zhang B, Zhang T Y 2019 *MRS Bull.* **44** 559
- [18] Koksang S M 2023 *Phys. Rev. D* **107** 103522
- [19] Hernandez A, Balasubramanian A, Yuan F, Mason S A M, Mueller T 2019 *NPJ Comput. Mater.* **5** 112
- [20] Baldi P, Sadowski P, Whiteson D 2014 *Nat. Commun.* **5** 4308
- [21] Carleo G, Troyer M 2017 *Science* **355** 602
- [22] Zhao G P, Zhao L, Shen L C, Zou J, Qiu L 2019 *Chin. Phys. B* **28** 77505
- [23] Jones A 1993 *Nature* **363** 222
- [24] Cranmer M 2023 arXiv: 10.48550/arXiv.2305.01582 [astro-ph.IM]
- [25] Wu H, Hu X, Jing K, Wang X R 2021 *Commun. Phys. UK* **4** 1

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Exploring approximate analytical expression for magnetic skyrmion structure based on symbolic regression method*

Shi Meng¹⁾²⁾ Wang Wei-Wei³⁾ Du Hai-Feng^{1)†}1) (*High Magnetic Field Laboratory, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)2) (*University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)3) (*Institutes of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230601, China*)

(Received 12 September 2023; revised manuscript received 15 November 2023)

Abstract

Magnetic skyrmion is a kind of nontrivial topological magnetic structure, which can exist stably in chiral magnet with Dzyaloshinskii-Moriya (DM) interaction, and its static and dynamic properties are closely related to its structural characteristics. However, there are no general analytical expressions for skyrmion profiles. Therefore, many researchers have provided approximate solutions. In this paper, a new approach to exploring magnetic skyrmion structures is introduced by using a symbolic regression approach. Considering the influence of DM interaction and external magnetic field on magnetic skyrmion structure, two suitable approximate expressions are obtained through symbolic regression algorithms. The applicability of these expressions depends on the dominant interaction. The research results in this work validate the powerful capability of symbolic regression algorithms in exploring the magnetic skyrmion profiles. So, the present study provides a new method for finding the analytical expressions for magnetic structure.

Keywords: magnetic skyrmions, symbolic regression, structures of magnetic skyrmions, Dzyaloshinskii-Moriya interaction

PACS: 12.39.Dc, 02.70.Wz, 83.60.Np

DOI: [10.7498/aps.73.20231473](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231473)

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2022YFA1403603), the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. XDB33030100), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12241406), the National Natural Science Fund for Distinguished Young Scholars of China (Grant No. 52325105), the Equipment Development Project of Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. YJKYYQ20180012), and the Project for Young Scientists in Basic Research of Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. YSBR-084).

† Corresponding author. E-mail: duhf@hmfl.ac.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理

磁声耦合: 物理、材料与器件*

陈崇 马铭远 潘峰 宋成†

(清华大学材料学院, 先进材料教育部重点实验室, 北京 100084)

(2023 年 12 月 4 日收到; 2024 年 1 月 1 日收到修改稿)

固体中的声波有两种传播方式: 一种是声体波, 以纵波或横波的形式在固体内部传播; 另一种是声表面波, 在固体表面产生并沿着表面传播. 声波射频技术利用这些声波来截取和处理信号, 尤其体现在快速发展的射频滤波器技术中. 声学滤波器因其体积小、成本低和性能稳定等多方面的优势, 在移动通信等领域得到了广泛应用. 受益于成熟的制造工艺和确定的共振频率, 声波已逐渐成为操控磁性和自旋的有力手段, 这一领域正朝着小型化、超快和节能的自旋电子学器件应用迈进. 将磁性材料集成到声学射频器件, 也开辟了对声学器件调控方法和性能提升的新思路. 本综述首先梳理了各种磁声耦合的物理机制, 并在此基础上系统介绍了声控磁化动力学、磁化翻转、磁畴和磁性斯格明子产生及运动、自旋流产生等一系列磁性和自旋现象. 同时也讨论了声控磁的逆过程——磁控声波的研究进展, 包括声波参数的磁调控和声波的非互易传播, 以及基于此开发的新型磁声器件, 如磁传感器、磁电天线、可调谐滤波器等. 最后展望了磁声耦合未来可能的研究方向和潜在的应用前景.

关键词: 磁弹耦合, 声控磁性, 磁控声波, 磁声器件

PACS: 85.70.Ec, 85.75.-d, 75.80.+q, 75.85.+t

DOI: 10.7498/aps.73.20231908

1 引言

固体中的声波作为一种弹性波, 在传播过程中会引起传播介质的弹性变形, 对弹性变形和材料磁性之间相互作用的描述最早可以追溯到 19 世纪. 英国物理学家 Joule 于 1842 年首次描述了磁性材料内部磁有序状态的变化将引起材料发生弹性变形. 当给磁性材料施加外磁场时, 为了降低系统的能量, 其内部的磁矩将趋向于排列在外场的方向. 这个过程会导致磁性材料的尺寸发生变化, 即磁致伸缩效应. 然后意大利物理学家 Villari 于 1865 年发现了磁致伸缩的逆过程——逆磁致伸缩效应, 即在外加应变的作用下磁性材料内部的磁化状态将发生变化. 磁致伸缩可以从自由能极小的观点进行

唯象解释. 为了减小交换相互作用和偶极相互作用等能量, 磁性材料内部的晶格发生位移, 引起晶格原子间距的变化 (增大或减小), 进而在宏观上表现为磁性材料长度的变化 (伸长或缩短). 上述磁性材料的磁化强度与弹性应变之间的相互作用目前被统称为磁弹耦合, 进而实现磁性能与弹性能之间的相互转化, 这是最早关于磁声耦合的描述. 通过测量磁场诱导的材料尺寸变化或弹性变形引起的磁化变化, 磁弹耦合早期在传感技术中扮演了重要角色. 然而在随后的几十年里, 大多数科学研究和应用开发仅局限在准静态的应变. 转机出现在 20 世纪 60 年代, 声表面波技术的兴起和发展, 为磁声耦合的研究与应用带来了新的契机.

声波射频技术利用声表面波 (surface acoustic wave, SAW) 和声体波 (bulk acoustic wave, BAW)

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1402603)、国家自然科学基金 (批准号: 52225106, 12241404) 和北京市自然科学基金 (批准号: JQ20010) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: songcheng@mail.tsinghua.edu.cn

来传输和处理微波频段的信号. SAW 在传播过程中其振幅随着穿透深度的增大而指数衰减, 使得其能量主要集中在固体表面下 1—2 个波长范围内. 基于 SAW 的带通滤波器因其体积小、通带选择性好、性能稳定、平面工艺易于制备、成本低等优点, 已经成为智能手机射频模块中用于滤除带外干扰和噪声的关键器件, 广泛应用于移动通信等领域. SAW 的激发与探测非常简便, 在压电材料的叉指换能器 (interdigital transducer, IDT) 上施加电信号, 即可通过逆压电效应激发 SAW, 传播一段距离后再通过压电效应对其进行探测, 从而实现高效滤波的功能. BAW 谐振器的基本构型是由顶底电极及夹在中间的压电层构成的三明治结构. 通过在顶底电极上施加电信号, 由逆压电效应转换为声波信号, 在厚度方向上形成 BAW. 形成的驻波谐振通过压电效应转化为电信号输出, 以实现谐振器的选频功能. 相比于 SAW 滤波器, BAW 滤波器可实现更高的工作频率、更高的品质因子 (Q 值) 和更低的插入损耗. 此外在功率耐受性和集成度方面, BAW 滤波器有着不可替代的优势, 因此在 5G 时代, BAW 滤波器在移动设备中的应用更为广泛.

SAW 和 BAW 器件成熟的制造工艺和较高的工作频段 (\sim GHz), 以及磁性薄膜沉积技术的进步, 为磁弹耦合的研究带来了新的契机, 近年来已在声控磁性和自旋、磁控声波、新型磁声器件等方面取得了重要进展^[1,2], 如表 1 所示. 通过在 SAW 的传播路径上 (图 1(a)) 或 BAW 器件顶端 (图 1(b)) 生长磁性薄膜并加工成特定形状的器件, 声波携带的各种特性 (应变、机械角动量等) 可以传递给紧邻的磁性材料, 通过多种磁声耦合机制 (磁弹耦合、磁电耦合、磁-旋转耦合、自旋-旋转耦合、旋磁耦合和磁子-声子耦合) 与其中的磁矩、磁子、自旋等多种维度发生相互作用, 进而使得声波成为操控磁性和自旋现象的一种全新的途径^[3], 反过来, 磁性材料的集成对于声学器件的性能也有显著影响, 可通过磁场来调控声波的传播特性, 包括磁调控声波参数、实现声波的非互易传播等, 这为声学器件的调控和性能提升提供了全新的思路. 基于磁声耦合, 目前已开发出多种新型磁声器件, 包括磁传感器、磁电天线、可调谐滤波器等^[4], 其中以磁电天线为代表. 磁电天线可以克服传统天线的尺寸限制, 利用应变使其在声波的共振频率下工作, 尺寸比同频

率的传统电学天线小 1—2 个量级, 且具有更高的辐射效率. 磁声耦合的研究不仅为阐明微观的声子-自旋相互作用提供全新的研究平台, 还有望推进信息处理、存储技术和 5G 通信技术的突破. 本文首先介绍磁声耦合的物理机制, 然后基于这些机制, 重点概述磁-声之间的双向调控, 最后基于磁声耦合, 总结新型磁声器件的研究现状, 并展望其应用前景.

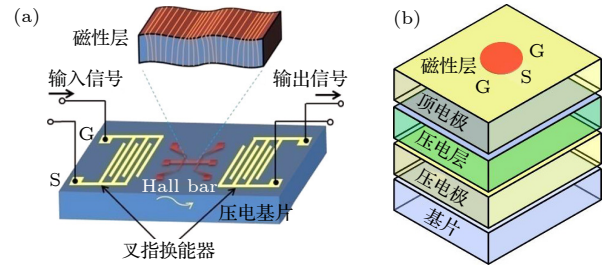


图 1 磁声耦合的器件构型 (a) 声表面波器件; (b) 声体波器件

Fig. 1. Schematic illustration of magneto-acoustic coupling devices: (a) Surface acoustic wave device; (b) bulk acoustic wave devices.

2 磁声耦合的物理机制

磁弹耦合 (magneto-elastic coupling) 是最早得到广泛研究的耦合机制, 通过磁弹耦合可以实现磁性材料内部磁性能和弹性能之间的相互转化. 在磁性晶体中, 磁弹耦合的主要来源是晶格形变改变了材料的磁晶各向异性, 如图 2(a) 所示. 在具有立方对称性的磁性材料中, 磁弹耦合贡献的能量密度 E_{me} 可表示为

$$E_{me} = b_1 \sum_i m_i^2 \varepsilon_{ii} + b_2 \sum_i \sum_{j \neq i} m_i m_j \varepsilon_{ij}, \quad (1)$$

其中 ε_{ij} 为应变张量, m_i 为磁化强度的单位矢量 ($i, j = x, y, z$), b_1 和 b_2 为磁弹耦合系数 (单位: J/m^3). 应变张量 ε_{ij} 由弹性体中质点位移 u_i 的梯度定义:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right), \quad (2)$$

其中 $i = j$ 为正应变, $i \neq j$ 为剪切应变. 值得注意的是, 磁致伸缩系数 λ 由于在实验上更容易获得, 也被用来描述磁弹耦合. λ 具有显著的晶向依赖性, 其与磁弹耦合系数的关系为: $b_1 = -3\lambda_{100}(c_{11} - c_{12})/2$, $b_2 = -3\lambda_{111}c_{44}$, 其中 c_{ij} 为刚度系数, λ_{100} 和 λ_{111} 分别为 [100] 和 [111] 方向上的磁致伸缩系数.

表 1 磁声耦合的重要研究进展
Table 1. Important research progress in magneto-acoustic coupling.

研究内容	材料体系	耦合机制	中心频率 f/GHz	进展
声控磁化动力学	Ni ^[1]		2.24	首次实验观测
	Ni ^[5]	磁弹耦合	1.725	纵漏波驱动
	Ni ^[6]		3.47	水平剪切波驱动, 具有不同的角度依赖性
	Ni ₁₉ Fe ₈₁ ^[8]	旋磁耦合	1.3—2.1	旋磁耦合驱动
	Ni ^[9]		7.8—9.8	光学激发和探测, 表征阻尼因子
	Ni/Co ^[10]		1.429	NV色心探测
	Ni ^[11]	磁弹耦合	3.56	BLS成像
	Ni ^[12]		0.1—2.5	XMCD-PEEM成像
	Ni ^[13]		1.97—3.23	直流电学探测
声控磁化翻转	FeGa ^[14]		0.158	降低矫顽力
	(Ga, Mn)(As, P) ^[15]	磁弹耦合(非共振)	0.549	矫顽力降低60%
	(Ga, Mn)As ^[16]		0.99	无场翻转
	Pt/Co/Ta ^[17]		0.076	SAW辅助SOT翻转, 临界翻转电流密度降低
	隧道结 ^[18]	磁弹耦合	11—18	模拟SAW辅助STT翻转
声控畴壁运动	Fe ₇₀ Ga ₁₈ B ₁₂ ^[19]		4.23	微磁学模拟, 畴壁运动速度上限50 m/s
	[Co/Pt]多层膜 ^[20]	磁弹耦合(非共振)	0.097	SAW驻波使畴壁运动速度提高1个量级
	Pt/Co/Ta ^[21]		0.048	区分热效应和磁弹耦合对畴壁运动的贡献
声控斯格明子	Pt/Co/Ir ^[22]		0.23, 0.40	斯格明子的产生
	[Co/Pd]多层膜 ^[23]	磁弹耦合(非共振)	0.366	纵漏波驱动斯格明子的有序产生和运动
声波产生自旋流	Co/Pt ^[24]		1.548	声自旋泵浦, 逆自旋霍尔效应探测
	Ni/Cu(Ag)/Bi ₂ O ₃ ^[25]	磁弹耦合	—	声自旋泵浦, 逆Edelstein效应探测
	Ni/Cu/Bi ₂ O ₃ ^[26]		2.86	谐振腔增强声自旋泵浦, 自旋流产生能力提高3倍
	Ni ₈₁ Fe ₁₉ /Cu ^[27]		1.59	瑞利波产生纯自旋流(σ_y)
	Ni ₈₁ Fe ₁₉ /Cu ^[28]	自旋-旋转耦合	0.666	水平剪切波产生纯自旋流(σ_x 和 σ_z)
声波的非互易传播	Ni ^[29]		2.24	切应变与正应变耦合, 隔离度0.05 dB/mm
	Fe ₃ Si ^[30]	磁弹耦合	3.455	切应变与正应变耦合, 隔离度0.8 dB/mm
	Ni/Si ^[31]		1.85	切应变与正应变耦合, 非互易性可调, 隔离度0.03 dB/mm
	Ta/CoFeB/MgO ^[32]	磁-旋转耦合	6.1	旋转应变与正应变耦合, 非互易性100%
	CoFeB/Pt ^[33]		6.77	界面DMI诱导的非互易, 隔离度27.9 dB/mm
	FeGaB/Al ₂ O ₃ /FeGaB ^[34]		1.435	偶极耦合诱导的非互易, 隔离度22 dB/mm
	Co ₄₀ Fe ₄₀ B ₂₀ /Au/Ni ₈₁ Fe ₁₉ ^[35]		6.87	偶极耦合诱导的非互易, 隔离度74 dB/mm
	CoFeB/Ru/CoFeB ^[36]	磁弹耦合	1.4	RKKY耦合诱导的非互易, 隔离度37 dB/mm
	Pt/Co/Ru/Co/Pt ^[37]		6.77	RKKY耦合和DMI诱导的非互易, 隔离度3 dB/mm
	CoFeB/Ru/CoFeB ^[38]		5.08	RKKY耦合诱导的非互易, 隔离度250 dB/mm
磁传感器	FeCoSiB ^[39]		0.148	SAW延迟线结构激发勒夫波, 10 Hz下70 pT/Hz ^{1/2} 的探测极限
	FeCoSiB ^[40]	磁电耦合	0.477	SAW谐振器结构激发勒夫波, 灵敏度630.4 kHz/Oe
磁电天线	AlN/FeGaB ^[41]		2.53	FBAR结构, 首次实验验证可行性, 增益-18 dBi, 辐射效率0.4%
	ZnO/FeGaB ^[42]	磁电耦合	1.75	SMR结构, 增益-18.8 dBi, 功率耐受性30.4 dBm
可调谐滤波器	AlN/FeGaB ^[43]	磁电耦合	0.093	磁场频率可调性50 Hz/ μT , 电场频率可调性2.3 kHz/V

注: “—”表示未报道, σ_i ($i = x, y, z$)表示*i*方向极化的自旋流。

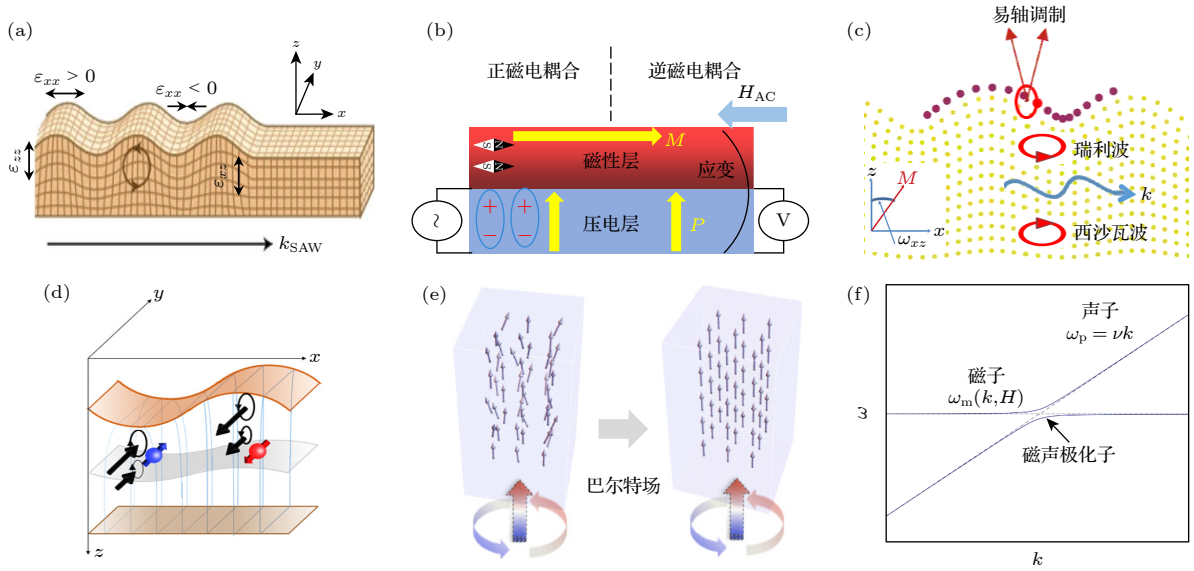


图 2 磁声耦合的物理机制 (a) 磁弹耦合; (b) 磁电耦合; (c) 磁-旋转耦合; (d) 自旋-旋转耦合; (e) 旋磁耦合^[52]; (f) 磁子-声子耦合
 Fig. 2. Physical mechanism of magneto-acoustic coupling: (a) Magneto-elastic coupling; (b) magnetoelectric coupling; (c) magneto-rotation coupling; (d) spin-rotation coupling; (e) gyromagnetic coupling^[52]; (f) magnon-phonon coupling.

基于应变传递的磁电耦合是上述磁弹耦合的典型应用, 分为正和逆磁电耦合, 已开发出多种磁电耦合器件. 图 2(b) 左侧为正磁电耦合, 通过在压电层两端施加交变电压, 根据逆压电效应产生动态应变传递到磁性层中, 利用逆磁致伸缩效应调控磁化状态. 图 2(b) 右侧为逆磁电耦合, 通过外加交变磁场 H_{AC} 在磁性层中引起磁矩的动态变化, 通过磁致伸缩效应产生动态应变, 然后传递到压电层中对电极化进行控制, 最终将磁场转化为输出电压.

SAW 在传播过程中除了携带正应变和切应变 ε_{ij} , 在具有椭圆偏振的瑞利波 (Rayleigh SAW)、西沙瓦波 (Sezawa SAW) 中还携带有旋转应变, 来自于晶格的旋转变形^[44], 如图 2(c) 所示. 旋转应变 ω_{ij} 与切应变的定义类似:

$$\omega_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right), \quad i \neq j, \quad (3)$$

表示质点绕着 iOj 平面的法线旋转的角度. 在瑞利波和西沙瓦波中, 质点在 xOz 面内旋转, 具有 ω_{xz} 分量. 在具有面外磁各向异性的薄膜中, 质点的旋转将引起磁矩的旋转, 与面外易轴产生夹角, 进而贡献额外的磁各向异性, 即磁-旋转耦合 (magneto-rotation coupling) 能^[32,45]:

$$E_{mr} = K_u \sum_i \sum_{j \neq i} m_i m_j \omega_{ij}, \quad (4)$$

其中 K_u 为面外磁各向异性性能密度. 不难发现 E_{mr} 与切应变相关的磁弹能 E_{mc} 具有相同的磁化方向

依赖性, 诱导的有效磁场也有相似的特征.

上述讨论的是旋转应变与磁矩的相互作用, 实际上该旋转应变也可与更微观的电子直接发生作用. 尤其是在非磁性的轻金属中, 由于旋转应变大, 金属中自由电子密度高, SAW 引起的机械旋转角动量可与电子的自旋角动量发生耦合, 即自旋-旋转耦合 (spin-rotation coupling), 其能量可表示为^[27,46]

$$E_{sr} = -\frac{\hbar}{2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\Omega}, \quad (5)$$

其中 \hbar 为约化普朗克常数, $\boldsymbol{\sigma}$ 为泡利矩阵, $\boldsymbol{\Omega}$ 为机械旋转的角速度. 旋转角动量就能通过自旋-旋转耦合传递给电子, 进而诱导电子出现自旋极化. 由于表面波的能量随着穿透深度的增大而指数衰减, 因此机械变形就会在深度方向形成梯度分布. 这样诱导的电子自旋积累也会存在梯度, 不同自旋极化方向的电子向相反的方向扩散, 进而产生面外方向 (z 方向) 流动的纯自旋流, 如图 2(d) 所示.

旋磁耦合 (gyromagnetic coupling) 跟上述自旋-旋转耦合具有相似的内在机理, 都是基于广义的角动量守恒. 在方程 (5) 的能量表示中, 与塞曼效应类比, 自旋-旋转耦合可视作电子自旋与大小为 Ω/γ 的有效磁场之间的塞曼耦合, 其中 γ 为电子的旋磁比. 这个机械旋转诱导的磁场称作巴尔特场 (Barnett field), 其平行于旋转角动量的方向, 可通过提高旋转角速度来增强, 如图 2(e) 所示. 在

磁性材料中, 巴尔特场可与磁矩发生耦合, 产生等效力矩来驱动磁矩发生进动. 另外基于角动量守恒, 质点旋转所携带的机械角动量还可直接与磁性材料中磁矩的角动量发生耦合. 通过把声子的角动量转移给磁矩, 可以操控面内磁矩的方向并引起 SAW 的非互易传播^[47].

最后讨论一种更微观的耦合机制, 磁子-声子耦合 (magnon-phonon coupling). 声波在传播过程中会引起晶格振动, 在微观上对应的准粒子为声子. 声波的频率由声速和 IDT 尺寸 (SAW) 或压电层厚度 (BAW) 决定, 可激发频率在微波频段 (\sim GHz) 的相干声子. 自旋波是磁性材料中磁矩的集体进动, 对应的准粒子为磁子, 其中偶极自旋波的波长通常在微米量级, 频率在 GHz 频段, 与声子的波长和频率可比拟, 有望实现耦合. 描述波的性质最重要的是色散关系, 即频率 ω 和波矢 \mathbf{k} 的关系 $\omega(\mathbf{k})$, 如图 2(f) 所示. 其中声子谱具有线形色散, 满足 $\omega_p = vk$, v 是声子的声速. 而自旋波的色散依赖于外磁场的大小和方向, 当外加磁场合适时, 有机会与声子谱相交. 在它们的交点处, 由于能量和动量守恒, 它们的耦合得到增强, 进而形成杂化的磁声模式. 当耦合很强时交点处的色散关系会劈裂开, 形成反交叉的状态, 这个杂化模式又叫磁声极化子 (magnetophonon polaron), 也是一种准粒子^[48]. 强耦合物理开辟了形成新型杂化准粒子的可能性^[49], 在相干信息处理领域非常重要. 实现强磁子-声子耦合要求体系具有比磁子和声子的能量损失都大的磁声耦合能, 这有望通过使用高 Q 值的声学谐振腔 (制备反射栅) 和低阻尼因子的磁性材料 (如钇铁石榴石) 来实现, 这也是磁声耦合领域一个新兴的研究方向^[50,51].

3 声控磁性和自旋

基于上述磁声耦合机制, 通过声波携带的应变等各种特性去操控磁性和自旋现象推动了大量的研究进展, 这些研究的最终目标是追求新型、超快、高度集成、节能的自旋电子学和磁存储器件等方面的应用.

3.1 声波驱动的磁化动力学

Kittel^[53] 最早于 1958 年描述了晶格振动 (声子) 和自旋波 (磁子) 之间的耦合, 自旋波可被 GHz

频段的声波共振激发. 随着 IDT 技术 (SAW) 和超薄压电薄膜生长 (BAW) 的发展, 研究 GHz 频段声波对磁化动力学的共振激发成为可能. Weiler 等^[1] 首次在 2011 年报道了 GHz 频率的 SAW 在镍膜中成功激发了铁磁共振 (ferromagnetic resonance, FMR). 当外加磁场与 SAW 传播方向的夹角为 45° 且磁场的大小达到共振场时, SAW 驱动的 FMR 强度最大. 此时 SAW 的能量被镍膜共振吸收, 由网络分析仪测得的 SAW 透射参数 S_{21} 最小, 如图 3(a) 所示. FMR 强度的角度依赖性可通过分析应变产生的有效磁场来理解. 通过对方程 (1) 的磁弹耦合能求差分, 可以得到磁弹耦合贡献的有效磁场 $\mathbf{h}_{me} = -\delta E_{me}/(\mu_0 M_S \delta \mathbf{m})$, 其中 μ_0 和 M_S 分别为真空磁导率和饱和磁化强度. 只有垂直于磁矩方向的 \mathbf{h}_{me} 才能产生有效力矩驱动磁矩进动, 因此可将 \mathbf{h}_{me} 投影到垂直于 \mathbf{m} 的方向, 分解为面内 (h_{IP}) 和面外 (h_{OOP}) 的有效驱动场. 当磁矩位于面内且声波为沿着 x 轴传播的瑞利波时, 磁弹耦合有效场可以被简化为

$$h_{IP} = \frac{2b_1 \varepsilon_{xx}}{\mu_0 M_S} \cos \varphi \sin \varphi, \quad h_{OOP} = \frac{2b_2 \varepsilon_{xz}}{\mu_0 M_S} \cos \varphi, \quad (6)$$

其中 φ 为磁矩 (或外磁场) 与 x 轴的夹角. 通常 SAW 引起的应变幅值为 10^{-6} 的量级, 镍薄膜单位饱和磁化下的磁弹耦合常数为 25 T, 可估算出磁弹耦合有效场的典型数值为 $50 \mu\text{T}$ ^[48]. 另外由方程 (6) 不难发现面内分量 h_{IP} 正比于纵应变 ε_{xx} , 且随角度具有 4 次对称性, 在 $\varphi = (2n+1)\pi/4$ 时幅值达到最大 (n 为整数). ε_{xx} 在瑞利波中是起主导作用的应变, 因此驱动的 FMR 强度在面内也具有 4 次对称性, 如图 3(a) 右侧所示. 当 ε_{xx} 和 ε_{xz} 共存时, 会出现非互易的 FMR 强度, 引起声波的非互易传播, 将在 4.1 节详细讨论. 最近纵漏波 (longitudinal leaky SAW) 也被报道用来激发 FMR. 纵漏波中 ε_{xx} 同样是起主导作用的应变, 与瑞利波类似, 因此驱动的 FMR 同样在面内具有 4 次对称性. 纵漏波的相速度约为瑞利波的 2 倍, 具有更高的中心频率^[5].

在另一种常见的 SAW——水平剪切波 (勒夫波) 中, 切应变 ε_{xy} 起主导作用, 磁弹有效场正比于 $\varepsilon_{xy} \cos(2\varphi)$, 同样在面内具有 4 次对称性, 但在 $\varphi = n\pi/2$ 处幅值最大. 这两种不同的 4 次对称性已经在实验上被观测到^[6,7], 如图 3(b) 所示. 上述磁弹耦合产生的有效场依赖于磁矩取向和声波模式, 这些正是声波驱动的磁化动力学的重要特征. 这些特

征在传统的 FMR 中不存在, 相同大小的微波磁场始终施加在垂直于磁矩的方向, 激发的 FMR 强度与磁矩取向无关 [1,48].

除了磁弹耦合, SAW 也能通过旋磁耦合激发

磁化动力学, 并表现出不同的角度和频率依赖性 [8]. 对于沿 x 方向传播的 SAW, 如图 3(c) 所示, 其通过旋磁耦合可产生巴尔特场 h_B , 作用在磁矩上的有效场为 $h_B \cos \varphi$, 因此该有效场驱动的磁化动力

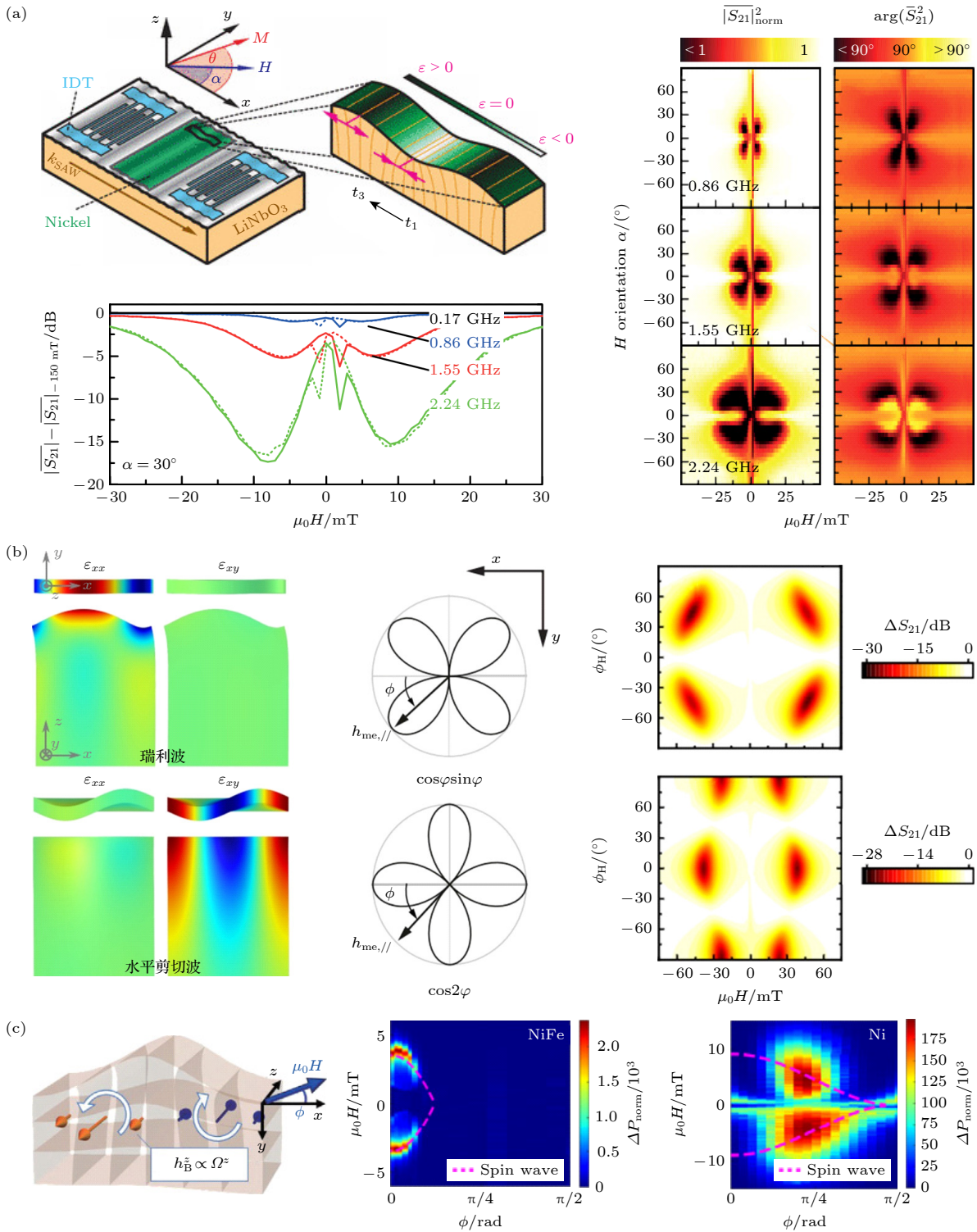


图 3 声波驱动的磁化动力学 (a) 驱动原理, 磁场角度和声波频率依赖性 [1]; (b) 声波模式依赖性 [6,7]; (c) 旋磁耦合和磁弹耦合驱动的对比如 [8]

Fig. 3. Magnetization dynamics driven by acoustic waves: (a) Driven mechanism, field angle and SWA frequency dependences [1]; (b) SAW mode dependence [6,7]; (c) comparison between gyromagnetic coupling and magneto-elastic coupling [8].

学在面内具有 2 次对称性, 在 $\varphi = n\pi$ 时最强 (n 为整数). 实验上, 在 $\text{Ni}_{19}\text{Fe}_{81}$ 合金 (NiFe , $b_1 = b_2 \sim 0 \text{ MJ/m}^3$) 中, 磁弹耦合可忽略, FMR 的强度在 $\varphi = 0^\circ$ 达到最大, 且随着 φ 的增大而逐渐减小; 但在磁弹耦合主导的 Ni 里面, FMR 的强度随着 φ 的增大而增大, 并在 $\varphi = 2\pi/9$ 处达到最大, 然后随着 φ 的增大而变小. 共振最强的角度 ($2\pi/9$) 略小于 $\pi/4$, 来自于不同方向磁弹耦合场的叠加. 另外不同方向磁弹场的叠加还会导致 FMR 的强度在正负磁场下不一样, 即出现非互易性; 但巴尔特场驱动的 FMR 不具有非互易性. NiFe 和 Ni 中的 FMR 还具有不同的声波频率依赖性, 可用于区分 SAW 产生的不同的驱动机制.

总之 SAW 不仅提供了一种共振激发 FMR 的全新手段, 还能对磁性材料的磁化动力学性质进行研究, 例如阻尼行为. 然而从 SAW 驱动的 FMR 中提取的有效阻尼因子一般比谐振腔 FMR 给出的结果高出 1 个数量级^[54], 主要来源于一些非 Gilbert 类型的线宽展宽机制, 包括双磁子散射过程^[55]、不均匀的声波驱动场 (SAW 波长小于样品尺寸)^[56]、不可分辨的自旋波驻波模式等^[57].

除了上述电学方法可用来激发、探测声学 FMR 和评估阻尼之外, 一些光学方法也可通过声布拉格反射镜^[58]、金属薄膜^[59]、瞬态光栅^[60]、周期性的图案化纳米结构^[61]、压电基片^[62] 上的光学激发来产生声波. 光学激发的声波频率能提升到 THz 频段^[63], 而通常采用的 IDT 受限于微纳加工的极限, 最高只能激发几 GHz 的声波. 而且光学激发可以产生更大的应变. 光学方法同样可以进行探测, 通过测量时间分辨的 Kerr 旋转或 Faraday 旋转, 并对时域谱进行傅里叶变换来表征声学 FMR 和提取阻尼因子等本征参数^[9], 如图 4(a) 所示. NV 色心也是一种有效的声学 FMR 探测手段 (图 4(b)). 由于 SAW 在磁性材料里诱导的有效磁场是非常局域的, 可产生高度局域的 NV-磁子相互作用, 进而实现 NV 色心的高效激发^[10].

上述电学和光学手段都是比较间接地去表征 SAW 驱动的磁化动力学, 近年来对磁弹耦合的直接成像也取得了一些进展, 包括微聚焦布里渊光散射 (microfocused Brillouin light scattering, μ -BLS) 和 X 射线磁圆二色性谱-光发射电子显微镜 (X-ray magnetic circular dichroism-photoemission electron microscopy, XMCD-PEEM), 这对直观理解

磁弹耦合的动力学响应以及量化空间传播参数非常重要. BLS 是研究磁子的有效手段, 具有高的空间和频率分辨率及出色的灵敏度^[64]. 在 LiNbO_3/Ni 体系中, BLS 在 Ni 薄膜和 IDT 上都观测到了空间上波的激发模式, 它们的波长相同, 表明 Ni 膜中存在 SAW 驱动的磁化激发. 在图 4(c) 中, BLS 提供了通过磁弹耦合对 SAW 声子进行磁场调制的直接图像^[11].

XMCD-PEEM 技术可以同时提供高时空分辨率的 SAW 应变场和局域磁化的微观成像, PEEM 表征 SAW 的电学衬度, XMCD 表征磁矩的磁衬度, 可直观观察到磁弹耦合的动态响应^[12,65]. PEEM 和 XMCD 得到的图像可与 SAW 同步变化, 从而建立起局域磁化强度和应变场之间的关系. 在图 4(d) 中, 观察到 SAW 在长达毫米的距离内引发大角度进动的磁声波^[12]. XMCD 信号在 Ni 薄膜中显示出明显的自旋波激发衬度, PEEM 信号在 LiNbO_3 基片上显示出明显的弹性应变波激发衬度. 对比上述两种直接成像技术, BLS 为声波激发的磁化动力学提供了一种方便的探测手段, 而 XMCD-PEEM 提供了一种强大的纳米成像工具. X 射线的短波长使其能够实现 100 nm 以下的空间分辨率, 这优于受光学波长限制的 BLS 的分辨率. BLS 的另一优点是其光谱功能, 能够以精细的步长进行宽频带激发和探测, 而 XMCD-PEEM 则需要同步辐射的多个频率下进行.

上述探测手段都有各自的特点和优势, 但从实际应用的角度来看, 这些方法都需要复杂的分析过程和成本高昂的设备, 这严重阻碍了其广泛应用, 并且与现代微电子工艺不兼容. 最近通过将磁性探测条与 SAW 延迟线集成, 实现了基于电学整流的 SAW 驱动 FMR 的直流电检测, 如图 4(e) 所示^[13]. 该工作开发出一套定量描述 SAW 驱动 FMR 产生整流电压的模型, 通过分析整流电压提取对称和反对称线型, 可直接表征和计算磁弹有效场. 这种直流电检测手段表现出更好的器件集成兼容性和更低的成本. 另外获得了较大的非互易整流电压 (正负磁场下的电压幅值不对称), 这归因于面内和面外磁弹场的共存. 磁弹场的大小可通过控制磁性薄膜内的纵向应变和剪切应变来大幅调节, 以实现几乎 100% 的非互易整流信号. 这个发现为可设计的磁声耦合器件及其简便的信号读出提供了独特的机会.

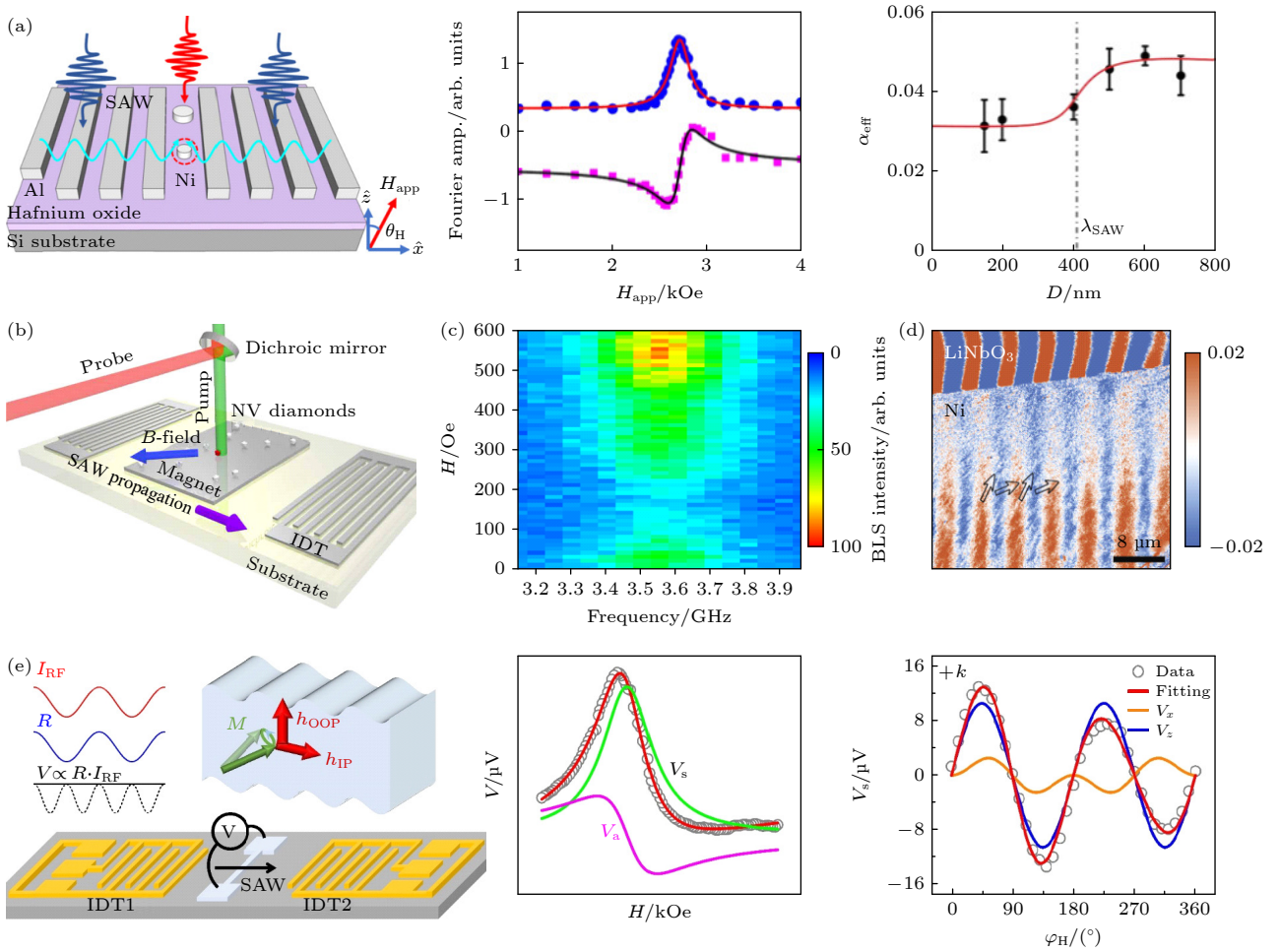


图 4 声波驱动磁化动力学的探测手段 (a) 磁光方法和阻尼因子表征^[9]; (b) NV 色心^[10]; (c) 布里渊光散射^[11]; (d) X 射线磁圆二色性谱-光发射电子显微镜^[12]; (e) 基于各向异性磁电阻整流效应的直流电学探测^[13]

Fig. 4. Detection of SAW-driven magnetization dynamics: (a) Magneto-optic method and characterization of damping factor^[9]; (b) NV center^[10]; (c) microfocused Brillouin light scattering^[11]; (d) X-ray magnetic circular dichroism-photoemission electron microscopy^[12]; (e) direct current electrical detection by anisotropic magnetoresistance rectification effect^[13].

3.2 声波辅助的磁化翻转

SAW 由于其长程传输的特性 (毫米量级), 有望非局域地操控磁性, 这将使得器件设计灵活、结构简单、易于集成. 已有研究表明 SAW 可以局域地降低磁性材料的矫顽力, 进而可使用更小的外磁场来翻转磁矩. 图 5(a) 展示了用 SAW 辅助翻转磁矩的器件示意图^[66], Co 的纳米线阵列生长在一对 IDT 之间, 纳米线的磁易轴沿着 y 方向, SAW 沿 x 轴传播. SAW 在传播过程中通过磁弹能来调控体系的能量. 如果磁弹能为负, 其将降低磁矩沿难轴排列的能量, 这有利于磁矩从易轴翻转到难轴. 实验上可通过磁光克尔效应 (magneto-optical Kerr effect, MOKE) 来观察 SAW 诱导的 Co 纳米线阵列的磁化翻转^[4], 如图 5(b) 所示, 进而在磁性薄膜表面形成具有空间周期性的磁化图案, 该图案

的尺寸可通过外加的磁场和声波的激发功率来进行调控. SAW 的激发频率为 158 MHz, 远离铁磁共振的激发频率, 是 SAW 与磁矩非共振耦合的结果. 通过将 SAW (波长 20 μm) 用弧形 IDT 聚焦到一个点, 在磁性薄膜中成功翻转了 3 μm 区域的磁矩, 如图 5(c) 所示^[14]. 使用更短波长的 SAW 可以进一步限制所操控区域的大小. 采用光学激发, 最小可以操控直径为 75 nm 的磁性纳米点^[61]. 通过优化 IDT 设计, 使用全息 IDT 代替圆弧形的 IDT, 可以进一步集中声波的能量^[67]. 使用这些新型的 IDT 设计有望精准操控磁矩, 克服 SAW 不能精确控制的劣势, 提高器件的集成密度. 基于这些进展, 可开发一种全新的磁记录方法, 通过增大声波功率来显著减小写入电流^[68]. 进一步的研究表明, SAW 引起的矫顽力减小归因于 SAW 瞬时地降低了形

核势垒,从而有助于磁畴的形核^[69].在(Ga, Mn)(As, P)稀磁半导体中,SAW导致的矫顽力减小更加显著,幅度高达60%^[15].与磁性金属相比,磁性半导体具有更小的磁各向异性和更弱的交换常数,因此磁畴形核所需的能量更小.SAW诱导的全声学磁化翻转已经在没有外磁场的辅助下得到了实验验证^[16].通过设计(Ga, Mn)As稀磁半导体的进动频率来匹配零磁场下的声波频率,然后用30个连续的声波脉冲实现了两种磁化状态之间的翻转,如图5(d)所示.

自旋转移力矩 (spin transfer torque, STT) 技

术已经作为一种流行的数据写入手段,应用于磁随机存储器 (magnetoresistive random access memory, MRAM) 中. STT-MRAM 里的存储信息被编码到纳米级的磁性隧道结 (magnetic tunnel junctions, MTJ) 中,其中电荷流穿过 MTJ 中的硬磁层以极化电子的自旋,然后该自旋极化的电流在 MTJ 的软磁层上施加力矩并使其磁化翻转. 尽管 STT 具有全电学读写的优势,但该电流驱动特性也使得基于 STT 的 MTJ 器件的单比特写入功耗比 CMOS 存储器件高得多^[70],这限制了纯电学 STT 写入器件的广泛应用. SAW 辅助的磁化翻转

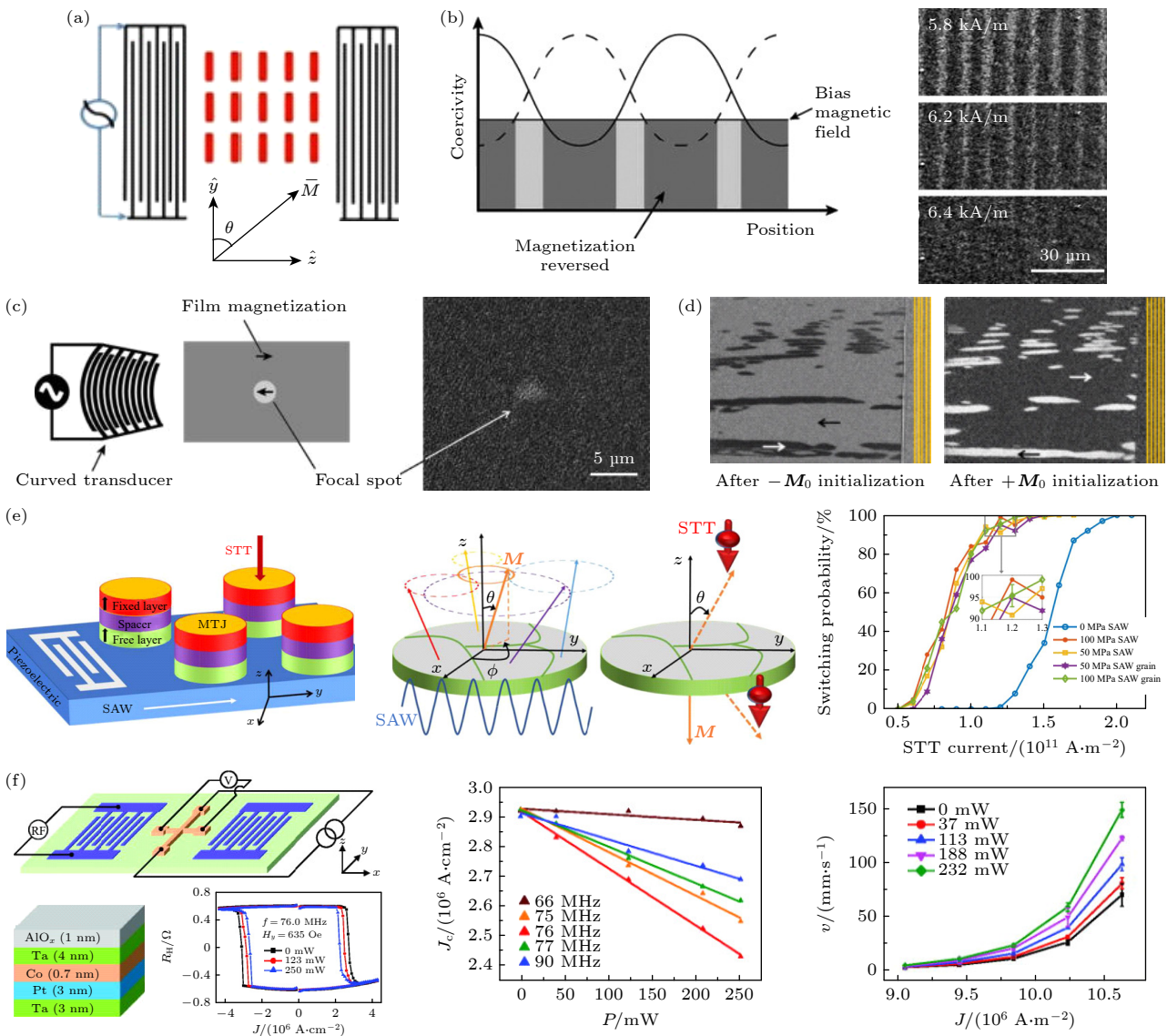


图 5 声波辅助的磁化翻转 (a) SAW 辅助翻转的器件示意图^[66]; (b), (c) 辅助翻转原理和聚焦 SAW 实现微区控制^[14]; (d) 无磁场辅助下 SAW 引起的翻转^[16]; (e) SAW 辅助的自旋转移力矩翻转^[18]; (f) SAW 辅助的自旋轨道力矩翻转^[17]

Fig. 5. Acoustic wave-assisted magnetization switching: (a) Schematic representation of the device used in SAW-assisted magnetization switching^[66]; (b), (c) mechanism of switching and focused SAW for small spot writing^[14]; (d) field-free switching induced by SAW^[16]; (e) SAW-assisted spin-transfer-torque switching^[18]; (f) SAW-assisted spin-orbit-torque switching^[17].

为 STT-MRAM 原型器件的开发提供了新的思路,已经在理论上进行了探索,并被证明是克服 STT 中大写入电流的潜在途径^[18],器件结构和写入机制如图 5(e) 所示. SAW 首先在自由层中诱导出非相干的大角度磁矩进动,然后施加自旋极化的电流去选择性地将磁矩翻转到所需状态,从而降低 MTJ 的写入电流密度.在面内^[71]和面外^[72]两种构型的 MTJ 中,SAW 的辅助都可以使 STT-MRAM 的能量消耗减小 1 个量级.尽管理论研究取得了有吸引力的进展,但 SAW 辅助 STT 翻转的确定性实验证据似乎仍然缺失.虽然有工作观察到 SAW 能驱动 MTJ 中自由层的磁矩进动,进动幅度可以分别通过两个延时声脉冲的相长和相消干涉来实现增强和减弱^[73].另外实验上也在具有垂直磁各向异性的 $[\text{Co}/\text{Pd}]_n$ 多层膜中实现了极高频率 (~ 60 GHz) 的磁弹耦合^[74].基于这些实验结果,开发低功耗的 SAW 辅助 STT 翻转器件极具吸引力.

电流诱导的自旋轨道力矩 (spin orbit torque, SOT) 也是一种翻转磁化状态的有效手段^[75].基本原理是通过重金属中的自旋霍尔效应或铁磁/重金属界面处的 Rashba 效应,将施加的电荷流转化为自旋流,从而对磁性层施加有效力矩并驱动其翻转.然而较高的写入电流限制了 SOT 在磁存储技术中的广泛应用,使用 SAW 辅助是一种有前景的方法.器件结构如图 5(f) 所示^[17],实验表明 SAW 能降低具有垂直磁各向异性的 Pt/Co/Ta 异质结中的临界翻转电流密度 J_c ,从 2.9×10^6 A/cm² 减小到 2.4×10^6 A/cm².二次谐波测试表明 SOT 产生的类阻尼力矩在有或没有 SAW 的情况下几乎相同,表明 J_c 的降低并非源自于 SOT 的增强,但是 SAW 的作用下电流驱动的畴壁运动速度能提高 2 倍,最高可达 150 mm/s.理论分析表明 J_c 的降低来自于 SAW 引入的磁弹耦合能周期性地降低磁畴的形核势垒,提高了平均的形核概率,展示了 SAW 辅助 SOT 翻转在低功耗磁存储器件中的应用潜力.

3.3 声波辅助的磁结构产生及运动

磁畴壁 (domain wall, DW) 和多畴结构是磁性材料内部为了降低退磁能而出现的,操控磁畴壁运动极具应用前景,包括畴壁逻辑器件^[76]和赛道存储器^[77].DW 通常用磁场、STT 和 SOT 来驱动^[78-80],此类研究的限制之一在于驱动需要大的

磁场或高的电流密度.低功耗和可靠的畴壁运动是人们长期追求的目标,其中部分进展是用 SAW 来驱动的.首先进行的是理论上的探索,对 DW 与 SAW 相互作用进行有限元微磁学模拟^[19],如图 6(a) 所示.两个相对传播的 SAW 形成驻波,并与磁性 $\text{Fe}_{70}\text{Ga}_{18}\text{B}_{12}$ 纳米线相互作用.纳米线具有面内易轴,磁畴头对头作为初始磁化状态.在模拟中,DW 的初始位置放在远离驻波波腹的位置,经过一段时间演化后,DW 会迅速移动到最近的波腹位置,主要的应变贡献来自于瑞利波中最大的 ϵ_{xx} .为了进一步有效驱动 DW 运动,还可以利用 Doppler 效应,将一端 SAW 的频率提高 Δf .这样可以激发具有漂移速度的行驻波,其漂移速度 $v = v_{\text{SAW}}\Delta f/f$,其中 v_{SAW} 是基片的 SAW 速度, f 是 SAW 的频率 (4.23 GHz).使用行驻波驱动 DW,其运动的速度上限可达 50 m/s,对应于 DW 运动到波腹的速度.一维半解析模型表明 SAW 的主要作用是驱动畴壁处的磁化振荡,进而通过退磁场驱动畴壁位置发生振荡,而不是直接平移畴壁^[81].

随后有了实验上的跟进,在多层薄膜^[20,82]和纳米条^[83]中观察到了 SAW 辅助的畴壁运动.在具有垂直磁各向异性的 Co/Pt 多层膜中,使用中心频率为 96.6 MHz 的 SAW,从而避免出现自旋波共振激发和相干磁化进动等复杂情况^[20].如图 6(b) 所示,与只施加磁场相比,同时施加 SAW 和磁场可使 DW 的运动速度通过驻波的作用提高 1 个数量级.SAW 驱动 DW 倾向于远离驻波的波节并向波腹移动,最终被钉扎在驻波波腹的位置,这使得 SAW 对 DW 的操控比磁场和电流更加精确.另一关键发现是波节和波腹位置的 DW 运动速度出现周期性减小,但在之前的模拟研究中 DW 只会在波腹位置出现^[19],这与 DW 运动的钉扎位置和势垒有关.另外用 SAW 驱动畴壁运动还需注意热效应的影响,SAW 器件由于电极的欧姆损耗、插入损耗等原因导致的输入功率耗散将会产生较大的热效应,在高频下尤其显著^[84].最近热效应和磁弹耦合对畴壁运动的影响得到了有效区分^[21].如图 6(c) 所示,施加 SAW (48 MHz, 21 dBm) 将会使其传播路径上的温度升高约 10 K.单独通过加热使器件温度升高 10 K 后, Pt/Co/Ta 薄膜中的 DW 运动速度从 (33 ± 3) $\mu\text{m}/\text{s}$ 提高至 (104 ± 8) $\mu\text{m}/\text{s}$.施加 SAW 的行波可使速度提高至 (116 ± 3) $\mu\text{m}/\text{s}$,比温度单独的作用略高,表明

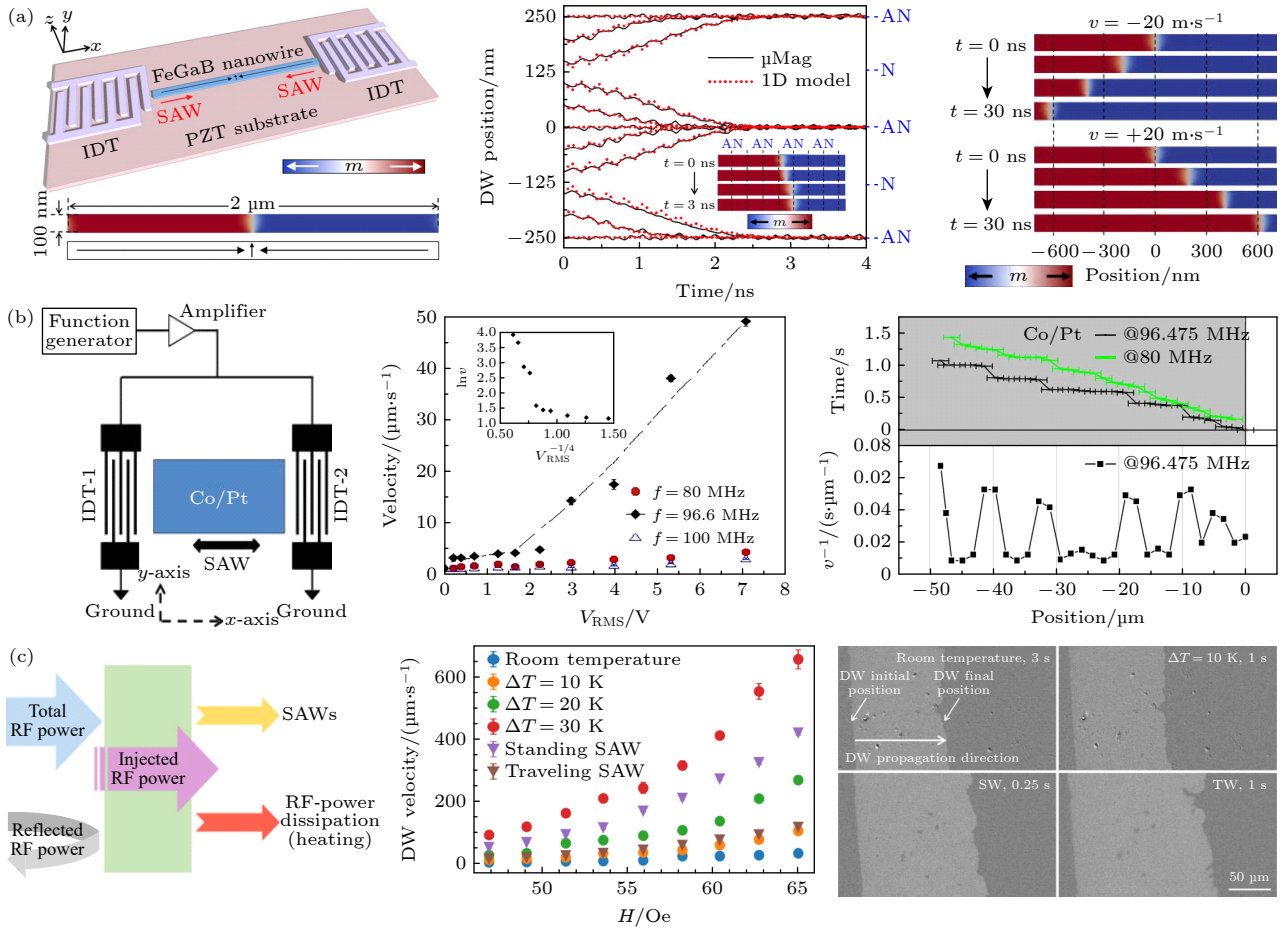


图 6 声波驱动的畴壁运动 (a) 微磁学模拟 SAW 在纳米线中驱动畴壁运动^[19]; (b) Co/Pt 多层膜中的实验结果^[20]; (c) 热效应和磁弹耦合对畴壁运动贡献的区分^[21]

Fig. 6. SAW-driven magnetic domain wall motion: (a) SAW-driven domain wall motion in magnetic nanowires by micromagnetic simulations^[19]; (b) experiments in Co/Pt multilayers^[20]; (c) separation of heating and magnetoelastic coupling effects in SAW-driven domain wall motion^[21].

热效应在驱动 DW 运动方面起主要作用. 但施加 SAW 的驻波可使 DW 的运动速度显著提升, 达到 $(418 \pm 8) \mu\text{m/s}$, 表明此时磁弹耦合比热效应的贡献更加显著. 以后还需要进一步的实验工作来优化材料性能和器件设计, 以便使 SAW 驱动的 DW 具有可与其他方法竞争的驱动速度.

与磁畴类似, 磁性斯格明子 (skyrmion) 也是磁性材料中的一类磁结构, 但区别在于斯格明子具有拓扑非平庸的属性, 一般出现在空间反演对称性破缺的磁性体系中^[85]. 斯格明子的尺寸可以小至几纳米, 类似于一个“准粒子”, 可以被产生、移动和湮灭, 有望应用于新一代信息存储和逻辑技术^[85], 例如斯格明子赛道存储器^[86,87]和基于斯格明子的自旋逻辑器件^[88], 这些应用的前提都是斯格明子能以低功耗的方式被产生和驱动. 电流可以促进斯格明子的产生并驱动其运动, 但通常需要较高的电

流密度. 为了解决电流的发热问题, 电场^[89,90]和热梯度^[91]也被用来产生和操控斯格明子. 近年来 SAW 也被实验上证明可以在不对称的 Pt/Co/Ir 多层膜中促进斯格明子的形成, 如图 7(a) 所示^[22]. 伴随着 SAW 的激发, 薄膜中会大面积出现斯格明子, 并一直保持到 SAW 撤掉以后. 当 SAW 的功率高于阈值时, 斯格明子的形核密度依赖于 SAW 的功率. 微磁学模拟表明 SAW 通过磁弹耦合产生的非均匀有效力矩和热扰动局域地翻转了磁矩, 形成一对由 Néel 型斯格明子和反斯格明子组成的磁构型, 随后反斯格明子由于其能量不稳定而湮灭, 如图 7(b) 所示. 此外实验和模拟均表明, 非均匀有效力矩的作用范围由 SAW 的波长决定, 当该作用范围与斯格明子的尺寸相当时, 斯格明子的产生效率最高. 实验中斯格明子的尺寸相对较大, 在 3—6 μm 的范围内. 为了实际应用, 需要尺寸在 10 nm

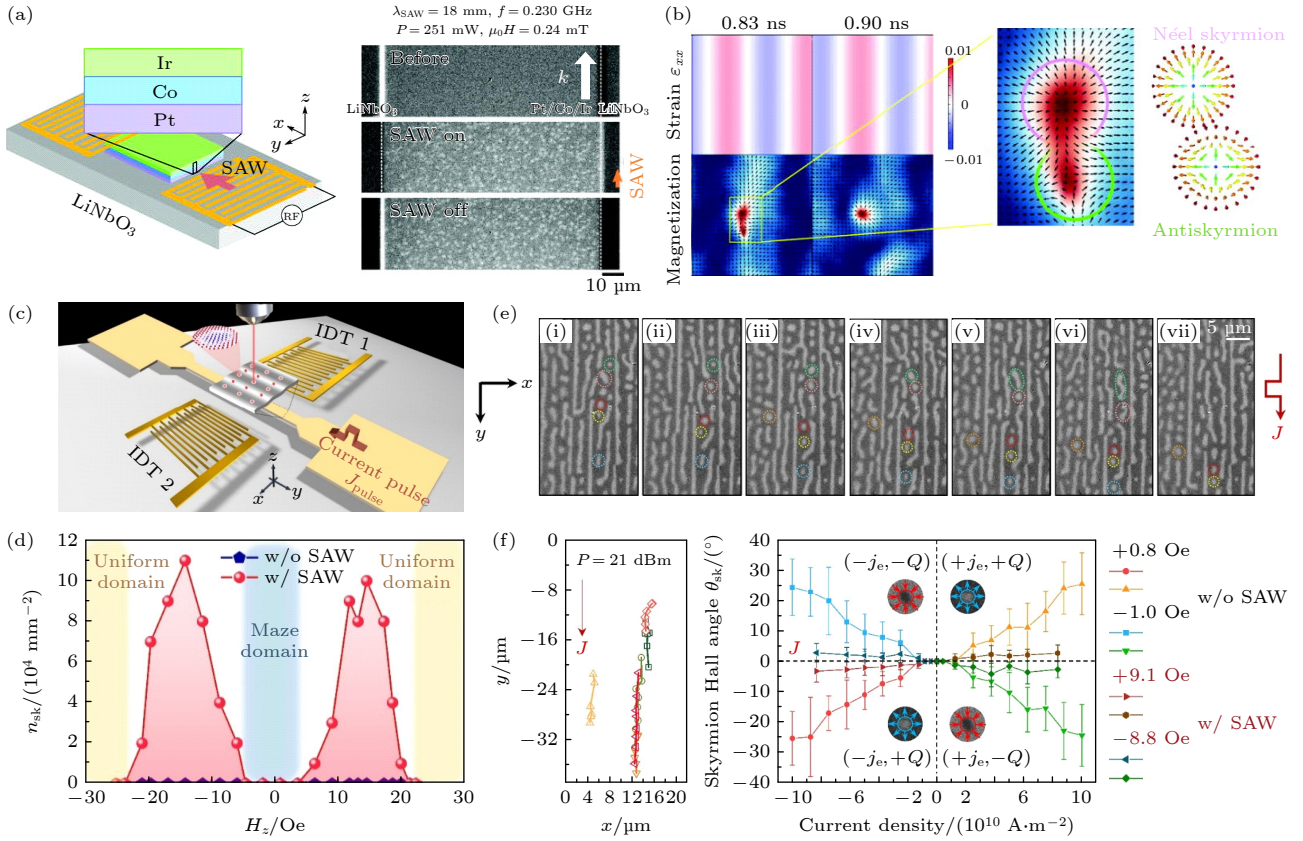


图 7 声波驱动的天空格明子产生及运动 (a), (b) SAW 辅助的天空格明子产生^[22]; (c)–(f) SAW 诱导的天空格明子有序产生和运动, 以及铁磁体中天空格明子霍尔效应的抑制^[23]

Fig. 7. SAW-driven magnetic skyrmion creation and motion: (a), (b) SAW-driven magnetic skyrmion creation^[22]; (c)–(f) ordered creation and motion of skyrmions with SAW, and suppression of skyrmion Hall effect in ferromagnets^[23].

范围的天空格明子, 因此需要进一步减小 SAW 的波长. 此外 SAW 没有驱动天空格明子运动, 这可能来自于 Pt/Co/Ir 多层膜中大的钉扎. 还有实验工作使用光学方法来激发 SAW, 这有助于实现 SAW 驱动的天空格明子运动^[92,93], 尤其是将 SAW 聚焦到 ~ 100 nm 的技术有望实现单个天空格明子运动的声学操控^[61]. 上述研究展示了通过 SAW 可控地产生天空格明子的潜力.

SAW 除了可以用来产生天空格明子, 最近也报道了 SAW 可以用来调控天空格明子的运动^[23]. 通过将具有一定面外磁各向异性的 Co/Pd 多层膜嵌入到 SAW 延迟线中, 然后施加交变电压激发纵漏波, 如图 7(c) 所示. 纵漏波的激发相比于常规的瑞利波具有更显著的热效应, 有利于天空格明子的产生, 同时也能产生较大的应变. 在纵漏波的作用下, 观察到磁畴沿着垂直于声波的传播方向形核. 通过调节外磁场, 磁畴逐渐演化为较密的迷宫畴, 并在面外磁场和热的共同作用下分裂为单个的磁性天空格明子, 磁结构随磁场变化的相图如图 7(d) 所示.

这些天空格明子沿着垂直于声波的传播方向有序排列且保持稳定(图 7(e)), 即在实验上实现了天空格明子的有序产生, 这来源于 SAW 作用下体系能量的重新分布. 在电流驱动天空格明子运动的实验中, 纵漏波的加入有效抑制了天空格明子霍尔效应所引起的天空格明子横向偏移(图 7(f)), 天空格明子霍尔角降低了 80%. 另外 SAW 的驻波对天空格明子霍尔效应的有效抑制作用也在理论上得到了证实^[94]. 上述工作为操控天空格明子, 尤其是抑制天空格明子霍尔效应的产生, 提供了一种全新的手段, 有望驱动基于天空格明子的信息器件的新进展.

3.4 声波产生自旋流

自旋流的产生是自旋电子学应用所需的基本技术之一, 可以通过多种方式来实现. 自旋泵浦是在 FMR 条件下产生自旋流的有效途径, 自旋流被进动的磁矩从铁磁层泵浦到非磁层中^[95]. 如 3.1 节所述, 铁磁层的磁矩进动可以被声波激发, 有望实现自旋流的声学产生^[96], 然后再通过自旋霍尔材

料或 Rashba 界面来进行探测. 实验上已经在 Co/Pt 双层膜中得到了证实^[24], 器件构型如图 8(a) 所示.

SAW 传播到 Co/Pt 双层膜后驱动 Co 层发生 FMR, Co 层进而向临近的 Pt 层泵浦自旋流 J_s . 注入到

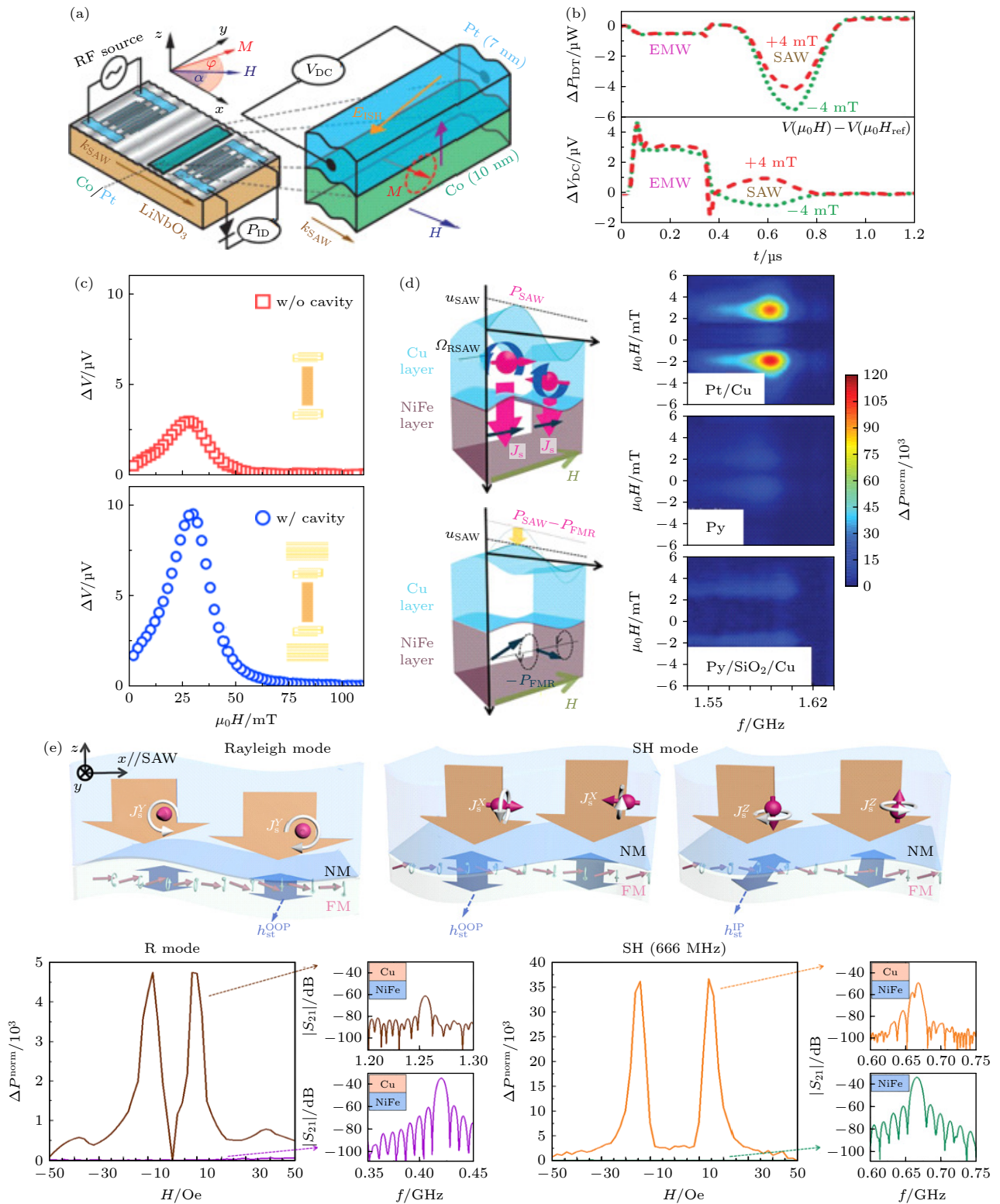


图 8 声波产生自旋流 (a), (b) 声自旋泵浦^[24]; (c) 声学谐振腔增强声自旋泵浦^[26]; (d) 瑞利波通过自旋-旋转耦合产生自旋流^[27]; (e) 水平剪切波通过自旋-旋转耦合产生自旋流^[28]

Fig. 8. Generation of spin current by SAW: (a), (b) Acoustic spin pumping^[24]; (c) enhancement of acoustic spin pump by the acoustic cavity^[26]; (d) Rayleigh wave generates spin current by spin-rotation coupling^[27]; (e) shear horizontal wave generates spin current by spin-rotation coupling^[28].

Pt 层中的自旋流可通过逆自旋霍尔效应转换为电荷流来进行探测. 在图 8(b) 中, 输入端 IDT 还同时激发了电磁波 (electromagnetic wave, EMW), 该 EMW 可以在时域上与 SAW 区分开来. 当外磁场调节到共振场 (± 4 mT) 时, SAW 的透射功率 ΔP_{IDT} 显著减小, 衰减的 SAW 功率被 FMR 共振吸收. 在 FMR 条件下, 磁场方向反向后 ΔV_{DC} 的符号发生变化, 这是典型的逆自旋霍尔效应特征. 实验上在 Ni/Cu(Ag)/Bi₂O₃ 体系中同样可以产生声自旋泵浦效应^[25], 其中产生的自旋流通过逆 Edelstein 效应转化为电荷流, 这来源于两层非磁界面处的空间反演破缺. 进一步的研究表明声波驱动 FMR 产生的自旋流密度的大小与普通 FMR 产生的相当^[97]. 此外磁性绝缘体/重金属 (YIG/Pt) 体系也在远低于 FMR 的频率下 (< 11 MHz) 观察到了声自旋泵浦, 逆效应也被同时观察到. 声波的激发同时伴随有热效应, 可在声自旋泵浦测试中贡献非本征的热信号 (如自旋塞贝克效应), 该热信号可在频率依赖的电压测试中与声自旋泵浦信号区分开^[98].

由于 SAW 技术比自旋电子学具有更长的历史, 因此在磁声耦合的研究中, SAW 仍有技术优势可以被利用. 例如 SAW 谐振器可以限制住声波能量并提高器件的品质因素. 研究者们把 SAW 限制在一对谐振器之间, 形成声学谐振腔 (cavity), 用来增强声学自旋泵浦产生自旋流的能力^[26]. 如图 8(c) 所示, 在 Ni/Cu/Bi₂O₃ 三层结构中, 谐振腔的存在能使自旋流的产生能力提高 3 倍. 另外通过精心设计谐振腔, 其品质因素将进一步提高, 在 CoFeB 薄膜中实现了强的磁子-声子耦合^[99].

基于第 2 节讨论的自旋-旋转耦合, SAW 可在非磁金属中产生纯自旋流. 例如在 NiFe(Py)/Cu 体系中^[27], 在 Cu 层中产生交变的自旋流, 随后扩散到界面. 自旋流在 Py 层的磁矩上施加自旋力矩, 驱动其发生 FMR, 进而观察到 SAW 透射功率的显著吸收, 如图 8(d) 所示. 单独的 Py 和 Py/SiO₂/Cu 结构中 SAW 的吸收受到强烈抑制, 进一步证明 Cu 通过自旋-旋转耦合产生了自旋流. 最近水平剪切波也被提出可以通过自旋-旋转耦合产生交变的自旋流^[28]. 不同之处在于瑞利波产生的是 y 方向 (旋转角动量方向) 极化的自旋流, 而水平剪切波可以同时产生 x 方向 (波矢方向) 和 z 方向 (面外方向) 极化的自旋流, 如图 8(e) 所示. 实验上也进行

了验证, 使用 ST 切的石英 (欧拉角 ($0^\circ, 132.75^\circ, 0^\circ$)), 在两个正交的方向上分别激发水平剪切波和瑞利波. 在相同的波长下, 水平剪切波的吸收强度比瑞利波的大 4 个量级. 此外水平剪切波的功率吸收具有更高阶的频率依赖性, 表明其自旋-旋转耦合在高频下可以足够强, 可与磁弹耦合相比拟.

自旋-旋转耦合出现在非磁的轻金属中 (如 Cu), 最近在非磁的重金属中 (如 W, Pt 和 Ta) 也提出可通过一种全新的机制——声自旋霍尔效应 (acoustic spin Hall effect) 来实现自旋流的声学产生^[100]. 声自旋霍尔效应利用重金属中的强自旋轨道耦合, SAW 诱导的晶格位移可直接通过自旋轨道耦合产生交变的自旋流, 该自旋流沿着垂直于 SAW 的传播方向流动. 声自旋霍尔效应在实验上表现为 SAW 激发下磁场依赖的声电压. 当重金属层的厚度接近其自旋扩散长度时, 声电压达到极大值, 并随 SAW 的频率增加而线性增大. 在自旋轨道耦合较弱的 Cu 中, 声自旋霍尔效应消失. 理论分析表明 SAW 诱导的自旋流与自旋轨道耦合强度和晶格位移的时间导数成比例. 上述结果表明电子自旋与晶格之间存在强耦合, 显示出晶格动力学在强自旋轨道耦合的金属中产生自旋流的潜力. 总之自旋流的声学产生为自旋电子学打开了一个全新的视角.

4 磁控声波和新型磁声器件

把磁性材料集成到声学器件中, 除了能利用声波来调控磁性外, 还可通过调控易于操纵的磁性来影响声波的传播特性, 包括实现声波的非互易传播、调控声波的幅值和相速度等信息, 这为声学隔离器、磁传感器、磁天线等新型磁声器件的设计和操控提供了一个全新的思路.

4.1 声波的非互易传播

非互易现象具有广泛的应用场景, 常见的在电子二极管技术中, 电流只能单向流动. 声波的非互易传播即传播方向反向后传输的信号不对称, 在隔离器、环形器等器件中应用广泛. 实现非互易性要求同时打破空间反演和时间反演对称性. 在薄膜器件中, 异质界面显然是空间反演破缺的, 而时间反演破缺在磁性材料中是本征属性, 故利用磁声耦合在薄膜器件中来实现声波的非互易具有天然的优

势^[29]. 目前常见的实现非互易的手段有两种. 一是利用沿波矢方向的正应变与波矢方向依赖的应变发生耦合, 包括磁弹耦合中的切应变^[29-31]或磁-旋转耦合^[32,45]中的旋转应变, 来实现非互易性, 如图 9(a), (c) 所示. 这种非互易性来自于磁化进动与有效场之间的旋性不匹配. 当 SAW 的传播方向由 $+k$ 变成 $-k$ 时, 由于切应变和旋转应变的符号依赖于 SAW 的传播方向, 就会导致椭圆极化的有效场的旋性发生改变, 但磁化进动仍保持右旋, 最终导致不同的耦合强度 ($+k$ 耦合强, $-k$ 耦合弱) 和不同的 SAW 透射率. 在实验上表现为在同一个共振场下透射参数的幅值差异, 见图 9(b). 通常切应变和正应变的磁弹耦合导致的非互易性只有在相对较厚的磁性膜中比较显著^[31], 因为当声波波长远大于薄膜厚度时, 铁磁薄膜里面的切应变接近于零, 非互易程度不高. 而磁-旋转耦合的优势在于不需要较厚的磁性层和大的磁弹耦合系数, 实验上已在 Ta/CoFeB/MgO 体系中实现^[32]. 证明了反向传播的 SAW 具有高达 100% 的非互易 SAW 吸收, 如图 9(d) 所示.

二是利用自旋波的不对称色散与声波的对称色散耦合来实现. 由于具有相似的激发方式 (微波天线) 和可比拟的波长、频率, SAW 容易与自旋波发生耦合. 自旋波的非互易传播得到了广泛研究, 比如在存在 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用 (Dzyaloshinskii-Moriya interaction, DMI) 的铁磁/重金属界面^[33,101]、偶极耦合的铁磁多层膜^[34,35]、Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 耦合的人工反铁磁多层膜^[36,37,102,103] 体系中. DMI 体系里的自旋波色散在 k 方向存在水平偏移, 这样对于不同方向的波矢将在不同的频率下与声波耦合, 使得共振峰位在频率和共振场上错开, 从而得到较大的非互易程度, 如图 9(e) 所示^[33]. 利用共振峰位的偏移, 可以确定薄膜中的 DMI 系数^[32,33]. DMI 导致的非互易是自旋波不对称色散的结果, 来自于本征的时间反演对称性破缺, DMI 可产生一个依赖于传播方向的有效场^[101]. 因此对于给定的磁场和波数, 向前和向后传播的自旋波将具有不同的本征频率^[104].

偶极耦合和 RKKY 耦合的铁磁多层膜中非互易性来源于耦合诱导的自旋波不对称色散^[34-37,102,103]. FeGaB/Al₂O₃/FeGaB 体系中报道了高达 48.4 dB 的 SAW 隔离度. 此外在 0—20 Oe 的磁场范围内

都保持着高的隔离度, 即此处的非互易是宽带的, 不依赖于特定的自旋波共振模式^[34]. 另外在 Co₄₀Fe₄₀B₂₀/Au/Ni₈₁Fe₁₉ 体系中, 由于两层铁磁之间的层间耦合, 形成了对称和反对称的自旋波模式, 对于相反传播的自旋波, 都表现出高度非简并的色散关系, 如图 9(f) 所示^[35]. 此外还证明了该体系里的非互易自旋波色散是高度可调的, 不需要超薄的磁性膜. RKKY 耦合的人工反铁磁里的自旋波已被理论预测有强烈的非互易色散, 在某个波矢方向具有很宽的耦合杂化带, 而在相反的方向上几乎没有耦合, 进而实现高达 6 GHz 的宽带非互易性^[102]. 实验上最近在 CoFeB/Ru/CoFeB 体系中取得了显著进展, 如图 9(g) 所示^[38]. 由于人工反铁磁中的光学支进动模式具有较大的非互易色散和较窄的线宽, 因此得以实现极大的非互易性, 大于 250 dB/mm, 以及 5 GHz 以上极低的插入损耗, 小于 1 dB/mm. 该工作^[38] 总结了到目前为止已经报道的 SAW 非互易的实验进展.

为了实现铁磁多层膜中非互易的自旋波色散, 需要满足: 总的静磁矩具有非零的面内分量; 自旋波传播方向与静磁矩成一定的角度. 这时磁化矢量打破了对称性, 导致不同的自旋波色散关系. 下面讨论 DMI 和铁磁多层膜这两种实现 SAW 非互易方法的优劣. 前者利用了界面耦合产生的有效场, 后者需要两个磁性层的磁矩相对于 k 矢量倾斜. 多层膜方法具有实现高隔离带宽的潜力, 然而倾斜的磁化状态仅在较小的外磁场下存在, 因此隔离的频段较低. DMI 方法具有更宽的隔离频率可调性, 因为自旋波频率可以通过外磁场来自由调节. 然而在隔离度的指标上存在限制, 因为需要极薄的铁磁层来产生显著的 DMI 有效场, 这将导致自旋波的线宽增大以及磁声耦合的强度减弱. 总结来说就是铁磁多层膜方法在隔离度上有优势, 而 DMI 方法在高的隔离频率上有优势.

4.2 基于 SAW 的磁场传感器

磁性和多铁材料^[105] 的嵌入使得可以方便用磁场来调制声波的传输参数, 包括透射幅值、中心频率、相速度、品质因数等, 这有望赋予声学器件以磁场可控性. 另外通过监测这些参数的变化, 反过来探测磁场, 也可以开发基于声学器件的磁场传感器. 磁场传感器要求能将外加的直流或交流磁场转变为与磁场大小成正比的电信号, 通过监测电

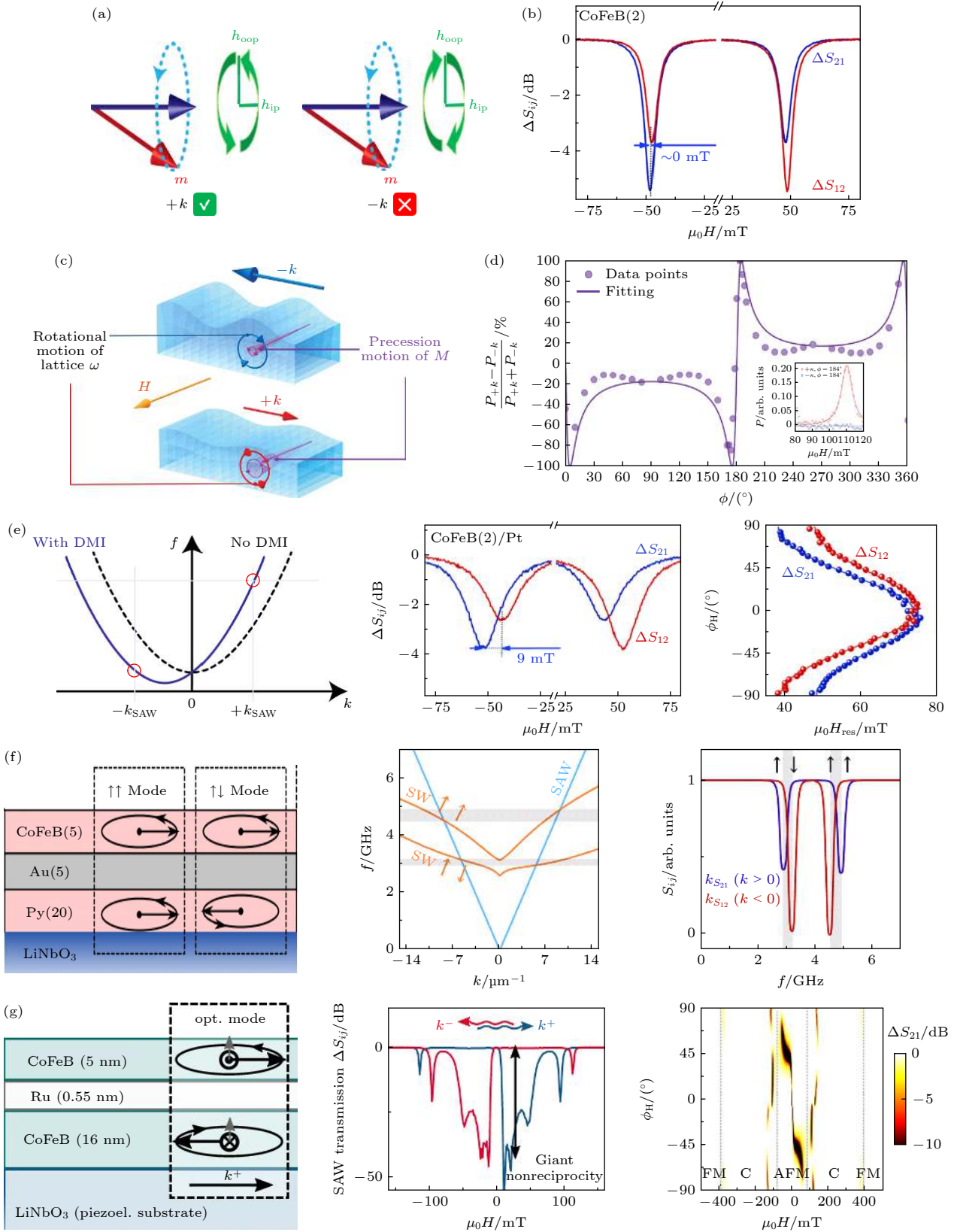


图 9 磁声耦合诱导的声波非互易传播 (a), (b) 磁弹耦合诱导的非互易^[33]; (c), (d) 磁-旋转耦合诱导的非互易^[32]; (e) 层间 DMI 诱导的非互易^[33]; (f) 偶极耦合的铁磁多层膜中的非互易^[35]; (g) RKKY 耦合的铁磁多层膜中的非互易^[38]

Fig. 9. Nonreciprocal SAW propagation induced by magneto-acoustic coupling: (a), (b) Nonreciprocity via magneto-elastic coupling^[33]; (c), (d) nonreciprocity via magneto-rotation coupling^[32]; (e) nonreciprocity via DMI^[33]; (f) nonreciprocity in ferromagnetic multilayers mediated by dipolar coupling^[35]; (g) nonreciprocity in ferromagnetic multilayers mediated by RKKY coupling^[38].

信号的变化感知磁场的变化. 性能优异的磁场传感器要求高灵敏度、从 fT 到 pT 的低频探测极限 ($\text{fT}-\text{pT}/\sqrt{\text{Hz}}$, $10^{-2}-10^3$ Hz)、能在室温下工作和较宽的带宽 (0.1—100 Hz)^[106]. 磁电耦合式磁传感器现在正成为市场上其他磁传感器的理想替代品, 这是因为其超低的功耗、室温操作、小尺寸以及其相对较低的成本. 其中基于 SAW 的磁传感器通过将磁致伸缩层与大的 ΔE 效应相结合, 成为一种易集成、高灵敏度 (目前探测极限 70 pT^[39]) 的磁场传感技术. 未来的探测极限在 10 Hz 下有望突破 pT, 进而探测极微弱的生物磁场, 有望应用于心脑磁图. 此外基于 SAW 的磁场传感器能够通过监测频率或相位的变化来精准测量磁场, 其准数字化的输出特性允许无线、无源的信号接收, 这一显著优势极为适合发展传感网.

基于 SAW 的磁场传感器的探测原理基于 ΔE 效应, E 为磁性材料的弹性模量. 其原理是高磁致伸缩系数和低磁各向异性的非晶磁性材料在外磁场下发生弹性模量的改变, 如图 10(a) 所示^[107]. 声波的谐振频率取决于材料的弹性模量和密度, ΔE 效应的存在使得谐振频率相对于外磁场发生偏移.

器件结构主要分为两种: 基于 SAW 谐振器和延迟线. 其中基于 SAW 谐振器的磁传感器 (图 10(b)) 通过优化单轴磁各向异性, 在零偏置磁场下实现了 630.4 kHz/Oe 的高灵敏度 S_{RF} ^[40]. 此外沿不同的方向测量 S_{RF} , 验证了其矢量传感能力, 如图 10(c) 所示. 图 10(d) 展示了基于 SAW 延迟线的磁传感器, 通过在 ST 切的石英衬底上使用 SiO_2 引导层产生水平剪切波, 然后在其传播路径上集成磁性材料 ($\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10}$)₇₈ $\text{Si}_{12}\text{B}_{10}$, 可以达到目前最高的灵敏度^[108]. 水平剪切波局限于引导层的表面, 因此大部分的声能都集中在磁致伸缩材料上. 得到的相位灵敏度高达 2000($^\circ$)/mT (图 10(e)), 10 Hz 时探测极限低至 70 pT/Hz^{1/2}, 100 Hz 时低至 25 pT/Hz^{1/2} (图 10(f))^[39]. 基于延迟线结构的 SAW 磁场传感器不依赖于任何共振效应, 因此其测量带宽仅受声波的传播时间和器件的通带宽度的限制.

4.3 磁电天线

天线作为一种能够发射和接收电磁波的设备, 在军事、导航和射频通信等领域发挥着重要作用, 目前 5G 通信迫切需要小型化且高辐射效率的天

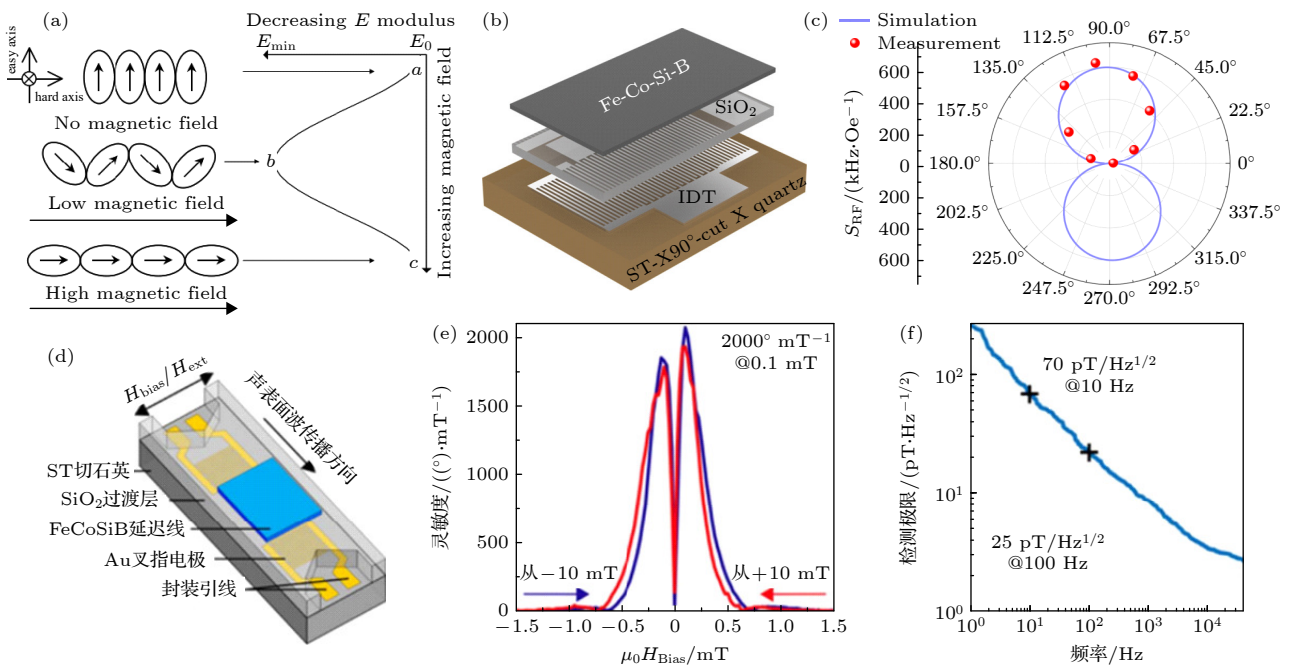


图 10 基于 SAW 的磁场传感器 (a) ΔE 效应原理示意图^[107]; (b) 基于 SAW 谐振器的磁场传感器^[40]; (c) 不同方向的 S_{RF} 结果; (d) 基于 SAW 延迟线的磁场传感器^[39]; (e) 应用磁直流偏置场的磁场灵敏度; (f) 在距离载波信号的 40 kHz 的频率范围内的探测极限 (148 MHz)^[39]

Fig. 10. SAW-based magnetic field sensors: (a) Schematic diagram of ΔE effect^[107]; (b) magnetic sensor based on SAW resonator^[40]; (c) S_{RF} results in different directions; (d) magnetic sensor based on SAW delay line^[39]; (e) magnetic sensitivity by applying DC magnetic bias fields; (f) limit of detection (LOD) in the frequency range of 40 kHz from the carrier signal (148 MHz)^[39].

线^[109]. 传统的电天线通过电荷或磁偶极子的变速运动来辐射电磁波. 为了实现高效辐射, 传统电天线的尺寸需要大于 1/10 电磁波波长^[110]. 近年来许多方法用来小型化天线的尺寸, 包括优化天线形状^[111-113]、使用超材料^[114-116]以及集总元件^[117,118]来降低无功阻抗等. 即使有这些降低尺寸的方法, 传统的电学天线性能仍存在 Chu-Harrington 极限^[119], 进一步降低尺寸将导致天线辐射性能的下降. 为了从根本上解决天线小型化的问题, 2016 年 Sun 等^[120]提出了基于磁电耦合理论的磁电天线构想. 磁电天线是由压电层与磁致伸缩层通过磁电耦合形成的复合多层结构, 工作过程包括辐射和接收信号. 辐射时在压电层两端施加交变电压, 通过逆压电效应产生动态应变, 该应变传递到磁致伸缩层, 通过逆磁致伸缩效应引起磁化的变化, 从而产生变化的电磁场, 进而辐射电磁波; 接收时磁致伸缩层感知到电磁波的磁场分量, 通过磁致伸缩效应产生应变, 该应变传递到压电层, 通过压电效应, 在其两端产生输出电压, 实现了电磁波的接收过程.

采用微机电系统 (micro-electro mechanical system, MEMS) 技术, Nan 等^[41]于 2017 年在实验

上利用 AlN 作为压电层, FeGaB 作为磁致伸缩层设计了基于薄膜体声波谐振器 (film bulk acoustic resonator, FBAR) 结构的集成磁电天线. 通过不同的谐振结构, 利用宽度模式与厚度模式, 如图 11(a), (b) 所示, 分别实现了 60.7 MHz 与 2.53 GHz 工作频率的磁电天线. 基于与 FBAR 天线相同的理论, Liang 等^[42]于 2020 年设计了一种在声学谐振器下带有布拉格反射栅的牢固安装谐振器 (solidly mounted resonator, SMR) 天线, 结构如图 11(c) 所示. 在 1.75 GHz 的工作频率下, 增益为 -18.8 dBi. 布拉格反射栅是一种声波反射器, 由多个周期的低声阻抗或高声阻抗的薄膜组成. 由于反射系数高, 声能大多被反射回谐振腔中. 理论上当材料和厚度完全优化时, 反射系数可以接近于 1. 这种较低的声能耗散转化为更强的磁电耦合, 进而导致更好的辐射效率和天线增益.

磁电天线虽然理论上辐射效率比传统电天线高 100 万倍, 但辐射效率和带宽在实际应用中都较低, 还未超过电天线. 近年来针对以上问题, 在 AlN/YIG 体系中通过调控外加磁场使 YIG 的谐振频率与 AlN 相近, 实现强的磁子-声子耦合, 从

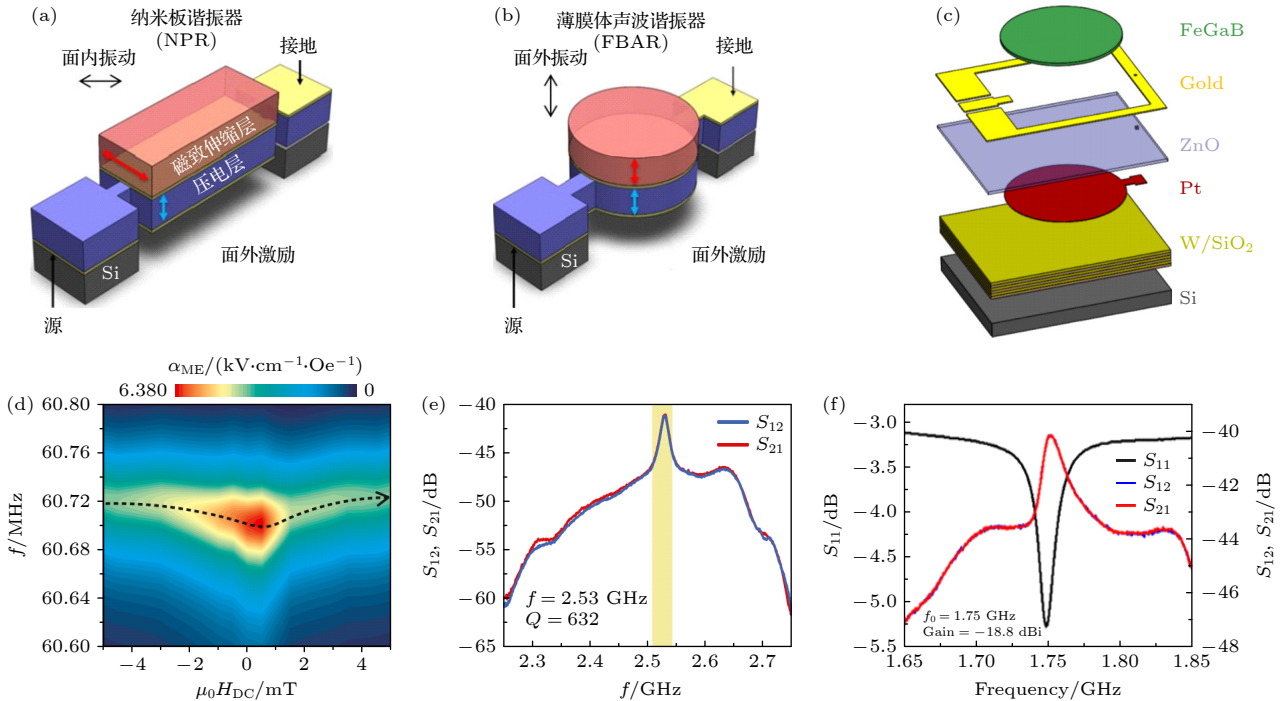


图 11 不同结构的磁电天线示意图, 包括 NPR (a), FBAR (b) 和 SMR (c); (d) NPR 结构磁电耦合系数随外加磁场的变化^[41]; (e) FBAR 天线的 S 参数^[41]; (f) SMR 天线的 S 参数^[42]

Fig. 11. Schematic diagram of magnetoelectric antennas with different structures, including NPR (a), FBAR (b), SMR (c); (d) variation of magnetoelectric coupling coefficient of NPR structure with applied magnetic field^[41]; (e) S parameters of FBAR antenna^[41]; (f) S parameters of SMR antenna^[42].

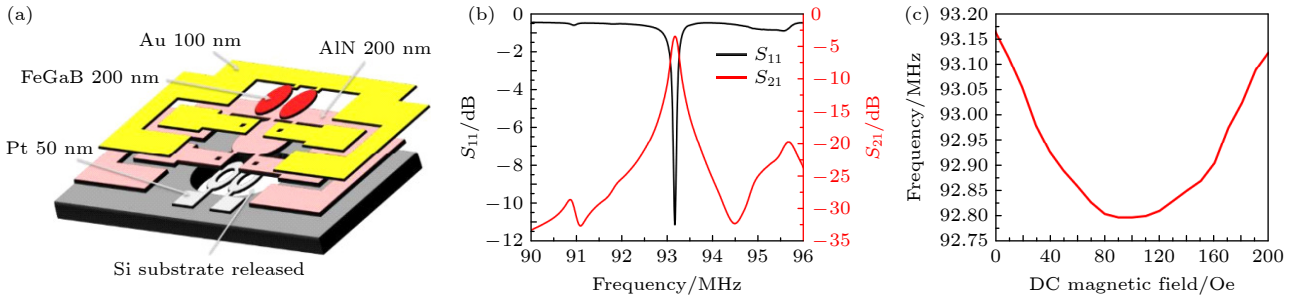


图 12 (a) 带有两个耦合的环形 FBAR 谐振器的磁电滤波器的原理图^[43]; (b) 零偏置场下磁电滤波器的 S 参数; (c) 谐振频率随外加直流磁场的函数变化

Fig. 12. (a) Schematic diagram of the structure of a magnetolectric filter with two coupled toroidal FBAR resonators^[43]; (b) S parameters of the magnetolectric filter in the zero-bias field; (c) resonant frequency as a function of the applied DC magnetic field.

而将辐射效率提高 100 倍, 并扩大了带宽^[121]. 由于磁电耦合系数与外加偏置磁场有关, 所以有些研究通过整合外加永磁体或者外加线圈的方式, 增大偏置磁场, 从而提高辐射效率^[122,123]. 受多输入多输出 (multiple-input multiple-output, MIMO) 天线的启发, 同样可以通过并联多个磁电天线实现天线阵列, 增强辐射场强度和辐射效率^[124]. 或者通过 MEMS 操作, 实现多个不同结构的谐振器并联, 实现多带宽^[125].

4.4 可调谐滤波器

滤波器广泛应用于电子系统中, 用来滤除不需要的信号. 在现代电子系统, 如可重构和多波段通信系统中理想的滤波器需要具备超宽带、磁场和电场可调谐的特点. 最近报道了一种基于具有轮廓传输模式的 MEMS 磁电谐振器的可调谐射频带通滤波器^[43], 结构如图 12 所示. 由磁致伸缩层 FeGaB 和压电层 AlN 的磁电异质结构组成的两个耦合环形谐振器之间的锁相, 使电场和磁场可调谐带通滤波器的演示成为可能. 由于 ΔE 效应改变了磁致伸缩材料在磁场下的弹性模量, 因此磁场作用下该磁电滤波器的中心频率会发生变化. 通过测量中心频率随外加磁场的变化, 实现了 $50 \text{ Hz}/\mu\text{T}$ 的频率可调性. 通过施加直流偏置电压, 提取了电场的频率可调性为 $2.3 \text{ kHz}/\text{V}$. 这种基于 MEMS 技术的可调谐射频带通滤波器, 结构紧凑小巧, 与半导体 CMOS 技术兼容.

5 总结与展望

综上所述, 磁声耦合领域正处于高速发展的阶段, 在过去短短的十多年时间里已经取得了一系列

开创性的突破, 本文综述了近十多年来该领域的重大进展. 尽管对于磁学领域的研究者, 声波还不是一种得到广泛使用的调控手段, 但是近年来的研究表明, 声波已经展示了其在磁学研究中的巨大潜力. 这些研究包括磁化动力学、磁阻尼因子、自旋泵浦、畴壁运动和斯格明子、磁化翻转等等, 其中许多主题仍是新兴的研究领域, 具有很大的应用潜力. 例如 SAW 辅助的 STT 翻转虽然模拟上已经预测了其可行性^[71,72], 但仍需实验实现. 另有模拟工作预测了应变媒介的 SOT 翻转^[126], 应变诱导的磁弹各向异性可以用来打破横向对称性, 从而实现无场的确定性磁化翻转. 此外声控磁性的研究领域还可以进一步扩大, 之前集中在铁磁性材料. 最近在二维磁体、反铁磁的研究中声波也展示了其独特优势. 在层间反铁磁排列的 CrCl_3 中, 报道了声波驱动的自旋波共振, 展示了具有低功耗优势的声波技术与范德瓦耳斯材料优异的机械性能之间的有效结合^[127]. 晶体反铁磁中的磁弹耦合现象也被观察到^[128,129], 因此可以期望在太赫兹频率下实现反铁磁的声学共振激发, 从而使用太赫兹声波进行太赫兹自旋泵浦^[130,131]. 除了磁性材料体系的拓宽, 磁声耦合的基础物理也值得探索, 包括强的磁子-声子耦合^[49,132]、杂化的磁声准粒子和凝聚态^[133]、磁性声学超材料和声子晶体中声波的传输特性^[134]等. 除了磁学相关的研究, 声波最近也被用于层状超导体 NbSe_2 中电荷密度波的调制^[135]以及量子信息处理中单电子的操控^[136], 表明声波为研究基础物理提供了一个全新且有趣的平台, 但超出了本综述的范畴.

磁声耦合的研究同时也催生出多种新型磁声器件, 具有很大的应用潜力. 在声学 and 射频领域,

磁性材料的集成使得用磁场来调控声波传输和器件参数成为可能, 这为声学器件的调控和性能提升提供了全新的思路, 比如磁传感器、磁电天线、可调谐滤波器等. 目前基于 ΔE 效应的磁传感器能够实现 1 Hz 下 5.1 pT/Hz^{1/2} 的检测极限; 磁电天线低频下能够实现 120 m 的辐射距离, 高频下实现 2.53 GHz 的有效辐射; 可调谐滤波器实现了 5 MHz/Oe 的频率偏移. 尽管目前开发了许多磁电器件, 但仍存在许多挑战和问题, 例如: 精确控制薄膜的生长, 包括它们的晶体取向、组成和原子结构; 畴结构和动态的翻转; 薄膜中磁电效应的尺寸效应; 磁电耦合的动态行为; 进一步了解磁电薄膜体系中不同的磁电耦合机理. 从材料的角度来看, 具有高压电系数和低损耗的压电材料以及具有大磁致伸缩系数和小阻尼因子的磁性材料仍被需要来获得强的磁电耦合. 磁声器件具有广阔的前景, 特别是近年来随着柔性可穿戴电子器件需求的激增, 柔性磁声器件逐渐成为研发重点. 同时磁声耦合材料有望与现代微电子工艺结合, 发展小型化、阵列化的集成器件. 总之磁声耦合领域有望取得进一步的重大突破, 我们希望本综述能进一步推动磁性材料与声波、自旋与晶格耦合的物理现象, 以及潜在的器件应用.

参考文献

- [1] Weiler M, Dreher L, Heeg C, Huebl H, Gross R, Brandt M S, Goennenwein S T B 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 117601
- [2] Puebla J, Hwang Y, Maekawa S, Otani Y 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 220502
- [3] Yang W G, Schmidt H 2021 *Appl. Phys. Rev.* **8** 021304
- [4] Palneedi H, Annareddy V, Priya S, Ryu J 2016 *Actuators* **5** 9
- [5] Huang M X, Hu W B, Zhang H W, Bai F M 2023 *J. Appl. Phys.* **133** 223902
- [6] Küß M, Heigl M, Flacke L, Hefele A, Hörner A, Weiler M, Albrecht M, Wixforth A 2021 *Phys. Rev. Appl.* **15** 034046
- [7] Babu N K P, Trzaskowska A, Graczyk P, Centala G, Mieszczak S, Głowiński H, Zdunek M, Mielcarek S, Kłos J W 2021 *Nano Lett.* **21** 946
- [8] Kurimune Y, Matsuo M, Nozaki Y 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 217205
- [9] Jaris M, Yang W, Berk C, Schmidt H 2020 *Phys. Rev. B* **101** 214421
- [10] Labanowski D, Bhallamudi V P, Guo Q, Purser C M, McCullian B A, Hammel P C, Salahuddin S 2018 *Sci. Adv.* **4** eaat6574
- [11] Zhao C, Zhang Z, Li Y, Zhang W, Pearson J E, Divan R, Liu Q, Novosad V, Wang J, Hoffmann A 2021 *Phys. Rev. Appl.* **15** 014052
- [12] Casals B, Statuto N, Foerster M, Hernández-Mínguez A, Cichlero R, Manshausen P, Mandziak A, Aballe L, Hernández J M, Macià F 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 137202
- [13] Chen C, Han L, Liu P S, Zhang Y C, Liang S X, Zhou Y J, Zhu W X, Fu S L, Pan F, Song C 2023 *Adv. Mater.* **35** 2302454
- [14] Li W, Buford B, Jander A, Dhagat P 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 17E307
- [15] Thevenard L, Camara I S, Prieur J Y, Rovillain P, Lemaître A, Gourdon C, Duquesne J Y 2016 *Phys. Rev. B* **93** 140405(R)
- [16] Camara I S, Duquesne J Y, Lemaître A, Gourdon C, Thevenard L 2019 *Phys. Rev. Appl.* **11** 014045
- [17] Cao Y, Bian X N, Yan Z, Xi L, Lei N, Qiao L, Si M S, Cao J W, Yang D Z, Xue D S 2021 *Appl. Phys. Lett.* **119** 012401
- [18] Al Misba W, Rajib M M, Bhattacharya D, Atulasimha J 2020 *Phys. Rev. Appl.* **14** 014088
- [19] Dean J, Bryan M T, Cooper J D, Virbule A, Cunningham J E, Hayward T J 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 142405
- [20] Edrington W, Singh U, Dominguez M A, Alexander J R, Nepal R, Adenwalla S 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 052402
- [21] Shuai J, Hunt R G, Moore T A, Cunningham J E 2023 *Phys. Rev. Appl.* **20** 014002
- [22] Yokouchi T, Sugimoto S, Rana B, Seki S, Ogawa N, Kasai S, Otani Y 2020 *Nat. Nanotechnol.* **15** 361
- [23] Chen R Y, Chen C, Han L, Liu P S, Su R X, Zhu W X, Zhou Y J, Pan F, Song C 2023 *Nat. Commun.* **14** 4427
- [24] Weiler M, Huebl H, Goerg F S, Czeschka F D, Gross R, Goennenwein S T B 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 176601
- [25] Xu M, Puebla J, Auvray F, Rana B, Kondou K, Otani Y 2018 *Phys. Rev. B* **97** 180301(R)
- [26] Hwang Y, Puebla J, Xu M, Lagarrigue A, Kondou K, Otani Y 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 252404
- [27] Kobayashi D, Yoshikawa T, Matsuo M, Iguchi R, Maekawa S, Saitoh E, Nozaki Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 077202
- [28] Huang M X, Hu W B, Zhang H W, Bai F M 2023 *Phys. Rev. B* **107** 134401
- [29] Sasaki R, Nii Y, Iguchi Y, Onose Y 2017 *Phys. Rev. B* **95** 020407
- [30] Hernández-Mínguez A, Macià F, Hernández J M, Herfort J, Santos P V 2020 *Phys. Rev. Appl.* **13** 044018
- [31] Tateno S, Nozaki Y, Nozaki Y 2020 *Phys. Rev. Appl.* **13** 034074
- [32] Xu M, Yamamoto K, Puebla J, Baumgaertl K, Rana B, Miura K, Takahashi H, Grundler D, Maekawa S, Otani Y 2020 *Sci. Adv.* **6** eabb1724
- [33] Kü M, Heigl M, Flacke L, Hörner A, Weiler M, Albrecht M, Wixforth A 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 217203
- [34] Shah P J, Bas D A, Lisenkov I, Matyushov A, Sun N X, Page M R 2020 *Sci. Adv.* **6** eabc5648
- [35] Küß M, Heigl M, Flacke L, Hörner A, Weiler M, Wixforth A, Albrecht M 2021 *Phys. Rev. Appl.* **15** 034060
- [36] Matsumoto H, Kawada T, Ishibashi M, Kawaguchi M, Hayashi M, 2022 *Appl. Phys. Express* **15** 063003
- [37] Küß M, Hassan M, Kunz Y, Hörner A, Weiler M, Albrecht M 2023 *Phys. Rev. B* **107** 024424
- [38] Küß M, Glamsch S, Kunz Y, Hörner A, Weiler M, Albrecht M 2023 *ACS Appl. Electron. Mater.* **5** 5103
- [39] Schell V, Müller C, Durdaut P, Kittmann A, Thormählen L, Lofink F, Meyners D, Höft M, McCord J, Quandt E 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 073503
- [40] Hu W B, Huang M X, Xie H P, Zhang H W, Bai F M 2023 *Phys. Rev. Appl.* **19** 014010
- [41] Nan T X, Lin H, Gao Y, Matyushov A, Yu G L, Chen H H,

- Sun N, Wei S J, Wang Z G, Li M H, Wang X J, Belkessam A, Guo R D, Chen B, Zhou J, Qian Z Y, Hui Y, Rinaldi M, McConney M E, Howe B M, Hu Z Q, Jones J G, Brown G J, Sun N X 2017 *Nat. Commun.* **8** 296
- [42] Liang X, Chen H, Sun N, Gao Y, Lin H, Sun N X 2020 *IEEE International Symposium on Antennas and Propagation and North American Radio Science Meeting* Montréal, Québec, Canada, July 5–10, 2020 p661
- [43] Lin H, Nan T X, Qian Z, Gao Y, Hui Y, Wang X, Guo R, Belkessam A, Shi W, Rinaldi M, Sun N X 2016 *MTT-S International Microwave Symposium (IMS)* San Francisco, CA, May 22–27, 2016 p1
- [44] Hadj-Larbi F, Serhane R 2019 *Sensors Actuators A Phys.* **292** 169
- [45] Maekawa S, Tachiki M 1976 *AIP Conf. Proc.* **29** 542
- [46] Matsuo M, Ieda J, Harii K, Saitoh E, Maekawa S 2013 *Phys. Rev. B* **87** 180402
- [47] Sasaki R, Nii Y, Onose Y 2021 *Nat. Commun.* **12** 2559
- [48] Dreher L, Weiler M, Pernpeintner M, Huebl H, Gross R, Brandt M S, Goennenwein S T B 2012 *Phys. Rev. B* **86** 134415
- [49] Puebla J, Hwang Y, Kondou K, Otani Y 2022 *Ann. Phys.* **534** 2100398
- [50] Berk C, Jaris M, Yang W, Dhuey S, Cabrini S, Schmidt H 2019 *Nat. Commun.* **10** 2652
- [51] An K, Litvinenko A N, Kohno R, Fuad A A, Naletov V V, Vila L, Ebels U, de Loubens G, Hurdequint H, Beaulieu N, Ben Youssef J, Vukadinovic N, Bauer G E W, Slavin A N, Tiberkevich V S, Klein O 2020 *Phys. Rev. B* **101** 060407
- [52] Matsuo M, Saitoh E, Maekawa S 2017 *J. Phys. Soc. Japan* **86** 011011
- [53] Kittel C 1958 *Phys. Rev.* **110** 836
- [54] Labanowski D, Jung A, Salahuddin S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102904
- [55] Arias R, Mills D L 1999 *Phys. Rev. B* **60** 7395
- [56] Counil G, Kim J Von, Devolder T, Chappert C, Shigeto K, Otani Y 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 5646
- [57] Bihler C, Schoch W, Limmer W, Goennenwein S T B, Brandt M S 2009 *Phys. Rev. B* **79** 045205
- [58] Jaeger J V, Scherbakov A V, Glavin B A, Salasyuk A S, Champion R P, Rushforth A W, Yakovlev D R, Akimov A V, Bayer M 2015 *Phys. Rev. B* **92** 020404
- [59] Scherbakov A V, Salasyuk A S, Akimov A V, Liu X, Bombeck M, Brueggemann C, Yakovlev D R, Sapega V F, Furdyna J K, Bayer M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 117204
- [60] Janusonis J, Chang C L, Jansma T, Gatilova A, Vlasov V S, Lomonosov A M, Temnov V V, Tobey R I 2016 *Phys. Rev. B* **94** 024415
- [61] Yang W-G, Schmidt H 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 212401
- [62] Mondal S, Abeed M A, Dutta K, De A, Sahoo S, Barman A, Bandyopadhyay S 2018 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **10** 43970
- [63] Armstrong M R, Reed E J, Kim K-Y, Glowonia J H, Howard W M, Piner E L, Roberts J C 2009 *Nat. Phys.* **5** 285
- [64] Demokritov S O, Hillebrands B, Slavin A N 2001 *Phys. Rep.* **348** 441
- [65] Foerster M, Macià F, Statuto N, Finizio S, Hernández-Mínguez A, Lendínez S, Santos P V, Fontcuberta J, Hernández J M, Kläui M, Aballe L 2017 *Nat. Commun.* **8** 407
- [66] Davis S, Baruth A, Adenwalla S 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 232507
- [67] Li P Q, Zhou W, Peng B, Zhang C, Zhu X F, Meng L, Zheng H 2023 *Phys. Rev. Appl.* **20** 064003
- [68] Li W, Buford B, Jander A, Dhagat P 2014 *Phys. B Condens. Matter* **448** 151
- [69] Thevenard L, Camara I S, Majrab S, Bernard M, Rovillain P, Lemaître A, Gourdon C, Duquesne J-Y 2016 *Phys. Rev. B* **93** 134430
- [70] Nowak J J, Robertazzi R P, Sun J Z, Hu G, Park J-H, Lee J, Annunziata A J, Lauer G P, Kothandaraman R, O’ Sullivan E J, Trouilloud P L, Kim Y, Worledge D C 2016 *IEEE Magn. Lett.* **7** 1
- [71] Biswas A K, Bandyopadhyay S, Atulasimha J 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 232401
- [72] Roe A, Bhattacharya D, Atulasimha J 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 112405
- [73] Yang H F, Garcia-Sanchez F, Hu X K, Sievers S, Bohnert T, Costa J D, Tarequzzaman M, Ferreira R, Bieler M, Schumacher H W 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 072403
- [74] Zhang D L, Zhu J, Qu T, Lattery D M, Victora R H, Wang X, Wang J P 2020 *Sci. Adv.* **6** eabb4607
- [75] Ramaswamy R, Lee J M, Cai K, Yang H 2018 *Appl. Phys. Rev.* **5** 031107
- [76] Allwood D A, Xiong G, Faulkner C C, Atkinson D, Petit D, Cowburn R P 2005 *Science* **309** 1688
- [77] Parkin S S P, Hayashi M, Thomas L 2008 *Science* **320** 190
- [78] Hayashi M, Thomas L, Rettner C, Moriya R, Bazaliy Y B, Parkin S S P 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 037204
- [79] Meier G, Bolte M, Eiselt R, Krueger B, Kim D-H, Fischer P 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 187202
- [80] Mihai Miron I, Moore T, Szabolcs H, Buda-Prejbeanu L D, Auffret S, Rodmacq B, Pizzini S, Vogel J, Bonfim M, Schuhl A, Gaudin G 2011 *Nat. Mater.* **10** 419
- [81] Bryan M T, Dean J, Allwood D A 2012 *Phys. Rev. B* **85** 144411
- [82] Wei Y, Li X, Gao R, Wu H, Wang X, Zeng Z, Wang J, Liu Q 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **502** 166546
- [83] Castilla D, Yanes R, Sinusía M, Fuentes G, Grandal J, Maicas M, Álvarez-Arenas T E G, Muñoz M, Torres L, López L, Prieto J L 2020 *Sci. Rep.* **10** 9413
- [84] Chen C, Fu S, Han L, Su R, Liu P, Chen R, Zhu W, Liao L, Pan F, Song C 2022 *Adv. Electron. Mater.* **8** 2200593
- [85] Fert A, Reyren N, Cros V, 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17031
- [86] Tomasello R, Martinez E, Zivieri R, Torres L, Carpentieri M, Finocchio G 2014 *Sci. Rep.* **4** 6784
- [87] Kang W, Huang Y Q, Zheng C T, Lv W F, Lei N, Zhang Y G, Zhang X C, Zhou Y, Zhao W S 2016 *Sci. Rep.* **6** 23164
- [88] Zhang X C, Ezawa M, Zhou Y 2015 *Sci. Rep.* **5** 9400
- [89] Kruchkov A J, White J S, Bartkowiak M, Zivkovic I, Magrez A, Ronnow H M 2018 *Sci. Rep.* **8** 10466
- [90] Wang Y D, Wang L, Xia J, Lai Z X, Tian G, Zhang X C, Hou Z P, Gao X S, Mi W B, Feng C, Zeng M, Zhou G F, Yu G H, Wu G H, Zhou Y, Wang W H, Zhang X X, Liu J M 2020 *Nat. Commun.* **11** 3577
- [91] Wang Z D, Guo M H, Zhou H A, Zhao L, Xu T, Tomasello R, Bai H, Dong Y Q, Je S G, Chao W L, Han H-S, Lee S, Lee K S, Yao Y Y, Han W, Song C, Wu H Q, Carpentieri M, Finocchio G, Im M Y, Lin S Z, Jiang W J 2020 *Nat. Electron.* **3** 672
- [92] Yang W G, Jaris M, Berk C, Schmidt H 2019 *Phys. Rev. B* **99** 104434
- [93] Matsuda O, Tsutsui K, Vaudel G, Pezeril T, Fujita K, Gusev V 2020 *Phys. Rev. B* **101** 224307
- [94] Chen C, Wei D, Sun L, Lei N 2023 *J. Appl. Phys.* **133** 203904

- [95] Ando K, Takahashi S, Ieda J, Kajiwara Y, Nakayama H, Yoshino T, Harii K, Fujikawa Y, Matsuo M, Maekawa S, Saitoh E 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 103913
- [96] Kamra A, Keshtgar H, Yan P, Bauer G E W 2015 *Phys. Rev. B* **91** 104409
- [97] Puebla J, Xu M, Rana B, Yamamoto K, Maekawa S, Otani Y 2020 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 264002
- [98] Uchida K, Adachi H, An T, Nakayama H, Toda M, Hillebrands B, Maekawa S, Saitoh E 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 053903
- [99] Hwang Y, Puebla J, Kondou K, Gonzalez-Ballester C, Isshiki H, Muñoz C S, Liao L, Chen F, Luo W, Maekawa S, Otani Y 2023 *Phys. Rev. Lett.* **132** 056704
- [100] Kawada T, Kawaguchi M, Funato T, Kohno H, Hayashi M 2021 *Sci. Adv.* **7** eabd9697
- [101] Verba R, Lisenkov I, Krivorotov I, Tiberkevich V, Slavin A 2018 *Phys. Rev. Appl.* **9** 064014
- [102] Verba R, Tiberkevich V, Slavin A 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 054061
- [103] Küß M, Hassan M, Kunz Y, Hörner A, Weiler M, Albrecht M 2023 *Phys. Rev. B* **107** 214412
- [104] Nembach H T, Shaw J M, Weiler M, Jue E, Silva T J 2015 *Nat. Phys.* **11** 825
- [105] Ishii Y, Sasaki R, Nii Y, Ito T, Onose Y 2018 *Phys. Rev. Appl.* **9** 034034
- [106] Wang Y, Li J, Viehland D 2014 *Mater. Today* **17** 269
- [107] Smole P, Ruile W, Korden C, Ludwig A, Quandt E, Krassnitzer S, Pongratz P 2003 *Proc. Annu. IEEE Int. Freq. Control Symp.* Tampa, FL, May 5–8, 2003 p903
- [108] Kittmann A, Durdaut P, Zabel S, Reermann J, Schmalz J, Spetzler B, Meyners D, Sun N X, McCord J, Gerken M, Schmidt G, Höft M, Knöchel R, Faupel F, Quandt E 2018 *Sci. Rep.* **8** 278
- [109] Wang S, Li R, Han Y, Yao M 2021 *Cross Strait Radio Science and Wireless Technology Conference (CSRSWTC)* Shenzhen, China, October 11–13, 2021 p115
- [110] Pfeiffer C 2017 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **65** 1642
- [111] Zhang Y P, Guo L H, Sun M 2006 *IEEE Electron Device Lett.* **27** 374
- [112] Le G, Wagner S, Pham C, Gomez-Diaz J S, Pham A V 2018 *IEEE International Symposium on Antennas and Propagation & USNC/URSI National Radio Science Meeting* Boston, MA, USA, 2018 pp307–308
- [113] Hui X, Shang F 2020 *China Microwave Week International Conference on Microwave and Millimeter Wave Technology* Shanghai, China, September 20–23, 2020 p5
- [114] Dong Y, Itoh T 2012 *Proc. IEEE* **100** 2271
- [115] Ziolkowski R W, Jin P, Lin C C 2011 *Proc. IEEE* **99** 1720
- [116] Luo Y, Kikuta K, Han Z, Takahashi T, Hirose A, Toshiyoshi H 2016 *IEEE Electron Device Lett.* **37** 920
- [117] Iyer V, Makarov S N, Harty D D, Nekoogar F, Ludwig R 2010 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **58** 18
- [118] Lee M, Kramer B A, Chen C C, Volakis J L 2007 *IEEE Trans. Antennas Propag.* **55** 2671
- [119] Chu L J 1948 *J. Appl. Phys.* **19** 1163
- [120] Chen H H, Liang X F, Dong C Z, He Y F, Sun N, Zaicimbashi M, He Y X, Gao Y, Parimi P V, Lin H, Sun N X 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 170501
- [121] Ji Y H, Zhang C Y, Nan T X 2022 *Phys. Rev. Appl.* **18** 064050
- [122] Xiao N, Wang Y, Chen L, Wang G, Wen Y, Li P 2022 *IEEE Antennas Wirel. Propag. Lett.* **22** 34
- [123] Niu Y, Ren H 2022 *IEEE Sens. J.* **22** 14008
- [124] Dong C, He Y, Jeong M G, Watson W, Sanghadasa M, Sun N X 2022 *IEEE International Symposium on Phased Array Systems & Technology* Waltham, Massachusetts, USA, October 11–14, 2022 p1
- [125] Yun X F, Lin W K, Hu R, Liu Y Z, Wang X Y, Yu G H, Zeng Z M, Zhang X P, Zhang B S 2022 *Appl. Phys. Lett.* **121** 033501
- [126] Wang Q, Domann J, Yu G, Barra A, Wang K L, Carman G P 2018 *Phys. Rev. Appl.* **10** 034052
- [127] Lyons T P, Puebla J, Yamamoto K, Deacon R S, Hwang Y, Ishibashi K, Maekawa S, Otani Y 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 196701
- [128] Oh J, Le M D, Nahm H-H, Sim H, Jeong J, Perring T G, Woo H, Nakajima K, Ohira-Kawamura S, Yamani Z, Yoshida Y, Eisaki H, Cheong S-W, Chernyshev A L, Park J-G 2016 *Nat. Commun.* **7** 13146
- [129] Valiska M, Saito H, Yanagisawa T, Tabata C, Amitsuka H, Uhlirva K, Prokleska J, Proschek P, Valenta J, Misek M, Gorbunov I D, Wosnitza J, Sechovsky V 2018 *Phys. Rev. B* **98** 174439
- [130] Li J, Wilson C B, Cheng R, Lohmann M, Kavand M, Yuan W, Aldosary M, Agladze N, Wei P, Sherwin M S, Shi J 2020 *Nature* **578** 70
- [131] Vaidya P, Morley S A, van Tol J, Liu Y, Cheng R, Brataas A, Lederman D, del Barco E 2020 *Science* **368** 160
- [132] Haroche S, Kleppner D 1989 *Phys. Today* **42** 24
- [133] Bozhko D A, Clausen P, Melkov G A, L'vov V S, Pomyalov A, Vasyuchka V I, Chumak A V, Hillebrands B, Serga A A 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 237201
- [134] Liao L, Puebla J, Yamamoto K, Kim J, Maekawa S, Hwang Y, Ba Y, Otani Y 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 176701
- [135] Yokoi M, Fujiwara S, Kawamura T, Arakawa T, Aoyama K, Fukuyama H, Kobayashi K, Niimi Y 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba1377
- [136] Wang J, Ota S, Edlbauer H, Jadot B, Mortemousque P A, Richard A, Okazaki Y, Nakamura S, Ludwig A, Wieck A D, Urdampilleta M, Meunier T, Kodera T, Kaneko N H, Takada S, Bäuerle C 2022 *Phys. Rev. X* **12** 031035

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics

Magneto-acoustic coupling: Physics, materials, and devices*Chen Chong Ma Ming-Yuan Pan Feng Song Cheng[†]

(Key Laboratory of Advanced Materials (MOE), School of Materials Science and Engineering,
Tsinghua University, Beijing 100084, China)

(Received 4 December 2023; revised manuscript received 1 January 2024)

Abstract

Acoustic wave in solid has two modes of propagation: the bulk acoustic wave (BAW), which propagates inside solid in the form of longitudinal or transverse wave, and the surface acoustic wave (SAW), which is generated on the surface of solid and propagates along the surface. In acoustic radio frequency (RF) technologies acoustic waves are used to intercept and process RF signals, which are typified by the rapidly developing RF filter technology. Acoustic filter has the advantages of small size, low cost, steady performance and simple fabrication, and is widely used in mobile communication and other fields. Due to the mature fabrication process and well-defined resonance frequency of acoustic device, acoustic wave has become an extremely intriguing way to manipulate magnetism and spin current, with the goal of pursuing miniaturized, ultra-fast, and energy-efficient spintronic device applications. The integration of magnetic materials into acoustic RF device also provides a new way of thinking about the methods of acoustic device modulation and performance enhancement. This review first summarizes various physical mechanisms of magneto-acoustic coupling, and then based on these mechanisms, a variety of magnetic and spin phenomena such as acoustically controlled magnetization dynamics, magnetization switching, magnetic domain wall and magnetic skyrmions generation and motion, and spin current generation are systematically introduced. In addition, the research progress of magnetic control of acoustic wave, the inverse process of acoustic control of magnetism, is discussed, including the magnetic modulation of acoustic wave parameters and nonreciprocal propagation of acoustic waves, as well as new magneto-acoustic devices developed based on this, such as SAW-based magnetic field sensors, magneto-electric antennas, and tunable filters. Finally, the possible research objectives and applications of magneto-acoustic coupling in the future are prospected. In summary, the field of magneto-acoustic coupling is still in a stage of rapid development, and a series of groundbreaking breakthroughs has been made in the last decades, and the major advances are summarized in this field. The field of magneto-acoustic coupling is expected to make further significant breakthroughs, and we hope that this review will further promote the researches of physical phenomena of the coupling between magnetism and acoustic wave, spin and lattice, and potential device applications as well.

Keywords: magneto-elastic coupling, acoustic control of magnetism, magnetic control of acoustic wave, magneto-acoustic device

PACS: 85.70.Ec, 85.75.-d, 75.80.+q, 75.85.+t

DOI: [10.7498/aps.73.20231908](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231908)

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2022YFA1402603), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52225106, 12241404), and the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant No. JQ20010).

[†] Corresponding author. E-mail: songcheng@mail.tsinghua.edu.cn

专题: 二维及拓扑自旋物理 • 封面文章

有机阳离子插层调控二维反铁磁 MPX_3 磁性能*弭孟娟 于立轩 肖寒 吕兵兵[†] 王以林[‡]

(山东大学集成电路学院, 济南 250100)

(2023 年 12 月 24 日收到; 2024 年 2 月 6 日收到修改稿)

电控磁效应调控二维 (2D) 反铁磁 (AFM) 材料的研究结合了电控磁效应与半导体工艺兼容且低能耗的优势, 2D 材料范德瓦耳斯界面便于异质集成以及 AFM 材料无杂散场、抗外磁场干扰、内禀频率高的优势, 成为领域内研究的重点. 载流子浓度调控是电控磁效应的主要机制, 已被证明是调控材料磁性能的有效途径. 层内 AFM 材料的净磁矩为零, 磁性调控测量存在挑战, 故其电控磁效应研究尚少且潜在的机制尚不清楚. 基于有机阳离子的多样性, 本文利用有机阳离子插层系统地调控了 2D 层内 AFM 材料 MPX_3 ($M = \text{Mn, Fe, Ni}$; $X = \text{S, Se}$) 的载流子浓度, 并研究了电子掺杂对其磁性能的影响. 笔者在 MPX_3 家族材料中发现了依赖载流子浓度变化的 AFM-亚铁磁 (FIM)/铁磁 (FM) 的转变, 并结合理论计算揭示了其调控机制. 本研究为 2D 磁性材料的载流子调控磁相变提供了新的见解, 并为研究 2D 磁体的电子结构与磁性之间的强相关性以及设计新型自旋电子器件开辟了一条途径.

关键词: 二维磁性材料, 电控磁, 有机阳离子插层, 磁相变**PACS:** 75.70.Ak, 75.25.-j, 75.30.-m, 75.50.Ee**DOI:** 10.7498/aps.73.20232010

1 引言

传统的基于电子电荷属性的集成电路已逼近摩尔定律的物理极限, 且受冯·诺依曼架构下“功耗墙”和“存储墙”等限制, 无法满足大数据、人工智能和物联网等快速发展对数据存储、处理和传输的更高要求. 基于电子自旋属性的自旋电子器件具有非易失、响应快、低功耗等优势, 成为后摩尔时代集成电路领域的关键技术之一. 近年来新发现的二维 (2D) 磁性材料具有原子尺度多场物性调控、高密度异质集成的优势, 为“存算一体”等新型信息器件的研发提供了重要机遇. 根据 Mermin-Wagner 理论^[1], 在有限温度下的各向同性 2D 系统中, 热扰动使得长程磁序无法稳定存在, 但是磁各向异性

可以通过打开激发间隙稳定长程磁序. 从 2017 年首次在双层 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ^[2] 和单层 CrI_3 ^[3] 中实验证实长程铁磁序以来, 2D 磁性材料领域发展迅速. 各种类型的 2D 磁性材料已经被发现和合成, 包括铁磁 (FM) 材料, 比如 CrBr_3 ^[4], CrTe_2 ^[5,6], FeTe (四方相)^[7], CrSe ^[8], $1T\text{-VSe}_2$ ^[9,10], $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ^[2], Fe_3GeTe_2 ^[11,12], Fe_5GeTe_2 ^[13], Fe_3GaTe_2 ^[14] 等, 以及反铁磁 (AFM) 材料, 例如 CrCl_3 ^[15], MPX_3 ^[16-18] ($M = \text{Mn, Fe, Ni}$; $X = \text{S, Se}$), MnBi_2Te_4 ^[19], CrSBr ^[20] 等. 这些材料为新的量子现象的发现和研发以及新型自旋电子器件的设计提供了一个理想的平台, 因此受到了广泛的关注.

由于 2D 磁性材料具有超薄的厚度和层间较弱的范德瓦耳斯 (vdW) 相互作用, 它们的磁性质如居里温度 T_c (或奈尔温度 T_N)、磁各向异性、饱

* 国家自然科学基金 (批准号: 92065206, 12304042)、国家重点研发计划 (批准号: 2022YFA1602704)、山东省自然科学基金 (批准号: ZR2023ZD10) 和国家资助博士后研究人员计划 (批准号: GZC20231434) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: bingbinglyu@sdu.edu.cn

[‡] 通信作者. E-mail: yilinwang@email.sdu.edu.cn

和磁化强度、矫顽力等可以通过多种方法进行有效调控,包括磁场^[3,20,21]、压力^[22-25]、拉伸应变^[26-31]、层间交换耦合作用^[32,33]、电学手段包括电场^[34-36]、静电掺杂^[11,37-40]和离子插层^[41-44]等.对于 A-type 的 AFM,如少层 CrI_3 ^[3], CrPS_4 ^[45], MnBi_2Te_4 ^[21], MnBi_4Te_7 ^[46]以及 CrSBr ^[20]等,外加磁场可以将反平行排列的磁矩拉向磁场方向,实现 AFM-FM 的相变.通过压力调控,可以实现 CrI_3 ^[22-24] AFM-FM 的转变,主要是利用压力引起了 CrI_3 中的层间堆叠由单斜到菱方结构的再重排,但这是不可逆的.应变可以改变晶体的晶格常数、对称性等,从而实现对 2D 磁性材料(如 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ^[27], Fe_3GeTe_2 ^[26], CrSBr ^[28])的 T_c ^[26,27]、矫顽力^[26],以及可逆的 AFM-FM 相变^[28]的调控.尽管在 2D 磁性材料调控方面展现出引人注目的前景,但是在能够施加原位可调控较大应变 (>1%) 的低温应变装置研发方面仍然存在挑战^[28].通过层间交换耦合可以调控磁性材料的磁性能,如利用 Co 与 Fe_3GeTe_2 之间的 FM 层间交换耦合提升了 Fe_3GeTe_2 的 T_c 至室温以上以及垂直磁各向异性^[32].纯电学手段操控磁性材料的磁性是自旋电子器件走向应用的重要途径.常用的电控磁方法主要是通过对载流子浓度的控制实现对 2D 磁性材料中磁性的有效调控,这是因为载流子浓度的变化将导致磁性离子轨道占据状态的变化,从而引起材料磁性能的变化^[47].载流子浓度调控已应用于 CrI_3 ^[37,38], $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ^[39-41], Fe_3GeTe_2 ^[11,35]以及 Fe_5GeTe_2 ^[44]材料,被证实是调控 2D 磁性材料磁性能的有效手段.例如,利用场效应静电掺杂,单层 CrI_3 的饱和磁化强度、矫顽力和 T_c 随着空穴/电子的浓度变化呈现出线性的增强/减弱^[37,38];双层 CrI_3 中, $2.5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 的电子掺杂可实现双层 CrI_3 零磁场下的基态从 AFM 转变到 FM^[37].静电掺杂可以实现对少层 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 中电荷和自旋的双重双极全电操控^[39].当利用离子液体 (DEME-TFSI) 或有机阳离子插层使 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 的载流子浓度达到大于 10^{14} cm^{-2} 时, T_c 由 61 K 升至高于 200 K,且易磁化轴由面外转向面内^[40,41].对于金属性的 Fe_3GeTe_2 ,静电掺杂因自由电子的屏蔽而有效作用深度较小,无法有效调控其载流子浓度,通过 Li^+ ($\text{LiClO}_4\text{-PEO}$) 对少层的 Fe_3GeTe_2 插层,载流子浓度可达 10^{14} cm^{-2} 以上, T_c 由 100 K 升至室温以上^[11]. Li^+ 离子插层可将薄层 Fe_3GeTe_2 的易磁化轴由面外方向逐步调

控至面内方向^[44].利用电场可以实现 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 磁隧道结开关场的双极调控^[35].自旋轨道矩 (SOT) 可以高效驱动二维磁性材料(如 Fe_3GeTe_2 ^[48-51], $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ^[52-54], Fe_3GaTe_2 ^[55]等)的磁矩翻转.在 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Pt}$ 异质结中,在面内磁场的辅助下,约 10^7 A/cm^2 的电流密度可以驱动少层 Fe_3GeTe_2 的磁矩翻转^[50];随着界面质量进一步提高, SOT 效率可达 0.18^[48].在 $\text{Fe}_3\text{GaTe}_2/\text{Pt}$ 异质结中,成功实现了室温下的磁矩翻转,其 SOT 效率更高,达到 0.28^[55],这高于 Pt/Co 和 Pt/CoFeB 等 Pt 基重金属/传统金属器件^[56,57].在 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6/\text{Ta}$ 异质结中^[52,53],仅需约 10^5 A/cm^2 的电流密度即可实现 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 的磁矩翻转,而电流密度的降低源于 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ 的半导体性质.此外,全 2D 的 $\text{WTe}_2/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ (Fe_3GaTe_2) 实现了无外场辅助的磁矩翻转^[58-60],为 SOT 磁随机存储器的发展提供了新的途径.利用载流子掺杂、SOT 效应调控磁性是实现有效磁电耦合的可行手段,在设计电场控制的自旋电子器件方面具有广阔的应用前景.然而,在这些引人注目的研究中,载流子掺杂诱导实现 2D 磁性材料的磁序转变的实验报道仍然很少^[37].

二维磁性材料可调可控的性质为构筑低能耗、室温工作的自旋电子器件提供了新的契机.磁隧道结 (MTJ) 作为自旋电子器件的核心组件之一,2D 磁性材料在 MTJ 中表现出显著的优势. A-type 的 AFM 材料,例如 CrI_3 ^[61,62], CrCl_3 ^[15] 和 CrSBr ^[63],被认为是理想的自旋过滤器.在 $\text{graphene}/\text{CrI}_3/\text{graphene}$ MTJ 中^[61],隧穿磁电阻 (TMR) 随着 CrI_3 层厚度的增大而急剧增强,面内 TMR 由 2 层 CrI_3 的 530% 增至 4 层 CrI_3 的 19000%,通过进一步的栅压调控, TMR 的调控范围在 17000%—57000% 之间^[62].然而, CrI_3 由于其较低的工作温度和不稳定性而受到应用的限制.基于 CrSBr 的 MTJ 中^[63],在 $T = 5 \text{ K}$ 时,观察到了高达 47000% 的 TMR,在 130 K 时 TMR 仍高达 50%.

铁磁材料,如 Fe_3GeTe_2 , Fe_3GaTe_2 , 具有近 (高于) 室温的 T_c 以及金属特性,是制备自旋阀的理想候选材料.在 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{hBN}/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 异质结中^[64],在 4.2 K 时 TMR 可达 160%,通过进一步优化 hBN 的厚度, TMR 可达 300%^[65].在 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{InSe}/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 异质结中^[66],10 K 下的 TMR 为 41%.在 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{GaSe}/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 异质结中^[67],

10 K 下的 TMR 为 192%. 在 $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{MoS}_2/\text{Fe}_3\text{GeTe}_2$ 异质结中^[68], 10 K 下的 MR 为 3.1%, 主要归因于自旋相关的散射而不是隧穿概率. Fe_3GaTe_2 具有高于室温的 T_c , 已经报道了基于多种类型中间层 (如 BN ^[60], MoS_2 ^[69], WS_2 ^[70], WSe_2 ^[71] 等) 的自旋阀器件. 其中 $\text{Fe}_3\text{GaTe}_2/\text{WSe}_2/\text{Fe}_3\text{GaTe}_2$ 自旋阀在室温下表现出高达 85% 的 TMR^[71], 这向室温下自旋电子器件的实际应用迈出了一大步.

目前的磁性调控以及潜在应用等研究主要集中在 A-type AFM 和 FM 材料, 而在众多磁性材料中, MPX_3 化合物因其丰富多样的电子和磁性质而备受关注. 单层的 MPX_3 具有相同的晶体结构, 但由于过渡金属原子不同, 其磁结构有明显不同^[72-75]. NiPS_3 为 zigzag 型 AFM 序, 易磁化轴在面内; FePS_3 和 FePSe_3 均为 zigzag 型 AFM 序, 易磁化轴在面外; MnPS_3 为 Néel 型 AFM 序, 易磁化轴在面外; MnPSe_3 为 Néel 型 AFM 序, 易磁化轴在面内. FePS_3 , MnPS_3 和 NiPS_3 分别采用 Ising 模型、Heisenberg 模型和 XY/XXZ 模型进行描述. 因此 MPX_3 化合物为研究各种磁性行为提供了理想的平台, 但由

于 MPX_3 为面内反铁磁, 净磁矩为零, 其磁性能的探测一般基于块体材料. 因此, 电控磁效应调控 MPX_3 磁性的研究依然充满挑战. 本工作采用有机阳离子插层技术, 通过将不同类型的有机阳离子插入至 MPX_3 的 vdW 层间, 实现了依赖载流子浓度的 AFM-亚铁磁 (FIM)/FM 的磁序转变, 为利用电学方法来调控 vdW 材料的磁性提供了一种可行的途径.

2 有机阳离子插层概述

电化学有机阳离子插层法是将待插层的 2D 材料用作阴极, Pt/Ag 作为阳极, 含有机铵离子的溶液作为电解液, 并施加一定的电压作为驱动力. 以有机阳离子四庚基铵根离子 (THA^+) 插层 NiPS_3 为例, 介绍有机阳离子插层的过程和原理 (如图 1(a) 所示). 在实验中, 将新鲜的 NiPS_3 单晶固定在电极夹上作为阴极, Pt 电极作为阳极, 使用溶有 0.1 g 的四庚基溴化铵 (THAB) 的 20 mL 有机溶剂乙腈作为电解液. 当电压从 0 V 缓慢升至

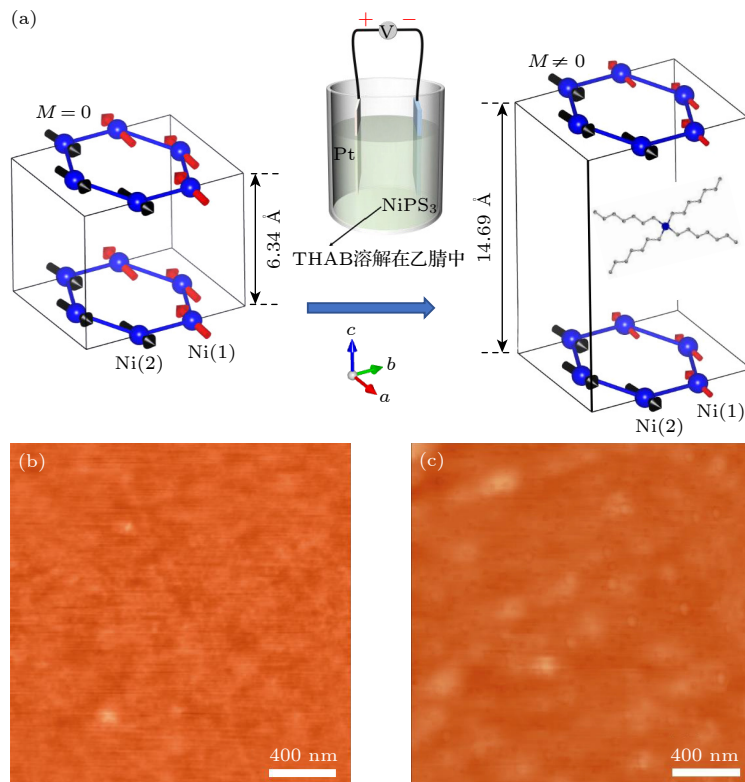
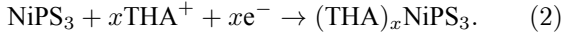
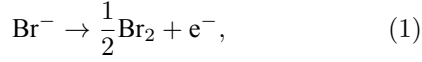


图 1 (a) 电化学有机阳离子插层示意图以及 THA^+ 插层 NiPS_3 前后的结构示意图^[42]; 剥离后得到的薄层 NiPS_3 (b) 和 THA^+ 插层 NiPS_3 (c) 的原子力显微镜图像^[42]

Fig. 1. Schematic diagram of electrochemical organic cation intercalation and the structure of NiPS_3 and THA-NiPS_3 ^[42]; atomic force microscope images of exfoliated NiPS_3 (b) and exfoliated intercalated THA-NiPS_3 (c)^[42].

约 4 V 时, 两个溴离子在阳极失去电子形成 Br_2 , 与此同时, THA^+ 阳离子插入到阴极 NiPS_3 的 vdW 层间, 使层间距增大. 值得注意的是, 每个 THA^+ 阳离子的插入都需要 NiPS_3 从外电路中获得一个电子以平衡电荷. 发生的电化学反应如下:



有机阳离子插层为 2D 材料的调控提供了一种通用方法, 涵盖了多种材料, 如黑磷^[76], 过渡金属硫化物 MoS_2 ^[76], WSe_2 ^[76], In_2Se_3 ^[76], TaS_2 ^[77], VSe_2 ^[78] 等, 超导材料 FeSe ^[79], SnSe_2 ^[80] 等, 以及磁性材料 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ ^[41], NiPS_3 ^[42,43] 等, 具有一定的普适性. 有机阳离子对 2D 材料的调控机制主要体现在以下两个方面. 1) 化学惰性的有机阳离子插入至 2D 材料的 vdW 层间, 会增大层间距, 减弱层间耦合作用, 且不破坏面内的晶格结构. 例如, 有机阳离子插层后的黑磷表现出单层的性质^[76], THA^+ 插层后的 NiPS_3 的拉曼光谱也表现出与单层 NiPS_3 相似的特征峰^[42]. 原子力显微镜可直接观察剥离材料表面形貌, THA^+ 插层后的 NiPS_3 表面仍然是光滑平整的, 没有观察到明显的缺陷和杂质 (图 1(b), (c)). 根据离子本身的大小以及在层间的排列方式不同, 离子插层后引起的层间距变化也不同. 例如, 十六烷基铵根离子 (CTA^+) 插层黑磷时层间距由原来的 5.23 Å 增至 11.27 Å^[76], 插层 MoS_2 时层间距由 6.14 Å 增至 15.02 Å^[76], 而插层 TaS_2 时层间距由 6.0 Å 增至 32.4 Å^[77], 因此 CTA^+ 阳离子在不同 2D 材料层间可能存在不同的排列取向. 2) 有机阳离子与宿主 2D 材料之间存在电荷转移. 在插层过程中, 2D 材料在外电路中获得电子, 从而改变载流子浓度. 不同种类的有机阳离子插入 2D 材料中的数量不同, 从而引起载流子浓度变化的不同, 如 CTA^+ 和 THA^+ 插层的 MoS_2 中, 每个 MoS_2 单元分别获得 0.28 和 0.02 个电子^[81].

有机阳离子插层作为一种载流子浓度调控的方法, 与传统的静电掺杂和离子液体相比, 不再受调控有效深度的限制, 既适用于薄层也可以作用于块体, 为块体材料的电控磁提供了有效手段. 与无机阳离子 (Li^+ , K^+) 相比, 化学惰性的有机阳离子还可以有效提升材料在空气中的稳定性. 此外, 有机阳离子插层还具有可控、可逆、原位实时监测等

优点, 为探索、调控和实现 2D 材料的新奇物性提供了有力手段.

3 有机阳离子插层 MPX_3 家族磁性能

MPX_3 化合物的磁性由于过渡金属 M 的不同而呈现显著的多样性, 拥有丰富的磁构型, 涵盖了描述磁耦合的 3 种模型, 在磁性调控和机理研究中具有重要意义. 理论研究表明, 通过调控载流子浓度可以实现 MPX_3 磁基态 AFM-FM 的磁序转变^[82,83], 但是相关的实验研究尚未充分展开. 本文利用有机阳离子插层的方法对 MPX_3 家族进行调控, 能够深入、系统地研究 MPX_3 的磁性能与微观结构之间的变化规律, 揭示其内禀磁性的调控机制, 加深对 2D 磁性材料中交换相互作用和磁各向异性的微观机制的理解.

3.1 有机阳离子插层 NiPS_3 的磁性调控

利用有机阳离子插层的方法, 成功将有机阳离子 THA^+ 插入至 NiPS_3 层间, 如图 1(a) 所示. Ni 原子排列在六角晶格上, 易磁化轴位于 ab 平面内, 并沿 a 轴方向排列, 同层的 Ni^{2+} 上的磁矩同最邻近的两个 Ni^{2+} 铁磁耦合形成 zigzag 型 FM 链, 沿 b 轴 AFM 耦合. 相邻层之间 FM 耦合并以弱的 vdW 作用结合. 插层后, THA-NiPS_3 的层间距由原本的 6.34 Å 增至 14.69 Å. 为研究插层引起的磁性变化, 进行了磁化强度 (M) 随温度 (T) 以及随磁场 (H) 的测试. 图 2(a) 显示了 NiPS_3 的 $M-T$ 曲线, NiPS_3 表现为典型的 AFM 特征, dM/dT 的一阶导数表明 $T_N = 150$ K, 与文献^[74, 84] 报道一致.

插层后, THA-NiPS_3 的 M 在 $T \sim 100$ K 时随温度降低出现明显的增强, 表现出 FIM 的特征 (图 2(b)), 易磁化轴仍位于 ab 平面内, 在低温下的 $M-H$ 曲线中观察到了明显的磁滞回线 (图 2(c)), 并且剩余磁化强度和矫顽场随着温度升高而单调减小, 最终在 $T_c = 100$ K 处变为零 (图 2(d)), 说明其磁基态发生了 AFM-FIM 的转变且 $T_c = 100$ K. 利用有机阳离子的多样性, 成功将 CTA^+ 插入至 NiPS_3 层间, 通过磁性测量发现 CTA-NiPS_3 的磁基态重新转变为 AFM (图 2(e)). 结合第一性原理/密度泛函理论 (DFT) 计算揭示了依赖载流子浓度的 AFM-FIM-AFM 转变 (图 2(f)), 这种磁序转变是由 Stoner 交换主导的 FM 序与超交换主导的

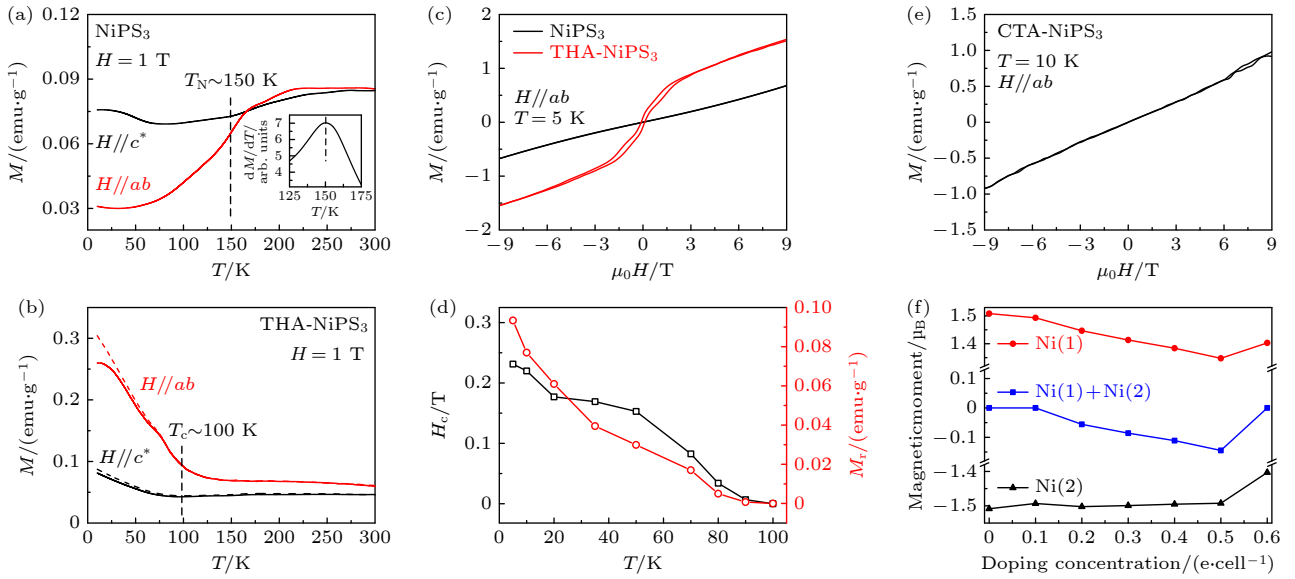


图 2 有机阳离子插层 NiPS_3 的实验结果^[42] NiPS_3 (a) 和 THA-NiPS_3 (b) 在 $H // ab$ 和 $H // c^*$ 磁场作用下的 M - T 曲线, 实线和虚线分别为零场降温、场降温数据, (a) 内插图为 M 与 T 的一阶微分 (dM/dT vs. T), c^* 为垂直于 ab 平面的轴; (c) $T = 5$ K 时, NiPS_3 和 THA-NiPS_3 在 $H // ab$ 磁场作用下 M 随 H 的依赖关系; (d) 矫顽场 (黑) 和剩余磁化强度 (红) 随温度的变化关系; (e) $T = 10$ K 时, CTA-NiPS_3 在 $H // ab$ 磁场作用下 M 随 H 的依赖关系; (f) $\text{Ni}(1)$, $\text{Ni}(2)$ 的磁矩以及净磁矩 ($\text{Ni}(1)+\text{Ni}(2)$) 随掺杂浓度的依赖关系

Fig. 2. Experimental results of organic cations intercalated NiPS_3 ^[42]: Temperature dependence of magnetization (M - T) of NiPS_3 (a) and THA-NiPS_3 (b) under magnetic fields $H // ab$ (red) and $H // c^*$ (black), the solid and dashed lines represent zero-field cooled (ZFC) and field cooled (FC) data, respectively, the inset in (a) shows the first-order derivative of magnetization with temperature (dM/dT vs. T), c^* represents axis perpendicular to the ab plane; (c) field dependence of magnetization (M - H) of NiPS_3 and THA-NiPS_3 under magnetic field $H // ab$ at $T = 5$ K; (d) extracted coercive field H_c (black) and remnant magnetization M_r (red) of intercalated THA-NiPS_3 as a function of temperature; (e) field dependence of magnetization (M - H) of CTA-NiPS_3 under magnetic field $H // ab$ at $T = 10$ K; (f) magnetic moments and net magnetic moments of $\text{Ni}(1)$ and $\text{Ni}(2)$ as a function of doping concentrations.

AFM 序之间的竞争造成的. 在适宜的电子掺杂浓度下 (0.2—0.5 e/cell), 自旋劈裂使掺杂的电子只占据一条 zigzag 铁磁链 (例如 $\text{Ni}(1)$), 导致 $\text{Ni}(1)$ 和 $\text{Ni}(2)$ 上的磁矩不相等, 产生了一个净磁矩, 因此 THA^+ 插层的 NiPS_3 表现为 FIM. 当电子掺杂浓度进一步增大到 0.6 e/cell 时, 净磁矩消失, 此时超交换主导的 AFM 序占主导地位, 因此 CTA^+ 插层的 NiPS_3 磁基态又转变为 AFM.

3.2 有机阳离子插层 FePX_3 ($X = \text{S}, \text{Se}$) 的磁性调控

FePX_3 具有不同的结构, FePS_3 采用单斜结构, 空间群为 $C2/m$, 而 FePSe_3 采用菱方结构, 空间群为 $R\bar{3}$ ^[85,86]. 尽管它们的结构不同, 但两者均为 zigzag 型 AFM, 易磁化轴在面外, 同时具备强的垂直磁各向异性.

首先介绍对 FePS_3 进行有机阳离子插层的磁性调控. 图 3(a) 为插层前后的 FePS_3 沿 $H // c^*$ 磁

场方向 M - T 的变化曲线. FePS_3 表现出 AFM 特征, dM/dT 的一阶导数表明在 $T = 118$ K 时发生了顺磁相到 AFM 相的转变, 这与之前的报道^[16,87,88] 相吻合. 插层后的 FePS_3 易磁化轴仍然在面外, 但是表现出与本征 FePS_3 不同的行为, M - T 曲线以及低温下的 M - H 曲线显示了从本征的 AFM 到插层后 FIM 的转变, 居里温度 T_c 约为 110 K (图 3(a), (b)). 磁化强度随着温度的降低逐渐升高, 在 $T = 110$ K 处快速增大. 零场降温和场降温曲线呈现出不同的变化趋势, 场降温曲线随着温度降低趋于饱和, 而零场降温曲线随着温度降低而降低, 主要受磁场和热扰动对磁矩的竞争作用影响. 在 M - H 曲线中, THA-FePS_3 表现出明显的磁滞回线, $H // c^*$ 磁场方向, 由于 FePS_3 的矫顽场很大, $T = 50$ K 以下, 磁滞回线随着温度升高而增大, 在 $T = 50$ K 以上, 磁滞回线随着温度升高而减小, 最终在 $T = 110$ K 变为线性 (图 3(c)). 将 CTA^+ 插入至 FePS_3 层间后, 插层后的 CTA-FePS_3 整体趋势与本征

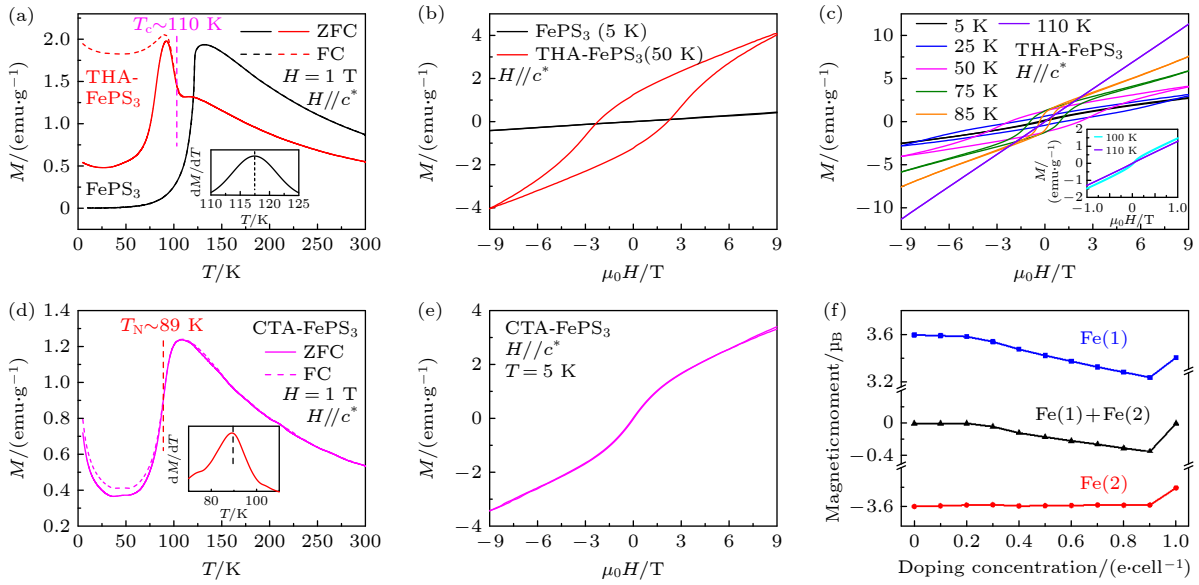


图3 有机阳离子插层 FePS_3 的实验结果 FePS_3 (黑) 和 THA-FePS_3 (红) 在 $H // c^*$ 磁场方向的 $M-T$ (a) 和 $M-H$ (b) 曲线, 实线和虚线分别为零场降温、场降温数据, (a) 内插图为 dM/dT vs T ; THA-FePS_3 在 $H // c^*$ 磁场方向、不同温度下的 $M-H$ 曲线 (c); CTA-FePS_3 在 $H // c^*$ 磁场下的 $M-T$ (d) 和 $M-H$ (e) 曲线, (d) 内插图为 CTA-FePS_3 的 dM/dT vs. T ; $\text{Fe}(1)$, $\text{Fe}(2)$ 的磁矩以及净磁矩 ($\text{Fe}(1)+\text{Fe}(2)$) 随掺杂浓度的依赖关系 (f)

Fig. 3. Experimental results of organic cations intercalated FePS_3 : (a), (b) $M-T$ (a) and $M-H$ (b) curves of FePS_3 (black) and THA-FePS_3 (red) under magnetic fields $H // c^*$, the solid and dashed lines represent ZFC and FC data, respectively, the inset in (a) shows the dM/dT vs. T of FePS_3 ; $M-H$ curves of THA-FePS_3 under magnetic fields $H // c^*$ at different temperatures (c); $M-T$ (d) and $M-H$ (e) curves of intercalated CTA-FePS_3 under magnetic fields $H // c^*$, the inset in (d) shows the dM/dT vs. T of CTA-FePS_3 ; magnetic moments and net magnetic moments of $\text{Fe}(1)$ and $\text{Fe}(2)$ as a function of doping concentrations (f).

FePS_3 相似, 仍然保持 AFM 序, dM/dT 的一阶导数表明 $T_N = 89$ K, 当温度降低到约 30 K 时, 磁化强度随温度降低而升高, 且在 5 K $M-H$ 曲线中表现为“S”形 (图 3(d),(e)), 可能是由于样品掺杂不均匀, 部分区域存在未补偿的磁矩所致。

结合 DFT 计算揭示了依赖载流子浓度的 AFM-FIM-AFM 转变 (图 3(f)), 这是由 Stoner 交换主导的 FM 序与超交换主导的 AFM 序之间的竞争造成的, 在电子掺杂浓度为 0.3—0.9 e/cell 的范围内, 掺杂的电子只占据 FePS_3 的一条铁磁链 (例如 $\text{Fe}(1)$), 导致 $\text{Fe}(1)$ 和 $\text{Fe}(2)$ 上的磁矩大小不等, 产生了净磁矩, 因此 THA^+ 离子插层的 FePS_3 表现出 FIM 特征. 当电子掺杂浓度进一步增至 ≥ 1.0 e/cell 时, 超交换占主导地位, 掺杂的 FePS_3 重新表现出 AFM 特征, 因此 CTA^+ 离子插层的 FePS_3 重新转变为 AFM.

图 4 展示了有机阳离子插层 FePSe_3 的磁性调控. 如图 4(a) 的 $M-T$ 曲线所示, 四葵基铵根离子 (TDA^+) 插层的 FePSe_3 表现出 FIM 特征. $M-T$ 曲线中 (图 4(a)), 在 $T = 30$ K 时, M 随 T 表现出明显的上升趋势, 并且在 5 K $M-H$ 曲线中表现为“S”

形 (图 4(b)), 这些特征都表明 TDA-FePSe_3 为 FIM. THA-FePSe_3 表现出与本征 FePSe_3 相似的变化趋势, 均为 AFM 序, 但 $T_N = 86$ K, 较 FePSe_3 ($T_N = 111$ K) 有所下降. 当温度下降至约 50 K 以下时, M 呈现上升的趋势, 并且在 5 K 的 $M-H$ 中表现出“S”形 (图 4(b)), 这与 CTA^+ 插层的 FePS_3 的现象是一致的, 可能是由于样品掺杂不均匀, 部分区域存在未补偿的磁矩所致. 这种现象与插层 NiPS_3 , FePS_3 类似, 与有机阳离子引入的载流子浓度有关, 在适宜的载流子浓度的区间内, 插层后的 FePSe_3 表现为 FIM, 当载流子浓度进一步增大时, 插层后的 FePSe_3 又重新表现为 AFM.

3.3 有机阳离子插层 MnPX_3 ($X = \text{S}, \text{Se}$) 的磁性调控

MnPS_3 与 MnPSe_3 具有不同的结构, MnPS_3 为单斜结构, 空间群为 $C2/m$ ^[86], 而 MnPSe_3 为菱方结构, 空间群为 $R\bar{3}$ ^[89]. 磁结构方面, MnPS_3 与 MnPSe_3 均为 Néel 型 AFM 序, Mn^{2+} 上的磁矩同最邻近的 3 个 Mn^{2+} 反铁磁耦合. MnPS_3 的易磁化轴在面外, 其磁构型用 Heisenberg 模型描述; 而

MnPS₃ 的易磁化轴在面内, 其磁构型可用 XY 模型描述. 同样利用电化学有机阳离子插层, 将有机关阳离子插入至二者的 vdW 层间研究载流子浓度对二者磁性能的调控.

如图 5(a) 所示, MnPS₃ 表现出 $T_N \sim 78$ K 的

AFM 特征, 在 $H // c^*$ 磁场方向下, $\mu_0 H \sim 4$ T 时, 发生自旋转向 (图 5(b), (c)), 与文献 [73, 86, 90–92] 报道的结果一致. THA+插层后 MnPS₃ 的 M 在 $T \sim 50$ K 时随着 T 的降低明显上升, 这与 NiPS₃, FePSe₃ 插层后的现象类似. 在 M - H 曲线中 (图 5(b),

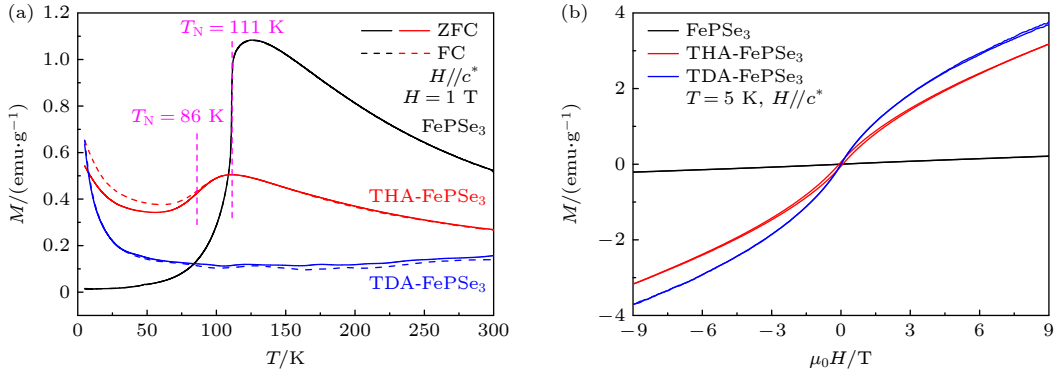


图 4 有机阳离子插层 FePSe₃ 的实验结果 FePSe₃ (黑)、TDA-FePSe₃ (蓝) 以及 THA-FePSe₃ (红) 在 $H // c^*$ 磁场方向的 M - T (a) 和 M - H (b) 曲线

Fig. 4. Experimental results of organic cations intercalated FePSe₃: The M - T (a) and M - H (b) curves of FePSe₃ (black), TDA-FePSe₃ (blue) and THA-FePSe₃ (red).

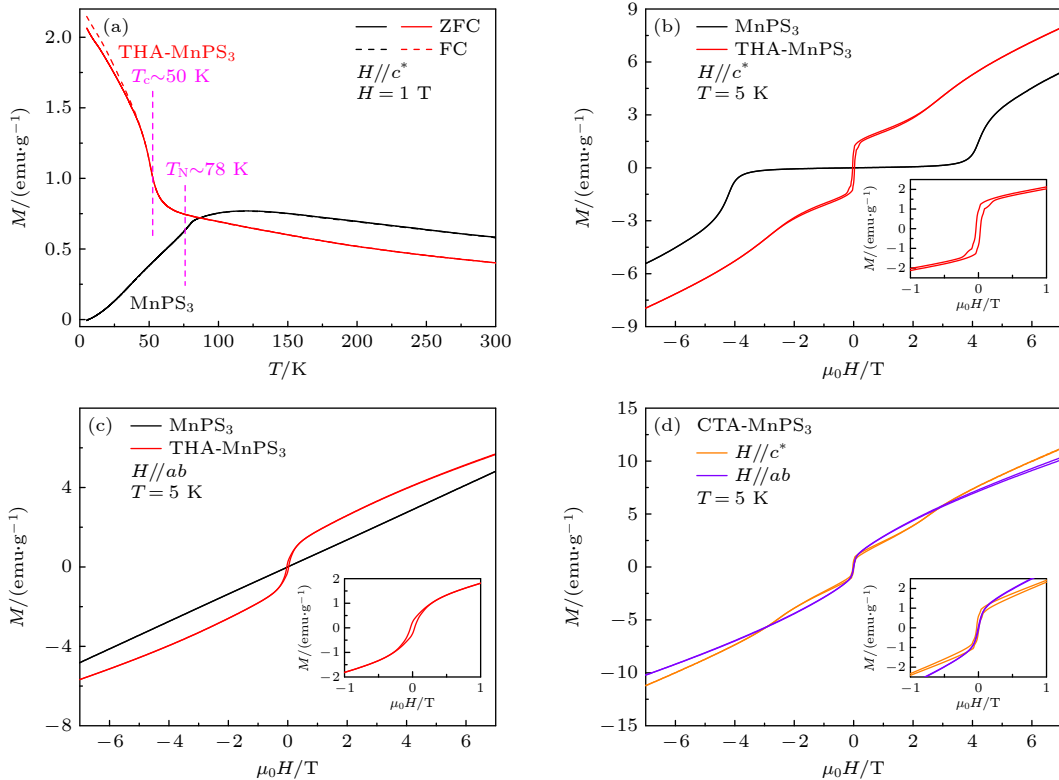


图 5 有机阳离子插层 MnPS₃ 的实验结果 MnPS₃ 和 THA-MnPS₃ 在 $H // c^*$ 磁场下的 M - T (a), M - H (b) 以及 $H // ab$ 磁场下的 M - H (c) 曲线; (d) CTA-MnPS₃ 在 $H // ab$ 和 $H // c^*$ 磁场下的 M - H 曲线. (b)–(d) 中的内插图分别为 THA-MnPS₃ 在 $H // c^*$ (b), $H // ab$ (c) 以及 CTA-MnPS₃ 在 $H // c^*$, $H // ab$ (c) 小范围磁场下的 M - H 曲线

Fig. 5. Experimental results of organic cations intercalated MnPS₃: M - T (a), M - H (b) curves under magnetic fields $H // c^*$ and M - H (c) curves under magnetic fields $H // ab$ of MnPS₃ and THA-MnPS₃; (d) M - H curves of CTA-MnPS₃ under magnetic fields $H // ab$ and $H // c^*$. The insets in (b)–(d) show the zoom-in images of M - H curves of THA-MnPS₃ under $H // c^*$ (b), $H // ab$ (c) and CTA-MnPS₃ under magnetic fields $H // ab$ (d) and $H // c^*$, respectively.

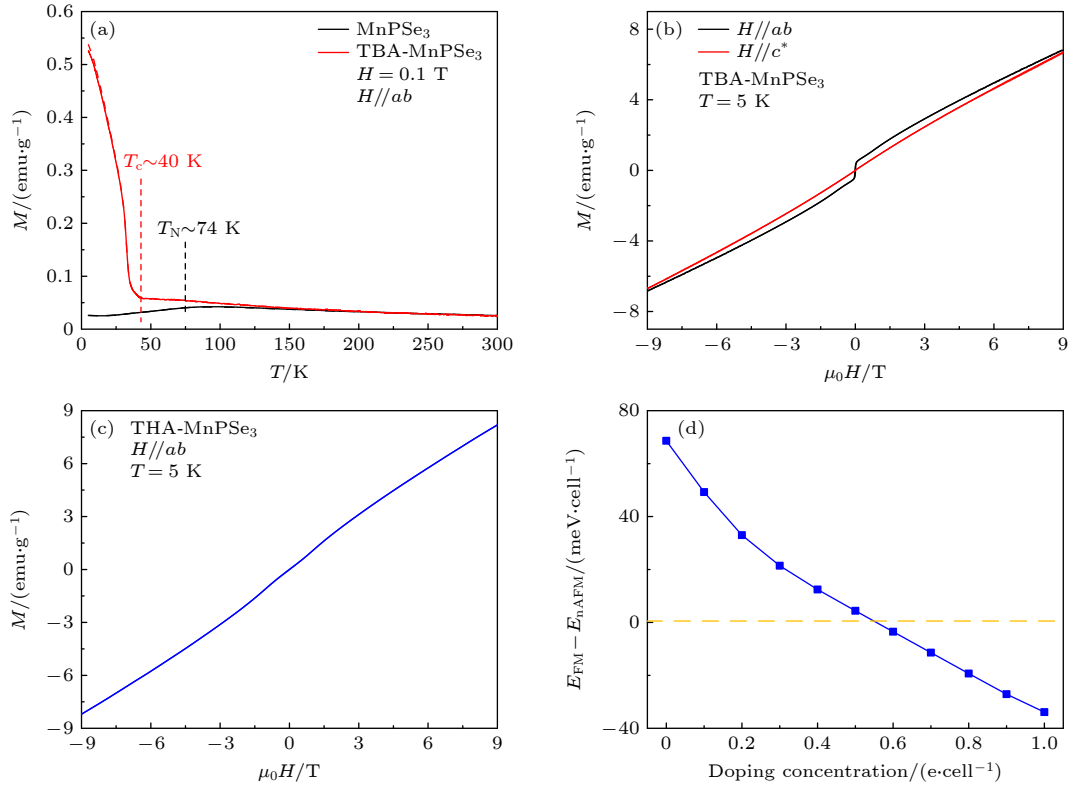


图 6 有机阳离子插层 MnPS_3 的实验结果 (a) MnPS_3 和 TBA-MnPS_3 在 $H // ab$ 磁场方向的 $M-T$ 曲线; (b) $T = 5 \text{ K}$ 时, TBA-MnPS_3 在 $H // ab$ 和 $H // c^*$ 磁场方向下的 $M-H$ 曲线; (c) $T = 5 \text{ K}$ 时, THA-MnPS_3 在 $H // ab$ 磁场下的 $M-H$ 曲线; (d) Néel 型 AFM 序与 FM 序的相对能量随掺杂浓度的变化

Fig. 6. Experimental results of organic cations intercalated MnPS_3 : (a) $M-T$ curves of MnPS_3 and TBA-MnPS_3 under magnetic fields $H // ab$; (b) $M-H$ curves of TBA-MnPS_3 under magnetic fields $H // ab$ and $H // c^*$ at $T = 5 \text{ K}$; (c) $M-H$ curve of THA-MnPS_3 under magnetic fields $H // ab$ at $T = 5 \text{ K}$; (d) the energy difference between the FM order and Néel AFM order as a function of doping concentration.

(c), 无论 $H // c^*$ 方向还是 $H // ab$ 方向, 均表现出“S”形且具有较小的矫顽场 (28 mT). 在内插图中可以看到 $H // c^*$ 方向上具有更矩形的磁滞回线, 因此易磁化轴仍位于面外. 结合 $M-T$, $M-H$ 曲线, THA^+ 插层的 MnPS_3 表现为 FIM, $T_c = 50 \text{ K}$, 易磁化轴仍在面外, 但磁各向异性较本征的 MnPS_3 降低. 将能够引入更高电子掺杂浓度的 CTA^+ 插入至 MnPS_3 层间, 如图 5(d) 所示, 其磁性行为与 THA^+ 插层的 MnPS_3 相似, 也表现出 FIM 特性, 易磁化轴仍在面外. 因此当载流子浓度达到一定的阈值时, 插层 MnPS_3 会出现净磁矩.

图 6 展示了插层前后 MnPS_3 的实验结果. 由图 6(a) 可知, 插层前, MnPS_3 表现出 $T_N \sim 74 \text{ K}$ 的 AFM 特征, 与文献 [72, 93–95] 报道结果一致. TBA^+ 插层的 MnPS_3 在低温时的 M 变化与 MnPS_3 明显不同, 在 $T = 40 \text{ K}$ 时, M 随 T 降低而增大, 且在 $T = 5 \text{ K}$ 的 $M-H$ 曲线中呈现“S”形 (图 6(b)), 表明其具备 FM 特征, 且易磁化轴在面

内. 然而, 将 THA^+ 插入至 MnPS_3 的 vdW 层间, 在 $M-H$ 曲线中并没有观察到明显的“S”形变化 (图 6(c)), 这与 THA^+ 离子插层 MnPX_3 体系中其他材料的现象不同. 结合 DFT 计算, 揭示了插层 MnPS_3 发生磁序转变的原因 (图 6(d)), 当电子掺杂浓度 $\geq 0.6 \text{ e/cell}$ 时, FM 序能量更低更稳定, 此时 MnPS_3 由 AFM 转变为 FM. 这与实验结果很好地吻合. THA^+ 引入的载流子浓度相对较低, 未能达到引起 AFM-FM 转变的载流子浓度阈值, 因此 THA-MnPS_3 仍为 AFM, 而 TBA-MnPS_3 能引入更高载流子浓度, 发生了 AFM-FM 的转变.

4 总结与展望

2D 磁性材料为新型自旋电子器件的研发提供了材料基础, 并可通过多场手段实现对其自旋态的精确控制和操纵, 为开发高性能、低功耗的自旋电子学器件提供了关键的技术基础.

有机阳离子插层为电控磁效应调控 vdW 磁体的磁性能提供了一种有效方法, 通过改变材料的载流子浓度引起材料磁性能的变化. 本文利用有机阳离子插入至 MPX_3 的 vdW 层间, 充分利用有机阳离子的多样性实现不同载流子浓度的调控, 实现了 AFM-FIM/FM 的转变, 并结合 DFT 计算揭示了载流子浓度调控磁性的机制. 需要指出的是, 在插层 MPX_3 中准确确定载流子浓度具有一定的挑战性, 由于 3d 轨道电子的局域性, 高载流子浓度掺杂的样品的电导率也很低.

目前, 2D 磁性材料的 T_c 普遍很低, 利用有机阳离子插层可以改善此问题, 如插层后 $Cr_2Ge_2Te_6$ 的 T_c 升至高于 200 K^[41], 同时插层材料的稳定性也得到提升, 有利于 2D 磁性材料在器件领域中的应用, 如利用磁相转变实现新型磁阻器件以及电控磁调控磁振子输运行为. 有机阳离子插层不仅在磁性调控方面发挥关键作用, 在电学^[76,81]、光学^[96]、热导^[97]、电荷密度波^[78]、2D 超导电性^[80,98] 以及量子格里菲斯奇异性^[99] 等多个领域的调控中均具有重要作用, 对于设计优化电子器件、光电器件、传感器等具有关键作用. 除此之外, 通过插入功能性有机阳离子可以实现某种特定功能, 设计并优化新型材料. 由于有机阳离子插层可以减弱层间耦合, 因此在受维度影响较大的 2D 体系中也同样适用.

有机阳离子插层也面临一些亟待解决的问题. 例如, 尽管有机阳离子插层对材料在空气中的稳定性有一定的提升, 但对于在空气和水汽极不稳定的材料仍是不友好的, 其表征、性能测试等方面都充满了挑战, 这需要严格控制物性测量的氛围, 或者在插层过程中引入有机分子, 进一步钝化材料的表面. 其次, 利用同一种有机阳离子实现对层间距、载流子浓度的可控调控仍然相对困难, 这需要进一步优化有机阳离子插层的条件. 同时洞悉插层过程的深层机理 (如电子转移机制、有机阳离子的排列取向等) 充满挑战, 需要不断地丰富原位表征等精密技术来阐明. 机遇与挑战并存, 我们相信通过持续的探索, 有机阳离子插层将会在二维系统中带来更多新奇的现象.

参考文献

- [1] Mermin N D, Wagner H 1966 *Phys. Rev. Lett.* **17** 1133
- [2] Gong C, Li L, Li Z L, Ji H W, Stern A, Xia Y, Cao T, Bao W, Wang C Z, Wang Y, Qiu Z Q, Cava R J, Louie S G, Xia J, Zhang X 2017 *Nature* **546** 265
- [3] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H, Yao W, Xiao D, Jarillo-Herrero P, Xu X D 2017 *Nature* **546** 270
- [4] Zhang Z, Shang J, Jiang C, Rasmita A, Gao W, Yu T 2019 *Nano Lett.* **19** 3138
- [5] Sun X D, Li W Y, Wang X, Sui Q, Zhang T Y, Wang Z, Liu L, Li D, Feng S, Zhong S Y, Wang H W, Bouchiat V, Nunez Regueiro M, Rougemaille N, Coraux J, Purbawati A, Hadj-Azzem A, Wang Z H, Dong B J, Wu X, Yang T, Yu G Q, Wang B W, Han Z, Han X F, Zhang Z D 2020 *Nano Res.* **13** 3358
- [6] Meng L J, Zhou Z, Xu M Q, Yang S Q, Si K P, Liu L X, Wang X G, Jiang H N, Li B X, Qin P X, Zhang P, Wang J L, Liu Z X, Tang P Z, Ye Y, Zhou W, Bao L H, Gao H J, Gong Y J 2021 *Nat. Commun.* **12** 809
- [7] Kang L X, Ye C, Zhao X X, Zhou X Y, Hu J X, Li Q, Liu D, Das C M, Yang J F, Hu D Y, Chen J Q, Cao X, Zhang Y, Xu M Z, Di J, Tian D, Song P, Kutty G, Zeng Q S, Fu Q D, Deng Y, Zhou J D, Ariando A, Miao F, Hong G, Huang Y Z, Pennycook S J, Yong K T, Ji W, Wang X R, Liu Z 2020 *Nat. Commun.* **11** 3729
- [8] Zhang Y, Chu J W, Yin L, Shifa T A, Cheng Z Z, Cheng R Q, Wang F, Wen Y, Zhan X Y, Wang Z X, He J 2019 *Adv. Mater.* **31** 1900056
- [9] Bonilla M, Kolekar S, Ma Y, Diaz H C, Kalappattil V, Das R, Eggers T, Gutierrez H R, Phan M H, Batzill M 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 289
- [10] Zhang Z P, Niu J J, Yang P F, Gong Y, Ji Q Q, Shi J P, Fang Q Y, Jiang S L, Li H, Zhou X B, Gu L, Wu X S, Zhang Y F 2017 *Adv. Mater.* **29** 1702359
- [11] Deng Y J, Yu Y J, Song Y C, Zhang J Z, Wang N Z, Sun Z Y, Yi Y F, Wu Y Z, Wu S W, Zhu J Y, Wang J, Chen X H, Zhang Y B 2018 *Nature* **563** 94
- [12] Fei Z, Huang B, Malinowski P, Wang W, Song T, Sanchez J, Yao W, Xiao D, Zhu X, May A F, Wu W, Cobden D H, Chu J H, Xu X D 2018 *Nat. Mater.* **17** 778
- [13] May A F, Ovchinnikov D, Zheng Q, Hermann R, Calder S, Huang B, Fei Z, Liu Y, Xu X D, McGuire M A 2019 *ACS Nano* **13** 4436
- [14] Zhang G J, Guo F, Wu H, Wen X K, Yang L, Jin W, Zhang W F, Chang H X 2022 *Nat. Commun.* **13** 5067
- [15] Cai X, Song T, Wilson N P, Clark G, He M, Zhang X, Taniguchi T, Watanabe K, Yao W, Xiao D, McGuire M A, Cobden D H, Xu X D 2019 *Nano Lett.* **19** 3993
- [16] Lee J U, Lee S, Ryoo J H, Kang S, Kim T Y, Kim P, Park C H, Park J G, Cheong H 2016 *Nano Lett.* **16** 7433
- [17] Kim K, Lim S Y, Lee J U, Lee S, Kim T Y, Park K, Jeon G S, Park C H, Park J G, Cheong H 2019 *Nat. Commun.* **10** 345
- [18] Kim K, Lim S Y, Kim J, Lee J-U, Lee S, Kim P, Park K, Son S, Park C-H, Park J-G, Cheong H 2019 *2D Mater.* **6** 041001
- [19] Gong Y, Guo J W, Li J H, Zhu K J, Liao M H, Liu X Z, Zhang Q H, Gu L, Tang L, Feng X, Zhang D, Li W, Song C L, Wang L L, Yu P, Chen X, Wang Y Y, Yao H, Duan W H, Xu Y, Zhang S C, Ma X C, Xue Q K, He K 2019 *Chin. Phys. Lett.* **36** 076801
- [20] Telford E J, Dismukes A H, Lee K, Cheng M, Wieteska A, Bartholomew A K, Chen Y S, Xu X D, Pasupathy A N, Zhu X, Dean C R, Roy X 2020 *Adv. Mater.* **32** 2003240
- [21] Otrokov M M, Klimovskikh, II, Bentmann H, Estyunin D, Zeugner A, Aliev Z S, Gass S, Wolter A U B, Koroleva A V, Shikin A M, Blanco-Rey M, Hoffmann M, Rusinov I P,

- Vyazovskaya A Y, Ereemeev S V, Koroteev Y M, Kuznetsov V M, Freyse F, Sanchez Barriga J, Amiraslano I R, Babanly M B, Mamedov N T, Abdullayev N A, Zverev V N, Alfonsov A, Kataev V, Buchner B, Schwier E F, Kumar S, Kimura A, Petaccia L, Di Santo G, Vidal R C, Schatz S, Kissner K, Unzelmann M, Min C H, Moser S, Peixoto T R F, Reinert F, Ernst A, Echenique P M, Isaeva A, Chulkov E V 2019 *Nature* **576** 416
- [22] Thiel L, Wang Z, Tschudin M A, Rohner D, Gutiérrez-Lezama I, Ubrig N, Gibertini M, Giannini E, Morpurgo A F, Maletinsky P 2019 *Science* **364** 973
- [23] Li T X, Jiang S W, Sivadas N, Wang Z F, Xu Y, Weber D, Goldberger J E, Watanabe K, Taniguchi T, Fennie C J, Mak K F, Shan J 2019 *Nat. Mater.* **18** 1303
- [24] Song T C, Fei Z Y, Yankowitz M, Lin Z, Jiang Q N, Hwangbo K, Zhang Q, Sun B S, Taniguchi T, Watanabe K, McGuire M A, Graf D, Cao T, Chu J H, Cobden D H, Dean C R, Xiao D, Xu X D 2019 *Nat. Mater.* **18** 1298
- [25] Cai W P, Sun H L, Xia W, Wu C W, Liu Y, Liu H, Gong Y, Yao D X, Guo Y F, Wang M 2020 *Phys. Rev. B* **102** 144525
- [26] Wang Y, Wang C, Liang S J, Ma Z, Xu K, Liu X, Zhang L, Admasu A S, Cheong S W, Wang L, Chen M, Liu Z, Cheng B, Ji W, Miao F 2020 *Adv. Mater.* **32** e2004533
- [27] Li X, Yang J 2014 *J. Mater. Chem. C* **2** 7071
- [28] Cenkler J, Sivakumar S, Xie K C, Miller A, Thijssen P, Liu Z Y, Dismukes A, Fonseca J, Anderson E, Zhu X Y, Roy X, Xiao D, Chu J H, Cao T, Xu X D 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 256
- [29] Ji Z Q, Huang T, Li Y, Liu X Y, Wei L J, Wu H, Jin J M, Pu Y, Li F 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 057701
- [30] Wang Z W, Liang J H, Yang H X 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 017501
- [31] Liu N-S, Wang C, Ji W 2022 *Acta Phys. Sin.* **71** 127504 (in Chinese) [刘南舒, 王聪, 季威 2022 物理学报 **71** 127504]
- [32] Cao Y, Zhang X M, Zhang X P, Yan F G, Wang Z A, Zhu W K, Tan H, Golovach V N, Zheng H Z, Wang K Y 2022 *Phys. Rev. Appl.* **17** L051001
- [33] Wang H, Liu Y, Wu P, Hou W, Jiang Y, Li X, Pandey C, Chen D, Yang Q, Wang H, Wei D, Lei N, Kang W, Wen L, Nie T, Zhao W, Wang K L 2020 *ACS Nano* **14** 10045
- [34] Jiang S, Shan J, Mak K F 2018 *Nat. Mater.* **17** 406
- [35] Wang Z A, Xue W, Yan F, Zhu W K, Liu Y, Zhang X, Wei Z, Chang K, Yuan Z, Wang K 2023 *Nano Lett.* **23** 710
- [36] Xiao H, Mi M J, Wang Y L 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 127503 (in Chinese) [肖寒, 弭孟娟, 王以林 2021 物理学报 **70** 127503]
- [37] Jiang S, Li L, Wang Z, Mak K F, Shan J 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 549
- [38] Huang B, Clark G, Klein D R, MacNeill D, Navarro-Moratalla E, Seyler K L, Wilson N, McGuire M A, Cobden D H, Xiao D, Yao W, Jarillo-Herrero P, Xu X D 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 544
- [39] Wang Z, Zhang T Y, Ding M, Dong B J, Li Y X, Chen M L, Li X X, Huang J Q, Wang H W, Zhao X T, Li Y, Li D, Jia C K, Sun L D, Guo H H, Ye Y, Sun D M, Chen Y S, Yang T, Zhang J, Ono S, Han Z, Zhang Z D 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 554
- [40] Verzhbitskiy I A, Kurebayashi H, Cheng H, Zhou J, Khan S, Feng Y P, Eda G 2020 *Nat. Electron.* **3** 460
- [41] Wang N, Tang H, Shi M, Zhang H, Zhuo W, Liu D, Meng F, Ma L, Ying J, Zou L, Sun Z, Chen X 2019 *J. Am. Chem. Soc.* **141** 17166
- [42] Mi M J, Zheng X W, Wang S L, Zhou Y, Yu L X, Xiao H, Song H N, Shen B, Li F, Bai L H, Chen Y X, Wang S P, Liu X H, Wang Y L 2022 *Adv. Funct. Mater.* **32** 2112750
- [43] Tezze D, Pereira J M, Asensio Y, Ipatov M, Calavalle F, Casanova F, Bittner A M, Ormaza M, Martin-Garcia B, Hueso L E, Gobbi M 2022 *Nanoscale* **14** 1165
- [44] Tang M, Huang J W, Qin F, Zhai K, Ideue T, Li Z Y, Meng F H, Nie A M, Wu L L, Bi X Y, Zhang C R, Zhou L, Chen P, Qiu C Y, Tang P Z, Zhang H J, Wan X G, Wang L, Liu Z Y, Tian Y J, Iwasa Y, Yuan H T 2023 *Nat. Electron.* **6** 28
- [45] Peng Y X, Ding S L, Cheng M, Hu Q F, Yang J, Wang F G, Xue M Z, Liu Z, Lin Z C, Avdeev M, Hou Y L, Yang W Y, Zheng Y, Yang J B 2020 *Adv. Mater.* **32** 2001200
- [46] Hu C W, Gordon K N, Liu P F, Liu J Y, Zhou X Q, Hao P P, Narayan D, Emmanouilidou E, Sun H Y, Liu Y T, Brawer H, Ramirez A P, Ding L, Cao H B, Liu Q H, Dessau D, Ni N 2020 *Nat. Commun.* **11** 97
- [47] Gong C, Zhang X 2019 *Science* **363** eaav4450
- [48] Zhang Y, Xu H J, Yi C J, Wang X, Huang Y, Tang J, Jiang J L, He C L, Zhao M K, Ma T Y, Dong J, Guo C Y, Feng J F, Wan C H, Wei H X, Du H F, Shi Y G, Yu G Q, Zhang G Y, Han X F 2021 *Appl. Phys. Lett.* **118** 262406
- [49] Alghamdi M, Lohmann M, Li J, Jothi P R, Shao Q, Aldosary M, Su T, Fokwa B P T, Shi J 2019 *Nano Lett.* **19** 4400
- [50] Wang X, Tang J, Xia X, He C, Zhang J, Liu Y, Wan C, Fang C, Guo C, Yang W, Guang Y, Zhang X, Xu H, Wei J, Liao M, Lu X, Feng J, Li X, Peng Y, Wei H X, Yang R, Shi D, Zhang X, Han Z, Zhang Z, Zhang G, Yu G Q, Han X F 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw8904
- [51] Shin I, Cho W J, An E S, Park S, Jeong H W, Jang S, Baek W J, Park S Y, Yang D H, Seo J H, Kim G Y, Ali M N, Choi S Y, Lee H W, Kim J S, Kim S D, Lee G H 2022 *Adv. Mater.* **34** 2101730
- [52] Ostwal V, Shen T, Appenzeller J 2020 *Adv. Mater.* **32** 1906021
- [53] Gupta V, Cham T M, Stiehl G M, Bose A, Mittelstaedt J A, Kang K, Jiang S, Mak K F, Shan J, Buhrman R A, Ralph D C 2020 *Nano Lett.* **20** 7482
- [54] Mogi M, Yasuda K, Fujimura R, Yoshimi R, Ogawa N, Tsukazaki A, Kawamura M, Takahashi K S, Kawasaki M, Tokura Y 2021 *Nat. Commun.* **12** 1404
- [55] Li W H, Zhu W K, Zhang G J, Wu H, Zhu S G, Li R Z, Zhang E Z, Zhang X M, Deng Y C, Zhang J, Zhao L X, Chang H X, Wang K Y 2023 *Adv. Mater.* **35** 2303688
- [56] Nguyen M H, Ralph D C, Buhrman R A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 126601
- [57] Pai C F, Ou Y X, Vilela-Leao L H, Ralph D C, Buhrman R A 2015 *Phys. Rev. B* **92** 064426
- [58] Kao I H, Muzzio R, Zhang H T, Zhu M L, Gobbo J, Yuan S, Weber D, Rao R, Li J H, Edgar J H, Goldberger J E, Yan J Q, Mandrus D G, Hwang J, Cheng R, Katoch J, Singh S 2022 *Nat. Mater.* **21** 1029
- [59] Ye X G, Zhu P F, Xu W Z, Shang N Z, Liu K H, Liao Z M 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 037303
- [60] Pan Z C, Li D, Ye X G, Chen Z, Chen Z H, Wang A Q, Tian M, Yao G, Liu K, Liao Z M 2023 *Sci. Bull.* **68** 2743
- [61] Song T, Cai X, Tu M W, Zhang X, 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
- [62] Song T, Tu M W, Carnahan C, Cai X, Taniguchi T, Watanabe K, McGuire M A, Cobden D H, Xiao D, Yao W, Xu X D 2019 *Nano Lett.* **19** 915
- [63] Lan G B, Xu H J, Zhang Y, Cheng C, He B, Li J H, He C L, Wan C H, Feng J F, Wei H X, Zhang J, Han X F, Yu G Q 2023 *Chin. Phys. Lett.* **40** 058501

- [64] Wang Z, Sapkota D, Taniguchi T, Watanabe K, Mandrus D, Morpurgo A F 2018 *Nano Lett.* **18** 4303
- [65] Min K-H, Lee D H, Choi S-J, Lee I-H, Seo J, Kim D W, Ko K-T, Watanabe K, Taniguchi T, Ha D H, Kim C, Shim J H, Eom J, Kim J S, Jung S 2022 *Nat. Mater.* **21** 1144
- [66] Zhu W K, Lin H L, Yan F G, Hu C, Wang Z, Zhao L X, Deng Y C, Kudrynskiy Z R, Zhou T, Kovalyuk Z D, Zheng Y, Patané A, Žutić I, Li S, Zheng H, Wang K Y 2021 *Adv. Mater.* **33** 2104658
- [67] Zhu W K, Zhu Y M, Zhou T, Zhang X P, Lin H L, Cui Q R, Yan F G, Wang Z, Deng Y C, Yang H X, Zhao L X, Žutić I, Belashchenko K D, Wang K Y 2023 *Nat. Commun.* **14** 5371
- [68] Lin H L, Yan F G, Hu C, Lv Q, Zhu W K, Wang Z, Wei Z, Chang K, Wang K Y 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 43921
- [69] Jin W, Zhang G J, Wu H, Yang L, Zhang W F, Chang H X 2023 *Nanoscale* **15** 5371
- [70] Jin W, Zhang G J, Wu H, Yang L, Zhang W F, Chang H X 2023 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **15** 36519
- [71] Zhu W K, Xie S H, Lin H L, Zhang G J, Wu H, Hu T G, Wang Z A, Zhang X M, Xu J H, Wang Y J, Zheng Y H, Yan F G, Zhang J, Zhao L X, Patané A, Zhang J, Chang H X, Wang K Y 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 128501
- [72] Wiedenmann A, Rossat-Mignod J, Louisy A, Brec R, Rouxel J 1981 *Solid State Commun.* **40** 1067
- [73] Coak M J, Jarvis D M, Hamidov H, Haines C R S, Alireza P L, Liu C, Son S, Hwang I, Lampronti G I, Daisenberger D, Nahai-Williamson P, Wildes A R, Saxena S S, Park J G 2020 *J. Condens. Matter Phys.* **32** 124003
- [74] Joy P A, Vasudevan S 1992 *Phys. Rev. B* **46** 5425
- [75] Bhutani A, Zuo J L, McAuliffe R D, dela Cruz C R, Shoemaker D P 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 034411
- [76] Wang C, He Q Y, Halim U, Liu Y Y, Zhu E B, Lin Z Y, Xiao H, Duan X D, Feng Z Y, Cheng R, Weiss N O, Ye G J, Huang Y C, Wu H, Cheng H C, Shakir I, Liao L, Chen X H, Goddard Iii W A, Huang Y, Duan X F 2018 *Nature* **555** 231
- [77] Wang N Z, Shi M Z, Shang C, Meng F B, Ma L K, Luo X G, Chen X H 2018 *New J. Phys.* **20** 023014
- [78] Meng F B, Liu Z, Yang L X, Shi M Z, Ge B H, Zhang H, Ying J J, Wang Z F, Wang Z Y, Wu T, Chen X H 2020 *Phys. Rev. B* **102** 165410
- [79] Shi M Z, Wang N Z, Lei B, Shang C, Meng F B, Ma L K, Zhang F X, Kuang D Z, Chen X H 2018 *Phys. Rev. Mater.* **2** 074801
- [80] Ma L K, Shi M Z, Kang B L, Peng K L, Meng F B, Zhu C S, Cui J H, Sun Z L, Ma D H, Wang H H, Lei B, Wu T, Chen X H 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 124803
- [81] He Q, Lin Z, Ding M, Yin A, Halim U, Wang C, Liu Y, Cheng H C, Huang Y, Duan X 2019 *Nano Lett.* **19** 6819
- [82] Li X, Wu X, Yang J 2014 *J. Am. Chem. Soc.* **136** 11065
- [83] Chittari B L, Park Y, Lee D, Han M, MacDonald A H, Hwang E, Jung J 2016 *Phys. Rev. B* **94** 184428
- [84] Wildes A R, Simonet V, Ressouche E, McIntyre G J, Avdeev M, Suard E, Kimber S A J, Lançon D, Pepe G, Moubaraki B, Hicks T J 2015 *Phys. Rev. B* **92** 224408
- [85] Wang F, Shifa T A, Yu P, He P, Liu Y, Wang F, Wang Z, Zhan X, Lou X, Xia F, He J 2018 *Adv. Funct. Mater.* **28** 1802151
- [86] Mi M, Xiao H, Yu L, Zhang Y, Wang Y, Cao Q, Wang Y 2023 *Materials Today Nano* **24** 100408
- [87] McCreary A, Simpson J R, Mai T T, McMichael R D, Douglas J E, Butch N, Dennis C, Aguilar R V, Walker A R H 2020 *Phys. Rev. B* **101** 064416
- [88] Wang X, Du K, Fredrik Liu Y Y, Hu P, Zhang J, Zhang Q, Owen M H S, Lu X, Gan C K, Sengupta P, Kloc C, Xiong Q 2016 *2D Mater.* **3** 031009
- [89] Mai T T, Garrity K F, McCreary A, Argo J, Simpson J R, Doan-Nguyen V, Aguilar R V, Walker A R H 2021 *Sci. Adv.* **7** eabj3106
- [90] Sun Y J, Tan Q H, Liu X L, Gao Y F, Zhang J 2019 *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 3087
- [91] Basnet R, Wegner A, Pandey K, Storment S, Hu J 2021 *Phys. Rev. Mater.* **5** 064413
- [92] Han H, Lin H, Gan W, Xiao R C, Liu Y C, Ye J F, Chen L M, Wang W W, Zhang L, Zhang C J, Li H 2023 *Phys. Rev. B* **107** 075423
- [93] Calder S, Haglund A V, Kolesnikov A I, Mandrus D 2021 *Phys. Rev. B* **103** 024414
- [94] Le Flem G, Brec R, Ouyard G, Louisy A, Segransan P 1982 *J. Phys. Chem. Solids* **43** 455
- [95] Jeevanandam P, Vasudevan S 1999 *J. Condens. Matter Phys.* **11** 3563
- [96] Bao W Z, Wan J Y, Han X G, Cai X H, Zhu H L, Kim D K, Ma D K, Xu Y L, Munday J N, Drew H D, Fuhrer M S, Hu L B 2014 *Nat. Commun.* **5** 4224
- [97] Wan C, Gu X, Dang F, Itoh T, Wang Y, Sasaki H, Kondo M, Koga K, Yabuki K, Snyder G J, Yang R, Koumoto K 2015 *Nat. Mater.* **14** 622
- [98] Kang B L, Shi M Z, Li S J, Wang H H, Zhang Q, Zhao D, Li J, Song D W, Zheng L X, Nie L P, Wu T, Chen X H 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 097003
- [99] Zhao Y, Su Y, Guo Y, Peng J, Zhao J, Wang C, Wang L, Wu C, Xie Y 2021 *ACS Mater. Lett.* **3** 210

SPECIAL TOPIC—Two-dimensional magnetism and topological spin physics •
COVER ARTICLE

Tuning magnetic properties of two-dimensional antiferromagnetic MPX_3 by organic cations intercalation*

Mi Meng-Juan Yu Li-Xuan Xiao Han Lü Bing-Bing[†] Wang Yi-Lin[‡]*(School of Integrated Circuits, Shandong University, Jinan 250100, China)**(Received 24 December 2023; revised manuscript received 6 February 2024)*

Abstract

Electrical control of magnetism of two-dimensional (2D) antiferromagnetic (AFM) materials combines the advantages of controlling magnetism by purely electrical means, compatibility with semiconductor process, low energy consumption, heterogeneous integration of 2D materials with van der Waals (vdW) interface, and AFM materials with no stray field, resistance to external magnetic field interference, and high intrinsic frequency, and thus becomes a research focus in the field. The carrier concentration control is the main mechanism of electrical control of magnetism, and has been proved to be an effective way to control the magnetic properties of materials. The intralayer-antiferromagnetic materials have net-zero magnetic moments, and it is a challenging task to measure their regulated magnetic properties. Therefore, there is limited research on the electrical control of magnetism of intralayer-antiferromagnetic materials, and their potential mechanisms are not yet clear. Based on the diversity of organic cations, the present work systematically modulates the carrier concentrations of 2D intralayer-antiferromagnetic materials MPX_3 ($M = \text{Mn, Fe, Ni}$; $X = \text{S, Se}$) by utilizing organic cations intercalation, and investigates the influence of electron doping on their magnetic properties. Phase transitions between AFM-ferrimagnetic (FIM)/ferromagnetic (FM) depending on carrier concentration changes are observed in MPX_3 materials, and the corresponding regulation mechanism is revealed through theoretical calculations. This research provides new insights into the carrier-controlled magnetic phase transition of 2D magnetic materials, and opens up a pathway for studying the correlation between the electronic structure and magnetic properties of 2D magnets, and designing novel spintronic devices as well.

Keywords: two-dimensional magnetic material, electrical control of magnetism, organic cations intercalation, magnetic phase transition

PACS: 75.70.Ak, 75.25.-j, 75.30.-m, 75.50.Ee

DOI: [10.7498/aps.73.20232010](https://doi.org/10.7498/aps.73.20232010)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92065206, 12304042), the National Key R&D Program of China (Grant No. 2022YFA1602704), the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant No. ZR2023ZD10), and the Postdoctoral Fellowship Program of China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. GZC20231434).

[†] Corresponding author. E-mail: bingbinglyu@sdu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: yilinwang@email.sdu.edu.cn