

专题: 功能氧化物薄膜新奇物理性质

过渡金属氧化物中新奇量子态与
电荷-自旋互转换研究进展*

劳斌 郑轩 李晟 汪志明†

(中国科学院宁波材料技术与工程研究所, 中国科学院磁性材料与器件重点实验室, 宁波 315201)

(2022 年 11 月 21 日收到; 2022 年 12 月 20 日收到修改稿)

为了满足信息技术时代下海量数据的高效存储及处理, 具有低功耗、非易失性的自旋电子器件受到极大关注. 能够高效产生自旋流的自旋源材料是新型自旋-轨道力矩器件的重要组成部分. 近二十年来, 在探索具有高效产生自旋流的材料体系, 以及理解材料相关物理机制两方面都取得了较大的进展. 最近, 在过渡金属氧化物中涌现出许多与产生自旋流密切相关的新奇量子态, 成为自旋源的新兴材料体系被广泛研究. 研究表明, 过渡金属氧化物具有对电子结构高度敏感、显著且灵活可调的电荷-自旋转换效率, 具有巨大的应用潜力. 本文主要综述了过渡金属氧化物中新奇的电子能带结构及其与电荷-自旋互转换的关联机制, 并对未来的发展趋势进行了展望.

关键词: 过渡金属氧化物, 电子结构, 电荷-自旋互转换, 自旋-轨道力矩**PACS:** 77.84.Bw, 73.22.-f, 75.76.+j, 72.25.-b**DOI:** 10.7498/aps.72.20222219

1 引言

随着人工智能、物联网、大数据等信息技术的兴起和发展, 数据呈现出爆发性的增长, 迫切需要发展高效、可靠的信息存储和处理技术. 基于晶体管的互补金属-氧化物-半导体 (complementary metal-oxide-semiconductor, CMOS) 技术, 通过操控电子的电荷属性实现功能性是当前信息存储器 (SRAM, DRAM 等) 和处理器 (CPU, GPU 等) 的主流. 然而, 信息技术时代下的需求给以 CMOS 为代表的传统电子器件在进一步提高器件性能方面提出了挑战. 在过去蓬勃发展的数十年间, CMOS 器件通过减小晶体管尺寸来获得单位面积下数量的增长, 实现了性能每 18 个月翻一番的壮举, 即著名的摩尔定律. 目前晶体管特征尺寸已接近纳米量级, 进一步减小将面临一些前所未有的与器件性

能息息相关的问题. 首先, 纳米尺寸下出现的量子隧穿效应会导致沟道对电荷控制能力的减弱, 以及漏电流的增加; 其次, 虽然能够通过增加电流密度的方式提高对电荷的控制能力, 但焦耳热密度也会变得越发显著, 影响器件的耐久性. 针对上述问题, 研究人员从科学到技术层面提出了数种解决方案, 以实现器件性能在今后的可持续增长^[1]. 其中, 基于自旋电子学的方案, 通过利用和操控电子中自旋属性实现信息的高效存储和处理, 成为广泛关注的焦点^[2,3].

自旋作为电子的内禀性质之一, 是电子磁矩的重要来源. 自旋电子学领域的核心概念是利用宏观材料中磁矩取向的非易失性实现低功耗的信息存储, 并通过操控自旋与磁矩间的相互作用实现高效的信息处理. 目前该领域的前沿之一是利用材料体系中的自旋-轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC), 实现电荷流到自旋流的高效转换; 并进一步通过自

* 国家重点研发计划 (批准号: 2019YFA0307800, 2017YFA0303600) 和国家自然科学基金 (批准号: 12174406, 11874367) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhiming.wang@nimte.ac.cn

旋流对磁矩产生的自旋轨道力矩 (spin-orbit torque, SOT), 实现磁化状态的高效操控^[4]. 由于 SOC 所包含的物理机制和强度大小与材料体系密切相关, 具体体现在电子结构对其输运性质的影响. 因此通过研究影响电子结构的物理参量, 理解其中与 SOC 有关的物理机制, 表征并调控其自旋输运性质, 获得具有高效电荷-自旋互转换的自旋源材料, 高速、低功耗地操控磁化状态, 是从基础物性到应用层面实现高性能自旋电子器件的重要途径.

过渡金属氧化物由于其电荷、自旋、轨道、晶格等自由度间的耦合作用, 展现出丰富的物理性质, 如与电子关联效应相关的磁性、铁电性、超导电性、庞磁阻等; 另一方面, 最近的研究表明过渡金属氧化物的电子结构中存在多种与 SOC 紧密相关的、对自由度高度敏感的新奇量子态, 包括各类拓扑半金属、拓扑绝缘体等. 这些奇异的电子结构势必会影响相关材料的自旋输运机制, 为电荷-自旋互转换的调控和增强带来巨大的机遇. 因此, 过渡金属氧化物作为新兴的自旋电子材料体系, 能够为高性能自旋电子器件的实现提供优异的材料平台, 近年来引起了自旋电子学领域的极大兴趣^[5,6].

基于上述简介, 本文将综述过渡金属氧化物中新奇量子态及电荷-自旋互转换等方面的研究进展. 第二部分将介绍新奇电子结构的来源和电荷-自旋互转换的产生机制; 第三部分主要介绍 3d, 4d 及 5d 氧化物代表材料的电子结构、自旋输运性质及 SOT 相关研究成果; 第四部分会对过渡金属氧化物体系具有的优势、存在的挑战进行小结, 展望今

后的发展趋势.

2 电子结构与自旋电荷转换的关联机制

2.1 新奇电子结构的产生

在过渡金属氧化物中, 由于自旋、轨道、电荷、晶格等自由度间错综复杂的耦合, 涌现出许多在其他材料体系中未曾预料的量子态, 如 Mott 绝缘体、拓扑绝缘体、拓扑半金属、轴子绝缘体等^[7]. 此外, 在氧化物异质结构的界面/表面, 由于空间反演对称性破缺带来的额外影响, 会进一步诱导出有别于体相电子结构的表面态 (surface states). 其中, 拓扑非平庸的能带结构以及 Rashba、拓扑表面态等会强烈地影响电子的自旋取向、动量等属性, 使相关氧化物材料具有电荷-自旋之间相互转换的性质.

2.1.1 非平庸能带结构

非平庸能带结构的产生通常基于能带反转的出现, 即原本分开的导带和价带在 SOC、结构变化等因素作用下发生能量或宽度的改变, 进而出现互相交叉的情况 (图 1). 当体系存在 SOC 时, 会使交叉的能带进一步打开能隙. 若能隙被全部打开, 就可能产生拓扑绝缘体; 若能隙没有被全部打开, 留下一些接触点, 就会产生线形色散的狄拉克点 (Dirac point) 或外尔点 (Weyl point); 若留下一些接触线, 就会产生狄拉克结线 (Dirac nodal line).

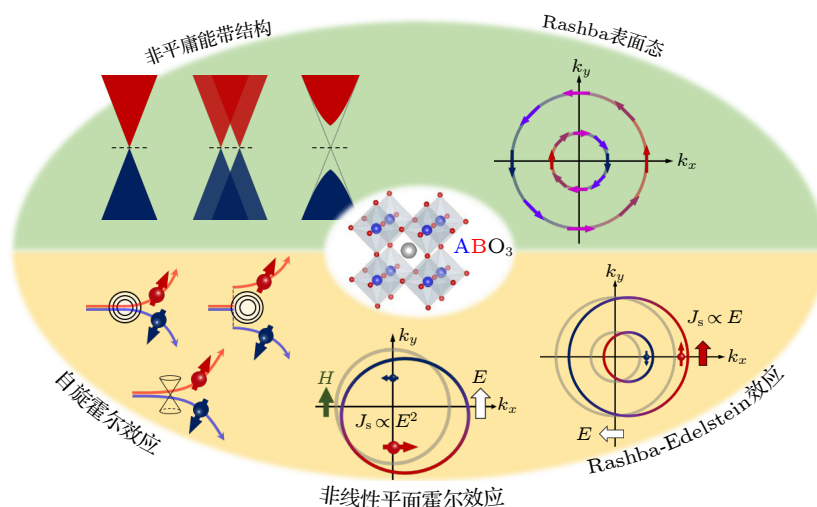


图 1 新奇电子结构及相关的电荷-自旋互转换机制

Fig. 1. Novel electronic structures and associated charge-spin interconversion mechanisms.

其中狄拉克型和外尔型结构的产生对材料中的对称性有不同的要求. 狄拉克点要求材料同时满足空间反演对称性和时间反演对称性, 而外尔点则需要出现空间反演对称性或时间反演对称性破缺, 即一个狄拉克点可以通过打破对称性变为两个外尔点^[8,9]. 可见, 通过改变 SOC 强度、对称性等方式调控电子结构, 能够实现新奇量子态的产生及转变. 这些拓扑能带结构可以产生较大的贝里曲率 (Berry curvature), 而本征自旋霍尔效应由占据态的贝里曲率决定^[10,11]. 所以, 当费米面位于这些拓扑能带结构附近时, 会显著影响其电荷-自旋互转换的性质. 尽管其他材料体系也存在非平庸能带结构, 但过渡金属氧化物中多自由度共同作用的电子结构使其具有高度敏感性, 能够通过灵活的调控手段实现拓扑性质的产生、变化和增强.

2.1.2 表面态

由于拓扑非平庸的电子结构无法在真空或异质结构界面处发生连续转变, 这种在界面/表面天然存在的空间反演对称性破缺会导致有别于体相电子结构的表面态. 在具有时间反演对称性的拓扑材料中满足能量 $E(k, s) = E(-k, -s)$, 其中 k 表示动量, s 表示自旋. 界面处的对称性破缺会导致 $E(k, s) \neq E(-k, s)$, 所以 $E(k, s) \neq E(k, -s)$, 即某个动量处原本自旋简并的能带会发生自旋劈裂. 不同于磁性材料的自旋劈裂, 由于时间反演对称性没有打破, 各个动量处的自旋必须朝着特定取向, 以满足费米面上自旋占比的相同. 这种现象就是自旋-动量锁定 (spin-momentum locking). 类似的情况也出现在打破时间反演对称性的外尔半金属中, 其表面态是连接两个外尔点的费米弧, 由于外尔点之间不同的手性, 费米弧中的电子态具有渐变的自旋, 因而也表现出自旋-动量锁定的性质. 此外在拓扑平庸的材料中, 基于上述关于对称性的推论, 在界面处也存在自旋-动量锁定的表面态, 即 Rashba 表面态 (图 1). 这种表面态的产生可以用一个半经典的模型描述: 在对称性破缺的界面由于化学势的不连续会产生一个垂直方向的电场, 当电子在界面横向移动时, 以电子作为局域参考系, 该电场在洛伦兹协变下会产生一个磁场, 低速下近似表达为 $\mathbf{B} = -\frac{1}{c^2} \mathbf{v} \times \mathbf{E}$, 磁场方向在面内且与电子速度垂直^[12]. 该磁场与电子自旋相互作用会产生塞曼劈裂, 且自旋劈裂方向依赖于电子的动量方向, 具有

自旋-动量锁定的性质.

2.2 电荷-自旋互转换的机制

2.2.1 自旋霍尔效应

当电荷流经过具有强 SOC 的材料时, 不同自旋取向的电子会朝着相反方向偏转, 从而产生自旋流, 这种现象被称为自旋霍尔效应 (图 1). 自旋霍尔效应中的电荷流方向、自旋流方向、自旋方向满足互相垂直的关系. 产生的自旋流进入近邻的磁性层, 与磁矩发生角动量交换, 产生自旋-轨道力矩. 自旋霍尔效应的物理起源包括三种机制, 分别是斜散射 (skew scattering)、侧跳 (side jump) 以及能带中的贝里曲率^[11]. 其中斜散射和侧跳是由杂质散射引起的外在贡献, 贝里曲率是由能带结构决定的本征性质 (图 1).

在被杂质散射的过程中, 若不考虑 SOC, 电子从动量 k 散射到 k' 的概率 $W_{kk'}$ 与从动量 k' 散射到 k 的概率 $W_{k'k}$ 相同. 而考虑 SOC 的话, $W_{kk'} \neq W_{k'k}$, 即电子朝一个方向偏转的概率较大, 且不同自旋的电子偏转方向不同, 这个过程被称为斜散射. 在被杂质散射的过程中, 电子除了动量发生偏转, 其波包还会发生位置上的偏移. 在外加电场下, 位置上的偏移导致电子的动能改变, 从而也会影响横向电流, 这一过程称为侧跳. 除了与杂质散射有关的这两种机制外, 材料能带结构的自旋贝里曲率在倒空间可以产生类似于磁场的规范场, 使电子发生偏转^[10]. 自旋取向相反的电子在 SOC 的作用下感受到不同的“磁场”, 从而朝不同方向偏转, 产生来自于电子结构本征性质贡献的自旋流. 因此, 一个体系中总的自旋霍尔电导 σ_{SH} 可以写为三种机制贡献的和: $\sigma_{\text{SH}} = \sigma_{\text{SH}}^{\text{ss}} + \sigma_{\text{SH}}^{\text{sk}} + \sigma_{\text{SH}}^{\text{sj}}$. 其中, 斜散射的贡献 $\sigma_{\text{SH}}^{\text{ss}}$ 正比于电子的弛豫时间 τ , 所以与材料的电导率呈正相关; 而侧跳和本征机制产生的自旋霍尔电导 $\sigma_{\text{SH}}^{\text{sk}}$ 和 $\sigma_{\text{SH}}^{\text{sj}}$ 都与弛豫时间无关, 不依赖于材料的电导率. 因此, 可以通过测量 σ_{SH} 与材料电导率的关系推断斜散射对自旋霍尔效应的贡献, 但只有在弛豫时间很大、即材料导电性很好时占主导. 能带结构的本征贡献由于不依赖于杂质散射, 可以通过第一性原理计算获得, 从而与实验结果相比较. 此外, 自旋霍尔效应还存在对应的逆效应, 即将自旋流转换为电荷流的过程, 被称为逆自旋霍尔效应. 它的机制可以通过上述机制的逆过程理解, 一般利

用其作为探测自旋流的手段.

研究表明, 过渡金属氧化物, 特别是 4d 和 5d 材料中展现出与实验结果相吻合的、显著的本征自旋霍尔效应^[13,14]. 这与 4d, 5d 材料中重金属元素提供的强 SOC 有关, 也与其中新奇的电子结构关系密切. 如上文所述, 当不同轨道的能带发生交叠时, 如拓扑半金属中的外尔点、狄拉克点/结线结构, 会贡献较大的自旋贝里曲率. 因此, 可以通过改变晶体场劈裂、晶体结构、电子关联强度等进行针对性调控, 以达到增强本征自旋霍尔效应的目的^[14]. 过渡金属氧化物中多自由度的耦合为调控和增强自旋霍尔效应提供了一个良好的平台.

2.2.2 Rashba-Edelstein 效应

在拓扑表面态以及 Rashba 表面态中, 由于费米面处电子的动量与特定方向的自旋取向锁定, 因而相反动量的电子态具有相反的自旋属性. 当电荷流经过表面态时, 带有与电荷流同向动量的电子增加, 导致原本动态平衡的自旋电子数不再相等, 进而产生自旋积累 (图 1). 该现象称为 Rashba-Edelstein 效应^[12], 其中的自旋积累能够扩散至近邻的磁性层, 与磁矩发生相互作用产生自旋-轨道力矩. 与 Rashba-Edelstein 效应相反, 若在表面态中通入垂直方向的自旋流, 会在表面处产生自旋积累; 又由于自旋-动量锁定, 自旋积累会使具有相反动量和自旋间的散射不对称, 导致与自旋积累方向锁定动量的电子数更多, 从而发生自旋到电荷间的转换. 这个过程被称为逆 Rashba-Edelstein 效应或 spin galvanic 效应, 可以用来探测界面/表面的自旋流.

2.2.3 非线性效应

以上描述的机制所反映的是由材料电子结构中产生、与电荷流 (或电场 E) 呈现线性响应关系的电荷-自旋互转换^[15]. 而在一些新奇量子态材料中, 如非中心对称过渡金属硫化物、拓扑狄拉克半金属、二维 Rashba-Dresselhaus 体系等, 还存在电荷流 (J_c)、自旋流 (J_s) 与电场的二阶响应, 即 $J_c, J_s \propto E^2$ ^[16–19]. 具体表现为在电场的作用下, 非平庸能带结构中的电子会出现新的非平衡分布: 对于贝里曲率来说, 这种非平衡态下关于一阶电场的积分是有限的, 等价于二阶电场下贝里曲率耦合导致的等效磁场, 因此能够在不施加外磁场的情况

下观测到横向电荷流, 即量子非线性霍尔效应 (quantum nonlinear Hall effect)^[16,17]; 对于非平庸表面态来说, 二阶电场导致的非平衡态也会产生自旋流^[18]; 此时施加外磁场会引起表面态轮廓的非对称畸变, 进而能够在平面内垂直磁场的方向观测到自旋流部分转换成电荷流 (图 1), 即非线性平面霍尔效应 (nonlinear planar Hall effect)^[19]. 这些新奇的、与自旋输运相关的非线性响应一方面可以作为强力的探测手段表征非平庸电子结构, 另一方面也具有拓展自旋电子器件功能性的潜力, 近年来逐渐受到自旋电子学领域的重视.

3 过渡金属氧化物材料体系

当电荷流进入自旋源材料时, 在电荷-自旋互转换机制作用下, 部分电荷流转换为自旋流. 自旋流通过界面进入邻近的磁性材料, 与磁矩发生角动量交换产生 SOT, 包括类阻尼力矩 $\sim \mathbf{m} \times [\mathbf{m} \times (\mathbf{n} \times \mathbf{j}_c)]$ 和类场力矩 $\sim \mathbf{m} \times (\mathbf{n} \times \mathbf{j}_c)$ 成分^[20–22], 其中 \mathbf{m} 为磁矩方向, \mathbf{n} 为界面法向, \mathbf{j}_c 为电荷流方向. 在两个力矩成分的协同作用下, 原本稳定的磁矩发生进动、并朝着自旋极化方向偏离平衡位置. 其中类阻尼力矩主要负责克服磁阻尼从而实现磁矩的翻转, 类场力矩则与磁化翻转过程中的动力学密切相关^[23–26], 其单位电荷流下的强度是决定 SOT 器件性能的关键指标之一. 因此, 定量分析电荷流与自旋流之间互转换的程度, 即电荷-自旋转换效率 η (包括类阻尼效率 η_{DL} 和类场效率 η_{FL}), 是衡量自旋源材料性能的重要依据; 进一步通过成分、应力、结构、界面等手段对电荷-自旋转换效率进行调控是获得高性能自旋源材料的重要手段. 近年来, 由于在过渡金属氧化物中发现与电荷-自旋互转换密切相关且高度可调的新奇量子态, 具有成为高性能自旋源材料的巨大潜力, 相关的 SOT 研究也陆续地开展起来. 接下来将对 3d—5d 钙钛矿家族中一些具有巨大潜力的自旋源材料进行介绍, 包括基本性质、电子结构、自旋输运和电荷-自旋互转换的相关内容.

3.1 3d 过渡金属氧化物: 钛酸锶

3d 过渡金属氧化物具有强电子关联, 呈现出丰富的磁电性质, 包括金属/绝缘性、磁性、铁电性、超导等^[27]. 钛酸锶 (SrTiO_3) 作为 3d 过渡金属氧化

物中的明星材料,具有一系列令人惊奇的物性^[28].体相 SrTiO_3 中的钛离子为 $3d^0$ 轨道排列,位于导带底的 $3d$ 轨道没有电子占据,距离价带顶的 $O-2p$ 轨道相差约 3 eV ,因此是宽禁带绝缘体^[29].在晶体场作用下 $3d$ 轨道发生退简并劈裂为二重简并 e_g 和三重简并 t_{2g} 轨道,其中 t_{2g} 轨道位于导带底.在 SrTiO_3 表面及其异质结界面上,由于电荷转移或氧空位等导致能带弯曲及电子掺杂,电子会被限制在垂直于表面/界面几个纳米区域,形成具有高导电性的二维电子气 (two-dimensional electron gas, 2DEG)^[30,31],展现出优异可控的磁电输运性质、超导、量子霍尔效应等奇特性^[32,33].近年来在 SrTiO_3 中 2DEG 发现,表面/界面的空间反演对称性破缺形成特殊的二维电子能带结构,并呈现出显著的电荷-自旋互转换能力,在自旋电子学领域受到广泛关注.

由于能量的不连续或价态变化的影响,体相绝缘的 SrTiO_3 在表面/界面处的电子结构发生改变,原本 t_{2g} 轨道中的 d_{xy} , d_{xz} , d_{yz} 能带来到费米能级的下方,一些电子占据了这些能带从而形成 2DEG.并且由于受到垂直于界面的量子限域效应的影响,这些能带会再次发生劈裂产生一些次能带,呈现出复杂的表面电子结构.如图 2(a) 所示, Vaz 等^[34] 通过角分辨光电子能谱 (angle-resolved photoemission spectroscopy, ARPES) 观测 SrTiO_3 表面电子结构确认了这些复杂能带的存在,并发现界面 Rashba 效应会进一步使能带中的电子处于自旋-动量锁定状态 (图 2(b)).此外,他们还指出,在某些能带交叉处会出现能带反转和非平庸的拓扑态,产生更强的自旋劈裂. King 等^[35] 也得出了类似的结论,当 d_{xy} , d_{xz} , d_{yz} 轨道被单独占据时,轨道角动量几乎为零;而当这些能带交叉时,混合的轨道 (图 2(c)) 会使轨道角动量有较大值,进而贡献更强的自旋劈裂.这种由局域非平庸电子结构导致的显著自旋劈裂会通过 Rashba-Edelstein 效应或者逆 Rashba-Edelstein 效应等机制直接影响自旋输运行为,使 SrTiO_3 表面 2DEG 具有非常高效的电荷-自旋互转换.并且 Shalom 等^[36] 和 Caviglia 等^[37] 还发现,通过外加电压能够对电荷-自旋互转换进行有效调控,这意味着基于 SrTiO_3 表面 2DEG 的自旋电子器件具有性能高效且灵活可调的潜力.

鉴于 SrTiO_3 表面/界面 2DEG 展现出的新奇自旋构型,其电荷-自旋互转换的相关性质引起了

研究者的极大兴趣. Lesne 等^[38] 在 $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3$ 界面 2DEG 利用自旋泵浦源通入自旋流,通过表征逆 Rashba-Edelstein 效应产生的电荷流,给出该界面的二维电荷-自旋转换效率 $\lambda_{\text{IEE}} = j_c^{2D}/j_s^{3D} = 6.7\text{ nm}$.在此基础上, Vaz 等^[34] 通过电压调控 SrTiO_3/Al 界面费米面的位置,观测到 λ_{IEE} 相应的变化 (图 2(d)),其最大值可达 28 nm .这种电压的高度可调性是上文提及的非平庸能带结构带来的结果,当费米面在一定电压下移动到能带交叉处时,电子会更多地通过自旋-动量锁定发生电荷-自旋互转换,从而增强转换效率.最近, Kaneta-Takada 等^[39] 在 $\text{SrTiO}_3/\text{LaTiO}_{3+\delta}$ 界面观测到了更高的转换效率, $\lambda_{\text{IEE}} \sim 190\text{ nm}$,被归因为来自 $\text{LaTiO}_{3+\delta}$ 中的库仑排斥和界面巨大 Rashba 效应的共同作用.此外,利用 SrTiO_3 低温下的铁电性, Noel 等^[40] 展示了自旋电荷转换的符号可以通过电场进行非易失性的调控.

除了基于逆 Rashba-Edelstein 效应的结果,以电荷到自旋的 Rashba-Edelstein 效应作为表征手段的研究也同样证实了 SrTiO_3 的显著性能. Wang 等^[41] 在 $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3$ 界面以及 CoFeB 的异质结构中获得了室温下高达 6.3 的转换效率 (图 2(e)).他们还通过变温测量观测到转换效率会随着温度的降低而迅速减小,并归因于电子在 LaAlO_3 中局域态的隧穿效应.除 Rashba-Edelstein 效应, Sinova 等^[42] 的理论研究指出, Rashba 界面还存在二维自旋霍尔效应,这也是界面电荷-自旋互转换的一种机制.该效应产生的自旋流方向在平面内与电流垂直,自旋取向与界面垂直.实验上, Jin 等^[43] 和 Trier 等^[44] 在 $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3$ 界面通过非局域测量观测到二维自旋霍尔效应和逆自旋霍尔效应产生的电信号.其中, Trier 等^[44] 通过施加不同方向磁场的 Hanle 效应证实了二维自旋霍尔效应产生的自旋垂直极化的自旋流 (图 2(f)).此外,他们还发现除了转换效率,该系统中的自旋扩散长度也能够通过电压进行调控,最高可达将近 $1\text{ }\mu\text{m}$.这种长距离保持自旋属性的性质对于非局域自旋传输相关的自旋电子器件尤为重要.

以上研究结果证实了 SrTiO_3 界面 2DEG 具有显著、高度可调的电荷-自旋互转换,并且能够与其新奇的电子结构关系密切.特别是最近在 $\text{SrTiO}_3/\text{LaTiO}_{3+\delta}$ 界面观测到的巨大转换效率,表明 2DEG 体系的 SOT 性质仍有很大的提高空间.鉴于其中

错综复杂的物理机制, 如何深刻理解非平庸电子结构对电荷-自旋互转换影响规律, 以及如何有针对性地诱导、表征和利用新奇拓扑态并以此提高转换效率是重要的研究方向. 可以看到目前较

多的工作集中在电荷-自旋转换效率的表征上, 作为应用潜力巨大的体系, 今后还应更多地开展基于 SrTiO_3 界面 SOT 操控磁矩翻转的相关研究.

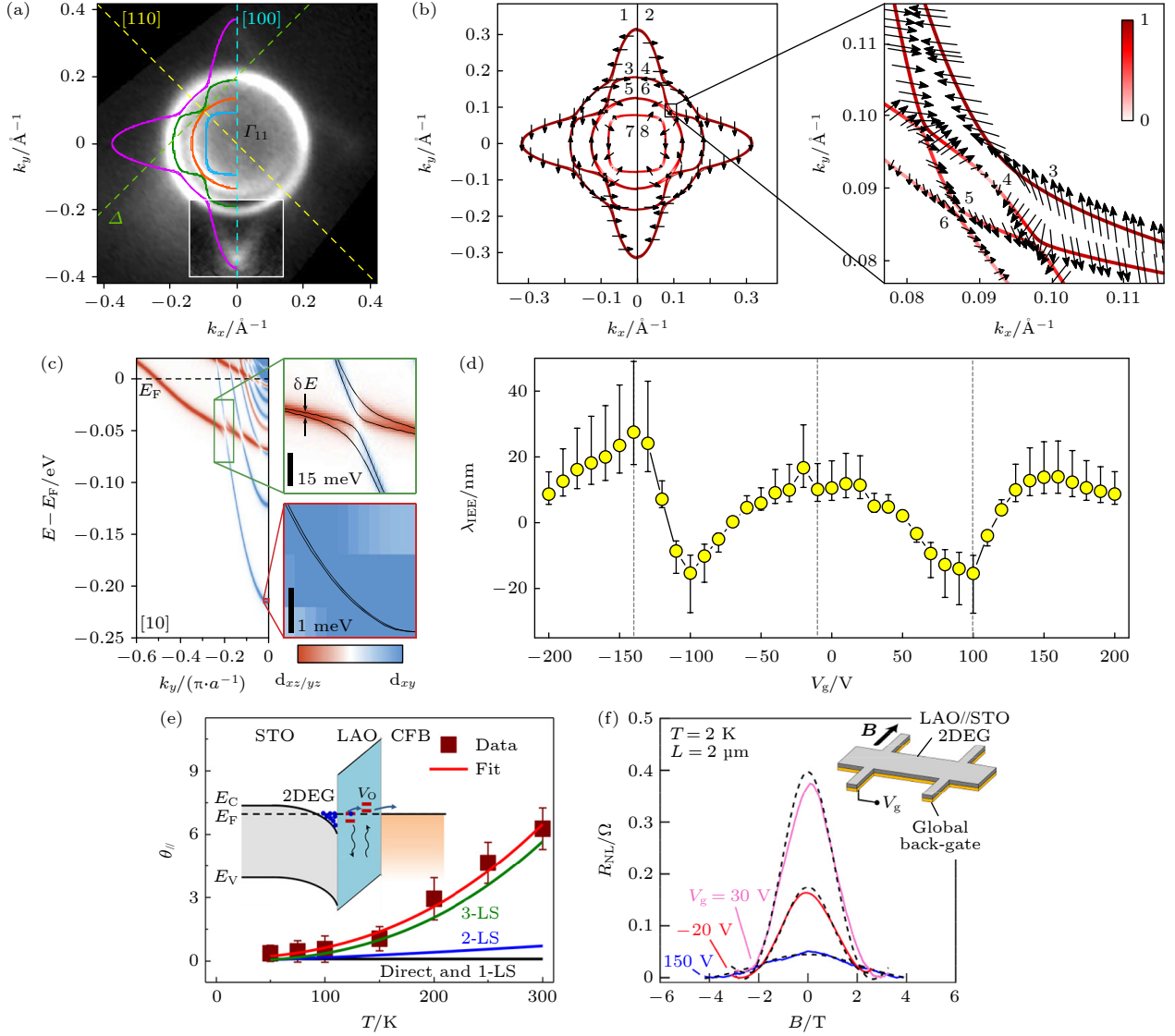


图 2 SrTiO_3 表面 2DEG 的电子结构及自旋-电荷互转换相关表征结果 (a) SrTiO_3 表面 2DEG 费米面的 ARPES 结果, 与计算结果相吻合 (出自文献 [34], 已获得授权); (b) 基于 8 能带紧束缚模型计算得到费米面处的自旋分布 (左图) 及能带交叉处的放大图 (右图) (出自文献 [34], 已获得授权); (c) 计算得到的能带结构展示了能带混合以及 Rashba 劈裂, 且在能带交叉处有更大的 Rashba 劈裂 (出自文献 [35], 已获得授权); (d) SrTiO_3/Al 2DEG 的电荷-自旋转换效率 λ_{IEE} 随调控电压 V_g 的变化 (出自文献 [34], 已获得授权); (e) $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3/\text{CoFeB}$ 中温度依赖的电荷-自旋转换效率 (出自文献 [41], 已获得授权); (f) 通过非局域效应测量 2DEG 中的自旋霍尔效应和逆自旋霍尔效应, 电压调控的 Hanle 效应可以通过施加外磁场观测 (出自文献 [44], 已获得授权)

Fig. 2. Electronic structure and charge-spin interconversion in the 2DEG at the surface of SrTiO_3 : (a) The Fermi surface of the 2DEG at the surface of SrTiO_3 from APRES measurement, which coincides with the calculated band structure (Reproduced with permission from Ref. [34]); (b) the spin textures of the Fermi surface calculated by the eight-band tight-binding model (left). The figure on the right is the zoom-in near the band crossing area (Reproduced with permission from Ref. [34]); (c) the calculated band structure exhibits band mixing and Rashba splitting, where the Rashba splitting is enhanced at the band crossing (Reproduced with permission from Ref. [35]); (d) charge-spin conversion efficiency λ_{IEE} of SrTiO_3/Al 2DEG as a function of gate voltage V_g (Reproduced with permission from Ref. [34]); (e) the temperature dependent charge-spin conversion efficiency of $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3/\text{CoFeB}$ (Reproduced with permission from Ref. [41]); (f) the nonlocal measurement of the spin Hall effect and inverse spin Hall effect. The Hanle effect tuned by gating voltage is observed when applying magnetic field (Reproduced with permission from Ref. [44]).

3.2 4d 过渡金属氧化物: 钌酸锶

4d 过渡金属氧化物因其较强关联效应、中等强度 SOC 和晶体场环境之间的相互作用, 呈现出丰富的物理性质. 以钌酸锶家族 $\text{Sr}_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$ 为例, $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ 具有新奇的变磁性^[45], Sr_2RuO_4 展现出非常规的 p 波超导电性^[46], SrRuO_3 更以其巡游铁磁性、强磁各向异性、良好的热稳定性、化学稳定性及导电性等诸多特点备受关注. 基于上述特点, 大量基础研究通过应力、掺杂、维度等手段对 SrRuO_3 磁电性质的演化规律进行了深入探索; 同时 SrRuO_3 还作为电极材料应用在场效应管、铁电电容、磁隧道结等磁电器件中^[47]. 近年来, 研究发现 SrRuO_3 中具有与新奇电子结构相关的自旋输运性质, 在自旋电子学领域引起广泛关注.

理论计算预测 SrRuO_3 的能带结构在费米面附近存在多个线性色散能带交叉点, 如图 3(a) 所示, 这些由 t_{2g} 轨道组成、且与拓扑非平庸密切相关的构型能够提供显著的贝里曲率^[48,49], 是 SrRuO_3 中新奇量子态产生的关键因素. Chen 等^[50] 在考虑了磁性与 SOC 的影响后, 预测 SrRuO_3 电子结构中存在大量的磁性拓扑外尔点, 其中的贝里曲率使其具有显著的本征反常霍尔效应. 实验上, Takiguchi 等^[51] 通过低温磁电输运测量在 SrRuO_3 中观测到由贝里曲率引起的线性正磁阻、手性反常等量子输运现象; Lin 等^[52] 通过 ARPES 表征 SrRuO_3 的电子能带结构, 结合第一性原理计算确定费米面附近存在外尔点 (图 3(b)), 并发现其反常霍尔电导在外电场的作用下具有非单调的演化规律; Tian 等^[53] 通过应力工程调控 SrRuO_3 反常霍尔效应的符号和幅值, 并确认其中的演化规律来源于体系中贝里曲率的变化. 以上结果从多个方面证实了 SrRuO_3 具有新奇且高度可调的能带结构及拓扑量子态, 能够提供显著的贝里曲率并展现出相关的自旋输运特性 (图 3(c)).

SrRuO_3 电子能带中的贝里曲率不仅贡献了本征的反常霍尔效应, 还能产生自旋霍尔效应, 进而带来显著的电荷-自旋互转换. Haidar 等^[54] 通过自旋泵浦-铁磁共振 (spin pumping-ferromagnetic resonance, SP-FMR) 方法在室温下测量 $\text{SrTiO}_3(001)/\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrRuO}_3$ 产生的电压信号, 发现体系中存在与磁场呈 $\cos\varphi$ 关系、随输入功率显著增加的成分, 并指出其来源是以 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 为

自旋泵浦源的逆自旋霍尔效应; 类似的 SP-FMR 结果^[55] 也在 $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}(111)$ 上生长的 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}/\text{SrRuO}_3$ 中得到了确认. 以上结果可以理解磁性氧化物产生的自旋流通过 SrRuO_3 转换为电荷流, 证实后者具有自旋-电荷互转换的性质. Wahler 等^[56] 也在 $\text{NdGaO}_3(110)/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrRuO}_3$ 中观测到相似的 SP-FMR 结果, 并定量地给出了 SrRuO_3 的自旋输运相关参数, 如自旋扩散常数 $\lambda \sim 1.5 \text{ nm}$ 及转换效率 $\eta \sim 0.03$. 通过进一步改变测量温度, 他们发现逆自旋霍尔电压在 SrRuO_3 居里温度 ($\sim 160 \text{ K}$) 以下呈现出单调递减的趋势, 揭示了 SrRuO_3 的磁性会影响其电荷-自旋转换效率.

上述研究很好地展现了 SrRuO_3 新奇电子结构是其自旋输运性质的来源这一图像, 然而相较于反常霍尔效应体现出的巨大贝里曲率, 逆自旋霍尔效应所反映的贝里曲率并不显著. 这一矛盾很可能源于在 SP-FMR 实验中不可避免的寄生整流效应导致对逆自旋霍尔电压的低估^[57], 因此近年来的相关工作通过表征 SrRuO_3 自旋霍尔效应产生的 SOT, 以求更准确、深入地探究其电荷-自旋互转换的能力. Ou 等^[58] 通过自旋矩-铁磁共振 (spin torque-ferromagnetic resonance, ST-FMR) 的方法系统地表征 $\text{Si}/\text{SrTiO}_3/\text{SrRuO}_3/\text{Co}$ 中的自旋霍尔电导, 如图 3(d) 所示, 自旋霍尔电导在 300—60 K 温度区间呈现出单调递增的趋势, 最高可达 $3 \times 10^5 (\hbar/2e) \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$, 相当于 $\eta \sim 0.3$ 的转换效率. 值得注意的是, 自旋霍尔电导和电导随温度的变化规律十分一致, 且在 SrRuO_3 的居里温度两侧仍然保持原有的趋势. Ou 等认为这种几乎不受磁性影响的电荷-自旋互转换性质可能来源于本征的自旋霍尔效应; 相对地, 他们还观测到在居里温度以下存在一个垂直方向的自旋极化分量, 并指出可能与 SrRuO_3 的强各向异性磁电阻有关. 此外, 结合晶体结构的表征结果, 他们发现 SrRuO_3 的自旋霍尔效应强度与 RuO_6 氧八面体的旋转程度密切相关, 因而有望通过结构调控实现转换效率的增强. 最近, Zhou 等^[59] 和 Wei 等^[60] 通过外延应力调控 SrRuO_3 的晶体结构, 系统地研究了不同应力及晶体结构下 SOT 相关性质的演化规律. 他们发现, 通过一系列衬底对 SrRuO_3 施加 -1.9% 到 +1.5% 的外延应力, 其晶体结构会在四方相与正交相结构之间发生变化, 并能够大幅度影响电荷-自旋转换效率. 在 Zhou 等^[59] 的工作中, 如图 3(e) 所

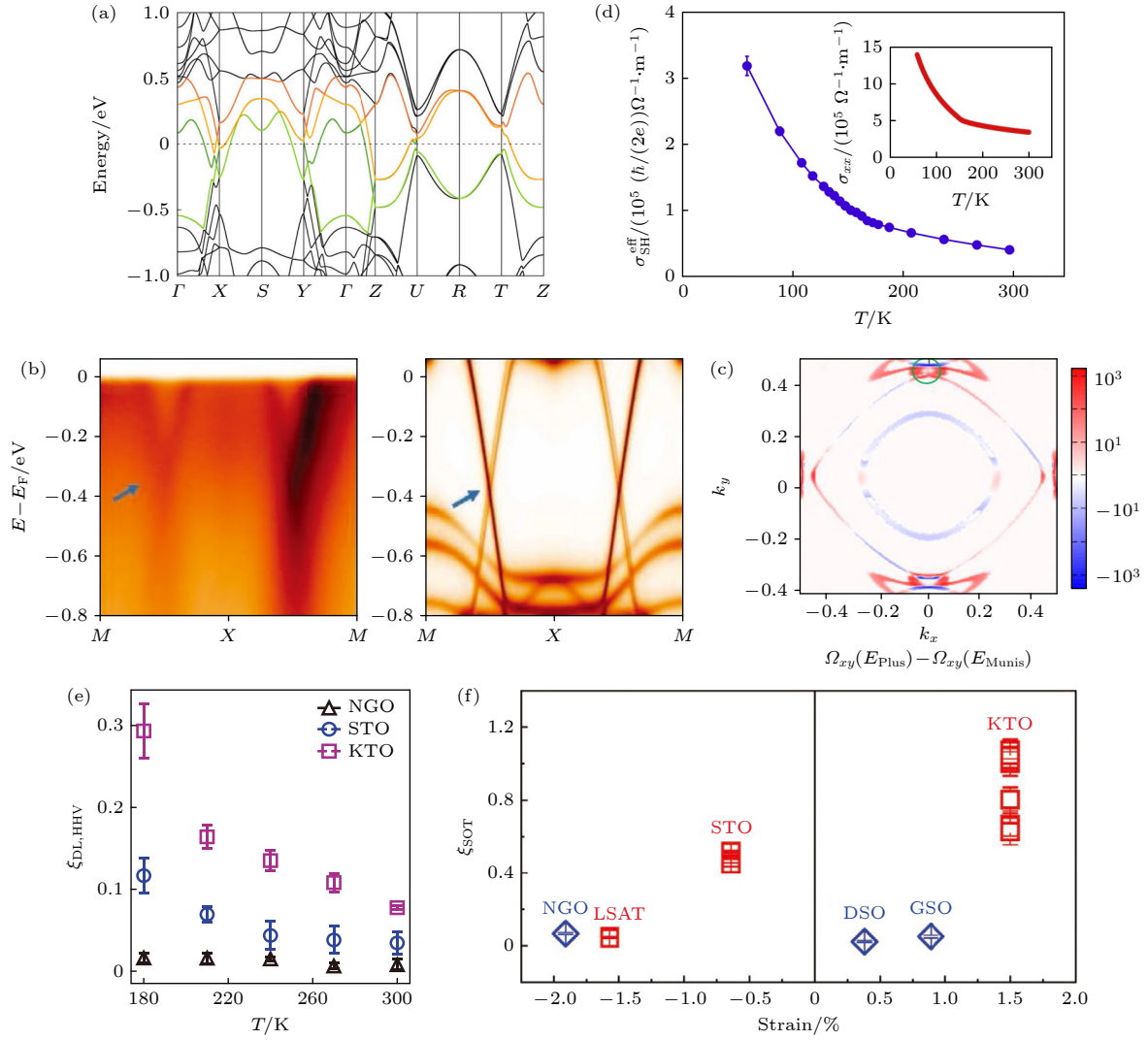


图 3 SrRuO₃ 的电子结构、自旋输运及 SOT 相关表征结果 (a) 基于 GGA 计算的 SrRuO₃ 能带结构, 考虑了磁性、SOC 及库仑相互作用的影响^[51]; (b) SrRuO₃(001) 电子结构在费米面附近的能量-动量映射图, 左图为 ARPES 测量结果, 右图为 DFT 计算结果 (出自文献^[52], 已获得授权); (c) 正交相 SrRuO₃ 费米面附近贝里曲率分布的计算结果 (出自文献^[52], 已获得授权); (d) 300—60 K 范围内 SrRuO₃ 自旋霍尔电导率随温度的变化 (插图: 相同温度区间内对应的电导率变化) (出自文献^[58], 已获得授权); (e) 不同衬底上 SrRuO₃ 电荷-自旋转换效率随温度的变化 (出自文献^[59], 已获得授权); (f) 不同衬底上的正交相 (红色方块) 和四方相 (蓝色菱形) SrRuO₃ 的电荷-自旋转换效率 (出自文献^[60], 已获得授权)

Fig. 3. Electronic structures, spin transport properties and SOT associated characterization results of SrRuO₃: (a) Band structure of SrRuO₃ from GGA calculations taking into account the effects of magnetization, SOC and Coulomb interaction^[51]; (b) comparison of energy momentum mappings near the Fermi surface measured by ARPES (left) and calculated by DFT (right) for SrRuO₃(001) (Reproduced with permission from Ref. [52]); (c) calculated Berry curvature distributions near the Fermi surface in orthorhombic SrRuO₃ (Reproduced with permission from Ref. [52]); (d) spin Hall conductivity of SrRuO₃ as a function of temperature ranging from 300 to 60 K (inset: the corresponding electrical conductivity in the same temperature range) (Reproduced with permission from Ref. [58]); (e) charge-spin conversion efficiency of SrRuO₃ grown on various substrates as a function of temperature (Reproduced with permission from Ref. [59]); (f) comparison of charge-spin conversion efficiency between orthorhombic (red square) and tetragonal (blue diamond) SrRuO₃ grown on various substrates (Reproduced with permission from Ref. [60]).

示, 不同应力状态下 SrRuO₃ 的转换效率均随着温度的降低单调增大, 结合对电导率变化的测量表明本征自旋霍尔效应为主要贡献来源. 当 SrRuO₃ 薄膜进一步生长在 NdGaO₃ 衬底上时, RuO₆ 八面体仅在面外发生旋转, SrRuO₃ 晶体结构变成四方相,

其转换效率 $\eta \sim 0.01$; 而生长在 SrTiO₃ 和 KTaO₃ 衬底时, RuO₆ 八面体在面内和面外均发生旋转, 正交相结构的 SrRuO₃ 展现出更大的转换效率 $\eta \sim 0.1—0.3$. 在 Wei 等^[60]的工作中也看到了相同的趋势, 如图 3(f) 所示, 相较于四方相结构 (蓝色菱

形) SrRuO_3 约 $\eta \sim 0.05$ 的转化效率, 正交相结构 (红色方框) SrRuO_3 的转换效率呈现出十分显著的增加. 根据应力的不同其转换效率最高可达 $\eta \sim 1$. 这一结果表明通过结构调控晶体场畸变, 能够直接影响 e_g 和 t_{2g} 电子轨道的排布, 实现对电子能带结构及贝里曲率的调控.

上述 SOT 结果证实了 SrRuO_3 具有显著的贝里曲率及强自旋霍尔效应, 能够实现高效的电荷-自旋互转换. 进一步通过应变工程调控 SrRuO_3 的非平庸电子结构, 其电荷-自旋转换效率获得巨大的增强, 超越了 Pt 和 Ta 等传统重金属 (图 6). 另外, 考虑到 SrRuO_3 还具有优异的热稳定性、化学稳定性和高导电性, 以及与磁性金属、氧化物良好的兼容性, 因此是十分具有应用潜力的自旋源材料. 然而, 关于 SrRuO_3 电荷-自旋互转换的效率及其随温度的演化等方面, 目前仍存在一些分歧. 首先, 通过比较 Wahler 等 [56] 和 Ou 等 [58] 的结果可以发现, 在非磁性温度区间, SrRuO_3 的自旋霍尔效应相关参数随着温度的降低而增加, 呈现出一致的趋势; 但在居里温度 (~ 160 K) 以下, Wahler 等观测到逆自旋霍尔电压的陡然降低, Ou 等则发现自旋霍尔电导的持续增加. 这一相悖的结果关乎 SrRuO_3 磁性对电荷-自旋互转换能力的影响, 有待进一步确认及阐明其背后的物理机制. 其次, 虽然目前一致认同 SrRuO_3 高效电荷-自旋互转换的来源是其非平庸电子能带结构带来的显著贝里曲率, 但具体的电荷-自旋转换效率数值仍存在较大的分歧. 如图 6 所示, 在相同的 $\text{SrTiO}_3(001)/\text{SrRuO}_3/\text{Py}$ 结构中, 尽管各层薄膜厚度有些许差异, 但在不同工作中观测到的转换效率 $\eta = 0.05\text{--}0.5$, 存在一个数量级的差别 [59,60], 因而有必要对 SrRuO_3 的电荷-自旋互转换效率进行准确测量. 最后, 尽管 SrRuO_3 展现出显著且高度可调的电荷-自旋转换效率, 但利用其所产生 SOT 驱动磁化翻转的相关报道还十分有限 [61], 翻转阈值电流等关键参数亟待进一步的探索.

3.3 5d 过渡金属氧化物

3.3.1 铱酸锶

5d 过渡金属铱氧化物, 具有强自旋-轨道相互作用和中等强度的电子关联, 是实现和研究关联拓扑量子态的重要材料体系. 在各种铱氧化物中, 层状钙钛矿铱氧化物, 如 Ruddlesden-Popper 结构相

的铱酸锶 $\text{Sr}_{n+1}\text{Ir}_n\text{O}_{3n+1}$, 引起了人们的大量关注. Sr_2IrO_4 ($n = 1$) 作为典型的自旋-轨道耦合的莫特绝缘体, 由强自旋-轨道相互作用和电子关联协同诱导形成 [62]. 在自旋-轨道耦合和晶体场的共同作用下使得 d 轨道劈裂, 在费米面处产生半占据的 $J_{\text{eff}} = 1/2$ (有效角动量量子数为 $1/2$ 的原子轨道, 可以分布 $J_{\text{eff},z} = \pm 1/2$ 的两个电子) 的能带作为导带, 与铜系高温超导体系类似. 随着 n 数值的增加, $\text{Sr}_{n+1}\text{Ir}_n\text{O}_{3n+1}$ 结构逐渐从二维的层状结构转变到三维的结构, 其物理性质也发生相应的转变 [63], 如 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ ($n = 2$) 转变为半导体, 而 SrIrO_3 ($n = \infty$) 为半金属. 目前大量理论和实验研究集中在探究钙钛矿结构 SrIrO_3 中的新奇关联拓扑量子态及 SOT 相关自旋输运特性等方面.

理论预测钙钛矿结构 SrIrO_3 薄膜及异质结构中存在一系列的关联拓扑量子态. Carter 等 [64] 基于紧束缚哈密顿量模型计算, 最早预测在钙钛矿结构 SrIrO_3 体相中存在三维的拓扑节点线半金属态, 其受到自旋-轨道耦合和晶格对称性的保护. Kim 等 [65] 预测在 SrIrO_3 (001) 表面存在狄拉克费米子态, 且具有非平庸的拓扑 Z2 指数, 受时间反演对称性保护. 在实验上, Nie 等 [66] 利用 ARPES 原位表征 LSAT(001)/ SrIrO_3 单晶薄膜的电子结构, 发现了同时存在的电子和空穴型能带以及显著的能带重整化. 有意思的是, 其中的电子型能带揭示 SrIrO_3 可能存在狄拉克锥的电子结构 (图 4(a)), 符合理论预测的拓扑节点线半金属态. Liu 等 [67] 利用 Oxide-MBE 和 ARPES 联合系统原位研究生长在 $\text{SrTiO}_3(001)$ 衬底上的高质量 SrIrO_3 薄膜. 结合 ARPES 结果和第一性原理计算, 他们指出其中电子型能带交错的位置存在能隙打开的迹象 (图 4(b)), 因而不支持理论预测的拓扑半金属态. 进一步地分析表明, 在保持镜面对称的前提下, 通过改变晶体结构的滑移对称性能够控制带隙的宽度, 进而影响 SrIrO_3 的拓扑性质 [68]. 此外, Fujioka 等 [69] 还指出, 调整 SOC 与电荷关联的耦合强度能够有效改变狄拉克节点与费米面的距离, 进而影响 SrIrO_3 的拓扑性质. 由于非平庸拓扑电子结构是存在电荷-自旋之间高效互转换的关键要素, 上述工作通过理论结合实验揭示了 SrIrO_3 电子结构具有非平庸及高度可调的拓扑能带性质, 因而是极具潜力的电荷-自旋互转换材料.

在自旋输运的相关方面, Patri 等 [70] 通过理论

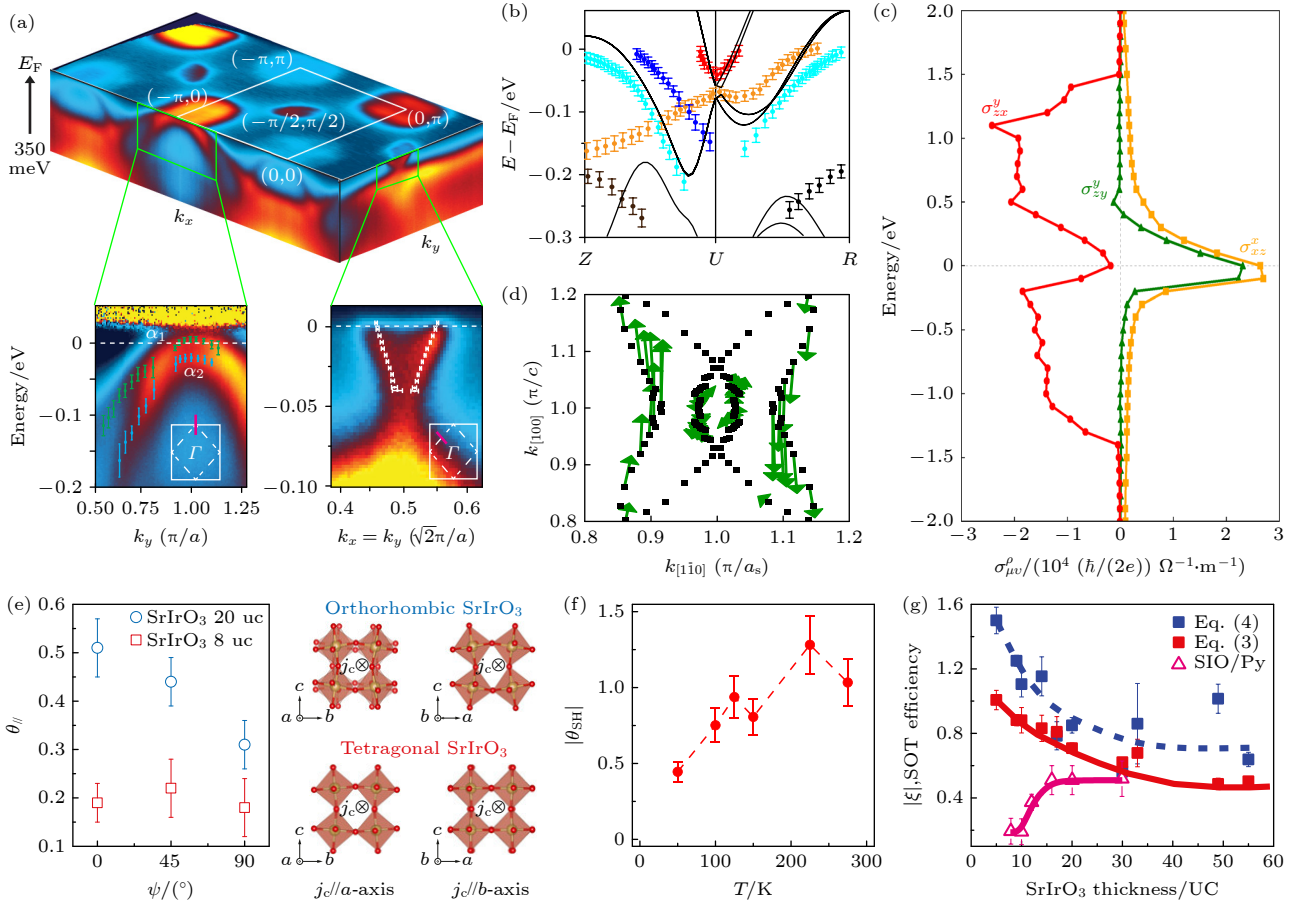


图4 SrIrO₃的电子结构、自旋输运及SOT相关表征结果 (a)上: SrIrO₃(001)费米面附近电子结构的ARPES测量结果;左下:费米面附近的空穴型能带;右下:费米面附近的线性色散电子型能带(出自文献[66],已获得授权);(b) SrIrO₃(001)能带结构的ARPES测量和DFT计算的比较[67];(c) SrIrO₃体相的自旋霍尔电导 σ ,图中 x, y, z 代表SrIrO₃的伪立方结构的高对称轴[70];(d) SrIrO₃费米面上的自旋构型,这种非平庸的自旋构型来源于SOC,并能提供自旋-动量锁定(出自文献[72],已获得授权);(e) 正交相和四方相SrIrO₃(001)的电荷-自旋转换效率,上、下方插图分别为正交、四方相晶体结构的侧视图(出自文献[73],已获得授权);(f) 50—300 K范围内SrIrO₃(001)/CoTb电荷-自旋转换效率随温度的变化(出自文献[76],已获得授权);(g) SrIrO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃和SrIrO₃/Py电荷-自旋转换效率与SrIrO₃厚度的关联性(出自文献[77],已获得授权)

Fig. 4. Electronic structures, spin transport properties and SOT associated characterization results of SrIrO₃. (a) Upper: The electronic structure map near the Fermi surface measured by ARPES; bottom-left: the holelike bands near the Fermi surface; bottom-right: the linearly dispersive electron band near the Fermi surface (Reproduced with permission from Ref. [66]); (b) comparison of the ARPES measurements and DFT calculations in band structure of SrIrO₃ (001)[67]; (c) spin Hall conductivity σ in the SrIrO₃ bulk, here x, y , and z represent the high-symmetry axes of the pseudo-cubic structure of SrIrO₃[70]; (d) spin textures at SrIrO₃ Fermi surface, this nontrivial spin textures are originated from the SOC and offers the spin-momentum locking (Reproduced with permission from Ref. [72]); (e) charge-spin conversion efficiency of SrIrO₃(001)/Py with orthorhombic and tetragonal structures, the top and bottom schematics illustrate side view of the orthorhombic and tetragonal crystalline structures, respectively (Reproduced with permission from Ref. [73]); (f) temperature dependence of charge-spin conversion efficiency of SrIrO₃(001)/CoTb ranging from 50 to 300 K (Reproduced with permission from Ref. [76]); (g) charge-spin conversion efficiency as a function of SrIrO₃ thickness for SrIrO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ (solid squares) and SrIrO₃/Py (opened triangles) (Reproduced with permission from Ref. [77]).

计算 SrIrO₃ 体相的自旋霍尔效应发现, 在强 SOC 的基础上, 狄拉克结线能带结构能够提供巨大的贝里曲率, 使其具有显著的本征自旋霍尔电导, 可达 $10^4 (\hbar/2e) \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ 量级(图 4(c)). Jadaun等[14] 进一步计算了各类本征要素对 SrIrO₃ 自旋霍尔电导

的影响, 发现晶体场强度、晶体结构畸变、费米能级位置、电子关联度等在其中起着决定性的作用. 除了体相的贡献, Chen 等[65,71] 通过理论计算揭示 SrIrO₃ 存在受晶格对称性保护的费米面表面态, 能够实现电荷-自旋互转换. 最近, Kozuka 等[72] 通过

表征非线性平面霍尔效应的方法确认了 SrIrO_3 中的自旋-动量锁定机制, 其来源于对称性破缺界面处非平庸自旋构型的贡献 (图 4(d)). 以上结果表明, SrIrO_3 同时具有电荷-自旋互转换的体相和界面机制, 且与电子结构中的拓扑非平庸特性密切相关. SrIrO_3 的拓扑性质在多自由度耦合下展现出的高度可调性, 意味着通过外延应力、元素掺杂、外场激励等手段能够有效地影响其拓扑性质, 进而调控并增强体系的电荷-自旋互转换, 这为高性能 SOT 器件的实现提供了可行路径.

在电荷-自旋转换效率方面, Nan 等 [73] 在 $\text{SrTiO}_3(001)/\text{SrIrO}_3/\text{Py}$ 中观测到 $\eta_{\text{DL}}=0.5$ 的类阻尼效率, 且随着晶向及氧八面体旋转引起的结构相变发生显著变化 (图 4(e)). Everhardt 等 [74] 在 LSAT 衬底上生长的 SrIrO_3/Py 中观测到与 SrIrO_3 电阻率成逆相关的类阻尼效率 ($\eta_{\text{DL}} \propto 1/\rho$), 并指出该相关性与传统重金属体系不同 ($\eta_{\text{DL}} \propto \rho$), 其来源于自旋-动量锁定机制对转换效率的贡献. Liu 等 [75] 在全氧化物异质结 $\text{SrTiO}_3(110)/\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$ 中观测到晶向依赖的转换效率, 类阻尼效率最高可达 $\eta_{\text{DL}} = 0.86$ 且同时具有非常显著的类场效率. Wang 等 [76] 通过表征亚铁磁 CoTb 对自旋流的响应发现, $\text{SrTiO}_3(001)/\text{SrIrO}_3$ 中的类阻尼效率与温度成正相关, 在室温附近达到 $\eta_{\text{DL}} = 1.2$ (图 4(f)); 此外, 还观测到类阻尼效率与 SrIrO_3 的厚度无明显相关性, 且类场效率的大小可以忽略. Huang 等 [77] 表征生长在 $\text{SrTiO}_3(001)$ 衬底上的 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrIrO}_3$ 发现与 SrIrO_3/Py 不同、与厚度呈逆相关的类阻尼效率 (图 4(g)). 该相关性被认为是氧化物外延界面自由度耦合对电荷-自旋互转换的额外贡献, 当 SrIrO_3 厚度为数纳米时 $\eta_{\text{DL}} > 1$, 但没有观测到明显的类场效率. 最近, Liu 等 [78] 在 $\text{NdGaO}_3(001)/\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrIrO}_3$ 中观测到室温下 $\eta_{\text{DL}} = 0.15$ 的类阻尼效率, 且随着温度的降低, 效率略有提高, 呈现出逆相关性.

根据上述研究结果发现, SrIrO_3 具有非常显著的电荷-自旋互转换能力, 其类阻尼效率能够达到 1 以上, 优于传统的重金属材料 ($\eta_{\text{DL}} < 0.5$), 可与拓扑绝缘体材料相媲美. 更重要的是, 与电子结构和自旋输运性质相似, SrIrO_3 的电荷-自旋转换效率受晶向、应力、界面等因素的影响, 显示出高度的可调性. 如在 Nan 等 [73] 和 Liu 等 [75] 的工作中均观测到受晶向影响的转换效率, $\text{SrIrO}_3(001)$ 的 $[1\bar{1}0]_{\text{O}}$

和 $[001]_{\text{O}}$ 晶向分别为 $\eta_{\text{DL}} = 0.5$ 和 0.3 , $\text{SrIrO}_3(110)$ 的 $[\bar{1}10]_{\text{pc}}$ 和 $[001]_{\text{pc}}$ 晶向分别为 $\eta_{\text{DL}} = 0.9$ 和 0.6 . 同时, 当 SrIrO_3 受到不同程度外延应力时转换效率也不尽相同. 如生长在 SrTiO_3 [73] 和 LSAT [74] 衬底上的 SrIrO_3/Py 效率分别测得 $\eta_{\text{DL}} = 0.5$ 和 0.4 的效率; 单晶 LSMO/ SrIrO_3 生长在 SrTiO_3 [75] 和 NdGaO_3 [78] 衬底上的效率相差了数倍, 约为 $\eta_{\text{DL}} = 1.2$ 和 0.2 . 此外, SrIrO_3 与不同磁性材料之间的异质界面也会影响自旋流的产生和传输. 如在 SrTiO_3 衬底上生长的自旋源/磁性异质结, 当界面为 SrIrO_3 与铁磁性 Py 时, $\eta_{\text{DL}} = 0.5$ [73]; 当界面为 SrIrO_3 与亚铁磁性 CoTb 时, $\eta_{\text{DL}} = 1.1$ [76]; 当界面为 SrIrO_3 与相同晶体结构 LSMO 时, $\eta_{\text{DL}} = 1.2$ [77]. 上述调控手段通过改变 IrO_6 八面体旋转影响多自由度之间的耦合强度, 进而影响电子结构中自旋流产生的相关机制, 如贝里曲率引起的本征自旋霍尔电导、表面态带来的自旋-动量锁定以及界面可能存在的电荷转移和轨道重构导致的各向异性等. 然而, 目前在理解各机制对电荷-自旋转换效率的贡献方面仍存在一些不足. 首先, 目前普遍认为 SrIrO_3 的类阻尼效率来源于自旋霍尔电导, 但基于 $\text{SrIrO}_3/\text{LSMO}$ [77] 及其他拓扑材料的测量结果 [79,80] 以及理论计算 [81] 表明自旋-动量锁定也会贡献类阻尼效率, 因而有必要澄清其中的具体物理机制. 其次, 尽管自旋-动量锁定能够贡献类场效率, 但实际在 SrIrO_3 中观测到的 η_{FL} 数值存在很大差异, 如在 $\text{SrIrO}_3/(\text{Py}, \text{LSMO}, \text{CoTb})$ 中 $\eta_{\text{FL}} < 0.1$, 而在 $\text{SrIrO}_3/\text{SrRuO}_3$ 中 $\eta_{\text{FL}} > 1$, 可见除了自旋-动量锁定, 实际界面处还可能有近邻效应、自旋透过率、铁磁/亚铁磁性等因素带来的影响, 有待后续的梳理与探究.

尽管在物理机制方面, 目前对 SrIrO_3 显著电荷-自旋互转换的机制理解仍存在不足, 需要持续探索并总结归纳多自由度之间的耦合关联, 以实现对其电荷-自旋转换效率有针对性的调控及进一步的增强. 但在自旋电子学应用方面, SrIrO_3 已被证明能够高效地操控磁性材料, 实现不同磁化状态之间的确定性翻转. Liu 等 [75] 利用 SrIrO_3 产生的 SOT, 在 70 K 下操控具有垂直磁各向异性的 SrRuO_3 的磁化状态, 并通过晶体结构工程微调 SrRuO_3 的易磁化轴角度实现了无外场下的确定性翻转; 此外, Liu 等 [78] 还通过 SrIrO_3 在室温下成功翻转了具有极低阻尼系数的室温磁性氧化物 $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$

的磁矩. 以上基于 SrIrO_3 驱动的 SOT 器件仅需 $3 \times 10^{10} - 5 \times 10^{10} \text{ A} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的阈值电流, 相较传统的重金属自旋源材料^[82–84] 具有更低的能量消耗 (图 6). 另外, Ren 等^[85] 构建了 SrIrO_3 与具有垂直磁各向异性的亚铁磁绝缘氧化物形成的异质结构, 观测到了自旋霍尔磁电阻及自旋霍尔反常磁电阻, 为实现全氧化物绝缘体自旋电子学提供了可能. 同时, 由于氧化物家族庞大的种类与丰富的磁性, 将 SrIrO_3 与磁性氧化物相结合的全氧化物体系能够满足自旋存储、传输、逻辑及磁振子等器件的材料需求, 是实现多功能自旋电子器件的理想平台. 此外, Everhardt 等^[74] 在层状钙钛矿结构的 Sr_2IrO_4 中也进行了 SOT 表征, 效率在 0.1 左右; 进一步的效率调控、磁矩翻转以及其他 RP 结构 $\text{Sr}_{n+1}\text{Ir}_n\text{O}_{3n+1}$ 中的 SOT 性质都有待系统性的研究.

3.3.2 钽酸钾

钽酸钾 (KTaO_3) 是一种钙钛矿结构的绝缘材料, 其氧八面体中的钽离子为 $5d^0$ 轨道排列, 因此, 其许多基本性质与 SrTiO_3 相似, 如宽禁带^[86]、表面/界面处存在 2DEG^[87–89] 以及伴随出现的超导电性^[90,91] 等. 与 SrTiO_3 不同的是, KTaO_3 具有更强的 SOC, 导致其三重简并 t_{2g} 轨道发生进一步劈裂, 产生更为复杂的电子结构 (图 5(a)). King^[87] 和 Santander-Syro 等^[88] 通过 ARPES 表征 KTaO_3 (001) 表面的电子结构, 确认了其费米能级附近存在多个子带交叉的复杂能带 (图 5(b)). 有别于体相的绝缘性, 这些观测到的电子型能带意味着 KTaO_3 表面具有良好的导电性, 呈现出 2DEG 态, 且其中的载流子呈现出不同的有效质量, 这是来自强度相当的 SOC 和关联效应、以及量子限域共同作用的结果. 由于表面/界面的空间反演不对称, 2DEG 在 Rashba 效应下发生自旋劈裂, 形成自旋-动量锁定表面态, 加上体系中的强 SOC, 使得 KTaO_3 (001) 成为自旋电子材料的优质候选. 除了 (001) 晶向, Bruno 等^[89] 也在 KTaO_3 (111) 中也观测到了相似电子结构特征的 2DEG. 不同的是, 由于所有 t_{2g} 轨道参与贡献以及 (111) 的晶体对称性, 费米面附近呈现出奇特的星形-六角形结构 (图 5(c)). 这种特殊的对称性导致新奇的自旋-动量锁定: 有别于经典的 Rashba 图像, 星形-六角形费米面上的

动量劈裂不恒定, 自旋-动量锁定只出现在高对称方向, 且存在面外方向的自旋分量. 这些特性是电荷-自旋互转换中产生特殊自旋取向的重要因素. 此外, KTaO_3 与 LaTiO_3 ^[92], LaAlO_3 ^[93,94], EuO ^[95], LaVO_3 ^[96] 等材料的异质界面也具有 2DEG 态, 并展现出一些新奇的特性, 如界面载流子的高迁移率、自旋极化、自旋相关参数的高度可调性等.

由于 KTaO_3 界面 2DEG 的强自旋-轨道耦合特性和独特的电子能带结构, 激起了人们对其电荷-自旋互转换性质的研究兴趣. Zhang 等^[97] 在 KTaO_3/EuO 界面的 2DEG 系统中, 利用热自旋注入的方式, 通过逆 Rashba-Edelstein 效应产生了 1 nA 的电荷流 (图 5(d)). 此外, 他们通过表征体系的自旋塞贝克系数, 定性地确认了 KTaO_3/EuO 中存在远高于经典 Pt/YIG 体系的电荷-自旋转换效率. 最近, Vicent-Arche 等^[98] 通过自旋泵浦-铁磁共振 (SP-FMR) 和单向磁电阻 (UMR) 两种方法分别定量地表征了 KTaO_3/Al 界面的电荷-自旋转换效率. 在 SP-FMR 实验中, 他们利用相邻的 NiFe 层将自旋流注入 2DEG, 通过测量逆 Rashba-Edelstein 效应产生的横向电荷流, 获得了二维体系的转换效率 $\lambda_{\text{IEE}} \sim -3.5 \text{ nm}$ (图 5(e)). 同时, 他们通过表征 2DEG 中由 Rashba-Edelstein 效应引起的 UMR, 观测到电荷-自旋互转换相关的双线性磁电阻效应 (图 5(f)), 并进一步通过计算给出了 $\lambda_{\text{IEE}} \sim -6 - 25 \text{ nm}$. 尽管复杂多能带贡献的 2DEG 为结果的估算带来一些偏差, 但上述两种表征方法还是证明了 KTaO_3 中存在巨大的、与 SrTiO_3 体系媲美的转换效率 (图 6). 此外, 相较于 KTaO_3/EuO 界面, KTaO_3/Al 界面的转换效率更为显著, 表明 KTaO_3 2DEG 的电荷-自旋互转换能够通过不同的异质界面进行调控和增强.

目前对 KTaO_3 电荷-自旋互转换的相关研究虽然处于起步阶段, 但其展现出与 SrTiO_3 媲美的优异性能表明其具有作为自旋源材料的巨大潜力, 加上 KTaO_3 具有显著的 SOC、界面复杂的载流子输运特性以及极性界面 (KO^+ 或 TaO^-) 等特点, 使其电子结构和电荷-自旋互转换性质更为敏感且丰富可调, 是探究新奇量子态与相关新型自旋电子器件的优异材料.

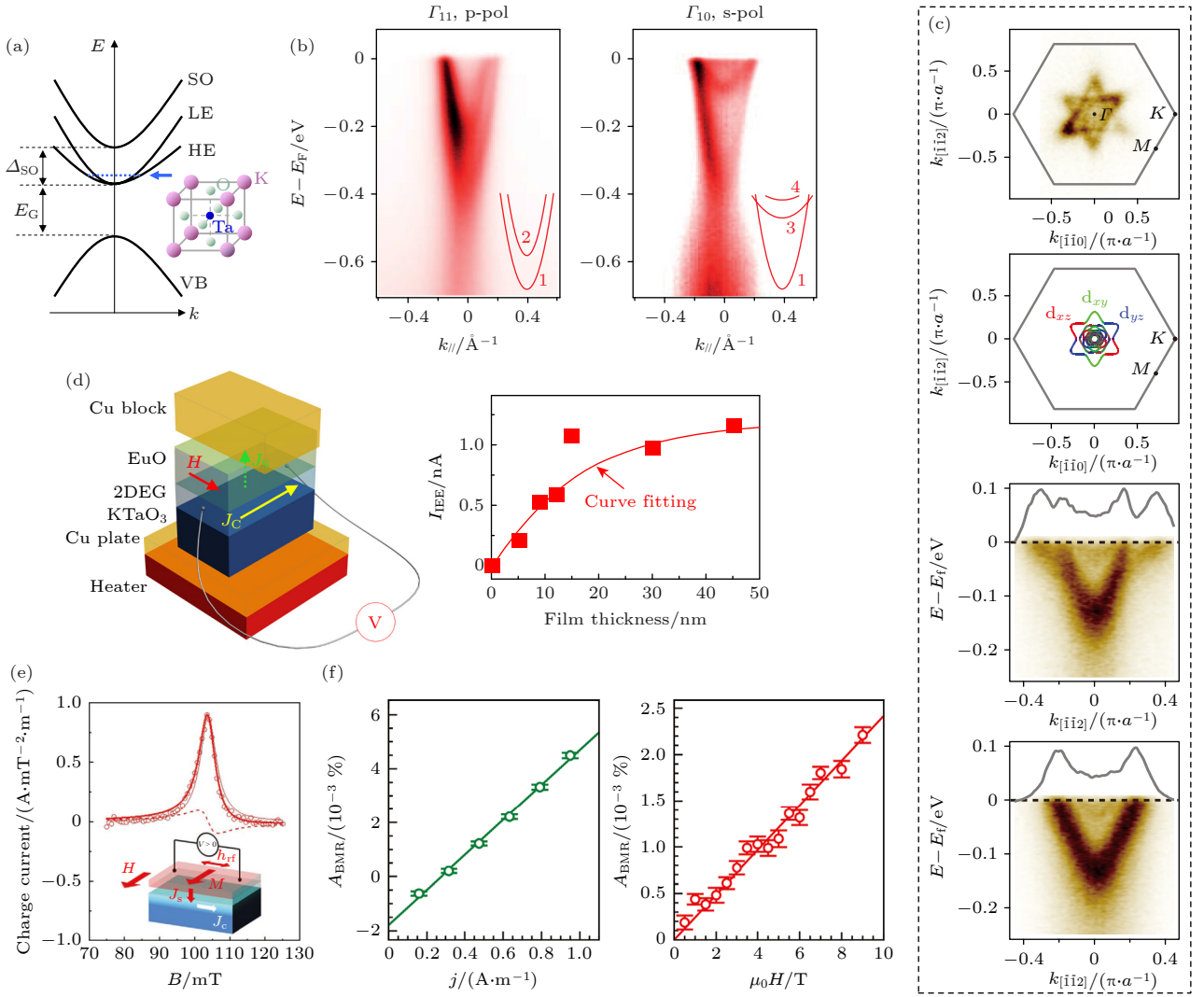


图5 KTaO₃的电子结构、自旋输运及SOT相关表征结果 (a) KTaO₃晶体结构和能带结构示意图,由 t_{2g} 轨道构成的导带在SOC作用下劈裂成HE, LE和SO三个子带(出自文献[86],已获得授权); (b) KTaO₃(001)表面2DEG的ARPES结果,测量的能带结构示意图由红线表示(出自文献[87],已获得授权); (c) KTaO₃(111)表面2DEG的ARPES结果,左侧为费米面的测量(上)和计算(下)结果,星型-六角形费米面由 d_{xy} , d_{xz} , d_{yz} 轨道构成;右侧为两个高对称方向的费米面测量结果侧视图(出自文献[89],已获得授权); (d) KTaO₃/EuO界面的热自旋注入与inverse Edelstein效应示意图(上),及测量的逆Edelstein电流与EuO厚度的关联性(下)(出自文献[97],已获得授权); (e)通过逆Rashba-Edelstein效应产生的电荷流与所施加dc磁场的关联性,插图为SP-FMR测量的配置图(出自文献[98],已获得授权); (f)双线性磁电阻与电流(左)和磁场(右)的关系(出自文献[98],已获得授权)

Fig. 5. Electronic structures, spin transport properties and SOT associated characterization results of KTaO₃: (a) Schematic crystal-line structure and band structure of KTaO₃, the conducting t_{2g} band consists of complicated HE, LE and SO subbands due to SOC (Reproduced with permission from Ref. [86]); (b) ARPES results of surface 2DEG in KTaO₃(001), the red curves presents schematics of the measured band structure (Reproduced with permission from Ref. [87]); (c) ARPES results of surface 2DEG in KTaO₃(111); leftside: measured (upper) and calculated (bottom) starlike-hexagonal Fermi surface of the 2DEG, which consists of d_{xy} , d_{xz} and d_{yz} orbits; rightside: sideviews of the measured Fermi surface along high symmetry directions (Reproduced with permission from Ref. [89]); (d) schematic for thermal spin injection and inverse Edelstein effect (upper) and EuO thickness dependent inverse Edelstein current (bottom) of the KTaO₃/EuO interface (Reproduced with permission from Ref. [97]); (e) the transverse charge current generated through the inverse Rashba-Edelstein effect as a function of applied dc magnetic field, the inset schematic presents the SP-FMR measurement configuration (Reproduced with permission from Ref. [98]); (f) bilinear magnetoresistance as functions of applied charge current (left) and magnetic field (right) (Reproduced with permission from Ref. [98]).

4 展望

相较于作为早期SOT器件自旋源材料被广泛研究的重金属体系,过渡金属氧化物在该领域短

间内崭露头角便获得了巨大的关注.上文介绍的3d-5d钙钛矿家族的SrTiO₃, SrRuO₃, SrIrO₃和KTaO₃均为该材料体系的典型代表,展现出包括电荷-自旋转换效率和翻转阈值电流两方面的优异

性能(图6). 综合以上优势, 再加上过渡金属氧化物丰富的物性、多自由度的灵活可调性以及优异的晶体结构兼容性, 是构建与实现新型自旋电子器件的理想材料体系.

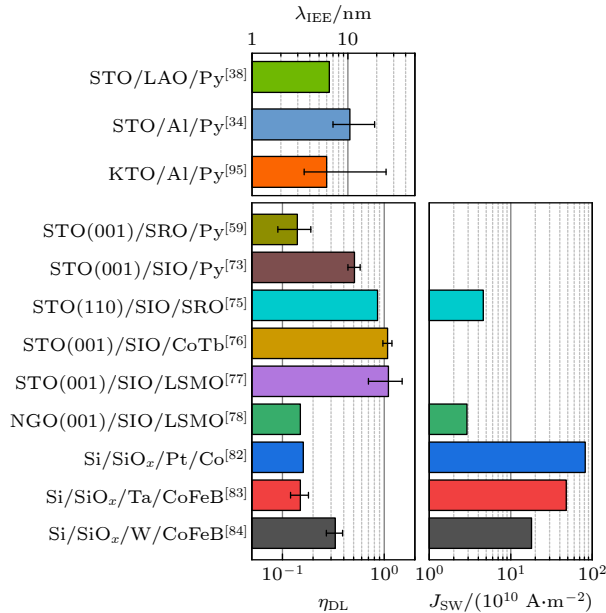


图6 过渡金属氧化物和重金属体系中电荷-自旋转换效率及翻转阈值电流密度的比较

Fig. 6. Comparison of charge-spin conversion efficiency and switching threshold current density between transition metal oxides and heavy metals.

近几年的研究还集中于少数几种材料, 在庞大的过渡金属氧化物中仍有许多潜力巨大的体系有待进一步挖掘. 首先, 通过构建氧化物异质结构, 利用界面对晶体结构、磁电性质、电子结构等物性的调控作用有望显著影响和增强电荷-自旋互转换[99,100]. 如通过多元超晶格诱导导出单一相无法获得的自旋输运性质, 以及通过界面设计在2DEG系统中将显著的转换效率保持至室温等. 其次, 通过对称性设计构建复杂结构体系, 对自旋流的自旋取向进行有效操控并加以利用, 以实现磁化状态的全电翻转是迈向应用的重要一步. 在重金属和二维材料中, 利用对称性破缺的结构, 如构造垂直方向或横向的材料分布梯度、引入反铁磁、利用铁电层等方式[101–103]可产生自旋方向垂直于界面的自旋流, 从而实现无外场辅助下垂直磁矩的确定性翻转, 这对于低功耗高集成度SOT器件的实现至关重要. 在过渡金属氧化物中, SrTiO₃(111)表面2DEG的自旋动量锁定存在垂直于界面的自旋极化[104], 是有望实现垂直磁矩无场下确定性翻转的系统. 其

他氧化物中虽尚无相关报道, 但在生长过程中通过对材料组分、晶体结构的精细调控影响对称性是切实可行的, 后续的研究也应该有计划地开展起来. 另一方面, 在ABO₃型钙钛矿氧化物中进一步替换B位原子种类, 如SrRhO₃和SrMoO₃等可能可以带来更丰富的电子结构和SOT性质; 在层状钙钛矿结构中, 如Sr₂IrO₄, 的SOT的研究也较为初步, 可以进一步探索不同层状钙钛矿材料的SOT性质和调控. 此外, 其他结构的氧化物中也展现出优异电荷-自旋互转换性质的潜力. 如在铜铁矿结构PdCoO₂中观测到了较大的Rashba劈裂[105], 在金红石结构RuO₂中观测到了由各向异性自旋劈裂产生的新型自旋力矩[106–108]. 其他如尖晶石结构、焦绿石结构、双钙钛矿结构等氧化物薄膜和异质结构的自旋-电荷互转换都有待研究.

在拓展材料体系之外, 利用氧化物多自由度耦合的特点, 有望在过渡金属氧化物薄膜和异质结构中实现对SOT强度的精确调控. 前文提及自旋霍尔效应和表面态对自旋-轨道力矩的类阻尼力矩和类场力矩有不同程度的贡献, 而这两个成分的比例能够显著影响磁化翻转的能耗及响应时间、畴壁移动速度等动力学过程[23–26,109–111]. 因此, 通过多个自由度影响电子结构, 分别对类阻尼力矩和类场力矩进行强度和方向的精确调控, 是实现高性能SOT器件的重要研究方向.

最后, 建立氧化物电子结构与电荷-自旋互转换之间的关联规律对理解和控制器件性能是至关重要的. 目前在3d氧化物SrTiO₃的2DEG中能够较好地将其相对简单的能带结构与电荷-自旋互转换建立联系, 其中发现的新奇电子结构对转换效率的贡献可以通过理论较好地诠释. 但具有强SOC的4d和5d氧化物, 有待结合第一性原理计算与ARPES等实验确定其复杂的电子能带结构, 进而建立电子能带结构与自旋输运性质之间的关联规律, 深刻理解体系中显著电荷-自旋互转换的起源及增强电荷-自旋转换效率. 一方面, 通过单一变量的连续调控, 如同族元素的化学掺杂, 能够较好地将电子结构、晶体结构及电荷-自旋转换效率进行系统性关联. 另一方面, 上文提到电子结构对电荷-自旋互转换的贡献不仅体现在线性响应下的SOT上, 还体现在非线性响应下出现的新奇自旋输运现象[18,19,72,105,112–117]上. 如在氧化物PdCoO₂[105]和SrIrO₃[72,117]观测到的非线性平面霍尔效应很好地

证实了其电子结构中存在非平庸能带结构导致的表面态. 此外, Lao 等^[117]进一步将线性与非线性响应表征相结合, 从 SOT 与非线性平面霍尔效应的关联性入手, 探讨了自旋霍尔效应和表面态对电荷-自旋转换效率的贡献. 线性与非线性响应相结合的表征手段能将不同机制带来的贡献进行解耦, 将成为阐明电子结构对电荷-自旋互转换贡献机制的强力工具.

参考文献

- [1] Agarwal S, Aimone B, Akinaga H, Akinola O, Badaroglu M, Bersuker G, Binek C 2021 *International Roadmap For Devices And Systems* (2021 Edition) <https://irds.ieee.org/editions/2021>
- [2] Manipatruni S, Nikonov D E, Young I A 2018 *Nat. Phys.* **14** 338
- [3] Dieny B, Prejbeanu I L, Garello K, Gambardella P, Freitas P, Lehnndorff R, Raberg W, Ebels U, Demokritov S O, Akerman J, Deac A, Pirro P, Adelmann C, Anane A, Chumak A V, Hirohata A, Mangin S, Valenzuela S O, Onbasli M C, d'Aquino M, Prenat G, Finocchio G, Lopez-Diaz L, Chantrell R, Chubykalo-Fesenko O, Bortolotti P 2020 *Nat. Electron.* **3** 446
- [4] 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 Trans. Magn.* **57** 800439
- [5] Chen H, Yi D 2021 *APL Mater.* **9** 060908
- [6] Trier F, Noël P, Kim J V, Attané J P, Vila L, Bibes M 2021 *Nat. Rev. Mater.* **7** 258
- [7] Witczak-Krempa W, Chen G, Kim Y B, Balents L 2014 *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **5** 57
- [8] Armitage N P, Mele E J, Vishwanath A 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 015001
- [9] Yan B, Felser C 2017 *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **8** 337
- [10] Xiao D, Chang M C, Niu Q 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 1959
- [11] Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, Back C H, Jungwirth T 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 1213
- [12] Manchon A, Koo H C, Nitta J, Frolov S M, Duine R A 2015 *Nat. Mater.* **14** 871
- [13] Itoh S, Endoh Y, Yokoo T, Ibuka S, Park J G, Kaneko Y, Takahashi K S, Tokura Y, Nagaosa N 2016 *Nat. Commun.* **7** 11788
- [14] Jadaun P, Register L F, Banerjee S K 2020 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **117** 11878
- [15] Manchon A, Železný J, Miron I M, Jungwirth T, Sinova J, Thiaville A, Garello K, Gambardella P 2019 *Rev. Mod. Phys.* **91** 035004
- [16] Sodemann I, Fu L 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 216806
- [17] Ma Q, Xu S Y, Shen H, MacNeill D, Fatemi V, Chang T R, Mier Valdivia A 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, Jarillo-Herrero P 2019 *Nature* **565** 337
- [18] He P, Zhang S S, Zhu D, Liu Y, Wang Y, Yu J, Vignale G, Yang H 2018 *Nat. Phys.* **14** 495
- [19] He P, Zhang S S, Zhu D, Shi S, Heinonen O G, Vignale G, Yang H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 016801
- [20] Slonczewski J C 1996 *J. Magn. Magn. Mater.* **159** L1
- [21] Berger L 1996 *Phys. Rev. B* **54** 9353
- [22] Zhang S, Levy P M, Fert A 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 236601
- [23] Katine J A, Albert F J, Buhrman R A, Myers E B, Ralph D C 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3149
- [24] Legrand W, Ramaswamy R, Mishra R, Yang H 2015 *Phys. Rev. Appl.* **3** 064012
- [25] Yoon J, Lee S W, Kwon J H, Lee J M, Son J, Qiu X, Lee K J, Yang H 2017 *Sci. Adv.* **3** e1603099
- [26] Liu Y T, Huang C C, Chen K H, Huang Y H, Tsai C C, Chang T Y, Pai C F 2021 *Phys. Rev. Appl.* **16** 024021
- [27] Imada M, Fujimori A, Tokura Y 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 1039
- [28] Pai Y Y, Tylan-Tyler A, Irvin P, Levy J 2018 *Rep. Prog. Phys.* **81** 036503
- [29] Benthem K V, Elsässer C, French R H 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 6156
- [30] Ohtomo A, Hwang H Y 2004 *Nature* **427** 423
- [31] Stemmer S, James Allen S 2014 *Annu. Rev. Mater. Sci.* **44** 151
- [32] Reyren N, Thiel S, Caviglia A D, Kourkoutis L F, Hammerl G, Richter C, Schneider C W, Kopp T, Rüetschi A S, Jaccard D, Gabay M, Müller D A, Triscone J M, Mannhart J 2007 *Science* **317** 1196
- [33] Trier F, Prawiroatmodjo G E, Zhong Z, Christensen D V, von Soosten M, Bhowmik A, Lastra J M, Chen Y, Jespersen T S, Pryds N 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 096804
- [34] Vaz D C, Noel P, Johansson A, Gobel B, Bruno F Y, Singh G, McKeown-Walker S, Trier F, Vicente-Arche L M, Sander A, Valencia S, Bruneel P, Vivek M, Gabay M, Bergeal N, Baumberger F, Okuno H, Barthelémy A, Fert A, Vila L, Mertig I, Attane J P, Bibes M 2019 *Nat. Mater.* **18** 1187
- [35] King P D, McKeown Walker S, Tamai A, de la Torre A, Eknapakul T, Buaphet P, Mo S K, Meevasana W, Bahrany M S, Baumberger F 2014 *Nat. Commun.* **5** 3414
- [36] Ben Shalom M, Sachs M, Rakhmilevitch D, Palevski A, Dagan Y 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 126802
- [37] Caviglia A D, Gabay M, Gariglio S, Reyren N, Cancellieri C, Triscone J M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 126803
- [38] Lesne E, Fu Y, Oyarzun S, Rojas-Sanchez J C, Vaz D C, Naganuma H, Sicoli G, Attane J P, Jamet M, Jacquet E, George J M, Barthelémy A, Jaffres H, Fert A, Bibes M, Vila L 2016 *Nat. Mater.* **15** 1261
- [39] Kaneta-Takada S, Kitamura M, Arai S, Arai T, Okano R, Anh L D, Endo T, Horiba K, Kumigashira H, Kobayashi M, Seki M, Tabata H, Tanaka M, Ohya S 2022 *Nat. Commun.* **13** 5631
- [40] Noel P, Trier F, Vicente Arche L M, Brehin J, Vaz D C, Garcia V, Fusil S, Barthelémy A, Vila L, Bibes M, Attane J P 2020 *Nature* **580** 483
- [41] Wang Y, Ramaswamy R, Motapothula M, Narayanapillai K, Zhu D, Yu J, Venkatesan T, Yang H 2017 *Nano Lett.* **17** 7659
- [42] Sinova J, Culcer D, Niu Q, Sinitsyn N A, Jungwirth T, MacDonald A H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 126603
- [43] Jin M J, Moon S Y, Park J, Modepalli V, Jo J, Kim S I, Koo H C, Min B C, Lee H W, Baek S H, Yoo J W 2017 *Nano Lett.* **17** 36
- [44] Trier F, Vaz D C, Bruneel P, Noel P, Fert A, Vila L, Attane J P, Barthelémy A, Gabay M, Jaffres H, Bibes M 2020 *Nano Lett.* **20** 395

- [45] Grigera S A, Gegenwart P, Borzi R A, Weickert F, Schofield A J, Perry R S, Tayama T, Sakakibara T, Maeno Y, Green A G, Mackenzie A P 2004 *Science* **306** 1154
- [46] Luke G M, Fudamoto Y, Kojima K M, Larkin M I, Merrin J, Nachumi B, Uemura Y J, Maeno Y, Mao Z Q, Mori Y, Nakamura H, Sigrist M 1998 *Nature* **394** 558
- [47] Koster G, Klein L, Siemons W, Rijnders G, Dodge J S, Eom C B, Blank D H A, Beasley M R 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 253
- [48] Fang Z, Nagaosa N, Takahashi K S, Asamitsu A, Mathieu R, Ogasawara T, Yamada H, Kawasaki M, Tokura Y, Terakura K 2003 *Science* **302** 92
- [49] Mathieu R, Asamitsu A, Yamada H, Takahashi K S, Kawasaki M, Fang Z, Nagaosa N, Tokura Y 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 016602
- [50] Chen Y, Bergman D L, Burkov A A 2013 *Phys. Rev. B* **88** 125110
- [51] Takiguchi K, Wakabayashi Y K, Irie H, Krockenberger Y, Otsuka T, Sawada H, Nikolaev S A, Das H, Tanaka M, Taniyasu Y, Yamamoto H 2020 *Nat. Commun.* **11** 4969
- [52] Lin W, Liu L, Liu Q, Li L, Shu X, Li C, Xie Q, Jiang P, Zheng X, Guo R, Lim Z, Zeng S, Zhou G, Wang H, Zhou J, Yang P, Ariando, Pennycook S J, Xu X, Zhong Z, Wang Z, Chen J 2021 *Adv. Mater.* **33** 2101316
- [53] Tian D, Liu Z, Shen S, Li Z, Zhou Y, Liu H, Chen H, Yu P 2021 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **118** 2101946118
- [54] Haidar S M, Shiomi Y, Lustikova J, Saitoh E 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 152408
- [55] Richter T, Paleschke M, Wahler M, Heyroth F, Deniz H, Hesse D, Schmidt G 2017 *Phys. Rev. B* **96** 184407
- [56] Wahler M, Homonnay N, Richter T, Muller A, Eisenschmidt C, Fuhrmann B, Schmidt G 2016 *Sci. Rep.* **6** 28727
- [57] Mosendz O, Pearson J E, Fradin F Y, Bauer G E, Bader S D, Hoffmann A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 046601
- [58] Ou Y, Wang Z, Chang C S, Nair H P, Paik H, Reynolds N, Ralph D C, Muller D A, Schlom D G, Buhrman R A 2019 *Nano Lett.* **19** 3663
- [59] Zhou J, Shu X, Lin W, Shao D F, Chen S, Liu L, Yang P, Tsymbal E Y, Chen J 2021 *Adv. Mater.* **33** 2007114
- [60] Wei J, Zhong H, Liu J, Wang X, Meng F, Xu H, Liu Y, Luo X, Zhang Q, Guang Y, Feng J, Zhang J, Yang L, Ge C, Gu L, Jin K, Yu G, Han X 2021 *Adv. Funct. Mater.* **31** 2100380
- [61] Li S, Lao B, Lu Z, Zheng X, Zhao K, Gong L, Tang T, Wu K, Li R W, Wang Z 2023 *Phys. Rev. Mater.* **7** 024418
- [62] Kim B J, Jin H, Moon S J, Kim J Y, Park B G, Leem C S, Yu J, Noh T W, Kim C, Oh S J, Park J H, Durairaj V, Cao G, Rotenberg E 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 076402
- [63] Moon S J, Jin H, Kim K W, Choi W S, Lee Y S, Yu J, Cao G, Sumi A, Funakubo H, Bernhard C, Noh T W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 226402
- [64] Carter J M, Shankar V V, Zeb M A, Kee H Y 2012 *Phys. Rev. B* **85** 115105
- [65] Kim H S, Chen Y, Kee H Y 2015 *Phys. Rev. B* **91** 235103
- [66] Nie Y F, King P D, Kim C H, Uchida M, Wei H I, Faeth B D, Ruf J P, Ruff J P, Xie L, Pan X, Fennie C J, Schlom D G, Shen K M 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 016401
- [67] Liu Z T, Li M Y, Li Q F, Liu J S, Li W, Yang H F, Yao Q, Fan C C, Wan X G, Wang Z, Shen D W 2016 *Sci. Rep.* **6** 30309
- [68] Liu J, Kriegner D, Horak L, Puggioni D, Rayan Serrao C, Chen R, Yi D, Frontera C, Holy V, Vishwanath A, Rondinelli J M, Marti X, Ramesh R 2016 *Phys. Rev. B* **93** 085118
- [69] Fujioka J, Yamada R, Kawamura M, Sakai S, Hirayama M, Arita R, Okawa T, Hashizume D, Hoshino M, Tokura Y 2019 *Nat. Commun.* **10** 362
- [70] Patri A S, Hwang K, Lee H W, Kim Y B 2018 *Sci. Rep.* **8** 8052
- [71] Chen Y, Lu Y M, Kee H Y 2015 *Nat. Commun.* **6** 6593
- [72] Kozuka Y, Isogami S, Masuda K, Miura Y, Das S, Fujioka J, Ohkubo T, Kasai S 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 236801
- [73] Nan T, Anderson T J, Gibbons J, Hwang K, Campbell N, Zhou H, Dong Y Q, Kim G Y, Shao D F, Paudel T R, Reynolds N, Wang X J, Sun N X, Tsymbal E Y, Choi S Y, Rzechowski M S, Kim Y B, Ralph D C, Eom C B 2019 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **116** 16186
- [74] Everhardt A S, De M, Huang X, Sayed S, Gosavi T A, Tang Y, Lin C C, Manipatruni S, Young I A, Datta S, Wang J P, Ramesh R 2019 *Phys. Rev. Mater.* **3** 051201
- [75] Liu L, Qin Q, Lin W, Li C, Xie Q, He S, Shu X, Zhou C, Lim Z, Yu J, Lu W, Li M, Yan X, Pennycook S J, Chen J 2019 *Nat. Nanotechnol.* **14** 939
- [76] Wang H, Meng K Y, Zhang P, Hou J T, Finley J, Han J, Yang F, Liu L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 232406
- [77] Huang X, Sayed S, Mittelstaedt J, Susarla S, Karimeddiny S, Caretta L, Zhang H, Stoica V A, Gosavi T, Mahfouzi F, Sun Q, Ercius P, Kioussis N, Salahuddin S, Ralph D C, Ramesh R 2021 *Adv. Mater.* **33** e2008269
- [78] Liu L, Zhou G, Shu X, Li C, Lin W, Ren L, Zhou C, Zhao T, Guo R, Xie Q, Wang H, Zhou J, Yang P, Pennycook S J, Xu X, Chen J 2022 *Phys. Rev. B* **105** 144419
- [79] 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
- [80] Li P, Wu W, Wen Y, Zhang C, Zhang J, Zhang S, Yu Z, Yang S A, Manchon A, Zhang X X 2018 *Nat. Commun.* **9** 3990
- [81] Amin V P, Stiles M D 2016 *Phys. Rev. B* **94** 104420
- [82] Garelo K, Miron I M, Avci C O, Freimuth F, Mokrousov Y, Blugel S, Auffret S, Boule O, Gaudin G, Gambardella P 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 587
- [83] Liu L, Pai C F, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Science* **336** 555
- [84] Pai C F, Liu L, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 122404
- [85] Ren Z, Lao B, Zheng X, Liao L, Lu Z, Li S, Yang Y, Cao B, Wen L, Zhao K, Wang L, Bai X, Hao X, Liao Z, Wang Z, Li R W 2022 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14** 15407
- [86] Nakamura H, Kimura T 2009 *Phys. Rev. B* **80** 121308
- [87] King P D, He R H, Eknapakul T, Buaphet P, Mo S K, Kaneko Y, Harashima S, Hikita Y, Bahramy M S, Bell C, Hussain Z, Tokura Y, Shen Z X, Hwang H Y, Baumberger F, Meevasana W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 117602
- [88] Santander-Syro A F, Bareille C, Fortuna F, Copie O, Gabay M, Bertran F, Taleb-Ibrahimi A, Le Fèvre P, Herranz G, Reyren N, Bibes M, Barthélémy A, Lecoer P, Guevara J, Rozenberg M J 2012 *Phys. Rev. B* **86** 121107
- [89] Bruno F Y, McKeown Walker S, Riccò S, la Torre A, Wang Z, Tamai A, Kim T K, Hoesch M, Bahramy M S, Baumberger F 2019 *Adv. Electron. Mater.* **5** 1800860
- [90] Liu C, Yan X, Jin D, Ma Y, Hsiao H W, Lin Y, Bretz-Sullivan T M, Zhou X, Pearson J, Fisher B, Jiang J S, Han W, Zuo J M, Wen J, Fong D D, Sun J, Zhou H, Bhattacharya A 2021 *Science* **371** 716
- [91] Chen Z, Liu Y, Zhang H, Liu Z, Tian H, Sun Y, Zhang M, Zhou Y, Sun J, Xie Y 2021 *Science* **372** 721

- [92] Zou K, Ismail-Beigi S, Kisslinger K, Shen X, Su D, Walker F J, Ahn C H 2015 *APL Mater.* **3** 036104
- [93] Zhang H, Zhang H, Yan X, Zhang X, Zhang Q, Zhang J, Han F, Gu L, Liu B, Chen Y, Shen B, Sun J 2017 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9** 36456
- [94] Zhang H, Yan X, Zhang X, Wang S, Xiong C, Zhang H, Qi S, Zhang J, Han F, Wu N, Liu B, Chen Y, Shen B, Sun J 2019 *ACS Nano* **13** 609
- [95] Zhang H, Yun Y, Zhang X, Zhang H, Ma Y, Yan X, Wang F, Li G, Li R, Khan T, Chen Y, Liu W, Hu F, Liu B, Shen B, Han W, Sun J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 116803
- [96] Wadehra N, Tomar R, Varma R M, Gopal R K, Singh Y, Dattagupta S, Chakraverty S 2020 *Nat. Commun.* **11** 874
- [97] Zhang H, Ma Y, Zhang H, Chen X, Wang S, Li G, Yun Y, Yan X, Chen Y, Hu F, Cai J, Shen B, Han W, Sun J 2019 *Nano Lett.* **19** 1605
- [98] Vicente-Arche L M, Brehin J, Varotto S, Cosset-Cheneau M, Mallik S, Salazar R, Noel P, Vaz D C, Trier F, Bhattacharya S, Sander A, Le Fevre P, Bertran F, Saiz G, Menard G, Bergeal N, Barthelémy A, Li H, Lin C C, Nikonov D E, Young I A, Rault J E, Vila L, Attane J P, Bibes M 2021 *Adv. Mater.* **33** e2102102
- [99] Hwang H Y, Iwasa Y, Kawasaki M, Keimer B, Nagaosa N, Tokura Y 2012 *Nat. Mater.* **11** 103
- [100] Ramesh R, Schlom D G 2019 *Nat. Rev. Mater.* **4** 257
- [101] Zheng Z, Zhang Y, Lopez-Dominguez V, Sanchez-Tejerina L, Shi J, Feng X, Chen L, Wang Z, Zhang Z, Zhang K, Hong B, Xu Y, Zhang Y, Carpentieri M, Fert A, Finocchio G, Zhao W, Khalili Amiri P 2021 *Nat. Commun.* **12** 4555
- [102] Oh Y W, Chris Baek S H, Kim Y M, Lee H Y, Lee K D, Yang C G, Park E S, Lee K S, Kim K W, Go G, Jeong J R, Min B C, Lee H W, Lee K J, Park B G 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 878
- [103] Yu G, Upadhyaya P, Fan Y, Alzate J G, Jiang W, Wong K L, Takei S, Bender S A, Chang L T, Jiang Y, Lang M, Tang J, Wang Y, Tserkovnyak Y, Amiri P K, Wang K L 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 548
- [104] He P, Walker S M, Zhang S S, Bruno F Y, Bahramy M S, Lee J M, Ramaswamy R, Cai K, Heinonen O, Vignale G, Baumberger F, Yang H 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 266802
- [105] Lee J H, Harada T, Trier F, Marcano L, Godel F, Valencia S, Tsukazaki A, Bibes M 2021 *Nano Lett.* **21** 8687
- [106] Gonzalez-Hernandez R, Smejkal L, Vyborny K, Yahagi Y, Sinova J, Jungwirth T, Zelezny J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 127701
- [107] Bose A, Schreiber N J, Jain R, Shao D F, Nair H P, Sun J, Zhang X S, Muller D A, Tsymbal E Y, Schlom D G, Ralph D C 2022 *Nat. Electron.* **5** 267
- [108] Bai H, Han L, Feng X Y, Zhou Y J, Su R X, Wang Q, Liao L Y, Zhu W X, Chen X Z, Pan F, Fan X L, Song C 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 197202
- [109] Taniguchi T, Mitani S, Hayashi M 2015 *Phys. Rev. B* **92** 024428
- [110] Gomonay O, Jungwirth T, Sinova J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 017202
- [111] Zhu D, Zhao W 2020 *Phys. Rev. Appl.* **13** 044078
- [112] Yasuda K, Tsukazaki A, Yoshimi R, Kondou K, Takahashi K S, Otani Y, Kawasaki M, Tokura Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 137204
- [113] Dyrda A, Barnas J, Fert A 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 046802
- [114] Yu X Q, Zhu Z G, Su G 2021 *Phys. Rev. B* **103** 035410
- [115] Kumar D, Hsu C H, Sharma R, Chang T R, Yu P, Wang J, Eda G, Liang G, Yang H 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 421
- [116] Rao W, Zhou Y L, Wu Y J, Duan H J, Deng M X, Wang R Q 2021 *Phys. Rev. B* **103** 155415
- [117] Lao B, Liu P, Zheng X, Lu Z, Li S, Zhao K, Gong L, Tang T, Wu K, Shi YG, Sun Y, Chen X Q, Li R W, Wang Z 2022 *Phys. Rev. B* **106** L220409

SPECIAL TOPIC—Novel physical properties of functional oxide thin films

Research progress of novel quantum states and charge-spin interconversion in transition metal oxides^{*}Lao Bin Zheng Xuan Li Sheng Wang Zhi-Ming[†]*(Key Laboratory of Magnetic Materials and Devices, Ningbo Institute of Materials Technology and Engineering, Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315201, China)*

(Received 21 November 2022; revised manuscript received 20 December 2022)

Abstract

For efficient storage and processing of massive data in the information technology era, spintronic device attracts tremendous attention due to its low power consumption and non-volatile feature. Spin source material, which can efficiently generates spin current, is an important constituent of novel spin-orbit torque device. The efficiency of spin current generation in spin source material directly determines the performances of various spintronic devices. In the past two decades, great progress has been made in exploring high-efficient spin source material systems and understanding the relevant physical mechanisms. A wide variety of materials are explored, ranging from traditional heavy metals and semiconductors to topological insulators and two-dimensional (2D) materials. Recently, the material family of transition metal oxides attracts tremendous attention due to its efficient and highly tunable charge-spin conversion intimately related to its emerging novel quantum states and electronic structure. The mechanism of charge-spin conversion generally has two contributions: the bulk spin Hall effect and the spin-momentum locked interface with inversion symmetry breaking. Novel electronic structures such as topological band structures and spin-momentum locked surface states can realize efficient charge-spin conversion. For example, the Weyl points in SrRuO_3 and the topological Dirac nodal line in SrIrO_3 are predicted to give rise to a large Berry curvature and corresponding spin Hall conductance; the topological surface states can generate spin accumulation due to spin-momentum locking; the Rashba states at the oxide interface such as the 2D electron gas in SrTiO_3 and KTaO_3 can generate spin current by Rashba-Edelstein effect. Furthermore, the entanglement of various degrees of freedom, including spin, charge, lattice and orbit in transition metal oxides lead to the electronic structure being highly tunable by various methods including gate voltage, substrate constraint, thickness, interface engineering, etc. Therefore, charge-spin conversion in transition metal oxides is of great significance for both modulating of novel electronic structure in fundamental research and exploring its promising potential in future spintronic devices. In this review, we focus on introducing aspects of exotic electronic structures, spin transport mechanism, charge-spin interconversion characterization, efficiency and manipulation in transition metal oxides, and giving a prospect on the future development trend.

Keywords: transition metal oxide, electronic structure, charge-spin interconversion, spin-orbit torque**PACS:** 77.84.Bw, 73.22.-f, 75.76.+j, 72.25.-b**DOI:** 10.7498/aps.72.20222219

^{*} Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2019YFA0307800, 2017YFA0303600) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174406, 11874367).

[†] Corresponding author. E-mail: zhiming.wang@nimte.ac.cn

过渡金属氧化物中新奇量子态与电荷-自旋互转换研究进展

劳斌 郑轩 李晟 汪志明

Research progress of novel quantum states and charge-spin interconversion in transition metal oxides

Lao Bin Zheng Xuan Li Sheng Wang Zhi-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 097702 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222219

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222219>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

自旋轨道矩调控的垂直磁各向异性四态存储器结构

Demonstration of four-state memory structure with perpendicular magnetic anisotropy by spin-orbit torque

物理学报. 2018, 67(11): 117501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180216>

免掺杂、非对称异质接触晶体硅太阳电池的研究进展

Research progress of crystalline silicon solar cells with dopant-free asymmetric heterocontacts

物理学报. 2019, 68(4): 048801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181991>

基于二维材料的自旋-轨道矩研究进展

Research progress of spin-orbit torques based on two-dimensional materials

物理学报. 2021, 70(12): 127501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210004>

非共振圆偏振光作用下单层二硫化钼电子结构及其自旋/谷输运性质

Electronic structure and spin/valley transport properties of monolayer MoS₂ under the irradiation of the off-resonant circularly polarized light

物理学报. 2018, 67(10): 107101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180213>

过渡金属原子 X ($X = \text{Mn}, \text{Tc}, \text{Re}$) 掺杂二维WS₂第一性原理研究

First-principles study of transition metal atoms X ($X = \text{Mn}, \text{Tc}, \text{Re}$) doped two-dimensional WS₂ materials

物理学报. 2022, 71(12): 127301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212439>

过渡金属(Cr, Mn, Fe, Co)掺杂对TiO₂磁性影响的第一性原理研究

First principle study of influence of transition metal (Cr, Mn, Fe, Co) doping on magnetism of TiO₂

物理学报. 2020, 69(19): 197101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200644>