

谷电子自由度电学调控的首次实现

王海龙¹ 叶 堉² 赵建华^{1,†} 张 翔^{2,††}

(1 中国科学院半导体研究所 北京 100083)

(2 加州大学 伯克利 加利福尼亚 94720)

2016-04-27 收到

† email: jhzhao@red.semi.ac.cn

†† email: xiang@berkeley.edu

DOI: 10.7693/wl20160805

First demonstration of the electrical control of the valley degree of freedom

WANG Hai-Long¹ YE Yu² ZHAO Jian-Hua^{1,†} ZHANG Xiang^{2,††}

(1 Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

(2 University of California, 3112 Etcheverry Hall, Berkeley, California 94720, USA)

摘 要 对电子电荷和自旋自由度的电学调控奠定了微纳电子器件和自旋电子器件的工作基础,然而人们对固体材料中电子谷自由度的有效电学调控还处在研究探索阶段。文章简要介绍作者在单层过渡金属硫族化合物(TMDC)和磁性半导体(Ga, Mn)As构成的pn结中,利用电学自旋注入方法首次成功实现对电子谷自由度进行电学调控的工作。

关键词 谷自由度, 过渡金属硫族化合物, 磁性半导体, 垂直磁各向异性, 电学自旋注入

Abstract Electrical control of the charge and spin degrees of freedom is the foundation of contemporary micro- and nano-electronics, and spintronics. However, the effective electrical control of the electron valley degree of freedom in solids is still under intensive research. This article presents our recent demonstration of the electrical control of the valley polarization in a pn junction consisting of a monolayer transition metal dichalcogenide and a magnetic semiconductor (Ga, Mn)As, via electrical spin injection.

Keywords valley degree of freedom, transition metal dichalcogenide, magnetic semiconductor, perpendicular magnetic anisotropy, electrical spin injection

电子同时具有电荷和自旋两个自由度,对电子电荷自由度的电学调控奠定了二极管和晶体管等微纳电子器件工作的基础;利用电子自旋自由度发展起来的自旋电子学为实现更高密度、高速度和低功耗的信息存储与处理提供了可能。在固体材料中,电子还具有在晶体动量空间的谷自由度,即在材料的能带结构中存在由时间反演对称性等相联系的极值点。以谷自由度作为信息载体设计的多功能谷电子学器件具有集成度高、处理速度快、能耗低及信息不易丢失等优点。因此,以谷电子材料、电子谷自由度探测和调控为研究

内容的谷电子学也成为当前凝聚态物理中的一大热点研究领域。

谷电子材料可以分为三大类:第一类是常规的半导体和半金属(semi-metal),如金刚石、硅和半金属铋等体材料^[1, 2];第二类是以石墨烯和硅烯等为代表的单原子层二维材料^[3-5];第三类是以过渡金属硫族化合物(TMDC)为代表的单层二维光电子材料,如MoS₂和WSe₂等^[6, 7]。其中TMDC具有与石墨烯类似的六角蜂窝层状结构,层内原子通过强的化学键结合而层间原子则通过范德瓦尔斯力结合。与石墨烯不同的是,单层TMDC是直

接带隙材料，并且以其为导电沟道的场效应晶体管可以实现很高的开关比，因此TMDC在微纳电子和光电子器件中具有极大的应用潜力，是今后谷电子学的重点研究对象。

在单层TMDC材料电子谷自由度的操控方面，根据谷依赖的光学选择定则可知，不同的谷电子能态能够通过圆偏振光手段进行激发。利用单层TMDC材料中反演对称性破缺和较强的自旋轨道相互作用，将电子谷自由度和自旋自由度耦合起来，可以实现稳定的谷电子极化状态。目前，TMDC单层材料谷电子学的研究主要集中在光学调控手段方面，而利用电学手段调控电子谷自由度是实现纳电子器件和光电子器件的必要条件，也是当前二维材料谷电子学亟待实现的目标。同样的，由于在单层TMDC二维材料中，电子的谷自由度和自旋自由度是相互锁定的，且不同能谷对应不同的自旋取向，原则上人们能够通过电学自旋注入的方法来产生和调控谷极化载流子。基于此，在TMDC/铁磁材料异质结构中通过电学自旋注入方法，有望实现对TMDC材料电子谷自由度的电学调控。

关于半导体中电子自旋注入的大量理论和实验研究表明，寻找合适的铁磁自旋注入材料是高效电学自旋注入进而成功实现电子谷自由度电学调控的关键因素之一^[8]。由于MoSe₂和WS₂等TMDC材料通常是n型半导体，且与其能谷相互锁定的自旋方向垂直于薄膜表面，理想的铁磁自旋注入材料最好是垂直易磁化(即磁化矢量垂直薄膜表面)的p型磁性半导体。最近，加州大学伯克利分校教授张翔研究组与中国科学院半导体研究所研究员赵建华研究组合作，选用(Ga, Mn)As作为自旋注入源，首次演示了电子谷自由度的电学调控。选用(Ga, Mn)As是基于以下两点考虑：(1) (Ga, Mn)As薄膜作为半导体能有效降低界面电导失配带来的自旋注入效率低等

问题^[9]；(2) (Ga, Mn)As薄膜的磁各向异性(决定易磁化轴取向)可以通过应变进行有效调控^[10, 11]。此外，考虑到(Ga, Mn)As的铁磁性是以载流子为媒介诱导的，且其载流子浓度在电场可调控的范围内，(Ga, Mn)As薄膜的各种磁性质都可以通过电场进行调控^[12-15]，但受限于电介质的临界击穿场强，居里温度(T_c ，即铁磁—顺磁转变温度)的电场调控幅度通常仅有10 K左右^[12-15]。实际上，(Ga, Mn)As材料在半导体自旋电子学研究中扮演了十分重要的角色，许多概念型的半导体自旋电子器件如自旋发光二极管(spun-LED)和自旋轨道矩器件等都在(Ga, Mn)As上得到了成功演示^[9, 16]。目前限制其应用的最大障碍便是其 T_c 仍然低于室温^[10, 11]，但(Ga, Mn)As作为磁性半导体的代表性材料依然是很重要的探索新物理效应的材料平

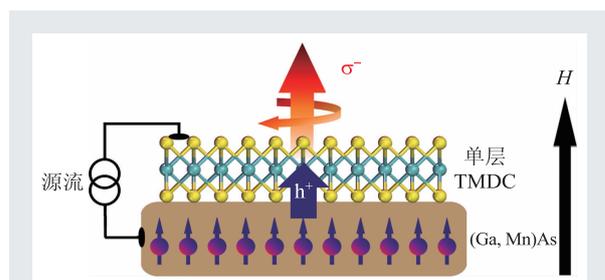


图1 在TMDC/(Ga, Mn)As异质结构中实现对谷自由度电学调控的原理示意图。其中p型(Ga, Mn)As薄膜是垂直易磁化的，它与TMDC单层膜通过可精确定位的干涉转移技术直接接触形成高质量的发光二极管异质结。由于TMDC材料中的自旋—动量是相互锁定的，利用外磁场改变(Ga, Mn)As的磁化方向就能激发不同的谷电子。电致发光的偏振度反映了谷极化度的大小，如橙色箭头所示

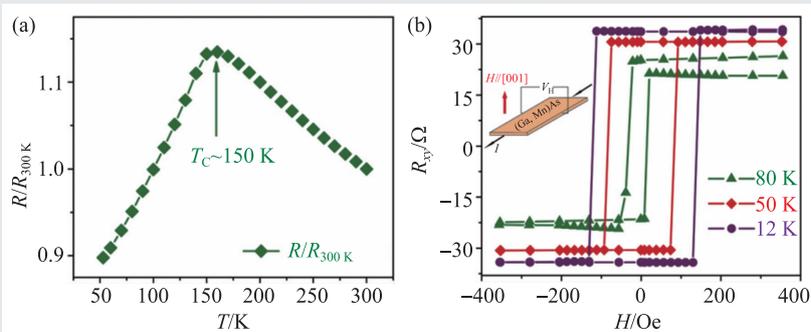


图2 TMDC/(Ga, Mn)As异质结中(Ga, Mn)As薄膜的磁输运测量结果 (a)纵向电阻随温度的变化曲线表明(Ga, Mn)As的居里温度约为150 K；(b)反常霍尔效应测量结果表明，在不同的温度下，(Ga, Mn)As都具有很好的垂直易磁化特性

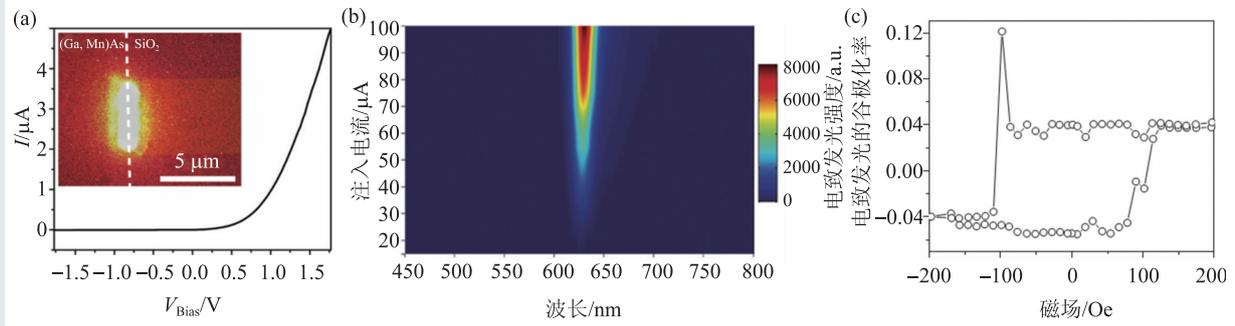


图3 单层 $\text{WS}_2/(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 异质结构中谷极化的电致发光 (a)单层 $\text{WS}_2/(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 异质结构的 $I-V$ 特性曲线和电流超过一定阈值后的电致发光图像；(b)电致发光强度与注入电流和发光波长的关系图；(c)电致发光偏振度随外加磁场的变化曲线，是电学调控谷自由度的有力证据

台^[10, 11]。在 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 薄膜的研究特别是提高 T_c 方面，赵建华研究组进行了长期努力，取得了一系列进展^[17-22]：2011年，采用自上而下的微纳加工方法，结合重Mn掺杂和低温退火，将 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 的 T_c 提高到200 K^[17]，改写了之前创造的191 K世界最高纪录^[18]；2013年，利用磁近邻效应，在 $\text{Co}_2\text{FeAl}/(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 双层膜中，观察到界面处厚度约为1.36 nm的 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 薄膜中Mn离子在400 K仍保持自旋极化^[19]；最近，利用有机分子极强的电荷补偿和注入效应，成功地将 T_c 的调控幅度提升到36 K^[22]。

利用 $\text{TMDC}/(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 异质结构，我们成功实现了对单层 TMDC 的高效自旋注入，其工作原理如图1所示。为了获得较高的自旋注入效率，张翔研究组发展了一种可精确定位的干法转移单层 TMDC 技术，从而避免了伴随湿法转移的溶液残余问题，保证了异质界面的清洁性。利用赵建华研究组通过分子束外延设备生长的垂直易磁化 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 薄膜，我们获得了高质量的 $\text{TMDC}/(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 异质结。具体地，垂直易磁化性质是通过生长 $(\text{In}, \text{Ga})\text{As}$ 缓冲层从而引入面内张应变实现的(InAs 的晶格常数大于 GaAs 的晶格常数，因此可以通过提高In的浓度来增大晶格常数)。实验中所使用的 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 薄膜的磁性质不仅能通过常规的磁强计进行表征，在加工成器件以后还能利用磁输运方法进行探测。图2显示了器件结

构中 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 层的纵向电阻随温度的变化曲线($R_{xx}-T$)和不同温度下的反常霍尔效应曲线($R_{xy}-H$)。结果表明， $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 的 T_c 约为150 K(可以通过 $R_{xx}-T$ 曲线的峰值进行估计)，且在 T_c 以下的整个温度范围内都具有很好的垂直易磁化特性，与器件加工前的磁强计测量结果一致。在异质结构中，控制 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 薄膜的磁化方向便能够调节注入自旋的极化方向，从而在不同的能谷中产生极化的载流子。谷极化可以通过电致发光的旋光度进行检测，如图3所示。其中图3(a)显示了单层 $\text{WS}_2/(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 异质结构的 $I-V$ 特性曲线和发光图像，图3(b)则是电致发光强度与注入电流和发光波长的关系图。这些结果说明，我们成功地将 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ 中的空穴注入到了单层 WS_2 等 TMDC 材料中，为电子谷自由度的电学调控奠定了基础。进一步的极化测量实验发现电致发光的旋光度约为15%。如图3(c)所示^[23]，电致发光的旋光度随外加垂直磁场呈现明显的磁滞行为，进一步表明我们实现了对电子谷自由的电学调控。该项成果发表于国际著名期刊《自然·纳米技术》(*Nature Nanotechnology*)^[23]。这项工作不仅首次在实验上成功地利用电学方法产生和调控了谷载流子，还为自旋电子学、谷电子学和二维材料的研究搭建了一座桥梁。

参考文献

- [1] Sun J T *et al.* Acta Phys. Sin., 2015, 64: 187301
[2] Zhu Z W *et al.* Nature Phys., 2012, 8: 89
[3] Gunlycke D *et al.* Phys. Rev. Lett., 2011, 106: 136806
[4] Wu Z H *et al.* Phys. Rev. Lett., 2011, 106: 176802
[5] Jiang Y J *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 110: 046601
[6] Xiao D *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 108: 196802
[7] Mak K F *et al.* Science, 2014, 344: 1489
[8] Fabian J *et al.* Acta Phys. Slov., 2007, 57: 565
[9] Ohno Y *et al.* Nature, 1999, 402: 790
[10] Dietl T *et al.* Rev. Mod. Phys., 2014, 86: 187
[11] Jungwirth T *et al.* Rev. Mod. Phys., 2014, 86: 855
[12] Chiba D *et al.* Appl. Phys. Lett., 2006, 89: 162505
[13] Chiba D *et al.* Nature, 2008, 455: 515
[14] Nishitani Y *et al.* Phys. Rev. B, 2010, 81: 045208
[15] Endo M *et al.* Appl. Phys. Lett., 2010, 96: 062515
[16] Chernyshov A *et al.* Nature Phys., 2009, 5: 656
[17] Chen L *et al.* Nano Lett., 2011, 11: 2584
[18] Chen L *et al.* Appl. Phys. Lett., 2009, 95: 182505
[19] Yu X Z *et al.* Nano Lett., 2012, 12: 5436
[20] Yu X Z *et al.* Nano Lett., 2013, 13: 1572
[21] Nie S H *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 111: 027203
[22] Wang X L *et al.* Adv. Mater., 2015, 27: 8043
[23] Ye Y, Xiao J, Wang H L *et al.* Nature Nanotech., 2016, 11: 598

ILOPE“24年”光电行业专业展会品牌，助力企业价值跃升



第二十一届中国国际激光、光电子及光电显示产品展览会
同期展会:第十三届中国国际机器视觉展览会暨机器视觉技术及工业应用研讨会

2016年10月17日-19日
北京·中国国际展览中心（静安庄馆）

◆激光

◆红外

◆光学材料

◆光电显示及照明

展位抢定，请立即洽询：

☎ 010-84600314 / 84600836

展馆地址：北京市朝阳区北三环东路6号

ILOPE新版网站全面升级，欢迎登陆 www.ilope-expo.com 了解参展参观详情！



官方微信 欢迎关注