

层状铁磁体 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的 Andreev 反射谱*于晓洋¹⁾²⁾ 冯红磊¹⁾²⁾ 辜刚旭¹⁾ 刘永河¹⁾²⁾李治林¹⁾⁴⁾ 徐同帅^{1)3)†} 李永庆¹⁾

1) (中国科学院物理研究所, 北京 100190)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

3) (安阳师范学院物理与电气工程学院, 安阳 455000)

4) (北京大学物理学院, 北京 100871)

(2019年8月12日收到; 2019年10月6日收到修改稿)

如何避免界面反应、可靠地提取材料的自旋极化率是自旋电子学的一个基本问题. 本文选取了一种独特的铁磁性层状过渡族金属硫化物 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$, 研究了单晶材料的磁性、电子输运和 Andreev 反射谱. 磁性和输运结果表明, 低温下 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶存在强磁各向异性、双峰磁电阻和反常霍尔效应. 通过干法转移方案制备的干净界面的 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 超导异质结的 Andreev 反射谱, 发现该材料的自旋极化率为 $47\% \pm 7\%$. 本文展示的干法转移制备超导/磁性异质结的方法可广泛用于测量各种二维磁性材料的自旋极化率.

关键词: $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$, 层状铁磁体, 磁性, 输运, Andreev 反射谱, 自旋极化率

PACS: 72.25.Hg, 74.45.+c, 72.25.MK, 75.30.Gw

DOI: 10.7498/aps.68.20191221

1 引言

自旋电子学在过去几十年里受到了广泛的关注, 其主要目标是调控电子的自旋态从而获得低能耗、高密度、高速度以及存储和运算集于一体的新型信息器件^[1-3]. 高自旋极化率的材料是自旋电子学器件的一个重要基础. 目前实验上进行自旋极化率测量的主要方法有自旋极化的光电子能谱、平面超导隧道谱 (Meservey-Tedrow 方法) 和 Andreev 反射谱^[4]. 自旋极化的光电子能谱需要超高真空环境, 不能对所有晶向的表面都适用^[5]. 平面超导隧道谱和 Andreev 反射谱能够获得更加接近实际器件环境载流子自旋极化率信息. 其中, 前者需要制备基于 Al 超薄膜的隧道结, 工艺复杂, 并且需要

He-3 制冷机^[6]. 比较而言, Andreev 反射谱测量所需的器件工艺相对简单, 已经成为自旋极化率测量的一个常用手段^[7].

Andreev 反射, 是指在正常金属/超导体异质结中, 当正常金属中的电子的能量低于超导能隙时, 能够找到自旋和动量相反的电子配对, 透过界面进入超导体形成库珀对, 并对结电导形成增强效应^[8]. 在铁磁体/超导体界面, 铁磁体中不同自旋方向电子数目的不平衡将导致 Andreev 反射被压制. 通过对 Andreev 反射谱进行修正的 Blonder-Tinkham-Klapwijk (BTK) 理论拟合, 能够得到载流子的自旋极化率^[9-14].

Andreev 反射谱方法进行自旋极化率测量所使用的器件结构主要有两种: 点接触模式和平面结构^[15-18]. 点接触模式一般采用超导针尖按压待测

* 国家自然科学基金 (批准号: 61425015, 11704006)、中国科学院 B 类战略性先导科技专项 (批准号: XDB28000000) 和国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0300600) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xutongshuai@iphy.ac.cn

材料的方式形成欧姆接触, 其优势在于快速、灵活, 对薄膜和块材都适用. 点接触模式的缺点主要是在存在较高界面势垒的情况下 (例如表面氧化物), 高自旋极化材料的 Andreev 反射谱和隧道谱非常类似, 这导致测量结果不可靠. 此外, 在点接触模式下由于界面电阻不均匀往往会存在一些较大的电流热点 (hot spot), 导致实际测量温度远高于标称温度, 从而给自旋极化率的分析带来困难 [19,20]. 相对而言, 平面 Andreev 结构采用实际的电子器件结构, 能够可控性的制备更干净的界面, 并且其可靠性已在 CrO_2 , HgCr_2Se_4 等高自旋极化率的材料上被验证 [18,21,22]. 但是, 平面 Andreev 结构的界面上有时会出现超导元素的扩散或与待测材料发生化学反应, 导致自旋极化率偏离真实值. 因此, 如何避免界面反应、制备界面干净的超导异质结, 对于准确获得待测材料的载流子自旋极化率具有重要的意义.

Fe_xTaS_2 体材料是一种典型的磁性层状过渡族金属硫化物, 母体材料 TaS_2 为层状结构, 层与层之间靠范德瓦耳斯力连接, Fe 原子以插层的形式存在于 TaS_2 之间, 原则上可以通过机械剥离的方法将 Fe_xTaS_2 减薄至纳米尺度 [23–26]. 在较高 Fe 含量范围 ($0.20 \leq x \leq 0.40$) 内, Fe_xTaS_2 依然具有长程铁磁性并能保有序的晶体结构, 居里温度最高为 160 K ($x = 0.25$), 接近最近报道的二维铁磁体 Fe_3GeTe_2 [27]. 理论计算表明 Fe_xTaS_2 费米能级附近具有较高的自旋极化率并且不受铁的无序分布的影响 [28,29], 但 Arai 等 [30] 采用机械剥离方法将其减薄至 100 nm 左右, 在 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 隧道结中仅观察到了约 7% 的隧穿磁电阻, 远低于根据电子自旋极化率估计出的理论预期值, 这可能是因为隧穿层氧化不足而导致过多的界面缺陷散射. 然而到目前为止, 还没有直接测量 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 自旋极化率的实验报道.

本文聚焦于 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶, 进行了材料的磁性、电子输运和自旋极化率研究. 通过 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Pb}$, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ 等磁性/超导异质结的 Andreev 反射谱的测量, 发现只有干法转移方法能够制备足够干净的界面, 并首次提取出这种层状铁磁体的自旋极化率. 本文工作为进一步研究该体系的二维铁磁性和自旋调控打下了基础.

2 实验方法

使用化学气相传输方法制备了高质量的片状 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶样品, X 射线衍射结果表明沿样品面为 ab 面, 垂直于样品面为 c 轴 [24,31]. 结合 X 射线光电子谱和磁性测量, 确定 Fe 含量为 0.26. 单晶样品性能表征所外加磁场沿样品面方向记作 $\mathbf{H} // ab$, 沿 c 轴方向记作 $\mathbf{H} \perp ab$, 输运测量电流沿 ab 面内. 磁性测量在 S-VSM (Quantum Design Inc., USA) 上进行, 磁输运测量在 He-4 (Janis) 制冷机上进行. 磁性/超导异质结 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Pb}$, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$ 采用掩模工艺制备, Pb 或 Al 采用热蒸发方法生长 [2]. $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ 结构通过干法转移工艺制备. Andreev 反射谱在 He-4 (Janis) 或 He-3 (Oxford) 制冷机上进行, 使用标准锁相方法进行微分电导谱测量. 通过修正的 BTK 理论 (BTK theory) 对归一化的微分电导谱拟合, 可以获得 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的自旋极化率 P 、界面处的势垒强度参数 Z 、非弹性散射因子 Γ 以及超导带隙 Δ [11–14].

3 实验结果与讨论

3.1 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶样品的磁性和输运性质

图 1 为 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶样品的磁性测量结果. 不同方向的零场冷 (zero-field cooling, ZFC) 和场冷 (field cooling, FC) 磁化率在居里温度以下迅速上升, 面外磁矩远大于面内磁矩 (图 1(a) 和图 1(b)). 对高温段磁化率进行居里-外斯定律拟合显示不同方向的居里-外斯温度存在较大的差别 ($\mathbf{H} \perp ab$ 时约为 121 K; $\mathbf{H} // ab$ 时约为 66 K), 这起源于单晶样品的强磁各向异性 [23, 32]. 等温磁化率测量结果也证明了这一点 (图 1(c) 和图 1(d)). $\mathbf{H} \perp ab$ 方向的等温磁化曲线在转变温度以下存在明显的磁滞回线行为, 最大饱和磁矩约为 $3.85 \mu_B/\text{Fe}$, 表明样品为铁磁性. 在 $\mathbf{H} // ab$ 方向, 磁化曲线随磁场线性变化, 高场下也没有达到饱和 (65 K 左右的弱磁滞回线来源于磁场与 ab 面不完全平行).

为了确定样品的居里温度, 对 $\mathbf{H} \perp ab$ 方向的等温磁化曲线使用 Arrott 图方法处理 (图 2(a)),

获得样品的居里温度为 115 K. 磁性测量结果表明, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶是铁磁性材料, 磁化方向平行于样品 c 轴, 具有强磁各向异性. 这些性质与 Morosan 等^[23] 和 Checkelsky 等^[32] 关于 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 单晶样品的实验结果基本一致.

图 2(b) 为 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 样品电阻随温度的变化. 在居里温度 (115 K) 以下, 由于磁有序转变, 磁矩指向逐渐一致, 对载流子自旋依赖的散射减小, 电阻随温度降低而迅速下降, 与其他 Fe_xTaS_2 单晶的电阻-温度行为一致^[33].

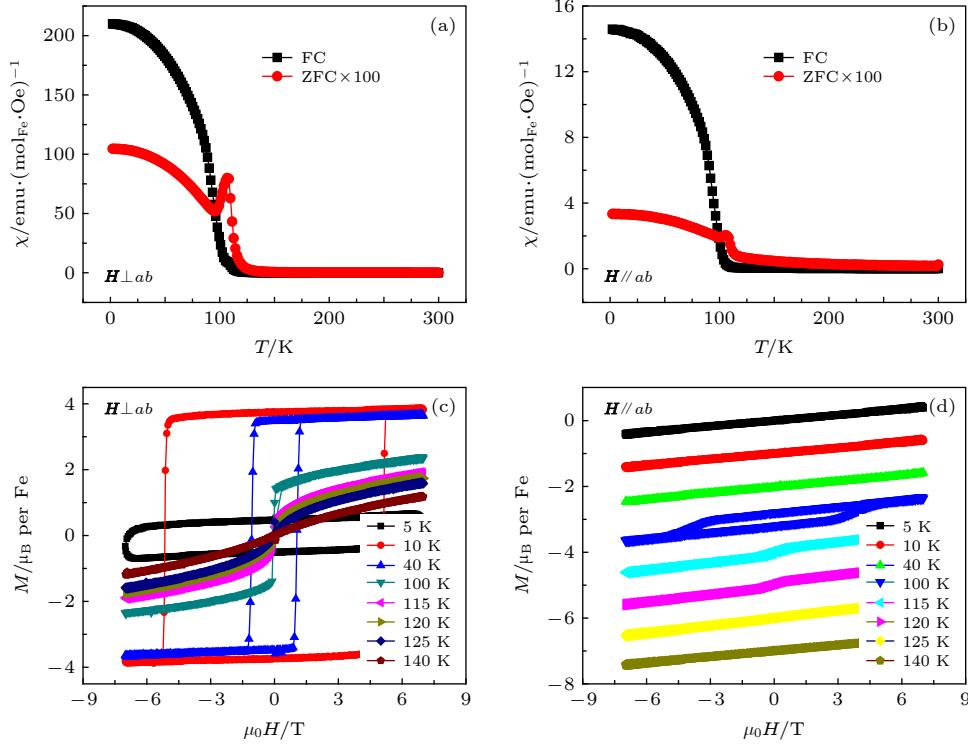


图 1 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶样品的磁性测量结果 (a) 外加磁场垂直于 ab 面 ($\mathbf{H} \perp ab$) 时的 FC 和 ZFC 磁化曲线, 测量磁场为 100 Oe ($1 \text{ Oe} = 10^3/(4\pi) \text{ A/m}$); (b) 外加磁场平行于 ab 面时 ($\mathbf{H} // ab$) 的 FC 和 ZFC 磁化曲线, 测量磁场为 100 Oe; (c) $\mathbf{H} \perp ab$ 的等温磁化曲线随外加磁场的变化; (d) $\mathbf{H} // ab$ 的等温磁化曲线随外加磁场的变化 (为清楚起见, 在垂直方向做了等间距平移)

Fig. 1. Magnetization measurement results of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$: (a) Magnetization measurement with ZFC and FC process while $\mathbf{H} \perp ab$, the measurement field is 100 Oe; (b) magnetization measurement with ZFC and FC process while $\mathbf{H} // ab$, the measurement field is 100 Oe; (c) isothermal magnetization measurements for $\mathbf{H} \perp ab$; (d) isothermal magnetization measurements for $\mathbf{H} // ab$. For clarify, the data is shift equally in Fig. 1(d).

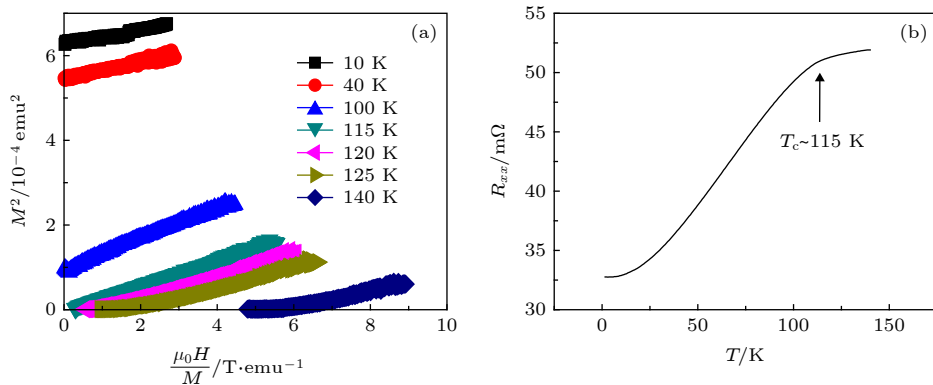


图 2 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 等温磁化曲线和电阻-温度曲线 ($1 \text{ emu} = 10^{-3} \text{ A}\cdot\text{m}^2$) (a) $\mathbf{H} \perp ab$ 方向 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 等温磁化曲线的 Arrott 图, 居里温度为 115 K; (b) $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的电阻-温度曲线

Fig. 2. Isothermal magnetization and temperature dependence of resistance of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$: (a) Arrott plot for isothermal magnetization in $\mathbf{H} \perp ab$; (b) temperature dependence of resistance.

图 3 为 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶不同方向的磁电阻和霍尔效应, 磁电阻定义为 $R_M = \frac{R(H) - R(H=0)}{R(H=0)} \times 100\%$. $\mathbf{H} \perp ab$ 方向, 在居里温度以下可以观察到明显的蝴蝶状双峰磁电阻和磁滞回线特征的反常霍尔效应 (图 3(a) 和图 3(c)), 而且磁电阻、霍尔效应与等温磁化曲线随磁场的变化如饱和场、矫顽场相一致, 表明该方向的输运起源于样品的铁磁性. $\mathbf{H} // ab$ 方向, 磁电阻和霍尔电阻远小于 $\mathbf{H} \perp ab$ 方

向, 但在中间温区 (40 K 和 100 K) 出现了较大的反常霍尔效应, 这可能来源于磁场与样品 ab 面没有严格平行, 也可能来源于平面霍尔效应 (磁矩不严格平行于 c 轴). 目前为止, 在 $\mathbf{H} // ab$ 方向磁电阻和霍尔电阻的研究, 只有 $\text{Fe}_{0.25}\text{TaS}_2$ 和 $\text{Fe}_{0.28}\text{TaS}_2$ 的文献报道 [23,32,34], 该方向上是否存在反常霍尔效应以及相应的物理机制仍需进一步的实验和理论工作.

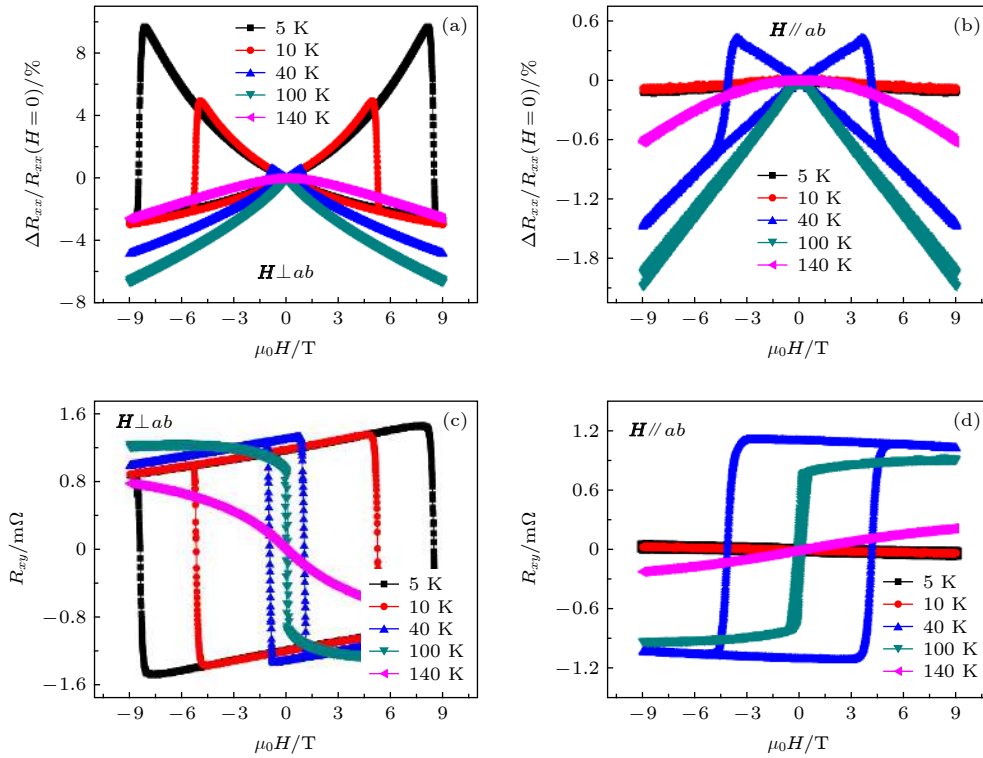


图 3 磁电阻和霍尔电阻随外加磁场的变化 (a) $\mathbf{H} \perp ab$ 时, 磁电阻随外加磁场的变化; (b) $\mathbf{H} // ab$ 时, 磁电阻随外加磁场的变化; (c) $\mathbf{H} \perp ab$ 时, 霍尔电阻随外加磁场的变化; (d) $\mathbf{H} // ab$ 时, 霍尔电阻随外加磁场的变化

Fig. 3. Magnetic field dependence of magnetoresistance and Hall effect: (a) Magnetic field dependence of magnetoresistance, $\mathbf{H} \perp ab$; (b) magnetic field dependence of magnetoresistance, $\mathbf{H} // ab$; (c) magnetic field dependence of Hall effect, $\mathbf{H} \perp ab$; (d) magnetic field dependence of Hall effect, $\mathbf{H} // ab$.

3.2 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的自旋极化率测量

准确测量自旋极化率是自旋电子学领域的基础问题, 对铁磁材料的应用具有重要意义. 为了可靠地提取 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的自旋极化率, 采用不同的超导电极 Pb, Al, NbSe_2 , 制备了三种超导异质结并测量了 Andreev 反射谱.

首先制备了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Pb}$ Andreev 结, 在 Pb 的临界温度以下测量了微分电导谱. 图 4(a) 为不同温度下 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Pb}$ 的归一化微分电导谱, 可以看到零偏压电导被轻微压制, 表明 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$

存在一定自旋极化的电子. 图 4(b)–(d) 为修正的 BTK 理论对实验数据的拟合结果, 表明 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的自旋极化率 P 最高为 23%, 低于理论计算结果 [28]. 拟合得到的超导能隙 $\Delta = 0.35$ meV, 远低于体态铅的超导能隙 (~ 1.2 meV). 考虑到在异质结制备过程中, 热蒸发的 Pb 极易扩散进入 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 并与其发生硫化反应, 形成新的超导化合物 $(\text{PbS})_{1.13}\text{TaS}_2$ ($T_C = 3.08$ K, $\Delta \sim 0.42$ meV) [35], 这和拟合所获得的超导带隙基本一致. 因此, 测量的自旋极化率很可能由于界面铅扩散的影响而并不准确.

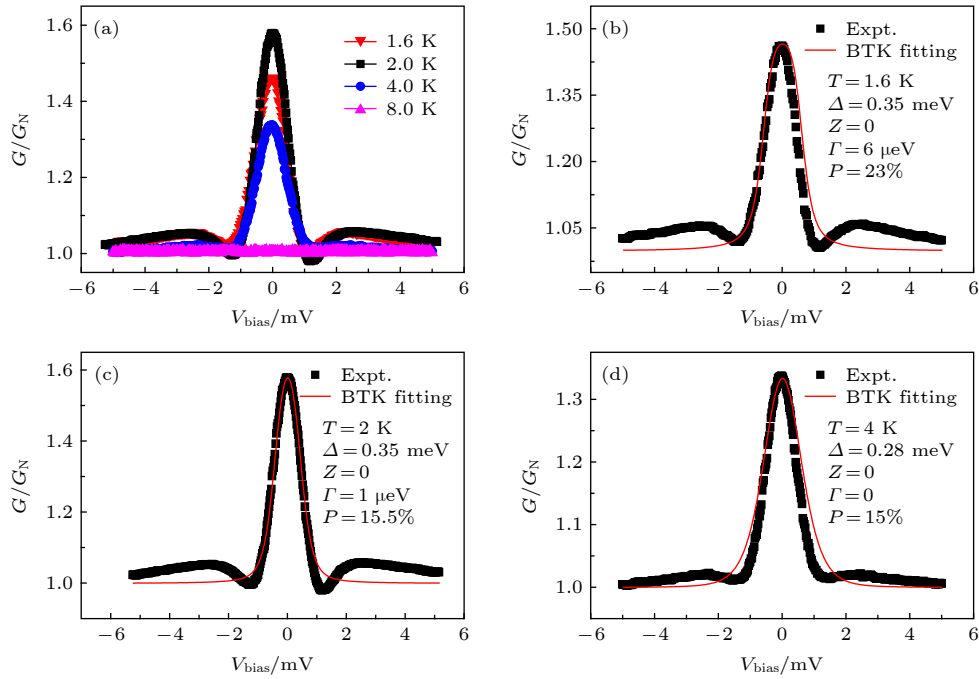


图4 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Pb}$ 的 Andreev 反射谱 (a) 不同温度下 Andreev 结的归一化微分电导谱; (b) $T = 1.6$ K, 修正的 BTK 理论对微分电导谱的拟合结果; (c) $T = 2$ K, 修正的 BTK 理论对微分电导谱的拟合结果; (d) $T = 4$ K, 修正的 BTK 理论对微分电导谱的拟合结果. 黑色点为实验数据, 红色线为理论计算结果

Fig. 4. Andreev reflection spectroscopy of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Pb}$: (a) Normalization of Andreev reflection spectroscopy from $T = 2$ K to 8 K; (b) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy, $T = 1.6$ K; (c) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy, $T = 2$ K; (d) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy, $T = 4$ K. The black dot is experimental data and red line is fitting.

为阻止铅扩散对异质界面的污染, 在 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Pb}$ 之间插入 50 nm 的铝, 制备了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$ 结. 图 5(a) 为低温下归一化微分电导谱的测量结果. 在铝超导温度 (~ 1.2 K) 以下, 电导谱表现出明显的超导隧穿行为; 在铝超导温度之上时则类似于 Andreev 反射谱行为. 修正的 BTK 理论拟合表明界面存在较大的势垒强度 (图 5(b)—(d)). 以温度在 0.36 K 的数据 (图 5(b)) 为例, 首先由修正的 BTK 理论拟合, 提取了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 自旋极化率在 40%, 势垒散射因子 Z 在 2.4 左右. 从拟合参数可以看出, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$ 异质结的界面存在较大的散射势垒, 透过率较差, 导电机制可能以隧穿为主. 造成这一情况的原因是 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$ 异质结中 Al 膜和 Pb 膜是在不同镀膜机沉积的, 在转移过程中, Al 膜短暂暴露于空气中, 氧化形成了 AlO_x 势垒, 最终结构变成了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Pb}$. 在高界面散射强度的情况下, 高自旋极化率的 Andreev 反射谱和超导隧道谱很难区分 [18,20]. 如图 6 所示, 使用较高的势垒强度 Z 同样能够很好地拟合不同温度下的

实验数据. 因此, 使用这一方法仍然不能得到可靠的电子自旋极化率. 类似的现象在 $\text{CrO}_2/\text{I}/\text{Pb}$ 异质结中也曾被观测到 [18].

界面的自旋依赖散射如自旋轨道耦合、无序引入的自旋激活散射等都将直接影响载流子自旋极化率和自旋器件的性能. 如何避免界面扩散、污染, 始终是实验过程中需要耗费很大精力去解决的问题. $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 作为层状铁磁体, 其优势在于可以用机械解理的方法将其减薄至数十纳米厚度, 甚至制备出二维铁磁材料. 为了获得干净的超导异质结界面, 最终选择干法转移工艺, 在保护性气氛下将 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 解理至 60 nm, 并与层状超导体 NbSe_2 结合, 制备了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ Andreev 结 [25].

低温下 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ 的归一化微分电导谱和拟合如图 7(a) 所示, 在 NbSe_2 超导温度以下, 带隙内微分电导被抑制, 明显低于带隙外电导, 表明存在较高的载流子自旋极化率. 以温度为 4 K 的归一化电导谱为例 (图 7(b)), 使用修正的 BTK 理论可以非常好地拟合实验曲线, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的自旋极化率 P 为 54%, 并且界面势垒强度 Z 和非弹

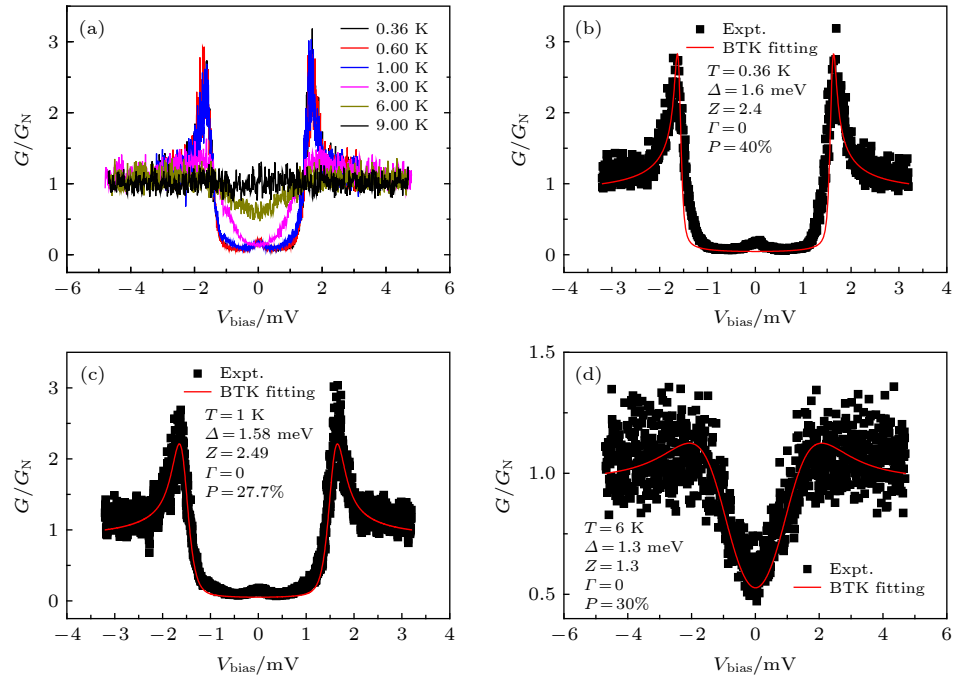


图 5 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$ 异质结的 Andreev 反射谱 (a) 不同温度下的归一化微分电导谱; (b) $T = 0.36$ K, 修正的 BTK 理论对微分电导谱的拟合结果; (c) $T = 1$ K, 修正的 BTK 理论对微分电导谱的拟合结果; (d) $T = 6$ K, 修正的 BTK 理论对微分电导谱的拟合结果; 黑色点为实验数据, 红色线为理论计算结果, 自旋极化率 $P \neq 0$

Fig. 5. Andreev reflection spectroscopy of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$: (a) Normalization of Andreev reflection spectroscopy from $T = 0.36$ K to 9 K; (b) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy, $T = 0.36$ K; (c) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy, $T = 1$ K; (d) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy, $T = 6$ K. The black dot is experimental data and red line is fitting. Spin polarization is fixed to none-zero ($P \neq 0$).

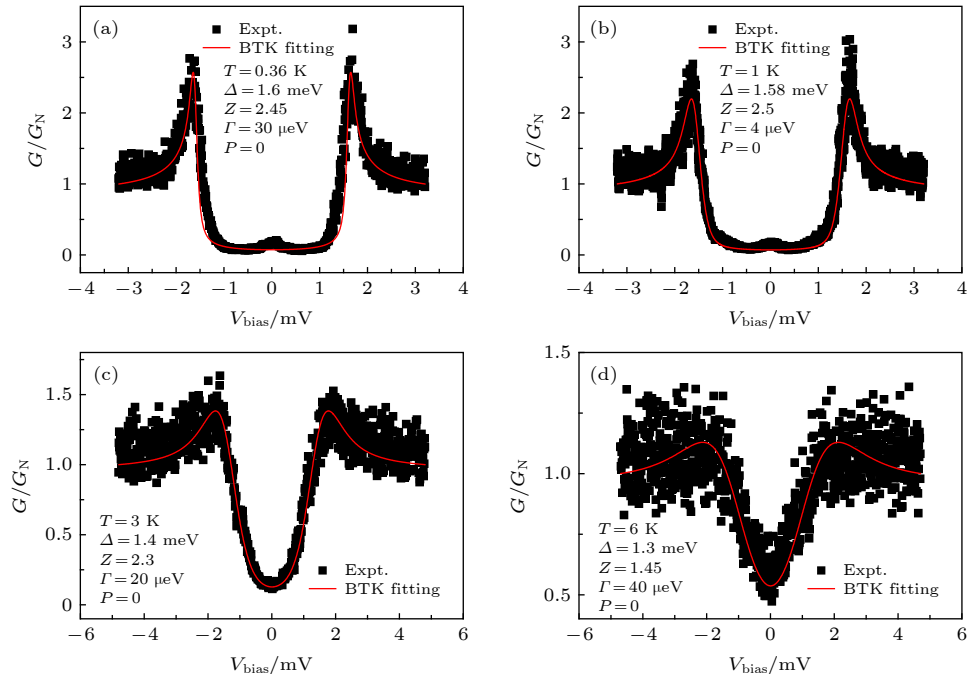


图 6 修正的 BTK 理论对不同温度下微分电导谱的拟合结果 (a) $T = 0.36$ K; (b) $T = 1$ K; (c) $T = 3$ K; (d) $T = 6$ K; 黑色点为实验数据, 红色线为理论计算结果; 自旋极化率固定为零 ($P = 0$)

Fig. 6. Modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$: (a) $T = 0.36$ K; (b) $T = 1$ K; (c) $T = 3$ K; (d) $T = 6$ K. The black dot is experimental data and the red line is fitting. Spin polarization is fixed to zero ($P = 0$).

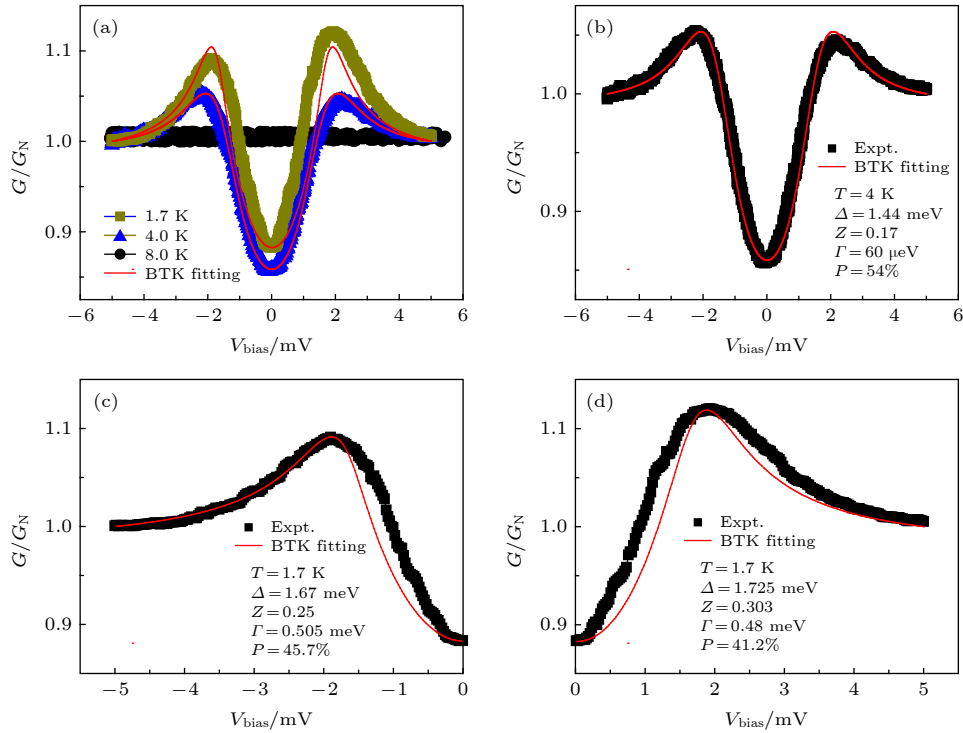


图 7 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ 的 Andreev 反射谱 (a) 不同温度下的归一化微分电导谱和修正的 BTK 拟合; (b) $T = 4 \text{ K}$ 的微分电导谱和修正的 BTK 拟合; (c) $T = 1.7 \text{ K}$ 下, 负偏压的归一化微分电导谱及修正的 BTK 拟合; (d) $T = 1.7 \text{ K}$ 下, 正偏压的归一化微分电导谱及修正的 BTK 拟合; 黑色点为实验数据, 红色线为理论计算结果

Fig. 7. Andreev reflection spectroscopy of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$: (a) Normalization of Andreev reflection spectroscopy from $T = 1.7 \text{ K}$ to 8 K ; (b) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy at $T = 4 \text{ K}$; (c) modified BTK fitting for normalized Andreev reflection spectroscopy at $T = 1.7 \text{ K}$; (d) modified BTK fitting respectively for negative bias or positive bias Andreev reflection spectroscopy at $T = 1.7 \text{ K}$. The black dot is experimental data and red line is fitting.

性散射因子 Γ 值很小. 而且, 对比磁性隧道结, 使用 Andreev 反射谱获得了更高的自旋极化率^[30]. 这些都表明干法转移技术能够避免可能的界面污染和氧化层生成, 获得非常干净的异质结界面, 从而可靠的提取材料的自旋极化率. 测量了多个器件, 拟合所得的自旋极化率分布在 40%—54% 之间. 根据理论计算, Fe_xTaS_2 费米面上自旋极化电子主要来自于 Fe 的 3d 电子, 少部分来自于 Ta 的 5d 电子, 而且即使 Fe 原子的分布存在无序, 并不会对费米面上自旋极化电子的态密度分布或者载流子自旋极化率产生很大影响^[28,29]. Fe_xTaS_2 单晶材料, Fe 作为插层原子, 在 TaS_2 层间形成超晶格结构, Fe 的分布并不是绝对均匀的, 会偏离名义上浓度, 也可能会形成一些 Fe 团簇, 这些都是实验测量的自旋极化率在一定区间内分布的原因^[23,24].

值得注意的是, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ Andreev 结在更低的温度下 ($T = 1.7 \text{ K}$), 超导带隙两侧的微分电导谱分布不对称, 两侧相干峰的高度不一致, 而且带隙内电导偏离了修正的 BTK 理论. 这种

正负偏压区电导谱不对称的现象在铁磁半金属 EuB_6 ^[36]、 HgCr_2Se_4 ^[22], 以及电子强关联化合物 CeCoIn_5 、 UBe_{13} ^[37]、 URu_2Si_2 ^[38] 等材料的 Andreev 结中也有报道, 但不对称的物理机制是否与电子关联性目前并没有明确的证据. 为了分析电导谱不对称对自旋极化率提取的影响, 将 $T = 1.7 \text{ K}$ 的微分电导谱分成正负偏压两部分分别进行拟合, 如图 7(c) 和图 7(d) 所示. 最好的拟合结果表明, 二者所提取的自旋极化率相差在 4% 左右, 这进一步说明干法转移所制备的 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ 异质结能够可靠地提取材料的自旋极化率.

4 结 论

研究了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶样品的磁性和电子输运性质, 并采用 Andreev 反射谱方法, 测量了材料的自旋极化率. 磁性和输运结果表明, 低温下 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶存在强磁各向异性、双峰磁电阻和反常霍尔效应. 通过三种技术路线制备了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$

超导异质结构, 但只有使用干法转移技术才能够获得具有干净界面的 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ Andreev 结, 通过修正的 BTK 理论提取了 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 单晶自旋极化率 $47\% \pm 7\%$, 这一方法能够回避传统器件制备方法的困难, 并可推广到大量的二维磁性材料的自旋极化率测量中.

参考文献

- [1] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, Daughton J M, Molna S V, Roukes M L, Chtchelkanova A Y, Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
- [2] Fert A 2008 *Rev. Mod. Phys.* **80** 1517
- [3] Liu X C, Lu Z L, Ren S K, Zhang F M, Du Y W, Liu C Y, Kuang A L 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2934 (in Chinese) [刘兴翀, 路忠林, 任尚坤, 张凤鸣, 都有为, 刘存业, 匡安龙 2005 物理学报 **54** 2934]
- [4] Coey J M D, Chien C L 2003 *MRS Bull.* **28** 720
- [5] Johnson P D 1997 *Rep. Prog. Phys.* **60** 1217
- [6] Meservey R, Tedrow P M 1994 *Phys. Rep.* **238** 173
- [7] Soulen Jr R J, Byers J M, Osofsky M S, Nadgorny B, Ambrose T, Cheng S F, Broussard P R, Tanaka C T, Nowak J, Moodera J S, Barry A, Coey J M D 1998 *Science* **282** 85
- [8] Jong M J M, Beenakker C W J 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 1657
- [9] Blonder G E, Tinkham M 1983 *Phys. Rev. B* **27** 112
- [10] Blonder G E, Tinkham M, Klapwijk T M 1982 *Phys. Rev. B* **25** 4515
- [11] Mazin I I 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1427
- [12] Wu Y H, Wang Z Y, Shen R 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 8591 (in Chinese) [吴义华, 王振彦, 沈瑞 2009 物理学报 **58** 8591]
- [13] Strijkers G J, Ji Y, Yang F Y, Chien C L, Byers J M 2001 *Phys. Rev. B* **63** 104510
- [14] Woods G T, Soulen Jr R J, Mazin I I, Nadgorny B, Osofsky M S, Sanders J, Srikanth H 2004 *Phys. Rev. B* **70** 054416
- [15] Duif A M, Jansen A G M, Wyder P 1989 *J. Phys. Condens. Mat.* **1** 3157
- [16] Ji Y, Strijkers G J, Yang F Y, Chien C L, Byers J M, Anguelouch A, Xiao G, Gupta A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 5585
- [17] Ren C, Trbovic J, Kallaher R L, Braden J G, Parker J S, von Molnár S, Xiong P 2007 *Phys. Rev. B* **75** 205208
- [18] Parker J S, Watts S M, Ivanov P G, Xiong P 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 196601
- [19] Stokmaier M, Goll G, Weissenberger D, Stürgers C, von Löhneysen H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 147005
- [20] Bugoslavsky Y, Miyoshi Y, Clowes S K, Branford W R, Lake M, Brown I, Caplin A D, Cohen L F 2005 *Phys. Rev. B* **71** 104523
- [21] Zhang X H, Yu L Q, von Molnár S, Fisk Z, Xiong P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 106602
- [22] Guan T, Lin C, Yang C, Shi Y, Ren C, Li Y, Weng H, Dai X, Fang Z, Yan S, Xiong P 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 087002
- [23] Morosan E, Zandbergen H W, Li L, Lee M, Checkelsky J G, Heinrich M, Siegrist T, Ong N P, Cava R J 2007 *Phys. Rev. B* **75** 104401
- [24] Narita H, Ikuta H, Hinode H, Uchida T, Ohtani T, Wakihara M 1994 *J. Solid State Chem.* **108** 148
- [25] 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
- [26] Novoselov K S, Mishchenko A, Carvalho A, Castro Neto A H 2016 *Science* **353** aac9439
- [27] 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
- [28] Mankovsky S, Chadova K, Ködderitzsch D, Minár J, Ebert H, Bensch W 2015 *Phys. Rev. B* **92** 144413
- [29] Ko K T, Kim K, Kim S B, Kim H D, Kim J Y, Min B I, Park J H, Chang F H, Lin H J, Tanaka A, Cheong S W 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 247201
- [30] Arai M, Moriya R, Yabuki N, Masubuchi S, Ueno K, Machida T 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 103107
- [31] Horibe Y, Yang J, Cho Y H, Luo X, Kim S B, Oh Y S, Huang F T, Asada T, Tanimura M, Jeong D, Cheong S W 2014 *J. Am. Chem. Soc.* **136** 8368
- [32] Checkelsky J G, Lee M, Morosan E, Cava R J, Ong N P 2008 *Phys. Rev. B* **77** 014433
- [33] Chen C W, Chikara S, Zapf V S, Morosan E 2016 *Phys. Rev. B* **94** 054406
- [34] Hardy W J, Chen C W, Marcinkova A, Ji H, Sinova J, Natelson D, Morosan E 2015 *Phys. Rev. B* **91** 054426
- [35] Reefman D, Baak J, Brom H B, Wiegers G A 1990 *Solid State Commun.* **75** 47
- [36] Zhang X, von Molnár S, Fisk Z, Xiong P 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 167001
- [37] Nowack A, Heinz A, Oster F, Wohlleben D, Güntherodt G, Fisk Z, Menovsky A 1987 *Phys. Rev. B* **36** 2436(R)
- [38] Rodrigo J G, Guinea F, Vieira S, Aliev F G 1997 *Phys. Rev. B* **55** 14318

Andreev reflection spectroscopy of ferromagnetic $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ with layered structure*

Yu Xiao-Yang¹⁾²⁾ Feng Hong-Lei¹⁾²⁾ Gu Gang-Xu¹⁾ Liu Yong-He¹⁾²⁾
Li Zhi-Lin¹⁾⁴⁾ Xu Tong-Shuai^{1)3)†} Li Yong-Qing¹⁾

1) (*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*School of Physics and Electrical Engineering, Anyang Normal University, Anyang 455000, China*)

4) (*School of Physical Sciences, Peking University, Beijing 100871, China*)

(Received 12 August 2019; revised manuscript received 6 October 2019)

Abstract

An elementary mission of spintronics research is to prevent the interface reacting in spin device and extract spin polarization of ferromagnetic material reliably. Layered transition metal sulfide has very strong anisotropic magnetism, magnetoresistance, and unique Hall effect. It provides a good platform for studying the magnetic order related physical phenomena and may lay a foundation for spintronic applications. In this work, the magnetism, electronic transport and Andreev reflection spectrum of a novel ferromagnetic material $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ with a layers-stacked structure are measured. Strong magnetic anisotropy, double-peak magnetoresistance and anomalous Hall effect are found. In the magnetic measurement, the strong magnetic anisotropy behavior in $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ single crystal is observed. Curie temperature T_C of the $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ single crystal is confirmed by zero field cooling, field cooling and Arrot plot. The electronic transport in the $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ single crystal also reveals strong anisotropic behaviors, such as butterfly-like magnetoresistance and obvious anomalous hall effect below T_C .

To obtain the spin polarization of Fe_xTaS_2 , we fabricate an Fe_xTaS_2 /superconductor Andreev junction to measure the spin polarization that is fitted by the modified Blonder-Tinkham-Klapwijk (BTK) theory. Perhaps the diffusion of Pb can form an alloy structure, creating another superconductor behavior. The two-gap BTK theory confirms our hypothesis, and the result spin polarization can reach 26%. To avoid the interference from Pb alloy superconductor, we also fabricate an $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{Al}/\text{Pb}$ superconductor junction by evaporating Al and then Pb film on the surface of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ in sequence. The results of BTK fit show that the spin polarization from the first technical route cannot be reliable due to the tunneling layer on the Al interface. In order to obtain a clean interface, $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2/\text{NbSe}_2$ junction is fabricated through mechanical-exfoliation and dry-transfer method. Through the Andreev reflection spectrum of this junction, the spin polarization of $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ is extracted to be $47\% \pm 7\%$. For various two-dimensional ferromagnetic materials, our work suggests that the dry-transfer method is well applicable in spin polarization extraction. The results of spin polarization indicate that the $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ is a promising candidate of next-generation material of spintronics.

Keywords: $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$, layered magnetic materials, magnetism, electronics transport, Andreev reflection spectroscopy, spin polarization

PACS: 72.25.Hg, 74.45.+c, 72.25.MK, 75.30.Gw

DOI: 10.7498/aps.68.20191221

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61425015, 11704006), the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB28000000), and the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2016YFA0300600).

† Corresponding author. E-mail: xutongshuai@iphy.ac.cn