

中国科学院物理研究所 N03/L03组供稿
北京凝聚态物理国家研究中心

第1期

2022年01月10日

氮化物/氧化物界面室温铁磁性的发现

过渡金属氧化物因其具有电荷、轨道、晶格和自旋等多重自由度之间高度关联与耦合的特征，呈现出丰富的物理特性，如高温超导电性、庞磁电阻效应、室温多铁性、莫特绝缘体转变等，是探索新物态和新机理的良好载体。将不同种类的氧化物通过物理方法进行异质外延成为界面，本身也构成了一种新的低维量子材料。由于两种氧化物材料的能带结构、化学势差、晶格结构等本征属性不同，界面往往会发生电荷转移、轨道重构、晶格畸变、自旋耦合等现象，呈现出有别于母体材料物性的界面特性，如二维电子气、界面超导、自旋霍尔效应以及界面磁性等。近些年，针对氧化物界面物性的研究是国际上长期关注的领域之一。

界面磁性是一个具有代表性的过渡金属氧化物低维结构的界面物性，对于理解界面自旋轨道耦合的物理机制和构筑低维自旋电子器件非常重要。氧化物异质界面的多自由度耦合不仅可以影响界面两侧氧化物的本征磁性，还可以在界面诱发出新的磁基态。例如，研究者在两个反铁磁性氧化物界面观测到铁磁性【Science 280, 5366 (1998)】、在完全抗磁的铜基超导体与锰氧化物界面反铁磁序【Nat. Phys.2, 244 (2006)】、在反铁磁性氧化物和顺磁性氧化物界面观测到磁交换偏置【Nat. Mater. 11, 195 (2012)】和反常霍尔效应【Nat. Commun. 7, 12727 (2016)】等。近二十年来，在全氧化物异质界面观测到的出乎意料的新奇磁性现象极大地丰富了氧化物异质结的物理图像。与此同时，过渡金属氮化物是与过渡金属氧化物媲美的一族具有关联量子效应和丰富物理特性的材料体系。通常，制备单晶氮化物需要苛刻的高压和高温的极端条件，同时这些氮化物的化学计量比极难准确控制。因此，到目前为止，将氧化物与氮化物外延生长构成异质界面未见报道，其界面的物理特性亟待研究。在这类新型异质界面中，两种阴离子（氧和氮）都将与过渡金属离子发生轨道杂化构成界面结构，它们都将提供共存的库伦排斥和原子内/间的交换相互作用。同时，由于不同离子之间的价态、离子半径、轨道电子数目等本征特性不同，这种新型界面将有可能产生有别于本征过渡金属氮化物和氧化物母体的新奇物性，有望进一步丰富低维关联电子材料的物理图像，扩展这类量子界面的多功能性。

氮化铬（CrN）块体是一类反铁磁金属性材料，具有简单立方晶格（Fm3m）【详见2020年103期：[反铁磁金属氮化铬超薄膜的电子态相变研究](#)】，而氧化铬（Cr₂O₃）块材具有反铁磁绝缘体特性，是典型的六方晶格（R3c）。两种材料本征的对称性、电负性、阴离子和晶格常数均有很大差别，能否形成高质量的量子界面以及界面是否具有与本征材料不同的新颖物性是本项目研究的重点。最近，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心的郭尔佳特聘研究员指导博士研究生金桥，与金奎娟研究员、谷林研究员、朱涛研究员、刘刚钦特聘研究员以及中国科学院宁波材料技术与工程研究所的杨洪新研究员、南方科技大学的王善民教授和中国科学技术大学的闫文盛研究员/李倩研究员紧密合作，利用脉冲激光沉积技术制备了高结晶质量、准确化学配比、单原胞层精度的反铁磁氮化铬（CrN）/反铁磁氧化铬（Cr₂O₃）超晶格（以下简称超晶格）。利用扫描透射电镜和电子能量损失谱，他们观察到氮和氧离子在各自超薄膜中均匀分布，同时界面处的阴离子化学混杂小于4埃，具有单原胞层量级的平整界面。实验上，他们首先利用超导量子干涉仪测量不同周期的超晶格，发现随着厚度增加，饱和磁化强度减小和矫顽场增加。在室温下，两原胞层周期的超晶格表现出典型的铁磁性特征，居里温度约为325K，超过了两种母体材料的反铁磁聂耳温度。研究团队进一步通过X射线磁圆二色谱、氮空位色心磁力仪等实验技术确认了这种新颖的超晶格界面具有室温铁磁性。他们利用中国散裂中子源和美国橡树岭国家实验室的散裂中子源的极化中子反射谱仪将不同周期超晶格中的磁矩和化学组分随薄膜厚度的分布关系精确表征，进一步给出了该界面具有铁磁性的确凿证据。研究团队根据界面原子结构开展了系统的第一性原理计算，结果表明铁磁性是该界面结构的最稳定基态，能隙和磁矩的随厚度的变化均与实验观测一致。研究团队认为通过界面处不同阴离子与

铬离子的轨道耦合改变交换耦合强度，产生的自旋排列长程序，打破了本征两种母体材料的反铁磁序。本工作的意义在于首次在单原胞层尺度精准构筑了不同于全氧化物界面的氮化物/氧化物新型量子界面，利用人工界面耦合在两个反铁磁材料界面观测到室温铁磁性，这种方法为研究低维量子异质结中的量子序和发现新物态提供了新思路。

本研究的相关内容以“Room-temperature ferromagnetism at an oxide/nitride interface”为题发表在Physical Review Letters上。

本研究成果的共同第一作者为中国科学院物理研究所的博士生金桥和张庆华副研究员以及中国科学院宁波材料技术与工程研究所的博士生王智文。中国科学院物理研究所的郭尔佳特聘研究员和金奎娟研究员以及中国科学院宁波材料技术与工程研究所的杨洪新研究员为文章的共同通讯作者。本工作得到了中国科学院高能物理研究所的王嘉鸥研究员、上海大学的尹鑫茂教授、新加坡国立大学的Chi Sin Tang和Andrew T. S. Wee教授在同步辐射光源测量方面以及美国西北太平洋可再生能源国家实验室的王乐博士和Scott A. Chambers教授在X射线光电子能谱方面以及郑州大学郭海中教授、法国国家科学院的Sujit Das博士在宏观物性表征方面的支持。

该工作得到了科技部重点研发计划“量子调控与量子信息”专项（2020YFA0309100和2019YFA0308500）、国家自然科学基金委、北京市科技新星计划、北京市自然科学基金、中国科学院各类专项经费等项目的支持。

相关工作链接：

<https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.128.017202>

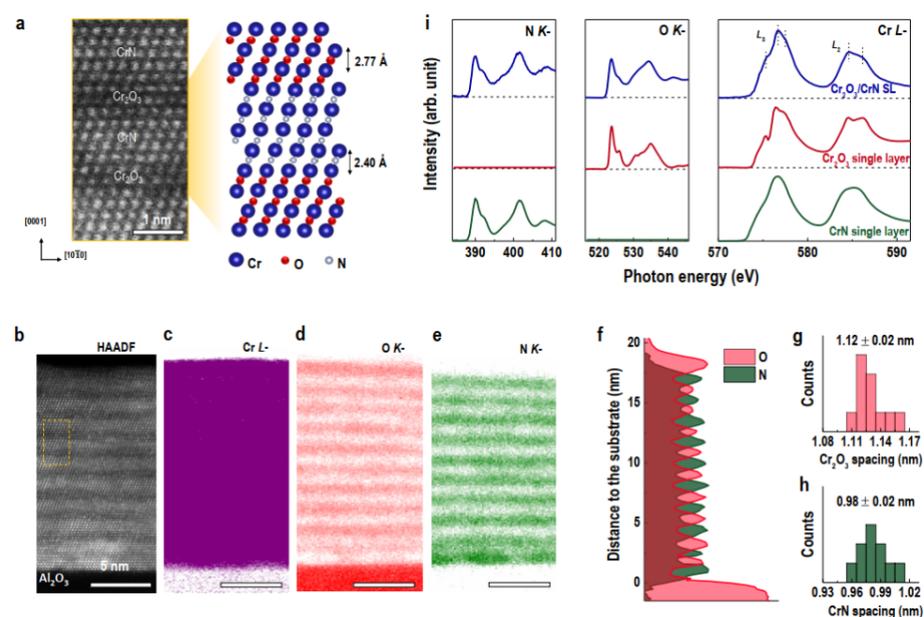


图1. CrN/Cr₂O₃超晶格界面结构和电子态表征

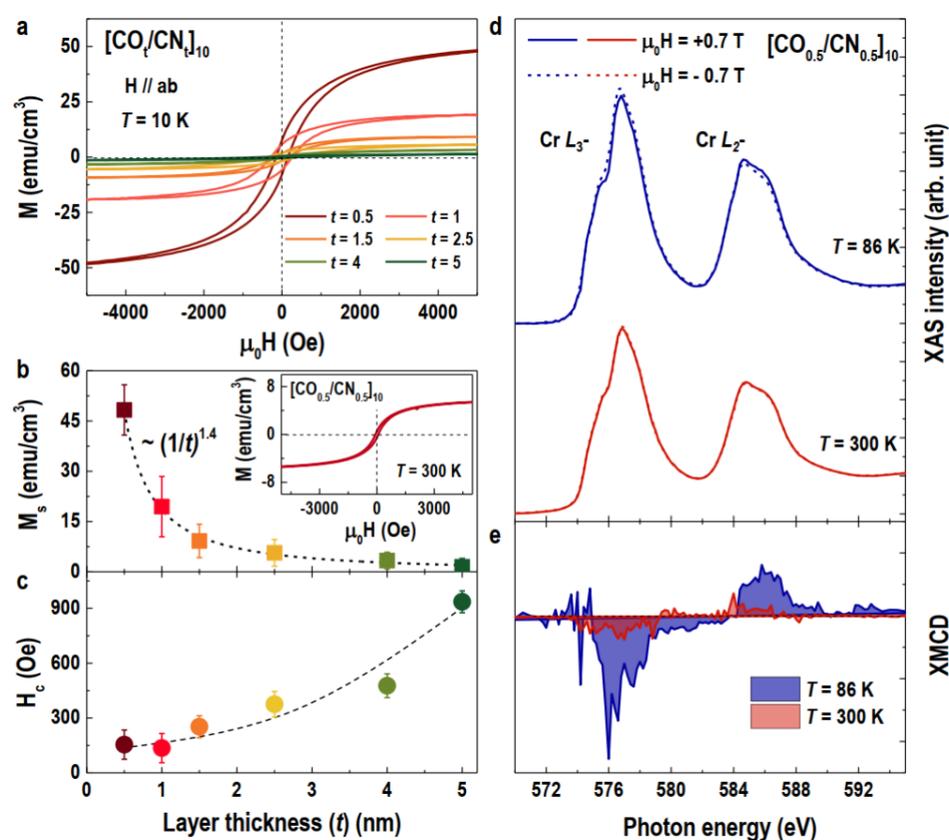


图2. 利用超导量子干涉仪和X射线光电子能谱表征CrN/Cr₂O₃超晶格宏观磁性

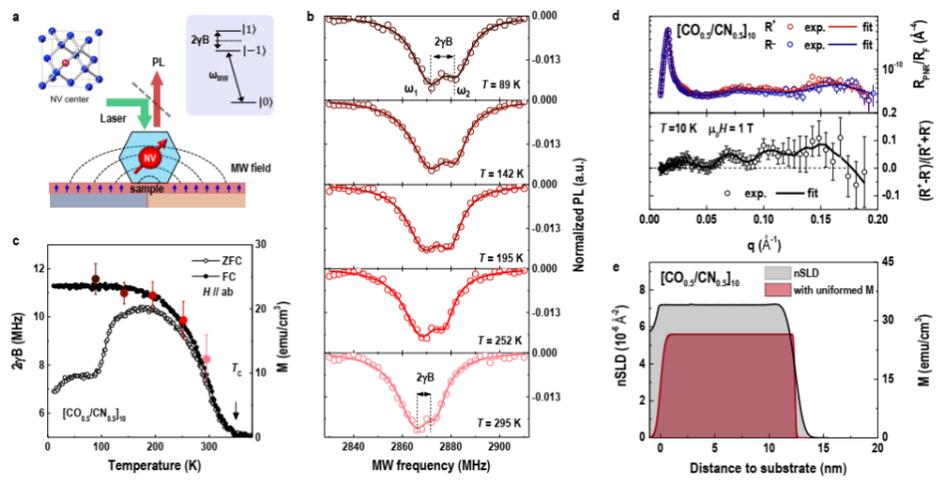


图3. 氮空位色心和极化中子反射技术进一步确认超晶格中存在确凿净磁矩。

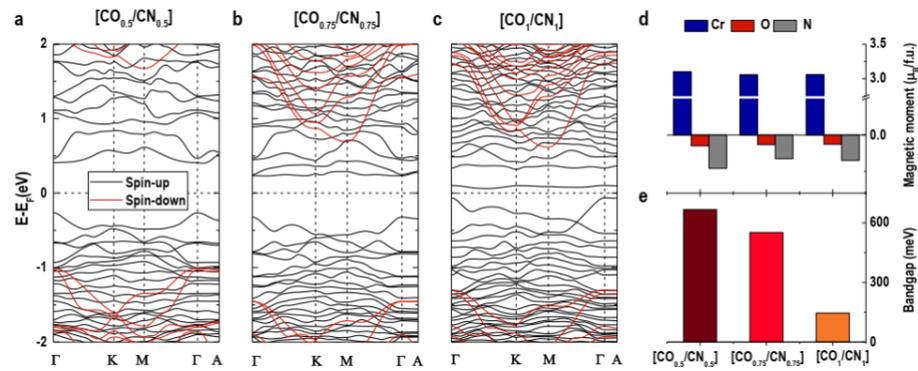


图4. 超晶格的能带结构、原子磁矩和能隙随周期的变化关系

[PRL 128, 017202 \(2022\).pdf](#)

[Supporting information.pdf](#)

[电子所刊](#)
[公开课](#)
[微信](#)
[联系我们](#)
[友情链接](#)
[所长信箱](#)
[违纪违法举报](#)



中国科学院
CHINESE ACADEMY OF SCIENCES