光电器件

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2024040601

MgO基磁性隧道结中隧穿磁-塞贝克效应温度特性的理论研究

刘 超，陶懿洲，方贺男*

（南京邮电大学 电子与光学工程学院、柔性电子（未来技术）学院，南京 210023）

摘 要： 构建了基于光学方法的单晶势垒层磁性隧道结理论模型，并利用该模型研究了MgO基磁性隧道结中隧穿磁-塞贝克效应的温度特性。由于该理论模型充分地计入了势垒层的周期性和晶格畸变的影响，在此理论模型中，温度不仅通过费米分布函数对塞贝克系数产生影响，还会通过晶格畸变对塞贝克系数进行修正，进而使塞贝克系数具有关于温度的振荡特性。该振荡特性来源于单晶势垒层周期势对隧穿电子的衍射所导致的相干性。上述结果在理论上解释了MgO基磁性隧道结中平行塞贝克系数和*TMS*随温度非单调变化的实验结果，并阐明了其物理机制。此外，文章还研究了应变、杂质浓度以及回复温度等晶格畸变参数对隧穿磁-塞贝克效应温度特性的影响。研究结果发现，杂质浓度和回复温度可以对平行塞贝克系数非单调变化的幅度进行调制。

关键词： 磁性隧道结；隧穿磁-塞贝克效应；晶格畸变；自旋热电子学

中图分类号： O482.5 **文章编号：** 1001－5868(2024)05－0798－07

Theoretical Study of the Temperature Characteristics of the Tunnel Magneto-Seebeck Effect in MgO-based Magnetic Tunnel Junctions

LIU Chao, TAO Yizhou, FANG He'nan

(College of Electronic and Optical Engineering & College of Flexible Electronics (Future Technology), Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, CHN)

Abstract: A spintronic theory is proposed for a magnetic tunnel junction with a single-crystal barrier. This theory is founded on optical theory and the Patterson function approach and can adequately account for the influences of the barrier periodicity and lattice distortion. Based on the proposed theory, we investigated the temperature characteristics of the tunnel magneto-Seebeck effect in MgO-based magnetic tunnel junctions. In low-temperature approximation, the temperature only influences the Seebeck coefficients through the Fermi distribution function. However, in the proposed theory, the temperature can modify the potential parameter of the barrier through lattice distortion and further alter the Seebeck coefficients. As the tunneling electrons are scattered by the single-crystal barrier, the corresponding coherence leads to the oscillation of the Seebeck coefficients. The results can theoretically interpret the non-monotonic temperature characteristics of the Seebeck coefficient in the parallel configuration and *TMS* in MgO-based magnetic tunnel junctions. Furthermore, the physical mechanism of the non-monotonic temperature characteristics is elucidated. In addition, we investigated the influences of the parameters of the lattice distortion, such as strain, defect concentration, and recovery

收稿日期：2024－04－06.

基金项目：国家自然科学基金项目(11704197)；南京邮电大学校级自然科学基金项目(NY221066，NY223074).

* **通信作者：**方贺男

temperature, on the temperature characteristics of the tunnel magneto-Seebeck effect. It is found that the amplitudes of the non-monotonic variations of the Seebeck coefficient in the parallel configuration can be modulated by the defect concentration and recovery temperature.

Key words: magnetic tunnel junctions; tunnel magneto-Seebeck effect; lattice distortion; spin caloritronics

0　引言

热电效应指的是通过温差和热电偶装置将热能转换为电能,或者将电能转换为热能的现象[1-2]。塞贝克效应作为热电效应中的重要效应,在解决器件废热方面具有重要的研究价值。近年来,自旋电子学作为新兴的交叉学科成为了电子科学与技术领域的研究热点[3-8]。随着自旋电子学的发展,在自旋电子器件中发现了很多与自旋相关的热电效应。其中,隧穿磁-塞贝克效应具有重要的物理意义和巨大的应用潜力[9-12]。该效应指的是塞贝克系数会随着磁性隧道结的磁结构即两铁磁电极磁化强度相对方向变化而变化的现象。通常来说,隧穿磁-塞贝克效应的强弱可以由 *TMS* 来表征[13]:

$$TMS=\frac{S_{\mathrm{P}}-S_{\mathrm{AP}}}{\min(|S_{\mathrm{P}}|,|S_{\mathrm{AP}}|)} \tag{1}$$

式中,S_{P} 是平行塞贝克系数,S_{AP} 是反平行塞贝克系数。2011 年,Walter 等[14] 和 Liebing 等[15] 在 MgO 基磁性隧道结中观测到了隧穿磁-塞贝克效应。随后,人们对 MgO 基磁性隧道结中的隧穿磁-塞贝克效应进行了广泛的研究[16-19]。文献[20]在实验上研究了隧穿磁-塞贝克效应随温度的依赖关系,实验结果表明平行塞贝克系数和 *TMS* 在 10～300 K 的区间内随温度非单调变化。理论上,在上述温度区间内,玻尔兹曼常数 k_{B} 与温度 T 的乘积通常情况下远小于铁磁电极的化学势 μ,即满足低温近似条件 $k_{\mathrm{B}}T\ll\mu$ [21]。在该近似下,平行塞贝克系数 S_{P} 和反平行塞贝克系数 S_{AP} 分别为[22]:

$$S_{\mathrm{P}}=-\frac{\pi^2k_{\mathrm{B}}}{3e}k_{\mathrm{B}}T\frac{\partial_\mu G_{\uparrow\uparrow}(\mu)+\partial_\mu G_{\downarrow\downarrow}(\mu)}{G_{\uparrow\uparrow}(\mu)+G_{\downarrow\downarrow}(\mu)} \tag{2}$$

$$S_{\mathrm{AP}}=-\frac{\pi^2k_{\mathrm{B}}}{3e}k_{\mathrm{B}}T\frac{\partial_\mu G_{\uparrow\downarrow}(\mu)+\partial_\mu G_{\downarrow\uparrow}(\mu)}{G_{\uparrow\downarrow}(\mu)+G_{\downarrow\uparrow}(\mu)} \tag{3}$$

式中,e 为单位电子电荷,T 为温度,$G_{\uparrow\uparrow}(\mu)$,$G_{\uparrow\downarrow}(\mu)$,$G_{\downarrow\uparrow}(\mu)$,$G_{\downarrow\downarrow}(\mu)$分别为取零温费米分布函数下的自旋向上-自旋向上,自旋向上-自旋向下,自旋向下-自旋向上,自旋向下-自旋向下四个通道的隧穿电导。由公式(2)和(3)可知,假定隧穿电导与温度无关,则塞贝克系数随温度线性单调变化。显然,这与上述实验中的结果并不一致,即上述假定与实验矛盾。这表明取零温费米分布函数下的电导依然与温度有关,也就是说,除了费米分布函数外,还有与温度有关的其他物理机制会对隧穿电导产生影响。物理上,声子会对隧穿电导产生修正,进而影响塞贝克系数的温度特性。然而,一方面,声子的影响无法解释 MgO 基磁性隧道结中隧穿磁阻效应的温度特性[23];另一方面,声子对电导的影响通常随温度呈单调特性,无法解释塞贝克系数的非单调温度特性。因此,在理论上探寻 MgO 基磁性隧道结中塞贝克系数非单调温度特性的物理机制并研究其对隧穿电导的影响是亟待解决的问题。

此前,本课题基于衍射物理中的 Bethe 理论和双束近似方法构建了适用于单晶势垒磁性隧道结的理论模型[24],并利用该理论模型解释了 MgO 基磁性隧道结中的温度效应[23]。理论结果表明,温度会对势垒层的晶格畸变产生影响,进而会改变隧穿电导。换句话说,物理上,晶格畸变也与温度有关,且会对隧穿电导产生修正。该物理机制有望解释塞贝克系数随温度非单调变化的特性。为此,本文对之前建立的理论模型进行了拓展,并根据该拓展模型研究了 MgO 基磁性隧道结中隧穿磁-塞贝克效应的温度特性。值得一提的是,不同的加热方法会导致塞贝克系数大小的显著差异。文献[18]发现,本征塞贝克系数,即通过直接焦耳加热方法测得的塞贝克系数比通过其他加热方法(比如间接焦耳加热和激光加热法)测得的塞贝克系数小几个数量级。物理上,这种巨大差异可能来源于其他加热方法导致的附加效应。比如,激光加热方法会导致磁性隧道结中产生较强的光子-声子相互作用。由于这些附加效应非常复杂,在理论上难以处理,所以本文仅研究 MgO 磁性隧道结中的本征隧穿磁-塞贝克效应。由后文可知,本文通过理论计算得到的塞贝克系数大小与直接焦耳加热方法测得的塞贝克系数实验值一致[18],同时,本文计算的塞贝克系数和 *TMS* 温度特性曲线可以较好地解释塞贝克系数随温度非单

调变化的实验现象。

1 理论模型

根据公式(2)和(3)可知:要得到塞贝克系数,首先要计算隧穿电导。在本文的理论模型中,隧穿电导的计算基于衍射物理中的 Bethe 理论和双束近似方法。根据 Bethe 理论和双束近似方法,自旋向上-自旋向上通道的隧穿电导可表示为[24]:

$$G_{\uparrow\uparrow}=\frac{e^2}{16\pi^3\hbar}\int_0^{\frac{\pi}{2}}\mathrm{d}\theta\int_0^{2\pi}\mathrm{d}\varphi k_{\mathrm{F}\uparrow}^2\sin(2\theta)\Gamma_{\uparrow\uparrow}(k_{\mathrm{F}\uparrow},\theta,\varphi) \tag{4}$$

式中,e 为单位电子电荷,$\hbar$ 为约化普朗克常量,θ 与 φ 分别为球坐标系中入射电子波矢的极角和方位角,$k_{\mathrm{F}\uparrow}$ 是自旋向上电子的费米波矢量的大小,可表示为:

$$k_{\mathrm{F}\uparrow}=\sqrt{\frac{2m(\mu+\Delta)}{\hbar^2}} \tag{5}$$

式中,m 为电子质量,μ 为化学势,Δ 为半交换劈裂能。$\Gamma_{\uparrow\uparrow}(k_{\mathrm{F}\uparrow},\theta,\varphi)$是自旋向上到自旋向上通道的透射系数,可表示为:

$$\begin{aligned}\Gamma_{\uparrow\uparrow}(\boldsymbol{k})=\frac{1}{8k_Z}\{&p_+^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[p_+^Z-(p_+^Z)^*]d}+p_-^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[p_-^Z-(p_-^Z)^*]d}+\\&q_+^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[q_+^Z-(q_+^Z)^*]d}+q_-^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[q_-^Z-(q_-^Z)^*]d}+[p_+^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[p_+^Z-(p_-^Z)^*]d}+\\&p_-^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[p_-^Z-(p_+^Z)^*]d}-q_+^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[q_+^Z-(q_-^Z)^*]d}-q_-^Z\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}[q_-^Z-(q_+^Z)^*]d}]+\\&cc.\}\end{aligned} \tag{6}$$

其中,$p_\pm^Z$,$q_\pm^Z$ 分别为:

$$p_\pm^Z=\sqrt{\boldsymbol{k}^2-\boldsymbol{k}_{\mathrm{h}}^2\pm 2m\hbar^{-2}\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})} \tag{7}$$

$$q_\pm^Z=\sqrt{\boldsymbol{k}^2-(\boldsymbol{k}_{\mathrm{h}}+\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})^2\pm 2m\hbar^{-2}\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})} \tag{8}$$

式中,$\boldsymbol{k}$ 为入射波矢,$\boldsymbol{k}_{\mathrm{h}}$ 为 $\boldsymbol{k}$ 与隧穿电流垂直平面内的投影,$\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}}$ 为该平面内的倒格矢,d 表示势垒层厚度,$\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$是势垒层关于倒格矢 $\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}}$ 的势参数。通过 Patterson 函数方法[25],晶格畸变会对势垒层的势参数 $\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$做如下修正:

$$\begin{aligned}\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})=\nu_0(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})+\nu_0(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})\cdot\Bigg[2\cos\Bigg(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}}\cdot\\ \alpha_0\left(1-\frac{T}{T_{\mathrm{c}}}\right)\Bigg)-1\Bigg]\sigma,T<T_{\mathrm{c}}\end{aligned} \tag{9}$$

式中,$\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$为理想单晶势垒原子势的傅里叶变换,$\alpha_0$ 为绝对零温下势垒的应变,σ 为杂质浓度,T_{c} 为回复温度(即应变消失时的温度)。根据公式(4)~(9),晶格畸变对势参数 $\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$的修正与温度有关,即温度会通过晶格畸变来改变 $\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$,进而改变隧穿电导和塞贝克系数,而这正是引言中指出的除费米分布函数外温度影响隧穿电导的物理机制。

同理,通过计算可以求得其他三个通道的隧穿电导,即 $G_{\uparrow\downarrow}$,$G_{\downarrow\uparrow}$ 以及 $G_{\downarrow\downarrow}$。进一步通过公式(1)~(3)可以得到平行塞贝克系数 S_{P},反平行塞贝克系数 S_{AP} 以及 TMS。

由公式(2)~(4)和公式(6)~(9)可知,在当前的理论模型下,塞贝克系数可表示为:

$$S=-f(T)T \tag{10}$$

根据公式(2),对于平行塞贝克系数有 $f(T)=\frac{(\pi k_{\mathrm{B}})^2}{3e}\frac{\partial_\mu G_{\uparrow\uparrow}(\mu,T)+\partial_\mu G_{\downarrow\downarrow}(\mu,T)}{G_{\uparrow\uparrow}(\mu,T)+G_{\downarrow\downarrow}(\mu,T)}$,根据公式(3),对于反平行塞贝克系数有 $f(T)=\frac{(\pi k_{\mathrm{B}})^2}{3e}\frac{\partial_\mu G_{\uparrow\downarrow}(\mu,T)+\partial_\mu G_{\downarrow\uparrow}(\mu,T)}{G_{\uparrow\downarrow}(\mu,T)+G_{\downarrow\uparrow}(\mu,T)}$。通过公式(10)可知,温度对塞贝克系数的影响来自两个方面:1)费米分布函数导致低温近似下塞贝克系数与温度呈线性关系($S\propto T$);2)温度通过晶格畸变对塞贝克系数进行修正($S\propto f(T)$)。塞贝克系数温度特性的示意图如图 1 所示。

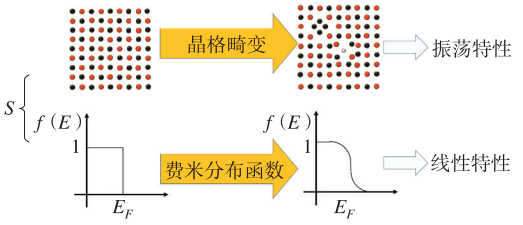


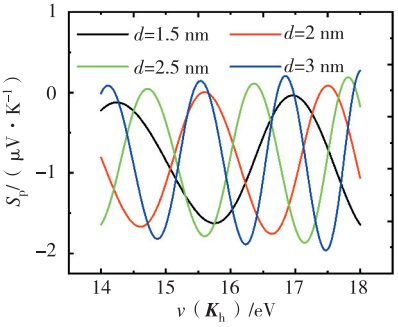
图 1 塞贝克系数温度特性的示意图

根据上述理论,本文将以 MgO 基磁性隧道结为例,来研究隧穿磁-塞贝克效应的温度特性及晶格畸变对其的影响。模型参数选取如下:根据文献[24],$\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}}=2.116\times10^{10}\ \mathrm{m}^{-1}$;铁磁电极和势垒层的势参数的选取与本课题组之前的工作一致,即 $\mu=11$ eV,$\Delta=10$ eV,$\nu_0(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})=15.3$ eV。

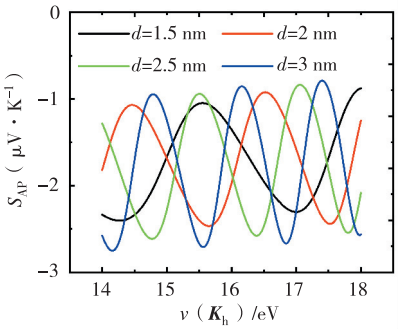
2 结果与讨论

由公式(10)可知,本文重点研究的是温度通过晶格畸变对塞贝克系数的修正,即函数 $f(T)$的特性。又因为该修正来源于温度对势参数 $\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$的影响,所以 $f(T)$的特性取决于塞贝克系数与势参数 $\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$的依赖关系。因此,本文计算了不同势垒层厚度(1.5 nm,2 nm,2.5 nm,3 nm)下塞贝克系数在温度恒定($T=300$ K)时随 $\nu(\boldsymbol{K}_{\mathrm{h}})$的变化曲线,结果

如图 2 所示。从图 2 中可以看出，在不同势垒层厚度下，S_P 和 S_{AP} 均随 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$振荡。由公式(2)和(3)可知，该振荡的物理机制与 MgO 基隧道结中隧穿电导随 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$的振荡相同[23]，即来源于单晶势垒层周期势对隧穿电子的衍射所导致的相干性。其次，还可以看出，振荡周期随势垒层厚度的增大而减小。由式(6)可知，当势垒层厚度增加时，$\Gamma_{\uparrow\uparrow}$ 相对于 $p_+^Z - p_-^Z$ 和 $q_+^Z - q_-^Z$ 的频率会随之增大，且 $p_+^Z - p_-^Z$ 和 $q_+^Z - q_-^Z$ 均随 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$单调增加。因此，塞贝克系数关于 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$的振荡周期随势垒层厚度的增大而减小，此外，塞贝克系数的振幅随势垒层厚度的增大而增大。这是因为：塞贝克系数的振荡与透射系数及透射系数关于化学势的导数$[\partial\Gamma(\mu)/\partial(\mu)]$有关，而透射系数关于化学势的导数中振荡项的振幅不仅与透射电子波波矢有关，还与势垒层厚度有关，且随势垒层厚度的增大而增大。另外，在不同的势垒层厚度下，S_P 和 S_{AP} 的振幅差别较小，而直流分量差别较大，即反平行塞贝克系数直流分量的绝对值远大于平行塞贝克系数。这是因为：在公式(2)和公式(3)中，易知反平行电导小于平行电导，则 S_{AP} 的绝对值大于 S_P 的绝对值。



(a) 平行塞贝克系数 S_P



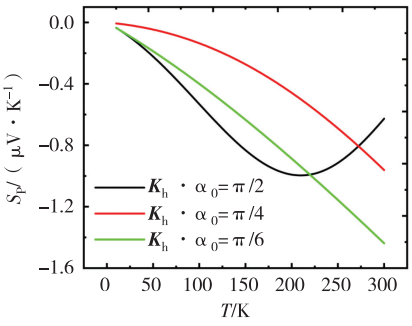
(b) 反平行塞贝克系数 S_{AP}

图 2　当温度恒定($T=300$ K)时，在不同势垒层厚度($d=1.5$ nm，2 nm，2.5 nm，3 nm)下塞贝克系数随 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$的变化特性曲线

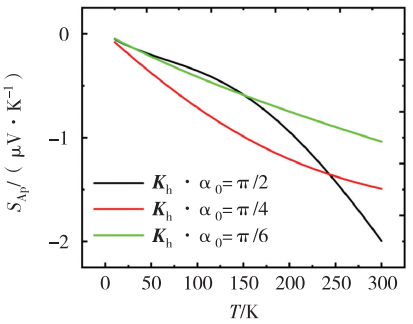
塞贝克系数的温度特性与塞贝克系数关于势参数 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$的特性密切相关，从公式(9)中可以看出，$\nu(\boldsymbol{K}_h)$随温度单调递增。根据图 2 的结果可知，塞贝克系数也会表现出关于温度的振荡特性，即塞贝克系数与温度的依赖关系既包含线性特性也包含振荡特性。

接下来，本文具体研究了塞贝克系数的温度特性以及晶格畸变参数的影响，势垒层厚度的取值为文献[20]中的大小，即 $d=2$ nm。

首先，本文计算并绘制了在不同应变下塞贝克系数随温度 T 的变化曲线，结果如图 3 所示。晶格畸变的参数设为：$\sigma=0.08$；$T_c=1\,000$ K；$\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/2,\pi/4,\pi/6$。由图 3(a)可知，平行塞贝克系数 S_P 在不同的应变下展现出不同的温度特性：当 $\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/4$ 和 $\pi/6$ 时，S_P 随温度单调下降；当 $\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/2$ 时，S_P 随温度非单调变化。这是因为：当 $\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/4$ 和 $\pi/6$ 时，与 10～300 K 的温度区间对应的 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$区间分别为 15.82～16.16 eV 和 16.2～16.36 eV，这两个区间在图 2(a)$d=2$ nm 的曲线中均为 S_P 单调下降的区间；而当 $\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/2$ 时，与 10～300 K 的温度区间对应的 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$区间为 14.11～15.19 eV，该区间在图 2(a)$d=2$ nm 的曲线中为 S_P 非单调变化的区间。与平行塞贝克系数不同，反平行塞贝克系数 S_{AP} 在不同的应变下均随温度单调下降。由图 2(b)$d=2$ nm 的曲线可知，$\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/4$ 和 $\pi/6$ 所对应的 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$区间分别为 15.82～16.16 eV 和 16.2～16.36 eV，这两个区间均为 S_{AP} 单调上升区间，而 $\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/2$ 对应的 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$区间(14.11～15.19 eV)为 S_{AP} 非单调变化区间。此时，尽管 $\boldsymbol{K}_h\cdot\alpha_0=\pi/2$ 对应的 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$区间为非单调变化区间，但由于反平行塞贝克系数中 $f(T)$的直流分量较大，相比于塞贝克系数关于温度的振荡特性，其线性特性更为显著，进而导致反平行塞贝克系数随温度单调下降。



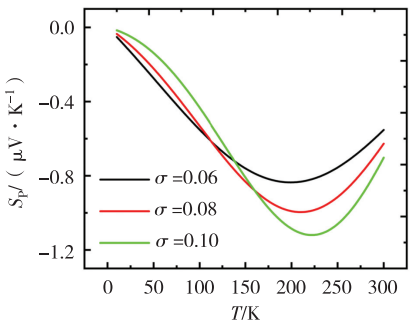
(a) 平行塞贝克系数 S_P



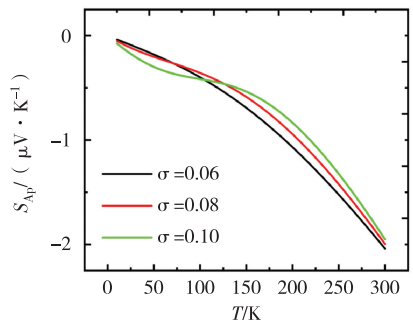
(b) 反平行塞贝克系数 S_{AP}

图 3 当势垒层厚度取 2 nm 时，在不同的应变($\boldsymbol{K}_h \cdot \alpha_0 = \pi/2, \pi/4, \pi/6$)下塞贝克系数随温度 T 的变化特性曲线

本文计算了不同的缺陷浓度 σ 下塞贝克系数随温度的变化曲线，计算结果如图 4 所示。晶格畸变的参数设置如下：$\boldsymbol{K}_h \cdot \alpha_0 = \pi/2$，$T_c$=1 000 K，$\sigma$=0.06，0.08，0.10。由图 4 可知，平行塞贝克系数 S_P 在不同的 σ 下均随温度非单调变化，而反平行塞贝克系数 S_{AP} 在不同的 σ 下均随温度单调下降。这是因为：当 σ=0.06，0.08，0.10 时，与 10～300 K 的温度区间对应的 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$ 区间分别为 14.41～15.22 eV，14.11～15.19 eV 和 13.82～15.16 eV，这些区间在图 2(a)和图 2(b)d=2 nm 的曲线中均为平行塞贝克系数和反平行塞贝克系数的非单调变化区间。与图 3 的分析类似，由于平行塞贝克系数中 $f(T)$ 的直流分量较小，相比于塞贝克系数关于温度的线性特性，其振荡特性更为显著，进而导致平行塞贝克系数随温度非单调变化。而由于反平行塞贝克系数中 $f(T)$ 的直流分量较大，此时塞贝克系数关于温度的线性特性更为显著，这将导致反平行塞贝克系数随温度单调下降。此外，由图 4 可知：σ 越大，塞贝克系数非单调变化的幅度越大。这是因为，由公式(9)可知，当 σ 增大时，10～300 K 的温度区间对应的 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$ 区间随之增大，又由图 2(a)可知，此时塞贝克系数非单调变化的幅度也随之增大。



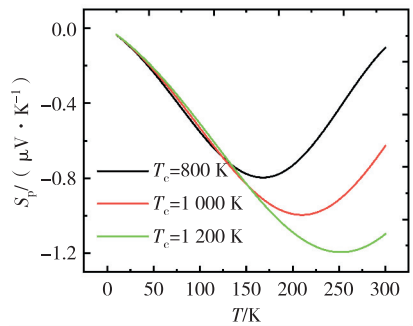
(a) 平行塞贝克系数 S_P



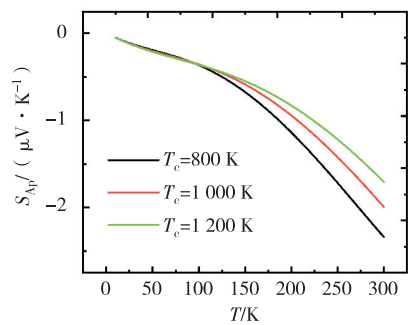
(b) 反平行塞贝克系数 S_{AP}

图 4 塞贝克系数在不同杂质浓度 σ=0.06，0.08，0.10)下的温度特性曲线

本文还计算了在不同的回复温度 T_c 下塞贝克系数随温度的变化曲线，计算结果如图 5 所示。晶格畸变的参数设置如下：$\boldsymbol{K}_h \cdot \alpha_0 = \pi/2$，$\sigma$=0.08，$T_c$=800 K，1 000 K，1 200 K。由图 5 可知，平行塞贝克系数 S_P 在不同的回复温度下均随温度非单调变化，而反平行塞贝克系数 S_{AP} 在不同的回复温度下均随温度单调下降，原因与前述图 4 的分析相同。其次，在低温区不同回复温度下的塞贝克系数差别较小，随着温度升高，该差别愈来愈大。该现象基于以下两个原因：①根据公式(9)，温度越低，T_c 的变化对 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$ 的影响越小，则对塞贝克系数的影响也就越小；②根据公式(10)可知，塞贝克系数与 $f(T)$



(a) 平行塞贝克系数 S_P



(b) 反平行塞贝克系数 S_{AP}

图 5 塞贝克系数在不同回复温度(T_c=800 K，1 000 K，1 200 K)下的温度特性曲线

呈线性关系，且比例系数为温度。因此，$f(T)$的变化所导致的塞贝克系数的改变存在温度倍增效应，即温度越高，T_c 的变化对 $f(T)$的影响所导致的塞贝克系数的变化越显著。此外，由图 5 可知，随着 T_c 的升高，S_P 的非单调变化幅度也随之增大。这是因为，T_c 越大，$f(T)$的极值所对应的温度越高，则温度倍增效应越显著。

最后，为了与文献[20]的实验结果进行对比，本文选取了如下晶格畸变参数：$\boldsymbol{K}_h \cdot \alpha_0 = \pi/2$，$\sigma = 0.08$，$T_c = 1\ 000$ K，并以此参数计算了塞贝克系数和 *TMS* 的温度特性曲线，结果如图 6 所示。从图 6 可以看出，平行塞贝克系数 S_P 和 *TMS* 均随温度非单调性变化，而反平行塞贝克系数 S_{AP} 随温度单调下降，该计算结果与文献[20]中的实验结果一致。由图 2～5 的分析可知，S_P 和 *TMS* 关于温度的非单调特性来源于单晶势垒层周期势对隧穿电子的衍射所导致的相干性。具体来说，塞贝克系数关于势垒层势参数具有振荡特性，而温度通过晶格畸变对势垒层势参数进行修正，从而使得塞贝克系数关于温度也具有振荡特性。此外，图 6 中理论计算的塞贝克系数大小与文献[18]中通过直接加热方法测得的实验结果一致，而比文献[20]的实验结果小 3 个数量级。如引言中所述，这可能是因为文献[20]中采用的加热方法并非直接加热方法（文献[20]并未给出其具体的加热方法），所以实验测得的塞贝克系数会比本文计算的本征塞贝克系数大几个数量级。至此，本文已经在理论上定性地再现了文献[20]的实验结果，即平行塞贝克系数和 *TMS* 关于温度的非单调特性，并阐明了其物理机制。

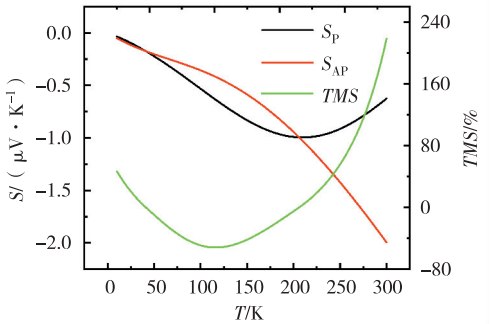


图 6　S_P，S_{AP} 和 *TMS* 的温度特性曲线

3　结论

本文通过双束近似方法和 Patterson 函数方法构建了适用于单晶势垒层磁性隧道结的理论模型。该理论模型充分地计入了单晶势垒层的周期性以及势垒层晶格畸变对隧穿磁-塞贝克效应的影响。与传统的低温近似理论不同的是，在此理论模型中，温度不仅通过费米分布函数对塞贝克系数产生影响，即塞贝克系数关于温度具有线性特性，温度还会通过晶格畸变对势垒层势参数进行修正，进而改变塞贝克系数。利用该理论模型，本文研究了 MgO 基磁性隧道结中隧穿磁-塞贝克效应的温度特性，并在理论上解释了已有的实验结果。

本文首先研究了不同势垒层厚度下恒温（$T = 300$ K）塞贝克系数随势垒层势参数 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$ 的变化曲线。研究结果发现，由于单晶势垒层的周期性导致隧穿电子波具有相干性，平行塞贝克系数 S_P 与反平行塞贝克系数 S_{AP} 均随 $\nu(\boldsymbol{K}_h)$ 振荡，且振荡周期随势垒层厚度的增大而减小，振幅随势垒层厚度的增大而增大。上述结果说明，温度对势垒层势参数的修正会导致塞贝克系数关于温度具有振荡特性。接下来，本文研究了晶格畸变参数对塞贝克系数温度特性的影响。研究结果表明，杂质浓度和回复温度越高，S_P 非单调变化的幅度越大。此外，由于势垒层势参数与回复温度的依赖关系随温度升高而增强以及存在温度倍增效应，塞贝克系数在低温时基本不随回复温度变化，而在高温时显著依赖于回复温度。最后，本文通过选取晶格畸变参数得到了与实验一致的理论计算结果，并进一步阐明了实验结果中平行塞贝克系数和 *TMS* 非单调温度特性的物理机制。上述研究结果不仅在理论上解释了已有的实验结果，还为 MgO 基磁性隧道结在自旋热电子学领域的应用奠定了理论基础。

参考文献：

[1]　Mao J，Liu Z，Ren Z. Size effect in thermoelectric materials [J]. NPJ Quantum Mater.，2016，1(1)：16028.

[2]　Tritt T M. Thermoelectric phenomena，materials，and applications[J]. Annual Review of Materials Research，2011，41：433-448.

[3]　梁世恒，陆　沅，韩秀峰. 自旋发光二极管研究进展[J]. 物理学报，2020，69(20)：208501.
Liang Shiheng，Lu Yuan，Han Xiufeng. Research progress of spin light emitting diode[J]. Acta Physica Sinica，2020，69(20)：208501.

[4]　Jin Z，Li J，Zhang W，et al. Magnetic modulation of terahertz waves via spin-polarized electron tunneling based on magnetic tunnel junctions [J]. Phys. Rev. Appl.，2020，14(1)：014032.

[5]　Lou Y，Zhang Y，Xu D，et al. Influence of oxygen content on the crystallinity of MgO layers in magnetic tunnel junctions

[J]. J. Semicond., 2014, 35(8): 083005.
[6] Zhang L, Fang B, Cai J, et al. Switching current reduction using MgO cap layer in magnetic tunnel junctions[J]. Appl. Phys. Lett., 2018, 112(24): 242408.
[7] Wu Weican, Zhang Like, Cai Jialin, et al. Magnetoresistance and spin-torque effect in flexible nanoscale magnetic tunnel junction[J]. Appl. Phys. Lett., 2019, 115(5): 052401.
[8] Tao B S, Yang H X, Zuo Y L, et al. Long-range phase coherence in double-barrier magnetic tunnel junctions with a large thick metallic quantum well[J]. Phys. Rev. Lett., 2015, 115(15): 157204.
[9] Shan J, Dejene F K, Leutenantsmeyer J C, et al. Comparison of the magneto-Peltier and magneto-Seebeck effects in magnetic tunnel junctions[J]. Phys. Rev. B, 2015, 92(2): 020414.
[10] Kuschel T, Czerner M, Walowski J, et al. Tunnel magneto-Seebeck effect[J]. J. Phys. D: Appl. Phys., 2019, 52(13): 133001.
[11] Boehnke A, Milnikel M, von der Ehe M, et al. On/off switching of bit readout in bias-enhanced tunnel magneto-Seebeck effect[J]. Sci. Rep., 2015, 5(1): 8945.
[12] Huebner T, Martens U, Walowski J, et al. Enhancement of thermovoltage and tunnel magneto-Seebeck effect in CoFeB-based magnetic tunnel junctions by variation of the $MgAl_2O_4$ and MgO barrier thickness[J]. Phys. Rev. B, 2017, 96(21): 214435.
[13] Wang S, Xia K, Bauer G E W. Thermoelectricity and disorder of FeCo/MgO/FeCo magnetic tunnel junctions[J]. Phys. Rev. B, 2014, 90(22): 224406.
[14] Walter M, Walowski J, Zbarsky V, et al. Seebeck effect in magnetic tunnel junctions[J]. Nat. Mater., 2011, 10: 742-746.
[15] Liebing N, Serrano-Guisan S, Rott K, et al. Tunneling magnetothermopower in magnetic tunnel junction nanopillars [J]. Phys. Rev. Lett., 2011, 107(17): 177201.
[16] Boehnke A, Martens U, Sterwerf C, et al. Large magneto-Seebeck effect in magnetic tunnel junctions with half-metallic Heusler electrodes[J]. Nat. Commun., 2017, 8: 1626.
[17] Jia X, Wang S, Qin M. Seeking large thermoelectric effects in MgO-based tunnel junctions[J]. New J. Phys., 2016, 18(6): 063028.
[18] Huebner T, Boehnke A, Martens U, et al. Comparison of laser-induced and intrinsic tunnel magneto-Seebeck effect in CoFeB/$MgAl_2O_4$ and CoFeB/MgO magnetic tunnel junctions [J]. Phys. Rev. B, 2016, 93(22): 224433.
[19] Heiliger C, Franz C, Czerner M. Ab initio studies of the tunneling magneto-Seebeck effect: Influence of magnetic material[J]. Phys. Rev. B, 2013, 87(22): 224412.
[20] Ning K, Liu H, Ju Z, et al. Magneto-Seebeck effect in magnetic tunnel junctions with perpendicular anisotropy[J]. AIP Adv., 2017, 7(1): 015035.
[21] Lunde A M, Flensberg K. On the Mott formula for the thermopower of non-interacting electrons in quantum point contacts[J]. J. Phys.: Condens. Matter, 2005, 17(25): 3879.
[22] Fang H, Li G, Xiao M, et al. Tunnel magneto-Seebeck effect in magnetic tunnel junctions with a single-crystal barrier[J]. J. Magnetism and Magnetic Mater., 2023, 571: 170555.
[23] Fang H, Xiao M, Rui W, et al. Magnetic coherent tunnel junctions with periodic grating barrier[J]. Sci. Rep., 2016, 6: 24300.
[24] Cowley J M. Diffraction Physics [M]. Third Revised Edition. Amsterdam: Elsevier Science B. V, 1995: 147-150.

作者简介：

刘　超(1998—)，男，山东省泰安市人，硕士研究生，主要研究方向为自旋电子学；

方贺男(1984—)，男，黑龙江省哈尔滨市人，博士，副教授，主要从事凝聚态物理等方面的研究。