# 自旋漲落與去磁場效應對操控自 旋電流之影響

# The Influence of Spin Fluctuation and Demagnetization Effect on Manipulating Spin Current

吳柏勳、黃斯衍 Po-Hsun Wu, Ssu-Yen Huang

純自旋電流在攜帶極少或甚至沒有電荷載子的情況下,可以更有效地傳遞的自旋角動 量,因此最近自旋電子現象的探索和自旋電子學元件的研究與進展已經由利用自旋極化電流 演變為純自旋電流。在本文中,我們的工作證明了自旋玻璃系統中的自旋漲落可以用來增強 純自旋電流。此外,我們還發現樣品的形狀和去磁效應會強烈影響純自旋電流的行為。

A pure spin current can more efficiently deliver spin angular momentum with fewer or no charge carriers. Therefore, spintronic phenomena and devices have evolved from exploiting spin-polarized current to pure spin current. Here, we demonstrate spin fluctuations in the spin-glass system can enhance the pure spin current. Furthermore, we show that the shape of specimens and demagnetizing effects strongly influence the manipulation of pure spin current.

## 一、自旋傳輸量測之介紹

近年來,由於半導體製程技術的突飛猛進,單位面積的電晶體數目得以大幅地增加, 使得電子裝置的效能越來越好。然而,傳統電子元件主要是依賴電荷來驅動,因此,電 晶體密度的驟升會伴隨大量的熱耗散進而嚴重影響裝置的運行。而電子,除了帶有電荷 (charge)之外,還具備另一個本質性質「自旋 (spin)」,這為解決這個問題帶來一絲曙光。 為了研究如何有效地操控自旋流,科學家發展出各種不同的方式來產生、偵測與操控自旋 電流,尤其是攜帶自旋角動量但只有伴隨少量或甚至沒有電子電荷的純自旋電流 (pure spin current),其中自旋電流與純自旋電流的差別可以參閱我們之前的介紹<sup>(1-2)</sup>。純自旋電流的操 控與量測包括自旋霍爾效應 (spin Hall effect)<sup>(3)</sup>、自旋幫浦 (spin pumping)<sup>(4-5)</sup>、自旋塞貝克 效應 (spin Seebeck effect)<sup>(6-9)</sup>、自旋霍爾磁阻 (spin Hall magnetoresistance)<sup>(10-12)</sup>以及非局域性 量測 (non-local measurement)<sup>(4, 13)</sup>等。本文將介紹自旋漲落 (spin fluctuation) 與去磁場效應 (demagnetization effect) 對操控自旋電流之影響,其中我們採用磁性「絕緣體」以及自旋塞貝 克效應 (spin Seebeck effect) 進行實驗。不同於磁性金屬,磁性「絕緣體」能產生相對單純的 自旋電流訊號,尤其是利用電性量測的方式來探測自旋電流時,使用絕緣體可以避免自旋 傳輸訊號中參雜來自磁性導體中與電流相關的其他效應 (例如,異常能斯特效應, anomalous Nernst effect)。本文中我們用來產生純自旋電流的磁性絕緣體為釔鐵石榴石 (yttrium iron garnet, YIG),因為其具有最低的自旋傳輸阻尼 (low damping constant) 以及高居禮溫度 (high Curie temperature) 等優點。以下我們分別介紹如何利用自旋漲落效應增強純自旋電流的激發 與訊號及去磁場效應對操控自旋電流之影響。

#### 二、自旋漲落對於純自旋電流訊號之增強效應

如前所述,由於自旋電流為突破未來科技的關鍵角色,近年來如何有效地操控自旋電流 成為一個重要的研究題材。由於自旋軌道耦合作用為電流對自旋流轉換之重要物理機制, 而自旋軌道耦合又和元素的原子序 (atomic numbers) 有很密切的關聯,因此各種 4、5d 族元 素先後被用於探測產生於 YIG 中之自旋電流<sup>(14)</sup>。有趣的是,最近有研究結果發現,雖然原 子序遠小於 4、5d 族的重金屬,部分 3d 族元素 (如, Cr<sup>(15-16)</sup>、Ni<sup>(16)</sup> 以及 V<sup>(17)</sup>) 卻具有相當大 的自旋流對電流轉換效率。儘管如此,目前這些材料所能產生之自旋霍爾電壓大小仍需被 大幅度的提升。而最近比較重要的研究取得突破並指出,若在金屬層與 YIG 之間插入一約 1-2 nm 之反鐵磁 (antiferromagnetic) 絕緣層 (如 NiO 以及 CoO) 時,無論在自旋幫浦<sup>(18-19)</sup> 還 是自旋塞貝克效應<sup>(20)</sup>中,自旋霍爾電壓都可以在室溫下被大幅地提升2至3倍。這是一個 相當特別且重要的結果,因為如果我們將 SiO,這種不具磁性的絕緣層放在金屬層與 YIG 之 間,自旋訊號非但不會增加,反而會被屏蔽掉。更重要的是,Pt/NiO/YIG 之反自旋霍爾電 壓被觀察到其會隨著溫度減小而逐漸變大,達到最大值並且於更低溫時遞減。而峰值的位置 並非固定不動,峰值的位置隨著 NiO 的厚度增加 (0.6 nm 到 2 nm) 而由低温移動至高温。這 個現象是由於當反鐵磁薄膜的厚度足夠薄時,其尼爾溫度 (Neel temperature) 會隨薄膜厚度 減小而減小 (finite size effect<sup>(21)</sup>)。其中最重要的是,峰值的位置恰好與反鐵磁絕緣體所對應 之尼爾溫度一致,因此這個自旋訊號的增強被認為是由相轉變期間所誘發的自旋漲落 (spin fluctuation)引起的。

我們認為若自旋漲落效應可以增強純自旋電流傳輸訊號,那麼自旋玻璃應會是很有潛力的系統。不同於反鐵磁材料具有長程磁有序排列 (long range magnetic ordered),具有短程磁有序排列 (short range magnetic ordered) 的自旋玻璃在歷經磁性相轉變時,具有極強的自旋漲落效應。更重要的是,不同於使用反鐵磁絕緣層時必須配合金屬層來間接探測從 YIG 傳遞上來的自旋流,具導電性之自旋玻璃可以直接用來探測純自旋電流,並研究磁性相轉變前後反霍爾自旋電壓之變化。在這個研究中,我們使用銅錳合金 (CuMn alloys)。透過提高錳元素的比例,我們能夠成長出具不同比例的自旋玻璃態的銅錳合金薄膜甚至具反鐵磁性的純錳 (Mn) 薄膜,並且也能系統性地調控其磁性相轉變溫度-自旋凍結溫度 (spin freezing temperature, T<sub>f</sub>),如圖 1(a) 所示。在本實驗中,我們使用磁控濺鍍 (magnetron sputter) 設備,利用共鍍 (co-sputtering) 的方式在 YIG 上製備不同比例的銅錳合金薄膜 (Cu<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>)。由於 YIG 是絕緣體,其內部並無自由電子可以做為載子傳遞自旋角動量 (spin angular momentum),那麼我們要如何在這樣的材料中量測自旋傳輸呢?我們利用施加溫度梯度,應給鄰近原子,透過自旋波的方式傳遞出去,如圖 1(b) 所示,此效應稱作自旋塞貝克效應

(spin Seebeck effect)。由於此自旋傳輸並不伴隨電子流動,因此我們必須在 YIG 上濺鍍一層金屬 (如之前報導常用的重金屬:鉑 (Pt)、鉭 (Ta)、鎢 (W)、金 (Au)<sup>(14)</sup> 和本文欲研究的銅 錳合金),利用反自旋霍爾效應 (inverse spin Hall effect),透過自旋軌道耦合作用 (spin-orbit coupling interaction) 使帶有不同自旋方向之電子往相同方向流動並累積,使得我們能透過電 性量測的方式去偵測 YIG 中之純粹自旋流 (pure spin current)。圖 1(b) 為  $Cu_{1-x}Mn_x$  / YIG 之自 旋塞貝克效應量測裝置示意圖。圖 1(c) 中之紅色曲線顯示反自旋霍爾電壓 (inverse spin Hall voltage) 對於磁場呈現反對稱 (anti-symmetric) 之行為,符合反自旋霍爾效應之描述, $J_c \propto \theta_{SH}$  ( $J_s \times \sigma$ )。其中  $J_s$  為自旋流, $J_c$  為電流, $\sigma$  為自旋極化方向 (spin index)。為了確定這個訊號 完全來自於 YIG 中之純粹自旋流,我們將 YIG 基板替換成不具磁性之 SiO<sub>2</sub> 基板並進行量 測,結果我們觀察不到任何對磁場變化之電壓訊號,如圖 1(c) 中之黑色曲線所示。這是由 於  $Cu_{86}Mn_{14}$  為淨磁矩為零之自旋玻璃態磁性導體,所以在外加磁場與溫度梯度下,其不會 貢獻如異常能斯特效應之訊號。



圖 1. (a) 銅錳隨比例及溫度之磁性狀態改變示意圖。(b) Cu<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub> / YIG 之自旋塞貝克 效應及反自旋霍爾效應之示意圖 (c) Cu<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub> / YIG (紅色) 及 Cu<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub> / Si (黑色) 雙層 結構之反自旋霍爾電壓對磁場關係圖<sup>(26)</sup>。

而要研究自旋漲落效應對自旋訊號的影響,首先我們必須知道這些不同比例的銅錳合金的自旋凍結溫度為何。要測定自旋玻璃的自旋凍結溫度,通常我們量測零場降溫(zero-field-cooling, ZFC)及加場降溫(field-cooling, FC)之磁化強度(temperature-dependent magnetization, *M*),如圖 2(a)所示,我們可以觀察到這兩條曲線並不會重疊而會岔開,而分岔處即為一般文獻所定義的自旋凍結溫度。此不可逆性(irreversibility)為自旋玻璃的典型特徵之一。圖 2(a)為不同比例之銅錳合金在不同溫度下的磁化強度之量測結果,我們發現藉由調變銅與錳的比例的確可以改變銅錳合金的自旋凍結溫度。隨著錳的比例逐漸增加,自旋凍結溫度也不斷升高並且在錳的比例為 79%時達最大值,然後在錳濃度更高時(100%)降低,如圖 2(c)之紅色三角形所示,這個結果和過去的文獻報導一致<sup>(22)</sup>。



圖 2. 不同銅猛合金比例 (a) 在不同溫度下之磁化強度 (b)不同溫度下之自旋賽貝克係數 (spin Seebeck coefficient, S) (c)錳濃度相關之反自旋霍爾電壓峰值  $(T_p)$  及自旋凍結溫度  $(T_f)^{(26)}$ 。

為了了解自旋漲落對於自旋傳輸訊號的影響,我們接著將不同比例之銅錳合金濺鍍在 YIG上並量測隨溫度變化之自旋塞貝克效應。如圖 2(b)所示,無論是哪種比例的銅錳合金, 其隨溫度變化之反自旋霍爾電壓皆會隨溫度降低而增強,並且在某個溫度 (T<sub>p</sub>) 達其峰值, 然後在更低溫降低。在這裡,由於反自旋霍爾電壓之大小與外加之溫度差成正比,因此我們 於圖 2(b) 中使用自旋賽貝克係數 (spin Seebeck coefficient, S) 作為縱座標,其定義為反自旋 霍爾電壓除上溫度差。值得注意的是,不同比例的銅錳合金,其隨溫度變化的自旋賽貝克係 數之峰值皆落在不同位置。如圖 2(c) 之緣色星星所示,我們發現隨著錳的比例逐漸增加, T<sub>p</sub>不斷升高並且在錳的比例為 79% 時有最大值,然後於錳的比例為 100% 時降低。重要的 是,當我們比較 T<sub>p</sub> 及 T<sub>f</sub> 隨錳濃度變化之趨勢時,我們發現兩者呈現完全相同的行為,如圖 2(c) 所示。這個結果表明自旋漲落效應確實對於自旋傳輸訊號的增強有著非常重大的影響。

#### 三、自旋傳輸於探測自旋玻璃材料的複雜自旋凍結過程之應用

雖然自旋熱訊號峰值溫度及自旋凍結溫度皆隨著錳濃度增加而呈現完全相同的變化趨勢,然而,我們發現 T<sub>p</sub>的數值總是比 T<sub>f</sub>大,並且兩者之間的比值大約落在 1.3-2 這個範圍。實際上,在過去研究自旋玻璃的文獻報告中,透過使用包括中子自旋迴波 (neutron spin echo),梅斯堡效應 (Mössbauer effect), $\mu$ 子自旋弛豫 (muon spin relaxation)<sup>(23-24)</sup>等量測方法,他們都發現自旋凍結過程其實相當複雜。藉由使用理論模型擬合實驗數據,這些文獻認為自旋漲落應該發生在高於自旋凍結溫度 (T<sub>f</sub>) 之溫度,而這個結論和我們的實驗結果一致。為了進一步確認這個結果,我們利用已經被用於研究反鐵磁材料相轉變過程之反自旋霍爾訊號的 critical theory<sup>(25)</sup>,來研究反自旋霍爾訊號在銅錳合金歷經相轉變過程之行為。透過使用實驗數據,我們可以繪製  $\frac{|S|}{|S_{max}| \cdot t^{\gamma}}$ 對 $\frac{h}{t^{\gamma} + \beta}$ 的關係,並且得到圖 3。其中  $h = \frac{H}{k_BT}$ , $\beta \gtrsim \gamma$ 為 critical exponents,  $t = \frac{T - T_{critical}}{T_{critical}}$  ( $T > T_{critical}$ )為折合溫度 (reduced temperature)。圖 3 中,縱軸為自旋塞貝克係數對其最大值進行歸一化 (normalization),如此便可消除不同比例之銅 錳合金因為自旋霍爾轉換率不同所造成的差異並且進行比較。



圖 3. 歸一化自旋塞貝克係數對三維 Ising model critical exponent 之關係。(a) 取  $T_{critical} = T_{p}$  (b) 取  $T_{critical} = T_{f}^{(26)}$ 。

當我們選取  $T_{critical}$  為  $T_p$  時,我們發現所有數據皆完美落在一條曲線上,如圖 3(a) 所示。然而,如果我們選取的  $T_{critical}$  為  $T_f$  時,我們發現數據點則無法落在一條曲線上並呈現發散狀,如圖 3(b) 所示。此結果顯示對於自旋玻璃材料而言,真正的相轉變是在  $T_p$  發生。因此,由我們的實驗以及利用 critical theory 進行計算所得到的結果,皆顯示自旋塞貝克所激發的純自旋電流不但可以藉由自旋漲落提升,純自旋電流還可以作為一種全新、精準的方法,用以探測及研究自旋玻璃材料之複雜自旋凍結過程<sup>(26)</sup>。

#### 四、釔鐵石榴石中之去磁場效應

值得注意的是,這些自旋傳輸量測很多都是首先於磁性塊材 (bulk) 中進行,而樣品的形 狀及其對應的去磁場 (demagnetizing field) 分佈,理應對自旋傳輸有很大的影響。然而,在 截至目前的自旋傳輸量測中,都忽略了去磁場可能帶來的效應。以下透過一系列實驗量測及 理論擬合,我們將研究去磁場效應如何對操控純自旋電流造成影響。在介紹自旋傳輸與去磁 場效應的關聯性前,我們首先介紹什麼是去磁場。當我們將一個磁性材料放置於具有外加磁 場分布的空間中時,磁性材料將被磁化 (magnetized) 而形成一個兩端為 S 極和 N 極排列的 磁鐵,如圖 4(a)。而磁力線的分布是出於 N 極而止於 S 極,因此,磁鐵內部將形成一與外 加磁場相反方向的磁場,如圖 4(b) 所示。由於此磁場會削弱外加磁場,故其被稱為去磁場 (*H<sub>d</sub>*)。



圖 4. (a) 磁鐵被外加磁場磁化之示意圖 (b) 去磁場 ( $H_d$ ) 之分布示意圖 (c) 對於鎳奈米線沿不同方向施加外加場之磁滯曲線<sup>(27)</sup>。

而去磁場之大小與磁性材料之形狀以及磁化強度 (magnetization, *M*) 大小有緊密的關聯,如同式 (1) 之描述。

$$H_d = -N_d M \tag{1}$$

式中的  $N_a$  為去磁因子張量 (tensor of demagnetizing factor) 以及負號代表其與外加磁場方向 相反之特性。其中,去磁因子張量很大程度地受到樣品形狀影響。舉例來說,當鎳 (Ni) 被 做成一維的奈米線 (nanowire) 時,當外加磁場沿著短軸及長軸施加時,所呈現出的磁滯曲 線 (hysteresis loop) 行為截然不同<sup>(27)</sup>。如圖 4(c) 所示,當磁場平行長軸 (c 軸) 方向,磁滯曲 線大約在 300 厄斯特 (Oe) 達到飽和。然而,當磁場平行短軸 (a 及 b 軸) 方向,磁矩則需要 3500-5000 厄斯特才能達成飽和。因此,我們了解到,即便是一個相同的材料,其磁性也 會受到形狀的影響而呈現極為不同的行為。當我們在進行自旋電流傳輸操控與量測時,所採 用的基板為具有亞鐵磁性的 YIG 塊材,因此,理論上來說在 YIG 中所激發的自旋電流會嚴 重受到其形狀影響,但如此重要的觀點仍尚未被報導與討論。首先我們先透過改變 YIG 的 形狀來研究形狀變化對於磁性的影響。首先,我們系統地改變 YIG 的厚度 (thickness, t) 並且 量測其磁滯曲線。如圖 5(a),當我們外加面內 (in-plane) 方向的磁場時,我們發現隨著 YIG 厚度越薄,磁矩越容易飽和。然而,若外加磁場沿著厚度方向施加,此時隨著 YIG 厚度越 薄,磁矩越不容易飽和,如圖 5(b)。



圖 5. 外加磁場沿 YIG 的 (a) 面內以及 (b) 厚度方向之厚度相關磁滯曲線行為<sup>(41)</sup>。

為了進一步了解去磁因子所扮演的角色,我們接下來研究 YIG 的磁異向性 (magnetic anisotropy)。透過計算兩條磁滯曲線 (外加磁場沿著不同方向)所包圍的面積,如圖 6(a),我 們可以得到如式 (2) 之等效磁異向能 (effective magnetic anisotropic energy,  $K_{eff}$ )<sup>(28-29)</sup>。

$$K_{eff} = \int H_{\parallel} dM_{\parallel} - \int H_{\perp} dM_{\perp} \tag{2}$$

接著,利用式 (2),我們可以得到不同 YIG 厚度之等效磁異向能,如圖 6(b) 所示。我們 發現,隨著 YIG 厚度增加,等效磁異向能的數值也隨之減小,此一結果顯示當 YIG 厚 度變薄時,磁矩越傾向沿著平面排列,證實形狀的變化對於磁性的確有很大的影響。而  $K_{\text{eff}}$ 的來源又可以進一步區分成來自塊材以及表面的貢獻。塊材的貢獻主要由形狀異向性 (shape anisotropy,  $K_{\text{sh}}$ )、磁晶軸異向性 (magnetocrystalline anisotropy,  $K_{\text{cry}}$ )以及磁彈異向性 (magnetoelastic anisotropy,  $K_{\text{me}}$ )<sup>(28,30)</sup> 三者所構成,如式 (3) 所示。



圖 6. (a) 沿著 in-plane 以及 out-plane 之外加磁場下所量測出來的兩條磁滯曲線所 包圍的面積即為等效磁異向能 (K<sub>eff</sub>) (b) 厚度相關之等效磁異向能

$$K_{eff} = K_{sh} + K_{cry} + K_{me} \tag{3}$$

其中形狀異向性可以用式 (4) 描述,其意涵為:要使磁矩沿不同方向排列所需之靜磁能 (static magnetic energy) 的差值 (如若式 (4) 為零則代表形狀異向性不存在)。

$$K_{sh} = \frac{1}{2} (N_w - N_t) M^2$$
(4)

式中 N<sub>w</sub>、N<sub>t</sub> 分別為沿著材料寬度 (width, w) 及厚度方向之去磁因子。值得注意的是,通常 只有正橢圓 (ellipsoidal) 體,因為內部磁場均匀地分佈,所以其去磁因子可以透過計算求得 解析解 (analytical solution)<sup>(31-32)</sup>。不過,在某些特別情形下,當三維的物體退化成二維 (如薄 膜) 或者一維 (如奈米線) 的物體時,此時去磁因子的數值也能因極限情況而被近似求出。然 而,如果是一般常見的形狀如長方體、圓柱體、長條狀等,由於內部磁場分布不均匀 (nonuniform),所以無法直接計算得出相應的去磁因子的數學形式。舉例來說,為了能得出長方 體的去磁因子,過去的文獻研究必須使用大量的假設下,才能求得粗略的近似解<sup>(33-36)</sup>。然 而,最近的文獻<sup>(37)</sup> 利用先進的模擬軟體搭配馬克斯威爾方程式 (Maxwell's equation),在幾 乎不使用假設下,得出了有限尺寸的長方體在外加磁場沿著寬度方向下的去磁因子,如圖 7(a) 和式 (5),其為一包括長、寬、高的函數。

$$N_w = \frac{1}{1 + \frac{3}{4} \left(\frac{w}{t}\right) \left(1 + \frac{t}{L}\right)}$$
(5)

透過類比,我們不難得到外加磁場沿著厚度方向的去磁因子為
$$\begin{split} N_t &= \frac{1}{1 + \frac{3t}{4w} \left(1 + \frac{w}{L}\right)} \circ \mathbb{K} N_t \mathcal{D} \\ N_w 代入式 (4),我們就能得到隨尺寸變化之形狀異向能,如式 (6)所示。 \end{split}$$

$$(K_{eff})t = \left[2\pi M^{2} \times \left(\frac{1}{1 + \frac{3w}{4t}\left(1 + \frac{t}{L}\right)} - \frac{1}{1 + \frac{3t}{4w}\left(1 + \frac{w}{L}\right)}\right) + K_{cry} + K_{me}\right]t \quad (6)$$



圖 7.(a) 三維長方體(長L,寬W,厚t)在外加磁場下沿著寬度方向之示意圖(b) 引入形狀相關去磁因子之厚度相關等效磁異向能對實驗數據進行擬合之結果。 錄線為不考慮磁晶軸異向性,橘線為引用文獻之磁晶軸異向性數值之結果。

此外,由文獻可知,YIG 塊材之磁晶軸異向性為 5700 erg/cm<sup>3 (38-39)</sup>。另外,由於我們使用的 是 YIG 塊材,因此其磁彈異向性可忽略不計,因為磁彈異向性通常由薄膜與基板間的晶格 不匹配 (crystalline mismatch)所引起。根據這些結果,我們可以重新將式 (6) 改寫為式 (7), 並且對厚度相關的 K<sub>eff</sub>進行量化分析。

$$(K_{eff})t = \left[2\pi M^{2} \times \left(\frac{1}{1 + \frac{3w}{4t}\left(1 + \frac{t}{L}\right)} - \frac{1}{1 + \frac{3t}{4w}\left(1 + \frac{w}{L}\right)}\right) + 5700\right]t$$
(7)

在式 (7) 中,唯一的擬合參數 (fitting parameter) 為磁化強度 (M)。如圖 7(b) 中曲線所示, 我們發現式 (7) 可以近乎完美地描述隨厚度變化之 *K*<sub>eff</sub> 的行為,並且由擬合所得之 M 為138 emu/cm<sup>3</sup>,和我們由磁滯曲線量測所得到的數值一致。此結果充分顯示形狀的改變對磁性塊 材之磁矩行為具有相當深遠的影響。另外,從圖中我們還可以發現,是否考慮磁晶軸異向 性,並不會對擬合結果有任何影響,也就是說,相較於 YIG 之形狀異向性,其磁晶軸異向 性可以忽略。

如果 YIG 的磁性可以透過改變其厚度而呈現系統的變化,那麼改變其寬度應該也可以 觀察到類似的現象。的確,如圖 8(b) 和 (c) 所示,當我們施加面內方向的磁場時,我們發現 隨著 YIG 寬度越小,磁矩越不容易飽和。然而,若施加沿著厚度方向的磁場時,此時隨著 YIG 寬度越小,磁矩越容易飽和。同樣地,對於隨寬度變化之 K<sub>eff</sub>,我們也能用式 (7) 對其 進行量化分析,並且我們發現,式 (7) 也可以完美地描述隨 YIG 寬度變化之 K<sub>eff</sub>,如圖 8(d) 所示。其中,由擬合所得之 M 為 144 emu/cm<sup>3</sup>,也和我們由磁滯曲線量測所得到的數值一 致。至此,透過系統地改變 YIG 的寬度及厚度,我們展示形狀異向性主導其磁矩在外加磁 場下的行為。



圖 8. (a) YIG 寬度縮減之示意圖。外加磁場沿 YIG 的 (b) 面內以及 (c) 厚度方向之寬度 相關磁滯曲線行為 (d) 引入形狀相關去磁因子之寬度相關等效磁異向能對實驗數據進 行擬合之結果<sup>(41)</sup>。

#### 五、自旋傳輸於探測去磁場效應之應用

如前面所述,要在 YIG 這樣的絕緣體中探測純粹自旋流 (pure spin current),我們通常 需要在 YIG 上製備一層如鉑的金屬層並利用反自旋霍爾效應將之轉換成電壓訊號,如圖 9(a)。其中,在反自旋霍爾效應的描述中 ( $J_c \propto J_s \times \sigma$ ),一般認為電子的自旋極化方向  $\sigma$  應 受控於 YIG 中之磁矩。然而,若我們將反自旋霍爾電壓對磁場之關係與 YIG 的磁滯曲線進 行比較,我們發現兩者實際上並不一致。如圖 9(b) 所示,在低場的範圍中 (±300 Oe),當 YIG 中磁矩隨磁場增加而線性增長時 (綠線),反自旋霍爾電壓卻不隨磁場變化而呈現一個平 台的行為 (藍線)。在我們先前的研究中<sup>(40)</sup>,透過量測對表面磁矩結構靈敏之柯爾磁光效應 (magneto optic Kerr effect, MOKE),我們發現在反霍爾電壓中所觀察到的異常平台行為同樣 存在於柯爾磁光效應中 (如圖 9(c) 之橘線),並且兩者的平台寬度相同。這個結果顯示出, YIG 之表面及塊材磁矩呈現非共線性 (non-collinear) 行為,並且自旋傳輸是一種可用於探測 表面磁矩行為之量測。

更進一步地,為了了解 YIG 形狀的改變是否也會對自旋傳輸行為造成影響,我們接下來研究自旋傳輸訊號在 YIG 厚度及寬度被改變下的行為。其中,為了避免改變 Pt 和 YIG 介面 (interface) 可能帶來的影響,我們在兩個實驗中分別各只使用一個樣品,並在不改變 Pt 和 YIG 介面的情況下,逐步改變 YIG 厚度以及寬度,如圖 10(a)-(b)。我們驚訝地發現此 平台寬度竟然也會隨 YIG 的尺寸變化而被改變。如圖 10(c) 所示,當我們系統地減小 YIG



圖 9. (a) 反自旋霍爾效應之示意圖 (b) Pt/YIG 雙層結構之反自旋霍爾電壓對磁場關係圖 (藍 色) 及 YIG 之磁滯曲線 (錄色) (c) YIG 之磁滯曲線 (錄色) 及磁光柯爾效應 (橘色)<sup>(41)</sup>。

的厚度時,我們發現平台的寬度變得越來越窄,並且在 YIG 的厚度大約為 22 mm 時,平台 會消失 (如圖 10(e))。相反地,隨著 YIG 寬度的縮減,我們發現平台的寬度變得越來越寬, 如圖 10(d) 所示。此結果明顯指出自旋傳輸行為也受到 YIG 形狀很大的影響。值得一提的 是,圖 10(e) 顯示平台寬度只跟厚度相關,而與 YIG 的晶格結構是多晶 (poly-crystal) 還是 單晶 (single-crystal),用的自旋傳輸量測是自旋塞貝克效應、自旋霍爾磁阻還是探測表面磁 矩的柯爾磁光效應皆無關,因為他們隨 YIG 厚度變化皆落在單一條曲線上。有趣的是,圖 10(e)-(f) 顯示平台隨 YIG 厚度及寬度的變化行為相當不一樣。隨著 YIG 厚度增加,平台 寬度幾乎呈現近似線性的增長,然而,隨著 YIG 寬度增加,平台寬度則呈現指數型遞減行 為,並且大致於 YIG 寬度為 25 mm 時趨近飽和。為了進一步研究形狀異向性在異常平台寬 度之改變中所扮演的角色,我們將實驗中得到的平台寬度及計算得出的去磁因子 N\*(N<sub>w</sub>-N<sub>t</sub>) 進行歸一化 (normalization) 並進行比較。如圖 10(e)-(f) 所示,我們發現兩者之間非常的吻



圖 10. (a) 改變厚度 (b) 改變寬度之反自旋霍爾效應示意圖。Pt/YIG 雙層結構之 (c) 厚度相關 (d) 寬度相關反自旋霍爾電壓對磁場關係圖。(e) 厚度相關 (f) 寬度相關之平台寬度對去磁因 子比較<sup>(41)</sup>。

合,顯示出自旋傳輸中之平台行為同樣受控於 YIG 形狀的改變。最重要的是,我們的實驗 結果指出,雖然自旋傳輸量測反應出的是表面磁矩行為,然而其也能詳細透露出整體 YIG 形狀樣貌的資訊(長的、厚的還是窄的)<sup>(41)。</sup>因此,除了量測磁滯曲線,我們也可以利用自旋 傳輸對去磁場效應進行定性分析。

### 六、結論

本文介紹自旋玻璃材料中之自旋漲落效應以及磁性材料中去磁場效應對操控純自旋電流 的影響。我們證實透過自旋玻璃材料之自旋凍結過程所導致的自旋漲落交互作用可以增強純 自旋電流的激發與訊號,此外,純自旋電流的激發與量測不但對表面磁矩靈敏,且會受到整 個磁性材料之形狀樣貌所造成的去磁場效應調控。這些結果說明了如何利用磁性「絕緣體」 和具有自旋軌道耦合作用的材料來有效操控純自旋電流,這將會在發展次世代高密度與低耗 能的自旋電子學元件之過程中扮演重要的角色。

#### 參考文獻

1. Po-Hsun Wu and Ssu-Yen Huang, 物理雙月刊, 39 (3), 29 (2017).

- 2. Yi-Jia Chen and Ssu-Yen Huang, 磁性月刊, C (61), (2017).
- 3. J. Sinova, S. O. Valenzuela, J. Wunderlich, C.?H. Back, and T. Jungwirth, Rev. Mod. Phys., 87, 1213 (2015).
- 4. Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa and E. *Saitoh, Nature*, **464**, 262 (2010).
- 5. Y. S. Chen, J. G. Lin, S. Y. Huang, and C. L. Chien, Phys. Rev. B, 99, 220402 (R) (2019).
- 6. S. Y. Huang, X. Fan, D. Qu, Y. P. Chen, W. G. Wang, J. Wu, T. Y. Chen, J. Q. Xiao, and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.*, 109, 107204 (2012).
- 7. K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett., 97, 172505 (2010).
- 8. D. Qu, S. Y. Huang, J. Hu, R. Wu, and C. L. Chien, Phys. Rev. Lett., 110, 067206 (2013).
- 9. T. Kikkawa, K. Uchida, Y. Shiomi, Z. Qiu, D. Hou, D. Tian, H. Nakayama, X.-F. Jin, and E. Saitoh, *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 067207 (2013).
- S. Seki, T. Ideue, M. Kubota, Y. Kozuka, R. Takagi, M. Nakamura, Y. Kaneko, M. Kawasaki, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 266601 (2015).
- 11. K. Uchida, J.-i. Ohe, T. Kikkawa, S. Daimon, D. Hou, Z. Qiu, and E. Saitoh, Phys. Rev. B, 92, 014415 (2015).
- R. Lebrun, A. Ross, O. Gomonay, S. A. Bender, L. Baldrati, F. Kronast, A. Qaiumzadeh, J. Sinova, A. Brataas, R. A. Duine and M. Klaui, Commun. *Phys.*, 2, 50 (2019).
- R. Lebrun, A. Ross, S. A. Bender, A. Qaiumzadeh, L. Baldrati, J. Cramer, A. Brataas, R. A. Duine and M. Klaui, *Nature* (London) 561, 222 (2018).
- 14. D. Qu, S. Y. Huang, B. F. Miao, S. X. Huang, and C. L. Chien, Phys. Rev. B, 89, 140407(R) (2014).
- 15. D. Qu, S. Y. Huang, and C. L. Chien, Phys. Rev. B, 92, 020418 (R) (2015).
- 16. C. Du, H. Wang, F. Yang, and P. C. Hammel, Phys. Rev. B, 90, 140407(R) (2014).
- 17. T. Wang, W. Wang, Y. Xie, M. A. Warsi, J. Wu, Y. Chen, V. O. Lorenz, X. Fan and J. Q. Xiao, Sci Rep, 7, 1306 (2017).
- 18. H. Wang, C. Du, P. C. Hammel, and F. Yang, Phys. Rev. Lett., 113, 097202 (2014).
- 19. Z. Qiu, J. Li, D. Hou, E. Arenholz, A. T. N' Diaye, A. Tan, K.-i. Uchida, K. Sato, S. Okamoto, Y. Tserkovnyak, Z. Q. Qiu, and E. Saitoh, *Nat. Commun.*, 7, 12670 (2016).
- 20. W. Lin, K. Chen, S. Zhang, and C. L. Chien, Phys. Rev. Lett., 116, 186601 (2016).
- 21. T. Ambrose and C. Chien, Phys. Rev. Lett., 76, 1743 (1996).
- 22. P. Gibbs, T. M. Harders, and J. H. Smith, J. Phys. F: Met. Phys., 15, 213 (1985).
- 23. K. Emmerich, E. Lippelt, R. Neuhaus, H. Pinkvos, C. Schwink, F. N. Gygax, A. Hintermann, A. Schenck, W. Studer, and A. J. van der Wal, Phys. Rev. *B*, **31**, 7226 (1985).
- 24. Y. J. Uemura, T. Yamazaki, D. R. Harshman, M. Senba, and E. J. Ansaldo, Phys. Rev. B, 31, 546 (1985).

- 25. J. Li, Z. Shi, V. H. Ortiz, M. Aldosary, C. Chen, V. Aji, P. Wei, and J. Shi, Phys. Rev. Lett., 122, 217204 (2019).
- 26. P. H. Wu, Y. C. Tu, D. Qu, H. L. Liang, S. F. Lee, and S. Y. Huang, Phys. Rev. B, 101, 104413 (2020).
- 27. Sun, L., Searson, P. C. and Chien, C. L, Appl. Phys. Lett., 79, 4429 (2001).
- 28. M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. d. Broeder, and J. J. d. Vries, Rep. Prog. Phys., 59, 1409 (1996).
- 29. P. G. Gowtham, G. M. Stiehl, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Phys. Rev. B, 93, 024404 (2016).
- 30. J. Fu, M. Hua, X. Wen, M. Xue, S. Ding, M. Wang, P. Yu, S. Liu, J. Han, C. Wang, H. Du, Y. Yang, and J. Yang, *Appl. Phys. Lett.*, **110**, 202403 (2017).
- 31. E. C. Stoner, Philos. Mag., 36 (7), 803 (1945).
- 32. J. A. Osborn, Phys. Rev., 67, 351 (1945).
- 33. R. I. Joseph and E. Schlomann, J. Appl. Phys., 36, 1579 (1965).
- 34. R. I. Joseph, J. Appl. Phy., 38, 2405 (1967).
- 35. D.-X. Chen, E. Pardo, and A. Sanchez, IEEE Trans. Magn., 38, 1742 (2002).
- 36. D.-X. Chen, E. Pardo, and A. Sanchez, IEEE Trans. Magn., 41 (6), 2077 (2005).
- 37. R. Prozorov and V. G. Kogan, Phys. Rev. Applied, 10, 014030 (2018).
- 38. J. Fu, M. Hua, X. Wen, M. Xue, S. Ding, M. Wang, P. Yu, S. Liu, J. Han, C. Wang, H. Du, Y. Yang, and J. Yang, *Appl. Phys. Lett.*, **110**, 202403 (2017).
- 39. W. H. Von Aulock, Handbook of Microwave Ferrite Materials, Acta Crystallographica, 20 (5), 702 (1965).
- 40. P. H. Wu and S. Y. Huang, Phys. Rev. B, 94, 024405 (2016).
- 41. P. H. Wu, Y. T. Chan, T. C. Hung, Y. H. Zhang, D. Qu, T. M. Chuang, C. L. Chien, and S. Y. Huang, *Phys. Rev. B*, **102**, 174426 (2020).

#### 作者簡介

吴柏勳先生為台灣大學物理博士,現為台大應用物理所博士後研究員。

Po-Hsun Wu received his Ph.D. in Department of Physics at the National Taiwan University. He is currently a Postdoctoral Researcher in Department of Physics at National Taiwan University.

黄斯衍先生為交通大學物理博士,現為台大應用物理所副教授。

Ssu-Yen Huang received his Ph.D. in Department of Physics at the National Chiao Tung University. He is currently an Associate Professor in Department of Physics at National Taiwan University.