自旋與電荷在拓樸絕緣體中之轉 換效應

Spin-to-charge Conversion in Topological Insulator

黄榮俊

Jung-Chun-Andrew Huang

本文簡介了電荷流、極化電流與自旋流,自旋流產生和檢測之機制以及自旋電荷轉換等自旋電子學重要觀念,並介紹了一個新穎的材料:拓樸絕緣體。我們在拓樸絕緣體異質結構中在調整費米能階位置調控自旋電荷之轉換。通過自旋幫浦測量分析,揭示了自旋電荷轉換與拓樸絕緣體的費米能階高度的相依關係。結果顯示,當費米能接近狄拉克點時,自旋流可在最大程度上轉化為電荷流。我們的研究工作提供了一種新方法,可以通過控制拓樸絕緣體的費米能階來實現有效的自旋電荷轉換。而自旋電荷轉換對於自旋電子元件中的讀寫功能,以及對低能耗高速元件的研發都是非常重要的課題與關鍵技術。

This article introduces several important concepts in spintronics such as charge current, polarized current and spin current, the mechanism of spin current generation and detection, and spin-to-charge conversion. A novel material, topological insulator, is also introduced. In the heterostructures of topological insulator and magnetic materials, we adjust the Fermi level to tune the spin-to-charge conversion. Through spin pumping study, the dependence of spin-to-charge conversion on the Fermi level of topological insulators is revealed. The results show that when the Fermi energy approaches the Dirac point, a spin current can be transformed into a charge current to the greatest extent. Our research work provides a new method to achieve effective spin-to-charge conversion by controlling the Fermi level of topological insulators. Spin-to-charge conversion is a very important subject and key technology for the reading and writing functions of spintronic devices, as well as for the development of low-energy consumption and high-speed devices.

傳統電子元件使用電荷電流的特性,而自旋電子元件使用電子的自旋流,可應用於先進元件,例如新型記憶存儲和計算等,自旋電子元件具有幾項下列優勢,包括非揮發性、更快的數據處理速度、更高的集成密度和更少的電力消耗⁽¹⁻³⁾。我們首先釐清電荷流 (charge current) 與自旋流 (spin current) 的差別。電荷流對應單位時間通過某區域之淨電荷數目 (正負電荷有抵銷作用),而自旋流對應單位時間通過某區域之淨自旋數目 (相反自旋有抵銷作用)。如圖 1 所示,純電荷流 (pure charge current) 之自旋流為零,一般材料中有很多是純電荷流;自旋極化電流 (spin-polarized current) 具有電荷流與自旋流,電荷流數目大於自旋流

		Charge current	Spin current
Unpolarized current	0 0	@	0
Spin-polarized current	•	⊙⊙⊙	∳ →
Fully spin-polarized current	† †	e ·····e ·····e ····	*
Pure spincurrent	-0+ -0-	0	♦→

圖 1. 電荷流與自旋流之比較(4)。

數目,自旋極化電流可存在於磁性材料 (如 Fe、Co、Ni) 中;完全自旋極化電流 (fully spin-polarized current) 具有相同電荷流及自旋流數目,理論上可存在於極少數之磁性材料 (如 Fe_3O_4);而純自旋流 (pure spin current) 同方向之電荷流為零。純自旋流是自旋電子學非常關鍵之概念,因為對應之電荷流為零,所以在低能耗之電子元件應用極具價值。

自旋極化電流可以藉由電荷通過磁性材料產生;而純自旋流有多種產生的方式,包括用熱⁽⁵⁾ 或光⁽⁶⁾ 或表面電漿⁽⁷⁾ 等方式。但是最常見最方便的方法是利用電荷流產生純自旋流。

我們可以從自旋霍爾效應 (spin Hall effect, SHE) 與反自旋霍爾效應 (inverse spin Hall effect, ISHE) 探討純自旋流與透過電荷流之轉換效應與檢測。自旋霍爾效應可存在於電子之自旋與軌道交互作用 (spin-orbit coupling, SOC) 比較強的材料。從相對論量子電動力學的角度,SOC 的作用等效於垂直於電子行進方向材料產生之有效磁場 (effective magnetic field),這是造成材料能階或能帶之精細結構 (fine structure) 的主要原因。對於相反自旋相同動量之電子,感受大小相同但方向相反之有效磁場,所以會造成相反自旋之電子產生反向偏離之電爾效應,也就是在電荷流 (與自旋) 之垂直方向會產生一自旋流,如圖 2(a) 所示⁽⁸⁾,此即是自旋霍爾效應。從基礎物理的角度看,自旋流的產生對應到的是自旋角動量 (spin angular momentum) 隨時間的定向流動,亦即自旋流對應到一自旋力矩 (spin torque) 的轉移,因此(足夠大的) 自旋流具有翻轉磁矩的功能,這在磁記憶或甚至磁性相關邏輯元件的應用上相當有潛力。

由於 SOC 的大小大致上和元素之原子序四次方成正比,所以愈重的材料 (如 Pt、W、Ta 或拓樸材料) 其 SOC 效應愈強,愈容易產生比較容易觀測到之自旋霍爾效應或自旋流。要如何才能觀測自旋霍爾效應?實驗上要能直接觀測自旋霍爾效應 (或自旋流) 比較困難,就筆者所知,目前只有磁光柯爾顯像 (magneto-optical Kerr effect image) 此一技術有直接觀測到自旋霍爾效應⁽⁹⁾。另外有一個間接但卻很簡易的方法,就是利用反自旋霍爾效應來量測自旋霍爾效應或自旋流。反自旋霍爾效應是當自旋流注入一強 SOC 材料時,在自旋流 (與自旋) 之垂直方向會產生一電荷流,如圖 2(b) 所示,此即是反自旋霍爾效應。因為電荷的累積會造成電壓差,量測上容易許多。

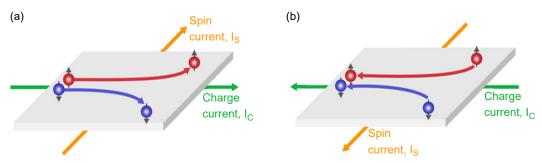


圖 2. (a) 自旋霍爾效應 (b) 反自旋霍爾效應示意圖⁽⁸⁾。

另一個產生純自旋流常用的方法,乃是利用自旋幫浦 (spin pumping) 技術,本文以下介紹此技術,並介紹我們的研究工作利用此技術產生之純自旋流注入拓樸材料,再利用反自旋霍爾效應來量測自旋流和電荷流之轉換 (spin to charge conversion) 效應。

在鐵磁材料 (FM) 和普通金屬 (NM) 的雙層薄膜結構中,其鐵磁共振 (ferromagnetic resonance, FMR) 的阻尼 (damping) 和線寬 (linewidth) 比塊體材料的值增加許多。這種現象促使 Tserkovnyak 等人提出自旋幫浦機制⁽¹⁰⁻¹²⁾。自旋幫浦的機制如圖 3 所示。在鐵磁共振中,鐵磁材料 (FM) 的磁矩由微波輻射共振激發在磁場中產生進動,進動磁矩會驅動自旋流進入正常金屬 (NM),角動量從鐵磁材料轉移到普通金屬是造成鐵磁共振額外的阻尼機制。因此,自旋幫浦是一種在磁性材料和普通金屬的雙層結構中產生純自旋流的方法。在自旋幫浦的情況下,自旋電流的流動方向垂直於鐵磁體/正常金屬界面 ,而其自旋極化取決於鐵磁體中的磁化方向。

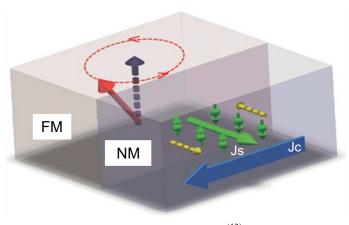


圖 3. 自旋幫浦示意圖(13)。

在深入討論我們最近的自旋幫浦研究之前,也先簡單介紹一下和本工作密切相關的 NM 材料:拓樸絕緣體。拓樸絕緣體 (topological insulator, TI) 是自旋電子應用的絕佳候選材料。 拓樸絕緣體雖然其塊體 (bulk) 能帶結構與一般絕緣體類似-都具有能隙 (bandgap),然而其表面態電子卻可呈現導體的性質。表面態形成的原因主要是因為這些材料具有強大之 SOC 效應導致能帶反轉而造成。舉 Bi_2Se_3 拓樸絕緣體為例 (圖 4(a)),考慮原子級能帶、晶場分裂和 SOC 對能帶的影響,分別對應於圖 4(a) 中的三個階段 (I)、(II) 和 (III)。由於費米面附近的狀態主要來自 p 軌域電子 (Bi $(6s^2 6p^3)$ 和 Se $(4s^2 4p^4)$) 混成,可忽略 s 軌域的影響。首先在

階段 (I) 中,考慮 Bi_2Se_3 單位晶胞 (unit cell) 五重層 (quintuple layer, QL) 內 Bi 和 Se 原子之間 的化學鍵,重新組合軌域,導致每個 Se 原子 p 軌域產生三個狀態,每個 Bi 原子 p 軌產生 兩個狀態。化學鍵的形成混合了 Bi 和 Se 之電子狀態,導致所有的 Se 電子態被壓制並且所有的 Bi 電子態被提升。階段 (II) 考慮了不同 p 軌域之間晶體場分裂 (crystal field splitting) 的影響。根據此晶體點群對稱性, p_z 軌域與 p_x 和 p_y 分開,並且 p_x 和 p_y 軌域保持簡併態。階段 (III) 則考慮 SOC 的影響,當 SOC 的強度大於臨界值時 (圖 4(b)),造成 Bi 和 Se 的能帶反轉,進而使 Bi_2Se_3 成為具有特殊表面態之拓樸絕緣體。一般非拓樸材料也具有表面態,只是很容易因為些微之雜質就會被破壞,而拓樸絕緣體之表面態則受到時間反轉對稱性 (time reversal symmetry, TRS) 保護,所以非常堅固 (robust)。

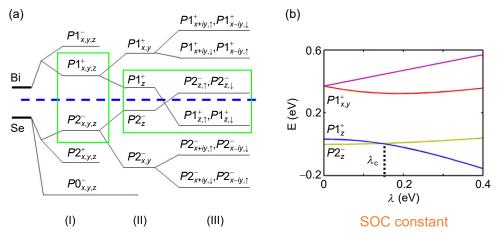


圖 4. (a) Bi 和 Se 原子之 p_x,p_y,p_z 軌域受 (I) 化學鍵,(II) 晶體場分裂,(III) SOC 影響之示意圖 (b) Bi 之 $P1_z^+$ 和 Se 之 $P2_z^-$ 能級隨 SOC 強度之變大至臨界點會有交叉 $^{(14)}$ 。

在進入自旋與電荷轉換實驗之討論前,我們再介紹關於拓樸絕緣體之費米面 (Fermi surface) 調控的問題。費米面的調控和電子輸運 (electronic transport) 特性密切相關,如何控制拓樸絕緣體之費米面接近狄拉克點 (Dirac point,能帶反轉之交叉點),以致於表面態能夠主導電子輸運特性,對於基礎研究及應用上是非常關鍵之課題。 Bi_2Se_3 和 Bi_2Te_3 是 n 型拓樸絕緣體 (費米面靠近導帶),而 Sb_2Te_3 是 p 型拓樸絕緣體 (費米面靠近價帶),透過參雜技術,我們可以調控 $(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 拓樸絕緣體之費米面。如圖 5 之角度解析光電子能譜 (angle resolved photoemission spectrocopy, ARPES) 所示, $(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 之費米面在 x ~ 0.9 時,會非常接近狄拉克點。

時間反轉對稱性並且造就了拓樸絕緣體之表面態電子具有自旋和動量鎖定 (spin-momentum locking) 特性,能夠使電荷流通過通道而在表面上積累自旋 $^{(16,17)}$ 。此外,其自旋極化程度可以進一步通過控制其費米能階 (Fermi level) 相對於狄拉克點的位置來操縱 $^{(18,19)}$ 。由於自旋動量鎖定,注入到拓樸絕緣體表面的 3D 自旋電流密度 Js 將在拓樸絕緣體表面態 (surface state, SS) 上產生二維 (2D) 電荷密度 J_c^{2D} ,此即所謂的反埃德爾斯坦效應 (inverse Edelstein effect, IEE),類似於反自旋霍爾效應。IEE 特徵長度 λ_{IEE} 定義為 J_c^{2D} /Js,可以利用自旋幫浦實驗來探測 $^{(20-22)}$ 。

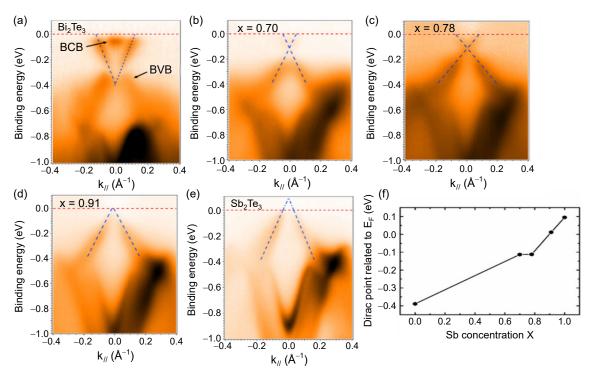


圖 5. (a)-(e) (Bi $_{1-x}$ Sb $_x$) $_2$ Te $_3$ 拓樸絕緣體之角度解析光電子能譜,(f) 狄拉克點相對於費米面之能量位置 $^{(15)}$ 。

我們的鐵磁共振 FMR 和自旋幫浦器件結構示意圖如圖 6(a)。自旋流在 FMR 條件下從 FM $(Ni_{80}Fe_{20}, Permalloy (Py))$ 層自旋幫浦注入拓樸絕緣體 $(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 層 $^{(23)}$ 。IEE 效應的特 徵響應為因自旋注入而產生存在界面態的電荷流。圖 6(b) 顯示了從 $Py/(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 樣品在 各種微波頻率下獲得的自旋幫浦感應電壓 (V_{sp}) 和磁場 (H) 的關係。當磁場反轉時,觀察到 的自旋幫浦信號如 IEE 效應預期的那樣改變符號,表明通過改變磁場方向在邊緣反轉了自 旋積累因為 $V_{sp} \propto H \times \sigma$ (σ 是自旋極化的方向), V_{sp} 會在改變 H 方向時反轉,進一步提供了 自旋流注入 $(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 的有力證據。 V_{sp} 的峰值位置會隨微波頻率而變化,如圖 6(b) 的插 圖所示,這與 FMR 共振頻率對外部磁場的相依性一致。

我們使用以下勞倫茲方程 (Lorentz equation) 來擬合量測電壓之對稱和反對稱分量(24-26)

$$V = \frac{V_s(\Delta H)^2}{(\Delta H)^2 + (H - Hr)^2} + \frac{V_{as}(\Delta H(H - Hr))}{(\Delta H)^2 + (H - Hr)^2}$$

其中 V_s 和 V_{as} 是分別對應量測電壓的對稱和反對稱分量; H_r 是共振場, ΔH 是從微波吸收 dP/dH 微分所獲得的 (峰至峰) 線寬。我們分別擬合了 V_s 和 V_{as} ,對稱分量 (V_s) 的係數是由自旋幫浦產生的 IEE 或 ISHE 信號引起的自旋幫浦電壓所組成;而反對稱部分 (V_{as}) 由反常霍爾效應 (V_{AHE}) 或異向性磁阻 (V_{AMR}) 引起。圖 6(c) 比較了不同 Sb 含量的拓樸絕緣體 (Bi_{1-x} Sb_x)₂Te₃ 樣品所得到的 V_s ,據此分析獲得了具有不同 Sb 含量的拓樸絕緣體樣品的頻率 (f) 和 H_r 的關係。數據符合以下 Kittel 公式, $f = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_r(H_r + 4\pi M_{eff})}$,其中 γ 是旋磁比,由 Kittel 公式可擬合得到有效飽和磁化強度 (M_{eff})。阻尼因子 (α) 是通過 ΔH 擬合到 f 的公式

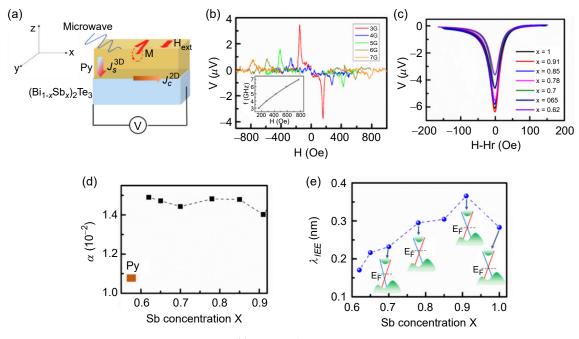


圖 6. (a) $Py/(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 樣品的自旋幫浦測量實驗裝置示意圖。(b) $Py/(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 之自旋幫浦電壓和激發頻率的關係 (微波功率 15 mW)。插圖顯示 VSP 的峰值位置會隨微波頻率而變化。(c) 在激發頻率 3 GHz 下具有不同 Sb 含量的 $Py/(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 樣品的測量電壓的對稱分量。 (d) 相對於 $Py/(Bi_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 和純 Py 的不同 Sb 含量的阻尼常數。(e) 通過 IEE (λ_{IEE} 長) 的自旋電荷轉換比對 Sb 成分 x 的函數。插圖顯示了不同 Sb 含量的費米能階的位置 $(a_{1-x}Sb_x)_2Te_3$ 和純 Py 的不同 Sb 含量的

 $(\Delta H = H_0 + \frac{4\pi}{\gamma} \alpha f)$ 獲得的。其中 H_0 對應於 Py 層中的存在。圖 6(d) 顯示了 α 對不同 Sb 含量的樣品的關係。與純 Py 樣品相比,Py/(Bi_{1-x}Sb_x)₂Te₃ 樣品的 α 值增強提供了通過自旋幫浦從 Py 層自旋注入到拓樸絕緣體層的明確證據。

為了從實驗數據中獲得 IEE 長度,我們對自旋幫浦模式進行了標準分析,以獲得由鐵磁 Py 層中的磁化進動 (precession) 產生的注入垂直自旋流密度 (J_s^{3D}) 和由此產生的 2D 橫向電荷流密度 (J_c^{2D}) 。自旋電荷轉換效率由 $\lambda_{IEE}=(J_c^{2D})/(J_s^{3D})$ 給出 $^{(27-29)}$ 。圖 6(e) 顯示了 λ_{IEE} 對 Sb 成分的函數關係。在 Sb 成分 x=0.91, λ_{IEE} 顯示最大值 360 pm,Sb 成分更大或更小時 λ_{IEE} 值都下降。理論計算發現,由電荷流引起的自旋流可能取決於電子的能量 $^{(30)}$,這意味著我們可以根據費米能階的位置來調整 λ_{IEE} 。當 E_F 接近表面態的交叉點一狄拉克點 D_P 時,體載流子 (bulk carriers) 會被抑制,並且可以獲得增強的自旋極化。 拓樸絕緣體的表面態電子可以透過自旋幫浦效應最大極限轉化為電荷流。換言之,因為體通道上的散射被抑制,導致 λ_{IEE} 的最大值。當 E_F 越來越向導帶靠近時,在費米能階激發的自旋極化表面電子更容易被聲子 (phonons) 和雜質散射到整個自旋簡併之導帶中 $^{(31-33)}$,導致 λ_{IEE} 值衰減。相反地,當 x=1.0 時,EF下降到價帶;由於自旋流通過散射進入體態而受到抑制; λ_{IEE} 的值也會減小。值得注意的是,我們獲得的 λ_{IEE} 值 (360 pm) 遠大於之前的報導在拓樸絕緣體 $P_Y/(Bi_{0.22}Sb_{0.78})_2Te_3$ 中的 75 pm $^{(34)}$ 和 $(Bi,Sb)_2Te_3/YIG$ 中的 17 pm $^{(23)}$ 。 λ_{IEE} 值在金屬系統 (例如 P_Y/Ag) 相當小 (~ 0.1 nm) $^{(35)}$, λ_{IEE} 值在每氧化物二維電子氣系統 (2DEG 如 $SrTiO_3/LaAlO_3$) 也比我們的系統小一個數量級左右 $^{(36)}$,所以拓樸絕緣體系統在自旋電荷轉換之應用具相當潛力。

需要注意的是, λ_{IEE} 的大小和拓樸絕緣體和磁性層之間的界面特性高度相關,而我們使用分子束磊晶製作之拓樸絕緣體和磁性層之介面非常平整。因此,透過控制拓樸絕緣體的異質結構中的成分最佳化、結構和界面完美可以提高自旋電荷轉換效率。在此 TI 系統中,最近的實驗已經進行了電荷到自旋轉換 (charge to spin conversion)⁽³⁷⁾ 和自旋塞貝克效應 (spin Seebeck effect)⁽³⁸⁾ 的實驗;當 E_F 超過狄拉克點時發現異常現象。定性來說,圖 6(e) 中顯示的數據 也遵循這一趨勢,強烈說明費米能階的位置在 TI 的自旋電荷或電荷自旋轉換效應中起了關鍵作用。

本文簡介了電荷流、極化電流與自旋流,自旋流產生和檢測之機制以及自旋電荷轉換等自旋電子學重要觀念。我們在 TI 與磁性材料異質結構中在調整費米能階位置調控自旋電荷轉換。通過執行自旋幫浦測量,揭示了自旋電荷轉換與拓樸絕緣體的費米能階高度的相依關係。結果顯示,自旋電荷轉換特徵參數 λ_{IEE} 的增強主要是由於拓樸絕緣體的表面態電子導致,因此自旋流可以在最大程度上轉化為電荷流,因為隨著 E_F 接近狄拉克點,體散射的抑制增強。總而言之,我們的研究工作提供了一種新方法,可以通過控制 TI 的費米能階來實現有效的自旋電荷轉換。而自旋電荷轉換對於自旋電子元件中的讀寫功能,以及對低能耗高速元件的研發都是非常重要的研究課題與關鍵技術。

參考文獻

- 1. S.Maekawa, S. O. Valenzuela, E. Saitoh, T. Kimura, T., Spin Current, 2nd ed., Oxford: Oxford University, (2012).
- 2. S.Wolf, S. A. et al., Science, 294, 1488 (2001).
- 3. I. Zutic, et. al., Rev. Mod. Phys., 76, 323 (2004).
- 4. Please refer to the website: http://ssp.phys.kyushu-u.ac.jp/research en.html.
- 5. S. Seki, et. al., Phys. Rev. Lett., 115, 266601 (2015).
- 6. F. Bottegoni, et. al., Nature Materials, 13, 790 (2014)
- 7. K. Uchida, et. al., Nature Communications, 6, 5910 (2015).
- 8. P. K. Das et. al., Phys. Rev. Materials, 2, 065001 (2018).
- 9. T.mas Jungwirth, et. al., Nature Materials, 11, 382 (2012).
- 10. Y. Tserkovnyak, et. al., Phys. Rev. B, 66, 224403 (2002).
- 11. Y. Tserkovnyak, et. al., Phys. Rev. Lett., 88, 117601 (2002).
- 12. Y. Tserkovnyak, et. al., Rev. Mod. Phys., 77, 1375 (2005).
- 13. Li Ma. et. al., Advanced electronic materials, 2 (10), 1600112 (2016).
- 14. H. Zhang, et. al., Nature Physics, 5, 438 (2009).
- 15. H.S. Su, et. al., ACS Applied Elec. Mater., 3, 2988 (2021).
- 16. A. R. Mellnik, et. al.. Nature, 511, 449 (2014).
- 17. Y. Wang, et. al.. Nat. Comm., 8, 1364 (2017).
- 18. M. Neupane, et. al.. Nat. Comm., 5, 3841 (2014).
- 19. J. S. Lee, et. al.. Phys. Rev. B, 92, 155312 (2015).
- 20. H. Wang, et. al.. Phys. Rev. Lett., 117, 076601 (2016).
- 21. J.-C. Rojas-Sanchez, et. al.. Phys. Rev. Lett., 116, 096602 (2016).
- 22. P. Noel, et. al., Phys. Rev. Lett., 120, 167201 (2018).
- 23. D. C. Mahendra.et. al., Nano Lett., 19, 4836 (2019).
- 24. Q. Zhang, et. al., Appl. Phys. Lett., 112, 092406 (2018).
- 25. L. Bai, et. al., Appl. Phys. Lett., 102, 242402 (2013).
- 26. A. Azevedo, et. al., Phys. Rev. B, 83, 144402 (2011).
- 27. R. Sun, et. al., Nano Lett., 19, 4420 (2019).
- 28. J. C. Rojas-Sanchez, et. al., Phys. Rev. Lett., 116, 096602 (2016).
- 29. J. C. Rojas Sanchez, et. al., Nat Comm., 4, 2944 (2013).

- 30. S. Hong, et. al., Phys. Rev. B, 86, 085131 (2012)
- 31. K. Okada, et. al., Phys. Rev. B, 93, 081403 (R) (2016).
- 32. A. Reijnders, et. al., Phys. Rev. B, 89, 075138, (2014),.
- 33. X. Zhu, et. al., Phys. Rev. Lett., 108, 185501 (2012).
- 34. J. B. S. Mendes, et. al., Phys. Rev., 96, 180415, (2017).
- 35. W. Zhang, et. al., Journal of Applied Physics, 117, 17C727 (2015)
- 36. Q. Song, et. al., Science Advances, 3, e1602312 (2017).
- 37. X. Qi, S. C. Zhang, Rev. Mod. Phys., 83, 1057, (2011).
- 38. A. Wray, et. al., Nat. Phys., 7, 32 (2011).

作者簡介

黄榮俊先生為美國伊利諾大學物理博士,現為國立成功大學物理系特聘教授。

Jung-Chun-Andrew Huang received his Ph.D. in Physics from University of Illinois at Urbana-Champaign. He is currently a Distinguished Professor in Department of Physics at National Chung Kung University.