arXiv:2302.01472v1 [cond-mat.mes-hall] 3 Feb 2023

铁/金双层膜中铁厚度对自旋输运的影响

J. Briones[1], **M. Weber**[1], **B. Stadtmüller**[1,2], **H. C. Schneider**[1] **和 B.Rethfeld**[1]

1 物理系和 OPTIMAS研究中心，凯撒斯劳滕-兰道莱茵兰-普法尔茨工业大学，戈特利布·戴姆勒街76号，67663 凯撒斯劳滕，德国 2 物理研究所，美因茨约翰内斯·古腾堡大学，55128 美因茨，德国

电子邮件：briones@physik.uni-kl.de

摘要。 本文对铁磁金属和普通金属组成的双层及多层系统中光激发自旋流的行为进行了理论分析。由于飞秒光脉冲在铁磁体中产生的自旋流的传播、控制与操控尤为重要，我们研究了组成层厚度不同所产生的影响，重点考察能量高于费米能级数电子伏特的激发电子。我们采用适用于这类高能激发电子的蒙特卡罗模拟框架，首先考察 Fe 层中驱动的自旋流密度的时空特性，其中光脉冲的吸收剖面发挥着重要作用。此外，我们还研究了光吸收剖面、自旋依赖透射概率与铁层厚度的组合如何影响 Fe/Au 双层系统中的自旋流密度。对于本文研究的高能电子，界面和次级电子产生对双层系统中自旋输运的影响较小。然而，我们发现，自旋从一层注入另一层的效率在一定范围的铁层厚度内最高。

1. 引言

在降低功耗并提高处理能力的竞赛中，以自旋而非电荷为基础，有望开创新一代微电子学。基于金属多层膜的自旋电子学利用这些结构实现数据存储，并通过自旋输运交换信息。传统自旋电子学采用的自旋流和自旋密度，源自仍接近费米能的非平衡电子。 [1]

尽管基于金属的自旋电子学已是一个相当成熟的领域，但它仍在快速发展。自旋电子学研究当前的目标之一，是操控由能量远高于费米能的电子所携带的自旋系综。对于一般的非平衡电子，无论驱动电流的来源是什么，散射事件都会决定磁性材料中的电子输运。例如，来自磁性（金属或半导体）电极的电自旋注入[2, 3, 4], ，或通过塞曼相互作用利用交流磁场操控自旋极化 [5, 6], ，仅举数例。如果考虑高能电子注入，尤其是电子的光激发，那么具有显著电子能量依赖性的动力学及其与自旋输运的相互作用就变得更加重要。对于这种热电子自旋输运，人们发现了一种介于两者之间的“超扩散”机制 [7], ，其特征与弹道输运和扩散输运有所不同。根据实验依据 [8,9], ，人们认为超扩散自旋流可以从铁磁层注入相邻的金属层，并有助于传递铁磁体超快退磁所需的自旋角动量。粒子网格法则提供了描述超扩散自旋流的另一种方法 [10, 11]。这种求解自旋相关玻尔兹曼方程的方法相对容易适配第一性原理输入。

在本研究中，我们聚焦于飞秒激光辐照产生的远离费米能的电子的动力学与输运。我们研究一种典型的Fe/Au双层系统，其中驱动热电子自旋流的光脉冲会被铁磁层和普通金属层同时吸收。我们的方法基于文献 [12] 中提出的自旋相关电子动力学蒙特卡罗模型。除了研究次级电子产生和弹性散射等不同碰撞过程的影响外，我们还考察磁性层不同厚度及界面透射的影响，以期理解并优化该结构中的自旋流。

2. 理论方法

本研究旨在预测不同相互作用如何影响FM/M双层体系的非平衡动力学与自旋注入。在我们的方法中，我们将高于E_{F} 的自由电子态视为基本自由的态，并重点关注高能电子对自旋输运的影响。本节介绍本文模拟所采用的算法、方程和参数集。

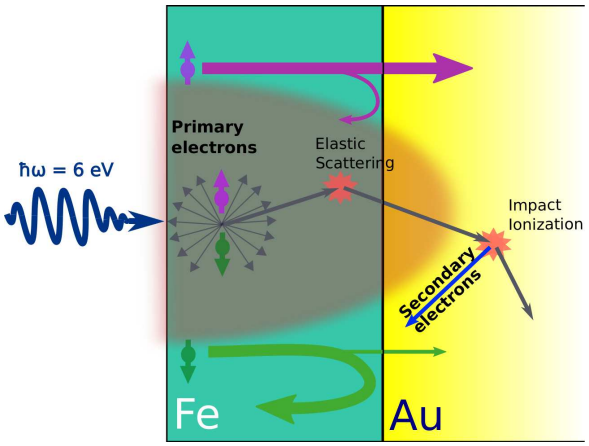


图 1. Fe/Au双层系统中激光辐照与散射事件的示意图。需要考虑两种可能的相互作用：电子—原子相互作用，此时只有运动方向发生改变（弹性散射）；以及产生次级电子的电子—电子相互作用（碰撞电离）。电子接触界面时，其自旋决定其透射概率，电子据此穿过界面。

2.1. 蒙特卡罗方法

渐近蒙特卡罗轨迹方法 [13]是一种统计技术，通过抽样获得若干条轨迹，直至得出对可能结果的估计，从而对二体碰撞相互作用进行建模。概率论用于实现对变量 x进行随机抽样的算法。在概率论中，所有可能事件 $p(x)$都被纳入一个称为累积分布函数（CDF） $F(x)$的变量中，以构建一个可用于求得该变量x [14]取值的公式。文献中 [15, 16, 17]对蒙特卡罗方法的具体实施方式有更全面、准确的描述。本文将采用我们此前工作 [12]中介绍的相同技术，研究激发粒子的动力学。在模拟过程中，任何电子相互作用过程都通过随机抽样处理。两个连续碰撞之间的时间（自由飞行时间） τ可以通过随机抽样获得，所用随机

变量 R $\in [0,1]$ 为

$$\tau = -\nu_0^{-1}\log(\mathrm{R}), \tag{1}$$

当散射率 ν_0 为常数时。然而，假设总散射率为常数且与能量无关，在统计上会高估碰撞概率。为此，我们引入另一种可能性：采用能量依赖概率，使粒子能够不受扰动地继续沿其轨迹运动。对于本研究所考察的多种散射机制，我们使用概率函数 $p(x)$随机抽样碰撞；该函数可由微分截面 $d\sigma/d\Omega$、散射率 ν 或特征时间 τ替代。

2.2. 材料参数

我们研究一种受到光子能量为 6 eV 的类高斯激光脉冲照射的 Fe/Au双层膜材料。如图1所示，激光从铁侧照射材料，激光脉冲的最大辐照强度位于 0 飞秒处。铁层厚度有限，而金层厚度则视为无限，且仅追踪前 10 纳米范围内的电子。随后，激发电子在材料内部发生相互作用，或仅改变其动量（弹性散射），或产生次级电子（碰撞电离），也可能两者兼有。电子一旦到达界面，其向另一层的透射情况取决于其自旋，通常也取决于其能量。

本模拟中有两个主要参数需要调节和研究：（i）Fe层的厚度；（ii）界面处的透射概率 T。我们关注高能电子的激发，此时透射概率对电子能量不太敏感（见 [18] 中的图4）。因此，我们将透射概率近似为常数。此外，我们还假设透射概率与到达界面的电子的传播方向无关，即从铁到金传播的电子与反向传播的电子具有相同的透射概率。该常数透射概率取自参考文献 [18]，分别为 $T^{\uparrow} = 0.95$ 和 $T^{\downarrow} = 0.25$，对应自旋向上电子和自旋向下电子。

3. 散射过程

我们通过模拟纯跳跃过程 [19, 20, 17]来追踪光激发电子的动力学。本研究考虑两种相互作用，即电子-原子相互作用（在此视为弹性散射过程）以及电子-电子碰撞电离；在后者中，能量通过非弹性过程传递给次级电子。

弹性散射过程将被建模为不发生能量转移的偏转。如第2.1小节所示，概率函数 $p(x)$ 将替换为基于莫特截面、取决于散射角的微分截面。我们将采用 $\tau_{el} = 25$ 飞秒作为弹性散射时间 [21], ，这一数值已用于研究自旋输运和自旋动力学，见文献 [10, 22]。

电子碰撞电离是指入射电子将占据态中的电子电离至未占据态的过程。新产生的高能电子称为次级电子，而光激发电子称为初级电子。初级电子损失能量 ΔE，且被束缚电子的结合能为 I 时，新电离电子在费米能级以上的最终能量 E_s 为 $E_s = \Delta E - I$。与参考文献 [23] 中的做法相同，我们假设转移的能量为入射电子能量的一半。对于非弹性散射率（τ_{ee}^{-1}），我们将考虑温度为 T_e [24] 时激发电子的能量相关碰撞率。参考文献 [12] 对这两种碰撞过程及其纳入方式作了更详细的说明。

4. 结果

我们将分析飞秒激光激发后 Fe/Au双层系统中的非平衡自旋输运和自旋动力学行为。激光脉冲从铁层一侧照射样品（见图1），并以此处为起点向内测量至界面的距离。因此，铁层的厚度决定了这两种材料之间边界的位置。在本研究中，我们将采用多种铁厚度，并在需要时注明。金层的厚度始终视为无限大，而我们追踪其前 10 纳米范围内的动力学。通过研究材料界面处产生的自旋流，可以探讨其对自旋输运的影响。自旋流密度 j_s 定义为

$$j_s(z,t) \propto q[\langle \eta^{\uparrow} v_{\uparrow}\rangle - \langle \eta^{\downarrow} v_{\downarrow}\rangle] \tag{2}$$

其中，q 为电子电荷，$\eta^{\uparrow}$ ($\eta^{\downarrow}$) 和 $v_{\uparrow}$($v_{\downarrow}$) 分别表示自旋向上（自旋向下）的粒子密度和速度。在特定体积和时间内对电子数取平均，记作角括号。式（2）中的两个表达式均可分解为：

$$J_{up} \propto \langle \eta^{\uparrow} v_{\uparrow}\rangle, \tag{3}$$
$$J_{down} \propto \langle \eta^{\downarrow} v_{\downarrow}\rangle. \tag{4}$$

4.1. 块体铁中的自旋流密度

我们首先考察块体铁中的自旋流密度行为。然后将分析扩展到更复杂的系统，即 Fe/Au双层膜。正如参考文献 [12]，中所分析的那样，由于在非平衡动力学的初始阶段可能会产生次级电子，粒子会很快达到低于 2 eV 的平均动能。

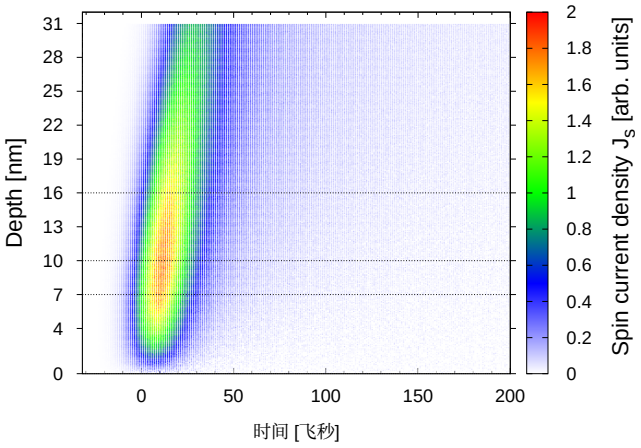


图2. 考虑次级电子产生时，块体铁中的自旋流密度 j_s（定义见公式 (2)）随时间和深度的变化。虚线表示后续评估自旋流密度的位置。

首先，让我们聚焦于参考文献 [12] 所述的飞秒激光脉冲照射块体铁的情况。我们对类块体 Fe 薄膜进行模拟，该薄膜受到光子能量为 6 eV 的类高斯飞秒激光脉冲激发。

激光激发使多数电子和少数电子处于非平衡态，它们具有不同的动能分布，且初始运动方向随机。我们在厚度为 30 纳米的计算区域末端采用开放边界条件，使电子能够完全逃离模拟系统。

图2展示了自旋流密度（定义见公式 (2)）随时间和深度的演变。请注意，自旋流密度的大小随时间变化且贯穿整个材料始终为正。这表明，多数电子平均而言朝材料深处运动。此外，自旋流密度的大小随深度增加而急剧增大，并在约 10 纳米处达到最大值，后文将对此进行分析。

图 3 更详细地展示了自旋流密度的变化趋势。这里，我们描绘了不同深度处自旋流密度随时间的变化情况，深度位置如图 2 所示。

上图展示了自旋向上（左侧）和自旋向下（右侧）电子的自旋流密度，中图展示了平均速度 $\langle v \rangle$，下图展示了平均粒子密度 $\langle \eta \rangle$，这些术语均用于公式 (3) 和 (4)。颜色渐变表示用于分析的变量所选取的深度。图 3 中的所有变量似乎都随时间呈现相同的变化趋势，但在不同深度处的最大值不同。我们再次观察到，平均粒子密度 $\langle \eta \rangle$ 随时间推移呈现均匀密度分布，这一点已在文献 [12] 中讨论过。

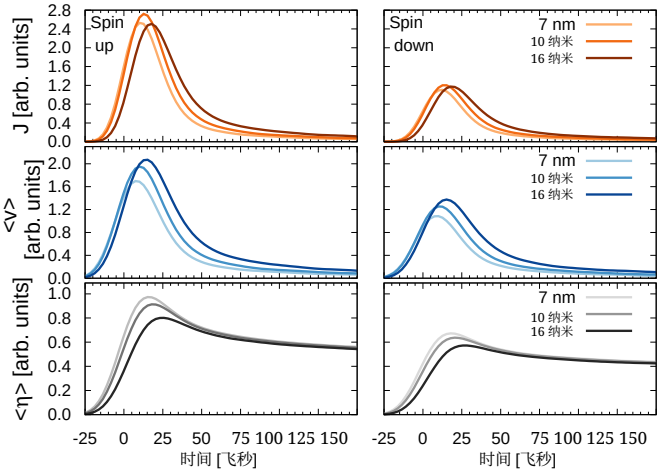


图3。 对块体铁中自旋向上（左图）和自旋向下（右图）电流密度 J（上图）、平均速度 v以及粒子密度 η 随时间演化的分析，这些物理量根据公式（2）定义。图中描绘了图2中虚线所在位置不同深度处的物理量。

基于这些模拟，我们确定了这种行为的两种可能成因：散射类型或吸收剖面。图 4 展示了自旋流密度最大值 j_s 如何受到散射类型和吸收剖面的影响。红色曲线是通过采用比尔-朗伯吸收概率激发初级电子，并纳入次级电子产生计算得出的。黑色曲线则保持相同的吸收剖面，但只考虑光激发电子。两幅图中自旋流密度最大值 j_s 的大小都随深度增加。随后，这一增幅逐渐放缓，直到达到某一深度（约 10 纳米），之后便逐渐减小。因此，这两幅图仅在定性上有所不同，这与文献 [12], 的结论一致；该文献表明，次级电子对自旋流密度的影响是定量的，而非定性的。鉴于吸收剖面会影响不同自旋流密度最大值处观察到的行为，我们需要考察不同剖面对初级电子的影响。这

种特定情形涉及均匀吸收剖面，即在每个深度处的吸收概率都相同。

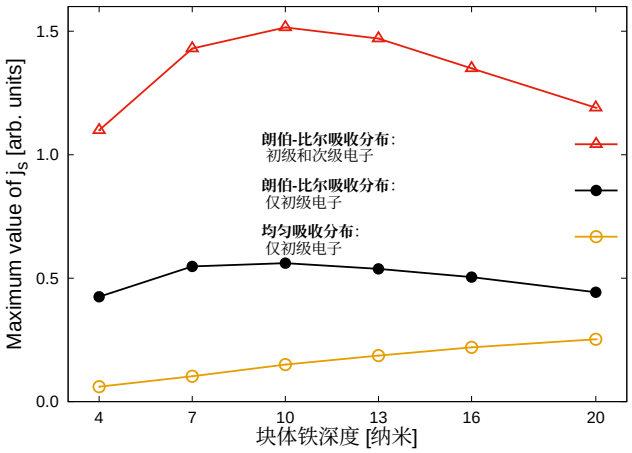


图4. 不同吸收分布下，块体铁中不同深度处自旋流密度的最大值j_s：均匀吸收分布仅激发初级电子（黄色曲线）；朗伯-比尔吸收分布仅产生初级激发（黑色曲线）；以及包含初级和次级电子的情况（红色曲线）。 j_s 的数值由式（2）计算得到。

如图4所示，与其他曲线（红色和黑色曲线）不同，后者的最大值随深度增加至某一深度后逐渐减小；在非相互作用图景下（黄色曲线），自旋流密度的最大值 j_s 则随深度稳步增加，此时仅发生弹性散射。通过考察激光吸收后粒子的动力学，可以解释这一趋势。在非相互作用图景下（黄色曲线），粒子最初根据材料内恒定的吸收分布被激发。然而，粒子向材料深处移动时，由于其初始方向随机，粒子分布会发生变化。在没有进一步相互作用（方向改变或产生新粒子）的情况下，粒子很可能会以弹道式地运动，而材料内部的粒子密度不会很高。由于粒子生成时的初始分布以及粒子之间的相互作用，随着时间推移，粒子会通过相互作用获得共同的方向性。因此，吸收分布决定了块体铁中不同深度处自旋流密度最大值呈现出的变化趋势。

4.2. 铁/金双层系统中的自旋流密度

现在我们继续考察包含铁和金的双层系统中的自旋输运。不同于块体铁，激光辐射会在两层中诱导产生初级激发，这些初级激发会根据吸收剖面相应地初始分布在材料内部，如图 5 所示。图 5 展示了不同铁层厚度下激光的光吸收概率数据，这些厚度决定了双层系统中界面的位置：7 纳米（黄色曲线）、10 纳米（蓝色曲线）和 16 纳米（黑色曲线）。这些曲线依据参考文献 [25, 26] 中所述的流程获得，所使用的吸收系数取自参考文献[27]。选择这些特定尺寸的原因是研究较薄或较厚的铁层如何影响动力学过程。图 5 中的数据针对半无限系统计算，以避免金产生的反射效应。

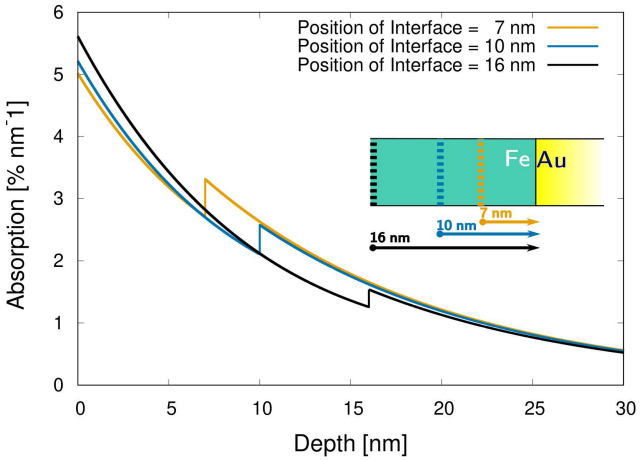


图5. 界面位于7纳米（黄色）、10纳米（蓝色）和16纳米（黑色）的铁/金双层系统中，吸收概率随深度的变化。两种材料的吸收剖面各不相同。在界面处，可以观察到能量进入金层时吸收突然增加。

随着时间推移，初级电子会产生次级电子，而次级电子随后又会产生更多电子，这一过程在两种材料中都会反复发生。在铁和金的交界处（下文称为界面），由于自旋依赖透射概率（自旋过滤效应），粒子以不同比例透过。

基于我们此前对铁的分析，我们现在更加了解吸收剖面如何影响自旋流密度的行为。图6展示了在双层系统中，铁层的吸收剖面和厚度如何影响穿过界面前后自旋流密度的最大值。我们比较了块体铁中的朗伯–比尔吸收分布（红色曲线）、Fe/Au双层系统中的朗伯–比尔吸收分布（黄色曲线），以及采用计算得到的吸收曲线（蓝色曲线）时自旋流密度峰值的大小（分别采用参考文献 [27, 25, 26], 中的参数、方法和吸收剖面）。

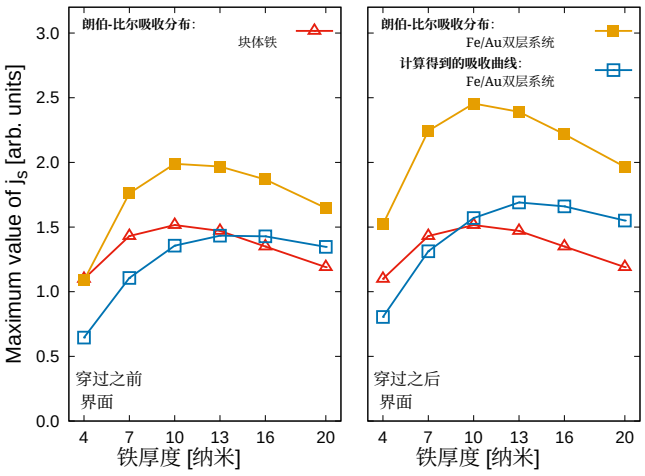


图6. 不同铁厚度下，根据公式（2）得到的自旋流密度最大值 j_s 的比较。比较了块体铁（红色）和 Fe/Au 双层系统（黄色）中的 Lambert-Beer 吸收剖面，以及采用计算得到的吸收曲线进行的一次模拟（蓝色）；模拟使用了参考文献 [26, 25]中的公式和参考文献 [27]中的参数。

在图6中，由于界面的影响，铁（红色）和 Fe/Au（黄色）的最大自旋流密度存在显著差异，界面使j_s的值增大。然而，界面并未改变铁层在某一优选厚度范围内所呈现的趋势。不过，采用计算得到的吸收剖面（见图5）时，优选厚度会发生变化；铁向金的自旋流注入在较小的铁厚度下更大。通过分析朗伯–比尔吸收分布（黄色）和计算得到的吸收分布（蓝色），可以看出优选厚度发生了变化。这意味着，由于双层系统中的光吸收影响，在某一特定厚度下，铁向金的自旋流注入会更大。穿过层间界面的自旋相关粒子会重新构成金中的粒子分布，进而影响自旋流密度。可以利用自旋极化方程 P 对此进行分析：

$$P = \frac{\eta^{\uparrow} - \eta^{\downarrow}}{\eta^{\uparrow} + \eta^{\downarrow}}, \tag{5}$$

其中，$\eta^{\uparrow}$（$\eta^{\downarrow}$）是自旋向上（向下）粒子的粒子密度。图 7 显示了分别使用公式 (2) 和 (5) 计算得到的三种不同铁层厚度下的自旋流密度 j_s（上图）和自旋极化 P（下图）。

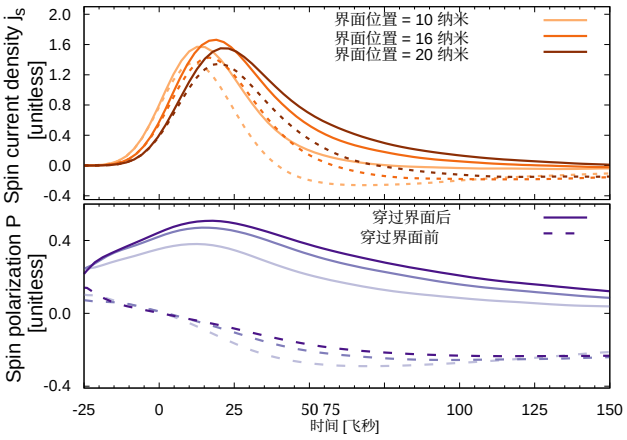


图 7. 自旋流密度 j_s（上图）和自旋极化 P（下图），分别计算于穿过界面前（虚线）和穿过界面后（实线）。铁层的不同厚度以颜色渐变的线条表示。

虚线表示穿过界面之前取得的量，实线表示穿过界面之后取得的量。表示不同铁层厚度的曲线采用渐变色。对于自旋流密度，其表现与图 3 中观察到的相似。在这个双层系统中，我们关注的是铁层的厚度，而不是传播深度。如图 7 所示，自旋流密度 j_s 的最大值随厚度增加而上升，直至达到某一厚度（此处为 16 纳米），但薄膜更厚时则会下降。因此，自旋流密度的最大值似乎不会随铁层厚度增加而持续上升。相反，铁层存在一个最佳厚度，在此厚度下，自旋从铁向金的注入更为有效。图 7 中的紫色曲线为使用公式 (5) 计算得到的自旋极化曲线。这些曲线表明，随着时间推移，由于自旋的透射概率不同，穿过界面的自旋向上粒子始终会越来越多。增大铁层厚度后，自旋极化达到最大值的时间会推迟。这种延迟是粒子在材料内部相互作用并向界面运动所需时间造成的。随着铁层厚度增加，自旋极化也会增强，因为层越厚，穿越至金中的粒子越少。

5. 总结

总之，我们研究了不同铁厚度对 Fe/Au双层系统界面处自旋流产生的影响。我们首先考察了光吸收剖面对块体铁层内自旋流密度的影响，发现吸收剖面会以非单调的方式影响

自旋流密度。对于 Fe/Au双层膜，我们计算了激发电子的非平衡输运，并研究了不同吸收剖面对自旋流从一层注入另一层的影响。分析还表明，次级电子产生和界面仅影响自旋输运的大小。随后，我们研究了光吸收与自旋依赖的界面透射概率共同作用下，Fe/Au双层系统中自旋流密度的变化。Fe 到 Au 的自旋流密度大小受 Fe层厚度影响，并在中等厚度时达到最大值。我们发现，激发激光脉冲的吸收特性会直接影响自旋从一层注入另一层的效率。

致谢

本研究由德国研究联合会（DFG，德国研究基金会）资助，项目编号：TRR 173/2 - 268565370 Spin+X（B03项目）。B.S.感谢动力学与拓扑中心提供的资助，该中心由莱茵兰-普法尔茨州资助。

参考文献

[1]Hirohata A and Takanashi K 2014 《物理学杂志*D*：应用物理》 **47** 193001 URL https://doi.org/10.1088/0022-3727/47/19/193001[2] Okamoto S 2016 《物理评论*B*》 **93**(6) 064421 URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.93.064421[3] Tombros N, Jozsa C, Popinciuc M, Jonkman H T and van Wees B J 2007 《自然》 **448**571–574 ISSN 1476-4687 URL https://doi.org/10.1038/nature06037[4]Johnson M, Koo H, Han S and Chang J 2015《物理学前沿》 **3** ISSN 2296-424X URL https://www.frontiersin.org/article/10.3389/fphy/2015.00062

[5]Zhang C, Yao H, Nie Y H, Liang J Q and Niu P B 2018 《*AIP*进展》 **8** 045309（预印本https://doi.org/10.1063/1.5019651）网址 https://doi.org/10.1063/1.5019651[6]Busl M and Platero G 2010 《物理评论*B*》**82**(20) 205304 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.82.205304[7]Battiato M, Carva K and Oppeneer P M 2010 《物理评论快报》**105**(2) 027203 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.027203[8] Rudolf D, La-O-Vorakiat C, Battiato M, Adam R, Shaw J M,Turgut E, Maldonado P, Mathias S, Grychtol P, Nembach H T, Silva T J, Aeschlimann M, Kapteyn H C, Murnane M M, Schneider C M and Oppeneer P M 2012 《自然·通讯》**3**(1) 2029 网址 https://doi.org/10.1038/ncomms2029[9] Bergeard N, Hehn M, Mangin S, Lengaigne G, Mon- taigne F, Lalieu M L M, Koopmans B and Mali- nowski G 2016 《物理评论快报》**117**(14) 147203 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.117.147203[10] Nenno D M, Rethfeld B and Schneider H C 2018 《物理评论*B*》**98**(22) 224416 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.98.224416

[11]Binder T, Pfeiffer M and Fasoulas S 2019 AIP会议论文集 2132 040003（预印本 https://aip.scitation.org/doi/pdf/10.1063/1.5119534 ）网址 https://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.5119534[12]Briones J, Schneider H C and Rethfeld B 2022 《物理学通讯》6 035001 网址 https://doi.org/10.1088/2399-6528/ac5873[13]Eckstein W 1991 离子-固体相互作用的计算机模拟（施普林格出版社，柏林-海德堡）[14]Haghighat A 2014 粒子输运的蒙特卡罗方法（佛罗里达州博卡拉顿：CRC出版社）[15]Haghighat A 2020 粒子输运的蒙特卡罗方法（CRC出版社）ISBN 9780429198397[16] Landau D and Binder K 2005 统计物理学中的蒙特卡罗模拟指南（美国：剑桥大学出版社）ISBN 0521842387[17] Huthmacher K, Herzwurm A, Gnewuch M, Ritter K and Rethfeld B 2015 《物理学A：统计力学及其应用》429 242–251 ISSN 0378-4371[18] Alekhin A, Razdolski I, Ilin N, Meyburg J P, Diesing D, Roddatis V, Rungger I, Stamen- ova M, Sanvito S, Bovensiepen U and Melnikov A 2017 《物理评论快报》119(1) 017202 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.119.017202[19] Kallenberg O 2002 现代概率论基础（施普林格，纽约，NY）[20] Carl Graham D T 2013 随机模拟与蒙特卡罗方法（施普林格出版社，柏林-海德堡）[21] Kruglyak V V, Hicken R J, Ali M, Hickey B J, Pym A T G and Tanner B K 2005 《物理评论B》71(23) 233104 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.71.233104[22] Kaltenborn S, Zhu Y H and Schneider H C 2012 《物理评论B》85(23) 235101 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.85.235101[23] Ritchie R and Ashley J 1965 《固体物理与化学杂志》26 1689–1694 ISSN 0022-3697 网址 http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0022369765901988[24] Mueller B Y and Rethfeld B 2013 《物理评论B》87(3) 035139 网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.87.035139[25] Eschenlohr A, Battiato M, Maldonado P, Pontius N, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Föhlisch A, Oppeneer P M and Stamm C 2013 《自然·材料》12(4)[26] Khorsand A R, Savoini M, Kirilyuk A and Rasing T 2014 《自然·材料》13 101–102 ISSN 1476-4660 网址 https://doi.org/10.1038/nmat3850[27]Werner W S M, Glantschnig K and Ambrosch- Draxl C 2009 《物理与化学参考数据杂志》38 1013–1092（预印本 https://doi.org/10.1063/1.3243762）网址 https://doi.org/10.1063/1.3243762