

# 溶液旋涂法制备 $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜 的自旋输运特性\*

田颖异 王拴虎<sup>†</sup> 罗殿柄 魏向洋 金克新<sup>‡</sup>

(西北工业大学, 物理科学与技术学院, 西安 710072)

(2022年6月16日收到; 2022年10月17日收到修改稿)

钇铁石榴石 (yttrium iron garnet, YIG) 的自旋输运特性一直是自旋电子学的研究重点之一. Bi 作为 YIG 最常见的掺杂元素, 其薄膜  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  的磁光特性已经被广泛研究. 但  $\text{Bi}^{3+}$  取代  $\text{Y}^{3+}$  对 YIG 自旋输运的影响规律还没有被系统地研究过. 本文利用溶液旋涂法制备了不同掺杂比的  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜, 并研究 Bi 掺杂对 YIG 薄膜形貌结构和自旋输运性能的影响. 结果表明 Bi 掺杂没有改变 YIG 的晶体结构, 掺杂比上升令薄膜的吸收强度增大, 带隙减小. XPS 表明了  $\text{Bi}^{3+}$  和  $\text{Bi}^{2+}$  的存在. Bi 掺杂在自旋输运上的调控体现在  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的磁振子扩散长度相比纯 YIG 薄膜有所减小. 同时研究发现 Pt/ $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜中依然可以检测到明显的自旋霍尔磁电阻, 并在  $x = 0.3$  时振幅最大.

**关键词:** 钇铁石榴石, Bi 掺杂, 自旋输运, 溶液旋涂法

**PACS:** 72.25.-b, 75.50.Gg, 85.75.-d, 74.62.Dh

**DOI:** 10.7498/aps.72.20221183

## 1 引言

铁磁绝缘体的自旋电子学是自旋信息传输领域的重点研究方向之一<sup>[1]</sup>. 不同于依靠传导电子携带信息的导体, 在铁磁绝缘体中, 自旋信息由非平衡磁振子携带, 因此自旋流传输信息的过程中不产生焦耳热<sup>[2-4]</sup>. 钇铁石榴石 (yttrium iron garnet, YIG) 作为具有低阻尼和窄铁磁共振线宽的室温亚铁磁绝缘体, 它的自旋输运行为在自旋电子学领域被广为探索<sup>[5,6]</sup>. Pt/YIG 异质结构中存在着多种自旋效应, 如自旋塞贝克效应 (spin Seebeck effect, SSE)<sup>[7]</sup>、自旋霍尔磁电阻 (spin Hall magnetoresistance, SMR)<sup>[8]</sup>、自旋能斯特效应<sup>[9]</sup>、自旋泵浦<sup>[10]</sup> 和自旋轨道磁电阻<sup>[11]</sup> 等.

Bi 作为 YIG 最常见的掺杂元素之一, 由于不

会增加额外的吸收损耗, 所以在以往的工作中通常被用于提高样品的法拉第旋转系数<sup>[12]</sup>. 当非磁性阳离子  $\text{Bi}^{3+}$  占据  $\text{Y}^{3+}$  八面体或十二面体的位置后, 掺杂后的 YIG 磁化强度发生改变<sup>[13]</sup>, 这表明 Bi 掺杂可以作为调控 YIG 磁性的手段. 近期, Aparnadevi 等<sup>[14]</sup> 研究发现  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  在室温下表现出多铁性和弱弛豫铁电行为.  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  由于其独特的磁光特性, 使得其在磁光显示设备的应用中具有广阔的前景<sup>[15-18]</sup>.

以往关于  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的研究都集中在微观结构、形貌演化<sup>[19]</sup> 和磁学特征<sup>[13]</sup> 上, 并没有系统地研究过  $\text{Bi}^{3+}$  取代  $\text{Y}^{3+}$  对 YIG 薄膜自旋输运的影响, 而掺杂对 YIG 自旋输运的调控有望为该体系的自旋电子学探索提供新的思路. 本文通过溶液旋涂法制备了一系列高质量  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜, 研究了  $\text{Bi}^{3+}$  取代  $\text{Y}^{3+}$  离子对薄膜形貌结构和自

\* 陕西省自然科学基金 (批准号: 2020JM-088) 和陕西省自然科学基金重点研究项目 (批准号: 2021JZ-08) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: shwang2015@nwpu.edu.cn

<sup>‡</sup> 通信作者. E-mail: jinkx@nwpu.edu.cn

旋涂特性的影响. 结果表明, Bi 掺杂没有改变 YIG 的晶体结构. 当 Bi 含量增大时, 薄膜的矫顽场增大, 带隙减小. 从 XPS 窄谱可以看出  $\text{Bi}^{3+}$  和  $\text{Bi}^{2+}$  的存在.  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的扩散长度相比于纯 YIG 有所减少. 同时,  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜中依然可以检测到明显的自旋霍尔磁电阻, 测试得到的 SMR 曲线符合理论值.

## 2 制备方法

利用溶液旋涂法在  $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$  的  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$  (GGG(111)) 基片上制备了一系列  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  样品, 图 1 为旋涂法的操作步骤. 薄膜的具体制备方法为: 1) 前驱体溶液配制: 按比例称取共  $0.005\text{ mol}$  的硝酸铋、硝酸钇和硝酸铁粉末, 将准备好的溶质加入到  $5\text{ mL}$  N-N-2 甲基甲酰胺 (DMF) 溶剂中. 磁力搅拌仪搅拌溶质至完全溶解后, 用 PTEE 过滤器过滤搅拌后的溶液. 加入  $0.7\text{--}0.8\text{ g}$  增稠剂聚乙烯吡咯烷酮 (PVP), 继续搅拌至完全溶解. 2) 薄膜制备: 分别使用去离子水和无水乙醇在超声清洗机中清洗基片, 以去除基片表面的灰尘和有机物残留. 将清洗干净的基片后放入匀胶机内, 在基片上滴  $40\text{ }\mu\text{L}$  前驱体溶液, 在高速  $8000\text{ rad/min}$  下旋涂  $60\text{ s}$  后取出薄膜. 将旋涂好的薄膜放置在加热台上, 在  $150\text{ }^\circ\text{C}$  下烘干溶剂 (约  $15\text{ min}$ ), 随后在管式炉中  $720\text{ }^\circ\text{C}$ 、大气环境下退火  $3\text{ h}$  使薄膜结晶.

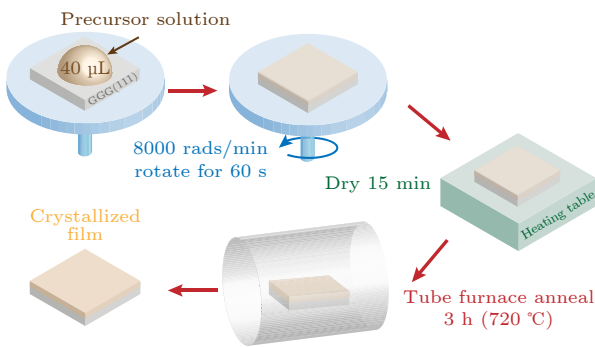


图 1 旋涂法示意图.

Fig. 1. Schematic diagram of spin coating method.

## 3 分析与讨论

首先对不同掺杂比的  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜进行形貌表征 ( $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜厚度均为  $74\text{ nm}$ ).

图 2(a) 所示为当 Bi 掺杂比分别为  $x = 0, 0.3, 0.5$  和  $1$  时的原子力显微镜 (atomic force microscope, AFM) 形貌图 (Asylum Research MFD-3D 型原子力显微镜). 可以看出 4 种不同掺杂比例的样品表面均较为平整、结晶性高, 薄膜具有较高的质量. 薄膜的粗糙度 (RMS) 分别为  $0.606, 1.974, 1.466$  和  $1.507\text{ nm}$ . 图 2(b) 为  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜的实物图, Bi 含量增加后薄膜的颜色明显变深.

为了了解晶体结构的变化, 测试了  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜的拉曼光谱 (如图 2(c) 所示, 仪器: WITec Alpha300R). 由于石榴石结构中 bcc 晶胞由 8 个 YIG 分子组成, 含有 160 个原子, Raja 等 [19,20] 根据群论预测 YIG 的拉曼光谱应包含 25 个峰, 分别为  $3A_{1g}+8E_g+14T_{2g}$ .  $100\text{--}300\text{ cm}^{-1}$  范围内的拉曼峰通常代表着阳离子 ( $\text{Y}^{3+}$  和  $\text{Fe}^{3+}$ ) 的平移 [21],  $300\text{--}750\text{ cm}^{-1}$  范围内出现的峰可以解释为氧四面体能带的变化 [22–24]. 图 2(c) 中  $355$  和  $741\text{ cm}^{-1}$  处的拉曼峰对应于 GGG 中  $\text{GaO}_4$  和  $\text{GaO}_6$  内部振动  $A_{1g}$  模式 [25]. 通过早前的工作 [26,27] 可知, YIG 薄膜在  $169.8, 235.6, 271.8, 412$  和  $586\text{ cm}^{-1}$  等位置均观测到明显的拉曼峰, 这些峰在图 2(c) 中也可以清楚观测到. 但由于测试得到的基片与薄膜的拉曼峰位置无明显区别, 为了排除基片的拉曼峰对实验结果的影响, 在 GGG 上生长了非晶 YIG 薄膜并测试了拉曼光谱. 可以看出非晶薄膜的拉曼光谱与晶态 YIG 完全不同, 无明显的峰 (仅在  $184\text{ cm}^{-1}$  附近存在一处凸起), 这表明了  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  的拉曼光谱中存在薄膜的拉曼峰. 同时, 由于  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜的拉曼峰数量没有变化, 峰的位置也没有明显偏移, 这表明 Bi 取代没有改变 YIG 的晶体结构.

由于掺杂通常会使得能带结构发生改变, 通过测试  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜的吸收光谱 (如图 2(d) 所示, 仪器: 日立 U 3010 紫外分光光度计), 研究了 Bi 掺杂对带隙的影响. 可以看出  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜在  $450\text{ nm}$ , 即蓝光附近吸收增强, 这与 YIG 的吸收谱一致 [28]. 同时可以发现, Bi 掺杂提高了薄膜对光的吸收, 在  $x = 1$  时最强. 通过绘制  $(\alpha h\nu)^2 - h\nu$  Tauc 图, 并将图中的线性部分外推到  $\alpha = 0$  ( $\alpha$  为吸收系数), 可以得到薄膜的带隙宽度.  $\alpha$  的计算公式为

$$(I_0 - I_a) / I_a = \exp(-\alpha t), \quad (1)$$

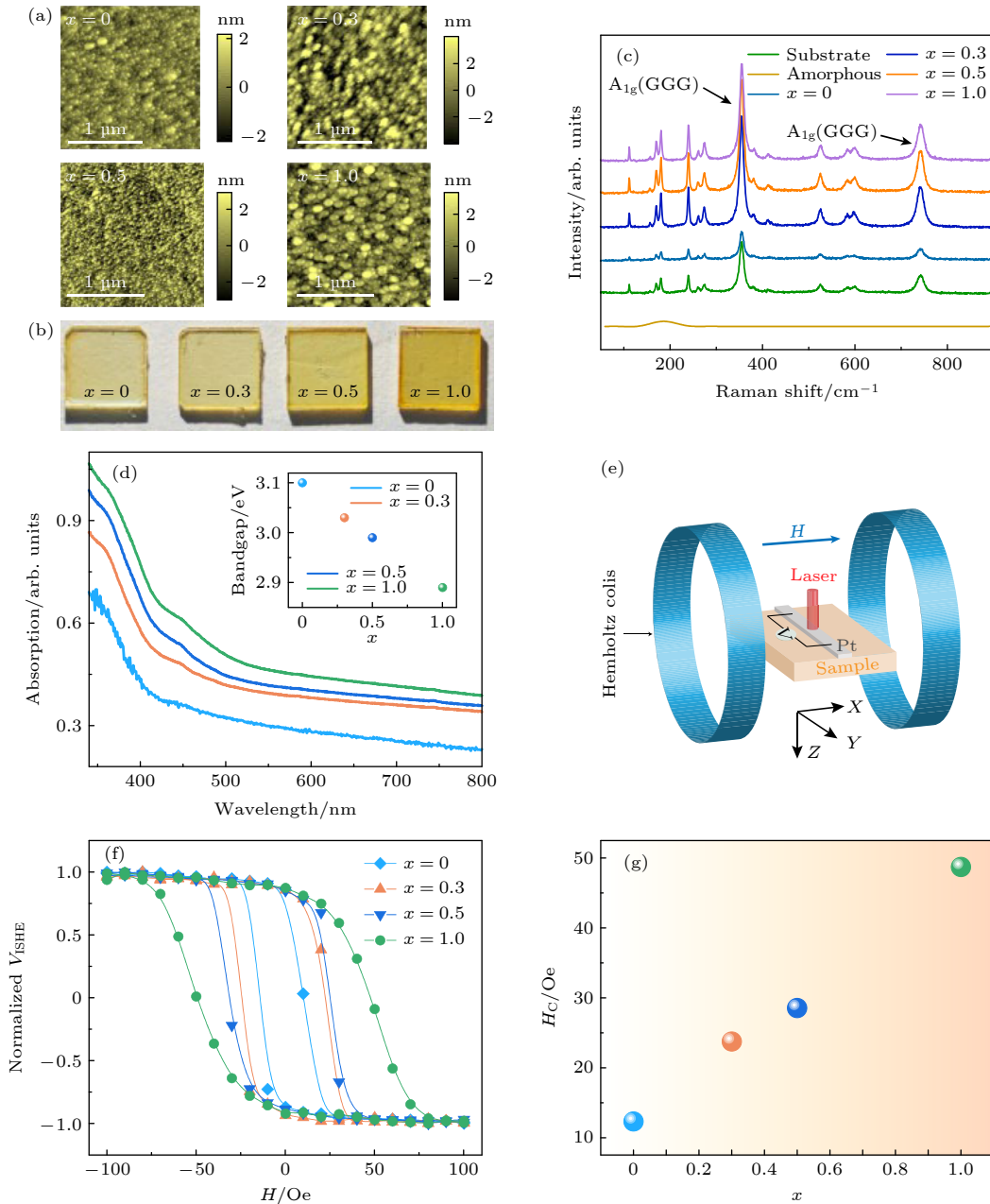


图2  $x = 0, 0.3, 0.5$  和  $1$  时  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的 (a) AFM 图像; (b) 薄膜实物图; (c) 拉曼光谱; (d) 吸收谱 (插图为带隙宽度- $x$  关系图); (e) SSE 实验装置图; (f) 归一化  $V_{\text{ISHE}}-H$  曲线; (g) 矫顽场  $H_C-x$  关系图

Fig. 2. (a) AFM images; (b) photograph of films; (c) Raman spectra; (d) absorption spectra (the insert of (d) is the dependence of bandgap on  $x$ ); (e) schematic diagram of the SSE experimental setup; (f) normalized  $V_{\text{ISHE}}-H$  curves and (g) the dependence of coercive field  $H_C$  on  $x$  of  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  films at  $x = 0, 0.3, 0.5$  and  $1$ .

其中  $I_0$  和  $I_a$  分别表示入射光和吸收光强度,  $t$  是薄膜厚度,  $h$  和  $\nu$  分别是普朗克常数和光的频率. 如图 2(d) 插图所示,  $x = 0, 0.3, 0.5$  和  $1$  时薄膜的带隙分别为  $3.10 \text{ eV}$ ,  $3.03 \text{ eV}$ ,  $2.99 \text{ eV}$  和  $2.89 \text{ eV}$ . 这表明薄膜带隙随着 Bi 含量的增大而减小.

通过  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜矫顽场的变化可以分析 Bi 掺杂对 YIG 磁性的影响. SSE 是一种通过在铁磁薄膜上施加温度梯度从而产生自旋流的效应.

磁振子自旋流可以通过沉积在薄膜表面的重金属中的逆自旋霍尔效应 (inverse spin Hall effect, ISHE) 转换为电信号进行探测<sup>[7,29]</sup>. 如图 2(e) 所示, 将激光辐照在 Pt (厚度  $10 \text{ nm}$ ) 表面, 激光的热量使 Pt/ $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜产生沿面外方向 ( $Z$  方向) 的温度梯度. 沿面内垂直 Pt 的方向 ( $X$  方向) 施加变化范围为  $\pm 100 \text{ Oe}$  的磁场 (由亥姆霍兹线圈提供), 由于 SSE, 薄膜中的非平衡磁振子将累积和扩

散, 在重金属 Pt 电极上通过 ISHE 转换为电信号  $V_{\text{ISHE}}$ .  $V_{\text{ISHE}}$  的计算方法为  $V_{\text{ISHE}} = [V_{\text{ISHE}}(+H) - V_{\text{ISHE}}(-H)]/2$ ,  $V_{\text{ISHE}}(+H)$  和  $V_{\text{ISHE}}(-H)$  分别为 100 Oe 和 -100 Oe 时的电压. 图 2(f) 为  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜归一化  $V_{\text{ISHE}}-H$  曲线, 当  $\text{Y}^{3+}$  离子被  $\text{Bi}^{3+}$  取代后,  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜仍可以观测到明显的 SSE 信号, 这表明  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜依然具有磁性. 由于 YIG 薄膜的磁矩与上述探测到的  $V_{\text{ISHE}}$  成正比, 可以通过归一化  $V_{\text{ISHE}}-H$  曲线得到  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的矫顽场  $H_C$ <sup>[10]</sup>. 从矫顽场  $H_C-x$  的关系图 (如图 2(g) 所示) 可以看出,  $H_C$  随着薄膜中 Bi 含量的增大而增大.

为了准确表征薄膜所含元素的光电子谱带, 进一步研究 Bi 掺杂对 YIG 薄膜晶体结构的影响, 测试了  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜的 X 射线光电子能谱分析 (X-ray photoelectron spectroscopy, XPS) (Kratos AXIS Ultra DLD). 如图 3(a) 所示为  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜的 XPS 全谱, 清晰地标注了不同  $x$  值下 Bi 元素和 Y 元素相关轨道在高分辨率光谱中的位置, Y 3p 峰值的存在显示了 Y 处于 3+ 价态. Bi 元素的窄谱如图 3(b) 所示, 可以看出窄谱中 159.5 eV 和 157.7 eV 处的峰与 Bi 4f 7/2 相关, 164.3 eV 处的峰由 Bi 4f 5/2 轨道产生. Bi 元素的 XPS 窄谱表明了  $\text{Bi}^{3+}$  的存在<sup>[30,31]</sup>. 同时, 样品还含有大量  $\text{Bi}^{2+}$ , Bi 含量的增大将导致  $\text{Bi}^{2+}/\text{Bi}^{3+}$  比值降低<sup>[32]</sup>. 当 Bi 掺杂比变高时, 可以明显看出 Bi 元素窄谱中的峰发生偏移, 结合能减小.

在铁磁体中, 基于 SSE 产生的非平衡磁振子的扩散长度是研究薄膜自旋输运特性的重要参数,

因此研究了 Bi 掺杂对 YIG 自旋扩散长度的影响. 测试装置如图 4(a) 所示: 首先, 在制备好的  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜上沿 Y 轴方向沉积了 10 nm 的 Pt 电极, 将焊接在 Pt 两端的铝线连接到纳伏表 (Keithley 2182) 上来探测电压 ( $V_{\text{ISHE}}$ ). 施加沿 X 方向的磁场, 由图 2(e) 可得知 100 Oe 磁场足够令薄膜饱和. 将激光辐照在薄膜表面上, 沿 X 方向移动激光光斑获得不同光斑位置的  $V_{\text{ISHE}}$ . 为了方便起见, 将 Pt 电极中心 (激光辐照的初始位置) 定义为  $L = 0 \mu\text{m}$ . 根据早前的研究<sup>[33]</sup> 和我们之前的工作<sup>[28]</sup> 可知, 当可见光辐照 YIG 表面时, 激光离开 Pt 电极时  $V_{\text{ISHE}}$  快速降低到 0, 而当红外光辐照 YIG 时, 由于改变了  $\text{FeO}_6$  八面体的电子组态,  $V_{\text{ISHE}}$  没有在激光离开 Pt 电极时立即降为 0. 使用波长为 780 nm (功率: 87 mW, 光斑直径: 20  $\mu\text{m}$ , 功率密度: 27.7  $\text{mW}/\mu\text{m}^2$ ) 的红外光辐照样品表面, 移动光斑得到薄膜不同位置的  $V_{\text{ISHE}}$ . 图 4(b) 显示了  $x$  分别为 0, 0.3, 0.5 和 1 时的  $V_{\text{ISHE}}$ -激光位置的测试数据 (点) 和拟合数据 (曲线). 可以明显看出, 当激光光斑在 Pt 上移动时,  $V_{\text{ISHE}}$  的值基本保持不变. 当光斑远离 Pt 时,  $V_{\text{ISHE}}$  快速下降. 对比不同样品可以看出, 当  $x = 0$  时,  $V_{\text{ISHE}}$  下降最为平缓, 当  $x$  增大时,  $V_{\text{ISHE}}$  的下降速度逐渐增大, 当  $x = 1$  时,  $V_{\text{ISHE}}$  下降速度最快. 通过

$$V_{\text{ISHE}} = V_0 \exp(-L/\xi), \quad (2)$$

进行拟合, 其中  $V_0$  为归一化系数,  $L$  为激光位置,  $\xi$  是拟合得到的扩散长度. 图 4(c) 为  $x$  和扩散长度的关系图. 可以看出当  $x$  增大时, 扩散长度有所减小, 当  $x = 1$  时,  $\xi$  为 104  $\mu\text{m}$ , 相比  $x = 0$  时的 147  $\mu\text{m}$

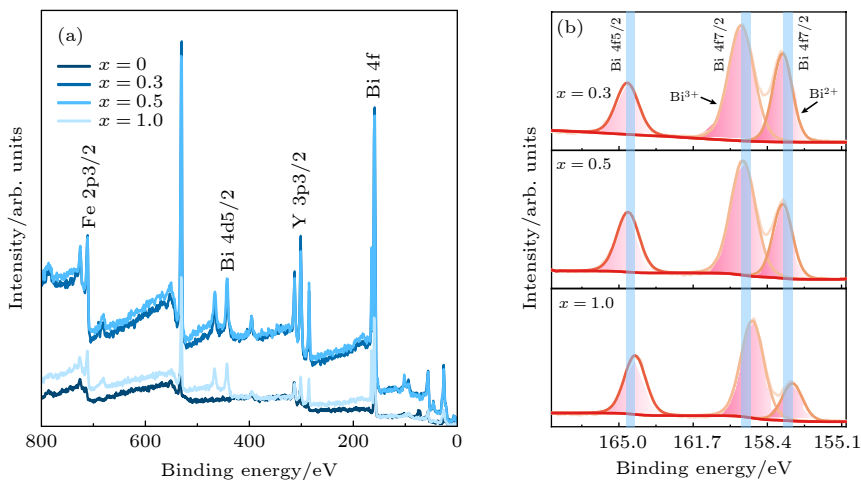


图 3 (a)  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜 XPS 全谱; (b) Bi 元素的 XPS 窄谱 (Bi 4f)

Fig. 3. (a) Full XPS spectra of  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  thin films; (b) XPS narrow spectrum of Bi element (Bi 4f).

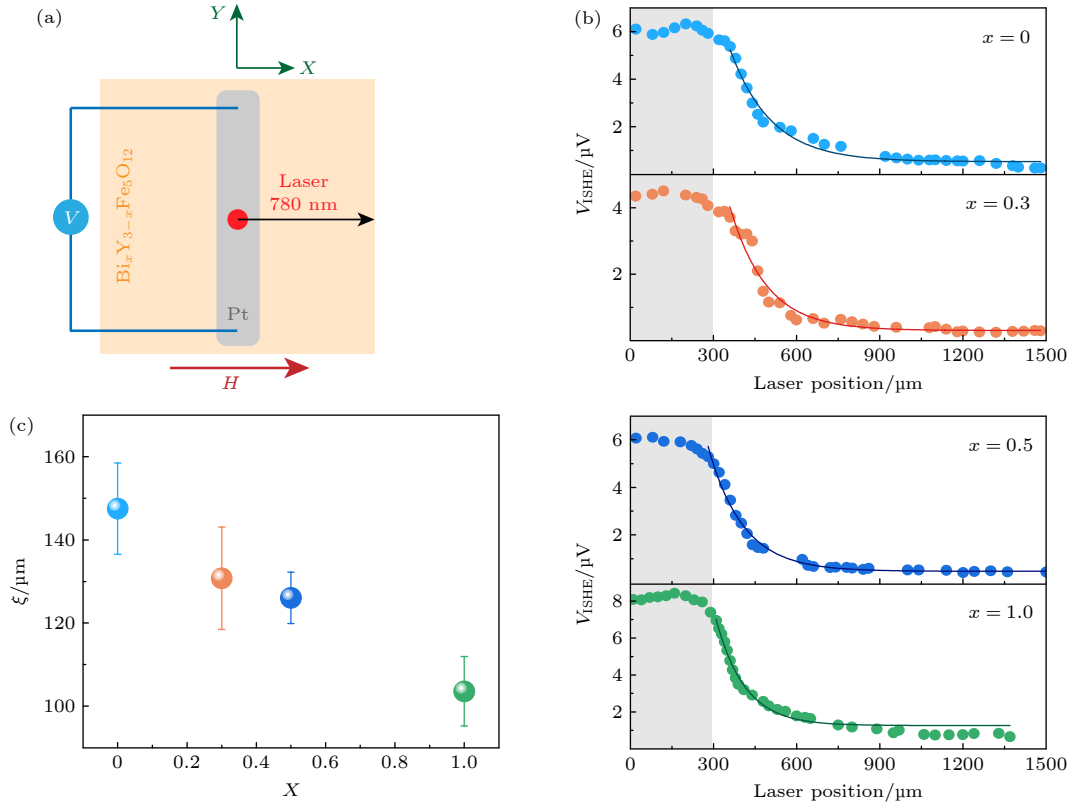


图 4 (a) 实验装置示意图; (b)  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜 ( $x = 0, 0.3, 0.5$  和  $1$ ) 的  $V_{\text{ISHE}}$ -激光位置的测试数据 (点) 和拟合数据 (曲线), 其中灰色区域表示激光光斑照射在 Pt 电极上; (c)  $x$  和扩散长度的关系

Fig. 4. (a) Schematic diagram of experimental device; (b) dependence of  $V_{\text{ISHE}}$  on laser position in  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  films ( $x = 0, 0.3, 0.5$  and  $1$ ), where the points are test data and the curves are fitting data. The gray area in (b) indicates that the laser spot irradiates on the Pt electrode; (c) dependence of diffusion length on  $x$ .

减小了接近约 30%。磁振子扩散长度的降低可能源于掺杂导致的自旋波刚度系数的增大<sup>[34–37]</sup>, 这与 Siao 等<sup>[32]</sup> 关于 Bi 取代 Y 对 YIG 自旋波刚度系数的影响规律一致。

最后, 研究了 Pt/ $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜中的 SMR。它是指施加在 Pt 中的电荷流由于自旋霍尔效应 (spin Hall effect, SHE) 产生的自旋流在界面处反射后, 通过 ISHE 转换为电荷流, 并叠加在原始电荷流上, 造成 Pt 电阻的变化。图 5(a) 为 SMR 的测试装置图, 通过改变面内磁场和电流的夹角  $\theta$  可以观测到 SMR 周期性的变化 (当外加磁场和 Y 轴平行时定义  $\theta = 0$ , 面内磁场为 108 mT)。由于横向电压  $V_y$  背底噪音小, 信噪比高, 且已有理论证明  $\Delta\rho_{xy} = \Delta\rho_{xx}$ <sup>[38,39]</sup>, 为了使结果更易观测, 所以选择用横向电压  $V_y$  来表征自旋霍尔磁电阻。在以往的工作研究了邻近效应引起的反常霍尔磁电阻 (anisotropic magnetoresistance, AMR) 对 SMR 的影响, 测试结果表明, AMR 对实验影响很小, 测试

得到的效应为 SMR<sup>[26]</sup>。如图 5(b) 所示, Pt/ $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜均可观察到明显的 SMR,  $R_{\text{SMR}}/R_0-\theta$  ( $R_0$  为直接测量 Pt 得到的电阻) 曲线光滑, 为周期  $180^\circ$  的三角函数, 符合理论值 ( $R_{\text{SMR}}/R_0 = \alpha R_0 \sin 2\theta$ ,  $\alpha$  为系数)。由图 5(c)  $R_{\text{SMR}}/R_0-x$  关系图可知,  $x = 0.3$  时  $R_{\text{SMR}}/R_0$  最大,  $x = 0.5$  和  $x = 1$  时  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的  $R_{\text{SMR}}/R_0$  明显小于纯 YIG。为了进一步研究这种现象的成因, 通过:

$$\frac{\Delta\rho_{xy}}{\rho} = \theta_{\text{sh}}^2 \frac{\lambda_{\text{Pt}}}{t_{\text{Pt}}} \frac{2\lambda_{\text{Pt}} G \tanh^2 \frac{t_{\text{Pt}}}{2\lambda_{\text{Pt}}}}{\sigma_{\text{Pt}} + 2\lambda_{\text{Pt}} G \coth^2 \frac{t_{\text{Pt}}}{\lambda_{\text{Pt}}}}, \quad (3)$$

分析了 SMR 和自旋混合电导  $G$  的关系<sup>[39]</sup>。其中  $\lambda_{\text{Pt}}$ ,  $t_{\text{Pt}}$ ,  $\sigma_{\text{Pt}}$  和  $\theta_{\text{sh}}$  分别为 Pt 的自旋扩散长度、厚度、电导率和自旋霍尔角。由于 Pt 的制备条件相同, Pt/ $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜中,  $\lambda_{\text{Pt}}$ ,  $t_{\text{Pt}}$ ,  $\sigma_{\text{Pt}}$  和  $\theta_{\text{sh}}$  理论上应均无变化。从等式 (3) 中可得 SMR 振幅的改变可能是由于掺杂引起了 Pt/ $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  界面自旋混合电导率的变化。

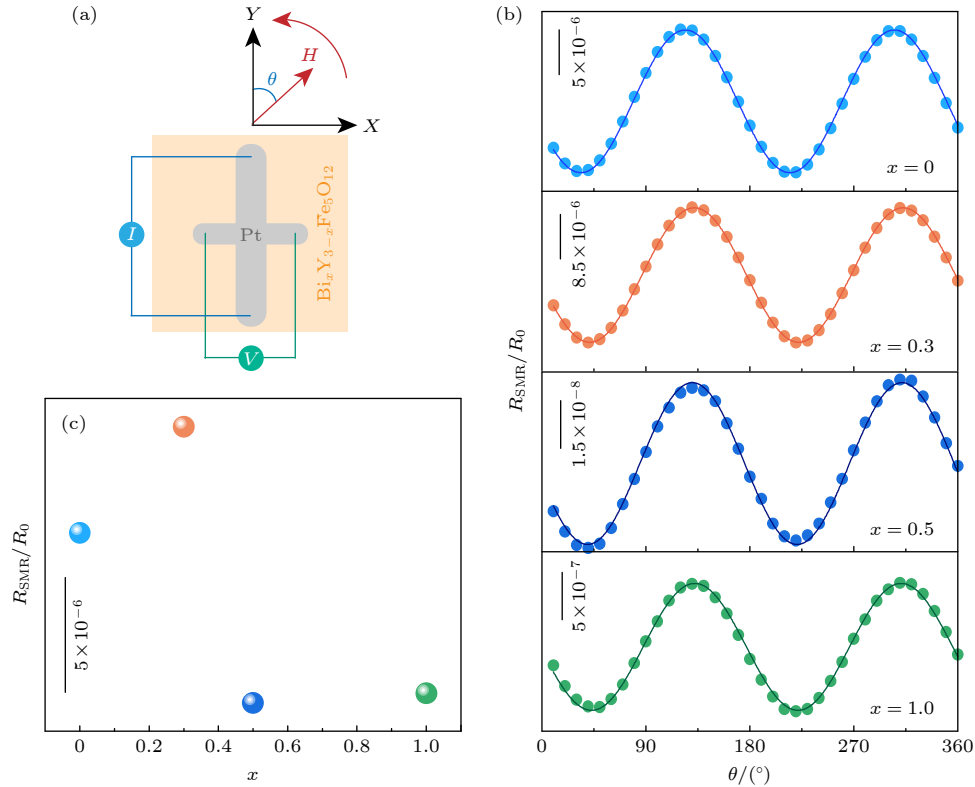


图 5 (a) 横向 SMR 测试示意图; (b)  $x = 0, 0.3, 0.5$  和  $1$  时, Pt/  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的  $R_{\text{SMR}}/R_0-\theta$  的测试数据 (点) 和拟合数据 (曲线); (c)  $R_{\text{SMR}}/R_0-x$  关系图

Fig. 5. (a) Schematic diagram of experimental device of transverse SMR; (b) when  $x = 0, 0.3, 0.5$  and  $1$ , the dependence of  $R_{\text{SMR}}/R_0-\theta$  test data (points) and fitting data (curves) in Pt/  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  films; (c) dependence of  $R_{\text{SMR}}/R_0$  on  $x$ .

## 4 结 论

本工作使用溶液旋涂法制备了高质量的  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜, 并研究了 Bi 掺杂对 YIG 形貌结构和自旋输运特性的影响.  $\text{Bi}^{3+}$  取代  $\text{Y}^{3+}$  后 YIG 薄膜的矫顽场增大,  $\text{Bi}^{2+}/\text{Bi}^{3+}$  比值随着 Bi 含量的增大而降低. 同时,  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  薄膜的磁振子扩散长度在  $780 \text{ nm}$  红外激光下小于无掺杂 YIG 薄膜, Bi 含量的增高会导致薄膜扩散长度减小.  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  系列薄膜中仍然可以探测到明显的自旋霍尔磁电阻. 结果表明  $\text{Bi}^{3+}$  在 YIG 晶格结构中具有独特的作用, Bi 元素掺杂为 YIG 的自旋电子学特性研究和新型磁光材料提供了新的选择.

## 参考文献

- [1] Gomez-Perez J M, Velez S, Hueso L E, Casanova F 2020 *Phys. Rev. B* **101** 184420
- [2] Cornelissen L J, Peters K J H, Bauer G E W, Duine R A, van Wees B J 2016 *Phys. Rev. B* **94** 014412
- [3] Giles B L, Yang Z H, Jamison J S, Myers R C 2015 *Phys. Rev. B* **92** 224415
- [4] Shan J, Cornelissen L J, Vlietstra N, Ben Youssef J, Kuschel T, Duine R A, van Wees B J 2016 *Phys. Rev. B* **94** 174437
- [5] Song B J, Jin Z M, Guo C Y, Ruan S Y, Li J G, Wan C H, Han X F, Ma G H, Yao J Q 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 208704 (in Chinese) [宋邦菊, 金钻明, 郭晨阳, 阮舜逸, 李炬庚, 万蔡华, 韩秀峰, 马国宏, 姚建铨 2020 物理学报 **69** 208704]
- [6] Yang M, Bai H, Li G, Zhu Z, Zhu Y, Su J, Cai J 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 077501 (in Chinese) [杨萌, 白鹤, 李刚, 朱照照, 竺云, 苏鉴, 蔡建旺 2021 物理学报 **70** 077501]
- [7] Uchida K, Adachi H, Ota T, Nakayama H, Maekawa S, Saitoh E 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 172505
- [8] Nakayama H, Althammer M, Chen Y T, Uchida K, Kajiwara Y, Kikuchi D, Ohtani T, Geprags S, Opel M, Takahashi S, Gross R, Bauer G E W, Goennenwein S T B, Saitoh E 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 206601
- [9] Meyer S, Chen Y T, Wimmer S, Althammer M, Wimmer T, Schlitz R, Geprags S, Huebl H, Kodderitzsch D, Ebert H, Bauer G E W, Gross R, Goennenwein S T B 2017 *Nat. Mater.* **16** 977
- [10] Weiler M, Althammer M, Schreier M, Lotze J, Pernpointner M, Meyer S, Huebl H, Gross R, Kamra A, Xiao J, Chen Y T, Jiao H J, Bauer G E W, Goennenwein S T B 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 176601
- [11] Zhou L F, Song H K, Liu K, Luan Z Z, Wang P, Sun L, Jiang S W, Xiang H J, Chen Y B, Du J, Ding H F, Xia K, Xiao J, Wu D 2018 *Sci. Adv.* **4** eaao3318
- [12] Huang M, Xu Z C 2004 *Thin Solid Films* **450** 324
- [13] Xu H T, Yang H, Xu W, Yu L X 2008 *Curr. Appl. Phys.* **8** 1
- [14] Aparnadevi N, Kumar K S, Manikandan M, Kumar B S, Punitha J S, Venkateswaran C 2020 *J. Mater. Sci-Mater. El.*

31 2081

- [15] Wittekoek S, Popma T J A, Robertson J M, Bongers P F 1975 *Phys. Rev. B* **12** 2777
- [16] Matsumoto K, Yamaguchi K, Fujii T, Ueno A 1991 *J. Appl. Phys.* **69** 5918
- [17] Guillot M, Ostorero J, Armstrong G, Zhang F, Xu Y 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 10f106
- [18] Rehspringer J L, Bursik J, Niznansky D, Klarikova A 2000 *J. Magn. Magn. Mater.* **211** 291
- [19] Raja A, Gazzali P M M, Chandrasekaran G 2021 *Phys. B-Condens. Mat.* **613** 412988
- [20] Atuchin V V, Aleksandrovsky A S, Chimitova O D, Gavrilova T A, Krylov A S, Molokeev M S, Oreshonkov A S, Bazarov B G, Bazarova J G 2014 *J. Phys. Chem. C* **118** 15404
- [21] Pena-Garcia R, Guerra Y, Buitrago D M, Leal L R F, Santos F E P, Padron-Hernandez E 2018 *Ceram. Int.* **44** 11314
- [22] Costantini J M, Miro S, Beuneu F, Toulemonde M 2015 *J. Phys-Condens. Mat.* **27** 496001
- [23] Fechine P B A, Silva E N, de Menezes A S, Derov J, Stewart J W, Drehman A J, Vasconcelos I F, Ayala A P, Cardoso L P, Sombra A S B 2009 *J. Phys. Chem. Solids* **70** 202
- [24] Fernandez-Garcia L, Suarez M, Menendez J L 2010 *J. Alloy. Compd.* **495** 196
- [25] Jin L C, Jia K C, He Y J, Wang G, Zhong Z Y, Zhang H W 2019 *Appl. Surf. Sci.* **483** 947
- [26] Paiva D V M, Silva M A S, Ribeiro T S, Vasconcelos I F, Sombra A S B, Goes J C, Fechine P B A 2015 *J. Alloy. Compd.* **644** 763
- [27] Khanra S, Bhaumik A, Kolekar Y D, Kahol P, Ghosh K 2014 *J. Magn. Magn. Mater.* **369** 14
- [28] Wang S H, Li G, Guo E J, Zhao Y, Wang J Y, Zou L K, Yan H, Cai J W, Zhang Z T, Wang M, Tian Y Y, Zheng X L, Sun J R, Jin K X 2018 *Phys. Rev. Mater.* **2** 051401(R)
- [29] Uchida K, Ishida M, Kikkawa T, Kirihara A, Murakami T, Saitoh E 2014 *J. Phys-Condens. Mat.* **26** 343202
- [30] Wiengarten A, Seufert K, Auwarter W, Ecija D, Diller K, Allegretti F, Bischoff F, Fischer S, Duncan D A, Papageorgiou A C, Klappenberger F, Acres R G, Ngo T H, Barth J V 2014 *J. Am. Chem. Soc.* **136** 9346
- [31] Abdullah E A, Abdullah A H, Zainal Z, Hussein M Z, Ban T K 2012 *J. Environ. Sci.* **24** 1876
- [32] Siao Y J, Qi X D, Lin C R, Huang J C A 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 07a508
- [33] Scott G B, Lacklison D E, Page J L 1974 *Phys. Rev. B* **10** 971
- [34] Sparks M, Loudon R, Kittel C 1961 *Phys. Rev.* **122** 791
- [35] Jin H Y, Boona S R, Yang Z H, Myers R C, Heremans J P 2015 *Phys. Rev. B* **92** 054436
- [36] Kikkawa T, Uchida K, Daimon S, Qiu Z Y, Shiomi Y, Saitoh E 2015 *Phys. Rev. B* **92** 064413
- [37] Rezende S M, Rodriguez-Suarez R L, Cunha R O, Rodrigues A R, Machado F L A, Guerra G A F, Ortiz J C L, Azevedo A 2014 *Phys. Rev. B* **89** 014416
- [38] Wang S H, Li G, Wang J Y, Tian Y Y, Zhang H R, Zou L K, Sun J R, Jin K X 2018 *Chinese Phys. B* **27** 117201
- [39] Chen Y T, Takahashi S, Nakayama H, Althammer M, Goennenwein S T B, Saitoh E, Bauer G E W 2013 *Phys. Rev. B* **87** 144411

# Spin transport properties of $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ thin films prepared by spin coating\*

Tian Ying-Yi    Wang Shuan-Hu<sup>†</sup>    Luo Dian-Bing  
Wei Xiang-Yang    Jin Ke-Xin<sup>‡</sup>

(School of Physical Science and Technology, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

( Received 16 June 2022; revised manuscript received 17 October 2022 )

## Abstract

Yttrium iron garnet (YIG), as a room temperature ferrimagnetic insulator with low damping and narrow ferromagnetic resonance linewidth, has been the research hotspot in spintronics because of its spin transport properties. Bi is one of the most common doping elements used in YIG, and some researches have proved that it can tune the magnetic properties of YIG. Previous studies of  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  thin films focused on the evolutions of their structures, morphologies, and magnetic characteristics. Yet, the effects of  $\text{Bi}^{3+}$  substitution of  $\text{Y}^{3+}$  on spin transport in YIG thin films have not been systematically studied. The regulation of YIG spin transport by doping is expected to provide a new idea for the spintronics exploration of Pt/YIG system. In this work, we prepare a series of  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  films with different doping ratios by spin coating. And we investigate the effects of  $\text{Bi}^{3+}$  on morphology, structure and spin transport properties of YIG films. The results show that Bi doping does not change the crystal structure of YIG. The absorption of the film increases and the bandgap decreases with the increase of doping ratio. The X-ray photoelectron spectroscopy (XPS) indicates the co-existence of  $\text{Bi}^{3+}$  and  $\text{Bi}^{2+}$ . The regulation of Bi doping on spin transport is reflected in the fact that the magnon diffusion length of  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  films is significantly smaller than that of pure YIG films. Meanwhile, we find that the obvious spin Hall magnetoresistance can still be detected in the Pt/ $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  heterostructure, and the amplitude is the largest when  $x = 0.3$ .

**Keywords:** Yttrium iron garnet, Bi doping, spin transport, spin coating

**PACS:** 72.25.-b, 75.50.Gg, 85.75.-d, 74.62.Dh

**DOI:** 10.7498/aps.72.20221183

\* Project supported by the Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2020JM-088) and Key Research Project of the Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2021JZ-08).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [shwang2015@nwpu.edu.cn](mailto:shwang2015@nwpu.edu.cn)

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [jinkx@nwpu.edu.cn](mailto:jinkx@nwpu.edu.cn)



溶液旋涂法制备 $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜的自旋输运特性

田颖异 王拴虎 罗殿柄 魏向洋 金克新

Spin transport properties of  $\text{Bi}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  thin films prepared by spin coating

Tian Ying-Yi Wang Shuan-Hu Luo Dian-Bing Wei Xiang-Yang Jin Ke-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 017201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20221183

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221183>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

氧气分子吸附对单蒽分子器件自旋输运性质调控

Effects of oxygen adsorption on spin transport properties of single anthracene molecular devices

物理学报. 2020, 69(24): 248501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201028>

不同方向局域交换场对锡烯自旋输运的影响

Effects of local exchange field in different directions on spin transport of stanene

物理学报. 2022, 71(14): 147201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220277>

垂直各向异性 $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜的外延生长与其异质结构的自旋输运

Epitaxial growth of  $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  films with perpendicular magnetic anisotropy and spin transport properties in  $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}/\text{Pt}$  heterostructures

物理学报. 2021, 70(7): 077501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201737>

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)/Pt异质结构中基于超快自旋塞贝克效应产生太赫兹相干辐射研究

Terahertz emission from  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)/Pt heterostructures via ultrafast spin Seebeck effect

物理学报. 2020, 69(20): 208704 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200733>

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -CoFeB自旋波定向耦合器中的自旋波

Spin waves in  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ -CoFeB spin-wave directional coupler

物理学报. 2021, 70(18): 187501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210507>

三价镨离子掺杂对铽镓石榴石晶体磁光性能影响的量子计算

Quantum calculation of the influence of trivalent praseodymium ions doping on the magneto-optical properties of terbium gallium garnet crystal

物理学报. 2019, 68(13): 137801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190576>