



非线性自旋电子学

何攀^{1,2*}, 刘昊¹, 翟金凤¹, 潘超钰¹, 沈健^{1,2,3*}

1. 复旦大学微纳电子器件与量子计算机研究院, 上海 200438

2. 复旦大学应用表面物理国家重点实验室, 上海 200438

3. 复旦大学物理系, 上海 200438

*联系人, 何攀, E-mail: hupan@fudan.edu.cn; 沈健, E-mail: shenj5494@fudan.edu.cn

收稿日期: 2024-10-05; 接受日期: 2024-11-11; 网络出版日期: 2025-01-16

国家自然科学基金(编号: U23A2071, 12174063)、国家重点研发计划(编号: 2022YFA1403300, 2020YFA0308800)和上海市自然科学基金(编号: 23ZR1403600)资助项目

摘要 自旋电子学利用电子的自旋属性来实现信息存储和处理, 有望克服传统电子学面临的能耗、微型化以及抗辐照等瓶颈问题. 近年来, 非线性自旋电子学作为自旋电子学领域的新兴分支, 受到一定的关注. 非线性自旋电子学结合了非线性动力学和自旋电子学, 开辟了超越传统自旋相关效应的新途径. 本文综述了非线性自旋电子学的最新进展, 重点介绍典型的非线性自旋输运现象、物理机制、实验表征方法以及在自旋器件中的应用, 旨在展示其重要性以激发新的相关研究.

关键词 自旋电子学, 非线性效应, 非线性自旋电子学, 自旋流, 自旋热电子学

PACS: 75.76.+j, 85.75.-d, 85.70.-w, 75.25.-j, 75.30.Ds

1 引言

随着电子器件的不断微型化, 传统硅基电子学面临着巨大的挑战. 为克服摩尔定律的瓶颈, 利用电子自旋作为信息媒介的自旋电子学应运而生^[1,2]. 自旋作为电子的内禀角动量, 在固态物理中扮演着重要的角色. 随着巨磁阻效应的发现和应用^[3,4], 自旋电子学逐渐成为凝聚态物理和材料科学研究的前沿领域之一. 自旋电子学主要关注电子自旋的极化、输运和操纵, 已经取得了显著的进展, 例如自旋阀、磁隧道结和磁性随机存储器等已有广泛的商业化应用. 相较于基于电子电荷的传统电子学, 自旋电子学在降低能耗、提高

数据处理速度、抗辐照等方面具有显著优势. 近年来, 根据材料的不同, 自旋电子学已经发展出了不同的分支, 如反铁磁自旋电子学^[5,6]、亚铁磁自旋电子学^[7]、手性自旋电子学^[8]和拓扑自旋电子学等^[9-11]. 随着对自旋更深入的探索, 人们发现自旋存在丰富的非线性行为, 从而孕育了非线性自旋电子学. 非线性自旋电子学研究自旋相关的非线性效应, 旨在揭示自旋与物质相互作用的更深层次规律, 并为开发新型自旋电子器件提供新的思路.

传统自旋电子学主要关注自旋对外部刺激(如电场、温度梯度和光场等)的线性响应. 在某些材料中, 线性响应因晶体对称性而被禁止, 但非线性响应仍然

引用格式: 何攀, 刘昊, 翟金凤, 等. 非线性自旋电子学. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2025, 55: 250012

He P, Liu H, Zhai J F, et al. Nonlinear spintronics (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2025, 55: 250012, doi: [10.1360/SSPMA-2024-0441](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0441)

可以存在. 因此, 线性自旋输运的局限性一定程度上制约了自旋电子学的进一步发展. 另外, 传统电子学的发展离不开非线性电子器件, 比如二极管和晶体管等. 同样地, 自旋电子学的发展亟须开发相关非线性自旋电子器件. 近年来, 一系列非线性自旋输运现象的发现为自旋电子学带来了新的机遇, 它们不仅可以探测新的能带几何量, 还提供了新的工具来表征和调控材料属性. 非线性自旋电子学逐渐成为新的研究热点, 展现出许多新奇的现象和潜在应用.

当前, 电子电荷对外部刺激的非线性响应已有较多研究^[12,13], 如非线性磁电阻效应^[13]和非线性霍尔效应等^[12]. 与线性输运不同, 非线性电输运现象产生的电压与外加电场的平方或高次方成正比. 并且非线性电输运表现出对(时间反演或空间反演)对称性不同的要求, 导致出现线性输运不允许的新现象, 如时间反演对称性下的非线性霍尔效应和随磁场奇函数变化的单向磁电阻效应等^[12,13]. 相较于电荷自由度, 自旋具有方向上的自由度, 因此会出现自旋取向相关的非线性现象. 例如, 出现电荷流为零而自旋流不为零的情况. 另外, 对于磁性材料体系, 自旋波的元激发(磁子)也携带自旋, 磁子的非线性响应也能产生非线性自旋流. 近年来, 通过借鉴非线性电输运的研究方法, 非线性自旋输运现象有了越来越多的研究, 非线性自旋电子学得到了快速发展.

本文将从理论和实验两个方面介绍非线性自旋输运的研究进展, 包括非线性自旋霍尔效应、非线性自旋埃德尔斯斯坦效应、非线性自旋能斯特效应和非线性自旋塞贝克效应等. 不同于线性效应, 这些非线性效应产生的自旋流或自旋极化与外加电场或温度梯度的平方成正比, 为设计非线性自旋电子器件提供了基础. 最后, 我们将展望非线性自旋电子学未来的发展方向, 包括新型材料探索、实验技术的完善以及与其他学科的交叉融合. 非线性自旋电子学作为自旋电子学的一个新兴分支, 具有巨大的发展潜力.

2 非线性自旋流的产生和非线性自旋霍尔效应

自旋流的产生和操控是自旋电子学领域的重要研究方向, 对于发展自旋电子器件具有重要意义. 自旋流通常是指自旋极化的电子在材料中的传播, 它的产生

机制包括自旋霍尔效应、自旋泵浦效应、自旋塞贝克效应和自旋光伏效应等. 寻找更高效的自旋流生成方法一直是自旋电子学领域的重要课题.

自旋霍尔效应是指当电流通过导体时^[14], 由于自旋轨道耦合作用, 自旋向上和向下的电子向相反方向偏转, 从而产生一个垂直于电流方向的自旋流(图1(a))^[15-18]. 自旋霍尔效应产生的自旋流大小与驱动电场成正比, 是一种线性效应. 最近的研究发现一些新的非线性自旋效应, 比如非线性自旋霍尔效应, 可以产生非线性自旋流, 即自旋流大小与外电场的平方成正比^[19,20](图1(b)). 这种非线性行为源于电子在固体中的复杂运动, 包括自旋轨道耦合、贝利曲率和贝利联络等效应的作用. 自旋流可以用来调控磁性材料的磁化方向或磁畴壁运动^[21], 非线性自旋流作用于磁性材料将产生非线性自旋力矩^[22,23], 力矩大小与外加电流的平方成正比.

2014年, 香港大学姚望团队^[24]最早提出利用电场的二阶响应产生非线性自旋流. 他们详细讨论了单层过渡金属二硫化物中费米口袋各向异性导致的非线性自旋流. 这些非线性自旋流大小是电场的偶函数, 意味着交流电场可以通过整流效应产生一个直流自旋流. 对于过渡金属硫化物, 三角翘曲(Trigonal Warping)引起费米口袋各向异性, 并破坏其180°旋转对称性. 由于Ising自旋轨道耦合作用, 它的自旋方向垂直于二维表面, $K(K')$ 能谷处自旋向上和向下的电子能量发生分裂. 当费米能级处于分裂的能带中间时, 不同能谷的电子具有相反的自旋方向^[25]. 研究发现, 非线性自旋流的方向与外加电场的方向有关. 当电场沿着晶体zig-

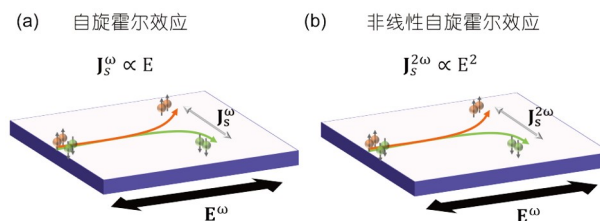


图1 (a) 自旋霍尔效应示意图. (b) 非线性自旋霍尔效应示意图. $\mathbf{E}$ 为外加电场, $\mathbf{J}_s$ 为自旋流. 对于频率为 ω 的交变电场, 非线性自旋霍尔效应产生频率为 2ω 的自旋流

Figure 1 (a) Schematic of the spin Hall effect. (b) Schematic of the nonlinear spin Hall effect. $\mathbf{E}$ represents the external electric field, and $\mathbf{J}_s$ represents the spin current. For an alternating electric field with frequency ω , the nonlinear spin Hall effect generates a spin current with frequency 2ω .

zag方向, 非线性自旋流与电场方向平行; 而当电场沿晶体armchair方向施加时, 非线性自旋流垂直于电场方向. 这不同于传统的自旋霍尔效应, 后者的自旋流方向与外电场方向总是垂直. 该物理机制产生的非线性自旋电导率大小与电子弛豫时间的平方成正比.

2017年, 东京大学Naoto Nagaosa团队^[26]在具有非中心对称和自旋轨道耦合作用的非磁性材料中, 验证了电场二阶响应产生非线性自旋流的普适性. 通过对称性论证, 他们阐明了非线性自旋流在玻尔兹曼输运理论中需要破坏空间反演对称性, 但不需要破坏时间反演对称性. 文章详细讨论了非线性自旋流在三维拓扑绝缘体表面态和具有Rashba或Dresselhaus相互作用的二维半导体中的实现. 在后一种情况下, 通过调节电场的方向和Rashba与Dresselhaus的相对比率, 可以操纵非线性自旋流. 研究发现, 这种机制产生的自旋流的幅度可以大大超过线性方法所能达到的水平, 为自旋流的高效产生提供了一个全新的理论视角. 与过渡金属硫化物的研究结果一致^[24], 该研究发现非线性自旋电导率与电子弛豫时间的平方成正比. 利用非中心对称自旋轨道耦合系统产生非线性自旋流^[27], 将为设计新型自旋器件提供重要的指导. 注意上述两项工作只考虑了能带色散对非线性自旋流的贡献, 没有考虑能带量子几何特性的贡献.

目前实验研究非线性自旋流的报道还很少, 这可能是由于非线性自旋流不容易进行实验探测. 自旋流通常需要转化成电荷流, 产生可测量的电压信号才能进行实验观测^[28]. 对于线性自旋流的研究, 这个过程通常需要在两种材料组成的异质结构中实现(比如非局域自旋注入^[29]、自旋泵浦^[28]和自旋塞贝克^[30]实验中的磁性/重金属薄膜异质结构), 首先在其中一层材料产生自旋流, 自旋流通过界面后在另一层材料中发生逆自旋霍尔效应而转化为电荷流. 此外, 也可以通过研究双层结构的自旋霍尔磁电阻效应^[31,32]和单个材料中的Hanle磁电阻效应^[33]间接探测自旋流的产生.

与线性自旋流的测量方法类似, 非线性自旋流也可以通过磁电阻效应来探测. He等人^[34]首次提出通过非线性磁电阻效应来探测拓扑绝缘体Bi₂Se₃中非线性自旋流的产生. 拓扑绝缘体表面态具有自旋-动量垂直锁定的自旋织构(Spin Texture) (图2(a)). 在外加电场E的作用下, 费米面会发生移动, 此时非平衡态下的电子分布函数可以展开成平衡态时的费米狄拉克分布函数

f_0 与电场的一阶响应函数 δf_1 及二阶响应函数 δf_2 等的和. 在时间反演对称下, δf_1 是波矢 $\mathbf{k}$ 的奇函数, δf_2 是 $\mathbf{k}$ 的偶函数(图2(b)). 由于表面态中 $+\mathbf{k}$ 和 $-\mathbf{k}$ 电子具有相反的能带速度和自旋, 因此电场的二阶响应对应于非线性自旋流 $\mathbf{J}_s(E^2)$ 的产生(图2(c)). 纵向 $\mathbf{J}_s(E^2)$ 沿电场方向, 其自旋极化方向垂直于自旋流. 当进一步施加一个面内磁场时, 磁场和自旋极化能带的塞曼作用, 将原本对称的费米面变得不对称. 同时, 非线性自旋流会部分转化为电荷流 $\mathbf{J}_c(E^2)$ (图2(d)), 从而产生一个非线性电导或非线性磁电阻. 当磁场方向垂直于外加电场方向时, 非线性自旋流受到塞曼能最大, 此时自旋流向电荷流的转化达到最大^[34-36]. He等人^[34]在Bi₂Se₃中观察到了上述非线性磁电阻效应, 它的大小与磁场方向呈现单向角度依赖关系. 并且这种磁电阻效应与电场和磁场都成线性关系, 被命名为“双线性磁电阻”(Bilinear Magnetoelectric Resistance, BMER). BMER效应起源于磁场作用下非线性自旋电流向电荷电流转化. 除BMER外, 自旋相关的非线性磁电输运现象还有单

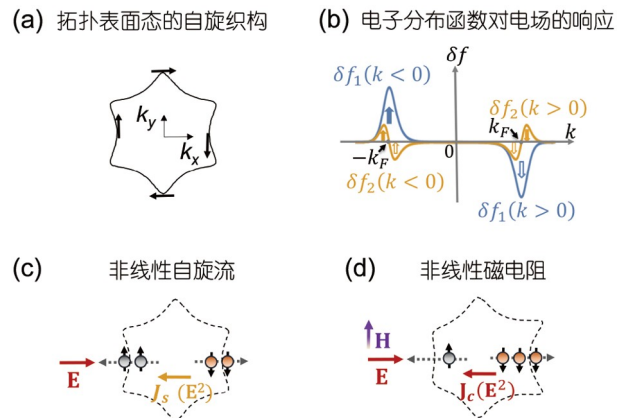


图 2 (a) 六角翘曲拓扑表面态自旋织构示意图. (b) 电子分布函数对电场的一阶 δf_1 和二阶 δf_2 响应函数. (c) 沿外电场方向产生纵向非线性自旋流的示意图. $\mathbf{E}$ 为外加电场, $\mathbf{J}_s$ 为自旋流. (d) 磁场作用下非线性自旋流转化为非线性电荷流 $\mathbf{J}_c$, 产生非线性磁电阻. $\mathbf{B}$ 为外加磁场. 图片取自文献^[34], 已获授权. Copyright©2018, Springer Nature

Figure 2 (a) Schematic of the spin texture on a hexagonal warped topological surface state. (b) First-order (δf_1) and second-order (δf_2) response functions of the electron distribution function to an electric field. (c) Schematic of the longitudinal nonlinear spin current generated along the direction of the external electric field. $\mathbf{E}$ represents the external electric field, and $\mathbf{J}_s$ represents the spin current. (d) Schematic of the nonlinear magnetoresistance effect, where the nonlinear spin current is converted into a nonlinear charge current $\mathbf{J}_c$ under a magnetic field. $\mathbf{B}$ represents the external magnetic field. Reprinted with permission from ref. ^[34]. Copyright©2018, Springer Nature.

向自旋霍尔磁电阻效应^[37], 它在磁性/重金属双层结构中产生, 可以用于两端器件探测磁化方向的翻转.

在拓扑表面态中, 外加电场不仅可以产生纵向非线性自旋流, 也可以在垂直于电场的方向产生横向非线性自旋流(图3(a))^[26,34]. 根据拓扑表面态的自旋织构可知, 横向非线性自旋流的自旋极化方向沿着外电场方向. 因此当我们施加一个面内磁场时, 由于塞曼效应的影响, 该横向非线性自旋流会部分向电荷流转化, 并且在磁场沿电场方向时达到最大. 该非线性电荷流对应于一个非线性霍尔信号(图3(b)), 已被He等人^[38]在Bi₂Se₃中测量到. 它随着磁场方向的变化呈现单向角度依赖关系, 在磁场和电场方向平行时达到最大值. 该非线性平面霍尔效应的大小是BMER的1/3左右, 与理论计算结果相符.

由于晶体对称性不同, 非中心对称自旋轨道耦合材料在动量空间中产生的自旋织构不同. 因此, 非线性自旋流的方向和自旋极化方向之间可以有各种角度关系. 这不同于传统自旋霍尔效应, 后者的自旋流方向和自旋极化方向总是相互垂直的. 前面我们介绍了拓扑表面态的非线性自旋流方向和自旋极化方向是相互垂直的, 这得到了非线性磁阻效应实验的验证^[34]. 手性半导体碲具有Weyl (外尔)型自旋轨道耦合作用, 导致自旋织构呈现类刺猬的形状, 其中自旋与动量方向平行^[39,40]. 因此电场作用下产生的非线性自旋流方向和自旋极化方向相互平行, 从而导致非线性磁电阻在

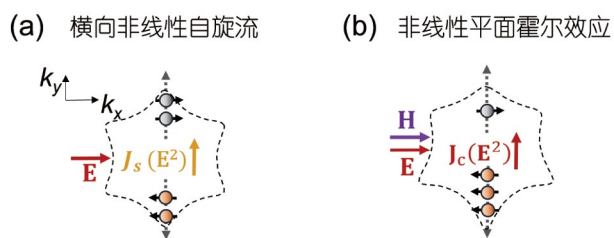


图 3 (a) 在六角翘曲拓扑表面态中, 垂直外电场方向产生的横向非线性自旋流示意图. $\mathbf{E}$ 为外加电场, $\mathbf{J}_s$ 为自旋流. (b) 磁场作用下非线性自旋流转化为非线性电荷流 $\mathbf{J}_c$, 产生非线性平面霍尔效应. $\mathbf{B}$ 为外加磁场. 图片取自文献^[38], 已获授权. Copyright©2019, American Physical Society

Figure 3 (a) Schematic of the transverse nonlinear spin current generated perpendicular to the external electric field in a hexagonal warped topological surface state. $\mathbf{E}$ represents the external electric field, and $\mathbf{J}_s$ represents the spin current. (b) Schematic of the nonlinear planar Hall effect, where the nonlinear spin current is converted into a nonlinear charge current $\mathbf{J}_c$ under a magnetic field. $\mathbf{B}$ represents the external magnetic field. Reprinted with permission from ref. ^[38]. Copyright©2019, American Physical Society.

磁场与电场方向平行时取得最大值, 这一结果最近得到实验的验证^[41]. 另外, 单层MoS₂中具有Ising自旋轨道耦合作用, 自旋方向沿面外. 沿面内任何方向传播的非线性自旋流自旋极化方向都朝面外, 这也得到了非线性磁电阻效应实验的验证, 其在磁场垂直平面时达到最大^[42]. 通过这三个典型材料的非线性磁阻效应可以看到, 磁场与自旋极化的相对方向决定了塞曼效应的大小, 同时决定了自旋流转化为电荷流的大小. 因此可以通过测量非线性磁电阻来探测材料中的非线性自旋流和自旋织构. 这在Rashba二维电子气^[36,43]和外尔半金属TaIrTe₄^[44]等材料中也得到实验验证.

不同于上述非磁性材料中的研究, 东京大学Hayami等人^[19]探讨了PT对称共线反铁磁中的非线性自旋霍尔效应. 他们通过理论分析揭示了在无需自旋轨道耦合、均匀磁化或自旋分裂能带的体系中, 一种新兴的自旋相关贝利曲率偶极子可以产生非线性自旋霍尔效应, 它在反铁磁序下由有效的自旋相关跃迁诱导产生. 与前文的二次方关系不同, 该非线性自旋电导率与电子弛豫时间的一次方成正比. 二阶自旋电导张量在16个满足PT对称性的磁性点群中为非零数值. 该研究结果为反铁磁自旋电子学提供了一种不依赖于自旋轨道耦合或自旋分裂能带结构的自旋流产生机制, 然而该机制产生的非线性自旋流目前还没有得到实验探测.

最近, 南洋理工大学Wang等人^[20]提出了一种本征非线性自旋霍尔效应, 其非线性自旋电导率与电子弛豫时间无关. 并且该效应能够产生共线极化自旋电流 (Collinearly-Polarized Spin Current, CPSC), 即自旋极化方向与运动方向共线, 这在传统重金属等自旋霍尔材料中不能产生. 该效应存在于一大类空间反演对称破缺的非磁性材料中, 在21种非中心对称的晶体点群中有18种可以通过本征非线性自旋霍尔效应实现CPSC. 此外, 这18个点群中的9个在线性响应中禁止产生任何CPSC, 从而使非线性自旋霍尔效应对CPSC占主导贡献. 研究团队进一步揭示了该本征非线性霍尔效应的量子起源是贝利联络极化率及其自旋对应量, 可以通过拓扑节点特征得到显著增强. 通过第一性原理计算, 他们定量评估了拓扑金属PbTaSe₂和PdGa的本征非线性自旋霍尔效应, 自旋霍尔角在室温下可达约0.11. 该结果不仅证实了理论预测的可行性, 也为实验上探索非线性自旋霍尔效应提供了具体的材料选

择. 这些新发现为实现无磁场辅助的垂直磁化翻转提供了潜在的材料体系和物理机制, 对于下一代信息存储至关重要.

尽管上述非线性自旋输运研究对时间反演和空间反演对称性已经有了一定的分析, 但仍缺乏系统性理解^[19,20,24,26,45]. 中国科学院大学苏刚团队^[46]最近提供了一个更全面的对称性分析框架. 他们不仅详细分析了非线性响应张量的矩阵表示, 还特别强调了贝利曲率偶极子、贝利联络极化率以及德鲁德项在非线性自旋输运中的作用. 他们的核心贡献在于建立了一个对称性“词典”, 指导大家判断在特定磁性点群下, 非线性自旋响应张量是否存在、是否共存. 此外, 文章还提供了122个磁性点群的全面矩阵表示, 为理解和预测材料中的非线性自旋响应提供了宝贵的理论基础.

非线性自旋流的产生是自旋电子学的一个新兴研究方向, 对于非线性自旋电子器件的开发具有重要意义. 由于对称性的限制, 线性自旋流在某些晶体材料中被禁止, 非线性自旋流将成为主导. 不同于传统的自旋霍尔效应, 非线性自旋流的方向可以与电场方向成各种角度关系. 此外, 二阶非线性自旋流的方向不随外电场方向反向而变化. 利用二阶非线性自旋流的独特性质, 可以通过交变电场(如太赫兹光)的自旋整流效应产生自旋流, 为超快操纵自旋流铺平道路. 已报道的非线性自旋流产生机制有能带色散导致的德鲁德项、自旋相关贝利曲率偶极子和贝利联络极化率, 它们都需要材料破坏空间反演对称. 这些不同机制贡献的非线性自旋电导与电子弛豫时间有不同的幂次方关系. 因此, 可以通过变温的实验数据将它们区分开来. 类比线性自旋霍尔效应的贡献机制, 杂质散射对非线性自旋霍尔效应也有贡献, 但目前还没有相关报道. 高于二阶的非线性霍尔效应最近已经有一些研究^[47,48], 而高于二阶的非线性自旋霍尔效应还没有相关研究. 目前非线性自旋流的研究主要集中在理论工作, 实验研究还很少^[23].

3 非线性电流诱导自旋极化(非线性自旋Edelstein效应)

电流诱导自旋极化(Current Induced Spin Polarization, CISP)是自旋电子学领域的另一个重要概念^[49,50], 因在磁性调控中的潜在应用而受到广泛关注^[21]. 传统

CISP主要关注于线性响应, 自旋极化 δs 与电流成正比(图4(a)), 存在于非中心对称材料中. CISP可以对磁化强度产生力矩的作用甚至导致磁化翻转. 近年来, 非线性电流诱导自旋极化(Nonlinear Current Induced Spin Polarization, N-CISP)因其在中心对称材料中的显著效应而成为研究热点. N-CISP指材料内部产生的自旋极化与电流的平方成正比, 因此它不随电场反向而改变符号, 如图4(b)所示. N-CISP作为非线性自旋电子学领域的一个重要方向, 受到了越来越多的关注. N-CISP可以在磁性材料中诱导出非线性自旋轨道转矩^[22].

在中心对称的磁性材料中, 线性CISP被严格禁止, 这限制了电场控制自旋. 为了克服这一限制, Xiao等人^[51]提出了一种本征非线性电场诱导自旋极化效应, δs 正比于电场的二次方, 并且时间反演会导致自旋极化改变符号, 具有时间反演奇函数的特性(图5(a)). 他们通过理论分析揭示这种非线性自旋极化效应起源于能带几何特性. 对于绝缘体, 非线性响应张量与布洛赫电子的电极化密切相关, 可以通过动量空间的贝利联络极化率来表达, 与电子弛豫时间无关. 他们预测单层 MnBi_2Te_4 中存在可观的非线性自旋极化, 可以在实验中被检测到. 他们还详细分析了非线性响应张量的对称性属性, 指出了这种效应存在于传统铁磁体(Fe, Ni和Co)、二维中心对称磁体(1T-MnSe₂, CrI₃和1T-

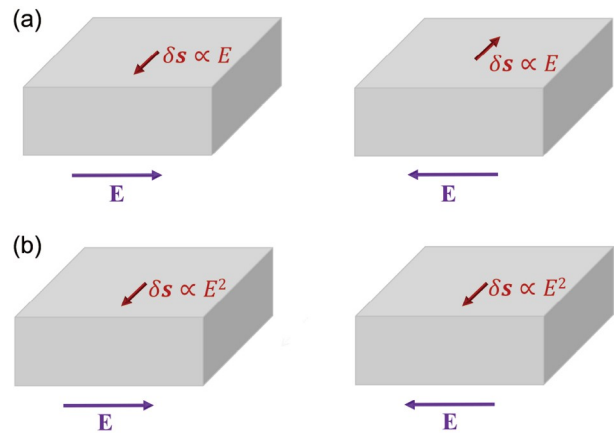


图 4 (a) 电流诱导自旋极化示意图. $\mathbf{E}$ 为外加电场, δs 为电场诱导的自旋极化, 它随电场反向而改变符号. (b) 非线性电流诱导自旋极化示意图. δs 不随电场反向而改变

Figure 4 (a) Schematic of the linear spin polarization induced by an electric current $\mathbf{E}$, where the spin polarization δs reverses sign with the reversal of electric field. (b) Schematic of the nonlinear spin polarization induced by an electric current, where the spin polarization δs does not reverse sign with the reversal of electric field.

VS₂)和中心对称反铁磁体(MnF₂和RuO₂). 该工作为非线性自旋电子学领域提供了新的理论基础, 为实验研究和器件应用提供了新的方向.

对于中心对称性的非磁性材料, 线性CISP也是严格禁止的. 在之前的理论上, Xiao等人^[52]提出了一种在中心对称非磁性材料中占主导地位的CISP效应, 该效应来源于电场的二阶响应. 不同于前面介绍的时间反演奇的N-CISP^[51], 这是一种时间反演偶的N-CISP产生机制(图5(b)), 可以在11个中心对称点群中的10个存在, 这意味着该效应在广泛的材料中占主导地位. 文章揭示了该效应的量子起源来自动量空间中反常自旋极化偶极子, 类同于非线性霍尔效应来源于贝利曲率偶极子^[53], 与电子弛豫时间成正比. 第一性原理计算预测了六方晶系非磁性金属、单层TiTe₂和铁磁单层MnSe₂中具有大小可观的N-CISP, 可以在实验中检测到. 在中心对称的磁性材料中, 既可以产生时间反演奇的N-CISP, 也可以产生时间反演偶的N-CISP, 但是它们的自旋极化方向不一样, 因此可以在实验中区分开. 该研究在空间反演对称的材料中提供了一种电流调控自旋的新机制, 为非磁性和磁性系统中的非线性自旋电子学发展开辟了新的道路.

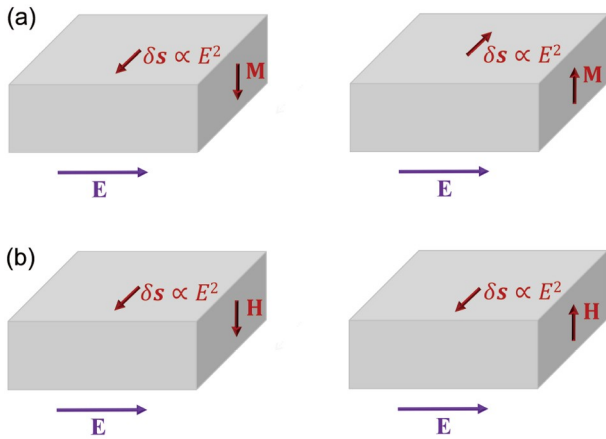


图 5 (a) 时间反演奇的非线性自旋极化示意图. $\mathbf{E}$ 为外加电场, $\mathbf{M}$ 为磁化强度方向, $\delta\mathbf{s}$ 为电场诱导的非线性自旋极化, 它随 $\mathbf{M}$ 反向而改变符号. (b) 时间反演偶的非线性自旋极化示意图. $\delta\mathbf{s}$ 不随时间反演而改变. 时间反演用磁场 $\mathbf{H}$ 方向反向代表

Figure 5 (a) Schematic of time-reversal odd nonlinear spin polarization. $\mathbf{E}$ represents the applied electric field, $\mathbf{M}$ represents the magnetization direction, and $\delta\mathbf{s}$ represents the nonlinear spin polarization induced by the electric field, which changes sign with the reversal of $\mathbf{M}$. (b) Schematic of time-reversal even nonlinear spin polarization. $\delta\mathbf{s}$ does not change sign under time reversal. Time reversal is represented by the reversal of the magnetic field $\mathbf{H}$.

上述N-CISP来源于贝利联络极化率^[51]和反常自旋极化偶极子^[52]等与能带几何特性有关的内禀机制, 而由无序诱导的外在机制尚未被研究. 最近, 北京师范大学Guo等人^[54]推导了外在机制的贡献, 包括由斜散射和坐标位移引起的异常分布函数, 以及由无序诱导的自旋位移(Spin Shift)和电场诱导的异常散射振幅给出的带间相干效应. 他们的研究展示这些外在贡献和本征机制一样重要, 并且贡献相同数量级大小的N-CISP. 同时, 他们构建了一个关于N-CISP的标度律, 这有助于未来分析实验数据.

在中心对称材料中通过非线性机制产生自旋极化的效应, 也可以被称为非线性自旋埃德尔斯坦效应(Nonlinear Spin Edelstein Effect, NSEE)^[55]. 它不同于传统Rashba-Edelstein效应^[49], 这是因为中心对称系统禁止Rashba自旋轨道耦合. 值得注意的是, Xiao等人^[52]用于阐明NSEE起源的哈密顿模型虽然具有全局反演对称性, 但反演对称性在局部被破坏(具有隐藏的Rashba耦合). 当局部反演对称性恢复时, 模型的NSEE消失, 因此该模型不能为NSEE的普遍存在提供解释. 为了突破这一限制并理解真正中心对称系统中的NSEE, 需要超越自旋自由度. 为此, Baek等人^[55]选择了一个全局和局部都有中心对称的系统, 研究非线性自旋极化产生过程中轨道自由度的作用. 通过紧束缚模型和密度泛函理论计算, 他们证明了非线性轨道埃德尔斯坦效应(Nonlinear Orbital Edelstein Effect, NOEE)可以在没有自旋轨道耦合的情况下独立产生. 相反, 非线性自旋极化需要通过自旋轨道耦合才能产生, 在零自旋轨道耦合极限下消失. 他们的研究表明, 轨道自由度对于中心对称系统中的NSEE是至关重要的. NOEE首先出现, 然后通过自旋轨道耦合诱导NSEE. 该工作首次将NSEE拓展到NOEE, 阐明了轨道自由度在NSEE中的关键作用. 最近, 人们逐渐认识到轨道动力学在自旋动力学中起着关键作用^[56–58]. 在具有时间反演对称的中心对称系统中, 只有轨道可以表现出非平凡的动力学, 自旋动力学由轨道动力学通过自旋轨道耦合诱导产生.

二阶NOEE可以被直观地理解成: 当施加电场 E_x 时, 它生成一个动量依赖的轨道角动量, 从而将中心对称系统转换为具有轨道Rashba效应的等效非中心对称系统; 然后, 另一个电场 E_y 在等效的轨道Rashba系统中诱导轨道埃德尔斯坦效应. 值得一提的是, 线性自旋

霍尔效应产生的自旋流极化方向与由NSEE产生的自旋极化方向通常不同. 这提高了利用NSEE实现无辅助场电流诱导磁化翻转的可能性. 另外, 除了静电场可以诱导自旋极化外, 光场也可以通过非线性效应诱导自旋极化^[59], 它同样不受空间反演对称性和时间反演对称性的限制^[60]. 光场驱动的NSEE具有非接触、非侵入性和超快等优点, 有望在超快自旋电子学等领域得到应用.

在自旋电子学领域, CISP是实现电控自旋自由度的核心效应. 以往的研究集中在线性CISP上, 通常出现在反演对称性破缺的系统中. 本节列举了产生非线性CISP的物理机制, 它们可以在中心反演对称的材料中实现, 为探索新的自旋电子器件打开了大门. 目前非线性CISP的研究还缺少实验报道, 有望通过测量非线性自旋轨道力矩来进行探测^[22].

4 非线性自旋能斯特效应

除了电场驱动的自旋输运现象外, 热驱动的自旋输运现象也吸引了很多关注. 自旋热电子学(Spin Caloritronics)结合了自旋电子学和热电学的概念, 研究自旋极化电流和热流之间的相互作用. 典型的自旋热电子学效应有自旋能斯特效应和自旋塞贝克效应^[61]. 自旋能斯特效应指在非磁性材料中施加纵向温度梯度 ∇T_x 的情况下, 在自旋轨道耦合和热力学力的共同作用下, 产生横向的自旋流 J_y^s , 如图6(a)所示^[62]. 自旋能斯特效应与自旋霍尔效应相似, 前者通过温度梯度驱动产生自旋电流, 后者通过电场驱动自旋电流. 自旋能斯特效应的存在使得我们可以利用热能来产生自旋流, 揭示了热流与自旋流之间紧密的联系. 自旋能斯特效应在2008年首次被理论预言^[63], 之后在多种材料中被成功观测到^[64-67]. 这些发现为研究材料的自旋特性开辟了新的途径, 也为自旋热电子学这一新兴领域的发展奠定了基础. 磁性材料存在固有磁矩, 自旋相反的电子数目并不相同, 温度梯度驱动的横向自旋流伴随有净电荷流, 因此可以测到一个霍尔电压信号, 这导致反常能斯特效应^[68], 如图6(b)所示. 反常能斯特效应和自旋能斯特效应是两个密切相关的自旋热电效应.

在传统自旋能斯特效应中, 自旋流与温度梯度呈

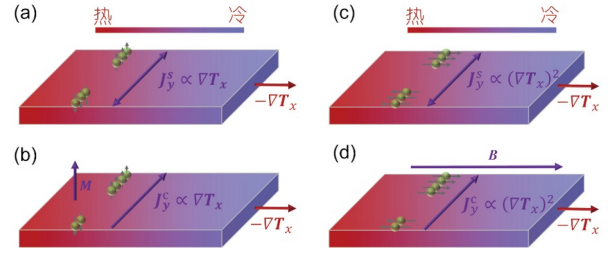


图 6 (a) 自旋能斯特效应. 在强自旋耦合的非磁性材料系统中, 沿纵向施加的温度梯度 ∇T_x 将在横向产生自旋流 J_y^s , 通常自旋极化方向与温度梯度方向和自旋流方向相互垂直. (b) 反常能斯特效应. 对于磁性材料, 由于净磁矩 $\mathbf{M}$ 的影响, 自旋向上和自旋向下的电子数目不相等, 导致自旋流中伴有净电荷流 J_y^c . (c) 非线性自旋能斯特效应. 在自旋与动量垂直锁定且空间反演对称破缺的拓扑绝缘体中, 温度梯度在横向产生非线性自旋流. 非线性自旋流与温度梯度的平方呈正比关系. (d) 非线性平面能斯特效应. 由于塞曼效应, 平面磁场将非线性自旋流部分转化为电荷流

Figure 6 (a) Spin Nernst effect. In non-magnetic materials with strong spin-orbit coupling, a longitudinal temperature gradient ∇T_x will induce a transverse spin current J_y^s , where the spin polarization direction is typically perpendicular to both the temperature gradient and the spin current direction. (b) Anomalous Nernst effect. In magnetic materials, due to the influence of the net magnetization $\mathbf{M}$, the number of up-spin and down-spin electrons is unequal, leading to a net charge current J_y^c accompanying the spin current. (c) Nonlinear spin Nernst effect. In topological insulators with perpendicular spin-momentum locking and broken spatial inversion symmetry, a temperature gradient generates a nonlinear transverse spin current. This nonlinear spin current is proportional to the square of the temperature gradient. (d) Nonlinear planar Nernst effect. Due to the Zeeman effect, a planar magnetic field partially converts the nonlinear spin current into a charge current.

线性关系: $J^s = \alpha \nabla T$, 其中 α 为自旋能斯特系数. 最近, 非线性自旋能斯特效应也开始走进人们的视野. 非线性自旋能斯特效应产生的自旋流不再与温度梯度呈现简单的线性关系, 而是与它的高阶项有关. 其中, 二阶非线性自旋能斯特效应产生的自旋流与温度梯度的平方成正比, 即 $J^s = \beta (\nabla T)^2$, β 为非线性自旋能斯特系数. 与线性自旋能斯特效应不同, 二阶非线性自旋能斯特效应的产生需要材料破缺空间反演对称性. 2019年, 中国科学院大学苏刚教授团队^[69]首次在拓扑绝缘体(Bi_2Te_3)中理论预言了一种非线性自旋能斯特效应, 它产生的自旋流垂直于温度梯度方向, 并与温度梯度呈二次方关系, 如图6(c)所示. 该非线性自旋能斯特效应来源于拓扑表面态的六角翘曲效应对温度梯度二阶响应的非平衡电子分布函数两者的共同作用. 如果进一步对 Bi_2Te_3 施加一个面内磁场, 此时体系会获得的

一个非线性能斯特电荷流, 即非线性平面能斯特效应. 能斯特电流的大小与磁场呈线性关系, 与温度梯度的平方成正比, 并且随磁场相对于温度梯度方向的夹角变化而呈现余弦函数关系. 此效应的物理图像为温度梯度产生的非线性横向自旋流在磁场作用下由于塞曼效应部分转化为电荷流, 如图6(d)所示. 可以预见, 该非线性自旋能斯特效应以及磁场诱导的非线性能斯特效应可以在非中心对称的强自旋轨道耦合材料中广泛存在. 进一步, 2022年, 姚裕贵课题组^[70]在不打破时间反演对称性的情况下, 同样在拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 中, 借助能带倾斜导致的非对称狄拉克锥产生了非线性自旋能斯特电流, 同时伴随非线性电荷流的产生. 经计算, 这种基于能带倾斜产生的非线性自旋能斯特效应能够产生接近100%极化的自旋流.

非线性自旋能斯特效应不仅为能斯特效应家族补充了新成员, 而且也热-自旋转换技术提供了新机制, 有望为废热的再利用提供新思路. 参照非线性自旋霍尔效应的研究, 能带几何特性(比如贝利曲率和贝利联络极化率)以及杂质散射也可贡献非线性自旋能斯特效应, 但是目前还没有这些物理机制的相关研究. 非线性自旋能斯特效应的研究仅局限于理论工作中, 急切需要实验工作对理论预言进行验证. 未来, 随着对非线性自旋能斯特效应的深入研究, 相信自旋热电子学领域将会出现更多有趣的结果.

5 非线性磁子自旋能斯特效应

自旋波是磁性材料的集体磁激发行为. 在量子图像中, 自旋波的准粒子被称为磁子. 磁子是一种玻色子, 它们携带量子化的自旋角动量. 磁子对于绝缘磁性材料中的自旋和热量输运至关重要, 由于它不涉及电荷的运动, 因此从根本上避免了焦耳热, 是一种极具潜力的自旋流载体. 在共线反铁磁材料中, 存在两种能量简并的磁子, 它们携带相反的自旋. 这使得许多电子自旋相关的物理现象可以通过磁子来实现. 但磁子是电中性粒子, 不对均匀的电场响应, 而温度梯度和场梯度会与磁子的磁矩耦合, 从而驱动磁子自旋相关输运现象^[71]. 磁子自旋能斯特效应(Magnon Spin Nernst Effect, MSNE)是其中一种磁子自旋相关的输运现象, 是指施加纵向温度梯度导致自旋反向的磁子往相反的方向偏转, 从而产生横向磁子自旋电

流^[72-74], 如图7(a)所示. 在玻色子系统中, 同样存在贝利相位和贝利曲率, 磁子贝利曲率对绝缘体中磁子的横向输运起了关键作用, 是产生MSNE的主要物理机制. 虽然MSNE在具有Dzyaloshinskii-Moriya (DM)相互作用的蜂窝状反铁磁体中被理论预测^[72-74], 但迄今只在 MnPS_3 中有实验研究^[75]. 反铁磁绝缘体中的MSNE与铁磁绝缘体中的磁子霍尔效应(Magnon Hall Effect)^[76]和MSNE^[77]类似, 都涉及温度梯度作用导致横向自旋电流的产生, 都与磁子贝利曲率有关. 相比电子的输运, 绝缘体中磁子输运能量耗散较小, 同时磁子自旋流具有长相干长度. 因此, 研究如何提高热流与磁子自旋流之间的转换效率, 将在能量收集、制冷和磁化状态调控等方面产生重要的应用.

MSNE是线性输运现象, 自旋流与温度梯度成正比关系, 其存在需要DM相互作用或非共线自旋结构. 为了放宽这个限制, 研究者们开始探索了非线性磁子响应. 2022年, 东京大学Kondo和Akagi^[78]首次在共线奈尔反铁磁体中预言非线性磁子自旋能斯特效应(Nonlinear Magnon Spin Nernst Effect, N-MSNE), 其产生的磁子自旋流正比于温度梯度的平方, 如图7(b)所示. 他们通过解玻尔兹曼方程导出非线性磁子自旋能斯特电流的公式, 并发现它可以用扩展的贝利曲率偶极子来描述. 这类比于电子体系中的贝利曲率偶极子,

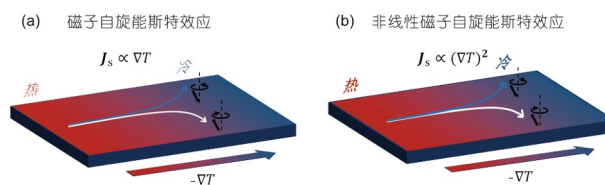


图7 (a) 磁子自旋能斯特效应示意图. 沿纵向的温度梯度驱动不同自旋方向的磁子往相反的方向偏转, 从而产生磁子自旋流, 并且在材料边缘形成自旋积累. 温度梯度为 ∇T , 自旋流为 $\mathbf{J}_s$, 自旋流和温度梯度满足线性关系 $\mathbf{J}_s \propto \nabla T$. (b) 非线性磁子自旋能斯特效应示意图. 非线性磁子自旋流 $\mathbf{J}_s \propto (\nabla T)^2$, 改变温度梯度方向不影响自旋流方向

Figure 7 (a) Schematic of the magnon spin Nernst effect. A longitudinal temperature gradient ∇T drives magnons with different spin directions to deflect in opposite directions, resulting in a magnon spin current $\mathbf{J}_s$. A spin accumulation forms at the material's edges. The spin current $\mathbf{J}_s$ is linearly proportional to the ∇T . (b) Schematic of the nonlinear magnon spin Nernst effect. The nonlinear magnon spin current $\mathbf{J}_s$ is proportional to the square of the temperature gradient $(\nabla T)^2$. The direction of the spin current is unaffected by changing the direction of the temperature gradient.

后者导致的非线性霍尔效应已经被广泛研究^[12,53]. 文章计算了应变蜂窝晶格反铁磁体中磁子的能带结构、贝利曲率和扩展的贝利曲率偶极子. 他们发现, 由于反演和旋转对称性的破坏, 非零的扩展贝利曲率偶极子导致了非线性自旋能斯特电流的产生. N-MSNE预计会发生在其他奈尔反铁磁材料中, 即使没有DM相互作用. 在没有DM的情况下, 线性MSNE不存在. 非线性自旋能斯特电流的方向可以通过调节应变来控制, 为自旋流的调节提供了新的方法. 由于不需要DM作用, N-MSNE为在自旋电子学领域中利用轻元素材料(如有机材料)提供了一种可能的方式. 有机材料容易产生机械变形, 是应力调控自旋流的理想体系.

磁子相关的非线性效应研究才刚刚开始, 实验研究还尚未开展. 通过建立磁子波包的运动方程, 并将其与电子的运动方程进行类比, 可以理解和预测磁子输运的特性^[71]. 除了对温度梯度的非线性响应外, 磁子的非线性光学响应最近也开始有理论研究^[79-81], 研究发现通过圆偏振光和线偏振光都可以激发磁子自旋流. 另外, 研究表明, 磁子对磁场梯度的二阶响应可以产生非线性反常磁子霍尔效应^[71], 它在低对称性反演对称性破缺的亚磁体中存在, 该体系具有磁子相关的贝利曲率偶极子. 上述磁子相关效应都可以产生非线性自旋流. 同时, 最近也有理论研究了磁子相关的非线性热霍尔效应, 磁子具有能量和动量, 它可以在垂直于温度梯度方向产生横向非线性热流^[82,83]. 通常情况下, 电导和热导率之间满足有一定的比例关系, 即Wiedemann-Franz定律. 在磁性绝缘材料中, 最近有理论研究发现磁子贡献的自旋电导和热导在线性响应和非线性响应区域满足不同的Wiedemann-Franz关系^[84]. 未来在实验上确立非线性磁子自旋电导与热导之间的关系对基础研究和应用研究都有重要意义.

另外, 当自旋波的激发振幅较大时, 需要考虑三磁子散射等非线性过程. 在反铁磁系统中, 磁子具有两种自旋态, 同时具有粒子数不守恒的内禀性质. 入射磁子和斯格明子呼吸模之间的相互作用可以诱导三磁子过程, 其散射磁子数和入射磁子数呈现非线性的关系. 最近, 电子科技大学严鹏团队^[85]系统研究了该三磁子过程诱导的磁子非线性拓扑自旋霍尔效应, 揭示了非线性磁子在经过斯格明子时会感受到额外的规范场作用, 产生更大的霍尔角. 该工作已在其他综述文章中有详细介绍^[86], 故不再在此文中赘述.

6 非线性自旋塞贝克效应

自旋塞贝克效应(Spin Seebeck Effect, SSE)是另一种自旋热电子学现象, 指温度梯度驱动纵向自旋流的产生^[87], 如图8(a)所示. SSE产生的自旋流可以从铁磁体注入到近邻的重金属层, 并通过逆自旋霍尔效应(Inverse Spin Hall effect, ISHE)转化为一个横向电压进行探测. 2008年, 日本庆应大学Uchida等人^[30]首次在NiFe/Pt双层膜体系中观测到SSE, 便因其在自旋电子学和热电材料领域的潜在应用而受到广泛关注. 后续SSE在铁磁半导体GaMnAs^[88]和铁磁绝缘体LaY₂Fe₅O₁₂^[89]等体系中得到验证, 并拓展到纵向构型中(图8(b))^[90]. 尽管SSE的研究取得了显著进展, 但都集中在线性响应机制上, 自旋流的大小与温度梯度成正比.

近年来, 非线性自旋塞贝克效应逐渐成为一个新的研究前沿, 纵向自旋流和温度梯度间不再是简单的线性关系. 二阶非线性自旋塞贝克效应会导致自旋流的非互易输运现象, 即方向相反的温度梯度会产生大小不同的自旋流. 在磁性材料中, 空间反演对称性破缺会导致自旋波的不对称色散和非互易传播. 由于自旋波可以携带自旋流, 因此不对称色散可以产生非互易的自旋流(即非线性自旋流). 2018年, Takashima等人^[91]在反演对称性破缺的反铁磁绝缘体中首次预测了非互易自旋塞贝克效应. 他们通过计算极性反铁磁

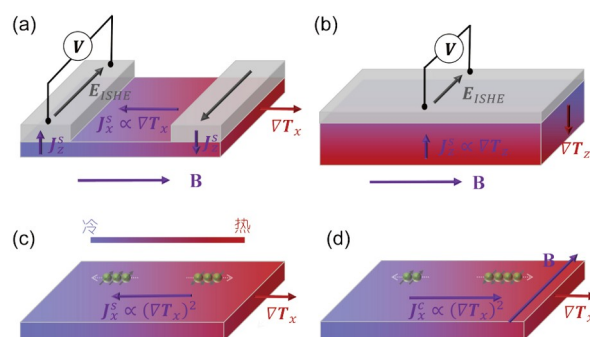


图 8 (a), (b) 横向和纵向自旋塞贝克效应示意图. 下层代表磁性材料, 上层代表重金属材料. ∇T 为温度梯度, $\mathbf{J}_s$ 为自旋流, $\mathbf{B}$ 为磁场. (c) 非线性自旋塞贝克效应, 纵向自旋流 $\mathbf{J}_s$ 正比于 $(\nabla T)^2$. (d) 非线性塞贝克效应, 其中 $\mathbf{J}_c$ 为电荷流

Figure 8 (a), (b) Schematic of transverse and longitudinal spin Seebeck effects. The bottom layer represents a magnetic material, and the top layer represents a heavy metal. ∇T is the temperature gradient, $\mathbf{J}_s$ is the spin current, and $\mathbf{B}$ is the magnetic field. (c) Nonlinear spin Seebeck effect. The longitudinal spin current $\mathbf{J}_s$ is proportional to the square of the temperature gradient $(\nabla T)^2$. (d) Nonlinear Seebeck effect, where $\mathbf{J}_c$ is the charge flow.

体 $\alpha\text{-Cu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ 的非互易自旋塞贝克电压, 发现在极性反铁磁体中, 可以实现完美的非互易性, 即自旋电流仅在一个方向上流动, 而与温度梯度的方向无关. 此时, 线性自旋流被禁止, 只有非线性自旋流产生. 此外, 他们还计算了蜂窝状反铁磁体 MnPS_3 的非互易自旋塞贝克电压, 展示了在非极性中心对称晶体中, 通过反转磁畴的方向可以破坏反铁磁体的空间反演对称性, 从而控制非互易自旋流的方向. 非线性自旋塞贝克效应导致了非互易自旋流, 这种非互易性在空间反演对称或镜面对称的系统中是不允许的.

广义上来说, 沿温度梯度方向产生自旋流的现象都称之为自旋塞贝克效应, 它可以在前文所述的磁性材料中产生, 也可以在非磁性材料中产生. 2023年, 湖南大学喻小琴团队^[92]在具有Rashba自旋轨道耦合作用的非磁性Ge二维电子气中预言了一种非线性自旋塞贝克效应, 自旋流平行于温度梯度方向, 并与温度梯度的二次方成正比关系. 该非线性自旋塞贝克效应来源于自旋-动量垂直锁定的表面电子态和对温度梯度二阶响应的电子分布函数的共同作用. 二阶响应电子分布函数是波矢 $\mathbf{k}$ 的偶函数, 而Rashba二维电子气中 $+\mathbf{k}$ 和 $-\mathbf{k}$ 的电子态具有相反的自旋和能带速度. 因此, 在温度梯度的作用下该体系可以产生一个非零的二阶非线性纵向自旋流, 如图8(c)所示. 进一步施加一个面内磁场, 体系会获得的一个纵向非线性电荷流, 此即非线性塞贝克效应, 如图8(d)所示. 塞贝克电流的大小与磁场呈线性关系, 与温度梯度的平方成正比, 并且随磁场相对于温度梯度方向的夹角变化而呈现正弦函数关系. 该非线性塞贝克效应的物理图像为温度梯度驱动产生的纵向非线性自旋流在磁场作用下由于塞曼效应而转化为电荷流^[34,93]. 它可以用来探测非中心对称自旋轨道耦合材料中的非线性自旋塞贝克效应.

非线性自旋塞贝克效应为自旋-热转换提供了新

的机制, 也为非线性自旋流的产生提供了新思路. 在反铁磁体、拓扑绝缘体和半导体表面等材料中, 非线性自旋塞贝克效应将展现出了独特的物理特性和调控潜力, 还有待实验研究. 随着研究的深入, 非线性自旋塞贝克效应将出现新的物理机制和高效可调的新材料, 未来有望在自旋电子学器件和热电能量转换技术中实现应用.

7 总结与展望

本文介绍了非线性自旋输运现象的产生、探测、调控及其在自旋器件中的应用. 这些现象为深入理解自旋与物质相互作用提供了新的视角. 非线性自旋输运现象的产生机制涉及材料的能带几何特性、自旋轨道耦合和磁性等因素. 非线性自旋电子学研究涵盖了广泛的材料类别, 包括传统铁磁金属、半导体材料、拓扑材料、二维材料和磁性绝缘体等, 在提高自旋器件的效率和实现新的器件功能上具有很大潜力. 非线性效应通常比较小, 研究非线性自旋效应需要采用精密的实验手段. 目前常用的实验方法是电学谐波测量, 通过锁相放大器测量高阶谐波信号来研究非线性自旋输运. 因此开发新的超灵敏自旋探测技术对于非线性自旋电子学的发展至关重要, 与此同时, 寻找具有巨大非线性自旋相关效应的材料更是今后研究的重点. 基于非线性自旋效应可以开发新型的电子器件, 例如自旋逻辑门、自旋存储器和自旋传感器等. 非线性自旋效应也有望模拟人脑的神经网络, 实现类脑计算. 实现这些应用需要大量的基础研究, 目前相关研究还处于起步阶段. 本综述只涉及电荷、自旋、磁子和热对外驱动的非线性输运现象. 值得一提的是, 电子轨道和能谷自由度的非线性输运现象^[94,95]也是一个正在兴起的有趣研究方向.

致谢 感谢复旦大学李静如和张敏对文章的校对.

参考文献

- 1 Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, et al. Spintronics: A spin-based electronics vision for the future. *Science*, 2001, 294: 1488–1495
- 2 Žutić I, Fabian J, Das Sarma S. Spintronics: Fundamentals and applications. *Rev Mod Phys*, 2004, 76: 323–410
- 3 Binasch G, Grünberg P, Saurenbach F, et al. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer

- exchange. *Phys Rev B*, 1989, 39: 4828–4830
- 4 Baibich M N, Broto J M, Fert A, et al. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Phys Rev Lett*, 1988, 61: 2472–2475
 - 5 Rimmler B H, Pal B, Parkin S S P. Non-collinear antiferromagnetic spintronics. *Nat Rev Mater*, 2024, 9
 - 6 Baltz V, Manchon A, Tsoi M, et al. Antiferromagnetic spintronics. *Rev Mod Phys*, 2018, 90: 015005
 - 7 Kim S K, Beach G S D, Lee K J, et al. Ferrimagnetic spintronics. *Nat Mater*, 2022, 21: 24–34
 - 8 Yang S H, Naaman R, Paltiel Y, et al. Chiral spintronics. *Nat Rev Phys*, 2021, 3: 328–343
 - 9 He Q L, Hughes T L, Armitage N P, et al. Topological spintronics and magnetoelectronics. *Nat Mater*, 2022, 21: 15–23
 - 10 Lin X, Yang W, Wang K L, et al. Two-dimensional spintronics for low-power electronics. *Nat Electron*, 2019, 2: 274–283
 - 11 Chumak A V, Vasyuchka V I, Serga A A, et al. Magnon spintronics. *Nat Phys*, 2015, 11: 453–461
 - 12 Du Z Z, Lu H Z, Xie X C. Nonlinear Hall effects. *Nat Rev Phys*, 2021, 3: 744–752
 - 13 Tokura Y, Nagaosa N. Nonreciprocal responses from non-centrosymmetric quantum materials. *Nat Commun*, 2018, 9: 3740
 - 14 Hirsch J E. Spin Hall effect. *Phys Rev Lett*, 1999, 83: 1834–1837
 - 15 Kato Y K, Myers R C, Gossard A C, et al. Observation of the spin Hall effect in semiconductors. *Science*, 2004, 306: 1910–1913
 - 16 Wunderlich J, Kaestner B, Sinova J, et al. Experimental observation of the spin-Hall effect in a two-dimensional spin-orbit coupled semiconductor system. *Phys Rev Lett*, 2005, 94: 047204
 - 17 Wunderlich J, Park B G, Irvine A C, et al. Spin Hall effect transistor. *Science*, 2010, 330: 1801–1804
 - 18 Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, et al. Spin Hall effects. *Rev Mod Phys*, 2015, 87: 1213–1260
 - 19 Hayami S, Yatsushiro M, Kusunose H. Nonlinear spin Hall effect in Pt-symmetric collinear magnets. *Phys Rev B*, 2022, 106: 024405
 - 20 Wang H, Liu H, Feng X, et al. Intrinsic nonlinear spin Hall effect and manipulation of perpendicular magnetization. arXiv: 2407.17867
 - 21 Manchon A, Železný J, Miron I M, et al. Current-induced spin-orbit torques in ferromagnetic and antiferromagnetic systems. *Rev Mod Phys*, 2019, 91: 035004
 - 22 Zhou Y L, Duan H J, Wu Y, et al. Nonlinear antidamping spin-orbit torque originating from intraband transport on the warped surface of a topological insulator. *Phys Rev B*, 2022, 105: 075415
 - 23 Kodama T, Kikuchi N, Chiba T, et al. Direct observation of current-induced nonlinear spin torque in Pt-Py bilayers. *Phys Rev B*, 2024, 109: 214419
 - 24 Yu H, Wu Y, Liu G B, et al. Nonlinear valley and spin currents from Fermi pocket anisotropy in 2D crystals. *Phys Rev Lett*, 2014, 113: 156603
 - 25 Xiao D, Liu G B, Feng W, et al. Coupled spin and valley physics in monolayers of MoS₂ and other group-VI dichalcogenides. *Phys Rev Lett*, 2012, 108: 196802
 - 26 Hamamoto K, Ezawa M, Kim K W, et al. Nonlinear spin current generation in noncentrosymmetric spin-orbit coupled systems. *Phys Rev B*, 2017, 95: 224430
 - 27 Pan A, Marinescu D C. Nonlinear spin-current generation in quantum wells with arbitrary rashba-dresselhaus spin-orbit interactions. *Phys Rev B*, 2019, 99: 245204
 - 28 Saitoh E, Ueda M, Miyajima H, et al. Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 182509
 - 29 Seki T, Hasegawa Y, Mitani S, et al. Giant spin Hall effect in perpendicularly spin-polarized FePt/Au devices. *Nat Mater*, 2008, 7: 125–129
 - 30 Uchida K, Takahashi S, Harii K, et al. Observation of the spin Seebeck effect. *Nature*, 2008, 455: 778–781
 - 31 Nakayama H, Althammer M, Chen Y T, et al. Spin Hall magnetoresistance induced by a nonequilibrium proximity effect. *Phys Rev Lett*, 2013, 110: 206601
 - 32 Kim J, Sheng P, Takahashi S, et al. Spin Hall magnetoresistance in metallic bilayers. *Phys Rev Lett*, 2016, 116: 097201
 - 33 Vélez S, Golovach V N, Bedoya-Pinto A, et al. Hanle magnetoresistance in thin metal films with strong spin-orbit coupling. *Phys Rev Lett*, 2016, 116: 016603
 - 34 He P, Zhang S S L, Zhu D, et al. Bilinear magnetoelectric resistance as a probe of three-dimensional spin texture in topological surface states. *Nat Phys*, 2018, 14: 495–499
 - 35 He P, Hsu C H, Shi S, et al. Nonlinear magnetotransport shaped by Fermi surface topology and convexity. *Nat Commun*, 2019, 10: 1290
 - 36 He P, Walker S M K, Zhang S S L, et al. Observation of out-of-plane spin texture in a SrTiO₃(111) two-dimensional electron gas. *Phys Rev Lett*, 2018, 120: 266802

- 37 Avci C O, Garello K, Ghosh A, et al. Unidirectional spin Hall magnetoresistance in ferromagnet/normal metal bilayers. *Nat Phys*, 2015, 11: 570–575
- 38 He P, Zhang S S L, Zhu D, et al. Nonlinear planar Hall effect. *Phys Rev Lett*, 2019, 123: 016801
- 39 Gatti G, Gosálbez-Martínez D, Tsirkin S S, et al. Radial spin texture of the Weyl Fermions in chiral tellurium. *Phys Rev Lett*, 2020, 125: 216402
- 40 Sakano M, Hirayama M, Takahashi T, et al. Radial spin texture in elemental tellurium with chiral crystal structure. *Phys Rev Lett*, 2020, 124: 136404
- 41 Calavalle F, Suárez-Rodríguez M, Martín-García B, et al. Gate-tuneable and chirality-dependent charge-to-spin conversion in tellurium nanowires. *Nat Mater*, 2022, 21: 526–532
- 42 Wakatsuki R, Saito Y, Hoshino S, et al. Nonreciprocal charge transport in noncentrosymmetric superconductors. *Sci Adv*, 2017, 3: e1602390
- 43 Choe D, Jin M J, Kim S I, et al. Gate-tunable giant nonreciprocal charge transport in noncentrosymmetric oxide interfaces. *Nat Commun*, 2019, 10: 4510
- 44 Liu Y, Shi G, Kumar D, et al. Field-free switching of perpendicular magnetization at room temperature using out-of-plane spins from TaIrTe_4 . *Nat Electron*, 2023, 6: 732–738
- 45 Zhang Z F, Zhu Z G, Su G. Theory of nonlinear response for charge and spin currents. *Phys Rev B*, 2021, 104: 115140
- 46 Zhang Z F, Zhu Z G, Su G. Symmetry dictionary on charge and spin nonlinear responses for all magnetic point groups with nontrivial topological nature. *Natl Sci Rev*, 2023, 10: nwad104
- 47 Lai S, Liu H, Zhang Z, et al. Third-order nonlinear Hall effect induced by the berry-connection polarizability tensor. *Nat Nanotechnol*, 2021, 16: 869–873
- 48 He P, Isobe H, Koon G K W, et al. Third-order nonlinear Hall effect in a quantum Hall system. *Nat Nanotechnol*, 2024, 19: 1460–1465
- 49 Edelstein V M. Spin polarization of conduction electrons induced by electric current in two-dimensional asymmetric electron systems. *Solid State Commun*, 1990, 73: 233–235
- 50 Kato Y K, Myers R C, Gossard A C, et al. Current-induced spin polarization in strained semiconductors. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 176601
- 51 Xiao C, Liu H, Wu W, et al. Intrinsic nonlinear electric spin generation in centrosymmetric magnets. *Phys Rev Lett*, 2022, 129: 086602
- 52 Xiao C, Wu W, Wang H, et al. Time-reversal-even nonlinear current induced spin polarization. *Phys Rev Lett*, 2023, 130: 166302
- 53 Sodemann I, Fu L. Quantum nonlinear Hall effect induced by berry curvature dipole in time-reversal invariant materials. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 216806
- 54 Guo R, Huang Y X, Yang X, et al. Extrinsic contribution to nonlinear current induced spin polarization. *Phys Rev B*, 2024, 109: 235413
- 55 Baek I, Han S, Cheon S, et al. Nonlinear orbital and spin Edelstein effect in centrosymmetric metals. *npj Spintron*, 2024, 2: 33
- 56 Go D, Jo D, Kim C, et al. Intrinsic spin and orbital Hall effects from orbital texture. *Phys Rev Lett*, 2018, 121: 086602
- 57 Go D, Jo D, Lee H W, et al. Orbitronics: Orbital currents in solids. *Europhys Lett*, 2021, 135: 37001
- 58 Park S R, Kim C H, Yu J, et al. Orbital-angular-momentum based origin of rashba-type surface band splitting. *Phys Rev Lett*, 2011, 107: 156803
- 59 Berritta M, Mondal R, Carva K, et al. *Ab initio* theory of coherent laser-induced magnetization in metals. *Phys Rev Lett*, 2016, 117: 137203
- 60 Xu H, Zhou J, Wang H, et al. Light-induced static magnetization: Nonlinear Edelstein effect. *Phys Rev B*, 2021, 103: 205417
- 61 Bauer G E W, Saitoh E, van Wees B J. Spin caloritronics. *Nat Mater*, 2012, 11: 391–399
- 62 Bose A, Tulapurkar A A. Recent advances in the spin Nernst effect. *J Magn Magn Mater*, 2019, 491: 165526
- 63 Cheng S, Xing Y, Sun Q, et al. Spin Nernst effect and Nernst effect in two-dimensional electron systems. *Phys Rev B*, 2008, 78: 045302
- 64 Meyer S, Chen Y T, Wimmer S, et al. Observation of the spin Nernst effect. *Nat Mater*, 2017, 16: 977–981
- 65 Sheng P, Sakuraba Y, Lau Y C, et al. The spin Nernst effect in tungsten. *Sci Adv*, 2017, 3: e1701503
- 66 Kim D J, Jeon C Y, Choi J G, et al. Observation of transverse spin Nernst magnetoresistance induced by thermal spin current in ferromagnet/non-magnet bilayers. *Nat Commun*, 2017, 8: 1400
- 67 Bose A, Bhuktare S, Singh H, et al. Direct detection of spin Nernst effect in platinum. *Appl Phys Lett*, 2018, 112: 162401
- 68 Uchida K, Zhou W, Sakuraba Y. Transverse thermoelectric generation using magnetic materials. *Appl Phys Lett*, 2021, 118: 140504
- 69 Yu X Q, Zhu Z G, Su G. Hexagonal warping induced nonlinear planar Nernst effect in nonmagnetic topological insulators. *Phys Rev B*, 2021, 103: 035410
- 70 Zeng C, Yu X Q, Yu Z M, et al. Band tilt induced nonlinear Nernst effect in topological insulators: An efficient generation of high-performance spin polarization. *Phys Rev B*, 2022, 106: L081121

- 71 Mook A, Göbel B, Henk J, et al. Taking an electron-magnon duality shortcut from electron to magnon transport. *Phys Rev B*, 2018, 97: 140401
- 72 Zyuzin V A, Kovalev A A. Magnon spin Nernst effect in antiferromagnets. *Phys Rev Lett*, 2016, 117: 217203
- 73 Cheng R, Okamoto S, Xiao D. Spin Nernst effect of magnons in collinear antiferromagnets. *Phys Rev Lett*, 2016, 117: 217202
- 74 Zhang H, Cheng R. A perspective on magnon spin Nernst effect in antiferromagnets. *Appl Phys Lett*, 2022, 120: 090502
- 75 Shiomi Y, Takashima R, Saitoh E. Experimental evidence consistent with a magnon Nernst effect in the antiferromagnetic insulator MnPS₃. *Phys Rev B*, 2017, 96: 134425
- 76 Onose Y, Ideue T, Katsura H, et al. Observation of the magnon Hall effect. *Science*, 2010, 329: 297–299
- 77 Kovalev A A, Zyuzin V. Spin torque and Nernst effects in Dzyaloshinskii-Moriya ferromagnets. *Phys Rev B*, 2016, 93: 161106
- 78 Kondo H, Akagi Y. Nonlinear magnon spin Nernst effect in antiferromagnets and strain-tunable pure spin current. *Phys Rev Res*, 2022, 4: 013186
- 79 Ishizuka H, Sato M. Theory for shift current of bosons: Photogalvanic spin current in ferrimagnetic and antiferromagnetic insulators. *Phys Rev B*, 2019, 100: 224411
- 80 Proskurin I, Ovchinnikov A S, Kishine J, et al. Excitation of magnon spin photocurrents in antiferromagnetic insulators. *Phys Rev B*, 2018, 98: 134422
- 81 Fujiwara K, Kitamura S, Morimoto T. Nonlinear spin current of photoexcited magnons in collinear antiferromagnets. *Phys Rev B*, 2023, 107: 064403
- 82 Mukherjee R, Verma S, Kundu A. Nonlinear magnon transport in bilayer van der Waals antiferromagnets. *Phys Rev B*, 2023, 107: 245426
- 83 Varshney H, Mukherjee R, Kundu A, et al. Intrinsic nonlinear thermal Hall transport of magnons: A quantum kinetic theory approach. *Phys Rev B*, 2023, 108: 165412
- 84 Nakata K, Ohnuma Y, Kim S K. Violation of the magnonic Wiedemann-Franz law in the strong nonlinear regime. *Phys Rev B*, 2022, 105: 184409
- 85 Jin Z, Yao X, Wang Z, et al. Nonlinear topological magnon spin Hall effect. *Phys Rev Lett*, 2023, 131: 166704
- 86 Jin C Z J Y, Zeng C Z Z, Cao C Y S, et al. Magnon Hall effect. *Acta Phys Sin*, 2024, 73: 017501
- 87 Kikkawa T, Saitoh E. Spin Seebeck effect: Sensitive probe for elementary excitation, spin correlation, transport, magnetic order, and domains in solids. *Annu Rev Condens Matter Phys*, 2023, 14: 129–151
- 88 Jaworski C M, Yang J, Mack S, et al. Observation of the spin-Seebeck effect in a ferromagnetic semiconductor. *Nat Mater*, 2010, 9: 898–903
- 89 Uchida K, Xiao J, Adachi H, et al. Spin Seebeck insulator. *Nat Mater*, 2010, 9: 894–897
- 90 Uchida K, Ishida M, Kikkawa T, et al. Longitudinal spin Seebeck effect: From fundamentals to applications. *J Phys-Condens Matter*, 2014, 26: 343202
- 91 Takashima R, Shiomi Y, Motome Y. Nonreciprocal spin Seebeck effect in antiferromagnets. *Phys Rev B*, 2018, 98: 020401
- 92 Zhu G H, Wu Y L, Wan J L, et al. Unidirectional Seebeck effect from Rashba spin-orbit coupling on the subsurface of Ge(111). *Phys Rev B*, 2023, 107: 115430
- 93 Zhang S S L, Vignale G. Theory of bilinear magneto-electric resistance from topological-insulator surface states. *Proc SPIE*, 2018, 10732: 1073215
- 94 Das K, Ghorai K, Culcer D, et al. Nonlinear valley Hall effect. *Phys Rev Lett*, 2024, 132: 096302
- 95 Yu X Q, Zhu Z G, Su G, et al. Thermally driven pure spin and valley currents via the anomalous Nernst effect in monolayer group-VI dichalcogenides. *Phys Rev Lett*, 2015, 115: 246601

Nonlinear spintronics

HE Pan^{1,2*}, LIU Hao¹, ZHAI JinFeng¹, PAN ChaoYu¹ & SHEN Jian^{1,2,3*}

¹ *Institute for Nanoelectronic Devices and Quantum Computing, Fudan University, Shanghai 200438, China*

² *State Key Laboratory of Surface Physics, Fudan University, Shanghai 200438, China*

³ *Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200438, China*

*Corresponding authors (HE Pan, email: hepan@fudan.edu.cn; SHEN Jian, email: shenj5494@fudan.edu.cn)

Nonlinear spintronics represents an emerging field that combines nonlinear dynamics with spintronics, offering new pathways beyond traditional spin-related effects. Traditional spintronics primarily focuses on the linear response of spin to external stimuli, such as electric fields and temperature gradients. However, nonlinear responses can persist even when linear responses are symmetry-forbidden, offering new opportunities for spintronics development. This article summarizes recent progress in nonlinear spintronics, focusing on several typical nonlinear spin transport phenomena, their physical mechanisms, experimental characterizations, and applications in spintronic devices. We emphasize the importance of these effects and aim to stimulate new research directions. The review begins by discussing the generation and manipulation of spin currents, which are crucial for spintronic devices. It highlights the nonlinear spin Hall effect, where the spin current is proportional to the square of the electric field, contrasting with the linear response in traditional spintronics. The article also covers the nonlinear spin Edelstein effect, where spin polarization is induced by the square of the electric current, and the nonlinear spin Nernst/Seebeck effect, where a temperature gradient drives the generation of nonlinear spin currents. Experimental observations of these effects are still scarce, but theoretical predictions suggest that they can be significant in various materials, including topological insulators and magnetic materials. The review also discusses the role of symmetry in allowing or prohibiting these nonlinear spin responses, providing a framework for predicting materials where these effects might be observed. Furthermore, the article explores the potential of nonlinear spin currents for device applications, such as spin memory devices and logic devices, and their potential for energy conversion and waste heat recovery. It concludes by highlighting the need for further experimental research to validate theoretical predictions and the development of new detection techniques to measure these subtle nonlinear effects. Nonlinear spintronics is a rapidly evolving field with the potential to significantly impact spintronic device performance and functionality. As research in this area progresses, it is expected to unveil new physics and practical applications, further expanding the capabilities of spintronics.

spintronics, nonlinear effect, nonlinear spintronics, spin current, spin caloritronics

PACS: 75.76.+j, 85.75.-d, 85.70.-w, 75.25.-j, 75.30.Ds

doi: [10.1360/SSPMA-2024-0441](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0441)