

07.4

## Спинтронный терагерцевый эмиттер на основе двумерного полупроводникового диселенида вольфрама

© А.М. Буряков<sup>1</sup>, А.В. Горбатова<sup>1</sup>, П.Ю. Авдеев<sup>1</sup>, Н.В. Безвиконный<sup>1</sup>, С.В. Овчаренко<sup>1</sup>,  
А.А. Климов<sup>1</sup>, К.Л. Станкевич<sup>2</sup>, Е.Д. Мишина<sup>1</sup>

<sup>1</sup> МИРЭА — Российский технологический университет, Москва, Россия

<sup>2</sup> Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия

E-mail: buryakov@mirea.ru

Поступило в Редакцию 11 мая 2022 г.

В окончательной редакции 26 июля 2022 г.

Принято к публикации 28 июля 2022 г.

Предложен новый спинтронный эмиттер на основе гетероструктуры Co/WSe<sub>2</sub>. Проведена оценка времен сверхбыстрого размагничивания. Показано, что двумерный интерфейс ферромагнетик/дихалькогенид переходного металла демонстрирует возможную спин-орбитальную связь. Описан возможный механизм генерации терагерцевого (THz) излучения. Демонстрируется зависимость направления поляризации THz-излучения от направления намагниченности.

**Ключевые слова:** спинтронный эмиттер, THz-излучение, двумерные полупроводники, Co/WSe<sub>2</sub>, THz-поляризация.

DOI: 10.21883/PJTF.2022.18.53393.19246

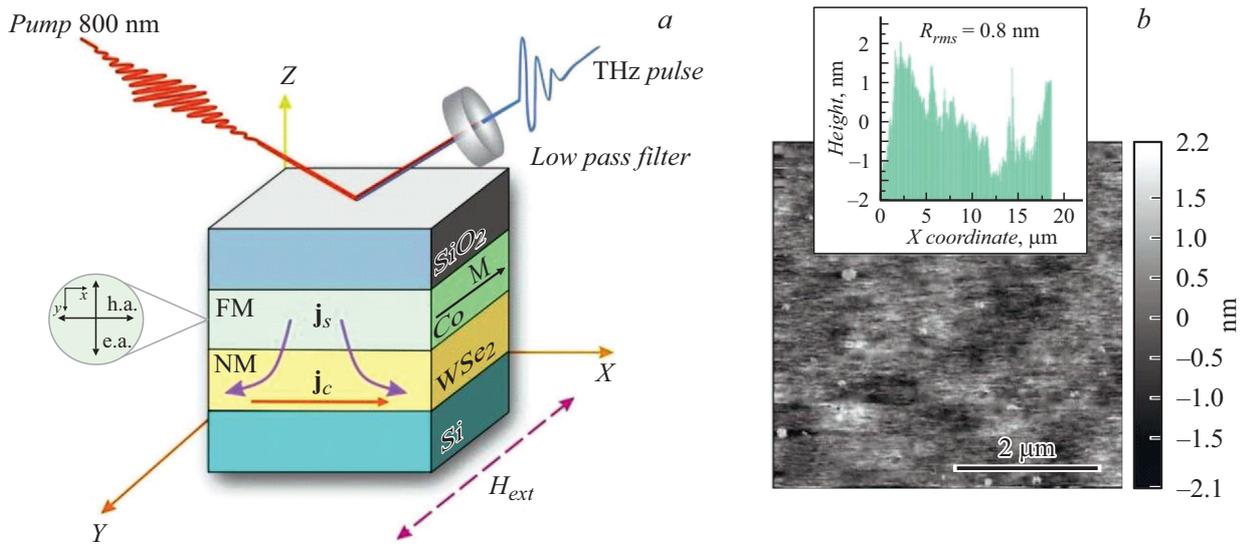
Развитие терагерцевых (THz) технологий привело к возникновению таких перспективных приложений, как неинвазивное тестирование [1], химический анализ [2], беспроводные THz-коммуникации [3,4], медицинская диагностика [5]. Последние достижения на стыке THz-генерации и спинтроники привели к открытию нового класса THz-источников с возможностью управления как спиновыми, так и зарядовыми токами [6,7]. Сегодня металлические спинтронные THz-эмиттеры на основе гетероструктур ферромагнетик (ФМ)/немагнетик (НМ) обладают наибольшим потенциалом среди всех THz-источников [7]. Возникающий в ФМ под действием фемтосекундного лазерного импульса спиновый ток ( $\mathbf{j}_s$ ) распространяется в слое НМ, где из-за обратного спинового эффекта Холла (inverse spin Hall effect, ISHE) преобразуется в поперечный зарядовый ток  $\mathbf{j}_c = \alpha_H \mathbf{j}_s \times \mathbf{M}/|\mathbf{M}|$ , где  $\mathbf{M}$  — намагниченность ФМ,  $\alpha_H$  — угол спин-Холла, характеризующий отклонение электрона [8]. Поле генерируемой THz-волны:  $\mathbf{E}_{\text{THz}}(t) \sim \partial \mathbf{j}_c(t)/\partial t$ . Системы ФМ/полупроводник (ПП) вызывают особый интерес [9–11]. Высокая спиновая поляризация тока может быть достигнута за счет свойств ПП: границу ФМ/ПП проходят лишь электроны с основным спином и энергией, превышающей минимум зоны проводимости ПП, а неосновные электроны подвергаются быстрой термализации.

В настоящей работе представлен спинтронный THz-эмиттер на основе гетероструктуры Co/WSe<sub>2</sub>. Выбор в качестве полупроводника двумерного диселенида вольфрама обусловлен более высоким внутренним спин-орбитальным взаимодействием, обеспечиваемым W в сравнении с Mo [12]. Благодаря этому спиновый ток в полупроводнике в результате спин-орбитальных эф-

фектов преобразуется в зарядовый ток (эффект Рашбы), который также вносит вклад в THz-генерацию наравне с ISHE.

Монослойная пленка диселенида вольфрама (WSe<sub>2</sub>) была выращена методом химического осаждения из газовой фазы на подложке кремния (Six Carbon Technology Co., Ltd.). Размеры образца  $10 \times 10$  mm. Доля покрытой монослоем поверхности образца составляет 95%. Тонкий слой кобальта толщиной 5 nm был нанесен на поверхность WSe<sub>2</sub>/Si методом магнетронного распыления и покрыт защитным слоем SiO<sub>2</sub> толщиной 3 nm. Схематическое изображение образца в системе лабораторных координат представлено на рис. 1, a. Характеризация изготовленной гетероструктуры SiO<sub>2</sub> (3 nm)/Co (5 nm)/WSe<sub>2</sub>/Si проводилась при помощи методики атомно-силовой микроскопии (АСМ). Толщина структуры была подтверждена на эллипсометре (модель ЛЭФ-777). Среднеквадратичная шероховатость поверхности (рис. 1, b) составила  $R_{\text{rms}} \sim 0.8$  nm. Магнитные характеристики измерены методом ферромагнитного резонанса (ФМР) с использованием спектрометра фирмы Bruker на частоте  $\omega/2\pi = 9.74$  GHz при  $T = 300$  K. В результате измерений зарегистрирована линия ФМР  $H_{\text{res}} = 811$  Oe, полуширина  $\Delta H = 325$  Oe. По полученным данным с помощью классической формулы Киттеля для намагничивающего поля была рассчитана намагниченность пленки Co:  $4\pi M = 13\,190$  G.

Параметры THz-эмиссии изучены с помощью стандартной методики THz-спектроскопии с временным разрешением (THz time-domain spectroscopy) в конфигурации „на отражение“. THz-эмиссия возбуждалась линейно поляризованными фемтосекундными лазерными импульсами с длиной волны 800 nm, длительностью

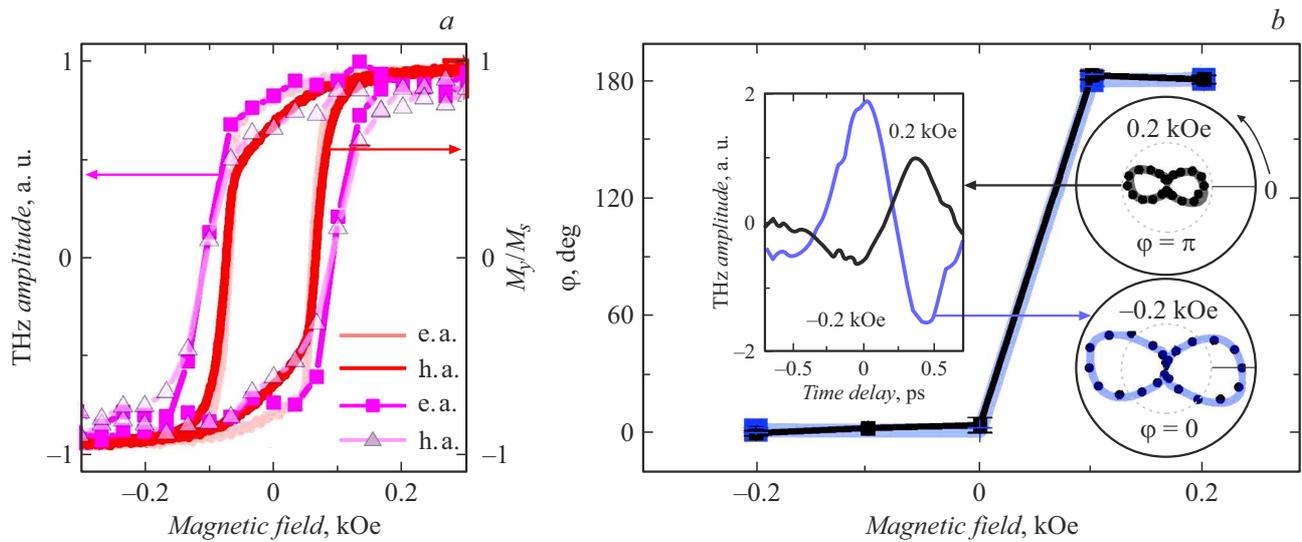


**Рис. 1.** *a* — схематическое изображение образца в системе лабораторных координат (FM — ферромагнетик, NM — немагнетик); *b* — АСМ-изображение поверхности образца.

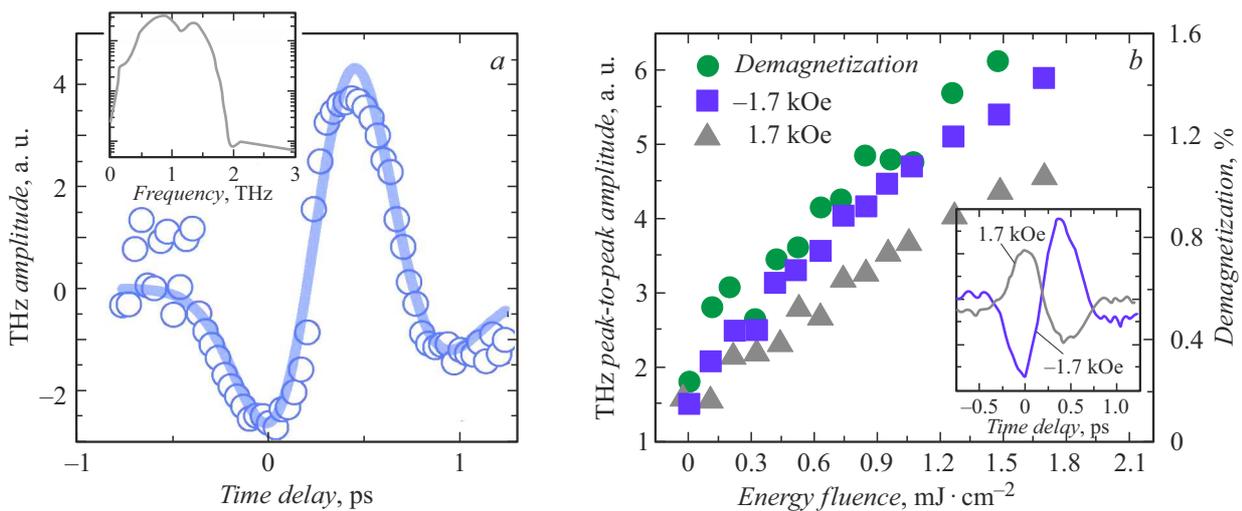
импульсов 35 fs и частотой повторения 3 kHz (титан-сапфировый лазер „Катюша“, Авеста, Россия). Возбуждающий луч падал на поверхность образца под углом  $45^\circ$  к нормали. Максимальная плотность энергии составляла  $1.7 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Подробное описание экспериментальной схемы, а также принципа детектирования THz-излучения с использованием электрооптического кристалла ZnTe изложено в работах [13–15].

Петли гистерезиса амплитуды THz-сигнала и магнитные петли гистерезиса приведены на рис. 2, *a*. Зависимость THz-сигнала от магнитного поля измерялась в точке  $t = 0 \text{ ps}$ . Характерная для Co/WSe<sub>2</sub> временная динамика генерируемых THz-импульсов представлена на вставке к рис. 2, *b*. Магнитное поле прикладывалось параллельно *Y*-оси лабораторной системы координат (рис. 1, *a*), перпендикулярно плоскости падения оптического луча *XZ*. Петли гистерезиса были измерены для двух случаев геометрического расположения образца относительно внешнего магнитного поля: вдоль „легкой“ оси (e.a.) и вдоль „тяжелой“ оси (h.a.). Ранее нами было показано, что кривые намагничивания полностью совпадают с параметрами гистерезиса амплитуды THz-сигнала [15] для структур TbCo/FeCo. Аналогичные результаты были получены авторами работы [16] для структуры Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub> (1.8 nm)/Pt (2 nm). Совпадение параметров петель гистерезиса амплитуды THz-сигнала с петлями намагниченности характерно только для металлических спинтронных THz-эмиттеров, в которых эмиссия THz-волн обусловлена ISHE. Для структуры Co/WSe<sub>2</sub> между кривой намагниченности, изображенной на рис. 2, *a* (линии без символов), и гистерезисом амплитуды THz-сигнала (линии с символами) наблюдается 30% несовпадение по значению коэрцитивного поля. Для гистерезиса амплитуды THz-сигнала коэрцитивное поле составляет около 0.1 kOe, а

для кривой намагниченности — около 0.07 kOe. Наблюдаемый магнитный гистерезис амплитуды THz-сигнала связан с изменением направления намагниченности, тем самым подтверждается спиновая природа THz-генерации в исследуемой структуре. Смена полярности внешнего магнитного поля при переходе из области отрицательного насыщения  $-H_s$  к области положительного насыщения  $+H_s$  сопровождается типичным для спинтронных эмиттеров поворотом THz-поляризации на  $180^\circ$  (вставка к рис. 2, *b*). На рис. 2, *b* приведена зависимость угла поворота плоскости THz-поляризации от прикладываемого внешнего магнитного поля. Угол поворота THz-поляризации получен в результате аппроксимации поляризационных зависимостей размаха амплитуды THz-сигнала (суммы максимального и минимального значений амплитуды THz-сигнала) в соответствии с подходом, подробно описанным в работе [17]. Поляризационные зависимости размаха амплитуды THz-сигнала получены в ходе вращения решетчатого поляризатора, установленного в пути THz-луча между генератором и кристаллом-детектором ZnTe. Типичные поляризационные зависимости THz-сигнала, измеренные в области отрицательного и положительного насыщения, приведены на рис. 2, *b*. Начальное положение на угловых зависимостях (рис. 2, *b*) соответствует поляризации THz-луча, лежащей в плоскости падения *XZ*. Видно, что переход в область положительного насыщения сопровождается поворотом THz-поляризации на  $180^\circ$ . При этом коэрцитивное поле не превышает 0.1 kOe. Кроме того, в работе [18] показано, что амплитуда THz-сигнала, генерируемого тонкими пленками кобальта, достигает пикового значения при толщине  $\sim 40 \text{ nm}$ . Дальнейшее уменьшение толщины пленки кобальта до 5 nm сопровождается падением сигнала на 90% от начального значения. Наличие магнитного гистерезиса и THz-излучения поз-



**Рис. 2.** *a* — петли гистерезиса амплитуды ТГц-сигнала, полученные в точке максимума для времени задержки 0 ps (линии с символами), и гистерезис намагниченности  $M_y(H)$  (линии без символов). *b* — поворот поляризации ТГц-излучения в зависимости от прикладываемого магнитного поля в геометрии h.a.



**Рис. 3.** *a* — временная динамика ТГц-сигнала. На вставке представлен полученный методом Фурье-преобразования частотный спектр ТГц-сигнала. *b* — зависимости размаха амплитуды ТГц-волны и сверхбыстрого размагничивания от плотности энергии возбуждающего лазерного импульса для магнитного поля  $\pm 1.7$  kOe. На вставке приведена динамика ТГц-сигнала в зависимости от полярности прикладываемого магнитного поля, полученная при плотности энергии  $\sim 1.7$  mJ  $\cdot$  cm $^{-2}$ .

воляет говорить об эффектах, возникающих на границе Co/WSe<sub>2</sub>: инъекции спинов из ферромагнитного слоя в полупроводник, обратном спиновом эффекте Холла и эффекте Рашбы.

Генерация ТГц-излучения на спинтронном эмиттере при магнитном поле 1.7 kOe представлена на рис. 3, *a*. Размах амплитуды ТГц-сигнала в случае Co/WSe<sub>2</sub> больше, чем у ранее исследованных нами структур FeCo/TbCo [14]. Как было показано в этой работе, основным механизмом генерации ТГц-излучения в структуре магнитная сверхрешетка/немагнитный металл является обратный спиновый эффект Холла, возникающий из-за

немагнитного проводящего металла. Следует отметить, что данная конфигурация структуры является классической для спинтронных эмиттеров и демонстрирует максимальную эффективность генерации ТГц-излучения. В настоящей работе структура магнетик/полупроводник демонстрирует лучший результат при очевидно меньших значениях проводимости размагничивающего слоя (полупроводник/немагнитный металл). Частотные спектры генерируемых ТГц-сигналов представлены на вставке к рис. 3, *a*. Ширина частотного спектра ограничена спектральным диапазоном чувствительности ZnTe и составляет 3 THz. На рис. 3, *b* представлены зависимости

размаха амплитуды THz-волны от плотности энергии лазерной накачки для магнитного поля  $\pm 1.7$  кОе. Поскольку THz-излучение связано со сверхбыстрым размагничиванием, ожидается связь зависимости величины сверхбыстрого размагничивания и амплитуды THz-излучения от плотности энергии возбуждающего излучения. Если предположить, что импульсы накачки когерентно возбуждают элементарные магнитные диполи в пленке, создавая изменяемую во времени намагниченность, то электрическое поле, излучаемое в дальней зоне, поляризованное в направлении  $x$ , определяется как [19]:

$$E_x(t) = \frac{\mu_0}{4\pi^2 r} \frac{\partial^2 M_x}{\partial t^2} (t - r/c), \quad (1)$$

где  $r$  — расстояние до источника излучения. Для временной зависимости сверхбыстрого размагничивания была использована феноменологическая зависимость [19]:

$$\Delta M(t) = \{-\theta(t)[k_1(1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}})e^{-\frac{t}{\tau_2}} + k_2(1 - e^{-\frac{t}{\tau_2}})]\} \otimes G(t), \quad (2)$$

где  $t$  — время,  $\Delta M(t)$  — зависящее от времени размагничивание,  $\theta(t)$  — функция Хевисайда,  $k_1$  и  $k_2$  — константы, определяющие амплитуду сверхбыстрого размагничивания,  $\tau_1$  и  $\tau_2$  — время размагничивания и время релаксации намагниченности к исходному состоянию,  $G(t)$  — функция Гаусса.

Пример аппроксимированной временной зависимости амплитуды THz-излучения для плотности энергии возбуждающего излучения  $1.7 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$  представлен на рис. 3, а. Увеличение эффективности генерации представленного спинтронного эмиттера относительно эффективности генерации спинтронного эмиттера, созданного путем эксфолиации слоев дихалькогенида переходного металла (ДПМ) на поверхности кобальта [20], составило 14%. Сравнение THz-сигналов осуществлялось путем нормировки каждого спинтронного эмиттера на референсный сигнал с пленки InGaAs.

В результате аппроксимации экспериментальных временных зависимостей выражением (1) была получена временная форма сверхбыстрого размагничивания  $M(t)$  для всех измеряемых плотностей энергии накачки. Далее исходя из  $M(t)$  была определена максимальная величина размагничивания (рис. 3, б, правая шкала). Временная константа  $\tau_1$ , полученная из временных зависимостей сверхбыстрого размагничивания для Co/WSe<sub>2</sub>, находится в диапазоне 10–40 fs. Исследования динамики намагниченности пленок Co без полупроводника или немагнитного металла демонстрируют значительно большие времена размагничивания [21]. Более того, в работе [22] время размагничивания для бислоя ферромагнетик/ДПМ сравнимо с полученными в настоящей работе результатами. Уменьшение времени, вероятнее всего, подтверждает эффект сильной спин-орбитальной связи, возникающей на интерфейсе ферромагнетик/ДПМ [22]. Результат показывает, что сверхбыстрое размагничивание является доминирующим механизмом THz-излучения.

Максимальная величина сверхбыстрого размагничивания достигает 1.5%.

Таким образом, в работе предложен технологически простой метод создания спинтронного эмиттера на основе гетероструктуры ферромагнетик/полупроводник. Показано, что магнитное поле позволяет переключать плоскость поляризации THz-волны между 0 и 180°. Для предложенного нами эмиттера показано эффективное переключение поляризации при значении коэрцитивного поля, не превышающем 0.1 кОе. Генерация THz-излучения в спинтронном эмиттере на основе Co/WSe<sub>2</sub> описана как излучение зависящего от времени магнитного диполя. Значения характерных времен сверхбыстрого размагничивания подтверждают влияние монослоя WSe<sub>2</sub> на параметры THz-излучения.

### Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 21-79-10353 (<https://rscf.ru/project/21-79-10353/>).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] S. Zhong, *Front. Mech. Eng.*, **14**, 273 (2019). DOI: 10.1007/S11465-018-0495-9
- [2] M. Seo, H.R. Park, *Adv. Opt. Mater.*, **8**, 1900662 (2020). DOI: 10.1002/ADOM.201900662
- [3] J.F. O'Hara, S. Ekin, W. Choi, I. Song, *Technologies*, **7**, 43 (2019). DOI: 10.3390/TECHNOLOGIES7020043
- [4] Б.М. Данешманд, *Russ. Technol. J.*, **9** (5), 14 (2021). DOI: 10.32362/2500-316X-2021-9-5-14-25
- [5] L. Yu, L. Hao, T. Meiqiong, H. Jiaqi, L. Wei, D. Jinying, C. Xueping, F. Weiling, Z. Yang, *RSC Adv.*, **9**, 9354 (2019). DOI: 10.1039/C8RA10605C
- [6] А.Р. Сафин, Е.Е. Козлова, Д.В. Калябин, С.А. Никитов, *Письма в ЖТФ*, **47** (16), 20 (2021). DOI: 10.21883/PJTF.2021.16.51323.18840 [A.R. Safin, E.E. Kozlova, D.V. Kalyabin, S.A. Nikitov, *Tech. Phys. Lett.*, **47**, 814 (2021). DOI: 10.1134/S1063785021080241].
- [7] C. Bull, S.M. Hewett, R. Ji, C.H. Lin, T. Thomson, D.M. Graham, P.W. Nutter, *APL Mater.*, **9**, 090701 (2021). DOI: 10.1063/5.0057511
- [8] T. Kampfthath, M. Battiato, P. Maldonado, G. Eilers, J. Nötzold, S. Mährlein, V. Zbarsky, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel, M. Wolf, I. Radu, P.M. Oppeneer, M. Münzenberg, *Nature Nanotechnol.*, **8**, 256 (2013). DOI: 10.1038/NNANO.2013.43
- [9] E. Vetter, M. Biliroglu, D. Seyitliyev, P. Reddy, R. Kirste, Z. Sitar, R. Collazo, K. Gundogdu, D. Sun, *Appl. Phys. Lett.*, **117**, 093502 (2020). DOI: 10.1063/5.0011009
- [10] L. Cheng, X. Wang, W. Yang, J. Chai, M. Yang, M. Chen, Y. Wu, X. Chen, D. Chi, K.E.J. Goh, J.-X. Zhu, H. Sun, S. Wang, J.C.W. Song, M. Battiato, H. Yang, E.E.M. Chia, *Nature Phys.*, **15**, 347 (2019). DOI: 10.1038/s41567-018-0406-3

- [11] M. Chen, Y. Wu, Y. Liu, K. Lee, X. Qiu, P. He, J. Yu, H. Yang, *Adv. Opt. Mater.*, **7**, 201801608 (2019). DOI: 10.1002/ADOM.201801608
- [12] D.W. Latzke, W. Zhang, A. Suslu, T.R. Chang, H. Lin, H.T. Jeng, S. Tongay, J. Wu, A. Bansil, A. Lanzara, *Phys. Rev. B*, **91**, 235202 (2015). DOI: 10.1103/PHYSREVB.91.235202
- [13] D. Khusyainov, A. Guskov, S. Ovcharenko, N. Tiercelin, V. Preobrazhensky, A. Buryakov, A. Sigov, E. Mishina, *Materials*, **14**, 6479 (2021). DOI: 10.3390/MA14216479
- [14] D. Khusyainov, S. Ovcharenko, A. Buryakov, A. Klimov, P. Pernod, V. Nozdrin, E. Mishina, A. Sigov, V. Preobrazhensky, N. Tiercelin, *Phys. Rev. Appl.*, **17**, 044025 (2022). DOI: 10.1103/PhysRevApplied.17.044025
- [15] D. Khusyainov, S. Ovcharenko, M. Gaponov, A. Buryakov, A. Klimov, N. Tiercelin, P. Pernod, V. Nozdrin, E. Mishina, A. Sigov, V. Preobrazhensky, *Sci. Rep.*, **11**, 697 (2021). DOI: 10.1038/S41598-020-80781-5
- [16] P. Agarwal, Y. Yang, J. Lourembam, R. Medwal, M. Battiato, R. Singh, *Appl. Phys. Lett.*, **120**, 161104 (2022). DOI: 10.1063/5.0079989
- [17] Ф.А. Зайнуллин, Д.И. Хусяинов, М.В. Козинцева, А.М. Буряков, *Russ. Technol. J.*, **10** (3), 74 (2022). DOI: 10.32362/2500-316X-2022-10-3-74-84
- [18] N. Kumar, R.W.A. Hendrikx, A.J.L. Adam, P.C.M. Planken, *Opt. Express*, **23**, 14252 (2015). DOI: 10.1364/OE.23.014252
- [19] E. Beaurepaire, G.M. Turner, S.M. Harrel, M.C. Beard, J.-Y. Bigot, C.A. Schmuttenmaer, *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 3465 (2004). DOI: 10.1063/1.1737467
- [20] L. Cheng, Z. Li, D. Zhao, E.E.M. Chia, *APL Mater.*, **9**, 070902 (2021). DOI: 10.1063/5.0051217
- [21] J.Y. Bigot, M. Vomer, L.H.F. Andrade, E. Beaurepaire, *Chem. Phys.*, **318**, 137 (2005). DOI: 10.1016/J.CHEMPHYS.2005.06.016
- [22] G. Wu, Y. Ren, X. He, Y. Zhang, H. Xue, Z. Ji, Q.Y. Jin, Z. Zhang, *Phys. Rev. Appl.*, **13**, 024027 (2020). DOI: 10.1103/PHYSREVAPPLIED.13.024027/FIGURES/7/MEDIUM