## 01,05

# ТНz-излучение в магнитном переходе Fe/Mo

© Е.А. Вилков<sup>1</sup>, С.Г. Чигарев<sup>1</sup>, И.В. Маликов<sup>2</sup>, Л.А. Фомин<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Фрязинский филиал института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Фрязино, Россия

<sup>2</sup> Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов РАН,

Черноголовка, Россия

E-mail: e-vilkov@yandex.ru

Поступила в Редакцию 9 апреля 2021 г. В окончательной редакции 9 апреля 2021 г. Принята к публикации 19 апреля 2021 г.

Исследовано THz-излучение в магнитном переходе Fe/Mo, возникающее при накачке током высокой плотности верхней спиновой подзоны в пограничном слое Fe/Mo. Тензорный характер константы обменного взаимодействия на интерфейсе Fe/Mo, связанный с наличием взаимодействия Дзялошинского-Мория, способствует излучательной релаксации.

Ключевые слова: THz-излучение, спин-поляризованный ток, анизотропное обменное взаимодействие, взаимодействие Дзялошинского-Мория.

DOI: 10.21883/FTT.2021.09.51237.30H

#### 1. Введение

В настоящее время поверхностные магнитные явления на границах ферромагнетик-тяжелый металл [1,2], связанные с появлением взаимодействия Дзялошинского-Мория (ДМ), введенного Дзялошинским [3] из феноменологических соображений и полученного Морией [4] как эффект спин-орбитального взаимодействия, представляют значительный научный интерес. Эти явления могут быть интересны и с практической точки зрения, например, для генерации ТНz-излучения за счет спин-флип переходов электронов проводимости между подзонами с противоположными спинами [5,6], аналогично происходящим в контактах ферромагнетикферромагнетик при наличии спин-поляризованного тока, протекающего сквозь них. В этом случае, как показано в [7], на вероятность радиационных переходов существенное влияние оказывает анизотропия sd-обменного взаимодействия электронов проводимости с *d*-электронами атомов, ответственных за решеточный магнетизм. Обычно предполагается, что обменное взаимодействие изотропно, однако для sd-обменного взаимодействия это не обязательно так. Шиба [8] первым указал на возможность анизотропии sd-обменного взаимодействия при рассмотрении эффекта Кондо в металлах с ферромагнитными примесями. Он представил обменную константу в гамильтониане Гейзенберга в виде тензора с ненулевыми недиагональными компонентами, что указывает на возможность поляризации потока электронов по спинам и как следствие возбуждения электромагнитных колебаний за счет спин-флиппереходов.

В наших более ранних работах мы искали материалы и структуры, в которых THz-излучение, обусловленное механизмом спиновой инжекции, можно было четко выделить на тепловом фоне. В частности, помимо структуры "стержень-пленка" использовались островковые пленки из ферромагнитного металла, в которых промежутки между островками заполнялись антиферромагнетиком [9]. Вместо антиферромагнетика можно было бы также использовать тяжелый металл, в котором существует сильное спинорбитальное взаимодействие, в результате чего на границе с железом может реализовываться анизотропия обменного взаимодействия. Планировалось изготавливать структуры с переходами Fe/Mo/Fe, а также Fe/W/Fe, где тонкий слой W или Mo должен был воздействовать на Fe, создавая анизотропное обменное взаимодействие. У Мо величина константы спин-орбитального взаимодействия значительно меньше, чем у W. Но это может быть и плюсом, поскольку длина спиновой релаксации в Мо больше, и пройдя через слой Мо электрон, не потеряв поляризацию, дойдет до другого берега Fe, при этом *s*-*d*-обменное взаимодействие на границе Fe/Mo будет анизотропным.

В работе [10] было найдено, что константа DMI на интерфейсе Мо/СоFeB составляет  $|D| \approx 0.35 \text{ mJ/m}^2$ , что в разы меньше, чем известные значения для интерфейса Pt/Co  $0.6-2.9 \text{ mJ/m}^2$  (см [10] и ссылки там), и для Fe/W(110), где  $|D| \approx 4 \text{ mJ/m}^2$  [11]. Для оценки константа DMI на интерфейсе Fe/Mo можно ориентироваться на цифру  $|D| \approx 0.35 \text{ mJ/m}^2$ , то есть на порядок меньше чем для Fe/W.

Для начала требовалось проверить, что будет, если электроны инжектируются непосредственно из ферромагнетика в тяжелый металл. В данной работе авторами исследован спин-инжекционный излучатель с магнитным переходом Fe/Mo. Приведены первые результаты



Рис. 1. Спин-инжекционный излучатель со структурой "стержень-пленка". 1 — ферромагнитный стержень (Fe) с диаметром кончика 10–50 µm, 2 — пленка (Mo) на диэлектрической подложке, 3 — держатель подложки, 4 диэлектрическая базовая площадка излучателя, 5 — менисковая фокусирующая линза, 6 — держатель линзы. Стрелками показан поток излучения.

такого исследования, и попытка объяснить появление ТНz-излучения в такой системе.

## 2. Эксперимент

В излучателе со структурой "стержень-пленка" [12] (рис. 1) использовались стержень из Fe с острым концом диаметром 20 µm и пленки Мо толщиной 20 и 15 nm, выращенные на *R*-плоскости сапфира методом импульсного лазерного испарения в сверхвысоком вакууме. Острый конец стержня подводился к поверхности пленки до образования хорошего электрического контакта. При приложении разности потенциалов между стержнем (1) и держателем подложки (3), контактирующим с пленкой (2), через контакт протекал ток. По нашим оценкам для возбуждения THz-излучения в переходе Fe/Mo требуется плотность тока не менее  $10^6$  A/cm<sup>2</sup>. Наибольшая плотность тока достигается в пленке по диаметру острия стержня, где токопроводящее сечение  $S = \pi D\Delta$  (*D* — диаметр острия стержня,  $\Delta$  — толщина пленки). Основным условием, определяющим толщину пленки это ее прозрачность для THz-излучения, то есть она должна быть меньше толщины скинслоя, что для ТНz-частот составляет величину порядка 30 nm. Исходя из этого диаметр острия стержня, обеспечивающий требуемую плотность тока для возбуждения нетеплового излучения, не должен превышать величины  $D \le 50 \, \mu m$ .

Магнитные домены в ферромагнитном стержне выровнены вдоль его оси из-за анизотропии формы. В результате электроны, несущие ток, протекающий через стержень, поляризованы по спину вдоль этого направления. Излучение, возникающее в области контакта Fe/Mo, фокусировалось менисковой линзой 5 для THz-излучения из высокоомного Si и направлялось на регистрирующий детектор — оптоакустический приемник TYDEX OAP-GC1P (ячейка Голея). Используемый приемник сигналов не селективный по частоте и способен регистрировать излучение в широком диапазоне длин волн от 10 µm до 8 mm. Для отсечки длинноволнового сигнала использовался фильтр низких частот в виде металлической сетки с ячейками 125 × 125 µm. Также использовался высокочастотный полимерный фильтр ТҮДЕХ, отсекающий частоты выше 10 THz. Затем сигнал с детектора усиливался, оцифровывался на АЦП АКТАКОМ и поступал на персональный компьютер. Там же регистрировались параметры питающего напряжения и тока. Таким образом, изменяя ток, можно было увидеть отклик структуры, формирующей излучение, на это изменение тока в реальном времени. Спектр сигнала исследовался с помощью дифракционной решетки с периодом 40 µm. Более подробно методика спектральных измерений описана в работе [13].

## 3. Экспериментальные результаты

На рис. 2 представлены временные зависимости скачкообразного изменения тока, протекающего через образец, и мощности излучения пересчитанной в  $\mu$ W, регистрируемой ячейкой Голея, для исследуемого THz-излучателя. Анализируя характер изменения мощности излу-



**Рис. 2.** Зависимости мощности излучения W (кривая I) от времени при скачкообразном изменении тока I через образец (кривая 2) при толщине пленки Mo 20 nm и диаметре острия стержня  $15\,\mu$ m (a) и при толщине пленки 15 nm и диаметре острия 90  $\mu$ m (b).

чения при скачкообразном изменении тока, показанный на рис. 2, а, для каждого шага можно выделить две области: область с плавным увеличением мощности и область с резким изменением мощности. Примечательно, что скачкообразный характер все более проявляется с увеличением силы тока. Это дает основание предположить, что крутизна увеличения исследуемой мощности связана с плотностью тока. При малых токах до 100 mA (что соответствует плотности тока j менее  $10^7 \,\text{A/cm}^2$ ) скачки практически отсутствуют. При превышении этого значения они появляются и преобладают при токе более 200 mA  $(j = 2.5 \cdot 10^7 \text{ A/cm}^2)$ . На основании ранее полученных результатов можно предположить, что нетепловое излучение, обеспечивающее скачок мощности, возникает при плотности тока более 10<sup>7</sup> A/cm<sup>2</sup>. Альтернативой ему в THz-диапазоне является тепловое излучение, мощность которого сравнительно медленно увеличивающееся по мере нагрева излучателя (облеасть плавного увеличения мощности на рис. 2, a). Таким образом при превышении плотности тока 10<sup>7</sup> A/cm<sup>2</sup> можно четко разделить тепловую и динамическую составляющие сигнала по характеру их изменения во времени. Для проверки этого предположения был проведен эксперимент с излучателем, обеспечивающим только тепловое излучение. В нем диаметр иглы 90 µm, при котором плотность тока снизилась более чем в 5 раз. При этом даже при токе 200 mA плотность тока не превышала своего начального значения  $\sim 10^7 \, \text{A/cm}^2$ . Для усиления нагрева излучателя толщина пленки была уменьшена до 15 nm. В результате мы наблюдали только тепловое излучение. Его зависимость от времени показана на рис. 2, b. На основании этого наличие нетеплового (динамического) излучения определялось нами по скачкообразному нарастанию амплитуды сигнала при резком изменении тока. Итак, при плотности тока более  $10^7 \,\text{A/cm}^2$  на кривой 1 рис. 2, а можно выделить две области характеризующие различную природу излучения: относительно быстрое нарастание амплитуды (динамическое излучение) и участок плавного нарастания (тепловое излучение). Это позволяет нам говорить, что в переходе Fe/Mo возникает нетепловое, спин-инжекционное излучение. В приведенном эксперименте при токе 480 mA зафиксирована мощность, сфокусированная линзой в параксиальном пучке  $W \approx 60 \,\mu$ W.

Частотная характеристика излучателя, измеренная с помощью дифракционной решетки, показана на рис. 3. Так как при использовании дифракционной решетки мощность излучения распределяется по дифракционным пространственным гармоникам одной частоты, амплитуда первой гармоники, представленной на рис. 3, по которой оценивается частота излучения не соответствует реальной мощности излучения. Поэтому на рис. 3 величина мощности излучения представлена в единицах сигнала снимаемого с приемника GC-1P, то есть в mV. Из рисунка видно, что спектр излучения лежит в диапазоне частот 5–12 THz. Частота максимального сигнала составляет f = 7.0 THz. Ширина спектральной кривой



Рис. 3. Частотная характеристика спин-инжекционного излучателя.

на уровне 3 dB составила 2.28 THz. Учитывая дифракционное размытие пика эту величину следует считать, как допущение ограниченное сверху. Приведенная кривая не описывается формулой Планка, а именно, согласно формуле Планка, наблюдаемый максимум мощности излучения должен соответствовать температуре разогрева излучателя 300 К. К тому же, планковская кривая для этой температуры более чем на порядок шире. Максимум же в распределении Планка для более высоких температур уходит в область меньших частот. Все это указывает на не тепловой характер регистрируемого излучения.

## 4. Обсуждение

Из-за наличия ДМ-взаимодействия на границе для системы связанных электронов будет неоднородное распределение намагниченности, которое будет приводить к тому, что обменное взаимодействие уже электронов проводимости и связанных электронов молибдена с наведенной намагниченностью будет анизотропным [7,14]. Анизотропия обменного взаимодействия означает, что константа обменного взаимодействия становиться тензором, который может иметь недиагональные компоненты. Величина этих компонент будет связана с неоднородностью намагниченности, а именно с поперечной компонентой намагниченности к направлению оси квантования системы, которая в свою очередь определяется константой ДМ-взаимодействия. Таким образом, для описания недиагональных компонент обменного взаимодействия между электронами проводимости и связанными электронами, мы можем по аналогии с системой связанных электронов написать гамильтониан в виде взаимодействия ДМ, но введя свою константу. Обозначим ее как D<sub>sd</sub>. Однородное обменное взаимодействие между электроном проводимости и локализованным



**Рис. 4.** Зависимости мощности излучения W (кривая I) от времени при скачкообразном изменении тока I через образец (кривая 2) при толщине пленки Mo 20 nm и диаметре острия стержня  $15 \,\mu$ m (a) и при толщине пленки 15 nm и диаметре острия 90  $\mu$ m (b).

электроном решетки можно представить как [15]:

$$H_{ex} = -J \mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2. \tag{1}$$

Как говорилось выше анизотропию обменного взаимодействия между электронами проводимости и связанных электронов мы можем по аналогии с системой связанных электронов можно представить в виде [1]:

$$H_{\rm DM} = D_{sd}(\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2). \tag{2}$$

Добавление члена ДМ к гамильтониану Гейзенберга позволяет представить эффективное обменное взаимодействие в тензорной форме

$$\vec{J} = \begin{pmatrix} J & D_{sd3} & -D_{sd2} \\ -D_{sd3} & J & D_{sd1} \\ D_{sd2} & -D_{sd1} & J \end{pmatrix}$$
(3)

где J — константа обменного взаимодействия Гейзенберга,  $D_{sd1}$ ,  $D_{sd3}$ ,  $D_{sd3}$  — компоненты вектора Дзялошинского для взаимодействия электронов проводимости и связанных электронов. Здесь мы поступаем по аналогии с работой [3], где было показано, что учет спинорбитального взаимодействия в первом приближении дает добавку к обменному взаимодействия в виде (4), а в следующих приближениях, константа обменного взаимодействия становится тензором общего вида. Как показано в [7], наличие поперечной компоненты обменного поля существенно влияет на количество квантовых переходов электронов проводимости с переворотом спина. При наличиие поперечной компоненты обменного поля вероятность перехода (количество переходов в единицу времени) увеличивается на три порядка.

Для объяснения возникновения спин-инжекционного излучения мы предполагаем, что в Мо вблизи контакта с Fe возникает индуцированная спиновая поляризация электронов [16]. В работе [14] рассматривалась генерация терагерцового излучения за счет перехода электронов проводимости между спиновыми подзонами в неколлинеарном ферромагнетике с геликоидальной магнитной структурой. При этом неравновесные по спину электроны должны накачиваться в него из ферромагнитного инжектора. Связь спиновых и орбитальных степеней свободы в предлагаемой системе достигается за счет пространственно-неоднородного неколлинеарного распределения намагниченности. Благодаря этому, константа *sd*-обменного взаимодействия будет зависеть от квазиимпульса *d*- или *f*-электронов.

Мы рассматриваем инжекцию электронов в пограничную область Fe/Mo. В Мо существует сильное спинорбитальное взаимодействие, в результате которого на границе с железом для электронов проводимости возникает взаимодействие типа ДМ [1,17], а также может реализовываться неколлинеарное распределение намагниченности. Ясно, во-первых, что электроны инжектируются в обе спиновые подзоны "рабочего" ферромагнетика (Мо) даже в случае, когда намагниченности обоих ферромагнетиков параллельны (коллинеарность намагниченности Мо намагниченности Fe может отсутствовать в силу наличия DMI — необходимы дополнительные исследования). Однако при параллельной ориентации намагниченностей ферромагнетиков в "нижнюю" спиновую подзону будет инжектироваться больше электронов, чем в "верхнюю". Но даже в этом случае из-за релаксации спина к равновесному состоянию [18] (тензорный характер константы обменного взаимодействия способствует этому процессу) возникает спонтанное излучение фотонов. Более тонкая пленка не показывает скачкообразного увеличения мощности излучения, не только из-за недостаточной плотности тока (о чем говорилось выше, но и из-за того, что, по нашему мнению, при малых толщинах происходит очень резкое увеличение удельного сопротивления пленок даже при комнатной температуре (в 2-3 раза [19]). В результате пленка нагревается намного сильнее и вклад спиновой инжекции не виден на фоне теплового излучения. Для проверки этой гипотезы необходимы дальнейшие исследования.

## 5. Заключение

Полученные результаты указывают на нетепловой, спин-инжекционный механизм наблюдаемого THz-излучения в магнитном переходе Fe/Mo. Он возникает из-за накачки током высокой плотности верхней спиновой подзоны в пограничном слое Fe/Mo. В этом случае тензорный характер обменного взаимодействия на границе Fe/Mo, связанный с наличием взаимодействия ДМ способствует излучательной релаксации электронов проводимости из верхней спиновой подзоны индуцированного ферромагнетизма в нижнюю. Результаты могут быть использованы для создания когерентных и не когерентных источников THz-излучения. Это особо актуально, так как до настоящего времени этот диапазон частот (1–30 THz) остается мало освоенным как раз из-за отсутствия доступных, простых и надежных в работе источников и приемников THz-сигналов.

#### Финансирование работы

Экспериментальная часть работы выполнена при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 19-29-03015 мк, проект № 19-29-03015 мк, проект № 20-07-00349 А), а так же в рамках Государственного задания № 075-00355-21-00 и задания ФИРЭ им. В.А. Котельникова РАН. Теоретическая часть работы выполнена в рамках гранта 19-19-00607.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них отсутствует конфликт интересов.

#### Список литературы

- [1] A. Fert. Mater. Sci. Forum **59–60**, 439 (1990).
- [2] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J.H. Park, J.H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, Y. Tokura. Nature Lett. 465, 901 (2010).
- [3] I.A. Dzyaloshinsky. J. Phys. Chem. Solids 4, 241 (1958).
- [4] T. Moriya. Phys.Rev. 120, 1, 91 (1960).
- [5] A. Kadigrobov, Z. Ivanov, T. Claeson, R.I. Shekhter, M. Jonson. Europhys. Lett. 67, 948 (2004).
- [6] Ю.В. Гуляев, П.Е. Зильберман, А.И. Панас, Э.М. Эпштейн. Письма в ЖЭТФ 86, 5, 381 (2007).
- [7] Е.А. Вилков, Г.М. Михайлов, С.А. Никитов, А.Р. Сафин, М.В. Логунов, V.N. Korenivskii, С.Г. Чигарев, Л.А. Фомин. ФТТ 61, 6, 1021 (2019).
- [8] H. Shiba. Prog. Theor. Phys. 43, 601 (1970).
- [9] Е.А. Вилков, Ю.В. Гуляев, П.Е. Зильберман, Г.М. Михайлов, А.И. Панас, А.В. Черных, С.Г. Чигарев. РЭ 60, 9, 992 (2015).
- [10] T.-Y. Chen, H.-I Chan, W.-B. Liao, C.-F. Pai. Phys. Rev. Appl. 10, 044038 (2018).
- [11] M. Heide, G. Bihlmayer, S. Blugel. Phys. Rev. B 78, 140403(R) (2008).
- [12] Ю.В. Гуляев, П.Е. Зильберман, Э.М. Эпштейн и др. Твердотельный источник электромагнитного излучения. Патент РФ № 2464683. Бюл. № 29. 20.10.2012.
- [13] С.Г. Чигарёв, И.В. Маликов, Г.М. Михайлов. Радиотехника и электроника 58, 3, 270 (2013).
- [14] Е.А. Караштин. Письма в ЖЭТФ 112, 2, 121 (2020).

- [15] S.V. Vonsovskii. Magnetism. Wiley, N.Y. (1971). 1973 p.
- [16] Y. Murakami, D. Fuse, Y. Sakamoto, Y. Hamada, T. Ono, S. Kitao, M. Seto, M. Tanigaki, T. Saito, Y. Ohkubo. Hyperfine Interact. **179**, 57 (2007).
- [17] A. Fert, P.M. Levy. Phys. Rev. Lett. 44, 1538 (1980).
- [18] Е.А. Вилков, Г.М. Михайлов, С.Г. Чигарев, Ю.В. Гуляев, В.Н. Коренивский, С.А. Никитов, А.Н. Славин. Радиотехника и электроника **61**, *9*, 844 (2016).
- [19] I.V. Malikov, G.M. Mikhailov. J. Appl. Phys. 82, 11, 5555 (1997).

Редактор Д.В. Жуманов