

# Эффективная генерация спина в графене на магнитной подложке при поглощении света в дальнем ИК диапазоне

© К.С. Денисов, К.Ю. Голеницкий

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия  
E-mail: golenitski.k@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 2 мая 2023 г.  
В окончательной редакции 10 мая 2023 г.  
Принята к публикации 10 мая 2023 г.

Для атомарно-тонких слоев двумерных материалов существенно влияние эффекта близости при расположении их на магнитных материалах. В данной работе исследованы механизмы фотогенерации спина в графене, расположенном на подложке магнитного изолятора. Эффект магнитной близости, приводящий к спиновому расщеплению линейного спектра дираковских электронов, и понижение симметрии на интерфейсе, увеличивающее роль спин-орбитального взаимодействия, способствуют усилению спинового отклика в переменном электрическом поле падающей волны. Рассмотрены основные механизмы фотогенерации спина, включая межподзонные и межзонные переходы с переворотом спина, а также изучено их влияние на коэффициент поглощения графена.

**Ключевые слова:** дираковские электроны, графен, электрический дипольный спиновый резонанс, спин-орбитальное взаимодействие, генерация спина.

DOI: 10.21883/FTP.2023.03.55631.4756

## 1. Введение

Важной особенностью атомарно-тонких слоев двумерных материалов, таких как графен, дихалькогениды и карбиды переходных металлов (TMDs и MXenes), является высокая восприимчивость их физических свойств по отношению к внешнему окружению. Атомарно-тонкие материалы испытывают заметный эффект близости, обусловленный взаимодействием с прилегающими материалами, что может использоваться для сознательного изменения их свойств и создания гетероструктур с новыми характеристиками [1–3]. Например, при формировании структур на основе сверхпроводящих соединений и слоев графена, в последнем может возникать индуцированная сверхпроводимость [4]. Диэлектрическое окружение играет важную роль для оптических свойств и экситонной структуры дихалькогенидов переходных металлов [5,6]. В случае магнитных слоев имеет место частичная гибридизация состояний магнетика и двумерного полупроводника на интерфейсе, так называемый *эффект магнитной близости*. Он приводит к зеемановскому расщеплению спиновых состояний двумерных носителей заряда и образованию равновесной спиновой поляризации в двумерном слое [7,8].

Особое значение в последнее время приобрели гетероструктуры на основе графена на магнитных материалах (G/M) [1]. Наблюдается заметный прогресс в изготовлении G/M структур с использованием магнитных подложек разнообразного химического состава. Значительный эффект магнитной близости в G/M был продемонстрирован при использовании ферромагнитных металлов [8–12], магнитных изоляторов [7,13–15], антиферромагнетиков [16,17] и монослоев двумерных магне-

тиков [18–22]. С другой стороны, существенно расширилось понимание физики эффекта магнитной близости, характера гибридизации волновых функций и модификации спектра двумерных электронов с учетом новых спин-зависимых в эффективном гамильтониане [1,3,15].

Исторически исследования графена в структурах G/M связывались с так называемым эффектом долиной спиновой фильтрации (*K*-point spin filtering) [23,24], при котором возникает селективное пропускание спиновой поляризации через слой графена. Данный эффект считается перспективным способом повышения эффективности спиновой инжекции в устройствах на основе эффекта туннельного магнетосопротивления (ТМС) [25]. На сегодняшний день установлено, что свойства подобных контактов сильно зависят от структуры интерфейса между графеном и ферромагнетиком. В частности, при формировании сильной ковалентной связи на интерфейсе исходная зонная структура графена оказывается практически „разрушенной“, а объемные состояния ферромагнетика оказывают доминирующее влияние на электронный спектр в графене [24]. Напротив, если в структуре имеется промежуточный диэлектрический туннельный барьер [8,26], то наблюдается расщепление спиновых состояний при сохранении дираковского спектра.

Линейный электронный спектр в графене сохраняется также при размещении на магнитных изоляторах, при этом эффект магнитной близости проявляется за счет обменного взаимодействия с подложкой. Недавно удалось продемонстрировать появление спиновой поляризации дираковских электронов в графене с величиной зеемановского расщепления до нескольких мэВ (EuS [7], YIG [14], CrBr<sub>3</sub> [19]) и десятков мэВ [27] (CrSBr [16],

CrSe [17]). Кроме того, имеется ряд работ, авторы которых указывают на возможность управления и контроля спинового расщепления технологическими [22,27,28] и электрическими методами [26,29].

G/M гетероструктуры представляются перспективными для улучшения функциональности устройств, использующих эффект ТМС [25], электрические и туннельные свойства аналогичных структур активно исследуются. При этом гораздо меньше известно о физике оптически индуцируемых спиновых явлений в графене в условиях эффекта магнитной близости. Понижение симметрии за счет наличия интерфейса и частичная гибридизация между состояниями электронов в графене и в магнитной подложке дополнительно сопровождаются усилением спин-орбитального взаимодействия (SOI), описываемого разнообразными спин-зависимыми вкладками в эффективном гамильтониане [3,15,30–33]. Оптические исследования G/M структур важны для понимания физики спиновых явлений в условиях сложного эффекта магнитной близости, но на сегодняшний день практически не представлены. Дополнительно, исследования оптически индуцируемых спиновых явлений в двумерных наноструктурах представляются важными для устройств оптоэлектроники, использующих спиновую поляризацию носителей [34,35].

Присутствие в гамильтониане спин-орбитальных слагаемых способствует усилению оптических переходов с переворотом спина аналогично эффекту усиления спиновой восприимчивости в результате электрического дипольного спинового резонанса [36–38]. Ранее эффекты генерации спина в графене при оптическом облучении исследовались в работах [39,40]. В работе [39] фотогенерация спина была обусловлена спин-орбитальным взаимодействием Рашбы, имеющим пространственно неоднородную случайную структуру с нулевым средним значением. Данный механизм зависит от корреляционной функции случайного спин-орбитального потенциала и оказывается актуален для неплосколежащих слоев графена с „рябью“. В работе [40] рассматривался случай индуцированной сильной спин-орбитальной связи, когда спектр графена становится параболическим для малых по модулю волновых векторов. В обеих работах изучались немагнитные структуры в геометрии Фогта, когда вектор внешнего магнитного поля параллелен плоскости графена.

В данной работе мы исследуем различные микроскопические механизмы фотогенерации спина в графене, расположенном на подложке магнитного изолятора. Предполагается, что линейный электронный спектр сильно не искажается при контакте с магнитной подложкой. Напротив, эффект последней будет состоять в появлении спинового расщепления, величина которого может достигать несколько мэВ, что согласуется с экспериментальными наблюдениями в структурах с графеном [3,31,32]. В отличие от работ [39,40] мы будем считать спин-орбитальное взаимодействие малым

по сравнению с зеemanовским расщеплением, обусловленным обменным взаимодействием с подложкой, а ориентацию намагниченности — перпендикулярной графену. Такой случай специфичен для магнитных гетероструктур: равновесная спиновая поляризация дираковских электронов, ориентированная перпендикулярно, не может быть реализована в немагнитных структурах с помощью внешнего магнитного поля без одновременного формирования уровней Ландау.

В работе рассматриваются основные механизмы фотогенерации спина в графене за счет переменного электрического поля и с учетом различных интерфейсных вкладов в спин-орбитальное взаимодействие. Проанализированы механизмы спиновой генерации при межподзонном поглощении. Показано, что наличие независимых от импульса вкладов в SOI дополнительно приводит к межзонным переходам с переворотом спина. Эти процессы важны в широком спектральном диапазоне (от нескольких до десятков мэВ), при этом их влияние на полный коэффициент поглощения может достигать 10% при эффективности фотогенерации спина вплоть до нескольких процентов.

## 2. Эффективный гамильтониан

Мы используем модель эффективного гамильтониана дираковских электронов  $H = H_0 + H_{ex} + H_{so}$ , где

$$H_0 = v_F (\kappa \sigma_x k_x + \sigma_y k_y) \quad (1)$$

— стандартный гамильтониан электронов в графене. Здесь  $v_F \approx 10^8$  см/с — скорость Ферми в графене, импульс  $\mathbf{k}$  измеряется относительно точек  $(K, K')$  зоны Бриллюэна ( $\kappa = +1$  относится к долине  $K$ , а  $\kappa = -1$  к  $K'$ ),  $\sigma$  — вектор матриц Паули, описывающий псевдоспин. Единицы измерения выбраны таким образом, что  $\hbar = 1$ . Слагаемое  $H_{ex}$  учитывает спиновое расщепление в результате эффекта близости и обменного взаимодействия с магнитной подложкой

$$H_{ex} = \Delta_{ex} (\mathbf{n} \cdot \mathbf{s}). \quad (2)$$

Здесь  $\mathbf{s}$  — оператор спина электрона,  $\mathbf{n}$  — единичный вектор, направленный вдоль намагниченности подложки.

Оставшаяся часть эффективного гамильтониана  $H_{so}$  содержит разнообразные вклады спин-орбитального взаимодействия и существенно зависит от симметрии системы, типа подложки и ее химического состава [30–33]. В работе мы сосредоточимся на механизме Бычкова–Рашбы [15,18,41–43], связанным с отсутствием зеркальной симметрии  $z \rightarrow -z$  на интерфейсе (конкретный механизм может быть связан с появлением поперечного электрического поля или эффектом подложки). Первые неисчезающие члены разложения  $H_{so}$  по  $\mathbf{k}$  описываются двумя константами  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ :

$$H_{so} = \lambda_1 (\kappa \sigma_x s_y - \sigma_y s_x) + \lambda_2 a_0 (k_x s_y - k_y s_x), \quad (3)$$

где  $a_0 = 0.24$  нм — постоянная решетки графена. Важно отметить, что первое слагаемое не зависит от импульса электрона  $\mathbf{k}$ . Такой вклад специфичен для систем с линейным спектром и будет играть особо важную роль в нашем дальнейшем рассмотрении.

Мы пренебрегаем внутренним спин-орбитальным взаимодействием типа Кейна–Меле [44], так как для графена оно оказывается существенно меньше рассматриваемых вкладов. Также мы не будем рассматривать эффекты, связанные с нарушением симметрии между подрешетками. Они могут возникать, когда графен лежит на менее симметричной подложке. В целом это приводит к открытию щели в спектре и к появлению дополнительных вкладов в спин-орбитальное взаимодействие [31,34,45,46]. Отметим, что эти механизмы, по-видимому, оказывают заметное влияние на спиновые явления в структурах на основе графена и TMDs [31,34,45,47].

В отличие от традиционных двумерных электронных систем, например квантовых ям на основе GaAs, спиновые расщепления в графене на магнитных подложках оказываются достаточно большими по абсолютной величине и лежат в области нескольких мэВ [1,3,32] (против десятков мкэВ для SOI расщепления в квантовых ямах GaAs [48]). Данное обстоятельство качественно указывает на возможное усиление эффектов генерации спина при поглощении света, если при этом задействовано наведенное спин-орбитальное взаимодействие.

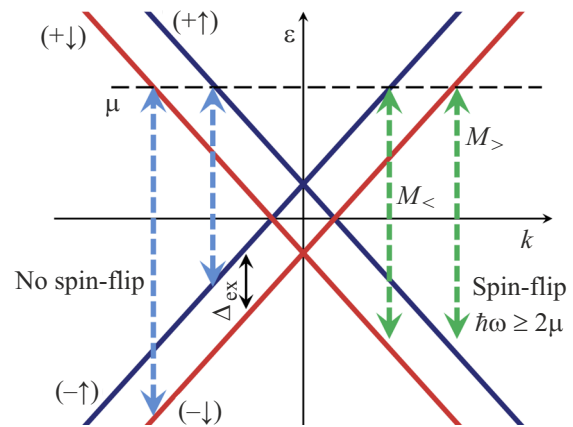
### 3. Оптические переходы

Рассмотрим поглощение света электронами в  $K$ -долине. Для долины  $K'$  рассмотрение аналогично, и конечное выражение умножается на 2 (долинное расщепление не учитывается). Вклад  $H_{\text{int}}$  в гамильтониан от взаимодействия электронов с электромагнитной волной получается с помощью минимальной замены  $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k} - (e/c)\mathbf{A}$ , где  $\mathbf{A}$  — векторный потенциал волны

$$H_{\text{int}} = -\frac{e}{c} \left( v_F (\boldsymbol{\sigma} \mathbf{A}) + \lambda_2 a_0 [\mathbf{A} \times \mathbf{s}] \mathbf{e}_z \right), \quad (4)$$

где  $\mathbf{e}_z$  — единичный вектор нормали к плоскости графена. Калибровка выбрана такой, что  $\mathbf{A}_\omega = -(ic/\omega)\mathbf{E}_\omega$  и  $\phi = 0$ . При учете спин-орбитального взаимодействия становятся допустимыми переходы с переворотом спина под действием электрической компоненты поля, т.е. в электродипольном приближении. В рассматриваемой системе магнитодипольные переходы на несколько порядков слабее, и их можно не учитывать.

Будем предполагать, что спин-орбитальные вклады малы по сравнению с характерной кинетической энергией электрона и поэтому могут учитываться в рамках теории возмущений. При этом спиновое расщепление за счет обменного взаимодействия и эффекта магнитной близости не предполагается малым, так что можно считать  $\Delta_{\text{ex}} \gg H_{\text{so}}$ . В рамках сделанных допущений



**Рис. 1.** Спектр энергий электронов  $\varepsilon(k)$  и схема межзонных оптических переходов в графене на магнитной подложке с учетом эффекта близости.  $\Delta_{\text{ex}}$  — величина спинового расщепления,  $\mu$  — уровень Ферми в графене. Стрелки справа — процессы с переворотом спина. Стрелки слева — процессы без переворота спина.

дисперсию электронов можно считать почти линейной  $\varepsilon_{k,\pm,s} = \pm v_F k + \Delta_{\text{ex}} s$  и представляющей два конуса, разделенных энергетическим зазором ширины  $\Delta_{\text{ex}}$ , где  $s = \pm 1/2$  — проекция спина на ось намагниченности. Волновые функции электрона, невозмущенные  $H_{\text{so}}$ , можно представить в виде  $\psi_{k\mu s}^0 = e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} u_{k\mu s}^0$ , где  $\mu = \pm$  и  $u_{k\mu s}^0$  имеет вид

$$|u_{k\mu s}^0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \mu e^{i\varphi} \end{pmatrix} |s\rangle. \quad (5)$$

Здесь  $\varphi$  — угол между направлением импульса  $\mathbf{k}$  и осью  $x$ ,  $|s\rangle$  — собственное спиновое состояние оператора  $H_{\text{ex}}$ .

Схема вертикальных оптических переходов в данной системе показана на рис. 1. Здесь и далее предполагается сохранение импульса электрона при переходе между разными состояниями, а также рассматривается только нормальное падение электромагнитной волны. Первое слагаемое в  $H_{\text{int}}$  (4) непосредственно не связано с оператором спина и приводит в первую очередь к межзонным переходам без переворота спина. Эти процессы отвечают за универсальное поглощение в графене при нулевой температуре, при котором коэффициент поглощения  $\alpha_0 = \pi e^2/\hbar c \approx 2.3\%$  оказывается независимым от частоты и определяется постоянной тонкой структуры.

Второе слагаемое в  $H_{\text{int}}$  (4) связано только с оператором спина электронов. Учет этого вклада приводит к межподзонным переходам с переворотом спина аналогично схеме электронного спинового резонанса. В качестве переменного магнитного поля выступает слагаемое  $\propto \lambda_2 [\mathbf{e}_z \times \mathbf{A}]$ . Для описания перехода в первом порядке по  $H_{\text{so}}$  достаточно взять невозмущенную волновую функцию из выражения (5). Матричный элемент вертикального перехода между состояниями двух дираковских конусов ( $\mu = +1$ ) с разной проекцией спина на

ось  $\mathbf{n}$  дается

$$N_{\pm}^p = -\frac{e}{c} \lambda_2 a_0 A_{\omega}^p \langle u_{k+\uparrow}^0 | \hat{\mathbf{s}} \cdot (\mathbf{e}_z \times \mathbf{o}_p) | u_{k+\downarrow}^0 \rangle, \quad (6)$$

где  $\mathbf{o}_p$  — орт поляризации света, по определению  $\mathbf{A}_{\omega} = A_{\omega}^p \mathbf{o}_p$ , индекс  $p$  определяет поляризацию волны. Важно отметить, что переходы в данной схеме могут идти только между верхними расщепленными по спину конусами (или нижними конусами в случае  $p$ -легирования графена), так как вклад от  $\lambda_2$  в оператор скорости не содержит явным образом ни псевдоспина, ни импульса. Резонансная частота межподзонного поглощения оказывается постоянной  $\hbar\omega = \Delta_{\text{ex}}$ , а квадрат матричного элемента не зависит от направления импульса электрона  $|N_{\pm}^p|^2 \propto (\lambda_2 a_0 / v_F)^2$ .

Спин-орбитальные вклады в  $H_{\text{so}}$ , не зависящие от импульса электрона, не влияют непосредственно на вид  $H_{\text{int}}$ , как это происходит в случае линейных по импульсу слагаемых. Однако их наличие также приводит к фотогенерации спина, при этом процессы с переворотом спина могут иметь место как для межподзонных, так и для межзонных переходов, что отмечено на рис. 1. Оптические переходы возбуждаются в этом случае первым слагаемым в  $H_{\text{int}}$ , при этом процессы с переворотом спина связаны с изменением волновых функций электрона при учете влияния  $H_{\text{so}}$ . Данный механизм специфичен для систем с дираковским спектром, эффект фотогенерации спина при межзонном поглощении ранее рассматривался в работе [40].

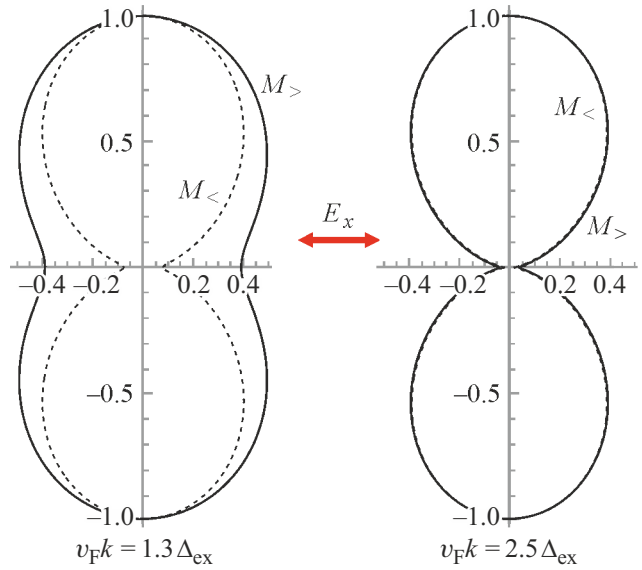
Остановимся подробнее на вычислении межзонных матричных элементов поглощения с переворотом спина. Как видно из рис. 1, возможны два таких процесса, они отличаются проекцией спина в конечном состоянии. Соответствующие матричные элементы обозначим как  $M_{<}$  для перехода  $(-\downarrow) \rightarrow (+\uparrow)$  и  $M_{>}$  для перехода  $(-\uparrow) \rightarrow (+\downarrow)$ . Для упрощения расчетов будет рассмотрен случай  $\mathbf{n} = \mathbf{e}_z$ , когда ориентация намагниченности совпадает с нормалью к плоскости графена. Обобщение расчета на случай произвольной ориентации  $\mathbf{n}$  не представляет сложности.

Общее выражение для имеет вид

$$M_{\gamma}^p = -\frac{e}{c} A_{\omega}^p (\mathbf{o}_p \cdot \mathbf{v}_{\alpha}), \quad \gamma = \{>, <\}, \quad (7)$$

где, например,  $\mathbf{v}_{\alpha} = \langle u_{k+\uparrow} | v_F \boldsymbol{\sigma} | u_{k-\downarrow} \rangle$  — матричный элемент оператора скорости  $\mathbf{v} = v_F \boldsymbol{\sigma}$ , рассчитанный на точных амплитудах волновых функций  $u_{k\mu s}$  с учетом  $H_{\text{so}}$ . Для получения  $M_{>,<}^p$  воспользуемся формулой для изменения волновых функций в первом порядке теории возмущений относительно  $H_{\text{so}}$ . Невозмущенный гамильтониан есть  $H_0 + H_{\text{ex}}$ , при этом спектр системы  $\varepsilon_{k,\pm,s} = \pm v_F k + \Delta_{\text{ex}} s$  и волновые функции даются (5). С учетом недиагональных элементов матрицы  $H_{\text{so}}$  по спину имеем

$$\delta u_{k\mu s} = \sum_{\nu=\pm} \frac{H_{\text{so}}^{(s\nu s' \mu s)}}{\varepsilon_{k\mu s} - \varepsilon_{k\nu s'}} |u_{k\nu s'}^0\rangle, \quad s' \neq s, \quad (8)$$



**Рис. 2.** Угловое распределение вероятности поглощения света с переворотом спина для двух межзонных переходов  $M_{>,<}$  при разном отношении  $v_F k / \Delta_{\text{ex}}$ . Ориентация электрического поля линейно поляризованной волны показана красной стрелкой.

где матричные элементы

$$H_{\text{so}}^{(+\uparrow;+\downarrow)} = H_{\text{so}}^{(+\uparrow;-\downarrow)} = -\frac{i\lambda_1}{2} e^{-i\varphi},$$

$$H_{\text{so}}^{(-\uparrow;+\downarrow)} = H_{\text{so}}^{(-\uparrow;-\downarrow)} = \frac{i\lambda_1}{2} e^{-i\varphi}.$$

Выделим из  $M_{\gamma}^p$  безразмерный коэффициент  $\tilde{M}_{\gamma}^p$ , связанный с поляризацией волны, в явном виде. Например,  $M_{\gamma}^x = (e/c) v_F A_{\omega}^x \tilde{M}_{\gamma}^x$  в случае линейной поляризации  $\mathbf{o}_p = \mathbf{e}_x$ . В первом порядке по  $\lambda_1$

$$\tilde{M}_{>,<}^x = \pm i\lambda_1 \frac{\Delta_{\text{ex}} \pm v_F k (1 - e^{\mp 2i\varphi})}{\Delta_{\text{ex}} (\Delta_{\text{ex}} \pm 2v_F k)}, \quad (9)$$

где для  $>$  надо брать верхний знак, а для  $<$  — нижний.

Стоит отметить, что в области  $v_F k \gg \Delta_{\text{ex}}$  вероятность межзонных переходов приблизительно равна  $|\tilde{M}_{\gamma}^x|^2 \approx (\lambda_1 / \Delta_{\text{ex}})^2 \sin^2 \varphi$ . Распределение фотовозбужденных электронов по импульсам определяется квадратом матричного элемента поглощения. Анизотропная зависимость вероятности поглощения от угла  $\varphi$  может приводить к выстраиванию носителей по импульсу — линейно поляризованный свет возбуждает носители заряда, анизотропно распределенные по импульсам. При уменьшении импульса  $k$  угловое распределение  $|\tilde{M}_{\gamma}^x|^2$  становится более изотропным, что изображено на зависимостях  $|\tilde{M}_{\gamma}^x(\varphi)|^2$  на рис. 2 при различных отношениях  $v_F k / \Delta_{\text{ex}}$ . Стоит отметить, что в области  $v_F k \gg \Delta_{\text{ex}}$  усредненный квадрат матричного элемента поглощения  $\langle |\tilde{M}_{\gamma}^p|^2 \rangle$  оказывается не зависящим от поляризации излучения. Данное обстоятельство обусловлено специфичной структурой  $H_{\text{so}}$  и слагаемого  $\lambda_1$ , не зависящего от импульса электрона.

Аналогичным образом рассчитывается матричный элемент межподзонных переходов с переворотом спина. Конечный результат для линейно поляризованной волны  $\mathbf{o}_p = \mathbf{e}_x$  и переходов в верхнем дираковском конусе имеет вид

$$\tilde{M}_+^x = i\lambda_1 \frac{v_F k (1 - e^{-2i\varphi})}{\Delta_{\text{ex}}^2 - (2v_F k)^2}. \quad (10)$$

Данный переход приводит к поглощению на той же резонансной частоте, что и в ситуации с  $\lambda_2$  — механизмом ( $\hbar\omega = \Delta_{\text{ex}}$ ). В области  $v_F k \gg \Delta_{\text{ex}}$ , однако, квадрат матричного элемента приобретает дополнительный малый фактор  $|\tilde{M}_+^x|^2 \propto (\lambda_1/v_F k)^2 \sin^2 \varphi$ . Таким образом, стоит ожидать подавления данного механизма, когда уровень Ферми  $\mu \gg \Delta_{\text{ex}}$ , в меру параметра  $(\lambda_1/\mu)^2$  по сравнению с межзонными переходами. Поляризация зависимость  $\langle |\tilde{M}_+^p|^2 \rangle$  в случае межподзонных переходов также отсутствует.

#### 4. Фотогенерация спина

Коэффициент поглощения связан с продольной оптической проводимостью  $\alpha(\omega) = (4\pi/c) \text{Re} [\sigma_{xx}(\omega)]$  и равен в общем случае

$$\alpha = \frac{4\pi^2 e^2}{\omega c A} \sum_{k, \beta, \beta'} (f_{k\beta} - f_{k\beta'}) |v_{\beta\beta'}^x|^2 \delta(\varepsilon_{k\beta'} - \varepsilon_{k\beta} + \hbar\omega), \quad (11)$$

где индекс  $\beta = (\mu, s)$  включает орбитальные состояния  $\mu = \pm 1$  и различные проекции спина,  $f_{k\beta}$  — равновесная функция распределения,  $A$  — площадь образца,  $v_{\beta\beta'}^x$  — матричный элемент оператора скорости  $v = \partial H / \partial k$ . Выражение (11) включает в себя процессы с переворотом спина. Далее рассматривается случай нулевой температуры  $T = 0$  и  $n$ -легирования графена, когда электроны вырождены и заполняют часть дираковского конуса в обоих спиновых подзонах, при этом уровень Ферми  $\mu > \Delta_{\text{ex}}$ .

Полный коэффициент поглощения удобно представить в виде суммы нескольких слагаемых, отвечающих различным переходам:

$$\alpha_{\text{total}} = \alpha_{\uparrow} + \alpha_{\downarrow} + \alpha_{\text{is}} + \alpha_{\text{inter}}. \quad (12)$$

Здесь  $\alpha_{\uparrow, \downarrow}$  соответствуют межзонному поглощению внутри спиновых подзон по отдельности. Данный вклад имеет вид  $\alpha_{\uparrow, \downarrow} = (\alpha_0/2)\Theta(\hbar\omega - 2\mu_{\uparrow, \downarrow})$ , где  $\mu_{\uparrow, \downarrow} = \mu \mp \Delta_{\text{ex}}/2$  и  $\Theta$  — функция Хевисайда. В области частот  $\hbar\omega > 2\mu + \Delta_{\text{ex}}$  имеем вклад универсального поглощения  $\alpha_{\uparrow} + \alpha_{\downarrow} = \alpha_0$ .

Слагаемые  $\alpha_{\text{is}}$  и  $\alpha_{\text{inter}}$  относятся к процессам поглощения с переворотом спина и описывают межподзонные и межзонные переходы соответственно. Для вычисления межподзонных процессов в верхнем дираковском конусе нужно рассмотреть слагаемые в (11) с индексами  $\beta = (+, \uparrow)$  и  $\beta' = (+, \downarrow)$ . Межподзонное поглощение центрировано на частоте  $\omega = \Delta_{\text{ex}}/\hbar$  и имеет  $\delta$ -образную

форму. Характерные резонансные частоты  $\omega$  находятся в области единиц ТГц. Для не зависящих от импульса вкладов в  $H_{\text{so}}$  имеем

$$\alpha_{\text{is}} \approx \alpha_0 \frac{\lambda_1^2}{2\mu} \delta(\hbar\omega - \Delta_{\text{ex}}). \quad (13)$$

Отметим, что в ситуации, когда оба механизма спин-орбитального взаимодействия Бычкова–Рашбы в (3) оказываются приблизительно одной величины, нужно учитывать интерференционный вклад между ними. Ширина межподзонной линии определяется механизмами поперечной спиновой релаксации, что также существенно влияет на конечную эффективность фотогенерации спина.

Межзонное поглощение  $\alpha_{\text{inter}}$  имеет иную частотную зависимость, рассмотрим ее подробнее. Как обсуждалось в предыдущем разделе, имеется два межзонных процесса, которые описываются матричными элементами  $M_{>, <}^x$  в соответствии с (9). Разделим по отдельности вклады от этих каналов в  $a_i = \alpha_{>} + \alpha_{<}$ . Спиновое расщепление сохраняет электрон-дырочную симметрию спектра, так что для процессов с переворотом спина (см. рис. 1) при нулевой температуре поглощение в обоих каналах оказывается возможно для энергии излучения  $\hbar\omega \geq 2\mu$ . Для вычисления данных вкладов в (11) нужно рассматривать индексы  $\beta = (+ \downarrow)$ ,  $\beta' = (- \uparrow)$  и  $\beta = (+ \uparrow)$ ,  $\beta' = (- \downarrow)$  для  $M_{>, <}^x$  соответственно. Используя (9), вычисление суммы удастся провести до конца и получить аналитические выражения

$$\alpha_{>, <} = \frac{\alpha_0}{4} \lambda_1^2 \left( 1 \pm \frac{\Delta_{\text{ex}}}{\hbar\omega} \right) \left( \frac{1}{\Delta_{\text{ex}}^2} + \frac{1}{(\hbar\omega)^2} \right) \Theta(\hbar\omega - 2\mu), \quad (14)$$

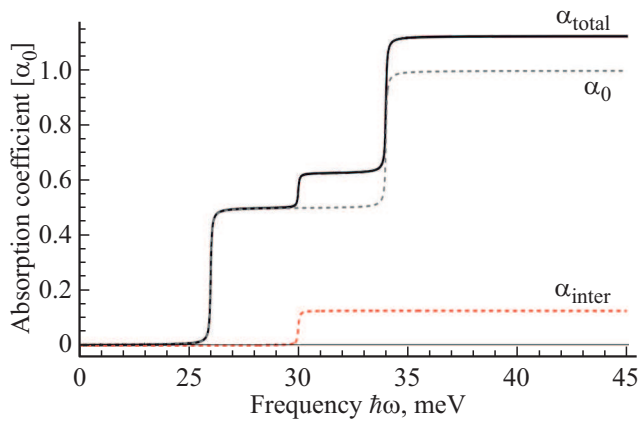
где плюс соответствует  $<$ , а минус —  $>$ . Приведенные формулы применимы для  $\mu > \Delta_{\text{ex}}/2$ . При дальнейшем уменьшении  $\mu$  важно учитывать переходы  $(+ \downarrow) \rightarrow (- \uparrow)$ , при этом знаменатель в (8) может обратиться в нуль, например при условии  $\varepsilon_{k, +, \downarrow} - \varepsilon_{k, -, \uparrow} = 2k v_F - \Delta_{\text{ex}} = 0$ . В этой области волновых векторов построенная теория возмущений не применима, и нужно вычислять поправки другим способом, например, выполняя точную диагонализацию полного гамильтониана. Здесь мы подробно не рассматриваем такую ситуацию и полагаем, что  $2k v_F \neq \Delta_{\text{ex}}$ .

Окончательное выражение для межзонного вклада в коэффициент поглощения

$$\alpha_{\text{inter}} = \frac{\alpha_0}{2} \lambda_1^2 \left( \frac{1}{\Delta_{\text{ex}}^2} + \frac{1}{(\hbar\omega)^2} \right) \Theta(\hbar\omega - 2\mu). \quad (15)$$

В пределе  $\mu \gg \Delta_{\text{ex}}$  он не зависит от частоты и равен  $(\alpha_0/2)(\lambda_1/\Delta_{\text{ex}})^2$ . Из работ [7,31] мы взяли оценки величин, определяющих спиновые расщепления,  $\Delta_{\text{ex}} = 4$  мэВ и  $\lambda_1 = 2$  мэВ, а энергию Ферми  $\mu = 15$  мэВ.

На рис. 3 представлен спектр полного коэффициента поглощения и вклады от конкретных процессов с сохранением и изменением спина в области частот, соответствующей межзонным переходам. Для выбранных



**Рис. 3.** Частотная зависимость коэффициента поглощения в области межзонных переходов и эффективность фотогенерации неравновесного спина. Параметры:  $\mu = 15$  мэВ,  $\Delta_{\text{ex}} = 4$  мэВ,  $\lambda_1 = 2$  мэВ.

параметров дисперсия  $\alpha_{\text{inter}}$  практически отсутствует. Ступенчатый характер  $\alpha_{\text{total}}$  связан со спиновым расщеплением дираковских конусов. Универсальное поглощение для каждого дираковского конуса начинается с разной энергии  $\hbar\omega$ , а расстояние между энергиями равно  $2\Delta_{\text{ex}}$  (рис. 1). Также в пределе  $\mu \gg \Delta_{\text{ex}}$  относительная роль переходов с переворотом спина

$$\frac{\alpha_{\text{inter}}}{\alpha_{\text{total}}} \approx \frac{\lambda_1^2}{2\Delta_{\text{ex}}^2}. \quad (16)$$

Для выбранных параметров структуры получаем оценку  $\approx 12\%$ . Строго говоря, полученное значение стоит считать верхней оценкой, так как в этом случае  $\lambda_1/\Delta_{\text{ex}} = 0.5$  и, соответственно, не мало.

Для оценки эффективности фотогенерации спина определим степень оптической ориентации  $P$  как отношение разности коэффициентов поглощения для процессов с разным спином к полному коэффициенту поглощения  $P = (\alpha_{>} - \alpha_{<})/\alpha_{\text{total}}$ . Данная величина показывает долю фотовозбужденных электронов с противоположной спиновой поляризацией относительно общего числа фотовозбужденных электронов в верхних дираковских конусах. В пределе  $\mu \gg \Delta_{\text{ex}}$  степень ориентации

$$P \approx \frac{\lambda_1^2}{2\Delta_{\text{ex}}\hbar\omega} \quad (17)$$

уменьшается с увеличением частоты  $P \propto \omega^{-1}$ . При отношении  $\Delta_{\text{ex}}/\mu \approx 0.25$  получаем  $P \approx 3\%$ .

## 5. Возможное экспериментальное наблюдение

Коэффициент поглощения атомарно-тонких материалов может быть измерен с достаточно большой точностью оптическими методами, например при изучении коэффициента отражения от гетероструктуры [49,50].

Обычно измеряется оптический контраст  $\delta_R = |R - R_g|$ , т.е. относительная разница между коэффициентами отражения от подложки с графеном  $R_g$  и без него  $R$ . Если  $n_s$  есть коэффициент преломления подложки и поглощение в графене мало, то имеет место соотношение

$$\delta_R \approx \frac{4\alpha_{\text{total}}}{n_s^2 - 1}. \quad (18)$$

Формируя дополнительные диэлектрические слои на графене, можно увеличить оптический контраст, что позволит измерять более тонкие вклады в поглощение [51]. Более того, в настоящее время развиваются сверхчувствительные схемы оптических исследований двумерных материалов, в том числе в терагерцовом диапазоне, основанные на использовании подложки в качестве интерферометра Фабри–Перо. Использование подобных экспериментальных методик открывает возможность непосредственного оптического детектирования эффекта фотогенерации спина при межзонных переходах в условиях, когда его эффективность достигает хотя бы 5–10%, и представляется возможным выделить вклад  $\alpha_{\text{inter}}$  на фоне случайных шумов [49,50]. Дополнительно, не зависящий от частоты вклад  $\alpha_{\text{inter}}$  в процессах с переворотом спина при подавленном  $\lambda_2$ -механизме должен, в теории, проявляться вплоть до ближнего инфракрасного диапазона. Отметим, что для наблюдения спектральных особенностей коэффициента поглощения, представленных на рис. 3, (в более низкой области частот) требуются низкие температуры и достаточно высокие подвижности электронов в графене. Обратное время рассеяния в энергетических единицах не должно превышать нескольких мэВ, в обратном случае интересующий отклик может маскироваться друдевским поглощением.

В качестве альтернативы прямым оптическим измерениям может использоваться схема электрического детектирования неравновесной спиновой поляризации в графене с помощью ферромагнитных контактов [52] и эффекта Джонсона–Сильсби [53]. Преимущество данной методики может состоять в том, что фотоздс определяется в основном неравновесной спиновой поляризацией электронов в графене, возникающей только в процессах фотогенерации спина.

## 6. Заключение

В работе были изучены процессы фотогенерации поляризованных по спину носителей заряда в структурах из графена на подложке из магнитного изолятора. Рассмотрены основные механизмы фотогенерации спина в условиях сильного эффекта магнитной близости и понижения симметрии на интерфейсе с подложкой. Показано, что учет не зависящих от импульса слагаемых, отвечающих за спин-орбитальное взаимодействие, в гамма-точке для электронов в графене приводит к появлению новых каналов генерации спин-поляризованных

носителей при межзонном поглощении света в дальнем ИК диапазоне частот. Из проведенных оценок предсказано, что для реалистичных параметров переходы с переворотом спина могут давать заметный вклад в полный коэффициент поглощения, при этом степень оптической ориентации спина достигает нескольких процентов. Полученные результаты могут использоваться для экспериментальных исследований эффекта магнитной близости в структурах на основе двумерных материалов, а также для развития устройств оптоэлектроники, использующих спиновую поляризацию носителей заряда в проводящих каналах.

## Благодарности

Авторы выражают признательность И.В. Рожанскому и Н.С. Аверкиеву (ФТИ им. А.Ф. Иоффе) за полезные научные обсуждения.

## Финансирование работы

Работа выполнена в рамках проекта № 22-22-20082 (соглашение РФФИ № 22-22-20082 от 25.03.2022, соглашение о предоставлении регионального гранта № 23/2022 от 14.04.2022).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] I. Žutić, A. Matos-Abiague, B. Scharf, H. Dery, K. Belashchenko. *Mater. Today*, **22**, 85 (2019).
- [2] K. Tran, G. Moody, F. Wu, X. Lu, J. Choi, K. Kim, A. Rai, D.A. Sanchez, J. Quan, A. Singh, J. Embley, A. Zepeda, M. Campbell, T. Autry, T. Taniguchi, K. Watanabe, N. Lu, S.K. Banerjee, K.L. Silverman, S. Kim, E. Tutuc, L. Yang, A.H. MacDonald, X. Li. *Nature*, **567** (7746), 71 (2019).
- [3] J.F. Sierra, J. Fabian, R.K. Kawakami, S. Roche, S.O. Valenzuela. *Nature Nanotechnol.*, **16** (8), 856 (2021).
- [4] D.K. Efetov, L. Wang, C. Handschin, K.B. Efetov, J. Shuang, R. Cava, T. Taniguchi, K. Watanabe, J. Hone, C.R. Dean, P. Kim. *Nature Physics*, **12** (4), 328 (2015).
- [5] G. Wang, A. Chernikov, M.M. Glazov, T.F. Heinz, X. Marie, T. Amand, B. Urbaszek. *Rev. Mod. Phys.*, **90** (2) (2018).
- [6] F. Cadiz, E. Courtade, C. Robert, G. Wang, Y. Shen, H. Cai, T. Taniguchi, K. Watanabe, H. Carrere, D. Lagarde, M. Manca, T. Amand, P. Renucci, S. Tongay, X. Marie, B. Urbaszek. *Phys. Rev. X*, **7** (2) (2017).
- [7] P. Wei, S. Lee, F. Lemaitre, L. Pinel, D. Cutaia, W. Cha, F. Katmis, Y. Zhu, D. Heiman, J. Hone, J.S. Moodera, C.-T. Chen. *Nature Materials*, **15** (7), 711 (2016).
- [8] P.U. Asshoff, J.L. Sambricio, A.P. Rooney, S. Slizovskiy, A. Mishchenko, A.M. Rakowski, E.W. Hill, A.K. Geim, S.J. Haigh, V.I. Fal'ko, I.J. Vera-Marun, I.V. Grigorieva. *NPJ 2D Mater.*, **4** (3), 031004 (2017).
- [9] E. Cobas, A.L. Friedman, O.M.J. van't Erve, J.T. Robinson, B.T. Jonker. *Nano Lett.*, **12** (6), 3000 (2012).
- [10] A. Dahal, M. Batzill. *Nanoscale*, **6** (5), 2548 (2014).
- [11] M. Cattelan, G.W. Peng, E. Cavaliere, L. Artiglia, A. Barinov, L.T. Roling, M. Favaro, I. Piš, S. Nappini, E. Magnano, F. Bondino, L. Gavioli, S. Agnoli, M. Mavrikakis, G. Granozzi. *Nanoscale*, **7** (6), 2450 (2015).
- [12] W.Q. Liu, W.Y. Wang, J.J. Wang, F.Q. Wang, C. Lu, F. Jin, A. Zhang, Q.M. Zhang, G. van der Laan, Y.B. Xu, Q.X. Li, R. Zhang. *Sci. Rep.*, **5** (1), 1 (2015).
- [13] A.G. Swartz, P.M. Odenthal, Y. Hao, R.S. Ruoff, R.K. Kawakami. *ACS Nano*, **6** (11), 10063 (2012).
- [14] Z. Wang, C. Tang, R. Sachs, Y. Barlas, J. Shi. *Phys. Rev. Lett.*, **114**, 016603 (2015).
- [15] B. Karpik, A.W. Cummings, K. Zollner, M. Vila, D. Khokhriakov, A.M. Hoque, A. Dankert, P. Svedlindh, J. Fabian, S. Roche, S.P. Dash. *NPJ 2D Mater.*, **7** (1), 015026 (2019).
- [16] T.S. Ghiasi, A.A. Kaverzin, A.H. Dismukes, D.K. de Wal, X. Roy, B.J. van Wees. *Nature Nanotechnol.*, **16** (7), 788 (2021).
- [17] Y.Wu, G. Yin, L. Pan, A.J. Grutter, Q. Pan, A. Lee, D.A. Gilbert, J.A. Borchers, W. Ratcliff, A. Li, X. dong Han, K.L. Wang. *Nature Electron.*, **3** (10), 604 (2020).
- [18] K. Zollner, M. Gmitra, J. Fabian. *New J. Phys.*, **20** (7), 073007 (2018).
- [19] C. Tang, Z. Zhang, S. Lai, Q. Tan, W.-b. Gao. *Adv. Mater.*, **32** (16), 1908498 (2020).
- [20] B. Zhou, S. Ji, Z. Tian, W. Cheng, X. Wang, W. Mi. *Carbon*, **132**, 25 (2018).
- [21] M.U. Farooq, J. Hong. *NPJ 2D Mater. Appl.*, **3** (1), 1 (2019).
- [22] K. Zollner, M.D. Petrović, K. Dolui, P. Plecháč, B.K. Nikolić, J. Fabian. *Phys. Rev. Res.*, **2** (4), 043057 (2020).
- [23] V.M. Karpan, G. Giovannetti, P.A. Khomyakov, M. Talanana, A.A. Starikov, M. Zwierzycki, J. van den Brink, G. Brocks, P.J. Kelly. *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 176602 (2007).
- [24] V.M. Karpan, P.A. Khomyakov, A.A. Starikov, G. Giovannetti, M. Zwierzycki, M. Talanana, G. Brocks, J. van den Brink, P.J. Kelly. *Phys. Rev. B*, **78** (19) (2008).
- [25] J.-F. Dayen, S.J. Ray, O. Karis, I.J. Vera-Marun, M.V. Kamalakar. *Appl. Phys. Rev.*, **7** (1), 011303 (2020).
- [26] J. Xu, S. Singh, J. Katoch, G. Wu, T. Zhu, I. Žutić, R.K. Kawakami. *Nature Commun.*, **9** (1), 1 (2018).
- [27] C. Tang, B. Cheng, M. Aldosary, Z. Wang, Z. Jiang, K. Watanabe, T. Taniguchi, M. Bockrath, J. Shi. *APL Mater.*, **6** (2), 026401 (2018).
- [28] H.X. Yang, A. Hallal, D. Terrade, X. Waintal, S. Roche, M. Chshiev. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 046603 (2013).
- [29] P. Lazić, K.D. Belashchenko, I. Žutić. *Phys. Rev. B*, **93** (24), 241401 (2016).
- [30] W. Han, R.K. Kawakami, M. Gmitra, J. Fabian. *Nature Nanotechnol.*, **9** (10), 794 (2014).
- [31] J.H. Garcia, M. Vila, A.W. Cummings, S. Roche. *Chem. Soc. Rev.*, **47** (9), 3359 (2018).
- [32] A. Avsar, H. Ochoa, F. Guinea, B. Özyilmaz, B.J. van Wees, I.J. Vera-Marun. *Rev. Mod. Phys.*, **92**, 021003 (2020).
- [33] E.C. Ahn. *NPJ 2D Mater. Appl.*, **4** (1), 1 (2020).
- [34] M. Gmitra, J. Fabian. *Phys. Rev. B*, **92** (15), 155403 (2015).
- [35] T. Kampfrath, 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** (4), 256 (2013).
- [36] Э.И. Памба. *ФТТ*, **2** (6), 1224 (1960).
- [37] E. Rashba, A.L. Efros. *Appl. Phys. Lett.*, **83** (25), 5295 (2003).
- [38] M. Duckheim, D. Loss. *Nature Phys.*, **2** (3), 195 (2006).

- [39] V.K. Dugaev, E.Y. Sherman, J. Barnaś. Phys. Rev. B, **83**, 085306 (2011).
- [40] M. Inglot, V.K. Dugaev, E.Y. Sherman, J. Barnaś. Phys. Rev. B, **89**, 155411 (2014).
- [41] Ю.А. Бычков, Э.И. Рашба. Письма ЖЭТФ, **39**(2), 66 (1984).
- [42] S. Konschuh, M. Gmitra, J. Fabian. Phys. Rev. B, **82**(24), 245412 (2010).
- [43] M.H.D. Guimarães, P.J. Zomer, J. Inglá-Aynés, J.C. Brant, N. Tombros, B.J. van Wees. Phys. Rev. Lett., **113**, 086602 (2014).
- [44] C.L. Kane, E.J. Mele. Phys. Rev. Lett., **95**(22) (2005).
- [45] M. Offidani, M. Milletteri, R. Raimondi, A. Ferreira. Phys. Rev. Lett., **119**, 196801 (2017).
- [46] A.W. Cummings, J.H. García, J. Fabian, S. Roche. Phys. Rev. Lett., **119**(20) (2017).
- [47] M. Offidani, R. Raimondi, A. Ferreira. Condens. Matter, **3**(2), 18 (2018).
- [48] M.I. Dyakonov (ed.). *Spin Physics in Semiconductors* (Springer, Berlin-Heidelberg, 2008).
- [49] K.F. Mak, M.Y. Sfeir, Y. Wu, C.H. Lui, J.A. Misewich, T.F. Heinz. Phys. Rev. Lett., **101**(19) (2008).
- [50] Z. Li, E.A. Henriksen, Z. Jiang, Z. Hao, M.C. Martin, P. Kim, H.L. Stormer, D.N. Basov. Nature Physics, **4**(7), 532 (2008).
- [51] D.S.L. Abergel, A. Russell, V.I. Fal'ko. Appl. Phys. Lett., **91**(6), 063125 (2007).
- [52] L.A. Benítez, J.F. Sierra, W.S. Torres, A. Arrighi, F. Bonell, M.V. Costache, S.O. Valenzuela. Nature Physics, **14**(3), 303 (2017).
- [53] M. Johnson, R.H. Silsbee. Phys. Rev. Lett., **55**, 1790 (1985).

Редактор А.Н. Смирнов

## Efficient spin generation in graphene by magnetic proximity effect upon absorption of far-IR radiation

*K.S. Denisov, K.Yu. Golenitskii*

loffe Institute,  
194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** The magnetic proximity effect is significant for atomically thin layers of two-dimensional materials. In this paper, we study the mechanisms of photogeneration spin-polarized charges in graphene on a magnetic insulator. The magnetic proximity effect and lowered symmetry at the interface enhance the spin response of graphene in the alternating electric field of the incident light. The first leads to spin splitting of the linear spectrum of Dirac electrons. The second increases the role of the spin-orbit interaction. The main mechanisms of photogenerated spin polarization have been considered, including spin flip intersubband and interband transitions, and their contribution to the absorption coefficient of graphene.