國立臺灣師範大學理學院物理學系

### 碩士論文

Department of Physics

College of Science

National Taiwan Normal University Master's Thesis

在二維材料系統和層間交換耦合系統中使用渦旋光改變 其磁各向異性

Magnetic anisotropy modification by twisted light in the systems of 2D-materials and interlayer exchanged coupling heterojunction

# 王祥安

# Siang-An Wang

指導教授 : 藍彥文 博士

Advisor: Yann-Wen Lan, Ph.D.

中華民國109年7月

July 2020

#### 致謝

本篇論文的完成,要感謝的人太多了,這邊就稍微淺談每個人對我的幫助並致上 謝意,真正感謝的話,寫上數十頁可能也寫不完。首先要感謝我的指導教授藍彥文老 師,在我研究的過程中給了我許多的意見與幫助,拓展了我對學術的眼界,再來要感 謝陸亭樺老師,在我實驗的過程中給予我許多的幫忙,還有教導我許多光學的知識與 寫程式的能力。另外還要感謝林文欽老師,不吝於指正我關於磁學的錯誤觀念。最後 要感謝李愷信博士在我的口考上給予我指導。

接著要感謝的是俊毅,耗費相當多的時間協助我整理龐大的數據,並且與我一同 探討可能的機制。以及感謝騰德、冠穎、昱帆你們在我實驗的過程中協助我校正光 路。還要感謝一介、馭升你們生長 MoS2 樣品給予我使用,還有要感謝澤銘幫我的樣 品鍍上金屬層,以及銓喆、博鈞學長教我如何使用磁光柯爾顯微鏡還有相關數據分析 的方法。

再來要感謝感謝 Kristan、文豪、Wendy、亮宇、瑀真、文山等等你們,有你們在 的實驗室才是我所認識的,開心、活躍的實驗室。總而言之只能說在碩班的這條路 上,缺少了你們之中的誰,都沒有這篇論文的誕生,因此在此獻上我最深的謝意,祝 還在大學、碩、博的同學,你們的實驗、學業一切順利。

最後,也要感謝我的父母在我就讀碩士的這段時間支持我,栽培我,讓我有辦法 在接近30歲的現在重新回到校園完成碩士的學位,在碩士畢業之後我會更加的努力 來回報你們的栽培,希望你們能夠健康平安的讓我好好的孝順你們直到永遠。

T

本研究將拉蓋爾-高斯(Laguerre-Gaussian, LG)光束照射在磁性材料上,藉以探討帶 有軌道角動量的渦旋光應用於「磁-光記憶元件」的可行性。首先,選用層間交換耦合 系統的原因是因為其上下層磁性材料之磁矩,可以藉由中間過渡金屬層而互相耦合成 平行、反平行或垂直而有非揮發性的記憶特性,因此有利於用來觀察記錄光對於材料 的影響。另一方面,LG 光束的電場、磁場與偏振光不同的是其在空間中分布不均匀的 特性,在光照區域裡被預期有環形電流與衍生之局部性磁場,具有相當大的潛力能如 同光的自旋角動量般,運用於光儲存元件。實驗結果顯示,渦旋光確實可以偏轉層間 交換耦合系統的磁易軸,偏轉的方向也與光的軌道角動量方向有關連,本文也針對其 偏轉的現象提出三種可能的機制。這項觀察亦可推廣至「鐵磁材料-二維材料異質性介 面」,由於鈷和單層二硫化鉬之間因為「鈷-硫」鍵結有自旋軌道耦合,使得鈷和二硫 化鉬結合時會交互耦合。其介面的強耦合也可以使用來記錄磁性的改變。經實驗發現, 照射 LG 光束後磁各向異性也會隨之變化。間接證明了磁性材料與二維材料的結合也 可以用來當作一種新的磁儲存的結構。

關鍵詞:渦旋光、磁各向異性

Ш

### Abstract

In this study, we introduce the Laguerre-Gaussian (LG) beam on magnetic materials to study the possibility of applying orbital angular momentum (OAM) of light to the "magnetooptical memory devices". For an interlayer exchanged coupling (IEC) system, the magnetizations of the upper and bottom magnetic materials layer coupled to each other with parallel, antiparallel, or perpendicular alignments through the intermediate transition metal layer. Because of its non-volatile memory properties, the IEC system is beneficial for observing the consequence of the twisted light illumination. On the other hand, the electric field and magnetic field of an LG beam have the helical vortex property, so we expect a ring current and induced local magnetic field appearing when the LG beam illuminates on sample's surface. The experimental results show that light with OAM can indeed deflect the magnetic easy axis of the IEC system, and the direction of the rotation is related to the sign of the topological charge. In this thesis, I propose three possible mechanisms for explaining this phenomenon. This observation can also be extended to the "ferromagnetic material-twodimensional material heterogeneous interface". According to the previous publication, Co and MoS<sub>2</sub> are coupled together through the "Co-S" bonding. It is found that the magnetic anisotropy will also be changed after the LG beam irradiation. This indicates the combination of magnetic materials and two-dimensional TMDCs materials has the potential to be a new type of magnetic storage material.

Keywords: Twisted light, Magnetic anisotropy

# **Table of Contents**

致謝	I
摘要	II
Abstract	III
Table of Contents	IV
List of Tables	VI
List of Figures	VII
章節 1 緒論	1
章節 2 實驗原理與裝置	4
2-1 樣品製備	4
2-1-1 Co/Ru/Co 系統	4
2-1-2 MoS2 製程	4
2-1-3 Co/MoS <sub>2</sub> 系 統	5
2-2 層間交換耦合(Interlayer Exchanged Coupling)	6
2-3 拉蓋爾-高斯(Laguerre-Gaussian)光束	8
2-4 磁光柯爾效應(Magneto-Optical Kerr Effect, MOKE)	12
2-5 磁性材料	15
2-5-1 鐵磁性材料	15
2-5-2 磁各向異性(Magnetic Anisotropy, MA)	17
2-6 二維材料	20
2-7 儀器設備	22
2-7-1 空間光調製器(Spatial Light Modulator, SLM)	22
2-7-2 磁光柯爾顯微鏡(Magneto-Optical Kerr Microscopy)	24
2-7-3 拉曼光譜儀(Raman Spectrometer)	
2-7-4 電子束磊晶系統	
章節 3 實驗結果—層間交換耦合系統	
3-1 樣品介紹	
3-2 實驗程序	
3-3 渦旋光改變材料鐵磁特性	
3-4 渦旋光改變材料磁各向異性	

3-5 渦旋光調控磁各向異性實驗	
3-6 無層間交換耦合情況探討	41
章節 4 實驗結果—鐵磁性材料與二維材料之異質界面	42
4-1 樣品介紹	
4-2 實驗程序與數據分析	
章節 5 結果機制探討	49
5-1 渦旋光致環電流產生垂直磁場	
5-2 渦旋光環電流引起自旋霍爾效應	51
5-3 渦旋光本身的磁場梯度	
章節 6 結論與未來展望	55
6-1 結論	
6-2 未來展望	
參照文獻	



# **List of Tables**

表	1	磁光柯爾效應類型關係圖14	4
表	2	磁性材料分類圖1	5
表	3	磁各向異性分類圖1	7
表	4	曲線上各點鐵磁層、反鐵磁層磁矩示意圖。1	9
表	5	空間光調製器規格表	3



# **List of Figures**

圖 1 Co/Ru/Co 系統樣品示意圖與光學顯微鏡圖4
圖 2 化學氣相沉積裝置示意圖5
圖 3 耦合係數具有阻尼震盪的特性,並隨間隔層厚度而改變6
圖 4 Co/Ru/Co 系統中固定磁性層厚度改變間隔層厚度層對磁疇改變的磁力
顯微鏡圖 <sup>24</sup> 7
圖 5 (a)LG 光束的波前示意圖。(b)由上到下分別為 LG 光束光學顯微鏡圖、
理論模擬光強度圖、相位圖。8
圖 6 理論模擬光強度圖,右上小圖為實驗光學顯微鏡下的實驗光圖9
圖 7 理論模擬光電流密度圖(繞中心環形電流)10
圖 8 理論模擬磁場大小圖(面外方向)11
圖 9 施加正場(A)、負場(B)時的磁光柯爾顯微鏡圖。13
圖 10 磁滯曲線,因交換各向異性產生的交換偏壓令材料磁化強度轉換點,
皆在正場或負場。18
圖 11 MoS <sub>2</sub> 結構示意圖。圖中藍色球代表 Mo 原子、黃色球代表 S 原子21
圖 12 空間光調製器裝置圖
圖 13 磁光柯爾顯微鏡裝置圖,紅色箭頭為光路方向24
圖 14 磁滞曲線介紹
圖 15 (a)剛去除背景時的圖形。(b)量測完畢時的圖形

圖 16	量測所得灰階數據圖
圖 17	調整磁場使起始磁場與最終磁場的磁化強度相同26
圖 18	磁滞曲線分析完成圖
圖 19	拉曼光譜儀裝置圖
圖 20	電子束蒸鍍系統裝置圖
圖 21	光學顯微鏡圖與樣品結構圖30
圖 22	面內方向的磁滞曲線圖31
圖 23	面外方向的磁滞曲線圖31
圖 24	渦旋光光路示意圖
圖 25	磁光柯爾顯微鏡裝置圖
圖 26	渦旋光改變材料鐵磁特性實驗數據圖35
圖 27	矯頑力量測示意圖。
圖 28	(a)、(b)分別為照射渦旋光前、後的極化量測。37
圖 29	照光前各角度磁滞曲線圖37
圖 30	照光後各角度磁滞曲線圖38
圖 31	渦旋光調控磁各向異性實驗數據圖,圖中藍色箭頭表示磁易軸方向。
7	占下角小圖為實驗機制示意圖。40
圖 32	使用渦旋光對無層間交換耦合系統的磁性材料照射分析圖。(a)照光
Ē	ń、(b)照光時、(c)照光後41

圖 33 MoS <sub>2</sub> 的拉曼量測曲線圖。42
圖 34 MoS <sub>2</sub> 的 PL 量測曲線圖。43
圖 35 磁光柯爾顯微鏡系統的光學顯微鏡圖與樣品結構示意圖44
圖 36 有 MoS2 與沒有 MoS2 的磁滞曲線量測圖45
圖 37 (a)(b)(c)分別為不同 MoS2 照射渦旋光實驗數據圖。圖中的黑點為量測
得到的數據點,而紅線是將角度 X 和角度 X+10 與角度 X-10 的數據平
均後相連,使曲線平滑,更好的看出易軸的方向。46
圖 38 使用光功率(a)2.5mW、(b)3.5mW,不帶有角動量的線偏振光源照射在
二維材料系統上前、後的矯頑力分析圖。47
圖 39 渦旋光調控二維材料系統的磁各向異性實驗數據圖。圖中的紅線為輔
助線、藍線為磁易軸方向。48
圖 40 渦旋光致垂直磁場改變上層 Co 層磁矩的機制示意圖。圖中藍色箭頭
為環形電流方向、橘色箭頭為磁場方向、淺紅色箭頭為該層磁矩原本的
方向、深紅色箭頭為磁矩被磁場改變後的方向。此結構的上下層磁矩因
層間交換耦合系統彼此正交,因此翻轉上層磁矩時,下層磁矩也會跟著
翻動。
圖 41 渦旋光致自旋轉換矩改變上層 Co 層磁矩的機制示意圖。52
<b>圖 42 渦旋光的磁場梯度變化產生使磁矩旋轉。5</b> 4

### 章節 1 緒論

隨機存取記憶體 (Random Access Memory, RAM) 是電腦內部最主要的記憶體,其中又 分為揮發性的動態隨機處理記憶體 (Dynamic Random Access Memory, DRAM) 與非揮發性 靜態隨機處理記憶體 (Static Random Access Memory, SRAM) 兩大類 1-6,近幾年又有同時兼 具運算、儲存能力的新世代記憶體如磁阻式隨機存取記憶體 (Magnetoresistive Random Access Memory, MRAM) 、 可變電阻式記憶體 (Resistive Random-Access Memory, RRAM)<sup>7,8</sup> 等等。其中本文特別要講述的是 MRAM, MRAM 是由兩個鐵磁層磁矩方向的變化, 使得單 元 (Cell) 量測到的電阻不同來紀錄資訊,具有低耗能、非揮發、半永久的特性,再藉由巨 磁阻 (Giant Magnetoresistance, GMR) 效應,分辨出磁區的1和0兩種位元,GMR 效應來自 於極化後的電子流,電流流過固定磁化方向的磁性層時,電子被極化,而被極化的電子穿過 磁性穿隧界面 (Magnetic Tunnel Junction, MTJ) 後,抵達的磁性層如和固定層磁化方向相同 時,電流會順利通過,但是如果方向相反,則自旋電子會被與該反平行磁性層中的磁矩散射, 變得難以流通,使得電阻上升。傳統的 MRAM 利用磁場來改變寫入層的磁矩,這個方式的 缺點是需要使用較大的電流來產生感應磁場,以及因單元尺寸的縮小,使得感應磁場與旁邊 區域單元重疊,易使資訊寫入產生錯誤。因此,人們開始研究自旋電流對磁性的改變,自旋 傳輸力矩磁性隨機存取記憶體 (Spin-Torque Transfer MRAM, STT-MRAM) 因此接著誕生, STT-MRAM 的竄紅乃因其優點是讀取寫入過程中皆無須磁場參與,因此可以把元件小型化。 藉由大量的極化電子流將自旋矩傳遞給寫入層,以改變寫入層的磁性位元9-13。但有一難以 克服的缺點是,寫入電流直接流經 MTJ,容易產生多餘廢熱,使得元件的壽命下降,所以近 幾年陸續有自旋軌道轉矩式磁性隨機存取記憶體 (Spin-Orbital-Torque MRAM, SOT-MRAM) 的研究<sup>14-16</sup>,其與STT-MRAM 最大的不同是電流無須流過 MTJ,這項特性使的元件的壽命 大幅上升。SOT-MRAM 的原理為,當電流流經具有強自旋軌道作用的重金屬層時,會產生 自旋霍爾效應,因而引起自旋軌道矩影響磁性層磁化方向<sup>17</sup>。MRAM 另一個缺點是,隨著 材料厚度小到一定尺寸時,材料將無法維持其鐵磁性的特性。近幾年來,有研究指出磁性材 料與二維材料之間的耦合可使二維材料變成磁性材料<sup>18,19</sup>。因此,二維材料與磁性材料的結 合將很有潛力被用來替 MRAM 簡化結構和縮小尺寸。另外,既然電流與磁場分別都能夠改 變鐵磁性材料的磁性,那麼同時具有電場以及磁場特性的光是否也能夠用來改變材料的磁 性,這也是這篇論文想要探討的部分。

由 Nature Materials 中於 2014 年由 S. Mangin 發表的文章可知,脈衝光加上不同的自旋 角動量 (Spin-Angular-Momentum, SAM),可以高效又高速的改變特定區域的數據寫入,從 而使記憶體不再受限於體積,而是以光點大小來當作數據庫的基本單位,使容量可以大幅的 增長<sup>20</sup>,但是使用受限於其使用飛秒脈衝雷射,與日常使用雷射所需要的功耗差異過大,限 制了日常應用的發展。另外,光除了 SAM 外,還有軌道角動量 (Orbital-Angular Momentum, OAM) 這個自由度可以探討。本文所探討帶有 OAM 的光為拉蓋爾高斯 (Laguerre-Gaussian, LG) 光束,LG 光束與物質交互作用時,因為光電場梯度使電子受到一梯度力而流動來產生 電流,並且是環形的驅動電流。再由右手定則可以計算出此環形電流感應出的磁場<sup>21</sup>。

本論文將呈現一系列實驗數據,論述帶有 OAM 的光如何改變樣品的磁各向異性,並推 廣至鐵磁性二維材料系統,並從實驗數據可以看到,在室溫下,使用波長 532nm 的 LG 光

2

束照射在 Co/Ru/Co 系統上,可以將磁性材料從鐵磁性轉換成順磁性、也可以改變磁易軸的 角度,說明 LG 光束對磁性材料的影響。接著將磁性材料鈷 (Co) 與二維材料二硫化鉬 (MoS2) 結合,因其鈷-硫鍵結導致的層間耦合,使得此異質界面,不需多層系統也可以同 IEC 系統般,有鎖定寫入層的效果。經過 LG 光束的照射後,發現同樣可以使磁易軸偏轉,間接 證明 Co/ MoS2 可以當作 MRAM 結構的一種。期望未來可以推廣到使用磁性半導體,在大 幅的簡化結構的同時,使用將光點大小當作單元大小,利用 LG 光束寫入磁訊號並使用磁光 柯爾效應 (Magneto-Optical Kerr Effect, MOKE) 讀取訊號,甚或至未來可以用磁阻方式讀取 電流訊號,發展出一個低功耗、非揮發、半永久、高反應速度、高元件壽命的全新 MRAM 結構。



### 章節 2 實驗原理與裝置

#### 2-1 樣品製備

#### 2-1-1 Co/Ru/Co 系統

本實驗所使用的層間交換耦合 (Interlayer Exchanged Coupling, IEC) 結構為Co/Ru/Co 三 明治結構以固定上下層磁化方向彼此正交。其中各層金屬厚度是由實驗中量測不同厚度的 情形下,擁有最明顯的面內方向鐵磁特性(1.2nm)與面外方向鐵磁特性(0.4nm)後所選擇的<sup>17。</sup> 製備方式為透過磁控濺射技術在 10<sup>-6</sup> 帕的壓力下將金屬沉積在 Si/SiO<sub>2</sub> 基板上,在沉積的過 程中外加一個平面磁場,來誘導樣品的磁易軸方向與材料的形狀異向性方向相同。並且在此 疊層上下各覆蓋一層 Pt 保護磁性層不被氧化,然後再用紫外光光刻和氫離子蝕刻的方式將 疊層圖案化。



圖 1 Co/Ru/Co 系統樣品示意圖與光學顯微鏡圖

#### 2-1-2 MoS2 製程

先將 SiO2 基板、MoO3、硫粉分別放在石英管內的不同區域,架構示意圖如圖 2。實驗 過程中,全程持續施加傳輸速率為 500cm<sup>3</sup>/min 的氫氣,將石英管內的空氣排出,令空氣分 子不對基板造成太大的影響。由於 MoO3 的熔點為攝氏 795 度,因此第一步驟為加溫到攝氏 800 度,令硫粉與 MoO3 昇華為氣態,並且在頂溫攝氏 800 度停留三十分鐘。使氣態硫與氣 態 MoO3 有足夠的時間進行反應,並沉積在 SiO2 基板上 <sup>22</sup>。這種透過化學反應生長材料的 方法被通稱為化學氣相沉積法 (Chemical Vapor Deposition, CVD)。



圖 2 化學氣相沉積裝置示意圖

#### 2-1-3 Co/MoS2 系統

本研究使用的二維材料系統結構為 Co/MoS2, 是先在 SiO2 基板上生長 MoS2, 再將單層 的 MoS2 樣品放進超高真空系統內, 然後在 10<sup>-8</sup> torr 的壓力之下開啟分子渦輪幫浦,將氣體 快速的排出,並用加熱帶纏繞整個腔體在用鋁箔紙包覆,使得抽氣過程中可以加熱腔體,讓 真空腔內壁的氣體分子脫落,最後再使用電子槍將電子束打在靶材上加熱 Co 以此進行鍍膜, 將 Co 沉積在 MoS2 樣品上。這種透過物理方式加溫不經過任何化學反應的沉積方法通稱為 物理氣相沉積法 (Physical Vapor Deposition, PVD) 。

# 2-2 層間交換耦合(Interlayer Exchanged Coupling)

IEC 的效應是源自於 Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 四人所提出的交互作 用理論與自旋電子穿隧效應,是在兩層鐵磁性層中間夾雜一層非磁性層的三明治結構,透過 兩個磁性層的傳導電子與非磁性層中的 d 軌域電子或 f 軌域電子交互作用,使磁性層的磁化 強度相互耦合。這種耦合隨著間隔層的厚度變化,呈現一個震盪曲線<sup>23</sup> 如圖 3。圖 4 是由 Lanping Yue 團隊在 2009 年於 ScienceDirect 發表的文章<sup>24</sup> 中擷取而出,圖中可見 Co/Ru/Co 系統中使用不同厚度的 Ru 層在磁力顯微鏡(MFM)下的圖也可看出明顯的區別。本實驗所使 用的 Co/Ru/Co 厚度參數則是經由多種不同厚度比較<sup>17</sup>,量測面內與面外的磁光柯爾訊號, 反映出最為明顯的鐵磁性以及相對而言雜訊最小的厚度。



圖 3 耦合係數具有阻尼震盪的特性,並隨間隔層厚度而改變



圖 4 Co/Ru/Co 系統中固定磁性層厚度改變間隔層厚度層對磁疇改變的磁力顯



### 2-3 拉蓋爾-高斯 (Laguerre-Gaussian) 光束

由馬克斯威方程式可以知道,光是一種帶有動量與能量的電磁波。其中包含了由偏振性 決定的 SAM 以及光場空間分布決定的 OAM。帶有 SAM 的光,別稱為偏振光,其自旋角動 量σ的大小在正負1之間。那麼帶有 OAM 的光呢?LG 光束是人們最早實現的 OAM 的光, 其相位e<sup>-i10</sup>與方位角有關,波前是纏繞數為1的螺旋波前,而LG 光束並非唯一具有螺旋波 前的光,其他相同具有 OAM 的光,如貝索光束 (Bessel beam) 、馬修光束 (Mathieu-Gauss beam) 、恩斯高斯光束 (Ince-Gaussian Beam) 等等也同樣具有螺旋波前,因此也稱呼帶有 OAM 的光為螺旋光、渦旋光。在本實驗中,只使用到了LG 光束,以下由理論分析LG 光 束的特殊性所在。



圖 5 (a)LG 光束的波前示意圖。(b)由上到下分別為 LG 光束光學顯微鏡圖、理論模擬光強度圖、相位圖。

首先,LG光束是高斯光束的一種變化,將高斯光束的電場公式如公式(1)

$$E_G = E_0 \times \frac{\omega_0}{\omega(z)} \times e^{\frac{-r^2}{\omega^2(z)}} \times e^{-ik_0 z} \times e^{-i\left(\frac{k_0 r^2}{2R(z)}\right)} \times e^{-i\tan^{-1}\frac{z}{z_R}}$$
(1)

乘上拉蓋爾多項式得到 LG 光束的電場公式如公式(2):

$$E_{LG} = C_{lp}^{LG} \times E_G \times LG_p^{|l|} \left(\frac{2r^2}{\omega^2(z)}\right) \times \left(\frac{\sqrt{2}r}{\omega(z)}\right)^{|l|} \times e^{-i(l\phi-\theta_0)} \times e^{-i\tan^{-1}\frac{z}{z_R}(2p+|l|)}$$
(2)

得到電場後,可以藉此計算出 LG 光束的光強度公式如公式(3)<sup>25</sup>:

$$I(r,z) = |\mu(r,\emptyset,z)|^{2} = \left| C_{lp}^{LG} \frac{\omega_{0}}{\omega(z)} \left( \frac{\sqrt{2}r}{\omega(z)} \right)^{|l|} e^{\frac{-r^{2}}{\omega^{2}(z)}} LG_{p}^{|l|} \left( \frac{2r^{2}}{\omega^{2}(z)} \right) \times e^{-ik\frac{r^{2}}{2R(z)}} e^{-il\emptyset} e^{-i\varphi(z)} \right|^{2}$$
$$= \frac{2p!}{\pi(p+|l|)!} \times \left( \frac{P_{0}}{\omega^{2}(z)} \right) \times \left( \frac{2r^{2}}{\omega^{2}(z)} \right)^{|l|} \times e^{\left( \frac{-2r^{2}}{\omega^{2}(z)} \right)} \times \left\{ L_{p}^{|l|} \left( \frac{2r^{2}}{\omega^{2}(z)} \right) \right\}^{2}$$
(3)

其中μ(r,Ø,z)為電場函數、C<sup>LG</sup>為歸一化函數、LG<sup>[l]</sup>(2r<sup>2</sup>/ω<sup>2</sup>(z))為廣義拉蓋爾多項式。在 本實驗中,皆在聚焦情況下照射LG光束,因此z預設為0,且由實驗光圖可知當徑向量子 數為0的情況下,計算出的光強度圖如圖6。



圖 6 理論模擬光強度圖,右上小圖為實驗光學顯微鏡下的實驗光圖

並且由電場梯度差異與金屬表面電子海交互作用<sup>21</sup>計算可得電流密度如公式(4):

$$j = \frac{l\hbar}{m_e^* r} |\mu(r, \emptyset, z)|^2$$
(4)

,其中將電子有效質量<sup>26</sup>代入本實驗所使用的 Pt,並代入本實驗所使用的光功率 2.5mW 攜帶軌道角動量量子數*l*=+5,所得模擬電流密度*j*如圖 7。



圖 7 理論模擬光電流密度圖(繞中心環形電流)

接著使用必歐-沙伐定律計算此模擬環電流引起的垂直材料表面磁場如公式(5):

$$B(r,z) = \frac{\mu_0 I(r,z)}{2r} = \frac{\mu_0 \times 2\pi r \times J(r,z)}{2r} = \mu_0 \pi \times J(r,z)$$
(3)

模擬圖如圖8。



圖 8 理論模擬磁場大小圖(面外方向)

由以上的理論模擬可以推測,LG光束所產生的電流密度大小高達 8×10<sup>10</sup>A/m<sup>2</sup>,且電流 引起的磁場大小高達 4 kOe 也就是 0.4 T,因此是相當有潛力在各方面應用的一種方式。

#### 2-4 磁光柯爾效應(Magneto-Optical Kerr Effect, MOKE)

對一磁性材料施加磁場時,其材料本身折射率會產生磁雙折射的現象,也就是左旋光與 右旋光的折射率有所不同,使得傳播速率不同產生相位差。這時照射一線偏振光源到此材料 時,其反射光的偏振態會由線偏振轉變為橢圓偏振,此時橢圓偏振光的長軸與線偏振光的夾 角稱為柯爾旋轉角θk(θk<<1°)、橢圓偏振光的橢圓率稱為柯爾橢圓率ηk(ηk<<1°),並且 與材料本身的磁化強度成正比。由入射光的偏振方向和光入射平面的方向定義平行入射平 面的偏振光為 P 波、垂直入射平面的偏振光為 S 波。以入射光為 P 波情況下,反射光的 P 波與 S 波的電場分量與θk 和ηk 關係如公式(6):

$$\frac{E_s}{E_p} = \theta_k + i\eta_k \tag{6}$$

所以量測E<sub>s</sub>/E<sub>p</sub>便可以得到柯爾訊號,實驗上會使用檢偏器並在其前方放置四分之一波 片,定義檢偏器轉到平行S波方向角度為0°,在極小的偏轉角度δ(δ≒0°)下,反射光強 度I可以寫成公式(7):

$$I = \left| E_s \sin \delta + E_p \cos \delta \right|^2 \tag{7}$$

由於 θ<sub>k</sub><<1°, 所以E<sub>s</sub> ≪ E<sub>p</sub>,將公式(6)代入公式(7)後,反射光強度 I 可以改寫為公式 (6):

$$I = E_p^2 |\theta_k + i\eta_k + \delta|^2 = |E_p|^2 (\delta^2 + 2\delta\theta_k)$$
(8)

所以原入射光強度 Io 可寫成公式(9)

$$I_0 \coloneqq E_p^2 \sin^2 \delta \coloneqq E_p^2 \delta^2 \tag{9}$$

再將公式(9)代入公式(8)後可以計算得出反射光強度變化公式如公式(10)

$$\Delta I = I - I_0 = I_0 \left( 1 + \frac{2\theta_k}{\delta} \right) - I_0 = I_0 \left( \frac{2\theta_k}{\delta} \right)$$
(10)

從公式(10)可以知道反射光強度的變化正比於 θ<sub>k</sub>。所以本研究中所使用的磁光柯爾顯微 鏡其最大的特色就是可以快速、直接地觀察到相對的磁化強度大小變化。圖 9 是磁光柯爾顯 微鏡下量測所看到的圖形,由圖 9(A)與圖 9(B)的顏色深淺可以知道此時相對磁化強度大小 的不同,由一連串的圖形紀錄,可以由灰階強度大小做圖來畫出磁滯曲線。



圖 9 施加正場(A)、負場(B)時的磁光柯爾顯微鏡圖。

依照入射面與材料本身磁化方向的關係,可以將 MOKE 分為三種類型如表 1。其中, 橫向磁光柯爾效應不會改變光的偏振態,因此在研究中所量測面內方向磁滯曲線與面外方 向磁滯曲線分別是使用縱向磁光柯爾效應與極向磁光柯爾效應。

類型	示意圖	說明
縱向磁光柯爾效應 (Longitudinal MOKE, LMOKE)		材料表面磁矩方 向與材料表面與 入射面平行
橫向磁光柯爾效應 (Transversal MOKE, TMOKE)		材料表面磁矩方 向與材料表面平 行但與入射面垂 直
極向磁光柯爾效應 (Polar MOKE, PMOKE)		材料表面磁矩方 向與材料表面垂 直

表1 磁光柯爾效應類型關係圖

#### 2-5 磁性材料

磁性源自於原子的磁矩,而材料的磁性則是由磁矩的排列或電子軌道磁矩、電子自旋磁 矩和原子核磁矩三種交互作用力影響而成,而依照不同電子軌域排列方式而可以將磁性分 為以下幾種種類<sup>27</sup>如表2:

磁性種類	順磁性	反磁性	鐵磁性	反鐵磁性	陶鐵磁性
磁矩方向	$H=0 \xrightarrow{H}$	$H=0 \xrightarrow{H}$	H=0	H=0	н=0

表2 磁性材料分類圖

在本篇研究中以鐵磁性材料作為研究。

#### 2-5-1 鐵磁性材料

鐵磁性的產生是由於原子間偶極矩間的強耦合作用,使相鄰的兩個磁矩會指向同一個 方向,依此形成在同一區域的原子磁矩朝向同一方向而形成磁疇 (Domain)。最常見的鐵磁 性材料為鐵 (Fe)、鈷 (Co)、鎳 (Ni),其特徵為在沒有外加任何磁場的情況下, 也能夠保有特定的磁化強度。微觀來看,在無外加磁場的情況下,可以看到材料本身有許多 的 Domain,在施加外場後使磁疇壁 (Domain Wall)移動,當外加磁場大到令材料本身的多 重 Domain 變成單一 Domain 時,此時的磁化強度稱為飽和磁化強度。在緩慢地減去外場後, 可以看到 Domain Wall 緩慢地恢復,在外場歸零時的磁化強度,稱為殘磁 (Remanence)。 並且繼續施加反向的磁場直至磁化強度降低為零的時候,此時的外加磁場強度被稱為矯頑 力 (Coercivity)。將施加外加場以及磁化強度作圖之後的表稱為磁滯曲線 (Hysteresis Loop)。此曲線即為鐵磁性材料重要的特徵之一。並且在將材料升溫時,因為熱擾動的關係, 使得材料內部原子排序變得混亂。當溫度繼續升高,直至彼此的熱擾動大於耦合能時,此時 的溫度被稱為居禮溫度 (Curie temperature),其磁性會轉換為順磁性材料。



#### 2-5-2 磁各向異性(Magnetic Anisotropy, MA)

MA 指的是在鐵磁性材料中,電子間耦合作用力因材料特性的影響,有其所偏好排列的 方向,此方向上的磁矩磁化方向偏轉的所需能量最小的即為磁易軸,反之則叫做磁難軸。而 促使此現象發生的能量稱為磁異向能。MA 一般可以分為四類<sup>27,28</sup> 如表 3。

形狀各向異性	磁晶各向異性	應力各向異性	交换各向異性
			鐵磁

#### 表3磁各向異性分類圖

- 1. 形狀各向異性:考慮一個多晶材料,其晶粒沒有特定的取向,若為球形,則使用相同磁場於任意方向時,材料的磁化強度皆會相同,若非球型,經計算後可以發現長軸方向會比短軸方向易於磁化。形狀各向異性常數 $K_{\rm s} = rac{1}{2} \mu_0 \Delta N {
  m M}^2$ ,其中 $\Delta N$ 為長軸與短軸的去磁係數差。形狀各向異性能 $E_{
  m s} = K_{
  m s} sin^2 heta$ 。
- 磁晶各向異性:在單晶材料中,因原子排列具對稱性,所以原子會均勻受到相鄰原子 的影響,使磁化方向相互影響後會指向相同的方向。計算磁晶各向異性能E = K<sub>0</sub> + K<sub>1</sub>(α<sup>2</sup><sub>1</sub>α<sup>2</sup><sub>2</sub> + α<sup>2</sup><sub>2</sub>α<sup>2</sup><sub>3</sub> + α<sup>2</sup><sub>3</sub>α<sup>2</sup><sub>1</sub>) + K<sub>2</sub>(α<sup>2</sup><sub>1</sub>α<sup>2</sup><sub>2</sub>α<sup>2</sup><sub>3</sub>) + ...,其中K<sub>0</sub>、K<sub>1</sub>、K<sub>2</sub>為特定材料在特定溫度 下的常數,α<sub>1</sub>、α<sub>2</sub>、α<sub>3</sub>為受力方向和 x、y、z 軸方向的餘弦,磁矩會傾向於朝向能量 最低的方向。

以立方堆積為例,原子會均勻受到來自[1,0,0]方向、[1,1,0]方向、[1,1,1]方向的 力。在[1,0,0]方向, $\alpha_1=1$ 、 $\alpha_2=0$ 、 $\alpha_3=0$ ,各向異性能 $E_{1,0,0}=K_0$ ,在[1,1,0]方向, 
$$\begin{split} \alpha_1 &= \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \alpha_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \alpha_3 = 0 \cdot \& \text{ 合向 異性能E}_{1,1,0} = K_0 + \frac{1}{4}K_1 \cdot \& [1,1,1] \text{ 方向 } \circ \alpha_1 = \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot \alpha_2 = \\ &\frac{1}{\sqrt{3}} \cdot \alpha_3 = \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot \& \text{ Go 異性能E}_{1,1,1} = K_0 + \frac{1}{3}K_1 + \frac{1}{27}K_2 \cdot \& \text{ 其中因}K_0 & \text{與角度無關而只與材料} \\ &f 關聯 \cdot &\text{所以通常忽略}K_0 這項係數 \circ \end{split}$$

- 3. 應力各向異性:在對軟磁性材料施加一外加磁場時,材料的形狀、大小會產生改變,形變會令材料的自發磁化方向跟著改變,此現象稱為應力異向性。磁彈各向異性常數 $K_{\sigma} = \frac{3}{2}\lambda_{si}\sigma$ ,其中 $\sigma$ 為壓力、 $\lambda_{si}$ 為飽和磁致伸縮。磁彈各向異性能 $E_{\sigma} = K_{\sigma}sin^{2}\theta$ 。
- 4. 交換各向異性:因一鐵磁性材料與反鐵磁性材料介面形成交換耦合時,材料的垂直介面的對稱性被破壞,便有可能在垂直介面的方向上引起更大的自旋軌道耦合,引發垂直介面的 MA。以下以一磁滯曲線做簡單的範例並以表4 說明介面磁矩的改變。



圖 10 磁滯曲線,因交換各向異性產生的交換偏壓令材料磁化強度轉換點, 皆在正場或負場。



表4 曲線上各點鐵磁層、反鐵磁層磁矩示意圖。

其中只有磁晶各向異性是由材料本身所有,其餘各種各向異性皆是外在誘發的。如材料 同時擁有兩種以上各向異性時,以形狀各向異性與磁晶各向異性方向相夾 90°為例,則會 依其各向異性常數大的方向為優先,如各向異性常數相等,則各方向磁化強度均相等,入相 夾角度不為 90°,則磁易軸方向會在兩個各向異性方向之間出現一個新的軸向。

#### 2-6 二維材料

西元 2004 年,安德烈·海姆和康斯坦丁·諾沃肖洛夫成功合成出石墨烯並在 2010 年時 榮獲諾貝爾物理獎後,二維材料就變成材料學裡的普遍研究項目 <sup>29</sup>。

二維材料因其後度被侷限於數個奈米的尺度上,與塊材的性質有極大的差異,例如一塊 木炭本身並不導電,但是石墨烯具有十分良好的導電性,甚至於材料本身從塊材到二維材料 時,其剛性、柔軟性、透明性、光學性質、載子遷移率等等都會產生變化。而常見的二維材 料除石墨烯外,還有六方碳化硼還有過度金屬硫化物等等。而本研究中所使用的二維材料為 單層 MoS2 如圖 11。單層 MoS2 的厚度只有三個原子層,可以由塊材剝離法或化學氣象沉積 法製備而成,是具有直接能隙半導體以及帶有相當高的電子遷移率,所以應用相當多元且穩 定,被認為是新穎材料的最佳選擇之一。近來也有研究發現,其與 Co 原子耦合之後,因 Co 原子和 MoS2 中的 S 原子間的耦合作用,令 MoS2 轉變為磁性半導體 <sup>18,19</sup>。



圖 11 MoS<sub>2</sub>結構示意圖。圖中藍色球代表 Mo 原子、黃色球代表 S 原子



#### 2-7 儀器設備

#### 2-7-1 空間光調製器(Spatial Light Modulator, SLM)

空間光調製器 (Spatial Light Modulator, SLM) 一般分為透射式與反射式,透射式的 SLM 優點是便於光路的架設,而反射式的 SLM 優點則是相位的調製容易。其原理是利用光進入 液晶層後會根據液晶分子光軸的角度不同,造成雙折射率的現象。當入射光為線偏振光且偏 振方向和液晶分子光軸長軸平行時會改變相位但偏振態不被影響;偏振方向和液晶分子光 軸長軸垂直時,對光源的相位不受影響,但因不同方向的折射率不同,而使偏振態會因此改 變。因此 SLM 透過接收電腦輸入的畫面,對液晶層每個畫素施加電場來扭轉液晶分子的方 向來對入射光進行調製。本研究使用的 SLM 有一光栅,只有線偏振且偏振態平行光軸的光 才能通過,屬於純相位調製型的 SLM。

本研究利用 SLM 對 532nm 綠光雷射的相位進行調製,實驗中為使入射光能水平入射, 將 SLM 固定於光學桌上,並且將液晶螢幕固定於一光學平台,使用光學平台來移動螢幕確 保螢幕與入射光垂直和易於架設光路。表 5 為本研究使用 SLM 的規格表。



圖 12 空間光調製器裝置圖

Part no.	HED 6010xxx
Туре:	LCOS(reflective), Active Matrix LCD
Drive scheme:	Digital(pulse width modulation
Mode:	ECB mode, nematic
Phase levels:	256 (8-bit) grey levels
Active Area:	15.35 mm × 8.64mm
Weight:	12 grams
Nominal:	1920 × 1080 pixels
Total:	1952 × 1088 pixels
Pixel Pitch:	8.0 μm
Fill Factor	87%
Image Frame Rate	60 Hz
0 <sup>th</sup> order intensity	60%
Illumination (max.)	$\sim 2W/cm^2$
Operating temp.	+10°C to +70°C
Waveband	VIS

表5 空間光調製器規格表

#### 2-7-2 磁光柯爾顯微鏡(Magneto-Optical Kerr Microscopy)

磁光柯爾顯微鏡是使用利用磁光柯爾效應,透過觀察入射光源的強度變化,來量測材料 的磁性變化。本研究透過將樣品放在磁場的中心,透過 CCD 傳達影像到電腦,在電腦直接 又快速的觀察並量測樣品的磁化現象。圖 13 為磁光柯爾顯微鏡裝置圖



圖 13 磁光柯爾顯微鏡裝置圖,紅色箭頭為光路方向

在磁光柯爾顯微鏡中,主要量測磁滯曲線來判斷樣品的磁特性,圖14取自本實驗數據 的其中一張,可以看到曲線與H軸的相交點,稱為矯頑力。而曲線和B軸的相交點稱為殘 磁。而兩端近乎水平線的區域,稱為飽和磁化區。在磁光柯爾顯微鏡中,因殘磁的大小受光 源亮度、環境亮度的影響頗深,因此本研究分析的 MA 是由矯頑力的大小來做判斷,矯頑 力越大,代表磁矩越趨向於躺在這個方向不容易被翻轉。所以將矯頑力最大的地方稱為磁易 軸。



圖 14 磁滞曲線介紹

緊接著說明使用磁光柯爾顯微鏡量測後數據如何分析。以其中一次實驗數據的分析作 解釋,由圖 15 可以看到在使用磁光柯爾顯微鏡進行量測時,電腦所接收到 CCD 的訊號圖。 可以由圖中發現量測前後灰階的強度是不同的。然後選取樣品中被照射渦旋光的區域使用 Image J 對灰階大小進行分析可以得到以下數據



圖 15 (a)剛去除背景時的圖形。(b)量測完畢時的圖形



圖 16 量測所得灰階數據圖

由圖 16 可以看到起始磁場與最終的外加磁場大小相同但灰階強度不同,是因為雷射光 功率是隨時間遞增/遞減的因素,因此將轉折點到終點連線的斜率調整到與起始點到轉折點 連線相同,如圖 17。



圖 17 調整磁場使起始磁場與最終磁場的磁化強度相同

最後,在調整完畢使得起始磁場與最終磁場大小相同後,將整條磁滯曲線扣除相同的斜 率,令磁化飽和區的數據點連接後的迴歸直線斜率為0,如圖18,即完成分析磁滯曲線。



圖 18 磁滞曲線分析完成圖



#### 2-7-3 拉曼光譜儀(Raman Spectrometer)

拉曼光譜儀.顧名思義就是藉由拉曼效應的原理所製造的儀器,是由入射光打到樣品後 令反射光頻率和入射光頻率不同,所就是非彈性散射。其中又可分為將能量給分子,使分子 開始振動的紅移,與分子原先振動,但光入射後分子便不振動的藍移。因此透過拉曼光譜儀 顯示的峰值,可以知道現在分子的鍵結與結構,以及分子的振動、旋轉模式來研究其晶格與 分子的變化。其優點在於成像極快;適用於高溫、低溫、高壓等不同條件下都能測量;且測 量是利用雷射光進行測量,沒有接觸損傷的疑慮。但其也有缺點如無法量測不透明的樣品內 部或者稀疏的氣體樣品。在本研究中,製作 Co/MoS2 樣品前,會將 MoS2 放置拉曼光譜儀(如 圖 19)下進行量測,由 MoS2 的振動模式E'和A'」峰值差約為 18~19 cm<sup>-1</sup> 來確定其為單層結構 後,才將此樣品拿去鍍鈷,並進行研究。



圖 19 拉曼光譜儀裝置圖

#### 2-7-4 電子束磊晶系統

本研究的二維材料 Co/MoS<sub>2</sub> 系統是由電子束磊晶法來鍍上金屬層的,電子束磊晶需要 在超高真空系統中,將氣壓下降至 10<sup>-8</sup> Torr 來達到足夠乾淨不受空氣中的粒子所干擾。圖 20 為超高真空系統。將樣品放入後,先抽真空到氣壓 10<sup>-2</sup> Torr 後開啟機械幫浦,並且啟動 纏繞著整個腔體的加熱帶,並抽真空到 10<sup>-8</sup> Torr 後,再施加高壓電流至棒狀的靶材,使其迅 速加熱至熔點並釋放出氣體靶材,並用以沉積於基板上。



圖 20 電子束蒸鍍系統裝置圖

# 章節 3 實驗結果—層間交換耦合系統

本章節利用 Co/Ru/Co 三明治結構所組成的 IEC 結構,研究渦旋光對磁性材料的影響,並且探討無 IEC 結構對實驗結果的影響。

#### 3-1 樣品介紹

此樣品與2018年北京中科院韓秀峰老師實驗室發表文章<sup>17</sup>中的樣品製程結構相同,首 先將樣品拿到光學顯微鏡下拍攝結構可以看到樣品的結構是一個雙十字的圖案,且在樣品 的六個角落皆鍍上銅/金當作電極,如圖21所示。



圖 21 光學顯微鏡圖與樣品結構圖

再將此樣品拿到磁光柯爾顯微鏡下進行磁特性的量測,觀察樣品在面內與面外方向的 鐵磁訊號,可以看到在沒有做任何實驗的情況下,面內方向的矯頑力大約為40Oe,面外方 向的矯頑力大約為380Oe,分別如圖22 與圖23。



圖 23 面外方向的磁滞曲線圖

# 3-2 實驗程序

製作 LG 光束的第一步驟是將 532nm 雷射打到空間光調製器(SLM)上,使 SLM 將 LG 光束的相位輸入到雷射內,再經由分光鏡,將從 SLM 反射回來的光源透過物鏡聚焦在樣品 上。因 SLM 只接收線偏振的光源,所以放置半波片以及偏振片在雷射光源前,用以確定入 射光源為線性偏振光。照射渦旋光的光點大小為直徑 5 μm,"寫入"樣品的過程為:在上述樣 品的十字型的中心處,約 10 μm x 40 μm 的長方形區域,以 5 μm 為一步,每一步照射 30 秒,直到寫滿該區域。



圖 24 渦旋光光路示意圖

照光之後,將樣品拿出至磁光柯爾顯微鏡(如圖 25)下進行磁性的觀察,針對照光的區域 做灰階分析,研判反射光強度對於磁場的關係,如第二章之 2-7-2 節所描述,本實驗所有步 驟均在室溫下進行。



圖 25 磁光柯爾顯微鏡裝置圖

#### 3-3 渦旋光改變材料鐵磁特性

將功率 2.5 mW 攜帶 OAM = +5 的渦旋光照射到樣品上時發現,發現樣品的磁滯曲線 (Hysteresis Loop)關閉如圖 26(a),代表著材料特性由鐵磁性材料轉換成為順磁性材料。因此 為了判斷此特性是否為光功率過高所造成熱擾動影響,在相同條件下,使用未攜帶任何 OAM 的線偏振光源進行照射。看到其 Hysteresis Loop 並無關閉如圖 26(b),以此證明並非光功率 過高導致材料加溫到居禮點,此對照組的實驗證實,OAM 的照射與磁滯曲線的改變有相當 程度的關聯性。另一方面,圖 26(c)則是另一組對照組,以同樣為 2.5 mW 功率但使用較低 的軌道角動量量子數,寫入樣品表面後,發現鐵磁性磁滯曲線無法被改變。同樣的,在圖 26(d),固定軌道角動量量子數(OAM = +5),但使用較低的功率寫入樣品表面,結果也無法 改變樣品的鐵磁性磁滯曲線。另外,使用功率 2.6mW 帶有左旋或右旋角動量(圖 26(e)、圖 26(f))對材料進行照設,來對自旋角動量和軌道角動量做比較,可以看到照射前後的光無法 改變樣品的磁特性,這點也符合 Fullerton 團隊在 2014 年的文章<sup>20</sup> 中所述的,帶有自旋角動 量的雷射打在樣品上改變磁化強度的原理是利用飛秒雷射的高功率使樣品達到居禮點,在 藉由自旋角動量的因素,令材料冷卻後磁矩有特定方向的傾向,而非改變磁特性。綜上所述, 要使樣品的鐵磁性磁滯曲線改變,存在著一些門檻,在低功率、較低的軌道角動量量子數的 條件之下,是無法成功改變樣品磁性的,而且使用基礎的線偏振光也排除了熱效應的影響。 並與自旋角動量做比較,可知帶有軌道角動量的光對材料的影響力度較大。



圖 26 渦旋光改變材料鐵磁特性實驗數據圖

#### 3-4 渦旋光改變材料磁各向異性

在知道功率 2.5mW 帶有軌道角動量量子數(OAM = +5)的光可以改變材料的磁特性之後,透過旋轉樣品的角度,改變樣品長軸與磁場之間的夾角,並量測各角度所得到的磁滯曲線,以此方式分析此樣品的 MA,根據定義,樣品磁性翻轉的當下的正場與負場的差值為樣品的矯頑力(Coercivity),如圖 27 所示,黑色箭頭的差距即為兩倍的矯頑力大小。



圖 27 矯頑力量測示意圖。

將各角度所得到的矯頑力以 polar 圖的方式排列後,呈現於圖 28,可以發現,此樣品的 磁易軸方向,在照射渦旋光後,原本在 0°的位置,轉向至大約 80°的地方,而原本 0°的 位置,變成了順磁性的曲線。圖 28 說明了這個樣品的 MA,被渦旋光寫入後,有相當程度 的改變。詳細各個角度照光前、後的磁滯曲線請參照圖 29、圖 30。



圖 28 (a)、(b)分別為照射渦旋光前、後的極化量測。

<b>0</b> °	Sand Contraction	$10^{\circ}$	A CONTRACT OF CONTRACT.	20°	
<del>33</del> 333		SF C	\$\$\$ \$	<u> <u> </u></u>	jer Jer
30°	A & & & & & & & & & & & & & & & & & & &	40°	28-29-6-65	50°	State State
BEE E		See Star	Ê8¢	A CAR	
60°	Sold States	70°	ang Bar	80°	CARGE CONTRACT
80993B	Ê	a a a a a a a a a a a a a a a a a a a	Sec.	3833-5	
90°	A B B B B B B B B B B B B B B B B B B B	100	. A CONTRACT	110°	San
State of the second		<u>inter</u>	8 9 90	afora	
120		130 <sup>°</sup>	, Startes a	140°	
88888	, କୁତ୍ତ୍ୱତି	George	<u>Geo</u>	Starter and the second s	6 6
150	Selatar	160°	,	170 <sup>°</sup>	Difference Construction

圖 29 照光前各角度磁滞曲線圖

0°	10°	20°
and a state of the	Carl Carl Carl	Stangendered
30° , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	40° 🚓 🚟	50°
Care Care	A CERTIFIC CO	Barat
60° 00000000000000000000000000000000000	70 , 20,000	80° <sub>gwalles</sub>
A COLOR	Contraction of the second s	A A A A A A A A A A A A A A A A A A A
90°	100° <sub>a</sub> a second	110° , same
State Contraction	A A A A A A A A A A A A A A A A A A A	
120°	130° and the second	140°
all and a second se	A A A A A A A A A A A A A A A A A A A	Call Ballins
150°	160° 🧊	170°
	A CONTRACTOR OF THE OWNER OWNER OF THE OWNER OWNE	A CONTRACT OF THE OWNER

圖 30 照光後各角度磁滞曲線圖

#### 3-5 渦旋光調控磁各向異性實驗

由圖 28 觀察到的結果,可以繼續延伸下去,既然照射軌道角動量量子數+5 的渦旋光會 轉向,那麼以相同的參數照射軌道角動量量子數(OAM=-5)的光在同一點,其磁易軸會否轉 向到相反的方向?因為 OAM 的正負號差別在於,其實就是螺旋光波前的相位變化為順時 鐘與逆時鐘的差別。再者,如果翻轉不回原本的角度,那麼要如何使被改變過的樣品恢復到 其原本的狀態呢?預期翻轉回來的方式是由施加一個垂直方向的磁場,使得下層的鈷的磁 矩翻回原本預設的垂直方向,並藉由 IEC 的機制,將上層鈷的磁矩恢復成原本水平的方向。

對同一樣品同一區域進行 MA 量測,此處的 MA 的量測與定義方式與前節相同。照光 前的 polar 圖為圖 31(a)、照射功率 2.5mW 軌道角動量量子數+5 的光後,所得到的 polar 圖 為圖 31(b),接下來照射軌道角動量量子數-5 的光後,得到的新的 polar 圖為圖 31(c)。最後, 將樣品施加一個垂直方向磁場翻轉下層磁矩,並將所得之 polar 圖繪於圖 31(d)。由此實驗可 以觀察到,照射正、負軌道角動量量子數的渦旋光後,其 MA 旋轉的方向也不盡相同,並且 在最後施加垂直方向磁場後,可以將磁矩為初始的狀態。代表著光的軌道角動量的正與負的 自由度,確實可以用來改變樣品的 MA,並且等效於一個外加垂直磁場。

39



圖 31 渦旋光調控磁各向異性實驗數據圖,圖中藍色箭頭表示磁易軸方向。右 下角小圖為實驗機制示意圖。

### 3-6 無層間交換耦合情況探討

IEC 系統可以將磁矩變化藉由其強耦合紀錄在下層磁矩中,那麼將中間的非磁性層拿 掉,單純只有一層磁性層的時候,渦旋光也可以對 MA 進行調控嗎?因此,製備另外一個 樣品,只有單純的保護層以及 3 nm 厚的鈷,以照射功率 2.5mW 並攜帶軌道角動量量子數 OAM=+5 的光寫入樣品,照光前、後的 MA 分析整理於圖 32(a)、圖 32(c),圖中的示意圖 代表我們所認為的機制示意圖。實驗結果顯示,此樣品的 MA 於照光前後並無變化,因此, IEC 系統的強耦合結構是對於紀錄磁性的變化是非常重要的。



圖 32 使用渦旋光對無層間交換耦合系統的磁性材料照射分析圖。(a)照光

前、(b)照光時、(c)照光後

# 章節 4 實驗結果---鐵磁性材料與二維材料之異質界面

由章節3的結論可以知道,IEC系統依靠其層間交換耦合作用紀錄磁變化,那由Garandel, T 等人於2017年發表的期刊<sup>18</sup>可知,將Co鍍在MoS2上方時,Co原子和S原子會產生強 自旋軌道耦合,使得MoS2變成磁性材料,那麼這個強耦合是否也能夠紀錄磁變化呢?

#### 4-1 樣品介紹

首先透過化學氣相沉積法將 MoS2 生長在 SiO2 基板上,再將 MoS2 拿去拉曼光譜儀進行 量測,由拉曼光譜的特性,從先前的研究得知<sup>30</sup>,觀察E'和A'1的峰值差可以看出 MoS2 的厚 度,因此利用E'和A'1的峰值 19cm<sup>-1</sup>確定此 MoS2 為單層結構如圖 33。



圖 33 MoS<sub>2</sub> 的拉曼量測曲線圖。



圖 34 MoS<sub>2</sub>的 PL 量測曲線圖。

接著量測 PL 訊號如圖 34,去觀察此 MoS2的結晶品質。確認完 MoS2之後,再將 MoS2 拿去電子束磊晶系統鍍上 Co 層。鍍完磁性層後,將樣品拿到磁光柯爾效應去測試樣品的磁 特性,樣品的光學顯微鏡圖與結構示意圖如圖 35。



圖 35 磁光柯爾顯微鏡系統的光學顯微鏡圖與樣品結構示意圖

並且對有 MoS<sub>2</sub> 與沒有 MoS<sub>2</sub> 的區域分別使用磁光柯爾顯微鏡進行量測。發現在沒有 MoS<sub>2</sub> 的區域皆沒有磁性,有 MoS<sub>2</sub> 的區域才量測到鐵磁性。原因可能是基板拿去生長 MoS<sub>2</sub> 時,被 MoO<sub>3</sub> 或者硫粉影響而使 Co 層的磁性受到影響,令其磁化特性消失。



圖 36 有 MoS2 與沒有 MoS2 的磁滯曲線量測圖



#### 4-2 實驗程序與數據分析

在同一樣品中尋找三個不同的三角形單層 MoS2,並對其做極化的磁性量測,可以 發現在不同的 MoS2 上其 MA 也不盡相同。量測完畢後將功率 3.5mW 帶有不同 OAM 的光照射在整個 MoS2 上,觀察其 MA 的變化。在圖 37 中可以看見與 IEC 系統相同的 結果,也就是相同功率,帶有 OAM 的光可以改變材料的 MA 而不具有 OAM 的光,無 法靠光功率造成的熱擾動改變 MA。且由此實驗可以間接證明,Co/MoS2 的強耦合可以 用來作為新世代磁儲存的結構,使得材料結構可以更簡單,鍍金屬薄膜的步驟可以愈加 簡化。



圖 37 (a)(b)(c)分別為不同 MoS<sub>2</sub>照射渦旋光實驗數據圖。圖中的黑點為量測得 到的數據點,而紅線是將角度 X 和角度 X+10 與角度 X-10 的數據平均後相 連,使曲線平滑,更好的看出易軸的方向。

在圖 38 中,確認了不帶有任何角動量的線偏振光源照射在二維材料系統上對 MA 的影響。由數據圖可知,照射功率直到 3.5mW 的線偏振光源,樣品本身的 MA 並沒有太大的改變。於是在圖 39 中進一步嘗試渦旋光是否能夠調控 二維材料系統的 MA。



圖 38 使用光功率(a)2.5mW、(b)3.5mW,不帶有角動量的線偏振光源照射在

二維材料系統上前、後的矯頑力分析圖。

圖 39 是將二維材料系統的樣品拿去做渦旋光調控磁各向異性的實驗數據 圖,步驟與圖 31 相同,依序量測照射前、照射 OAM+5 的光、照射 OAM-5 的 光、外加垂直磁場後的各方向矯頑力。以此證明,二維材料系統的 MA 可以被 帶有軌道角動量的線偏振光源所改變、代表二維材料系統可以當作一種磁儲存 的結構,代替 Co/Ru/Co 層間交換耦合系統,並且大幅降低磁儲存結構所需厚 度。



圖 39 渦旋光調控二維材料系統的磁各向異性實驗數據圖。圖中的紅線為輔助

線、藍線為磁易軸方向。

### 章節 5 結果機制探討

综合前幾章節所有的數據顯示,渦旋光可以確實的改變磁性材料的 MA,並且被 IEC 系 統紀錄其造成的磁性變化。其中,照射渦旋光後,材料形狀並無改變、且渦旋光的光壓形變 量無法改變磁性材料層,因此材料 MA 轉變的最大可能原因就是由 Co/Ru 介面或 Co/MoS2 所產生的交換各向異性。另外,在 Co/MoS2 系統中,可以發現在此系統中的 MoS2 可以和 IEC 系統的作用相同,紀錄磁矩的變化,因此二維材料與磁性材料的結合,是有很大的機會 成為新一世代 MRAM 的結構。我們認為渦旋光改變樣品之磁各向異性的機制有以下三種可 能機制:

#### 5-1 渦旋光致環電流產生垂直磁場

從LG 光束的相位圖可以知道,LG 光束的電場會繞圓心有一個梯度變化,經由這個電場梯度變化和金屬表面電子海交互作用時,會產生介電泳現象,也就是金屬表面的導電電子 會隨著電場方向流動,因此,金屬的表面會產生一個環電流。根據章節 2-3 對於LG 光束線 的數值探討,這個環電流引起的垂直磁場大小可以高達 4000 Oe。這樣的磁場大小有機會使 上層磁矩的有一個垂直方向分量的翻轉且因趨膚深度  $\delta = \sqrt{\frac{\rho}{\pi f_0 \mu_r \mu_0}}$ 在 Pt 中為 6.898nm 和在 Co 中為 0.32nm~0.6nm 的關係,不會直接影響到下層磁矩,而又因為 IEC 系統的互相耦合 行為,上層與下層的鈷的磁矩透過中間釘層相互正交,而令下層鈷原本的垂直磁矩有著面內 方向的分量,整體的改變透過 IEC 的機制被記錄下來,改變了材料地 MA,如圖 40。所以 在施加垂直方向的磁場可以將下層磁矩翻動回面外方向,並將上層磁矩的方向恢復。



圖 40 渦旋光致垂直磁場改變上層 Co 層磁矩的機制示意圖。圖中藍色箭頭為 環形電流方向、橘色箭頭為磁場方向、淺紅色箭頭為該層磁矩原本的方向、深 紅色箭頭為磁矩被磁場改變後的方向。此結構的上下層磁矩因層間交換耦合系 統彼此正交,因此翻轉上層磁矩時,下層磁矩也會跟著翻動。

#### 5-2 渦旋光環電流引起自旋霍爾效應

因涡旋光的電場梯度與金屬電子海交互作用後會產生環電流,以及 IEC 系統選用強自 旋軌道耦合 (Spin-orbit coupling) 之金屬鉑作為保護層。在鉑與鈷的介面中,根據自旋霍爾 效應,通過的電流中(假設電流方向為 +x),自旋向上(+z)及向下(-z)電子將會分離(往+y 與 -y 的方向分離出去),產生一個垂直於電流方向的自旋流 <sup>31,32</sup>,這是電流為直線前進的狀況。 然而,若在渦旋光照射的環電流中,產生的環電流可以在每個切線方向都有自旋霍爾效應, 這會使得某一個自旋方向的電子往光點中央累積,而另一個自旋方向的電子將往外流出 <sup>33</sup>。 接著,由於自旋向上或向下的電子集中於光點中央處,我們推測,這些累積的自旋電子會把 垂直方向的自旋軌道角動量會往下層的鈷傳遞,將發生自旋轉換矩將磁性層的磁矩偏轉,使 原本在面內方向的鈷的磁矩,偏轉為帶有一點垂直方向分量的角度(往 polar 角度方向偏轉), 並且此透過 IEC 的機制,耦合下層磁矩,而記錄下此改變。所以照光後的樣品也得到了 MA



圖 41 渦旋光致自旋轉換矩改變上層 Co 層磁矩的機制示意圖。



#### 5-3 渦旋光本身的磁場梯度

由渦旋光的相位圖可以得知電場會有梯度變化,同時,磁場也會有梯度變化,這是電磁 波的一種普遍現象。Yang 等人於 2018 的發表研究探討渦旋光的磁場梯度與特殊磁性結構 Skyrmion 的交互作用,其中的一個計算的結果顯示,在對焦點上,渦旋光的磁場 B 在柱座 標系中可以被描述為公式(9):

$$\mathbf{B}_{p,\ell}(\rho,\varphi,t) = B_0 \frac{\left(\frac{\rho}{w}\right)^{|\ell|} e^{-\frac{\rho^2}{w^2}} LG_p^{|\ell|} \left(\frac{2\rho^2}{w^2}\right)}{\sqrt{w}} e^{i(\omega t - \ell\varphi)} \hat{\mathbf{e}}_p$$
(9)

W 為光束寬度,  $LG_p^{[l]}(2r^2/\omega^2)$ 為廣義拉蓋爾多項式, 單位向量 $\hat{e}_p$ 為光的線偏振方向向量, 在此處 $\hat{e}_p = \mathbf{x}$ 。

而在上層鈷的磁矩,受到渦旋光磁性的作用,加上本身鈷原子間的交換耦合(Exchange coupling),再加上 IEC 的機制,三者相加產生出的等效磁場**B**<sub>eff</sub>,將使樣品表面上的磁矩產 生翻轉,該翻轉的動力方程式可以被經典的 Laundau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式如公式 (10)所描述:

$$\frac{\partial \boldsymbol{m}}{\partial t} = -\gamma \boldsymbol{m} \times \mathbf{B}_{eff} + \alpha \boldsymbol{m} \times \frac{\partial \boldsymbol{m}}{\partial t}$$
(10)

其中  $m = M/M_s$  為單位磁矩,  $\gamma$  是 gyromagnetic ratio,  $\alpha$  是 Gilbert damping constant。 在這樣的機制下,帶有軌道角動量的光,將使得樣品的磁性層有所偏轉<sup>34</sup>。

雖然前述理論為應用於 Skyrmion 的狀況,但是,該篇論文的計算過程應該也可推論至 我們材料的情況,因此,帶有軌道角動量的光,其等效磁場應該也會對於磁矩產生偏轉。偏 轉後接下來的過程,跟前兩節所述一樣,藉由 IEC 機制與下層鈷互相鎖定而被記錄下來, 同理,也可藉由施加垂直磁場恢復上層磁矩的改變。



圖 42 渦旋光的磁場梯度變化產生使磁矩旋轉。

# 章節 6 結論與未來展望

#### 6-1 結論

最後,總結本論文所做的實驗以及觀察到的現象,可以歸納出,利用帶有軌道角動量的 光,確實可以改變磁性材料的磁性行為,並且,可以使用層間交換耦合系統的材料,以及鐵 磁層-二維材料的磁耦合材料,記錄下渦旋光所造成的變化。首先,在鉑/鈷/釘/鈷/鉑這樣的 層間交換耦合系統,先觀察到沿著長軸的磁滯曲線,從鐵磁性轉變為順磁性,這樣的變化是 可靠並且可重複觀察到的,且要觀察到此變化,輸入光的功率及渦旋光的軌道角動量是具有 門檻的,小於門檻的光以及線性偏振的光皆無法觀察到轉變。接著,角度的磁性分析顯示, 此材料的 MA 於照光的前後有顯著的不同,原本的磁易軸座落於樣品的長軸上,照光後的 磁易軸會偏轉到另一個方向上。更進一步探討軌道角動量的正負兩個自由度對於樣品磁易 軸的造成如何的偏轉,以及發現使用垂直外加磁場可以重設渦旋光造成的偏轉。實驗數據的 第二部分,將上述之實驗推廣至鈷-二硫化鉬這類的鐵磁性-二維材料異質介面上,該系統因 為鈷-硫之間的鍵結而也有鐵磁性的耦合現象,結果發現,渦旋光也可以改變此類材料的磁 各向異性。這些實驗告訴我們,帶有軌道角動量的光有很大的潛力被應用在「磁-光儲存元 件」上

55

### 6-2 未來展望

由於二維材料 MoS2 其本身因為結構上的對稱性破壞以及鉬原子具有強自旋軌道耦合 的特性,其半導體的能帶有自旋偏極化的特性以及對於激發光的自旋具有選擇性等等許多 有趣的特性,因此,若能仔細思考二維材料的性質,將之整合進自旋電子學的範疇,再加上 本實驗所使用的渦旋光,可以預期將來很有可能有更多具有創意的研究與應用。目前已經得 知,Co/MoS2 系統也可以紀錄渦旋光造成的磁性變化,因此,未來的研究可以繼續發展下去, 將鐵磁性金屬例如鈷,鍍在 MoS2 上並做成霍爾電極,可以用渦旋光來操控或記錄磁性,也 可以作成自旋電子元件的形式,例如用渦旋光操控的自旋閥,或者使用其他二維材料進行測 試,找到更搭配的組合。本實驗所揭示的物理現象,希望能為自旋電子學與二維材料以及光 學三個方面的結合帶來貢獻。

# 參照文獻

- 1 Dennard, R. H. *et al.* Design of ion-implanted MOSFET's with very small physical dimensions. *IEEE Journal of Solid-State Circuits* **9**, 256-268, doi:10.1109/JSSC.1974.1050511 (1974).
- 2 Williams, F. C. & Kilburn, T. Electronic Digital Computers. *Nature* **162**, 487-487, doi:10.1038/162487a0 (1948).
- 3 Agarwal, V., Hrishikesh, M. S., Keckler, S. W. & Burger, D. in *Proceedings of 27th International Symposium on Computer Architecture (IEEE Cat. No.RS00201).* 248-259.
- 4 Young, R. How Computers Work: Processor and Main Memory (2002)
- Jacob, B., Ng, S. & Wang, D. Memory Systems: Cache, DRAM, Disk. (Morgan Kaufmann Publishers Inc., 2007).
- 6 Halderman, J. et al. Lest We Remember: Cold Boot Attacks on Encryption Keys. (2008).
- 7 Maxfield, C. & Waddell, P. Bebop to the Boolean Boogie: An Unconventional Guide to Electronics Fundamentals, Components and Processes. (Butterworth-Heinemann, 2002).
- Bhatti, S. *et al.* Spintronics based random access memory: a review. *Materials Today* 20, 530-548, doi:<u>https://doi.org/10.1016/j.mattod.2017.07.007</u> (2017).
- Berger, L. Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current. *Physical Review B* 54, 9353-9358, doi:10.1103/PhysRevB.54.9353 (1996).

- Slonczewski, J. C. Current-driven excitation of magnetic multilayers. *Journal of Magnetism* and Magnetic Materials 159, L1-L7, doi:<u>https://doi.org/10.1016/0304-8853(96)00062-5</u> (1996).
- Heindl, R., Rippard, W. H., Russek, S. E. & Pufall, M. R. Time-domain analysis of spintorque induced switching paths in nanoscale CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junction devices. *Journal of Applied Physics* **116**, doi:10.1063/1.4905023 (2014).
- 12 Diao, Z. *et al.* Spin-transfer torque switching in magnetic tunnel junctions and spin-transfer torque random access memory. *Journal of Physics: Condensed Matter* **19**, 165209, doi:10.1088/0953-8984/19/16/165209 (2007).
- Evarts, E. R., Heindl, R., Rippard, W. H. & Pufall, M. R. Correlation of anomalous write error rates and ferromagnetic resonance spectrum in spin-transfer-torque-magnetic-randomaccess-memory devices containing in-plane free layers. *Applied Physics Letters* 104, doi:10.1063/1.4879847 (2014).
- Honjo, H. et al. in 2019 IEEE International Electron Devices Meeting (IEDM). 28.25.2128.25.24.
- 15 Zeinali, B., Madsen, J. K., Raghavan, P. & Moradi, F. in 2017 IEEE International Conference on Computer Design (ICCD). 463-468.
- 16 Garello, K. et al. in 2018 IEEE Symposium on VLSI Circuits. 81-82.

- Wang, X. *et al.* Field-Free Programmable Spin Logics via Chirality-Reversible Spin-Orbit
   Torque Switching. *Adv Mater* 30, e1801318, doi:10.1002/adma.201801318 (2018).
- 18 Garandel, T., Arras, R., Marie, X., Renucci, P. & Calmels, L. Electronic structure of the Co(0001)/MoS2 interface and its possible use for electrical spin injection in a single MoS2 layer. *Physical Review B* 95, doi:10.1103/PhysRevB.95.075402 (2017).
- 19 Lu, C. I. *et al.* Spontaneously induced magnetic anisotropy in an ultrathin Co/MoS2 heterojunction. *Nanoscale Horiz*, doi:10.1039/d0nh00108b (2020).
- Mangin, S. *et al.* Engineered materials for all-optical helicity-dependent magnetic switching.
   *Nat Mater* 13, 286-292, doi:10.1038/nmat3864 (2014).
- Bliokh, K. Y. *et al.* Theory and applications of free-electron vortex states. *Physics Reports*690, 1-70, doi:10.1016/j.physrep.2017.05.006 (2017).
- Lee, Y. H. *et al.* Synthesis of large-area MoS2 atomic layers with chemical vapor deposition.
   *Adv Mater* 24, 2320-2325, doi:10.1002/adma.201104798 (2012).
- 23 Bruno, P. & Chappert, C. Ruderman-Kittel theory of oscillatory interlayer exchange coupling. *Physical Review B* 46, 261-270, doi:10.1103/PhysRevB.46.261 (1992).
- Yue, L., Li, Z., Kirby, R. & Sellmyer, D. MFM studies of interlayer exchange coupling in Co/Ru/Co films: Effect of Ru layer thickness. *Ultramicroscopy* 109, 1040-1043, doi:10.1016/j.ultramic.2009.03.037 (2009).

- Arlt, J., Hitomi, T. & Dholakia, K. Atom guiding along Laguerre-Gaussian and Bessel light beams. *Applied Physics B: Lasers and Optics* 71, 549-554, doi:10.1007/s003400000376 (2000).
- 26 Kasap, S. Principles of Electronic Materials and Devices. (McGraw-Hill, Inc., 2005).
- 27 Cullity, B. D. & Graham, C. D. Introduction to Magnetic Materials. (Wiley, 2008).
- 28 Losoi, S. Magnetic Anisotropy. (2015).
- Geim, A. K. & Novoselov, K. S. in *Nanoscience and technology: a collection of reviews from nature journals* 11-19 (World Scientific, 2010).
- Xiao, S. Q. *et al.* Atomic-layer soft plasma etching of MoS2. *Scientific Reports* 6, 19945,
   doi:10.1038/srep19945 (2016).
- 31 P, V. M., Ganesh, K. R. & Kumar, P. S. A. Spin Hall effect mediated current-induced deterministic switching in all-metallic perpendicularly magnetized Pt/Co/Pt trilayers. *Phys. Rev. B* 96, 104412, doi:10.1103/PhysRevB.96.104412 (2017).
- Sinova, J., Valenzuela, S. O., Wunderlich, J., Back, C. H. & Jungwirth, T. Spin Hall effects.
   *Reviews of Modern Physics* 87, 1213-1260, doi:10.1103/RevModPhys.87.1213 (2015).
- 33 Watzel, J. & Berakdar, J. All-optical generation and ultrafast tuning of non-linear spin Hall current. *Sci. Rep.* 8, 17102, doi:10.1038/s41598-018-35378-4 (2018).
- 34 Yang, W., Yang, H., Cao, Y. & Yan, P. Photonic orbital angular momentum transfer and magnetic skyrmion rotation. *Opt Express* **26**, 8778-8790, doi:10.1364/OE.26.008778 (2018).

