

准二维范德瓦耳斯本征铁磁半导体 CrGeTe₃ 的 THz 光谱*

王晨¹⁾ 夏威²⁾ 索鹏¹⁾ 王伟¹⁾ 林贤¹⁾ 郭艳峰²⁾³⁾ 马国宏^{1)3)†}

1) (上海大学物理系, 上海 200444)

2) (上海科技大学物质科学与技术学院, 上海 201210)

3) (上海科技大学-上海光机所超强超快联合实验室, 上海 201210)

(2022 年 8 月 7 日收到; 2022 年 8 月 23 日收到修改稿)

准二维范德瓦耳斯本征铁磁半导体 CrGeTe₃ 兼具窄的半导体带隙和铁磁性质, 在自旋电子学和光电子学等领域具有广阔的应用前景, 近年来受到国内外研究人员的广泛关注. 本文利用傅里叶红外光谱得到 CrGeTe₃ 间接带隙的大小, 并采用超快太赫兹光谱 (太赫兹时域光谱和光泵浦-太赫兹探测光谱) 研究了准二维范德瓦耳斯本征铁磁半导体 CrGeTe₃ 的相关性质. 结果表明, 准二维 CrGeTe₃ 的间接带隙大小为 0.38 eV; 在 1 THz 附近的折射率约为 3.2, 吸收系数约为 380 cm⁻¹; 780 nm 激光泵浦后的光载流子符合双指数弛豫过程, 存在快慢两个寿命, 由电子-空穴对的复合主导, 复光电导率的 Drude-Smith 模型拟合展示了微观系统的相关参量随时间的演化. 本文主要展示了 CrGeTe₃ 在太赫兹波段的光谱及其相关性质, 对光电子学等领域的研究具有借鉴意义.

关键词: 范德瓦耳斯铁磁半导体, 时间分辨光谱, 太赫兹光谱

PACS: 73.90.+f, 78.47.-p, 33.20.Ea

DOI: 10.7498/aps.71.20221586

1 引言

随着半导体器件集成度的提高, 摩尔定律的延续受到极大挑战, 这对新一代半导体器件及其相关材料提出了更高的要求. 自 2004 年 Novoselov 等^[1] 利用胶带成功剥离出石墨烯以来, 由于二维材料的各种优异性能, 其相关研究不断取得突破. 二维材料仅有一个或几个原子层的厚度, 因此能够很好地抑制微型器件的短沟道效应, 使其成为新一代集成电路半导体器件的有力候选者^[2-5]. 此外, 二维材料层间通过范德瓦耳斯力结合在一起, 能够形成种类繁多的同质或异质结, 这允许研究人员通过设计异质结构使材料产生单层时不具备的性质^[6-10],

进一步拓宽了其应用范围.

自旋电子学器件将电子的自旋自由度利用起来, 具有比传统器件更快的速度和更低的能耗, 而二维磁性材料由于自旋电子学等领域的需求, 近些年逐渐成为研究的热点之一. 2017 年, Gong 等^[11] 通过施加弱磁场增强磁各向异性, 抵消了热涨落对长程磁有序的抑制, 证明了双层 Cr₂Ge₂Te₆ 的铁磁性. 之后, Huang 等^[12] 通过磁光克尔效应表明了单层 CrI₃ 具有铁磁性. 2018 年, Deng 等^[13] 证明了单层 Fe₃GeTe₂ 的长程铁磁有序, 并通过离子调控电压实现了超过室温的居里温度. 2020 年, Liu 等^[14] 观察到 Fe₃GeTe₂ 具有激光驱动的室温铁磁性. 这些对二维范德瓦耳斯铁磁半导体材料性质的探索推动了各种相关理论的发展, 并进一步扩展了自旋

* 国家自然科学基金 (批准号: 92150101, 61735010) 和上海市科学技术委员会科技创新行动计划 (批准号: 21JC1402600) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn

电子器件的应用范围,为半导体器件的发展提供了新的机遇。

准二维 CrGeTe₃(CGT) 是一种范德瓦耳斯本征铁磁半导体^[15],由于层间弱的范德瓦耳斯力,其很容易被剥离至少层甚至单层.独特的磁性和半导体性质使其在自旋电子和光电子领域具有广泛应用,受到相关研究人员的关注. CGT 属于 $R\bar{3}$ 空间群和 C_{3i} 点群,其顺磁-铁磁转变的温度约为 68 K,比同类型的 CrSiTe₃(CST) 更高,这是由于其更小的层间隙和更大的 Cr 原子之间的距离^[16,17].自 Cao 等^[8]发现 CGT 中存在固有铁磁序以来,该材料受到了科研人员的重视. CGT 通常先通过自溶剂法制备^[18]出块体,然后使用机械剥离的方法制备出准二维或二维样品^[1,10]. 2013 年, Ji 等^[19]通过红外光谱测试 CGT 观察到 0.5 和 0.74 eV 两个不同的吸收边,之后通过理论计算得到 0.43 和 0.7 eV 两个与带隙相关的能量. 2018 年, Li 等^[20]利用角分辨光电子能谱和密度泛函理论 (DFT) 计算探索了 CGT 的电子结构,并得到 CGT 的间接带隙为 0.38 eV. 2021 年, Zhu 等^[21]通过自旋波激发的理论结合非弹性中子散射实验实现了 CGT 中的拓扑磁子绝缘体,使其成为拓扑自旋电子学领域的重要材料. 然而当前对 CGT 及其相关材料的研究主要集中在磁性和光学的红外光谱波段,对 THz 波段的研究仍然较少^[22].

本文通过红外光谱计算了准二维范德瓦耳斯本征铁磁半导体 CGT 间接带隙的大小,并利用时间分辨 THz 光谱给出了其在 THz 波段的折射率和吸收系数等相关参数,研究了 CGT 的 THz 时域谱和激光诱导的载流子动力学特性. 实验及拟合结果表明,室温下 780 nm 激光泵浦后,光载流子呈现出双指数的动力学弛豫过程,其中快过程为电子-声子耦合,在 1—2 ps 之间;慢过程为声子辅助的电子-空穴对的复合,在 7—10 ps 之间. 利用 Drude-Smith 模型对其复光电导率进行拟合,相关参数及其随时间的演化显示出了载流子相关的光电导率的变化.

2 实验

利用自溶剂法制备了大尺寸的 CGT 单晶. 首先将高纯度的铬、锗和碲粉末在坩埚中混合,其混合的原子物质的量比为 10:13.5:76.5. 然后将其密

封在真空石英管中放在炉中加热到 1050 °C 并保持 1 d,最后用 7 d 缓慢冷却至 450 °C 直至室温,最终生长出的 CGT 平均晶体尺寸约为 8 mm,厚度为 300—800 μm 之间. 之后将所得的大块 CGT 单晶利用机械剥离法剥离至约 33 μm 以便 THz 波能够更好的透过.

实验中所采用的系统见图 1. 使用钛宝石激光放大系统,中心输出波长 780 nm,重复频率 1 kHz,脉冲宽度约为 120 fs,激光总功率为 1.5 W. 入射到光泵浦-太赫兹探测光路系统后被分成三路:一路用作激发样品为泵浦光,最大功率 500 mW;第二路入射到 (110) 取向的 ZnTe 晶体,用来产生 THz 脉冲,功率为 40 mW;第三路用来取样 THz 信号,功率为 400 μW. 以上各光路功率均通过中性衰减片调节. 泵浦光光斑直径 6.5 mm,入射到样品表面的 THz 光斑直径 2 mm,所有 THz 光谱数据采集均在氮气气氛中进行.

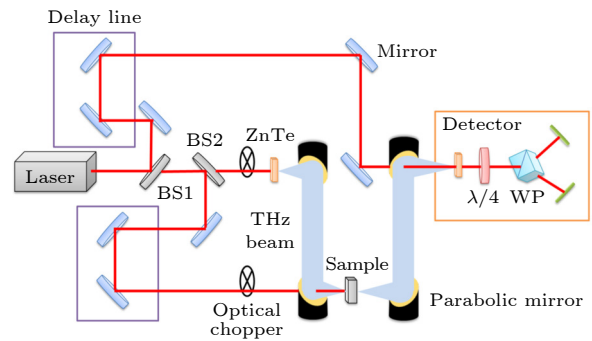


图 1 时间分辨超快光泵浦-THz 探测实验光路示意图
Fig. 1. Schematic diagram of the experimental setup for time-resolved ultrafast optical pump-terahertz probe spectroscopy.

3 结果与讨论

图 2(a) 为 CGT 的晶体结构示意图,包括顶视图和侧视图. 每个单胞以 ABC 顺序堆叠,层间距为 3.3 Å. 其中 Cr 原子位于 6 个 Te 原子组成的八面体中心. 晶格参数为 $a = b = 6.809 \text{ \AA}$, $c = 20.444 \text{ \AA}$; $\alpha = \beta = 90^\circ$, $\gamma = 120^\circ$. 图 2(b) 是通过红外透射光谱利用 Tauc plot 法计算得到的 CGT 间接带隙. Tauc 等^[23]提出利用光学吸收光谱可以计算半导体带隙能量,并由 Mott 和 Davis 完善^[24,25],它基于光子能量和吸收系数的关系,其公式为

$$(\alpha h\nu)^{\frac{1}{n}} = B(h\nu - E_g), \quad (1)$$

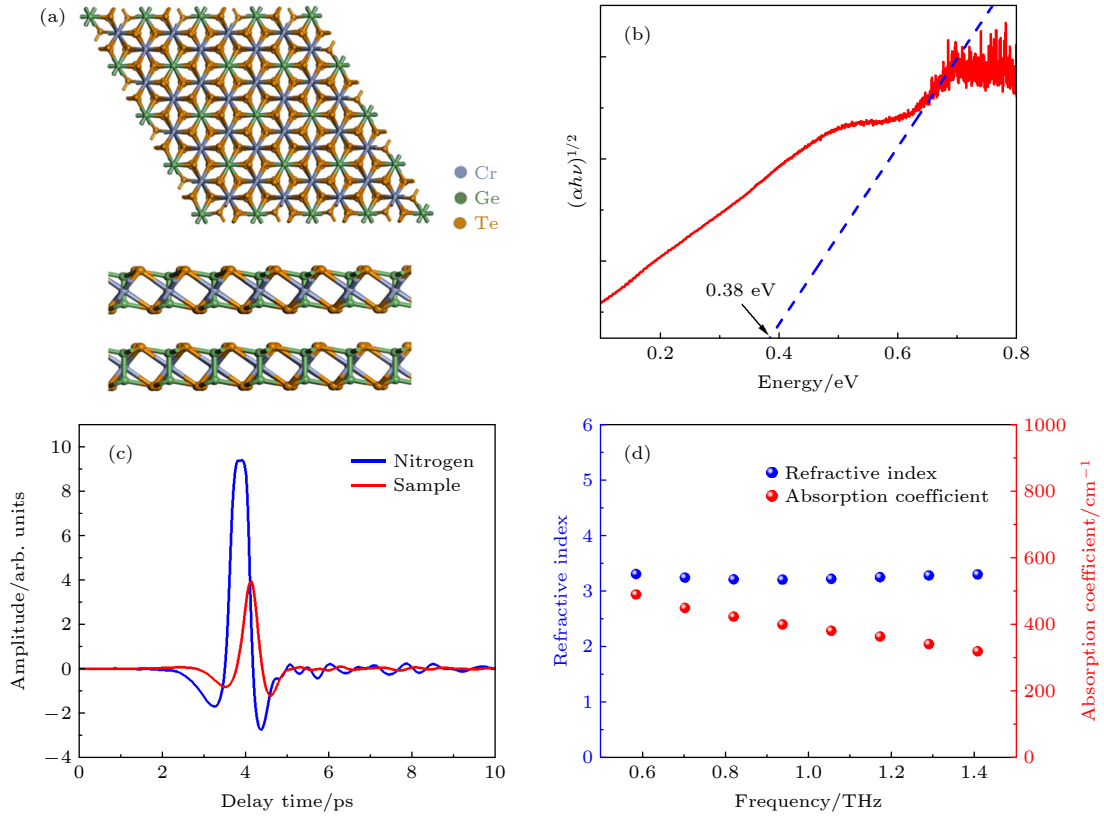


图 2 (a) CGT 原子结构的顶视图和侧视图; (b) 利用红外透射光谱计算得到的间接带隙; (c) 参考信号与透过样品后的 THz 时域信号; (d) 通过 THz 时域光谱得到的 CGT 晶体在 THz 波段的折射率和吸收系数

Fig. 2. (a) Top and side views of the atomic structure of CGT; (b) indirect band gap obtained from Fourier infrared spectroscopy; (c) the reference signal without placing sample and the THz-TDs signal through the sample; (d) the calculated refractive index and absorption coefficient of CGT crystal in the investigated THz frequency range.

其中 α 为吸光系数; h 为普朗克常数; ν 为频率; B 为常数; E_g 为半导体禁带宽度; 指数 $n = 1/2$ 为直接带隙半导体, $n = 2$ 则为间接带隙半导体. 根据 (1) 式, $(\alpha h\nu)^{\frac{1}{n}}$ 和 $h\nu$ 为线性关系可以用于计算 E_g . 这里, 取 B 的值为 1, 且 CrGeTe_3 为间接带隙半导体, 故 $n = 2$. 样品的吸收系数 α 由红外透射光谱测试计算确定. 利用吸光系数和透射率的关系:

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln \frac{1}{T}, \quad (2)$$

其中 T 为红外透射光谱的透过率; d 为样品厚度. 此时得到 (1) 式中除 E_g 外的所有参数, 以 $h\nu$ 为 x 轴, $(\alpha h\nu)^{\frac{1}{2}}$ 为 y 轴做图, 在斜率最大处做切线, 其与 x 轴的交点即为带隙大小. 这里, 得到 CGT 间接带隙的大小为 0.38 eV, 与角分辨光电子能谱和 DFT 计算结果一致 [17].

THz 时域光谱能够探测物质在 THz 波段的相关物理和化学信息, 尤其是导体的载流子动力学方面的信息. 基于材料对 THz 波的响应, 利用透过材

料前后的 THz 波相位和振幅的变化可以得到材料的复电导率和复折射率等光学参数.

图 2(c) 展示了无样品时的参考信号和有样品时的 THz 时域信号, 结合所测样品的厚度可计算得到样品在 THz 波段的折射率 [26]. 图 2(d) 蓝色曲线是利用上述方法计算得到的 CGT 在 THz 波段的折射率, 其在 0.5—1.5 THz 波段的折射率在 3.20—3.41 之间; 红色曲线为 CGT 在该 THz 波段的吸收系数曲线, 其计算式为

$$\alpha = -\frac{2}{d} \ln \left[\frac{E_s}{E_0} \cdot \frac{(1+n)^2}{4n} \right], \quad (3)$$

其中 E_s 和 E_0 分别为样品透过信号和参考信号在频谱上的振幅. 利用 THz 波电场所得的吸收系数反应的是电场的衰减, 通过计算得到 CGT 在 1 THz 的吸收系数约为 380 cm^{-1} , 这种较高的吸收系数是由于窄带隙 CGT 中的热激发自由载流子与 THz 波相互作用, 载流子浓度越大对 THz 波的吸收越强 [27,28].

研究窄带隙半导体的载流子动力学对于相关器件的研发具有重要意义. 光泵浦-THz 探测光谱技术 (OPTP), 常用来探测超短激光激发下材料的超快载流子动力学, 其光电导率的变化通常体现在 THz 波透过信号的变化上. 利用 OPTP 系统对 CGT 进行了不同功率下的泵浦-探测实验, 图 3 展示了其载流子的超快动力学演化过程.

图 3(a) 为不同泵浦功率下 THz 透射的变化, 其中 T_0 是 CGT 未被激光激发的 THz 透过信号的峰值. 从图 3(a) 中可以看出, 当 CGT 被光激发后首先经历一个 THz 透射减小的过程, 当 780 nm 光激发样品后, 由于 1.59 eV 的能量高于 CGT 带隙, 电子由价带跃迁至导带而成为自由载流子, 自由载流子的迅速产生增强了对 THz 波的吸收. 随后受激发载流子弛豫回激发前的平衡态. 图 3(b) 为零延迟时间时调制深度随泵浦功率的变化, 调制深度随泵浦功率的增加而线性增加, 这是因为随泵浦功率的增加, 光载流子的数量增加, 调制深度由于电导率的变化增大而增大. 利用双指数函数可以很好地拟合载流子的弛豫过程:

$$\frac{\Delta T}{T_0} = A_1 e^{-\frac{t}{\tau_1}} + A_2 e^{-\frac{t}{\tau_2}} + B, \quad (4)$$

其中 A_1 和 A_2 是两指数项的振幅; τ_1 和 τ_2 是两个弛豫寿命; B 为常数项. 图 3(c) 和图 3(d) 分别为拟合得到的快慢过程的振幅和寿命随泵浦功率的变化. 从图 3(c) 和图 3(d) 中可以看出, 快寿命在 1—2 ps 之间, 慢寿命在 7—10 ps 之间, 都随泵浦功率的增加稍微增加, 而二者振幅占比变化不大. 快过程被认为是电子-声子耦合过程, 这是电子与晶格相互作用得到动量补偿回到导带底部的过程, 为 1—2 ps^[29,30]. 慢过程被认为是声子辅助的电子-空穴对的复合, 这是因为 CGT 是间接带隙半导体, 并且有和 CST 相似的晶格结构和动力学过程^[31].

为进一步分析 CGT 受激发后电导率随泵浦功率和时间的演化, 计算了其复电导率, 计算式为

$$\sigma_{\text{real}} = \frac{1+n}{Z_0 l} \left(\frac{\cos \phi}{A} - 1 \right), \quad (5)$$

$$\sigma_{\text{image}} = \frac{-(1+n)\sin \phi}{AZ_0 l}, \quad (6)$$

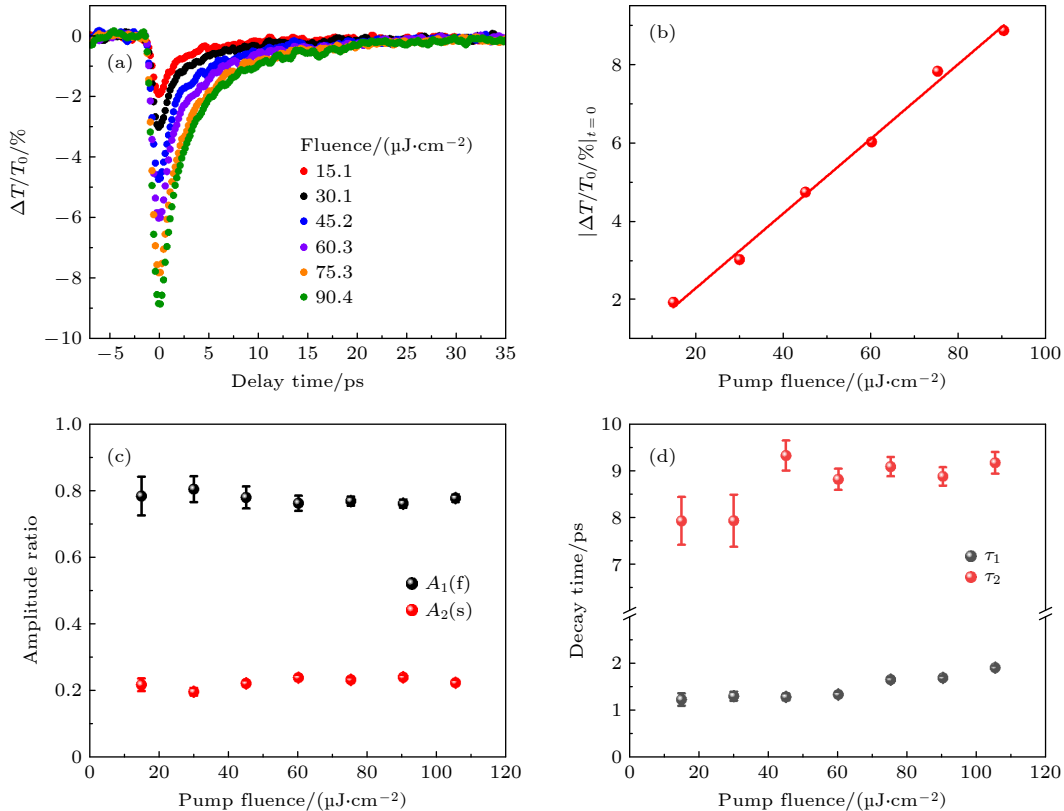


图 3 (a) 不同泵浦功率下的瞬态 THz 透过率 ($\Delta T/T_0$); (b) 泵浦-探测零延迟时间泵浦功率依赖的调制深度, 实线是线性拟合的结果; (c) 快慢过程的振幅占比随泵浦功率的依赖关系; (d) 快慢寿命随泵浦功率的依赖关系

Fig. 3. (a) Transient dynamic evolution ($\Delta T/T_0$)% under different pump fluence; (b) pump power-dependent modulation depth at zero pump-probe time delay, the solid line is the result of a linear fit; (c) the fitting fast (A_1) and slow (A_2) amplitudes with respect to pump fluence; (d) the fitting fast (τ_1) and slow (τ_2) lifetimes with respect to pump fluence.

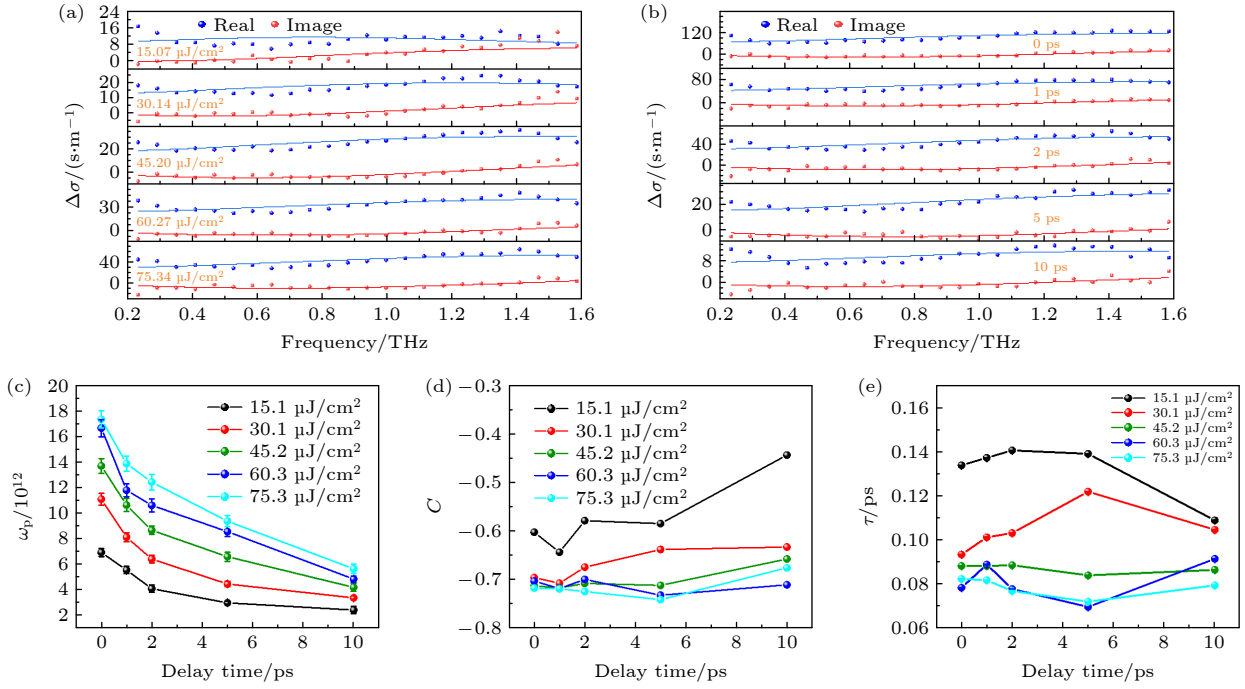


图 4 (a) 泵浦-探测延迟时间为 2 ps、不同泵浦功率下光电导的色散曲线, 实线是 Drude-Smith 模型拟合的结果; (b) 75.3 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ 泵浦功率、不同泵浦-探测延迟时间下 THz 光电导色散曲线. 利用 Drude-Smith 模型拟合的在不同泵浦功率下随延迟时间演化的参数 (c) 等离子体频率 ω_p ; (d) 背散射因子 c ; (e) 载流子动量散射时间 τ

Fig. 4. (a) Real and imaginary parts of THz photoconductivity dispersion measured at delay time of 2 ps for different pump fluences, the solid lines are the fitting curves with of Drude-Smith model; (b) the real and imaginary parts of THz photoconductivity dispersion under pump fluence of 75.3 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ at various delay times. The fitting parameters obtained with Drude-Smith model with respect to delay time: (c) plasma frequency, ω_p ; (d) backscattering factor, c ; (e) carrier momentum scattering time, τ .

其中 Z_0 是自由空间阻抗, 为 377 Ω ; n 是 CGT 在 THz 波段折射率; l 是样品的趋肤深度. 由于 780 nm 附近样品的趋肤深度约为 130 μm , 远大于样品厚度 $d = 33 \mu\text{m}$, 因此, (5) 式和 (6) 式中的 l 取值 33 μm . 图 4(a) 和图 4(b) 分别为同泵浦-探测延迟时间、不同泵浦功率和同功率、不同泵浦-探测延迟时间下的复光电导. 从图 4(a) 和图 4(b) 中可以看到, 在延迟时间为 2 ps 下光电导随泵浦功率的增加而增加, 随延迟时间的增加而减小. 为对微观系统相关参量进行定量描述, 利用 Drude-Smith 模型拟合 CGT 的复光电导率, 其表达式为

$$\Delta\sigma(\omega) = \frac{\omega_p^2 \varepsilon_0 \tau}{1 - i\tau\omega} \cdot \left(1 + \frac{c}{1 - i\tau\omega}\right), \quad (7)$$

其中 $\omega_p \propto \sqrt{N}$ 是等离子体频率; N 为光激发载流子浓度; ε_0 是真空介电常数; τ 是动量散射时间, 即平均两次散射之间的时间间隔; c 是用来描述系统回复力或背散射现象的速度参数持续因子, 其值在 0 到 1 之间, 是对于经典 Drude 模型的修正. 从图 4(c) 中可以看出同延迟时间, 随泵浦功率的增加, ω_p 增加, 表明载流子浓度在增加; 同泵浦功率,

随延迟时间的增加而减小, 表明载流子数目在减少. 从图 4(d) 和图 4(e) 中可以看出, 平均碰撞时间大约在 0.1 ps, 并且随泵浦功率的增加而逐渐变快; c 约为 -0.7. 总的来说, CGT 受光激发后载流子浓度迅速增加, 随后进入一个弛豫过程, 电导率会逐渐减小, 载流子浓度的降低也意味着等离子体频率的减小.

4 结 论

本文利用红外光谱和 THz 光谱对准二维范德瓦耳斯本征铁磁半导体 CGT 的相关性质进行了研究. 实验结果表明, CGT 间接带隙大小为 0.38 eV; 在 THz 波段的折射率约为 3.2, 吸收系数约为 380 cm^{-1} ; CGT 受光激发后存在两个典型寿命, 利用 Drude-Smith 模型拟合定量得到了微观系统的等离子体频率、背散射因子和载流子动量散射时间随泵浦功率和延迟时间的变化. 在这项工作中展示的相关光谱信息和物理参量, 对 CGT 在相关电子和光电子学等领域的应用具有借鉴意义.

参考文献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [2] Tongay S, Schumann T, Miao X, Appleton B R, Hebard A F 2011 *Carbon* **49** 2033
- [3] Tongay S, Schumann T, Hebard A 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 222103
- [4] Desai S B, Madhupathy S R, Sachid A B, Llinas J P, Wang Q, Ahn G H, Pitner G, Kim M J, Bokor J, Hu C 2016 *Science* **354** 99
- [5] Suo P, Yan S, Pu R, Zhang W, Li D, Chen J, Fu J, Lin X, Miao F, Liang S J 2022 *Photonics Res.* **10** 653
- [6] Waters D, Nie Y, Litpke F, Pan Y, Flsch S, Lin Y C, Jariwala B, Zhang K, Wang C, Lü H 2020 *ACS Nano* **14** 7564
- [7] Tran K, Moody G, Wu F, Lu X, Choi J, Kim K, Rai A, Sanchez D A, Quan J, Singh A 2019 *Nature* **567** 71
- [8] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [9] Ma Q S, Zhang W, Wang C, Pu R, Ju C W, Lin X, Zhang Z, Liu W, Li R 2021 *J. Phys. Chem. C* **125** 9296
- [10] Chen J, Suo P, Zhang W, Ma H, Fu J, Li D, Lin X, Yan X, Liu W, Jin Z 2022 *J. Phys. Chem. C* **126** 9407
- [11] Gong C, Li L, Li Z, Ji H, Stern A, Xia Y, Cao T, Bao W, Wang C, Wang Y 2017 *Nature* **546** 265
- [12] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H 2017 *Nature* **546** 270
- [13] Deng Y, Yu Y, Song Y, Zhang J, Wang N Z, Sun Z, Yi Y, Wu Y Z, Wu S, Zhu J 2018 *Nature* **563** 94
- [14] Liu B, Liu S, Yang L, Chen Z, Zhang E, Li Z, Wu J, Ruan X, Xiu F, Liu W 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 267205
- [15] Li X, Yang J 2014 *J. Mater. Chem. C* **2** 7071
- [16] Zhang J, Zhao B, Yao Y, Yang Z 2015 *Phys. Rev. B* **92** 165418
- [17] Carreaux V, Moussa F, Spiesser M 1995 *EPL-Europhys. Lett.* **29** 251
- [18] Tian Y, Gray M J, Ji H, Cava R J, Burch K S 2016 *J. Phys. Mater.* **3** 025035
- [19] Ji H, Stokes R A, Alegria L D, Blomberg E C, Tanatar M A, Reijnders A, Schoop L M, Tian L, Prozorov R, Burch K S 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 045302
- [20] Li Y F, Wang W, Guo W, Gu C Y, Sun H Y, He L, Zhou J, Gu Z B, Nie Y F, Pan X Q 2018 *Phys. Rev. B* **98** 125127
- [21] Zhu F, Zhang L, Wang X, Dos Santos F J, Song J, Mueller T, Schmalzl K, Schmidt W F, Ivanov A, Park J T 2021 *Sci. Adv.* **7** eabi7532
- [22] Suo P, Xia W, Zhang W J, Zhu X Q, Guo J J, Fu J B, Lin X, Guo Y F, Ma G H 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 207302 (in Chinese) [索鹏, 夏威, 张文杰, 朱晓青, 国家嘉, 傅吉波, 林贤, 郭艳峰, 马国宏 2020 物理学报 **69** 207302]
- [23] Tauc J, Grigorovici R, Vancu A 1966 *Phys. Status Solidi B* **15** 627
- [24] Davis E, Mott N 1970 *Philos. Mag.* **22** 0903
- [25] Mott N F, Davis E A 2012 *Electronic Processes in non-Crystalline Materials* (New York: Oxford University Press) pp608–622
- [26] Dorney T D, Baraniuk R G, Mittleman D M 2001 *J. Opt. Soc. Am. A* **18** 1562
- [27] Hebling J, Hoffmann M C, Hwang H Y, Yeh K L, Nelson K A 2010 *Phys. Rev. B* **81** 035201
- [28] Zou Y, Ma Q S, Zhang Z, Pu R, Zhang W, Suo P, Sun K, Cheng J, Li D, Ma H, Lin X, Leng Y, Liu W, Du J, Ma G 2022 *J. Phys. Chem. Lett.* **13** 5123
- [29] Xing X, Zhao L, Zhang W, Wang Z, Su H, Chen H, Ma G, Dai J, Zhang W 2020 *Nanoscale* **12** 2498
- [30] Li D, Zhang W, Suo P, Chen J, Sun K, Zou Y, Ma H, Lin X, Yan X, Zhang S 2022 *J. Phys. Chem. Lett.* **13** 2757
- [31] Suo P, Xia W, Zhang W, Zhu X, Fu J, Lin X, Jin Z, Liu W, Guo Y, Ma G 2020 *Laser Photonics Rev.* **14** 2000025

Quasi-two-dimensional van der Waals ferromagnetic semiconductor CrGeTe₃ studied by THz spectroscopy*

Wang Chen¹⁾ Xia Wei²⁾ Suo Peng¹⁾ Wang Wei¹⁾ Lin Xian¹⁾

Guo Yan-Feng²⁾³⁾ Ma Guo-Hong^{1)3)†}

1) (*Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China*)

2) (*School of Physical Science and Technology, Shanghai Tech University, Shanghai 201210, China*)

3) (*STU&SIOM Joint Laboratory for Superintense Lasers and Applications, Shanghai 201210, China*)

(Received 7 August 2022; revised manuscript received 23 August 2022)

Abstract

The quasi-two-dimensional van der Waals intrinsic ferromagnetic semiconductor CrGeTe₃ possesses both a narrow semiconductor band gap and ferromagnetic properties, which makes it have a broad application prospect in the fields of spintronics and optoelectronics. In recent years, CrGeTe₃ has received extensive attention from researchers. To the best of our knowledge, so far, these studies have mainly focused on the optical response in near infrared and visible light range, but little has been done in THz frequency range. Therefore, it is utmost importance to obtain the complex dielectric constant as well as the photocarrier dynamics of the CrGeTe₃ at the THz frequency. Herewith, we use time-domain THz spectroscopy and time-resolved THz spectroscopy to investigate the fundamental properties of the CrGeTe₃ crystal in the THz range, including refractive index and absorption coefficient in THz frequency, as well as the THz photocarrier dynamics under 780-nm optical excitation. The fundamental characterizations are carried out on a 33- μm -thick CrGeTe₃ wafer by Fourier infrared spectroscopy, X-ray diffraction and Raman scattering. It is concluded that the CrGeTe₃ wafer shows an indirect band gap of 0.38 eV and good crystalline quality. The THz time domain spectroscopy presents that the CrGeTe₃ wafer has a refractive index and an absorption coefficient of 3.2 and 380 cm^{-1} , respectively, both of which show almost negligible dispersion in the investigated THz frequency. Under the optical excitation of 780 nm, the subsequent photocarrier relaxation can be well reproduced by a double exponential function: the fast relaxation shows a lifetime of 1–2 ps, depending on pump fluence, which is contributed by electron-phonon coupling; the slow relaxation has a typical lifetime of 7–8 ps, which is due to phonon-assisted electron-phonon recombination. The Pump fluence and delay time dependence of THz photoconductivity dispersion can be well fitted with Drude-Smith model, and the fitted results demonstrate that the plasma frequency increases with pump fluence in a fixed delay time, and then decreases with delay time increasing at a fixed pump fluence. The momentum scattering time shows that it decreases with pump fluence increasing, and increases with delay time increasing. These pump fluence and delay time dependent fitting microscopic parameters show similar tendencies to those of a conventional semiconductor. In a word, the experimental study here demonstrates that the narrow band-gap CrGeTe₃ wafer is well transparent and dispersionless in a THz frequency range. From the above bandgap photoexcitation it follows that the wafer shows fast response and high modulation depth in THz radiation, providing a useful reference for the application of CrGeTe₃ in optoelectronics and related fields.

Keywords: van der Waals ferromagnetic semiconductor, time-resolved spectroscopy, terahertz spectroscopy

PACS: 73.90.+f, 78.47.-p, 33.20.Ea

DOI: 10.7498/aps.71.20221586

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 92150101, 61735010) and the Science and Technology Innovation Action Program of the Shanghai Committee of Science and Technology, China (Grant No. 21JC1402600).

† Corresponding author. E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn



准二维范德瓦耳斯本征铁磁半导体 CrGeTe_3 的THz光谱

王晨 夏威 索鹏 王伟 林贤 郭艳峰 马国宏

Quasi-two-dimensional van der Waals ferromagnetic semiconductor CrGeTe_3 studied by THz spectroscopy

Wang Chen Xia Wei Suo Peng Wang Wei Lin Xian Guo Yan-Feng Ma Guo-Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 237303 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20221586

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221586>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

准二维范德瓦耳斯磁性半导体 CrSiTe_3 的THz光谱

Quasi-two-dimensional van der Waals semiconducting magnet CrSiTe_3 studied by using THz spectroscopy

物理学报. 2020, 69(20): 207302 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200682>

二维范德瓦耳斯半导体莫尔超晶格实验研究进展

Recent experimental research progress of two-dimensional van der Waals semiconductor moiré superlattices

物理学报. 2022, 71(12): 127309 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220347>

二维范德瓦耳斯材料的超导物性研究及性能调控

Two-dimensional van der Waals: Characterization and manipulation of superconductivity

物理学报. 2022, 71(18): 187401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220638>

几种范德瓦耳斯铁电材料中新奇物性的研究进展

Research progress of novel properties in several van der Waals ferroelectric materials

物理学报. 2022, 71(12): 127305 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220349>

飞秒激光引导高压放电下的 SF_6 等离子体时间分辨光谱特性

Time-resolved spectral characteristics of SF_6 plasma under femtosecond laser-guided high-voltage discharge

物理学报. 2020, 69(18): 185201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200636>

二维平面和范德瓦耳斯异质结的可控制备与光电应用

Controllable preparation and photoelectric applications of two-dimensional in-plane and van der Waals heterostructures

物理学报. 2021, 70(2): 027901 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201419>