

Three-Dimensional Character of Spin Structures in Nanomagnetic Materials

Hee-Sung Han*

Department of Materials Science and Engineering, Korea National University of Transportation, Chungju 27469, Republic of Korea

(Received 15 October 2023, Received in final form 26 October 2023, Accepted 26 October 2023)

Spin structures are the unique magnetization configurations in the magnetic medium. Due to their intriguing physical properties, spin structures have attracted interest for development of the next-generation information storage/processing devices. The spin structures have been investigated in thin magnetic films where the magnetization distribution is uniform in the thickness direction. Recently, it has been revealed that, in bulk magnetic medium, the magnetization distribution is no longer uniform in the thickness direction, and it leads to novel physical properties distinguished from the physical properties of the spin structures in thin magnetic films. In this work, we review typical physical properties of spin structures such as high stability and rich dynamic properties. In addition, we briefly introduce the physical properties of spin structures, such as skyrmions and magnetic vortices, in bulk magnetic mediums, and novel 3D spin structures only stabilized in bulk magnetic mediums.

Keywords : spin structure, spintronics, nanomagnet

나노 자성체 내 스핀 구조체의 3차원 특성

한희성*

한국교통대학교 반도체신소재공학과, 충북 충주시 대학로 50, 27469

(2023년 10월 15일 받음, 2023년 10월 26일 최종수정본 받음, 2023년 10월 26일 게재확정)

스핀 구조체는 자성체 내에 존재하는 독특한 자화 분포를 의미한다. 이러한 스핀 구조체는 차세대 정보 처리 및 저장 소자 개발에 응용 가능한 물리적 특성을 보여준다. 일반적으로, 스핀 구조체 연구는 두께 방향으로의 자화가 균일하게 분포되어 있는 얇은 자성 박막 내에서 진행되고 있다. 최근, 벌크 자성체 내에서의 스핀 구조체는 두께 방향으로의 자화가 불균일하게 분포되어 있고, 이러한 불균일한 자화 분포는 기존의 얇은 자성 박막에서 볼 수 없었던 새로운 물리 현상을 이끌어 낸다는 것이 보고가 되고 있다. 본 논문에서는 일반적으로 알려진 위상적 보호 및 다양한 동적 거동 같은 전형적인 스핀 구조체의 특성들을 소개하고, 더 나아가, 벌크 자성체 내에서의 스커미온과 자기 소용돌이 같은 스핀 구조체의 특성과 벌크 자성체 내에서만 안정화될 수 있는 새로운 3차원 스핀 구조체들에 대해 간략하게 소개하고자 한다.

주제어 : 스핀 구조체, 스핀트로닉스, 나노 자성체

I. 서 론

최근, 데이터 수요가 폭발적으로 증가함과 동시에 데이터를 저장하고 처리할 수 있는 고효율, 저전력 특성을 가지고 있는 차세대 메모리/컴퓨팅 소자 개발에 대한 요구가 늘어나고 있다 [1]. 그러한 차세대 메모리/컴퓨팅 소자 개발을 위해, 자성 재료에 대한 연구가 크게 각광받고 있다[2-4]. 자성 재료는 비휘발성 특성을 가지고 있어 대기전력이 필요 없는 저전력 소자

를 개발할 수 있다. 뿐만 아니라, 자기 저항(magnetoresistance) 현상을 이용하여, 자성 신호의 경우, 전기 신호로 쉽게 변환할 수 있어, 기존 소자와의 호환성이 높다는 특징을 가지고 있다[5]. 종래의 자성체 기반 소자의 경우, 자성체 내의 단일 자구(single magnetic domain)의 자화(magnetization) 방향에 따라 정보를 저장하고 있으며, 이를 터널링 자기저항(tunneling magnetoresistance; TMR)을 이용하여, 정보를 읽는 것을 기본으로 하고 있다[6]. 최근, 단일 자구 형태의 저장 정보 방식을 탈피하여, 자성체 내의 형성될 수 있는 스핀 구조체(spin structure)를 기반으로 정보를 저장하려고 처리하는 연구가 활발히 진행되고 있다[7]. 본 논문에서는 일반적으

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.

*Corresponding author: Tel: +82-43-841-5386,

Fax: +82-43-841-5380, e-mail: hs.han@ut.ac.kr

로 알려진 스핀 구조체의 물리학적 성질에 대하여 살펴보고, 벌크(bulk) 자성체 내에서의 스핀 구조체의 3차원 특성에 대해 소개하고자 한다.

II. 스핀 구조체

Fig. 1은 자성체 내에 존재할 수 있는 다양한 자화 분포들을 보여준다. 가장 친숙하고 간단한 자화분포는 자성체의 자화가 한방향으로만 되어있는 Fig. 1(a)에 나와 있는 단일 자구 구조이다. 자성체 내에는 단일 자구 외에도 Fig. 1(b-f)와 같이 나노미터 단위의 크기를 가지고 있는 독특한 자화 분포가 안정화될 수 있으며, 이들을 스핀 구조체라고 일컫는다[7]. Fig. 1(b-f)의 스핀 구조체들은 각각 순서대로, 자기 버블

(bubble), 헷지혹 스커미온(hedgehog skyrmion), 회전 스커미온(circulating skyrmion), 바이 스커미온(bi-skyrmion), 자기 소용돌이(magnetic vortex)에 해당된다. 연속적인 변형을 다루는 위상학적(topological) 관점에서, 각각의 스핀 구조체들은 고유의 위상 전하(topological charge)를 가지고 있다[8-10]. 대표적인 위상 전하인 스커미온 수(skyrmion number) Q 는 다음과 같이 기술할 수 있다[8,9].

$$Q = \frac{1}{4\pi} \int_S \mathbf{B} \cdot d\mathbf{A} \text{ where } B_k = \frac{1}{2} \epsilon^{ijk} [\mathbf{m} \cdot (\partial_i \mathbf{m} \times \partial_j \mathbf{m})] \quad (1)$$

식(1)의 \mathbf{m} 은 단위 자화 벡터(unit magnetization vector), \mathbf{B} 는 창발형 자기장(emergent magnetic field), ϵ^{ijk} 는 레비-치비타 기호(levi-civita symbol), S 는 스커미온 수를 구하고자하는 실 공간(real space) 내의 표면을 뜻한다. 이는 표면 S 내의 자화 분포를 역 스테레오 투영(inverse stereographic projection)을 통하여, 구(sphere)로 매핑(mapping)하였을 때, 자화가 구를 감싸는 횟수를 의미한다. 이 때, 서로 다른 위상 전하를 가지고 있는 스핀 구조체들을 위상적으로 다르다고 표현을 한다. 단일 자구의 Q 는 0을 가지고 있으며, 자기 버블은 0, 헷지혹 스커미온과 회전 스커미온은 1, 바이-스커미온은 2, 자기 소용돌이는 1/2인 Q 를 가지고 있다. 즉, 자기 버블은 단일 자구와 위상적으로 동일한 반면에, Fig. 1(c-d)의 스핀 구조체들은 단일 자구와 위상적으로 다른 스핀 구조체이다.

신기하게도, 위상 전하는 단순히 스핀 구조체를 위상학적으로 분류하는 것을 넘어서, 스핀 구조체의 물리적 특성을 결정한다. 위상 전하에 의해 결정되는 대표적인 물리적 특성은 스핀 구조체의 안정성(stability)이다[11-15]. 위상학적으로, 서로 다른 위상 전하를 가지고 있는 구조들은 서로 변환될 수 없으며, 이를 위상적 보호(topological protection)라고 일컫는다. 자성체 내에서 단일 자구의 Q 는 0이므로, 연속적인 변형을 통하여, Q 가 0이 아닌 스핀 구조체가 단일 자구로 변환될 수 없다. 따라서, Q 가 0이 아닌 스핀 구조체는 상대적으로 높은 안정성을 가지게 된다. Fig. 2(a)는 Q 가 1인 스커미온이 Q 가 0인 버블보다 높은 안정성을 보여주는 이유에 대한 간단한 예시를 보여준다.

스커미온과 버블은 모두 원형 형태의 스핀 구조체이지만, 스핀 구조체를 둘러싸고 있는 수평 자화 성분의 차이로 인하여, 서로 다른 위상 전하를 가지게 된다. 주황색 박스 안에 표기된 두 스핀 구조체의 단면을 살펴보면, 스커미온은 좌측의 수평자화는 $+x$ 방향, 우측의 수평자화는 $-x$ 방향으로 분포 되어있는 반면에, 버블은 모두 $+x$ 방향으로 수평자화가 분포되어 있다. 스커미온과 버블을 소멸시키기 위해, 스커미온과 버블에 수직 자기장(H_z)을 인가하게 되면, 제만 에너지(Zeeman energy)를 감소시키기 위해, 두 구조 모두 수축하게

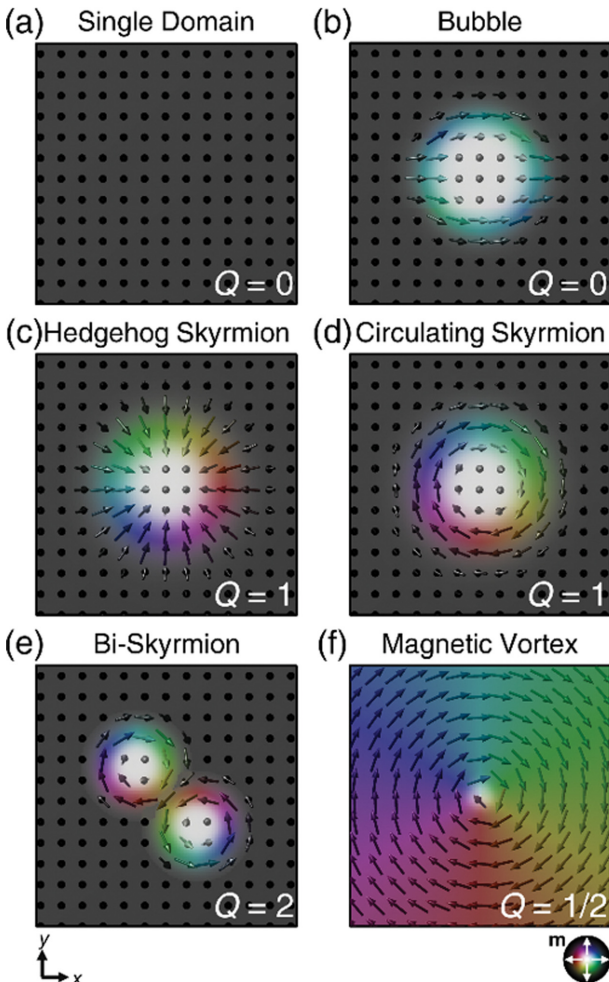


Fig. 1. (Color online) Various magnetization configurations of (a) single magnetic domain, (b) magnetic bubble, (c) hedgehog skyrmion, (d) circulating skyrmion, (e) bi-skyrmion, and (f) magnetic vortex stably formed in magnetic elements. The arrows and colors indicate the magnetization direction. The skyrmion numbers (Q) are inserted in the bottom right corner of each spin structure.

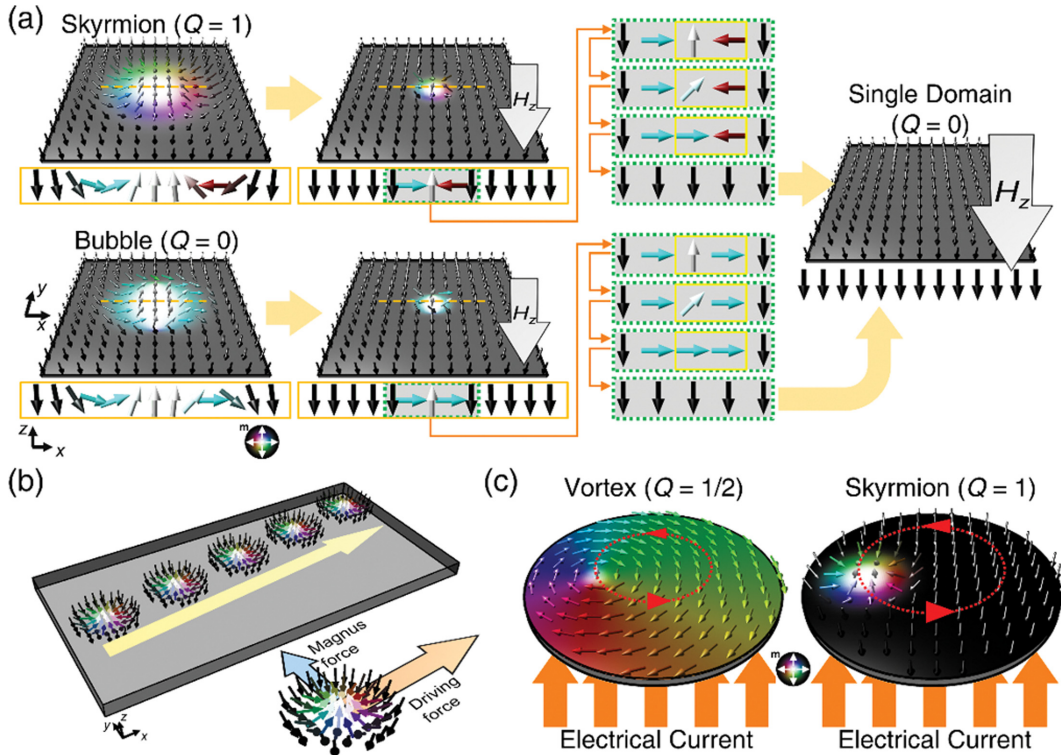


Fig. 2. (Color online) (a) The out-of-plane field (H_z)-driven amihilation processes of the topologically non-trivial skyrmion and bubble, respectively. The magnetization configurations in the cross-section of spin structures (orange dashed lines) are inserted. (b) The schematics of skyrmion Hall effects and (c) spin-torque-driven oscillation of vortex and skyrmion.

된다. 이 상태에서, 수직 자기장의 세기를 증가시키면, 스커미온과 버블 모두 소멸되어야 한다. 이제, 스커미온과 버블 모두, 위쪽 자화 방향이 아래쪽 자화 방향으로 반전이 되면서, 소멸된다고 생각해 보자. 점선으로 표기된 초록색 박스는 중심부 자화에서 수직 자화가 반전되는 상황을 보여준다. 스커미온의 경우, 위쪽 자화 방향이 아래쪽 방향으로 반전되기 위해서는 자화가 반대로 형성되어 있는 지점을 거쳐야만 한다(노란색 상자). 이러한 자화가 불연속적인 지점은 자화의 연속성을 부여하는 단범위 상호작용(short-range interaction)인 교환 상호작용(exchange interaction)에 의해 발생하는 교환 에너지(exchange energy)의 급격한 증가를 이끌게 된다. 즉, 스커미온이 소멸되기 위해서는 교환 에너지의 증가를 보상(compensation)할 만큼의 외부 에너지가 공급되어야 한다. 하지만, 버블의 경우, 위쪽 자화 방향이 아래쪽 방향으로 반전되는 과정에서 자화가 불연속적인 지점이 형성되지 않는다(노란색 박스). 이는 교환 에너지의 급격한 증가를 이끌지 않으므로, 스커미온에 비하여, 상대적으로 약한 세기의 수직 자기장을 인가하더라도 소멸될 수 있다. 따라서, 스커미온은 버블에 비하여 높은 안정성을 가지고 있게 된다.

위상 전하는 안정성 외에도 스핀 구조체의 동역학(dynamics)에도 큰 영향을 끼친다. 대표적인 효과로는 스커미

온 홀 효과(skyrmion Hall effect)가 있다[16-18]. 움직이고 있는 하전 입자(charged particle)가 자기장에 의해, 움직이는 방향에 수직인 방향으로 꺾이는 홀 효과(Hall effect)처럼, 스커미온 홀 효과는 Q 가 0이 아닌 움직이고 있는 스핀 구조체가 움직이는 방향과 수직인 방향으로 꺾이는 효과를 의미한다. Fig. 2(b)는 외부 구동력(driving force)이 $+x$ 방향으로 인가될 때의 스커미온의 움직임을 보여준다. 이 경우, 외부 구동력은 $+x$ 방향으로 작용함에도 불구하고, 스커미온의 움직임은 $+x$ 방향뿐만 아니라 $+y$ 방향으로도 움직이게 된다. 이러한 스커미온 홀 효과는 홀 효과에서 하전 입자의 전하에 의해 $+y$ 방향의 로렌츠 힘(Lorentz force)이 발생하듯이, 위상 전하인 Q 값에 의해 스핀 구조체에 $+y$ 방향의 힘의 마그누스 힘(Magnus force)이 작용하여 나타나는 현상이다. 이러한 마그누스 힘은 스핀 구조체의 회전 운동(gyrotropic motion)을 야기한다[19,20]. Fig. 2(c)에서 보이듯이, 이러한 디스크에 존재하는 스커미온과 자기 소용돌이에 전류를 수직 방향으로 인가하였을 때, 마그누스 힘에 의하여, 스커미온과 자기 소용돌이를 고유 진동수(eigenfrequency)로 회전운동을 하게 만든다[20-22]. 이 때, 회전 운동의 방향은 Q 에 의해 결정이 된다. 이러한 특성들을 바탕으로, 메모리 소자[23-25], 정보 처리 소자[26-28], 나노 진동자(nano-oscillator)[29,30],

뉴로모픽(neuromorphic) 소자[31-37], 확률(probabilistic) 컴퓨팅 소자[38-41] 등의 다양한 차세대 메모리/컴퓨팅 소자들이 제시되어 오고 있다.

하지만, 굉장히 얇은 자성 박막 내의 스핀 구조체의 경우, 물질 내의 결함(defect)에 의해 발생하는 피닝(pinning) 현상 및 세차 운동(precessional motion)에 의한 변형 등 아직 해결해야 할 문제들이 남아있는 상태이다[42,43]. 이러한 문제들을 해결하기 위하여, 자성체를 이루고 있는 재료의 미세 구조를 제어하거나 다양한 외부 구동력을 인가하는 등 다양한 연구들이 진행되고 있는 상태이다. 이러한 문제들을 해결하려는 다양한 연구들 중에서, 본 논문에서는 두께가 증가하면서 나타나는 스핀 구조체의 3차원적 특성에 대한 연구를 다루고자 한다. 비록 얇은 자성 박막에서 벌크 자성체로의 변화는 이전에 스핀 구조체가 가지고 있던 2차원 특성에 3차원 특성까지 더해져, 스핀 구조체의 동적 거동을 보다 복잡하게 만든다고 여겨져 왔었다. 하지만, 최근 실험 및 계산 방법에 대한 발달로 인해, 벌크 자성체 내의 스핀 구조체에 대한 연구가 증가하면서, 벌크 자성체 내의 스핀 구조체 역시 차세대 정보 처리 및 저장 소자 개발에 높은 응용성을 보여준다는 것이 밝혀지고 있다. 3장 “벌크 자성체 내 스핀 구조체의 3차원 특성”에서는 벌크 자성체에서 스핀 구조체 전산 모사 방법을 간략히 소개하고, 전산 모사를 통해 밝혀진 스핀 구조체가 보여주는 3차원 특성에 대하여 소개하고자 한다.

III. 벌크 자성체 내 스핀 구조체의 3차원 특성

자성체 내의 스핀 구조체를 연구하는 방법으로는 스핀의 세차 운동을 모사하는 운동 방정식인 란다우-립시츠-길버트(Landau-Lifshitz-Gilbert; LLG) 방정식을 수치해석적 방법을 바탕으로 풀어 계산하는 미소자기 전산모사(micromagnetic simulation)이 대표적인 방법이다. LLG 방정식은 아래와 같다.

$$\partial \mathbf{m} / \partial t = -\gamma \mu_0 (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + (\alpha / M_s) (\mathbf{m} \times \partial \mathbf{m} / \partial t) \quad (2)$$

식(2)에서 γ 는 자이로마그네틱 비(gyromagnetic ratio), \mathbf{H}_{eff} 는 유효 자기장(effective magnetic field) α 는 감쇠 상수(damping constant), M_s 는 포화 자화(saturation magnetization)를 의미한다. 이러한 LLG 방정식은 자성체를 시뮬레이션의 기본 단위인 셀(cell)로 나누고 각각 셀에 단위 자화 벡터를 할당하여, 유한차분법(finite different method; FDM) 혹은 유한요소법(finite element method; FEM)을 이용하여 계산된다. 일반적으로 얇은 자성 박막의 경우, 자성 박막의 두께 방향으로의 자화가 균일하다고 알려져 있어, 하나의 셀만 두고 전산 모사를 수행한다. 하지만, 두께가 두꺼운 벌크 자성체의 경우, 장범위 상호작용(long-range interaction)인 쌍극자-쌍극자

상호작용(dipole-dipole interaction)의 영향으로 인하여, 두께 방향으로 자화가 불균일하기 때문에[44], 여러 개의 셀을 두어야 한다. 또한, 일반적으로 두께 방향으로의 셀의 크기는 교환 길이(exchange length)인 $l_{ex} = (2A_{ex}/M_s^2)^{1/2}$ 보다 작게 설정하여 전산 모사를 수행한다. 이러한 방법을 바탕으로 벌크 자성체 내 스핀 구조체의 자화 분포 및 3차원 특성을 연구할 수 있다.

Fig. 3(a)는 벌크 자성체 내에서 형성된 스커미온 구조를 보여준다. 일반적으로 스커미온의 경우, 굉장히 얇고 반전 대칭(inversion symmetry)이 깨진 시편 내에서 잘로신스키-모리아 상호작용(Dzyaloshinskii-Moriya interaction; DMI)이 강할 때, 안정화된다고 알려져 있다. 하지만, Fig. 3(a)와 같이 벌크 자성체 내에서 쌍극자-쌍극자 상호작용에 의해서도 안정화될 수 있다고 알려져 있다. 기존 얇은 박막에서의 스커미온의 수평자화가 DMI에 의하여, 특정한 방향으로 고정되어 있는 반면에, 벌크 자성체 내에서 쌍극자-쌍극자 상호작용에 의해 안정화된 스커미온의 경우는 두께에 따라서 수평자화의 방향이 변하게 된다. Fig. 3(a)의 왼쪽에 존재하는 수평자화(주황색 박스)를 보게 되면 위층에서 $+x$ 방향을 향하고 있던 수평자화의 방향이 중간층으로 갈수록 $+y$ 방향의 성분으로 바뀌고, 맨 아래층에서는 $-x$ 방향으로 바뀌게 된다. 반대로 오른쪽에 있는 수평자화를 보게 되면, 위층에서 $-x$ 방향을 향하고 있던 수평자화의 방향이 중간층으로 갈수록 $+y$ 방향의 성분으로 바뀌고, 맨 아래층에서는 $+x$ 방향으로 바뀌게 된다. 결과적으로 중간층에는 수평자화가 회전하는 형태의 회전 스커미온이 형성되며, 위층은 수평자화가 수렴하는 형태의 헛지혹 스커미온, 아래층은 수평자화가 발산하는 형태의 헛지혹 스커미온이 형성이 된다. 이러한 구조들은 스커미온의 단면(yz 평면) 내에 소용돌이 형태의 플럭스-클로저 자기 도메인(flux-closure magnetic domain)을 형성시켜 쌍극자-쌍극자 상호작용에 의한 에너지를 낮춘다. 이러한 벌크 자성체 내에서의 스커미온을 쌍극자-스커미온(dipolar skyrmion) 혹은 뒤틀린 스커미온(twisted skyrmion)이라고 부른다[13,44-46].

이러한 두께방향으로의 불균일한 자화 분포는 스핀 구조체의 동적 거동에 큰 영향을 끼치게 된다. Fig. 3(b)는 자성 다층 박막 내에 형성된 스커미온이 전류에 의해 움직일 때의 모습을 보여준다. n 는 다층 박막의 층 수를 의미한다. Fig. 3(b)에서 보는 것처럼 아래층에서부터 10번째 층과 12번째 층의 스커미온은 거의 균일하게 분포되어 있다. 하지만, 전류를 인가하는 경우, 각 층마다 다른 스커미온의 자화 분포로 인하여, 작용하는 토크의 차이가 발생하게 된다[39,44]. 이러한 토크는 스커미온 구조의 변형을 일으키게 된다. 이러한 양상은 스커미온의 속도에 큰 영향을 끼친다. Fig. 3(c)는 전류를 인가하였을 때, 기존 2차원 모델, 3차원 구조를 고려한 모

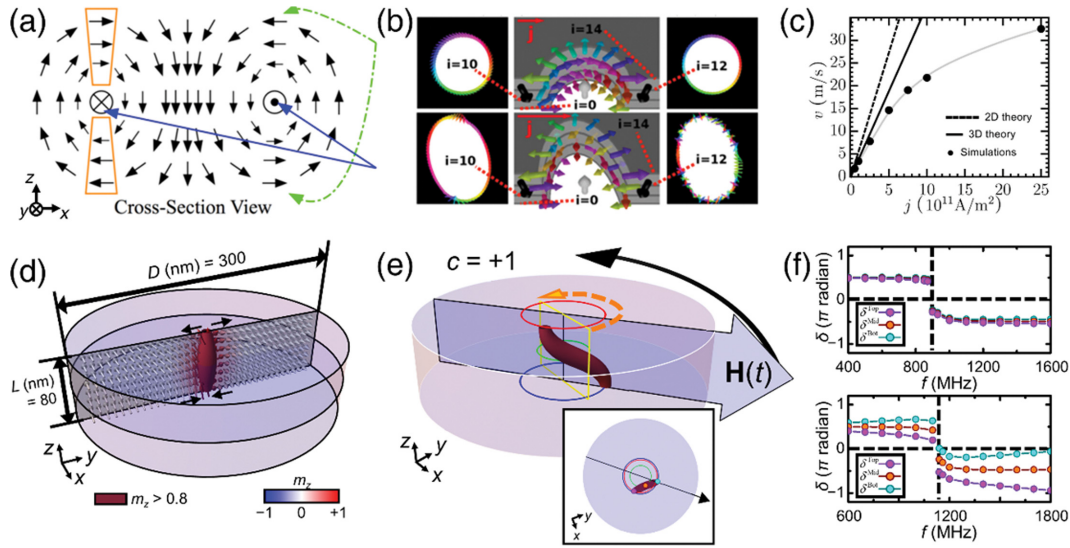


Fig. 3. (Color online) (a) The schematics of magnetization configuration of skyrmion stabilized by dipole-dipole interaction. (b) The current-driven skyrmion in perpendicularly magnetized multilayers on the 10th and 12th layers. (c) The skyrmion velocity as a function of current density j obtained from 2D (dashed line), 3D (solid line) models, and simulation (black dots). (d) Magnetization configurations of magnetic vortex in 80 nm-thick permalloy circular disk of diameter $D = 300$ nm. The red surface indicates the isosurfaces for $m_z > 0.8$, i.e., vortex core. (e) Snapshot of the steady state gyrotropic motion of vortex core excited by the counterclockwise rotating magnetic field of frequency $f = 1140$ MHz in the circular disk of diameter $D = 300$ nm and thickness $L = 80$ nm. The large arrow crossing the disk is the counterclockwise rotating magnetic field. The red, green and blue lines represent the trajectories of the vortex cores on the top, middle, and bottom layers, respectively. The top view of snapshot is inserted in the inset. The magenta, orange, and cyan circles represent the positions of the vortex cores on the top, middle, and bottom layers, respectively. This figure is adapted and reproduced from Refs. [46-48].

델과 시뮬레이션을 통해 얻은 스커미온의 속도 그래프를 보여준다. 눈에 띄는 점은 같은 전류를 인가하였을 때, 3차원 자화 분포 구조를 고려한 모델은 2차원 모델에 비하여, 스커미온의 속도가 느린 것을 확인할 수 있다. 이는 두께에 따라 다른 스커미온의 자화 분포가 전류에 의한 토크를 서로 상쇄하기 때문으로 여겨진다. 또한, 낮은 전류 구간에서 3차원 모델은 2차원 모델 대비 시뮬레이션 결과와 높은 유사성을 보여준다.

스커미온 뿐만 아니라, 자기 소용돌이 역시 두꺼운 디스크 내에서의 자화 분포가 크게 바뀌게 된다[48]. Fig. 3(d)는 두께 80 nm의 퍼말로이(permalloy) 원형 디스크 내에서의 자기 소용돌이를 보여준다. 일반적으로 자기 소용돌이의 핵과 수평 자화는 두께 방향으로의 자화 분포가 균일하다고 알려져 있다. 하지만, 실제로는 쌍극자-쌍극자 상호작용으로 인해, 소용돌이 핵의 크기가 표면 보다 중간층에서 더 커지게 된다. 뿐만 아니라, 디스크 표면의 수평자화 역시 완벽하게 회전하는 형태가 아니라 수렴하는 성분 및 발산하는 성분이 섞인 형태로 나타나게 된다. Fig. 3(d)와 같이, 위쪽 방향의 수직 자화를 띠는 소용돌이 핵의 경우, 위층의 수평자화는 핵 주변에서 약간의 발산하는 성분이 섞이는 반면에, 아래층의 수평자화는 핵 주변에서 약간의 수렴하는 성분이 섞이게 된다는 특징이 있다.

일반적으로 소용돌이의 핵은 움직일 때, 거의 변형이 일어나지 않는다고 알려져 있으나, 두꺼운 디스크 내에서의 소용돌이는 다른 경향을 보여준다. Fig. 3(e)는 두께 80 nm의 퍼말로이 원형디스크에서 형성된 수평자화가 반시계 방향으로 자기 소용돌이에 반시계 방향으로 회전하는 자기장을 인가하였을 때, 소용돌이 핵의 움직임을 보여준다. 일반적인 소용돌이 핵처럼 회전운동을 보여주지만, 위층에 형성되어 있는 소용돌이 핵이 아래층에 형성되어 있는 소용돌이의 핵보다 뒤에서 운동을 하면서, 소용돌이의 핵이 크게 늘어나는 것을 확인할 수 있다. 이렇게 길게 늘어난 소용돌이 핵은, 두께에 따른 핵의 회전 반경에 차이를 만들어낸다. Fig. 3(e)의 우측 하단은 위쪽에서 바라본 회전하는 자기 소용돌이를 보여준다. 청록색, 주황색, 자주색은 각각 위층, 중간층, 아래층의 소용돌이 핵의 위치를 의미하며 파란색, 초록색, 청록색은 위층, 중간층, 아래층의 소용돌이 핵의 회전 궤적(trajectory)을 의미한다. 소용돌이의 핵은 구부러짐 없이 사선형태로 위층에 형성된 소용돌이 핵과 아래층에 형성된 소용돌이 핵을 잇는 형태로 변형이 되어있기 때문에, 중간층의 회전 궤적은 위층과 아래층에 비해 크기가 작은 것을 볼 수 있다. 뿐만 아니라, 위층과 아래층의 서로 다른 수평자화 성분으로 인하여, 약간의 회전 반경의 차이가 있음을 알 수 있다. Fig. 3(f)는 두께 40 nm와 두께 80 nm 디스크의 위층, 중간층, 아래층의 소용돌이

핵과 회전하는 자기장 사이의 위상 차(phase difference, δ)를 보여준다. 두께 40 nm의 경우, 일반적인 자기 소용돌이처럼 고유 주파수를 기준으로 소용돌이 핵의 위상 차가 급격하게 바뀌는 양상을 보여주며, 위층, 중간층, 아래층의 소용돌이의 위상은 거의 동일하다. 하지만 두께 80 nm의 경우, 위층과 중간층 아래층 사이의 위상차이가 존재하며, 주파수가 증가하면 증가할 수록, 각 층 간의 위상 차이가 점점 증가한다는 특성을 보여준다.

이 외에도, 벌크 자성체에 존재하는 스핀 구조체는 얇은 자성 박막에서의 스핀 구조체에서는 나타나지 않는 특이한 특성들을 나타낸다. 예를 들면, 두께가 얇은 시편 내에서는 자기 소용돌이에서는 소용돌이 핵을 둘러싸고 있는 수평 자화 성분이 소용돌이 핵의 움직임에 큰 영향을 끼치지 않았으나, 3차원 자기 소용돌이에서는 위층과 아래층의 위상 차이가 수평 자화 성분의 회전 방향에 따라 결정이 된다[48]. 뿐만 아니라, 두께가 두꺼워지면서 기존 스핀 구조체의 회전 운동 외에 두께방향으로 노드(node)가[49-51] 존재하는 고차 회전운동(higher-order gyrotropic mode) 등의 고유 회전 운동 모드가 나타나게 된다.

본 장에서는 벌크 자성체에 대한 전산 모사 방법인 미소자기 전산모사와 미소자기 전산모사를 수행하여 보고된 벌크 자성체 내 스핀 구조체의 3차원 특성을 보여주었다. 신기하게도, 벌크 자성체 내에서의 스핀 구조체는 기존 스핀 구조체의 특성을 변화시키는 것을 넘어서 새로운 형태의 3차원 스핀 구조체를 형성시킬 수 있다. 4장 “3차원 스핀 구조체”에서 이러한 3차원 스핀 구조체를 실험적으로 관측하는 방법을 소개하고, 실험을 통해 관측한 새로운 형태의 3차원 스핀 구조체에 대하여 간략하게 소개하고자 한다.

IV. 3차원 스핀 구조체

3장에서 봤듯이, 벌크 자성체 내에서는 스핀 구조체의 변형이 잘 되는 것을 알 수 있다. 이러한 3차원 특성으로 인하여, 스핀 구조체는 외부 구동력 및 시편의 구조에 따라서 다른 형태의 스핀 구조체로 변형될 수 있다. 이러한 독특한 스핀 구조체들을 실험적으로 관측하기 위해서는 자성체 내부의 자화 정보와 고분해능 이미징이 가능한 X선 투과 현미경이 활용되고 있다[54]. Fig. 4(a)와 같이 자성체 내의 원형 편광된 X선(circular-polarized X-ray)을 투과시키면, 자성체 내의 자화 성분에 따라서 X선의 흡수가 달라지는 X선 자기 원형이색성(X-ray magnetic circular dichroism; XMCD)이 나타나게 된다. 이러한 XMCD 신호를 이미징하여, 스핀 구조체의 3차원 구조를 알 수 있다. 동시에, 전류 자기장을 인가하면서, 3차원 스핀 구조체가 가지고 있는 다양한 특성들을 알

아낼 수 있다.

Fig. 4(b)는 X선 투과 현미경을 이용하여 관측한, 두께 100 nm, 지름 3 μm 인 퍼말로이 디스크에 형성된 수직 자화 성분이며, X선 투과 현미경을 통하여 관측한 결과, 전형적인 자기 소용돌이의 핵의 모습을 볼 수 있다. 측정 이미지에서 검은색과 흰색은 수직 자화성분을 의미한다. 일반적으로, 얇은 자성 디스크 내에 형성된 자기 소용돌이에 수평 자기장을 인가하게 되는 경우, 자기 소용돌이의 핵이 자기장에 수직인 방향으로 움직이기만 할 뿐, 핵의 변형은 일어나지 않는다. 하지만, 두께 100 nm의 원형 디스크 내 형성된 자기 소용돌이의 경우, 점 형태로 관측된 자기 소용돌이의 핵이 수평 자기장의 수직인 방향으로 움직임과 동시에, 가로로 길게 늘어난 새로운 스핀 구조체로의 변형이 된다[14]. Fig. 4(c)는 시물레이션을 통해 구현한 3차원 구조 보여준다. 자기장이 없는 경우, 3장에서 언급하였듯이, 중간층의 소용돌이 핵의 크기가 표면보다 두꺼운 형태의 자기 소용돌이가 형성된다. 하지만, 자기장을 인가한 경우, 표면의 자기 소용돌이가 중심부를 벗어나 반대 방향으로 치우쳐지고, 그 사이를 아래 방향의 수직자화 성분을 가지고 있는 자구벽(domain wall)이 연결된다. 이러한 자기 소용돌이 핵의 변형은 두께 증가로 인해 증가한 쌍극자-쌍극자 상호작용에 의한 것으로 이해될 수 있다.

이러한 새로운 형태의 3차원 스핀 구조체는 자성체의 구조를 바꾸어도 형성이 될 수 있다[14,55,56]. Fig. 4(d)는 직사각형 형태의 구조에서의 퍼말로이 디스크를 X선 투과 현미경을 통하여 관측한 결과이다[14]. 단지, 디스크의 구조가 원형 디스크에서 직사각형 디스크로만 바뀌었을 뿐이지만, 자기장을 인가하지 않았음에도 불구하고, 점 형태의 자기 소용돌이 핵이 아닌 길게 늘어난 자구벽 형태의 스핀 구조체가 관측이 되었다. 이러한 직사각형 형태의 디스크 내에 존재하는 다양한 스핀 구조체들을 관측한 결과, 마치 도메인 월 내에 블로흐 라인(Bloch line)이 형성될 수 있듯이, 직사각형 내의 자구벽의 수직 자화 성분 혹은 수평자화 성분이 중간에 반전되어 새로운 스핀 구조체를 형성되는 것을 관측할 수 있었다. 대표적인 예시로는 Fig. 4(e)에서 보여주는 이미지이다. X선 투과 현미경으로 관측한 이미지를 보면, 가로로 길게 늘어나 있는 수직 자화 성분이 중간에 반전되는 것을 볼 수 있다. 그렇게 반전된 부분을 시물레이션을 통하여, 자화 구조를 계산해본 결과, 수직자화 성분과 수평자화 성분이 동시에 반전이 되게 되면, 실험적으로 관측한 구조가 나타나는 것을 확인하였으며, 이러한 구조의 위층 표면에는 위쪽 방향을 향하는 반-소용돌이(anti-vortex)의 핵과 함께 아래 방향을 향하는 소용돌이의 핵이 공존하고 있음을 알 수 있었다. 이 때, 위층 표면에 존재하는 반-소용돌이와 소용돌이의 Q 는 모두 $-1/2$ 이

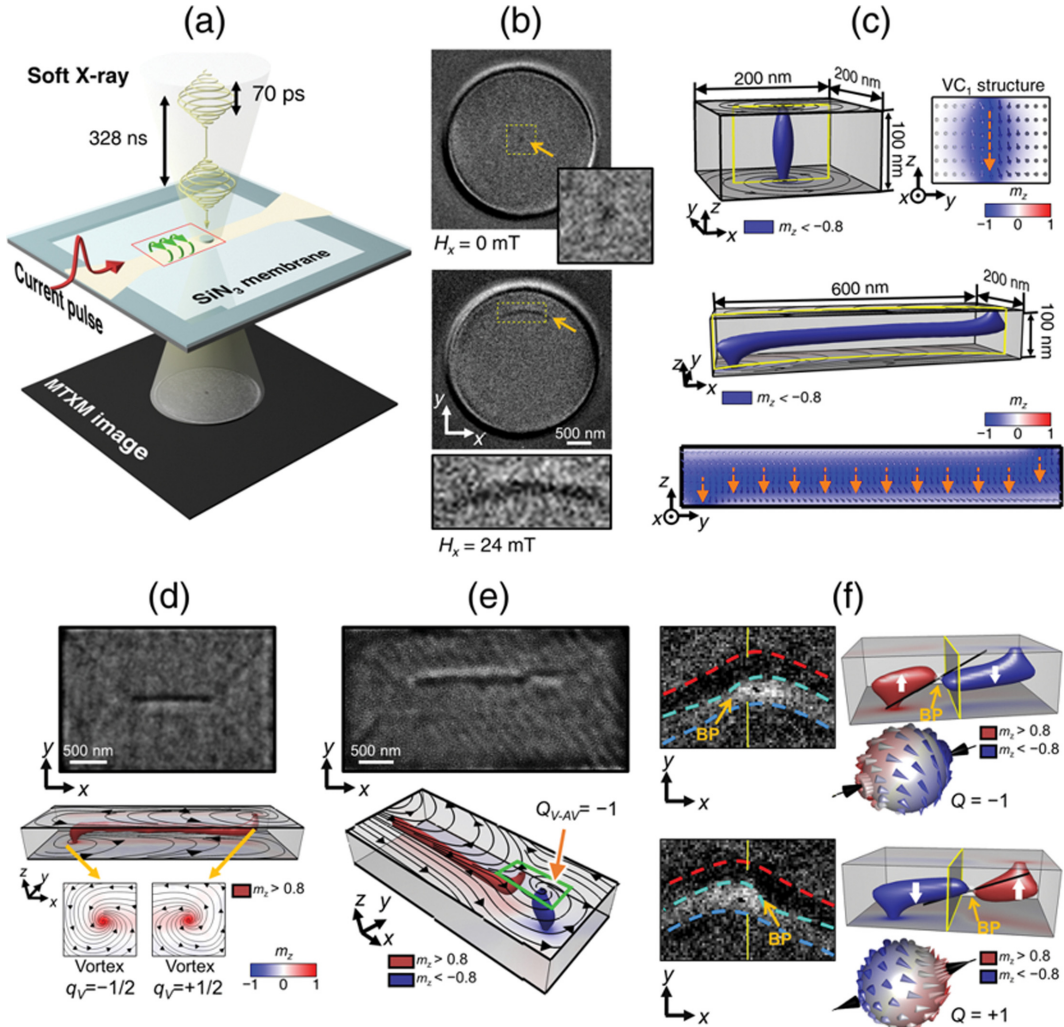


Fig. 4. (Color online) (a) The schematics of stroboscopic pump-probe X-ray transmission microscopy. (b) Experimental observation of the controlled dimensionality of vortex core in 100-nm-thick circular disks. (c) The micromagnetic simulation results to show the detailed 3D magnetization configurations of vortex core structures. (d-e) The elongated vortex core structure (d) without and (e) with antivortex cores. (f) The Bloch point within elongated vortex cores. This figure is adapted and reproduced from Refs. [14,52,53].

므로 소용돌이-반 소용돌이 쌍(vortex-antivortex pair)의 위상 전하는 -1 임을 알 수 있다. 즉, 3차원 스핀 구조체를 이용한다면, 스커미온과 동일한 위상 특성을 나타내는 새로운 형태의 스핀 구조체를 안정화시킬 수 있는 것을 알 수 있다.

뿐만 아니라, 3차원 내부에서만 존재할 수 있는 스핀 구조체인 블로흐 점(Bloch point)도 이러한 구조에서 안정화될 수 있다. 블로흐 점은 자성체 내에서 자화가 사라지는 지점을 의미하며, 자기 특이점(magnetic singularity)이라고도 불린다 [57-61]. 이들은 기존에 알려진 스핀 구조체와 달리 원자 격자에 의해 큰 영향을 받는다고 알려져 있고, 다른 스핀 구조체보다 빠른 속도로 자성체 내에서 움직일 수 있다고 알려져 있다[62,63]. 이러한 구조는 길게 늘어져 있는 자구벽 구조의 수직자화 성분만이 중간에 반전이 되게 되면, 내부적으로 블

로흐 점이 형성이 될 수 있음을 알 수 있었다[52]. 실험적으로 관측한 결과, 이러한 벌크 퍼말로이 구조 내에서 자구벽의 수직 자화의 상대적인 위치에 따라서 Q 가 -1 인 수렴하는 형태의 블로흐 점과, Q 가 $+1$ 인 발산하는 형태의 블로흐 점이 자성체 내에 안정적으로 존재할 수 있는 것이 보고되었다. 이 외에도 자기 호피온(magnetic Hopfion)[64], 자기 보버(magnetic bobber)[65], 자기 토론(magnetic toron)[66] 등의 다양한 3차원 스핀 구조체가 자성체 내에 형성될 수 있다.

V. 맺음말

이상으로, 벌크 자성체 내 기존 스핀 구조체의 특성에 대해 살펴보고 이들의 특성으로 인해 형성될 수 있는 3차원

스핀 구조체에 대해 살펴보았다. 더 나아가, X-선 투과 현미경을 통해 관측한 3차원 스핀 구조체들에 대해서도 살펴보았다. 이러한 3차원 스핀 구조체에 대한 연구는 활발히 진행되고 있고, 기존 스핀 구조체와 차별되는 새로운 물리 현상들이 나타난다고 알려져 있다. 하지만, 3차원 스핀 구조체에 대한 대부분의 실험 결과는 X-선 현미경을 통해 단순 관측하는 수준 단계에 머물러 있는 실정이며, 3차원 스핀 구조체의 정적 및 동적 특성, 위상학적 특성 등은 실험적으로 거의 밝혀지지 않은 상태이다. 3차원 스핀 구조를 해석하는 알고리즘과 실험 장비의 발달로 인하여, 이들의 물리적 특성을 실험적으로 밝히는 날이 머지않아 올 것으로 기대가 된다. 뿐만 아니라, 이들의 움직임, 구조 형성 등을 제어하는 기술을 역시 가까운 미래에 구현되어, 3차원 스핀 구조체를 기반으로 하는 다양한 차세대 메모리/컴퓨팅 소자들이 제시될 것으로 보인다.

감사의 글

이 논문은 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단-차세대지능형반도체기술개발(소자)사업 지원을 받아 수행된 연구임(NRF-2020M3F3A2A03082987).

References

- [1] E. S. Jung, 2018 IEEE International Electron Devices Meeting (IEDM), pp. 1-1 (2018).
- [2] J. Grollier, D. Querlioz, K. Y. Camsari, K. Everschor-Sitte, S. Fukami, and M. D. Stiles, *Nat. Elec.* **3**, 360 (2020).
- [3] B. Dieny, I. L. Prejbeanu, K. Garello, P. Gambardella, P. Freitas, R. Lehnendorff, W. Raberg, U. Ebels, S. O. Demokritov, J. Akerman, A. Deac, P. Pirro, C. Adelman, A. Anane, A. V. Chumak, A. Hirohata, S. Mangin, S. O. Valenzuela, M. C. Onbaşlı, M. d'Aquino, G. Prenat, G. Finocchio, L. Lopez-Diaz, R. Chantrell, O. Chubykalo-Fesenko, and P. Bortolotti, *Nat. Elec.* **3**, 446 (2020).
- [4] A. Hirohata, *Nat. Elec.* **5**, 832 (2022).
- [5] A. Hirohata, K. Yamada, Y. Nakatani, I.-L. Prejbeanu, B. Diény, P. Pirro, and B. Hillebrands, *J. Magn. Magn. Mater.* **509**, 166711 (2020).
- [6] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S.-H. Yang, *Nat. Mater.* **3**, 862 (2004).
- [7] B. Göbel, I. Mertig, and O. A. Tretiakov, *Phys. Rep.* **895**, 1 (2021).
- [8] H.-B. Braun, *Adv. Phys.* **61**, 1 (2012).
- [9] N. Nagaosa and Y. Tokura, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 899 (2013).
- [10] N. D. Mermin, *Rev. Mod. Phys.* **51**, 591 (1979).
- [11] J. Hagemeyer, N. Romming, K. von Bergmann, E. Y. Vedmedenko, and R. Wiesendanger, *Nat. Commun.* **6**, 8455 (2015).
- [12] H. Oike, A. Kikkawa, N. Kanazawa, Y. Taguchi, M. Kawasaki, Y. Tokura, and F. Kagawa, *Nat. Phys.* **12**, 62 (2016).
- [13] S.-G. Je, H.-S. Han, S. K. Kim, S. A. Montoya, W. Chao, I.-S. Hong, E. E. Fullerton, K.-S. Lee, K.-J. Lee, M.-Y. Im, and J.-I. Hong, *ACS Nano* **14**, 3251 (2020).
- [14] H.-S. Han, S. Lee, M.-S. Jung, N. Kim, W. Chao, Y.-S. Yu, J.-I. Hong, K.-S. Lee, and M.-Y. Im, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 212407 (2021).
- [15] F. Muckel, S. von Malottki, C. Holl, B. Pestka, M. Pratzner, P. F. Bessarab, S. Heinze, and M. Morgenstern, *Nat. Phys.* **17**, 395 (2021).
- [16] G. Chen, *Nat. Phys.* **13**, 112 (2017).
- [17] W. Jiang, X. Zhang, G. Yu, W. Zhang, X. Wang, M. Benjamin Jungfleisch, J. E. Pearson, X. Cheng, O. Heinonen, K. L. Wang, Y. Zhou, A. Hoffmann, and S. G. E. te Velthuis, *Nat. Phys.* **13**, 162 (2017).
- [18] K. Litzius, I. Lemesch, B. Krüger, P. Bassirian, L. Caretta, K. Richter, F. Büttner, K. Sato, O. A. Tretiakov, J. Förster, R. M. Reeve, M. Weigand, I. Bykova, H. Stoll, G. Schütz, G. S. D. Beach, and M. Kläui, *Nat. Phys.* **13**, 170 (2017).
- [19] M. Stone, *Phys. Rev. B* **53**, 16573 (1996).
- [20] A. A. Thiele, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 230 (1973).
- [21] K. Y. Guslienko, B. A. Ivanov, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, and K. Fukamichi, *J. Appl. Phys.* **91**, 8037 (2002).
- [22] K.-S. Lee and S.-K. Kim, *Phys. Rev. B* **78**, 014405 (2008).
- [23] S. Yang, K.-W. Moon, T.-S. Ju, C. Kim, H.-J. Kim, J. Kim, B. X. Tran, J.-I. Hong, and C. Hwang, *Adv. Mater.* **33**, 2104406 (2021).
- [24] A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 152 (2013).
- [25] R. Tomasello, E. Martinez, R. Zivieri, L. Torres, M. Carpentieri, and G. Finocchio, *Sci. Rep.* **4**, 6784 (2014).
- [26] S. Yang, J. W. Son, T.-S. Ju, D. M. Tran, H.-S. Han, S. Park, B. H. Park, K.-W. Moon, and C. Hwang, *Adv. Mater.* **35**, 2208881 (2023).
- [27] D.-H. Jung, H.-S. Han, N. Kim, G. Kim, S. Jeong, S. Lee, M. Kang, M.-Y. Im, and K.-S. Lee, *Phys. Rev. B* **104**, L060408 (2021).
- [28] M. Chauwin, X. Hu, F. Garcia-Sanchez, N. Betrabet, A. Paler, C. Moutafis, and J. S. Friedman, *Phys. Rev. Appl.* **12**, 064053 (2019).
- [29] S. B. Choe, Y. Acremann, A. Scholl, A. Bauer, A. Doran, J. Stöhr, and H. A. Padmore, *Science* **304**, 420 (2004).
- [30] S. Zhang, J. Wang, Q. Zheng, Q. Zhu, X. Liu, S. Chen, C. Jin, Q. Liu, C. Jia, and D. Xue, *New J. Phys.* **17**, 023061 (2015).
- [31] K. M. Song, J.-S. Jeong, B. Pan, X. Zhang, J. Xia, S. Cha, T.-E. Park, K. Kim, S. Finizio, J. Raabe, J. Chang, Y. Zhou, W. Zhao, W. Kang, H. Ju, and S. Woo, *Nat. Elec.* **3**, 148 (2020).
- [32] T. Yokouchi, S. Sugimoto, B. Rana, S. Seki, N. Ogawa, Y. Shiomi, S. Kasai, and Y. Otani, *Sci. Adv.* **8**, eabq5652 (2022).
- [33] S. Li, W. Kang, Y. Huang, X. Zhang, Y. Zhou, and W. Zhao, *Nanotechnology* **28**, 31LT01 (2017).
- [34] Y. Huang, W. Kang, X. Zhang, Y. Zhou, and W. Zhao, *Nano-*

- technology **28**, 08LT02 (2017).
- [35] S. Yang, J. Shin, T. Kim, K.-W. Moon, J. Kim, G. Jang, D. S. Hyeon, J. Yang, C. Hwang, Y. Jeong, and J. P. Hong, *NPG Asia Mater.* **13**, 11 (2021).
- [36] J. Torrejon, M. Riou, F. A. Araujo, S. Tsunegi, G. Khalsa, D. Querlioz, P. Bortolotti, V. Cros, K. Yakushiji, A. Fukushima, H. Kubota, S. Yuasa, M. D. Stiles, and J. Grollier, *Nature* **547**, 428 (2017).
- [37] M. Romera, P. Talatchian, S. Tsunegi, F. Abreu Araujo, V. Cros, P. Bortolotti, J. Trastoy, K. Yakushiji, A. Fukushima, H. Kubota, S. Yuasa, M. Ernoult, D. Vodenicarevic, T. Hirtzlin, N. Locatelli, D. Querlioz, and J. Grollier, *Nature* **563**, 230 (2018).
- [38] K. Wang, Y. Zhang, V. Bheemarasetty, S. Zhou, S.-C. Ying, and G. Xiao, *Nat. Commun.* **13**, 722 (2022).
- [39] J. Zázvorka, F. Jakobs, D. Heinze, N. Keil, S. Kromin, S. Jaiswal, K. Litzius, G. Jakob, P. Virnau, D. Pinna, K. Everschor-Sitte, L. Rózsa, A. Donges, U. Nowak, and M. Kläui, *Nat. Nanotechnol.* **14**, 658 (2019).
- [40] A. S. Jenkins, L. S. E. Alvarez, P. P. Freitas, and R. Ferreira, *Sci. Rep.* **9**, 15661 (2019).
- [41] H.-S. Han, S. Lee, S.-G. Je, M. Kang, H.-J. Ok, N. Kim, W. Chao, M.-Y. Im, and K.-S. Lee, *ACS Appl. Nano Mater.* **4**, 9912 (2021).
- [42] I. Lemesh and G. S. D. Beach, *Phys. Rev. Appl.* **12**, 044031 (2019).
- [43] R. Gruber, J. Zázvorka, M. A. Brems, D. R. Rodrigues, T. Dohi, N. Kerber, B. Seng, M. Vafaei, K. Everschor-Sitte, P. Virnau, and M. Kläui, *Nat. Commun.* **13**, 3144 (2022).
- [44] W. Legrand, J.-Y. Chauleau, D. Maccariello, N. Reyren, S. Collin, K. Bouzehouane, N. Jaouen, V. Cros, and A. Fert, *Sci. Adv.* **4**, eaat0415 (2018).
- [45] S. A. Montoya, S. Couture, J. J. Chess, J. C. T. Lee, N. Kent, D. Henze, S. K. Sinha, M. Y. Im, S. D. Kevan, P. Fischer, B. J. McMorran, V. Lomakin, S. Roy, and E. E. Fullerton, *Phys. Rev. B* **95**, 024415 (2017).
- [46] S. A. Montoya, S. Couture, J. J. Chess, J. C. T. Lee, N. Kent, M. Y. Im, S. D. Kevan, P. Fischer, B. J. McMorran, S. Roy, V. Lomakin, and E. E. Fullerton, *Phys. Rev. B* **95**, 224405 (2017).
- [47] I. Lemesh and G. S. D. Beach, *Phys. Rev. B* **98**, 104402 (2018).
- [48] H.-S. Han, S. Lee, D.-H. Jung, M. Kang, and K. S. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 042401 (2020).
- [49] J. Ding, G. N. Kakazei, X. Liu, K. Y. Guslienko, and A. O. Adeyeye, *Sci. Rep.* **4**, 4796 (2014).
- [50] J. Ding, G. N. Kakazei, X. M. Liu, K. Y. Guslienko, and A. O. Adeyeye, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 192405 (2014).
- [51] M.-W. Yoo, J.-H. Lee, and S.-K. Kim, *J. Appl. Phys.* **116**, 223902 (2014).
- [52] M.-Y. Im, H.-S. Han, M.-S. Jung, Y.-S. Yu, S. Lee, S. Yoon, W. Chao, P. Fischer, J.-I. Hong, and K.-S. Lee, *Nat. Commun.* **10**, 593 (2019).
- [53] H.-S. Han, S. Lee, M.-S. Jung, N. Kim, D.-H. Jung, M. Kang, H.-J. Ok, W. Chao, Y.-S. Yu, J.-I. Hong, M.-Y. Im, and K. S. Lee, *NPG Asia Mater.* **14**, 91 (2022).
- [54] P. Fischer, D.-H. Kim, W. Chao, J. A. Liddle, E. H. Anderson, and D. T. Attwood, *Mater. Today* **9**, 26 (2006).
- [55] M. Yan, R. Hertel, and C. M. Schneider, *Phys. Rev. B* **76**, 094407 (2007).
- [56] A. Masseboeuf, O. Fruchart, J. C. Toussaint, E. Kritsikis, L. Buda-Prejbeanu, F. Cheynis, P. Bayle-Guillemaud, and A. Marty, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 127204 (2010).
- [57] E. Feldtkeller, *Z. Angew. Phys.* **19**, 530 (1965).
- [58] E. Feldtkeller, *IEEE Trans. Magn.* **53**, 1 (2017).
- [59] C. Donnelly, M. Guizar-Sicairos, V. Scagnoli, S. Gliga, M. Holler, J. Raabe and L. J. Heyderman, *Nature* **547**, 328 (2017).
- [60] S. K. Kim and O. Tchernyshyov, *Phys. Rev. B* **88**, 174402 (2013).
- [61] A. Rana, C.-T. Liao, E. Iacocca, J. Zou, M. Pham, X. Lu, E.-E. C. Subramanian, Y. H. Lo, S. A. Ryan, C. S. Bevis, R. M. Karl, A. J. Glaid, J. Rable, P. Mahale, J. Hirst, T. Ostler, W. Liu, C. M. O'Leary, Y.-S. Yu, K. Bustillo, H. Ohldag, D. A. Shapiro, S. Yazdi, T. E. Mallouk, S. J. Osher, H. C. Kapteyn, V. H. Crespi, J. V. Badding, Y. Tserkovnyak, M. M. Murnane, and J. Miao, *Nat. Nanotechnol.* **18**, 227 (2023).
- [62] M. Charilaou, H.-B. Braun and J. F. Löffler, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 097202 (2018).
- [63] H.-G. Piao, J.-H. Shim, D. Djuhana and D.-H. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 112405 (2013).
- [64] N. Kent, N. Reynolds, D. Raftrey, I. T. G. Campbell, S. Virasawmy, S. Dhuey, R. V. Chopdekar, A. Hierro-Rodriguez, A. Sorrentino, E. Pereiro, S. Ferrer, F. Hellman, P. Sutcliffe, and P. Fischer, *Nat. Commun.* **12**, 1562 (2021).
- [65] F. Zheng, F. N. Rybakov, A. B. Borisov, D. Song, S. Wang, Z.-A. Li, H. Du, N. S. Kiselev, J. Caron, A. Kovács, M. Tian, Y. Zhang, S. Blügel and R. E. Dunin-Borkowski, *Nat. Nanotechnol.* **13**, 451 (2018).
- [66] Q. Hu, B. Lyu, J. Tang, L. Kong, H. Du and W. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 022404 (2021).