Novel Spin-Orbit Torques using Selenium-Based 2D Materials and Light-Element Aluminum

Richa Mudgal

Department of Physics

Indian Institute of Technology Delhi

January 2025

Novel Spin-Orbit Torques using Selenium-Based 2D Materials and Light-Element Aluminum

by

Richa Mudgal

Department of Physics

Submitted

in fulifilment of the requirements for the degree of Doctor of Philosophy

to the

Indian Institute of Technology Delhi

January 2025

Certificate

This is to certify that the thesis entitled, **Novel Spin-Orbit Torques using Selenium-Based 2D Materials and Light-Element Aluminum**, being submitted by **Ms. Richa Mudgal** to the Department of Physics, Indian Institute of Technology Delhi, for the award of the degree of **Doctor of Philosophy** is a record of bonafide work carried out by her. She has worked under our supervision and guidance and has fulfilled the requirements for the submission of this thesis, which in our opinion has reached the requisite standard.

The results contained in this thesis have not been submitted, in part or full, to any other University or Institute for the award of any degree/diploma.

Dr. Pranaba Kishor Muduli
Professor
Dept. of Physics
IIT Delhi, 110016
India
Date:

Dr. Samaresh Das
Professor
Dept. of Physics
IIT Delhi, 110016
India
Date:

Acknowledgement

Firstly, I would like to express my gratitude to my supervisors, Prof. P.K. Muduli and Prof. Samaresh Das, for proposing the thesis problem and supervising the work. I am indebted to them for their constant support and encouragement throughout the duration of my Ph.D. I consider myself fortunate to have had the opportunity to work closely with two experts in the field, who have significantly enhanced the quality of the present thesis with their specialized inputs and suggestions. Without their congenial demeanor and intellectual support, this thesis would not have been completed.

I would also like to extend my sincere thanks to the departmental members of my research committee, Prof. Rajendra Singh and Prof. Pintu Das, for their valuable feedback and suggestions during various presentations. I am grateful to the external SRC member, Dr. Ankur Goswami, for encouraging me to learn the fundamentals of Physics.

I would like to express my gratitude to Prof. Birabar Ranjit Kumar Nanda and Prof. Sashi Satpathy for allowing their student to perform the band structure calculation of $PtSe_2$ work. I am appreciative of their valuable input during various meetings to discuss the work. Additionally, I would like to thank Bubunu Biswal and Pratik Sahu for completing all the band structure calculations.

I thank Dr. Biswarup Satpati from Saha Institute of Nuclear Physics for his help in making cross-sectional TEM images of $PtSe_2$/NiFe heterostructure.

I am grateful to my senior labmate, Dr. Alka Jakhar, for teaching me the operation of various fabrication tools. I am thankful to her for her kind support during different research work in the early stage of my Ph.D and her readiness, even at odd times. I thank Pankhuri ma'am for teaching me the nuences of the STFMR set-up. I thank Dr. Sheetal Dewan for teaching me the operation of pulsed laser depostion technique. I appreciate Ram for providing support for DC planar Hall measurement.

I would like to thank Dr. Naveen Sisodia for providing us an insight into micromagnetic simulation using MuMax3 during the lockdown. I extend my gratitude to my other senior labmates, Dr. Niru Chowdhary, Dr. Aakash Kumar, Dr. Kacho Imtiyaaz Ali Khan, Dr. John Wilngton, Dr. Harman, Dr. Sumit, Dr. Himanshu, and Rekha for their help and support.

I also thank my other batchmates and juniors Neha, Nidhi, Aman, Vaishali, Prabal, Suprovat, Pinki, Biswajit, Ujjawal, Uzer, Jasmeen, Alen and Jyoti.

I extend my gratitude to my esteemed colleagues cum friends at IIT Delhi, namely Dr. Preetam Singh and Dr. Gulshan Kumar, for their unwavering support and guidance during the ups and downs of my Ph.D. journey. I would also like to express my appreciation to my friends Nutan,

Ekta, Manu, and Jyoti Ma'am whose companionship brought me joy at various moments.

I am obliged to Dr. Mahendra Singh Chauhan for his consistent support and encouragement for going ahead.

I am thankful to both my brothers, Ayush and Anant, as well as my cousins cum friends, Aaradhna and Vibhuti, for their endless conversations and invaluable time during my PhD, which always left me feeling energized and excited.

Lastly, I wish to express my deepest gratitude to my parents, whose unwavering support and encouragement allowed me to pursue my own path. This thesis can not be completed without their unconditional love and support.

This thesis is dedicated to my parents.

Richa Mudgal

Abstract

Spin-orbit torque (SOT) is a phenomenon that emerged as a promising substitute for spin transfer torque. The concept of SOT is extensively utilized in magnetic memories, neuromorphic computing, domain-wall motion, spintronics-based Radio frequency (RF) oscillators, etc. A SOT device consists of a heavy metal (HM)/ferromagnet (FM) heterostructure, where HM is used as the spin-current source. Spin Hall effect (SHE) and Rashba-Edelstein effect (REE) are the mechanisms that are commonly utilized to generate spin current in HM metal. However, the SOT-based devices are still far from commercialization due to the limited charge-to-spin efficiency of HM and restricted polarization of spin current, which always lies in the plane due to the symmetry of SHE and REE. The search for novel materials reaches 2D materials, specifically Transition metal dichalcogenides (TMDs), which are promising for SOT application due to their large spin-orbit coupling (SOC) coupling and ability to be deposited down to monolayers. The low crystal symmetries of TMDs are predicted to generate out-of-plane polarization, which is not possible by the spin Hall effect and Rashba-Edelstein effect. This eliminates the need for an external magnetic field to achieve SOT switching of perpendicular magnetization of FM materials. Apart from conventional effects (SHE and REE), which utilized bulk SOC of materials, there are some unconventional ways of generating spin current, which can be realized even in light elements having negligible SOC. These effects include the orbital Hall effect, orbital Rashba effect, spin swapping effect, etc. Due to the abundance of light elements, the utilization of these materials for SOT application can significantly reduce the cost of the device. In this thesis, we extensively studied spin-orbit torque in two types of materials: Selenium-based 2D materials ($PtSe_2$, $PdSe_2$, and GeSe) and light element Al. We employed spin-torque ferromagnetic resonance measurement (STFMR) to quantify charge-to-spin conversion efficiency and torque conductivities in these materials.

First, we measured spin-orbit torque utilizing STFMR in $PtSe_2$/NiFe heterostructure. We extensively studied frequency-dependent STFMR and angle-resolved STFMR for $PtSe_2$/NiFe/Pt system and separated out the effect of $PtSe_2$ in charge-to-spin conversion efficiency. The efficiency was found to be 0.1nm^{-1} for $PtSe_2$, which results in an enhancement of 63% in effective SOT efficiency compared to that for the control sample (NiFe/Pt). This enhancement in efficiency value was further verified by DC planar Hall measurements. Our findings indicate that the interface between $PtSe_2$ and NiFe can generate a significant current-induced damping-like torque. Our band structure calculations suggest that the proximity magnetic field in the interfacial $PtSe_2$ plays an essential role in the strong charge-to-spin conversion observed in our samples. Our work demonstrates a novel form of SOT to obtain high charge-to-spin conversion

efficiencies for device applications. Additionally, our work demonstrates that "SOT through a proximity magnetic field" needs to be considered for explaining SOT observed in other TMD-based material systems.

We further studied the spin-orbit torque in $PdSe_2$/NiFe/AlO_x heterostructure, where AlO_x was used as the capping layer.We performed a complete angle-resolved STFMR to separate out the contribution of different spin polarizations in the spin-orbit torques. We observed a substantial damping-like torque corresponding to the $y-$polarization of spin current, which is found to be the opposite compared to the control sample (NiFe/AlO_x). In addition, we observed an unconventional field-like torque corresponding to the $x-$polarization of spin current, which is not allowed by conventional mechanisms such as SHE and REE. We anticipate that unconventional polarization is arising due to the low crystal symmetry of $PdSe_2$, while conventional torque arises likely due to the finite spin splitting caused by magnetic proximity.

Next, We studied spin-orbit torque in GeSe/NiFe/AlO_x heterostructure. First, we optimized the growth of GeSe using the pulsed laser deposition method. We measured angle resolved STFMR for GeSe-GeO_x/NiFe/AlO_x and compared the results with the control sample (NiFe/AlO_x). We observed a large damping-like torque in the GeSe-based stack, which was absent in the control sample. By using different control measurements, we exclude the contribution of bulk GeSe to the measured spin-orbit torque. We believe that the oxygen gradient due to the native oxidation of GeSe film at the GeSe and NiFe interface is responsible for generating a damping-like torque in the GeSe-based system via the orbital REE.

We also studied spin-orbit torque due to light element Al using Al/NiFe/AlO_x heterostructure. We found a large in-plane field-like torque corresponding to out-of-plane polarization of spin current, which was absent in the control sample (NiFe/AlO_x). We further observed that the magnitude of torque is independent of the Al thickness. In order to gain insight, we performed various controlled measurements by replacing Al with Pt to exclude the possibility of orbital torque. Our results are consistent with the theory of spin-swapping effects. We believe the observation of various novel SOTs reported in this thesis will be useful for various spintronics applications.

सारांश

स्पिन-ऑर्बिट टॉर्क (SOT) एक ऐसी घटना है जो स्पिन ट्रांसफर टॉर्क (STT) के लिए एक आशा जनक विकल्प के रूप में उभरी है। SOT की अवधारणा व्यापक रूप से मैग्नेटिक मेमोरी, न्यूरोमार्फिक गणना, डोमेन वाल की गति, स्पिनट्रॉनिक्स आधारित रेडियो आवृत्ति दोलक इत्यादि में उपयोग किया जाता है। एक SOT उपकरण में भारी धातु/चुम्बकीय पदार्थ का हेटेरोस्ट्रक्चर होता है, जहाँ भारी धातु स्पिन करेंट के स्रोत के रूप में उपयोग किया जाता है। स्पिन हॉल इफेक्ट (SHE) और रशबा-एडेलस्टीन इफेक्ट (REE) ऐसी क्रिया-विधि हैं जो साधारणतयः भारी धातु में स्पिन करेंट उत्पन्न करने के लिए उपयोग की जाती हैं। तथापि SOT उपकरण सीमित आवेश से स्पिन स्थानांतरण की दक्षता तथा प्रतिबंधित स्पिन ध्रुवीकरण के कारण अभी भी व्यावसायीकरण से दूर है। नए पदार्थ की खोज द्वि विमीय पदार्थ, विशेषतया ट्रांजीशन मेटल डाईचालकोजेनाइट्स (TMDs) तक पहुँचती है, जो अपने दीर्घ स्पिन ऑर्बिट कपलिंग (SOC) और एक परत तक निक्षेपित होने की क्षमता के कारण SOT अनुप्रयोगों के लिए आशाजनक हैं। TMDs की निम्न क्रिस्टल समरूपता से सतह के लंबवत पोलराइजेशन उत्पन्न होने की सम्भावना व्यक्त की गई है, जो SHE और REE से संभव नहीं है। यह चुंबकीय पदार्थ की लंबवत चुंबकत्व की SOT स्विचिंग प्राप्त करने के लिए बाह्य चुंबकीय क्षेत्र की आवश्यकता समाप्त कर देता है। पारम्परिक प्रभावों (SHE और REE), जिसमें पदार्थों का बल्क SOC का उपयोग किया जाता है, के अलावा स्पिन धारा उत्पन्न करने के कुछ अपरंपरागत तरीके हैं, जिन्हें यहां तक कि नगण्य SOC वाले हल्के तत्वों में भी देखा जा सकता है। इन प्रभावों में ऑर्बिटल हॉल इफेक्ट, ऑर्बिटल रशबा इफेक्ट, स्पिन स्वैपिंग इफेक्ट, आदि शामिल हैं। हलके तत्वों की प्रचुरता के कारण SOT अनुप्रयोग के लिए इन पदर्थों का उपयोग उपकरण की लागत को काफी कम कर सकता है। इस शोध प्रबंध में, हमने दो प्रकार के पदार्थों सेलेनियम आधारित 2D पदार्थ ($PtSe_2$, $PdSe_2$, और GeSe) और हलके तत्व एलुमिनियम में SOT का बड़े पैमाने पर अध्ययन किया। हमने इन पदार्थों में टॉर्क कंडक्टिविटी और आवेश से स्पिन रूपांतरण दक्षता मापने के लिए Spin Torque Ferromagnetic Resonance (STFMR) मापन विधि का प्रयोग किया।

सबसे पहले, हमने $PtSe_2$/NiFe हेटरो संरचना में STFMR का उपयोग करके SOT को मापा। हमने व्यापक रूप से PtSe2/NiFe/Pt सिस्टम के लिए frequency dependent और angle resolved STFMR का अध्ययन किया और आवेश से spin रूपांतरण दक्षता में $PtSe_2$ के प्रभाव को अलग किया। $PtSe_2$ के लिए दक्षता -0.१ nm^{-1} पाई गयी, जिसके परिणामस्वरूप control sample (NiFe/Pt) की तुलना में SOT की प्रभावी दक्षता में 63% की वृद्धि हुई। दक्षता मूल्य में इस वृद्धि को आगे direct current surface hall measurement द्वारा और सत्यापित किया गया। हमारे निष्कर्ष संकेत देते हैं कि $PtSe_2$ और NiFe के बीच का interface एक महत्वपूर्ण current induced damping like torque उत्पन्न कर सकता है। हमारी band structure गणना से पता चलता है कि interfacial $PtSe_2$ में proximity magnetic field मजबूत आवेश से स्पिन रूपांतरण में एक आवश्यक भूमिका निभाता है। हमारा काम उपकरण अनुप्रयोगों के लिए उच्च आवेश से स्पिन रूपांतरण प्राप्त करने के लिए SOT का एक नया रूप प्रदर्शित करता है। इसके अतिरिक्त, हमारा काम दर्शाता है कि अन्य TMDs आधारित systems में देखे गए SOT को समझाने के लिए "Proximity Magnetic Field के द्वारा उत्पन्न SOT" पर विचार करने की आवश्यकता है।

हमने आगे $PdSe_2$/NiFe/AlO_x हेटरो संरचना में SOT का अध्ययन किया, जहां AlO_x का उपयोग capping layer के रूप में किया गया था। SOT में विभिन्न spin polarizations के योगदान को अलग करने के लिए हमने एक पूर्ण angle resolved STFMR मापन किया। हमने स्पिन धारा के y-polarization के अनुरूप संतोषजनक damping like torque देखा, जो control sample (NiFe/AlOx) की तुलना में विपरीत पाया गया। इसके अलावा, हमने स्पिन धारा के x−polarization के अनुरूप एक अपरंपरागत field like torque देखा, जिसकी व्याख्या SHE Spin और REE जैसे पारंपरिक प्रभावों द्वारा नहीं की जा सकती। हमारा अनुमान है कि अपरंपरागत polarization $PdSe_2$ की कम क्रिस्टल समरूपता के कारण उत्पन्न हो रहा है। जबकि पारंपरिक आघूर्ण, magnetic proximity के कारण होने वाले परिमित spin-splitting से उत्पन्न होने की संभावना है।

इसके बाद, हमने GeSe/NiFe/AlO_x हेटेरो संरचना में SOT का अध्ययन किया। सबसे पहले, हमने pulsed laser deposition विधि का उपयोग करके GeSe की growth को optimize किया। हमने GeSe-GeO_x/NiFe/AlO_x के लिए angle resolved STFMR का मापन किया और control sample (NiFe/AlO_x) के साथ परिणामों की तुलना की। हमने GeSe-आधारित structure में एक damping like torque देखा जो control sample में अनुपस्थित था। विभिन्न नियंत्रित मापों का उपयोग करके हमने पाया कि SOT में bulk GeSe का योगदान नगण्य था। हमारा मानना है कि GeSe और NiFe के interface पर GeSe परत के स्वाभाविक ऑक्सीकरण के कारण ऑक्सीजन प्रवणता GeSe आधारित system में orbital REE के द्वारा damping like torque उत्पन्न करने के लिए उत्तरदायी है।

हमने Al/NiFe/AlO_x हेटेरो संरचना का उपयोग करके हल्के तत्व Al के कारण SOT का भी अध्ययन किया। हमें out of plane polarization के संगत in-plane field like torque प्राप्त हुआ। हमने आगे देखा कि आघूर्ण का परिमाण Al की मोटाई से स्वतंत्र है।अंतर्दृष्टि प्राप्त करने के लिए, हमने orbital torque की सम्भावना को निष्काषित करने के लिए Al को Pt से प्रतिस्थापित करके विभिन्न control measurements किये। हमारे परिणाम spin swapping effect के सिद्धांत के अनुरूप हैं। हम मानते हैं कि इस शोध-प्रबंध में बताये गए विभिन्न नए SOTs विभिन्न स्पिनट्रॉनिक्स अनुप्रयोगों के लिए उपयोगी होंगे।

Contents

List of Figures

List of Tables