制造原子　　离子级磁性可在室温下通过光调控

V.O. Jimenez[1,*]、Y.T.H. Pham[1], D. Zhou[2], M.Z. Liu[2], F.A. Nugera[1], V. Kalappattil[1], T. Eggers[1],K. Hoang[3], D.L. Duong[4], M. Terrones[2], H.R. Gutiérrez[1], 和 M.H. Phan[1,*1] 南佛罗里达大学物理系，美国佛罗里达州坦帕市，邮编 33620[2] 宾夕法尼亚州立大学物理系，美国宾夕法尼亚州大学公园市，邮编 16802[3] 计算辅助科学与技术中心及北达科他州立大学物理系，美国北达科他州法戈市，邮编 58108[4] 蒙大拿州立大学物理系，美国蒙大拿州博兹曼

利用光操控二维稀磁半导体（2D-DMSs）中的磁化强度，特别是在磁性掺杂的过渡金属二硫属化物（TMD）单层材料（M掺杂TX_2，其中M = V、Fe、Cr；T = W、Mo；X = S、Se、Te）中操控磁化强度，可能推动自旋电子学、自旋热电子学、谷电子学和量子计算领域的创新应用。这篇观点论文探讨了在环境条件下，光如何调控二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及其异质结构的磁化强度。通过结合磁光LC共振（MLCR）实验和密度泛函理论（DFT）计算，我们表明，光能够增强V掺杂TMD单层材料（例如，V-WS_2,V-WSe_2, V-MoS_2）中的磁化强度。这一现象归因于导带和价带中的过量空穴，以及被磁性掺杂态俘获的载流子；二者共同调控半导体层的磁化强度。在VSe_2/WS_2 和VSe_2/MoS_2, 等二维TMD异质结构中，我们展示了邻近效应、电荷转移效应和限域效应在增强光介导磁性方面的重要作用。这种效应归因于TMD层（例如，WS_2，MoS_2）吸收光子并产生电子-空穴对，进而调控异质结构的磁化强度。这些发现将推动该领域的进一步研究

二维磁性，并为设计具有光学可调磁功能的二维过渡金属硫族化合物及其异质结构开辟新的方向，为下一代磁光纳米器件铺平道路。

关键词：二维范德华磁体；过渡金属二硫属化物；异质结构；光自旋电子学；自旋热电子学；谷电子学；量子通信

*通讯作者：valeryortizj@usf.edu (V.O.J); phanm@usf.edu (M.H.P)

1. 引言

磁性半导体为开发新一代高效自旋电子器件（包括自旋场效应（SFE）晶体管）提供了卓越的平台[1-7]。与依赖电子电荷的传统场效应晶体管不同，SFE 晶体管利用磁性半导体中的电子自旋及其取向（向上或向下）来编码二进制信息，从而以最低功耗实现快速信息传输[1,4]。为了缩小这类器件的尺寸，减小半导体材料的尺寸至关重要[4,7-9]。随着尺寸减小，新的物理性质会随之显现，并带来新的潜在应用。然而，微型化至纳米尺度可能会因电流泄漏而严重损害器件性能，使其无法应用于超高速电子纳米器件，尤其是超级计算机或未来的量子计算机 [1,7]。对于大多数磁性半导体，当厚度减小至原子尺度或二维极限时，其铁磁性往往会大幅减弱，甚至消失[1,2,7]。

二维范德华（vdW）磁性材料领域的最新进展，为开发原子级薄磁体[10-14] 及异质结构[15-27] 提供了前所未有的机遇，使其磁性、磁电性质和磁光性质可调。在已发现的二维范德华磁体中，原子级薄的本征磁性半导体 CrI_3 和 $Cr_2Ge_2Te_6$ 因其新颖的磁电性质、磁光性质和自旋输运性质而得到广泛研究[10,11,28-37]。其磁功能也可通过外部刺激（电栅控、应变、光）进行调节[38-47]。遗憾的是，这些二维半导体仅在低温下（< 50 K）呈现磁有序，限制了其实际应用。因此，开发可在环境温度下呈现铁磁有序的二维磁性半导体的需求日益增长，而大多数电子器件都在此温度范围内运行。

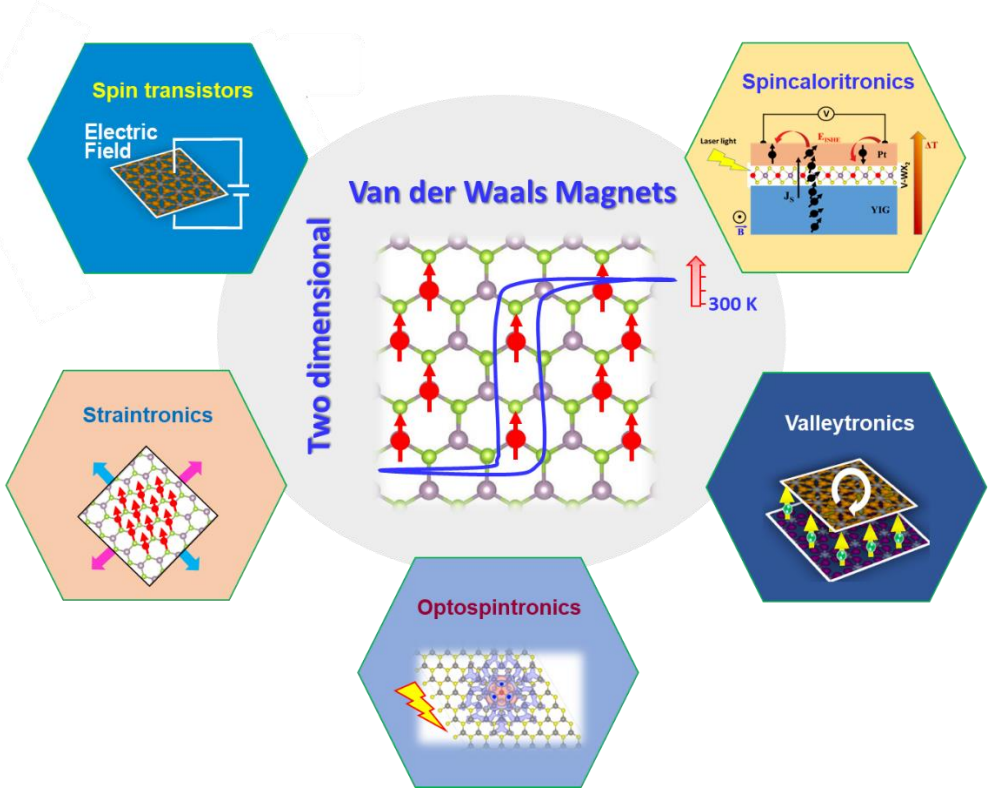


图 1. 原子级薄层磁性过渡金属二硫属化物及其异质结构在新型器件应用方面的前景。

过渡金属二硫属化物（二维过渡金属硫族化合物）TX_2 (T = W、Mo；X = S、Se、Te) 是许多重要器件应用的核心材料，例如场效应晶体管、光电探测器、光子发射器、谷电子学和量子计算机 [3,4,7,8,48,49]。尽管某些二维过渡金属硫族化合物（如 VSe_2 [13], $MnSe_2$ [14], 和 $CrSe_2$ [50], ）在室温附近呈现铁磁有序，但它们是金属；大多数半导体二维过渡金属硫族化合物，包括 WSe_2, WS_2, 和 MoS_2 单层材料，本质上则是非磁性或抗磁性的[51]。近期研究表明，引入少量磁性过渡金属原子（例如 V、Fe、Co、Cr、Mn），可在室温下使这些二维过渡金属硫族化合物产生长程铁磁有序[52-73]。这一方法为在原子级薄的过渡金属硫族化合物半导体中引入外禀磁性提供了有前景的策略，从而催生出一类新型二维稀磁半导体

（二维稀磁半导体）。由于具有高质量界面和较弱的层间相互作用，具有理想特性的二维过渡金属硫族化合物可以轻松堆叠在一起，形成具有独特性质、而这些性质在各组成材料中并不存在的二维范德华异质结构 [7,77-86]。鉴于其原子级薄的特性以及集成的光电磁性，人们强调了它们在新一代自旋电子学、光自旋电子学、光自旋热电子学和谷电子学器件应用方面的潜力 [7,83-86]。 图 1展示了二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及其异质结构的潜在应用。

二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体在这些应用中的真正优势，源于其磁性可响应外部刺激（电栅控、光、应变）而调控。二维过渡金属硫族化合物的磁态可调范围包括增强其磁矩、调节其居里温度，以及通过化学掺杂 [52,53], 缺陷工程 [60], 相变或结构工程 [75,87,88], 界面工程 [77-82], 或施加外部刺激[56,57,89]在非磁性材料中诱导磁性。在这些方法中，利用电栅控或光等外部刺激，可逆地调控二维过渡金属硫族化合物的磁矩，这种能力似乎能够满足多功能传感器件、信息存储和量子计算技术日益增长的需求。我们发现，在原子级薄的钒掺杂过渡金属硫族化合物（V-WS_2，V-WSe_2，V-MoS_2）半导体中存在可调的室温铁磁性 [52,53] ，这为通过光学手段调控其磁性和磁电性质 [56,90]提供了新的可能。结合二维稀磁半导体的光可调磁性[56,90] 与自旋塞贝克效应[91], ，我们提出了一种创新策略，可在自旋热电子器件中通过光控制磁体/金属界面间热驱动的自旋流，有望开创一个名为“光自旋热电子学”的新领域[84]。为了充分利用二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及其异质结构的光学可调磁性，将其应用于自旋电子学、自旋热电子学、应变电子学和

谷电子学（图 1），必须理解这些二维体系中光介导磁性的潜在机制。

在这篇展望文章中，我们展示了如何利用超灵敏磁性-LC共振（MLCR）磁强计，通过光调控二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体中的磁化强度（V-WS_2, V-WSe_2, V-MoS_2）及其相关异质结构（VSe_2/MoS_2, VSe_2/WS_2）。结合密度泛函理论计算，这些发现使我们能够提出创新设计策略，用于构建具有增强型光学可调磁功能、适用于现代纳米器件应用的新型二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体和异质结构。图2展示了构建此类二维过渡金属硫族化合物及异质结构的两种有前景的方法，并讨论了它们的光学可调磁性。

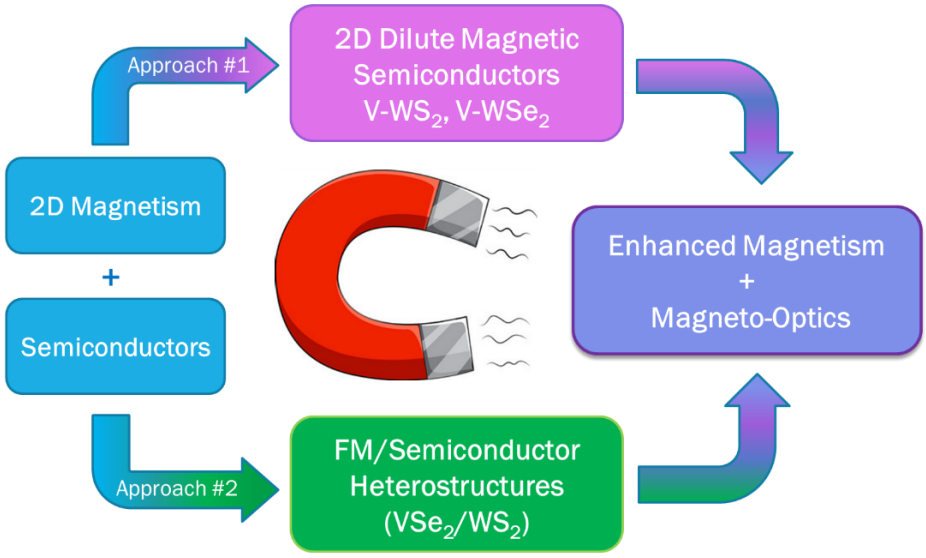


图 2. 方法 1：在半导体过渡金属二硫属化物单层材料（例如，WS_2，WSe_2，MoS_2）中掺入少量磁性原子（例如，钒、铁、铬），可形成一类新型二维稀磁半导体（例如，V-WS_2, V-WSe_2, V-MoS_2）。方法 2：将二维TMD磁体（例如，VSe_2, VS_2, $MnSe_2$, $CrSe_2$）与二维过渡金属硫族化合物半导体（例如，WS_2, WSe_2, MoS_2）相接，可形成一类新型磁光二维范德华异质结构（例如，VSe_2/WS_2, VS_2/MoS_2,$MnSe_2/WSe_2$, $CrSe_2/WSe_2$）。

本文结构如下：首先介绍磁损耗共振（MLCR）磁测量技术，然后利用该技术展示二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及相关异质结构中的光介导磁性效应。我们还将讨论该研究领域中出现的新机遇与挑战。

2. 用磁光-液晶共振磁力测量探究光介导的磁性

随着原子级薄化磁性系统中的铁磁信号变得极其微弱，探测材料在光等外部刺激作用下磁化强度的微小变化成为一项重大挑战 [39,41,43,92-103]。超导量子干涉器件（SQUID）可以测量二维材料的磁化强度 [52,53], ，但不适合在同时用光照射样品的情况下进行实时测量 [93]。对二维材料进行输运测量同样存在困难，因为电接触的尺寸通常大于样品的表面积 [7]。基于磁光克尔效应（MOKE）、时间分辨法拉第旋转和反射磁圆二色性（RMCD）的光学方法，已成功用于表征二维材料（如铁$_3$锗碲$_2$ [92], 铬$_2$锗$_2$碲$_6$ [40], 和铬碘$_3$ [39]）的光介导磁性。然而，这些方法使用较高的激光功率，可能导致局部发热，进而引起热不稳定性 –，成为重要的噪声来源。这些技术的局限性促使人们开发一种新方法，以便在施加光等外部刺激时实时测量二维磁化强度。

为了探究原子级超薄磁性薄膜受光诱导产生的磁化强度，我们开发了一种新型磁电感共振（磁损耗共振，MLCR）磁力计，其具有超高磁场灵敏度（pT 量级）[56,90]。

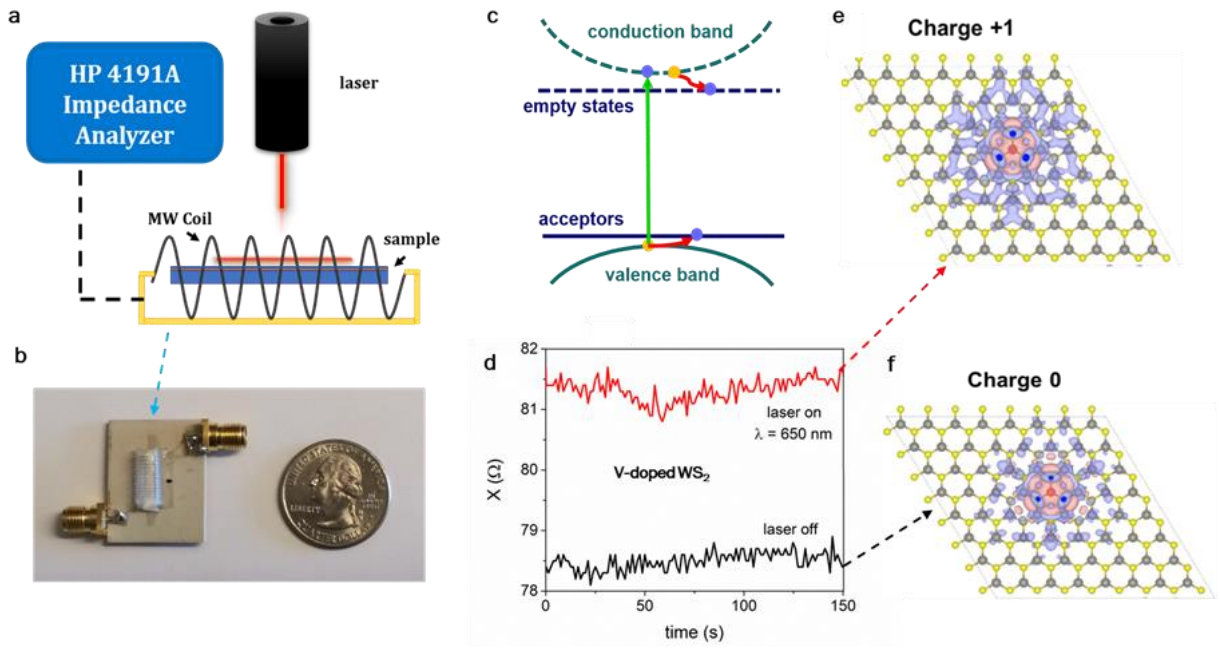


图3。（a）MLCR测量装置示意图。软磁线圈实时监测光照导致的磁性样品磁导率或磁化强度变化所对应的磁电抗变化。线圈安装在由覆铜介电材料构成的测试夹具上，两端焊接在SMA端口的内针上，如（b）所示。（c）光照射二维过渡金属硫族化合物时的光子诱导磁效应示意图；（d）激光关闭和开启时电抗随时间的变化；单次空穴注入（e）相对于未注入电荷（f）时，V-WS_2 单层沿c轴方向的投影磁矩。MLCR实验（d）和密度泛函理论计算（e、f）均证实，光照会增强V-WS_2 单层的磁化强度。

图 3a展示了基于磁损耗共振原理的光介导磁化测量系统示意图 [104,105]。磁损耗共振设计的灵感源自传统的磁感应线圈，以及巨磁阻抗（GMI）效应的高灵敏度 [106]，；该效应已被证明有助于在生物传感应用中检测超微弱磁场 [107]，并用于结构健康监测 [108]。该传感器由一根富钴软磁微丝构成

其 GMI比值和磁场灵敏度极高。这根熔抽非晶微丝的标称成分为钴$_{69.25}$铁$_{4.25}$硅$_{13}$硼$_{12.5}$铌$_{1}$，直径约为60 μ米，绕制成一个 15 匝、长 10 mm、内径 5 mm 的线圈。线圈安装在由覆铜介电材料制成的测试夹具上（图 3b）。线圈两端焊接到 SMA端口的内针上，端口连接同轴电缆，并以 50-Ω 端帽终接。随后以 MHz 范围内的频率驱动线圈（~118 MHz，接近线圈的LC共振），并使用 HP 4191A 阻抗分析仪测量阻抗（Z）、电阻（R）和电抗（X）。

磁性微丝线圈（MMC）的工作原理可用集总元件电路理论来描述。线圈传感器的简单模型是非理想电感器的集总元件表示。将圆柱形导体彼此紧密地缠绕会引入寄生元件 R_{par}和 C_{par}，因此，非理想电感器可表示为理想电感器 L 和 R_{par} 串联后，再与 C_{par} 并联。线圈 Z_{coil} 的阻抗可写为

$$Z_{coil} = Z_{R_{par}} + Z_{C_{par}} \tag{1}$$

$$Z_{coil} = \frac{1}{\frac{1}{R_{par}+j\omega L}+\frac{1}{-j/\omega C_{par}}} \tag{2}$$

$$Z_{coil} = \frac{R_{par}+j\omega\left[L\left(1-\omega^2 LC_{par}\right)-C_{par}R_{par}^2\right]}{\left(1-\omega^2 LC_{par}\right)^2+\left(\omega C_{par}R_{par}\right)^2} \tag{3}$$

其中，Z_{coil} 是线圈的阻抗，ω 是角频率，j 是虚数单位。当感抗（X_L）与容抗（X_C）的幅值相等、相位相差 180 度时，就会发生谐振。在这种情况下，流过导线的电流极小，线圈的阻抗变得非常大，并达到自谐振。该谐振频率表示为:

$$f_0 = \frac{\sqrt{1-\left(R_{par}^2 C_{par}/L\right)}}{2\pi\sqrt{LC_{par}}} \tag{4}$$

线圈的电抗尤为重要，可利用它检测磁芯内部磁导率的变化。线圈阻抗的一般形式为：

$$Z_{coil} = R + jX. \tag{5}$$

因此，我们可以从公式（3）的虚部中提取电抗：

$$X_{\mathrm{coil}} = \frac{\omega[\mathrm{L}\left(1-\omega^2 \mathrm{LC}_{par}\right)-C_{\mathrm{par}}R_{par}^2]}{(1-\omega^2 \mathrm{L}C_{par})^2+(\omega C_{par}R_{par})^2}. \tag{6}$$

为了测量受到光等外部刺激的磁性薄膜（例如二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体）的磁导率或磁化强度，可将磁性薄膜置于线圈的磁芯内，并在光照过程中测量线圈的电抗。根据公式（6），线圈的电抗（X）强烈依赖于穿过线圈的磁芯的电感（L）。由于薄膜具有铁磁性，它会改变线圈内部空间的相对磁导率，进而改变穿过线圈的磁通量，从而改变线圈的电抗。由于微丝本身具有铁磁性，薄膜的磁化也会导致微丝的有效磁导率发生变化。因此，传感器的电抗取决于该有效磁导率，$X = X\left(\mu_{eff}\right)$。光照导致的薄膜磁导率变化（即二维过渡金属硫族化合物中介导磁性的额外空穴的存在）会影响线圈的有效磁导率，这种变化可通过线圈电抗的变化测得：$\Delta X = X\left(\mu_{eff},\ laser\ on\right) - X\left(\mu_{eff},\ laser\ off\right)$。电抗的这一变化（$\Delta X$）与光照下薄膜磁化强度的变化$\Delta M$ 成正比，如图3c-f中V掺杂WS_2 单层材料的情况所示。我们采用MLCR方法研究了所选二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及其异质结构的光学可调磁性，部分结果将在下文中展示并讨论。

3. 光可调二维磁性

3.1. 磁性掺杂过渡金属二硫属化物单层

在二维范德华材料中，二维过渡金属硫族化合物是研究新型量子现象的沃土，其中包括非平庸电子拓扑、不饱和巨磁阻以及拓扑场效应晶体管[1,3,4,7]。近期有报道称，掺杂磁性过渡金属原子（例如V、Fe、Co、Cr）的过渡金属二硫属化物单层（例如WS_2, WSe_2, MoS_2）表现出室温铁磁有序，成为一类新型二维稀磁半导体 [52-71]。我们发现，通过改变V掺杂浓度[52,53]，可以调控V-WS_2 和V-WSe_2 单层材料的室温铁磁性。 图4展示了这些二维磁体的一些显著特征。

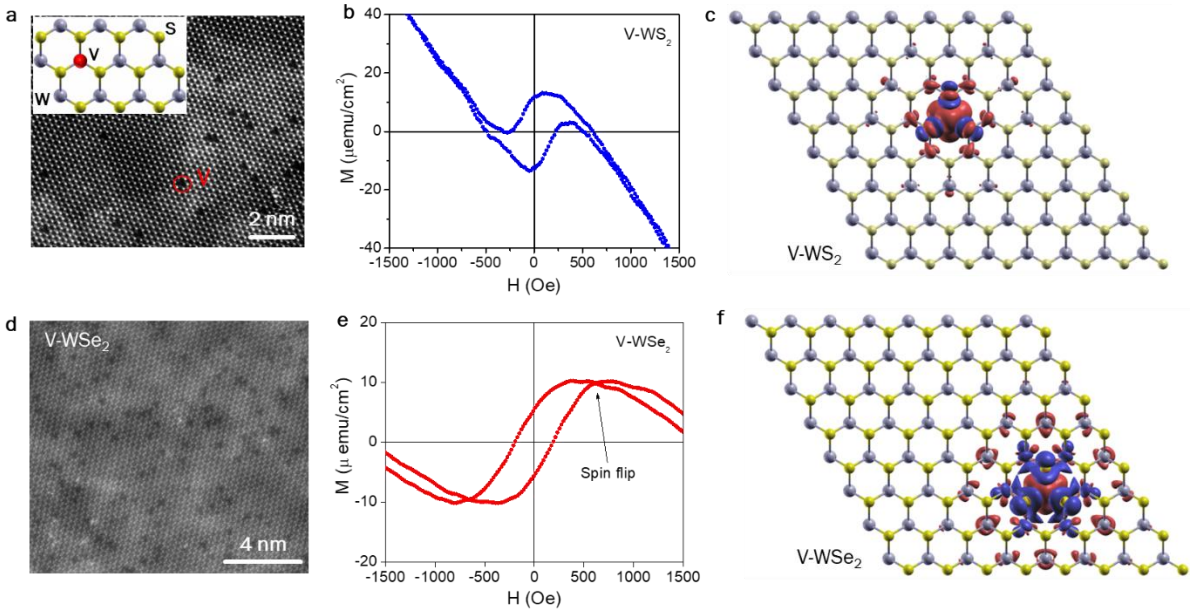


图 4. (a,b,c) 2 at.% 的高分辨透射电子显微镜图像、磁滞回线 M(H) 和自旋构型

分别为掺钒 WS_2 和（d、e、f）4 at.% 掺钒 WSe_2 单层材料。在 V-WS_2 单层中，V（取代一个 W）的磁矩与最近及较远 W 位点诱导的磁矩呈铁磁耦合（均为红色，见图 c）。在 V-WSe_2 单层中，V 的磁矩与最近 W 位点的磁矩呈反铁磁耦合（蓝色与红色相对，见图 f），但与

较远 W 位点的磁矩呈铁磁耦合（红色，见图 f）。V 与最近 W 位点的自旋之间的反铁磁（AFM）耦合，导致了热诱导自旋翻转现象，该现象表现为 M(H) 回线中的磁化强度交叉。图（a、b）经许可转载自参考文献 [52]；图（d、e）经许可转载自参考文献 [53]。

通过改变 V 掺杂浓度，我们实现了磁化强度增强，并达到了原子级薄钒掺杂 TMD 迄今最高的掺杂水平（~2 V 掺杂 WS_2 单层材料的 at.% [52], 和 ~4 V 掺杂 WSe_2 单层材料的 at.% [53] ）。与 V-WS_2 单层材料的情况不同（图 4b 、 c ），我们在 V-WSe_2 单层材料中观察到了热诱导自旋翻转（TISF）现象（图 4e），这是由于 V 位点与其最近邻 W 位点上的自旋之间存在反铁磁耦合（图 4f）。有趣的是，TISF 现象可在较低磁场（低于 100 mT）下实现，并可通过改变 WSe_2 单层材料中的钒浓度加以调控。因此，这些二维稀磁半导体可用作新型二维自旋滤波器，以提高自旋热电子器件的自旋—电荷转换效率 [84,109]。据报道，掺入磁性过渡金属（如钒或铁）后，二维过渡金属硫族化合物中的光致发光信号会显著减弱 [52,53,55,61], ，这被归因于价带顶处 p 型掺杂导致杂质能带形成 [51-53,72]。因此，选择适当的掺杂浓度至关重要，只有在这些浓度下，二维过渡金属硫族化合物才能表现出优化的磁学和光学性质。

Duong 等人研究了电栅控对 V 掺杂 WSe_2单层材料磁化强度的影响，发现空穴注入会增强磁化强度，而电子注入则会显著降低磁化强度 [54,57]。与实验结果相辅相成的是，密度泛函理论计算揭示了原子级薄 V 掺杂 TMD 系统中 V自旋之间占主导地位的空穴介导的长程铁磁相互作用 [57]。我们之前的研究表明，掺杂钒后，2 at.% V 掺杂 WS_2 [52] 和 4 at.% V 掺杂 WSe_2 [53]中仍存在显著的光致发光。

单层材料，其饱和磁化强度（M_S）在所研究的各种组分中均达到最大值。这些观察结果使我们提出，V-WS_2 或 V-WSe_2 单层材料的铁磁性可以通过适当能量的激光光照进行调控，具体而言，激光能量应高于光学带隙（图 3c）。光生电子-空穴对中的电子可能被 V 原子捕获，从而造成载流子布居失衡（即产生过量空穴），进而改变单层材料的铁磁性（图 3d-f）。

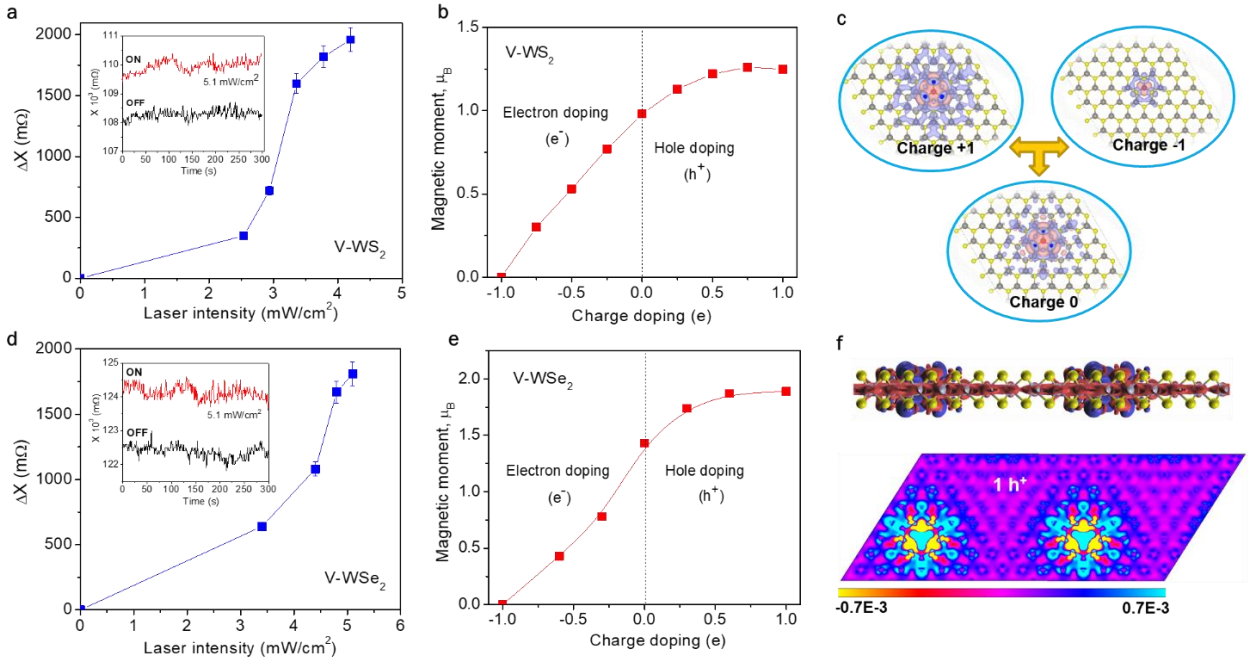


图 5.（a）V-WS_2 和（d）V-的电抗变化（ΔX）对激光强度的依赖关系

WSe_2 单层材料。插图显示了使用650 nm激光照射时电抗的变化：(a) V-WS_2 和(d) V-WSe_2 单层材料；不同载流子掺杂浓度下(b) V-WS_2 和(e) V-WSe_2 单层材料的净磁矩；(c) 注入一个空穴和一个电子后，V-WS_2 单层材料沿c轴的投影磁矩相对于未注入电荷时的变化；(f) 注入一个空穴后，V-WSe_2 单层材料沿c轴的投影磁矩。空穴注入会增强V-WS_2 或 V-WSe_2 单层材料的磁化强度。(a、b、c)经许可转载自参考文献[56]；(f)经许可转载自参考文献[57]。

二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体中磁性与半导体性质的结合，确实实现了磁化强度的光调制与调控，这一点已在V-WS_2 和V-WSe_2单层材料中得到证实（图5）。从图 5(a,d)$_2$ 和V-WSe_2 体系可以清楚看出，两者的磁化强度均呈现相似的光强依赖趋势。值得注意的是，未掺杂的过渡金属二硫属化物样品（本征WS_2 和WSe_2 单层材料）不会表现出光介导的磁性；受光照的V掺杂TMD单层材料中观察到的磁化强度增强并非由激光加热样品所致，而是源于载流子介导的铁磁性，这与p型(In,Mn)As/GaSb半导体的情况类似[110]。密度泛函理论计算表明，空穴注入会使费米能级向价带深处移动，而电子注入则使其向导带边缘移动 [56,57]。因此，随着空穴浓度增加，磁矩 会增大；而电子注入则呈现相反趋势（图5b,e）。空穴浓度增加会使整个晶格中的磁矩更加稳固，远离V位点的W原子也表现出增强的磁矩。由于V-WS_2 和V-WSe_2 体系中的长程铁磁相互作用由自由空穴介导，因此，光学注入空穴载流子会增强铁磁性也就不足为奇了。理论计算充分支持了实验结果。值得注意的是，在空穴浓度较高时，磁矩会达到饱和，这证实了实验中观察到的特征（图5a,d）。这被归因于高空穴浓度下电荷载流子的屏蔽作用。图5所示实验结果来自使用650 nm激光进行的磁损耗共振（MLCR）实验。我们还使用520 nm激光对相同样品进行了MLCR测量，并观察到磁化强度增强，这证实了任何波长高于光学带隙的光都能增强磁化强度。

尽管 V-WS_2 和 V-WSe_2 体系具有相似的光介导磁化效应（图 5a,d），但 V位点与其最近邻 W位点（即最近邻 V-W自旋）处自旋之间的磁耦合存在明显差异[56,57]。密度泛函理论计算表明，在相同的 V掺杂水平下，最近邻 V-W自旋之间的相互作用在 V-WS_2 单层材料中呈 [52,56] 铁磁性，而在 V-WSe_2 单层材料中呈反铁磁性[53,57]。对于 V-WS_2单层材料，随着空穴浓度（或光强）增加，最近邻 V-W自旋之间的铁磁相互作用增强，从而使磁矩增大（图 5c）。然而，V-WSe_2 单层材料的情况则大不相同（图 5f）：V 原子与最近邻 W位点呈反铁磁耦合，而与较远处的 W位点呈铁磁耦合。电荷载流子的引入介导了这种相互作用；空穴载流子浓度增加会使 V位点的磁矩增大。此外，近邻 W位点的磁矩会从反铁磁性转变为弱铁磁性，这与 V位点磁矩的增加共同作用，增强了长程铁磁性（图 5f）。V-WSe_2 体系尤为引人注目的是，V 与近邻 W位点之间的反铁磁耦合似乎导致磁矩在较高激光强度下无法达到饱和（图 5d）。

这些发现表明，光介导磁性效应普遍存在于二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体中，应充分利用这一效应，推动其在光自旋电子学、光自旋热电子学、自旋谷电子学和量子通信领域的应用。

3.2. 二维过渡金属二硫属化物异质结构

典型的范德华过渡金属硫族化合物单层具有广泛的灵活性，并可彼此集成[7,8,15,17,51]。堆叠不同的二维过渡金属硫族化合物能够形成新型异质结构，具有原子级锐利界面以及其单独组分原本不具备的性质 [15,17,51]。近期研究表明，非磁性

过渡金属硫族化合物（例如 WS_2, MoS_2）与另一种磁性过渡金属硫族化合物（VS_2,VSe_2, $CrSe_2$, $MnSe_2$）堆叠后，其磁性或磁光性质可以被诱导或增强 [13,50,111-113]。这是电荷转移与磁邻近效应（PM）共同作用的结果 [13,50,80,113]。通过构建 MoS_2/VS_2 和 WS_2/VS_2 界面，密度泛函理论计算表明，界面两侧会发生从 MoS_2 或 WS_2 到 VS_2,的电荷转移，因为 MoS_2 和 WS_2 的功函数均小于 VS_2 [113]。电子积聚在 VS_2 层中，而空穴则位于 MoS_2 或 WS_2 层中。因此，MoS_2/VS_2 和 WS_2/VS_2 异质结构均表现出增强的磁性，其居里温度超过 300 K [113]。通过构建 $CrSe_2/WSe_2$ 界面，Li 等人的密度泛函理论计算还表明，从 WSe_2 层到 $CrSe_2$ 层的电荷转移以及 $CrSe_2$ 内的层间耦合，在异质结构的磁性中发挥着关键作用 [50]。预计 VSe_2/MoS_2和 $MnSe_2/MoTe_2$ 体系中也存在类似情况 [13,112], , 因为已有报道表明，VSe_2 和 $MnSe_2$ 单层材料在高于室温的条件下表现出铁磁性 [13,14]。半导体性与铁磁性的结合，使这些异质结构在光自旋电子学和光自旋-热电子学领域具有吸引力，因为施加电栅控和光等外部刺激很可能促进电荷转移过程，进而改变异质结构的磁性和磁光性质 [87]。

如上文对 V-WS_2 和 V-WSe_2 单层材料所示，磁性与半导体性质共存，从而产生其磁光性质，并使我们能够利用二维半导体丰富的电子性质，实现磁化强度的光调控性。这些发现表明，VSe_2/WS_2 和 VSe_2/MoS_2 异质结构中也可能存在类似现象。VSe_2/WS_2 或 VSe_2/MoS_2 异质结构的一个引人注目的特征，是存在强界面磁耦合以及两层之间发生电荷转移的可能性，这可能在调控薄膜的磁化强度方面发挥关键作用。双层 MoS_2 在约 600–700 nm 处表现出强烈的光子吸收峰，通过用能量接近该峰值的光照射 VSe_2/MoS_2 薄膜，我们预计

会产生大量电子-空穴对。这些电子-空穴对可能通过异质界面处的电场发生分离，从而导致薄膜中观察到的光可调磁性。

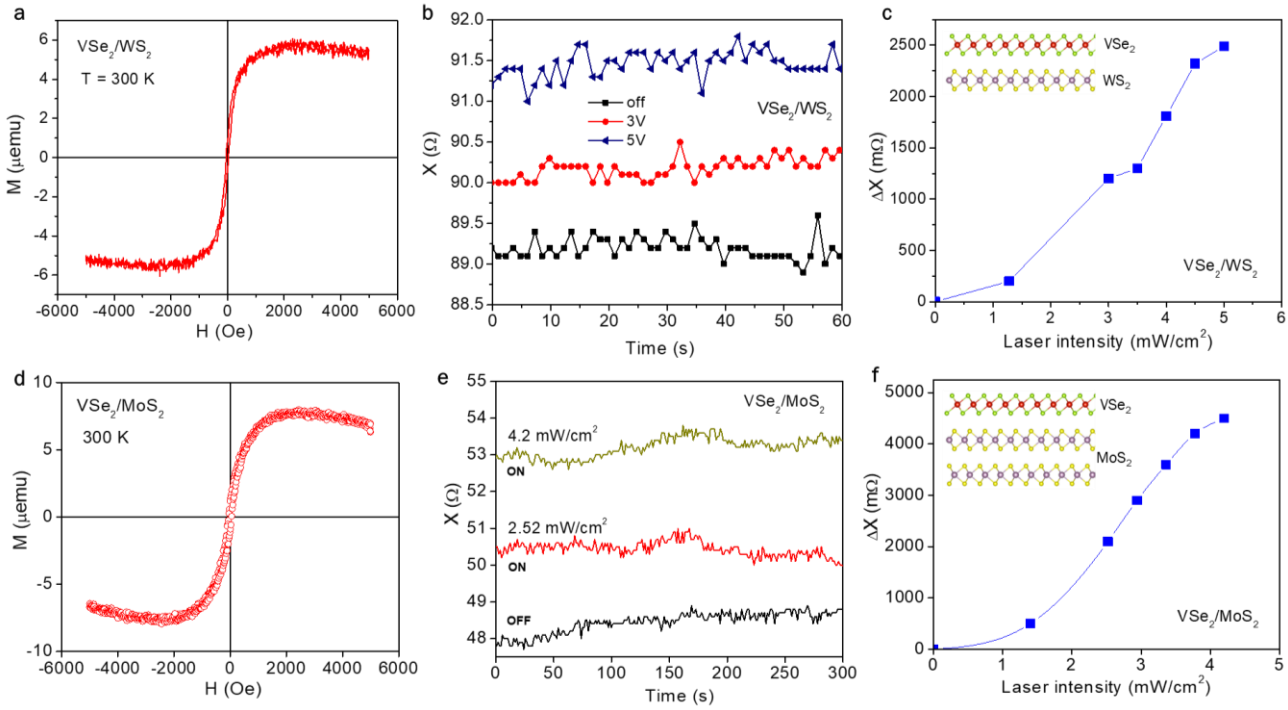


图6. 在 300 K 下测得的磁滞回线 (M(H))：(a) 1L-VSe_2/1L-WS_2 和 (d) 1L-VSe_2/2L-MoS_2 薄膜。光照下，以不同强度的 650-nm 激光照射时，(b) 1L-VSe_2/1L-WS_2 和 (e) 1L-VSe_2/2L-MoS_2 薄膜的电抗 (X) 随时间的变化。(c) 1L-VSe_2/1L-WS_2 和 (f) 1L-VSe_2/2L-MoS_2 薄膜的电抗变化 (ΔX) 对激光强度的依赖关系。

为检验这一假设，我们使用波长为~650 nm（hν ~ 1.91 eV）的二极管激光器照射VSe_2/WS_2 和VSe_2/MoS_2 异质结构样品，并对其进行了MLCR实验。在本例中，VSe_2/WS_2 或 VSe_2/MoS_2 异质结构分别由垂直堆叠的单层（1L）VSe_2 与单层（1L）WS_2 或双层（2L）MoS_2 组成，二者均生长在SiO_2 衬底上，制备时分别结合了分子束外延（MBE）和化学气相沉积（CVD）。VSe_2/WS_2 和VSe_2/MoS_2 样品的代表性结果见图6。值得注意的是，1L-VSe_2/1L-WS_2 和1L-VSe_2/2L-MoS_2 样品在室温下均呈现显著的铁磁信号（图6a、d），且其铁磁性可由光调控

室温下的铁磁性（图6b、e）。对于这两种异质结构，磁化强度随激光强度增加而显著增强，并在激光强度较高时趋于饱和（图6c、f）。VSe_2/WS_2 和VSe_2/MoS_2异质结构（图6c、f）的磁化强度对光强的依赖关系，与V掺杂TMD单层（图5a、d）以及$CH_3NH_3PbI_3$/LSMO异质结构[96]的观测结果相似。泵浦-探测磁光克尔效应技术也独立证实了光照可增强并调控 1L-VSe_2/2L-MoS_2 薄膜的铁磁性 [90]。值得注意的是，在单独的各层（WS_2, MoS_2, VSe_2）中未观察到这种光介导磁性效应；只有将它们堆叠在一起时，才能观察到磁化强度对光的依赖性。这些结果证明了光介导磁性效应具有普适性，并为设计和制备新型范德华异质结构开辟了新途径，使其可应用于二维范德华自旋电子学、光自旋热电子学和光谷电子学。

对单层-VSe_2/2层/MoS_2 和单层- VSe_2/块体单晶 MoS_2 (块体单晶：块体单晶)样品的光介导磁化结果进行比较后发现，单层-VSe_2/2层-MoS_2 的磁化强度变化约为单层-VSe_2/块体单晶-MoS_2 (图7a)，且这一结果具有可重复性（见图7a插图）。这一观察使我们认为，与块体单晶 MoS_2 相比，2层-MoS可能受到的电子限域效应在这种异质结构中光介导磁性的作用机制中发挥着重要作用（图7b；而块体单晶 MoS的情况则不同（图7c）。

为阐明光增强磁性在单层 VSe_2/双层 MoS_2 体系中的机制，我们进行了第一性原理缺陷计算[114]，采用 Heyd-Scuseria-Ernzerhof（HSE）杂化泛函（混合参数设为 0.15）[115]，并通过 VASP[116] 实施范德华校正 [117]，同时考虑有限超胞尺寸效应 [118]。计算结果表明，这种增强可能暂时归因于双层 MoS_2 中硫空位（V_S）的存在（图 7d-f）。V_S 被发现以负电荷态（V_S^-）稳定存在

在费米能级值接近导带底（CBM）的范围内。在 n 型条件下，V_S^- 代表能量最低的磁性本征点缺陷（每个 V_S^- 对应 $1\mu_B$ ）（图 7e）。两个 V_S^- 缺陷之间的磁相互作用呈弱铁磁性。在 VSe_2/MoS_2 体系中，功函数较大的 Vse_2 层（~4.5 eV，相较之下，MoS_2 层为 ~4.1 eV）会导致电子在 Vse_2 层积累，在异质界面的 MoS_2 一侧形成耗尽区，随后形成肖特基势垒。Vse_2/MoS_2 体系中的铁磁性机制仍存在争议；不过，电子在 Vse_2 层积累可能会增强该层的铁磁性，从而在材料未暴露于光照时，促使 Vse_2/MoS_2 异质结构的净磁化强度发生变化。需要指出的是，单层 Vse_2 对单层 Vse_2/双层 MoS_2 薄膜净磁化强度的磁性贡献更为显著。

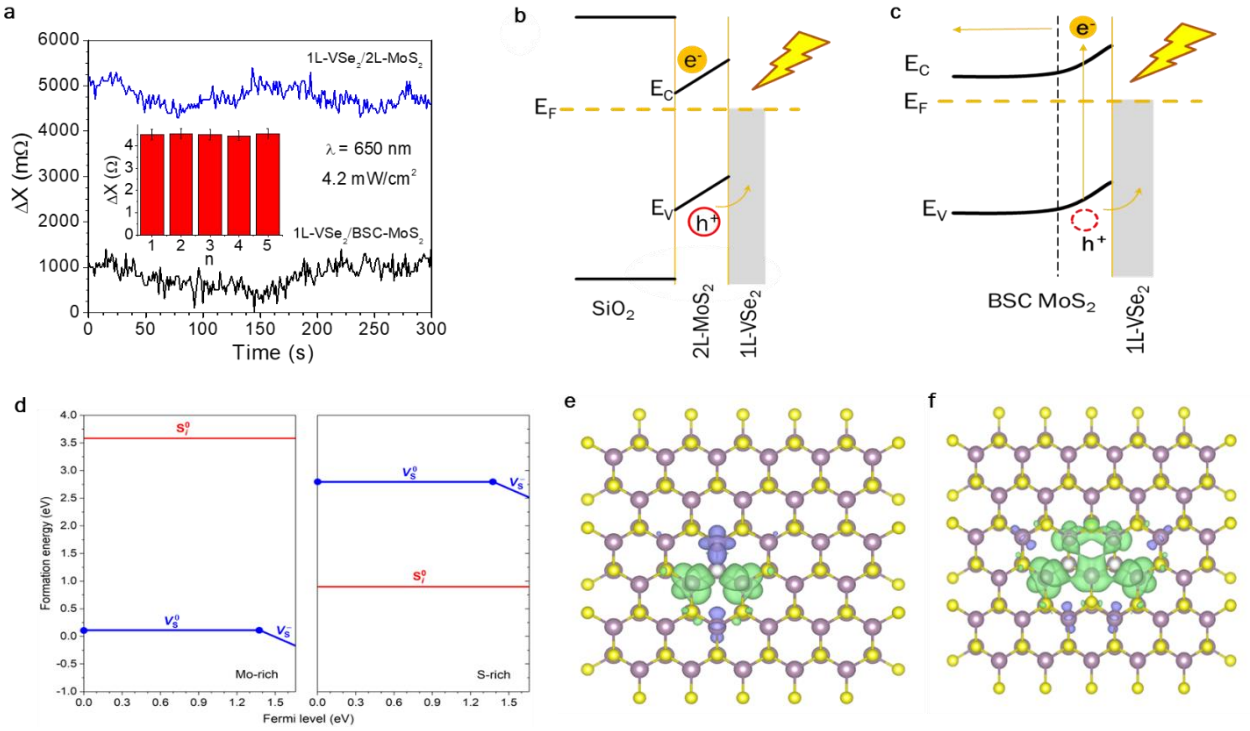


图 7. (a) 在相同波长（λ = 650 nm）和强度（4.2 mW/cm²）下，单层-Vse_2/双层-MoS_2 薄膜与单层-Vse_2/块体单晶-因光照产生的电抗变化（ΔX）对比

MoS_2 薄膜。光照后，1L-Vse_2/2L-MoS_2 薄膜的磁化强度增强幅度约为1L-Vse_2/BSC-MoS_2 薄膜的4倍。(a)中的插图显示了不同时刻测得的电抗变化值（ΔX），证明了观察到的效应具有可重复性。示意图展示了光照下可能发生的电荷转移：(b) 经由2L-MoS_2/Vse_2 界面，以及 (c) 经由BSC-MoS_2/Vse_2 界面；(d) 极端富Mo和富S条件下，2H-MoS_2 双层中硫空位（V_S）和间隙原子（S_i）的形成能，并将其表示为费米能级从VBM到CBM的函数。能量线段的斜率表示电荷态。在富Mo（富S）条件下，空位（间隙原子）是占主导地位的本征点缺陷。在很宽的费米能级值范围内，V_S 以电中性（且非磁性）空位V_S^0 的形式稳定存在；在CBM附近（即n型条件下），则以带负电的空位V_S^- 的形式稳定存在。V_S 的（0/–）跃迁能级位于CBM下方0.31 eV处。计算得到V_S^- 的磁矩为1μ_B。另一方面，在整个费米能级值范围内，S_i 均以电中性且非磁性的空位S_i^0形式稳定存在；(e) 单个带负电缺陷V_S^-所对应自旋密度的俯视图；(f) 一对V_S^-所对应自旋密度的俯视图。大（紫色）球表示Mo，小（黄色）球表示S。空位的晶格位点以小（白色）球标出。等值面水平设为0.014 e/Å^3，绿色（紫色）等值面分别对应自旋向上（向下）。

光照会产生电子-空穴对，随后，这些电子-空穴对被两种材料之间肖特基势垒处的界面电场分离。因此，激发电子会在 MoS_2的导带中积累。这种二维电子气可增加 MoS_2 层中硫空位的负电荷，进而增大净磁矩（图7f）。例如，非磁性的 V_S^0 会在一定时间内（激光照射期间）转变为 V_S^-。我们的计算表明，部分额外电子会

局域在空位处。在更高的激光功率下，MoS_2 导带中的光生电子会完全填满可用的受限态，最终泄漏到 VSe_2 层中，这或许可以解释磁化增强的饱和现象。由于 2L-MoS_2，具有二维特性，光生电子和硫空位都局限在异质结构界面附近。这有助于相邻空位之间的铁磁相互作用，不仅能增大薄膜的磁矩，还能增强光控磁性。这表明，除异质结构的界面耦合外，电子限域和硫空位浓度也会调节薄膜在光照下磁化强度的变化（见图7a–c）。如 BSC-MoS_2 /VSe_{22} 的磁化强度变化比 2L-MoS_2/VSe_2 小 4 倍所示，MoS图7a）。我们认为，这是因为 MoS_2/VSe_2 界面附近缺乏限域。在 BSC-MoS_2/VSe_2 的情况下（图7c），光生电子不再局限于界面，而是可以深入 MoS_2层中，从而显著降低界面附近的电子浓度。不过，要充分理解 VSe_2/MoS_2 体系中光介导铁磁性的机制，仍需进一步研究。还应注意，2L-MoS_2 中的硫空位可能并非磁性的唯一来源；样品中的其他点缺陷和扩展缺陷也可能发挥作用。我们关于光增强铁磁性的理论论述适用于任何电学和磁性性质与硫空位相似的缺陷。

4. 机遇与挑战

我们的研究结果证实，光调控磁性效应普遍存在于二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体中，包括 V 掺杂 TMD 单层材料（V-WS_2, V-WSe_2, 和 V-MoS_2）。除电可调磁性功能外，室温下光可调原子级磁性也使二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体在自旋电子学、自旋-

热电子学和谷电子学应用中更具吸引力。值得注意的是，在光照 MLCR实验中，电子和空穴都会被激发，而密度泛函理论模拟则分别考察了每种载流子的独立效应。磁性与半导体性质共存是必要条件；因此，较高的掺杂浓度不太可能呈现这种效应，因为其半导体性质会受到严重抑制。另一方面，较低的 V 掺杂浓度也值得研究，因为此时可保留优异的半导体性质，而磁矩与最佳钒掺杂 TMD 样品相比略小。研究不同 V 掺杂浓度对二维过渡金属硫族化合物光介导磁性效应的影响，是未来一个颇有意义的研究方向。还需开展进一步研究，以了解掺杂浓度与光增强磁性之间的关系。

此外，我们还证明了光介导磁性效应在二维过渡金属硫族化合物铁磁体/半导体异质结构中的普适性，包括 VSe_2/WS_2 和 VSe_2/MoS_2 系统。在这些二维系统中，电荷转移、近邻效应和限域效应对增强光介导磁化起着关键作用。然而，在异质结构形成过程中可能出现的互扩散、插层、扭转和莫尔图案等其他效应，仍基本未得到探索 [31,45,51,78,99,119]。最近，Wang 等人揭示了利用光学手段调控莫尔势阱束缚空穴之间自旋-自旋相互作用、从而在 WS_2/WSe_2 莫尔超晶格中诱导铁磁序这一新颖可能性 [99]。对于 VSe_2/MoS_2 异质结构，已在低温下（低于电荷密度波转变温度 T_{CDW}）观察到莫尔图案；在这一温度范围内，该莫尔图案的存在增强了磁化强度，产生了强烈的界面磁耦合以及交换偏置（EB）效应 [13,85]。为了全面理解莫尔效应并利用交换偏置效应的光调控性，研究 VSe_2/MoS_2 和 VSe_2/WS_2 异质结构在 $T < T_{CDW}$ 下的光介导磁性效应将很有意义。密度泛函理论计算表明，电荷会从铁磁金属 VSe_2 （$CrSe_2$）转移到

半导体 MoS_2 （WSe_2），从而产生 MoS_2 （WSe_2）层的磁矩。由此引出了一个根本问题：当二维半导体过渡金属硫族化合物（MoS_2,、WS_2, 等）层与石墨烯这类非磁性金属形成界面时，是否也会出现类似效应？探索与石墨烯形成界面的半导体二维过渡金属硫族化合物（包括本征和磁性掺杂的过渡金属硫族化合物）中的磁性与光效应，不仅能回答这一重要问题，还能为光照下由二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及其他二维材料构成的范德华异质结构中的电荷转移介导磁性提供新的见解。根据两种组分材料之间的功函数差异，空穴/电子可以转移到二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体中，从而增强或减弱磁化强度。这为设计具有增强磁性和磁光性质的新型二维过渡金属硫族化合物异质结构提供了一种颇具前景的创新方法，即结合化学掺杂与界面工程（通过光调制的定向电荷转移机制）的策略。

从应用角度来看，二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及其异质结构的光学可调磁性有望应用于光自旋电子学、光自旋热电子学和谷电子学。Ghiasi 等人证明，由于 Rashba-Edelstein 效应（REE），电荷-自旋转换可发生在单层 WS_2/石墨烯界面处 [120]。另一种方案是采用 V-WS_2 和 V-WSe_2 单层材料等二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体，这不仅可能提高自旋-电荷转换效率，还能实现对自旋-电荷转换过程的光学操控。Sierra 等人撰写的一篇综述重点介绍了光自旋电子学的新颖应用前景 [7]。

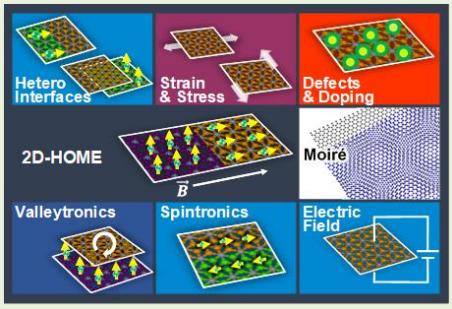
基于自旋塞贝克效应（SSE）的热诱导自旋流是由 Uchida 等人发现的一种现象，[121,122], 为新一代自旋热电子器件奠定了基础。在施加磁场后，由于温度梯度两端形成电势差，铁磁性（FM）材料（如钇铁石榴石 $Y_3Fe_5O_{12}$）中能够产生纯自旋流。这种自旋流可通过重金属的逆自旋

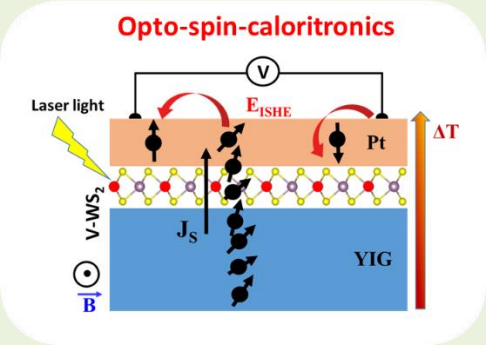
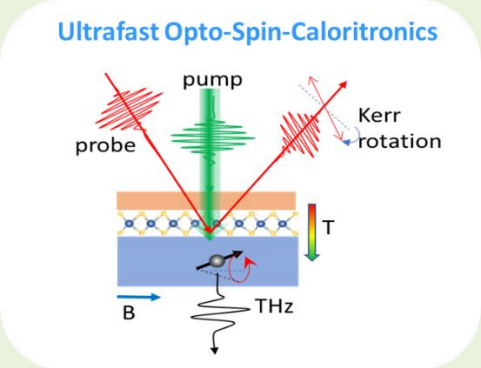
霍尔效应转换为具有技术应用价值的电压，重金属（HM）具有强自旋轨道耦合（如 Pt），并形成 FM/HM 结构。近期，Kalappattil 等人表明，在钇铁石榴石与 Pt 之间插入一层薄的（~5 nm）C_{60}有机半导体层，可以显著减小钇铁石榴石与 Pt 之间的电导率失配，并增强钇铁石榴石的表面垂直磁各向异性，从而使纵向自旋塞贝克效应提高 600%，实现巨大的增强 [91]。沿用这一方法，Lee 等人 在 Pt 与钇铁石榴石之间插入了一层半导体 WSe_2 单层，并在 Pt/WSe_2/YIG 中观察到了巨大的自旋塞贝克效应 [123]。密度泛函理论计算表明，在铁磁体 / 重金属双层体系中插入二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体（例如 V-WSe_2），不仅能够减小电导率失配，还能增强自旋混合电导，进而通过自旋塞贝克效应提高自旋-电荷转换效率 [123]。利用二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体的光可调磁化强度[36,90],，Phan 等人近期提出了一种通过铁磁体/重金属体系中插入二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体用于光学调控热诱导自旋流的新途径，从而确立了名为“光自旋热电子学”的新分支[84],，该分支能够利用光作为新的热源。仍需开展进一步研究，以充分挖掘这一潜力。

半导体二维过渡金属硫族化合物（例如 WSe_2，WS_2，MoS_2）是用于谷电子器件的优秀候选材料 [48,49]。利用外部刺激（光、电和磁场）控制和操纵这些二维过渡金属硫族化合物中的谷极化态至关重要 [77,124-127]。已有报道称，将磁性原子（铁、钒）掺入 MoS_2 单层，形成 Fe-MoS_2 [66] 或 V-MoS_2 [67] 稀磁半导体，可增强 MoS_2 单层中的谷劈裂。由于二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体对电场和激光均表现出强烈的磁响应 [56,57],，因此可以通过这些外部刺激调控其谷电子学性质。Seyler 等人 [41] 在实验上利用光控制 CrI_3异质结构中的 CrI_3磁化强度，展示了 WSe_2 单层中谷极化和谷塞曼劈裂的光调制。然而，CrI_2 单层在 50 K 以下表现出铁磁有序，使得 CrI_3 /WSe_3异质结构不适用于在环境温度下运行的谷电子器件。在此背景下，光学

对 VSe_2（$MnSe_2$）/MoS_2 和 VSe_2（$MnSe_2$）/WS_2异质结构中磁性和谷电子学性质的调制$_2$ 或 $MnSe_2$ 层在室温以上表现出铁磁序[13,14]。基于密度泛函理论计算，He 等人表明，当非磁性 $MoSe_2$ 单层与 $MnSe_2$ 单层接触时，超快激光脉冲能够在其中诱导出铁磁态；该 MnSe 单层在室温以上呈现铁磁有序 [128]。这种二维磁性的超快光学控制对于超快自旋电子学和磁存储信息技术的应用极具吸引力 [129]。值得注意的是，二维过渡金属硫族化合物的磁性源于缺陷和掺杂剂诱导的磁矩及其耦合[51,60]。因此，研究过渡金属空位或硫属元素空位以及磁性掺杂剂浓度对悬空过渡金属二硫属化物单层磁性、磁光性质和谷电子学性质的影响，以及研究这些单层置于异质结构中的磁性衬底上时的相关影响，都将具有重要意义。图式 1 概述了利用二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及异质结构应用于现代纳米器件的机遇与挑战。

图式1. 二维TMD磁体研究中的机遇与挑战 .

二维范德华稀磁半导体	
机遇	挑战
• 电学和光学可调磁性 在二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体中（例如，钒掺杂的 WSe_2）用于 自旋晶体管、传感器和自旋逻辑 器件应用  • 可通过光调控的扭转及莫尔 二维中的磁性及相关现象- TMD 异质结构（例如 VSe_2/MoS_2, WS_2/WSe_2），用于自旋电子学和光电 自旋电子学 • 探索光调控交换偏置或 二维范德华材料中的交换各向异性 异质结构（例如，VSe_2/MoS_2, VS_2/WS_2） 用于光自旋电子学 • 光学可调磁性与自旋- 热输运（自旋塞贝克效应、反常能斯特效应等）于	• 弱铁磁性 • 难以控制磁性 掺杂剂/缺陷，以实现二维过渡金属硫族化合物中的 可重复的磁性（例如，M_S, H_C） • 铁磁性受到强烈抑制，且 重掺杂二维过渡金属硫族化合物中的光致发光 TMDs • 空气不稳定性（磁信号 暴露于空气中时会退化） • 集成和制备方面的困难： 基于二维过渡金属硫族化合物的 器件 • 空气不稳定性（磁性退化会导致 降低自旋塞贝克效应电压） • 对自旋-电荷-声子耦合机制的理解尚有不足 这些机制决定了自旋 在二维范德华界面上的输运 • 理论值与实验值之间存在巨大差异 对于自旋塞贝克效应电压而言 已报道的二维磁体和异质结构

铁磁体/二维过渡金属硫族化合物/重金属结构（例如，钇铁石榴石/单层彩票开户 用于光自旋热电子学的 V 掺杂 WSe_2/Pt)  • 超快磁性与超快自旋- 用于超快光自旋的热输运- 热流器件应用  	• 需要选择在高温（T_C、T_N）下呈现磁有序的范德华材料，以在室温附近实现交换偏 • 难以合成范德华磁性材料并将其堆叠成异质结构 • 表面和界面氧化（磁性退化） • 范德华磁体/金属界面的插层和互扩散、扭转、莫尔图案等带来的不利影 • 磁光克尔效应信号取决于所用材料表面和界面的质量；非局域加热效应对自旋动力 • 器件结构复杂，器件寿命短

5. 总结与展望

我们已经确立了光调制磁化效应在二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体中的普适性，包括V掺杂TMD单层（V-WS_2, V-WSe_2, V-MoS_2）。这一效应归因于导带和价带中存在过量空穴，以及被磁性掺杂态俘获的载流子；这些载流子介导了TMD层的磁化强度。此外，我们还证明了光介导磁性效应在二维过渡金属硫族化合物铁磁体/半导体异质结构中的普适性，例如VSe_2/WS_2 和VSe_2/MoS_2。这一效应是

归因于TMD层（例如WS_2, WSe_2, MoS_2）的光子吸收，产生介导异质结构磁化强度的电子-空穴对。这些发现为设计新型二维TMD范德华异质结构开辟了新途径，这类异质结构具有独特的磁光耦合功能，可推动新一代高性能光电子学、超快光自旋电子学、光自旋热电子学、谷电子学和量子技术的发展。

我们已经证明，邻近效应、电荷转移效应和限域效应对于增强二维TMD异质结构中的光介导磁化具有重要作用，但互扩散、插层、扭转和莫尔图案等其他效应也可能具有重要影响[31,45,51,78,99,119]。因此，仍需开展进一步研究，以全面理解这些效应。二维TMD磁性似乎源于空位和掺杂剂诱导的磁矩所产生的多重贡献，以及它们之间的磁耦合，而磁耦合强度则取决于复杂的空位-掺杂剂构型 [51,60]。理解光如何在具有可控掺杂剂/空位浓度的二维过渡金属硫族化合物中介导磁化至关重要。 据报道，“扭转”效应能够显著改变二维过渡金属硫族化合物的磁性和谷电子学性质 [130-135]。在二维TMD/石墨烯异质结构中，将石墨烯相对于二维TMD进行扭转，可以增强谷塞曼效应和拉什巴效应 [130,131], , 同时提高电荷-自旋转换效率 [132,133]。通过精细调控扭转双层石墨烯与WSe_2, Lin 等人的原子界面，发现莫尔平带内部存在强电子关联，这种关联能够稳定四分之一填充和半填充状态下的绝缘态，而自旋轨道耦合则驱动莫特型绝缘体转变为铁磁态 [134]。除了磁邻近效应和电荷转移效应之外，扭转还为调控二维过渡金属硫族化合物的磁性和磁光功能提供了一种有趣的实验调控手段，有望推动其在自旋电子学和谷电子学领域的应用。

从应用角度来看，室温下可通过电学和光学调控的磁性，使二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体成为自旋晶体管和逻辑器件的理想候选材料，并且

磁存储器件 [51,54,86]。在光自旋电子学中，对二维磁化进行超快光学控制，有望以最低的耗散功率实现最快的信息记录和处理 [7,129]。需要开展实验研究，以验证这些理论预测 [73,113]。此外，二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体可作为新型二维自旋滤波器，通过铁磁体/二维稀磁半导体/重金属体系中的自旋塞贝克效应，提高自旋-电荷转换效率 [84,109]。目前尚缺乏对这类二维自旋滤波器中自旋-电荷-声子耦合机制的全面理解，但这对于释放“光自旋热电子学”的潜力至关重要，值得进一步研究。

与二维过渡金属硫族化合物相比，二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体在谷电子器件中的应用前景似乎更加广阔 [66,67]。为了进一步增强这些二维稀磁半导体中的谷劈裂，可以将其与石墨烯等其他二维材料构建界面。结合化学掺杂与界面工程（电荷转移和/或应变）方法，可以构建二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体/石墨烯或二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体/二维过渡金属硫族化合物异质结构，从而增强其磁学、磁光学和谷电子学性质，并可通过外部刺激（电栅控、光、应变）对这些性质进行调控。所有这些令人振奋的可能性都将促进进一步研究。

为深入指导基于二维过渡金属硫族化合物的器件开发，我们在表1中列出了颇具前景的二维TMD磁体和异质结构。大多数二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体采用化学气相沉积（CVD）合成，而其中一些异质结构则通过分子束外延（MBE）或两种技术结合的方式生长[76]。化学气相沉积通常能制备均匀、孔隙率低、纯度高且稳定的二维薄膜，但反应过程中会产生有毒气体。分子束外延可原位制备具有特定表面重构的原子级洁净衬底，有利于生长高度外延的二维薄膜，但薄膜生长过程中可能产生更多缺陷[74-76]。必须改进这些技术，以生长无缺陷或缺陷可控的二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体及异质结构。

如前所述，二维过渡金属硫族化合物半导体中磁性掺杂剂浓度较高，或存在大量缺陷（过渡金属/硫属元素空位），会严重抑制光致发光[51-53]。据报道，在 MoS_2 单层中采用钴、铬等不同金属共掺杂，可同时提高光致发光强度和饱和磁化强度[71]。结合化学共掺杂与界面工程，是设计具有增强磁性和磁光性质的二维过渡金属硫族化合物稀磁半导体的一种有前景的策略，可用于自旋电子学、光自旋电子学、光自旋热电子学、谷电子学和量子通信。

致谢

USF的研究得到了美国能源部基础能源科学办公室材料科学与工程部项目（奖励编号：DE-FG02-07ER46438）以及VISCOSTONE USA项目（奖励编号：1253113200）的支持。M.T.感谢空军科学研究办公室（AFOSR）通过资助编号FA9550-18-1-0072提供的支持，以及NSF-IUCRC原子级薄多功能涂层中心（ATOMIC）的支持。本研究使用了北达科他州立大学计算辅助科学与技术中心（CCAST）的计算资源，该资源部分由美国国家科学基金会重大研究仪器计划（MRI）奖励编号2019077提供支持。作者感谢M. Bonilla博士和S. Kolekar博士协助合成 VSe_2/MoS_2 样品。

表1. 适用于自旋电子学、自旋热电子学和谷电子学的光学可调磁功能二维TMD磁体和异质结构。

材料	有序温度 T_C (K)	备注	**Ref.**
金属			
VSe_2 (单层, 2L)	~270 – 350 K	强磁性；对.....敏感 缺陷；较低的空气稳定性	[13]
$MnSe_2$ (单层、2L)	~266 – 350 K	本征磁性；较少 对缺陷不那么敏感；较差的空气 稳定性	[14]
铬硒$_2$ (单层)	50~300 K	本征磁性；较少 对缺陷敏感；空气稳定性	[50,136]
$FeSe_2$ (单层)	~300 K	本征磁性；空气稳定性 [136]	
半导体			
V-WS_2 (单层) 最佳 ~2 原子百分比	~300 –400 K	尚未探索的光学调控 of 谷电子态；不太敏感 到空气 中。	[52]
钒-WSe_2 (单层) 最佳 ~4 原子%	~300 – 400 K	尚未探索的光学调控 谷电子态；对空气不太敏感 。	[53]

钒-钼硒$_2$ (单层) 最佳 ~2 原子%	~300 – 400 K	尚未探索的磁性的光学调控 磁性和谷电子学 态；对空气不太敏感。	[63]
钒-钼硫$_2$ (单层)	~300 – 400 K	尚未探索的磁性的光学调控 和谷电子学 态；对空气不那么敏感。	[61,67]
钒-钼碲$_2$ (单层)	~300 – 400 K	尚未探索的 磁性与谷电子学 态；对空气不那么敏感。	[70]
铁-钼硫$_2$ (单层)	~300 – 400 K	尚未探索的磁性的光学调控 与谷电子学 态；对空气不太敏感。	[55,66]
钴-钼硫$_2$ (单层)	~300 K	尚未探索的磁性的光学调控 磁性与谷电子学 态；对空气不那么敏感。	[58]
(钴,铬)-钼硫$_2$ (单层)	~300 K	尚未探索的磁性的光学调控 磁性与谷电子学 态；空气稳定性。	[71]
钴-SnS_2 (半导体)	~120 K	尚未探索的磁性的光学调控 磁性与谷电子学 态；空气稳定性。	[138]

铁-硫化锡$_2$ (单层)	~30 K	尚未探索的磁性的光学调控和谷电子学态；空气稳定性。	[139]
锰-硫化锡$_2$ (半导体)	~150 K	尚未探索的磁性光学调控与谷电子学态；空气稳定性。	[140]
异质结构			
$CrSe_2/WSe_2$ (单层/单层)	~50 – 120 K	尚未探索的磁性的光学调控磁性和谷电子学态；电荷转移；不太易受空气影响。	[50]
$VSe_2/MoTe_2$ (单层/单层)	~300 – 350 K	尚未探索的磁性的光学调控与谷电子学态；电荷转移；对空气不太敏感。	[111]
VSe_2/MoS_2 (单层/双层)	~300 – 350 K	尚未探索的光学调控谷电子态；观察到的EB效应；电荷转移；较不易受空气影响。	[13,85]
$MnSe_2/MoSe_2$ (单层/单层)	~300 – 350 K	尚未探索的磁性的光学调控磁性与谷电子学状态；电荷转移；对空气不太敏感对空气敏感。	[112]

VS_2/钼S_2 (单层/单层)	~300 – 350 K	尚未探索的光学调控 of 磁性和谷电子学 态；电荷转移；较少 对空气敏感。	[137]

参考文献

1. P. Chuang, S.C. Ho, L.W. Smith, F. Sfigakis, M. Pepper, C.H. Chen, J.C. Fan, J.P. Griffiths, I. Farrer, H. E. Beere, G. A. C. Jones, D. A. Ritchie, 和 T.-M. Chen, 《全电控全半导体自旋场效应晶体管》, 《自然·纳米技术》10, 35 (2015)。 2. F. Matsukura, Y. Tokura, H. Ohno, 《利用电场控制磁性》, Nature Nanotechnology 10, 209–220 (2015)。 3. W.J. Yan, O. Txoperena, R. Llopis, H. Dery, L.E. Hueso & F. Casanova, 《二维自旋场效应开关》, 《自然·通讯》7, 13372 (2016)。 4. B. Dieny 等, 《自旋电子学在微电子产业中的机遇与挑战》, Nature Electronics 3, 446 (2020年)。

5. G. Faroz Ahmad Malik、M. Ahmad Kharadi、F. Ahmad Khanday 和 N. Parveen, 《自旋场效应晶体管及其应用：综述》, 《微电子学杂志》106，104924（2020年）

6. J. Ingla-Aynés、F. Herling、J. Fabian、L.E. Hueso 和 F. Casanova, 《电学控制谷塞曼自旋轨道耦合诱导的室温自旋进动》, 《物理评论快报》127，047202（2021年）。

7. J.F. Sierra、J. Fabian、R.K. Kawakami、S. Roche、S.O. Valenzuela, 《用于自旋电子学和光自旋电子学的范德华异质结构》, 《自然·纳米技术》16，856–868（2021年）。

8. A. Avsar 等, 《石墨烯及其他二维材料中的自旋电子学》, 《现代物理评论》92, 021003（2020年）。

9. E.C. Ahn, 《自旋电子器件用二维材料》, 《npj二维材料与应用》4，1–14（2020年）。
10. B. Huang、G. Clark、E. Navarro-Moratalla、D.R. Klein、R. Cheng、K.L. Seyler、D. Zhong、E. Schmidgall、M.A. McGuire、D.H. Cobden等, 《范德华晶体中直至单层极限的层依赖铁磁性》, 《自然》546，270（2017年）。

11. C. Gong、L. Li、Z. Li、H. Ji、A. Stern、Y. Xia、T. Cao、W. Bao、C. Wang、Y. Wang等，《二维范德华晶体中本征铁磁性的发现》，《自然》546，265（2017年）。

12. Z. Fei, B. Huang, P. Malinowski, W. Wang, T. Song, J. Sanchez, W. Yao, D. Xiao, X. Zhu, A.F. May, 等，《原子级薄 Fe_3GeTe_2, 中的二维巡游铁磁性》，《自然·材料》17, 778 (2018)。

13. M. Bonilla、S. Kolekar、Y. Ma、H.C. Diaz、V. Kalappattil、R. Das、T. Eggers、H.R. Gutierrez, M.H. Phan, M. Batzill，《范德华衬底上 VSe_2 单层材料的强室温铁磁性》，《自然·纳米技术》13, 289 (2018)。

14. D.J. O'Hara, T. Zhu, A.H. Trout, A.S. Ahmed, Y.K. Luo, C.H. Lee, M.R. Brenner, S. Rajan, J.A. Gupta, D.W. McComb, 等，《单层极限下外延硒化锰薄膜中的室温本征铁磁性》，《纳米快报》18, 3125 (2018)。 15. W. Li, Y. Zeng, Z. Zhao, B. Zhang, J. Xu, X. Huang, Y. Hou，《二维磁性异质结构及其界面调控磁性》，《ACS应用材料与界面》13, 50591 (2021)。 16. G. Hu, B. Xiang，《二维自旋电子学的最新进展》，《纳米尺度研究快报》15, 1–17 (2020)。 17. T. Vincent, 等，《超越石墨烯的电调控二维材料机遇：最新进展与未来展望，《应用物理评论》8，041320（2021年）。

18. Y. Liu, B.S. Yang, S.N. Xu, B. Huang, W. Ho, M. Xiao, 《磁性中的新兴现象：Tw。

19. H. Kurebayashi, J.H. Garcia, S. Khan, J. Sinova, S. Roche，《范德华层状系统中的磁性、对称性与自旋输运》，《自然综述：物理》4, 150（2022年）。

20. M. Gibertini, M. Koperski, A.F. Morpurgo, K.S. Novoselov，二维磁性材料与异质结构，《自然·纳米技术》14，408（2019年）。

21. Y. Khan、Sk. Md. Obaidulla、M.R. Habib 等，二维范德华磁性材料的最新突破及新兴应用，《今日纳米》34，100902（2020年）。

22. X. Jiang、Q.X. Liu、J.P. Xing、N. Liu、Y. Guo、Z.F. Liu 和 J. Zhao，二维磁体的最新进展：基本机制、结构设计与改性，《应用物理评论》8，031305（2021年）。

23. S.Q. Zhang、R.Z. Xu、N. Luoc 和 X.L. Zou，二维磁性材料：结构、性质与外部调控，《纳米尺度》13，1398（2021年）。

24. W. Tang、H. Liu、Z. Li、A. Pan、Y.-J. Zeng，范德华层状材料及异质结构中的自旋轨道力矩，Adv. Sci. 8，2100847（2021年）。

25. Y. Liu、Q. Shao，适用于高能效自旋轨道力矩器件的二维材料，ACS《纳米》14，9389–9407（2020年）。

26. J.F. Dayen 等，二维范德华自旋界面和磁性界面，《应用物理评论》7，011303（2020年）。

27. M.H. Phan、V. Kalappattil、V. Ortiz Jimenez、Y.T.H. Pham、N.W.Y.A.Y. Mudiyanselage、D. Detellem、C.M. Hung、A. Chanda 和 T. Eggers，《二维范德华磁性异质结构中的交换偏置与界面相关效应：尚待解答的问题与展望》，《合金与化合物杂志》937，168375（2023年）。

28. C. Lei 等，《反铁磁性铬碘双层的磁电响应》，《纳米快报》21，1948（2021年）。

29. S.W. Jiang、J. Shan、K.F. Mak，二维范德华材料的电场切换磁体，《自然·材料》17，406（2018）。

30. B. Huang 等，双层铬I中的二维磁性的电学控制$_3$, Nature Nanotechnology 13, 544（2018）。31. Y. Xu 等，扭转双层铬I中的共存铁磁–反铁磁态$_3$, Natur

e

Nanotech. 17, 143（2022年）。32. I. A. Verzhbitskiy、H. Kurebayashi、H. Cheng 等人，《通过静电栅控调控 $Cr_2Ge_2Te_6$ 的磁各向异性》，Nat. Electron. 3, 460（2020年）。33. W.H. Zhuo 等人，《调控少层 Cr GeTe 的铁磁性》，Adv. Mater. 3

2 6

$_2$3, 2008586（2021年）。

34. Z. Wang 等，少层范德华材料中磁性的电场控制

铁磁半导体，《自然》Nanotechnology 13, 554 (2018)。

35. V. Ostwal，高效的半导体范德华铁磁体铬$_2$Ge$_2$Te$_6$, 自旋轨道力矩切换，Adv. Mater. 32, 1906021（2020年）。

36. A. Ilyas 等，多铁异质结构中二维 $Cr_2Ge_2Te_6$ 的非易失性电学控制及本征半金属性，《纳米尺度》13, 1069（2021年）。

37. V. Gupta、T.M. Cham、G.M. Stiehl、A. Bose、J.A. Mittelstaedt、K. Kang、S. Jiang、K.F. Mak、J. Shan、R.A. Buhrman 等，《通过自旋轨道力矩操控范德华磁体 $Cr_2Ge_2Te_6$ 》，《纳米快报》20，7482（2020年）。

38. Y.Y. Wu 等，《一种承载两组磁斯格明子的范德华界面》，Advanced Materials 34, 2110583（2022年）。

39. P. Zhang 等，原子级薄层 CrI_3，中磁化强度的全光学切换，《自然材料》21, 1373-1378（2022年）。

40. T.Y. Zhang 等，范德华铁磁性材料中的激光诱导磁化动力学

铬$_2$锗$_2$碲$_6$ 纳米薄片，《应用物理快报》116，223103（2020年）。

41. Seyler, K. L. 等。通过光学调控 WSe_2/CrI_3 异质结构中的磁近邻效应来操纵谷。Nano Letters 18，3823–3828（2018）。

42. R. Zhu、W. Zhang、W. Shen、P.K.J. Wong、Q. Wang、Q. Liang、Z. Tian、Y. Zhai、C. Qiu、A.T.S. Wee，《范德华 $CrCl_3/Fe_3GeTe_2$ 异质结构中的交换偏置》，《纳米快报》20，5030（2020年）。

43. M. D ąbrowski、Shi Guo、Mara Strungaru、Paul S. Keatley、Freddie Withers、Elton J. G. Santos、Robert J. Hicken。《二维范德华磁体中的自旋全光学调控》。《自然·通讯》13（2022年）。

44. Z. Zhang、X.J. Ni、H.Q. Huang、L. Hu 和 F. Liu，《范德华材料中的谷劈裂异质结构 WSe_2/CrI_3：原子叠加的作用，《物理评论B》99，115441（2019年）。

45. M. Ge、Han Wang、Jizheng Wu、Chen Si、Junfeng Zhang 和 Shengbai Zhang，《扭曲范德华 WSe_2 /CrI_3 异质结构中 WSe_2 的谷劈裂增强》，npj 计算材料 8，32（2022年）。

46. T. Zhang、A. Wang、S. Li、F. Wang，《二维铁磁半导体邻近效应作用下单层 $MoSe_2$ 中可通过电场和磁场调控的谷极化》，《先进功能材料》32，2204779（2022年）。

47. B. Marfoua 和 J. Hong，《二维 $WSe_2/CrGeTe_3$ 异质结构中依赖电场的谷极化》，Nanotechnology 31，425702（2020年）。

48. S.A. Vitale 等，《谷电子学：机遇、挑战与未来发展路径》，Small 14，1801483（2018）。

49. K.F. Mak、D. Xiao 和 J. Shan，《二维半导体中的光-谷相互作用》，《自然·光子学》12，451（2018）。

50. B. Li 等，具有厚度可调磁序的空气稳定型 $CrSe_2$ 纳米片的范德华外延生长，《自然·材料》20，818（2021年）。

51. Y.L. Huang, W. Chen, A.T.S. Wee，二维磁性过渡金属硫族化合物 Small Sci. (2021年)。

52. F. Zhang, B. Zheng, A. Sebastian, D.H. Olson, M. Liu, K. Fujisawa, Y.T.H. Pham, V.O. Jimenez, V. Kalappattil, L. Miao 等，单层钒掺杂二硫化钨：一种室温稀磁半导体，Adv. Sci. 7, 2001174（2020年）。

53. Y.T.H. Pham, M. Liu, V.O. Jimenez, Z. Yu, V. Kalappattil, F. Zhang, K. Wang, T. Williams, M. Terrones, M.-H. Phan，室温下钒掺杂二硒化钨单层材料的可调铁磁性和热诱导自旋翻转，Adv. Mater. 32, 2003607（2020年）。

54. S.J. Yun, D.L. Duong, D.M. Ha, K. Singh, T.L. Phan, W. Choi, Y.-M. Kim, Y.H. Lee，通过钒掺杂剂实现半导体 WSe_2 单层在室温下的铁磁序，Adv. Sci. 7, 1903076（2020年）。

55. S. Fu, K. Kang, K. Shayan, A. Yoshimura, S. Dadras, X. Wang, L. Zhang, S. Chen, N. Liu, A. Jindal, 等人，通过原位铁掺杂使单层钼硫化物$_2$ 实现室温铁磁性，Nat. Commun. 11, 1–8（2020年）。

56. V. Ortiz Jimenez, Y.T.H. Pham, M. Liu, F. Zhang, Z. Yu, V. Kalappattil, B. Muchharla, T. Eggers, D.L. Duong, M. Terrones 等，《钒掺杂二硫化钨半导体单层中的光控室温铁磁性》，Adv. Electron. Mater. 7, 2100030（2021年）。

57. D.L. Duong, S.G. Kim, Y.H. Lee，钒掺杂 WSe_2 半导体中长程磁有序的栅极调制，AIP Advances 10，065220（2020年）。

58. M. Huang 等，二维钴掺杂体系中自旋转移力矩的直接证据

钼硫$_2$ 铁磁性材料，ACS Appl. Electron. Mater. 2, 1497（2020年）。

59. L.A.T. Nguyen 等，《自旋选择性空穴》–钒掺杂材料中的激子耦合

WSe_2 室温下的铁磁半导体，ACS Nano 15，20267（2021年）

60. S.J. Yun 等，WSe_2单层中钒附近硒空位诱导铁磁序增强，Advanced Materials 34，2106551（2022年）。

61. J.Y. Seo，晶圆级二硫化钼薄膜中的可控置换钒掺杂，Nano Research 16，3415（2023年）。

62. S. Stolz 等，范德华界面处的层依赖肖特基接触：钒掺杂 WSe_2位于 2

石墨烯上，npj 2D Materials and Applications 6，66（2022年）。

63. J. Deng 等，室温铁磁性的钒掺杂二硒化钼原子层，Chem Phys Chem 23，e202200162（2022年）。

64. J. Zhang 等，具有可调光学性质、用于场效应晶体管的钒掺杂单层 MoS_2，ACS Appl. Nano Mater. 4，769（2021年）。

65. D.Y. Shen 等，VIII 族磁性过渡金属掺杂单层 $MoSe_2$,的合成，ACS Nano 16，10623（2022年）。

66. Q. Li、X. Zhao、L. Deng、Z. Shi、S. Liu、Q. Wei、L. Zhang、Y. Cheng、L. Zhang、H. Lu 等，铁掺杂单层 MoS_2, 中的增强的谷塞曼劈裂，ACS Nano. 14，4636（2020年）。

67. K.R. Sahoo、J.J. Panda、Sumit Bawari、Rahul Sharma、Dipak Maity、Ashique Lal、Raul Arenal,

G. Rajalaksmi, 和 Tharangattu N. Narayanan，《钒掺杂 MoS_2，中增强的室温自旋-谷耦合》，《物理评论材料》6，085202（2022年）。

68. H.B. Shu, P.F. Luo, P. Liang, D. Cao, 和 X.S. Chen，《铁掺杂 MoS_2 纳米片的层依赖性掺杂剂稳定性和磁性交换耦合》，《ACS应用材料与界面》7，7534（2015）。

69. B. Li 等，《二维铁掺杂 SnS_2 磁性半导体》。Nat. Commun. 8, 1–7（2017年）。

70. P.M. Coelho、H.-P. Komsa、K. Lasek、V. Kalappattil、Jeyakumar Karthikeyan、M.H. Phan、A. V Krasheninnikov 和 M. Batzill，通过生长后引入钒杂质实现室温铁磁性 $MoTe_2$，Advanced Electronic Materials 5, 1900044 （ 2019 年）。

71. H.L. Duan 等，突破稳健发光与铁磁性共通的排斥规则，Dalton 卷，卷 10，1584（2019年）。

72. L. Cai、V. Tung、A. Wee，二维过渡金属硫族化合物中的室温铁磁性

：策略与起源，《合金与化合物杂志》913，165289（2022年）。

73. Y. Xiong、D. Xu、Y. Feng、G. Zhang，面向未来电子学的 P 型二维半导体，Adv. Mater.，2206939（2023年）。

74. L. Loh、Z.P. Zhang、M. Bosman 和 G. Eda，二维过渡金属二硫属化物中的替位掺杂，Nano Research 14，1668（2021年）。

75. Z.J. Zhao 等，面向磁性调控的二维材料结构工程，Small Structures 2，2100077（2021年）。

76. Y.C. Lin等人，《过渡金属二硫属化物单层的掺杂与合金化可控薄膜方法》，Advanced Science 8, 2004249（2021年）。

77. J.X. Li 等人，《自然》纳米技术 17，721 单层中谷极化的电控】$_2$【。

78. K. Zollner、Paulo E. Faria Junior 和 Jaroslav Fabian，近邻交换效应

在含有 CrI_3 的 $MoSe_2$ 和 WSe_2 异质结构中，扭转角、层数和栅极依赖性，《物理评论B》100，085128（2019年）。

79. B. Marfoua 和 J. Hong，《二维材料中依赖电场的谷极化》

$WSe_2/CrGeTe_3$ 异质结构，《纳米技术》31, 425702（2020年）。

80. C. Zhao, T. Norden, P. Zhang, P. Zhao, Y. Cheng, F. Sun, J. P. Parry, P. Taheri, J. Wang, Y. Yang, T. Scrace, K. Kang, S. Yang, G.-X. Miao, R. Sabirianov, G. Kioseoglou, W. Huang, A. Petrou, H. Zeng，由于磁交换场作用，WSe单层的谷劈裂增强，《自然·纳米技术》12, 757（2017年）。

81. I. Khan、J. Ahmad、M.E. Mazhar 和 J. Hong，二维铁磁性 $WSe_2/CrSnSe_3$ 异质结构中居里温度和谷极化的应变调控，《Nanotechnology》32，375708（2021年）。

82. C.M. Hung、D.T.X. Dang、A. Chanda、D. Detellem、N. Alzahrani、N. Kapuruge、Yen T. H. Pham、M.Z. Liu、D. Zhou、H.R. Gutierrez、D.A. Arena、M. Terrones、S. Witanachchi、L.M. Woods、H. Srikanth 和 M.H. Phan，通过二维二硫化钨界面增强磁性和反常霍尔输运，《纳米材料》13，771（2023年）。

83. J.W. Chu、Y. Wang、X. Wang、K. Hu、G.F. Rao、C.H. Gong、C.C. Wu、H. Hong、X.F. Wang、K.H. Liu、C.L. Gao 和 J. Xiong，二维极化材料：铁磁性、铁谷材料、铁电材料及相关异质结构，《Adv. Mater.》33，2004469（2021年）。

84. M.H. Phan, M.T. Trinh, T. Eggers, V. Kalappattil, K. Uchida, L.M. Woods, M. Terrones，《二维范德华光自旋热电子学展望》，《应用物理快报》119，250501（2021年）。

85. M.H. Phan, V. Kalappattil, V. Ortiz Jimenez, Y.T.H. Pham, N.W.Y.A.Y. Mudiyanselage, D. Detellem, C.M. Hung, A. Chanda 和 T. Eggers，《二维范德华磁性异质结构中的交换偏置与界面相关效应：未解问题与展望》，《合金与化合物杂志》937, 168375（2023年）。

86. M.H. Phan，《电调控二维范德华磁性材料的新研究趋势》，《材料科学进展》2023年。

87. H.Y. Liu 等，《通过相位工程增强WSe单层中的谷劈裂》2，ACS

《纳米》15，8244（2021年）。

88. W. Hu 等，取代掺杂剂与硫空位对调控 MoS_2 纳米片铁磁性的协同效应，《ACS应用材料与界面》2019年，11卷，34期，31155–31161页。

89. W.S. Yun 和 J. D. Lee，《单层 MoS_2 中应变诱导的磁性：起源与调控》，《物理化学杂志 C》119，2822（2015）。

90. V. Ortiz Jimenez，《二维材料中的光控磁性与磁传感》

钒二硫族化合物及相关半导体，博士学位论文，2022年。

91. V. Kalappattil、R. Geng、R. Das、M. Pham、H. Luong、T. Nguyen、A. Popescu、L.M. Woods、M.

Kläui、H. Srikanth 和 M.H. Phan，通过有机半导体界面产生巨大的自旋塞贝克效应，《材料视野》7，1413（2020年）。

92. Liu, B. 等，光调控原子级薄层 FeGeTe 中的铁磁性，其驱动因素为 2 3 飞秒激光脉冲。《物理评论快报》125，267205（2020年）。

93. J. Xie 等，在室

温下，光对 Pt 衬底上 ZnO 薄膜铁磁性的调控，《Scientific Reports》7，1–9（2017年）。

94. Afanasiev, D. 等，用光调控范德华反铁磁体的各向异性。《科学进展》7，1–8（2021年）。

95. He, J., Li, S., Bandyopadhyay, A. & Frauenheim, T. 揭示二维非磁性-铁磁性范德华异质结构中的光诱导层间自旋转移动力学。Nano Letters 21, 3237（2021年）。

96. Náfrádi, B. 等。利用可见光调控室温下的铁磁性。《美国国家科学院院刊》117, 6417–6423（2020年）。

97. Zhou, G. 等。光控铁磁性：卟啉功能化超薄 FeS 纳米片，Advanced Optical Materials 8，1–6（2020年）。

98. T.G. Park 等，金属 VSe_2/石墨烯范德华异质结构中的层间耦合与超快热电子转移动力学，ACS Nano 15，4，7756–7764（2021年）

99. X. Wang 等人，莫尔超晶格中的光诱导铁磁性，《自然》604，468（2022年）。
100. C.H. Bao，二维材料和拓扑材料中的光诱导新兴现象，Nature Reviews 4，33（2022年）。101. X. Chen 等人，拓扑材料中太赫兹自旋流的产生与调控。

y诱导的二维铁磁性Fe_3GeTe_2/Bi_2Te_3 异质结构，Advanced Materials 34，2106172（2022年）。

102. A. Kimel 等，《2022年磁光学路线图》，J. Phys. D: Appl. Phys. 55，463003（2022年）。

103. T.S. Lan 等，二维材料的磁光效应及相关应用，Nano Select 1, 298（2020年）。

104. O. Thiabgoh、T.E ggers 和 M.H. Phan，一种新型非接触式磁光 LC 共振

技术，用于实时呼吸运动监测。Sensors and Actuators, A: Physical 265, 120（2017年）。

105. V.O. Jimenez、V. Kalappattil、T. Eggers、M. Bonilla、S. Kolekar、P. T. Huy、M. Batzill、M.H. Phan，一种采用二维范德华铁磁材料的磁传感器，Scientific Reports 10, 4789（2020年）。

106. M.H. Phan、H.X. Peng，《巨磁阻抗材料：基础与应用》，Prog. Mater. Sci. 53, 323-420（2008年）。

107. V. O. Jimenez, K. Y. Hwang, D. Nguyen, Y. Rahman, C. Albrecht, B. Senator, O. Thiabgoh, J. Devkota, V. D. A. Bui, D. S. Lam, T. Eggers, M.H. Phan，《磁阻抗生物传感器与实时健康监测设备：进展、机遇与挑战》，《Biosensors》12，517（2022年）。

108. F.X. Qin, H. X. Peng, M.H. Phan, L. V. Panina, M. Ipatov, V. Zhukova, A. Zhukov, J. Gonzalez, 《用于结构健康监测的新型磁性微丝嵌入式复合材料》, 《应用物理学杂志》107，09A314（2010年）。

109. D. Thi-Xuan Dang, R.K. Barik, M.H. Phan, L.M. Woods, 《过渡金属二硫属化物单层异质结构中的磁性增强》, 《物理化学快报》13，8879（2022年）。

110. H. Munekata 等, 《III-V族稀磁半导体异质结构中的光诱导铁磁性》。《应用物理学杂志》81，4862（1997年）。

111. B. Marfouaa 和 J. Hong, 《二维 $MoTe_2/VSe_2$ 异质结构中反常能斯特电导率的电场诱导开关》, 《物理化学化学物理》24, 22523（2022年）。

112. Q. Li、C.X. Zhang、D. Wang、K.Q. Chen 和 L.M. Tang, 《具有室温铁磁性的 $MoTe_2/MnSe_2$ 范德华异质结构中的巨大谷劈裂》, 《材料进展》3，2927（2022年）。

113. J. Du 等，基于二维过渡金属二硫属化物的铁磁性范德华异质结构, 《纳米尺度》9, 17585（2017年）。

114. C. Freysoldt、B. Grabowski、T. Hickel、J. Neugebauer、G. Kresse、A. Janotti 和 C. G. Van de Walle，固体中点缺陷的第一性原理计算, 《现代物理评论》86，253（2014年）。

115. J. Heyd、G. E. Scuseria 和 M. Ernzerhof，基于屏蔽库仑势的杂化泛函, 《化学物理学杂志》118，8207–8215（2003年）。

116. G. Kresse 和 J. Furthmüller, 《使用平面波基组进行从头算总能量计算的高效迭代方案》, 《物理评论B》54，11169–11186（1996年）。

117. S. Grimme、S. Ehrlich 和 L. Goerigk，阻尼函数在色散中的作用

校正密度泛函理论，《计算化学杂志》32，1456（2011年）。

118. C. Freysoldt 和 J. Neugebauer，《电场存在下表面、界面和二维材料中带电缺陷的第一性原理计算》，《物理评论B》97，205425（2018）。

119. N.L. Nair、Maniv、E.、John、C. 等。磁性插层

过渡金属二硫属化物中的电切换。《自然·材料》19，153（2020年）。

120. T.S. Ghiasi 等，《二维范德华异质结构中高至室温的拉什巴–埃德尔斯坦效应引发的电荷-自旋转换》，《纳米快报》19，5959（2019年）。

121. K. Uchida、S. Takahashi、K. Harii、J. Ieda、W. Koshibae、K. Ando、S. Maekawa、E. Saitoh，《自旋塞贝克效应的观测》，《自然》455，778（2008年）。

122. K. Uchida，《自旋热电子学中的输运现象》，《日本学士院纪要B辑》97，69（2021年）。

123. S. Lee、W. Lee、T. Kikkawa、C.T. Le、M. Kang、G. Kim、A.D. Nguyen、Y.S. Kim、N. Park、E. Saitoh，《界面处强自旋流注入增强单层二硒化钨中的自旋塞贝克效应》，《先进功能材料》30，2003192（2020年）。

124. J.R. Schaibley 等，《二维材料中的谷电子学》，《自然综述：材料》1，16055（2016）。

125. H. Yu、W. Yao，《谷电子学：无需极化的磁化强度》。《自然·材料》16，876（2017年）。

126. G. Aivazian、Z. Gong、A.M. Jones、R.-L. Chu、J. Yan、D.G. Mandrus、C. Zhang、D. Cobden，W. Yao, X. Xu，《单层 WSe_2 中谷赝自旋的磁控制》, 自然物理 11, 148（2015）。

127. T. Norden, C. Zhao, P. Zhang, R. Sabirianov, A. Petrou, H. Zeng, 《磁近邻效应导致单层 WS 中的巨大谷劈裂》, Nat. Commun. 10, 1–10（2019年）。

128. J.J. He 等人, 《过渡金属二硫属化物单层中的超快光诱导铁磁态》, 《物理化学快报》13, 2765（2022年）。

129. A.V. Kimel 和 M. Li, 《用超短光脉冲写入磁存储器》, Nature Reviews 4, 189（2019年）。

130. Y. Li、M. Koshino, 《过渡金属二硫属化物上的石墨烯中近邻自旋轨道耦合的扭转角依赖性》

《物理评论B》99, 075438（2019年）。

131. A. David, 《扭转石墨烯中的诱导自旋轨道耦合》 –过渡金属二硫属化物

异质双层：扭转电子学与自旋电子学相遇。《物理评论B》100, 085412（2019年）。

132. S.J. Lee, D. J. P. de Sousa, Y.K. Kwon, F. de Juan, Z.D. Chi, F. Casanova 和 T. Low, 《扭转石墨烯/WSe_2 异质结构中的电荷-自旋转换》, 《物理评论B》106, 165420（2022年）。

133. N. Ontoso、C. K. Safeer、Franz Herling、Josep Ingla-Aynés、Haozhe Yang、Zhendong Chi,

Beatriz Martin-Garcia, Iñigo Robredo, Maia G. Vergniory, Fernando de Juan, M. Reyes Calvo, Luis E. Hueso 和 Fèlix Casanova, 《石墨烯/$MoTe_2$ 范德华异质结构中的非常规电荷-自旋转换》, 《物理评论应用》19, 014053（2023年）。

134. J.X. Lin 等人, 魔角扭转双层石墨烯在莫尔半填充状态下由自旋轨道耦合驱动的铁磁性, 《科学》375, 437（2022年）。

135. H. Yang 等, 二维扭转莫尔材料的进展：制备、性质与应用, 《纳米研究》16, 2579（2023年）。

136. X. Sui 等, 单层中可由电压控制的巨大磁晶各向异性

过渡金属二硫属化物。《物理评论B》96, 041410（2017年）。

137. X.G. Liu 等，《多铁性双层 VS 中的磁电耦合》，《物理评论快报》125，247601。（2020年）。

138. H.C. Bouzid 等，钴掺杂剂增强 SnS_2 半导体中的磁矩，《应用物理快报：材料》9，051106（2021年）。

139. B. Li 等，二维铁掺杂 SnS_2 磁性半导体，《自然·通讯》8，1958（2017年）。

140. H.C. Bouzid 等，范德华锰掺杂 SnS 中的多重磁相$_2$半导体，《先进功能材料》31，2102560（2021年）。