

УДК 534-16
EDN: OFPCRC

PACS: 62.25.-g

Исследование акустических свойств Ван-дер Ваальсовых гетероструктур, содержащих монослой WSe_2 , методом гиперзвуковой микроскопии

© Н. Ю. Фролов*, А. Ю. Клоков, А. И. Шарков, С. Н. Николаев, М. А. Чернопицкий, С. И. Ченцов, М. В. Пугачев, А. В. Шуплецов, В. С. Кривобок, А. Ю. Кунцевич

*Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, Москва, 119991 Россия***E-mail: froli199999@gmail.com**Статья поступила в редакцию 18.10.2024; после доработки 9.12.2024; принята к публикации 14.04.2025**Шифр научной специальности: 1.3.7*

Для исследования упругих свойств слоистой гетероструктуры $Al/hBN/WSe_2$ (монослой)/ hBN/Al_2O_3 использовалась пикосекундная ультразвуковая методика. В процессе эксперимента измерялись временные зависимости изменения фазы коэффициента отражения образца, вызванные распространением упругого импульса, который возбуждался фемтосекундным лазером. Построение карты пространственного распределения модуля спектральных компонент Фурье-спектра отклика для различных частот позволило локализовать область гетероструктуры, содержащей в себе монослой WSe_2 . Используя математическую модель отклика многослойной структуры, были оценены упругие параметры гетероструктуры $Al/hBN/WSe_2$ (монослой)/ hBN/Al_2O_3 , в частности жесткости интерфейсов слоев.

Ключевые слова: пикоакустика; лазерный гиперзвук; механические свойства; Ван-дер Ваальсовы гетероструктуры; монослой.

DOI: 10.51368/1996-0948-2025-90-96

Введение

В последние годы применение Ван-дер Ваальсовых (ВдВ) материалов в микро- и нанoeлектронике становится все более перспективным. Эта тенденция, в первую очередь, обусловлена широким спектром уникальных свойств таких материалов [1]. При этом формирование на их основе гетероструктур открывает возможность значительной настройки характеристик конечных оптических и электронных приборов, а также их компактизацию и большую эффективность [2, 3].

Например, широкую популярность приобрели диалкогогениды переходных металлов (ДПМ), которые являются перспективной платформой для атомарно тонкой гибкой

оптоэлектроники [4, 5]. Также монокалькогенидные соединения благодаря своей узкой запрещенной зоне представляют большой интерес для применения в фотодетекторах видимого и ближнего ИК-диапазонов [6]. Графен же демонстрирует свой потенциал в качестве элемента атомарно тонких тактильных датчиков [7], акустических покрытий [8] и элементов микро- [9] и нанoeлектромеханических [10] систем.

Важно отметить, что сборка Ван-дер Ваальсовых гетероструктур требует высокой точности [11], поскольку работоспособность таких гетероструктур сильно зависит как от латеральной однородности самих слоев, так и качества их интерфейсов, влияющих на механические и акустические свойства структуры. Они, в свою очередь, могут существенно вли-

ять на транспорт носителей заряда и фононов, что делает подобные исследование первостепенной задачей.

На сегодняшний день для исследования механических и акустических свойств Ван-дер Ваальсовых гетероструктур наиболее эффективным является метод пикосекундной акустики, использующий в качестве инструмента диагностики материалов оптически возбуждаемый короткий упругий импульс. Этот упругий импульс распространяется вглубь образца, частично отражаясь на интерфейсах. При этом коэффициент отражения упругого импульса от интерфейса слоев также зависит от качества контакта между ВдВ слоями [12, 13].

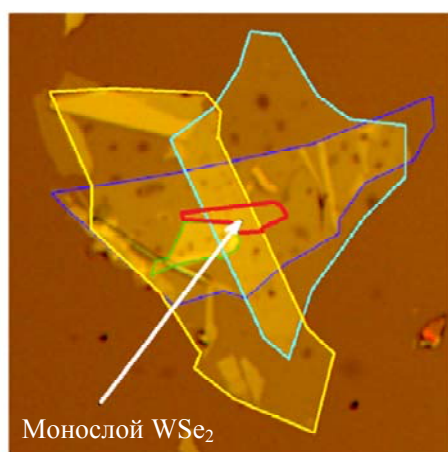
В данной работе мы сосредоточились на исследовании акустических свойств гетероструктуры $Al/hBN/WSe_2(\text{монослой})/hBN/Al_2O_3$ и ее интерфейсов, а также влияния самого монослоя WSe_2 на спектральные характеристики упругого импульса в гетероструктуре.

Описание эксперимента

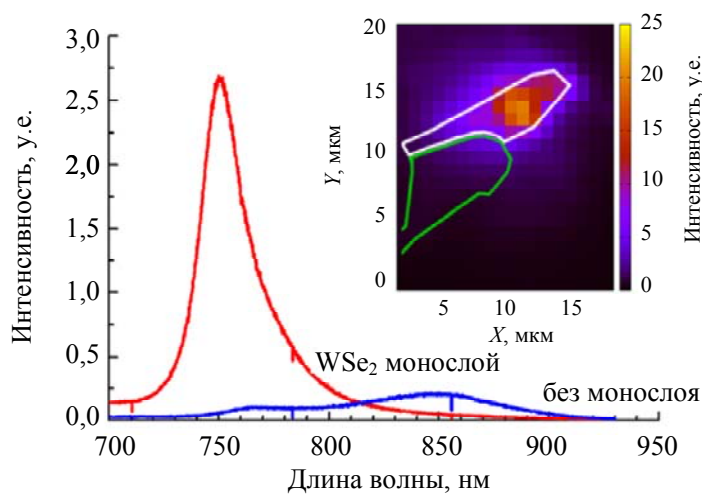
В представленной работе приведены результаты исследования гетероструктуры, содержащей в себе монослой WSe_2 , инкапсулированный между тонкими слоями (~ 12 нм) hBN (рис. 1а). Изготовление слоев hBN осуществлялось путем отшелушивания скотчем на окисленном Si. Получение же монослоя

WSe_2 производилось методом слоения при помощи золота, описанным в работе [14]. Далее, при помощи сухого горячего переноса [15] в условиях окружающей среды производилась сборка гетероструктуры на подложке Al_2O_3 с ориентацией (001). Тонкая пленка Al (толщиной ~ 30 нм), напыленная методом электронно-лучевого испарения, служила генератором упругих импульсов в структуре при поглощении лазерного излучения. Характеризация слоев осуществлялась методом атомно-силовой микроскопии в процессе сборки гетероструктуры. Идентификация монослоя WSe_2 была произведена при помощи спектроскопии комбинационного рассеяния и фотолюминесцентных измерений (рис. 1б) [16].

Для оптической генерации и регистрации импульсов когерентных фононов в гетероструктуре использована установка, реализующая двухцветный метод накачка-зондирование (рис. 2), которая позволяла осуществлять измерения изменения комплексного коэффициента отражения с временным и пространственным разрешением. Источником лазерного излучения выступал фемтосекундный Ti:Sa лазер, генерировавший импульсы линейно-поляризованного излучения на длине волны $\lambda = 800$ нм с длительностью $\tau_{им} = 160$ фс и частотой повторения $f = 76$ МГц. Лазерный импульс второй гармоники источника при поглощении алюминием генерировал пико-



а)



б)

Рис. 1. а) – фотография структуры: красным цветом отмечена область, где находился монослой WSe_2 , синий, желтый и голубой – слои hBN , зеленый – слой WSe_2 , зеленый – многослойный WSe_2 ; б) – спектры фотолюминесценции моно- и многослойных WSe_2 при 300 К; на вставке показана пространственная карта фотолюминесценции в диапазоне длин волн 738–760 нм после возбуждения на длине волны 472 нм

секундный упругий импульс, распространяющийся перпендикулярно поверхности вглубь образца и частично отражавшийся от интерфейсов гетероструктуры. В свою очередь, распространение упругого импульса приводило к изменениям коэффициента отражения образца, регистрируемым вторым световым импульсом на длине волны источника, сфокусированным в ту же точку, что и возбуждающий импульс.

В эксперименте измерялась временная динамика фазы коэффициента отражения в различных областях структуры, что было сделано при помощи линии задержки, позволявшей изменять временную задержку зондирующего импульса относительно импульса возбуждения. Использование интерферометра Саньяка позволило существенно увеличить чувствительность схемы к малым изменениям фазы [17].

Получаемые в результате отклики представляли собой совокупность быстроосциллирующей части, связанной с распространением упругого импульса в структуре, и медленного теплового вклада. После вычитания медленной компоненты производился Фурье-спектральный анализ полученных временных откликов.

Для моделирования упругого отклика структур использовалась многослойная одномерная модель, аналогичная [18]. Связь между двумя контактирующими слоями считается идеальной (акустическое рассогласование), если смещение двух соседних точек, принадлежащих разным материалам, одинаково. Однако в реальности, особенно для слоистых материалов, случай акустического рассогласования часто не реализуется, и такой контакт считается неидеальным.

Чтобы учесть влияние неидеальности интерфейса на упругий отклик системы, в расчетах использовалась «пружинная» модель контакта. В рамках данной модели контактирующие слои связаны между собой невесомыми пружинами, равномерно распределенными по всей площади контакта. При этом Эквивалентная жесткость этих пружин η , которая количественно характеризует упругую связь слоев, являлась одними из ключевых параметров интерфейса при расчетах. Полученные значения суммарной жесткости пружин и характерные частоты рассматриваемых

интерфейсов ($f_0 = \eta(Z_1 + Z_2) / 2\pi Z_1 Z_2$, где Z_1 и Z_2 – акустические импедансы контактирующих слоев) приведены в таблице 1. Частота f_0 характеризует частотную зависимость коэффициента отражения упругой волны на неидеальном интерфейсе [13]:

$$R_{\text{эфф}} = \frac{R - if / f_0}{1 - if / f_0},$$

где $R = (Z_1 - Z_2) / (Z_1 + Z_2)$ – коэффициент отражения упругой волны на идеальном интерфейсе. Для частот много меньших f_0 , $R_{\text{эфф}} \approx R$, поэтому интерфейс можно считать идеальным. Для частот же больших, чем f_0 , величина коэффициента отражения упругой волны больше, чем для случая идеального интерфейса, а сам интерфейс описывается как неидеальный.

В расчетах использовался тот факт, что в течение первых нескольких десятков пикосекунд упругий импульс не успевает распространиться по всей гетероструктуре, поэтому влияние слоев и интерфейсов проявляется с течением времени, при этом разные слои и интерфейсы влияют на разные части отклика. Это позволяет при увеличении временного интервала, на котором анализируется отклик, последовательно расширять модель, добавляя в нее новые слои. При этом параметры слоев, полученные на предыдущих этапах расчетов, считаются известными. Такая методика подгонки позволяет существенно сократить время моделирования и повысить достоверность определения параметров.

Результаты

Измерения упругого отклика происходили в областях образца с различным составом. Так, вдали от гетероструктуры отклик определяется исключительно пленкой алюминия и ее интерфейсом с подложкой Al_2O_3 . Как видно из рис. 2а, сразу после прихода лазерного импульса наблюдался короткий положительный выброс длительностью 1–2 пс, связанный с сильным разогревом электронов излучением накачки, после которого плавно развивались затухающие колебания. В Фурье-спектре полученного отклика четко видны два широких пика на частотах 35 и 120,5 ГГц.

Присутствие этих двух линий связано с колебаниями алюминиевой пленки как единого целого (низкочастотный пик), а также с наличием многократно отражающегося от границ пленки упругого импульса (высокочастотный пик).

Пурпурным цветом на рис. 2а показан смоделированный отклик. Расчеты позволили оценить фототермические и фотоупругие параметры алюминиевой пленки, а также экви-

валентную жесткость интерфейса между пленкой и подложкой (таблица). Полученная оценка толщины алюминия (30 нм) отлично согласуется со значением, измеренным кварцевым толщиномером в процессе напыления. Большая ширина спектра (рис. 2в) получалась по двум причинам: из-за утечки энергии звуковой волны в подложку сапфира, а также вязкоупругого затухания в поликристаллической пленке Al (длина затухания $1,25 \times 10^{17}/\omega^2$, м).

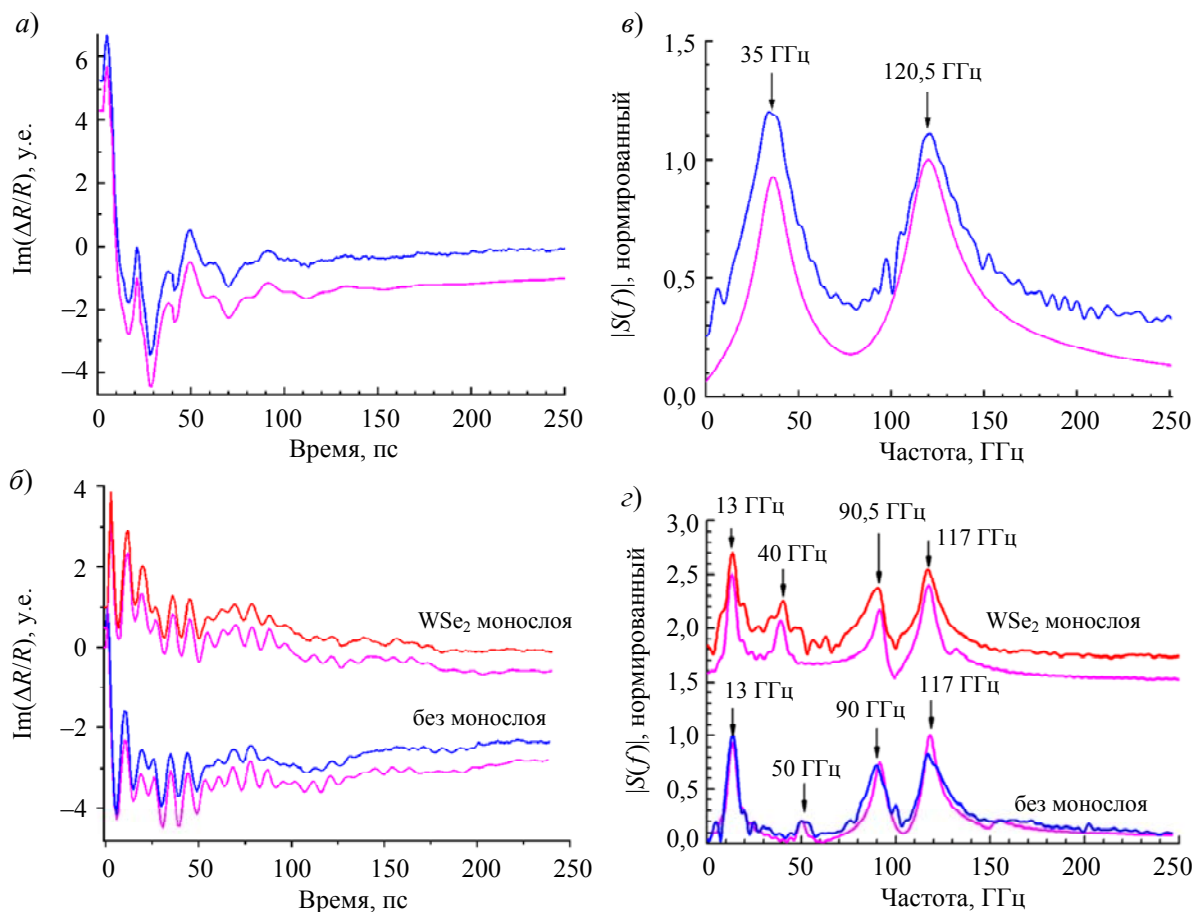


Рис. 2. Экспериментальные зависимости фотоотклика (а и б) и их Фурье-спектры (в и з) в структурах: Al/Al₂O₃ – (а и в); Al/hBN/WSe₂(монослой)/hBN/Al₂O₃ (б и з, красные кривые) и Al/hBN/hBN/Al₂O₃ (б и з, синие кривые). Пурпурными кривыми на всех рисунках показаны рассчитанные зависимости

Таблица

Рассчитанные акустические параметры изучаемых интерфейсов.
AP означает акустическое рассогласование (идеальный контакт)

Интерфейс	Конфигурация структуры	$\eta, 10^{18} \text{ Н/м}^3$	$f_0, \text{ ГГц}$
Al/Al ₂ O ₃	Al/Al ₂ O ₃	$8,7 \pm 2,6$	114
Al/hBN	Al/hBN/hBN/Al ₂ O ₃	$8,4 \pm 0,6$	258
	Al/hBN/WSe ₂ (монослой)/hBN/Al ₂ O ₃	$2,0 \pm 0,7$	61,5
hBN/Al ₂ O ₃	Al/hBN/WSe ₂ (монослой)/hBN/Al ₂ O ₃	AP	
hBN/WSe ₂	Al/hBN/WSe ₂ (монослой)/hBN/Al ₂ O ₃	AP	

Отклики от областей гетероструктуры без монослоя WSe_2 ($\text{Al}/\text{hBN}/\text{hBN}/\text{Al}_2\text{O}_3$, синяя кривая рис. 2б) и с монослоем WSe_2 ($\text{Al}/\text{hBN}/\text{WSe}_2$ (монослой)/ $\text{hBN}/\text{Al}_2\text{O}_3$, красная кривая рис. 2б) имеют более сложную структуру, что связано с распространением упругого импульса в слоях hBN и монослоем WSe_2 , а затухание самого упругого отклика происходит медленнее. Их спектры оказываются более сложными, поскольку отражения как от интерфейсов Al/hBN , hBN/WSe_2 , так и $\text{hBN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ создают дополнительные собственные частоты. Спектральные линии становятся уже как из-за увеличения акустической длины системы, так и из-за большего коэффициента отражения на интерфейсе $\text{hBN}/\text{Al}_2\text{O}_3$. Кроме того, в этих спектрах мы наблюдали характерную и воспроизводимую особенность, связанную с наличием монослоя WSe_2 , которая заключалась в сдвиге линии коллективной моды hBN с 50 ГГц до 40 ГГц (рис. 2з).

Моделирование экспериментальных откликов показало, что такая особенность спектров может быть описана введением в расчетную модель δ -распределенной массы $m = 1,4 \times 10^{-5}$ кг/м², соответствующей примерно двум массам монослоя WSe_2 , что хорошо согласуется с измерениями фотолюминисценции и результатами спектроскопии комбинационного рассеяния.

Чувствительность частоты коллективной моды к монослою WSe_2 обусловлена достаточно высоким значением комплексного коэффициента отражения R^* δ -распределенной массы:

$$R^* = \frac{if / f_0^*}{1 - if / f_0^*},$$

где $f_0^* = \frac{z}{\pi t}$, Z – волновое сопротивление окружения монослоя WSe_2 . В этом случае $f_0^* \sim 160$ ГГц, и при $f = 40$ ГГц $|R^*| = 0,25$.

При оценке параметра жесткости связей на интерфейсах hBN с монослоем WSe_2 получено, что данные интерфейсы можно с достаточной точностью описать в рамках идеального контакта слоев. В случае интерфейса двух слоев hBN оказалось, что коэффициент отражения от границы между ними равен нулю, то есть акустический контакт является идеальным, и два слоя hBN эквивалентны одному слою суммарной толщины.

Полученная особенность спектра не только характеризует монослой WSe_2 , но и показывает спектральную чувствительность пикоакустической методики к составу гетероструктуры, в том числе к отдельным монослоям. Для наглядной демонстрации данной возможности были измерены отклики области образца, отмеченной белой рамкой на рис. 3а. Затем вычислялись их Фурье-спектры и была построена картина пространственного распределения модуля спектральной компоненты отклика на частоте 40 ГГц, которая соответствует коллективной моде гетероструктуры с монослоем WSe_2 (рис. 3б). На данном изображении можно отчетливо различить область структуры, где находился монослой. Это позволило спектрально локализовать монослой WSe_2 . Таким образом, данный метод исследований, дополненный профилированием упругих свойств по глубине, может служить инструментом гиперзвуковой томографии таких гетероструктур.

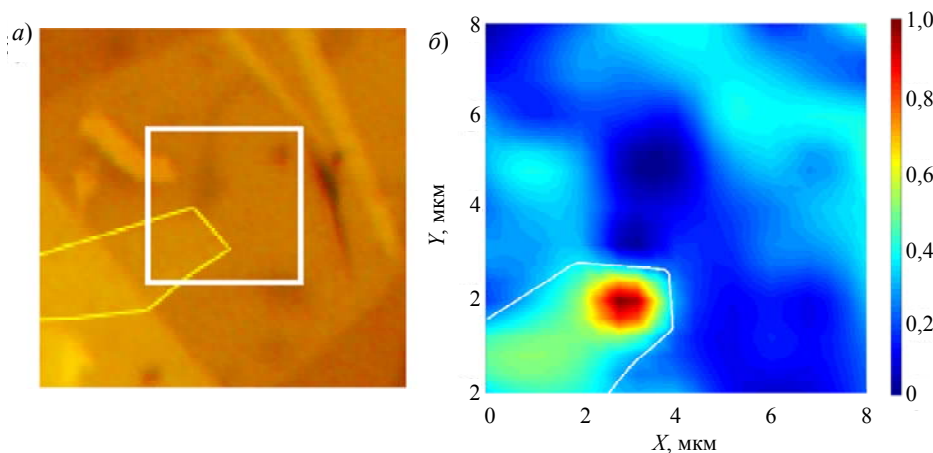


Рис. 3. а) – фотография структуры в оптический микроскоп, белой рамкой выделена область сканирования; б) – карта распределения спектральной компоненты на частоте 40 ГГц в выделенной области

Заключение

В данной работе были проведены исследования упругих свойств слоистой гетероструктуры Al/hBN/WSe₂ (монослой)/hBN/Al₂O₃ при помощи оптической методики накачка-зондирование. Чувствительности методики оказалось достаточно, чтобы спектрально идентифицировать монослой. Это позволило акустически локализовать монослой WSe₂. Моделирование отклика структуры дало возможность оценить упругие параметры монослоя WSe₂ и слоев hBN, в частности, определить жесткости Ван-дер Ваальсовых связей на интерфейсах структуры. Полученные результаты показывают большой потенциал пикоакустической методики для характеристики Ван-дер Ваальсовых материалов и гетероструктур на их основе.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФ (грант № 23-22-00444).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Violla F., Del Fatti N. / *Nanomaterials*. 2020. Vol. 10. № 12. P. 2543.

2. Britnell L. et al. / *Science*. 2012. Vol. 335. № 6071. P. 947–950.
3. Sup Choi M. et al. / *Nature communications*. 2013. Vol. 4. № 1. P. 1624.
4. Lopez-Sanchez O. et al. / *Nature nanotechnology*. 2013. Vol. 8. № 7. P. 497–501.
5. Lee H. S. et al. / *Nano letters*. 2012. Vol. 12. № 7. P. 3695–3700.
6. Gomes L. C., Carvalho A. / *Physical Review B*. 2015. Vol. 92. № 8. P. 085406.
7. Chen Y. et al. / *Advanced Functional Materials*. 2019. Vol. 29. № 41. P. 1900959.
8. Kim J. M. et al. / *Macromolecular Research*. 2017. Vol. 25. P. 190–196.
9. Khan Z. H. et al. / *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2017. Vol. 50. № 5. P. 053003.
10. Fan X. et al. / *Microsystems & Nanoengineering*. 2020. Vol. 6. № 1. P. 17.
11. Geim A. K., Grigorieva I. V. / *Nature*. 2013. Vol. 499. № 7459. P. 419–425.
12. Greener J. D. G. et al. / *ACS nano*. 2019. Vol. 13. № 10. P. 11530–11537.
13. Greener J. D. G. et al. / *Physical Review B*. 2018. Vol. 98. № 7. P. 075408.
14. Huang Y. et al. / *Nature communications*. 2020. Vol. 11. № 1. P. 2453.
15. Pizzocchero F. et al. / *Nature communications*. 2016. Vol. 7. № 1. P. 11894.
16. Klokov A. Y. et al. / *Nano Letters*. 2022. Vol. 22. № 5. P. 2070–2076.
17. Tachizaki T. et al. / *Review of Scientific Instruments*. 2006. Vol. 77. № 4. P. 043713.
18. Klokov A. Y. et al. / *Journal of Applied Physics*. 2020. Vol. 127. № 15.

PACS: 62.25.–g

Study of acoustic properties of van der Waals heterostructure based on WSe₂ monolayer using by hypersonic microscopy method

N. Yu. Frolov, A. Yu. Klokov, A. I. Sharkov, S. N. Nikolaev, M. A. Chernopitsky, S. I. Chentsov, M. V. Pugachev, A. V. Shupletsov, V. S. Krivobok and A. Yu. Kuntsevich

P. N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 Russia

Received 18.10.2024; revised 9.12.2024; accepted 14.04.2025

The picosecond ultrasonic technique was used to investigate the elastic properties of the layered heterostructure Al/hBN/WSe₂ (monolayer)/hBN/Al₂O₃. During the experiment, time-dependent changes in the phase of the reflection coefficient of the sample were measured, caused by the propagation of an elastic pulse excited by a femtosecond laser. By using Fourier spectral analysis of the obtained responses, it was possible to identify the monolayer WSe₂. The construction of a map of the spectral distribution module allowed for the localization of the region of the heterostructure that contained the monolayer WSe₂. Using a mathematical model of the response of the multilayer structure, the elastic parameters of the

Al/hBN/WSe₂(monolayer)/hBN/Al₂O₃ heterostructure were estimated, particularly the stiffness of the layer interfaces.

Keywords: picoacoustic; laser hypersound; mechanical properties; van der Waals heterostructures; monolayer.

REFERENCES

1. Vialla F. and Del Fatti N., *Nanomaterials* **10** (12), 2543 (2020).
2. Britnell L. et al., *Science* **335** (6071), 947–950 (2012).
3. Sup Choi M. et al., *Nature communications* **4** (1), 1624 (2013).
4. Lopez-Sanchez O. et al., *Nature nanotechnology* **8** (7), 497–501 (2013).
5. Lee H. S. et al., *Nano letters* **12** (7), 3695–3700 (2012).
6. Gomes L. C. and Carvalho A., *Physical Review B* **92** (8), 085406 (2015).
7. Chen Y. et al., *Advanced Functional Materials* **29** (41), 1900959 (2019).
8. Kim J. M. et al., *Macromolecular Research* **25**, 190–196 (2017).
9. Khan Z. H. et al., *Journal of Physics D: Applied Physics* **50** (5), 053003 (2017).
10. Fan X. et al., *Microsystems & Nanoengineering* **6** (1), 17 (2020).
11. Geim A. K. and Grigorieva I. V., *Nature* **499** (7459), 419–425 (2013).
12. Greener J. D. G. et al., *ACS nano* **13** (10), 11530–11537 (2019).
13. Greener J. D. G. et al., *Physical Review B* **98** (7), 075408 (2018).
14. Huang Y. et al., *Nature communications* **11** (1), 2453 (2020).
15. Pizzocchero F. et al., *Nature communications* **7** (1), 11894 (2016).
16. Klovov A. Y. et al., *Nano Letters* **22** (5), 2070–2076 (2022).
17. Tachizaki T. et al., *Review of Scientific Instruments* **77** (4), 043713 (2006).
18. Klovov A. Y. et al., *Journal of Applied Physics* **127** (15), (2020).

Об авторах

Фролов Николай Юрьевич, младший научный сотрудник, аспирант, Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: froli199999@gmail.com. SPIN-код РИНЦ 1514-3041, Author ID 1288584

Кловов Андрей Юрьевич, ведущий научный сотрудник, к.ф.-м.н., Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: klovov@lebedev.ru. Author ID 121230

Шарков Андрей Иванович, старший научный сотрудник, к.ф.-м.н., Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: shark@sci.lebedev.ru. Author ID 33305

Николаев Сергей Николаевич, старший научный сотрудник, к.ф.-м.н., Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: nikolaev-s@yandex.ru. SPIN-код РИНЦ 6963-3322, Author ID 880828

Чернопицкий Максим Александрович, младший научный сотрудник, к.ф.-м.н., Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: 66chemax@gmail.com. SPIN-код РИНЦ 6529-1510, Author ID 1219510

Ченцов Семён Игоревич, научный сотрудник, к.ф.-м.н., Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: semtch@gmail.com. SPIN-код РИНЦ 2361-8799, Author ID 1288583

Пугачев Михаил Владимирович, младший научный сотрудник, Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: m.pugachev@lebedev.ru.

Шуплецов Алексей Владимирович, младший научный сотрудник, Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: shuplevcovav@lebedev.ru. SPIN-код РИНЦ 6413-3082, Author ID 1061429

Кривобок Владимир Святославович, ведущий научный сотрудник, д.ф.-м.н., Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: krivobokvs@lebedev.ru. Author ID 135304

Кунцевич Александр Юрьевич, ведущий научный сотрудник, д.ф.-м.н. Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН (119991, Россия, Москва, Ленинский пр., д. 53). E-mail: alexkun@lebedev.ru. SPIN-код РИНЦ 2192-4863, Author ID 160851