## Физические основы применения сканирующего зонда со спиновыми центрами в SiC для субмикронного квантового зондирования магнитных полей и температур

А. Н. Анисимов<sup>+1)</sup>, В. А. Солтамов<sup>+</sup>, И. Д. Бреев<sup>+</sup>, М. М. Халисов<sup>+\*×</sup>, Р. А. Бабунц<sup>+</sup>, А. В. Анкудинов<sup>+</sup>, П. Г. Баранов<sup>+1)</sup>

+ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, 194021 С.Петербург, Россия

\* Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики, 197101 С.-Петербург, Россия

 $^{\times}$ Институт физиологии им. И.П. Павлова РАН, 1990<br/>34 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 31 августа 2018 г. После переработки 26 сентября 2018 г.

Продемонстрированы оптические и радиочастотные физические эффекты, позволяющие осуществлять спиновые манипуляции при комнатных температурах с использованием магнитного резонанса, эффектов антипересечения уровней в основном и возбужденном квадруплетных спиновых состояниях, кросс-релаксационных резонансов в ансамблях спиновых центров окраски в микро- и нанокристаллах карбида кремния. Рассмотрено сканирующее устройство, в котором ансамбли спиновых центров, помещенные на кончик зонда кантилевера атомного силового микроскопа, служат в качестве чувствительных датчиков магнитных и температурных полей с субмикронным пространственным разрешением.

DOI: 10.1134/S0370274X18210087

Возможности высокотемпературных оптических спиновых манипуляций, как на спиновых ансамблях, так и на одиночных спинах, продемонстрированные на спиновых центрах окраски в алмазе [1–3] и карбиде кремния (SiC) [3–9], открыли новую эру в применении спиновых явлений, как в фундаментальной науке, так и в прикладных исследованиях [10–15]. Снято температурное ограничение в проведении квантовых операций в живых системах, включая сети нейронов, поскольку все эти явления проходят при комнатной температуре и выше.

Спиновые манипуляции осуществлялись с использованием методов оптического детектирования магнитного резонанса (ОДМР) [10–12, 16], антипересечения уровней [11–13], и с помощью развитых в настоящей работе новых методов: (i) совмещение сигнала ОДМР с сигналом антипересечения уровней, что усиливает сигнал ОДМР, а также приводит к переходу от выстраивания населенностей спиновых уровней к их поляризации и к возможному эффекту поляризации ядер; (ii) ОДМР с "выжиганием провалов" и (iii) эффектов кросс-релаксации в системе спиновых центров. Упомянутые новые методы позволили значительно уменьшить ширины линий оптического отклика при синхронном детектировании и тем самым существенно повысить чувствительность измерений. Эти эффекты также перспективны при разработке аппаратного обеспечения (кубитов, кудитов) для квантовых вычислений в условиях окружающей среды.

В основе возможности спиновых манипуляций лежит природный механизм выстраивания населенностей уровней спиновых центров окраски в SiC, представляющих собой комбинацию вакансий, под действием оптического возбуждения. Изменения этих населенностей в результате воздействия резонансного радиочастотного (РЧ) излучения в ОДМР, либо в силу физических явлений, таких как антипересечение уровней или кросс-релаксация, оказывают сильное воздействие на интенсивность фотолюминесценции (ФЛ). Изменения в локальном поле в области нахождения спиновых центров регистрируются оптическим методом по изменению фотолюминесценции  $\Delta \Phi \Pi$  в ближнем инфракрасном (ИК) диапазоне, отличительной особенностью которого является совпадение этого диапазона с полосой прозрачности волоконной оптики и живой материи.

В настоящей работе наряду с введением новых методов для спиновых манипуляций, рассмотрен подход к обнаружению слабых магнитных по-

 $<sup>^{1)}</sup>$ e-mail: aan<br/>0100@gmail.com; pavel.baranov@mail.ioffe.ru

лей и температур путем использования уникальных свойств ансамбля спиновых центров окраски в SiC при помещении микро- или нанокристалла SiC на зонд сканирующего атомно-силового микроскопа (ACM). Ранее этот принцип использовался для азотно-вакансионных центров окраски (NV центров) в алмазе [17].

На рисунке 1 показаны сигналы ОДМР и антипересечения уровней в кристалле 4H-SiC, зарегистрированные при 300 К по изменению ФЛ спиновых центров в ближнем ИК диапазоне. Наблюдаемые сигналы описываются спиновым гамильтонианом

$$H = \gamma S.B + D[S_z^2 - 1/3S(S+1)].$$
(1)

Здесь S – оператор электронного спина, S = 3/2;  $\gamma$  – гиромагнитное отношение, D – параметр, характеризующий расщепление тонкой структуры в аксиальном кристаллическом поле.

В экспериментах использовались кристаллы гексагональных политипов 4H-SiC и 6H-SiC и ромбического политипа 15R-SiC, выращенных сублимационным методом с концентрацией нескомпенсированных мелких доноров азота  $10^{15}-10^{17}$  см<sup>-3</sup> и подвергнутые облучению электронами с энергией 2 МэВ и потоком  $10^{15}-10^{16}$  см<sup>2</sup> для создания спиновых центров с концентрациями  $10^{14}-10^{16}$  см<sup>3</sup>. Выбирались оптимальные режимы для наблюдения максимальных сигналов ОДМР, обычно контраст ОДМР и антипересечения уровней ( $\Delta PL/PL$ ) составлял 2–5% при комнатной температуре. Процесс измельчения и очистки полученных нанокристаллов 6H-SiC описан в нашей публикации [18].

Изменения ФЛ спиновых центров V2 (спиновые центры принято обозначать по их безфононным линиям) в кристалле 4H-SiC (расщепление тонкой структуры в нулевом магнитном поле  $2D = 66 \,\mathrm{MFu}$ ) регистрировались путем синхронного детектирования при приложении постоянного магнитного поля и осциллирующего низкочастотного магнитного поля. На рисунке 1 показаны сигналы антипересечения спиновых уровней в отсутствии радиочастотного поля (РЧ) поля и спектры ОДМР, зарегистрированные при включении РЧ поля на трех частотах 50, 45 и 40 МГц. Выбор частот был обусловлен тем, что мы хотели приблизить сигнал ОДМР к сигналу первого антипересечения LAC1 (level anticrossing – LAC), поскольку в настоящей работе продемонстрировано, что в таких условиях сигнал ОДМР возрастает в несколько раз и приближается по своей интенсивности к сигналу антипересечения (рис. 1). Более того, эти результаты открывают новые возможности для управления ядерными спинами <sup>13</sup>С и <sup>29</sup>Si, т.к. в обла-



Рис. 1. (Цветной онлайн) Сигналы антипересечения уровней и ОДМР на трех частотах, зарегистрированные по изменению интенсивности ФЛ спиновых центров в монокристалле 4H-SiC. Верху представлена схема энергетических уровней спиновых центров; на вставке в увеличенном масштабе показан сдвиг линии ОДМР в магнитном поле для двух частот

сти антипересечения происходит смешивание квантовых состояний, что должно приводить к ядерной поляризации в результате сверхтонких взаимодействий (СТВ). Дополнительные линии слабой интенсивности, например, сателлиты в области первого антипересечения, обусловлены именно СТВ. Вверху на рис. 1 показана схема энергетических уровней спиновых центров (без учета СТВ), сплошными стрелками обозначены наблюдаемые ОДМР переходы, пунктирные стрелки показывают переходы, которые не приводят к оптическому отклику, поскольку эти уровни одинаково заселены при оптическом выстраивании населенностей уровней (условно кружками показаны заселенные нижние уровни). На вставке к рис. 1 показан в увеличенном масштабе сдвиг линии ОДМР в магнитном поле на частотах 50 и 45 МГц, демонстрирующий принцип измерения магнитных полей методом ОДМР, при этом размер монокристалла может быть уменьшен до десятков нанометров при сохранении высокой концентрации спиновых центров, поскольку ориентации всех спиновых центров выстроены вдоль одной оси с. Магнитные поля для точек антипересечения уровней  $M_S = -3/2, M_S = +1/2$ :

645

 $B(LAC1) = D/(g\mu_B)$  и для уровней  $M_S = -3/2$ ,  $M_S = -1/2$ :  $B(LAC2) = 2D/(g\mu_B)$ . Сигнал LAC1 слабо зависит от ориентации кристалла в магнитном поле, поэтому именно он используется при измерении магнитных полей.

В настоящей работе обнаружены эффекты "выжигания провалов" в линиях ОДМР спиновых центров в SiC при приложении двух радиочастот одновременно при комнатной температуре. На основе этих эффектов разработаны новые методы измерения магнитных полей, которые продемонстрированы на рис. 2. Эти методы позволили значительно уменьшить ширины линий оптического отклика при синхронном детектировании и тем самым существенно повысить чувствительность измерений. На рис. 2а приведены результаты выжигания провалов в неоднородно уширенной линии ОДМР в кристалле 15R-SiC при комнатной температуре для двух частот накачки f(p), обозначенных на рисунке; вверху показаны уровни спиновых центров. РЧ накачка на частоте f(p) насыщает спиновый переход  $M_S = -1/2 \leftrightarrow$  $\leftrightarrow M_S = -3/2$  с одним конкретным D. Из-за спиновой релаксации упомянутая выше РЧ накачка воздействует на переход  $M_S = +1/2 \leftrightarrow M_S = +3/2$  с тем же D. Следовательно, сателлит должен появиться при  $f(s1) = f(p) + 2\gamma B$ . Если неоднородное уширение больше зеемановского расщепления, то та же накачка также насыщает переход  $M_S = +1/2 \leftrightarrow M_S =$ = +3/2, но с другим *D*. Соответственно, он влияет на переход ( $M_S = -1/2 \leftrightarrow M_S = -3/2$ ), а другой сателлит появляется при  $f(s2) = f(p) - 2\gamma_{\rm B}$ . Таким образом, коэффициент для линейной зависимости от магнитного поля равен  $2\gamma$ , т.е. в два раза выше по сравнению с использованием стандартного ОДМР, где соответствующий коэффициент равен  $\gamma$ . Этот эффект наглядно демонстрируется по расщеплению во внешнем магнитном поле ( $B = 69 \,\mu \text{T}$ ) широкой линии ОДМР, обозначенному на рис. 2а как  $B_{\text{ext}}$  (ODMR), и в примерно два раза большего расщепления между частотой накачки и частотой сателлита в виде выжигаемого провала (ВП), обозначенного на рис. 2а как  $B_{\rm ext}$  (HB ODMR). Оба сателлита могут использоваться для измерения магнитного поля (на рис. 2а видны только высокочастотные сателлиты), причем расстояние между ними  $f(s1) - f(s2) = 4\gamma B$ , т.е. коэффициент для линейной зависимости от магнитного поля повышается еще в два раза и равен  $4\gamma$ . Таким образом, для измерения магнитного поля измеряются частоты сателлитов, зависящие от расщепления зеемановских уровней для основного состояния S = 3/2, и рассчитывается по разнице частот измеряемое магнитное поле, в котором находится область кристалла, возбуждаемая сфокусированным лазерным светом.

На рисунке 2b (верх) показаны в увеличенном масштабе две схемы регистрации по изменению интенсивности ФЛ с применением синхронного детектирования: (i) мощность РЧ зондирования модулируется на низкой частоте, прикладывается постоянная РЧ накачки,  $f(pump) = 48.14 \, \text{M}\Gamma\mu$ , (ii) частота РЧ зондирования модулируется на низкой частоте, прикладывается постоянная РЧ накачки; там же приведена частота сателлита f(s), которая соответствует не скомпенсированному внешнему магнитному полю 69 мкТл. Для обеих схем регистрации на рис. 2b показаны спектры, зарегистрированные с подачей дополнительного внешнего магнитного поля 7 мкТл (пунктир), где виден сдвиг частоты сателлитов. Частотная модуляция позволяет получить сигнал в виде производной, что упрощает схему регистрации и повышает точность измерений сдвига линии в магнитном поле. Внизу на рис. 2b приведены измерения, проведенные при 300 К на спиновых центрах V2 в кристалле 4H-SiC с использованием новой схемы регистрации с модуляцией мощности РЧ на частоте накачки, РЧ на частоте зондирования не модулируется, при ступенчатом изменении внешнего магнитного поля на 6 мкТл. В этом случае видны оба сателлита, что позволяет вычислять магнитное поле по двум возможностям |f(p) - f(s1)| и |f(s2) - f(s1)|.

На вставке рис. 2а представлены зависимости разности частот |f(p) - f(s1)| и |f(s2) - f(s1)|, которые используются для определения локального магнитного поля в объеме, возбуждаемом сфокусированным лазерным лучом, при ступенчатом изменении внешнего магнитного поля на 7 мкТл. Чувствительность при определении изменения магнитного поля  $\sim 1 \text{ мкТл}/\sqrt{\Gamma n}$ .

Следует отметить, что возможность когерентного управления спинами на двух частотах при комнатной температуре для системы с S = 3/2, которую можно рассматривать как двойной кубит или кудит, перспективна при разработке аппаратного обеспечения для квантовых вычислений. Более того, возможность перевести выстраивание населенностей спиновых уровней в поляризацию должна привести к ядерной поляризации, что сейчас рассматривается как спиновая память при квантовых вычислениях.

Рассматриваются две основные оптические методики регистрации малых магнитных полей в субмикронных объемах с использованием конфокального оптического микроскопа или совмещенного конфокального и атомно-силового микроскопов. При этом, в первом случае, в качестве активного материала ис-



Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Демонстрация выжигания провалов в неоднородно уширенной линии ОДМР в кристалле 15R-SiC при комнатной температуре, вверху показаны уровни спиновых центров, поясняющие принцип выжигания провалов; вставка – зависимости разности частот провалов при ступенчатом изменении внешнего магнитного поля. (b) – Верх – две модуляционные схемы регистрации выжигаемых провалов с модуляцией зондирующей частоты. Пунктиром обозначены измерения при подаче дополнительного поля; низ – пример третьей модуляционной схемы с модуляцией частоты накачки и регистрацией двух сателлитов в кристалле 4H-SiC

пользуется монокристалл или микро-нанокристалл SiC, содержащий спиновые центры, помещенный на сканирующий столик конфокального микроскопа, во втором случае, микро- или нанокристалл SiC, помещенный на зонд сканирующего ACM. В обеих методиках с помощью сканирующего конфокального микроскопа выделяется дифракционноограниченный возбуждаемый оптически объем в активном материале (<1 мкм<sup>3</sup>) и с этого объема регистрируется ФЛ.

Также была разработана методика измерения локальных температур на основе обнаруженных нами сильных зависимостей ряда параметров спиновых центров в SiC от температуры. Расщепление тонкой структуры спиновых центров в возбужденном состоянии характеризуется сильной температурной зависимостью, что было предложено нами использовать для измерений температуры с использованием антипересечения уровней в возбужденном состоянии [14, 15]. Недостатком этого способа была достаточно большая ширина линии антипересечения, которая определяется временем жизни в возбужденном состоянии и не может быть уменьшена. Нами были предложены новые методики по использованию явления кросс-релаксации спиновых уровней рассмотренной выше системы с S = 3/2 и системы с S = 1, характеризующейся сильной зависимостью расщепления тонкой структуры от температуры, при этом ширина линии кросс-релаксации примерно на порядок уже линии антипересечения в возбужденном со-



Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Упрощенная схема сканирующего микроскопа на основе микро- или нанокристалла SiC со спиновыми центрами, помещенного на острие ACM. На верхней вставке условно показана схема оптического выстраивания населенностей спиновых уровней для центров окраски 6H-SiC (условно изображена структура центра окраски). Представлено изображение в сканирующем электронном микроскопе (SEM) зонда ACM после захвата наночешуйки на кончик зонда. Вставка – спектр ФЛ при 300 К. (b) – Верхний ряд: ACM манипуляция и захват на кончик зонда нано-чешуйки SiC; ACM изображения агломерата SiC чешуек на Si подложке: до манипуляции, в ходе манипуляции и после захвата нано-чешуйки на кончик ACM зонда. Средний и нижний ряды: тоновые изображения ФЛ спиновых центров в нанокристалле (SiC PL) и комбинационного рассеяния (Si Raman), проявляющие нанокристаллы SiC на кремниевом зонде

стоянии при практически одинаковой зависимости положения этих линий от температуры. Локальные температуры могут измеряться параллельно с измерениями магнитных полей с использованием одних и тех же спиновых центров. В виду высокой теплопроводности SiC при помещении его в исследуемую среду или при соприкосновении со средой температура среды будет передаваться к спиновым центрам в карбиде кремния подобно тому, как проводятся температурные измерения с использованием NV центров.

На рисунке За представлен элемент сканирующего микроскопа на основе микро- или нанокристалла SiC со спиновыми центрами, помещенного на острие ACM, который служит в качестве чувствительного магнитометра или термометра с субмикронным пространственным разрешением. Использовался радиоспектроскопический комплекс, включающий сканирующий спектрометр магнитного резонанса, созданный с использованием совмещенного ACM и конфокального микроскопов компании HT-MДT Спектрум Инструментс.

Мониторинг изменения частоты ОДМР обнаруживает магнитное поле, создаваемое, например, оборванными связями на поверхности, или поля, создаваемые ферромагнитными наноструктурами.

Возможна также экспериментальная реализация на основе сканирующего ближнепольного оптического микроскопа, нанокристалл SiC может быть прикреплен непосредственно на конце изогнутого и конусного оптического волокна. В этом случае используется уникальное свойство ФЛ и ее возбуждения в SiC, когда длины волн для возбуждения и регистрации ФЛ этих центров лежат в полосе прозрачности волоконной оптики и биологических объектов. На верхней вставке рис. За условно показана схема оптического выстраивания населенностей спиновых уровней для центров окраски V2 в нанокристалле 6H-SiC (структура центра окраски также условно изображена на рис. За), под действием оптической накачки, при этом создается инверсная населенность; спектр ФЛ нанокристаллов при 300 К показан на нижней вставке рис. За. На рисунке 3b в верхнем ряду представлены АСМ манипуляции (контактный режим, начальная сила прижима – 75 нН) и захват на кончик зонда нано-чешуйки SiC. Последовательно даны АСМ изображения агломерата SiC чешуек на Si подложке до манипуляции, в ходе манипуляции и после захвата нано-чешуйки на кончик АСМ зонда. Нано-чешуйка, выбранная для манипуляции и захвата на кончик зонда, отмечена на рис. 3b пунктирным овалом. Максимальная высота агломерата – 172 нм, нано-чешуйки – 100 нм, размер кадров 1.7 мкм. На правом изображении, полученном с помощью модифицированного зонда, с нано-чешуйкой на кончике, агломерат SiC чешуек несколько уширился по сравнению с изображением этого же агломерата на других рисунках, полученных с помощью исходного, не модифицированного зонда. Тем не менее, видно, что модифицированный зонд со спиновыми центрами (изображение в сканирующем электронном микроскопе (СЭМ – SEM), зонда ACM после захвата нано-чешуйки на кончик зонда показано на рис. 3a) может подводиться к исследуемому объекту на нанометровые расстояния.

Средний и нижний ряды: нанокристаллы 6H-SiC со спиновыми центрами, помещенные на наконечник стандартного кремниевого зонда сканирующего атомно-силового микроскопа. Показаны тоновые изображения ФЛ спиновых центров в нанокристалле SiC ФЛ (SiC PL) и комбинационного рассеяния Si Раман (Si Raman) от кремния, проявляющие нанокристаллы SiC на пирамидальном заострении кремниевого зонда.

С помощью такого модифицированного ACM зонда становится возможным проводить измерения магнитных и/или температурных полей, применяя все перечисленные выше эффекты. Оптическое возбуждение ФЛ может осуществляться по разным схемам, в зависимости от конструкции микроскопа. Важным достоинством метода является возможность использования одного и того же ансамбля спиновых центров для регистрации магнитных и температурных полей, при этом, в отличие от NV центров в алмазе, для этого используются разные состояния спиновых центров.

Заключение. В работе продемонстрированы возможности осуществлять спиновые манипуляции в условиях окружающей среды с использованием оптического детектирования магнитного резонанса, включая развитую авторами методику выжигания провалов, эффектов антипересечения уровней в основном и возбужденном квадруплетных спиновых состояниях, кросс-релаксационных резонансов в ансамблях спиновых центров окраски в микрои нанокристаллах карбида кремния. Предложено сканирующее устройство, в котором ансамбли спиновых центров, помещенные на острие кантилевера АСМ, служат в качестве чувствительных сенсоров магнитных и температурных полей. Показано, что сенсор SiC обладает уникальной способностью переключаться между режимами обнаружения магнитного и температурного полей, что делает его универсальной системой детектирования для применений в биологии.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки, соглашение #14.604.21.0200, идентификатор: RFMEFI60417X0200.

- A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borczyskowski, Science 276, 2012 (1997).
- F. Jelezko and J. Wrachtrup, Phys. Stat. Sol. (a) 203, 3207 (2006).
- P.G. Baranov, H.-J. von Bardeleben, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, Magnetic Resonance of Semiconductors and Their Nanostructures: Basic and Advanced Applications: Springer Series in Materials Science 253, 448 (2017).
- P.G. Baranov, I.V. Il'in, E.N. Mokhov, M.V. Muzafarova, S.B. Orlinskii, and J. Schmidt, JETP Lett. 82, 441 (2005).
- P. G. Baranov, A. P. Bundakova, I. V. Borovykh, S. B. Orlinskii, R. Zondervan, and J. Schmidt, JETP Lett. 86, 202 (2007).
- J. R. Weber, W. F. Koehl, J. B. Varley, A. Janotti, B. B. Buckley, C. G. van de Walle, and D. D. Awschalom, Proc. Natl. Acad. Sci. 107, 8513 (2010).
- P. G. Baranov, A. P. Bundakova, A. A. Soltamova, S. B. Orlinskii, I. V. Borovykh, R. Zondervan, R. Verberk, and J. Schmidt, Phys. Rev. B 83, 125203 (2011).
- M. Widmann, S.-Y. Lee, T. Rendler et al. (Collaboration), Nature Mater. 14, 164 (2015).
- D. J. Christle, A. L. Falk, P. Andrich, P. V. Klimov, J. Ul. Hassan, N. T. Son, E. Janzén, T. Ohshima, and D. D. Awschalom, Nature Mater. 14, 160 (2015).
- D. Riedel, F. Fuchs, H. Kraus, S. Vath, A. Sperlich, V. Dyakonov, A. Soltamova, P. Baranov, V. Ilyin, and G. V. Astakhov, Phys. Rev. Lett. **109**, 226402 (2012).
- H. Kraus, V.A. Soltamov, F. Fuchs, D. Simin, A. Sperlich, P.G. Baranov, G.V. Astakhov, and V. Dyakonov, Sci. Rep. 4, 5303 (2014).
- H. Kraus, V.A. Soltamov, D. Riedel, S. Väth, F. Fuchs, A. Sperlich, P.G. Baranov, V. Dyakonov, and G.V. Astakhov, Nature Phys. 10, 157 (2014).
- D. Simin, V.A. Soltamov, A.V. Poshakinskiy, A.N. Anisimov, R.A. Babunts, D.O. Tolmachev, E.N. Mokhov, M. Trupke, S.A. Tarasenko, A. Sperlich, P.G. Baranov, V. Dyakonov, and G.V. Astakhov, Phys. Rev. X 6, 031014 (2016).
- A. N. Anisimov, D. Simin, V. A. Soltamov, S. P. Lebedev, P. G. Baranov, G. V. Astakhov, and V. Dyakonov, Sci. Rep. 6, 33301 (2016).

Письма в ЖЭТФ том 108 вып. 9-10 2018

- A. N. Anisimov, V. A. Soltamov, E. N. Mokhov, P. G. Baranov, G. V. Astakhov, and V. Dyakonov, Appl. Magn. Reson. 49, 85 (2018).
- V.A. Soltamov, B.V. Yavkin, D.O. Tolmachev, R.A. Babunts, A.G. Badalyan, V.Yu. Davydov, E.N. Mokhov, I.I. Proskuryakov, S.B. Orlinskii, and
- P.G. Baranov, Phys. Rev. Lett. **115**, 247602 (2015).
- 17. C. L. Degen, Appl. Phys. Lett. **92**, 243111 (2008).
- A. Muzha, F. Fuchs, N. V. Tarakina, D. Simin, M. Trupke, V. A. Soltamov, E. N. Mokhov, P. G. Baranov, V. Dyakonov, A. Krueger, and G. V. Astakhov, Appl. Phys. Lett. **105**, 243112 (2014).