

University of Groningen

## Spin transport across oxide semiconductors and antiferromagnetic oxide interfaces

Das, Arijit

DOI:  
[10.33612/diss.150692255](https://doi.org/10.33612/diss.150692255)

**IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.**

*Document Version*  
Publisher's PDF, also known as Version of record

*Publication date:*  
2021

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

*Citation for published version (APA):*

Das, A. (2021). *Spin transport across oxide semiconductors and antiferromagnetic oxide interfaces*. [Thesis fully internal (DIV), University of Groningen]. University of Groningen.  
<https://doi.org/10.33612/diss.150692255>

**Copyright**

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

**Take-down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

*Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.*

# Samenvatting

Een sterk gecorreleerde interactie tussen spin-, orbitale en rooster-vrijheidsgraden in complexe oxidematerialen, zowel in hun bulk als op hun grensvlakken, leiden tot nieuwe verschijnselen, die vaak heel anders zijn dan die in andere materiaalsystemen. Een zo'n samenspel wordt veroorzaakt door de interactie van de roostervervorming, geïnduceerde rek en verschillende soorten symmetriebreking, waardoor effectieve controle en het ontwerpen van hetero-raakvlakken mogelijk is. Dit heeft geleid tot de waarneming van onconventioneel elektronisch transport, magnetisme, ferro-elektriciteit en supergeleiding op zulke hetero- raakvlakken.

Dit proefschrift bestudeert functioneel belangrijke complexe oxide platformen voor spintransport en onderzoekt: (i) Integratie van niet-vluchtige geheugenfunctionaliteiten op de complexe oxide halfgeleider Nb-gedoteerde  $\text{SrTiO}_3$  (Nb:STO) voor complementaire geheugen- en logische werking, (ii) Antiferromagnetische isolerende lagen van  $\text{SrMnO}_3$  (SMO) worden voor het eerst bestudeerd, met de bedoeling ze te integreren in antiferromagnetische spintronica op basis van complexe oxiden. Een belangrijke vereiste voor het bevorderen van conventionele halfgeleider-spintronica is de mogelijkheid om spinmanipulatie over het halfgeleiderkanaal te regelen door elektrische velden. Dit is echter ontastbaar gebleven in conventionele halfgeleiders zoals in Si, vanwege de zwakke spin-orbit-koppeling die inherent is aan hen, waardoor effectieve manipulatie van spintransport door elektrische velden met een toegepaste voorspanning wordt voorkomen. De gebroken inversiesymmetrie aan het oppervlak van Nb-gedoteerde  $\text{SrTiO}_3$  (Nb:STO) en de sterke niet-lineaire variatie van de diëlektrische permittiviteit leent zich

voor een elektronisch rijk platform waar een dergelijke manipulatie kan worden bestudeerd door gebruik te maken van zorgvuldig op maat gemaakte spin-injectie-interfaces. De analyse van elektrische veldmanipulatie van de spintransportparameters in Nb:STO vormt een belangrijk onderdeel van deze proefschrift.

In het tweede deel van het proefschrift worden antiferromagneten bestudeerd op substraten van ongedoteerd  $\text{SrTiO}_3$ . Antiferromagneten hebben bijzondere eigenschappen waardoor ze steeds vaker worden gebruikt in spintronica. Onderzoek naar materialen en device-ontwerpen zijn gebieden die aandacht vereisen om hun ontwikkeling voor gebruik in reguliere technologieën te bevorderen. Materialen die voor extra flexibiliteit zorgen, en bijvoorbeeld de mogelijk bieden om de magnetische ordening te beïnvloeden, brengen een belangrijk voordeel. Het interessante materiaallandschap, dat karakteristiek is aan gecorreleerde oxiden is hiervoor niet onderzocht, ondanks het feit dat verschillende belangrijke nieuwe verschijnselen zijn ontdekt in deze materialen of in hun hetero-raakvlakken. Een andere uitdaging in antiferromagneetspintronica is het aanpassen van de veelgebruikte technieken om spintransport te bestuderen in ferromagneten. In dit proefschrift zijn een aantal technieken gebruikt die gebaseerde zijn op spintransport, aangevuld met bulkmagnetisatiestudies. Dit proefschrift bevat een aantal belangrijke conclusies die de basis vormen voor hun studie zowel door spinstromen als door elektrische velden.

**In hoofdstukken 1 en 2** worden de materiaalsystemen  $\text{SrTiO}_3$  en  $\text{SrMnO}_3$ , geïntroduceerd samen met de meest belangrijke theoretische concepten voor spininjectie en detectie. Ook wordt de theorie achter verschijnselen gebaseerd op Spin Hall Effect (SHE), zoals Spin Hall Magnetoweerstand (SMR) en Spin Seebeck Effect (SSE).

**In hoofdstuk 3** worden lading- en spintransport over Schottky-raakoppervlaktes met Nb:STO onderzocht. Het Schottky-raakoppervlaktes van Nb:STO zit vol met zuurstofvacatures, waardoor een metastabiele toestand in de geleidingsband van STO mogelijk is, wat leidt tot een memristief gedrag in Ni/Nb:STO. Bovendien regelt de niet-lineaire variatie van

de diëlektrische constante van STO met elektrisch veld en temperatuur de buiging van de geleidingsband. De bandbuiging en het bijbehorende ingebouwde elektrische veld worden gemodelleerd met elektrostatica, dit laat een elektrische veldvariatie van 300 kV/cm tot 1200 kV/cm zien. Het elektronische transport in Ni/Nb: STO wordt bestudeerd met verschillende concentraties van dotering van Nb<sup>5+</sup>. Met toenemende doteringconcentratie verandert het transportmechanisme van thermionische emissie naar thermisch ondersteunde tunneling. Toenemend tunnelingtransport is gunstig voor spin-afhankelijke tunneling over het halfgeleidende grensvlak. Er zijn Tunneling Anisotropische Magnetoweerstand (TAMR) -signalen over het Schottky-raakvlak, de stroom-afhankelijkheid ervan wordt veroorzaakt door de modulatie van het ingebouwde elektrische veld dat het Rashba spinbaan-veld moduleert. Uit de waarnemingen wordt geconcludeerd dat terwijl de tunneldichtheden van toestanden grotendeels afhangen van de bandstructuuruitlijning van 3d-orbitalen tussen Ni en Nb:STO, de stroomafhankelijkheid berust op het evenwicht tussen de breedte van het uitputtingsgebied en de doteringconcentratie van de halfgeleiders, wat een gecontroleerde buiging van de geleidingsband veroorzaakt in STO.

Eerder werk verricht in onze groep op Co/Nb:STO raakvlakken gaf een TAMR waarde van 1.6%, de hoogst gemeten TAMR op kamertemperatuur. Deze waarde is ook een order groter dan de hoogste TAMR gerapporteerd in dit proefschrift. Dit maakt het Co/STO-grensvlak interessant om verder te onderzoeken. Eerdere onderzoekers rapporteerden een inversie van Tunneling Magnetoresistance (TMR) in Co/STO-raakvlakken in een magnetische tunneljunctie (MTJ), en schreven dit toe aan de hoge kwaliteit van het raakvlak. De rol en het effect van een zelf-geoxideerde CoO-laag in deze magnetoweerstandsstudies werden niet onderzocht. Met behulp van een 3T-geometrie wordt laten zien dat TAMR-signalen verschijnen veroorzaakt worden door de rotatie van Co-momenten uit het vlak. In het laatste deel van hoofdstuk 3 worden de magnetoweerstand signalen met Co/CoO-elektrodes op Nb:STO besproken. De uitwisselingspinning tussen Co- en CoO-magnetische momenten bij lage temperaturen duidt op een nauw samenspel van onvolledige rotatie van Co/CoO-momenten als gevolg van het uitwisselingsveereffect en veldafhankelijke rotatie van

Co-momenten. Op kamertemperatuur, boven de Néel-temperatuur van CoO (290 K), worden kwadratische responsen van TAMR-signalen van Co/Nb:STO waargenomen. Dit werk laat ook zien dat een geometrie met drie contacten (3T) gebruikt kan worden om magnetoweerstandseffecten te bestuderen die optreedt in raakvlakken waar uitwisselings interactie plaats vindt.

**In hoofdstuk 4** wordt aangetoond dat een zorgvuldig ontwerp van het spin-injectie-raakvlak met behulp van een Ni-ferromagneet en een dunne tunnelbarrière (0,7 nm) van  $\text{AlO}_x$  leidt tot een aanzienlijk ingebouwd elektrisch veld over het Schottky-raakvlak dat zeer effectief is bij het controleren van de levensduur van de spin in dergelijke halfgeleiders. Meestal is de aanwezigheid van een Schottky-barrière nadelig voor spintransport, maar hier wordt laten zien dat dit, mits slim ontworpen, kan leiden tot een nieuw begrip van spintransport in halfgeleiders. De experimenten worden uitgevoerd met behulp van een geometrietechniek met 3 contacten (3T). Hoewel demonstraties van spininjectie en detectie in Si en andere halfgeleiders werden gedaan met behulp van de 3T-geometrie, heeft deze geometrie ook enkele onnodige controverses opgeleverd, waardoor onderzoekers voorzichtig zijn met publicaties die 3T-geometrie gebruiken. Hier wordt laten zien dat de 3T-geometrie in feite zeer goed gebruikt kan worden om nieuwe functies in spintransport te verkennen door de materiaal- en device-parameterruimte te vergroten en door de spin-injecterende grensvlak zorgvuldig te ontwerpen met Nb:STO. Door een zorgvuldige en systematische analyse is te zien dat de lijnvorm van de spinspanning een superpositie is van twee concurrerende magnetoweerstandseffecten die op tegenovergestelde wijze evolueren met temperatuur en toegepaste spanning. De lijnvorm van de spinspanning bestaat uit een superpositie tussen spininjectiesignalen en tunneling anisotropische magnetoresistance (TAMR). Dit komt waarschijnlijk door de gecoördineerde effecten van i) de niet-lineaire respons van de diëlektrische permittiviteit met temperatuur en toegepaste bias die intrinsiek is aan deze soort halfgeleiders ii) de modulatie van het Rashba-spin-orbitveld op dergelijke grensvlakken met gebroken inversie symmetrie en iii) de effecten van i) en ii) op het moduleren

van het potentiële landschap voor spintransport. Dit werk biedt nieuwe mogelijkheden voor de controle van het elektrische veld van spintransport in halfgeleiders door het potentieel van 3T-geometrie te benutten en de parameterruimte uit te breiden om nieuwe richtingen in de halfgeleider-spintronica te verkennen.

**In hoofdstuk 5** worden de magnetische eigenschappen van de isolerende dunne lagen van mangaaniet van  $\text{SrMnO}_3$  geïntroduceerd voor plausible spin- en magneto-transporttoepassingen. De twee meest gebruikte elektrische (spin) transportschema's voor onderzoek naar de magnetisatie en magnetische ordening in magnetische isolatoren (MI) zijn de Spin Hall Magnetoweerstand (SMR) het Longitudinale Spin Seebeck Effect (LSSE) studies. Onlangs hebben veel onderzoekers een nieuwe manier gebruikt om gelijktijdig de SMR en SSE te detecteren door gebruik te maken van de stroom die wordt toegepast over een zware metalen (HM) -staaf die (i) een spinstroom genereert als gevolg van het Spin Hall-effect (SHE) (ii) Joule verwarming. In een HM/MI-hybridesysteem propageren zowel de spinstroom als de temperatuurgradiënt als gevolg van Joule-verwarming door het HM/MI raakvlak. Dit creëert (i) een relatieve oriëntatie tussen de spinsaccumulatie in de HM en de magnetisatie aan het oppervlak van de MI en (ii) magnon-excitatie in het grootste deel van de MI door de temperatuurgradiënt. Deze effecten veroorzaken op hun beurt een verandering in de elektrische spanning in de HM-laag als gevolg van de inverse-SHE (ISHE). De spanningen worden gemeten als 1e (SMR) en 2e harmonische respons in de lock-in versterker, waar de SMR-responsen lineair afhankelijk zijn van de stroom, de SSE-responsen hebben een kwadratische afhankelijkheid van de stroom en dit geeft een thermisch oorzaak aan. Dit soort complementaire spintransporttechnieken zijn eerder gebruikt om de magnetische ordening in ferri/ferromagnetische, antiferromagnetische en spiraalvormige magnetische systemen te onderzoeken. In systemen, zoals dunne lagen van  $\text{SrMnO}_3$  (SMO), kan een ferro-elektrische ordening door spanning-rek leiden tot transformatie van de antiferromagnetische grondtoestand naar ferromagnetische grondtoestand. Zo'n spanning-rek kan worden bereikt door dunne lagen van SMO te laten groeien op substraten met trekspanning, zoals

STO bijvoorbeeld. Bovendien kunnen meerdere verschillende magnetische fasen bestaan binnen een laag met verschillende magnetische ordening in de bulk en aan het oppervlak, veroorzaakt door de zuurstofstoichiometrie te variëren door verschillende groeistrategieën toe te passen. In dit werk worden de magnetische eigenschappen van dunne lagen van isolerend  $\text{SrMnO}_3$  bestudeerd met behulp van drie verschillende complementaire technieken, (i) Magnetisatiemetingen van SQUID, (ii) SMR en (iii) SSE. In dit werk wordt de rol belicht van het gecorreleerde samenspel van het rekquotiënt en de zuurstofvacatures die in twee substraten wordt afgestemd door verschillende diktes en groeiomstandigheden te benutten. De gelijktijdige detectie van de SMR en SSE in de twee substraten laat een overheersende ferromagnetische interactie zien op alle temperaturen, dit wordt ondersteund door de aanwezigheid van magnetische hysteresis. De SSE-reacties laten de bulk magnetische ordening in een MI zien terwijl een geleidelijke kanteling van de antiferromagnetische subroosters met toenemende veldsterkte verantwoordelijk is voor een concurrerende magnetische uitwisseling lateraal over de SMO-lagen. De temperatuurafhankelijkheid van de SSE-responsen in de dunne lagen laat een verbetering van de signalen bij lagere temperatuur zien, wat mogelijk duidt op een sterke magnon-fonon-interactie die wordt gemedieerd over het oppervlak en de bulk van de SMO-lagen wanneer ze sterk zijn gekoppeld door een concurrerende magnetische uitwisseling wat ook te zien is in de temperatuurafhankelijke magnetisatiemetingen met SQUID. Er zijn aanzienlijke inspanningen geleverd om andere mogelijke effecten uit te sluiten door meetconfiguraties te gebruiken. Deze studie is de eerste in zijn soort die de aanwezigheid van concurrerende magnetische ordening in dunne lagen van SMO en manganieten in het algemeen benadrukt met behulp van de nieuwe spintransporttechnieken van SMR en SSE. Dit werk vergroot reikwijdte van het afstemmen van verschillende parameteromgevingen in complexe oxidematerialen voor levensvatbare spintransportmetingen en verbreedt ook de reikwijdte van  $\text{SrMnO}_3$  als het materiaal voor toekomstige antiferromagnetische spintronica.

$\text{SrMnO}_3$  kan worden afgesteld om verschillende magnetische ordening te vertonen, met als belangrijkste een G-type AFM, waarbij zowel de intralagere als de inter-subrooster ordening door elkaar worden opgeheven. Dit is ge-

bruikt in een heterostructuur die bestaat uit  $\text{SrMnO}_3$  met  $\text{SrRuO}_3$ , waarbij de laatste een ferromagneet is in de complexe oxidefamilie. Het proefschrift onderzoekt de effectiviteit van uitwisselings interactie via Dzyalonshinkii-Moriya-interactie (DMI) in een FM/(nominaal) AFM-systeem door de magnetotransporteigenschappen te bestuderen. **In hoofdstuk 6**, waarin dunne lagen van SMO met SRO worden geïntegreerd, wordt gevonden dat het bultachtige kenmerken vertoont die typisch worden waargenomen in Topologische Hall-effect (THE) -studies, vanwege de elektronenverstrooiing van topologisch beschermde skyrmion-bubbel texturen over de grensvlakken. Door de uitwisselings interactie af te stemmen, gebruikmakend van twee verschillende diktes van SMO-lagen, verschijnen magnetotransport signalen die zichtbare verschillen vertonen in hun THE-respons, wat de rol aangeeft van de DMI en door nul-magnetostatische strooiveld geïnduceerde magnetische texturen. De flexibiliteit in de magnetische fasen in de SMO-lagen en de polaire eigenschappen ervan kunnen worden gebruikt in dergelijke uitwisselings-interactie systemen voor verdere studie van door elektrische velden aangedreven effecten van magnetisatiestructuren in heterostructuren.



