

University of Groningen

Charge and spin transport across graphene and multifunctional oxide interfaces

Chen, Si

DOI:
[10.33612/diss.206454068](https://doi.org/10.33612/diss.206454068)

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:
2022

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

Citation for published version (APA):

Chen, S. (2022). *Charge and spin transport across graphene and multifunctional oxide interfaces: towards energy-efficient logic and memory devices*. [Thesis fully internal (DIV), University of Groningen]. University of Groningen. <https://doi.org/10.33612/diss.206454068>

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

Sinds de uitvinding van transistors halverwege de 20e eeuw is het informatietijdperk aangebroken. In dit tijdperk is o.a. de sociale interactie door gemoderniseerde informatie- en communicatietechnologie onderhevig aan grote veranderingen. Deze technologische vooruitgang wordt gekenmerkt door drie belangrijke wetten: De wet van Moore, de wet van Kryder en de wet van Koomey. Zij beschrijven het tempo waarin de schaalvergroting van respectievelijk het aantal transistors, de hoeveelheid opslagruimte en de stroomverbruiksdichtheid toeneemt. De exponentiële groei van de afgelopen decades lijkt echter tegen de grenzen van miniaturisatie op atomair niveau aan te lopen. Door de conventionele logica gebaseerd op elektronenstromen te vervangen door andere systemen, zoals spintronica, kan het tempo van de vooruitgang behouden blijven. Grafeen, een tweedimensionaal materiaal met een dikte van een atoom, is ideaal voor de toepassing van spintronica door zijn superieure intrinsieke mobiliteit, lage spin-baan koppeling en zwakke hyperfijn interactie. Bovendien, kunnen de eigenschappen van grafeen worden aangepast door grafeen in de nabijheid van multifunctionele oxiden te plaatsen. Dit proefschrift richt zich voornamelijk op het begrijpen van het spin- en ladingstransport door grafeen en multifunctionele oxide grensvlakken, en de mogelijke implicaties daarvan voor toekomstige elektronische apparaten.

De gebruikte materiaalsystemen in dit proefschrift, te weten, grafeen, SrTiO_3 (STO), en BiFeO_3 (BFO), worden beschreven in **hoofdstuk 2**. Hier beschrijf ik o.a. de kristalstructuur en bandstructuur van grafeen. Aan de hand van deze kennis worden de elektronische transporteigenschappen van grafeen besproken. Tevens wordt STO, een universeel substraat voor complexe oxiden, besproken in termen van faseovergang, domeinvorming, zuurstof-gaten, en spin-baan koppeling. Tenslotte worden er drie aspecten onderzocht van de multifunctionele complexe oxide BFO: structurele en ferro-elektrische eigenschappen, magnetische eigenschappen, en de koppeling tussen ferro-elektrische en magnetische ordening.

Theoretische basisconcepten die een belangrijke rol spelen in dit proefschrift worden beschreven in hoofdstuk chapter:Theory. Al in de eerste fase van het onderzoek binnen de spintronica werden er al modellen gemaakt zoals het twee-stromen model waarin grafeen al werd besproken. Aan de hand van dit model leggen de werking uit van een lokale spinlep gebaseerd op een reusachtige magneto-weerstand. Daarnaast worden drie essentiële processen in de spintronica beschreven: spin-injectie, spin-transport, en spin-detectie. Het spin-transport in grafeen wordt gekarakteriseerd aan de hand van zowel lokale als niet-lokale Hanle-metingen. Ook wordt het nabijheidseffect besproken, waardoor extra functionaliteiten in grafeen kunnen worden geïntroduceerd. In de tweede helft van dit hoofdstuk wordt de spintronica in magnetische isolatoren besproken. De basisprincipes van magnetische dynamica worden beschreven, en ook de spin Hall magnetische afhankelijke weerstand en het spin Seebeck effect passeren de revue. Dit zijn effectieve hulpmiddelen om de magnetische orde in een niet geleidend magnetisch materiaal te detecteren.

In **hoofdstuk 4** worden de experimentele basistechnieken besproken die bij dit proefschrift betrokken zijn. Fabricage details, inclusief exfoliatie, overdracht van tweedimensionale materialen op gewenste substraten, en elektronenbundel-lithografie worden beschreven. Ook worden de details van de meettechnieken uitgelegd.

Wat grafeen tot een veelbelovend materiaal in de spintronica maakt, is de theoretisch voorspelde intrinsieke lange levensduur van spins. De spinrelaxatie kan tot wel 1 microseconde duren en in combinatie met de extreem hoge mobiliteit van de ladingsdragers ontstaat er in theorie een ideaal materiaal voor spintronica onderzoek. Uit talrijke experimentele studies blijkt echter dat de spinlevensduur in grafeen verscheidene ordes van grootte onder de theoretisch voorspelde levensduur ligt. Bovendien blijkt uit een analyse van de spinrelaxatiemechanismen in grafeen dat zowel het Elliot-Yaffet als het D'Yakonov-Perel' mechanisme naast elkaar bestaan, zonder dat er sprake is van een duidelijke dominantie van een van beiden. Centraal in deze experimentele discrepanties staat de rol van de lokale omgeving, inclusief die van het onderliggende substraat. In **hoofdstuk 5** richten we ons op de integratie van grafeen met complexe oxiden. We gebruiken SrTiO_3 met een gebroken inversiesymmetrie om het spintransport in grafeen onder invloed van elektrische oppervlaktevelden te bestuderen. Onze eerste waarneming van spintransport in grafeen op TiO_2 getermineerd STO, laten een spinrelaxatie-tijd en -lengte zo groot als 0.96 ± 0.03 ns en $4,1 \pm 0.1$ μm zien. Deze parameters vertonen een niet-lineaire weerstandsafhankelijkheid bij lage temperaturen. Dit is in tegenstelling tot wat in andere substraten wordt waargenomen. Bovendien observeren we dat spintransport in grafeen op STO wordt beïnvloed door het cumulatieve effect van elektrische dipolen aan het oppervlak, intrinsieke spin-baankoppeling en een temperatuur-geïnduceerde rimpeling van het grafeen-koppelvlak. De reactie

van spinrelaxatieparameters bij 4 K op het elektrisch veld wordt toegeschreven aan de modulatie in de magnitude van de oppervlakedipolen van STO. Deze modulatie toont aan dat het spinrelaxatiemechanisme het naast elkaar bestaan van zowel EY- als DP-verstrooiingsprocessen aantoont. De resultaten in dit hoofdstuk bieden aanknopingspunten om nabijheidsgeïnduceerde functionaliteiten aan dergelijke oppervlakken te bestuderen, welke nuttig kunnen zijn voor toekomstige spintronica en opto-elektronische toepassingen.

Heterointerfaces die complexe oxiden koppelen vertonen vaak functionele eigenschappen zoals magnetisme, supergeleiding en ferro-elektriciteit, die vaak afwezig zijn in de individuele complexe oxiden. Een veelgebruikt bestanddeel van dergelijke hetero-interfaces is SrTiO_3 (STO), een canonieke bandisolator. Een door temperatuur, rek of mechanische spanning geïnduceerde ferro-elastische overgang leidt tot de vorming van smalle domeinen en domeinwanden in STO. Dergelijke ferro-elastische domeinwanden zijn bestudeerd met behulp van beeldvorming of transporttechnieken, en vaak worden de bevindingen beïnvloed door de keuze en interactie van de elektrodes met STO. De unieke fysische en chemische eigenschappen in grafeen, in het bijzonder de van der Waals interactie, voorkomt ongewenste interacties tussen de elektrode en het substraat (STO), waardoor het exacte mechanisme verantwoordelijk voor de anti-hysteresis in de vierkantsweerstand in grafeen kan worden geïdentificeerd. In **hoofdstuk 6**, gebruiken we een monolaag van een grafeen schilfer als een uniek platform om de beweging van zuurstof-gaten en ferroelastische domeinwanden in de buurt van het STO oppervlak te ontsluiten. Dit doen we door het bestuderen van de temperatuur en het bestuderen van de elektrisch veldafhankelijkheid van het ladingstransport in grafeen. Door de spanning van de basis aan de achterkant te verschuiven, observeren we anti-hysteresis in grafeen, welke typisch is voor conventionele ferro-elektrische oxiden. Interessant is dat we kenmerken in de anti-hysteresis vinden die verband houden met de beweging van domeinwanden en zuurstof-gaten in STO met een geschatte energiebarrière van 15 meV. We stellen dit vast door de tijdsafhankelijkheid van de grafeenvierkantsweerstand te analyseren bij verschillende temperaturen en de modulatie van het elektrisch veld. Door middel van dichtheidsfunctieberekeningen worden de oppervlaktepolarisatie en de vormingsenergieën ingeschat van zuurstofgaten in STO, als functie van diens laagdikte, en energiebarrières voor de diffusie van zuurstofgaten naar het oppervlak van STO en de ladingsoverdracht aan het grensvlak tussen grafeen en STO. Dit komt kwantitatief overeen met de activeringsenergieën bepaald uit de temperatuurafhankelijkheid van de grafeenvierkantsweerstand. Het aanbrengen van hexagonale boornitride (hBN)-lagen van verschillende diktes, tussen grafeen en STO leidt tot een geleidelijke verdwijning van de waargenomen eigenschappen. Dit impliceert een invloed van de domeinwanden op het potentiaallandschap in grafeen. Onze benadering kan worden uitgebreid met een studie van de dynamica van elektronisch

en ionisch ladingstransport en hun retentiekarakteristieken, met behulp van 2D-materialen op oxidesubstraten, waarmee de weg wordt geëffend voor elektrische veldbesturing van geheugenfunctionaliteiten in elektronische apparaten.

Naast STO is BiFeO_3 (BFO) een ander complexe oxide met intrigerende eigenschappen. Bij kamertemperatuur is dit materiaal multiferroïsch. Het heeft een grote ferro-elektrische polarisatie en een G-type antiferromagnetische (AFM) klasse. In **hoofdstuk 7** gebruiken we de spin Hall magneet weerstand (SMR) en het spin Seebeck effect (SSE) om de magnetische ordening in BFO te onderzoeken. We bestuderen BFO in twee verschillende vervormingstoestanden, en dus met verschillende antiferrodistortieve en ferro-elektrische vervormingen. Wij observeren een positieve SMR voor beide vormingstoestanden, maar verrassend genoeg met een verschillende temperatuurafhankelijkheid. Voor BFO//STO onthult de positieve SMR het zwakke ferromagnetisme (wFM) in een R-achtige fase BFO, waar de antiferrodistortieve rotatie groot is. De temperatuursafhankelijkheid van de SMR in BFO//STO suggereert dat de wFM afneemt met toenemende temperatuur, hetgeen consistent is met DFT-berekeningen. Interessant is dat een versterkt signaal van SMR bij lage temperaturen in BFO//STO, welke wijst op het bestaan van een spin-cycloïde bij dergelijke temperaturen. Net als bij BFO//LAO wordt de wFM onderdrukt als gevolg van een verwaarloosbare antiferrodistortieve rotatie van zuurstof octaëders. Er is echter een correlatie van de spinfluctuaties nabij de Néel-temperatuur, wat leidt tot een SMR-sigitaal ongelijk aan nul. Bovendien is de Néel-temperatuur van ongeveer 360 K voor BFO//LAO, vergeleken met 675 K voor BFO//STO. Boven een temperatuur van 360 K is BFO//LAO paramagnetisch, terwijl onder de 360 K BFO//LAO anti-ferromagnetisch wordt met afnemende temperatuur, wat leidt tot een afnemende SMR-amplitude. Met de SSE als meettechniek worden bij lage temperaturen de bulk antiferromagnetische magnonen gedetecteerd in beide monsters, terwijl het SSE-sigitaal in BFO//STO bijdragen heeft van zowel AFM magnonen als wFM magnonen.

Wanneer grafeen in de nabijheid komt van een antiferromagnetische multiferroïsche BiFeO_3 , opent dit nieuwe mogelijkheden voor de ontwikkeling van op grafeen gebaseerde spintronica. In **hoofdstuk 8** beschrijven we het nabijheidseffect in een heterostructuur van grafeen en BiFeO_3 door het magnetotransport te bestuderen. We schrijven de lineariteit van magnetoresistentie in grafeen bij een hoog magnetisch veld toe aan significante inhomogeniteit in de ladingsdragersdichtheden en -mobiliteiten van grafeen als gevolg van het lokale poorteffect van BFO-domeinen. Wij vinden verder bewijs van de inhomogeniteit door het analyseren van de zwakke lokalisatie. Deze onthult een verschil in fase-coherentietijd langs het grafeenkanaal, dit is een indicator van verschillende domeinconfiguraties in BFO. Uiteindelijk wordt de spinrelaxatietijd, geïnduceerd door de lokale magnetische momenten, afgeleid uit de temperatuurafhankelijke fasecoherentietijd en

blijkt deze 1.2 ps te zijn, waarmee de sterke invloed van het lokale magnetische moment van BFO op het spintransport in grafeen kwantitatief wordt geïllustreerd. Deze bevinding opent een mogelijkheid tot het realiseren van spin-logische apparaten door elektrische aansturing.

