

University of Groningen

Charge and spin transport in Nb-doped SrTiO₃ using Co/AlO_x spin injection contacts

Kamerbeek, Alexander

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:

2016

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

Citation for published version (APA):

Kamerbeek, A. (2016). *Charge and spin transport in Nb-doped SrTiO₃ using Co/AlO_x spin injection contacts*. [Thesis fully internal (DIV), University of Groningen]. University of Groningen.

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

De ontdekking en commercialisatie van de transistor is één van de meest ontwrichtende technologische innovaties in de 20ste eeuw. Bloomberg Businessweek plaatst de transistor als het één na meest ontwrichtende idee van de vorige eeuw en zegt hierover: “De transistor [...] en de mogelijkheid om er miljoenen van te etsen op een microchip is voor de Digitale Eeuw wat de stoom machine was voor de Industriële Revolutie”. Vooral de extreme miniaturisatie van de transistor van tientallen micrometers tot 10 nanometer hedendaags was belangrijk voor dit succes. Deze miniaturisatie heeft geleid tot goedkopere, snellere en energy efficiëntere processoren die apparaten zoals de desktop computer, de laptop en de smartphone mogelijk maakt. Het is echter makkelijk om in te zien dat de strategie van miniaturisatie een fundamenteel limiet heeft: op een gegeven moment zal de lengte schaal die van een enkel atoom bereiken en verdere miniaturisatie onmogelijk maken. Maar zelfs voor dat deze schaal bereikt wordt ontstaan er al serieuze problemen. Dezelfde miniaturisatie die prestatie verbetering met zich mee bracht zorgt voor problemen wanneer de transistor kleiner wordt dan enkele tientallen nanometers: in plaats van energy efficiënter neemt het energy verbruik toe en is het moeilijk om de bijkomende warmte ontwikkeling af te voeren. Daar boven op neemt het aantal toepassingen dat extreem grote hoeveelheden data genereert en die extreem snel verwerkt moet worden toe. Dit vormt een probleem voor de huidige CMOS technologie omdat geheugen en logica ver van elkaar verwijderd zijn. Dit zorg er voor dat de CPU geen data kan verwerken omdat het te lang moet wachten op de communicatie met het geheugen. Om er voor te zorgen dat de toename in rekenkracht en energie efficiëntie van transistoren continueert op de lange termijn zal er dus technologie nodig zijn die stoelt op een ander principe dan CMOS. Niet geheel verrassend wordt naar zulke technologische concepten gerefereerd als beyond-CMOS.

Een grote verscheidenheid aan beyond-CMOS devices wordt onderzocht om de huidige CMOS technologie aan te vullen (in plaats van volledig te vervangen). Spintronische devices vormen een subset van de mogelijke beyond-CMOS technologieën.



Hier wordt in plaats van alleen de elektrische lading ook de puur kwantum mechanische (elektron)spin eigenschap gebruikt om op de één of andere manier geheugen of logica te realiseren. Er bestaan al veel verschillende concepten waarop logica kan worden gerealiseerd op basis van elektron spin maar voordat zulke devices gerealiseerd kunnen worden is er uitgebreid onderzoek nodig. Een belangrijke bouwsteen voor spintronica is spin injectie in een halfgeleider.

Een paar jaar voor de aanvang van dit PhD project (2011) waren er een aantal indrukwekkende ontdekkingen gedaan op het gebied van elektrische injectie en detectie van een spin accumulatie in p- en n-Si met behulp van een *drie kanalen geometrie*. In 2009 realiseerde Dash et al. spin injectie en detectie in p- en n-Si op kamertemperatuur. Bij deze meting trad er echter ook een onverwacht magnetoweerstand effect op: wanneer er een magneet veld werd aangelegd in dezelfde richting als de spin oriëntatie zou er geen spannings verandering moeten optreden, deze werd echter wel gemeten. Dit wekt twijfel over de aard van deze metingen maar in 2011 publiceerde Dash et al. een overtuigende verklaring voor dit onverwachte effect door de theorie van spin injectie en accumulatie uit te breiden. In deze metingen was er echter nog een ander aspect dat inconsistent was met de theorie van spin accumulatie in een halfgeleider: de gemeten spin signalen waren veel groter dan theoretisch verwacht. Dit kon echter begrepen worden door spin accumulatie in grensvlak toestanden mee te nemen zoals naar voren gebracht door Tran et al. Verder zorgde de observatie van Seebeck spin-tunnellen door Le Breton et al. voor nog meer ruchtbaarheid aan de drie-kanaals geometrie als detectie methode voor een spin accumulatie. Al in 2006 was met een drie-kanaals geometrie spin accumulatie gemeten in n-GaAs door Lou et al. en in 2012 slaagde Kasahara et al. er voor het eerst in om dit te meten in n-Ge. Echter in beide gevallen op een temperatuur ver beneden die van kamer temperatuur.

Genspireerd door dit succes was het doel van deze dissertatie om spin injectie te realiseren in een onorthodoxe klasse van materialen: de complexe (transitie-metaal) oxides. Deze materialen bezitten een zeer grote verscheidenheid aan grondtoestanden zoals ferro-magnetisme, ferro-elektriciteit, piezo-elektriciteit, supergeleiding et ectera. Op oxides gebaseerde (spin)elektronica kan dus putten uit een enorme verscheidenheid van materiaal eigenschappen, een aspect dat zeer aantrekkelijk is voor de realisatie van een (spin)transistor met meerdere vrijheidsgraden. Er waren al complexe oxides ontdekt/gemaakt die interessante eigenschappen hebben voor spintronica maar spin injectie in een halfgeleidende complexe oxide was nog niet gerealiseerd. Halfgeleidend SrTiO_3 (strontiumtitanaat) vormt hiervoor een voor de hand liggende keuze aangezien veel oxides er epitaxiaal op gegroeid kunnen worden, het makkelijk halfgeleidend gemaakt kan worden en het een grote en sterk non-lineaire diëlektrische permittiviteit heeft. Het is zelfs mogelijk om een 2 dimensionaal elektron vloeistof (2DEL) te creëren aan het oppervlakte van SrTiO_3 door er een bepaalde niet-geleidende complexe oxide op te groeien zoals LaAlO_3 , binaire oxides zoals $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ of zelfs aan het blote oppervlakte van SrTiO_3 door vacuüm ver-

hitting. Ondanks de relatief lage atoom massa van de atomen in SrTiO_3 is er een grote en elektrisch veldafhankelijk Rashba spin-baan koppeling gemeten, een eigenschap die interessant is voor spintronica.

Deze dissertatie begint met een introductie hoofdstuk waarin ik de interesse en relevantie van spintronica introduceer. Verder bespreek ik zowel de huidige status van spin injectie met behulp van een drie-kanaals geometrie als de huidige stand van zaken in het interpreteren van zulk metingen. Er is in het specifiek aandacht voor mogelijke andere interpretaties van deze metingen en hoe de metingen in deze thesis zich daartoe verhouden.

In hoofdstuk 2 introduceer ik verschillende concepten die worden gehanteerd of belangrijk zijn in de rest van deze dissertatie. Ik introduceer de basis fysica met betrekking tot de formatie van een potentiaal barrière wanneer een metaal en halfgeleider intiem contact maken (de zogenoemde Schottky barrière). Verder beschrijf ik verschillende mechanismes waarmee lading zich door of over zon barrière kan gaken. Aangezien de aanwezigheid van een Schottky barrière over het algemeen een nadelig effect heeft op spin injectie bespreek ik ook hoe het aanbrengen van een dunne niet-geleidende laag op het grensvlak van de metaal en halfgeleider de Schottky barrière kan verlagen en versmallen. Vervolgens introduceer ik een aantal basis concepten gerelateerd aan spintronica zoals de drie-kanaals spin detectie techniek, de formatie van een spin accumulatie en de invloed van ferromagnetische contacten op de spin accumulatie er onder. Ik bespreek een aantal manieren waarop spin-baan koppeling de spin levensduur kan beïnvloeden. Tot slot introduceer ik het concept van de tunnel anisotropische magnetoweerstand (TAMR) hetgeen een belangrijke rol speelt in deze dissertatie.

Zoals eerder genoemd is het beheersen van het grensvlak potentiaal (bijvoorbeeld het verwijderen of verminderen van de Schottky barrière) van groot belang voor de realisatie van spin injectie in een halfgeleider. In hoofdstuk 3 word het ladingstransport via ferromagnetische tunnel contacten op Nb:SrTiO_3 onderzocht. Om het ladingstransport te beheersen brengen we een dunne laag AlO_x aan tussen de ferromagneet en Nb:SrTiO_3 en variëren we de laag dikte. Het invoegen van deze extreem dunne AlO_x laag reduceert de hoogte en breedte van de Schottky barrière en zorgt voor een afname in de junctie weerstand. De aard van de elektronen geleiding veranderd van thermisch geassisteerde veld emissie naar pure veld emissie als de AlO_x laag een dikte van ~ 1.1 nm heeft. Er is dan echter nog wel sprake van een ruimte-ladings regio in de halfgeleider wat van belang is in het volgende hoofdstuk. Om deze observatie te kwantificeren hebben we een elektrostatisch model ontwikkeld dat het potentiaal aan het metaal/niet-geleider/ $n\text{-SrTiO}_3$ kan beschrijven door gebruik te maken van een empirische relatie van de temperatuur en elektrisch veld afhankelijke diëlektrische permittiviteit van $n\text{-SrTiO}_3$. Hierin laten we zien dat de gemeten verlaging van de Schottky barrière, door middel van het invoegen van de AlO_x laag, consistent is met het elektrostatische model. Het model voorspelt ook



dat het grensvlak potentiaal een ingewikkelde afhankelijkheid heeft wanneer de temperatuur en spanning worden veranderd. Deze observatie heeft belangrijke gevolgen voor het lading en spin transport door het grensvlak en wordt verder besproken in hoofdstukken 4, 6 en 7.

In hoofdstuk 5 demonstreren we de realisatie van een spin accumulatie aan het grensvlak van Nb:SrTiO₃ met Co/AlO_x (11 Å) spin injectie contacten. We demonstreren een sterke invloed van het ingebouwde elektrische veld, dicht bij het grensvlak, op de spin levensduur welke gevarieerd kan worden tussen de 2.5 en 17.5 ps. De manipulatie van het ingebouwde elektrische veld, door een spanning aan te leggen over het grensvlak, heeft een grote verandering in de spin levensduur en zijn anisotropie tot gevolg. We laten zien dat dit gedrag consistent is met een theoretisch model dat het omklap kans van een spin door de strekte van de Rashba spin-baan velden te veranderen berekent. Een zelfde soort controle over de spin levensduur en zijn anisotropie kan gerealiseerd worden door gebruik te maken van de elektroweerstands eigenschappen van dezelfde junctie. Het gebruik van de elektroweerstand om de spin levensduur te bepalen maakt het in principe mogelijk om niet-vluchtige (non-volatile) controle te hebben over de spintoestand. Hoofdstuk 5 bespreekt de devices van het vorige hoofdstuk in meer detail. De invloed van de gekozen fit functie, met of zonder spin diffusie, waarmee verscheidene parameters uit de metingen kunnen worden bepaald wordt besproken. Het gebruik van een fit functie die spin diffusie meeneemt resulteert in een grotere spin levensduur, een groter spin voltage en een grotere waarde van de spin voltage anisotropie. Echter, de trend van deze parameters als functie van de aangelegde spanning is hetzelfde voor beide fit functies. Verder wordt de magnetoweerstand afhankelijkheid van de junctie besproken wanneer er een magnetoveld wordt aangelegd parallel aan het oppervlakte. Dit laat zien dat er een geïnverteerd-Hanle effect aanwezig is in de gemeten juncties. Door de aanwezigheid van additionele magnetoweerstands effecten (op zowel zeer hoge als zeer lage magnetoveld sterkte) is het niet mogelijk om een betrouwbare waarde van de spin levensduur te bepalen via deze metingen. Echter, de amplitude van dit een geïnverteerd-Hanle effect laat een duidelijke correlatie zien met de interpretatie van de data zoals gepresenteerd in hoofdstuk 4. Ook bespreek ik de invloed van TAMR en laat zien dat wanneer TAMR aanwezig is het onmogelijk is om een unieke waarde voor de amplitude van de spin accumulatie die uit het oppervlakte wijst te bepalen. Ik beargumenteer dat, voor de metingen in hoofdstuk 4, de aanwezigheid van TAMR niet kan worden uitgesloten maar dat deze klein moet zijn ten opzichte van het spin signaal.

Het is recent duidelijk geworden dat het interpreteren van magnetoweerstand meting met een drie-kanaals geometrie als zijnde bewijs voor een spin accumulatie complexer is dan werd gedacht. De grote van het spin signaal is vaak niet in lijn met de theoretisch verwachte waarde maar meestal vele orders groter. Veel van deze meting vinden ook een zelfde waarde voor de spin levensduur van ongeveer ~ 150 ps,

ongeacht de ladingsdichtheid of het materiaal van de halfgeleider. Om deze merkwaaardige observaties te verklaren is er recent voorgesteld dat deze metingen niet een spin accumulatie meten maar dat een ander magnetoweerstand effect ten grondslag ligt aan de metingen. Dit effect wordt *impurity assisted Tunneling Magnetoresistance* (iaTMR) genoemd. Dit effect beschrijft veel van de merkwaaardige observaties van de metingen correct: een Lorentzvormig magnetoweerstand effect (onafhankelijk van de magneet veld richting), een lijnbreedte die gelijkstaat aan een spin levensduur van ~ 150 ps en de mogelijkheid tot signaal groottes die veel groter zijn dan die verwacht voor spin accumulatie. Een belangrijke voorwaarde voor dit effect is echter dat er ladingstransport plaats vindt via grensvlak toestanden (die meestal in de niet-geleidende tunnel barrière zitten). In een literatuur overzicht laat ik zien dat er voor juncties die: geen oxide tunnel barrière hebben, geen magnetoweerstand effect voor een magneetveld langs het oppervlak hebben maar wel lijnbreedtes hebben die gelijkstaan aan een spin levens duur groter dan 1 ns ook spin signalen groottes worden gemeten die velen malen groter (of kleiner) zijn dan theoretisch verwacht. Dit betekend dat deze meting inconsistent zijn met zowel spin accumulatie modellen als het iaTMR model.

In hoofdstuk 6 onderzoeken we de elektro- en magnetoweerstand effecten voor Co/Nb:SrTiO₃ juncties. We laten zien dat een TAMR effect en een elektroweerstand effect gelijktijdig bestaan in deze juncties. Het TAMR effect laat een maximale amplitude zien van 1.7% op kamertemperatuur, wat aanzienlijk groter is dan de waarden die gepubliceerd zijn voor juncties met meer gebruikelijke elektrodes zoals goud, platium, tantalum of n-GaAs. Het voltage waarop de maximale TAMR optreed (-75 mV) is ook aanzienlijk hoger, hetgeen praktisch is voor toepassingen. Naast TAMR bezitten de Co/Nb:SrTiO₃ juncties ook een electroweerstand effect met een aan/uit ratio van 80 op lage uitleesspanning. Het TAMR effect is slechts zwak afhankelijk van de electroweerstandstaat van de devices wat het mogelijk maakt om simultaan informatie op te slaan met zowel spin (of magnetisme) als lading. De grote amplitude van het TAMR effect wordt toegeschreven aan de grootte permittiviteit van Nb:SrTiO₃ en mogelijk ook aan het *d*-band karakter van zowel cobalt als SrTiO₃. Het electroweerstand effect is hoogstwaarschijnlijk afkomstig van de migratie van ionische lading dichtbij het grensvlak welke de Schottky barrière beïnvloed. De devices in de huidige studie zijn waarschijnlijk ver van optimaal en geven genoeg ruimte voor verbetering voor zowel de TAMR als de electroweerstand effect grote. Mogelijke manieren om dit te bewerkstellingen is via modificatie van de Schottky tunnel barrière, de stoichiometrie van Nb:SrTiO₃ en het gebruik van andere ferromagnetische materialen.

De temperatuur afhankelijkheid van de devices beschreven in hoofdstuk 4 en 5 alsmede de devices met een 7 \AA dikke AlO_x barrière wordt onderzocht in hoofdstuk 7. De grote van het spin signaal neemt met ongeveer een orde grote af op lage temperatuur. Ook wordt de aanwezigheid van TAMR duidelijke zichtbaar wanneer de juncties worden afgekoeld. Op temperaturen onder de ~ 130 K, en in een bepaald



voltage regime, wordt het spin signaal zelfs negatief. Dit suggereert dat de polarisatie van de spin accumulatie is omgedraaid. Het voltage regime waar het signaal negatief is wordt groter naarmate de temperatuur wordt verlaagd. Echter, op alle temperaturen wordt er weer een positief signaal gemeten boven een bepaalde positieve spanning. De spin levensduur van de spins die evenwijdig georiënteerd zijn aan het oppervlakte neemt iets toe tot aan ~ 35 ps op 4 K en 1.2 V. Vergelijkbaar gedrag wordt geobserveerd voor de juncties met de dunner 7 \AA AlO_x barrière. Al de bestudeerde junctie laten vergelijkbaar gedrag zien. Om dit zeer uniforme gedrag te verklaren poneren we dat het wordt gestuurd door de Schottky barrière die van vorm verandert wanneer de temperatuur en de spanning wordt gevarieerd. Deze temperatuur afhankelijkheid vindt zijn oorsprong in het niet-lineaire karakter van de diëlektrische permittiviteit van Nb:SrTiO_3 . Aangezien de vervorming van de Schottky barrière volledig wordt bepaald door de diëlektrische permittiviteit kan een universele, temperatuur afhankelijke, inversie van het spin signaal worden verwacht zolang als de spins door een ruimte-ladings regio worden geïnjecteerd met een groot genoeg elektrisch veld. Dit mechanisme is niet aanwezig in lineaire diëlektrica zoals de conventionele halfgeleiders.