

University of Groningen

Spin transport in graphene - hexagonal boron nitride van der Waals heterostructures

Gurram, Mallikarjuna

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:

2018

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

Citation for published version (APA):

Gurram, M. (2018). *Spin transport in graphene - hexagonal boron nitride van der Waals heterostructures*. [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

In de tweede helft van de vorige eeuw waren we getuige van een revolutie in de micro-elektronische technologie richting digitale elektronica, van de uitvinding van de transistor naar de krachtige microprocessorchips in onze computers en smartphones. De elektronische schakelingen in deze apparaten drukken de gegevens uit als binaire cijfers of bits, 0 en 1. Deze technologie heeft in de loop der jaren een miljardenindustrie gecreëerd welke voortdurend bezig is om de elektronische apparaten steeds kleiner te maken, zodat ze in onze broekzakken passen. Dit is het gevolg van steeds het vervaardigen van meer logica-devices in elke chip. Op dit moment (2017) naderen we het einde van de Wet van Moore, omdat de afmetingen van een individueel bit de dimensie van atomen, 1 nanometer, nadert. In dergelijke compacte devices is het omgaan met de vermogensdissipatie een uitdaging.

Om de huidige uitdagingen van micro-elektronische apparaten, zoals de vermogensdissipatie en downscaling te overwinnen, hebben onderzoekers een extra intrinsieke eigenschap van het elektron onderzocht, genaamd spin (een puur kwantummechanische eigenschap). De spin van een elektron lijkt ruwweg op het draaien van een tol of op het richtingsgedrag van een kompasnaald. De tol of kompasnaald kan met de klok mee of tegen de klok in draaien, wat overeenkomt met de spin van het elektron die opwaartse en neerwaartse spinrichtingen heeft ten opzichte van het magnetische veld. Een voordeel van spin tegenover de lading van een elektron is dat de spin van een elektron informatie kan dragen die kan worden gemanipuleerd door een extern magnetisch veld zonder hierbij vermogen te dissiperen. De allereerste toepassingen van dit relatief nieuwe onderzoeksveld, Spintronica genaamd, zijn al ontstaan en op de markt gebracht. De eigenschappen van elektronenspins zijn bijvoorbeeld al in gebruik in magnetische sensoren en magnetische RAM-geheugens in de harde schijven van onze alledaagse elektronische apparaten.

Om de uitdagingen met downscaling of het miniaturiseren van de spintronische devices van de volgende generatie te overwinnen, verkennen onderzoekers bovendien nieuwe soorten materialen die de beweging van spins over grote afstanden en

lange duur kunnen faciliteren. Grafeen, een één-atoom dikke tweedimensionale laag koolstofatomen, ontdekt in het begin van deze eeuw, is veelbelovend voor spintronica-toepassingen vanwege de voorspellingen van een grote spintransportlengte en een lange spin-relaxatietijd in dit materiaal. In de praktijk is het transport van spins in grafeen echter moeilijk door randomisatie van spins na een korte tijd, en de huidige onderzoeksgemeenschap is gericht op het vinden van de problemen en het overwinnen van de uitdagingen die gesteld worden voor dergelijke lage prestaties van op grafeen gebaseerde spintronica-devices.

Het is bijna een decennium geleden sinds de eerste demonstratie van spintransport dat relatief kleine spinrelaxatietijd en spindiffusielengtes liet zien. De daaropvolgende inspanningen op dit gebied suggereren dat het onderliggende substraat, onzuiverheden op het oppervlak van grafeen en de kwaliteit van de contacten een cruciale rol spelen bij het beïnvloeden van de transporteigenschappen. Het onderzoekswerk dat gepresenteerd wordt in dit proefschrift draagt bij aan het volledig aanpakken van deze problemen met behulp van een nieuw type device-geometrie.

Dit proefschrift presenteert als eerste een nieuwe device-structuur voor grafeen-spintronica waarbij grafeen volledig is ingekapseld tussen twee hexagonale boornitride (hBN) -lagen om de uitdagingen te overwinnen als gevolg van het substraat, het effect van contacten en de inhomogeniteit in de lading en de eigenschappen van spintransport.

Verschillende experimenten suggereren dat de kwaliteit van ferromagnetische tunnelcontacten die bestaan uit ferromagneet (FM)/tunnelbarrière/grafeenovergangen een belangrijke factor is die het spintransport in grafeen beperkt. In Hoofdstuk 5 hebben we geprobeerd dit probleem aan te pakken met een enkele laag hBN-tunnelbarrière in plaats van de conventionele oxidebarrières. Bovendien voorkomt dezelfde tunnel-barrièrelaag dat het onderliggende grafeen in contact komt met de lithografische verontreinigingen als gevolg van de lithografische processen.

De gepresenteerde ladingstransportkarakteristieken van dit device laten zien dat de verkregen ladingsmobiliteitswaarden dicht bij elkaar liggen voor verschillende gebieden van het ingekapselde grafeen. De spintransportmetingen resulteerden in consistente spinrelaxatieparameters die niet veel verschillen voor de verschillende gebieden van het ingekapselde grafeen. Daarnaast hebben we ook spintransport waargenomen over een grafeenkanaal van $12,5 \mu\text{m}$ dat is ingekapseld onder een monolaag hBN-tunnelbarrière, zelfs in de aanwezigheid van geleidende elektroden, wat de pin hole-vrije aard van hBN en de schone interface van hBN met grafeen aangeeft.

Deze resultaten duiden op het potentieel van het gebruik van hBN als substraat en als tunnelbarrière voor het onderzoeken van de intrinsieke spintransporteigenschappen van grafeen in een schone omgeving. Vanwege het R_cA -product met relatief lage interfaceweerstand, met monolaag-hBN-barrières, is er echter behoefte aan een hoger aantal hBN-lagen voor niet-invasieve spininjectie en -detectie. De waarde van

het $R_c A$ -product kwantificeert de terugstroming van spins naar de FM. Bovendien worden grote spin-injectiepolarisaties voorspeld in FM/hBN/grafeensystemen als een functie van de bias met toenemend aantal hBN-lagen.

Biasing van ferromagneet/dun-hBN/grafeensystemen is niet onderzocht in de literatuur, terwijl wordt voorspeld dat het interessante eigenschappen vertoont op het gebied van het creëren van elektrische velden, elektrostatische 'gating' van het grafeen en mogelijke inducering van splitsing van energiestaten door magnetische exchange interactie in grafeen. Om dergelijke verschijnselen te onderzoeken, onderzoeken we in Hoofdstuk 6 hoe de differentiële spin-injectie en detectiepolarisaties afhankelijk zijn van het elektrische veld dat wordt aangebracht over de kobalt/bilaag-hBN/grafeen-tunnelingcontacten. Onze spintransportmetingen bij kamertemperatuur onthullen verrassend grote bias-geïnduceerde differentiële spininjectie en detectie-polarisaties tot $\pm 100\%$, en een unieke tekeninversie van polarisaties in de buurt van nul bias.

Gebruikmakend van de grote waarden van spin-injectie en detectiepolarisaties, demonstreren we een tweepolige spin-valve met een recordomvang van de differentiële geïnverteerde spinsignalen tot 800Ω en een magnetoweerstandratio van $2,7\%$. Bovendien zien we ook duidelijk bewijs van spintransport in de twee-terminal meetgeometrie via Hanle-spinprecessie-metingen met behulp van de bilaag-hBN-tunnelbarrièrecontacten, beschreven in Hoofdstuk 8. Dit is de eerste demonstratie van een Hanle-sigitaal met twee terminals en deze resultaten zijn technologisch wenselijk voor praktische grafeen-spintronische toepassingen.

We geven ook suggesties om de tweepolige magnetoweerstand signalen nog verder te verbeteren en de spin-accumulatie in grafeen te verbeteren bij temperaturen boven kamertemperatuur, $k_B T$, waardoor een volledig nieuw regime ontstaat om het spintransport in grafeen te bestuderen. Deze resultaten geven het unieke karakter van dubbellaags hBN-tunnelbarrières aan voor het bereiken van ongekende grote spin-injectie en detectiepolarisaties in grafeen in een volledig hBN-ingekapselde omgeving. Verder is een tweepolig spin-valve-effect met dergelijke gecontroleerde waarden van de grote spinaccumulatie en hoge magnetoweerstandratio een stap dichterbij het realiseren van praktische op grafeen gebaseerde spin-veldeffecttransistors.

Tot dusverre gebruikten we geëxfolieerd hBN als een barrière voor elektrische spin-injectie en -detectie. Dit materiaal is van hogere kwaliteit en kan gemakkelijk worden verkregen door herhaaldelijk afpellen van lagen van hBN-kristallen tot de mono-, bi- of tri-lagen. Voor toekomstige toepassingen op industriële schaal is het echter van belang om materialen met groot oppervlak met chemical vapour deposition (CVD) te produceren. In dit verband bestuderen we in Hoofdstuk 7 de elektrische spininjectie in grafeen met behulp van een laag-voor-laag gestapelde bilaag CVD-gegroeiende hBN-tunnelbarrière.

Van ferromagnetische contacten met CVD-gegroeiende hBN-tunnelbarrières met groot oppervlak wordt gemeld dat deze een hoge spininjectiepolarisatie in grafeen hebben. Er is ook gerapporteerd dat hoge mobiliteit-grafeen op een hBN-substraat

spintransport over lange afstand vertoont. In dit hoofdstuk bespreken we de mogelijkheid om hoge mobiliteit-grafeen op een hBN-substraat te combineren met een tweelaags-CVD-hBN-tunnelbarrière met groot oppervlak voor efficiënt spintransport.

We zien lage mobiliteit en kleine spin-relaxatietijd in onze devices, vanwege de gedegradeerde kwaliteit van grafeen door de traditionele op polymeer gebaseerde overdracht van CVD-hBN. We vinden ook zowel positieve als negatieve differentieële spinpolarisaties voor tweelaags CVD-hBN-barrièrecontacten. Bovendien, in tegenstelling tot geëxfolierd-hBN-barrièrecontacten welke worden beschreven in Hoofdstuk 6, verandert het teken van de spinpolarisatie niet binnen het bereik van $\pm 0,3$ V bias, en de grootte ervan neemt alleen toe bij grote negatieve biaswaarden. Deze kenmerken markeren een onderscheid tussen de uit twee lagen bestaande CVD-hBN en de bilaag-geëxfolierde hBN-tunnelbarrières beschreven in Hoofdstuk 6.

Een grote mate van spinpolarisatie tot 15% bij een bias van -0,2 V voor tweelaags CVD-hBN-barrières wijst op het potentieel van het gebruik van CVD-hBN-tunnelbarrière voor grote schaal spintronica toepassingen. Gezien de verkregen resultaten, benadrukken we bovendien dat, naast de dikte van de tunnelbarrière, andere parameters een belangrijke rol spelen bij het bepalen van de spin-tunnelingkenmerken zoals de kwaliteit en de relatieve uitlijning van twee monolagen van hBN. Op basis van deze resultaten onderzoeken we de fundamentele aard van de spin-injectie via een CVD-hBN-tunnelbarrière die belangrijk is voor de spintronica-gemeenschap en biedt ook een dieper inzicht in de mogelijkheid om grote schaal CVD-hBN te gebruiken voor toekomstige commerciële toepassingen.

Concluderend, de resultaten die gepresenteerd worden in dit proefschrift vertegenwoordigen belangrijke ontwikkelingen in het begrijpen van de aard van spintransport in grafeen en spin-injectie via hBN-barrières. Dit inzicht zal zeker helpen bij het overwinnen van de uitdagingen bij het realiseren van praktische spintronische devices gebaseerd op grafeen-hBN-van der Waals-heterostructuren.

In het licht van de groeiende interesse in grafeen-spintronica, bekijken we in Hoofdstuk 8 de vooruitgang die is geboekt om de huidige status van grafeen-spintronica-onderzoek te bereiken met betrekking tot het vinden van een geschikt substraat voor effectief spintransport en een tunnelbarrière voor efficiënte spininjectie en detectie. We bespreken ook de recente state-of-the-art bevindingen over spintransport in grafeen-hexagonale boornitride-heterostructuren en bepalen huidige uitdagingen voor het realiseren van het ware potentieel van spintransport in grafeen. We geven onze ideeën op wat hBN inhoudt voor het maken van heterostructuren met grafeen voor het verkennen van interessante fysica en het realiseren van op spin gebaseerde device-toepassingen.