

03,05,13

Полупроводниковое латеральное спиновое устройство с электродами из полуметаллического ферромагнетика

© Н.А. Виглин¹, В.М. Цвелиховская¹, С.В. Наумов¹, А.О. Шорилов^{1,2}, Т.Н. Павлов¹

¹ Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, Россия

² Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия

E-mail: viglin@imp.uran.ru

Поступила в Редакцию 10 августа 2020 г.

В окончательной редакции 10 августа 2020 г.

Принята к печати 12 августа 2020 г.

В полупроводниковом спиновом устройстве с электродами, сформированными из пленки полуметаллического ферромагнетика Fe_2NbSn , достигнуты значения спиновой поляризации электронов, инжектированных в полупроводник InSb , $P_S = 4\%$. Это соответствует максимально возможной P_S для прозрачных контактов полупроводника и ферромагнетика, в котором поляризация $P_F = 95\%$. Показано, что для эффективной инжекции спин-поляризованных электронов из ферромагнетика в полупроводник необходимо применять ферромагнетик, поляризация электронов в котором 100% или формировать в интерфейсе дополнительный слой с высоким сопротивлением.

Ключевые слова: спиновая поляризация, полупроводники, спиновая инжекция, полуметаллические ферромагнетики.

DOI: 10.21883/FTT.2020.12.50207.167

1. Введение

Спиновую поляризацию электронов проводимости в проводящих материалах принято обозначать $P_\lambda = (n_{\lambda\uparrow} - n_{\lambda\downarrow}) / (n_{\lambda\uparrow} + n_{\lambda\downarrow})$, где индекс λ обозначает тип материала, например, F — для ферромагнитного металла или S — для полупроводника, $n_{\lambda\uparrow}$ и $n_{\lambda\downarrow}$ — плотности электронов со спином „вверх“ и со спином „вниз“ в соответствующих материалах. Стрелкой \uparrow обозначено направление оси квантования, совпадающее с направлением внешнего магнитного поля, \downarrow — противоположное направление. Одним из методов создания спиновой поляризации в полупроводниках является электрическая инжекция спин-поляризованных электронов из F в S. Для успешной инжекции спин-поляризованных электронов необходимы ферромагнетики, обладающие высокой P_F собственных электронов проводимости, а инжекция через интерфейс F/S должна быть эффективной, такой чтобы величина поляризации электронов в полупроводнике $P_S \approx P_F$. В ферромагнитных металлах и сплавах величина P_F , не превышает нескольких десятков процентов. Например, в железе $P_F \approx 40\%$ [1]. В „прозрачных“, без диэлектрических прослоек между F и S контактах, эффективность инжекции существенно подавлена ($P_S \ll P_F$) вследствие большой разницы величины электропроводности этих материалов. Это, так называемая проблема несовместимости проводимостей (conductivity mismatch) [2]. Эту проблему можно обойти, разместив в интерфейсе туннельный барьер или барьер Шоттки, проводимость которого много ниже проводимостей S и F. Например, для контакта Fe/барьер Шоттки/GaAs

была получена спиновая поляризация электронов $P_S \approx 16\%$ [3], а в контакте $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}/\text{MgO}/\text{InSb}$ удалось достичь $P_S \approx 25\%$, практически равную спиновой поляризации P_F в инжекторе $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$ [4]. Чтобы получить более высокие значения P_S , электронов инжектированных в S из F, необходимы ферромагнитные материалы, в которых спиновая поляризация электронов P_F выше, чем в ферромагнитных металлах. К таким материалам относятся ферромагнитные полупроводники [5], а также полуметаллические ферромагнетики (НМФ) [6]. P_F в этих материалах, в рамках ряда допущений, таких как идеальная кристаллическая структура и химический состав, температура 0 К и других, может быть полной или близкой к 100%. В соответствии с теорией несовместимости проводимостей [2], в „прозрачных“ F/S контактах с такими материалами, спиновая инжекция весьма эффективна, но эффективность быстро падает при отклонении величины P_F от 100%. В связи с этим, экспериментальное исследование реальной степени поляризации электронов в инжекторе из такого материала, является актуальной задачей. Стимулом для исследования контактной пары „F ($P_F \approx 100\%$)/S“ так же является перспектива достижения высоких значений P_S электронов, инжектированных в полупроводник.

Полуметаллические ферромагнетики (НМФ) были обнаружены при изучении электронной структуры сплавов Гейслера [6]. Большинство сплавов Гейслера относятся к группе тройных интерметаллидов со стехиометрическим составом XYZ или X_2YZ , упорядоченных в структурах типа $C1_b$ или $L2_1$, соответственно. X и Y

являются переходными металлами, а Z обычно является основным элементом. Y также может быть заменен редкоземельным элементом. Структура $L2_1$ состоит из примитивной ГЦК решетки с базой из четырех атомов. В кристаллографии $L2_1$ относится к типичной структуре типа X_2YZ , обозначенной согласно номенклатуре *strukturbericht*, где атомы Y и Z занимают взаимопроницающие позиции ГЦК, а атомы X занимают симметрично тетраэдрические позиции в кубической структуре. Очевидно, что комбинаций элементов, образующих сплавы Гейслера, весьма много. Часть этих возможных соединений элементов уже существует в виде сплавов, состав которых отвечает требованиям, предъявляемым к сплавам Гейслера, однако, есть комбинации атомов, формально „пригодных“, для того что бы образовать сплав Гейслера, но пока еще не существующих в виде реальных соединений. Заметим, что только некоторые из сплавов Гейслера проявляют свойства полуметаллических ферромагнетиков. Эти свойства для существующих соединений исследуются экспериментально, однако могут быть предсказаны на основе первопринципных расчетов. Характеристики существующих НМФ обсуждаются в обзоре [7]. Для того чтобы в полуметаллических ферромагнетиках достигались высокие значения спиновой поляризации электронов необходимо, что бы они были стехиометрического состава и структурно упорядочены. Отсюда вытекают требования к свойствам сплава Гейслера, который предполагается применять в качестве инжектора спин-поляризованных электронов в S . Во-первых, сплав должен обладать свойствами НМФ, что предварительно может быть установлено зонными расчетами. Во-вторых, рассогласование параметров кристаллических решеток сплава и S должно быть минимальным. Близость значений величины параметров решеток НМФ и S значительно увеличивает вероятность „правильного“ структурного упорядочения пленки НМФ при ее термообработке после осаждения. Если пленка НМФ синтезируется на полупроводнике $InSb$, (параметр решетки которого $a = 6.47877 \text{ \AA}$ [8]), то параметр решетки НМФ должен быть такой же или близкой величины, а температура отжига пленки, при которой происходит структурное упорядочение не должна превышать 400°C [8].

Целью настоящей работы был выбор состава НМФ с указанными свойствами, синтез пленки из этого материала непосредственно на поверхности $InSb$ (без промежуточного диэлектрического слоя) и исследование характеристик спиновой инжекции в спиновом устройстве с электродами из НМФ.

2. Методы эксперимента

Одним из способов синтеза тонких пленок многокомпонентных соединений, таких как сплавы Гейслера, является метод магнетронного распыления мишеней, изготовленных из сплавов соответствующего состава.

Нам не удалось найти сплавы Гейслера со свойствами НМФ, параметр решетки которых был бы в точности равен $a = 6.48 \text{ \AA}$, поэтому мы исследовали возможность приготовления мишеней из сплавов, параметр решетки которых наиболее близок к параметру a в $InSb$. Мишени из ферромагнитных материалов, устанавливаемые в магнетрон, представляют собой тонкие диски диаметром $50\text{--}60 \text{ mm}$. Толщина этих дисков не более $2\text{--}2.5 \text{ mm}$, поскольку диски с большей толщиной не удастся намагнитить перпендикулярно плоскости так, чтобы магнетрон работал в оптимальном режиме. Сплавы Гейслера, как и большинство интерметаллидов, обладают высокой твердостью, весьма хрупкие и трудно поддаются механической обработке. Поэтому изготовление мишеней из этих материалов непростая технологическая задача. Была предпринята попытка сделать мишени из Ni_2MnAl ($a = 5.824 \text{ \AA}$) и Ni_2MnSn ($a = 6.052 \text{ \AA}$) методом прессования порошков, изготовленных из соответствующих сплавов путем их размалывания в шаровой мельнице. Порошки смешивались с поливиниловым спиртом для связки крупинок порошка, прессовались при давлении порядка 10^5 kPa в цилиндрической матрице диаметром 50 mm , затем спекались в атмосфере аргона при $T = 500^\circ\text{C}$ в течение 3 h . Этим способом удалось получить диски диаметром 50 mm и толщиной 2 mm . Однако, для применения в качестве мишеней эти диски оказались непригодны, поскольку вскоре после зажигания в магнетроне плазмы происходила интенсивная эрозия поверхности мишени и её разрушение на мелкие фрагменты.

Чтобы разрешить проблему изготовления мишени из хрупких интерметаллидов была предпринята попытка синтезировать пленки путем магнетронного распыления компонентов сплава из мозаичной мишени. Мы попытались синтезировать пленки сплавов $Co_2Cr_{0.6}Fe_{0.4}Al$ ($a = 5.81 \text{ \AA}$) [9] и Fe_2NbSn ($a = 6.08 \text{ \AA}$) [10]. Следует заметить, что значение параметра решетки $a = 6.08 \text{ \AA}$ для сплава Fe_2NbSn было вычислено теоретически исходя из равновесного объема элементарной ячейки, так как литературных данных о величине этого параметра нет. Для этого значения a в приближении GGA (приближение обобщенной градиентной поправки) была рассчитана величина поляризации $P_F = 94.324\%$. Впоследствии после синтеза и структурирования пленки этого сплава, значение параметра решетки $a = 5.78 \text{ \AA}$ было вычислено на основании данных рентгеноструктурного анализа. Величина поляризации $P_F = 94.683\% \approx 95\%$, соответствующая скорректированному параметру a даже незначительно возросла. Значения параметров a для пленок $Co_2Cr_{0.6}Fe_{0.4}Al$ и Fe_2NbSn оказались близкими по величине, но предпочтение было отдано Fe_2NbSn , поскольку в экспериментах по структурированию пленок кристаллическая структура в Fe_2NbSn появлялась после отжига при сравнительно низкой температуре $T = 200^\circ\text{C}$. В пленках $Co_2Cr_{0.6}Fe_{0.4}Al$ кристаллическая структура возникала после отжига при $T > 500^\circ\text{C}$. При такой температуре вероятно разложение полупроводника $InSb$.

Исследования величины спиновой поляризации электронов, инжектированных в полупроводник InSb из полуметаллического ферромагнетика Fe₂NbSn, проводились в латеральном спиновом устройстве, подобном описанному в [11], и сфабрикованном на грани (100) пластины InSb с концентрацией электронов $n = 1.2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Перед напылением пленки НМФ на поверхность пластины InSb наносился слой фоторезиста, в котором формировалось окно размером $0.05 \times 1.8 \text{ mm}$. Фоторезист задубливался при температуре 200°C и на него наносился второй слой фоторезиста. Методами фотолитографии во втором слое создавались окна в форме узких полос, пересекающих под прямым углом окно в первом слое фоторезиста, и с размерами, соответствующими размерам запланированных ферромагнитных контактов. После этого, не закрытые вторым слоем фоторезиста участки поверхности пластины очищались ионным травлением в атмосфере Ar. Затем методом магнетронного распыления мозаичной мишени на поверхность пластины последовательно наносились слой Fe₂NbSn (60 nm) и защитный слой Ta (3 nm). На следующем этапе методом срыва удалялась пленка НМФ вместе со вторым слоем фоторезиста, а оставшиеся на поверхности пластины полоски Fe₂NbSn подвергались отжигу в вакууме при $T = 200^\circ\text{C}$ в течение 4 часов. Затем методом фотолитографии формировались контактные площадки и токоподводящие дорожки от этих площадок к ферромагнитным контактам. Размеры и расположение контактов в спиновом устройстве аналогичны размерам устройства, подробно описанного в работе [11]. Химический состав пленок НМФ контролировался рентгеноспектральным микроанализом. Для определения состава использовались пленки, изготовленные одновременно с образцом, но напыленные на подложки из полистирола. В нашем спиновом устройстве состав пленки сплава Гейслера Fe₂NbSn в атомных процентах оказался 55:23:22, то есть с небольшим отклонением от стехиометрического состава 50:25:25. Для оценки эффективности спиновой инжекции производилось измерение спин-индуцированного напряжения, возникающего на детекторе при эффекте Ханле. Методика регистрации этого напряжения подробно изложена в работе [4]. Напряжение на детекторе $V(B)$ при эффекте Ханле зависит от взаимной намагниченности детектора и электронного газа вблизи детектора. Направление интегральной намагниченности электронов управляется поперечным магнитным полем, закручивающим с частотой Лармора магнитные моменты электронов. Этот метод измерения позволяет выделить разность сигналов, соответствующих параллельной намагниченности детектора и газа электронов, когда $B = 0$ и тогда, когда намагниченность электронного газа направлена не параллельно намагниченности детектора и подавлена за счет расфазировки направлений магнитных моментов электронов, диффундирующих с разной скоростью в $B \neq 0$. Зависимость спин-индуцированного напряжения $V(B, d)$ от величины поперечного магнитного поля B и расстояния между инжектором и детектором

d описывается уравнением, приведенным в работе [4]:

$$V(B, d) = \pm(1/e)P_S P_S k_B T \cdot \exp(-d \cdot \alpha/L_S) \times [(\alpha \cdot \cos(d \cdot \beta/L_S) - \beta \cdot \sin(d \cdot \beta/L_S))/(\alpha^2 + \beta^2)]$$

$$\alpha = [(1 + (\omega_L \tau_S)^2 + 1)^{1/2}/2]^{1/2},$$

$$\beta = [(1 + (\omega_L \tau_S)^2 - 1)^{1/2}/2]^{1/2}. \quad (1)$$

Здесь $P_S = P_j \tau_S \cdot J/n_S \cdot eL_S$ — спиновая поляризация в S, n_S — плотность электронов в S; $P_j = J_s/J$ — поляризация тока; $J = I/A$ — плотность тока, где I — ток, протекающий через инжектор с площадью A ; J_s — плотность тока спинов, протекающих через инжектор; e — заряд электрона; k_B — постоянная Больцмана; τ_S — время спиновой релаксации в S; L_S — длина спиновой диффузии в S; $\omega_L = g \cdot \mu_B \cdot B/\hbar$ — частота ларморовой прецессии спинов электронов в S, g есть g -фактор электронов проводимости в S, μ_B — магнетон Бора, \hbar — постоянная Планка.

При расчете производится подгонка теоретической зависимости напряжения $V(B, d)$ к экспериментальной полученной. Подгоночными параметрами являются L_S , τ_S и P_j . После подгонки параметров вычисляется значение P_S .

3. Результаты и выводы

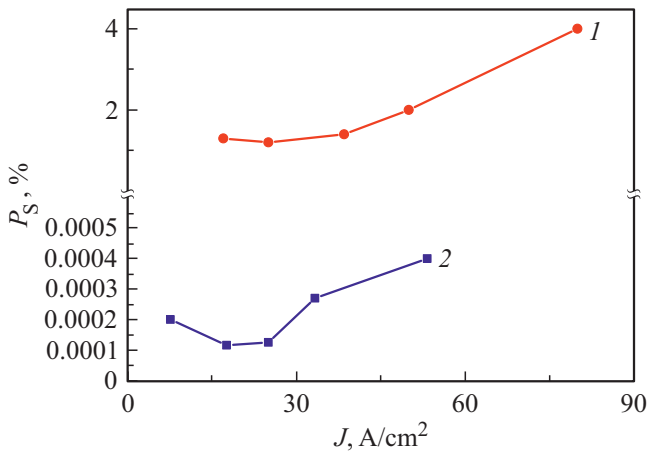
На рисунке изображена зависимость величины спиновой поляризации в полупроводнике P_S от плотности тока J в инжекторе, вычисленная с помощью выражения (1). Кривая 1 соответствует измерениям, сделанным вскоре после изготовления устройства. Значение поляризации P_S изменялось от 1.3% до 4% при изменении плотности тока в инжекторе J от 17 до 80 А/см². На кривой 2 отображены данные полученные через несколько месяцев после изготовления устройства.

Величина P_S катастрофически снизилась и составила приблизительно $3 \cdot 10^{-4}\%$.

Оценим величину P_S с помощью выражения, полученного в работе [2] для модели прозрачных контактов между полупроводником и двумя ферромагнитными электродами.

$$P_S = P_F(L_F/x_0)(\rho_F/\rho_S) \times [2/(2(L_F/x_0)(\rho_F/\rho_S) + 1) - P_F], \quad (2)$$

где $L_F = 10^{-6} \text{ cm}$ — длина спиновой диффузии в ферромагнетике [2], $x_0 = 10^{-4} \text{ cm}$ — толщина S, $\rho_F = 370 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$ — удельное сопротивление пленки Fe₂NbSn [10], $\rho_S = 0.0053 \Omega \cdot \text{cm}$ — удельное сопротивление InSb с концентрацией электронов $n = 1.2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Если поляризация $P_F = 95\%$, то расчет по формуле (2) дает величину $P_S = 2.6\%$, что близко к значениям поляризации от 1.3% до 4%, полученным в спиновом латеральном устройстве сразу



Зависимость величины спиновой поляризации в полупроводнике P_S от плотности тока J в инжекторе. Расстояние между детектором и инжектором $d = 10$ мкм. 1 — измерения произведены в течение недели после изготовления устройства; 2 — измерения через 8 месяцев после изготовления устройства.

после его изготовления. Можно предполагать, что в течение 1–2 недель после изготовления, пленка полуметаллического ферромагнетика Fe_2NbSn с составом, близким к стехиометрическому, синтезированная на грани (100) полупроводника $InSb$, имеет структуру $L2_1$ и максимальный $P_F = 95\%$. Отметим, что величина P_S , вычисленная с помощью выражения (2), снижается до сотых долей процента при уменьшении P_F . Мы оценили в приближении GGA значение поляризации P_F для разных случаев отклонения от стехиометрии в сплаве Fe_2NbSn . Например, когда половина атомов Sn заменяются вакансиями, ячейка при расчете имеет формулу $Fe_4Nb_2Sn + vac$ и $P_F = 0.055\%$. Расчет по формуле (2) дает значения $P_S = 7.6 \cdot 10^{-5}\%$. Если места вакансий займут атомы железа, то для ячейки Fe_5Nb_2Sn величина $P_F = 24\%$ и рассчитанное по формуле (2) значение $P_S = 4.4 \cdot 10^{-2}\%$. Изменение характеристик пленок со временем, которое мы наблюдали, может быть вызвано структурными изменениями, связанными с низкотемпературной диффузией атомов в интерфейсе стимулированной, например, большим рассогласованием параметров решеток ($\sim 6\%$). Так же известно, что структурный и химический беспорядок очень зависят от условий напыления и отжига пленок [12].

Таким образом, осуществлена первая реализация спинового устройства с НМФ-электродами на полупроводнике $InSb$. Сравнение значений экспериментально измеренной спиновой поляризации $P_S = 1.3$ –4%, электронов инжектированных в полупроводник, и $P_S = 2.6\%$, рассчитанной теоретически для прозрачного контакта полупроводника и ферромагнетика с $P_F = 95\%$, позволяет утверждать, что пленка НМФ Fe_2NbSn сразу после синтеза и структурирования упорядочена в структуру $L2_1$, так как только в сплавах стехиометрического состава

и совершенной кристаллической структурой $L2_1$ может быть высокое значение P_F (Для Fe_2NbSn поляризация $P_F = 95\%$). Химический состав и характеристики электронной системы соединения Fe_2NbSn были предсказаны теоретически, пока сплав существует в виде тонких пленок.

Стабилизация характеристик пленок НМФ от времени зависит от условий их приготовления и предполагает дополнительные исследования. Экспериментально показано, что спиновая инжекция в прозрачном контакте из ферромагнетика с очень высокой ($P_F = 95\%$), но все же не 100% поляризацией электронов, не эффективна. Для получения эффективной спиновой инжекции в полупроводниковом латеральном спиновом устройстве с прозрачными контактами необходимо, чтобы электроды обладали $P_F = 100\%$. Следует сказать, что в случае применения ферромагнетиков с высокой, но не полной поляризацией электронов по спину, например НМФ, поляризация электронов в которых $P_F < 100\%$, эффективную инжекцию можно получить, если использовать дополнительные прослойки, например, туннельный барьер или барьер Шоттки, как это было продемонстрировано при инжекции спин-поляризованных электронов из Co_2MnGa через барьер Шоттки в $GaAs$ [13].

Финансирование работы

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема „Спин“, № АААА-А18-118020290104-2) при частичной поддержке РФФИ (проект № 19-02-00038).

Конфликт интересов

А вторы заявляют, что у них нет конфликта интересов

Список литературы

- [1] R.J. Soulen Jr., J.M. Byers, M.S. Osofsky, B. Nadgorny, T. Ambrose, S.F. Cheng, P.R. Broussard, C.T. Tanaka, J. Nowak, J.S. Moodera, A. Barry, J.M.D. Coey. *Science* **282**, 85 (1998).
- [2] G. Schmidt, D. Ferrand, L.W. Molenkamp, A.T. Filip, B.J. van Wees. *Phys. Rev. B* **62**, R4790(R) (2000).
- [3] X. Lou, C. Adelman, S.A. Crooker, E.S. Garlid, J. Zhang, S.M. Reddy, S.D. Flexner, C.J. Palmstrøm, P.A. Crowell. *Nature Phys.* **3**, 197 (2007).
- [4] Н.А. Виглин, В.М. Цвелиховская, Н.А. Кулеш, Т.Н. Павлов, Письма в ЖЭТФ, **110** 248 (2019). [N.A. Viglin, V.M. Tselikhovskaya, N.A. Kulesh, T.N. Pavlov. *JETP Lett.* **110** 273 (2019).]
- [5] Э.Л. Нагаев. *Физика магнитных полупроводников*. Наука, М.(1979).
- [6] R.A. de Groot, F.M. Mueller, P.G. van Engen, K.H.J. Buschow. *Phys. Rev. Lett.* **50** 2024 (1983).
- [7] M.I. Katsnelson, V.Yu. Irkhin, L. Chioncel, A.I. Lichtenstein, R.A. deGroot, *Rev. Mod. Phys.* **80** 1 (2008).

- [8] А.Я. Нашельский. Технология спецматериалов электронной техники. Металлургия, М. (1993), 368 с. [A.Ya. Nashel'sky. *Technology of Special Materials of Electron Technique* Metallurgiya, M. (1993). p. 368.].
- [9] A.D. Rata, H. Braak, D.E. Bürgler, S. Cramm, C.M. Schneider. *Eur. Phys. J.* **52** 445 (2006).
- [10] Н.А. Виглин, В.В. Марченков, М.А. Миляев, С.В. Наумов, Е.И. Патраков, А.О. Шориков, Е.И. Шредер, К.А. Белозерова. *ФММ* **114** 1 (2013). [N.A. Viglin, V.V. Marchenkov, M.A. Milyaev, S.V. Naumov, E.I. Patrakov, A.O. Shorikov, E.I. Shreder, K.A. Belozarov. *Phys. Met. Metallography* **114** 1003 (2013).]
- [11] N.A. Viglin, V.V. Ustinov, S.O. Demokritov, A.O. Shorikov, N.G. Bebenin, V.M. Tselikhovskaya, T.N. Pavlov, E.I. Patrakov. *Phys. Rev B* **96**, 235303 (2017).
- [12] Y.V. Kudryavtsev, V.A. Oksenenko, Y.P. Lee, Y.H. Hyun, J.B. Kim, J.S. Park, S.Y. Park, J. Dubowik. *Phys. Rev. B* **76**, 024430 (2007).
- [13] M.C. Hickey, C.D. Damsgaard, S.N. Holmes, I. Farrer, G.A.C. Jones, D.A. Ritchie, C.S. Jacobsen, J.B. Hansen, M. Pepper. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 232101 (2008).

Редактор К.В. Емцев