## 14.05

# Роль слоя широкозонного полимера для существования переключения проводимости в вентильной структуре

## © А.Н. Лачинов, Н.В. Воробьева, А.А. Лачинов

Институт физики молекул и кристаллов Уфимского научного центра РАН, Уфа, Россия

E-mail: vnv@anrb.ru

#### (Поступила в Редакцию 14 июня 2011 г.)

В структуре типа спинового клапана в геометрии "ток перпендикулярно плоскости" с транспортным слоем из широкозонного полимера толщиной до 1200 nm реализован эффект электронного переключения проводимости магнитным полем менее 500 mT. Обсуждается возможность переноса спина через полимерный слой в модели баллистического транспорта заряда по наноразмерным проводящим каналам.

Работа выполнена при поддержке программы Президиума РАН № 18 "Фундаментальные принципы создания и исследования новых веществ и материалов для молекулярной электроники и спинтроники" и программы ОФН № 5.

Ранее была обнаружена возможность переключения проводимости в асимметричной структуре металл/полимер/металл, содержащей только один ферромагнитный электрод и слой широкозонного полимерного материала (полидифениленфталида — РРВ) [1]. Также было показано, что переключение проводимости магнитным полем связано с частичной поляризацией по спину зарядов, инжектированных из ферромагнетика [2]. Однако результаты работ [1,2] не позволяют сделать вывод о спиновом транспорте внутри слоя полимера. Эксперименты на структуре типа спинового вентиля могли бы дать ответ на вопрос о возможности спинового транспорта через довольно толстую полимерную пленку. В такой структуре инжектирующий электрод играет роль поляризатора, а второй ферромагнитный электрод выполняет функцию анализатора спин-поляризованных носителей тока. В этом случае изменение направления намагниченности в электроде-анализаторе должно приводить к модуляции величины тока, протекающего в исследуемой структуре.

В связи с этим целью настоящей работы является исследование возможности спинового транспорта через слой широкозонного полимерного материала в экспериментальной конфигурации типа спиновый вентиль.

Основное отличие образцов от ранее использованных [1] заключалось в замене немагнитного медного электрода на электрод из ферромагнитного металла Ni. Таким образом, в настоящей работе исследуется "симметричная" структура типа ферромагнетик/полимер/ферромагнетик в отличие от рассматриваемой ранее в [1,2] "асимметричной" структуры типа ферромагнетик/полимер/неферромагнитный металл. Электрод с большей коэрцитивной силой в рассматриваемой симметричной структуре изготавливался путем нанесения слоя никеля на антиферромагнитный слой Cr [3]. Нижняя двухслойная пленка хром/никель, нанесенная на стекло методом последовательного осаждения этих металлов в вакууме, в начальном состоянии имела выделенное направление и повышенную магнитную жесткость (рис. 1, *a*). Верхняя никелевая пленка являлась магнитомягким электродом и выделенного направления в исходном состоянии не имела (рис. 1, *b*). Полимер наносился либо в один слой, либо в два слоя с целью увеличения расстояния для возможного переноса спина. Однослойные структуры имели толщину не менее 500 nm, двухслойные — до  $1.2 \,\mu$ m. Температура измерений была комнатной, используемые магнитные поля составляли менее 500 mT.

В связи с тем что в экспериментальной цепи были возможны резкие перепады сопротивления рабочей ячейки (шесть-восемь порядков), использовалась схема с генератором тока.

Внешнее магнитное поле могло быть ориентировано параллельно или перпендикулярно плоскости структуры. Контроль гальваномагнитных явлений показал, что их вклад не превышал десятой доли процента от регистрируемого сигнала, т.е. они практически не влияли на результат.

На рис. 2 представлена магнитная характеристика для магнитожесткой пленки CrNi, полученная при помощи тесламетра ПИЭ МГ Р-2, чувствительность которого была увеличена до 1 µТ. Измерялась остаточная намагниченность после выдержки образца в течение 10 s в магнитном поле В, параллельном плоскости структуры. На рис. 2 показана разность остаточных значений намагниченности  $\Delta B_0$  для внешнего поля, параллельного и перпендикулярного выделенному направлению (направление ориентации доменов на рис. 1, а). Видно, что намагничивание вдоль выделенного направления приводит к большей остаточной намагниченности вплоть до значительных величин намагничивающего поля. Это доказывает наличие значительной магнитной анизотропии для хром-никелевого электрода. Второй, "магнитомягкий" электрод (рис. 1, b) представлял собой



**Рис. 1.** Изображения нижнего (магнитожесткого) электрода вентильной структуры Cr/Ni/PPB/Ni (a) и верхнего (магнитомягкого) электрода (b), полученные методом магнитно-силовой микроскопии на микроскопе серии Ntegra Prima. Площадь изображения  $3 \times 3 \mu$ m.



**Рис. 2.** Зависимость разности значений остаточных намагниченностей для пленки CrNi при намагничивании в плоскости параллельно и перпендикулярно выделенному направлению от величины намагничивающего поля. Остаточная намагниченность при намагничивании вдоль выделенного направления в рассматриваемом интервале больше на величину от 1 до 6 $\mu$ T.

магнитоизотропную пленку никеля. Для таких образцов выход на насыщение регистрируется уже в районе нескольких десятков миллитесла [4]. Таким образом, магнитные свойства структуры задаются свойствами магнитожесткого электрода Cr/Ni, а "вентильный" эффект должен наблюдаться для всех значений B (рис. 2), когда  $\Delta B_0 > 0$ .

В результате проведенных экспериментов для структуры хром/никель/полимер/никель с двумя ферромагнитными электродами был обнаружен эффект магниторезистивного переключения при значениях пороговых магнитных полей в интервале от 100 до 500 mT для различных образцов.

На рис. З изображена зависимость тока, протекающего через спин-вентильную структуру, от внешнего магнитного поля, параллельного ее плоскости. Переключения проводимости в исследуемой структуре Cr/Ni/PPB/Ni носили избирательный характер по отношению к направлению внешнего магнитного поля в плоскости структуры. Существовало только одно выделенное направление (небольшой сектор направлений  $\pm 20^{\circ}$ ), предпочтительное для переключения проводимости. Следует отметить, что переключение проводимости в гетероструктуре ферромагнетик/PPB при помощи магнитного поля происходит из заранее созданного неравновесного по заряду состояния [1,2]. Для стабильных состояний образцов, когда переключение проводимости не имело места, были получены зависимости величины тока через структуру от направления внешнего магнитного поля в плоскости образца (рис. 4).



**Рис. 3.** Измерение тока через гетероструктуру Cr/Ni/PPB/Ni (удвоенный слой полимера) в зависимости от внешнего магнитного поля. Направление изменения магнитного поля показано стрелками.



Рис. 4. Зависимость тока, проходящего через экспериментальную структуру нормально к слоям, от угла ориентации внешнего магнитного поля в плоскости структуры для симметричной Cr/Ni/PPB/Ni-гетероструктуры. Внешнее магнитное поле составляет 90 mT.



**Рис. 5.** Зависимость тока, проходящего через экспериментальную структуру нормально к слоям, от угла ориентации внешнего магнитного поля в плоскости структуры для асимметричной Ni/PPB/Cu-гетероструктуры. Внешнее магнитное поле составляет 200 mT.

На рис. 4 изображено изменение тока через симметричную структуру Cr/Ni/PPB/NI в зависимости от угла поворота внешнего магнитного поля величиной 90 mT. Ясно виден единственный выделенный сектор направлений, где значение тока, проходящего через гетероструктуры нормально к ее слоям, заметно выше. При наличии магнитомягкого электрода-приемника и магнитожесткого электрода-инжектора выделенным окажется только одно направление (или выделенный сектор направлений, рис. 4), в котором ориентации намагниченностей инжектора и приемника близки или совпадают. В такой структуре переключение проводимости в магнитном поле, параллельном плоскости электродов, носит избирательный по направлению характер и может иметь место только в выделенном секторе направлений при прочих равных условиях.

В [5], а также в большинстве исследований структур спиновых клапанов типа "ток перпендикулярно плоскости" в качестве основного механизма транспорта спина через прослойку рассматривают спин-зависимое туннелирование. Авторы [6] при толщине прослойки из сопряженного полимера до 250 nm и низких температурах уже испытывают определенные затруднения при объяснении механизма транспорта спина и по существу оставляют вопрос открытым. Второе название вентильной структуры типа "ток перпендикулярно плоскости"– "туннельный клапан" — в контексте полученных результатов уже не соответствует действительности, так как толщина спин-транспортного слоя слишком велика. В настоящей работе толщина транспортного слоя в

несколько раз больше, а температура экспериментов комнатная. Поэтому возможность транспорта спина через слой несопряженного полимера должна быть связана не с туннелированием, а с принципиально иными механизмами.

Сравним изменение сопротивления в исследованной структуре (рис. 3) с типичным результатом для оптимизированной неорганической спин-вентильной многослойной структуры [5] гетероструктуры  $\{Co(1 nm)/Tb(1 nm)\}_{16}/Co(5 nm)/Cu(2.5 nm)/Co(5 nm).$ В определенной области магнитных полей происходит изменение (увеличение) сопротивления структуры. Отметим, что существует ряд отличий результатов, обсуждаемых в настоящей работе, от результатов [5]: 1) отсутствие симметричной картины изменений при изменении знака внешнего магнитного поля; 2) большие магнитные поля переключения проводимости; 3) транспортный органический слой в 400 раз больше; 4) величина эффекта больше на восемь порядков.

При сравнении полученных результатов с данными для структуры спинового клапана с достаточно толстой  $(0.2\,\mu\text{m})$  прослойкой из сопряженного полимера [6] различия не менее существенные. Так, например, в [6] при температуре проведения экспериментов 11 К имеет место симметричная картина изменения проводимости при противоположном по направлению внешнего магнитного поля (как и в [5]) и наблюдается малая величина эффекта.

Серьезные отличия от полученных в других работах [5,6] зависимостей сопротивления связаны, по-видимому, со спецификой зонной структуры использованного материала. В тонких пленках широкозонных полимеров, таких как РРВ, возможно возникновение промежуточной узкой зоны разрешенных состояний в середине запрещенной зоны. Это зона когерентного переноса заряда [7], которая формируется вследствие воздействия слабого внешнего давления на полимер или достаточно высокого приложенного электрического напряжения. Когда уровень Ферми электрода совпадает с уровнем зоны когерентного переноса заряда полимера, происходит скачок проводимости (электронное переключение).

Рассмотрим возможный механизм транспорта заряда с сохранением спина в толще полимерного материала. Для спин-зависимого туннелирования расстояние в 1200 nm является слишком большим. Нет также достоверных фактов, указывающих на сверхпроводимость пленки. Тем не менее перенос заряда через толщу широкозонного полимерного материала имеет ряд особенностей. Так, в высокопроводящем состоянии транспорт заряда происходит нормально к плоскости пленки по тонким проводящим каналам наноразмерного диаметра [8]. Подобные каналы проводимости использовались в микроконтактной спектроскопии [9–11] для создания условий идеального микроконтакта. Режим электронного транспорта в контакта и упругой и неупругой

402

длин свободного пробега электронов. При этом баллистический режим реализуется, когда длины свободного пробега велики по сравнению с диаметром контакта; диффузионный режим имеет место в случае, когда длина упругой релаксации мала по сравнению с диаметром контакта, а тепловой режим — при очень большом диаметре контакта. В [11] рассмотрено использование полимера в качестве диэлектрической прослойки для микроконтакта между двумя металлами. Безотражательный квантовый транспорт в проводящих каналах достаточно малого диаметра и конечной длины был также описан в [12]. В пленке РРВ каналы структурированы до очень малых размеров [13]. Возможно, подобная структура транспортных каналов создает предпосылки для баллистического переноса заряда с сохранением спина.

Магнитное поле не может сформировать зону когерентного переноса заряда в полимере, однако намагничивание изменяет энергию носителей заряда в никеле. Поэтому влияние магнитного поля заключается в небольшом смещении уровней энергии для носителей заряда в ферромагнетике. Когда энергия носителей заряда в ферромагнетике. Когда энергия носителей заряда в ферромагнитном электроде немного не совпадает с уровнем сформированной узкой зоны когерентного переноса заряда в полимерной пленке, имеется небольшой потенциальный барьер. Преодолеть его помогает энергия магнитной анизотропии. Когда внешнее поле ориентировано в "легком" направлении, потенциальный барьер ниже, а ток больше [14].

Если принять в качестве рабочей модели предположение о баллистическом транспорте заряда через слой полимера, то отсутствие второго ферромагнитного электрода (приемника; рис. 1, b) будет означать наличие не одного, а двух выделенных направлений для проходящего тока, совпадающих с выделенными направлениями для инжекции заряда.

На рис. 5 изображена зависимость тока, проходящего через асимметричную структуру никель/РРВ/медь нормально к слоям структуры, от направления внешнего магнитного поля в плоскости образца [15]. Электрическое напряжение, подаваемое на структуру, составляло 3 V. Стрелка показывает направление поверхностной магнитной анизотропии, наведенной на подложке.

На рис. 5 можно выделить два направления, различающихся на  $180^{\circ}$ . Оба они являются предпочтительными для ориентации доменов электрода-инжектора. Инжектируемый в структуру ток из ферромагнитного электрода больше в направлении, совпадающем с направлением одноосной анизотропии подложки, т.е. с ориентацией полосовой доменной структуры.

Различие между рис. 4 и 5 связано с появлением для симметричной структуры (рис. 4) второго ферромагнитного электрода — анализатора спин-поляризованных электронов. В этом случае выделенный для преимущественного протекания тока сектор направлений только один — вблизи того направления, где ориентация намагничивания поляризатора и анализатора спинов сов-

падает. Тот факт, что выделенный сектор направлений является достаточно широким, объясняется тепловым разбросом: все измерения проведены при комнатной температуре.

Представленные в настоящей работе результаты экспериментального исследования можно суммировать следующим образом. В пленочной гетероструктуре типа хром/никель/полидифениленфталид/никель (ток перпендикулярен плоскости) существует выделенное направление в плоскости, определяемое магнитной анизотропией подложки. При ориентации внешнего магнитного поля вдоль этого направления реализуются электронное переключение проводимости и спин-вентильный эффект.

Предполагаемая возможность транспорта спина по узким каналам в толще полимера создает предпосылки для создания устройств спинтроники с полимерной прослойкой микронной толщины.

Авторы благодарят сотрудников ИФМ УрО РАН и компании НТ-МДТ за помощь в проведении измерений на атомно-силовом микроскопе, сотрудника кафедры геофизики БашГУ Н.А. Хасанова за возможность использования микротесламетра.

### Список литературы

- А.Н. Лачинов, Н.В. Воробьева, А.А. Лачинов. Письма в ЖЭТФ 84, 720 (2006).
- [2] А.Н. Лачинов, Н.В. Воробьева, В.М. Корнилов, Б.А. Логинов, В.А. Беспалов. ФТТ 50, 1444 (2008).
- [3] В.О. Васьковский, П.А. Савин, В.Н. Лепаловский, А.А. Рязанцев. ФТТ **39**, 2191 (1997).
- [4] С.В. Вонсовский. Магнетизм. Наука, М. (1971). С. 836.
- [5] А.В. Свалов, П.А. Савин, Г.В. Курляндская, И. Гутиеррес, В.О. Васьковский. ЖТФ 72, 8, 54 (2002).
- [6] Z.H. Xiong, Di Wu, Z. Valy Vardeny, Jing Shi. Nature 427, 821 (2004).
- [7] А.Н. Лачинов, Э.Р. Жданов, Р.Г. Рахмеев, Р.Б. Салихов, В.А. Антипин. ФТТ **52**, 181 (2010).
- [8] H. Pagnia, S. Sotnik. Phys. Status Solidi A 108, 11 (1988).
- [9] И.К. Янсон. ФНТ 17, 275 (1991).
- [10] Б.И. Веркин, И.К. Янсон, И.О. Кулик, О.И. Шкляревский, А.А. Лысых, Ю.Г. Найдюк. Изв. РАН. Сер физ. 44, 1330 (1980).
- [11] И.О. Кулик, А.И. Омельянчук, Р.И. Шехтер. ФНТ 3, 1543 (1977).
- [12] Л.И. Глазман, Г.Б. Лесовик, Д.Е. Хмельницкий, Р.И. Шехтер. Письма в ЖЭТФ **42**, 218 (1988).
- [13] V.M. Kornilov, A.N. Lachinov. Synth. Met. 53, 71 (1992).
- [14] A.N. Lachinov, Jan Genoe, N.V. Vorob'eva, A.A. Lachinov, F.F. Garifullina, V.M. Kornilov. Synth. Met. 161, 642 (2011).
- [15] N.V. Vorob'eva, A.N. Lachinov, A.A. Lachinov, F.F. Garifullina. Solid State Phenomena 168–169, 329 (2011).