## Морфология поверхности и электрические свойства гибридных структур, сформированных на основе слоистого полупроводника с наноразмерными сегнетоэлектрическими включениями Au/Ni/(C)/*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>)

© А.П. Бахтинов<sup>¶</sup>, В.Н. Водопьянов, В.В. Нетяга, З.Р. Кудринский, О.С. Литвин\*

Институт проблем материаловедения им. И.Н. Францевича Национальной академии наук Украины, Черновицкое отделение,

58001 Черновцы, Украина

\* Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарева Национальной академии наук Украины, 03028 Киев, Украина

(Получена 20 июля 2011 г. Принята к печати 4 августа 2011 г.)

Методом атомно-силовой микроскопии исследованы особенности формирования гибридных наноструктур Тур Au/Ni/(C)/*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> на ван-дер-ваальсовой поверхности (0001) композитных наноструктур "слоистый полупроводник—сегнетоэлектрик" (*p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>)). При комнатной температуре исследованы вольт-амперные характеристики и зависимость импедансного спектра гибридных структур от напряжения смещения. На вольт-амперной характеристике наблюдаются резонансный пик и участок с отрицательным дифференциальным сопротивлением. Ток на этой характеристике достигает максимальногоо значения при определенном значении приложенного напряжения смещения, когда происходит переключение электрической поляризации в наноразмерных трехмерных включениях в слоистой матрице GaSe. В области высоких частот ( $f > 10^6 \Gamma$ ц) обнаружен импеданс индуктивного типа (большая отрицательная емкость структур, ~  $10^{-6} \Phi/\text{MM}^2$ ). Этот эффект связан с транспортом спин-поляризованных электронов в последовательно соединенных между собой полупроводниковой композитной наноструктуре с множественными квантовыми ямами *p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>) и прямо смещенном поляризаторе "ферромагнитный металл—полупроводник" (Au/Ni/(C)/ $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). На вольт-амперных характеристиках структур обнаружен сдвиг максимума (гистерезис тока) при разных направлениях изменения напряжения смещения.

## 1. Введение

Исследование процессов аккумуляции, инжекции, диффузии и дрейфа спин-поляризованных носителей заряда (спинов) в полупроводниковых гибридных структурах (барьерах Шоттки "ферромагнитный металл-немагнитный полупроводник" и туннельных структурах металл-окисел-полупроводник (МОП)) является одним из актуальных направлений современной полупроводниковой спинтроники [1–3]. Использование гибридных МОП структур позволяет решить проблемы, связанные с "рассогласованием проводимостей" между слоем ферромагнитного металла (ФМ) и поверхностью полупроводника (ПП) [1], а также с образованием новых фаз ("магнито-мертвого слоя"), возникающих при протекании химических реакций между этими материалами на границе раздела ФМ/ПП.

Слоистый полупроводник GaSe является перспективным материалом для терагерцовой электроники [4], для изготовления конденсаторов и накопителей электрической энергии. Тонкие слои этого материала с атомарно-гладкой поверхностью могут быть выращены методом молекулярной электронно-лучевой эпитаксии (ван-дер-ваальсовой эпитаксии) на поверхности (111) кремния с целью "электронной пассивации" этой поверхности [5]. Низкая плотность поверхностных состояний ( $< 10^{10} \, \mathrm{cm}^{-2}$ ) на недеформированной поверхности GaSe(0001) и шероховатость, которая для такой поверхности характеризуется среднеквадратичным значением  $\sim 0.05$  нм [6], определяют интерес к использованию этого материала в качестве буферного слоя при формировании барьерных гибридных структур на поверхности Si [5]. Однако протекание поверхностных химических реакций, которые происходят при контакте GaSe с ферромагнитными металлами (Fe [5], Ni [6]), ограничивают возможности осуществления эффективной спиновой инжекции в гибридных структурах типа ФМ/ПП, сформированных на основе этого кристалла. На поверхности (0001) GaSe можно выращивать тонкие (нанометровой толщины) слои термического окисла Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [7] и естественного окисла, который представляет собой смесь Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и широкозонных окислов Ga и Se [8,9]. На окисленных поверхностях GaSe были сформированы МОП структуры In/GaO<sub>x</sub>/p-GaSe [8] и ITO/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/p-GaSe [10]. Эффективность применения окислов Ga в туннельных спинтронных структурах показана в [11,12].

На транспорт спин-поляризованных электронов в пьезоэлектрических барьерных структурах с квантовыми ямами (КЯ) сильно влияют внутренние электрические поля, связанные с пьезоэлектрическими эффектами и спонтанной поляризацией [13]. Барьерные структуры с множественными КЯ на основе слоистого полупроводника GaSe и сегнетоэлектрика (СЭ), в которых проявляются эти эффекты, могут быть созданы пу-

<sup>¶</sup> E-mail: chimsp@ukrpost.ua

Fax: (03722) 36018

тем самоорганизации ансамблей наноразмерных трехмерных кристаллических сегнетоэлектрических включений в объеме GaSe при внедрении сегнетоэлектрика КNO<sub>3</sub> из расплава в межслоевое пространство слоистого кристалла [14]. Сформированный нанокомпозитный материал GaSe(KNO<sub>3</sub>) представляет собой полупроводниковую кристаллическую матрицу GaSe, которая содержит упорядоченно расположенные вдоль оси симметрии С гексагонального кристалла сегнетоэлектрические включения. На вертикальный перенос и аккумуляцию носителей заряда в этих структурах можно влиять небольшим (< 10 В) внешним напряжением, которое прикладывается к слоям GaSe(KNO<sub>3</sub>) вдоль оси С. При этом можно изменять величину и поляризацию локализованного в области сегнетоэлектрических включений внутреннего электрического поля, которое влияет на туннелирование носителей заряда между соседними КЯ в композитных наноструктурах GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  [14].

Результаты теоретических и экспериментальных исследований показывают, что на основе ферромагнитного металла и сегнетоэлектрика могут быть созданы новые спинтронные устройства (туннельные диоды ФМ/СЭ/ФМ [3] и резонансные туннельные диоды с сегнетоэлектрическими КЯ [15]). На спиновый транспорт в таких устройствах (с "четырьмя состояниями с различным сопротивлением" [3]) можно влиять переключением электрической поляризации в сегнетоэлектрических слоях и изменением взаимной ориентации (параллельной или антипараллельной) намагниченностей контактов из ферромагнитного металла. Для практического использования представляют интерес структуры, которые могут функционировать при комнатной температуре. Высокая степень спиновой поляризации в полупроводнике (близкая к 100%) может быть реализована при температуре  $T = 300 \, \text{K}$  в гибридных структурах  $\Phi M/(n^+)\Pi \Pi/(n)\Pi \Pi$ , в состав которых входит спинселективный барьер, в режиме экстракции спинов из полупроводника *n*-типа проводимости [2,16]. В теоретической работе [15] показано, что спиновым транспортом в резонансных туннельных диодах с сегнетоэлектрическими КЯ можно управлять при комнатной температуре переключением сегнетоэлектрической поляризации в сегнетоэлектрических слоях.

Эффективность спиновой инжекции/экстракции в гибридных МОП структурах зависит от качества границ раздела ФМ/окисел и окисел/ПП [3,5]. В настоящей работе приведены результаты проведенных исследований морфологии поверхности гибридных барьерных структур, которые были выращены на окисленных вандер-ваальсовых поверхностях (0001) нанокомпозитного материала GaSe (KNO) [14], а также процессов переноса и аккумуляции носителей заряда в этих структурах при комнатной температуре.

## 2. Образцы и методика эксперимента

В качестве подложек для выращивания гибридных структур использовались нелегированные кристаллы

GaSe (*є*-политип), которые были выращены методом Бриджмена. Величина удельного сопротивления этих кристаллов при температуре  $T = 300 \,\mathrm{K}$  составляла  $\sim (10^3 - 10^4)$  Ом · см, концентрация дырок  $p \sim 10^{14}$  см<sup>-3</sup>. Толщина подложек составляла ~ 300 мкм. На поверхности скола (0001) GaSe формировался тонкий слой окисла Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, толщиной ~ 10 нм. Процесс выращивания сплошной пленки окисла на этой поверхности проводился в два этапа. На первом этапе формировался естественный окисел на дефектной поверхности (0001) GaSe. Эта поверхность перед окислением содержала большое количество базисных дефектов в атомных плоскостях селена. Точечные дефекты в базисных плоскостях селена и их наноразмерные кластеры создавались путем отжига ван-дер-ваальсовых поверхностей GaSe в атмосфере молекулярного водорода (давление  $H_2 \sim 1\,M\Pi a)$  при 350°С в течение 5 ч [17]. Влажное окисление дефектной поверхности происходило в атмосфере, которая содержала пары H<sub>2</sub>O, в течение нескольких минут. На втором этапе проводился кратковременный вакуумный отжиг структуры при температуре  $T_a = 220^{\circ}$ С, в результате которого удалялись летучие широкозонные окислы селена и галлия [8] и образовывался сплошной слой монокристаллического высокотемпературного окисла Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. При формировании этого слоя окисленная поверхность (0001) GaSe облучалась высокоэнергетическим ультрафиолетовым (УФ) излучением, что способствует повышению качества оксидных слоев в гибридных МОП структурах [18].

На окисленную поверхность (0001) GaSe методом электронно-лучевого испарения в вакууме наносились тонкий (толщина < 2 нм) слой углерода (слой  $\langle C \rangle$ ), слой ферромагнитного металла Ni (толщина ~ 50 нм), слой Au (толщина  $\sim 20$  нм). Слой углерода наносился для исключения процесса диффузии Ni в широкозонный оксид галлия Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и образования антиферромагнитной фазы NiO. Он использовался также для создания в дефектном полупроводнике n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> области с высокой концентрацией донорных кислородных вакансий (*n*<sup>+</sup>-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) вблизи гетерограницы ФМ/ПП. Эта область необходима для формирования тонкого б-образного спин-селективного барьера в гибридной структуре с целью осуществления эффективной спиновой инжекции/экстракции [2,16]. При нанесении слоя Ni использовался материал, который представлял собой смесь Ni и графита (20% C, 80% Ni). Слой Au наносился для защиты поверхности слоя ферромагнитного металла от окисления. Площадь структуры составляла  $\sim 3 \cdot 10^2$  см<sup>2</sup>.

Нанокомпозитный материал GaSe (KNO<sub>3</sub>) изготавливался внедрением сегнетоэлектрика KNO<sub>3</sub> из расплава в межслоевое пространство GaSe по технологии, описанной в [14]. В изготовленной гибридной структуре сегнетоэлектрические включения не находятся в непосредственном контакте со слоем окисла Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, а отделены от него несколькими слоями слоистого кристалла. Это препятствует возникновению поверхностных состояний на границе раздела СЭ/окисел, которые влияют на переключение сегнетоэлектрической поляризации в МОП



**Рис. 1.** Схематическое изображение исследуемой гибридной структуры: 1 -слой Au, 2 -слой ферромагнитного металла Ni, 3 -слой углерода (слой  $\langle C \rangle$ ), 4 -слой  $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 5 -слой n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 6 -слоистый полупроводник p-GaSe, 7 -наноразмерные трехмерные сегнетоэлектрические включения, 8 -слой In.

структурах и приводят к нестабильности работы композитных структур СЭ/ПП [19]. Сформированные в результате самоорганизации при протекании химических реакций между GaSe и жидкой фазой KNO<sub>3</sub> композитные наноструктуры имели морфологию, которая описана в [14]. Ансамбль расположенных в матрице слоистого кристалла пирамидальных наноразмерных сегнетоэлектрических включений характеризовался поверхностной плотностью в базисной плоскости (0001) кристалла GaSe ~  $(10^9 - 10^{10})$  см<sup>-2</sup>. Латеральные размеры этих включений не превышали ~ 20 нм, а их высота была меньше 3 нм.

Вольт-амперные характеристики (ВАХ) и импедансные спектры гибридных структур исследовались с использованием оборудования фирмы Solartron Analytical (модель FRA1255) в диапазоне частот  $10^{-1} - 10^7$  Гц при комнатной температуре. Скорость изменения напряжения при измерениях квазистационарных вольт-амперных характеристик (BAX) составляла  $\sim 5 \, \text{мB} \cdot \text{c}^{-1}$ . Исследования темнового поперечного импеданса проводились при амплитуде переменного сигнала ~ 10 мВ и при различных значениях напряжения постоянного смещения V. Напряжение прикладывалось к расположенным вдоль оси С кристалла (0001) GaSe омическим контактам In и Аи, которые наносились соответственно на нанокомпозитный материал и слой ферромагнитного металла. Исследованные образцы имели структуру, схематически показанную на рис. 1.

Морфология поверхности барьерных структур исследовалась на различных этапах их формирования. Исследования проводились на воздухе с помощью атомно-силового микроскопа Nanoscope IIIa Dimension 3000SPM (Digital Instruments) в режиме Tapping mode. Рентгеноструктурный анализ проводился с помощью рентгеновского дифрактометра ДРОН-3 в Cu $K_{\alpha}$ -излучении (длина волны  $\lambda = 1.5418$  Å).

## 3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

## 3.1. Морфология поверхности гибридных наноструктур

Эффективную спиновую инжекцию/экстракцию можно осуществить в гибридных МОП структурах, которые содержат сплошные (без проколов) монокристаллические слои окисла и ферромагнитного металла. Границы раздела между этими слоями, а также между слоями окисла и полупроводника должны иметь минимальную шероховатость для уменьшения спинового рассеяния [3,5].

Для создания кристаллического слоя окисла Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> нанометровой толщины использовались тонкие сплошные слои собственного естественного окисла, поверхность которых имеет меньшую шероховатость по сравнению с поверхностью слоев термического окисла. Такие слои образуются на поверхностях (0001) слоистого кристалла, которые содержат большое количество вакансий халькогена, при протекании поверхностных химических реакций с участием адсорбированных на оборванных связях металла молекул H<sub>2</sub>O и O<sub>2</sub> [9]. Они могут быть сформированы окислением дефектных поверхностей (0001) GaSe, полученных после термической обработки ван-дер-ваальсовой поверхности в атмосфере Н<sub>2</sub> [17], или на поверхностях (0001) легированных кристаллов GaSe [8]. Шероховатость слоев окисла, полученных по такой технологии, обычно составляет 0.05-0.1 нм [8,9,17]. Кристаллическая фаза окисла β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> на поверхности (0001) окисленных кристаллов GaSe проявляется в спектрах комбинационного рассеяния после проведения их отжига на воздухе при температуре  $T_a > 500^{\circ}$ С [20]. При облучении окисленных кристаллов GaSe оптическое излучение в энергией квантов, большей ширины запрещенной зоны Eg GaSe  $(\sim 2 \, \text{эВ} \, \text{при температуре} \, T = 300 \, \text{K}),$  проходит через слои нанометровой толщины широкозонных окислов Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $E_g \approx 4.9$  эВ [21]), GaO<sub>x</sub> ( $E_g \approx 4.4$  эВ [12]) и поглощается в верхних слоях GaSe. Наличие ван-дерваальсовых щелей между слоями приводит к тому, что коэффициент теплопроводности анизотропных слоистых кристаллов GaSe в направлении оси С в 10 раз меньше, чем в плоскости слоев (0001). Поэтому при воздействии на кристалл интенсивным оптическим излучением с таким спектральным составом происходит сильный нагрев верхних слоев до температур, при которых образуется устойчивая кристаллическая фаза  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, что подтверждается результатами рентгеновских исследований. Ультрафиолетовое излучение ионизирует молекулы



**Рис. 2.** АСМ-изображения поверхности гибридных структур на основе слоистого полупроводника с сегнетоэлектрическими включениями *p*-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$ . *a* — трехмерное изображение поверхности гибридной наноструктуры Ni/*n*<sup>+</sup>-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$ , на поверхности окисла слой Ni толщиной ~ 4 нм; *b*, — трехмерное изображение поверхности гибридной наноструктуры Au/Ni/*n*<sup>+</sup>-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$ , на поверхности слой Au толщиной ~ 5 нм; *c* — двумерное изображение поверхности гибридной наноструктуры Ni/ $\langle$ C $\rangle$ /*n*<sup>+</sup>-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$  с распределением отклонений высоты вдоль указанной на изображении линии.

воды и кислорода, влияет на концентрацию кислородных вакансий в β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и приводит к увеличению концентрации гидроксильных групп на поверхности слоистого кристалла, где протекают химические реакции. Ультрафиолетовое облучение "гидрофильной" поверхности слоев  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [8] сильно влияет на скорость роста, структуру и проводимость этих слоев. Шероховатость сплошных слоев β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, которые были выращены на поверхности (0001) GaSe при использовании такой технологии, не превышала ~ 0.2 нм. Отметим, что шероховатость поверхности слоев окисла β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, полученных на n-GaAs способом электрохимического окисления [22] или термическим окислением поверхности (0001) GaSe на воздухе при  $T_a > 300^{\circ}$ С [7], составляла несколько нм. Соединение β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> является дефектным полупроводником п-типа проводимости и имеет моноклинную структуру с параметрами кристаллической решетки a = 12.23 Å, b = 3.04 Å, c = 5.8 Å,  $\beta = 103.7^{\circ}$ .

Концентрация носителей заряда в  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> возрастает при увеличении концентрации кислородных вакансий. В пленках этого материала она может превышать  $10^{19}$  см<sup>-3</sup> [21]. При отжиге слоев  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в атмосфере O<sub>2</sub> наблюдается понижение концентрации этих вакансий. В результате этого процесса широкозонный материал  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> по своим электрическим свойствам приближается к изоляторам [22].

Сильное рассогласование параметров кристаллических решеток ферромагнитного металла Ni (a = 2.82 Å для Ni (001)) и  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> препятствует эпитаксиальному росту слоев металла на окисле. Значительное различие температурных коэффициентов расширения для Ni и  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> после осаждения высокотемпературного ферромагнитного металла Ni на окисленную поверхность GaSe приводит к появлению складок на поверхности гибридных структур (гофрированию поверхности) (рис. 2, *a*). Складки возникают в результате релаксации упругих напряжений и протекания пластических деформаций в верхних слоях слоистого кристалла, которые связаны между собой слабыми молекулярными силами [6,9]. На поверхности структур AuNi/*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe после осаждения слоев Au, которое сопровождается нагревом слоев Ni, могут появляться разрывы (рис. 2, *b*). Отдельные поверхностные дефекты на этом рисунке имеют треугольную форму. Это свидетельствует о течении пластической деформации вдоль пирамидальных кристаллографических плоскостей скольжения дислокаций в верхних слоях гексагонального кристалла GaSe, которое проявляется при нагреве в вакууме при  $T_a > 300^{\circ}$ C [23].

В результате диффузии атомов Ni в пленку окисла могут возникать поверхностные состояния на гетерогранице ФМ/окисел и центры захвата спин-поляризованных электронов в объеме слоя окисла [24], на которых могут аккумулироваться спины. Это влияет на спиновый транспорт в гибридных структурах [25], а также на эффективность спиновой инжекции в таких структурах [18].

Для исключения диффузии Ni в пленку окисла, а также с целью повышения качества гетерограницы ФМ/окисел на поверхность слоя β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> перед осаждением Ni наносился слой углерода. *б*-легирование углеродом применяется при изготовлении спинтронных структур [26]. Введение углерода в зону роста используется для управления концентрацией кислорода при выращивании полупроводниковых наноструктур на основе широкозонных окислов (Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZnO), электрические свойства которых связаны с концентрацией вакансий кислорода в кристаллической решетке [27,28]. Совместное термическое испарение углерода и Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в вакууме на подложку, содержащую наночастицы катализатора (Ni), применялось при росте нанопроволок β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> по механизму "пар-кристалл" [27]. Увеличение содержания углерода в смеси цинка и углерода при синтезе нанокристаллов ZnO приводит к росту концентрации вакансий кислорода в широкозонном окисле [28]. Диффузия подвижных вакансий кислорода в объеме β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> сильно возрастает при повышении температуры ( $T_a > 500-600^{\circ}$ С). При более низких температурах вакансии кислорода "заморожены" в кристаллической решетке. В процессе изготовления гибридных структур при осаждении материалов с высокой температурой испарения (C, Ni) температура на поверхности высокотемпературного кристаллического окисла β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (температура плавления ~ 1780°С) превышала 500°С. Это способствовало формированию в β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> вблизи гетерограницы Ni/окисел узкой области с высокой концентрацией вакансий кислорода ( $\delta$ -слоя  $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Образование такой области вблизи гетерограницы диодов Шоттки, изготовленных на основе окислов галлия и металлов с большой работой выхода (Ni, Pt), приводит к уменьшению эффективной величины барьера и к реализации туннельного механизма переноса электронов через этот барьер [29]. Выполнение этого условия необходимо для осуществления эффективной спиновой инжекции/экстракции в гибридных структурах [2].

Шероховатость поверхности выращенных гибридных структур Ni/ $\langle C \rangle$ /*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  после осаждения Ni на подслой углерода не превышала ~ 0.5 нм (рис. 2, *c*). Последующее осаждение на эту проверхность Au не приводило к появлению разрывов в слое ферромагнитного металла. Шероховатость поверхности сформированных по такой технологии структур Au/Ni/ $\langle C \rangle$ /*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  не превышала ~ 0.6 нм.

#### 3.2. Электрические свойства гибридной структуры Au/Ni/⟨C⟩/n-Ga₂O₃/p-GaSe⟨KNO₃⟩

Для анализа процессов переноса носителей заряда в выращенных гибридных структурах использовался метод импедансной спектроскопии, который ранее применялся для исследования электрических свойств гибридных структур Ni/n-Ga<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>/p-GaSe [6]. Этот метод эффективно использовался для проведения анализа различных электрических процессов, которые протекают в барьерных структурах и характеризуются разными значениями времени релаксации. Он может быть использован для исследования транспорта спин-поляризационных электронов в гибридных барьерных структурах, поскольку времена релаксации электрических процессов с участием неполяризованных и спин-поляризованных носителей заряда сильно различаются и эти процессы проявляются в разных частотных диапазонах импедансного спектра [30].

Исследуемая в настоящей работе структура, так же как исследованные ранее гибридная структура [6] и источник спин-поляризованного излучения [2], состоит из двух последовательно включенных барьерных структур. Она состоит из барьера Шоттки (БШ)  $Au/Ni/\langle C \rangle/n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и гетероперехода (ГП) *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>). Энергетическая диаграмма для этой структуры показана на рис. 3. При комнатной температуре для гетероперехода *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe при значениях концентраций носителей заряда в *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  $n = 3 \cdot 10^{13} \,\mathrm{cm}^{-3}$  и *p*-GaSe  $p = 2 \cdot 10^{14} \,\mathrm{cm}^{-3}$  разрывы зон проводимости и валентной составляют  $\Delta E_c = 0.49 \, \mathrm{pB}$  и  $\Delta E_v = 3.19 \, \text{эВ} [31]$ . В этом ГП высота барьера для дырок значительно больше, чем для электронов. Поэтому при анализе тока через ГП обычно учитывают электронную составляющую [10,31]. На форму КЯ, которые расположены в GaSe и связаны с сегнетоэлектическими включениями, влияет сегнетоэлектрическая поляризация. На рис. 3 схематически показано также распределение электронной спиновой плотности состояний g(E) для Ni [2].

На ВАХ исследуемых гибридных структур наблюдается резкий максимум при положительных значениях приложенного напряжения смещения V > 0 (когда "+" источника смещения приложен к Ni, а "-" к GaSe) (рис. 4, кривая I). ВАХ нанокомпозитного материала



**Рис. 3.** Энергетическая диаграмма исследуемой гибридной структуры Au/Ni/(C)/ $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/p-GaSe(KNO<sub>3</sub>):  $E_F$  — уровень Ферми;  $\Delta$ , l — высота и толщина спинселективного барьера на границе Ni/n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> при наличии  $\delta$ -легированного слоя  $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>; w — толщина слоя n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>; l — БШ в состоянии термодинамического равновесия, 2 — туннелирование спин-поляризованных ( $\sigma = \downarrow$ ) электронов из n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в Ni при прямом смещении (V > 0) гибридного БШ [2,16], 3 — аккумулированные при V > 0 спинполяризованные ( $\sigma = \uparrow$ ) электроны [2,16], 4 — связанные с сегнетоэлектрическими наноразмерными включениями квантовые ямы, 5 — распределение плотности состояний электронов со спинами ( $\sigma = \downarrow$ ) и ( $\sigma = \uparrow$ ) в Ni [2].



**Рис. 4.** Вольт-амперные характеристики при температуре 293 К: I — гибридная структура Au/Ni/(C)/ $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/p-GaSe(KNO<sub>3</sub>); 2 — нанокомпозитный материал p-GaSe(KNO<sub>3</sub>) [14]. Стрелками показано направление изменения напряжения смещения структуры.

p-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$  с омическими (In) контактами, на вандер-ваальсовой поверхности которого формировались гибридные структуры, приведена на рис. 4 (кривая 2). Форма ВАХ (рис. 4, кривая 1) имеет вид, характерный для транспорта носителей заряда в структурах с множественными КЯ. В этих структурах вертикальный перенос носителей заряда между КЯ, которые расположены по соседству друг с другом, осуществляется по туннельному механизму [32]. Известно также, что наличие максимума на ВАХ при переносе спин-поляризованных носителей в резонансных туннельных структурах с сегнетоэлектрическими КЯ связано с переключением сегнетоэлектрической поляризации в КЯ [15].

Приложенное к структуре напряжение смещения V перераспределяется между ее составляющими. При V > 0 БШ смещен в прямом направлении, а ГП — в обратном. Сопротивление туннельного спин-селективного барьера Au/Ni/ $\langle C \rangle$ / $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> при прямом смещении мало [2,6,16]. Поэтому при таком включении большая часть приложенного напряжения падает на ГП  $n-Ga_2O_3/p-GaSe(KNO_3)$ . В работе [14] было сделано предположение, что КЯ в *p*-GaSe с наноразмерными сегнетоэлектрическими включениями формируются на участках слоистого кристалла, которые расположены между этими включениями. При приложении напряжения смещения V к p-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  слои кристалла, которые можно рассматривать как мембраны, на этих участках изменяют свою форму на нанометрическом масштабном уровне. Это происходит в результате сильного деформационного взаимодействия между матрицей слоистого кристалла и сегнетоэлектрическими включениями, которое имеет место при проявлении обратного пьезоэлектрического эффекта во включениях. На участках слоев полупроводника, через которые протекает ток, возникают значительные упругие деформации. Они влияют как на зонную структуру полупроводника, так и на энергетический спектр носителей заряда в квантово-размерных структурах, сформированных после изгиба слоев [33]. Исследования методами сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) и атомно-силовой микроскопии (АСМ) показали, что при деформации слоистого кристалла на ван-дер-ваальсовых поверхностях возникают наноразмерные складки (ripples) [9,14]. Изменение геометрической формы ван-дер-ваальсовых поверхностей слоистого кристалла сильно влияет на протекание тока в направлении оси С кристалла, что находит свое отражение в СТМ-образах этих поверхностей [9,34] и в импедансных спектрах деформированных кристаллов [14,17].

При напряжении смещения V > 0 в гибридной структуре  $\Phi M/(n^+)\Pi\Pi/(n)\Pi\Pi$  происходит туннелирование спин-поляризованных ( $\sigma = \downarrow$ ) электронов из полупроводника *n*-типа проводимости через узкий спинселективный барьер (спиновый фильтр) в ферромагнитный металл [2,16]. В этом случае имеет место экстракция электронов из полупроводника. Они туннелируют через сильно легированный  $n^+$ -слой в ферромагнитный металл (показано стрелкой на рис, 3). Электроны с противоположным направлением спина акуумулируются в материале *n*-типа проводимости вблизи границы раздела полупроводников  $(n)/(n^+)$  (рис. 3). Для случая "идеального" спинового фильтра степень спиновой поляризации аккумулированных в полупроводнике электронов зависит от напряжения смещения [2]. Она



Рис. 5. Частотные зависимости модуля полного комплексного импеданса |Z| гибридной структуры Au/Ni/(C)/  $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/p-GaSe(KNO<sub>3</sub>) при температуре 293 K и значениях постоянного напряжения положительного смещения V, B: 1 - 0.4, 2 - 2.6, 3 - 4.4, 4 - 6.08, 5 - 6.94, 6 - 10.3. Положительное смещение (V > 0) соответствует подключению "+" внешнего источника тока к Ni-электроду.

определяется плотностью состояний электронов со спинами ( $\sigma = \downarrow$ ) и ( $\sigma = \uparrow$ ) вблизи уровня Ферми в ферромагнитном металле и может быть также ограничена явлением "спиновой блокады" [35]. При экстракции спинов, которая происходит при прямом смещении гибридного БШ, неполяризованные электроны двужутся к спин-селективному туннельному барьеру, а аккумулированные вблизи этого барьера спин-поляризованные электроны диффундируют в противоположную сторону (к омическому контакту) [2,16]. При увеличении напряжения смещения концентрация аккумулированных вблизи границы раздела  $(n)/(n^+)$  электронов с определенным направлением спина увеличивается. При определенных условиях они могут препятствовать туннелированию через спин-селективный барьер в ферромагнитный металл электронов с противоположным направлением спина. В этом случае (при "спиновой блокаде") на ВАХ гибридной структуры может наблюдаться насыщение плотности тока [35]. ВАХ исследуемых в настоящей работе структур (рис. 4, кривая 1) отличается по форме от ВАХ гибридных структур, в которых наблюдается эффект "стабилизации" спинового тока [35].

Из частотных зависимостей модуля импеданса |Z| исследуемой структуры (рис. 5) видно, что при изменении напряжения положительного смещения от V = 0.4 до 6.94 В (которое соответствует максимуму на рис. 4, кривая 1) в области низких частот ( $\omega = 2\pi f \to 0$ ) величина |Z| уменьшается от значения  $\sim 1.4 \cdot 10^6$  до  $\sim 6.2 \cdot 10^5$  Ом. Такое увеличение активной проводимости композитного материала p-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  при приложении постоянного напряжения связано с изменением геометрической формы и структуры участков слоистой матрицы, через которые происходит перенос носителей заряда [14]. При малых напряжениях положительного смещения на частотных зависимостях |Z| гибридных структур (рис. 5, кривые 1, 2) в области высоких частот ( $f > 1.65 \,\mathrm{MFu}$ ) наблюдается изменение наклона характеристики (показано стрелкой). Оно связано с проявлением высокочастотного релаксационного процесса. Этот процесс на диаграммах Найквиста Z'' = f(Z')(где Z' и Z" — действительная и мнимая части комплексного импеданса Z) имеет вид полуокружности, сдвинутой вдоль оси Z'' вверх (рис. 6, кривые 1, 2). Сдвиг диаметра полуокружности относительно оси Z'



**Рис. 6.** Диаграммы Найквиста для структур Au/Ni/ $\langle C \rangle$ /  $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/p-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  в высокочастотной области спектра при 293 К и значениях постоянного напряжения положительного смещения V, B: 1 - 0.4, 2 - 2.6, 3 - 4.4.

диаграммы свидетельствует о распределении времени релаксации электрического процесса относительно некоторого характеристического значения. Оценка времени релаксации для этого процесса, проведенная для модели с параллельным контуром ( $R \parallel C$ ), дает значения сопротивления, емкости, постоянной времени соответственно  $R_1 = 1.1 \cdot 10^4$  Ом,  $C_1 \approx 4.9 \cdot 10^{-12} \, \Phi$ ,  $\tau_1 \approx 5.5 \cdot 10^{-8} \, \mathrm{c}$ при V = 0.4 В и  $R_1 = 0.82 \cdot 10^4$  Ом,  $C_1 = 5.9 \cdot 10^{-12} \Phi$ ,  $\tau_1 \approx 4.9 \cdot 10^{-8}$  с при V = 2.6 В. Такой процесс наблюдался в импедансных спектрах гибридных структур со спин-селективным барьером (Au/Ni/Ga<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>/*p*-GaSe). Он связан с туннелированием через барьер и с накоплением вблизи этого барьера электронов с разным направлением спина [6]. На частотных характеристиках фазового угла (диаграммах Боде)  $\theta = f(\lg f)$  в этой области спектра при увеличении частоты наблюдается рост фазового угла  $\theta$  (рис. 7, кривые 1, 2). Увеличение емкости в высокочастотной области спектра при увеличении напряжения смещения структуры может быть связано с увеличением концентрации аккумулированных вблизи спин-селективного барьера в n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> спинполяризованных электронов. Аккумуляция спинов на локализованных состояниях в области гетерограницы между окислом и полупроводником наблюдалась при исследовании спиновой инжекции в гибридной МОП структуре Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*n*-GaAs [25]. Процесс инжекции спинов из ферромагнитного металла в полупроводник для этой структуры включал в себя последовательное туннелирование спинов через состояния на гетерогранице  $n^+$ -GaAs/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Величина характеристического времени релаксации для этого процесса слабо зависела от температуры. При T = 150 К она составляла ~  $10^{-7}$  с, что значительно превышает значение времени спиновой релаксации для электронов в *n*-GaAs [25]

При дальнейшем увеличении напряжения смещения (V > 2.6 B) в области частот  $f > (4.5-5) \cdot 10^5 \, \Gamma$ ц происходит резкое уменьшение модуля импеданса (рис. 5, кривые 3-6). Зависимость  $|Z| = f(\lg f)$  в высокочастотной области ( $f > 10^6 \Gamma$ ц) носит сложный характер, что свидетельствует о протекании в структуре нескольких релаксационных процессов. Эти процессы могут быть связаны с туннелированием спин-поляризованных  $(\sigma = \downarrow)$  электронов через спин-селективный барьер в Ni, транспортом спин-поляризованных ( $\sigma = \uparrow$ ) электронов в слоистой матрице p-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$ , с рекомбинацией спин-поляризованных электронов и дырок в *p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>) [6]. Отметим, что измеряемый при V > 4.4 В высокочастотный сигнал содержал большую реактивную (емкостную) составляющую. Она по величине на несколько порядков превышала составляющую, обусловленную геометрической емкостью структуры. На диаграммах Боде (рис. 7, кривые 3-6) видно, что процесс уменьшения |Z| сопровождается сильными изменениями фазы сигнала в области частот  $10^5 < f < (4.5-5) \cdot 10^6$  Гц. Такая зависимость фазового угла от частоты может быть связана с переносом носителей заряда между КЯ в p-GaSe. На этой диаграмме в области более высоких частот  $(2.4 < f < 7 \,\mathrm{MFu})$ наблюдается процесс, для которого фазовый угол отрицательный. Этот процесс (импеданс "индуктивного типа") связан с "отрицательной" емкостью. Он обусловлен запаздыванием по фазе протекающего через структуру тока относительно переменного напряжения  $U_{ac}$ , и описывается на рис. 7 (кривые 3-6) кривой с максимумом при  $f \approx (3.9-4.0) \cdot 10^6$  Гц. Близкая к симметричной ("дебаевской" [36]) форма этой кривой позволяет моделировать процесс параллельным контуром  $(R \parallel C)$  с постоянной времени  $\tau = 1/2\pi f$ , которая при  $V = 4.4 \,\mathrm{B}$  для данного процесса составляет  $\sim 4 \cdot 10^{-8} \,\mathrm{c}$ . На диаграммах Найквиста он имеет вид участка искаженной окружности, которая сдвинута вдоль оси Z" в область отрицательных значений реактивной составляющей импеданса (рис. 6, кривая 3). Моделирование этого процесса с помощью цепочки R || С дает возможность оценить характеристическое время релаксации т  $(R \approx 0.15 \,\mathrm{Om}, \ C \approx 1.8 \cdot 10^{-7} \,\Phi, \ \tau = RC \approx 2.7 \cdot 10^{-8} \,\mathrm{c}).$ Малое значение сопротивления гибридной структуры R свидетельствует о туннельном механизме переноса носителей заряда в исследуемой структуре на высоких



Рис. 7. Частотные зависимости фазового угла  $\theta$  для гибридной структуры Au/Ni/(C)/ $n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/p-GaSe(KNO<sub>3</sub>) при температуре 293 K и значениях постоянного напряжения положительного смещения V, B: 1 - 0.4, 2 - 2.6, 3 - 4.4, 4 - 6.08, 5 - 6.94, 6 - 10.3.

частотах ( $f > 10^6 \Gamma$ ц). Диаметр окружности на диаграммах Найквиста не лежит на оси Z', что связано с распределением времени релаксации электрического процесса. Это может быть связано с туннелированием носителей заряда через систему KЯ, которые различаются по форме и энергетическому спектру.

Отрицательный импеданс на низких частотах наблюдался при диффузионном транспорте неполяризованных неосновных носителей во включенных в прямом направлении диодах Шоттки с промежуточным слоем [37]. Он был связан с "отрицательной" диффузионной емкостью диода, которая включена параллелльно емкости области пространственного заряда (ОПЗ). В гибридной структуре Ni/p-GaSe с промежуточным наноразмерным (по толщине) слоем Ga<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> "отрицательная" емкость проявлялась в высокочастотной ( $f > 10^6$  Гц) области импедансного спектра. Она связывалась с диффузией аккумулированных вблизи спин-селективного барьера в p-GaSe спин-поляризованных электронов [6].

"Отрицательная" емкость при переносе неполяризованных носителей в структурах с множественными КЯ обычно наблюдается в низкочастотной области спектра [38,39]. В инфракрасных фотодетекторах с КЯ (QWIP) она проявлялась при высоких напряжениях смещения в области частот  $f < 10^4 \, \Gamma \mu$  [38]. "Отрицательная" емкость в этих структурах определяется свойствами инжекционного барьера и связана с процессами переноса носителей через КЯ. При повышении частоты емкость таких структур становится положительной, и при  $f > 10^6 \, \Gamma$ ц она уменьшается и приближается по величине к "геометрической емкости". В "интегрированных полупроводниковых структурах", которые, как и исследуемые в настоящей работе структуры, состояли из двух последовательно включенных навстречу друг другу барьерных структур (светодиода (LED), и QWIP), значительная "отрицательная емкость" (на 2 порядка превышающая значение геометрической емкости) также наблюдалась в низкочастотной области спектра при прямом смещении QWIP [39]. Процессы перезарядки КЯ проявлялись в квазистационарных вольт-фарадных характеристиках (ВФХ) этих структур при низких частотах измерительного сигнала ( $f < 10^5 \, \Gamma$ ц).

На высоких частотах эффект "отрицательной емкости" наблюдается в резонансных туннельных диодах (РТД). Он связан с туннелированием электронов через КЯ, расположенные между инжектором и коллектором [40]. Процесс протекания тока в РТД может быть смоделирован с помощью RLoC-цепочки. "Отрицательная емкость" РТД описывается квантовой индуктивностью  $L_O = \tau/G_D$ , где  $\tau$  — характерное время жизни электронов в КЯ,  $G_D$  — дифференциальная проводимость РТД. Положительная емкость РТД состоит из квантовой емкости, связанной с зарядкой и разрядкой КЯ, и включенной параллельно с ней геометрической емкости. Квантовая индуктивность L<sub>0</sub> (отрицательная емкость) характеризует запаздывание протекания тока через структуру при изменении приложенного к инжектору переменного напряжения. Она определяется темпом туннелирования электронов через барьер в КЯ и темпом туннельного ухода электронов из ямы, а также проводимостью области структуры, которая содержит КЯ [39,40].

На частотных зависимостях модуля импеданса исследуемых структур, измеренных при разных значениях положительного смещения (V > 2.6 B) (рис. 5, кривые 3-6) в области частот  $f > (4.5-5) \cdot 10^5$  Гц, наблюдаются ступеньки, характерные для туннельного механизма тока через резонансные уровни в структурах с КЯ и квантовыми точками (КТ). Положение этих ступенек вдоль частотной оси зависит от величины постоянного положительного смещения V структуры. Метод частотной емкостной спектроскопии применялся для исследования процессов туннелирования неполяризованных электронов через ансамбль КТ InAs, расположенных в ОПЗ, сформированной на основе GaAs гетероструктуры с КЯ [41]. Амплитуда емкостного сигнала, который измерялся в этих экспериментах при частотах модуляции переменного сигнала  $f < 10^5 \, \Gamma$ ц, отражает вероятность резонансного туннелирования через КТ. В исследуемых в настоящей работе гибридных структурах (рис. 3) наноразмерные сегнетоэлектрические включения расположены в ОПЗ ГП *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>). При изменении приложенного к гибридной структуре напряжения смещения (V > 0) вдоль оси C нанокомпозитного материала изменяются величина электрического поля и сегнетоэлектрическая поляризация в области локализации этих включений. При этом вследствие проявления обратного пьезоэффекта в сегнетоэлектрических включениях изменяется форма КЯ, которая определяется геометрической формой расположенных между включениями наноразмерных участков слоистого кристалла, через которые осуществляется вертикальный перенос носителей заряда [14]. Резонансное туннелирование носителей заряда в гетероструктурах с множественными КЯ осуществляется путем их последовательного туннелирования между соседними КЯ в условиях неоднородного распределения электрического поля вдоль оси роста наноструктуры и при аккумулировании заряда в КЯ [32]. Электрическое поле, приложенное перпендикулярно стенкам КЯ, изменяет ее форму [42]. Оно влияет на электронный



**Рис. 8.** Частотная зависимость емкости *C* гибридной структуры Au/Ni/ $\langle C \rangle / n^+$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  при температуре 293 K и значении постоянного напряжения положительного смещения V = 4.4 B.

спектр КЯ и на волновые функции носителей заряда. Влияние пьезоэлектрического потенциала на волновые функции электронов в КТ InAs было обнаружено при исследовании туннельного транспорта неполяризованных электронов методом частотной емкостной спектроскопии в магнитном поле [41]. Сильное электрическое поле приводит к уменьшению перекрытия волновых функций электронов и дырок в КЯ. С этим связано, например, уменьшение внешней квантовой эффективности для светодиодов InGaN/GaN с множественными КЯ (MQW LED) при больших плотностях инжекционного тока [43].

Частотная зависимость емкости гибридной структуры для модели с параллельным контуром ( $R \parallel C$ ), полученная из результатов импедансных исследований при V = 4.4 В, приведена на рис. 8. Из этого рисунка видно, что в диапазоне частот  $f < 5 \cdot 10^5 \, \Gamma$ ц емкость структуры монотонно уменьшается с увеличением частоты и стремится к значению "геометрической емкости", как это обычно наблюдается для барьерных структур с КЯ [44]. Резкое увеличение емкости структуры при  $f > 5 \cdot 10^5 \, \Gamma$ ц, которое сопровождается особенностями в виде ступенек на зависимости C = f(f), может быть связано с туннелированием аккумулированных в *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> спин-поляризованных ( $\sigma = \uparrow$ ) электронов через КЯ, расположенные в *p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>). При увеличении смещения (V > 0) концентрация электронов в *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> увеличивается. При этом уровень Ферми для них повышается, и при определенном значении напряжения смещения (V > 2.6 B) спин-поляризованные электроны туннелируют в p-GaSe. Это возможно при условии, если спиновая диффузионная длина (l<sub>s</sub>) для этих электронов в n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> больше, чем толщина этого слоя (w)(рис. 3) [2,8]. Отметим, что небольшая по величине высокочастотная отрицательная емкость ( $\sim 2 \cdot 10^{-10} \, \Phi/\text{MM}^2$ при  $f > 1 \cdot 10^6 \, \Gamma_{\rm H}$ ) наблюдалась ранее при аналогичной полярности напряжения смещения для сформированной на гофрированной ван-дер-ваальсовой поверхности (0001) GaSe гибридной структуры Ni/p-GaSe, которая не содержала сегнетоэлектрических включений. Большое значение "отрицательной емкости" в исследуемых структурах на высокой частоте (при  $f > 1 \cdot 10^6 \, \Gamma$ ц) может быть достигнуто, если эффективность рекомбинационных процессов в *p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>) с участием инжектированных спин-поляризованных электронов и дырок из валентной зоны полупроводника будет мала. Это может происходить при пространственном разделении электронных и дырочных плотностей носителей заряда в КЯ в условиях сильного электрического поля [42]. Рекомбинация электронов и дырок может быть также затруднена по причине разной "локализации на нанометровом масштабном уровне" [43,45] этих носителей на дефектных ван-дер-ваальсовых поверхностях GaSe со складками (ripples). Для обеспечения в гибридной структуре большой величины квантовой индуктивности Lo ("отрицательной емкости") время пребывания спинполяризованных электронов в КЯ должно быть достаточно большим [40]. Известно, что встроенные пьезоэлектрические поля в гетероструктурах с КЯ изменяют форму туннельных барьеров (делают ее треугольной) и увеличивают их прозрачность. Величина спинового потока и степень спиновой поляризации в таких структурах в десятки раз больше, чем в гетероструктурах с КЯ, в которых электрическая поляризация отсутствует [13]. Вертикальный перенос носителей заряда в исследуемых гибридных структурах происходит через большое количество каналов. Они расположены между сегнетоэлектрическими включениями в слоистой матрице p-GaSe, имеют наноразмерное поперечное сечение и включены параллельно друг с другом [14]. С этим связана большая величина удельной емкости, которой обладают исследуемые структуры. При комнатной температуре и  $f \approx 3.9 \cdot 10^6$  Гц она превышает  $10^{-6} \, \Phi/\text{мm}^2$ . Это на несколько порядков больше значения удельной емкости ( $\sim 2 \cdot 10^{-10} \, \Phi$ /мм $^2$  при  $f \approx 10^6 \, \Gamma$ ц), которую имеют традиционные МОП конденсаторы (например, Ni/V-GaAs-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-V/Ni) [22].

Острый максимум на ВАХ гибридной структуры (рис. 4, кривая 1) наблюдается при напряжении смещения  $V = 6.94 \,\mathrm{B}$  ( $V_{\mathrm{switch}}$ ), при котором происходит переключение электрической поляризации в сегнетоэлектрических включениях нанокомпозитного материала *p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>) [14]. Известно, что при переключении сегнетоэлектрической поляризации в гибридных гетероструктурах с сегнетоэлектрическими КЯ резко уменьшается туннельный ток, обусловленный переносом спин-поляризованных электронов через КЯ в этих структурах [15]. После переключения сегнетоэлектрической поляризации в сегнетоэлектрических включениях неполяризованные электроны накапливаются в нанокомпозитном материале p-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$  вследстве проявления эффекта Максвелла-Вагнера [14]. Этот процесс для гибридных наноструктур, как и для нанокомпозитного материала p-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  [14], проявляется на частотных характеристиках модуля импеданса и на диаграммах Боде (рис. 5, кривые 5, 6; рис. 7, кривые 5, 6) в виде резкого изменения модуля |Z| и фазового угла  $\theta$  в области низких частот (f < 1580-3160 Гц). Накопление неполяризованных электронов в *p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>) влияет на транспорт спин-поляризованных электронов. Это проявляется на частотных зависимостях |Z| в области частот (4.5-5)  $\cdot 10^5 < f < 10^6$  Гц (рис. 5, кривые 5, 6), и на диаграммах Боде (рис. 7, кривые 5, 6).

При изменении напряжения смещения V в обратном направлении (V < 10 B) на ВАХ гибридных структур наблюдается гистерезис. Гистерезис на ВАХ нанокомпозитного материала *p*-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$  обусловлен электрической поляризацией в сегнетоэлектрических включениях [14]. При уменьшении V от 10 до 0 В максимум на ВАХ исследуемых гибридных структур, как и на ВАХ *p*-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$  [14], достигается при меньших значениях напряжения смещения (V = 6.5 B), чем это наблюдалось на рис. 4 (кривая *I*, V = 6.94 B). Этот результат показывает, что электрическая поляризация в сегнетоэлектрических включениях сильно влияет на протекание тока в гибридных структурах.

## 4. Заключение

На ван-дер-ваальсовой поверхности (0001) нанокомпозитного материала p-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$  сформированы вертикальные гибридные структуры. Нанокомпозитный материал представляет собой полупроводниковую кристаллическую матрицу GaSe, которая содержит наноразмерные сегнетоэлектрические включения. Сегнетоэлектрические нанокристаллы сформированы в результате самоорганизации при внедрении в межслоевое пространство слоистого полупроводника p-GaSe сегнетоэлектрика KNO3 из расплава. Они упорядоченно расположены вдоль оси симметрии С гексагонального кристалла GaSe. Гибридные структуры состоят из слоев металлов (Au, Ni), углерода и широкозонного кристаллического окисла Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, которые имеют нанометровые толщины. Результаты АСМ-исследований свидетельствуют о высоком качестве поверхностей выращенных слоев. Гибридные структуры представляют собой последовательно включенные между собой барьер Шоттки с узким спин-селективным барьером и гетеропереход, сформированный на основе нанокомпозитного материала p-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$  и широкозонного окисла n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. При комнатной температуре исследованы частотные зависимости импеданса этих структур при разных значениях приложенного к структурам положительного напряжения смещения ("+" на Ni-слое), что соответствует режиму экстракции спин-поляризованных электронов из n-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Полученные результаты свидетельствуют об аккумуляции спин-поляризованных электронов вблизи спин-селективного барьера в n-Ga2O2 и о туннельном переносе этих носителей через множественные КЯ, сформированные в местах локализации сегнетоэлектрических включений в слоистой полупроводниковой матрице. Связанные с этим процессы релаксации носителей заряда проявляются в высокочастотной области импедансных спектров,  $f > (4.5-5) \cdot 10^5$  Гц. Вертикальный транспорт электронов в исследованных гибридных структурах происходит при наличии градиента электрического поля и сегнетоэлектрической поляризации вдоль оси симметрии С гексагонального слоистого кристалла. При увеличении напряжения положительного смещения (V > 2.6 B) в высокочастотной области импедансного спектра ( $f > 10^6 \, \Gamma$ ц) для исследуемых гибридных структур наблюдается большая отрицательная емкость (импеданс индуктивного типа). Эта динамическая емкость имеет квантово-механическую природу и связана с последовательным туннелированием аккумулированных в *n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> спин-поляризованных электронов через множественные КЯ, расположенные вдоль оси С в *p*-GaSe(KNO<sub>3</sub>). При положительной полярности напряжения смещения на ВАХ исследуемых структур наблюдается острый максимум. Напряжение, при котором имеет место этот максимум, соответствует напряжению переключения электрической поляризации (V<sub>switch</sub>) в сегнетоэлектрических включениях. При более высоких напряжениях смещения ( $V > V_{switch}$ ) ток уменьшается. Релаксационные процессы, которые связаны с переносом неполяризованных электронов через нанокомпозитный материал *p*-GaSe $\langle$ KNO<sub>3</sub> $\rangle$ , проявляются при  $V > V_{switch}$ в низкочастотной области (f < 3160 Гц) импедансного спектра гибридных структур.

На ВАХ гибридных структур при положительной полярности напряжения смещения наблюдается гистерезис, обусловленный влиянием сегнетоэлектрической поляризации в сегнетоэлектрических включениях на перенос носителей заряда в этих структурах. Этот эффект, а также большая величина высокочастотной удельной емкости исследуемых гибридных структур, которая наблюдается при комнатной температуре, открывают перспективу их практического использования в устройствах памяти и в высокочастотных электронных устройствах.

## Список литературы

- I. Zutic, J. Fabian, S. Das Sarma. Rev. Mod. Phys., 76, 323 (2004).
- [2] A.M. Bratkovsky. Rep. Progr. Phys., 71, 026 502 (2008).
- [3] А. Ферт. Успехи физ. наук, 178, 1336 (2008).
- [4] K. Reimann. Rep. Progr. Phys., 70, 1597 (2007).
- [5] M. Eddrief, Y. Wang, V.H. Etgens, D.H. Mosca, J.-L. Maurice, J.M. Jeorge, A. Fert, S. Bourgognou. Phys. Rev. B, 63, 094 428 (2001).
- [6] А.П. Бахтинов, В.Н. Водопьянов, З.Д. Ковалюк, В.В. Нетяга. О.С. Литвин. ФТП, 44, 180 (2010).
- [7] Z.D. Kovalyuk, V.M. Katerynchuk, A.I. Savchuk, O.S. Lytvyn. Superlatt. Mictrostr., 44, 416 (2008).
- [8] С.И. Драпак, С.В. Гаврилюк, З.Д. Ковалюк, О.С. Литвин. ФТП, 42, 423 (2008).
- [9] А.И. Дмитриев, В.В. Вишняк, Г.В. Лашкарев, В.Л. Карбовский, З.Д. Ковалюк, А.П. Бахтинов. ФТТ, 53, 579 (2011).

- [10] С.И. Драпак, З.Д. Ковалюк, ФТП, 41, 312 (2007).
- [11] Z. Li, C. de Groot, J.H. Moodera. Appl. Phys. Lett., 77, 3630 (2000).
- [12] J.C. Le Breton, H. Saito, S. Yuasa, K. Ando. Appl. Phys. Lett., 94, 152101 (2009).
- [13] V.I. Litvinov. Phys. Rev. B. 76, 245 305 (2007).
- [14] А.П. Бахтинов, В.Н. Водопьянов, З.Д. Ковалюк, В.В. Нетяга, Д.Ю. Коноплянко. ФТП, **45**, 348 (2011).
- [15] M.K. Li, N.M. Kim, T.W. Kang. Appl. Phys. Lett., 91, 103 103 (2007).
- [16] A.G. Petukhov, J. Niggemann, V.N. Smelyanskiy, V.V. Osipov. J. Phys.: Condens. Matter, **19**, 315 205 (2007).
- [17] Z.D. Kovalyuk, A.P. Bakhtinov, V.N. Vodop'yanov, A.V. Zaslonkin, V.V. Netyaga. In: *Carbon Nonomaterials in Clean Energy Hydrogen Systems*, ed. by B. Baranowski, S.Yu. Zaginaichenko, D.V. Schur, V.V. Skorokhod, A. Veziroglu (Springer, Netherlands, 2009).
- [18] C.H. Li, G. Kioseoglou, O.M.J. van't Erve, P.E. Thompson, B.T. Jonker. Appl. Phys. Lett., 95, 172 102 (2009).
- [19] Q.H. Li, S. Sakai. Appl. Phys. Lett., 89, 222 910 (2006).
- [20] O.A. Balitskii, V.P. Savchyn, V.O. Yukhymchuk. Semicond. Sci. Technol., 17, L1 (2002).
- [21] M. Orita, H. Ohta, M. Hirano. Appl. Phys. Lett., 77 (25), 4166 (2000).
- [22] В.М. Калыгина, А.Н. Зарубина, Е.П. Найден, В.А. Новиков, Ю.С. Петрова, О.П. Толбанов, А.В. Тяжев, Т.М. Яскевич. ФТП, 45, 1130 (2011).
- [23] А.П. Бахтинов, В.Н. Водопьянов, Е.И. Слынько, З.Д. Ковалюк, О.С. Литвин. Письма ЖТФ, 33 (2) 80 (2007).
- [24] M. Kanoun, R. Benabderrahmane, C. Duluard, C. Baraduc, N. Bruyant, A. Bsiesy, H. Achard. Appl. Phys. Lett., 90, 192 508 (2007).
- [25] M. Tran, H. Jaffres, C. Deranlot, J-M. George, A. Fert, A. Miard, A. Lemaitre. Phys. Rev. Lett., **102**, 036 601 (2009).
- [26] М.В. Дорохин, С.В. Зайцев, А.С. Бричкин, О.В. Вихрова, Ю.А. Данилов, Б.Н. Звонков, В.Д. Кулаковский, М.М. Прокофьева, А.Е. Шолина. ФТП, **52**, 2147 (2010).
- [27] T.I. Shin, H.J. Lee, W.Y. Song, S.-W. Kim, M.H. Park, C.W. Yang, D.H. Yoon. Nanotechnology, 18, 345 305 (2007).
- [28] G.-H. Lee. Jpn. J. Appl. Phys., 50, 91BJ14 (2011).
- [29] X. Gao, Y. Xia, J. Ji, H. Xu, Y. Su, H. Li, C. Yang, H. Guo, J. Yin, Z. Liu. Appl. Phys. Lett., 97, 193 501 (2010).
- [30] E.I. Rashba. Appl. Phys. Lett., 80, 2329 (2002).
- [31] J. Stakhira, V. Sachyn, V. Kytsai. Mol. Phys. Reports, 23, 184 (1999).
- [32] O.V. Pupysheva, A.V. Dmitriev, A.A. Farajian, H. Mizuseki, Y. Kawazoe. J. Appl. Phys., 100, 033 718 (2006).
- [33] В.М. Осадчий, В.Я. Принц. Письма ЖЭТФ, 72 (6), 451 (2000).
- [34] A. Humberta, F. Salvana, C. Moutteta. Surf. Sci., 181, 307 (1987).
- [35] Yu.V. Pershin, M. Di Ventra. Phys. Rev. B, 77, 073 301 (2008).
- [36] A.K. Jonscher. Sol. St. Electron., **33**, 139 (1990).
- [37] J. Werner, A.F.J. Levi, R.T. Tung, M. Anzlowar, M. Pinto. Phys. Rev. Lett., 60 (1), 53 (1988).
- [38] M. Ershov, H.C. Liu, L. Li, M. Buchanan, Z.R. Wasilewski, V. Ruzhii. Appl. Phys. Lett., 70, 1828 (1997).
- [39] M. Ershov, B. Yaldiz, A.G.U. Perera, S.G. Matsik, H.C. Liu, M. Buchanan, Z.R. Wasilewski, M.D. Williams. Infr. Phys. Technol., 42, 259 (2001).
- [40] Q. Liu, A. Seabaugh, P. Shahal, F.J. Morris. IEEE Trans. Electron Dev., 51 (5), 653 (2004).

- [41] O.S. Wibbelhoff, A. Lorke, D. Reuter, A.D. Wieck. Appl. Phys. Lett., 86, 092104 (2005).
- [42] А.Я. Шик, Л.Г. Бакуева, С.Ф. Мусихин, А.С. Рыков. Физика низкоразмерных систем (СПб., Наука, 2001).
- [43] S.-H. Han, D.-Y. Lee, H.-W. Shim, G.-C. Kim, Y.S. Kim, S.-T. Kim, S.-J. Lee, C.-Y Cho, S.-J. Park. J. Phys. D: Appl. Phys., 43, 354 004 (2010).
- [44] M. Ershov, H.C. Liu, L. Li, M. Buchanan, Z.R. Wasilewski, A.K. Jonscher. IEEE Trans. Electron Dev., 45, 2196 (1998).
- [45] R.A. Oliver, S.E. Bennett, T. Zhu, D.J. Beesley, M.J. Kappers, D.W. Saxey, A. Cerezo, C.J. Humphreys. J. Phys. D: Appl. Phys., 43, 354003 (2010).

Редактор Л.В. Шаронова

# Surface morphology and electrical properties of hybrid structures fabricated on the basis of layered semiconductor with nanoscale ferroelectric inclusions Au/Ni/ $\langle C \rangle$ /*n*-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/*p*-GaSe $\langle KNO_3 \rangle$

A.P. Bakhtinov, V.N. Vodopyanov, V.V. Netyaga, Z.R. Kudrynskyi, O.S. Lytvyn\*

Frantsevich Institute for Problems of Materials Science (Chernivtsi Department), National Academy of Sciences of Ukraine, 58001 Chernivtsi, Ukraine \*Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics, National Academy Sciences of Ukraine, 03028 Kyiv, Ukraine

Abstract Peculiarities of hybrid nanostructures  $Au/Ni/\langle C \rangle/$ n-Ga2O3 formation on (0001) Van der Waals surface of composite "layered semiconductor-ferroelectric" nanostructures  $(p-\text{GaSe}\langle KNO_3 \rangle)$  have been investigated using atomic force microscopy. The current-voltage characteristics and the dependence of the impedance spectra on the bias voltage of hybrid structures were investigated at room temperature. We found that the current-voltage curve shows a resonant peak followed by a negative differential resistance slope. The current reaches a maximum at certain applied voltage due to effect of electric polarization switching in nanoscale 3D ferroelectric inclusions in the layered GaSe matrix. At high frequencies  $(f > 10^6 \text{ Hz})$  we found the inductive type impedance (a large negative capacitance  $\sim 10^{-6}\,\text{F/mm}^2).$  This effect is due to spin-polarized electron transport in series connected a semiconductor multiple quantum well composite  $(p-GaSe(KNO_3))$  nanostructure and a forwardbiased "ferromagnetic-semiconductor" spin polarizer of electrons  $(Au/Ni/\langle C \rangle/n^+-Ga_2O_3/n-Ga_2O_3)$ . The shift behavior of peak (current hysteresis) in current-voltage characteristics was detected at different direction of variation in the bias voltage.