

低温退火对稀磁半导体 (Ga, Mn)As 性质的影响*

邓加军 赵建华 蒋春萍 牛智川 杨富华 吴晓光 郑厚植

(中国科学院半导体研究所 超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 利用低温分子束外延技术在 GaAs(001) 上外延生长出厚度为 500nm 的稀磁半导体 (Ga, Mn)As 薄膜. 双晶 X 射线衍射证明其为闪锌矿结构, 晶格参数为 0.5683nm, 据此推导出其 Mn 含量为 7%. 磁测量结果揭示其铁磁转变温度为 65K. 观察了低温退火处理对 (Ga, Mn)As 磁性质的影响, 发现生长后退火处理显著提高了其铁磁转变温度, 可以达到 115K.

关键词: 稀磁半导体; 铁磁性; 分子束外延

PACC: 7550P; 7550D; 8115N

中图分类号: TN304.7

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2005)S0-0042-03

1 引言

自 1996 年 Ohno 等人^[1]利用低温分子束外延 (LT-MBE) 技术成功制备出稀磁半导体 (Ga, Mn)As 以来, 稀磁半导体 (Ga, Mn)As 由于其独特的物理性质和广阔的应用前景而备受关注. (Ga, Mn)As 既具有半导体材料性能又具有铁磁材料性能, 从而有望在其中同时进行信息存储和处理, 满足人们对大容量信息和高速度的追求. 在 (Ga, Mn)As 中, Mn 既是一种磁性元素又是一个 p 型掺杂剂, Mn 离子之间通过它所产生的空穴实现铁磁耦合. 尽管 Dietl 等人从理论上预言 (Ga, Mn)As 的铁磁转变温度 (T_C) 值能达到 300K 以上^[2], 但到目前为止其 T_C 不超过 110K^[3]. 低的 T_C 是其走向应用的重要障碍. 这主要是因为较低的生长温度 (约 250°C) 造成了大量缺陷, 如 As 反位缺陷 (As_{Ga}) 和 Mn 间隙缺陷 (Mn_i) 等, 这些缺陷起着施主作用, 使得替代 Ga 位的 Mn 产生的空穴部分被补偿掉, 因此降低补偿缺陷浓度是提高 (Ga, Mn)As 铁磁转变温度的一条重要途径. 一些实验结果表明, 生长后退火处理能大大降低补偿缺陷浓度, 从而提高 (Ga, Mn)As 的铁磁转变温度^[4~7]. 本文对 (Ga, Mn)As 薄膜进行了生长后的低温退火研究.

2 实验

我们利用低温分子束外延技术在半绝缘 GaAs (001) 衬底上制备了厚度为 500nm 的 (Ga, Mn)As 薄膜样品. 在整个生长过程中, 利用反射高能电子衍射 (RHEED) 仪原位观察生长表面的重构. GaAs 衬底在预备室中除气后送到生长室中进行脱氧, 脱氧温度为 580°C. 在生长 (Ga, Mn)As 外延层之前, 首先生长出 100nm 厚的 GaAs 缓冲层来平滑衬底的表面, 生长温度为 560°C. 然后衬底温度降到 250°C, 稳定 0.5h 后开始生长 (Ga, Mn)As. 生长 (Ga, Mn)As 时使用的 III, V 族元素束流比 As_4/Ga 约为 32, 生长速率为 11nm/min. RHEED 图像显示生长 GaAs 缓冲层时, 表面为 (2×4) 重构, 降温至 250°C 后, 变为 (2×2) 重构. 在 (Ga, Mn)As 生长过程中, RHEED 图像显示出清晰的条状 (1×2) 重构. 使用双晶 X 射线衍射 (XRD) 仪和超导量子干涉仪 (SQUID) 对 (Ga, Mn)As 的结构和磁性质进行了表征. 退火处理是在空气气氛中完成的. 退火温度在 190~300°C 范围内由低到高改变, 每一次退火后, 使用 SQUID 测量样品残余磁矩与温度的关系曲线, 由此观察退火后 (Ga, Mn)As 的铁磁转变温度的变化.

* 国家自然科学基金重点项目 (批准号: 10334030), 国家重点基础研究专项 (批准号: 2001CB3095) 和留学回国人员科研启动基金资助项目
2004-11-03 收到, 2004-12-20 定稿

3 结果与讨论

厚度为 500nm 的(Ga,Mn)As 薄膜在 GaAs 衬底上外延生长过程中,其表面始终保持条状(1×2)重构,这说明此薄膜为闪锌矿结构,并具有很好的晶体质量.为了检验(Ga,Mn)As 外延层的晶体结构和质量,我们进行了双晶 X 射线衍射实验.从图 1 可以看到除了 GaAs 衬底的(004)衍射峰外,还有一个清晰的(Ga,Mn)As 的(004)衍射峰,证明了(Ga,Mn)As 薄膜在 GaAs 衬底上得到了很好的外延生长,这与样品生长过程中原位观察到的 RHEED 图像是一致的.由此可见,尽管该样品是在低温下生长的,却具有很高的晶体质量.利用布拉格衍射方程可以估算出(Ga,Mn)As 的晶格常数 $a = 0.5683\text{nm}$,比 GaAs 的晶格常数(0.5653nm)稍大.因为其晶格常数 a 遵守 Vegard 定律(也就是正比于 Mn 含量 x)^[1]: $a = 0.566(1-x) + 0.598x(\text{nm})$,利用此式可估算出该样品的 Mn 含量约为 7%.

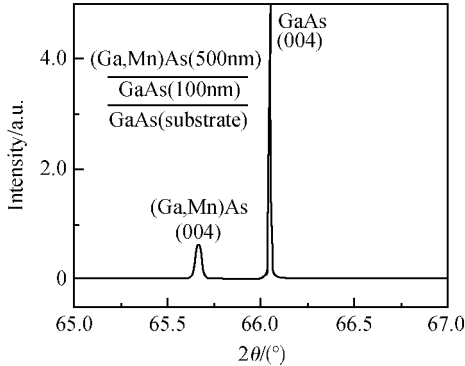


图1 生长在 GaAs (001)上的(Ga,Mn)As 的双晶 X 射线衍射曲线 由此推导出晶格参数为 0.5683nm, Mn 含量为 7%.
Fig.1 X-ray diffraction curve of a (Ga,Mn)As layer grown on GaAs (001) The lattice constant and the Mn concentration are 0.5683nm and 7%, respectively.

为了检验(Ga,Mn)As 薄膜是否具有铁磁性,并检验其是否含有 MnAs 等其他杂相,我们利用 SQUID 进行了样品的磁性质测量.图 2 给出了温度为 5K 时磁化强度与磁场的关系曲线,外加磁场平行于样品表面,来自 GaAs 衬底的抗磁性影响已经被减掉.图 2 中的插图是零磁场附近区域的放大图,明显的矩形磁滞回线说明了(Ga,Mn)As 具有铁磁性.图 3 给出了退火前和不同温度条件下退火后样

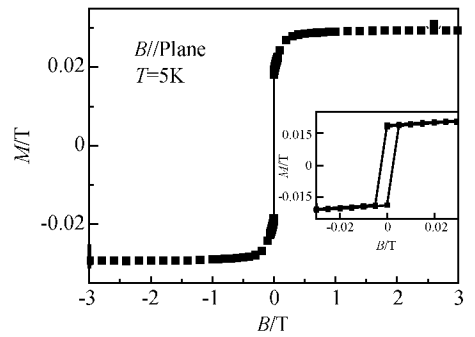


图2 (Ga,Mn)As 在 5K 时的磁化强度 M 与磁场 B 的关系插图为零磁场附近区域的放大.

Fig.2 Magnetic field dependence of magnetization of (Ga,Mn)As at 5K Insert is the enlargement of hysteresis loop around zero magnetic field.

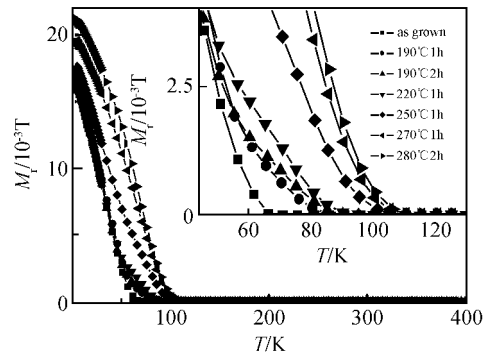


图3 退火前和在不同温度下退火后(Ga,Mn)As 中残余磁矩 M_r 与温度 T 关系曲线 插图为残余磁矩接近零的区域的放大.

Fig.3 Temperature dependence of the remnant magnetization M_r of a (Ga,Mn)As layer before annealing and after annealing at different temperature Insert is the enlargement around zero remnant magnetization.

品的残余磁矩 M_r 与温度 T 的关系曲线.对于未退火的(Ga,Mn)As,铁磁转变温度为 65K,在此温度以上残余磁矩降为零,这也表明该样品中无可检测到的第二相 MnAs(NiAs 结构,其 $T_C = 310\text{K}$)存在.在 190°C 退火 1h, T_C 提高到 86K,在此温度下再退火 1h, T_C 提高到 90K.这表明在很低的退火温度下,要尽可能提高 T_C ,就需要长的退火时间.接下来在 220, 250 和 270°C 下分别退火 1h,得到的 T_C 分别为 95, 105 和 115K.最后该样品在 280°C 下退火 2h, T_C 仍旧为 115K,这说明再进一步提高退火温度,已很难提高 T_C .同未退火的情况一样,在整个退火处理过程中,没有发现第二相 MnAs 出现.目前普遍认为(Ga,Mn)As 退火后 T_C 的提高主要归因

于间隙 Mn 向表面的扩散和 As 反位的减少,这些补偿缺陷密度的降低相对增大了空穴浓度,导致 (Ga, Mn)As 铁磁转变温度的提高^[7]。另外,由于 (Ga, Mn)As 通常是在低温和富 As 条件下生长,过量的 As 进入并形成 As 间隙,这种 As 间隙是深施主,有可能与 Mn 形成复合体,也会引起空穴浓度的下降^[5]。因此,退火过程中,As 间隙的减少也是铁磁转变温度提高的原因之一。可见,继续优化生长条件和退火条件,有望进一步提高铁磁转变温度。

4 结 论

利用低温分子束外延技术制备了具有高晶体质量的稀磁半导体 (Ga, Mn)As, 其铁磁转变温度为 65K。从低到高改变退火温度进行反复退火,铁磁转变温度显著提高,可达到 115K。

致谢 感谢中国科学院半导体研究所超晶格室李树英实验师在样品制备方面提供的帮助。

参 考 文 献

- [1] Ohno H, Shen A, Matsukura F, et al. (Ga, Mn)As: a new diluted magnetic semiconductor based on GaAs. *Appl Phys Lett*, 1996, 69:363
- [2] Dietl T, Ohno H, Matsukura F, et al. Zener model description of ferromagnetism in zinc blende magnetic semiconductor. *Science*, 2000, 287:1019
- [3] Matsukura F, Ohno H, Shen A, et al. Transport properties and origin ferromagnetism in (Ga, Mn)As. *Phys Rev B*, 1998, 57:2037
- [4] Yu K C, Potashnik S J, Wang R F, et al. Highly enhanced Curie temperature in low-temperature annealed [Ga, Mn]As epilayer. *Appl Phys Lett*, 2003, 82:2302
- [5] Hayashi T, Hashimoto Y, Katsumoto S, et al. Effect of low-temperature annealing on transport and magnetism of diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As. *Appl Phys Lett*, 2001, 78:1691
- [6] Edmonds K W, Wang K Y, Campion R P, et al. High-Curie-temperature Ga_{1-x}Mn_xAs obtained by resistance-monitored annealing. *Appl Phys Lett*, 2002, 81:4991
- [7] Mathieu R, Sørensen B S, Sadowski J, et al. Magnetization of ultrathin (Ga, Mn)As layers. *Phys Rev B*, 2003, 68:184421

Enhancement of Ferromagnetic Transition Temperature in (Ga, Mn)As by Post-Growth Annealing*

Deng Jiajun, Zhao Jianhua, Jiang Chunping, Niu Zhichuan,
Yang Fuhua, Wu Xiaoguang, and Zheng Houzhi

(State Key Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: A diluted magnetic semiconductor (Ga, Mn)As film is grown on semi-insulating (001) GaAs by low-temperature molecular beam epitaxy. X-ray diffraction pattern shows its zincblende structure with a lattice constant of 0.5683nm, which corresponds to a nominal Mn composition of 7%. Magnetic measurements reveal that the ferromagnetic transition temperature is 65K. Effect of low-temperature annealing on magnetic properties of (Ga, Mn)As is also investigated. The ferromagnetic transition temperature is increased up to 115K after annealing.

Key words: diluted magnetic semiconductor; ferromagnetism; molecular beam epitaxy

PACC: 7550p; 7550D; 8115N

Article ID: 0253-4177(2005)S0-0042-03

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 10334030), the Special Funds of National Key Basic Research Plan of China (No. G2001CB3095), and the Scientific Research Foundation for the Returned Overseas Chinese Scholars of Chinese State Education Ministry