

Cr 掺杂 InAs 自组织量子点的分子束外延生长及磁性质*

郑玉宏¹ 赵建华^{1,†} 毕京锋¹ 王玮竹¹ 邓加军^{1,2} 夏建白¹

(1 中国科学院半导体研究所 半导体超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

(2 中国科技大学物理系, 合肥 230026)

摘要: 利用低温分子束外延技术制备了 Cr 掺杂的 InAs 铁磁性自组织量子点. 高分辨电子显微镜分析表明 InAs:Cr 量子点保持了较好的闪锌矿结构. 超导量子干涉仪磁性测量表明 InAs:Cr 自组织量子点的铁磁转变温度超过 400K.

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: TN304.2

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0211-04

1 引言

1992 年利用低温分子束外延技术(LT-MBE)生长的 III-V 族半导体(In, Mn)As 中载流子做媒介的铁磁性的发现^[1], 尤其是随后(Ga, Mn)As 的铁磁转变温度实现了 110K 的突破^[2], 激起了人们研究 III-V 族稀磁半导体的极大兴趣. 稀磁半导体有望同时实现信息的存储和处理, 因而在自旋电子学领域有着广阔的应用前景. 然而即使经过退火, (Ga, Mn)As 的铁磁转变温度最高也只能达到 173K^[3], 远低于室温, 致使其目前尚无法在实际中应用. 根据空穴做媒介的铁磁交换作用理论^[4], 较小晶格常数及较大空穴有效质量的晶体会具有较高的铁磁转变温度, 这使得(Ga, Mn)N^[5], (Ga, Mn)P^[6]等稀磁半导体受到较多的关注. 而对于窄禁带材料来说, 除了最早用非平衡方法制备的材料(In, Mn)As 外^[7], (In, Mn)Sb 也受到了一定的关注^[8,9]. 但由于较大的晶格常数和较小的空穴有效质量, 它们的铁磁转变温度都比较低.

量子点因为其独特的物理性质而得到了广泛的研究. 量子点激光器有着许多潜在的优异特性, 如较好的温度特性、高的增益和低的阈值电流密度等^[10~12]. 量子点在红外探测器领域也有诸多优点, 如可以吸收垂直入射光、高的探测效率及高的工作温度等^[13,14]. 相对于传统量子点, 铁磁性量子点也

有着特殊的用途, 借助于它可以很容易实现对自旋的操作, 从而在未来固态量子计算和量子通讯中发挥重要作用^[15]. 迄今为止, 关于稀磁半导体研究的工作大部分集中于薄膜样品, 只有为数不多的几个小组生长了 Mn 掺杂的 InAs 铁磁性量子点^[16~20]. 本文将介绍 Cr 掺杂的 InAs 铁磁性自组织量子点的分子束外延生长、结构及磁性质.

2 实验

我们在一套 V80MARKI 系统上利用低温分子束外延技术在半绝缘 GaAs(001)衬底制备了 Cr 掺杂的 InAs 自组织量子点. 在整个生长过程中, 利用反射式高能电子衍射仪(RHEED)原位观察生长表面的重构, 利用 W-Re 热电偶监测生长温度. 衬底在预备室除气后送到生长室中进行脱氧, 脱氧温度为 580°C, 然后降温至 560°C 生长厚度为 300nm 的 GaAs 来平滑衬底的表面. 最后衬底降到 250°C 进行 InAs:Cr 量子点的生长. 生长过程中 As₄:In 束流比为 80:1, InAs 生长速率为 0.048ML/s. 首先生长 2ML 的 InAs 润湿层, 然后直接打开 Cr 源炉挡板进行 InAs:Cr 量子点的生长. 我们利用原子力显微镜(AFM)及高分辨电子显微镜(HRTEM)对所生长的材料进行了结构分析, 利用超导量子干涉仪(SQUID)测量了它们的磁性质.

* 国家自然科学基金(批准号:10334030, 10425419, 90301007, 60521001)及国家重点基础研究专项基金(批准号:2001CB3095)资助项目

† 通信作者. Email: jhzha@red.semi.ac.cn

2006-12-30 收到

3 结果与讨论

图 1 为 InAs:Cr 自组织量子点形成时较典型的 RHEED 图像. RHEED 图像显示生长 InAs 润湿层时表面为 (1×1) 重构, 而当 Cr 挡板打开后, 条纹开始变断并出现点状 (1×1) 重构. 在生长 InAs:Cr 量子点过程中, 点变大且明亮. 为了观察 InAs:Cr 生长过程中 Cr 是否像 Mn 在 InAs:Mn 中那样扮演表面活性剂的角色^[17,21], 我们固定 In 和 Cr 的束流和, 生长了不同 Cr 浓度的 InAs:Cr 样品, 发现量子点尺寸随 Cr 浓度的变化较为复杂, Cr 作为表面活性剂的可能性较小, 需要进一步实验来确定. 我们也生长了相同 Cr 浓度 (Cr: In = 0.18), 不同 InAs:Cr 沉积量的样品 A, B, C 和 D 来研究量子点的形成过程. 从图 2 可以清楚地看到量子点生成演化过程. 样品 A 中 InAs:Cr 的沉积量为 7.12ML, 生长过程中 RHEED 图已成点状, 但从图 2(a) 还看不出有明显量子点的迹象. 样品 B (图 2(b)) 中 InAs:Cr 的沉积量为 10.80ML, 可以看到量子点开始形成, 到图 2(c) 样品 C 的 14.48ML, 量子点密度已较大, 大约有 $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, 但尺寸都较小. 从图 2(c) 到图 2(d) 可以看出这一阶段量子点的生长只是尺寸上的增加, 而量子点的密度基本保持不变. 为了研究所生长量子点的结构, 对样品 D 进行了高分辨透射电镜 (HRTEM) 的测试, 图 3 即为样品 D 的 HRTEM 图. 从图 3 可以看出量子点内部仍保持着闪锌矿结构, 界面处结构也较好, 表明 InAs:Cr 量子点较好地外延在 GaAs 缓冲层上. 但从图中也可以看出, 量子点内部也出现了层错等缺陷, 这与材料在低温下生长及 Cr 掺杂浓度较高有关. 图 3 中的量子点底部横向尺寸约为 19nm, 高约为 10nm, 是我们能够观测的区域内一个较大的量子点 (不是最大), 但相比于 AFM 图观测到的量子点的平均尺寸, 底部横向尺寸约为 130nm 和高约为 27nm 要小

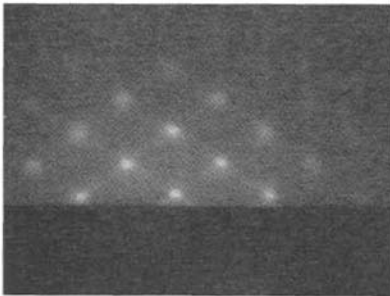


图 1 InAs:Cr 自组织量子点形成时的 RHEED 图像

Fig.1 RHEED pattern after the growth of the InAs:Cr self-organized quantum dots

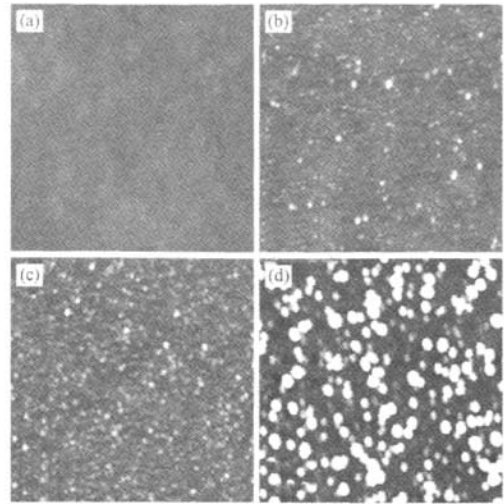


图 2 InAs:Cr 量子点的 $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ AFM 图 在 GaAs(001) 缓冲层上先生长 2ML 的 InAs, 然后分别生长不同厚度的 InAs:Cr 量子点 (a) 样品 A, 7.12ML; (b) 样品 B, 10.80ML; (c) 样品 C, 14.48ML; (d) 样品 D, 18.16ML

Fig.2 $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ AFM images of InAs:Cr quantum dots 2ML InAs wetting layer was firstly grown, then InAs:Cr quantum dots with different thicknesses were grown (a) Sample A, 7.12ML; (b) Sample B, 10.80ML; (c) Sample C, 14.48ML; (d) Sample D, 18.16ML

很多. 这主要是由于从 HRTEM 图看到的“量子点”只是量子点的截面图, 而这个截面很难控制到刚好是通过正中心的最大的截面. 而且由于制样的原因, 每次测试能观测到的区域内量子点数目要远少

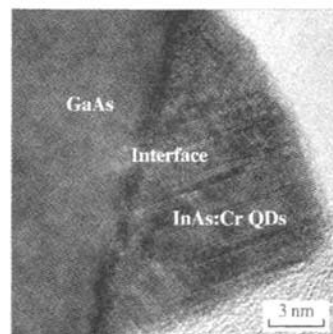


图 3 样品 D 的高分辨透射电镜图 样品 D 的结构为: 先生长 2ML 的 InAs 润湿层, 再沉积 18.16ML 的 InAs:Cr, Cr/In 为 0.18.

Fig.3 HRTEM image of sample D Firstly 2ML InAs wetting layer is deposited, secondly 18.16ML InAs:Cr is deposited, Cr/In ratio is 0.18.

于做 AFM 测试所观测到的数目. 对量子点进行了能量色散谱(EDS)测量, 结果发现有 In, As, Cr, Cu 和 Ga 五种元素. 其中少量 Cu 和 Ga 的出现是由于聚焦精度不够, Cu 来自于做支架的铜环, Ga 来自于缓冲层的 GaAs.

我们用 SQUID 对 Cr 掺杂的 InAs 自组织量子点进行了磁性测量. 对于单层的 InAs:Cr 量子点, 只有当 Cr 掺杂浓度达到一定程度时, 才能够测量到它的磁性. 图 4 给出了样品 D 在 5 及 300K 时的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 衬底和缓冲层的抗磁性已被减去. 左上角的插图是零磁场区域附近的放大. 明显的磁滞回线表明 InAs:Cr 具有室温铁磁性. 右下角的插图是样品 D 从 5 到 400K 的残余磁矩和温度的依赖关系, 可以看出铁磁转变温度超过 SQUID 的极限测量温度 400K.

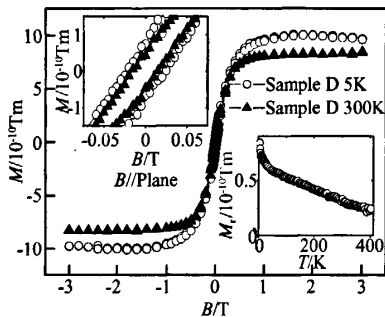


图 4 5 和 300K 时样品 D 的磁化强度 M 与磁场 B 的关系曲线. 左上角插图是零磁场区域附近的放大图, 右下角插图是此样品 5 到 400K 残余磁矩 M_r 与温度 T 的关系.

Fig. 4 Magnetic field dependence of magnetization of sample D at 5K (circles) and 300K (solid triangle) under magnetic field parallel to the sample surface. The top left inset is the enlargement of hysteresis loops around zero magnetic field, and the bottom right one is the temperature dependence of remanent magnetization of sample D (circle) under zero magnetic field.

4 结论

利用低温分子束外延技术制备了 Cr 掺杂的 InAs 自组织量子点. HRTEM 分析表明量子点保持了较好的闪锌矿结构. SQUID 磁性测量表明 InAs:Cr 量子点的铁磁转变温度超过 400K.

参考文献

[1] Ohno H, Munekata H, Penney T, et al. Magnetotransport properties of p-type (In, Mn)As diluted magnetic III-V semiconductors. *Phys Rev Lett*, 1992, 68:2664

- [2] 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
- [3] Wang K Y, Campion R P, Edmonds K W, et al. Magnetism in (Ga, Mn)As thin films with T_c up to 173K. 27th International Conference on the Physics of Semiconductors, 2005, 772:333
- [4] Dietl T, Ohno H, Matsukura F. Hole-mediated ferromagnetism in tetrahedrally coordinated semiconductors. *Phys Rev B*, 2001, 63:195205
- [5] Reed M L, El-Masry N A, Stadelmaier H H, et al. Room temperature ferromagnetic properties of (Ga, Mn)N. *Appl Phys Lett*, 2001, 79:3473
- [6] Overberg M E, Gila B P, Thaler G T, et al. Room temperature magnetism in GaMnP produced by both ion implantation and molecular-beam epitaxy. *J Vac Sci Technol B*, 2002, 20:969
- [7] Munekata H, Ohno H, von Molnár S, et al. Diluted magnetic III-V semiconductors. *Phys Rev Lett*, 1989, 63:1849
- [8] Wojtowicz T, Cywinski G, Lim W L, et al. A narrow-gap ferromagnetic semiconductor. *Appl Phys Lett*, 2003, 82:4310
- [9] Csontos M, Wojtowicz T, Liu X, et al. Magnetic scattering of spin polarized carriers in (In, Mn)Sb dilute magnetic semiconductor. *Phys Rev Lett*, 2005, 95:227203
- [10] Arakara Y, Sakaki H. Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. *Appl Phys Lett*, 1982, 40:939
- [11] Asada M, Miyamoto Y, Suematsu Y. Gain and the threshold of three-dimensional quantum-box lasers. *IEEE J Quantum Electron*, 1986, 32:1915
- [12] Kirstaedter N, Ledentsov N N, Grundmann M, et al. Low threshold, large to injection laser emission from (In, Ga)As quantum dots. *Electron Lett*, 1994, 30:1416
- [13] Pan D, Towe E, Kennerly S. Normal-incidence intersubband (In, Ga)As/GaAs quantum dot infrared photodetectors. *Appl Phys Lett*, 1998, 73:1937
- [14] Maimon S, Finkman E, Bahir G, et al. Intersublevel transitions in InAs/GaAs quantum dots infrared photodetectors. *Appl Phys Lett*, 1998, 73:2003
- [15] Loss D, DiVincenzo D P. Quantum computation with quantum dots. *Phys Rev A*, 1998, 57:120
- [16] Guo S P, Ohno H, Shen A, et al. Self-organized (In, Mn)As diluted magnetic semiconductor nanostructures on GaAs substrate. *Appl Surf Sci*, 1998, 130~132:797
- [17] Ofuchi H, Kubo T, Tabuchi M, et al. Fluorescence extended X-ray absorption fine structure study on local structures around Mn atoms in thin (In, Mn)As layer and (In, Mn)As quantum dots. *J Appl Phys*, 2001, 89:66
- [18] Jeon H C, Chung K J, Chung K J, et al. Self-assembled diluted magnetic semiconductor quantum dots with high T_c . *Curr Appl Phys*, 2004, 4:213
- [19] Chen Y F, Lee W N, Huang J H, et al. Growth and magnetic properties of self-assembled (In, Mn)As quantum dots. *J Vac Sci Technol B*, 2005, 23(4):1376
- [20] Holub M, Chakrabarti S, Fathpour S, et al. Mn-doped InAs self-organized diluted magnetic quantum-dot layers with Curie temperatures above 300K. *Appl Phys Lett*, 2004, 85:973
- [21] Guo S P, Shen A, Yasuda H, et al. Surfactant effect of Mn on the formation of self-organized InAs nanostructures. *J Cryst Growth*, 2000, 208:799

Growth and Characterization of Cr-Doped InAs Self-Organized Diluted Magnetic Quantum Dots*

Zheng Yuhong¹, Zhao Jianhua^{1,†}, Bi Jingfeng¹, Wang Weizhu¹, Deng Jiajun^{1,2}, and Xia Jianbai¹

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

(2 *Department of Physics, University of Science and Technology, Hefei 230026, China*)

Abstract: Cr-doped InAs self-organized ferromagnetic quantum dots (QDs) were grown on GaAs (001) substrate by low-temperature molecular-beam epitaxy. High-resolution transmission electron microscopy (HRTEM) analyses show that the InAs:Cr quantum-dots layers remain zinc blende structure well. Magnetic measurements demonstrate that the ferromagnetic transition temperature exceeds 400K in InAs:Cr self-organized QDs.

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

PACC: 7550P; 7550D; 8115N

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0211-04

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Nos. 10334030, 10425419, 90301007, 60521001) and the Special Funds of National Key Basic Research Plan of China (No. 2001CB3095)

† Corresponding author. Email: jhzhao@red.semi.ac.cn

Received 30 December 2006

©2007 Chinese Institute of Electronics