

Mn⁺ 离子注入 GaAs 的铁磁性质和结构*

蔡 明 陈辰嘉 王学忠 许世发 丁晓民 张 铭 孙允希

(北京大学物理系, 北京 100871)

摘要: 报道 Mn⁺ 离子注入(001)GaAs 后经快速退火形成的亚微米铁磁晶粒的性质和结构特性。磁化强度测量结果显示室温下具有铁磁性。用透射电子显微镜、X 射线能谱和电子衍射分析表明除形成 MnGa 晶粒外, 还有含少量 Ga 的 MnAs 晶粒。原子力显微镜和磁力显微镜的结果表明在 750—900℃下退火形成的铁磁颗粒以单畴为主。

关键词: GaAs; 铁磁性; 离子注入

PACC: 6170T; 7550R; 7560C; 7560N

中图分类号: TN304. 2⁺ 3 **文献标识码:** A **文章编号:** 0253-4177(2000)09-0872-05

Ferromagnetic Properties and Structure of Mn⁺ Ion-Implanted GaAs^{*}

CAI Ming, CHEN Chen-jia, WANG Xue-zhong, XU Shi-fa,
DING Xiao-min, ZHANG Ming and SUN Yun-xi

(Department of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Received 16 July 1999, revised manuscript received 14 December 1999

Abstract: Submicron ferromagnets have been successfully incorporated into the semi-insulating (001) GaAs crystals by Mn⁺ ion implantation and subsequent rapid annealing. Magnetization measurements reveal the room-temperature ferromagnetism. The structural and compositional properties of crystallites have been analyzed by transmission electron microscopy, energy dispersive X-ray spectroscopy and electron diffraction. The results show that crystallites of MnGa and MnAs with a small amount of Ga are formed. Images under the atomic force microscopy and magnetic force microscopy indicate that the single-domain magnetic state is dominant in submicron ferromagnets under our annealing conditions (750—900℃).

* 国家自然科学基金资助课题(编号: 19874005) [Project Supported by National Natural Sciences Foundation of China Under Grant No. 19874005].

蔡 明 男, 1977 年出生, 硕士研究生, 现从事半导体异质结的磁性和磁光特性的研究[CAI Ming, male, born in 1977, a graduate student in the Physics Department of Peking University, now is researching on the magnetism and magnet-optic characterizations of semiconductor heterostructure].

1999-07-16 收到, 1999-12-14 定稿

Key words: GaAs; Ferromagnetic; Implantation

PACC: 6170T; 7550R; 7560C; 7560N

Article ID: 0253-4177(2000)09-0872-05

1 引言

在半导体中引入铁磁结构近来引起科技人员的极大兴趣,这是由于混杂铁磁-半导体的新结构在集成电子学、集成光学器件中具有广阔的应用前景^[1]。一种新型的III-V族稀磁半导体p型-GaMnAs显示在低温下具有铁磁性^[2,3]。 Mn^+ 离子注入GaAs后在一定的退火条件下会形成亚微米的MnGa或MnAs晶粒,它们在室温显示铁磁性,并且颗粒尺寸会明显的影响其铁磁特性^[4]。最近,Shi等人^[5,6]用 Mn^+ 离子注入GaAs后热处理形成MnGa亚微米颗粒,这些颗粒在室温下就显示出铁磁性。De Boeck等人^[7]报道在低温分子束外延(Low Temperature Molecular Beam Epitaxy-LT MBE) GaAs中引入Mn,经退火形成MnAs晶粒并在室温下显示铁磁性。Wellmann等^[4]报道 Mn^+ 离子注入LT-MBE生长的GaAs退火后也形成铁磁晶粒MnAs。本文着重报道在GaAs单晶上 Mn^+ 离子注入后快速退火形成的亚微米晶粒的磁性质和结构特性,发现除形成MnGa铁磁晶粒外,还有含少量Ga的MnAs铁磁晶粒。同时对它们的磁结构和状态进行了详细研究。

2 实验

实验所用样品是半绝缘(001)GaAs单晶。 Mn^+ 离子被均匀地注入样品中,离子注入的能量是200keV,注入剂量为 $2 \times 10^{16}/cm^2$ 。为获得理想的注入效果,在离子注入前对样品表面进行腐蚀处理以去除表面损伤层。用 RTP-300型快速热处理设备在流动N₂中对离子注入后的样品进行快速退火。退火温度为600—900℃,退火时间为5—120s。用面对面退火方法以减少退火过程中样品表面As的挥发。

用Model 2900 MicroMagTM交变梯度磁强计(Alternating Gradient Magnetometer-AGM)在室温下对样品进行了磁化强度的测量。用H-9000NAR型透射电子显微镜(Transmission Electron Microscope-TEM)、DX-4型X光能谱分析仪和电子衍射分析研究铁磁晶粒的结构特性。用MultiModeTM IIIa型原子力显微镜(Atomic Force Microscope-AFM)和磁力显微镜(Magnetic Force Microscope-MFM)对样品的表面形貌像和零场磁力像进行观测。悬臂安装一个镀CoCr的Si探针。

3 结果和讨论

3.1 铁磁性

Mn^+ 离子注入GaAs在一定的退火条件下在室温显示了铁磁性,观测到不同矫顽力和饱和磁化强度的磁滞回线。图1给出不同退火条件下几个典型的磁化强度测量结果。图中GaAs衬底抗磁部分的贡献已被扣除。从图1可见对应于不同退火温度和时间(a、b、c、d),矫顽力和饱和磁化强度分别为:640e、660Oe、1.2kOe、3.0kOe和 5.7×10^{-5} emu、 4.5×10^{-5} emu、 3.0×10^{-5} emu、 1.4×10^{-5} emu。未注入 Mn^+ 离子的GaAs衬底经退火以及注入 Mn^+ 离子而未退火的样品中均显示不存在铁磁

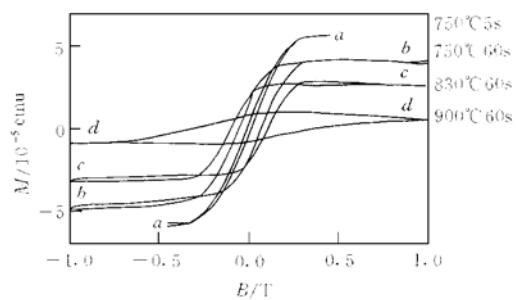


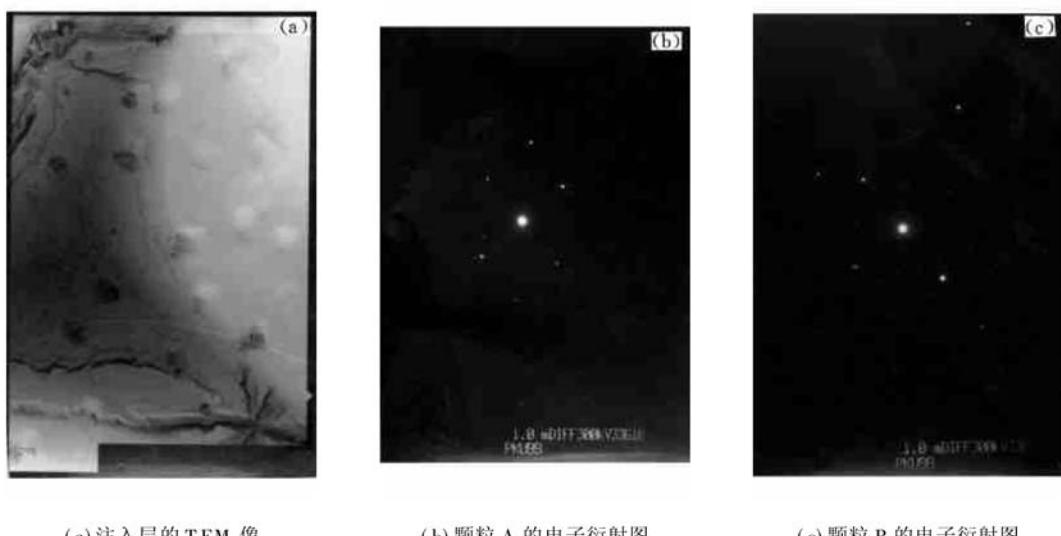
图1 不同退火条件下的磁化强度测量结果

FIG. 1 Measurement Results of Magnetization Intensity at Different Annealing Conditions

性。在较低温度下(600—650℃)退火的样品中磁测量结果也不显示铁磁性。这些事实表明Mn⁺离子注入GaAs必须在适当的退火条件下才能形成铁磁性,通过改变退火条件可以获得不同的矫顽力和饱和磁化强度。

3.2 形成晶粒结构的分析

用TEM、能量色散谱(Energy Dispersive Spectrum-EDS)和电子衍射图研究Mn⁺离子注入GaAs经退火后形成的铁磁结构。图2给出了900℃,60s退火样品的电子衍射图。从图2(a)观测到在注入层中形成亚微米颗粒,其直径约为300nm,平均间隔约为1μm。EDS和电子衍射图分析结果表明存在两类不同的颗粒:A和B,如图2(b)和(c)所示。电子衍射图证明它们均为单晶粒;从EDS测量结合衍射图给出它们的化学成分:晶粒A由MnGa组成(Mn:Ga=6:4),为四方晶系;而晶粒B为有含少量Ga的MnAs。Mn⁺离子注入GaAs后900℃,60s退火样品颗粒A,B等的Ga、As、Mn原子组分详细列于表1。



(a)注入层的TEM像

(b)颗粒A的电子衍射图

(c)颗粒B的电子衍射图

图2 900℃,60s退火样品

FIG. 2 TEM and Electron Diffraction Diagram of Samples after Annealing at 900°C, 60s

表1 EDS测量给出Mn⁺离子注入GaAs后900℃,60s退火样品中形成晶粒的组分Table 1 Atomic Percent of Samples after Mn⁺ Implanting into GaAs and by Annealing at 900°C, 60s

| | Ga原子百分比/% | As原子百分比/% | Mn原子百分比/% | 组分 |
|--------|-----------|-----------|-----------|--|
| 颗粒以外区域 | 52.2 | 47.4 | 0.4 | GaAs |
| 颗粒A | 44.0 | 13.0 | 43.0 | Mn _{0.6} Ga _{0.4} + GaAs |
| 颗粒B | 25.3 | 47.7 | 27.0 | Mn _{0.09} As _{0.91} + GaAs |

Wellmann等人^[4]曾报道在低温分子束外延GaAs中注入Mn⁺离子(750℃,180s退火,Mn⁺= $1\times 10^{16}/\text{cm}^2$)样品中观测到除形成MnAs晶粒外也形成包含少量Ga的MnGa_{0.13}As_{0.87}的晶粒。我们观测到颗粒B的性质与文献[4]类似,只是Ga的含量较文献报道的稍小。磁化强度测量已证明颗粒A和颗粒B均为铁磁物质。我们的分析结果排除了存在反铁磁Mn₂As的可能性,因为磁测量只显示铁磁性行为。EDS的测量结果表明形成颗粒以外区域中的Mn原子百分比极小,为GaAs衬底。颗粒A和B的EDS测量数据(详见表1)中还包括衬底GaAs叠加的影响。

3.3 铁磁结构和状态

AFM和MFM是观测研究亚微米铁磁结构的有效方法。AFM给出样品的表面形貌像,而MFM像则

由探针的磁性及其和样品表面的磁场间的相互作用共同决定. 其悬臂安装的镀 CoCr 的 Si 探针的初始磁化方向垂直于样品表面, 并以其共振频率垂直于样品表面振动.

图 3(a) 左、右分别给出典型样品 $830^\circ\text{C}, 60\text{s}$ 退火的 AFM 二维表面形貌像和 MFM 二维零磁场下磁力像的结果. 从图中清晰可见晶粒和磁态间的一一对应关系. 从形貌像看到在表面晶粒平均直径为 100 — 300nm , 分布密度约为 $3.8 \times 10^8/\text{cm}^2$. 图 3(b) 是相同面积(图 3(a) 左) AFM 三维表面形貌像, 形成的晶粒突出表面平均约为 50nm . 图 3(a) 右 MFM 像中亮或暗区分别对应作用于探针上的磁力是排斥力或吸引力, 亮或暗的程度就代表排斥力或吸引力的强弱. 由于探针可近似为磁矩恒定的点偶极子, 因此 MFM 探测的磁力信号与样品表面的磁场在垂直方向上分量的二级微商成正比^[8] ($\partial F_z/\partial z = M_z \partial^2 H_z/\partial z^2$). 对一个单畴的粒子, 经计算可获得磁力的微商图像, 它依赖于探针磁矩与表面内单畴粒子磁矩的夹角.

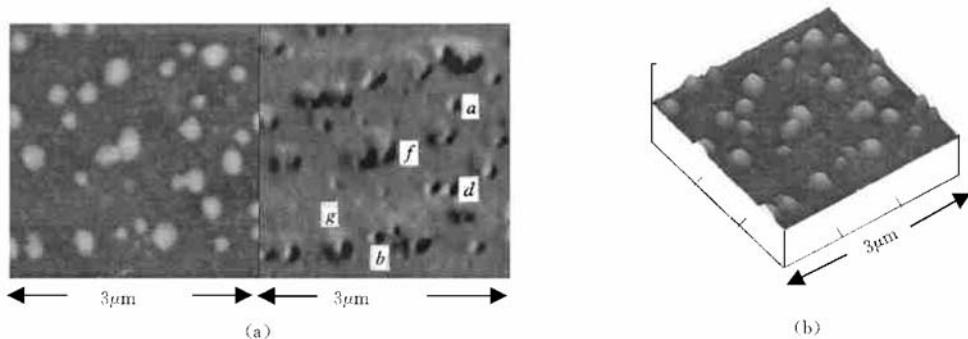


图 3 典型样品($830^\circ\text{C}, 60\text{s}$ 退火)
(a) AFM(左)像和 MFM(右)像 (b) 相同面积的 AFM 三维像
FIG. 3 Typical Samples after Annealing at $830^\circ\text{C}, 60\text{s}$

经研究分析共有三种类型的 MFM 图像, 表示处于不同的微磁状态, 图 4a—h 给出典型的 MFM 图像.

第一类是单畴粒子. 最简单的如图 4a 亮暗对称 MFM 像和图 4b 亮暗不对称 MFM 像, 它们分别对应于单畴粒子磁矩在表面内或与表面有个夹角. 图 4c MFM 图像由中心亮周围暗环组成, 这是由于单畴粒子的磁矩与探针磁矩反平行.

单畴粒子中较复杂的 MFM 像如图 4d 为两重亮暗像, 从对应面积 AFM 形貌像(图 3a)中可看到这是由靠得很近的两个粒子形成的. 由于两个单畴粒子的磁矩方向不同, 所以形成了各种不同的两重亮暗像. 图 4d 是两者磁矩方向接近平行; 图 4e 是两个单畴粒子磁矩方向接近反平行并相互靠得更近时的 MFM 像; 图 4f 则对应于两个大小差异较大的粒子, 其单畴粒子的磁矩间相互形成一定角度, 因而形成很复杂的单畴粒子组成的像.

第二类 MFM 像对应于多畴粒子, 由于内部不同畴之间的相互作用, 一般较单畴粒子更为复杂, 典型的如图 4g 所示, 由不规则的多个亮暗相间部分组成, 从相应面积内 AFM 表面形貌图像可知它是由一个粒子组成的.

第三类 MFM 像如图 4h 所示. 在 $750^\circ\text{C}, 5\text{s}$ 退火的样品中可以找到. 它是由平均尺寸为 2 — 8nm 直径的颗粒构成, MFM 像均为相对弱的小黑点. 注意到在粒子与探针间只存在吸引力, 我们认为这类的粒子是超顺磁的, 样品的磁化强度测量结果(见图 1a)表明样品中存在很小的磁滞回线, 矫顽力仅为 640e .

实验观测结果表明在我们的退火条件下样品中形成的亚微米铁磁粒子主要是以单畴为主.

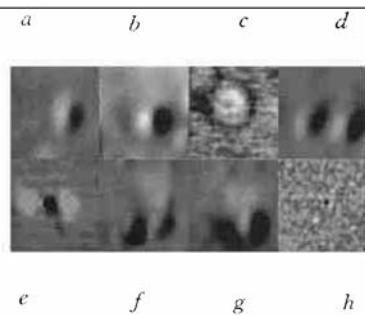


图 4 (a—h) 三类 MFM 像
分别对应于单畴粒子(a—f);
多畴粒子 g; 超顺磁粒子 h.
FIG. 4 MFM Image

4 结论

Mn^+ 离子注入 GaAs 后经快速退火形成亚微米铁磁晶粒。除形成 $MnGa$ 晶粒外，还有含少量 Ga 的 $MnAs$ 晶粒。它们在室温下均显示铁磁性。在 750—900°C 下快速退火形成的铁磁粒子以单畴为主。

致谢 褒心感谢北京大学物理系陈妮兮教授在样品腐蚀中给予的帮助。

参 考 文 献

- [1] Gary A. Prinz, Science, 1990, **250**(4984): 1092—1097.
- [2] H. Ohno, A. Shen and F. Matsukura *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1996, **69**(3): 363—365.
- [3] T. Hayashi, M. Tanaka, T. Nishinaga *et al.*, J. Appl. Phys., 1997, **81**(8): 4865—4867.
- [4] P. J. Wellmann, J. M. Garcia, J.-L. Feng *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1997, **71**(17): 2532—2534.
- [5] Jing Shi, James M. Kikkawa, Roger Proksch *et al.*, Nature, 1995, **377**(26): 707—710.
- [6] Jing Shi, J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom *et al.*, J. Appl. Phys., 1996, **79**(8): 5296—5298.
- [7] J. De Boeck, R. Osterholt, A. Van Esch *et al.*, Appl. Phys. Lett., 1996, **68**(19): 2744—2746.
- [8] Jing Shi, D. D. Awschalom, P. M. Petroff *et al.*, J. Appl. Phys., 1997, **81**(8), 4331—4335.