

Paul-Drude-Institut für Festkörperelektronik

BMBF-Förderschwerpunkt:	„Elektronenkorrelation und Dissipationsprozesse in Halbleiterquantenstrukturen“
Teilvorhaben:	„Heteroepitaxie ferromagnetischer Materialien auf III-V Halbleiter für Spininjektion“
Förderkennzeichen:	01BM159
Projektleiter:	Prof. Dr. Klaus H. Ploog
Projektlaufzeit:	01.09.2001 – 31.12.2004

Wolfgang Braun, Vladimir M. Kaganer, Bernd Jenichen, Dillip K. Satapathy, Klaus H. Ploog

30. Juni 2005

1 Schlussbericht

1.1 Aufgabenstellung

Ziel des Projekts war die Untersuchung und Herstellung ferromagnetischer Materialien und deren Integration mit III-V-Halbleitern als Basis für neue „spintronische“ Bauelemente. Mit der monolithischen Integration von Halbleitern (HL) und ferromagnetischen Materialien (FM) wird die Möglichkeit geschaffen, den Spin der Ladungsträger (Elektronen oder Löcher) für neue Funktionalitäten in Bauelementen der Informationstechnik zu nutzen. Um das Projektziel zu erreichen, mussten FM/HL-Heterostrukturen hergestellt und charakterisiert (PDI-Aufgabe), sowie die kohärente Spininjektion mit zeitaufgelöster Magnetooptik als spin- und phasenempfindliche Methode (Aufgabe der RWTH Aachen) untersucht werden.

Für das PDI bestand die Aufgabe, dünne halbmolekulare Schichten auf GaAs herzustellen, die auch bei Raumtemperatur ferromagnetisch sind und deren atomar geordnete FM/HL-Grenzfläche die Spininjektion mit hoher Effizienz ermöglichen sollte. Die Untersuchungen wurden mit dem System MnAs auf GaAs begonnen. Wegen der großen Gitterfehlanpassung von MnAs/GaAs und der beiden (strukturellen) Phasenübergängen das MnAs beim Abkühlen von der Wachstums- auf Raumtemperatur, musste die atomare Anordnung der

Grenzfläche besonders intensiv untersucht werden, um weitere Erkenntnisse zur generellen Eignung dieses Materialsystems in zukünftigen spintronischen Bauelementen zu erhalten. Aufbauend auf den Ergebnissen mit MnAs/GaAs sollten dann die Untersuchungen auf (Ga,Mn)(N,As,Sb)- und Heussler Legierungs-Schichten ausgedehnt werden.

Die genaue Analyse der Grenzflächenstruktur direkt während des epitaktischen Wachstums (in situ) sollte mit Röntgenstrahlung am PDI Strahlrohr bei BESSY II durchgeführt werden.

1.2 Voraussetzungen

Die Erfahrungen auf dem Gebiet der Heteroepitaxie von MnAs/GaAs(001) und Fe/GaAs(001) bildeten die Voraussetzung für die Arbeiten in diesem Projekt.^{1,2,3,4} In den Jahren 2001 und 2002 wurden die ersten Resultate zur Spininjektion aus Fe⁵

¹F. Schippan, A. Trampert, L. Däweritz, K. H. Ploog, J. Vac. Sci. Technol. **B17** (1999) 1716.

²F. Schippan, G. Behme, L. Däweritz, K. H. Ploog, B. Dennis K. U. Neumann, K. R. A. Ziebeck, J. Appl. Phys. **88** (2000) 2766.

³M. Kästner, F. Schippan, P. Schützendübe, L. Däweritz, K. H. Ploog, J. Vac. Sci. Technol. **B18** (2000) 2052.

⁴H.-P. Schönherr, R. Nötzel, W. Ma, K. H. Ploog, J. Appl. Phys. **89** (2001) 169.

⁵H. J. Zhu, M. Ramsteiner, H. Kostial, M. Wassermeier, H.-P. Schönherr, K. H. Ploog, Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 016601.

und MnAs⁶ in eine (Ga,In)As-LED bei Raumtemperatur vom PDI publiziert. Zum Projektstart war die kombinierte Diffraktometer-MBE-Anlage am Synchrotron-Speicherring bei BESSY II betriebsbereit. Mit dieser Anlage wurden die Untersuchungen zum Materialsystem MnAs/GaAs(001) begonnen. Nach Inbetriebnahme (03/2003) des in diesem Projekt beantragten MBE-Systems waren die experimentellen Voraussetzungen geschaffen in einer As-freien Wachstumskammer (Ga,Mn)(N,Sb)-Schichten und Heusler-Legierungen (N₂MnGa) herzustellen. Zur ex-situ Untersuchung der strukturellen Eigenschaften wurde das TEM JEOL 3010 eingesetzt. Die magnetischen Eigenschaften der Schichten wurden mit dem SQUID-Magnetometer (Investitionen im Projekt 01BM907) bestimmt. Während der gesamten Projektlaufzeit wurde intensiv die internationale Literatur analysiert und relevante Ergebnisse für die eigenen Arbeiten genutzt.

1.3 Planung und Ablauf des Vorhabens

Als Planungsgrundlage für die Durchführung der Arbeiten diente der Balkenplan des Projektantrages. Die Untersuchungen wurden mit dem MnAs/GaAs(001)-Materialsystem begonnen, das auch während der gesamten Projektlaufzeit als Modellsystem zur Aufklärung der Grenzflächenstruktur eingesetzt wurde. In der ersten Projektphase wurde die Konstruktion der arsenfreien MBE-Anlage für den Einsatz in das vorhandene Diffraktometer am Strahlrohr bei BESSY II durchgeführt. Die MBE-Anlage wurde mit einer Verzögerung von vier Monaten installiert und wegen weiterer technischer Probleme bei der Inbetriebnahme ergab sich ein Terminverzug von sechs Monaten gegenüber dem ursprünglichen Zeitplan.

In Abstimmung mit dem Projektpartner RWTH Aachen wurden deshalb Wachstumsexperimente zur Herstellung von (Ga,Mn)N-Schichten auf semiisolierenden 4H-SiC(0001)-Substraten aufgenommen. Die Schichten wurden in einer vorhandenen MBE-Anlage gewachsen, die mit konventionellen Effusionszellen und einem nicht geheizten NH₃-Injektor ausgerüstet war.

⁶M. Ramsteiner, H. Y. Hao, A. Kawaharazuka, H. J. Zhu, M. Kästner, R. Hey, L. Däweritz, H. T. Grahn, K. H. Ploog, Phys. Rev. B **66** (2002) 081304.

Da bei den Wachstumsexperimenten weitere technische Probleme auftraten, konnten im Rahmen des Projektes mit dem neuen MBE-System keine Schichten gewachsen werden. Es wurden jedoch erste Röntgenbeugungsmessungen an FeSi/GaAs-Schichten (hergestellt im Projekt 13N8255) vorgenommen.

Die Arbeiten zur Heteroepitaxie ferromagnetischer Materialien werden auch nach Abschluss des Projektes weitergeführt und aus PDI-Haushaltsmitteln finanziert. Die bestehende Zusammenarbeit mit der RWTH Aachen Prof. Güntherodt soll deshalb fortgeführt werden.

1.4 Stand der Technik und Wissenschaft

Die Integration magnetischer und elektrischer Quantenzustände, die zu neuen physikalischen Effekten führt, wird als *Spintronik* bezeichnet.⁷ Wesentliche Ziele der Spintronik sind die Erzeugung, die Erhaltung und die gezielte Manipulation der Kohärenz elektronischer Spinzustände und deren magnetischer Eigenschaften in nanostrukturierten Festkörpern.

Der grundlegende Funktionsmechanismus der Injektion spinpolarisierter Ladungsträger aus einem Ferromagneten in einen Halbleiter wurde erstmals 1999 mittels einer ferromagnetischen (Ga,Mn)As-LED-Heterostruktur demonstriert⁸. Für diesen Demonstrator waren allerdings wegen der begrenzten Löslichkeit des Mn in (Ga,Mn)As tiefe Temperaturen (< 77 K) notwendig, und die aus der Polarisation der Elektrolumineszenz bestimmte Spinpolarisation war mit 2% recht niedrig. Um die Effizienz der Spininjektion zu verbessern wurde vorgeschlagen, die atomare Struktur der Epitaxieschicht und der Grenzfläche detailliert zu untersuchen und deren Optimierung aufgrund der dabei gewonnenen Daten mittels Veränderung der Wachstumsbedingungen der Heterostruktur voranzutreiben.

1.5 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Das Projekt wurde in Zusammenarbeit mit dem II. Physikalischen Institut der RWTH Aachen

⁷S. Mengel, Physikal. Bl. **55**(5) (1999) 53.

⁸Y. Ohno, D. K. Young, B. Beschoten, F. Matsukura, H. Ohno, D. D. Awschalom, Nature **402** (1999) 790.

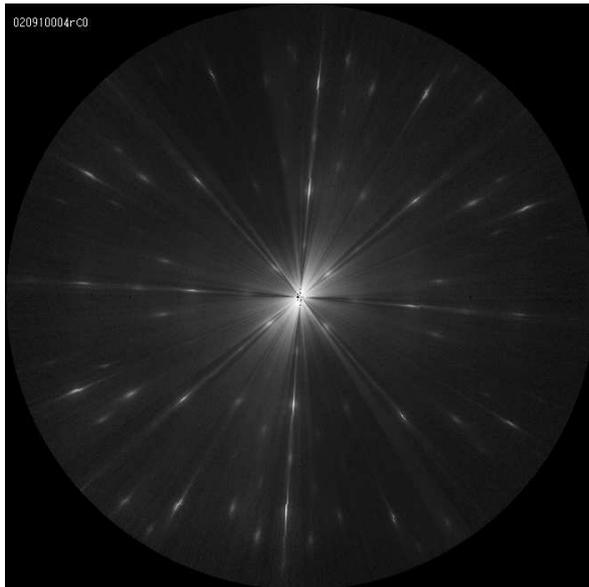


Abbildung 1: RHEED-Azimuthalscan eines GaAs(001)-Substrats vor der Abscheidung von MnAs. Die Oberfläche ist $c(4 \times 4)$ -rekonstruiert.

(Dr. B. Beschoten) durchgeführt. Dabei wurde die kohärente Spininjektion aus dem Ferromagneten in den Halbleiter mit zeitaufgelöster Magnetooptik untersucht. Die Ergebnisse des Kooperationspartners auf diesem Gebiet sind in einem separaten Schlussbericht aufgeführt.

Eine sehr enge Zusammenarbeit gab es natürlich mit dem im PDI bearbeiteten Projekten 01BM907 („Quantendrähte und Quantenpunkte auf strukturierten, hochindizierten Substraten im Verbund mit metallischen, magnetischen Schichten“) und dem Projekt 13N8255 („Hybridstrukturen aus Halbleitern und ferromagnetischen Materialien“). Weitere Verbindungen bestanden zum Walter-Schottky-Institut (Prof. Abstreiter) und dem Institut für Angewandte Physik an der Universität Hamburg.

2 Ergebnisse

2.1 MnAs auf GaAs(001)

Im Diffraktometer an der PHARAO-Beamline bei BESSY wurden zunächst MnAs-Schichten während der Epitaxie auf GaAs(001) untersucht. Dabei tritt im Allgemeinen sowohl die A-(c-Achse des MnAs $\parallel [-110]$) als auch die B-Orientierung (c-Achse des MnAs $\parallel [110]$) auf. Bei der Abkühlung von der Wachstumstemperatur durchläuft MnAs

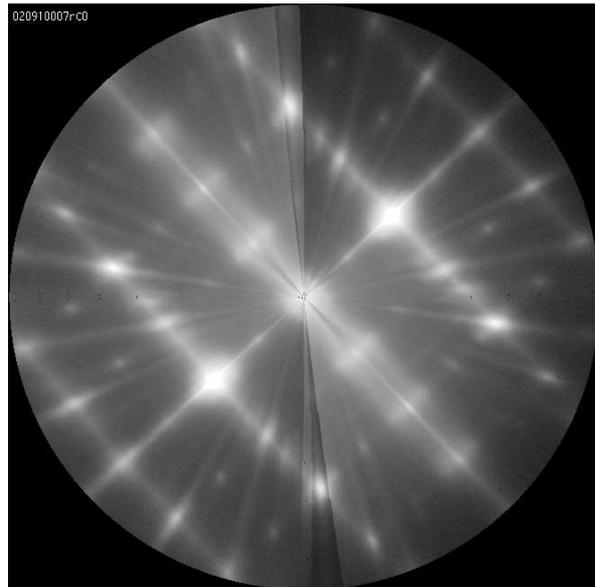


Abbildung 2: RHEED-Azimuthalscan derselben Probe nach der MnAs-Epitaxie. Der Film ist A-orientiert, d.h. im Rahmen der Messgenauigkeit ist nur eine Orientierung der Filmstruktur nachweisbar.

zwei strukturelle Phasenübergänge mit z.T. drastischen Änderungen der Gitterparameter. Es ist deshalb besonders wichtig, den Verspannungszustand der MnAs-Schicht während des Wachstums zu kennen, der einer ex-situ-Untersuchung nicht zugänglich ist.

2.1.1 RHEED-Azimuthalscans

Da wir mit den typischen Röntgenbeugungsverfahren jeweils nur kleine Ausschnitte des reziproken Raumes abtasten können, haben sich RHEED-Messungen bewährt, um einen Überblick über die Geometrie der Probe im reziproken Raum zu gewinnen. Damit kann ein Überblick über die Positionen und Veränderungen der Oberflächenreflexe erhalten, die dann detailliert und quantitativ mittels Röntgenbeugung untersucht werden. Für die Übersichtsmessungen verwenden wir die von uns entwickelten Azimuthalscans⁹, die, ähnlich LEED, einen zweidimensionalen Schnitt durch das reziproke Gitter darstellen. Diese Messungen können uneingeschränkt während des Wachstums

⁹W. Braun, H. Möller, Y.-H. Zhang, J. Vac. Sci. Technol. B16 (1998) 1507.

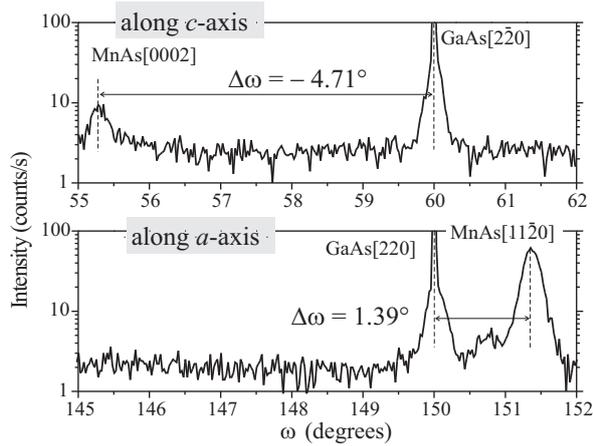


Abbildung 3: Röntgenbeugung entlang der Grenzfläche eines A-orientierten MnAs-Films. Die unterschiedliche Gitterfehlانpassung in den beiden orthogonalen Richtungen ist deutlich erkennbar.

vorgenommen werden. Zwei solche Messungen, aufgenommen vor und nach der Epitaxie bei Wachstumstemperatur, sind in Abb. 1 und 2 dargestellt.

Die c-Achse des Films in Abb.2 zeigt nach rechts oben. Charakteristische Schichtreflexe und Reflexverbreiterungen sind sichtbar. Der Film ist A-orientiert. Anhand dieses Azimutalscans können nun interessante Bereiche für *in-situ*-Röntgenbeugungsexperimente ausgewählt und in den Versuchen während des Wachstums vermessen werden.

2.1.2 Substrat-Film-Grenzfläche

Messungen der Gitterkonstante parallel zur Oberfläche direkt nach dem Wachstum sind in den Abb. 3 und 4 dargestellt.

Bei höherer Wachstumstemperatur wurde eine A-orientierte Schicht erhalten (Abb. 3). Bei niedrigerer Wachstumstemperatur nukleierte die Schicht in der B-Orientierung (Abb. 4), mit zunehmender Schichtdicke kamen A-Anteile hinzu. Aus Abb. 3 erhalten wir eine Gitterfehlانpassung von +0.4 % entlang c und -0.8 % entlang der a-Achse des MnAs. Aus Abb. 4 ergeben sich +1.21 % entlang c und +0.16 % entlang a. Obwohl der Film auf einem quadratischen Gitter aufwächst, ergeben sich aus unterschiedlichen Bindungsverhältnissen an der Grenzfläche unterschiedliche Verspannungszustände der Schicht. Abbildung 5 zeigt die Ent-

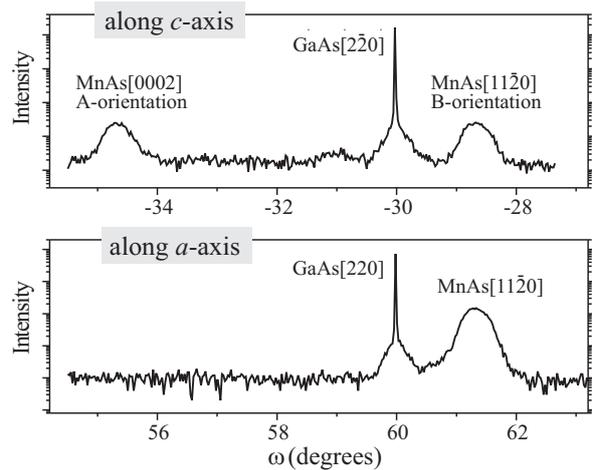


Abbildung 4: Röntgenbeugung entlang der Grenzfläche eines gemischt orientierten MnAs-Films.

wicklung der a-Gitterkonstante der MnAs-Schicht während der Epitaxie. Neben einer Verschiebung des Reflexmaximums mit zunehmender Schichtdicke ergibt sich eine Asymmetrie zum $(2\bar{2}0)$ -Reflex hin, die unabhängig von der Schichtdicke ist und wahrscheinlich von der Grenzfläche stammt.

2.1.3 Relaxation und Grenzflächenstruktur

In einer zweiten Phase wurden die Wachstumsbedingungen für die Epitaxie von MnAs auf GaAs(001) anhand der parallel im Institut betriebenen MBE angepasst.

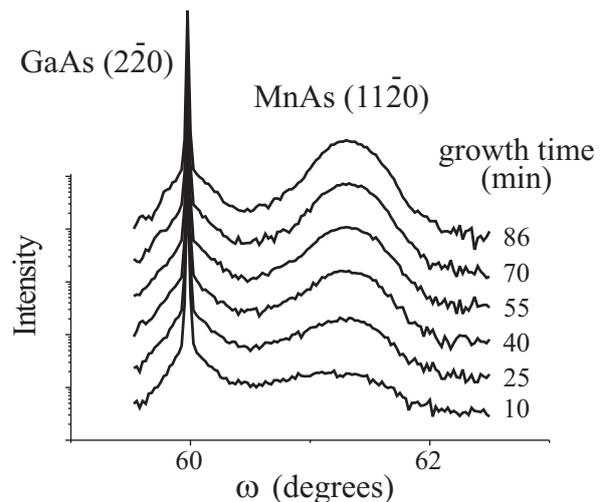


Abbildung 5: Röntgenbeugung in der Nähe des GaAs($2\bar{2}0$)-Reflexes entlang der Oberfläche während der Epitaxie von MnAs.

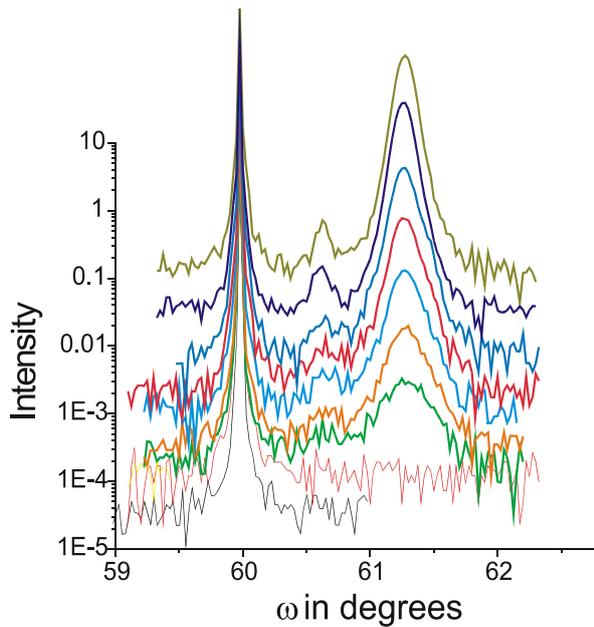


Abbildung 6: Entwicklung des MnAs-Reflexes $11\bar{2}0$ und des Substratreflexes 220 während des MBE-Wachstums.

Die Entwicklung der MnAs-Gitterkonstante entlang des a -Gitterparameters während des MBE-Wachstums mit optimierter Schichtqualität ist in Abb 6 dargestellt.

Bis zu einer Bedeckung von ca. 1 ML ist kein Schichtreflex sichtbar. Danach erscheint abrupt der Schichtreflex, der mit zunehmender Schichtdicke an Intensität zunimmt und auch seine Position leicht verändert. Zusätzlich wird ein Überstrukturreflex genau zwischen dem Substrat- und dem Schichtreflex sichtbar (Abb. 7 und 8).

Durch Veränderung des Einfallswinkel des Primärstrahls kann die Eindringtiefe des Wellenfeldes ins Material variiert werden. Unterhalb des kritischen Winkels für die Totalreflexion wird lediglich die Struktur der Oberfläche erfasst ($\alpha = 0.2^\circ$ in Abb. 7). Mit höherem Einfallswinkel wird der Substratreflex zusammen mit dem Satellitenreflex sichtbar.

Bei höheren Einfallswinkeln können sogar Satelliten höherer Ordnung aufgelöst werden. Der Satellitenreflex kann durch die Präsenz einer periodischen Struktur aus Versetzungen entlang der c -Achse des Films erklärt werden. Dabei ergibt sich aus einer detaillierten Analyse ein mittlerer Abstand der Versetzungen von 4.9 nm.

Dies ist in Übereinstimmung mit TEM-

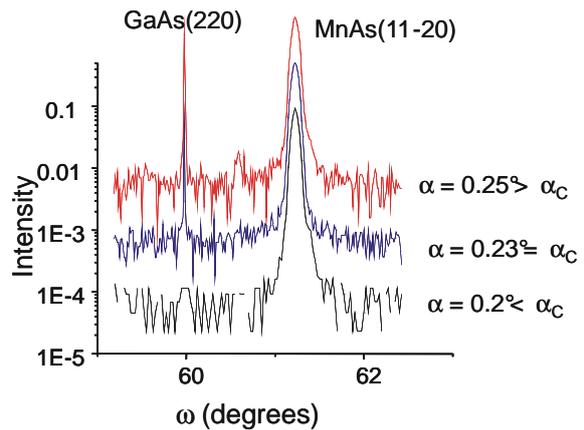


Abbildung 7: Reflexprofile als Funktion des Einfallswinkels des Primärstrahls. Mit zunehmendem Winkel werden Strukturen unter der Oberfläche sichtbar.

Untersuchungen an Proben aus der Referenz-MBE, die eine Periode von 4.5 ± 0.5 nm ergaben. Die Breite des Satellitenreflexes senkrecht zur Oberfläche zeigt eine Lokalisierung der Versetzungen innerhalb einer Schicht von 1.6 nm (Abb. 9).

Die Satellitenreflexe können somit eindeutig der Substrat-Schicht-Grenzfläche zugeordnet werden.

Die MnAs-Schicht relaxiert während des Wachstums, wobei dieser Vorgang bei ca 20 ML zum Stillstand kommt (Abb.10). Danach steigt a

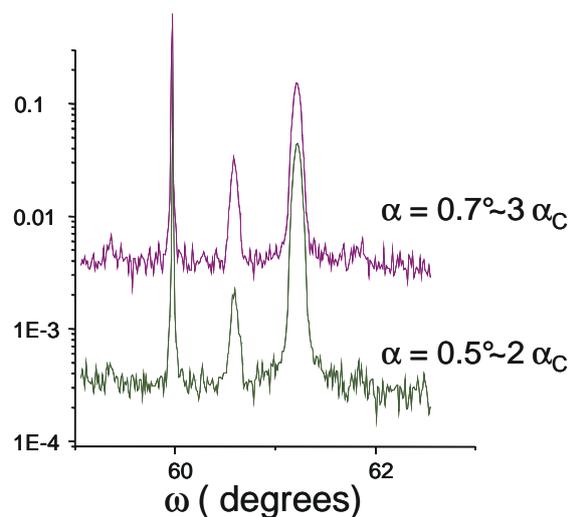


Abbildung 8: Bei höheren Winkeln können weitere Satellitenreflexe links vom Substrat- und rechts vom Schichtreflex aufgelöst werden.

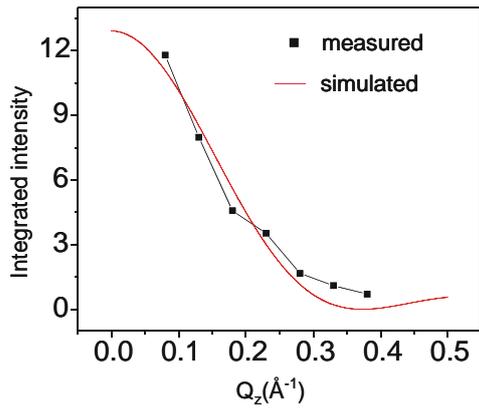


Abbildung 9: Breite des Satellitenreflexes senkrecht zur Oberfläche.

mit zunehmender Schichtdicke nicht mehr an.

Während aus dem Abstand des Schichtreflexes zum Substratreflex die Relaxation der Schicht bestimmt werden kann, ist die Bestimmung der Reflexbreite ein Maß für die typische laterale Domänengröße der Schicht. Eine Messung der Entwicklung der Domänengrößen entlang der Oberfläche während des Wachstums ist in Abb. 11 dargestellt. Dabei können zwei verschiedene Bereiche unterschieden werden, die sich durch unterschiedliche Steigung auszeichnen. Innerhalb der ersten 8 bis 10 Monolagen (ML) findet ein schnelles Wachstum der Kristallite bzw. Domänen statt, das sich spätestens ab einer Schichtdicke von ca. 20 ML deutlich verlangsamt. Aus der verspäteten Erscheinung des Schichtreflexes während

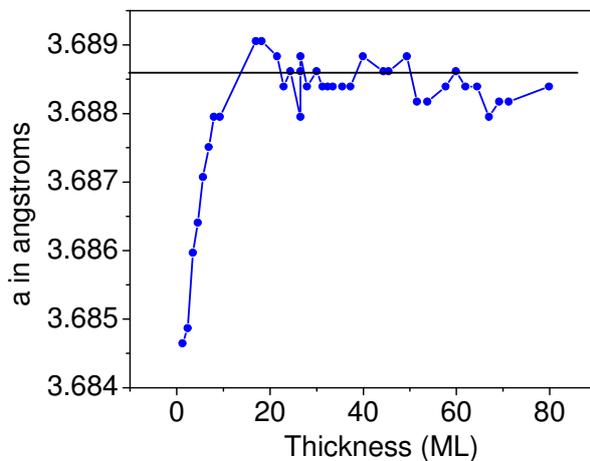


Abbildung 10: Relaxation der Schicht in Richtung des Gitterparameters a während des Wachstums.

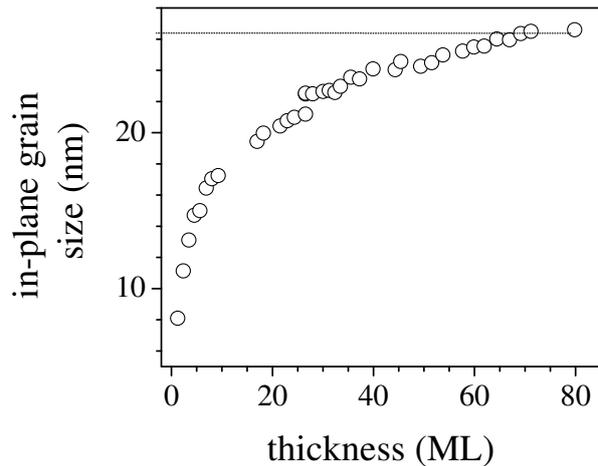


Abbildung 11: Wachstum der Domänengröße als Funktion der Schichtdicke während der Epitaxie von MnAs auf GaAs(001).

der Epitaxie (siehe Abb. 6) können wir schließen, dass das Wachstum im Stranski-Krastanov-Modus stattfindet. Das in Abb. 11 dargestellte Verhalten zeigt darüber hinaus, dass das rapide Anfangswachstum der Domänen mit dem seitlichen Wachstum der Stranski-Krastanov-Erhebungen zu identifizieren ist. Das anschließende, langsamere Anwachsen der lateralen Domänengröße hingegen findet in einer weitgehend geschlossenen Schicht statt. Das lineare Anwachsen der Domänengröße deutet darauf hin, dass die Anzahl der Versetzungen bzw. Korngrenzen zwischen den Domänen mit zunehmender Schichtdicke immer weiter abnimmt.

2.1.4 Tempern des Schichtsystems

Aus vorangehenden Studien an MnAs auf GaAs geht hervor, dass ein thermischer Ausheilschritt in situ im Anschluss an die Epitaxie die Schichtqualität verbessert. Dieses Tempern bei 400 °C wurde mittels Röntgenbeugung untersucht. Es wird eine merkliche Zunahme der Domänengröße des Films beobachtet, die bei Abkühlung der Probe erhalten bleibt (Abb. 12). Parallel dazu werden die Satellitenreflexe stärker, was auf eine verbesserte Ordnung der Versetzungen an der Grenzfläche schließen lässt (Abb. 13).

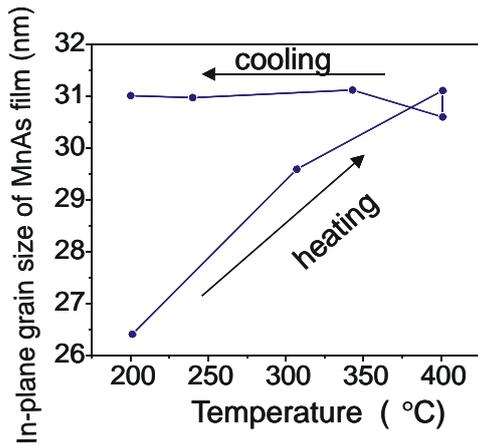


Abbildung 12: Domänengröße des MnAs-Films während des Ausheizzyklus.

2.1.5 Ex-situ-Charakterisierung mittels AFM

Die Proben der Bessy-MBE wurden zusätzlich mittels AFM untersucht. Abb. 14 zeigt eine AFM-Aufnahme der MnAs-Oberfläche bei Raumtemperatur. Das typische Streifenmuster der koexistierenden α - und β -Domänen ist deutlich erkennbar. Es ergibt sich ein Verhältnis α/β von 0.9. Die Dicke des Films beträgt 51 nm.

2.1.6 MnAs auf GaAs(311)

In einem weiteren Schritt erfolgten Wachstumsexperimente auf GaAs(311)-Substraten. Eine Serie von Röntgenbeugungs-Reflexprofilen, die während des Schichtwachstums entlang der Oberfläche gemessen wurden, ist in Abb. 15 dargestellt.

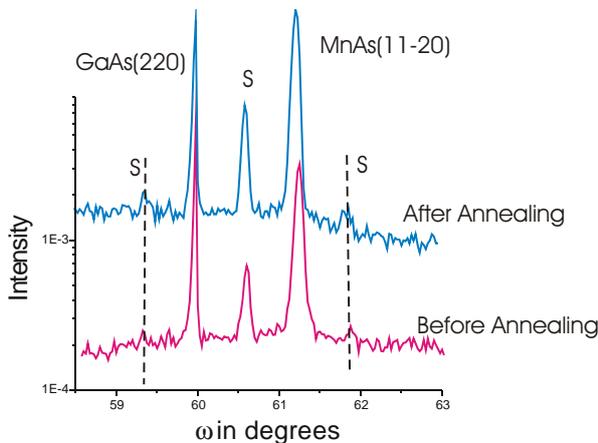


Abbildung 13: Reflexprofile entlang der a-Achse des MnAs-Films für und nach der Temperung.

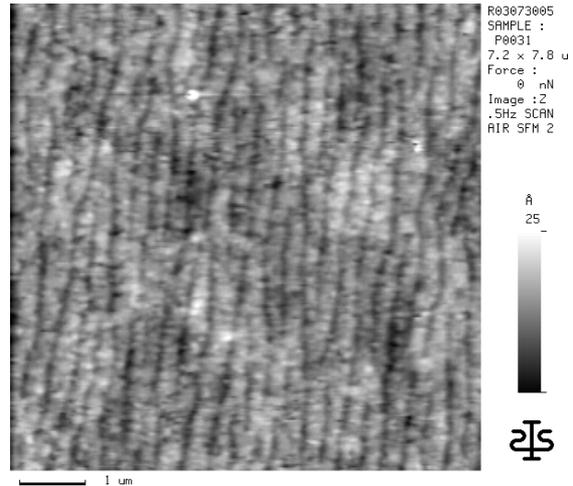


Abbildung 14: Ex situ AFM-Aufnahme einer am Synchrotron gewachsenen und analysierten Probe. Die Streifenstruktur der koexistierenden Phasen bei Raumtemperatur ist deutlich erkennbar.

stellt. Die Profile wurden entlang $[1\bar{1}0]$ aufgenommen. Diese Richtung ist die Drehachse, um die die (311)-Orientierung gegenüber (001) verkippt ist. Sie ist somit beiden Orientierungen gemeinsam. Wie aus Abb. 15 ersichtlich, ist das Wachstumsverhalten vergleichbar mit dem Wachstum auf GaAs(001). Als signifikanter Unterschied fällt das Fehlen des zusätzlichen Reflexes aufgrund des Versetzungsnetzwerks zwischen Substrat- und Schichtreflex auf, wie er auf dem (001)-Substrat

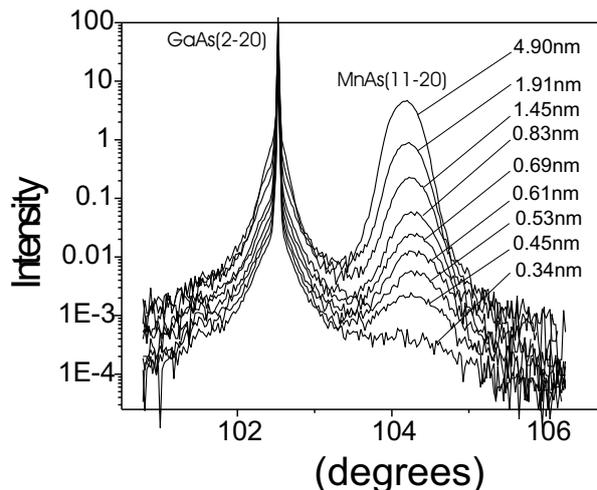


Abbildung 15: Entwicklung des Substratreflexes ($2\bar{2}0$) und des Schichtreflexes ($11\bar{2}0$) als Funktion der abgeschiedenen Dicke.

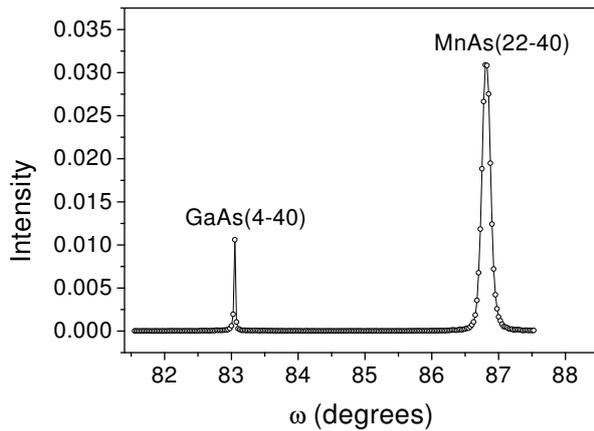


Abbildung 16: Substrat- und Schichtreflex zweiter Ordnung entlang $[1\bar{1}0]$. Die Schicht ist einphasig. Reflexe anderer Orientierungen sind mit der gegebenen Genauigkeit nicht nachweisbar.

beobachtet wird. Der Schichtreflex wird mit zunehmender Schichtdicke schmaler, was auf eine Zunahme der Domänengröße schließen lässt. Zusätzlich ist auch eine Verschiebung zum Substratreflex hin sichtbar, die auf die Relaxation der Schicht zurückzuführen ist. Reflexbreiten und -intensitäten zeigen, dass die Qualität der Schichten auf (311) mit denen auf GaAs(100) vergleichbar ist. Sie bestehen aus einer einzigen epitaktischen Orientierung (Abb. 16). Eine repräsentative Messung entlang der orthogonalen MnAs(0002)-Richtung ist in Abb. 17 dargestellt. Wie bereits aus früheren Untersuchungen bekannt, ist diese Richtung um ca 4° aus der (311)-Ebene verkippt. Die in

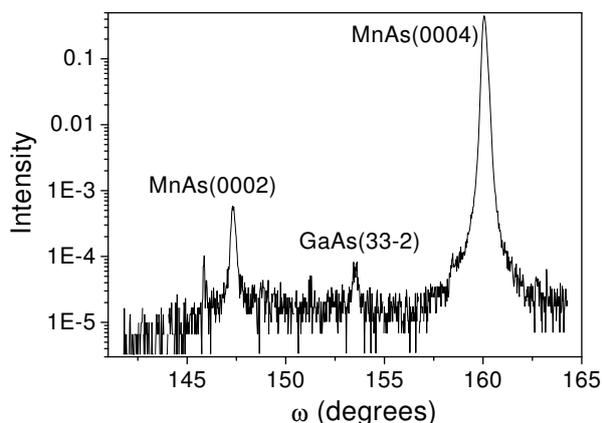


Abbildung 17: Messung entlang der c -Achse des MnAs auf GaAs(311), die um ca. 4° aus der Grenzfläche gekippt ist.

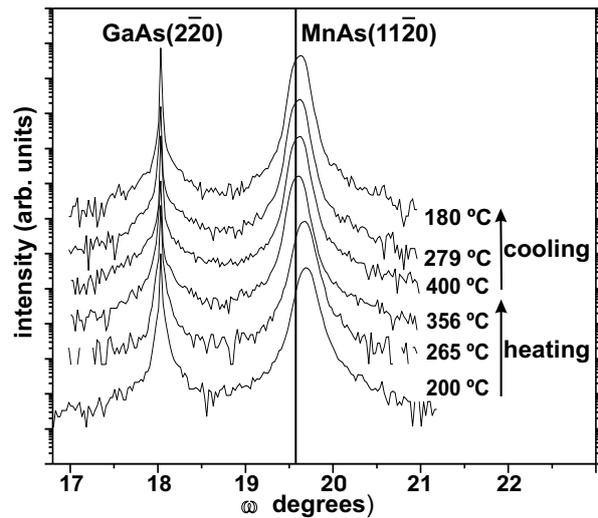


Abbildung 18: Radiale ($\omega - 2\theta$)-Scans entlang MnAs $[11\bar{2}0]$ während der in-situ-Temperung nach der Epitaxie. Die Reflexprofile wurden mit einem Einfallswinkel von 0.3° aufgenommen. Die jeweilige Temperatur ist an der rechten Seite dargestellt. Der GaAs-Substratreflex ($2\bar{2}0$) ist in jeder Kurve mitgemessen. Die senkrechte Linie markiert die Position des voll relaxierten MnAs bei 180°C . Zur besseren Darstellung sind die Kurven vertikal verschoben.

Abb. 17 dargestellte Messung ist deshalb in dieser verkippten Ebene durchgeführt. Der GaAs($33\bar{2}$)-Reflex liegt nun auf der Zwischenposition zwischen Substrat- und Schichtreflex. Dies erklärt die verkippte Orientierung der Schicht in dieser Richtung, da nun die periodischen Versetzungen mit den (projizierten) Gitterebenen des Substrats zusammenfallen. Für die zusätzlichen Reflexe bei 146° , 151° und 158° steht eine Erklärung noch aus.

Um den Einfluss der Temperatur zu untersuchen, wurden die Proben in der Wachstumskammer unter einem As_4 -Fluss (um As -Desorption zu verhindern) 10 min lang auf 400°C geheizt. Die Aufheiz- und Abkühlrate betrug $15^\circ\text{C min}^{-1}$. Während des Temperung wurde die Struktur der Schicht mittels radialer Röntgenscans entlang MnAs $[11\bar{2}0]$ charakterisiert (Abb. 18). Die gemessenen Kurven sind auf die Intensität des Substratreflexes normiert. Die senkrechte Linie markiert die Reflexposition, die für den MnAs($11\bar{2}0$)-Reflex eines Volumenkristalls bei 180°C erwartet wird¹⁰.

¹⁰B. T. M. Wills, H. P. Roksby, Proc. Phys. Soc. London

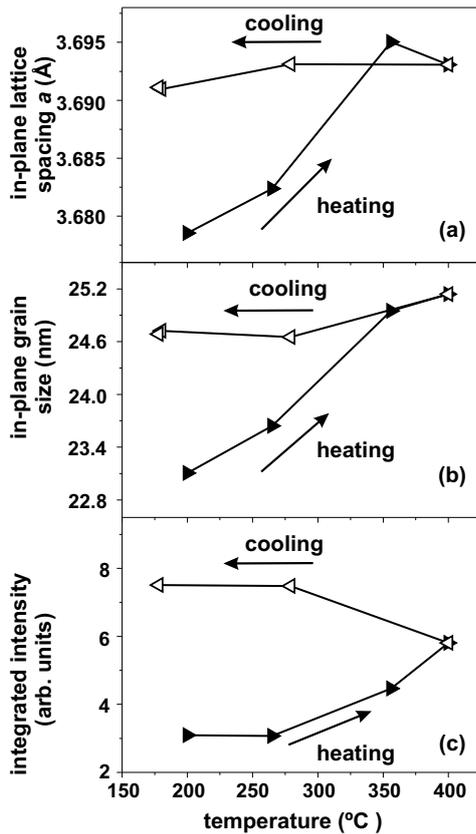


Abbildung 19: Entwicklung der Gitterkonstante entlang der Oberfläche (a), der lateralen Domänengröße (b) und der integrierten Intensität (c) entlang der a -Achse während des Temperschnitts nach der Epitaxie. die Pfeile geben die Richtung der Änderungen während des Heizens auf 400°C und des anschließenden Abkühlens auf 180°C an. Gefüllte Symbole bezeichnen Daten während des Heizens, offene Symbole während der Abkühlung.

Während der Temperung findet eine 0.35 %-ige Zunahme der Gitterkonstante entlang der Oberfläche statt (Abb. 19(a)).

Dies ist zum Teil auf die Relaxation der Verspannung durch die Ordnung des Versetzungsnetzwerks an der Grenzfläche, zum Teil auf thermische Ausdehnung zurückzuführen. Die leichte Abnahme der Gitterkonstante der Schicht während der Abkühlung kann auf die thermische Kontraktion der Schicht zurückgeführt werden. Während der Temperung finden wir eine 7 %-ige Zunahme der Korngröße parallel zur Oberfläche (Abb. 19(b)), die bei einem Endwert von 25 nm sättigt. Die

B67 (1954) 290.

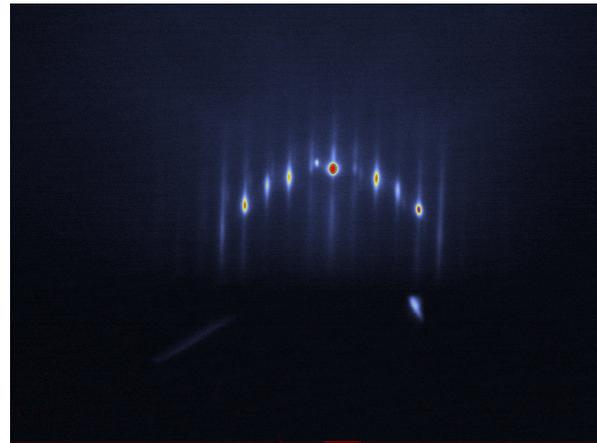


Abbildung 20: RHEED-Beugungsbild der InAs(001)-Oberfläche entlang der $4\times$ -Richtung der 2×4 -Rekonstruktion

Kristallqualität und strukturelle Gleichmäßigkeit der gesamten Schicht wird durch die Temperung verbessert. Diese Verbesserung der Schichtqualität ist auf die Eliminierung von Defekten an den Korngrenzen und die Koaleszenz von kleineren Domänen zu größeren Domänen zurückzuführen.

Die integrierte Intensität des $\text{MnAs}(11\bar{2}0)$ -Reflexes steigt auf das Doppelte an [Abb. 19(c)]. Nach der kinematischen Beugungstheorie sollte diese konstant bleiben. Eine Abweichung von dieser Regel kann durch die Umordnung von Kristallbereichen erklärt werden.

2.1.7 MnAs auf InAs(001)

Es wurden auch Untersuchungen zur Abscheidung von MnAs auf InAs(100) durchgeführt. Abb. 20 und 21 zeigen die RHEED-Beugungsbilder der Oberfläche vor dem MnAs-Wachstum und auf einer ca. 15 Monolagen dicken Schicht. In Abb. 21 sind neben verwaschenen Durchstrahlungsreflexen kreisförmige Segmente zu erkennen, die auf Kristallite mit einem kontinuierlichen, breiten Orientierungsbereich hindeuten. Eine eindeutige epitaktische Orientierung kann nicht mehr definiert werden. Die kreisförmigen Segmente werden mit zunehmender Schichtdicke intensiver. Es ist deshalb nicht zu erwarten, dass sich bei fortgesetztem Wachstum eine einzige bestimmte Orientierung durchsetzt. Die Wachstumsexperimente ergaben, dass dieses Schichtsystem nicht für Anwendungen in der Spintronik geeignet ist.

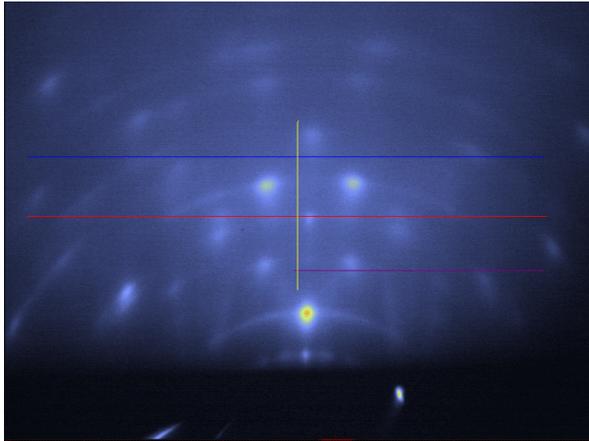


Abbildung 21: Oberfläche einer MnAs-Schicht, ca. 15 ML dick, gewachsen auf der in Abb. 20 vermessenen Oberfläche bei den für MnAs/GaAs optimierten Temperaturen.

2.1.8 Reflektivitätsmessungen: MnAs/GaAs(001)

Ein Beispiel für eine Reflektivitätsmessung ist in Abb. 22 dargestellt. Die Struktur der Probe besteht aus Substrat, MnAs und Oberflächenoxid. Die gute Übereinstimmung mit dem Modell bestätigt die Annahme scharfer Grenzflächen und homogener Schichten ohne Kompositionsgradienten. Die Dicke der MnAs-Schicht ergibt sich zu 51 nm, das Deckoxid ist 2 nm dick.

Während der Umbauphase der Molekularstrahlepitaxie von der III-V-Wachstumschamber zur As-freien ('Heusler-Alloy')-Kammer blieb das Diffraktometer praktisch während der gesamten

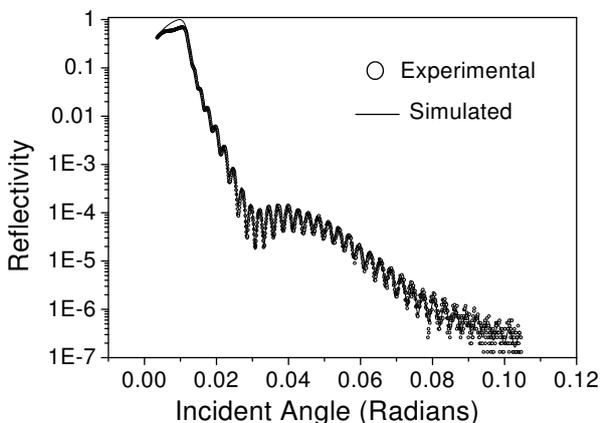


Abbildung 22: Reflektivitätsmessung einer epitaktischen MnAs-Schicht auf GaAs(001).

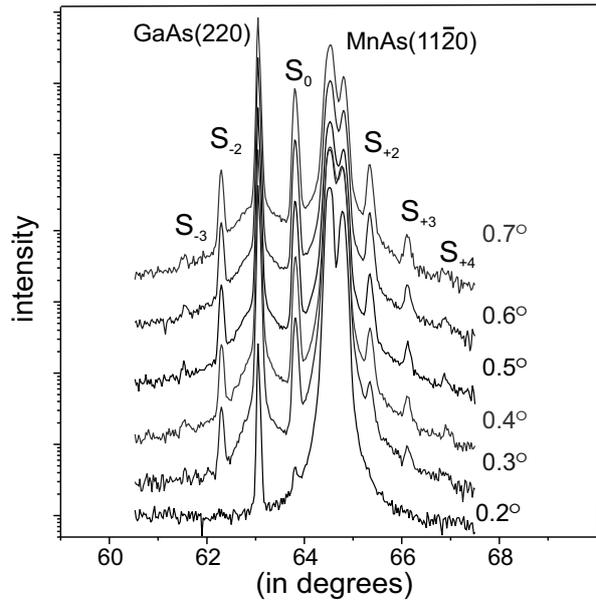


Abbildung 23: Beugungsprofile in radialer Richtung (ω - 2θ -scans) mit variablem Einfallswinkel des Primärstrahls. Mit steigendem Winkel wird eine zunehmend dickere Schicht unterhalb der Oberfläche erfasst. Der Einfallswinkel in Grad ist für jede Kurve angegeben.

Umbauphase voll funktionsfähig. Durch den direkten Zugang zum Zentrum des Diffraktometers konnte dieses nachkalibriert werden, was eine erhöhte Messgenauigkeit ergab.

Einige der hergestellten Proben wurden erneut vermessen. Dabei konnten wir eine Reihe zusätzlicher Reflexe identifizieren, die uns eine detaillierte Analyse des Versetzungsnetzwerks an der Film-Substrat-Grenzfläche erlauben.

Durch Veränderung des Einfallswinkels des Primärstrahls wurde die Eindringtiefe in verschiedenen Messungen variiert. Dies ist für eine MnAs-Schicht auf GaAs(100) in Abb. 23 dargestellt. Der Bereich des Einfallswinkels variiert dabei zwischen Werten unterhalb des kritischen Winkels für die Totalreflexion $\alpha_c = 0.26$ und $3\alpha_c$. Die Satellitenreflexe S erscheinen zusammen mit dem Substratreflex, sobald der Einfallswinkel den kritischen Winkel überschreitet. Sie werden bei einer Vergrößerung des Einfallswinkels noch verstärkt. Unterhalb des kritischen Winkels α_c dominiert der aufgesplante Reflex der MnAs-Schicht. Bei größeren Winkeln überwiegt das Substrat, und die Satellitenreflexe sind am stärksten. Die Sa-

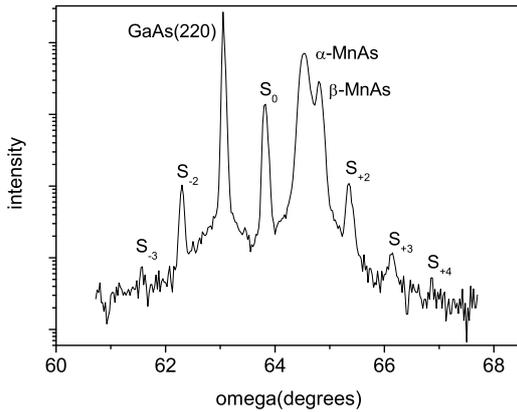


Abbildung 24: Beugungsprofil in radialer Richtung in der Nähe des GaAs(220)-Reflexes, gemessen mit einem Einfallswinkel von 0.5° . Die Satelliten verschiedener Ordnung sind mit S markiert.

tellitenreflexe stammen von der Substrat-Film-Grenzfläche.

Das Reflexprofil für 0.5° Einfallswinkel ist separat in Abb. 24 dargestellt. Entlang der GaAs[110]-Richtung, die neben dem GaAs(220)-Substratreflex bei ca 63.1° die MnAs[11 $\bar{2}$ 0]-Reflexe der α - und β -Phase enthält, sind klar die Satellitenreflexe S_i erkennbar. Der Satellit nullter Ordnung S_0 liegt zwischen dem Substrat- und dem Schichtreflex. Die Satelliten erster Ordnung ($S_{\pm 1}$) fallen mit dem Substrat- und dem Schichtreflex zusammen. Alle Satelliten haben denselben Abstand. Sie repräsentieren Fourierkomponenten des Spannungsfeldes, das von einem periodischen Versetzungsnetzwerk an der Substrat-Film-Grenzfläche erzeugt wird. Aus dem Abstand der Satelliten ergibt sich ein mittlerer Abstand der Versetzungen von 4.9 ± 0.1 nm. Die Versetzungslinien verlaufen parallel zur MnAs[0001]-Richtung. Die Satellitenreflexe sind sehr schmal, was auf eine strenge Periodizität der Versetzungen in dieser Richtung hindeutet.

In Abb. 25 ist die der Abb. 24 entsprechende Messung in der nächsthöheren Beugungsordnung dargestellt. Hier sind interessanterweise drei Satellitenreflexe zwischen dem α -MnAs-Reflex und dem Substratreflex vorhanden. Durch die höhere Auflösung wird eine Aufspaltung des Substratreflexes sichtbar. Sie rührt von der Koexistenz

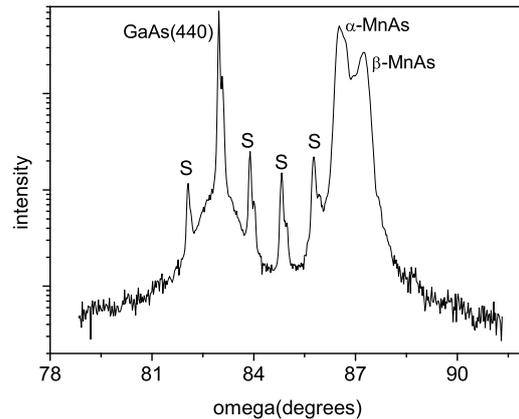


Abbildung 25: Beugungsprofil in radialer Richtung in der Nähe des GaAs(440)-Reflexes mit einem Einfallswinkel von 0.65° . Die von den periodischen Versetzungen herrührenden Satelliten sind mit 'S' bezeichnet.

der α - und β -MnAs-Phasen her, die gegenüber dem Substrat unterschiedlich verspannt sind und deshalb die Gitterkonstante des Substrats in der Nähe der Grenzfläche entsprechend modulieren. Die Substrat-Gitterkonstante nimmt deshalb in der Nähe der Grenzfläche zwei unterschiedliche Werte an, entsprechend der Verteilung der MnAs-Domänen. Da die periodischen Versetzungen auf diesem modulierten Substrat liegen, sind auch die davon herrührenden Satellitenreflexe entsprechend dem MnAs-Phasenverhältnis aufgespalten.

Aus der Anzahl der Satellitenreflexe zwischen Substrat- und Schichtreflex in den beiden Ordnungen lässt sich der Burgers-Vektor der Versetzungen berechnen. Er ergibt sich für dieses Versetzungsnetzwerk zu $1/3[11\bar{2}0]$ entlang der GaAs[220]-Richtung.

Um die Herkunft der Satellitenreflexe, die auf dem MnAs/GaAs(001)-System beobachtet werden, aufzuklären, wurde die Intensität der Satellitenreflexe senkrecht zur Oberfläche vermessen. Das Resultat ist in Abb. 26 dargestellt. Diese Intensitätsvariation ist typisch für alle untersuchten Satellitenreflexe, die Variation von Reflex zu Reflex ist gering. Der Zerfall der Intensität mit zunehmendem Abstand von der Oberfläche beweist, dass die Intensität von einer Schicht endlicher Dicke an der Grenzfläche herrührt.

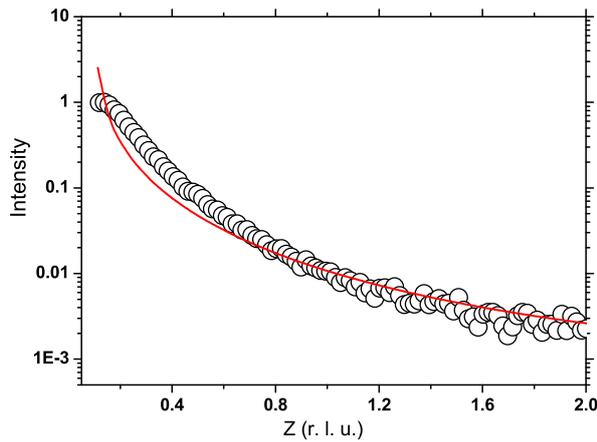


Abbildung 26: Gemessenes Intensitätsprofil (Kreise) entlang des reziproken Gitterstabs des Satellitenreflexes, der durch das periodische Versetzungsnetzwerk an der Grenzfläche erzeugt wird. Die durchgezogene Linie repräsentiert das einfache mathematische Modell der Beugung an einem Spalt.

Aus der hexagonalen Struktur des MnAs ergeben sich unterschiedliche Gitterfehlpassungen in den beiden orthogonalen Hauptsymmetrierichtungen des epitaktischen Systems. Die 30 % Fehlanpassung entlang der MnAs[0002]-Richtung wird durch ein Koinzidenzgitter verursacht, das aus 4-zu-6 und 6-zu-8 Passungen des Substrats zur MnAs-Schicht besteht. Die 4-zu-6-Koinzidenz nimmt 25 % der Fehlanpassung auf, die restlichen 5 % werden durch die Verlängerung einiger dieser Perioden um jeweils zwei zusätzliche MnAs{0002}- und GaAs{220}-Gitterebenen ausgeglichen. Die Röntgenmessungen zeigen, dass das Versetzungsnetzwerk strikt periodisch ist. Abb. 27 zeigt die Struktur der Satellitenreflexe entlang dieser Richtung, orthogonal zu den in Abb. 24 und 25 gezeigten Reflexen.

Aus den Positionen der Satelliten lässt sich die Periodizität zu 8 nm bestimmen. Eine solche Periode ist aus 4 4-zu-6-Passungen und 2 6-zu-8-Passungen zusammengesetzt. Durchschnittlich ist jede dritte 4-zu-6-Koinzidenz um zwei Gitterebenen vergrößert, um die verbliebende 5 % - Fehlanpassung auszugleichen. Fehlende Satelliten lassen Rückschlüsse auf die interne Struktur der 8 nm-Periode zu. Wiederum lässt sich mittels einer Variation des Einfallswinkels beweisen, dass die Satellitenstruktur von der Grenzfläche herrührt

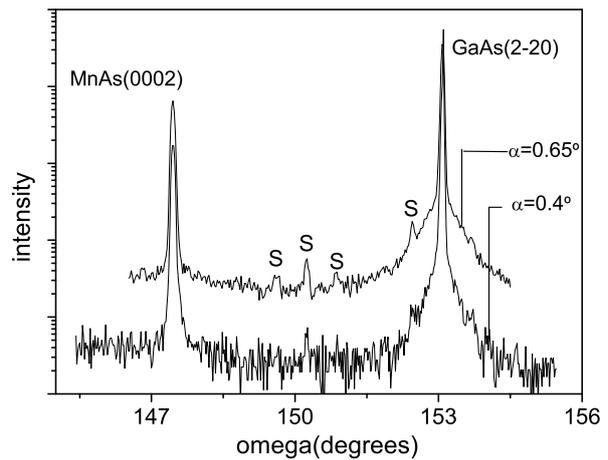


Abbildung 27: Beugungsprofil in radialer Richtung entlang GaAs(220). Der Einfallswinkel ist mit α bezeichnet. Die mit 'S' bezeichneten Reflexe sind die Satelliten, die von den periodischen Versetzungen herrühren.

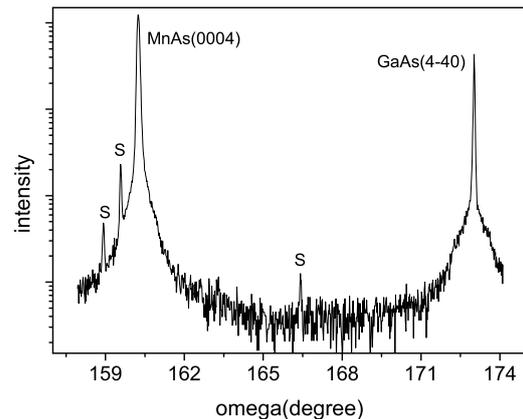


Abbildung 28: Reflexprofil in radialer Richtung in der Umgebung des GaAs(440)-Reflexes, gemessen mit einem Einfallswinkel von 0.65° . Die Satelliten des Versetzungsnetzwerkes sind wiederum mit 'S' bezeichnet.

und an der Oberfläche im Rahmen der Messgenauigkeit nicht mehr nachweisbar ist. Abb. 28 zeigt die entsprechenden Reflexprofile in der nächsthöheren Ordnung. Da die beiden MnAs-Phasen sich in dieser Richtung nur unwesentlich in der Gitterkonstante unterscheiden, ergeben sich keine Aufspaltungen der Reflexe.

2.1.9 Ex-situ-Messungen: MnAs/GaAs(113)

Wachstumsuntersuchungen auf der GaAs(113)-Fläche weisen gegenüber der (100)-Fläche deutliche Unterschiede auf. Die c -Achse der MnAs-Schicht ist um 4° aus der (113)-Ebene gekippt. Messungen senkrecht zu c -Achse entlang der Grenzfläche sind in Abb. 29 und 30 in beiden Ordnungen entlang der GaAs[1 $\bar{1}0$]-Richtung dargestellt.

Im Gegensatz zur (100)-Substratorientierung ist auf (113) kein Satellit zwischen Substrat- und Schichtreflex nachweisbar, obwohl die Gitterfehlpassung in dieser Richtung genau dieselbe ist. Die MnAs-Schicht ist voll relaxiert und zeigt dasselbe α/β -Phasenverhältnis wie auf (001). Ein Unterschied ist durch eine Messung in der nächsthöheren Ordnung (Abb. 30) nachweisbar. Hier tritt nur ein Reflex zwischen Substrat und Schicht auf. Daraus ergibt sich der Burgers-Vektor zu $1/6[11\bar{2}0]$, nur halb so groß wie auf (100). Die Periode der Gitterversetzungen ist deswegen nur halb so groß wie auf (100), mit doppelter Relaxation pro Versetzung. Die Gitterfehlpassung ist dieselbe.

Wiederum lässt sich durch Variation des Einfallswinkels zeigen, dass die periodische Versetzungsstruktur an der Grenzfläche lokalisiert ist (Abb. 31).

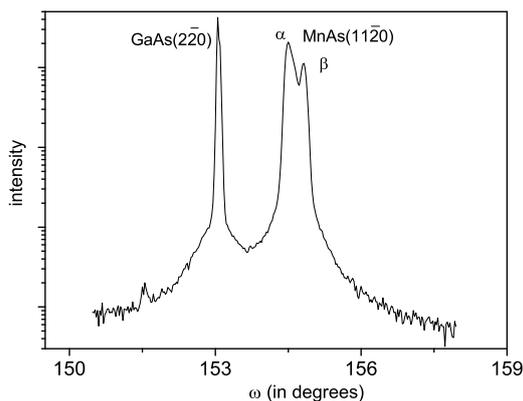


Abbildung 29: Beugungsprofil in radialer Richtung in der Nähe von GaAs($2\bar{2}0$), Einfallswinkel 0.6° . Der Satellitenreflex zwischen Substrat und Schicht ist abwesend, einzig der Reflex symmetrisch zur Schicht bei $\approx 151.5^\circ$ ist vorhanden.

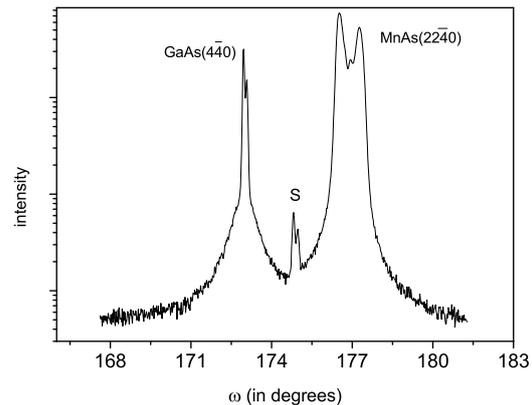


Abbildung 30: Reflexprofil in radialer Richtung in der Nähe von GaAs($4\bar{4}0$). Der Einfallswinkel beträgt 0.65° . Nur ein Satellit ist zwischen Substrat- und Schichtreflex vorhanden.

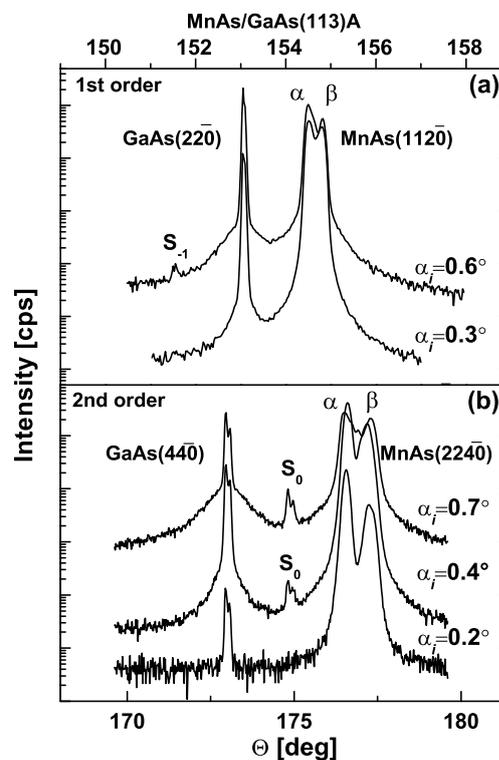


Abbildung 31: Beugung erster und zweiter Ordnung an MnAs abgeschieden auf GaAs(113)A. Die Satelliten die durch das Versetzungsnetzwerk entstehen sind mit S_i bezeichnet. Die Messungen wurden bei Raumtemperatur vorgenommen. Die beiden Phasen des MnAs sind durch α und β gekennzeichnet.

2.2 Ferromagnetische (Ga,Mn)N-Schichten

350–400 nm dicke Schichten wurden mittels reaktiver Molekularstrahlepitaxie bei einer Substrattemperatur von 710 °C direkt auf semi-isolierenden 4H-SiC(0001) Substraten abgeschieden. Um den Mn-Gehalt in den abgeschiedenen Schichten zu variieren, wurde mit unterschiedlichen Mn/Ga-Flussverhältnissen gearbeitet. Proben mit Mn-Gehalten zwischen 7.6 und 13.7 % wurden hergestellt. Der Mn-Gehalt wurde durch SIMS bestimmt. In allen Proben ist der Mn-Gehalt über die gesamte Schichtdicke konstant. Leitfähigkeitsmessungen ergaben einen hohen Widerstand der Proben ($\rho \approx 1 \text{ M}\Omega\text{cm}$).

Mit Röntgendiffraktometrie konnten keine zusätzlichen Phasen nachgewiesen werden. Es wurde eine geringe Verschiebung der GaN-Reflexe zu höheren Winkeln beobachtet, was einer Verkleinerung des Gitterparameters c mit zunehmendem Mn-Gehalt entspricht. Diese Messergebnisse deuten auf die Bildung einer homogenen (Ga,Mn)N-Legierung hin.

Abbildung 32 zeigt Transmissions-Elektronenmikroskopische (TEM) Aufnahmen beider Proben. Probe A (7.6% Mn-Gehalt) [Abb. 32(a)] zeigt eine homogene Schichtstruktur, während Probe B (13.7% Mn-Gehalt) nanometergroße Agglomerate aufweist [Abb. 32(b)].

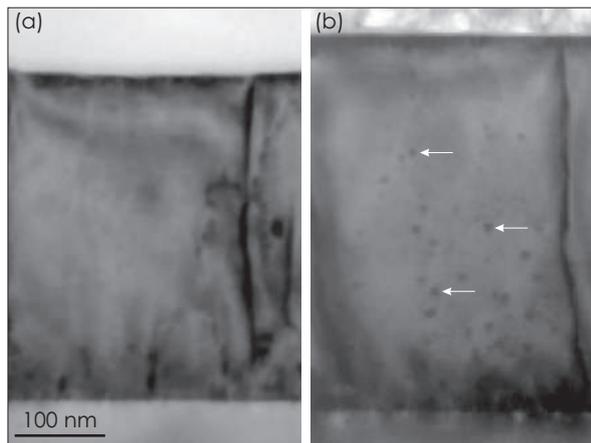


Abbildung 32: Hellfeld-TEM-Abbildungen mit Mn-Konzentrationen entsprechend (a) Probe A und (b) Probe B. In Probe B lassen sich nm-große Agglomerate feststellen, die zum Teil durch Pfeile gekennzeichnet sind.

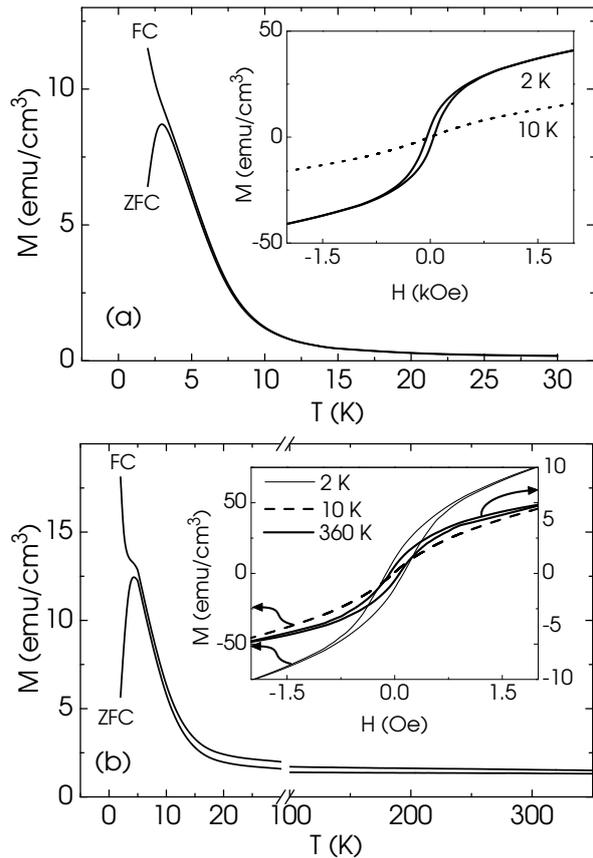


Abbildung 33: Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung nach Abkühlung auf 2 K ohne (ZFC) und mit angelegtem Magnetfeld von 10 kOe (FC). Die Resultate sind für Probe A in (a) und für Probe B in (b) dargestellt. Hystereseschleifen gemessen bei verschiedenen Temperaturen sind in den Diagrammen innerhalb der Abbildungen dargestellt.

Die Tatsache, dass diese Partikel nicht mittels Röntgenbeugung nachgewiesen werden konnten, beruht vermutlich auf ihrer geringen Größe, die zu einer starken Verbreiterung der entsprechenden Reflexe führt.

Die magnetischen Eigenschaften der Schichten wurden mit SQUID-Magnetometrie untersucht. Abbildung 33 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung für die beiden Proben bei einer magnetischen Feldstärke von 100 Oe. Das Nieder-temperaturverhalten der beiden Proben ist ähnlich, gekennzeichnet durch eine FC-ZFC (field cooled-zero field cooled)-Irreversibilität und ein scharfes Maximum in der ZFC-Kurve. Diese Merkmale sind typisch für Spingläser. Die entsprechenden Magnetisierungsschleifen (Abbildungs-

Einsatz) zeigen eine Hysterese unterhalb von 6 K, wie es aus der Form der FC- und ZFC-Kurven erwartet werden kann. Probe A ist paramagnetisch bei höherer Temperatur, während Probe B bei Temperaturen oberhalb 20 K erneut eine Hysterese zeigt. Dies stimmt mit der deutlichen Separation zwischen FC und ZFC in diesem Bereich überein. Die Probe bleibt ferromagnetisch bis zu sehr hohen Temperaturen (>650 K). Dieser Ferromagnetismus ist jedoch auf die magnetischen Partikel zurückzuführen und keine Volumeneigenschaft des Materials. Das Nieder temperaturverhalten wurde mittels frequenzabhängiger und feldabhängiger Wechsellspannungs-Suszeptibilitätsmessungen genauer untersucht. Daraus ergibt sich, dass die homogenen (Ga,Mn)N-Legierungen eine antiferromagnetische Mn-Mn-Wechselwirkung aufweisen und einen Spinglas-Übergang bei Temperaturen um 5 K zeigen.

Weitere Untersuchungen ergaben eine Identifizierung der Partikel als Mn_4N . Schichten dieser Zusammensetzung können homogen auf SiC abgedruckt werden¹¹.

2.3 Eisensilizid auf GaAs

Obwohl die As-freie Wachstumskammer aufgrund technischer Probleme nicht mehr rechtzeitig fertig wurde, konnten erste Messungen an im Institut gewachsenen und nahezu stöchiometrischen $Fe_3Si/GaAs$ -Schichten vorgenommen werden. Da für diese Proben die Gitterfehlpassung sehr gering und die Epitaxiequalität sehr hoch ist, überlappen die Reflexe der Schicht und des Substrats entlang der reziproken Gitterstäbe, und es bilden sich starke Interferenzen aus. Aus der Modellierung dieser Interferenzen kann man Schlussfolgerungen über den Ordnungszustand der Schicht und die relative Anordnung der Einheitszellen der beiden Materialien gewinnen.

Eine Simulation für eine Fe_3Si -Zelle auf GaAs der in Abb. 35 dargestellten Geometrie ist in Abb. 34 als durchgezogene Linie abgebildet.

Versetzt man die Einheitszelle des Fe_3Si relativ zum GaAs um eine halbe Periode in (100)-Richtung, so ergibt sich das gestrichelt dargestellte Intensitätsprofil. Mittels der gemessenen Reflex-

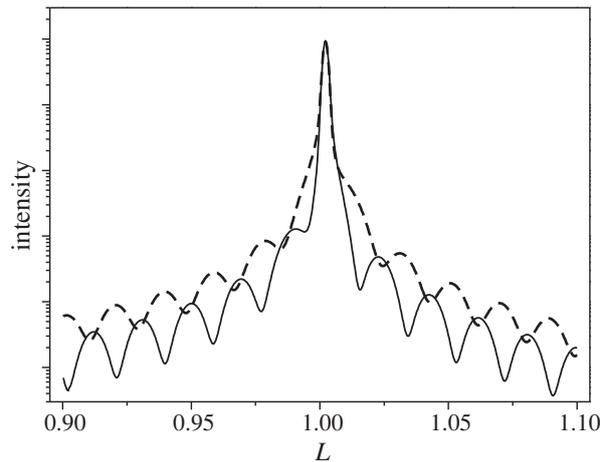


Abbildung 34: Simuliertes Beugungsbild für eine Fe_3Si -Schicht auf GaAs in der in Abb. 35 dargestellten Position (durchgezogene Linie) oder mit einem lateralen Versatz von einer halben Einheitszelle in (100)-Richtung (gestrichelte Linie).

profile kann eine genaue relative Positionsbestimmung der beiden Gitter zueinander vorgenommen werden. Der Grund hierfür liegt in der kohärenten Interferenz beider Systeme, die sich in den Interferenzoszillationen manifestiert.

Das Resultat für die von uns untersuchten Schichten ist in Abb. 35 dargestellt. Die Fe_3Si -Einheitszelle liegt auf den Ga-Plätzen des Substratgitters, mit einer minimalen Verschiebung von 0.14 \AA relativ zum GaAs senkrecht zur Oberfläche. Aus dem Vergleich verschiedener Reflexe, die unterschiedlich empfindlich für bestimmte Fehlorderungen (Austausch von Fe und Si) auf den verschiedenen Untergittern des Fe_3Si sind, lässt sich der Ordnungszustand der Schicht charakterisieren.

Abbildung 36 vergleicht verschiedene gemessene und berechnete Reflexprofile, die alle mit einem gemeinsamen Satz an Parametern für die Berechnung der Kurven angepasst wurden. Für die dargestellte Probe ergibt sich eine leichte Unordnung aufgrund des Einbaus von Si auf Fe-Plätzen des $Fe(A,C)$ -Untergitters.

2.4 Verwertbarkeit

Die Spintronik hat die Schwelle praktischer Verwertbarkeit für Produkte noch nicht erreicht. Gegenwärtig ist nicht abschätzbar, ob die in der

¹¹S. Dhar, O. Brandt, K. H. Ploog, Appl. Phys. Lett. 86 (2005) 112504.

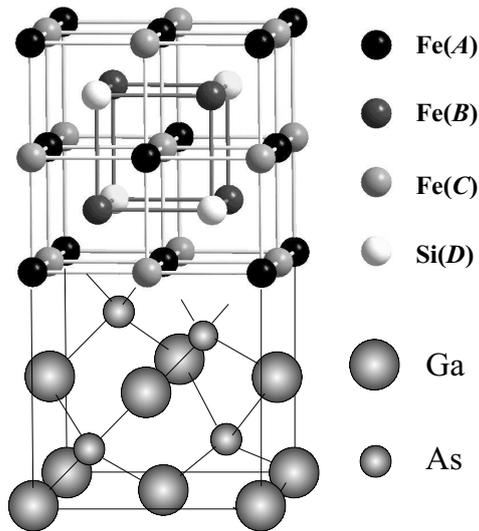


Abbildung 35: Experimentell ermittelte Lage der Fe₃Si-Einheitszelle relative zur Einheitszelle des GaAs-Substrats. Die Fe₃Si-Schicht ist um 0.14 Å relativ zum kubischen Gitter des GaAs nach oben verschoben. Die Genauigkeit wird zu 0.01 Å abgeschätzt.

Untersuchung befindlichen Materialsysteme später auch in spintronischen Bauelementen eingesetzt werden. Die Forschung auf diesem Gebiet schreitet jedoch zügig voran und wir verstehen immer besser, auf welche Art die verschiedenen Materialparameter die Erzeugung, den Transport, die Wechselwirkung und die Detektion spinpolarisierter Elektronen in Festkörpern beeinflussen. In dem von uns bearbeiteten Bereich sind das vor allem die strukturelle und elektronische Anpassung der Materialien über die Grenzfläche hinweg. Dabei erfordert die Spintronik, analog zu den Anforderungen in der Siliziumtechnologie (Gate-Dielektrika) oder der Optoelektronik (aktive Schichten in Lasern) die Epitaxie von Materialien aufeinander, die große Unterschiede sowohl in der Kristallstruktur als auch ihren elektronischen Eigenschaften aufweisen (extreme Heteroepitaxie).

2.5 Ergebnisse anderer Gruppen

Im Projektzeitraum haben die Forschungsaktivitäten auf dem Gebiet der Spintronik stark zugenommen. Sowohl auf dem Gebiet der Spininjektion als auch der Spinmanipulation und der Spindetektion wurden bedeutende Fortschritte er-

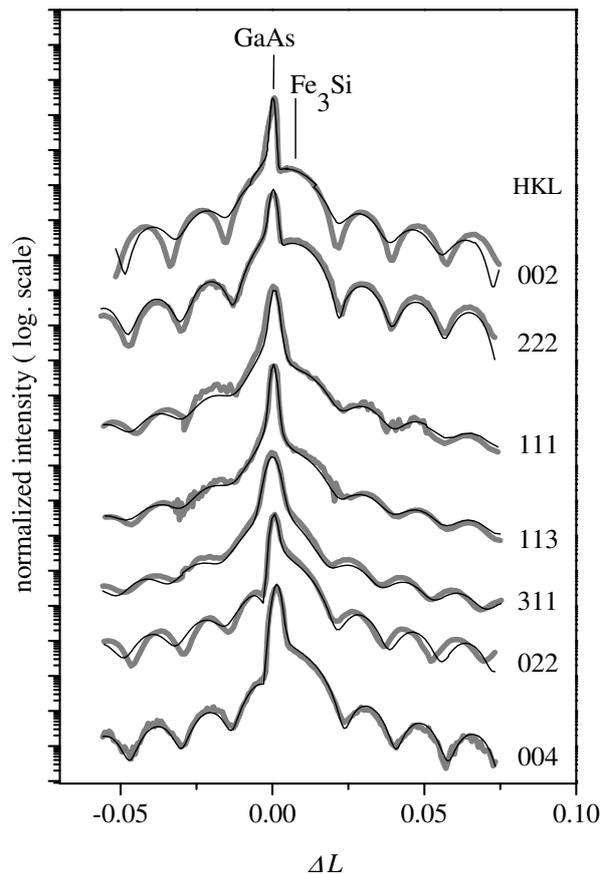


Abbildung 36: Gemessene (grau) und berechnete (schwarz) reziproke Gitterstäbe einer Fe₃Si-Schicht auf GaAs. Alle Kurven sind mit demselben Parametersatz berechnet. Die Probe ist nahezu stöchiometrisch und weist eine geordnete Struktur auf mit einer gewissen Fehlordnung aufgrund von Si-Migration in das Fe(A,C)-Untergitter.

zielt. Eine Vielzahl von Materialsystemen wird gegenwärtig auf ihr Potential für spintronische Anwendungen untersucht.

Bei dem innerhalb des Projekts hauptsächlich studierten MnAs konzentrieren sich die Untersuchungen auf drei Hauptbereiche:

- Strukturelle Eigenschaften von MnAs-Filmen auf GaAs und Si, Epitaxie, Spininjektion (das von uns bearbeitete Thema)
- Verdünnte magnetische Halbleiter und eingebettete Cluster
- Magnetismus in MnAs

Im ersten Bereich kann das Paul-Drude-Institut unter den weltweit führenden Instituten eingeord-

net werden. Parallel zu den hier präsentierten Ergebnissen wurde das Wachstum auf der (111)-Orientierung des GaAs untersucht, sowohl am Paul-Drude-Institut selbst^{12,13,14} als auch durch andere Forschergruppen^{15,16}. Auf dieser Substratorientierung wächst MnAs mit der c-Achse senkrecht zur Oberfläche auf. Dadurch verändert sich die Wechselwirkung mit dem Substrat, was sich in einem veränderten Temperaturbereich des Phasenübergangs in der Nähe von 40 °C niederschlägt. Die dreizählige Symmetrie der (111)-Oberfläche erleichtert das Überwachsen des MnAs. Dadurch lassen sich epitaktische Tunnelstrukturen aus mehreren Schichten herstellen. Für MnAs auf GaAs(001) wurde eine Änderung der magnetischen Eigenschaften und der Transporteigenschaften (von metallisch auf halbleitend) für zunehmend dünnere Schichten berichtet¹⁷. Die Wachstumstemperatur des MnAs war in diesem Fall jedoch sehr hoch, und die strukturelle Charakterisierung der Schichten unvollständig. Nach unseren Erfahrungen muss hier von einer starken Grenzflächenreaktion bzw. Durchmischung zwischen MnAs und GaAs ausgegangen werden.

Auf dem Gebiet der verdünnten magnetischen (Ga:Mn)As-Halbleiter^{18,19,20,21,22,23} wird versucht, höhere Curie-Temperaturen zu erzie-

len. Der derzeit beste Wert liegt immer noch bei etwa 150 K²⁴. Solange diese Materialien nicht mindestens bei Raumtemperatur ferromagnetisch sind, scheinen keine praktischen Anwendungen denkbar, obwohl durch die magnetische Dotierung die Kristallstruktur des Halbleiters erhalten bleibt und deshalb zumindest im Prinzip keine Grenzflächenprobleme auftreten. Man nimmt an, dass die niedrige Curie-Temperatur auf die verschiedenartigen Defekte in diesen Systemen zurückzuführen ist. Dabei befindet sich sowohl As auf Ga-Platz als auch As oder Mn auf Zwischengitterplätzen. Alle drei sind Donatoren und kompensieren die Mn-Akzeptoren in diesen Materialien. Somit beeinflusst die Defektstruktur sehr stark die elektronischen und damit die magnetischen Eigenschaften der GaMnAs-Legierungen. Es wird davon ausgegangen, dass die ferromagnetische Kopplung in GaMnAs indirekt über Löcher erfolgt, die die magnetischen Momente der Mn⁺⁺-Ionen ausrichten²⁵.

Um die Curie-Temperatur zu erhöhen, wird von Koeder et al.²⁶ vorgeschlagen, die Defektstruktur über die Stöchiometrie und die Schichtperiode von GaMnAs/InGaMnAs-Übergittern zu kontrollieren. Zhao et al. konnten zeigen, dass bei tiefen Wachstumstemperaturen die Gitterkonstante von GaMnAs in etwa linear mit der Mn-Dichte auf Zwischengitterplätzen korreliert²⁷. Sie stellten darüber hinaus fest, dass die originäre Gitterkonstante von GaMnAs deutlich größer ist als die des GaAs.

Eine Reihe von Untersuchungen widmen sich MnAs-Kristalliten, die entstehen wenn die Mn-Konzentration die Grenze der homogenen Löslichkeit überschreitet. Eine detaillierte Studie der Verspannung innerhalb und ausserhalb der Kristallite sowie eine Charakterisierung zusätzlicher Defekte wurde in unserer Anlage

¹²M. Kästner, L. Däweritz, K. H. Ploog, Surf. Sci. **511** (2002) 323.

¹³B. Jenichen, V. M. Kaganer, M. Kästner, C. Herrmann, L. Däweritz, K. H. Ploog, N. Darowski, I. Zizak, Phys. Rev. **B68** (2003) 132301.

¹⁴Y. Takagaki, E. Wiebicke, L. Däweritz, K. H. Ploog, Appl. Phys. Lett. **85** (2004) 1505.

¹⁵V. H. Etgens, M. Eddrief, D. Demaille, Y. L. Zheng, A. Ouerghi, J. Cryst. Growth **240** (2002) 64.

¹⁶S. Sugahara, M. Tanaka, J. Cryst. Growth **251** (2003) 317

¹⁷J. H. Song, J. J. Lee, Y. Cui, and J. B. Ketterson, J. Appl. Phys. **97**, (2005) 10M107.

¹⁸K. S. Burch, E. J. Singley, J. Stephens, R. K. Kawakami, D. D. Awschalom, D. N. Basov, Phys. Rev. **B71** (2005) 125340.

¹⁹J. H. Song, Y. Cui, J. J. Lee, Y. Kim, J. B. Ketterson, S. Cho, J. Appl. Phys. **95** (2004) 7288.

²⁰E. Johnston-Halperin, J. A. Schuller, C. S. Gallinat, T. C. Kreuz, R. C. Myers, R. K. Kawakami, H. Knotz, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, Phys. Rev. **B68** (2003) 165328.

²¹S. Sanvito, N. A. Hill, Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 267202.

²²Y. L. Soo, G. Kioseoglou, S. Kim, X. Chen, H. Luo, Y. H. Kao, Y. Sasaki, X. Liu, J. K. Furdyna, Appl. Phys. Lett. **80** (2002) 2654.

²³M. Moreno, B. Jenichen, L. Däweritz, K. H. Ploog, Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 161903.

²⁴K. C. Ku, S. J. Potashnik, R. F. Wang, M. J. Seong, R. C. M. E. Johnston-Halperin, S. H. Chun, A. Mascarenhas, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, P. Schiffer, N. Samarth, Appl. Phys. Lett. **82**, 2302 (2003)

²⁵T. Dietl, H. Ohno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand, Science **287** (2000) 1019.

²⁶A. Koeder, W. Limmer, S. Frank, W. Schoch, V. Avrutin, R. Sauer, A. Waag, K. Zuern, and P. Ziemann, Appl. Phys. Lett. **85** (2004) 783.

²⁷L. X. Zhao, C. R. Staddon, K. Y. Wang, K. W. Edmonds, R. P. Champion, B. L. Gallagher, C. T. Foxon, Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 071902.

durch M. Moreno et al. durchgeführt^{28,29}. Eingebettete MnAs-Kristallite mit Zinkblende-Struktur wurden in GaMnAs-Schichten gefunden, die nach der Abscheidung bei niedriger Temperatur für kurze Zeit bei 500 °C in Stickstoffatmosphäre getempert wurden. Die Struktur der Kristallite, ihr Spannungsfeld in der Matrix und zusätzliche kleine Defekte, die sich durch ein unterschiedliches Spannungsfeld bemerkbar machen, wurden analysiert. Die Curietemperatur solcher Zinkblende-Kristallite wurde zu 360 K abgeschätzt, ein Wert der über der Übergangstemperatur der hexagonalen MnAs-Schichten ($T_C = 313$ K) liegt³⁰.

Um den Magnetismus in MnAs aufzuklären, wird der Einbaumechanismus von Mn-Atomen untersucht. Das et al. führten die Ursache des Ferromagnetismus in α -MnAs-Schichten auf eine indirekte Austauschwechselwirkung über die Mn-As-Mn-Bindungen zurück.^{31,32}

2.6 Veröffentlichungen

S. Dhar, O. Brandt, A. Trampert, L. Däweritz, K. J. Friedland, K. H. Ploog, J. Keller, B. Beschten, G. Güntherodt: *Origin of high-temperature ferromagnetism in (Ga,Mn)N layers grown on 4H-SiC(0001) by reactive molecular-beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **82** (2003) 2077.

S. Dhar, O. Brandt, A. Trampert, K. J. Friedland, Y. J. Sun, K. H. Ploog: *Observation of spin-glass behavior in homogeneous (Ga,Mn)N layers grown by reactive molecular-beam epitaxy*, Phys. Rev. **B67** (2003) 165205.

K. H. Ploog, S. Dhar, A. Trampert: *Structural and magnetic properties of (Ga,Mn)N layers grown on SiC by reactive molecular beam epitaxy*, J. Vac. Sci. Technol. B **21** (2003) 1756.

D. K. Satapathy, B. Jenichen, V. M. Kaganer, W. Braun, L. Däweritz, and K. H. Ploog: *In-situ investigation of MnAs/GaAs (001) growth and inter-*

face structure using synchrotron x-ray diffraction, J. Vac. Sci. Technol. B. **22** (2004) 2079.

B. Jenichen, D. Satapathy, W. Braun, L. Däweritz, K. H. Ploog: *Microstructure of epitaxial MnAs films on GaAs (001) during and after the growth*, J. Appl. Phys. **96** (2004) 6103.

D. K. Satapathy, B. Jenichen, W. Braun, V. M. Kaganer, L. Däweritz, K. H. Ploog: *In situ grazing incidence x-ray diffraction study of strain evolution during growth and postgrowth annealing of MnAs on GaAs (113)A*, J. Phys. D: Appl. Phys. **38** (2005) A164.

B. Jenichen, D. K. Satapathy, W. Braun, V. M. Kaganer, L. Däweritz, and K. H. Ploog: *Structural properties of MnAs epitaxial layers on GaAs: an in situ x-ray study*, J. Phys. D: Appl. Phys., **38** (2005) A 169.

D. K. Satapathy, V. M. Kaganer, B. Jenichen, W. Braun, L. Däweritz, K. H. Ploog, *Periodic array of misfit dislocations at the MnAs/GaAs interface studied by synchrotron x-ray diffraction*, Phys. Rev. B (eingereicht).

B. Jenichen, V. M. Kaganer, J. Herfort, D. K. Satapathy, H. P. Schönherr, W. Braun, K. H. Ploog: *Long-range order in thin epitaxial Fe₃Si films grown on GaAs(001)*, Phys. Rev. B (im Druck).

D. K. Satapathy, W. Braun, B. Jenichen, K. H. Ploog: *Reflection High energy electron diffraction and x-ray diffraction investigation of nucleation of MnAs on GaAs (001)*, (in Vorbereitung).

W. Braun, D. K. Satapathy, B. Jenichen, K. H. Ploog: *Molecular beam epitaxy growth of MnSb on GaSb(001)*, (in Vorbereitung).

V. M. Kaganer, D. K. Satapathy, B. Jenichen, W. Braun, K. H. Ploog: *Incommensurate heterointerface between MnAs/GaAs(001) studied by grazing incidence x-ray diffraction*, (in Vorbereitung).

²⁸M. Moreno, B. Jenichen, V. Kaganer, W. Braun, A. Trampert, L. Däweritz, K. H. Ploog, Phys. Rev. **B67** (2003)235206.

²⁹M. Moreno, B. Jenichen, L. Däweritz, K. H. Ploog, Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 161903.

³⁰M. Yokoyama, H. Yamaguchi, T. Ogawa, M. Tanaka, J. Appl. Phys. **97** (2005) 10D317

³¹A. K. Das, C. Pampuch, A. Ney, T. Hesjedal, L. Däweritz, R. Koch, K. H. Ploog, Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 087203

³²R. Koch, C. Pampuch, H. Yamaguchi, A. K. Das, A. Ney, L. Däweritz, K. H. Ploog, Phys. Rev. **B70** (2004) 092406.