

09

Спиновая инжекция электронов в светоизлучающих диодах на основе структур GaMnAs/GaAs/InGaAs с туннельным переходом

© М.В. Дорохин,¹ Е.И. Малышева,¹ Б.Н. Звонков,¹ А.В. Здоровейщев,¹
Ю.А. Данилов,¹ Д.Е. Николичев,² А.В. Боряков,² С.Ю. Зубков²

¹ Научно-исследовательский физико-технический институт
Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия

² Научно-образовательный центр „Физика твердотельных наноструктур“
Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия
e-mail: dorokhin@nifti.unn.ru

(Поступило в Редакцию 21 сентября 2013 г. В окончательной редакции 8 апреля 2014 г.)

Исследована циркулярно-поляризованная электролюминесценция светоизлучающих диодов на основе гетероструктур GaMnAs/ n^{++} GaAs/ n -GaAs/InGaAs/ p -GaAs. Зависимость степени циркулярной поляризации от магнитного поля может быть описана петлей гистерезиса, что связывается с инжекцией спин-поляризованных электронов из намагниченного GaMnAs. Эффект наблюдается в диапазоне температур 10–90 К.

В настоящее время значительное развитие получила область науки, связанная разработкой и исследованием спиновых светоизлучающих диодов (ССИД) — источников циркулярно-поляризованной люминесценции [1–3]. Фундаментальной основой построения большинства ССИД является инжекция поляризованных по спину носителей заряда из намагниченного ферромагнитного слоя структуры в активную область полупроводникового диода [1,2]. В таких диодах знак и степень циркулярной поляризации зависят от намагниченности ферромагнитного слоя, которая контролируемо управляется, как правило, внешним магнитным полем [1–4]. Свойства ССИД в значительной степени определяются видом ферромагнитного инжектора спин-поляризованных носителей. Одним из распространенных видов инжектора является слой ферромагнитного полупроводника GaMnAs. Основными преимуществами указанного материала являются высокая совместимость со светоизлучающими диодами на основе GaAs, а также сравнительная простота технологии [2,5] (в отличие от GaMnAs, коммерческие ССИД с металлическим инжектором FeTb/MgO/GaAs изготавливаются двухстадийным методом молекулярно-лучевой эпитаксии и магнетронного распыления [6]). Недостатками инжектора GaMnAs являются сравнительно низкие значения температуры Кюри, а также дырочная проводимость, обуславливающая функционирование приборов за счет спин-поляризованных дырок. Поскольку время спиновой релаксации для дырок значительно меньше, чем для электронов, построение ССИД на основе GaMnAs сопряжено с меньшей эффективностью спиновой инжекции (меньшей степенью поляризации) [7]. В работах [2,8] методом молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) были изготовлены ССИД с туннельным барьером, образованным обратным смещением гетероперехода GaMnAs(p)/ n^{++} GaAs/ n^{+} AlGaAs. Такая конфигурация обеспечила инжекцию спин-поляризованных связан-

ных электронов из валентной зоны GaMnAs в зону проводимости n -AlGaAs. Согласно [2], использование инжекции электронов в подобной системе (структуре зенеровского типа) позволяет уменьшить потери на спиновое рассеяние и повысить степень циркулярной поляризации при одинаковых условиях эксперимента. В настоящей работе продемонстрирована возможность инжекции спин-поляризованных электронов в диоде с туннельным барьером GaMnAs/ n^{++} GaAs. Отличием от известных работ является использование метода газофазной эпитаксии из металлорганических соединений (ГФЭ МОС) и лазерного распыления для формирования структуры ССИД, а также изготовление гетероструктуры GaMnAs/ n^{++} GaAs/InGaAs с квантовой ямой InGaAs/GaAs вместо квантовой ямы GaAs/AlGaAs, использованной в [2,8].

Структуры для исследований были изготовлены на подложке p -GaAs (001) с помощью двухстадийного метода эпитаксиального выращивания. На первой стадии методом ГФЭ МОС при атмосферном давлении в потоке водорода и температуре 600°C были последовательно выращены: буферный слой GaAs толщиной 0.4 μm , легированный Zn до концентрации $2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, квантовая яма (КЯ) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As:Zn}$ (концентрация дырок $p \sim 8 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, ширина $d_{QW} = 16 \text{ nm}$, содержание In $x \approx 0.16$), 6 nm слой нелегированного GaAs, 50 nm GaAs:Si (концентрация электронов $n \sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), 20 nm GaAs:Si ($n \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) и слой GaAs:Si ($n \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) толщиной 23 nm, создающий туннельный переход. На следующей стадии методом лазерного распыления Mn- и GaAs-мишеней при температуре 340°C были выращены 40 nm слой GaMnAs и 6 nm нелегированный слой GaAs для предотвращения окисления ферромагнитного полупроводника. Снижение температуры выращивания необходимо для минимизации диффузии Mn из легированного

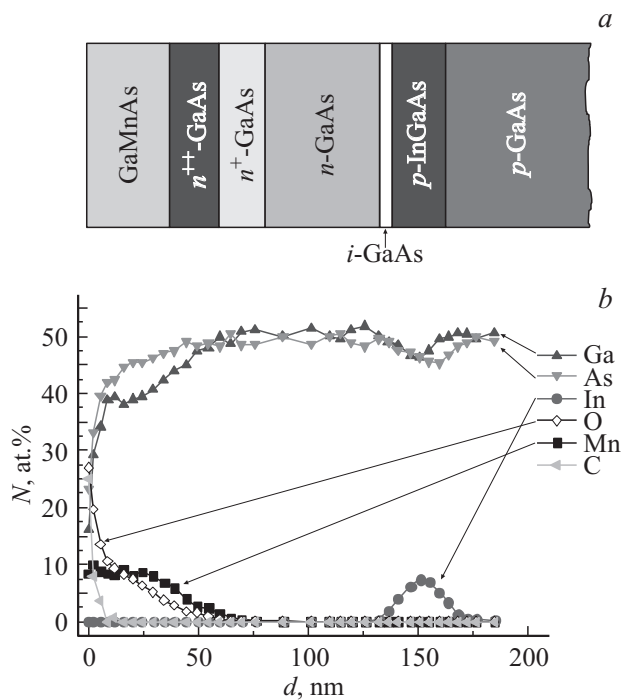


Рис. 1. *a* — схематическое изображение диода для исследований; *b* — профиль распределения концентраций элементов по глубине исследованной структуры, измеренный методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии.

слоя. Содержание Mn оценивалось по соотношению времен распыления компонентов

$$Y_{\text{Mn}} = t_{\text{Mn}} / (t_{\text{Mn}} + t_{\text{GaAs}}), \quad (1)$$

которое для исследованной структуры составило ≈ 0.17 . Толщина слоя $\text{Ga}_{0.83}\text{Mn}_{0.17}\text{As}$ (d) составила 40 nm. Дополнительные детали технологии изготовления структур описаны в [5]. Ферромагнитные свойства аналогичных слоев GaMnAs, выращенных на подложках *i*-GaAs, были детально изучены в [9]. Слои GaMnAs имели *p*-тип проводимости ($p \sim 10^{19} - 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) [9].

Для формирования диодов на поверхность образцов наносился Au-контакт методом термического испарения в вакууме. Базовый омический контакт к подложке GaAs формировался искровым вжиганием In-фольги. Таким образом формировалась диодная структура с туннельным барьером, образованным *p*-*n*-переходом GaMnAs/*n*⁺-GaAs и со включенным ему навстречу вторым *n*-*p*-переходом *n*-GaAs/InGaAs/*p*-GaAs. Изготовление светоизлучающих диодов завершалось формированием мезаструктур диаметром 500 μm с применением фотолитографии и химического травления. Схема структуры показана на рис. 1, *a*. Для оценки и сопоставления результатов была сформирована контрольная структура, представляющая собой точный аналог структуры ССИД, но содержащая слой *p*-GaAs:C вместо GaMnAs.

Для исследования химического состава планарных структур методом рентгеновской фотоэлектронной спек-

троскопии (РФЭС) были использованы образцы, сколотые из центральной области выращенных структур. При этом дополнительные контактные слои не выращивались во избежание химического изменения поверхности. Исследования проводились на базе сверхвысоковакуумного комплекса Omicron Multiprobe RM. Эмиссия фотоэлектронов возбуждалась рентгеновским излучением источника DAR-400 с характеристическими линиями MgK_α (1253.6 eV) и AlK_α (1486.7 eV). Для послойного профилирования структур по глубине производилось ионное распыление материала образца с помощью источника ионов Ar^+ ISE-10 с ускоряющим напряжением 1 kV. Для определения состава записывались фотоэлектронные линии Ga ($2p_{3/2}$), Ga ($3s$), As ($2p_{3/2}$), As ($3p$), As ($3d$), Mn ($2p_{3/2}$), In ($3d_{5/2}$), O ($1s$) и C ($1s$). Концентрация элементов в слоях определялась методом факторов относительной чувствительности [10]. Проверка и корректировка зарядового сдвига фотоэлектронных линий проводилась по сравнению положений нескольких пиков, лежащих в различных областях спектра, с положением эталонных линий из атласов [11,12]. Для уменьшения ошибки при анализе тонкой структуры фотоэлектронных (ФЭ) линий, раскладываемых на систему линий, описываемых единичными функциями Гаусса и Лоренца, соответствующим определенным химическим соединениям, проводилось сравнение между концентрациями химических соединений, определенных по ФЭ-линиям различных элементов с учетом стехиометрии, а также выполнялся контроль суммы содержания всех соединений, которая при правильности проведения анализа должна составлять 100%. Предел обнаружения минимальной концентрации для элементов структуры составил 0.5 at.%.

На сформированных диодах были проведены исследования электролюминесценции (ЭЛ) и циркулярной поляризации ЭЛ в интервале температур 10–70 K. Спектры ЭЛ измерялись при смещении диодов в туннельном режиме: когда на Au контакт подавался отрицательный относительно базы потенциал. Возбуждаемое в образце электролюминесцентное излучение выводилось со стороны подложки, прозрачной для длины волны эмиссии КЯ. Магнитопольные зависимости степени циркулярной поляризации ЭЛ исследовались при помещении образцов в магнитное поле электромагнита. Магнитное поле было направлено перпендикулярно поверхности структуры (геометрия Фарадея). Величина магнитного поля варьировалась в диапазоне 0–300 мТ. Степень циркулярной поляризации электролюминесценции измерялась по стандартной методике, описанной в [1]. При измерениях использовалась ахроматическая четверть-волновая пластина и призма Глана-Тейлора. Значение степени поляризации оценивалось по формуле

$$P_{\text{ЭЛ}} = (I_+ - I_-) / (I_+ + I_-), \quad (2)$$

где I_+ (I_-) — интенсивности компонент с левой (правой) поляризацией, полученные путем интегрирования

спектра излучения шириной 7 meV. Погрешность измерений степени циркулярной поляризации составила 0.0002. Низкое значение погрешности по сравнению с измерениями, выполненными в [13], достигались за счет уменьшения случайной погрешности путем усреднения по 300 измерениям, а также за счет уменьшения приборной погрешности при использовании оптических элементов с высокой степенью выделения поляризации (не хуже 10^5) [14].

На рис. 1, *b* представлен профиль распределения концентраций элементов по глубине для исследуемой структуры. Углерод, диагностированный в структуре, находится преимущественно на поверхности с концентрацией, достигающей 24 at.%, и его сигнал пропадает уже к 5 nm. Регистрируемый углерод относится к загрязнению поверхности при нормальных условиях хранения образца. Линию кислорода можно разделить на две составляющие: приповерхностную, находящуюся на глубинах от 0 до 9 nm и связанную с окислением поверхности готовой структуры, и объемную — на глубинах от 9 до 55 nm. Поскольку данная глубина примерно соответствует толщине слоя GaMnAs, наличие кислорода в области 9–55 nm связано с процессом формирования слоя ферромагнитного полупроводника. Затянутый спад концентрации Mn (и сопутствующего ему кислорода) на глубинах 40–70 nm вероятно связан с большой шероховатостью поверхности (10 nm и выше) и ионным перемешиванием в процессе профилирования. Также отметим возможность диффузии атомов Mn из верхнего слоя GaMnAs [15]. Учитывая эти факторы, можно оценить толщину слоя MnGaAs величиной 45 nm.

Относительные концентрации Ga и As совпадают на уровне в 50 at.%, что определяется стехиометрической формулой в случае отсутствия в соединении GaAs других элементов. При наличии дополнительных компонентов можно выделить два участка на профиле концентрации, один из которых связан со слоем GaMnAs, а второй — с областью квантовой ямы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. В слое GaMnAs разница в концентрации мышьяка и галлия достигает величины в 7 at.%, и на протяжении всего слоя концентрация As превышает концентрацию Ga, что может косвенно свидетельствовать о формировании соединения (Ga,Mn)As с концентрацией Mn до 7–8 at.%. В слое КЯ концентрация As превышает концентрацию Ga на величину, коррелирующую с концентрацией индия. Сигнал In появляется на глубине 136 nm и пропадает на глубине 172 nm, при этом области гетерограниц „затянуты“. Учитывая аппаратное уширение профиля, рассмотренное выше, можно приблизительно восстановить область КЯ по глубине от 146 до 162 nm, таким образом, оценочная толщина КЯ совпадает с технологическим значением 16 nm.

На вставке *b* к рис. 2 показаны вольт-амперные характеристики изготовленного диода. Положительному напряжению соответствует положительный потенциал базы и отрицательный — верхнего слоя. В указанной

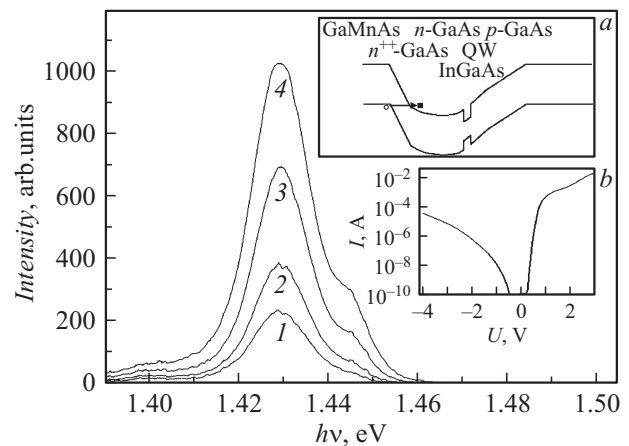


Рис. 2. Спектр электролюминесценции исследованного диода, измеренный при температуре 10 K. Кривые соответствуют токам диода 1 — 1, 2 — 2, 3 — 3, 4 — 5 mA. На вставках показаны: *a* — схематическое изображение зонной диаграммы, *b* — вольт-амперная характеристика диода при 10 K.

полярности напряжений первый *p*–*n*-переход от подложки смещается в прямом направлении, а туннельный *p*–*n*-переход GaMnAs/ n^{++} GaAs — в обратном направлении. В результате сильного изгиба зон при обратном смещении происходит туннелирование связанных электронов из валентной зоны GaMnAs в зону проводимости GaAs (вставка *a* к рис. 2). Таким образом осуществляется инжекция электронов в КЯ, инжекция дырок осуществляется из подложки через прямосмещенный *p*–*n*-переход *p*-GaAs/InGaAs/*n*-GaAs.

Спектр электролюминесценции изготовленного диода показан на рис. 2. На спектре наблюдаются два пика при энергиях кванта 1.429 и 1.441 eV. Указанные линии предположительно соответствуют излучательным переходам с основного и первого возбужденного состояний в широкой квантовой яме InGaAs/GaAs [16]. Сравнительно большая ширина линий (16 meV) обусловлена легированием КЯ цинком. С ростом тока накачки отношение интенсивностей первой и второй линий уменьшается, что, вероятно, связано с насыщением основного состояния в КЯ.

При введении диодов в магнитное поле люминесцентное излучение становится циркулярно-поляризованным. Зависимость степени циркулярной поляризации (рассчитанной по формуле (2)) от величины магнитного поля представляет собой петлю гистерезиса с выходом на насыщение в магнитном поле ~ 100 mT (рис. 3, кривая 1). Величина остаточной поляризации составляет 0.0004 ± 0.0002 . Наибольшее значение степени циркулярной поляризации составило 0.0019 ± 0.0002 . Подобный вид зависимости характерен для намагниченности (и магнитных характеристик) ферромагнитного материала. Отметим, что для контрольной структуры в тех же условиях эксперимента значение степени циркулярной

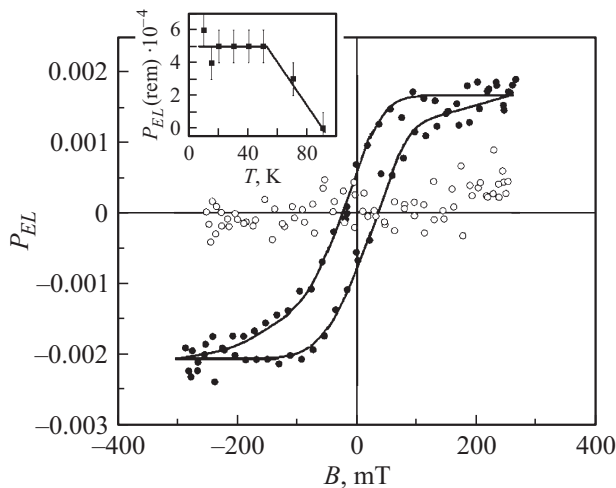


Рис. 3. Зависимость степени циркулярной поляризации, рассчитанной по формуле (1), от внешнего магнитного поля, температура измерений — 10 К (для исследованной структуры — темные точки, для контрольной структуры — светлые точки). На вставке показана зависимость остаточной степени циркулярной поляризации (при $B = 0$) от температуры измерений.

поляризации было равно нулю с точностью до погрешности измерений.

С ростом температуры измерений от 10 до 70 К кривая зависимости $P_{EL}(B)$ практически не претерпевает изменений в пределах погрешности (на графике кривые не приведены для того, чтобы не загромождать рисунок). При температуре 70 К имеет место некоторое уменьшение магнитного поля насыщения и остаточной поляризации, степень поляризации в максимальном поле в пределах погрешности не изменяется. При температуре 90 К петля гистерезиса не зарегистрирована, а степень поляризации в максимальном поле уменьшается до 0.0015 ± 0.0002 . Зависимость остаточной степени циркулярной поляризации от температуры приведена на вставке к рис. 3. Измерение выше 110 К затруднительно вследствие температурного гашения люминесценции.

Наличие ферромагнетизма при низкой температуре (при температурах до 50 К) в слоях GaMnAs, сформированных методом газовой эпитаксии, было продемонстрировано ранее [9]. Зарегистрированная в настоящей работе петля гистерезиса на магнитопольевой зависимости P_{EL} , вероятно, также обусловлена ферромагнитными свойствами инжектора GaMnAs. Предположительно, циркулярная поляризация связана с инжекцией спин-поляризованных электронов из ферромагнитного полупроводника в активную область ССИД. Это подтверждается отсутствием (в пределах погрешности) циркулярной поляризации для контрольной структуры. Интересным экспериментальным фактом, требующим дополнительного исследования, является наличие петли гистерезиса на зависимости $P_{EL}(B)$.

Как правило, в структурах с квантовой ямой магнитное поле прикладывается перпендикулярно оси лег-

кого намагничивания ферромагнитного слоя [1,8,9,13]. Для таких случаев характерно отсутствие остаточной намагниченности (и соответственно остаточной поляризации [1,16]). Отсутствие остаточной намагниченности в слоях GaMnAs, выращенных на GaAs, было подтверждено в [9].

В случае исследованных нами структур наличие остаточной циркулярной поляризации связывается с остаточной намагниченностью слоя GaMnAs. Последнее возможно в том случае, если ось легкого намагничивания слоя GaMnAs лежит не полностью в плоскости слоя (как это обычно бывает в случае GaMnAs), а имеет компоненту в направлении, перпендикулярном этой плоскости. Возможной причиной поворота оси является присутствие в слое GaMnAs кислорода. Известно, что кислород образует антиферромагнитные и ферромагнитные соединения с Mn (например, [15]). В гибридных системах типа $MnO_x/GaMnAs$ возможно обменное взаимодействие между материалами, приводящее к изменению свойств ферромагнитного GaMnAs [17]. Для полного анализа свойств сформированного слоя необходимо исследование атомной структуры и фазового состава.

Отсутствие петли гистерезиса на зависимости $P_{EL}(B)$ при температуре 90 К, вероятно, обусловлено достижением температуры Кюри слоя GaMnAs, выше которой материал становится парамагнитным. Дополнительного объяснения требует сохранение степени циркулярной поляризации при том же значении магнитного поля при температуре, превышающей точку Кюри. В принципе, инжекция спин-поляризованных носителей возможна и в случае парамагнитных материалов (например, в системе ZnMnSe/GaAs [18]), при этом степень циркулярной поляризации линейно зависит от магнитного поля, как и в случае исследованных структур при 90 К.

Таким образом, в настоящей работе сформированы и исследованы спиновые светоизлучающие диоды на основе гетероструктур InGaAs/GaAs с туннельным барьером GaMnAs/ n^{++} GaAs. Получено циркулярно-поляризованное излучение, которое объясняется инжекцией спин-поляризованных электронов из ферромагнитного GaMnAs в активную область структуры. Обнаружена гистерезисная зависимость $P_{EL}(B)$, связанная с остаточной намагниченностью GaMnAs. Наличие остаточной поляризации в нулевом магнитном поле является одним из основных требований при создании современных источников циркулярно-поляризованного излучения.

Работа выполнялась при финансовой поддержке РФФИ (гранты 11-02-00645а, 13-07-00982а, 13-02-97140-рег_Поволжье), Минобрнауки РФ в рамках ФЦП „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ на 2009–2013 гг. (гранты № 14.В37.21.0346, 14.В37.21.1945) и гранта президента РФ (МК-2708.2013.2).

Список литературы

- [1] Holub M., Bhattacharya P. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2007. Vol. 40. P. R179–R203.
- [2] Young D.K., Gupta J.A., Johnston-Halperin E., Epstein R., Kato Y., Awschalom D.D. // Semicond. Sci. Tech. 2002. Vol. 17. P. 275–284.
- [3] Myers R.C., Gossard A.C., Awschalom D.D. // Phys. Rev. B. 2004. Vol. 69. P. 161 305(R).
- [4] Hövel S., Gerhardt N.C., Hofmann M.R., Lo F.-Y., Ludwig A., Reuter D., Wieck A.D., Schuster E., Wende H., Keune W., Petravic O., Westerholt K. // Appl. Phys. Lett. 2008. Vol. 93. P. 021 117.
- [5] Звонков Б.Н., Вихрова О.В., Данилов Ю.А., Демидов Е.С., Дёмина П.Б., Дорохин М.В., Дроздов Ю.Н., Подольский В.В., Сапожников М.В. // Опт. журн. 2008. Т. 75, вып.6. С. 56–61.
- [6] Jiang X., Wang R., Shelby R.M., Macfarlane R.M., Bank S.R., Harris J.S., Parkin S.S.P. // Phys. Rev. Lett. 2006. Vol. 94. P. 056 601.
- [7] Оптическая ориентация / Под ред. Б.П. Захарчени, Ф. Майера. Л.: Наука, 1989. 408 с.
- [8] Kohda M., Ohno Y., Matsukura F., Ohno H. // Physica E. 2006. Vol. 32. P. 438–441.
- [9] Звонков Б.Н., Вихрова О.В., Данилов Б.А., Дроздов Ю.Н., Кудрин А.В., Сапожников М.В. // ФТТ. 2010. Т. 52, Вып. 11. С. 2124–2127.
- [10] Анализ поверхности методами оже- и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии / Под ред. Д. Бриггса, М.П. Сиха. М.: Мир, 1987. 203 с.
- [11] Handbooks of monochromatic XPS spectra. Vol. 1. The elements and native oxides / Ed. by B.V. Crist. XPS International Inc., 1999. 658 p.
- [12] Handbooks of monochromatic XPS spectra. Vol. 2. Commercially pure binary oxides and a few common carbonates and hydroxides / Ed. by B.V. Crist. XPS International LLC, 2005. 970 p.
- [13] Dorokhin M.V., Danilov Yu.A., Demina P.B., Kulakovskii V.D., Vikhrova O.V., Zaitsev S.V., Zvonkov B.N. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2008. Vol. 41. P. 245110.
- [14] Электронный ресурс. Режим доступа: <http://elan-optics.com/rus/1.html>
- [15] Danilov Yu.A., Drozdov M.N., Drozdov Yu.N., Kudrin A.V., Vikhrova O.V., Zvonkov B.N., Kalentjeva I.L., Dunaev V.S. // J. Spintron. Magn. Mater. 2012. Vol. 1. P. 82–84.
- [16] Прокофьева М.М., Дорохин М.В., Данилов Ю.А., Малышева Е.И., Кудрин А.В., Калентьева И.Л., Вихрова О.В., Звонков Б.Н. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2012. Т. 76, Вып. 2. С. 255–258.
- [17] Huang P.W., Huang J.H., Yen C.H., Cheng C.Y., Xu F., Ku H.C., Lee S.F. // J. Phys: Cond. Mat. 2011. Vol. 23. P. 415 801.
- [18] Löffler W., Trondle D., Fallert J., Kalt H., Litvinov D., Gerthsen D., Lupaca-Schomber J., Passow T., Daniel B., Kvietkova J., Grün M., Klingshirn C., Hetterich M. // Appl. Phys. Lett. 2006. Vol. 88. P. 062 105.