

FeMn 掺杂 AlN 薄膜的制备及其特性研究*

蓝雷雷¹⁾ 胡新宇¹⁾ 顾广瑞^{1)†} 姜丽娜^{2)‡} 吴宝嘉¹⁾

1) (延边大学理学院物理系, 延吉 133002)

2) (吉林大学超硬材料国家重点实验室, 长春 130012)

(2013年7月3日收到; 2013年8月7日收到修改稿)

采用直流磁控共溅射技术, 以 Ar 与 N₂ 为源气体, 硅片为衬底成功地制备了 Fe, Mn 掺杂 AlN 薄膜. 利用 X 射线衍射和拉曼光谱研究了工作电流、靶基距离等工艺参数的改变对薄膜结构的影响. 利用扫描电子显微镜和能谱分析仪对薄膜的表面形貌和组成成分进行了分析. 利用振动样品磁强计在室温下对 Fe, Mn 掺杂 AlN 薄膜进行了磁性表征. Mn 掺杂 AlN 薄膜表现出顺磁性的原因可能是由于 Mn 掺杂浓度较高, 在沉积过程部分 Mn 以团簇的形式存在, 反铁磁性的 Mn 团簇减弱了体系的铁磁交换作用. Fe 掺杂 AlN 薄膜表现出室温铁磁性, 这可能是 AlFeN 三元化合物作用的结果. 随着 Fe 掺杂 AlN 薄膜中 Fe 原子浓度从 6.81% 增加到 16.17%, 其饱和磁化强度 M_s 由 $0.27 \text{ emu}\cdot\text{cm}^{-3}$ 逐渐下降到 $0.20 \text{ emu}\cdot\text{cm}^{-3}$, 而矫顽力 H_c 则由 57 Oe 增大到 115 Oe (1 Oe = 79.5775 A/m), 这一现象与 Fe 离子间距离的缩短及反铁磁耦合作用增强有关.

关键词: 直流磁控共溅射, 氮化铝薄膜, 结构, 磁性

PACS: 75.70.-i, 61.72.uj, 61.05.cp, 68.37.Hk

DOI: 10.7498/aps.62.217504

1 引言

稀磁半导体具有电子电荷与自旋两个自由度^[1], 兼具有半导体和磁性的性质, 在自旋发光二极管^[2]、自旋场效应晶体管^[3]、磁性随机存取存储器^[4]、量子计算机^[5]等电子自旋设备上具有潜在的应用而受到了科研工作者的关注. 但这类半导体的磁性来源一直是目前争议的焦点, 因此有必要进一步研究. 对于设备的实际应用来说, 要求稀磁半导体的居里温度高于室温, 自从 Ohno 等人发现了 MnGaAs 在温度为 110 K 时具有铁磁性^[6,7], 使得对居里温度高于室温材料的研究成为焦点, 一些室温铁磁性的稀磁半导体材料被报道, 如 NiFeO^[8]、BaFeO₃^[9]、SnMnO₂^[10]、ZnMnO^[11]、ZnCuO^[12]、InFeP^[13]等. Dietl 等人认为宽禁带半导体材料最有可能实现高的居里温度, 而 AlN 的禁带宽度达 6.2 eV^[14], 且具有高热导率、高硬度、高纯度以及良好的介电性质等一系列优异的光电特

性^[15-17], 使得金属掺杂 AlN 的研究受到了越来越多人的关注^[18-20]. 制备 AlN 薄膜的方法有许多, 磁控溅射法由于高的沉积速率、大面积基板上的均匀性、成分易控性等优点而被广泛地应用.

为了进一步研究 AlN 基磁性半导体的磁性及其机理, 本文利用直流磁控共溅射技术制备了 Fe、Mn 掺杂 AlN 薄膜, 并对样品薄膜的结构特性及磁性进行了研究.

2 实验

本文采用直流磁控共溅射技术, 衬底为硅片, 气源为 Ar 与 N₂ 的混合体, 靶材为 99.99% 的铝靶材、99.99% 的铁靶材、99.99% 的锰靶材, 工作压强都为 2 Pa. 硅衬底先在丙酮、酒精和去离子水分别超声波清洗 15 min, 最后用氮气吹干. 当真空室的气压为 $5 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 时, 开始通入混合气体, 并使气压上升为工作气压. 在溅射过程中衬底保持转动以使溅射均匀. 在沉积薄膜之前要将靶材预溅射

* 国家自然科学基金(批准号: 51272224, 11164031)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: grgu@ybu.edu.cn

‡ 通讯作者. E-mail: jiangln@jlu.edu.cn

10 min 左右, 以提高薄膜的结晶质量, 降低杂质对薄膜沉积的影响. 制备 Mn, Fe 掺杂 AlN 薄膜的详细实验条件列于表 1 和表 2 中.

利用 X 射线衍射和拉曼光谱对薄膜的择优生

长取向及结晶特性进行表征, 利用扫描电子显微镜和能谱分析仪对样品薄膜的表面形貌和组成成分进行分析, 利用振动样品磁强计对样品薄膜的磁性进行表征.

表 1 直流磁控共溅射法制备 Mn 掺杂 AlN 薄膜的实验参数

| 靶材 | 靶基距离/cm | Ar:N ₂ | 衬底温度/°C | 时间/h | Al 靶溅射电流/A | Mn 靶溅射电流/A |
|--------|---------|-------------------|---------|------|------------|------------|
| Al, Mn | 5, 5.2 | 67:33 | 300 | 2 | 0.3 | 0.3 |

表 2 直流磁控共溅射法制备 Fe 掺杂 AlN 薄膜的实验参数

| 靶材 | 靶基距离/cm | Ar:N ₂ | 衬底温度/°C | 时间/h | Al 靶溅射电流/A | Fe 靶溅射电流/A |
|--------|---------|-------------------|---------|------|------------|---------------|
| Al, Fe | 5 | 35:15 | 室温 | 2 | 0.4 | 0.1, 0.2, 0.4 |

3 结果与讨论

3.1 Mn 掺杂 AlN 薄膜

图 1 为不同靶基距离下制备的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的 XRD 图谱. 所有的薄膜都出现了六方相的 AlN (002) 衍射峰. 随着靶基距离的变小, (002) 衍射峰的峰值强度增强, 而半高宽变小. 此外薄膜出现了次相 Mn (511) 峰和 Mn (221) 峰, 这可能是由于 Mn 原子掺杂过程中的不均匀, 尤其当掺杂 Mn 的浓度较大时, 部分 Mn 容易以团簇形式存在, 所以图谱中发现了 Mn 的特征峰. 利用谢乐公式可以估算出晶粒尺寸 [21]

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta}, \quad (1)$$

其中 D 为晶粒尺寸, k 为谢乐常数, λ 为 X 射线的波长, β 为衍射峰的半高宽, θ 为衍射角. 当靶基距离为 5.0 cm 和 5.2 cm 时, 晶粒尺寸分别约为 33 nm, 17 nm. 这可能是由于靶基距离的增大, 增大了溅射原子与源气体原子的碰撞概率, 减小了溅射原子的平均动能, 沉积到衬底表面的粒子的表面迁移能较小, 较少的粒子到达衬底表面结晶而形成较小颗粒.

图 2 显示了在不同靶基距离下, 测量范围从 400 至 1500 cm^{-1} 的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的拉曼光谱图. 我们知道, 在材料中光传播方向与拉曼模式的存在和强度有关. 对于 AlN 晶体, 光的传播方向可以分为平行和垂直于 C 轴两组, 它们分别激发了 E_2 (high) 和 A_1 (TO) 模式 [22]. 通过对图 2 的观察, 我们发现薄膜仅在 650 cm^{-1} 附近处出现了 E_2 (high) 峰, 与 Luo 等人在 Si (111) 制备的 AlN 薄膜的 E_2 (high) 峰 (648 cm^{-1}) 相近 [23], 这表明薄膜为 C 轴取

向结晶. 该 E_2 (high) 峰与体材料 AlN 的 E_2 (high) 峰 (657 cm^{-1}) 比较, 向左移了 7 cm^{-1} , 这可能是由于在凝结过程中微观空隙的存在产生了大的张应力. 拉曼模式与薄膜的界面、晶粒细化、点缺陷有关, 通过对 E_2 (high) 峰的半高宽测量可知道 AlN 薄膜的结晶性 [24]. Kuball 等人报道过了 E_2 (high) 峰的半高宽为 3 cm^{-1} 的 AlN 块状晶体具有非常好的结晶质量 [25]. Perlin 等人报道了 E_2 (high) 峰的半高宽为 50 cm^{-1} 的 AlN 的结晶性恶化了 [26]. 通过计算得到了靶基距离为 5.0 cm, 5.2 cm 时对应的拉曼光谱图的 E_2 (high) 峰的半高宽分别约为 35 cm^{-1} , 40 cm^{-1} . 当靶基距离为 5.0 cm 时, E_2 (high) 峰更高更尖锐, 这表明靶基距离为 5.0 cm 时制备的薄膜为 C 轴取向结晶, 且结晶性更好. 这与图 1 的 XRD 相一致.

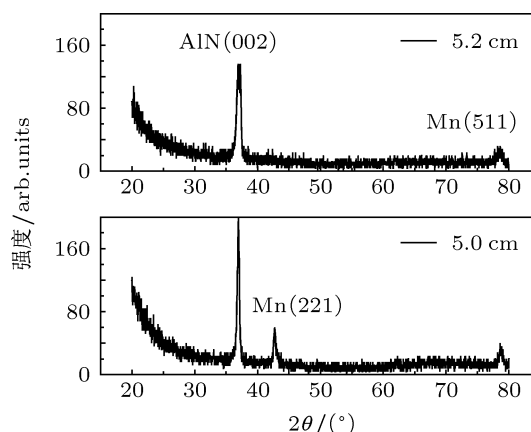


图 1 在不同靶基距离下制备的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的 XRD 图谱

图 3 为不同靶基距离下制备的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的 SEM 图. 从 SEM 图可以看出薄膜表面颗粒呈棱锥形态, 颗粒的平均直径大约为 50 nm, 小的颗

粒团聚在一起构成了大的颗粒,大颗粒的缝隙间填充着较小的颗粒.随着靶基距离增加,薄膜表面变得更粗糙,颗粒明显细化,均匀性变差.因此,制备 Fe 掺杂的 AlN 薄膜时,靶基距离固定为 5 cm.

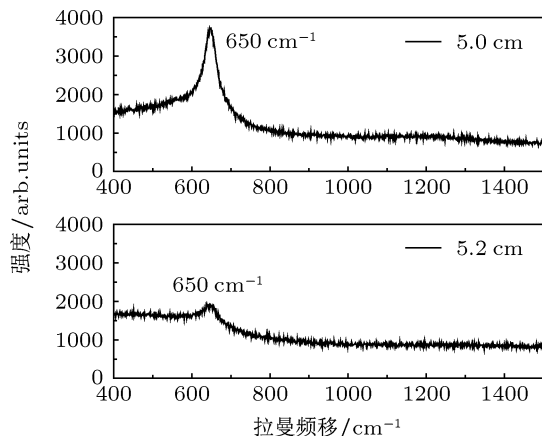


图 2 不同靶基距离下制备的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的拉曼光谱图

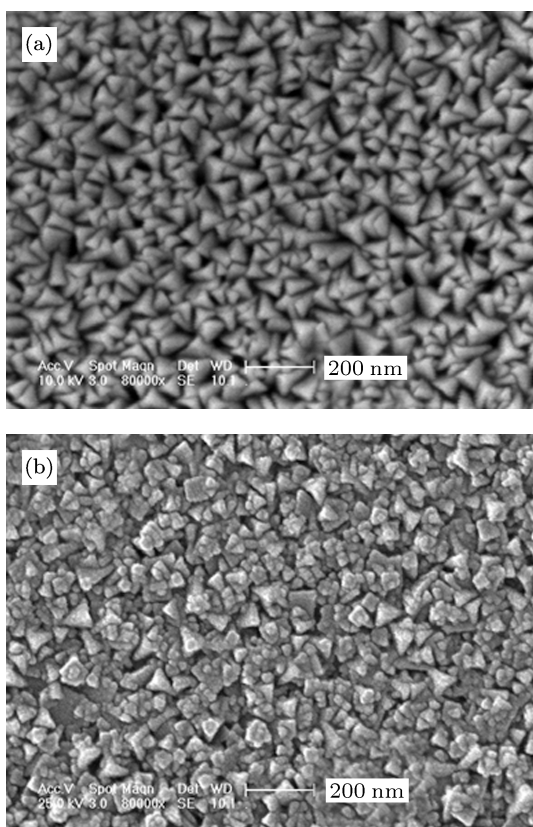


图 3 不同靶基距离下制备的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的 SEM 图 (a) 5.0 cm; (b) 5.2 cm

图 4 为不同靶基距离下制备的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的 $M-H$ 曲线图.由图 4 可知,薄膜样品在室温下没有观察到磁滞现象,这说明薄膜的居里温度低于室温,在室温下薄膜的磁性行为体现为顺磁性 [27]. Ham 等人报道过了 Mn 掺杂 AlN 薄膜中

当 Mn 原子浓度为 2.6% 时薄膜出现了室温铁磁性,当 Mn 原子浓度为 3% 时薄膜的居里温度为 5 K [28]. Song 等人报道了随着 Mn 原子浓度的增加, Mn 掺杂 AlN 薄膜的饱和磁化强度逐渐减小 [29],说明 Mn 原子浓度对薄膜磁性的重要性.本实验的 XRD 图谱中出现了 Mn 的次相,说明 Mn 的浓度较高,这是由于实验中 Mn 靶溅射功率较大造成的.顺磁性的出现可能是由于 Mn 掺杂浓度较高,部分 Mn 以团簇的形式存在,根据 Sharma 等人的研究结果 [30], Mn 团簇表现为反铁磁性,它减弱了体系的铁磁交换作用,从而使整个体系表现为室温顺磁性.

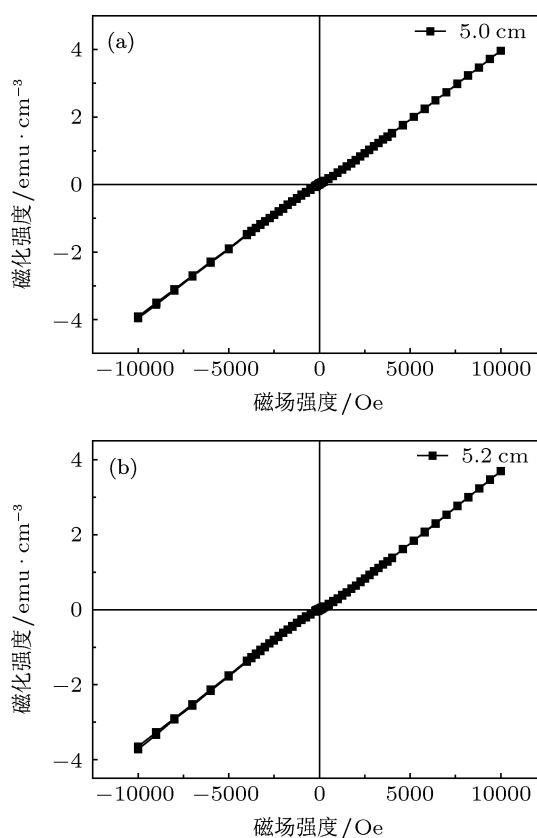


图 4 不同靶基距离下制备的 Mn 掺杂 AlN 薄膜的 $M-H$ 曲线 (a) 5.0 cm; (b) 5.2 cm

3.2 Fe 掺杂 AlN 薄膜

溅射电流对薄膜沉积速率的影响可以用以下公式 [31] 表示:

$$R = CYJ, \quad (2)$$

式中 R 为沉积速率, C 为与溅射装置有关的特征常数, J 为离子流密度, Y 为溅射系数.当溅射电流增大时,溅射原子的数量增加,即溅射系数 Y 增大,同时离子流密度 J 也会增加,说明参与溅射的离子数目增多,有更多的 Fe 原子被溅射,所以有利于沉积

速率的提高. 图 5 显示了不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜的 XRD 图. 薄膜样品中出现了 AlN 和硅的衍射峰. 当溅射电流为 0.1 A 时, 出现了 AlN (100) 择优取向; 当溅射电流增加至 0.2 A 时, (100) 衍射峰峰值强度增强, 半高宽减小; 当溅射电流为 0.4 A 时, (100) 衍射峰的峰值强度进一步增大. 这说明随着 Fe 靶溅射电流的增加, (100) 方向的择优取向增强. 利用谢乐公式估算出了 Fe 靶溅射电流分别为 0.1 A, 0.2 A 和 0.4 A 时, 对应薄膜的晶粒尺寸分别为 55.0 nm, 70.9 nm 和 69.9 nm, 随着 Fe 靶溅射电流的增加, 晶粒尺寸增大了. 这是由于在低的溅射电流下, Fe 靶材的溅射产额和吸附原子的动能较低, 沉积到衬底表面的 Fe 粒子的表面迁移能较小, 与 Al, N 的结晶性较差, 形成的颗粒较小; 在溅射电流较高时, 溅射动能增大, 能够形成连续表面的迁移能相应增加, 就有更多的 Fe 粒子到达衬底表面与 Al, N 结晶, 形成的颗粒较大. Fe 掺杂 AlN 薄膜的 XRD 图显示了样品薄膜在 (100) 方向择优生长, 且 Fe 靶溅射电流为 0.4 A 时制备的薄膜的结晶性最好.

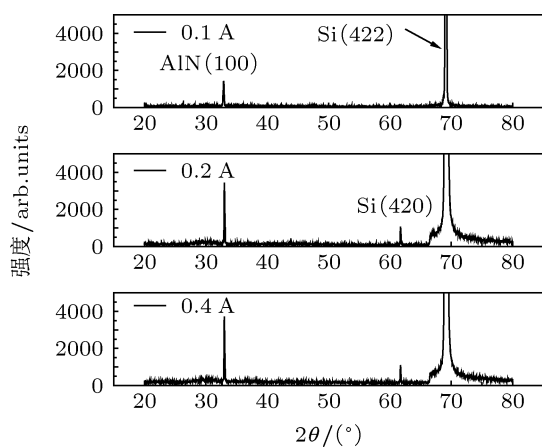


图 5 不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜的 XRD 图

利用公式

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta \quad (3)$$

和公式

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{4}{3} \left(\frac{h^2 + hk + k^2}{a^2} \right) + \frac{l^2}{c^2} \quad (4)$$

计算出薄膜的晶格常数 [32]. 式中 λ 为 X 射线的波长, θ 为衍射角, h 、 k 、 l 为米勒指数, d 为 (100) 面的晶面间距, a , c 为晶格常数. 当 Fe 靶溅射电流为 0.1 A, 0.2 A 和 0.4 A 时, 对应的晶格常数 a 的大小分别为 0.3140 nm, 0.3128 nm 和 0.3130 nm, 所有

样品的晶格常数 a 都比标准体材料 AlN 的晶格常数 a (0.3112 nm) 的大, 这可能是由于 Fe^{+3} 离子代替了 Al^{+3} 离子的位置, 而 Fe^{+3} 离子半径 (0.064nm) 比 Al^{+3} 离子半径 (0.053 nm) 大, 在替代处会形成结构上的缺陷, 破坏了原有原子间相互作用的平衡, 导致晶格常数变大. 在 Ta 掺杂 AlN 中出现相似的报告 [33].

图 6 为利用扫描电子显微镜观察在不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜的 SEM 图. 从 SEM 图可以看出薄膜表面由不规则状颗粒组成. 当 Fe 靶溅射电流为 0.1 A 时, 薄膜表面光滑, 颗粒

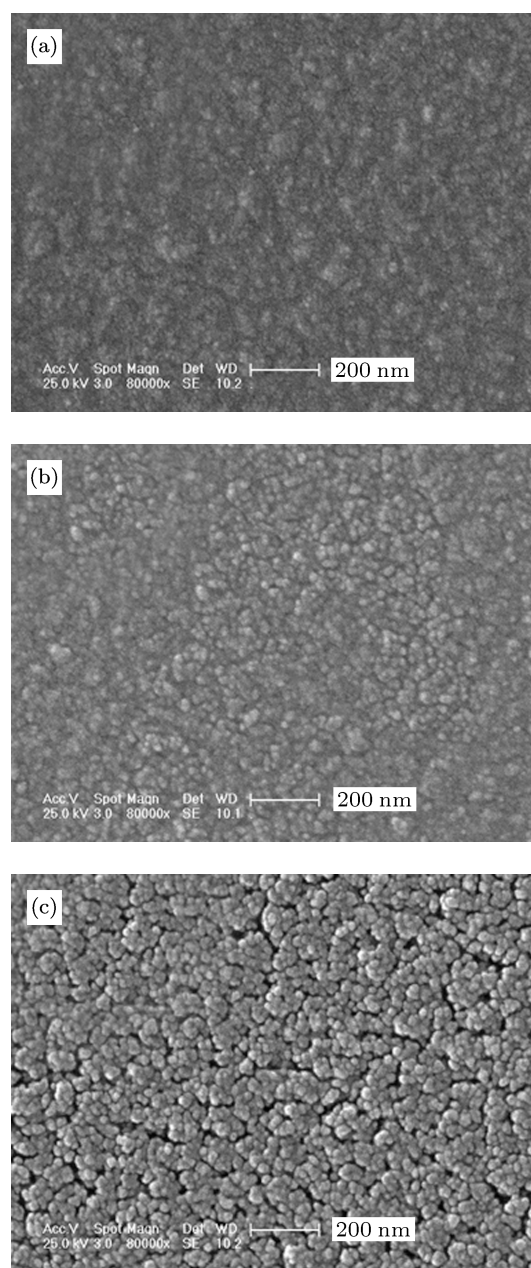


图 6 不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜的 SEM 图 (a) 0.1 A; (b) 0.2 A; (c) 0.4 A

之间无明显的间隙;当 Fe 靶溅射电流为 0.2 A 时,薄膜表面颗粒起伏较大,表面比较粗糙;此后随着 Fe 靶溅射电流的进一步增加,薄膜表面越来越粗糙,且晶粒之间的间隙更明显,这是因为随着 Fe 靶溅射电流的增加使其相应的功率增大了,导致靶材发热量增大及溅射粒子动能增大,其表面粗糙度也因较大动能的粒子与已生长的薄膜或未及扩散的团簇碰撞而逐渐增大。

图 7 显示了不同 Fe 靶溅射下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜的 EDS 图。图中出现了 N, O, Fe, Al, Si, Au 的特征峰,其中 Si 元素来自于硅衬底, Au 元素来源于 EDS 谱测量前在样品表面喷的金, O 元素来自于样品的氧污染。表 3 为不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜中 N, Fe, Al 的元素相对含量

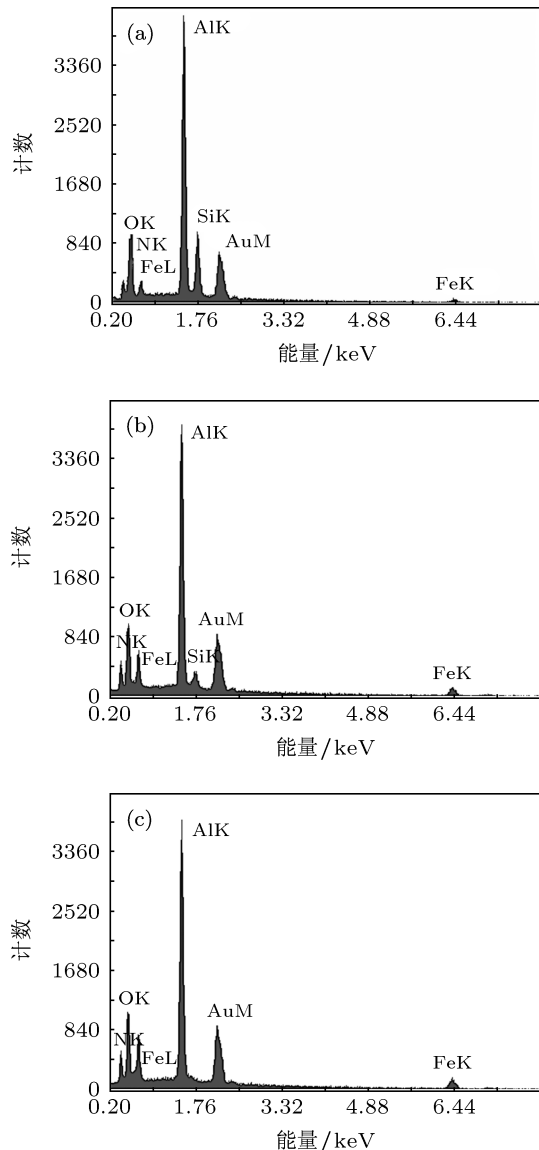


图 7 不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜的 EDS 图 (a) 0.1 A; (b) 0.2 A; (c) 0.4 A

量,从表中可以看出,当 Fe 靶溅射电流为 0.1 A, 0.2 A 和 0.4 A 时, Fe 掺杂 AlN 薄膜中 Fe 原子浓度分别为 6.81%, 13.49% 和 16.17%。说明随着 Fe 靶溅射电流的增大, Fe 原子的掺杂浓度逐渐增加。

表 3 不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜中 N, Fe, Al 的元素相对含量

| Fe 靶溅射电流/A | 元素 | 质量比/% | 原子比/% |
|------------|----|-------|-------|
| 0.1 | N | 14.83 | 26.94 |
| | Fe | 14.94 | 6.81 |
| | Al | 70.23 | 66.25 |
| 0.2 | | 100 | 100 |
| | N | 16.40 | 31.39 |
| | Fe | 28.12 | 13.49 |
| 0.4 | Al | 55.48 | 55.12 |
| | | 100 | 100 |
| | N | 15.71 | 31.00 |
| | Fe | 32.68 | 16.17 |
| | Al | 51.61 | 52.83 |
| | | 100 | 100 |

图 8 给出不同 Fe 靶溅射电流下制备的 Fe 掺杂 AlN 薄膜的 *M-H* 曲线。从图中可以看出所有样品均具有磁滞现象,说明掺杂后的样品具有室温铁磁性。它的这种室温铁磁性可能是由于铁掺杂到晶格中,代替一部分原子或产生了铁的次相,例如 Fe 和 Fe-N 团簇。在室温下具有铁磁性,是由于一定数量的次相的存在和杂质浓度足够大^[34,35]。次相的数量和大小是可以由 XRD 测量出来的,但从图 5 的 XRD 图谱中只观察到了 AlN 的衍射峰,所以次相 (Fe-N 和 Fe) 对铁磁性的贡献是可以忽略的。因此对薄膜的室温铁磁性贡献最大的就是 AlFeN。随着 Fe 靶溅射电流的增大, Fe 掺杂 AlN 薄膜的饱和磁化强度 M_s 由 $0.27 \text{ emu}\cdot\text{cm}^{-3}$ 逐渐减小到 $0.20 \text{ emu}\cdot\text{cm}^{-3}$, 而矫顽力 H_c 则由 57 Oe 增大到 115 Oe, 出现这种现象可能是由于随着掺杂浓度的增加, 出现相邻磁性 Fe 离子的概率增大, 磁性 Fe 离子间的反铁磁耦合作用增加, 它不对薄膜的铁磁性产生贡献, 导致了薄膜铁磁性的减弱。

4 结论

本文对 AlN 薄膜分别进行了磁性金属 Fe, Mn 的掺杂。利用直流磁控共溅射技术, 在 Si (100) 衬底上分别沉积了 Fe, Mn 掺杂 AlN 薄膜。由 XRD 图谱可知, Mn 掺杂 AlN 薄膜的择优取向为 (002) 方向,

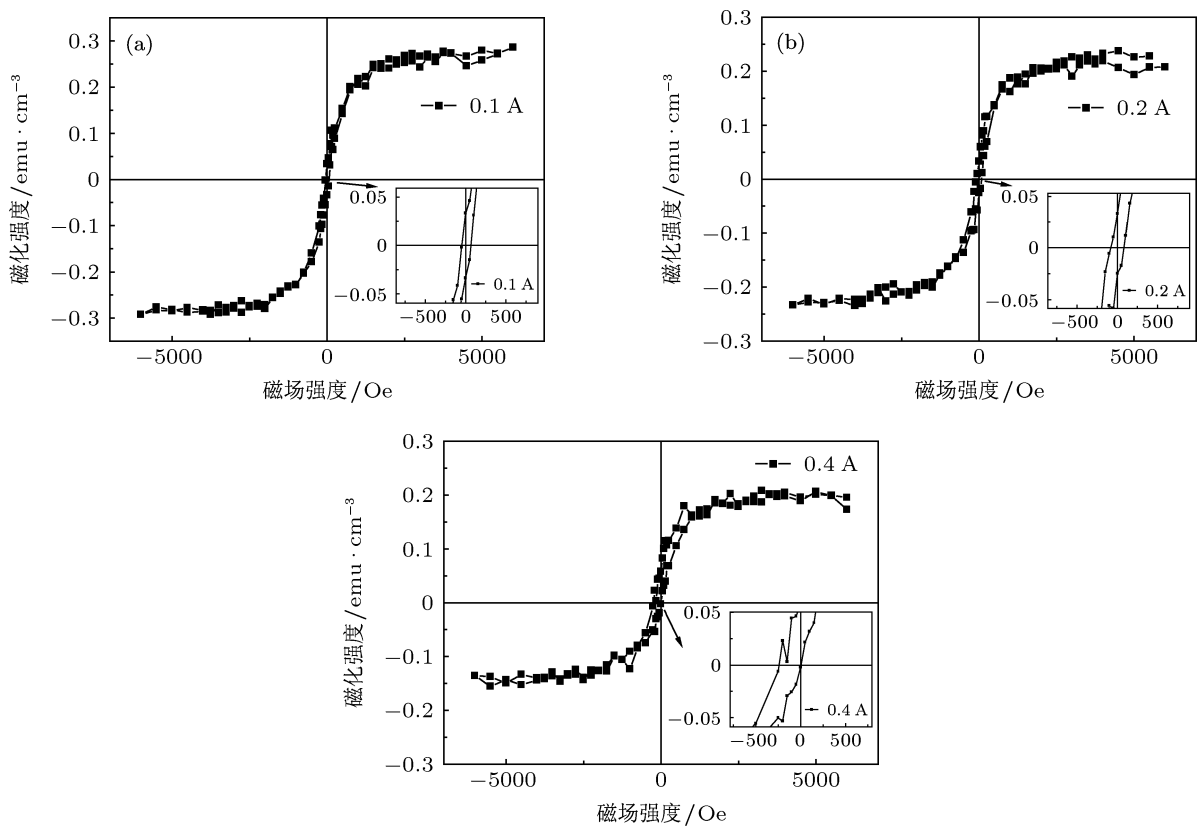


图8 不同Fe靶溅射电流下制备的Fe掺杂AlN薄膜的M-H曲线 (a) 0.1 A; (b) 0.2 A; (c) 0.4 A

并结合拉曼光谱图,当靶基为5.0 cm时所制备的薄膜的沉积效果更好、晶粒尺寸更大,但发现了Mn的衍射峰,可能是Mn原子掺杂过程中的不均匀,尤其当掺杂Mn的浓度较大时,部分Mn容易以团簇形式存在;磁性测量表明,Mn掺杂AlN薄膜具有顺磁性,这是因为掺杂Mn的浓度较大,在沉积过程部分Mn以团簇的形式存在,反铁磁性的Mn团簇减弱了体系的铁磁交换作用。Fe掺杂AlN薄膜的XRD显示了薄膜在(100)方向择优生长,且Fe溅射

电流为0.4 A时所制备的薄膜的沉积效果最好;磁滞回线分析表明,Fe掺杂AlN薄膜具有室温铁磁性,这可能是AlFeN三元化合物作用的结果。随着Fe靶溅射电流的增加,Fe掺杂AlN薄膜中Fe原子浓度从6.81%增加到16.17%,其饱和磁化强度 M_s 由0.27 $\text{emu}\cdot\text{cm}^{-3}$ 减小到0.20 $\text{emu}\cdot\text{cm}^{-3}$,而矫顽力 H_c 则由57 Oe增大到115 Oe,这一现象与Fe离子间距离的缩短及反铁磁耦合作用增强有关。

[1] Ohno H 1998 *Science* **281** 951
 [2] Ohno Y, Young D K, Beschoten B, Matsukura F, Ohno H, Awschalom D D 1999 *Nature* **402** 790
 [3] Datta S, Das B 1990 *Appl. Phys. Lett.* **56** 665
 [4] Prinz G A 1998 *Science* **282** 1660
 [5] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, Daughton J M, Molnar S V, Roukes M L, Chtchelkanova A Y, Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
 [6] Ohno H, Shen A, Matsukura F, Oiwa A, Endo A, Katsumoto S, Iye Y 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 363
 [7] Beschoten B, Crowell P A, Malajovich I, Awschalom D D, Matsukura F, Shen A, Ohno H 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 3073
 [8] Weng W X, Yan W S, Sun Z H, Yao T, Guo Y X, Wang F, Wei S Q, Zhang G B, Xu P S 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5788 (in Chinese) [翁卫祥, 闫文盛, 孙治湖, 姚涛, 郭玉献, 王峰, 韦世强, 张国斌, 徐彭寿 2008 物理学报 **57** 5788]
 [9] Liu Y Y, Liu F M, Shi X, Ding P, Zhou C C 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7274 (in Chinese) [刘妍妍, 刘发民, 石霞, 丁芃, 周传仓 2008 物理学报 **57** 7274]
 [10] Kuang A L, Liu X C, Lu Z L, Ren S K, Liu C Y, Zhang F M, Du Y W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2934 (in Chinese) [匡安龙, 刘兴翀, 路忠林, 任尚坤, 刘存业, 张凤鸣, 都有为 2005 物理学报 **54** 2934]
 [11] Liu X C, Zhang H W, Zhang T, Chen B Y, Chen Z Z, Song L X, Shi E W 2008 *Chin. Phys. B* **17** 1371
 [12] Ran C J, Yang H L, Wang Y K, Hassan F M, Zhou L G, Xu X G, Jiang Y 2013 *Chin. Phys. B* **22** 067503
 [13] Dong S, Zhu F 2012 *Chin. Phys. B* **21** 097502
 [14] Hasegawa F, Takahashi T, Kubo K, Nannichi Y 1987 *Jpn. J. Appl. Phys.* **26** 1555

- [15] Sardar K, Rao C N R 2005 *Solid State Sciences* **7** 217
- [16] Gao X Q, Guo Z Y, Cao D X, Zhang Y F, Sun H Q, Deng B 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3418 (in Chinese) [高小奇, 郭志友, 曹东兴, 张宇飞, 孙慧卿, 邓贝 2010 物理学报 **59** 3418]
- [17] Kim H W, Kebede M A, Kim H S 2009 *Applied Surface Science* **255** 7221
- [18] Li H, Bao H Q, Song B, Wang W J, Chen X L 2008 *Solid State Communications* **148** 406
- [19] Gu L, Wu S Y, Liu H X, Singh R K, Newman N, Smith D J 2005 *J. Magn. Magn. Mater.* **290** 1395
- [20] Gao X D, Jiang E Y, Liu H H, Mi W B, Li Z Q, Wu P, Bai H L 2007 *Applied Surface Science* **253** 5431
- [21] Gupta R K, Ghosh K, Kahol P K 2009 *Applied Surface Science* **255** 8926
- [22] Chen D, Xu D, Wang J J, Zhao B, Zhang Y F 2008 *Thin Solid Films* **517** 986
- [23] Luo M C, Wang X L, Li J M, Liu H X, Wang L, Sun D Z, Zeng Y P, Lin L Y 2002 *Journal of Crystal Growth* **244** 229
- [24] Lughy V, Clarke D R 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 241911
- [25] Kuball M, Hayes J M, Prins A D, Uden N W A, Dunstan D J, Shi Y, Edgar J H 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 724
- [26] Perlin P, Polian A, Suski T 1993 *Phys. Rev. B* **47** 2874
- [27] Singhal R K, Dhawan M, Kumar S, Dolia S N, Xing Y T, Saitovitch E 2009 *Physica B* **404** 3275
- [28] Ham M H, Yoon S, Park Y, Myoung J M 2004 *Journal of Crystal Growth* **271** 420
- [29] Song Y Y, Quang P H, Pham V T, Lee K W, Yu S C 2005 *J. Magn. Magn. Mater.* **290** 1375
- [30] Sharma P, Gupta A, Rao K V, Owens F J, Sharma R, Ahuja R, Guillen J M, Johansson B, Gehring G A 2003 *Nature Materials* **2** 673
- [31] Li X D, Wang X Y, Jiang X Q, Du Y C 1994 *Vacuum Deposition Technology* (Hangzhou: Zhejiang University Press) p109 (in Chinese) [李学丹, 万学英, 姜祥祺, 杜元成 1994 真空沉积技术 (杭州: 浙江大学出版社) 第 109 页]
- [32] Chen M, Bai X D, Huang R F, Wen L S 2000 *Chinese Journal of Semiconductors* **21** 394 (in Chinese) [陈猛, 白雪冬, 黄荣芳, 闻立时 2000 半导体学报 **21** 394]
- [33] Liu H Y, Zeng F, Tang G S, Pan F 2013 *Applied Surface Science* **270** 225
- [34] Park W K, Ortega-Hertogs R J, Moodera J S, Punnoose A, Seehra M S 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 8093
- [35] Ueda K, Tabata H, Kawai T 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 988

Study on preparation and characteristics of Fe- and Mn-doped AlN thin films*

Lan Lei-Lei¹⁾ Hu Xin-Yu¹⁾ Gu Guang-Rui^{1)†} Jiang Li-Na^{2)‡} Wu Bao-Jia¹⁾

1) (Department of Physics, College of Science, Yanbian University, Yanji 133002, China)

2) (State Key Laboratory for Superhard Materials, Jilin University, Changchun 130012, China)

(Received 3 July 2013; revised manuscript received 7 August 2013)

Abstract

Fe- and Mn-doped AlN thin films were prepared on Si substrates by direct current (DC) magnetron co-sputtering method in the atmosphere of Ar and N₂ mixture. The influences of sputtering currents and the target to substrate distance on the structure of the films were investigated by X-ray diffraction and Raman spectroscopy, respectively. Surface morphology and composition were studied by scanning electron microscope (SEM) with an energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS) attachment. The magnetism of Mn- and Fe-doped AlN films was measured by vibrating sample magnetometer (VSM) at room temperature (RT). Processing of the Mn-doped AlN films produces Mn clusters in the samples. Due to the presence of the antiferromagnetism Mn clusters, ferromagnetism is either suppressed or disappears. The Fe-doped AlN films show ferromagnetism at RT, which should arise from the AlFeN ternary alloy. With the increase of the Fe target sputtering current, the Fe concentration is increased from 6.81 at.% to 16.17at.%; the saturation magnetization M_s is reduced from 0.27 emu·cm⁻³ to 0.20 emu·cm⁻³, and the coercive force H_c is increased from 57 Oe to 115 Oe, this is because the separation of Fe ions get shorter and the antiferromagnetic coupling is enhanced.

Keywords: dc magnetron co-sputtering, AlN thin films, structure, magnetism

PACS: 75.70.-i, 61.72.uj, 61.05.cp, 68.37.Hk

DOI: 10.7498/aps.62.217504

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51272224, 11164031).

† Corresponding author. E-mail: grgu@ybu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: jiangln@jlu.edu.cn