



一种具有“1111”型结构的新型稀磁半导体 $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$

张浩杰 张茹菲 傅立承 顾轶伦 智国翔 董金瓯 赵雪芹 宁凡龙

$(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$: A novel 1111-type diluted magnetic semiconductor

Zhang Hao-Jie Zhang Ru-Fei Fu Li-Cheng Gu Yi-Lun Zhi Guo-Xiang Dong Jin-Ou Zhao Xue-Qin
Ning Fan-Long

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 107501 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201966

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201966>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

N型稀磁半导体 $Ge_{0.96x}Bi_xFe_{0.04}Te$ 薄膜的磁电性质研究

Magnetic and electronic transport properties in n-type diluted magnetic semiconductor $Ge_{0.96x}Bi_xFe_{0.04}Te$ film

物理学报. 2019, 68(10): 107501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190019>

自旋和电荷分别掺杂的新一类稀磁半导体研究进展

Recent progress of a new type diluted magnetic semiconductors with independent charge and spin doping

物理学报. 2019, 68(16): 167502 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191114>

稀土永磁体及复合磁体反磁化过程和矫顽力

Magnetization reversal and coercivity in rare-earth permanent magnets and composite magnets

物理学报. 2019, 68(17): 177501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190364>

利用Pr70Cu30晶界扩散改善烧结钕铁硼废料矫顽力的研究

Coercivity enhancement of waste Nd-Fe-B magnets by Pr70Cu30 grain boundary diffusion process

物理学报. 2018, 67(6): 067502 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172551>

II-VI族稀磁半导体微纳结构中的激子磁极化子及其发光

Excitonic magnetic polarons and their luminescence in II-VI diluted magnetic semiconductor micro-nanostructures

物理学报. 2019, 68(1): 017101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181211>

磁性材料磁有序的分子场来源

Molecular field origin for magnetic ordering of magnetic materials

物理学报. 2017, 66(6): 067501 <https://doi.org/10.7498/aps.66.067501>

一种具有“1111”型结构的新型稀磁半导体 (La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO*

张浩杰¹⁾ 张茹菲¹⁾ 傅立承¹⁾ 顾轶伦¹⁾ 智国翔¹⁾
董金瓿¹⁾ 赵雪芹¹⁾ 宁凡龙^{1)2)†}

1) (浙江大学物理学系, 浙江省量子技术与器件重点实验室, 杭州 310027)

2) (南京大学人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

(2020年11月22日收到; 2020年12月23日收到修改稿)

利用高温固相反应法, 成功合成了一种新型块状稀磁半导体 (La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO ($x = 0.025, 0.05, 0.075, 0.1$). 通过 (La³⁺, Sr²⁺)、(Zn²⁺, Mn²⁺) 替换, 在半导体材料 LaZnSbO 中分别引入了载流子与局域磁矩. 在各掺杂浓度的样品中均可观察到铁磁有序相转变, 当掺杂浓度 $x = 0.1$ 时, 其居里温度 T_c 达到了 27.1 K, 2 K 下测量获得的等温磁化曲线表明其矫顽力为 5000 Oe. (La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO 与“1111”型铁基超导体母体 LaFeAsO、“1111”型反铁磁体 LaMnAsO 具有相同的晶体结构, 且晶格参数差异很小, 为制备多功能异质结器件提供了可能的材料选择.

关键词: 稀磁半导体, 居里温度, 磁有序, 矫顽力

PACS: 75.50.Pp, 73.40.Lq, 64.70.kg

DOI: 10.7498/aps.70.20201966

1 引言

稀磁半导体 (diluted magnetic semiconductors DMS) 兼具半导体和铁磁体的特性, 在自旋电子器件领域具有广阔的应用前景^[1,2]. 在过去的 20 年中, III-V 族半导体 (Ga, Mn)As 中铁磁有序的出现引起了人们极大的兴趣^[3,4]. 目前, 当 Mn 的掺杂量为 12% 时, (Ga, Mn)As 具有最高的居里温度, 为 200 K^[5,6]. 对于 (Ga, Mn)As 稀磁半导体, 通过 (Ga³⁺, Mn²⁺) 替换将 Mn 原子掺入 GaAs 中, 同时也引入了载流子和局域磁矩, 因此很难独立研究二者在铁磁机制中的单独作用. 同时, 一些 Mn 原子还会进入间隙位置, 使得研究更加困难.

另一方面, 尽管 (Ga, Mn)As 铁磁有序的起源尚有争议, 但普遍认为是载流子与磁性离子之间的相互作用导致铁磁有序的产生^[2].

近年来, 一系列与铁基超导体具有相似结构的新型块材稀磁半导体相继出现^[19], 如“111”型 Li(Zn, Mn)As^[20,21], “1111”型 (La, Ca)(Zn, Mn)SbO^[10]、SrF(Zn, Cu, Mn)Sb^[15], “122”型 (Ba, K)(Zn, Mn)₂As₂^[22]、(Ca, Na)(Zn, Mn)₂Sb₂^[23]. 其中, (Ba, K)(Zn, Mn)₂As₂ 稀磁半导体的居里温度最高, 已经达到了 230 K^[24]. 在表 1 中, 我们列出“1111”型稀磁半导体及具有代表性的超导体、反铁磁体和它们的相变温度. 有研究表明, 较高的居里温度容易形成于窄带隙的稀磁半导体之中^[25]. 与 III-V 族稀磁半导体相比, 该系列稀磁半导体具有明显的优势.

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2016YFA0300402)、国家自然科学基金 (批准号: 12074333) 和浙江省重点研发计划 (批准号: 2021C01002) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: ningfl@zju.edu.cn

表 1 “1111”型稀磁半导体、超导体、反铁磁体的相变温度

Table 1. The phase transition temperature of 1111-type dilute magnetic semiconductors, superconductors and antiferromagnets.

| 类型 | 结构 | 化学式 | 相变温度/K |
|-------|------------|---------------------------------------|-------------|
| 稀磁半导体 | $(P4/nmm)$ | $(La, Ca)(Zn, Mn)AsO$ ^[7] | 30 (居里温度) |
| | | $(La, Sr)(Zn, Mn)AsO$ ^[8] | 30 |
| | | $(La, Ba)(Zn, Mn)AsO$ ^[9] | 40 |
| | | $(La, Ca)(Zn, Mn)SbO$ ^[10] | 40 |
| | | $La(Zn, Mn, Cu)AsO$ ^[11] | 8 |
| | | $La(Zn, Mn, Cu)SbO$ ^[12] | 15 |
| | | $(La, Sr)(Cu, Mn)SO$ ^[13] | 200 |
| | | $(Ba, K)F(Zn, Mn)As$ ^[14] | 30 |
| | | $SrF(Zn, Mn, Cu)Sb$ ^[15] | 40 |
| 超导体 | $(P4/nmm)$ | $LaFeAs(O, F)$ ^[16] | 26 (超导转变温度) |
| 反铁磁体 | $(P4/nmm)$ | $LaMnAsO$ ^[17] | 317 (奈尔温度) |
| | | $LaMnSbO$ ^[18] | 255 K |

一方面,它们是在热平衡条件下通过高温固相反应法制备获得的,样品中的缺陷相对较少;同时, Mn^{2+} 替代 Zn^{2+} 为等价掺杂,具有较高的化学固溶度. 另一方面,在这类新型稀磁半导体中,自旋和载流子是分离地注入到半导体中的,从而可以分别研究它们在形成铁磁有序过程中的作用. 此外,块材样品也便于利用诸如核磁共振 (NMR), μ 子自旋共振 (μ SR) 和中子散射^[26–28] 等微观实验手段进行表征.

在本研究工作中,通过将 Sr 和 Mn 分别掺入窄带隙半导体 $LaZnSbO(0.3\text{ eV})$ ^[29] 的 La 位和 Zn 位,我们成功地制备一种全新的、具有 ZrCuSiAs 型四方晶相的“1111”型稀磁半导体 $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$. $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ 与“1111”型铁基超导体母体 $LaFeAsO$ ^[30,31]、“1111”型反铁磁体 $LaMnAsO$ 具有相同的晶体结构. 在掺杂浓度 $x = 0.1$ 时其居里温度达到了 27.1 K, 等温磁化测量表明其矫顽力为 5000 Oe (1 Oe = 79.5775 A/m). 电阻测量结果表明,样品在居里温度 T_c 以下仍然表现为半导体行为.

2 实验过程

根据 $LaZnSbO$ 母相的制备方法,多晶样品 $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ 通过高温固相反应法制备而成. 第一步,利用高精度电子天平,按照名义上的化学配比称取各高纯度的化学材料 La (99.99%, Aladdin), Mn (99.999%, Aladdin), Sb

(99.99%, Alfa Aesar), SrO (99.99%, Aladdin), ZnO (99.99%, Aladdin). 第二步,将称重完成的初始材料放入玛瑙研钵中进行充分研磨,研磨混合均匀后倒入刚玉套内,并将刚玉套置于石英管中,再进行抽真空操作后密封. 第三步,将密封完的样品放入高温箱式炉中,在 900 °C 下烧结 24 h,得到中间产物. 第四步,将烧结完的中间产物按照第二步的方法进行研磨、压片、真空密封. 第五步,将样品放入高温箱式炉中,在 1100 °C 下烧结 24 h,随后自然冷却,得到最终产物. 除抽真空密封外,上述所有操作均在充满高纯度氩气 (O_2 和 H_2O 的百分比为 1×10^{-7}) 的手套箱中进行.

$(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ 的晶体结构是利用配有单色 Cu-K α 射线的 X 射线粉末衍射仪 (型号: Model EMPYREAN) 在室温下测量获得. 直流磁化强度的测量是在 Quantum Design 公司设计的超导量子干涉仪 (SQUID) 中的磁测量系统 (MPMS) 上完成. 电阻是利用四引线法测量得到的.

3 结果和讨论

图 1(a) 为 $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ 的 X 射线衍射分析结果,该系列样品很好地符合了 ZrCuSiAs 型四方晶相的结构 (group $P4/nmm$), 如图 1(b) 所示. 随着掺杂量的增加,当 $x \geq 0.075$, 样品中观察到少量的 ZnSb 杂相,该杂相在高掺杂比的 $(La_{1-x}Ca_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ ^[10] 中亦能观察到. 但由于 ZnSb 是一种顺磁性材料,故其对接下来讨论的铁磁性并

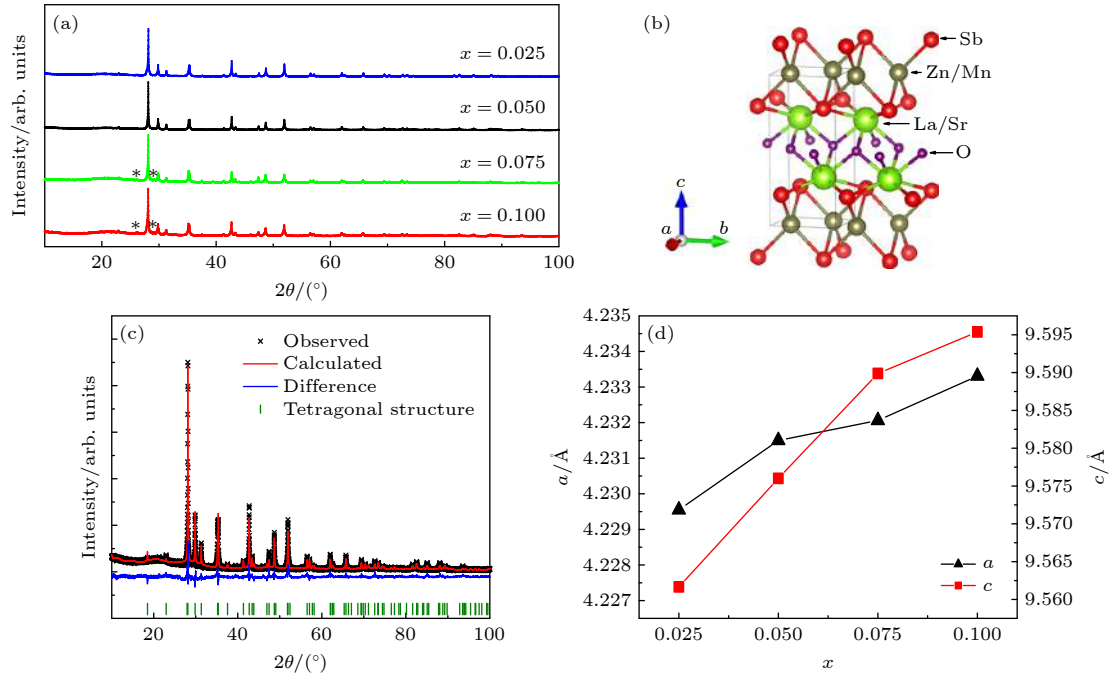


图 1 (a) $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 的 X 射线衍射图, 杂质 ZnSb 由 (*) 标注; (b) LaZnSbO 的晶体结构; (c) $(\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05})(\text{Zn}_{0.95}\text{Mn}_{0.05})\text{SbO}$ 的 Rietveld 精修结果; (d) $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 的晶格常数

Fig. 1. (a) The X-ray diffraction patterns for $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ ($x = 0.025, 0.05, 0.075, 0.1$); Trace of impurities ZnSb (*) are marked; (b) the crystal structure of LaZnSbO ; (c) the Rietveld refinement of $(\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05})(\text{Zn}_{0.95}\text{Mn}_{0.05})\text{SbO}$; (d) the lattice parameters of $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$.

不会产生影响. 我们利用开源软件 GSAS-II 对 $(\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05})(\text{Zn}_{0.95}\text{Mn}_{0.05})\text{SbO}$ 样品进行 Rietveld 结构精修^[32], 如图 1(c) 所示. 所得的加权可靠因子 R_{wp} 为 13.1%, 表明制备所得样品的质量较好. 通过 Rietveld 结构精修, 获得了晶格参数 a 和 c , 如图 1(d) 所示. 当掺杂量 $x = 0.025$ 时, 样品的晶格参数 $a = 4.22955 \text{ \AA}$, $c = 9.56166 \text{ \AA}$. 随着 Sr 和 Mn 掺杂量的增加, 晶格参数 a 和 c 均单调增加, 当 $x = 0.10$, 晶格参数 a 增大至 4.2331 \AA , 晶格参数 c 增大至 9.59537 \AA , 表明 Sr、Mn 原子分别成功地掺杂至母相 LaZnSbO 的 La 位和 Zn 位.

在图 2(a) 中, 我们展示了 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 系列样品在 100 Oe 外加磁场下测得的场冷 (FC) 和零场冷 (ZFC) 直流磁化曲线. 我们可以明显地观察到样品的磁化强度在 30 K 和 40 K 之间急剧增加, 表明样品在低温下发生了顺磁相到铁磁相的转变; 且随着掺杂浓度的增加, 样品在温度为 2 K 下饱和磁矩值逐渐增大. 在只掺杂 Mn 的样品 $\text{La}(\text{Zn}_{0.95}\text{Mn}_{0.05})\text{SbO}$ ^[12] 中, Mn 替代 Zn 只引入了局域磁矩, 并未引入载流子, 因而在整个温区内均表现为顺磁行为, 没有观察到铁磁有序信号. 而当 Zn 位掺入 Mn 引入局域磁矩的同时, 在 La 位

掺入 Sr 引入载流子, 我们在样品中就观察到了铁磁有序转变. 由此可以看出, 铁磁性的产生跟载流子和磁矩的相互作用有直接关系.

我们将居里温度 T_c 取为场冷 (FC) 磁化强度对温度的一阶导数 (dM/dT) 极小值处所对应的温度, 如图 2(c) 中箭头所示. 可以看到, 随着掺杂浓度 x 的增加, T_c 逐渐升高. 当 $x = 0.025$ 时, 样品的居里温度 $T_c = 10.0 \text{ K}$; 而当 x 增大至 0.10 时, 样品的 T_c 达到了最大值, 为 27.1 K . 在 T_c 以上的高温部分, 样品处于顺磁态, 其磁化率符合居里-外斯定律 $\chi = C/(T - \theta) + \chi_0$, 其中 θ 为外斯温度, C 为居里常数. 利用该定律, 我们绘制了 $1/(\chi - \chi_0)$ 与温度 T 的关系曲线, 由 $1/(\chi - \chi_0)$ 直线部分与 x 轴的交点可得到外斯温度 θ , 如图 2(b) 所示. 可以发现, 随着掺杂浓度的增加, θ 逐渐趋于较高的温度. 根据公式 $C = N\mu_0\mu_{\text{eff}}^2/3k_B$, 我们可以通过拟合获得居里常数 C , 并计算得到有效磁矩. 如表 2 所示, 在不同掺杂浓度的情况下, 其相应的有效磁矩 M_{eff} 分别为 4.32, 4.68, 4.84, 4.26 μ_B/Mn , 接近 Mn^{2+} 处于高自旋状态 ($S = 5/2$) 下的有效磁矩 $5.9 \mu_B/\text{Mn}$. 我们可以看到, 当 $x \leq 0.075$ 时, 随着掺杂浓度的增加, 样品的有效磁矩 M_{eff} 逐渐增

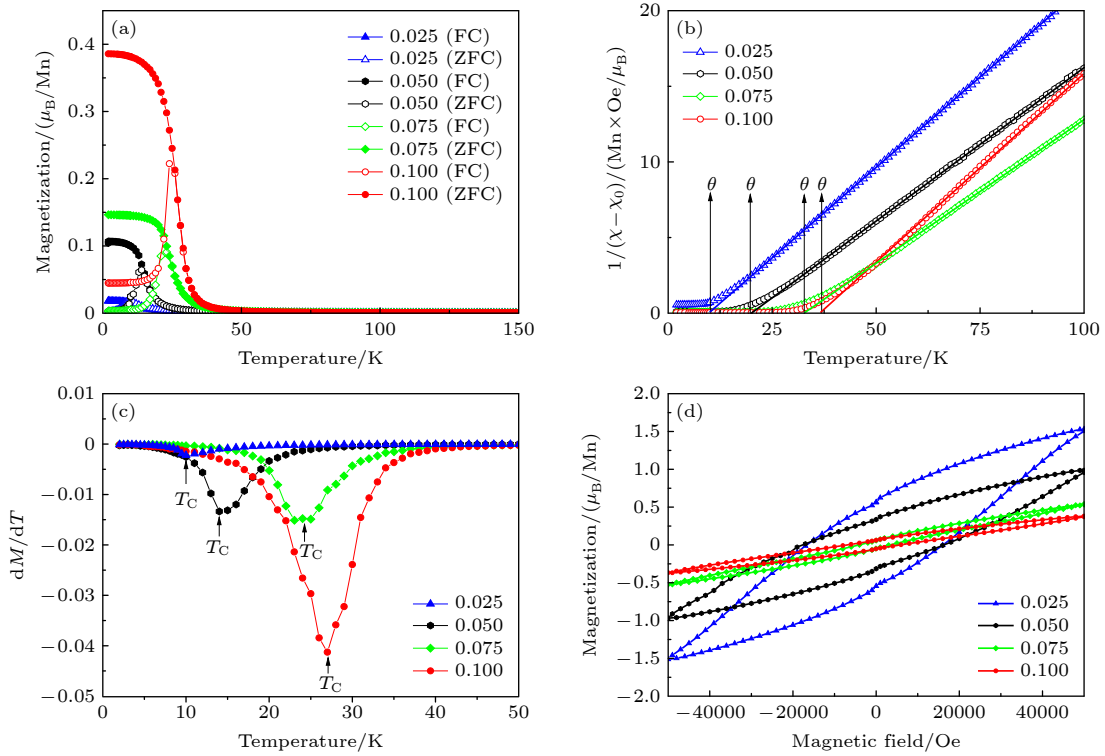


图 2 (a) $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 分别在 100 Oe 的场冷和零场冷测量条件下的直流磁化强度; (b) $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 拟合后的 $1/(\chi - \chi_0)$ 结果, 箭头标注为外斯温度 θ ; (c) $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 磁化强度与温度之间的一阶导数关系 (dM/dT), 箭头标注为样品的居里温度 T_C ; (d) 温度为 2 K 下的等温磁化强度曲线

Fig. 2. (a) The temperature dependence of DC magnetization for $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ measured under field-cooling (FC) and zero-field-cooling(ZFC) with external field of 100 Oe; (b) the plot of $1/(\chi - \chi_0)$ versus T for $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$, and the arrow marked the Weiss Temperature θ ; (c) the derivative of moment versus temperature for $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$, and the arrow marked the Curie Temperature; (d) iso-thermal magnetization for $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ at 2 K.

表 2 居里温度 T_c 、外斯温度 θ 、有效磁矩 M_{eff} 、矫顽力 H_c

Table 2. The Curie temperature T_c , the Weiss temperature θ , the effective moment M_{eff} and the coercive field H_c .

| 掺杂浓度 x | T_c / K | θ / K | $M_{\text{eff}} / (\mu_B/\text{Mn})$ | H_c / Oe |
|----------|------------------|---------------------|--------------------------------------|-------------------|
| 0.025 | 10.0 | 10.5 | 4.32 | 16000 |
| 0.050 | 14.1 | 20.2 | 4.68 | 17000 |
| 0.075 | 23.2 | 33.0 | 4.84 | 3500 |
| 0.10 | 27.1 | 37.3 | 4.26 | 5000 |

加; 但当 x 从 0.075 增加到 0.10, M_{eff} 反而减小, 这可能是由于随着 Mn 离子掺杂浓度的提高, Mn^{2+} 与 Mn^{2+} 处于最近邻的几率增大, 而近邻 Mn^{2+} 之间存在反铁磁直接交换作用, 它与铁磁有序竞争所致。

在图 2(d) 中, 我们展示了在 2 K 下测量的具有不同掺杂浓度的 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 的等温磁化曲线. 所有样品均呈现出清晰的磁滞回线, 表明 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 样品在低于 T_c 时

表现为铁磁性. 但是, 随着掺杂浓度的增加, 样品饱和磁矩 M_{sat} 逐渐被压制, 与 $\text{La}(\text{Zn}_{1-2x}\text{Mn}_x\text{Cu}_x)\text{AsO}$ [11] 中表现出相同的趋势. 此外, 样品具有较高的矫顽力 H_c , 其中 $(\text{La}_{0.95}\text{Sr}_{0.05})(\text{Zn}_{0.95}\text{Mn}_{0.05})\text{SbO}$ 具有最高的 H_c , 可达 17000 Oe. 我们在表 2 列出了上述的相关参数 T_c , θ , M_{eff} 和 H_c .

在图 3 中, 我们展示了 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ 系列样品的电阻率随温度的变化曲线. 各掺杂浓度下的样品, 其电阻率的变化与窄带隙母相 LaZnSbO [12] 中的电阻行为一致, 在低温时均表现为随着温度的降低而升高. 因此, 同时掺杂有 Sr 和 Mn 的样品在 T_c 以下仍表现半导体行为. 此外, 当 $x \leq 0.075$ 时, 随着掺杂浓度的提高, 电阻率逐渐降低. 这是由于 Sr 掺杂浓度的提高, 进而导致引入的载流子浓度增加, 在 $(\text{La}, \text{Ba})(\text{Zn}, \text{Mn})\text{AsO}$ [9] 中我们也观察到同样的现象. 但随着掺杂浓度的继续增加, 样品电阻率反而增大, 这是由于过量 Mn 原子的引入导致自旋涨落对载流子的散射增强.

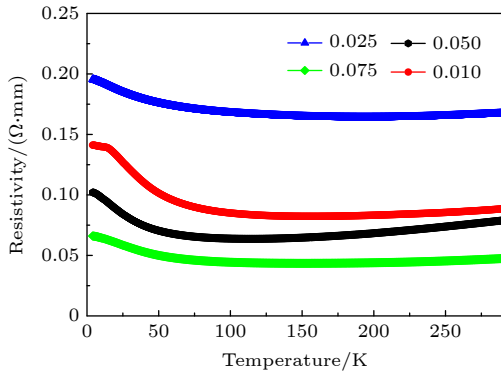


图 3 $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ 电阻随温度变化的关系

Fig. 3. Temperature dependence of $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ resistance.

4 结 论

我们通过在具有 $ZrCuSiAs$ 型四方结构的母相 $LaZnSbO$ 中同时掺杂 Sr 和 Mn , 成功制备了一种新型块状稀磁半导体 $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ ($x = 0.025, 0.050, 0.075, 0.10$). 该系列样品在 20—40 K 之间具有与 $(La, Ca)(Zn, Mn)SbO$ 、 $(La, Sr)(Zn, Mn)AsO$ 等稀磁半导体材料相似的铁磁转变信号. 当掺杂浓度 x 为 0.10 时, 居里温度 T_c 最高可达到 27.1 K. 等温磁化强度测量表明样品具有明显的磁滞回线, 且矫顽力相对较大. 电阻率测量结果表明引入局部磁矩和载流子后, 样品在居里温度 T_c 之下仍保持半导体行为, 并且随着掺杂水平的提高, 电阻率逐渐降低. $(La_{1-x}Sr_x)(Zn_{1-x}Mn_x)SbO$ 稀磁半导体的发现丰富了“1111”型稀磁半导体材料的种类, 为构造异质结器件提供了可能的材料储备.

参考文献

[1] Žutić I, Fabian J, Sarma S D 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 323
 [2] Dietl T, Ohno H 2014 *Rev. Mod. Phys.* **86** 187
 [3] Ohno H, Shen n A, Matsukura F, Oiwa A, Endo A, Katsumoto S, Iye Y 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 363
 [4] Dietl T 2010 *Nat. Mater.* **9** 965
 [5] Zhao J H, Deng J J, Zheng H Z, 2007 *Progress in Physics* **27** 109 (in Chinese) [赵建华, 邓加军, 郑厚植 2007 *物理学进展* **27** 109]

[6] Chen L, Yang X, Yang F, Zhao J, Misuraca J, Xiong P, von Molnár S 2011 *Nano Lett.* **11** 2584
 [7] Ding C, Guo S, Zhao Y, Man H, Fu L, Gu Y, Wang Z, Liu L, Frandsen B, Cheung S, Uemura Y, Goko T, Luetkens H, Morenzoni E, Zhao Y, Ning F 2015 *J. Phys.: Condens. Matter* **28** 026003
 [8] Ding C, Gong X, Man H, Zhi G, Guo S, Zhao Y, Wang H, Chen B, Ning F 2014 *Europhys. Lett.* **107** 17004
 [9] Ding C, Man H, Qin C, Lu J, Sun Y, Wang Q, Yu B, Feng C, Goko T, Arguello C, Ning F 2013 *Phys. Rev. B* **88** 041102
 [10] Han W, Zhao K, Wang X, Liu Q, Ning F, Deng Z, Liu Y, Zhu J, Ding C, Man H, ChangQing J 2013 *Sci. China: Phys., Mech. Astron.* **56** 2026
 [11] Guo S, Zhao Y, Gong X, Man H, Ding C, Zhi G, Fu L, Gu Y, Wang H, Chen B, Ning F 2016 *Europhys. Lett.* **114** 57008
 [12] Zhao Y, Wang K, Guo S, Fu L, Gu Y, Zhi G, Xu L, Cui Q, Cheng J, Wang H, Chen B, Ning F 2018 *Europhys. Lett.* **120** 47005
 [13] Yang X, Li Y, Shen C, Si B, Sun Y, Tao Q, Cao G, Xu Z, Zhang F 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 022410
 [14] Chen B, Deng Z, Li W, Gao M, Liu Q, Gu C, Hu F, Shen B, Frandsen B, Cheung S, Jin C 2016 *Sci. Rep.* **6** 36578
 [15] Fu L, Gu Y, Guo S, Wang K, Zhang H, Zhi G, Liu H, Xu Y, Wang Y, Wang H, Ning F 2019 *J. Magn. Magn. Mater.* **483** 95
 [16] Kamihara Y, Watanabe T, Hirano M, Hosono H 2008 *J. Am. Chem. Soc.* **130** 3296
 [17] Emery N, Wildman N E, Skakle E J, McLaughlin A, Smith R, Fitch A 2011 *Phys. Rev. B* **83** 094413
 [18] Zhang Q, Kumar C, Tian W, Kevin W, Goldman A, Vaknin D 2016 *Phys. Rev. B* **93** 094413
 [19] Dietl T, Bonanni A, Ohno H 2019 *J. Semicond.* **40** 080301
 [20] Deng Z, Zhao G Q, Jin C Q 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 167502 (in Chinese) [邓正, 赵国强, 靳常青 2019 *物理学报* **68** 167502]
 [21] Deng Z, Jin C, Liu Q, Wang X, Zhu J, Feng S, Chen L, Yu R, Arguello C, Goko T, Ning F, Zhang J, Wang Y, Aczel A, Munsie T, Williams T, Luke G, Kakeshita T, Uchida S, Higemoto W, Ito T, Gu Bo, Maekawa S, Morris G, Uemura Y 2011 *Nat. Commun.* **2** 1
 [22] Zhao K, Deng Z, Wang X C, et al. 2013 *Nat. Commun.* **4** 1
 [23] Gu Y, Zhang H, Zhang R, Fu L, Wang K, Zhi G, Guo S, Ning F 2020 *Chin. Phys. B* **29** 057507
 [24] Zhao K, Chen B, Zhao G, Yuan Z, Liu Q, Deng Z, Zhu J, Jin C 2014 *Chin. Sci. Bull.* **59** 2524
 [25] Gu B 2019 *J. Semicond.* **40** 081504
 [26] Ding C, Qin C, Man H, Imai T, Ning F 2013 *Phys. Rev. B* **88** 041108
 [27] Gu Y, Guo S, Ning F 2019 *J. Semicond.* **40** 081506
 [28] Guo S, Ning F 2018 *Chin. Phys. B* **27** 097502
 [29] Guo K, Man Z Y, Wang X J, Chen H H, Tang M B, Zhang Z J, Grin Y, Zhao J T 2011 *Dalton Trans.* **40** 10007
 [30] Johnston D C 2010 *Adv. Phys.* **59** 803
 [31] Yi W, Wu Q, Sun L 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 037402 (in Chinese) [衣玮, 吴奇, 孙力玲 2017 *物理学报* **66** 037402]
 [32] Toby B H, Von Dreele R B 2013 *J. Appl. Crystallogr.* **46** 544

$(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$: A novel 1111-type diluted magnetic semiconductor*

Zhang Hao-Jie¹⁾ Zhang Ru-Fei¹⁾ Fu Li-Cheng¹⁾ Gu Yi-Lun¹⁾
Zhi Guo-Xiang¹⁾ Dong Jin-Ou¹⁾ Zhao Xue-Qin¹⁾ Ning Fan-Long^{1)2)†}

1) (*Zhejiang Province Key Laboratory of Quantum Technology and Device, Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China*)

2) (*Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

(Received 22 November 2020; revised manuscript received 23 December 2020)

Abstract

Diluted magnetic semiconductor (DMS) that combines the properties of spin and charge degrees of freedom, which has potential applications in the field of spintronic devices. In the 1990s, due to the breakthrough of low-temperature molecular beam epitaxy technology, scientists successfully synthesized III-V DMS (Ga, Mn)As, and developed some spintronics devices accordingly. However, the maximum Curie temperature of (Ga, Mn)As is only 200 K, which is still below room temperature that is required for practical applications. Searching for diluted magnetic semiconductors with higher Curie temperature and the exploring of their magnetism is still one of the focuses at present. In recent years, developed from iron-based superconductors, a series of novel magnetic semiconductors have been reported. These new DMSs have the advantages of decoupled charge and spin doping, and each concentration can be precisely controlled. In this paper, novel bulk diluted magnetic semiconductors $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ ($x = 0.025, 0.050, 0.075, 0.10$) are successfully synthesized, with the highest $T_c \sim 27.1$ K for the doping level of $x = 0.10$. We dope Sr^{2+} and Mn^{2+} into the parent semiconductor material LaZnSbO to introduce holes and moments, respectively. The ferromagnetic ordered phase transition can be observed in the samples with various doping concentrations. A relatively large coercive field is observed to be ~ 5000 Oe from the iso-thermal magnetization measurement at 2 K. The $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x)\text{SbO}$ has the same crystal structure as the “1111-type” iron-based superconductor LaFeAsO , and the lattice parameter difference is very small. It provides a possible material choice for preparing the multifunctional heterojunction devices.

Keywords: diluted magnetic semiconductor, Curie temperature, magnetic ordering, coercivity

PACS: 75.50.Pp, 73.40.Lq, 64.70.kg

DOI: [10.7498/aps.70.20201966](https://doi.org/10.7498/aps.70.20201966)

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2016YFA0300402), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12074333), and the Key Research and Development Program of Zhejiang Province, China (Grant No. 2021C01002).

† Corresponding author. E-mail: ningfl@zju.edu.cn