

## Рост и магнитооптическое исследование наноразмерных магнитоэлектронных гетероструктур MnAs/Si(111)

© А.Г. Банщиков, А.В. Кимель, Р.В. Писарев, А.А. Ржевский, Н.С. Соколов,  
А. Keen\*, Th. Rasing\*, Ahsan M. Nazmul\*\*, М. Tanaka\*\*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

\* Research Institute for Materials, University of Nijmegen,  
6525 ED Nijmegen, The Netherlands

\*\* The University of Tokyo, Bunkyo-ku,  
113-8654 Tokyo, Japan

E-mail: pisarev@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 20 марта 2001 г.)

Тонкие (6–12 nm) эпитаксиальные пленки MnAs были выращены на подложках Si(111) методом молекулярно-лучевой эпитаксии при различных технологических условиях. Пленки характеризуются существенно различной поверхностной морфологией. Это проявляется в образовании на поверхности кремния кристаллитов гексагональной формы, размеры которых меняются в зависимости от условий выращивания. Поверхностные и объемные магнитные свойства пленок исследованы с использованием магнитооптического эффекта Керра и генерации второй оптической гармоники. Наблюдалась линейная зависимость эффекта Керра от эффективной толщины магнитного слоя. Получена оценка толщины магнитнеупорядоченного переходного слоя, образованного вблизи границы раздела с подложкой. Обнаружено различие поверхностных и объемных гистерезисных свойств пленок. Наблюдалось нечетное по намагниченности изменение интенсивности второй гармоники, вызванное интерференцией магнитного и немагнитного вкладов в нелинейную поляризацию.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, японского проекта JSPS, INTAS и программы голландско-российского сотрудничества NWO.

Гибридные гетероструктуры, образованные выращиванием ферромагнитных пленок на поверхности полупроводников, в настоящее время являются предметом интенсивных исследований. Ожидается, что такие материалы станут основой нового поколения магнитоэлектронных устройств, сочетающих в себе полупроводниковые и магнитные свойства [1,2].

Благодаря ярко выраженным ферромагнитным свойствам арсенида марганца MnAs пленки MnAs, выращенные на полупроводниковых подложках арсенида галлия GaAs или кремния Si, являются одним из наиболее перспективных материалов магнитоэлектроники [3]. Большой интерес вызывает исследование тонких пленок MnAs. Это связано с возможностью появления новых, зависящих от спина кинетических и магнитооптических явлений, протекающих вблизи границы раздела (интерфейса) магнетик-полупроводник. В то же время несмотря на заметный прогресс в технологии выращивания тонких эпитаксиальных пленок MnAs на полупроводниках, который был достигнут в последние годы [4–6], влияние технологических условий на процессы, происходящие на начальной стадии формирования магнитного слоя и определяющие структурное и магнитное качество пленок вблизи границы раздела с подложкой, остается не до конца выясненным.

В настоящей работе сообщается об исследовании процесса роста, поверхностной морфологии, структурного качества и магнитных свойств тонких (6–12 nm) эпитаксиальных пленок MnAs/Si(111). Процесс роста,

структурное качество и морфология поверхности пленок исследовались с использованием дифракции быстрых электронов, дифракции рентгеновских лучей и атомно-силового микроскопа. Исследование магнитных свойств пленок основывалось на измерении магнитооптического эффекта Керра (ЭК). Поскольку ЭК формируется в области толщиной порядка глубины проникновения света, данная методика позволяет получить информацию о магнитных свойствах пленок в объеме материала. Однако несмотря на высокую чувствительность, она является интегральной и не обладает необходимым пространственным разрешением для исследования магнитного состояния непосредственно вблизи поверхности или границы раздела с подложкой. В то же время известно, что одним из методов, чувствительных к наличию поверхностей или границ раздела, является метод, основанный на измерении интенсивности генерации второй оптической гармоники (ГВГ) [7]. В centrosymmetric средах ГВГ возникает благодаря нарушению операции пространственной инверсии на границах раздела сред и позволяет зондировать примыкающую к границам область порядка нескольких атомных слоев. В настоящей работе наряду с традиционным магнитооптическим ЭК для исследования магнитных свойств пленок вблизи границ раздела нами исследовалась ГВГ во внешнем магнитном поле. Недавно метод магнитоиндуцированной ГВГ был успешно применен при исследовании граничных свойств относительно толстых пленок MnAs (40–70 nm) на Si(111) [8].

Параметры гетероструктур MnAs/Si(111)

| Образцы | Температура подложки, °C | Соотношение потоков As <sub>4</sub> /Mn | Средняя толщина пленки, nm | Высота кристаллитов, nm | Отношение поперечных размеров кристаллитов к их высоте |
|---------|--------------------------|---|----------------------------|-------------------------|--|
| A       | 350                      | 1.2                                     | 6                          | 7                       | (-)  |
| B       | 350                      | 2.0                                     | 12                         | 100                     | 1.7:1  |
| C       | 350                      | 5.4                                     | 12                         | 20                      | 1:1  |
| D       | 400                      | 1.2                                     | 10                         | 50                      | 6:1  |
| E       | 450                      | 1.2                                     | 6                          | 30                      | 5:1  |
| G       | 350                      | 2.0                                     | 12                         | 100                     | 2:1  |
| H       | 450                      | 2.0                                     | 12                         | 100                     | 6:1  |

## 1. Рост, структура и морфология образцов MnAs/Si(111)

Пленки MnAs выращивались на подложках Si(111) в сверхвысоковакуумной камере (ULVAC MBC-508) методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Были использованы подложки Si(111) с разориентацией около 1.5°. Для получения атомарно чистой поверхности кремния подложки подвергались химической очистке, после чего загружались в ростовую камеру и отжигались при температуре 900°C в потоке As<sub>4</sub> в течение нескольких минут. Процесс роста начинался при подаче в камеру потока Mn. Для исследования влияния технологических условий на качество магнитного слоя выращивание образцов производилось при различных температурах подложки и различном соотношении потоков Mn и As<sub>4</sub>. Исходя из данных о количестве осажденного на подложку вещества, оценивалась средняя толщина пленок. Параметры исследуемых пленок представлены в таблице. Качество пленок контролировалось *in situ* методом дифракции быстрых электронов (RHEED) с энергией 20 keV. Анализ RHEED-изображений показал, что однородный гладкий слой MnAs со сверхструктурой (2 × 2) формируется только в случае образца A. Для остальных образцов характерен островковый рост слоя MnAs.

Морфология поверхности полученных образцов исследовалась с помощью атомно-силового микроскопа фирмы "Digital Instruments". Образцы характеризуются существенно различной морфологией. На рис. 1 представлена топография поверхностей трех различных образцов. В образце A (рис. 1, *a*) осажденное вещество однородно распределено по поверхности подложки и формирует практически гладкую поверхность с размером неоднородностей порядка нескольких нанометров. В образцах B и D (рис. 1, *b, c*) на поверхности кремния наблюдается рост кристаллитов. Форма кристаллитов в проекции на плоскость подложки представляет собой шестиугольник, что характерно для гексагональной *6/mmm* структуры MnAs. Размеры кристаллитов заметно меняются в зависимости от условий выращивания. Данные о высоте и поперечных размерах кристаллитов в различных образцах представлены в таблице.

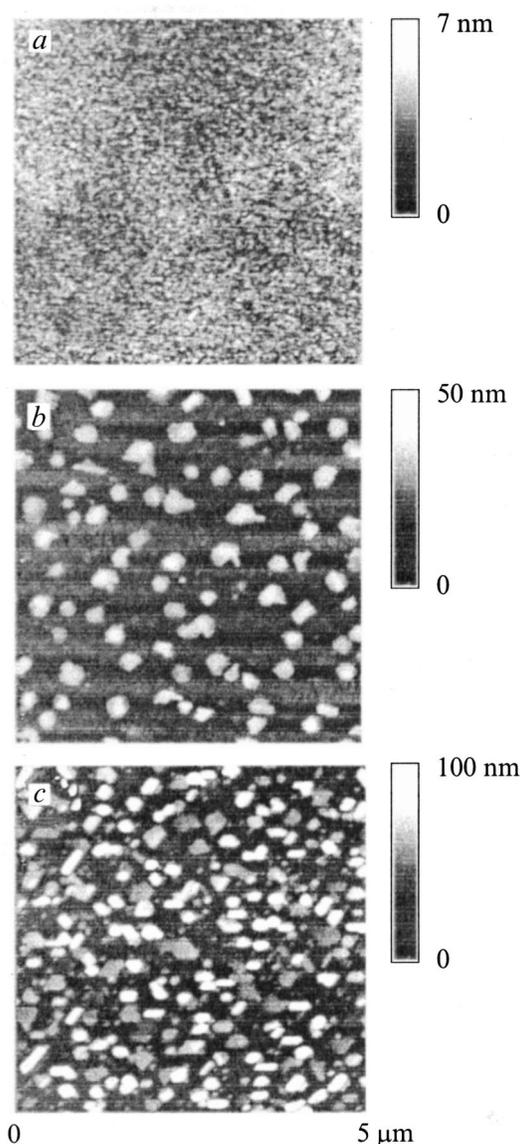


Рис. 1. Топография поверхности исследуемых структур, полученная с помощью атомно-силового микроскопа: *a* — пленка A, *b* — пленка D, *c* — пленка B.

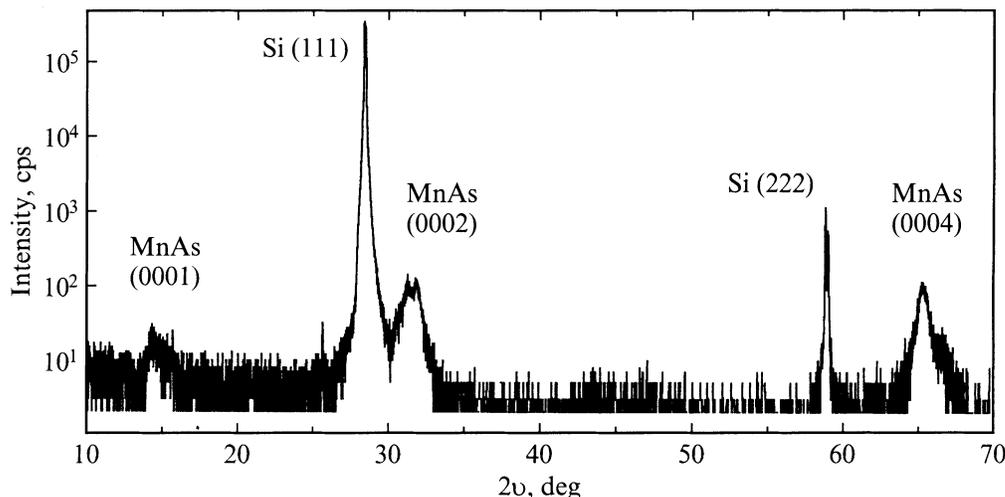


Рис. 2. Рентгенограмма, полученная на пленке *D*.

Качество кристаллической структуры полученных пленок исследовалось с помощью дифракции рентгеновских лучей в геометрии  $\vartheta - 2\vartheta$ . Дифракционные исследования показали, что имеет место эпитаксиальный рост. На рентгенограммах наряду с интенсивными пиками от кремния хорошо видны дифракционные пики от плоскостей типа (0001), (0002) и (0004) гексагональной структуры MnAs (рис. 2). Плоскостью роста является плоскость (0001).

## 2. Магнитооптическое исследование

Исследования ЭК и ГВГ проводились при отражении света по методике, описанной в [8]. Измерения ГВГ были выполнены в меридиональной, а ЭК — в меридиональной и полярной геометриях эксперимента [9]. Использовалось излучение фемтосекундного титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ ) с длительностью импульса 100 fs и частотой повторения 82 MHz и непрерывного гелий-неонового лазера ( $\lambda = 0.633 \mu\text{m}$ ). Чувствительность измерения поворота плоскости поляризации света при измерениях ЭК составляла  $10''$ . Поскольку MnAs характеризуется сравнительно низким значением температуры Кюри ( $T_C = 318 \text{ K}$  [10]), для исключения возможного нагрева образцов средняя мощность света, падающего на образец, не превышала 15 mW. Для изучения азимутальных зависимостей ЭК и ГВГ в эксперименте была предусмотрена возможность поворота образца в диапазоне азимутальных углов  $0 < \theta < 360^\circ$ . К образцам прикладывалось магнитное поле в диапазоне  $\pm 1.5 \text{ kOe}$ .

На рис. 3 для пленок *A* и *B* представлены полевые зависимости меридионального ЭК, измеренные на длине волны  $\lambda = 0.633 \mu\text{m}$  при угле падения света на образец  $\varphi = 15^\circ$ . Петли гистерезиса являются симметричными и имеют характерную для ферромагнитных образцов форму. Азимутальные зависимости меридионального ЭК

не обнаруживают существенной анизотропии. Полевые зависимости ЭК в полярной геометрии в магнитном поле  $\pm 1.5 \text{ kOe}$  показали отсутствие насыщения, причем величина полярного эффекта в различных пленках примерно на порядок меньше меридионального. Это указывает на наличие "оси трудного намагничивания", ориентированной перпендикулярно поверхности.

Зависимости величины меридионального ЭК и коэрцитивного поля от средней толщины пленок представлены на рис. 4, *a* и *b*. Из рис. 4, *a* следует, что ЭК возрастает с увеличением средней толщины пленок. При этом экспериментальные точки могут быть аппроксимированы линейной зависимостью. Сравнение результатов, представленных на рис. 4, *b*, с данными таблицы и рис. 2 показывают, что наибольшие значения коэрцитивных по-

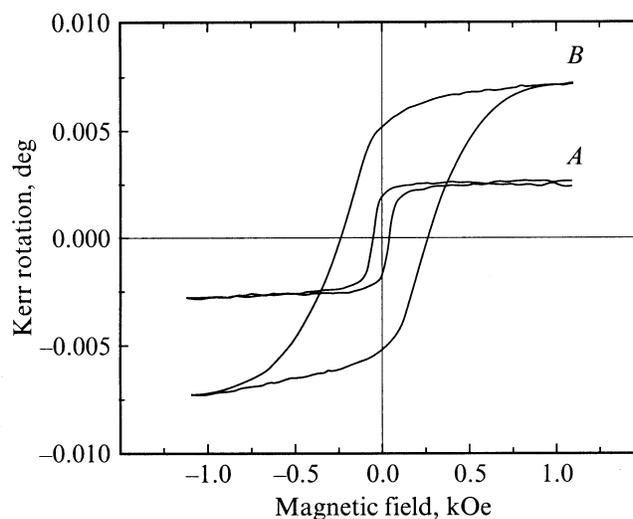
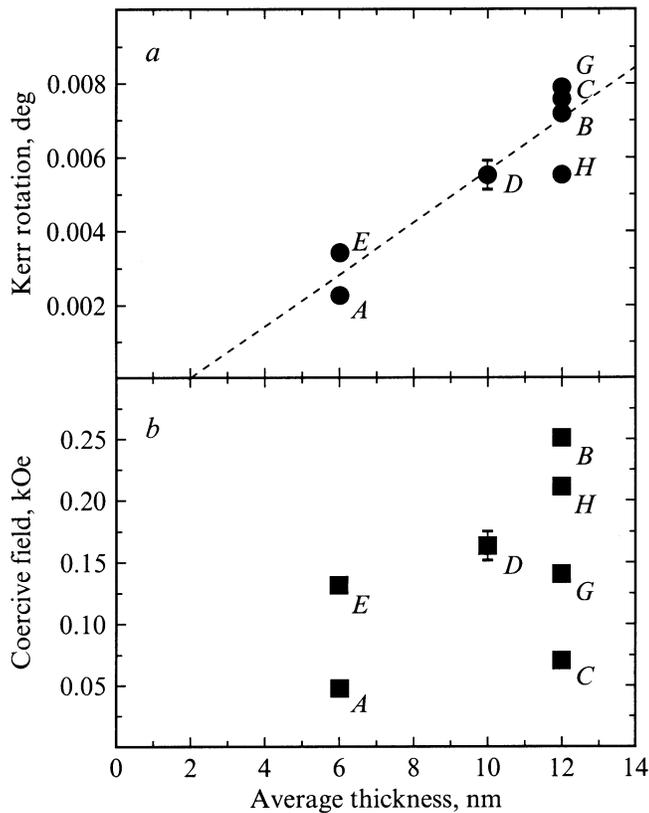


Рис. 3. Полевые зависимости меридионального эффекта Керра, измеренные на  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$  при  $\varphi = 15^\circ$  в пленках *A* и *B*.



**Рис. 4.** Зависимости величины эффекта Керра (*a*) и коэрцитивного поля (*b*) от средней толщины пленок, измеренные на  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$  при  $\varphi = 15^\circ$ .

лей наблюдаются в пленках, характеризующихся большими размерами кристаллитов.

На рис. 5 представлены азимутальные зависимости интенсивности ГВГ в пленке *G*, измеренные в меридиональной геометрии на  $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$  при угле падения света  $\varphi = 15^\circ$ . Измерения проводились для четырех комбинаций PP, PS, SP, SS входной и выходной поляризации линейно поляризованного света. Азимутальные зависимости интенсивности второй гармоники для PP- и SP-комбинаций поляризации можно описать выражением

$$I(2\omega, \theta) = (a \cos(3\theta) + b \cos(\theta) + c)^2, \quad (1a)$$

для PS- и SS-комбинаций поляризации — выражением

$$I(2\omega, \theta) = (a \sin(3\theta) + b \sin(\theta) + c)^2, \quad (1b)$$

где  $a, b, c$  — расчетные коэффициенты. Азимутальные зависимости ГВГ в других образцах имеют качественно аналогичный вид. В образцах *C* и *G* для PS- и SS-комбинаций поляризации наблюдалось небольшое, но заметное по величине изменение интенсивности ГВГ при перемагничивании. Величина магнитного контраста ГВГ в образцах *C* и *G* для PS-комбинации поляризации составила 3–5%, что существенно меньше, чем в ранее

исследованных более толстых пленках [8]. В остальных образцах величина магнитного контраста не превышала 2%. На рис. 6, *a, b* представлены полевые зависимости магнитоиндуцированной ГВГ и меридионального ЭК, измеренные в одном из максимумов азимутальных зависимостей в образцах *C* и *G*. Видно, что для ГВГ петли гистерезиса более узкие, чем для ЭК. Ранее это обстоятельство также было отмечено в [8].

### 3. Обсуждение результатов

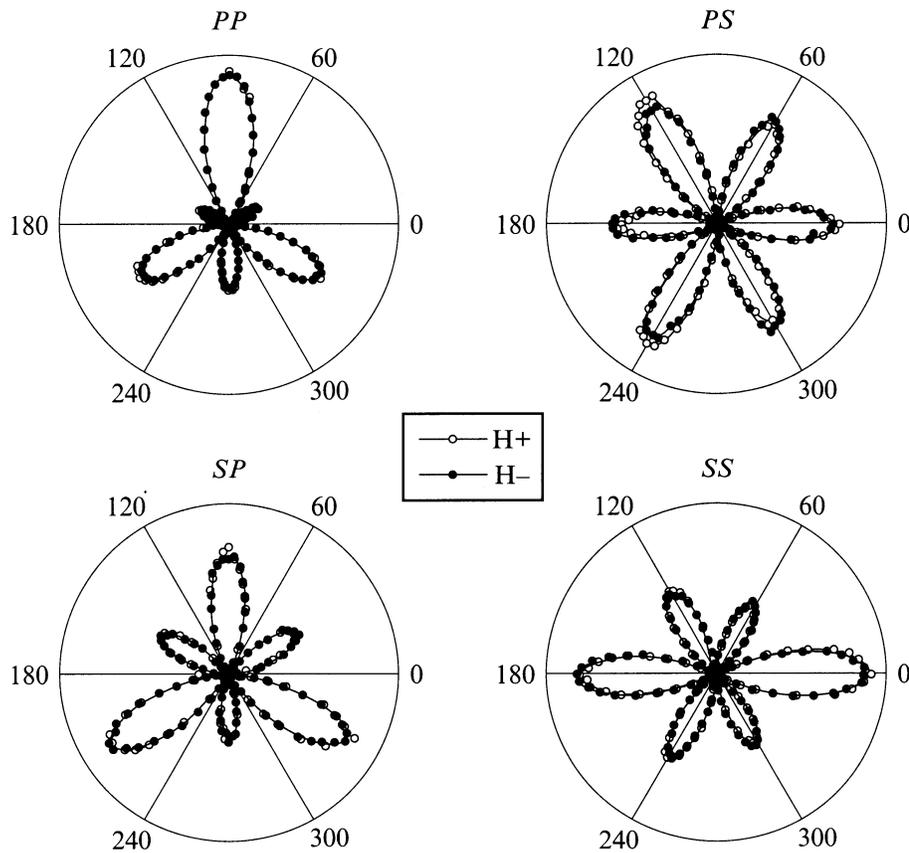
Результаты исследований полевых зависимостей меридионального и полярного ЭК говорят о том, что выращенные пленки обладают анизотропией типа ”легкая плоскость”. В то же время зависимость величины ЭК (рис. 4, *a*) и коэрцитивного поля (рис. 4, *b*) от средней толщины указывают на различие объемных магнитных свойств пленок.

Зависимость величины ЭК от средней толщины (рис. 4, *a*) можно объяснить в предположении, что эффективная толщина магнитного слоя в различных пленках неодинакова и зависит от толщины переходного слоя. Этот слой образуется на начальном этапе процесса выращивания непосредственно вблизи границы с подложкой и не обладает структурным и магнитным порядком. На наличие переходного слоя исследуемых структур указывает тот факт, что прямая на рис. 4, *a* пересекает ось абсцисс не в начале координат, а вблизи точки 2 nm. Для проверки этого предположения данные рис. 4, *a* были построены в осях, где по оси ординат была отложена величина ЭК, а по оси абсцисс — параметр  $\xi$ , определяющий эффективную толщину магнитного слоя. Параметр  $\xi$  рассчитывался, исходя из данных рентгеновских измерений, и определялся как отношение суммарной интенсивности дифракционных пиков от плоскостей типа (0001), (0002), (0004) гексагональной структуры MnAs к суммарной интенсивности пиков от плоскостей (111) и (222) кремниевой подложки. Результаты построения представлены на рис. 7, из которого видно, что экспериментальные точки хорошо ложатся на прямую линию, проходящую через начало координат. Полученный результат подтверждает предположение о существовании переходного слоя в исследуемых структурах, толщина которого составляет примерно 2 nm.

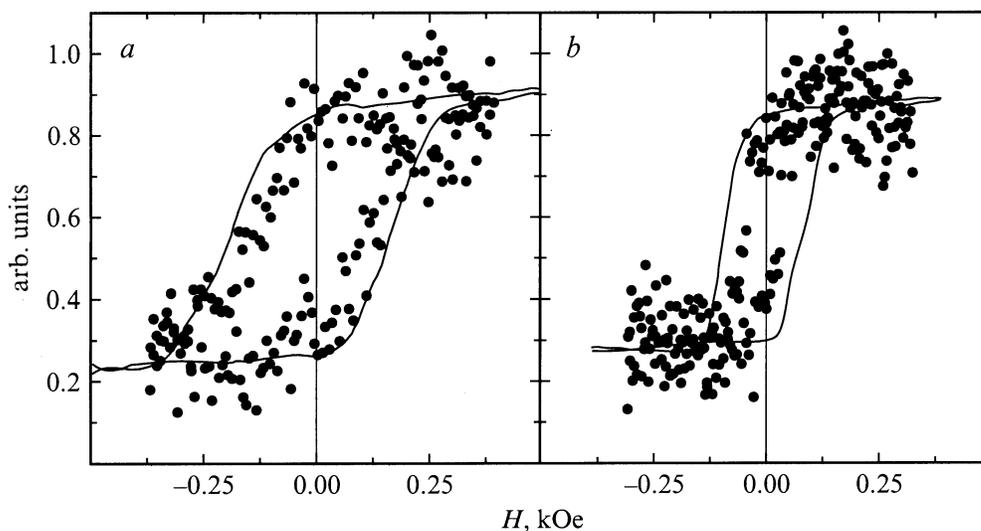
В пределе малых толщин зависимость ЭК от толщины пленки при малых углах падения можно описать выражением [11]

$$\pm\phi_k + i\varepsilon_k = (2\omega/c)[N_s/(1 - N_s^2)]Q\varphi h, \quad (2)$$

где  $\phi$  — поворот плоскости поляризации,  $\varepsilon$  — эллиптичность,  $Q$  — магнитооптический параметр среды, который пропорционален намагниченности,  $N_s$  — показатель преломления подложки,  $\varphi$  — угол падения света на образец. Из (2) следует, что ЭК растет пропорционально толщине и не зависит от показателя преломления пленки. Таким образом, наблюдаемый на рис. 7 линейный рост отражает



**Рис. 5.** Азимутальные зависимости ГВГ, измеренные в пленке  $G$  для различных комбинаций входной и выходной поляризаций света на  $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$  при  $\varphi = 15^\circ$ .

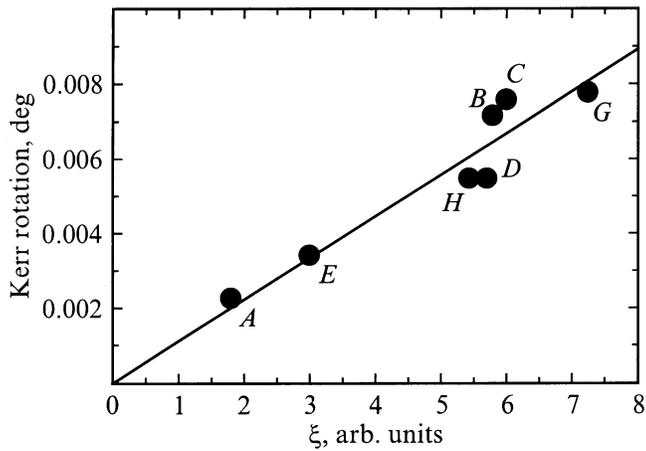


**Рис. 6.** Полевые зависимости магнитоиндуцированной второй оптической гармоники (точки) и эффекта Керра (сплошная линия), измеренные в пленках  $C$  ( $a$ ) и  $G$  ( $b$ ) на  $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$  при  $\varphi = 15^\circ$ .

общую характерную особенность ЭК в тонких магнитных пленках.

Широкий диапазон значений коэрцитивных полей, наблюдаемых в эксперименте (рис. 4,  $b$ ), можно объ-

яснить в предположении, что размеры кристаллитов  $\text{MnAs}$  достаточно малы и образование доменов в них является энергетически невыгодным процессом. В этом случае перемагничивание образцов может осуществля-



**Рис. 7.** Зависимость величины эффекта Керра от параметра  $\xi$ , определяющего толщину эффективного магнитного слоя пленок.

ся за счет "трудного" процесса однородного вращения намагниченности. Поскольку образцы характеризуются как легкоплоскостные и энергией магнитной кристаллографической анизотропии в гексагональной плоскости пленки можно пренебречь, величина коэрцитивного поля может быть обусловлена влиянием анизотропии формы кристаллитов.

Для выяснения природы анизотропии и источников магнитоиндуцированной ГВГ проанализируем возможные механизмы ГВГ в исследуемых структурах. Выражение для нелинейной поляризации на удвоенной частоте, индуцированной электрическим полем световой волны  $\mathbf{E}$ , в среде с намагниченностью  $\mathbf{M}$  можно представить в виде

$$P_i(2\omega) = \alpha_{ijk}E_jE_k + \beta_{ijkl}E_jE_kM_l + \gamma_{ijkl}E_j\nabla_kE_l, \quad (3)$$

где первое и второе слагаемые описывают немагнитный и магнитоиндуцированный вклады в ГВГ соответственно.

Тензоры  $\hat{\alpha}$  и  $\hat{\beta}$  имеют отличные от нуля компоненты только в нецентросимметричных средах [12]. Поскольку MnAs и Si имеют центросимметричные кристаллические структуры, описываемые точечными группами симметрии  $6/mmm$  и  $m3m$  соответственно, ГВГ в объеме этих материалов в электродипольном приближении запрещена. Однако ГВГ может возникать на границе раздела воздух/MnAs и на интерфейсе MnAs/Si, где происходит нарушение операции пространственной инверсии. Необходимо также учесть вклад в нелинейную поляризацию от объема пленки и подложки, который может возникать за счет квадрупольного механизма, описываемого третьим членом в разложении. В Si этот механизм может вносить заметный по величине вклад в нелинейную поляризацию, сравнимый с вкладом от поверхности [13].

Анализ симметричных свойств тензоров  $\hat{\alpha}$ ,  $\hat{\beta}$  и  $\hat{\gamma}$  для группы  $6/mmm$  показывает, что вклад в нелинейную

поляризацию от поверхности, тонкого слоя MnAs вблизи интерфейса и объема пленки должен быть изотропным. Этот вклад описывается постоянным слагаемым  $c$  в выражениях (1). Присутствие в выражениях (1) слагаемых, пропорциональных  $\cos(3\theta)(\sin(3\theta))$ , говорит о наличии в системе оси третьего порядка. Ось третьего порядка содержится в группе симметрии кремния. Это означает, что анизотропный вклад, пропорциональный  $\cos(3\theta)\sin(3\theta)$ , возникает от подложки. Этот вклад формируется в области, непосредственно примыкающей к интерфейсу, за счет электродипольного механизма и в области с толщиной порядка глубины проникновения света за счет механизма электроквадрупольных переходов. При этом, как показано в [14], в полупроводниках со структурой кремния оба механизма — электродипольный и электроквадрупольный — характеризуются одинаковой симметрией. Кроме слагаемых, пропорциональных  $\cos(3\theta)\sin(3\theta)$ , выражения (1) также содержат члены, пропорциональные  $\cos(\theta)\sin(\theta)$ . Как показывают модельные расчеты, появление этих членов в (1) связано с небольшой по величине ( $\sim 1.5^\circ$ ) разоориентацией кремниевых подложек от плоскости типа (111). Таким образом, поскольку среди источников ГВГ нет анизотропного магнитоиндуцированного вклада, небольшое по величине изменение интенсивности ГВГ, наблюдаемое при перемагничивании, вызвано интерференцией изотропного магнитоиндуцированного вклада, возникающего на границах раздела, и анизотропного немагнитного вклада, возникающего от подложки. Сужение петель гистерезиса магнитоиндуцированной ГВГ по сравнению с ЭК (рис. 6) указывает на то, что процесс перемагничивания индуцируется на поверхности, а затем происходит внутри пленки.

Таким образом, в работе проведено исследование влияния технологических условий процесса выращивания на магнитные и магнитооптические свойства тонких (6–12 nm) эпитаксиальных гетероструктур MnAs/Si(111). С использованием магнитооптического эффекта Керра и генерации второй оптической гармоники исследована зависимость магнитных характеристик от толщины магнитного слоя и поверхностной морфологии. Наблюдалось линейное увеличение эффекта Керра от толщины магнитного слоя. Получена оценка толщины переходного слоя, образованного вблизи интерфейса магнетик–полупроводник, которая составляет примерно 2 nm. На основе данных рентгеновских измерений предложена методика, позволяющая учесть влияние переходного слоя на магнитооптические свойства пленок. Наблюдалось различие гистерезисных свойств магнитооптического эффекта Керра и магнитоиндуцированной ГВГ, что свидетельствует о различии объемных и интерфейсных магнитных свойств пленок. Показано, что различие объемных гистерезисных свойств пленок может быть обусловлено влиянием анизотропии формы кристаллитов. Исследован характер анизотропии азимутальных зависимостей ГВГ и проанализированы источники нелинейнооптического сигнала. Показано, что

нечетное по намагниченности изменение интенсивности ГВГ вызвано интерференцией изотропного магнитоиндуцированного вклада, возникающего от пленки с анизотропным немагнитным вкладом, возникающим от подложки.

## Список литературы

- [1] G.A. Prinz. *Science* **282**, 1660 (1998).
- [2] H. Ohno. *Science* **281**, 951 (1998).
- [3] *Magnetic Films&Surfaces. 15th Int. Conf. Digest. Kyoto (1997)*.
- [4] F. Schippan, A. Trempert, L. Däweritz, K.H. Ploog, B. Dennis, K.-U. Neumann, K.R.A. Ziebeck. *J. of Crystal Growth* **201/202**, 674 (1999).
- [5] M. Kästner, F. Schippan, P. Schützebdübe, L. Däweritz, K. Ploog. *J. Vac. Sci. Technol.* **B18**, 2052 (2000).
- [6] K. Akeura, M. Tanaka, T. Nishinaga, J. De Boeck. *J. Appl. Phys.* **79**, 4957 (1996).
- [7] *Nonlinear Optics of Metals / Ed. by K.H. Bennemann. Oxford University Press, Oxford (1998)*.
- [8] А.Г. Банщиков, А.В. Кимель, В.В. Павлов, Р.В. Писарев, Н.С. Соколов, Th. Rasing. *ФТТ* **42**, 115 (2000).
- [9] Г.С. Криччик. *Физика магнитных явлений. Изд-во МГУ, М. (1985)*.
- [10] *Handbook of Physical Quantities / Ed. by I.S. Grigoriev, E.Z. Meilikhov. CRC Press, Boca Raton (1997)*.
- [11] E.R. Moog, S.D. Bader, J. Zak. *Appl. Phys. Lett.* **56**, 2687 (1990).
- [12] R.R. Birss. *Symmetry and Magnetism. North-Holland, Amsterdam (1966)*.
- [13] H.W.K. Tom, T.F. Heinz, Y.R. Shen. *Phys. Rev. Lett.* **51**, 1983 (1983).
- [14] J.E. Sipe, D.J. Moss, H.M. Van Driel. *Phys. Rev.* **B35**, 1129 (1987).