

# 分子束外延制备的垂直易磁化 MnAl 薄膜 结构和磁性\*

聂帅华 朱礼军 潘东 鲁军 赵建华†

(中国科学院半导体研究所, 半导体超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

(2013 年 5 月 3 日收到; 2013 年 5 月 20 日收到修改稿)

系统地研究了利用分子束外延方法在 GaAs(001) 衬底上外延生长的 MnAl<sub>x</sub> 薄膜的结构和垂直易磁化特性随组分及生长温度的依赖关系. 磁性测试表明, 可在较大组分范围内 ( $0.4 \leq x \leq 1.2$ ) 获得大矫顽力的垂直易磁化 MnAl<sub>x</sub> 薄膜, 然而同步辐射 X 射线衍射和磁性测试发现当  $x \leq 0.6$  时 MnAl 薄膜出现较多的软磁相, 当  $x > 0.9$  时, MnAl 薄膜晶体质量和化学有序度逐渐降低, 组分为 MnAl<sub>0.9</sub> 时制备的薄膜有最好的 [001] 取向. 随着生长温度的增加, MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜的有序度、垂直磁各向异性常数、矫顽力和剩磁比均增加, 350 °C 时制备的 MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜化学有序度高达 0.9, 其磁化强度、剩磁比、矫顽力和垂直磁各向异性常数分别为 265 emu/cm<sup>3</sup>、93.3%、8.3 kOe (1 Oe = 79.5775 A/m) 和 7.74 Merg/cm<sup>3</sup> (1 erg = 10<sup>-7</sup> J). 不含贵金属及稀土元素、良好的垂直易磁化性质、与半导体材料结构良好的兼容性以及磁性能随不同生长条件的可控性使得 MnAl 薄膜有潜力应用于多种自旋电子学器件.

**关键词:** 分子束外延, 大矫顽力材料, 磁各向异性

**PACS:** 81.15.Hi, 75.50.Vv, 75.30.Gw

**DOI:** 10.7498/aps.62.178103

## 1 引言

具有高垂直磁各向异性常数的铁磁材料可以克服超顺磁效应, 实现高密度垂直磁记录, 因而得到了广泛而深入的研究<sup>[1-5]</sup>. 而具有较高垂直磁各向异性常数并与半导体材料结构和工艺兼容的 MnAl 等铁磁性薄膜既可作为垂直磁化自旋注入源<sup>[6]</sup>, 应用于自旋发光二极管、自旋场效应晶体管和侧向自旋阀等自旋电子学器件, 还有潜力将非挥发磁阻式随机存储器和半导体电路集成在一起<sup>[7]</sup>, 因此得到特别关注.  $\tau$ -MnAl(又称 L1<sub>0</sub> 相) 是面心四方结构<sup>[8]</sup>, Mn 和 Al 单原子层沿 *c* 轴交替排列, 是 MnAl 合金的磁性相, *c* 轴是易磁化轴. 理论上预言该磁性相 MnAl 具有高达 15 Merg/cm<sup>3</sup> 的垂直磁晶各向异性常数 (PMA)、适中的饱和磁化强度 ( $M_s$ ) 810 emu/cm<sup>3</sup> 和大磁能积 12.64 MGOe<sup>[9,10]</sup>.

尽管科研人员对该材料进行了广泛地研究, 仅有少数在 GaAs 和 MgO 衬底上制备的 MnAl 实现了垂直易磁化, 并且与理论预言的良好磁性能相比还有很大差距<sup>[9-15]</sup>. 主要原因是  $\tau$ -MnAl 为亚稳态相, 对薄膜衬底、生长温度和组分等生长条件非常敏感, 且容易分解成  $\beta$ -Mn 和  $\gamma$ -MnAl 非磁性相, MnAl 薄膜的磁性质与  $\tau$ -MnAl 的含量和晶体质量密切相关, 然而系统研究 MnAl 薄膜生长条件与其结构和磁性的报道还很少.

$\tau$ -MnAl 的晶格常数 *a* 为 2.77 Å, 与 III-V 族半导体 GaAs 的 5.6533 Å 的一半失配仅有 2%, 我们最近的工作证明 MnAl 薄膜可以很好地外延在 GaAs 单晶衬底上, 高分辨透射电镜 (HRTEM) 图像显示即使 300 °C 外延的样品界面仍很清晰, 晶体质量较好<sup>[15]</sup>. 本文利用双生长室分子束外延设备 (VG80), 在加热的 GaAs 单晶衬底上系统地生长了一系列具有不同组分和不同生长温度的 MnAl 薄膜, 成功制

\* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB922303) 和国家自然科学基金 (批准号: 11127406) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jhzhao@red.semi.ac.cn

备了具有大矫顽力、高剩磁比和 PMA 的 MnAl 单晶薄膜, 并系统研究了 MnAl 薄膜晶体结构与磁性能和生长参数的密切关系, 优化了生长条件.

## 2 实验过程

利用双生长室分子束外延设备 (VG80) 在 GaAs (001) 衬底上制备了一系列不同组分和生长温度的 MnAl 薄膜. 首先利用第一生长室在 GaAs 衬底上外延 150 nm 的 GaAs 缓冲层使表面平滑, 真空度为  $2 \times 10^{-5}$  Pa. 然后通过高真空的中间预处理室, 将样品传输到第二生长室, 先在  $30^\circ\text{C}$  的衬底温度生长 0.25 nm 的 MnAl 以尽可能避免界面反应和互扩散, 原位反射高能电子衍射图像 (RHEED) 模糊说明薄膜成非晶态. 再通过生长在生长室中原位  $300^\circ\text{C}$  热处理退火 10 min 使非晶 MnAl 转化为单晶种子层 (RHEED 图像由模糊变成较连续的条纹), 然后继续在不同的衬底温度  $T_s$  下外延 MnAl 薄膜, 真空度小于  $2 \times 10^{-7}$  Pa, 最后沉积 4 nm 的 Al 以防止 MnAl 薄膜被氧化. 由于该两步法分隔了晶体成核与生长, 有利于亚稳态相  $\tau$ -MnAl 的制备.

利用同步辐射 X 射线衍射 (XRD)、RHEED 和 HRTEM 研究样品的晶体结构. 成分和厚度分别由 X 射线能量色散谱 (EDS) 和 X 射线反射谱 (XRR) 确定. 利用超导量子干涉仪 (SQUID) 和物性测量系统 (PPMS) 来测量样品的磁性, 它们的最高磁场分别达 5 T 和 9 T.

通常通过比较 (001) 峰和 (002) 峰的积分强度来表征 MnAl 薄膜由面心四方无序相到有序相的相对程度, 该比较量通常称为化学有序度参数  $D$ <sup>[13]</sup>,

$$D^2 = (I_{(001)}/I_{(002)})_{\text{exp}} / (I_{(001)}/I_{(002)})_{\text{cal}}, \quad (1)$$

其中  $I$  为衍射峰积分强度, 下标 exp 和 cal 分别表示实验值和根据完全理想结构的计算值.  $D = 0$  时薄膜原子排列完全无序, 而  $D = 1$  时薄膜完全有序, 是理想的面心四方的  $\tau$  相结构.

## 3 结果和讨论

$T_s$  为  $350^\circ\text{C}$  时生长 10 min 不同组分的  $\text{MnAl}_x$  ( $0.4 \leq x \leq 1.3$ ) 薄膜的 XRD 谱图如图 1(a) 所示. 除了  $x$  为 1.3 的薄膜, 其余组分的薄膜都出现了  $\tau$  (002) 的衍射峰, 表明其  $\tau$ -MnAl 的  $c$  轴垂直于薄膜平面. 此外除了  $x$  为 0.4 和 1.3 的样品, 其余组分的

样品都具有  $\tau$ (001) 的超晶格衍射峰, 这证明在较大组分范围仍可得到包含有序  $\tau$  相和 (001) 择优取向的 MnAl 薄膜. 当  $x$  为 0.9 时, 样品的  $\tau$  (001) 和  $\tau$  (002) 峰最强, 且具有明显的超晶格衍射卫星峰, 说明该  $\text{MnAl}_{0.9}$  薄膜晶体质量最高, Mn 和 Al 单原子层沿  $c$  轴依次排列, 类似半导体超晶格结构. 值得注意的是当  $x$  小于 0.9 时, 样品还有明显的六角密排  $\epsilon$  相的 (002) 峰,  $\epsilon$  相中 Mn 原子之间是反铁磁耦合, 是非磁性相.

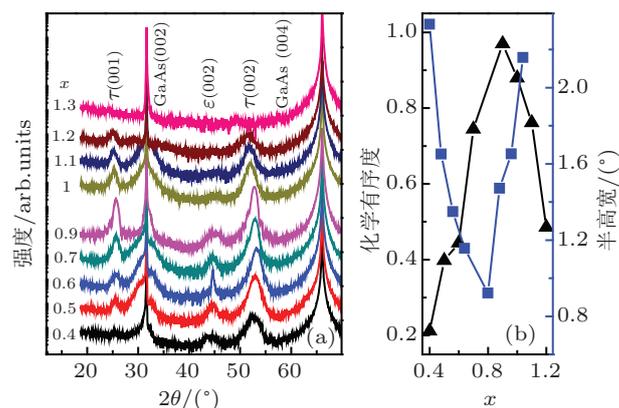


图 1 衬底温度为  $350^\circ\text{C}$  时生长的具有不同 Al/Mn 原子比  $x$  的  $\text{MnAl}_x$  薄膜的 XRD 谱图 (a), 化学有序度参数  $D$  (三角形) 和  $\tau$  (002) 衍射峰的半高宽 FWHM (正方形) (b)

图 1(b) 是根据图 1(a) 中 XRD 谱图数据处理得到的  $\text{MnAl}_x$  薄膜的结构性质. 随着 Al 和 Mn 的原子比  $x$  的减小, 薄膜的  $D$  逐渐增加.  $\text{MnAl}_{0.9}$  薄膜的  $D$  超过 0.9, 证明该薄膜非常有序. EDS 测试显示该薄膜 Mn 含量是 48.8%. 冶金学制备  $\text{MnAl}_x$  合金时, 如果 Mn 比 Al 稍多一些, 有利于  $\tau$  相的形成, 然而制备薄膜显然并不需要过多的 Mn 促进  $\tau$  相的形成. 相反, 随着  $x$  的进一步减少, 反倒会使化学配比失衡, Mn 原子过多会占据本该属于 Al 原子的晶格位置, 使  $D$  逐渐降低.  $\tau$  (002) 衍射峰的半高宽 FWHM 值与晶体质量有密切关系, 与温度的变化趋势和  $D$  正好相反. FWHM 增加意味着晶粒变小和晶体质量变差,  $\text{MnAl}_{0.9}$  的 FWHM 最小 (小于  $1^\circ$ ), 进一步证实了该薄膜晶体质量很好.

图 2(a) 和 (b) 是  $350^\circ\text{C}$  衬底温度生长的不同组分的  $\text{MnAl}_x$  薄膜垂直平面方向的室温磁滞回线.  $x \leq 0.6$  的薄膜的磁滞回线有两个明显的来源部分: 一部分矫顽力大、分布范围窄且几乎是矩形, 来源于  $c$  轴垂直于膜面的  $\tau$ -MnAl, 是硬磁相; 另一部分矫顽力小, 其来源还不清楚, 但并不是 MnAs 相的存在导致的 (由于 MnAs 的居里温度只有约 313 K,

300 K 时铁磁性很弱), 有可能和样品中的点缺陷等缺陷有关, 是软磁相. 当  $x$  提高到 0.7 和 0.9 的样品磁滞回线的形状接近矩形, 且有良好的垂直易磁化特性, 剩磁比很高, 矫顽场分布范围很窄. 进一步提高  $x$ , 样品的剩磁比降低且磁滞回线形状也由矩形变为斜的四边形, 说明样品的易磁化轴逐渐偏离垂直方向.  $x$  为 1.3 的样品磁性完全消失, 即样品没有形成  $\tau$ -MnAl 磁性相.

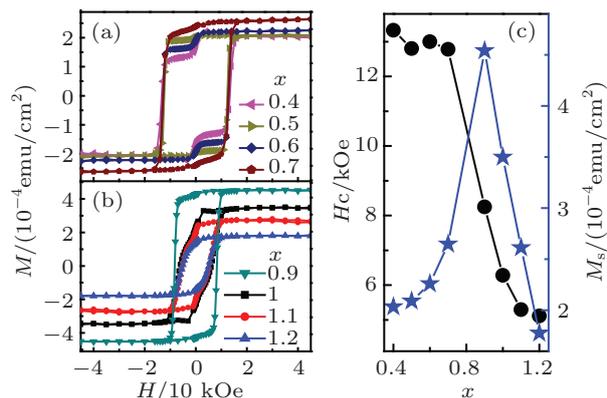


图 2 衬底温度为 350 °C 时生长的不同组分的 MnAl<sub>x</sub> 薄膜垂直平面方向的室温磁滞回线 (a) 和 (b), 矫顽力  $H_c$  (圆形) 和饱和磁化强度  $M_s$  (五角星) (c)

图 2(c) 是根据图 2(a) 和 (b) 的磁滞回线得到的 MnAl<sub>x</sub> 薄膜矫顽力 ( $H_c$ ) 和饱和磁化强度 ( $M_s$ ) 随  $x$  的变化关系曲线. 从图中可看出, 富 Al 的样品  $H_c$  较小, 随着  $x$  由 1.2 减小到 0.7, 薄膜的  $H_c$  逐渐增加, 由 5 kOe 增加到 12 kOe; 当  $x$  进一步减小, 富 Mn 的样品  $H_c$  较大且已基本稳定. 随着  $x$  的减小,  $M_s$  会逐渐增加, 当  $x$  为 0.9 时, 得到最大的  $M_s$ . 但随着  $x$  的进一步减小, 薄膜的  $M_s$  会逐渐减小. 这些磁性质的变化趋势与图 1 中晶体结构表征一致, 证明 MnAl<sub>x</sub> 薄膜的磁性质与其晶体结构密切相关. 由于  $\tau$  相是 MnAl 的唯一磁性相, 所以  $M_s$  值可用来衡量  $\tau$  相的多少. MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜形成  $\tau$  相最多, 晶体质量和垂直易磁化特性最好. 无论是合金还是薄膜, MnAl<sub>x</sub> 的饱和磁化强度都与其组分密切相关, 不同的制备方法要求的最佳组分并不相同, 合金中要求 Mn 组分比 Al 组分稍多一些有利于  $\tau$  相的形成和稳定, 而薄膜中并不需要过多的 Mn 组分 [8,13,16].

为进一步优化生长条件, 在我们过去制备 11 nm 的 MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜基础上 [15], 于不同衬底温度生长了 30 min MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜, 生长速度约为 1 nm/min. XRR 测试得出厚度约为 30 nm, EDS 测试表明该薄膜 Mn 含量是 48.8%. 图 3(a) 是不同衬

底温度时制备的 MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜的 XRD 谱图. 从图中可以看到, 150 °C 制备的薄膜没有  $\tau$  (002) 的基本衍射峰, 这是因为温度过低以至于没有足够的能量使 Mn 和 Al 原子运动到合适位置形成  $\tau$  相. 当衬底温度升高到 200 °C,  $\tau$  (002) 和  $\tau$  (001) 峰稍微隆起表明形成了  $\tau$ -MnAl, 但其几乎完全无序. 继续提高生长温度,  $\tau$  (002) 和  $\tau$  (001) 峰愈加明显, 说明薄膜形成了更多有序的  $\tau$  相. 但是 400 °C 时  $\tau$  (002) 和  $\tau$  (001) 峰强度开始下降, 且  $\tau$  (002) 峰分裂为两个峰, 这是由于温度过高导致外延的 MnAl 薄膜弛豫和应力释放.

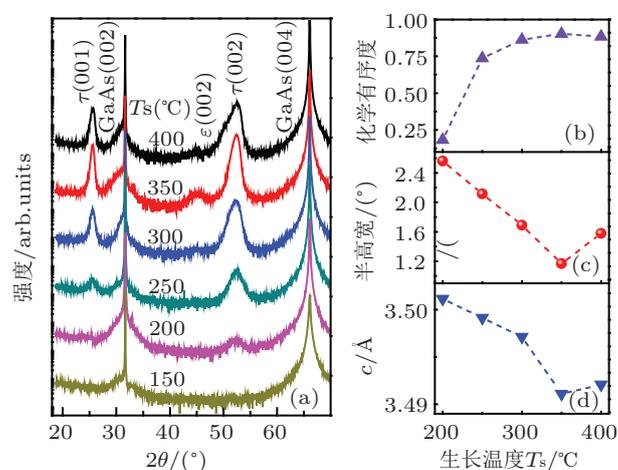


图 3 不同衬底温度  $T_s$  时生长的 MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜的 XRD 谱图 (a), 化学有序度参数  $D$  (b),  $\tau$  (002) 衍射峰的半高宽 FWHM (c) 和晶格常数  $c$  (d)

图 3(b)—(d) 是根据图 3(a) 中 XRD 谱图数据处理得到的 MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜的结构特征参数. 随着衬底温度  $T_s$  的提高, 薄膜的化学有序度明显增加, 350 °C 时达到最大值, 说明该  $T_s$  下生长的薄膜具有最有序的  $\tau$  相. 继续提高  $T_s$  到 400 °C, 薄膜的化学有序度反而降低. 与此相反, 提高  $T_s$ ,  $\tau$  (002) 衍射峰的半高宽 FWHM 逐渐减小, 说明薄膜的晶体质量变好, 350 °C 时达到最小值, 证明该温度制备的薄膜晶体质量最好. 继续提高  $T_s$  到 400 °C, FWHM 增加, 说明晶体质量变差和缺陷增多. 薄膜的晶格常数  $c$  随  $T_s$  变化的趋势与 FWHM 随  $T_s$  变化趋势类似,  $c$  的减小是由于面心四方有序相 MnAl 的逐渐增加所导致的. 然而在 400 °C 时, 晶格质量变差及高温时薄膜弛豫共同导致了  $c$  的增加.

图 4(a) 是衬底温度为 350 °C 时生长的 MnAl<sub>0.9</sub> 薄膜沿垂直和平行薄膜平面方向的室温磁滞回线. 垂直方向的磁滞回线是矩形而平行方向的磁滞回

线几乎没有磁滞, 这证明样品是垂直易磁化的. 值得注意的是, 其各向异性场超过 60 kOe, 这说明该薄膜具有较大 PMA. 图 4(b) 是不同衬底温度生长的  $\text{MnAl}_{0.9}$  薄膜垂直薄膜平面方向的室温磁滞回线. 除了 150 °C 制备的薄膜, 其余薄膜都是垂直易磁化的, 这是因为薄膜中的  $\tau\text{-MnAl}$  相的易磁化轴  $c$  轴垂直于平面方向, 图 3(a) 中的 XRD 谱图也证明了这一点. 300 °C 以上制备的样品磁滞回线都接近矩形, 说明易磁化轴  $c$  轴很好地垂直于平面方向.

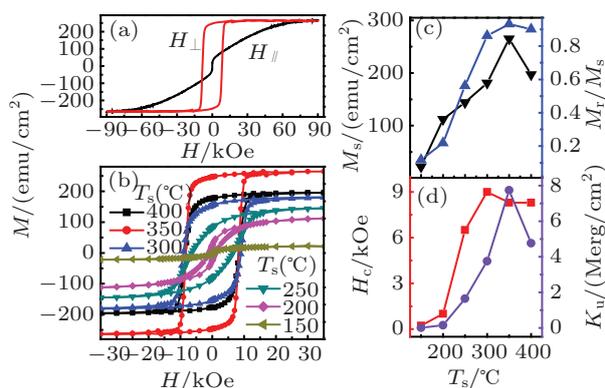


图 4 衬底温度为 350 °C 时生长的  $\text{MnAl}_{0.9}$  薄膜沿垂直和平行薄膜平面方向的室温磁滞回线 (a), 不同衬底温度生长的  $\text{MnAl}_{0.9}$  薄膜垂直薄膜平面方向的室温磁滞回线 (b), 饱和磁化强度值 ( $M_s$ , 倒三角形) 和剩磁比 ( $M_r/M_s$ , 三角形) (c), 矫顽力 ( $H_c$ , 正方形) 和垂直磁各向异性常数 ( $K_u$ , 圆形) (d)

图 4(c) 和 (d) 是根据图 4(b) 中的磁滞回线数据处理归纳出的磁性特征参数. 从图 4(c) 中可以看出, 饱和磁化强度和剩磁比都随生长温度的提高而增加, 在 350 °C 达到最大值,  $T_s$  进一步提高, 两者都会下降. 其中变化主要是由于薄膜种  $\tau$  相含量和质量与  $T_s$  有密切关系所导致的. 然而  $M_s$  的最大值仅有 265  $\text{emu}/\text{cm}^3$ , 仅为理论计算值 811  $\text{emu}/\text{cm}^3$  的三分之一<sup>[9,10]</sup>.  $\tau\text{-MnAl}$  是  $\text{MnAl}$  相中唯一的铁磁性相, 薄膜在室温时的饱和磁化强度主要取决于薄膜中  $\tau\text{-MnAl}$  的含量. 样品的 XRD 曲线具有非铁磁性相  $\epsilon\text{-MnAl}$  的衍射峰或者较弱的  $\tau\text{-MnAl}$  衍射峰, 说明样品中铁磁性相  $\tau\text{-MnAl}$  含量不高. 主要原因是  $\tau\text{-MnAl}$  的生长窗口比较窄, Mn 的组分还未最优化, 生长温度对于  $\tau\text{-MnAl}$  的形成也非常关键, 也需要进一步细致优化. 其次, 样品中存在较多点缺陷和面缺陷也会降低样品的饱和磁化强度,  $\tau\text{-MnAl}$  衍射峰的半高宽的增加表明了缺陷的增多. 另外由于是 350 °C 退火和较高温度的生长,  $\text{MnAl}$  和  $\text{GaAs}$  薄膜之间存在一定的界面反应

和互扩散, 导致样品的组分无序, 这也会降低样品的饱和磁化强度. 通常应力的存在也会降低样品的饱和磁化强度, 合金中制备的  $\text{MnAl}$  的晶格常数  $c$  为 3.54—3.57 Å, 由 XRD 曲线计算得出我们制备的  $\text{MnAl}$  薄膜的晶格常数  $c$  要小于 3.54 Å, 样品中存在较大的应力. 该值也小于我们最近在同样条件下制备的 11 nm 的  $\text{MnAl}_{0.9}$  的  $M_s$  值 361  $\text{emu}/\text{cm}^3$ <sup>[15]</sup>, 这是因为  $\tau\text{-MnAl}$  是亚稳态, 生长窗口很小, 一旦生长条件不够理想, 随着薄膜的生长, 非磁性稳态相所占比例会逐渐增加, 所以制备厚的具有良好磁性能的  $\text{MnAl}$  薄膜仍是一个挑战. 图 4(d) 表明, 低温生长的  $\text{MnAl}$  薄膜的  $H_c$  很小是软磁相, 然而随着  $T_s$  提高到 250 °C 以上, 薄膜的  $H_c$  达到 6 kOe 以上. 这主要是由于随着生长温度提高, 薄膜中形成了大量的  $\tau\text{-MnAl}$ , 而  $\tau\text{-MnAl}$  具有很大的单轴磁各向异性, 单畴磁体的  $H_c$  主要是由于材料的单轴磁各向异性决定.  $K_u$  是评价高密度磁存储材料的重要指标, 通过计算沿垂直易轴和平行薄膜平面难轴方向的磁化曲线之间所包围面积, 再加上退磁能, 可以得到薄膜的垂直磁各向异性常数为

$$K_u = K_{\text{eff}} + 2\pi M_s^2, \quad (2)$$

如图 4(d) 所示,  $K_u$  随  $T_s$  的提高急剧增加, 350 °C 时达到最大值 7.74  $\text{Merg}/\text{cm}^3$ . 这比  $\text{Si}$  衬底上制备的  $\text{MnAl}/\text{Ag}$  薄膜的 4  $\text{Merg}/\text{cm}^3$  大<sup>[16]</sup>, 但比  $\text{MgO}$  上制备的  $\text{MnAl}$  薄膜的 10  $\text{Merg}/\text{cm}^3$  和  $\text{GaAs}$  上制备的 11 nm  $\text{MnAl}$  薄膜的 13.65  $\text{Merg}/\text{cm}^3$  小<sup>[14,15]</sup>, 更低于理论计算值 15  $\text{Merg}/\text{cm}^3$ <sup>[9,10]</sup>. 由于较大的应力存在于  $\text{MnAl}$  薄膜中以及较厚的  $\text{MnAl}$  薄膜通常具有更多的缺陷和非磁性相会共同导致薄膜的  $M_s$  减小, 如果通过进一步优化生长组分、温度、初始种子层或进行后期退火处理, 能将薄膜的  $M_s$  提高到 500  $\text{emu}/\text{cm}^3$ , 薄膜的  $K_u$  有希望提高到理论计算值, 这将是我们的工作.

## 4 结论

利用双生长室分子束外延设备在  $\text{GaAs}(001)$  单晶衬底上制备了不同组分和不同生长温度的  $\text{MnAl}$  薄膜, 得到了具有高矫顽力的垂直易磁化的  $\tau\text{-MnAl}$  单晶薄膜. 同步辐射 X 射线衍射和磁性测试证明可以在较大成分范围内获得大矫顽力的垂直易磁化  $\text{MnAl}$  薄膜, 薄膜的磁性质和晶体质量与组分密切相关, 组分为  $\text{MnAl}_{0.9}$  时具有

良好的  $c$  轴垂直易磁化性质.  $\text{MnAl}_{0.9}$  薄膜的晶体质量和垂直取向磁性能随生长温度的提高而提高,  $350\text{ }^\circ\text{C}$  时制备的  $\text{MnAl}_{0.9}$  薄膜化学有序度高达 0.9, 其磁化强度、剩磁比、矫顽力和垂直磁各向异性常数分别为  $265\text{ emu/cm}^3$ 、 $93.3\%$ 、 $8.3\text{ kOe}$  和

$7.74\text{ Merg/cm}^3$ . 随生长条件可调控的磁性质有利于应用于多功能的自旋电子学器件.

感谢上海光源 BL14B 衍射光束线站文闻在 XRD 测试方面的帮助, 感谢中科院半导体所超晶格国家重点实验室王海龙在 SQUID 测试方面的支持与交流.

- 
- [1] Zhu Y, Cai J W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 393 (in Chinese) [竺云, 蔡建旺 2005 物理学报 **54** 393]
- [2] Feng C, Li B H, Teng J, Yang T, Yu G H 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4898 (in Chinese) [冯春, 李宝河, 滕蛟, 杨涛, 于广华 2005 物理学报 **54** 4898]
- [3] Wang H, Yang F J, Xue S X, Cao X, Wang J A, Gu H S, Zhao Z Q 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1415 (in Chinese) [王浩, 杨辅军, 薛双喜, 曹歆, 王君安, 顾豪爽, 赵子强 2005 物理学报 **54** 1415]
- [4] Weller D, Moser A, Folks L, Best M E, Lee W, Toney M F, Schwickert M, Thiele J U, Doerner M F 2001 *IEEE Trans. on Magn.* **36** 10
- [5] Zhang X H 2010 *Master. Dissertation* (Shanghai: Fudan University) (in Chinese) [张旭辉 2010 硕士学位论文 (上海: 复旦大学)]
- [6] Gerhardt N C, Hovel S, Brenner C, Hofmann M R, Lo F Y, Reuter D, Wieck A D, Schuster E, Keune W, Westerholt K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 032502
- [7] Tehrani S, Slaughter J M, Chen E, Durlam M, Shi J, DeHerrera M 1999 *IEEE Trans. Magn.* **35** 2814
- [8] Koch A J J, Hokkelling P, Steeg M G, Vos K J 1960 *J. Appl. Phys.* **31** 75S
- [9] Sakuma A 1994 *J. Phys. Soc. Jpn.* **63** 1422
- [10] Park J H, Hong Y K, Bae S, Lee J J, Jalli J, Abo G S, Neveu N, Kim S G, Choi C J, Lee J G 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 09A731
- [11] Sands T, Harbison J P, Leadbeater M L, Allen S J, Hull G W, Ramesh R, Keramidis V G 1990 *Appl. Phys. Lett.* **57** 2609
- [12] Lauhoff G, Bruynseraede C, De Boeck J, Van Roy W, Bland J A C, Borghs G 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 5290
- [13] Van Roy W, De Boeck J, Bender H, Bruynseraede C, Vanesch A, Borghs G 1995 *J. Appl. Phys.* **78** 398
- [14] Hosoda M, Oogane M, Kubota M, Kubota T, Saruyama H, Iihama S, Naganuma H, Ando Y 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 07A324
- [15] Nie S H, Zhu L J, Lu J, Pan D, Wang H L, Yu X Z, Xiao J X, Zhao J H 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 152405
- [16] Yan Z C, Huang Y, Zhang Y C, Hadjipanayis G, Soffa W, Weller D 2005 *Scr. Mater.* **53** 463

# Structural characterization and magnetic properties of perpendicularly magnetized MnAl films grown by molecular-beam epitaxy\*

Nie Shuai-Hua Zhu Li-Jun Pan Dong Lu Jun Zhao Jian-Hua<sup>†</sup>

(State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

(Received 3 May 2013; revised manuscript received 20 May 2013)

## Abstract

Perpendicularly magnetized MnAl<sub>x</sub> thin films with different Al contents have been epitaxied on GaAs (001) substrates by a molecular-beam epitaxy system. Crystalline quality of MnAl<sub>x</sub> films is closely related to Al content, and magnetic properties of MnAl<sub>x</sub> films are improved as crystalline quality of MnAl<sub>x</sub> films increases. MnAl<sub>0.9</sub> film shows the best crystalline quality and magnetic property among all samples. So we grew MnAl<sub>0.9</sub> films at different growth temperatures to further optimize growth conditions. With increasing temperature, the chemical order parameter increases and the full width at half maximum of the  $\tau$  (002) peak decreases, which reveal the improvement of crystalline quality. Higher perpendicular magnetization, coercivity and magnetic anisotropy are found as growth temperature increases. The best crystalline quality and perpendicularly magnetized properties are found at 350 °C; the coercivity of 8.3 kOe, saturation magnetization of 265 emu/cm<sup>3</sup>,  $M_r/M_s$  of 0.933 and perpendicular magnetic anisotropy constant of 7.74 Merg/cm<sup>3</sup> are achieved. These tunable perpendicularly magnetized properties and good compatibility associated with semiconductor materials make the noble-metal-free and rare-earth-free MnAl films attractive in the application of spintronic devices.

**Keywords:** molecular-beam epitaxy, high coercivity materials, magnetic anisotropy

**PACS:** 81.15.Hi, 75.50.Vv, 75.30.Gw

**DOI:** 10.7498/aps.62.178103

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11127406), and the Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922303).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: jhzhao@red.semi.ac.cn