03,05,10

Магнетизм гибридных структур SiC/Si, синтезированных методом вакансионного согласованного замещения атомов

© В.В. Романов [1], Н.И. Руль [1,2,¶], И.Д. Веневцев [1], А.В. Королев [3], С.А. Кукушкин [4], Н.Т. Баграев [2]

[1] Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,
Санкт-Петербург, Россия
[2] Физико-технический институт имени А.Ф. Иоффе,
Санкт-Петербург, Россия
[3] Институт физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук,
Екатеринбург, Россия
[4] Санкт-Петербургский государственный университет,
Санкт-Петербург, Россия
[¶] E-mail: rul_ni@spbstu.ru, sergey.a.kukushkin@gmail.com

Поступила в Редакцию 8 июня 2025 г.
В окончательной редакции 17 июля 2025 г.
Принята к публикации 17 июля 2025 г.

Проведено исследование магнитных свойств гибридных структур SiC/Si, выращенных на поверхностях *n*- и *p*-типов кремния методом вакансионного согласованного замещения атомов (VMCSA). Измерения намагниченности образцов проводились на установках SQUID при температурах 5, 100 и 350 K при напряженностях внешнего магнитного поля от −25 до 25 kOe и методом Фарадея на установке „Faraday Balance“ при комнатной температуре в полях от −11 до 11 kOe. Анализ полевых зависимостей намагниченности, полученных в эксперименте, показал высокую эффективность совместного использования этих методик для интерпретации полученных результатов. Удалось обнаружить и объяснить возникновение парамагнитной составляющей намагниченности формированием суперпарамагнитного состояния вакансий в карбиде кремния. Были обнаружены осцилляции, периодические по обратному полю, идентифицированные как эффект де Гааза–ван Альфена, а также осцилляции Ааронова–Бома, обусловленные захватом квантов магнитного потока на дефекты гибридной структуры.

Ключевые слова: намагниченность, суперпарамагнетизм, эффект де Гааза–ван Альфена, осцилляции Ааронова–Бома, карбид кремния на кремнии, кремниевые вакансии, наноструктуры.

DOI: 10.61011/FTT.2025.08.61333.161a-25

1. Введение

Перспективы развития современного приборостроения предполагают создание новых низкоразмерных полупроводниковых структур не только на основе кремния и карбида кремния, но и на основе гибридных структур этих материалов, которые по своим свойствам и возможностям применения в наноэлектронике могут иметь свойства, превосходящие свойства известных ранее материалов, изготовленных на основе карбида кремния [1–4].

В настоящей работе мы сообщаем об исследовании магнитных свойств низкоразмерных гибридных образцов карбида кремния на кремнии, выращенных на поверхностях n- и p-типов кремния методом вакансионного согласованного замещения атомов (VMCSA) [5], выполненных на основе измерения их намагниченности. При выращивании гибридной структуры SiC/Si методом VMCSA, кремниевые вакансии в начале синтеза SiC создаются не в самом карбиде кремния, а в верхнем слое кремниевой подложки [5]. Лишь затем, верхняя часть кремния с вакансиями превращается в эпитаксиальный слой карбида кремния за счет химической реакции кремния с монооксидом углерода [5]. При этом, часть кремниевых вакансий, первоначально образовавшихся в кремнии, превращаются в кремниевые вакансии, но уже в карбиде кремния. Концентрация кремниевых вакансий в слое SiC при таком методе синтезе может достигать значений порядка $10^{20}-10^{21}$ cm^{-3}, что недостижимо при создании кремниевых вакансий в SiC другими методами.

Исследование магнетизма гибридных структур SiC/Si позволило, в частности, дать экспериментальное подтверждение ранее полученным результатам квантово-химических расчетов, выполненных методом функционала плотности [6], а совместное использование двух независимых экспериментальных методов, измерений магнитных характеристик образцов, а именно сверхпроводящего квантового интерферометра (SQUID) и метода Фарадея (Faraday Balance). продемонстрировало достоверность полученных результатов и позволило обеспечить их правильную интерпретацию.

2. Экспериментальные методы и обсуждение результатов

Измерения проводились на установках с использованием сверхпроводящего квантового интерферометра

(SQUID) и метода Фарадея (Faraday Balance). Совместное использование этих методик позволило, с одной стороны, расширить в проводимых исследованиях температурные интервалы и диапазоны внешних магнитных полей, в которые помещались образцы, дополняя друг друга. С другой, в интервалах значений параметров температура и магнитное поле, реализуемых в обоих методах, наглядно продемонстрировать достоверность получаемых результатов.

Для изучения магнитных характеристик образца использовался сверхпроводящий квантовый интерферометр Quantum Design MPMS XL SQUID. Измерения проводились на установке SQUID в интервале внешних магнитных полей до 25 kOe прямой и обратной полярности с переменным шагом изменения магнитного поля при температурах 5, 100 и 350 K для образца, полученного на подложке *n*-типа, и при 5 K на подложке *p*-типа. В процессе измерений плоскость исследуемого образца была ориентирована перпендикулярно направлению внешнего магнитного поля. На рис. 1 приведены полевые зависимости намагниченности гибридной структуры SiC/Si, выращенной методом вакансионного самосогласованного замещения атомов на подложках кристаллов кремния *n*-типа и *p*-типа.

Проведенное исследование температурной зависимости структуры SiC/Si на подложке *n*-типа (рис. 2), позволило идентифицировать вклад ориентационного парамагнетизма в результирующую намагниченность образца в высоких полях [7], а также соответствующее значение диамагнитной восприимчивости исследуемой структуры.

В высоких полях поведение полученных зависимостей намагниченности структур SiC/Si на обеих подложках идентично (рис. 1). Исключение составляет очевидное различие их магнитных свойств в полях ниже 4 kOe. Поэтому в относительно слабых полях, не превышающих 4 kOe, были проведены измерения намагниченности образцов исследуемых структур при комнатной температуре на установке Faraday Balance, обладающей более высокой чувствительностью и информативностью в указанном интервале магнитных полей [8].

На установке Faraday Balance, созданной на основе спектрометра MGD 3 12 FG, измерения проводились при комнатной температуре в технически доступном интервале магнитных полей до 11 kOe, где магнитное поле изменялось с шагом 1 Oe в области слабых полей до 1.1 kOe и с шагом 5 Oe в области сильных полей, методом Фарадея в автоматическом режиме. Используемый метод измерения — метод Фарадея — применяется для измерения магнитных характеристик образцов материалов, линейные размеры которых не превышают 3 mm, в неоднородном магнитном поле, градиент которого создается полюсными наконечниками специальной формы [9]. Полученная полевая зависимость намагниченности образца представляет собой последовательность результатов измерений, полученных при квазинепрерывном изменении внешнего магнитного поля при достижении образцом термодинамически

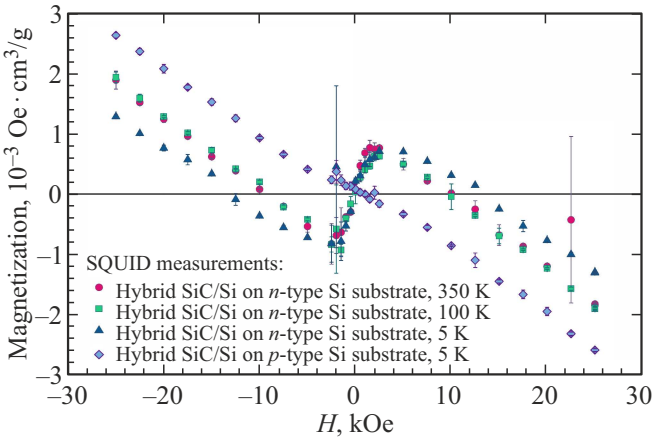

Рис. 1. Полевые зависимости гибридных структур SiC/Si, выращенных на кремнии различного типа легирования, полученные на сверхпроводящем квантовом интерферометре.

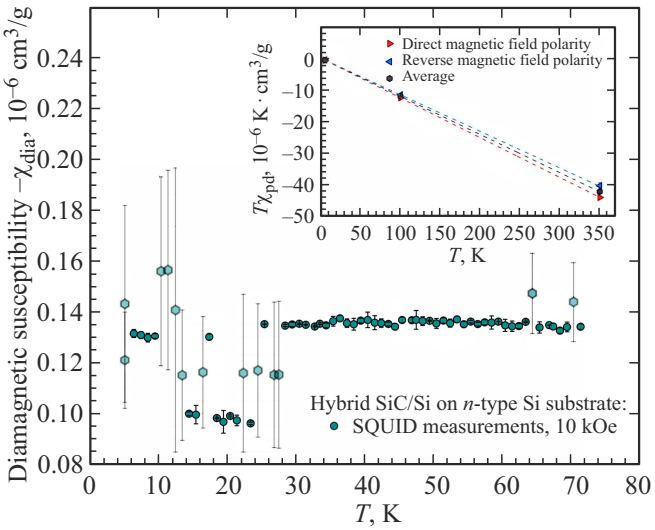

Рис. 2. Температурная зависимость магнитной восприимчивости гибридной структуры SiC/Si, выращенной на кремнии *n*-типа.

равновесных состояний. Сила взаимодействия образца с магнитным полем измерялась с помощью высокоточных весов microbalance 10^{-8} с точностью 10^{-7} g, что и определяло погрешность измерения магнитной восприимчивости образца, массой до 100 mg как 10^{-8} cm^3/g.

Связь между силой, действующей на образец в магнитном поле, характеристиками поля и статической магнитной восприимчивостью образца задается хорошо известным выражением

$$F = m\chi H \frac{dH}{dz},$$

где χ — удельная статическая магнитная восприимчивость, имеющая размерность обратной плотности, H — напряженность внешнего магнитного поля, dH/dz — градиент магнитного поля, z — вертикальная ось, m —

масса образца, измеряемая на лабораторных весах с точностью 10^{-5} g.

При анализе массива полученных данных магнитная восприимчивость или намагниченность считались изменившимися, если определяющая их сила взаимодействия образца с внешним магнитным полем отличалась от предыдущего значения не менее чем на 10^{-7} g, после чего проводились обсуждение и интерпретация результатов измерений.

Таким образом, установка Faraday Balance позволяет проводить измерения магнитных характеристик низкоразмерных структур при высоких температурах, вообще говоря, при комнатной и выше, в слабых магнитных полях.

Анализ полученных зависимостей выполнен нами, исходя из концепции аддитивных вкладов, вносимых составляющими гибридной структуры SiC/Si, прежде всего, кремниевой подложки, выращенного на её поверхности слоя SiC, а также переходной области между ними.

Измеренная на SQUID'е полевая зависимость намагниченности гибридной структуры SiC/Si, выращенной на подложке кремния n-типа, наглядно демонстрирует парамагнитную составляющую, проявляющуюся в интервале напряженности внешнего магнитного поля от 0 до ~ 4 kOe и испытывающую насыщение, на фоне практически линейно нарастающего с полем диамагнетизма образца (рис. 1).

На основе проведенных измерений было выдвинуто предположение, что этот эффект обусловлен наличием в образце неконтролируемой ферромагнитной примеси [7]. Для проверки этой гипотезы были проведены измерения полевой зависимости намагниченности образца на установке Faraday Balance. Метод Фарадея, используемый для измерений, предполагает измерение „магнитного веса" образца, помещенного в кварцевую чашечку и свободно подвешенного в пространстве между полюсами электромагнита. По своей идее метод Фарадея используется для изучения слабомагнитных образцов, поскольку материалы, содержащие ферромагнитные примеси, будут отклоняться в сторону одного из полюсов магнита и демонстрировать тенденцию к „прилипанию", обнаруживая ярко выраженные особенности на полевой зависимости намагниченности. В нашем эксперименте этого не произошло (рис. 3). Кроме того, даже слабый примесный ферромагнетизм мог быть идентифицирован по наличию гистерезиса. Однако на полученной зависимости магнитный гистерезис не наблюдался. Поэтому наблюдаемый эффект потребовал иного объяснения.

По-видимому, за обсуждаемый парамагнитный вклад, наблюдаемый на полевых зависимостях намагниченности гибридной структуры SiC/Si, сформированной на подложке кремния *n*-типа проводимости, измеренных на установках SQUID и Faraday Balance, отвечает ансамбль обладающих аномально большими магнитными моментами слабовзаимодействующих дефектов структуры, сформированных обменно связанными кремниевыми вакансиями в SiC. А именно, в процессе предварительного отжига материала подложки в вакууме при температуре 1300–1400 °C в кремнии образуются вакансии, часть из которых превращается в кремниевые вакансии в SiC, обладающие магнитными моментами. В [6], используя метод функционала плотности, авторы показали, что энергетически целесообразным является формирование ансамблей кластеров, образованных кремниевыми вакансиями в слое карбида кремния на кремнии, что получило подтверждение в нашем эксперименте.

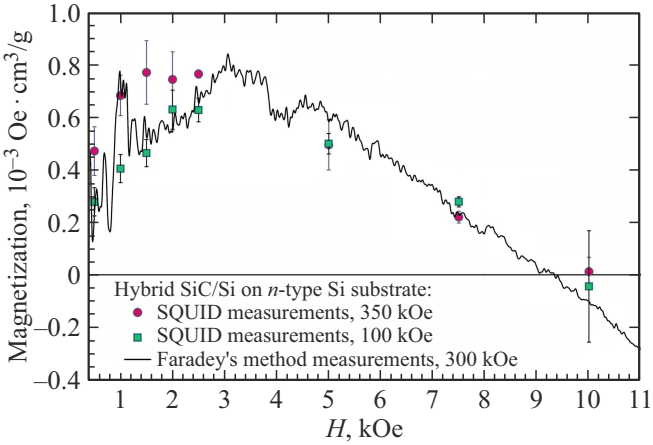

Рис. 3. Полевая зависимость намагниченности гибридной структуры SiC/Si, выращенной на поверхности кремния *n*-типа, полученная методом Фарадея при температуре 300 K в сравнении с результатами измерений на установке SQUID.

Таким образом, аддитивный парамагнитный вклад в намагниченность образца может быть интерпретирован как суперпарамагнетизм [10] исследуемой гибридной структуры.

В обоснование предложенной модели следует отметить, что выполняются оба требования экспериментального подтверждения наличия суперпарамагнитного состояния в исследуемой системе: во-первых, отсутствие гистерезиса на кривой намагничивания, во-вторых, отсутствие расхождения кривых намагниченности в координатах MH/T, измеренных на SQUID'е при разных температурах. Последнее свидетельствует о пренебрежимо слабом взаимодействии между кластерами обменно связанных вакансий.

На кривой полевой зависимости намагниченности гибридной структуры SiC/Si, выращенной на подложке p-типа (рис. 4), обсуждаемую особенность не удается надежно идентифицировать.

Механизм упорядочения магнитных моментов кремниевых вакансий в составе кластеров посредством обменного взаимодействия требует отдельного исследования. В то же время, полученные результаты позволяют допустить, что за формирование магнитного порядка в обсуждаемых дефектах структуры может отвечать косвенный обмен через носители заряда [11]. Этот вывод хорошо коррелирует с результатами измерения концентрации носителей заряда [6], поскольку в струк-

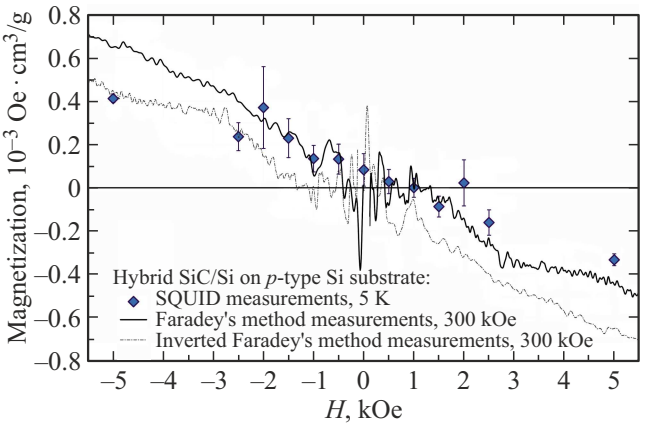

Рис. 4. Полевая зависимость намагниченности гибридной структуры SiC/Si, выращенной на поверхности кремния p-типа, полученная методом Фарадея при температуре 300 K в сравнении с результатами измерений на установке SQUID.

туре, выращенной на подложке *p*-типа, где концентрация носителей на порядок меньше, чем в подложке кремния с донорным легированием, обсуждаемый эффект практически не наблюдается.

Здесь, в первую очередь, мы обращаем внимание на наблюдаемые в эксперименте осцилляции намагниченности, периодические по обратному полю (рис. 5), на фоне уходящей в диамагнитную область базовой кривой намагниченности исследуемой гибридной структуры. Эту особенность мы интерпретировали как макроскопический квантовый эффект де Гааза–ван Альфена, обусловленный изменением населенности уровней Ландау во внешнем магнитном поле [12]. По результатам эксперимента значение первого критического поля (фактор заполнения $\nu = 1$) лежит в интервале (3.39 ± 0.05) kOe.

Усовершенствования, внесенные в систему регистрации сигнала на установке Faraday Balance, позволили разрешить наблюдаемый спектр полевой зависимости намагниченности и идентифицировать осцилляции де Гааза–ван Альфена в гибридной структуре SiC/Si с фактором заполнения $\nu > 20$ при комнатной температуре (рис. 5) в магнитном поле с напряженностью $H \leq 150$ Oe, что, в перспективе, может позволить определить характеристики носителей заряда. Шёнберг [13] показал, что при описании эффекта де Гааза–ван Альфена в двумерных структурах должны обсуждаться не только характеристики осцилляций, но и базовая составляющая, относительно которой осциллирует магнитный момент. В свое время А.М. Косевич и И.М. Лифшиц [14,15] не вычисляли базовую кривую в эффекте де Гааза–ван Альфена, полагая, что она должна определятся из опыта. В нашем эксперименте (рис. 6), по мере уменьшения фактора заполнения ($\nu \sim 10-20$), базовая кривая уходит в диамагнитную область, а затем осцилляции продолжаются относительно кривой, образованной суперпозицией диамагнитной составляющей гибридной структуры и парамагнетизмом, обусловленным суперпарамагнитным эффектом. Помимо описанного эффекта Гааза-ван Альфена, следует отметить осцилляции намагниченности, периодические по магнитному полю (рис. 6). Это явление, по-видимому, обусловлено эффектом Ааронова–Бома, демонстрирующим захват квантов магнитного потока на дефекты низкоразмерной структу-

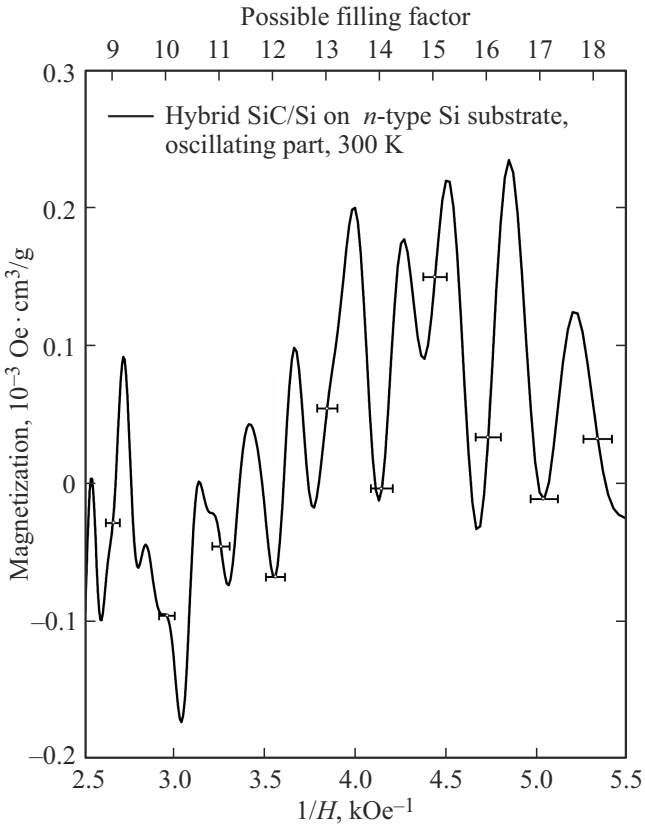

Рис. 5. Осцилляции де Гааза–ван Альфена, обнаруженные в гибридной структуре SiC/Si, выращенной на поверхности кремния *n*-типа.

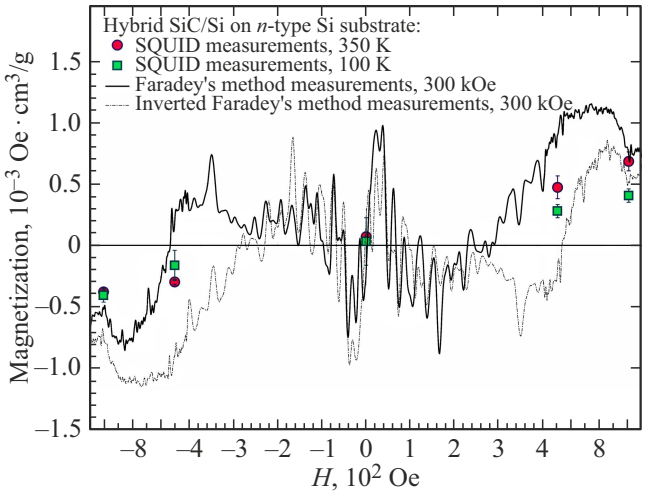

Рис. 6. Полевая зависимость намагниченности гибридной структуры SiC/Si, выращенной на поверхности кремния *n*-типа, в области слабых полей.

ры. Анализ возникновения осцилляций Ааронова–Бома в аналогичных средах нами уже обсуждался в [16,17]. Поэтому мы не будем вновь к нему обращаться, чтобы не перегружать представленный здесь материал.

В дополнение к сказанному выше, исходя из результатов измерений на установке Faraday Balance, которая, позволяет зарегистрировать особенности, проявляющиеся на кривой намагниченности в полях ниже 4 kOe. нами был проанализирован вклад, вносимый в намагниченность гибридной структуры SiC/Si нанослоем SiC.

3. Заключение

В результате проведенного исследования, показано, что гибридные структуры SiC/Si, выращенные на поверхностях *n*- и *p*-типов кремния методом вакансионного согласованного замещения атомов, являются диамагнетиками.

Кремниевые вакансии в SiC, изначально образованные в кремнии в процессе термической обработки используемых подложек, вносят аддитивный парамагнитный вклад в намагниченность структуры.

Обменно-связанные вакансии формируют ансамбли кластеров, распределенных в наноразмерном слое SiC на кремнии *n*-типа, реализуя суперпарамагнитный вклад в намагниченность исследуемой систем.

В нанослое SiC формируются уровни Ландау, заселенность которых изменяется во внешнем магнитном поле, демонстрируя эффект де Гааза–ван Альфена в двумерной структуре.

Захват квантов магнитного потока на дефекты низкоразмерной структуры приводит к возникновению осцилляций Ааронова–Бома.

Благодарности

Авторы искренне признательны А.С. Гращенко за помощь при синтезе слоев SiC на Si.

Финансирование работы

С.А. Кукушкин выполнял свою часть работы при поддержке СПбГУ, шифр проекта ID Pure 129360164.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

[1] G.L. Harris. Properties of silicon carbide. United Kingdom, IEE, London (1995).
[2] S.A. Tarasenko, A.V. Poshakinskiy, V.A. Soltamov, E.N. Mokhov, P.G. Baranov, V. Dyakonov, G.V. Astakhov. Phys. Status Solidi (b) **255**, *1*, 1700258 (2018). DOI: 10.48550/arXiv.1707.05503
[3] L.M. Soltys, I.F. Mironyuk, I.M. Mykytyn, I.D. Hnylytsia, L.V. Turovsk. Phys. Chem. Solid State **24**, *1*, 5 (2023). DOI: 10.15330/pcss
[4] S.P. Masri. Surf. Sci. Rep. **48**, *1–4*, 1 (2002). DOI: https://doi.org/10.1016/S0167-5729(02)00099-7
[5] A.S. Grashchenko, S.A. Kukushkin, A.V. Osipov, A.V. Redkov. Catal. Today. **397–399**, *8*, 375 (2021). DOI: 10.1016/J.CATTOD.2021.08.012
[6] С.А. Кукушкин, А.В. Осипов. Письма в ЖТФ **50**, *21*, 19 (2024). DOI: 10.61011/PJTF.2024.21.58953.20027 [S.A. Kukushkin, A.V. Osipov. Technical Physics Letters **50**, *11*, 16 (2024). DOI: 10.61011/TPL.2024.11.59658.20027]
[7] N.I. Rul, V.V. Romanov, A.V. Korolev, S.A. Kukushkin, V.E. Gasumyants. Mater. Phys. Mech. **52**, *6*, 1 (2024). DOI: 10.18149/MPM.5262024_1
[8] V.V. Romanov, N.I. Rul, V.E. Gasumyants, I.D. Venevtsev, K.B. Taranets, A.V. Korolev, S.A. Kukushkin, A.V. Osipov, N.T. Bagraev. Mater. Phys. Mech. **53**, *1*, 159 (2025). DOI: http://dx.doi.org/10.18149/MPM.5312025_1
[9] Р. Уайт. Квантовая теория магнетизма. Москва: Мир; 1985, 303 с.
[10] C.P. Bean, J.D. Livingston. J. Appl. Phys. **30**, *4*, 120 (1959). DOI: 10.1063/1.2185850
[11] К.М. Хёрд. УФН. **142**, *2*, 331 (1984). DOI: https://doi.org/10.3367/UFNr.0142.198402e.0331
[12] W.J. de Haas, P.M. van Alphen. Proceeding of the Royal Netherlands Academy of Arts and Science. **33**, 1106 (1931).
[13] D. Shoenberg. Magnetic oscillations in metals. Cambridge Univ. Press (1984).
[14] И.М. Лифшиц, А.М. Косевич. ЖЭТФ **29**, 730 (1955). [I.M. Lifshitz, and A.M. Kosevich. Soviet Physics JETP **2**, *4*, 636 (1956)].
[15] А.М. Косевич, И.М. Лифшиц. ЖЭТФ **29**, 743 (1955). [A.M. Kosevich and I.M. Lifshitz, Soviet Physics JETP. **2**, *4*, 646 (1956)].
[16] Y. Aharonov, D. Bohm. Phys. Rev. **115**, *3*, 485. (1959). DOI: https://doi.org/10.1103/PhysRev.115.485
[17] N.T. Bagraev, S.A. Kukushkin, A.V. Osipov, V.V. Romanov, L.E. Klyachkin. A.M. Malyarenko, N.I. Rul. Mater. Phys. Mech. **50**, *1*, 66 (2022). DOI: http://dx.doi.org/10.18149/MPM.5012022_5

Редактор Ю.Э. Китаев