

高エネルギー光電子分光による Cr を添加した GaN の電子構造の 温度依存性

Temperature dependence of electronic structure of Cr-doped GaN studied by high-energy photoemission spectroscopy

牧野 久雄^a、金正鎮^{b,d}、齊藤 祐児^c、竹田 幸治^c、池永 英司^d、

小林 啓介^d、八百 隆文^{a,b}

H. Makino^a, J.J.Kim^{b,d}, Y. Saito^c, Y. Takeda^c, E. Ikenaga^d, K. Kobayashi^d and T. Yao^{a,b}

^a 東北大金研、^b 東北大学際セ、^c 原研/SPring-8、^dJASRI/SPring-8

^aIMR/Tohoku Univ., ^bCIR/Tohoku Univ., ^cJAERI/SPring-8, ^dJASRI/SPring-8

硬 X 線を励起光としたバルク敏感な光電子分光法を用いて、伝導異常を示す希薄磁性半導体 GaCrN 薄膜の電子構造の温度依存性に関する研究を行った。室温で観測されていた Cr ドープによって出現するギャップ内状態は、30K の低温では観測されなかった。これには励起エネルギーの違いによるイオン化断面積の違いが影響している可能性がある。

Temperature dependence of electronic structure of diluted magnetic semiconductor GaCrN, which shows anomaly in transport property, has been studied by bulk-sensitive high-energy photoemission spectroscopy. An in-gap state observed at room temperature was not observable at 30 K. Different excitation energy may be responsible for the disappearance of the in-gap states due to different cross section.

21 世紀の高度情報化社会を支えていくためには、従来の半導体デバイスをナノスケールで高密度に集積するとともに、従来にないような機能を保持させ高性能化することが望まれる。そのアプローチの一つとして、電子の持つ電荷に加えて電子のスピンに着目し、これらを制御することにより駆動する新しいデバイス応用の可能性が議論されている[1]。そして、電子のスピン自由度を電子デバイスとして積極的に利用しようとするスピントロ

ニクス分野は、デバイス実現に向けた基礎研究、新材料の探索が今後益々発展するナノテクノロジー分野である。

現在、スピントロニクス材料として注目されている希薄磁性半導体では、局在性の強い 3d 電子が非磁性半導体に強磁性発現や磁気光学効果といった磁気的性質を保持させる役割を担っている。一方、3d 電子系のバラエティに富んだ物性は、酸化物系における高温超伝導、巨大磁気抵抗効果、強誘電特性などで

よく知られている。本研究で対象とする GaCrN 系は、室温で強磁性を示すことからスピントロニクス材料として期待されてきた物質系である[2]。最近になって、GaCrN は本質的には常磁性であると報告されたが[3]、バラエティに富んだ 3d 電子系を考えれば未知なる物性の発現も期待され、その物性の理解が緊急の課題となっている。我々は、分子線エピタキシ法により GaCrN 薄膜試料を作製し、その物性を様々な手法を用いて明らかにしてきた。そして、伝導特性において特異な振舞いを示すことを見出した。図 1 にアンモニア援用分子線エピタキシ法により作製された $\text{Ga}_{0.97}\text{Cr}_{0.03}\text{N}$ 薄膜試料の電気抵抗の温度依存性を示す。室温から約 100K の温度範囲では、温度の低下とともに抵抗が増大するいわゆる半導体的な振舞いを示すのが、約 100K 以下の温度領域では温度低下とともに抵抗が減少する金属的な振舞いを示すことが見て取れる。強磁性希薄磁性半導体の GaMnAs においても、このような金属一絶縁体転移が観測され、強磁性発現に深く関与していると考えられている[4]。しかし、今回測定した試料においては、室温でも安定な強磁性成分と常磁性成分とが観測されるが、磁性と伝導特性との関連性は現在のところ見られていない。しかし、伝導異常に伴う電子状態変化を明らかにすることは、物性物理学上きわめて興味深い。

SPring-8 で開発された硬 X 線高エネルギー光電子分光法はバルク敏感であり、表面処理の難しい薄膜試料においても電子状態の研究に威力を發揮することが広く認識されるようになってきた[5]。そこで、本研究では GaCrN の電子状態の温度依存性を高エネルギー光電子分光法により調べ、観測された伝導異常に

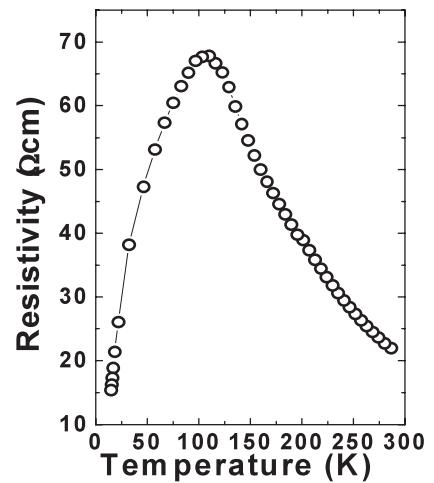


Fig.1. Temperature dependence of the resistivity of $\text{Ga}_{0.97}\text{Cr}_{0.03}\text{N}$

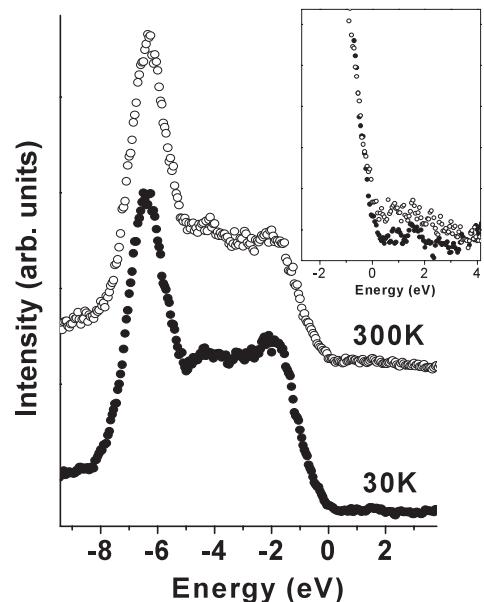


Fig.2. Valence band photoemission spectra of the $\text{Ga}_{0.97}\text{Cr}_{0.03}\text{N}$ measured at 5.95keV and 300K (open circles) and that measured at 3.49keV and 30K

に関する新たな知見を得ることを目的として研究を行った。

高エネルギー光電子分光の実験は、BL22XUにおいて 3.5keV の励起エネルギーで行った。試料は He 循環式クライオスタットを用いて 30K から室温まで温度を変えることが出来る。しかし、今回の実験では試料が高抵抗であったため、試料のチャージアップが生じ、信頼できる光電子スペクトルは 30K、40K でしか測定できなかった。そこで、本報

告では、従来から測定してきた同様試料の室温での光電子スペクトルとの比較を行う。図2に、今回測定した30KにおけるGaCrNの価電子帯光電子スペクトル（黒丸）、および、BL29XUで2003年10月に励起エネルギー5.95keVで測定した室温での価電子帯光電子スペクトル（白丸）を示す。内挿図は、価電子帯頂上付近の拡大図である。300Kにおける光電子スペクトルでは、Crドープにより出現したギャップ内状態が見て取れる。このギャップ内状態は、主にGa4sを起源とした状態であり、Cr3d軌道とGa4s軌道とがN2p軌道を介して混成することによるものと考えている[6]。それに比較して、今回測定した30Kでのスペクトルでは、このギャップ内状態の強度が有意に抑制されており、ノイズレベルを考えればギャップ内状態は観測されないと見える。

この変化は、伝導異常を引き起こすような電子状態の変化を反映している可能性がある。しかし、ここでは少し注意が必要である。30Kのスペクトルを測定した3.5keVと室温スペクトルを測定した5.9keVとでは、Ga4s、N2pに対する光イオン化断面積が異なるため[7]、その違いがスペクトルの違いを引き起こしている可能性がある。実際、価電子帯スペクトルでは、それぞれの励起エネルギーにおけるGa4sとN2pのイオン化断面積の違いがスペクトル形状に違いを与えていている。バンド計算によれば、価電子帯頂上付近はN2pが支配的であり、-6eV付近のメインピークはGa4sが支配的であることが分かっている。3.5keVで測定した30Kでのスペクトルでは、N2pがGa4sに対して相対的に強くなっているように見える。Ga4sのイオン化断面積が小さくな

ると、Ga4s起源のギャップ内状態はより観測されにくくなるとも考えられる。

今後の課題となるが、機会が得られれば、高抵抗試料の光電子分光実験を可能とする測定手法を用いて、伝導異常を示すGaCrN系の電子構造の温度変化を明らかにしていきたい。

参考文献

- [1] H. Ohno, Science **281**, 951 (1998)
- [2] S. J. Pearton, C. R. Abernathy, D. P. Norton, A. F. Hebard, Y. D. Park, L. A. Boatner, J. D. Budai, Mat. Sci. Eng. R **40**, 137 (2003)
- [3] K. Yamaguchi, H. Tomioka, T. Yui, T. Suemasu, K. Ando, R. Yoshizaki, F. Hasegawa, J. J. Appl. Phys. Part 2, **43**, L1312 (2004)
- [4] F. Matsukura, H. Ohno, A. Shen, and Y. Sugawara, Phys. Rev. B **57**, R2037 (1998)
- [5] Y. Takata, K. Tamasaku, T. Tokushima, D. Miwa, S. Shin, T. Ishikawa, M. Yabashi, K. Kobayashi, J. J. Kim, T. Yao, T. Yamamoto, M. Arita, H. Namatame, and M. Taniguchi, Appl. Phys. Lett. **84**, 4310 (2004); K. Kobayashi, M. Yabashi, Y. Takata, D. Miwa, T. Ishikawa, H. Nohira, T. Hattori, Y. Sugita, O. Nakasuka, A. Sakai, and S. Zaima, Appl. Phys. Lett. **83**, 1005 (2003); K. Kobayashi, Y. Takata, T. Yamamoto, J. J. Kim, H. Makino, K. Tamasaku, M. Yabashi, D. Miwa, T. Ishikawa, S. Shin, and T. Yao, Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L1029 (2004)
- [6] J. J. Kim, H. Makino, K. Kobayashi, Y. Takata, T. Yamamoto, T. Hanada, M. W. Cho, E. Ikenaga, M. Yabashi, D. Miwa, Y. Nishino, K. Tamasaku, T. Ishikawa, S. Shin, and T. Yao, Phys. Rev. B, **70**, R161315 (2004)
- [7] J. J. Yeh and I. Lindau, Atomic Data and Nuclear Data Tables **32**, 1 (1985)