

遷移金属イオンを添加したGaN系窒化物薄膜の軟X線MCD

牧野 久雄^a, 金 正鎮^a, 中村 哲也^b, 室 隆桂之^b, 八百 隆文^a
^a 東北大学金属材料研究所, ^b 高輝度光科学研究センター

背景

電子の電荷を制御する従来のエレクトロニクスに対して、電子の持つスピン自由度まで制御することにより新しい電子デバイスを実現しようとする、いわゆるスピントロニクスの研究が活発に展開されている。スピントロニクス材料として注目されている系として、半導体に遷移金属をドーパした希薄磁性半導体または混晶半導体が挙げられる。半導体におけるスピントロニクス材料研究の観点では、実デバイス応用に向けて室温で強磁性を発現する材料の探索が望まれている。

環境調和型のワイドギャップ半導体である窒化ガリウム (GaN) は、青緑色から紫色の短波長領域をカバーする発光素子材料として実用化にいたっているが、GaNに遷移金属を添加した系において高い温度での強磁性発現が理論的に予言され^{1) 2)}、実験的にもGaN: MnやGaN: Crにおいて室温以上での強磁性発現が報告されている³⁾。しかし、強磁性の起源として磁性クラスター等の析出も指摘されており、この系の強磁性発現に関する実験的な解明が緊急の課題となっている。

一方、試料のサイズがナノメートルオーダーになってくると、電子のスピンがより顕在化することから、スピントロニクスはナノテクノロジー分野と直結した研究分野といえる。近年、半導体スピントロニクス材料を用いたヘテロ構造やナノ構造の作製とその物性研究が活発に行われており、ナノテクノロジー分野の研究として今後ますます発展すると期待される。

軟X線共鳴吸収を利用したX線磁気円二色

性(XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism)により、マクロな磁気特性では得られない新たな磁気情報を元素選択的に得ることができる。遷移金属を添加したGaN系では、遷移金属イオンが磁性を担っていると考えられるが、遷移金属に隣接する陰イオンについても、ある程度スピン分極している可能性があり極めて興味深い。本研究では、分子線エピタキシー法により作製した遷移金属ドーパGaNを試料として、ドーピングした遷移金属イオンおよびそれを取り囲む窒素イオンについて、元素選択的なXMCD測定を行い、遷移金属ドーパGaN系における磁性発現に関する新たな知見を得ることを目的としている。

実験

実験はBL25の電磁石MCD装置を用いて行った。印加磁場は1.4Tであり、試料表面に垂直に印加した。X線吸収測定は全電子収量法により行い、XMCDスペクトルの測定は分光された円偏光軟X線を試料表面に垂直に照射し、印加される磁場方向を反転しながら測定した。さらに、偏光方向を反転して同様の測定を行い、左右円偏光の差を取ることににより余分なバックグラウンド成分を除去した。また、測定は室温で行っている。

GaNに遷移金属としてCrをドーパした薄膜試料は、サファイア基板上に成長したZnOテンプレート上に、分子線エピタキシー法により作製した。高分解X線回折による評価では、Cr濃度10%の試料まで2次析出相に相当するピークは観測されていない。また、窒素源としてはアンモニアを用いている。今回は、

室温で磁気ヒステリシスが観測されたCr組成が約10%の試料を用いて測定を行った。

実験結果

図1にCr $L_{2,3}$ 吸収端の軟X線吸収スペクトル(a)とそれに対応したXMCD測定の結果(b)を示す。Cr $L_{2,3}$ 吸収端の軟X線吸収スペクトルはCr $2p \rightarrow 3d$ 双極子遷移に相当し、 $2p$ 内殻ホールのスピン-軌道相互作用によって支配される。試料のチャージアップの影響をなくすために、光強度を調節しながら測定したが、吸収スペクトルは良好なS/N比で測定されており、十分なX線吸収量が得られていることが分かる。しかし、図1(b)に見られるように、明確なXMCD信号は観測されなかった。

図2に窒素のK吸収端の軟X線吸収スペクトル(a)とそれに対応したXMCD測定の結果(b)を示す。ここで、軟X線吸収スペクトルはN $1s \rightarrow 2p$ の電子遷移に相当しており、GaNの伝導帯を形成するN $2p$ の非占有部分状態密度とよく一致することが報告されている⁴⁾。注目すべき点は、397eV付近に明確なプレッジ構造が観測されることである。このような構造は母体となるGaNでは観測されず、CrをドーピングすることによってCrの3d軌道と

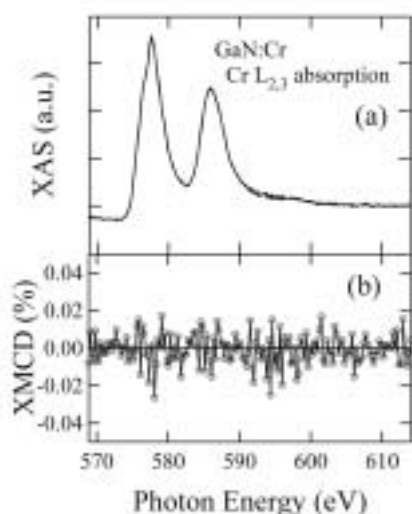


図1 Cr $L_{2,3}$ edgeでのX線吸収スペクトル(a)とそれに対応するXMCDの測定結果(b)。

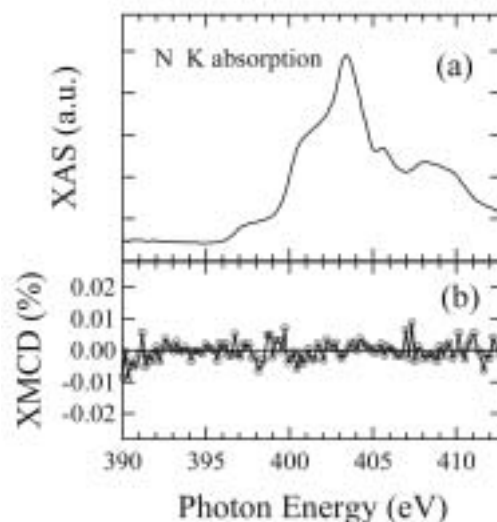


図2 N K-edgeの軟X線吸収スペクトル(a)とそれに対応するXMCDの測定結果(b)。

の相互作用により窒素の電子状態が大きく変化し、GaNバンドギャップ内に新たな状態が形成されたと理解することが出来る。これは、GaCrN系のバンド構造を理解する上で重要な結果である。しかし、Cr $L_{2,3}$ 吸収の場合と同様に明確なMCD信号は観測されなかった。

今後の課題

今回の実験では、窒素のK吸収端の軟X線吸収スペクトルに大きな変化が観測され、この系のバンド構造を理解する上で重要な情報が得られた。しかし、Cr $L_{2,3}$ 吸収端、窒素K吸収端ともに明確なMCD信号は得られなかった。試料作製も含めて再検討する必要があるが、実験の観点ではより精度の高いMCD測定の実現が望まれる。

参考文献

- 1) T. Dielt, H. Onno, F. Matsukura, J. Cibert, and D. Ferrand, *Science* **287**, 1019 (2000)
- 2) K. Sato and H. Katayama-Yoshida, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, L485 (2001)
- 3) S.J. Pearton *et al.*, *J. Appl. Phys.* **93**, 1 (2003)
- 4) C.B. Stagaescu *et al.*, *Phys. Rev. B* **54**, 17335 (1996)