

## 軟 X線 MCD による $\text{Ga}_{0.97}\text{Cr}_{0.03}\text{N}$ 希薄磁性半導体の磁化温度特性解析

牧野 久雄<sup>a</sup>、金正鎮<sup>b</sup>、中村 哲也<sup>c</sup>、室 隆桂之<sup>c</sup>、八百 隆文<sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> 東北大学金属材料研究所、<sup>b</sup> 東北大学金属材料研究所、<sup>c</sup> 高輝度光科学研究センター

**背景:** 半導体に遷移金属をドーピングした希薄磁性半導体または混晶半導体における強磁性発現により、電子の電荷・スピンを制御する新しいデバイス応用が展望され、半導体スピントロニクス分野として活発に研究されている。材料開発の観点では、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が、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 ( $\text{GaN}$ ) に遷移金属をドーピング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<sup>1) 2)</sup>、実験的にも  $\text{GaN:Mn}$  や  $\text{GaN:Cr}$  において室温以上での強磁性発現が報告されている<sup>3)</sup>。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。

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) では、マクロな磁気特性では得られない磁気情報を元素選択的に得ることができる。遷移金属ドーピング  $\text{GaN}$  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、発現機構を解明する上でも極めて重要な知見を与えることが期待される。そこで本研究では、分子線エピタキシー法により作製した遷移金属ドーピング  $\text{GaN}$  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の XMCD 測定から、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 BL25SU の XMCD 装置を用いて行った。磁場は 1.4T の永久磁石により、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、Twin Helical Undulator により偏光方向を 1 Hz で反転しながら、各測定エネルギーでの X線吸収を測定した。さらに、印加される磁場方向を反転して同様の測定を行い、2つの磁場方向での差を取ることで測定系に既存するバックグラウンド成分を除去した。

Cr ドーピング  $\text{GaN}$  薄膜試料は、サファイア基板上にアンモニア援用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ない。Cr 低濃度試料では、強磁性的な振る舞いを示し、Cr 濃度の増加にともない常磁性的な成分が観測される<sup>4)</sup>。今回、Cr 組成が約 3%の試料を用いて、試料表面の劣化とチャージアップを防ぐために、約 2 nm の In キャップ層を形成し、XMCD の温度依存性を測定した。

**実験結果:** 図 1 に、40Kにおける Cr  $L_{2,3}$ -edge X線吸収スペクトルとそれに対応する XMCD スペクトルを示す。Cr  $L_{2,3}$ -edge では、XAS 吸収ピークに対して約 6%程度の明確な XMCD 信号が観測された。XMCD 信号のメインピーク強度の温度依存性を図 2 に示す。XMCD 強度は温度の増加とともに単調に減少し、XMCD 強度の逆数を温度に対してプロットすると、直

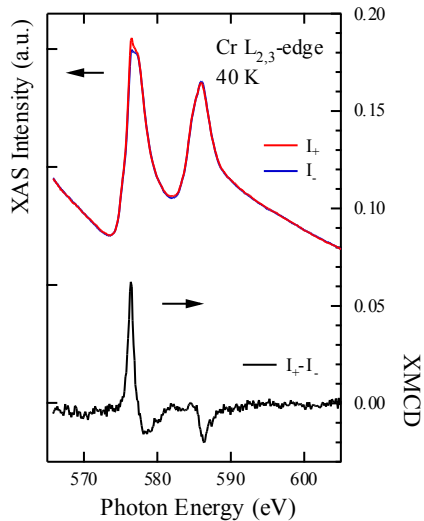


図1 40KにおけるCr L<sub>2,3</sub>-edge X線吸収スペクトル(a)とそれに対応するXMCDスペクトル(b)。

線にのることが見てとれる (図2挿入図)。このことから、Cr L<sub>2,3</sub>-edge XMCDの温度依存性は、Curie-Weiss的に変化することが分かる。また、Weiss温度は14Kと見積もられ、強磁性的な相互作用が示唆される。

同じ試料についてSQUID磁束計を用いて測定した磁化の温度依存性では、常磁性成分が支配的ではあるが、それとともに強磁性成分が磁化温度依存性においてオフセットとして観測される。図2に示したように、XMCD強度の温度特性は、SQUIDで測定された常磁性成分とよい一致を示した。ここで、SQUID測定により得られた左軸の値に注意すると、ある有限のオフセット成分が存在することが見てとれる。このオフセット成分が、室温でも観測される強磁性成分に相当している。しかし、マクロな磁化特性において観測された強磁性成分は、Cr L<sub>2,3</sub>-edge XMCDでは観測されていないことが分かる。Inキャップの有無によって性に大きな違いはないことから、強磁性成分は表面の酸化などに起因したものではない。また、残留不純物等に起因するものではないことも確認している。以上を考慮すると、この結果は次の2つ可能性を示唆している。第一に、マクロな磁気特性で観測される強磁性成分が、薄膜試料

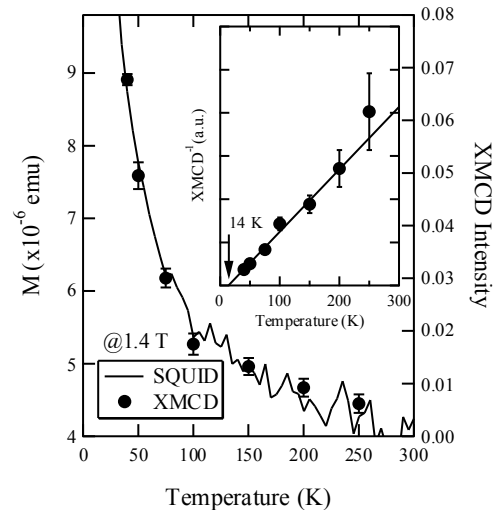


図2 XMCD強度の温度依存性とマクロな磁気特性との比較。挿入図はWeissプロットを示す。

内の局所的なある部分 (XMCDで観測している部分以外) に起因している可能性、第二に強磁性を示す相は空間的に分布しており、それは試料全体にわたって分布しているが、XMCD信号を与えている試料領域においては、何らかの影響で強磁性が抑制されている可能性が考えられる。今回の結果から結論は得られないが、希薄磁性半導体の強磁性においては、強磁性と常磁性の共存の可能性も議論されており興味深い結果である。

最後に、遷移金属イオンを取り囲む窒素K-edgeの実験結果を述べる。今回、偏光反転法を採用することにより、N K-edge X線吸収ピークに対して±0.1%程度のノイズレベルでXMCD測定が可能であった。しかし、このノイズの範囲内ではN K-edgeに対応するXMCD信号は観測できなかった。

### 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) J.J. Kim *et al.*, *phys. stat. sol.* (c) (in press)