

## IV-VI 族希薄磁性半導体 $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ の Mn 2p-3d XMCD

### Mn 2p-3d XMCD of IV-VI diluted semiconductor $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$

佐藤仁<sup>a</sup>, 藤本浩二<sup>b</sup>, 福間康裕<sup>c</sup>, 辻憲一郎<sup>b</sup>, 木村昭夫<sup>b</sup>, 浅田裕法<sup>d</sup>, 小柳剛<sup>d</sup>,  
仙波伸也<sup>e</sup>, 谷口雅樹<sup>a,b</sup>

Hitoshi Sato<sup>a</sup>, Koji Fujimoto<sup>b</sup>, Yasuhiro Fukuma<sup>c</sup>, Kenichiro Tsuji<sup>b</sup>, Akio Kimura<sup>b</sup>, Hironori Asada<sup>d</sup>,  
Tsuyoshi Koyanagi<sup>d</sup>, Shinya Senba<sup>c</sup>, Masaki Taniguchi<sup>a</sup>

<sup>a</sup> 広島大学放射光科学研究センター, <sup>b</sup> 広島大学大学院理学研究科,  
<sup>c</sup> 山口県産業技術センター, <sup>d</sup> 山口大学大学院理工学研究科, <sup>e</sup> 宇部高等専門学校  
<sup>a</sup>HiSOR, Hiroshima University, <sup>b</sup>Graduate School of Science, Hiroshima University,  
<sup>c</sup>Yamaguchi Prefectural Industrial Technology Institute, <sup>d</sup>Graduate School of Science and  
Engineering, Yamaguchi University, <sup>e</sup>Ube National College of Technology

IV-VI 族希薄磁性半導体  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  に対して、BL25SU において Mn 2p-3d XMCD 実験を行い、Mn 3d 電子状態を調べた。XMCD スペクトルは、 $\text{Mn}^{2+}$  に特徴的な構造を示し、全磁気モーメントに対する軌道磁気モーメントの寄与は約 8 % と見積もられた。クラスターモデルを用いた多重項計算による理論スペクトルは実験スペクトルをよく再現する。

We have carried out the Mn 2p-3d XMCD experiments for IV-VI diluted semiconductor  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  at BL25SU in order to investigate the Mn 3d states. The XMCD spectrum shows a feature typical to the  $\text{Mn}^{2+}$  ion and orbital magnetic moment contribution to the total magnetic moment is estimated to be about 8 %. The theoretical spectrum derived from multiplet calculations using a cluster model well reproduces the experimental spectrum.

#### 背景

近年、電子がもつ電荷とスピンの自由度を融合した新機能性デバイスの開発が脚光を浴びている。その中で III-VI 族希薄磁性半導体、特に  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  がキャリア誘起の強磁性を示すことから、この系に対して精力的な研究がなされてきた。一方、本研究でとりあげる IV-VI 族希薄

磁性半導体  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  も強磁性を示すことがかなり前に報告されている[1]。しかしながら、良質な結晶の育成が困難なこともあり、その物性に関する研究は極めて少なかった。最近、山口大学の小柳研究室が、クラスターイオンビーム法により、 $\text{BaF}_2(100)$  単結晶基板上に、バルクの固溶限界を大きく上まわる  $x=0.96$  までの

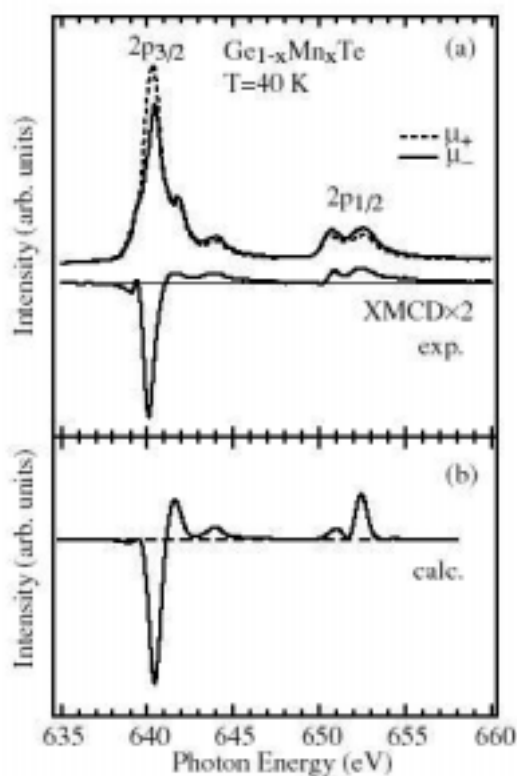


Fig. 1. (a) Mn 2p-3d XAS and XMCD spectra of  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  ( $x=0.32$ ). (b) Theoretical Mn 2p-3d XMCD spectrum.

$\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  エピタキシャル薄膜の育成に成功し、磁気特性の  $x$  依存性を明らかにした[2]。  $x=1$  の  $\text{MnTe}$  が反強磁性体であるにもかかわらず、  $x \leq 0.96$  の全範囲で強磁性を示し、キュリー温度 TC は  $x$  とともに上昇、  $x=0.51$  で最大 140 K を示した後大きく減少する。更にキャリア濃度が増加するに従い、飽和磁化の大きさや TC が上昇することが分かっている[3]。  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  における強磁性発現機構を理解するうえで、磁性を担う Mn 3d 軌道に関する知見は不可欠である。しかし現時点において、電子状態に関する報告は皆無に等しい。本研究では、  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  について Mn 2p-3d 軟 x 線吸収分光(XAS : x-ray absorption spectroscopy) および磁気円二色性(XMCD : x-ray magnetic circular dichroism) 実験を行い、Mn 3d 電子状態の基本的な知見を得ることを目的とした。

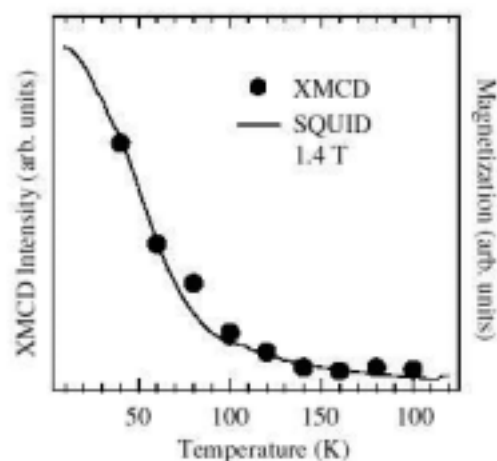


Fig. 2. Temperature dependences of the XMCD intensity and magnetization of  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  ( $x=0.32$ ).

## 実験

実験は BL25SU の XMCD 装置を用いて行った。永久磁石により試料表面垂直に 1.4 T の磁場を印加し、挿入光源のキッカーマグネットを用いて、円偏光の極性を 1 Hz で切り替えながら、全電子収量法により XAS、XMCD スペクトルを測定した。また、印加磁場の方向を反転して同様の実験を行い、両者の差をとることにより、測定系に依存するバックグラウンド成分を除去した。  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  薄膜試料は、クラスターイオンビーム法により  $\text{BaF}_2(100)$  基板上に育成した。試料表面の劣化を防ぐために 2 nm の Au を蒸着し、Au キャップが施された状態でスペクトルを測定した。

## 実験結果

Fig. 1 (a) に  $x=0.32$  について得られた Mn 2p-3d XAS および XMCD スペクトルを示す。測定温度は 40 K である。XAS スペクトルは、試料の磁化方向と入射光のスピンの反平行の場合を  $\mu_-$ 、平行の場合を  $\mu_+$  で表しており、  $\mu_+$  で XMCD スペクトルを定義している。  $\mu_-$  スペクトル形状は  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  のものと類似しており[4, 5]、  $\text{Mn}^{2+}$  に特徴的な多重項構造が観測されてい

る。このことは、IV-VI 族希薄磁性半導体で期待されているとおり、Mn は 2 価の状態  $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  中に存在しており、 $\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  の強磁性が  $\text{Mn}_5\text{Ge}_3$  などの強磁性体の析出物によるものではないことを示している。磁気光学総和則から全磁気モーメントへの軌道磁気モーメントの寄与を見積もったところ  $\sim 8\%$  となり、 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  の  $\sim 3\%$  [4] と比較してやや大きい結果が得られた。

XMCD スペクトルにみられる  $640.5\text{ eV}$  のピークは、温度上昇とともに小さくなる。その面積強度を温度の関数としてプロットしたのが Fig. 2 である。同じ試料について  $1.4\text{ T}$  の磁場中で、SQUID 磁束計を用いて測定された磁化も併せて示した。図から分かるように、両者の温度依存性はほぼ一致している。

$\text{Ge}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  中の Mn 3d 電子状態を更に詳しく調べるため、 $\text{MnTe}_6$  クラスタを用いた、配置間相互作用理論に基づく理論解析を行った。計算は、広島大学大学院先端物質科学研究科の田中新氏が作成したコードを用いて行った。Fig. 1 (b) に計算結果を示す。解析の結果、 $U=4.0\text{ eV}$ 、 $\Delta=2.5\text{ eV}$ 、 $(pd\sigma)=0.4\text{ eV}$ 、 $10Dq=0.4\text{ eV}$  で実験結果をよく再現することが分かった。ここで、 $U$ 、 $\Delta$ 、 $(pd\sigma)$ 、 $10Dq$  は各々 3d-3d クーロン相互作用エネルギー、p-d 電荷移動エネルギー、p-d 重なり積分、結晶場分裂を表す。解析結果は Mn 3d 軌道と配位子 p 軌道間の混成が  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  に比べて小さいことを示している。

## 今後の課題

今回  $x=0.32$  以外の試料については、Au キャップ層が若干厚かったこともあり、XMCD の信号が弱く、明瞭な結果が得られなかった。今後は、XMCD スペクトルの  $x$  依存性を測定し、

Mn 3d 状態が  $x$  とともにどのように変化するかを調べる必要がある。また、 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  と同様[5]、Te サイトにもモーメントが誘起されているかどうかを調べたいと考えている。

## 参考文献

- [1] R. W. Cochrane et al., Phys. Rev. B **9**, 3013 (1974).
- [2] Y. Fukuma et al., Physica E **10**, 273 (2001).
- [3] Y. Fukuma et al., Appl. Phys. Lett. **80**, 1013 (2002).
- [4] S. Ueda et al., Physica E **10**, 210 (2001).
- [5] D. J. Keavney et al., Phys. Rev. Lett. **91**, 187203 (2003).