

強磁性を示す希薄磁性半導体 $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ナノ粒子の磁氣的起源 Magnetic origin of room-temperature ferromagnetism in diluted magnetic semiconductor $Zn_{1-x}Cr_xTe$

庭山潤^a、大場洋次郎^a、牧英之^a、佐藤徹哉^a、中村哲也^b

Yutaka Niwayama^a, Yojiro Oba^a, Hideyuki Maki^a, Tetsuya Sato^a, Tetsuya Nakamura^b

^a慶應義塾大学、^b高輝度光科学研究センター

^aKeio University, ^bJASRI

化学的手法により作成された希薄磁性半導体 $Zn_{1-x}Cr_xTe$ のナノ粒子は $x = 0.02$ において室温以上で強磁性を示す。この $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ナノ粒子 ($x = 0.02$ と $x = 0.006$) について X 線磁気円二色性 (XMCD) の測定を BL25SU ビームラインで行なった。その結果、強磁性の起源が Cr 由来であることが分かった。また、L2 端と L3 端で測定した XMCD 吸収強度の比が温度の低下により変化した。これは、この系の強磁性発現の起源と関係付けることができる。

Nanoparticles of diluted magnetic semiconductor $Zn_{1-x}Cr_xTe$ with various Cr concentrations, synthesized by a chemical method, show ferromagnetism above room temperature at $x=0.02$. The x-ray magnetic circular dichroism (XMCD) of $Zn_{1-x}Cr_xTe$ nanoparticles with $x = 0.02$ and 0.006 was measured using the BL25SU beam line. We confirmed that the ferromagnetism originates from Cr. The intensity ratio of L2 to L3 XMCD peaks changes with decreasing temperature. This can be related with the magnetic origin of ferromagnetism of $Zn_{1-x}Cr_xTe$.

キーワード：室温強磁性、磁性半導体ナノ粒子、X 線磁気円二色性、 $Zn_{1-x}Cr_xTe$

背景と研究目的

電子が持つスピンと電荷が重要な役割を有する希薄磁性半導体 (DMS) は、スピントロニクスにおける重要な物質であると考えられる。応用を考えた場合、室温で強磁性を示す DMS が必要不可欠であり、このような系に関する報告例はいくつか見られるが、その磁氣的起源については議論が多い。これまで、我々は化学反応を利用したナノ粒子作製法であるホットソープ法 [1] により、熱的非平衡過程を介して $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ナノ粒子の作製を試み、 $x=0.02$ 程度までの Cr 濃度範囲で分散性の良い zinc blend 構造を持つ試料の作製に成功した。これらの試料の磁気測定を行った結果、強磁性が観測され、特に $x=0.02$ の試料は 300K においても明確なヒステリシスを確認することができ、キュリー温度は 520K 程度と見積もられた [2]。この値は、Cr 濃度が低いにもかかわらず、これまでの $Zn_{1-x}Cr_xTe$ 薄膜における報告例 [3] よりも高いものであり、ナノ

粒子特有の磁気特性であると考えられる。本研究では Cr と Zn について磁気円二色性 (XMCD) 測定を行い、ナノ粒子系における $Zn_{1-x}Cr_xTe$ の磁氣的起源を解明するための新たな知見を得ることを目的とする。

実験

XMCD 測定は、BL25SU の MCD 測定装置を用いて行った。ホットソープ法により合成した $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ナノ粒子をトルエン中に分散させ、その溶液を SiN 基板上に滴下し、乾燥させることで測定用試料を作製した。測定したナノ粒子は $Zn_{0.98}Cr_{0.02}Te$, $Zn_{0.994}Cr_{0.006}Te$, ZnTe であり、その平均膜厚はおおよそ 300nm になるように作製した。XMCD スペクトルは、最も確からしい測定手法である透過法により測定された。測定に用いた吸収端・磁場の強さおよび温度はそれぞれ、Cr と Zn の L3 および L2 吸収端、 ± 1.9 T、300K ($ZnTe$, $Zn_{0.98}Cr_{0.02}Te$ について) と 20K ($Zn_{0.98}Cr_{0.02}Te$, $Zn_{0.994}Cr_{0.006}Te$ につ

いて)である。

結果および考察

Fig.1に $\text{Zn}_{0.98}\text{Cr}_{0.02}\text{Te}$ ナノ粒子の 300K における Cr の X 線吸収スペクトル (XAS) と XMCD スペクトルを示す。 $\text{Zn}_{1-x}\text{Cr}_x\text{Te}$ 薄膜の XMCD スペクトル[4]と近い位置にピークを確認することができる。これより $\text{Zn}_{0.98}\text{Cr}_{0.02}\text{Te}$ ナノ粒子の強磁性は Cr 由来であり、強磁性的秩序が室温以上まで保たれていると考えることができる。さらに室温における XMCD 吸収強度を低温 (20K) における強度と比較した場合、低温の場合の方が L3 端のピーク強度が大きくなり、L2 端のピーク強度が小さくなっていることがわかる。

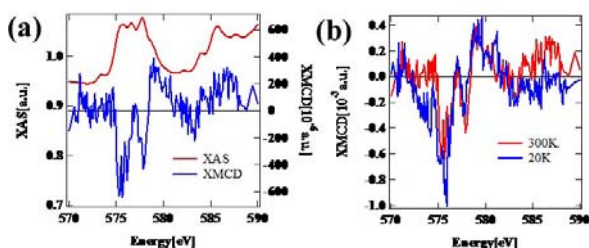


Fig.1. $\text{Zn}_{0.98}\text{Cr}_{0.02}\text{Te}$ ナノ粒子の XAS と XMCD スペクトル (a) および 300K と 20K における XMCD スペクトルの比較 (b)。

これまでの研究で、 $\text{Zn}_{1-x}\text{Cr}_x\text{Te}$ において Cr の四面体結晶場における Jahn-Teller 効果の磁性への影響が指摘されており、結晶が歪むことにより XMCD スペクトルのピーク強度が変化するとされている[4]。Fig.1(b)の結果は、低温において $\text{Zn}_{0.98}\text{Cr}_{0.02}\text{Te}$ ナノ粒子が Jahn-Teller 効果によって歪み、室温における XMCD スペクトルと違いが現れたことを示唆するものである。

さらに、Zn の Cr の影響による磁気偏極を調べるために、 $\text{Zn}_{0.98}\text{Cr}_{0.02}\text{Te}$ ナノ粒子と ZnTe ナノ粒子の X 線吸収スペクトルを測定して比較した (Fig.2)。1018eV, 1060eV 付近のスペクトルにわずかな違いがあることがわかる。このように Cr を置換することで、ZnTe の吸収スペクトルが変化わずかに変化を受けると分かった、しかし、この変化が何に起因するものなのかについては、現在理解できていない。

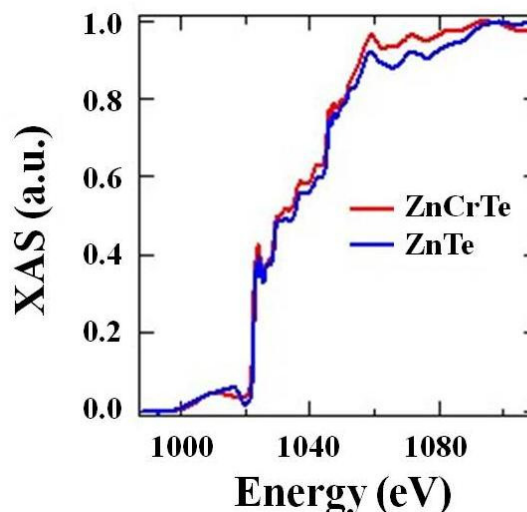


Fig.2. $\text{Zn}_{0.98}\text{Cr}_{0.02}\text{Te}$ と ZnCr ナノ粒子の XAS スペクトルの比較。

今後の課題

$\text{Zn}_{1-x}\text{Cr}_x\text{Te}$ に生じる室温強磁性の起源が Cr にあることは明らかとなったが、ナノ粒子において薄膜と比較してキュリー温度が非常に上昇する理由については現在不明である。XMCD および XAS スペクトルの詳細な解析を通して、ナノ粒子特有の室温強磁性の起源を明らかにすることが必要である。

参考文献

1. C. B. Murray, D. J. Norris, and M. G. Bawendi, *J. Am. Chem. Soc.* **115**, 8706 (1993).
2. Yutaka Niwayama, Hiroaki Kura, Tetsuya Sato, Migaku Takahashi and Tomoyuki Ogawa, submitted to *Appl. Phys. Lett.*
3. H. Saito, V. Zayets, S. Yamagata, and K. Ando, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 207202 (2003).
4. Y. Ishida, M. Kobayashi, J. I. Hwang, Y. Takeda, S. -I. Fujimori, T. Okane, K. Terai, Y. Saitoh, Y. Muramatsu, A. Fujimori, A. Tanaka, H. Saito and K. Ando, *Cond-mat. Mtrl-sci.*, arXiv:0710.2170v1 (2007)