課題番号　　:2018B-E23
利用課題名（日本語）　　:室温鉄系強磁性半導体薄膜におけるバンド構造解明
Program Title (English)　: Unveiling the electronic band structure of room temperature ferromagnetic semiconductor thin films

利用者名（日本語）　　:小林正起[1)], 武田崇仁[1)], 鈴木雅弘[2)], 輿石佳佑[2)], 芝田悟朗[2)], 若林勇希[3)], 藤森淳[2)]
Username (English)　　:M. Kobayashi[1)], T. Takeda[1)], M. Suzuki[2)], K. Koshiishi[2)], G. Shibata[2)], Y. Wakabayashi[3)], A. Fujimori[2)]
所属名（日本語）　　:1)東京大学大学院工学系研究科, 2)東京大学大学院理学系研究科, 3)日本電信電話(株)
Affiliation (English)　　:1) Department of Electrical Engineering and Information Systems, The University of Tokyo, 2) Department of Physics, The University of Tokyo, 3) NTT Co. Ltd.

キーワード：

1. 概要（Summary）

強磁性半導体（FMS）は、半導体と強磁性体の性質を持ち、現代の半導体技術との親和性の高さから、スピントロニクス材料としての応用が期待され盛んに研究が進んでいる。鉄系 III-V 族 FMS (In,Fe)Sb は、n 型の電気伝導特性を示し、Curie 温度（T_C）が Fe 濃度と共に大きくなり、Fe 17%以上で T_C は室温を超える。本研究では、(In,Fe)Sb の強磁性発現機構を解明することを目的として、Fe 3d 軌道と Sb 価電子帯バンドの混成に起因する磁気状態を X 線磁気円二色性（XMCD）により調べた。結果は、熱処理の温度が高過ぎると Fe が析出し、理論から予想されているスピノーダル分解が起こっていることを示唆した。

2. 実験（目的,方法）（Experimental）

FMS における強磁性の起源を解明には、ドープした遷移金属イオンの化学状態を知ることが重要となる。そこで、(In,Fe)Sb の強磁性起源を明らかにするために、XMCD を用いて磁性を担う Fe の電子状態を調べた。

測定には SPring-8 重元素科学ビームライン（BL23SU）の XMCD 装置を用いた。測定した試料は、Sb(~100 nm)でキャップした $In_{1-x}Fe_xSb$(20 nm) (x = 0.05, 0.10) 薄膜である。非晶質 Sb/単結晶 $In_{1-x}Fe_xSb$ 薄膜は、超高真空中でのアニールにより Sb キャップ層を取り除いて表面を清浄化した後に XMCD 測定を行った。XMCD 測定は磁場を±8 T の範囲で変化させて、10~300 K の温度領域で行われた。X 線吸収分光（XAS）スペクトルは全電子収量法により測定され、XMCD 測定では偏光反転によりスペクトルを観測した。

3. 結果と考察（Results and Discussion）

図 1 は Se キャップ層を取り除いた後の $In_{1-x}Fe_xSb$ 薄膜で観測された Fe $L_{2,3}$ 端における XAS および XMCD スペクトルを示す。XAS スペクトルでは複数のピーク構造が見られるのに対し、XMCD スペクトルは単一ピークを持つ金属的なスペクトル形状を示した。これは、磁性に寄与しない酸化した Fe と強磁性を担う Fe の成分が存在していることを示唆する。酸化した Fe は Se キャップ層あるいは(In,Fe)Sb との界面付近に存在する外因的な酸化 Fe に由来すると予想される。XMCD の磁場依存測定から、高磁場において XMCD スペクトル強度および形状に変化が見られなかった。この結果は、今回測定した試料では常磁性成分がほぼ存在しておらず、XMCD スペクトルは強磁性成分を反映していることを示唆する。温度を変化させた磁化曲線の測定からは、300 K においても強磁性的な磁化曲線が観測された。可視の磁気円二色性測定ではこの試料の T_C が 60 K と見積もられており、XMCD の温度依存性はこの結果と矛盾している。このことは、Se キャップ層を除去するためのアニーリングで Fe が凝集してしまい Fe 金属が析出したのではないかと考えられる。

第一原理計算を用いた理論研究から、鉄系 III-V 族 FMS においは、Fe イオンの強磁性相互作用は短距離（第二最近接程度）で、Fe イオンは凝集しやすい傾向にあることが予言されている。また、スピノーダル分解により結晶構造を保ったまま Fe 濃度の高い領域が存在することで、T_C の向上ならびに巨大な磁気応答に繋がると提案

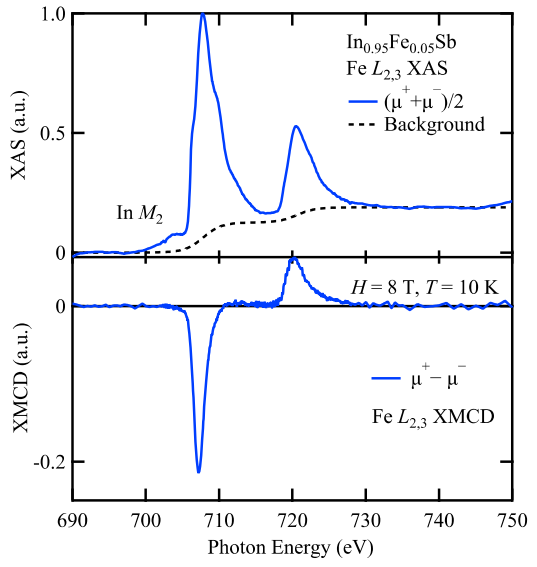

Fig. 1. Fe $L_{2,3}$ XAS and XMCD spectra of the $In_{0.95}Fe_{0.05}Sb$ thin film. The dashed line denotes background.

されている。今回実験から得られた結果は、熱を加えたために Fe が集まり、Fe 金属のような状態が試料中に出来てしまったと考えられる。結晶構造が保たれているかどうかは構造解析をする必要があるが、今回の結果は Fe のスピノーダル分解により T_C が上昇したことを示唆する。今後は、キャップ層の厚さを制御して加熱処理をしないで測定を行い、今回の結果と比較することで Fe のスピノーダル分解と(In,Fe)Sb の強磁性との関連を明らかにする。

4. その他・特記事項（Others）

原子力研究機構の竹田幸治氏、藤森伸一氏、にご支援いただいた。