

# IV-VI 族希薄磁性半導体(Sn,Mn)Te の Mn 周辺局所構造と磁性の相関

## Local structure around Mn in IV-VI diluted magnetic semiconductor (Sn,Mn)Te and correlation with magnetic properties

石川 諒<sup>1</sup>, 友弘 雄太<sup>1</sup>, 秋山 了太<sup>2</sup>, 仁谷 浩明<sup>3</sup>, 黒田 眞司<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>筑波大学, 数理物質系 〒305-8573 つくば市天王台 1-1-1

<sup>2</sup>東京大学, 大学院理学系研究科 〒305-8573 つくば市天王台 1-1-

<sup>3</sup>物質構造科学研究所, 放射光科学研究施設 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

Ryo ISHIKAWA<sup>1</sup>, Yuta TOMOHIRO<sup>1</sup>, Ryota AKIYAMA<sup>2</sup>, Hiroaki NITANI<sup>3</sup>, and Shinji KURODA<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup> Institute of Materials Science, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennoudai, Tsukuba, 305-8573, Japan

<sup>2</sup> Department of Physics, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8654, Japan

<sup>3</sup> Institute of Materials Structure Science, Photon Factory, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

### 1 はじめに

IV-VI 族半導体 SnTe に Mn を添加した希薄磁性半導体(DMS) (Sn,Mn)Te 薄膜を分子線エピタキシー法により成長し、その構造と磁性との相関を調べた。母体となる SnTe は狭ギャップ半導体として古くから知られているが、最近ではトポロジカル結晶絶縁体として注目を集めている[1]。トポロジカル結晶絶縁体におけるトポロジカル表面状態は通常のトポロジカル絶縁体とは異なり結晶の鏡映対称性に起源を持つとされ、時間反転対称性を破る磁性がトポロジカル表面状態にどのような効果を齎すかは物理的に興味ある課題である。一方、DMS としての(Sn,Mn)Te は古くから研究がなされ、正孔密度の増加により強磁性を発現し、キャリア誘起のメカニズムによるとされている[2]。本研究では、その強磁性が希釈相固有の性質か否かを判断するため、X 線吸収微細構造(XAFS)測定により Mn 周辺の局所構造の解析を行い、磁性との相関を明らかにすることを目的として研究を行った。

### 2 実験

(Sn,Mn)Te 薄膜は分子線エピタキシー(MBE)法により作製した。基板には CdTe テンプレートを用い[3]、(100)面の薄膜結晶を成長した。Mn 組成は 5.6% と一定にし、Te 分子線の付加により正孔密度を  $10^{20} \sim 10^{21} \text{cm}^{-3}$  の範囲で変化させた一連の試料を作製した。作製した試料に対して、超伝導量子干渉磁束計(SQUID)により磁化測定を行い、強磁性発現の有無を調べた。XAFS 測定は BL-9A または 12C において Mn-K 端の吸収スペクトルを測定した。測定は蛍光法で行い、蛍光 X 線の検出には 19 素子半導体検出器を用いた。試料は低温(20K 程度)に冷却した。

### 3 結果および考察

図 1 に Mn 組成一定(5.6%)で正孔密度の異なる(Sn,Mn)薄膜の磁化の磁場依存性( $M-H$  曲線)を示す。磁場は試料面に対して平行に印加し、温度 2K で測定を行った。 $M-H$  曲線は正孔密度  $p=1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$  では常磁性的であるのに対し、正孔密度が  $8 \times 10^{20} \sim 1 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$  に増加すると零磁場付近で磁化の急な立ち上がりが見られ、強磁性的な振舞いに転移する。但し、正孔密度が最も高い  $p=1 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$  の薄膜の低磁場領域での磁化の様子を詳細に調べたところ、反転したヒステリシスが現れ、通常の強磁性体では観測されない特異な振舞い[4]が見られた。

これらの薄膜試料に対して XAFS 測定を行ったところ、正孔密度の増加に伴う Mn 周辺の局所構造の変化が見出された。図 2 に EXAFS 振動より導かれた動径分布関数(RDF)を示す。正孔密度の最も小さい  $p=1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$  の試料では動径分布関数の形状は Mn が岩塩鉱(RS)型構造の Sn サイトを置換した場合に対するシミュレーションの結果と一致し、置換サイト位置する Mn の最近接 Te 原子に対応するピークが  $2.9 \text{\AA}$  付近に現れている。それに対し、正孔密度が増加すると  $2.3 \text{\AA}$  付近に新たなピークが現れ、一部の Mn 原子は RS 構造の置換サイトとは異なるサイトに存在することを示している。この結果は、正孔密度の増加に伴い、異なる結晶構造の相が形成されることを示唆しており、磁化測定の結果と併せて考えると、この異相の析出物が強磁性クラスターとしてはたらくことで磁化の特異な振舞いが生じていると考えられる。現在、異相の化合物の同定も含め、詳しい解析を行っているところである。

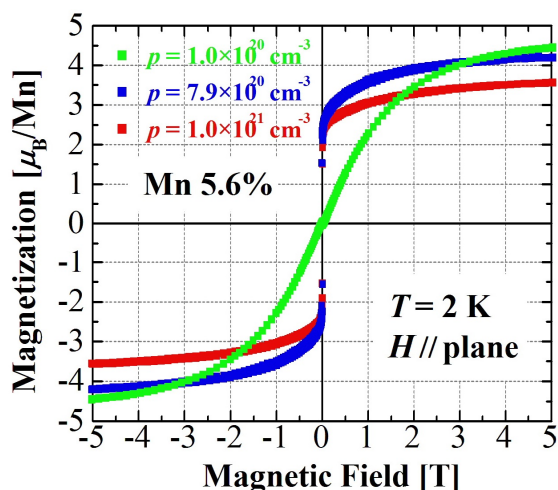


Fig. 1  $M$ - $H$  curves of (Sn,Mn)Te films with a fixed Mn content of 5.6% and varied hole densities in the range of  $10^{20} \sim 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . A magnetic field is applied parallel to the plane.

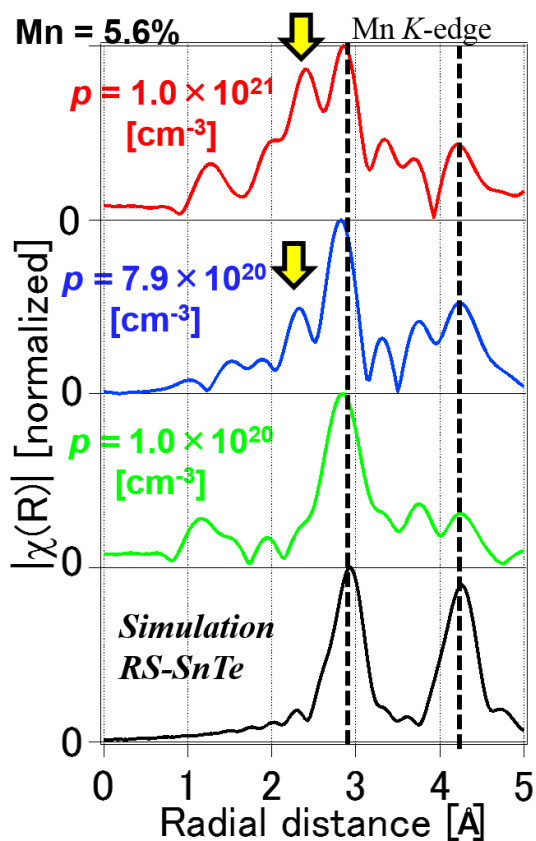


Fig. 2 Radial distribution function (RDF) deduced from the EXAFS oscillation for the respective (Sn,Mn)Te films with Mn content of 5.6% and varied hole densities of  $10^{20} \sim 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . With the increase of hole density, additional peak appears at around 2.3 Å (indicated by yellow arrows)

#### 4 まとめ

MBEにより成長した(Sn,Mn)Te薄膜の磁性と結晶構造を調べた。Mn組成一定(5.6%)で正孔密度を増加させると強磁性的振舞いが発現する一方で、Mn原子は母体のRS構造の置換サイト以外の位置にも存在し、異相の析出が生じていることが示唆された。この異相の析出物が強磁性的な振舞いの起源であると考えられる。

#### 参考文献

- [1] T. H. Hsieh *et al.*, Nat. Commun. **3**, 982 (2012).
- [2] A. J. Nadolny *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **248**, 134 (2002).
- [3] R. Ishikawa *et al.*, J. Cryst. Growth **453**, 124 (2016).
- [4] J. Y. Yang *et al.*, Phys. Rev. B **78**, 094415 (2008).

\* kuroda@ims.tsukuba.ac.jp