

# Co 添加 ZnO 薄膜における酸素欠損増加による強磁性強化 Ferromagnetism enhancement by increasing oxygen vacancies in Co-doped ZnO thin films

宇田川浩太<sup>1</sup>, 村山真理子<sup>1,2</sup>, 趙新為<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東京理科大学, 〒305-0801 東京都新宿区神楽坂 1-3

<sup>2</sup>東洋大学, 〒123-4567 東京都××市 1-1-1

Kota Udagawa<sup>1</sup>, Mariko Murayama<sup>1,2</sup>, and Xinwei Zhao<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>Tokyo University of Science, 1-3 Kagurazaka, Shinjuku, Tokyo 162-8601, Japan

<sup>2</sup>Toyo University, 2100 Kujirai, Kawagoe, Saitama, 350-0815, Japan

## 1 はじめに

現代の情報社会は、半導体技術の躍進によって発展してきたといっても過言ではない。しかし近年、半導体微細加工技術に限界が訪れ始めていることから、更なる半導体の発展のために新たな技術や材料が求められている。そこで、従来の半導体は電子のもつ「電荷」という性質を制御していたが、それに加え電子の持つもう一つの性質である「スピン」を制御した「希薄磁性半導体」が次世代半導体材料として注目を集めている。希薄磁性半導体は、半導体中にドーピング元素を少量添加して作製することができる。Curie 温度が低温である物質がほとんどであるが、母体半導体として ZnO や TiO<sub>2</sub> などの氧化物半導体を用いることで、室温以上の Curie 温度をもつことが先行研究から明らかになった。しかし磁性半導体は未だに应用されておらず、その原因として強磁性発現メカニズムが統一的に理解されていないことが挙げられる。<sup>1,2</sup> そのため、本研究では氧化物半導体ベースの磁性半導体において、強磁性発現メカニズムの解明を目的として実験を行った。特に、磁性半導体における強磁性は、酸素欠損が重要であると言われているため、酸素欠損に注目することで強磁性発現メカニズムの解明にアプローチしている。

## 2 実験

パルスレーザー堆積法を用いて Co 添加 ZnO 薄膜 (1wt% および 10wt%) をサファイア基板上に堆積させた。異なる酸素欠損量を持った試料を作るため、酸素分圧を変化させ Co 添加 ZnO 薄膜を成膜した。ターゲットをエネルギー密度 1J/cm<sup>2</sup> の Nd-YAG レーザー (355nm) でアブレーションした。チャンパー内の圧力は、10<sup>-2</sup>, 10<sup>-4</sup>, 10<sup>-6</sup> Torr に設定した (以下、 $P = 10^{-x}$  Torr で表す)。成膜時間は 1h 行った。その後、20 分間真空雰囲気下で 800°C のアニール処理を行った。試料の磁気特性は超電導量子干渉計 (SQUID) を用いて 300K において測定した。また、異なる酸素分圧によって形成された酸素欠損量の違いを光電子分光法 (XPS) で評価した。

## 3 結果および考察

Fig. 1 に飽和磁化と酸素欠損量の相関関係を示す。各サンプルは室温で強磁性を発現し、飽和磁化の値を読み取った。飽和磁化と酸素欠損は、酸素分圧が減少するほど増加し、同様な振る舞いを示した。また、Co 添加濃度が減少すると、酸素欠損量は減少したが、飽和磁化は増加することを示した。これはつまり酸素欠損および Co 添加濃度が強磁性に寄与していることを示している。これらの解析を深めることで、作製した Co 添加 ZnO 薄膜の強磁性メカニズムは「束縛磁気ポーロンモデル」によって説明することができると考えている。

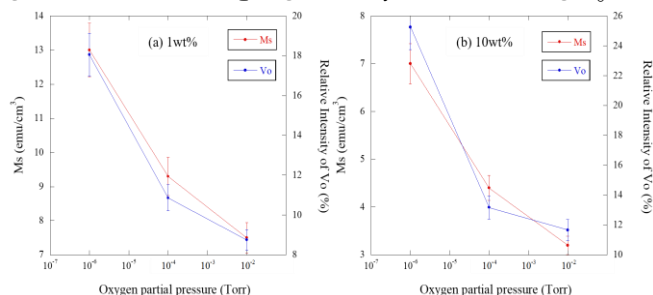


Fig.1. 飽和磁化と酸素欠損量の相関関係 (a)1wt% (b)10wt%

現時点での XAFS 測定の結果、酸素欠損量および Co 添加濃度に依存して、Co 周りの局所構造が変化していることがわかっている。「束縛磁気ポーロンモデル」では、酸素欠損にトラップされたキャリアと Co イオンが長距離的な強磁性カップリングで結合されるため、酸素欠損と Co イオンの距離が重要になってくる。現在、Co イオンを中心とした局所構造を考え、第二隣接までの配位を調査している。XAFS 測定では、直接的に酸素欠損などの欠陥について議論することは困難であるが、動径分布関数の波形の歪みなどから、欠陥などの存在を予測しながら解析を進めている。

#### 4 まとめ

Co 添加 ZnO 薄膜において酸素欠損量と強磁性の関係などから、「束縛磁気ポーラロンモデル」によって強磁性メカニズムを説明できると考えられた。さらにこの知見を深め、よりミクロな観点から考察するために XAFS 測定を用いて、Co イオン中心の局所構造を調査している。酸素欠損量の変化により、明確な動径分布関数の波形の変化が観測されているため、解析を進めることで Co と酸素欠損の位置関係や距離などから、強磁性に及ぼす影響などを深く議論できることが期待される。

#### 参考文献

- [1] A. Kaminski and S. Das Sarma, Phys. Rev. B **68**, 235210 (2003).
- [2] A. Kaminski and S. Das Sarma, Phys. Rev. Lett. **88**, 247202 (2002).

#### 成果

- 1. K. Udagawa, M. Murayama and X. Zhao, AIP Advances **12**, 125221 (2022)
- 2. ICPS 発表

\*xwzhao@rs.tus.ac.jp