

# 軟 X 線磁気円二色性による希薄磁性半導体 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ の Mn イオンの磁氣的相互作用の研究

竹田幸治<sup>1</sup>, 小林正起<sup>2</sup>, 岡根哲夫<sup>1</sup>, 大河内拓雄<sup>3</sup>, 岡本淳<sup>4</sup>,  
 斎藤祐児<sup>1</sup>, 小林啓介<sup>5</sup>, 山上浩志<sup>1,6</sup>, 藤森淳<sup>7</sup>, 田中新<sup>8</sup>,  
 岡林潤<sup>9</sup>, 尾嶋正治<sup>2</sup>, 大矢忍<sup>10</sup>, ファムナムハイ<sup>10</sup>, 田中雅明<sup>10</sup>

<sup>1</sup>日本原子力研究開発機構放射光科学研究ユニット

<sup>2</sup>東京大学大学院工学系研究科応用化学専攻

<sup>3</sup>高輝度光科学研究センター

<sup>4</sup>高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所

<sup>5</sup>物質・材料研究機構共用ビームステーション

<sup>6</sup>京都産業大学理学部物理学科

<sup>7</sup>東京大学大学院理学系研究科物理学専攻

<sup>8</sup>広島大学大学院先端物質科学研究科量子物質科学専攻

<sup>9</sup>東京工業大学大学院理工学研究科物性物理学専攻

<sup>10</sup>東京大学大学院工学系研究科電子工学専攻

〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

〒603-8555 京都府京都市北区上賀茂本山

〒113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1

〒739-8530 広島県東広島市鏡山 1-3-1

〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1

〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

**要旨** 日本原子力研究開発機構放射光科学研究ユニットでは、強相関物質の磁性を研究するため軟 X 線磁気円二色性 (Soft x-ray magnetic circular dichroism: XMCD) 装置の改良・整備を大型放射光施設 SPring-8 の専用ビームライン BL23SU で行ってきた。今回我々はこの装置を用いて、希薄磁性半導体の代表的物質である  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  中の Mn 元素の磁氣的特性を、XMCD の詳細な温度・磁場依存性を測定することにより調べた。その結果、異なるキュリー温度 ( $T_C$ ) をもつ二つの試料 ( $x=0.042$ :  $T_C=60$  K, 及び  $x=0.078$ :  $T_C=40$  K) において、ともに試料温度が  $T > 100$  K ではキュリーワイス則に従うが  $T < 100$  K からずれ始め、スピン磁気モーメントの短距離秩序が  $T_C$  よりも十分に高温から発現していることが分かった。また、substitutional Mn ( $\text{Mn}_{\text{sub}}$ ) と interstitial Mn ( $\text{Mn}_{\text{int}}$ ) の間に反強磁性的相互作用が存在しており、 $\text{Mn}_{\text{int}}$  の量と  $T_C$  の値は明らかに相関していて  $\text{Mn}_{\text{sub}}$  の強磁性秩序を  $\text{Mn}_{\text{int}}$  が阻害していることが分かった。

## はじめに

III-V 族化合物半導体 GaAs に Mn をドーブした  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  が強磁性を示すことが報告されたのは1996年のことである<sup>1)</sup>。 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  の発見は、スピントロニクス実現のための有力材料として、その後の室温強磁性希薄磁性半導体実現に向けての研究の起爆剤になった<sup>2,3)</sup>。 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  は非熱平衡状態で分子線エピタキシー法によって作製されるため、格子欠陥・歪みの発生が避けられない。そして、GaAs 中にドーブされた Mn イオンは Ga イオンに置換される (substitutional Mn:  $\text{Mn}_{\text{sub}}$ ) ことが期待されるが、一方で、格子間隙に侵入した Mn イオン (interstitial Mn:  $\text{Mn}_{\text{int}}$ ) も同時に生成される (Fig. 1)。実際、as-grown  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  ( $x=0.08$ , キュリー温度 ( $T_C$ ) = 67 K) に対して、Rutherford backscattering channeling (RBS) 実験を行うと、ドーブされた Mn イオンのうち、

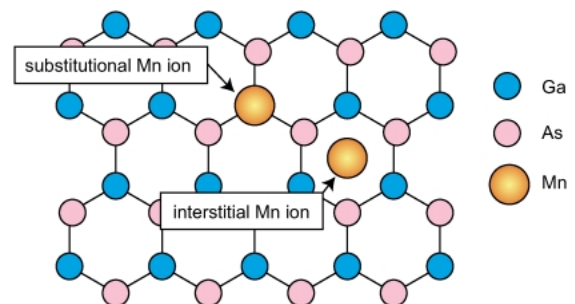


Fig. 1 Schematic view of  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (111) surface.

約17%の Mn イオンが  $\text{Mn}_{\text{int}}$  として存在していることが示されている<sup>4)</sup>。強磁性を担う  $\text{Mn}_{\text{sub}}$  は、イオン一つあたり、一つのホールをキャリアとして結晶中に放出する。そして、 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  の強磁性はこのホールによるキャリア

誘起強磁性であると考えられている。一方,  $\text{Mn}_{\text{int}}$  は一つあたり, 二つの電子を放出し,  $\text{Mn}_{\text{sub}}$  が放出したホールを打ち消す。さらに, 理論的な予測として,  $\text{Mn}_{\text{sub}}$  と  $\text{Mn}_{\text{int}}$  は反強磁性的な相互作用をすることが指摘されている<sup>5,6)</sup>。 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  の  $T_C$  は, 高濃度ドーブやアニール条件の最適化の努力により上昇してきた<sup>7)</sup>が, 室温を超える  $T_C$  の実現には至っていない状況にある。以上のように,  $\text{Mn}_{\text{int}}$  の存在は,  $T_C$  が上昇しないことに影響しているのではないかと疑われていたが, これまでそれらの関係が実験的に解明されていなかった。 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  の強磁性特性を最大限引き出すためには,  $\text{Mn}_{\text{int}}$  に代表される非強磁性的 Mn イオンの磁氣的特性を実験的に明らかにする必要がある。

## 軟 X 線磁気円二色性 (Soft X-ray Magnetic Circular Dichroism: XMCD)

XMCD は, 外部磁場により試料を磁化させ, その磁化方向に対して, 光のヘリシティーを平行・反平行に照射した時の光吸収の差として定義され, XMCD シグナルの強度は試料の磁化の大きさに比例する。特に軟 X 線領域には遷移金属の  $L_{2,3}$  ( $2p-3d$ ) 吸収端, 希土類の  $M_{4,5}$  ( $3d-4f$ ) 吸収端, アクチノイドの  $N_{4,5}$  ( $4d-5f$ ) 吸収端があるので, これら吸収端における XMCD を調べることで, 磁性を担っている電子軌道におけるスピン電子状態を直接的に調べることができる。また総和則<sup>8,9)</sup>を適用することにより, スピン軌道磁気モーメントと軌道磁気モーメントをそれぞれ定量的に評価できる。通常の磁化測定などでは, 試料基板からの反磁性の影響や磁性不純物の影響の評価が困難で, 化合物中の特定の元素だけに対する磁氣的特性を調べることは非常に困難であるが, XMCD シグナルの温度・磁場依存性を測定することにより, 元素選択的に磁氣的特性を調べることができる。さらに吸収 (x-ray absorption spectroscopy: XAS) スペクトルと XMCD スペクトルの形状から, 結晶場や価数に関する情報も得ることができる。なお XMCD の詳細な原理については文献<sup>10</sup>を参照されたい。

大型放射光施設 SPring-8 の BL23SU に設置されている XMCD 測定装置では, 試料冷却はヘリウムフロー型クライオスタットを用いて試料温度は  $6\text{ K} < T < 300\text{ K}$  で, 超伝導マグネットを用いて印加磁場 ( $H$ ) は  $H = \pm 10\text{ T}$  の範囲での実験が可能である。また, 温度・磁場依存性を効率よく測定するために XMCD 計測システムの改良も行った<sup>11)</sup>。これにより, XMCD スペクトル一本あたりの測定時間が大幅に短縮され, 本研究で行ったような詳細な温度・磁場依存性測定に大きく貢献できた。

## XAS および XMCD 実験

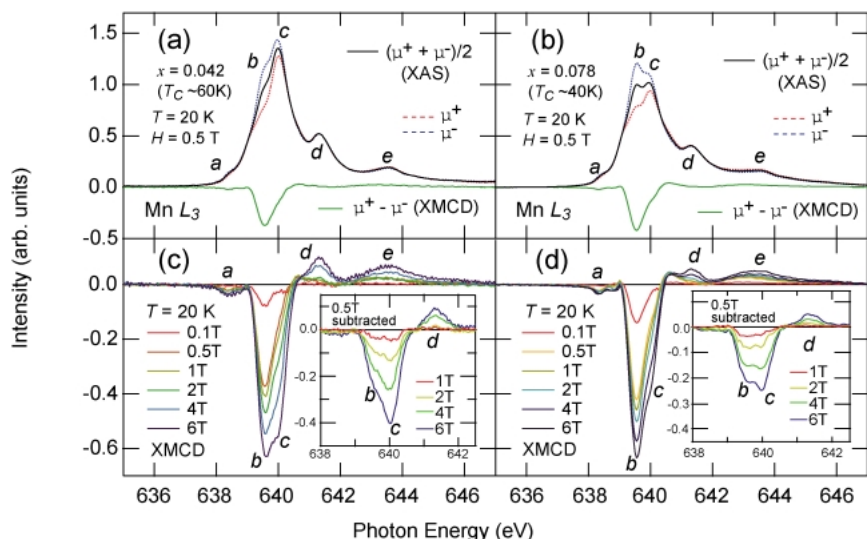
試料は,  $x = 0.042$  で  $T_C = 60\text{ K}$  と  $x = 0.078$  で  $T_C = 40\text{ K}$

の as-grown  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ <sup>12)</sup> の二つを用意した。 $T_C$  は異常ホール効果の Arrot プロットにより決定した。試料表面の劣化を防ぐために, GaAs 基板上に  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  を製膜したのち, [As cap/GaAs cap (1 nm)/as-grown  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  (20 nm)] のように cap 層で試料表面を覆った。実験は SPring-8 BL23SU において行った。XAS スペクトルは, 表面処理をせずに, Total Electron Yield (TEY) 法で行った。磁場は試料表面に垂直方向に印加して Mn  $L_{2,3}$  吸収端における XMCD スペクトルの温度・磁場依存性を測定した。

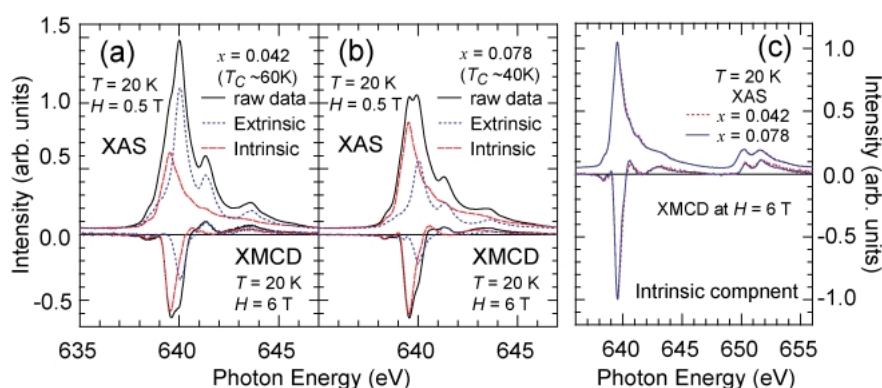
## 実験結果

Fig. 2(a) と (b) に,  $x = 0.042$  と  $x = 0.078$  の Mn  $L_3$  吸収端における XAS スペクトル ( $\mu^+$  と  $\mu^-$ ) とそれに対する, 試料温度  $T = 20\text{ K}$ , 印加磁場  $H = 0.5\text{ T}$  での XMCD スペクトル ( $\mu^+ - \mu^-$ ) をそれぞれ示す。ここで,  $\mu^+(\mu^-)$  は Mn  $3d$  のマジョリティースピンの方向と光のヘリシティーが平行 (反平行) な場合の XAS スペクトルである。Mn  $L_3$  吸収端の XAS スペクトルには,  $x = 0.042$  と  $x = 0.078$  の両試料ともに 5 つの構造 (a, b, c, d, e) があることがわかる。ここで,  $\mu^+ + \mu^-$  の XAS スペクトルの構造 b の強度が 1 になるようにすべてのスペクトルを規格化している。構造 b と構造 c に注目すると,  $x = 0.042$  と  $x = 0.078$  のふたつの試料で c/b の強度比が大きく異なっている。これは XAS スペクトルに少なくとも二つ以上の成分が混ざっていることを示している。Fig. 2(c) と (d) に  $x = 0.042$  と  $x = 0.078$  の XMCD スペクトルの磁場依存性を示す。 $x = 0.042$  と  $x = 0.078$  を比較すると,  $x = 0.042$  の方が磁場の増加とともに構造 c, d と e の強度が強く増大している。この様子は  $H = 1, 2, 4$  と  $6\text{ T}$  のときの XMCD スペクトルから  $H = 0.5\text{ T}$  のときの XMCD スペクトルを差し引いた差分スペクトルを見るとよくわかる (挿入図)。これまでの研究から, この構造 c, d, e は試料表面に析出した Mn によるものであることが指摘されている<sup>13-15)</sup>。よって, 我々は XAS スペクトルにおける c/b の強度比は,  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  中の Mn イオンとは違う表面析出あるいは cap 層中へ拡散した非本質的な Mn (extrinsic Mn) による構造であると考えた。そこで, 今後は構造 b が強磁性を示している Mn (intrinsic Mn) による XMCD シグナルとして, その磁氣的振舞いに注目する。

ここで, intrinsic XAS と XMCD スペクトルを得るために使用した方法について説明する。まず intrinsic Mn による XAS スペクトルを得るために, 構造 b の強度が消えるように定数  $p$  を選んで, extrinsic XAS = (XAS  $x = 0.042$ ) -  $p$ (XAS  $x = 0.078$ ) により extrinsic XAS を得る。そして, 求めた extrinsic XAS を使い, バルク感性が TEY よりも高い Total Fluorescence Yield (TFY) 法で測定された XAS スペクトル<sup>14-16)</sup> と同じになるように定数  $q$



**Fig. 2** Mn  $L_3$ -edge XAS ( $\mu^+$ ,  $\mu^-$  and  $(\mu^+ + \mu^-)/2$ ) and XMCD ( $\mu^+ - \mu^-$ ) spectra of  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  taken at  $T = 20$  K and  $H = 0.5$  T for  $x = 0.042$  (a) and  $x = 0.078$  (b). Panels (c) and (d) show the  $H$  dependence of the XMCD spectra for  $x = 0.042$  and  $x = 0.078$ , respectively. Inset shows the difference XMCD spectra obtained by subtracting the XMCD spectrum at  $H = 0.5$  T.



**Fig. 3** Decomposition of the XAS and XMCD spectra of  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  into the intrinsic and extrinsic components for  $x = 0.042$  (a) and for  $x = 0.078$  (b) in the Mn  $L_{2,3}$ -edge region. Panel (c) shows comparison of the line shapes of the intrinsic XAS and XMCD spectra between  $x = 0.042$  and  $0.078$ , normalized to the peak heights.

を決めて、intrinsic XAS = (raw XAS) -  $q$ (extrinsic XAS) として、intrinsic XAS を求めた。次に、intrinsic XMCD スペクトルを得るために、XMCD スペクトルにおける構造  $b$  が消えるように、extrinsic XMCD = (XMCD at 6 T) -  $\alpha$ (XMCD at 0.5 T) により extrinsic XMCD を得る。ここで低磁場での XMCD スペクトルはほとんどが強磁性的な intrinsic XMCD 成分で構成されているという事実に基づき  $H = 0.5$  T での XMCD スペクトルを差分の際に用いた。そして、求めた extrinsic XMCD を用いて、XMCD スペクトルの構造  $c$  の強度が消えるように定数  $\beta$  を選んで、intrinsic XMCD = (XMCD at each  $H$ ) -  $\beta$ (extrinsic XMCD) として、intrinsic XMCD を求めた。Fig. 3(a) と (b) に、 $x = 0.042$  と  $x = 0.078$  について、intrinsic と extrinsic な成分に分離した Mn  $L_{2,3}$  吸収端における XAS と XMCD スペクトルを示す。磁場の増大、温度の低下と

ともに、XMCD 強度は強くなるが、intrinsic XMCD のスペクトル形状は変化しなかった。また、Fig. 3(c) に示すように、intrinsic XAS と XMCD スペクトルは両濃度の試料でよく一致していることが分かる。これは上記の成分分離の方法が正当であることを示している。

さらに、この intrinsic XAS と XMCD スペクトルを用いて、総和則<sup>8,9)</sup>を用いて、スピン磁気モーメント ( $M_S$ ) と軌道磁気モーメント ( $M_L$ ) を求めた。 $T = 20$  K と  $H = 0.5$  T の XMCD スペクトルに対して、Mn  $3d$  電子数を  $N_{3d} = 5.1^{17)}$  と仮定して求めたスピン磁気モーメントは  $x = 0.042$  の場合で、 $M_S = 2.5 \pm 0.2 \mu_B/\text{Mn}$ 、 $x = 0.078$  の場合で、 $M_S = 1.7 \pm 0.2 \mu_B/\text{Mn}$  であった。これらの  $M_S$  は以前 XMCD 実験から報告された値<sup>18)</sup> に比べかなり大きな値になっている。軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントとの比 ( $M_L/M_S$ ) は両濃度の物質で 0.07 程度であった。

$M_L$  は小さいが有限な値があるのは、完全な  $\text{Mn}^{2+}(3d^5)$  ではないことを示している。以後示す温度・磁場依存性の結果はすべて総和則により求めた  $M_S$  を用いることにする。

Fig. 4 (a) に  $H=6\text{ T}$  での  $M_S$  の温度依存性を示している。図には上述した成分分離で求めた intrinsic と extrinsic な成分のそれぞれについて示している。温度の降下とともに、 $M_S$  は増大しているが、 $T_C$  で不連続になっている。これは  $T_C$  で磁気モーメントが磁化容易軸である試料面に揃おうとする<sup>1)</sup>のに対し、実験では試料面に対して垂直方向に磁場印加して XMCD 測定を行っているためと

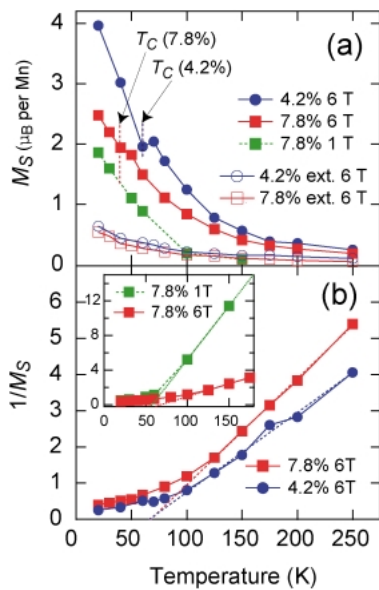


Fig. 4  $T$  dependence of the spin magnetic moment  $M_S$ . (a)  $T$  dependence of  $M_S$  for  $H=6\text{ T}$ . For  $x=0.078$ , results for  $H=1\text{ T}$  are also plotted. Open symbols show that of the extrinsic component at  $H=6\text{ T}$ . (b)  $T$  dependence of the inverse of  $M_S$ . Inset shows comparison between 1 and 6 T for  $x=0.078$ .

考えられる。この温度依存性測定から、 $T_C$  よりも低い温度になっても  $M_S$  が増大していき、 $T_C$  よりも低温でも  $M_S$  が飽和しないことが分かる。この様子は、 $x=0.078$  の試料に対する  $H=1\text{ T}$  での温度依存性でも本質的に同じである。

Fig. 4 (b) に  $1/M_S$  の温度依存性を示している。 $T > 100\text{ K}$  ではキュリーワイス則に従っていることが分かる。

Fig. 5 (a) と (b) に  $x=0.042$  と  $x=0.078$  のいくつかの温度における  $M_S$  の磁場依存性を示す。intrinsic 成分から求めた  $M_S$  は  $H=0.1\text{ T}$  から  $0.5\text{ T}$  になると急峻に増大している。これは先にも触れたが、磁化容易軸が面内方向であるためで、面直方向に  $H > 0.5\text{ T}$  で磁場を印加すると磁気モーメントが面直方向に向くことを反映している<sup>1)</sup>。 $H > 0.5\text{ T}$  では  $M_S$  はほぼ直線的に増大している。そこで、 $H=0.5\text{ T}$  以上で直線フィッティングすることにより、 $M_S|_{H \rightarrow 0\text{ T}}$  と  $\partial M_S / \partial H|_{H > 0.5\text{ T}}$  ( $\mu_B/\text{T per Mn}$ ) を求め、それぞれの温度依存性をそれぞれ Fig. 5 (c) と (d) に示す。ここでは Fig. 3 で分離した extrinsic 成分から求めた  $M_S$  の温度依存性も示している。extrinsic 成分の  $M_S|_{H \rightarrow 0\text{ T}}$  は全温度領域でほとんどゼロである。また、 $\partial M_S / \partial H|_{H > 0.5\text{ T}}$  は温度降下とともに上昇するキュリーワイス則に従っており、extrinsic 成分は常磁性的で、intrinsic 成分とは磁氣的に相関がないことが分かる。さて、intrinsic 成分の方に戻ると、 $M_S|_{H \rightarrow 0\text{ T}}$  は  $T < \sim 100\text{ K}$  で顕著に増大している。この振舞は Fig. 4 (b) で示したキュリーワイス則からのズレと一致している。 $M_S|_{H \rightarrow 0\text{ T}}$  が  $T_C < T < 100\text{ K}$  で発現するのは、 $T_C$  よりも十分高温から短距離強磁性ドメインが成長していることを示唆している。そして、as-grown 試料においては、それら強磁性ドメインが Mn イオンの局所的な濃度ムラなどにより不均一に分散していて、強磁性短距離秩序の発達する温度がそれぞれのドメインで異なっていると考えられる。この結果は、磁氣的不均一性がある場

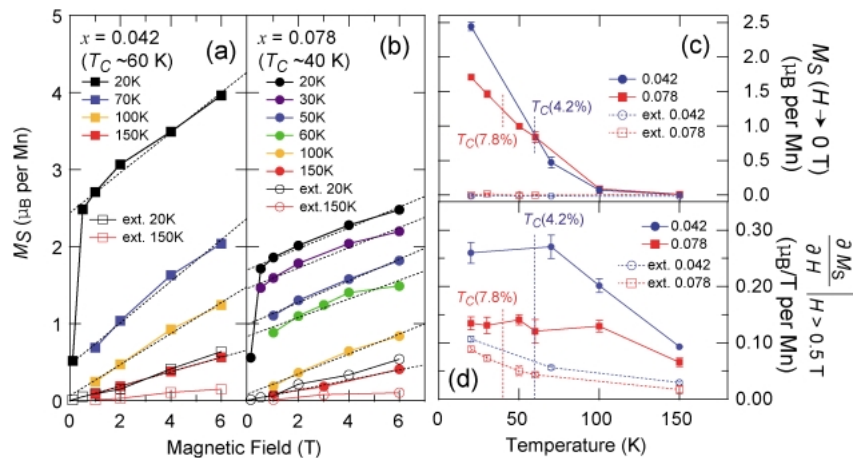


Fig. 5  $H$  dependence of  $M_S$  for  $x=0.042$  (a) and for  $x=0.078$  (b) at several temperatures. Dashed lines show fitted straight lines above  $0.5\text{ T}$ . (c)  $T$  dependence of the residual magnetization  $M_S|_{H \rightarrow 0\text{ T}}$  ( $M_S$  for  $H \rightarrow 0\text{ T}$ ). Open symbols show that of the extrinsic component. (d)  $T$  dependence of the slope of the  $M_S$ - $H$  curve above  $0.5\text{ T}$ , i.e., the high-field magnetic susceptibility ( $\partial M_S / \partial H|_{H > 0.5\text{ T}}$ ). Open symbols show that of the extrinsic component.

合に強磁性ドメインが  $T_C$  よりも高い温度で発現するという理論的予測と一貫している<sup>19)</sup>。さらに、 $T_C$  よりも十分低い温度においてもなお  $M_S|_{H \rightarrow 0 T}$  が大きくなり続けている。これはそれぞれの強磁性ドメインの磁気的特性にも不均一性があり、 $T_C$  よりも低い温度にならないと強磁性秩序できないドメインも存在しているためと考えられる。

次に intrinsic 成分の  $\partial M_S / \partial H|_{H > 0.5 T}$  をみてみると、extrinsic 成分とは異なり、 $T_C$  以下ではほぼ一定になり、温度が低下してもそれ以上に上昇しない。この振舞は、強磁性的 Mn、つまり  $Mn_{sub}$  と非磁性的（あるいは常磁性的）Mn との反強磁性的相互作用の存在を示している。この非磁性的 Mn としては、我々は  $Mn_{int}$  を考えた。as-grown 試料と post-annealing 試料について、XMCD の磁場依存性測定を行った最近の結果<sup>17)</sup> をみると、post-annealing した試料の方が、 $M_S|_{H \rightarrow 0 T}$  が大きくなり、 $\partial M_S / \partial H|_{H > 0.5 T}$  が小さくなるのが分かっている。これはアニールによって  $Mn_{int}$  が除去された結果だと考えられることから、上記の仮定は妥当であると言える。今回の結果では、 $x = 0.078$  の方が、 $x = 0.042$  の試料よりも  $M_S|_{H \rightarrow 0 T}$  と  $\partial M_S / \partial H|_{H > 0.5 T}$  が小さいので、 $x = 0.078$  の方が、反強磁性相互作用が大きいと言える。ここで、 $Mn_{sub}$  と  $Mn_{int}$  はともに、ほぼ  $Mn^{2+}$  であり、 $Mn_{sub}$  と  $Mn_{int}$  の  $M_S$  は  $5 \mu_B / Mn$  で、全ての  $Mn_{int}$  の  $M_S$  は  $Mn_{sub}$  の  $M_S$  に反強磁性的になるとすれば、intrinsic 成分の中の  $Mn_{int}$  の割合 ( $R_{int}$ ) は、 $T = 20 K$  での  $M_S|_{H \rightarrow 0 T}$  から見積もると、 $x = 0.042$  の場合で 0.26、 $x = 0.078$  の場合で、0.33 であった。この結果は、 $T_C = 67 K$  で  $R_{int} = 0.17$  と見積もった RBS の実験結果<sup>4)</sup> と一貫しており、 $T_C$  の値が  $Mn_{int}$  の量に強く相関していることを示している。

また、Fig. 4 (b) から  $\partial M_S / \partial H|_{H = 6 T} = N_x C / (T - \Theta) + \partial M_S / \partial H|_0$  (ここで、 $C = (g \mu_B) 2S(S+1) / k_B$  : キュリー一定数、 $\Theta$  : ワイス温度、 $N_x$  : Mn 濃度  $x$  における Mn イオンの数、 $\partial M_S / \partial H|_0$  : 定数、 $g$  :  $g$  因子) でフィッティングすると、 $x = 0.042$  の場合で  $\Theta = 68 \pm 5 K$ 、 $x = 0.078$  の場合で  $\Theta = 69 \pm 3 K$  となる。ここで  $\partial M_S / \partial H|_0$  は両試料とも  $\sim 10^{-3}$  程度であった。この結果から、 $g = 2$ 、 $S = 5/2$ 、 $\Theta = 68 K$  とし、 $N_x$  を求めると  $N_{0.042} = 0.97$ 、 $N_{0.078} = 0.67$  と見積もられる。これは、 $x = 0.042$  の場合は、ほとんどの intrinsic Mn が  $T = 100 K$  以上の常磁性に参加しているが、一方、 $x = 0.078$  では高温においてさえも常磁性が抑えられていて、 $Mn_{sub}$  と  $Mn_{int}$  の間の反強磁性的相互作用の影響が強く見えている証拠と考えられる。

## 結論

我々は as-grown  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  に対して、Mn  $L_{2,3}$  吸収端における XMCD の系統的な磁場・温度依存性を測定することにより、intrinsic な磁気成分を抜き出し、その磁気的特性を調べた。その結果、XMCD 強度は  $T < \sim 100 K$

以下からキュリーワイス則からずれ始め、 $T_C$  よりもかなり高温から短距離の強磁性ドメインが発現していることが分かった。また、 $Mn_{sub}$  の帯磁率が  $T_C$  以下で一定になることを見出し、これは、 $Mn_{sub}$  と  $Mn_{int}$  の間に反強磁性的相互作用が存在することを強く示唆するものであり、 $Mn_{int}$  の量が  $T_C$  の大きさに強く相関していることを明らかにした。今回の希薄磁性半導体の代表的物質である  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  に対して得られたこれらの実験的事実は、他の希薄磁性半導体においても、磁性元素の不均一な分布から生じる磁気的特性の理解に重要な情報を与えるものである。

## 謝辞

この研究は SPring-8 BL23SU における課題番号 No. 2006A3817 において行った。また、文部科学省科学研究費 “Semiconductor Spintronics (No. 14076209)” と “Creation and Control of Spin Current (No. 190481012)” および、PRESTO/SORST of JST の “Special Coordination Programs for Promoting Science and Technology” と “Next Generation IT Program” の援助により行われた。ここに感謝いたします。

## 参考文献

- 1) H. Ohno, A. Shen, F. Matsukura, A. Oiwa, A. Endo, S. Katsumoto and Y. Iye: Appl. Phys. Lett. **69**, 363 (1996).
- 2) H. Ohno: Science **281**, 951 (1998).
- 3) T. Dietl, H. Ohno and F. Matsukura: Phys. Rev. B **63**, 195205 (2001).
- 4) K. M. Yu, W. Walukiewicz, T. Wojtowicz, I. Kuryliszyn, X. Liu, Y. Sasaki and J. K. Furdyna: Phys. Rev. B **65**, 201303 (R) (2002).
- 5) J. Blinowski and P. Kacman: Phys. Rev. B **67**, 121204(R) (2003).
- 6) J. Mašek and F. Maca: Phys. Rev. B **69**, 165212 (2004).
- 7) S. Ohya, K. Ohno and M. Tanaka: Appl. Phys. Lett. **90**, 112503 (2007).
- 8) B. T. Thole, P. Carra, F. Sette and G. van der Laan: Phys. Rev. Lett. **68**, 1943 (1992).
- 9) P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli and X. Wang: Phys. Rev. Lett. **70**, 694 (1993).
- 10) 例えば、菅野 暁, 藤森 淳, 吉田 博 編: 「新しい放射光の科学」講談社, 第 4 章 小出常晴著に詳しい。
- 11) Y. Fukuda, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh and K. Kobayashi: JAEA-Technology **2007-007** (2007).
- 12) as-grown  $Ga_{1-x}Mn_xAs$  については例えば、T. Hayashi, M. Tanaka, T. Nishinaga, H. Shimada, H. Tsuchiya and Y. Ootuka: J. Crystal Growth **175/176**, 1063 (1997), T. Hayashi, M. Tanaka, T. Nishinaga and H. Shimada: J. Appl. Phys. **81**, 4865 (1997).
- 13) K. W. Edmonds, N. R. S. Farley, R. P. Campion, C. T. Foxon, B. L. Gallagher, T. K. Johal, G. van der Laan, M. MacKenzie, J. N. Chapman and E. Arenholz: Appl. Phys. Lett. **84**, 4065 (2004).
- 14) Y. Ishiwata, T. Takeuchi, R. Eguchi, M. Watanabe, Y. Harada, K. Kanai, A. Chainani, M. Taguchi, S. Shin, M. C. Debnath, I. Souma, Y. Oka, T. Hayashi, Y. Hashimoto, S.

- Katsumoto and Y. Iye: Phys. Rev. B **71**, 121202(R) (2005).
- 15) D. Wu, D. J. Keavney, Ruqian Wu, E. Johnston-Halperin, D. D. Awschalom and Jing Shi: Phys. Rev. B **71** 153310 (2005).
- 16) TEY で測定された Mn  $L_{2,3}$  吸収端における XAS スペクトルにみられるような構造 c, d, e のピークは, TFY で測定された XAS スペクトルには観測されない。また, 文献13)には TEY での測定でも試料表面を酸エッチングした直後の XAS スペクトルでは構造 c, d, e のピークが観測されなくなる。
- 17) K. W. Edmonds, N. R. S. Farley, T. K. Johal, G. van der Laan, R. P. Campion, B. L. Gallagher and C. T. Foxon: Phys. Rev. B **71**, 064418 (2005).
- 18) H. Ohldag, V. Solinus, F. U. Hillebrecht, J. B. Goedkoop, M. Finazzi, F. Matsukura and H. Ohno: Appl. Phys. Lett. **76**, 2928 (2000).
- 19) M. Mayr, G. Alvarez and E. Dagotto: Phys. Rev. B **65**, 241202(R) 2002.

## ● 著者紹介 ●

**竹田幸治**

日本原子力研究開発機構, 放射光科学研究ユニット, 放射光先端物質電子構造研究グループ・任期付研究員。

E-mail: ytakeda@spring8.or.jp

専門: 固体物理, 放射光分光

**【略歴】**

2001年広島大学大学院理学研究科物理科学専攻博士後期課程修了, 博士(理学)。2001年広島大学放射光科学研究センター非常勤講師。2003年日本原子力研究所特定課題推進員。2005年より現職。

**小林正起**

東京大学工学系研究科・特任研究員

E-mail: mkoba@sr.t.u-tokyo.ac.jp

専門: 固体物理, 放射光分光

**【略歴】**

2008年東京大学大学院理学系研究科博士課程修了, 理学博士。2009年より現職。

**岡根哲夫**

日本原子力研究開発機構, 放射光科学研究ユニット, 放射光先端物質電子構造研究グループ・研究副主幹

E-mail: okanet@spring8.or.jp

専門: 固体物理, 電子分光

**【略歴】**

1995年東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士後期課程修了, 博士(理学)。1996年日本原子力研究所博士研究員。1998年日本原子力研究所研究員。2004年より現職。

**大河内拓雄**

財団法人 高輝度光科学研究センター・利用促進部門・研究員

E-mail: o-taku@spring8.or.jp

専門: 固体物理, 磁性

**【略歴】**

2006年京都大学大学院理学研究科化学専攻博士後期課程修了, 博士(理学)。2006年日本原子力研究開発機構・博士研究員。2008年より現職。

**岡本淳**

高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所, 構造物性研究センター特任助教

E-mail: jun.okamoto@kek.jp

専門: 固体物性, 高エネルギー分光, 共鳴軟 X 線散乱

**【略歴】**

2000年東京大学大学院理学系研究科博士課程修了, 理学博士。2001年-2004年原研 SPring-8 博士研究員。2004年-2009年 NSRRC, Taiwan 博士研究員。2009年より現職。

**斎藤祐児**

日本原子力研究開発機構 放射光科学研究ユニット 放射光先端物質電子構造研究グループ サブリーダー・研究副主幹

E-mail: ysaitoh@spring8.or.jp

専門: 放射光固体分光

**【略歴】**

1995年大阪大学大学院基礎工学研究科博士課程修了, 博士(工学)。1995年日本原子力研究所研究員。2005年10月より現職。

**小林啓介**

独立行政法人 物質・材料研究機構 共用基盤部門 共用ビームステーション ステーション長

E-mail: koba\_kei@spring8.or.jp

専門: 固体電子物性

**【略歴】**

1972年大阪大学大学院理学研究科博士課程単位取得退学。1972年日立製作所中央研究所研究員。1973年博士号(理学)取得。1979年-1980年 DESY にフンボルト留学。1981年光技術共同研究所主任研究員。1999年理化学研究所播磨研究所協力研究員。2001年財団法人高輝度光科学研究センター主席研究員 分光物性 II グループリーダー。2004年-2006年3月同上特別研究員 ナノテクノロジー総合支援プロジェクト推進室・室長。2005年4月-9月日本原子力研究所関西研究所 固体電子物性研究グループ 客員グループリーダー(兼務)。2006年4月-2007年7月財団法人高輝度光科学研究センター 特別研究員バルク電子状態解析法開発グループリーダー(兼務)。2006年4月より現職。

**山上浩志**

京都産業大学理学部・教授

E-mail: yamagami@cc.kyoto-su.ac.jp

専門: 固体電子論

**【略歴】**

1991年新潟大学大学院自然科学研究科博士課程修了, 学術博士。1991年-1993年東北大学教養部助手。1993年-1995年東北大学理学部助手。1995年-2000年東北大学理学研究科助手。2000年-2004年京都産業大学理学部助教授。2004年より現職。

**藤森淳**

東京大学大学院理学系研究科・教授

E-mail: fujimori@phys.s.u-tokyo.ac.jp

専門: 固体物性, 放射光分光

**【略歴】**

1978年東京大学大学院理学系研究科修士課程修了, 理学博士。1978年-1988年無機材料研究所研究員・主任研究官。1988年-1999年東京大学理学部助教授。1999年-2007年東京大学新領域創成科学研究科教授。2007年より現職。

● 著者紹介 ●

**田中新**

広島大学大学院先端物質科学研究科・助教

E-mail: atanaka@hiroshima-u.ac.jp

専門：強相関電子系，高エネルギー分光理論

**【略歴】**

1993年大阪大学大学院理学研究科博士課程後期物理学専攻退学。1997年広島大学において博士号（理学）を受得。1993年-1998年広島大学，理学部・助手。1998年-2007年広島大学，大学院先端物質科学研究科・助手。2007年より現職。

**岡林潤**

東京工業大学大学院理工学研究科物性物理学専攻 助教

E-mail: jun@phys.titech.ac.jp

専門：半導体スピントロニクス

**【略歴】**

2002年3月東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程修了，博士（理学），日本学術振興会特別研究員，東京大学大学院工学系研究科応用化学専攻助手を経て，2006年より現職。

**尾嶋正治**

東京大学大学院工学系研究科・教授

E-mail: oshima@sr.t.u-tokyo.ac.jp

専門：表面物性，放射光科学

**【略歴】**

1974年東京大学大学院工学系研究科修士課程修了。1974年-1995年電電公社（現NTT）電気通信研究所。1981-82年スタンフォード大学客員研究員。1984年工学博士（東京大学）。1995年より現職。

**大矢忍**

東京大学大学院工学系研究科・助教

E-mail: ohya@cryst.t.u-tokyo.ac.jp

専門：固体物性，電子工学

**【略歴】**

2005年東京大学大学院工学系研究科博士課程修了，工学博士。2005年より現職。

**ファムナムハイ**

東京大学大学院工学系研究科・研究員

E-mail: pham@cryst.t.u-tokyo.ac.jp

専門：固体物性，スピントロニクス

**【略歴】**

2009年3月東京大学大学院工学系研究科博士課程修了，工学博士。2009年4月より現職。

**田中雅明**

東京大学大学院工学系研究科教授

E-mail: masaaki@ee.t.u-tokyo.ac.jp

専門：半導体を中心とする電子材料物性，デバイス工学，スピントロニクス

**【略歴】**

1989年東京大学大学院工学系研究科博士課程修了，工学博士。1992-94年米国ベル通信研究所客員研究員。1994年東京大学工学部助教授。2004年より現職。

# Nature of magnetic coupling between Mn ions in as-grown $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ studied by x-ray magnetic circular dichroism

Yukiharu TAKEDA<sup>1</sup>, Masaki KOBAYASHI<sup>2</sup>, Tetsuo OKANE<sup>1</sup>, Takuo OHKOCHI<sup>3</sup>, Jun OKAMOTO<sup>4</sup>, Yuji SAITOH<sup>1</sup>, Keisuke KOBAYASHI<sup>5</sup>, Hiroshi YAMAGAMI<sup>1,6</sup>, Atsushi FUJIMORI<sup>7</sup>, Arata TANAKA<sup>8</sup>, Jun OKABAYASHI<sup>9</sup>, Masaharu OSHIMA<sup>2</sup>, Shinobu OHYA<sup>10</sup>, Pham Nam HAI<sup>10</sup>, Masaaki TANAKA<sup>10</sup>

<sup>1</sup>Synchrotron Radiation Research Unit, Japan Atomic Energy Agency, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

<sup>2</sup>Department of Applied Chemistry, School of Engineering, University of Tokyo, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

<sup>3</sup>Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan

<sup>4</sup>Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization, Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

<sup>5</sup>Department of Materials Infrastructure, Beamline Station, National Institute for Material Science, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

<sup>6</sup>Department of Physics, Faculty of Science, Kyoto Sangyo University, Motoyama, Kamigamo, Kita-Ku, Kyoto 603-8555, Japan

<sup>7</sup>Department of Physics, Graduate School of Science, University of Tokyo, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo, 113-0033, Japan

<sup>8</sup>Department of Quantum Matter, Graduate School of Advanced Sciences of Matter, Hiroshima University, Kagamiyama, Higashi-Hiroshima 739-8530, Japan

<sup>9</sup>Department of Physics, Tokyo Institute of Technology, O-Okayama, Meguro, Tokyo 152-8551, Japan

<sup>10</sup>Department of Electrical Engineering and Information Systems, School of Engineering, University of Tokyo, Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

**Abstract** The magnetic properties of as-grown  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  have been investigated by the systematic temperature and magnetic field dependent soft x-ray magnetic circular dichroism (XMCD) measurements in the Mn  $L_{2,3}$  absorption edge region. The XMCD intensity at high temperatures obeys the Curie-Weiss law, but residual spin magnetic moment appears already around 100 K, significantly above Curie temperature ( $T_C$ ), suggesting that short-range ferromagnetic correlations are developed significantly above  $T_C$ . The high-field magnetic susceptibility becomes  $T$ -independent below  $T_C$ , indicating that the AF interaction between the substitutional Mn ( $\text{Mn}_{\text{sub}}$ ) and interstitial Mn ( $\text{Mn}_{\text{int}}$ ) ions, which becomes strong as the Mn concentration  $x$  increases, exists and that the amount of the  $\text{Mn}_{\text{int}}$  affects  $T_C$ . The present experimental findings should give valuable insight into the inhomogeneous magnetic properties of many DMS's.

---