

Title	Study on High Tc Ferromagnetism of Mn-doped GaN Films
Author(s)	園田, 早紀
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/46076
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	そのだ いまだ き き 園田 (今田) 早 紀
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 18931 号
学位授与年月日	平成 16 年 6 月 17 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文名	Study on High Tc Ferromagnetism of Mn-doped GaN Films (Mn ドープ GaN 薄膜における高転移温度強磁性の研究)
論文審査委員	(主査) 教授 金道 浩一 (副査) 教授 赤井 久純 教授 朝日 一 教授 吉田 博 助教授 杉山 清寛

論文内容の要旨

ワイドバンドギャップ半導体の窒化ガリウム (GaN) 系化合物半導体は、短波長発光素子や高出力・高周波素子材料として高いポテンシャルをもった材料で、現在非常に活発に研究が行われているが、近年、この GaN 系材料に新しく、室温で強磁性を示す希薄磁性半導体の母物質として有望であることが理論的に報告され、新たに注目を集めている。特に磁性元素の Mn をドープした系で、Ga サイトに Mn が置換して存在している場合、p 型伝導を示し、室温以上でキャリア誘起強磁性を示すことが予測されている。

我々は、アンモニアを窒素源とした分子線エピタキシー法により、Mn ドープ GaN 成長を試み、Mn 濃度 6.8% までの薄膜成長に成功した。これらの成長膜について、X 線回折、高速電子線回折、低速イオン散乱、広域 X 線吸収端微細構造などの測定を行ったところ、成長膜がウルツ鉱構造で、Mn₄N や MnGa といった室温以上で強磁性あるいはフェリ磁性を示す不純物相が薄膜内部や表面に形成されておらず、Mn が Ga サイトに置換して存在する系であることが明らかになった。これらの膜について、超伝導量子干渉磁気測定装置により磁化測定を行ったところ、成長膜は Mn 濃度 3.0% 以上のとき、室温でヒステリシスを示し、強磁性・常磁性転移温度 T_c が室温以上の強磁性体であることがわかった。

電気伝導特性を調べるため、Mn 濃度 6.8% の成長膜についてホール効果測定、電気抵抗測定を行ったところ、この膜は p 型の電気伝導を示し、 $2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ の非常に高いキャリア濃度を示した。また、キャリア濃度、移動度、電気抵抗は温度の 1/4 乗に比例する熱活性型すなわち、モットのバリアブルレンジホッピング型であり、活性化エネルギーはこの伝導型に特徴的な非常に小さい値 (0.067 meV) で、不純物バンド伝導が起こっていることが示唆された。

部分状態密度に関する情報を得るため、成長膜中の Ga と Mn について、K 吸収端 X 線吸収端近傍微細構造測定 (K-XANES) を行った。Ga の K-XANES については、アンドープ GaN 中の Ga K-XANES と非常によく一致するスペクトルが得られ、高濃度 Mn ドープによっても系の伝導帯の構造が大きく変化していないことが示された。Mn K-XANES の分析からは、Mn 酸化物の K-XANES スペクトルとの比較により、Mn は価数が 2 価以上、すなわち 3d 電子数が 5 個以下であることが示された。また、Mn 原子が四面体配位により配位子の窒素の 2p 軌道と混成しかつ交換分裂していることを示唆する特徴的なスペクトル構造を示した。

以上の実験結果から、今回得られた成長膜は、結晶学的に“希薄磁性半導体”であり、室温で強磁性を示したことから、理論的に予言された“室温強磁性希薄磁性半導体”であることが示された。また、活性化エネルギーの非常に

小さなホッピング伝導が観測されたこと、Mn の価数が 2 価以上であるということから、伝導は Mn3d 軌道が不純物バンドを形成してフェルミ準位がこのバンド中にあるとかんがえられる。これは、第一原理計算により提唱されているバンド構造と一致し、2 重交換相互作用により、強磁性が発現している可能性が示された。

論文審査の結果の要旨

ワイドバンドギャップ半導体の窒化ガリウム (GaN) 系化合物半導体は、短波長発光素子や高出力・高周波素子材料として高いポテンシャルをもった材料で、現在非常に活発に研究が行われているが、近年、この GaN 系材料に新しく、室温で強磁性を示す希薄磁性半導体の母物質として有望であることが理論的に報告され、新たに注目を集めている。特に磁性元素の Mn をドーブした系で、Ga サイトに Mn が置換して存在している場合、p 型伝導を示し、室温以上でキャリア誘起強磁性を示すことが予測されている。

申請者は、アンモニアを窒素源とする分子線エピタキシー法により Mn ドープ GaN 成長を試み、Mn 濃度 6.8% までの薄膜成長に成功した。この成長膜について試料評価を行ったところ、ウルツ鉱構造で、不純物相が内部や表面に形成されておらず、Mn が Ga サイトに置換して存在する系であることが明らかになった。磁化測定から成長膜は、Tc が室温以上の強磁性体であることがわかった。ホール効果測定、電気抵抗測定を行ったところ、この膜は p 型の電気伝導を示し、非常に高いキャリア濃度を示した。またキャリア濃度、移動度、電気抵抗は、モットのバリアブルレンジホッピング型であることが示唆された。Ga の K-XANES については、Mn ドープによって伝導帯の構造が大きく変化していないことが示された。Mn K-XANES の分析からは、Mn は価数が 2 価以上であることが示された。また、Mn 原子が窒素の 2p 軌道と混成しかつ交換分裂していることを示唆する特徴的なスペクトル構造を示した。

以上の実験結果から、この成長膜は、理論的に予言された“室温強磁性希薄磁性半導体”であることが示された。また、2 重交換相互作用により、強磁性が発現している可能性が示された。

本論文は、窒化ガリウム系での“室温強磁性希薄磁性半導体”の薄膜成長に初めて成功したことを様々な物質評価を通して明らかにする事で、希薄磁性半導体の研究に大きな進展を与えるものであり、博士 (理学) の学位論文として十分価値があるものと認める。