

MBE により成長した二元化合物 CrTe 薄膜の局所構造解析 II Analysis of local structure around Cr in binary compound CrTe thin films grown by MBE II

黒田 眞司^a, 金澤 研^a, 西尾 陽太郎^a, 大淵 博宣^b
Shinji Kuroda^a, Ken Kanazawa^a, Yōtarō Nishio^a, Hironori Ofuchi^b

^a筑波大学物質工学系, ^b(財)高輝度光科学研究センター/SPring-8
^aInstitute of Materials Science, University of Tsukuba, ^bJASRI/SPring-8

高スピン偏極率を示す新規材料の開発を目指し、遷移金属カルコゲナイドである CrTe の薄膜試料を分子線エピタキシー(MBE)法により作製し、蛍光 XAFS 測定により Cr 周辺の局所構造および電子状態の解析を行った。MBE 成長時の成長条件をさまざまに変化させて成長した一連の試料に対する測定により、成長条件と構造特性との関連を調べた。その結果、CrTe 層の結晶構造は主として MBE 成長中の Cr と Te の分子線供給量比に依存して変化することが明らかとなった。

キーワード： スピントロニクス、高スピン偏極率材料、分子線エピタキシー、XAFS、XANES

背景と研究目的：

電子のスピン自由度を利用してデバイス機能を実現するスピントロニクスは、次世代のエレクトロニクスとして期待を集めている。半導体においてスピンを利用したデバイス機能を実現するためには、電子のスピンを制御するためのさまざまな要素技術の開発が要請されるが、なかでもスピンの揃った電子を供給するスピン源が必要となる。半導体にスピンの揃ったキャリアを効率よく注入するためには、強磁性であるだけでなく高いスピン偏極率を有する材料が必要であり、そのような特性を有する新材料の開発が活発に行われている。我々のグループでは、高スピン偏極率を示す可能性となる物質の候補として遷移元素カルコゲナイドの CrTe に着目し、分子線エピタキシー(MBE)法により CrTe 薄膜を成長し、得られた薄膜の結晶構造と電子状態を調べることを目的として研究を行っている。CrTe はバルク結晶においては NiAs 型の結晶構造を取ることが知られているが、理論的には閃亜鉛鉱(ZB)型構造を持つ CrTe は準安定状態として存在する可能性が示され、しかもスピン偏極率 100%のハーフメタルの電子状態となることが予測されている[1]。さらに最近になって、ZB 型 CrTe の薄膜が MBE 法により実際に作製されたという報告もなされている[2,3]。本研究課題では、MBE 法で成長した CrTe 薄膜の結晶構造と電子状態を調べ、それが成長条件によりどのように変化するかを明らかにすることを目指した。2009B 期の重点産業利用課題に引き続き、MBE 成長時の成長条件をさまざまに変化させて成長した CrTe 薄膜試料に対して蛍光 XAFS 測定を行うことで Cr 周辺の局所構造および電子状態を解析し、結晶成長条件と構造特性および電子状態との関連を明らかにすることにより、高いスピン偏極率を有する試料作製のための成長条件の探索を目指した。

実験：

CrTe 薄膜試料を対象に Cr の K 吸収端での蛍光 XAFS 測定を行った。試料の作製は MBE 法により、GaAs(001)基板上に ZnTe または CdTe 緩衝層を約 700nm 堆積した後、厚さ 30~100nm の CrTe 層を積層させた。CrTe 層成長時の分子線供給源としては Cr と Te の金属単体を用い、その分子線供給量比(フラックス比)および基板温度を変化させて CrTe 層を成長した。これらの成長条件を変化させて成長した一連の試料に対して蛍光 XAFS 測定を行い、Cr 周辺の局所構造および電子状態が成長条件によりどのように変化するかを調べた。蛍光 X 線の検出には 19 素子半導体検出器を用いた。

結果および考察：

上述のように、CrTe 成長時のフラックス比および基板温度を変化させて成長した一連の CrTe 薄膜試料に対する測定の結果、成長薄膜の特性は Cr/Te フラックス比により大きく変化することが明らかとなった。Fig. 1, 2 にそれぞれ ZnTe および CdTe 緩衝層上に成長した CrTe 薄膜の Cr K 端の吸収微細構造(XANES)スペクトルを示す。図に見る通り、ZnTe, CdTe のいずれが緩衝層の場合も、XANES スペクトルは Cr/Te フラックス比により大きく異なることがわかる。緩衝層が ZnTe, CdTe いずれの場合でも Cr/Te フラックス比が 0.5 程度で成長した薄膜では、スペクトルは参照試料の Cr_2Te_3 のスペクトルと似た形を示す。これはこれらの薄膜試料では六方晶構造の $\text{Cr}_{1-\delta}\text{Te}$ が形成されていることを示唆している。それに対し、Cr/Te フラックス比が 0.1 程度で成長した薄膜では、スペクトルの形状は大きく異なり、寧ろ Cr_2O_3 のスペクトルに近い形になっている。このような Cr/Te フラックス比による違いは、結晶中の Cr 欠損の多寡と関連があるのではないかと推察される。すなわち、Cr/Te フラックス比が小さい条件で成長した結晶では Cr の欠損が多く生成していると考えられ、そのような結晶では Cr 欠損の少ない結晶と比較して成長後に空气中で酸化され易いという可能性が考えられる。

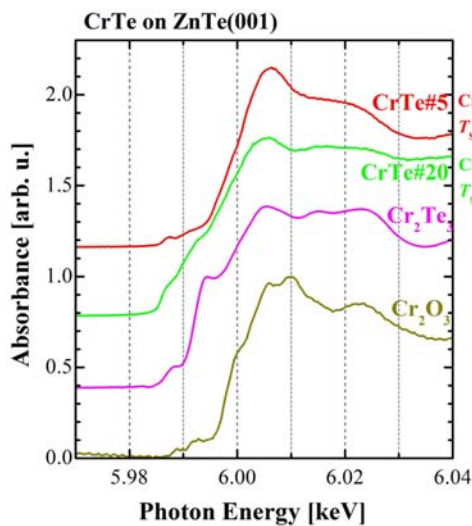


Fig. 1 ZnTe(001)上に成長した CrTe 薄膜の XANES スペクトル。

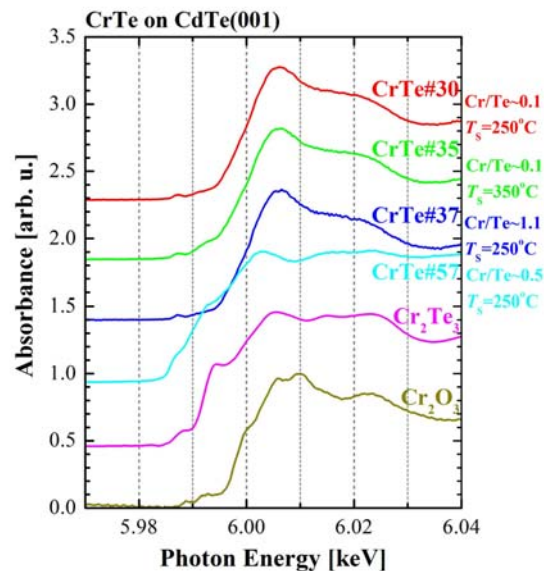


Fig. 2 CdTe(001)上に成長した CrTe 薄膜の XANES スペクトル。

今後の課題：

今回得られた蛍光 XAFS 測定で得られた CrTe 薄膜の局所構造、電子状態の解析結果に加え、TEM 観察で得られる結晶構造および磁化特性などの情報も併せ、MBE により成長された CrTe 薄膜の構造・物性を多面的に調べ、その成長条件による変化を明らかにする。その結果に基づき、電子状態と結晶構造との相関を解明し、スピン偏極電子源として特性の優れた新機能材料を開発することを目指す。

参考文献：

- [1] W.-H. Xie, Y.-Q. Xu, B.-G. Liu, D. G. Pettifor, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 037204 (2003).
- [2] M. G. Sreenivasan, K. L. Teo, M. B. A. Jalil, T. Liew, T. C. Chong, A. Y. Du, *IEEE Trans. Magn.* **42**, 2691 (2006).
- [3] M. G. Sreenivasan, J. F. Bi, K. L. Teo, T. Liew, *J. Appl. Phys.* **103**, 043908 (2008).