

希薄磁性半導体の分光

溝川貴司

東京大学大学院新領域創成科学研究科

遷移金属を含む希薄磁性半導体は、「磁気的な性質を担う、空間的に局在したd電子」と「電気的な性質を担う、空間的に広がったキャリア」とが共存し、両者の間に磁気的な交換相互作用が働く系と考えることができる。レーザーや放射光を励起光として用いた分光法は、このような希薄磁性半導体の電子状態を探る有力な方法である。

クラスターモデルあるいはアンダーソン不純物モデルでの配置間相互作用の枠組みで、1電子励起スペクトルおよび光吸収スペクトルが構成される様子を図1に示す。N電子状態は $d^n, d^{n+1}\underline{L}, d^{n+2}\underline{L}^2$ 等の電子配置の線形結合で与えられるが、これらの電子配置のエネルギー差は、陰イオンのp軌道から遷移金属d軌道への電荷移動エネルギー Δ 、d電子間クーロン相互作用 U で与えられる。 \underline{L} は主として陰イオンp軌道から成る価電子帯のホールを表す。同様に、N-1電子系の状態は $d^{n-1}, d^n\underline{L}, d^{n+1}\underline{L}^2$ などの電子配置の線形結合で、N+1電子系の状態は $d^{n+1}, d^{n+2}\underline{L}, d^{n+3}\underline{L}^2$ などの電子配置の線形結合で表される。基底状態からN-1電子状態への励起スペクトルが光電子スペクトル、N+1電子状態への励起スペクトルが逆光電子スペクトルである。混成項は (pdc) 、 (pdn) で与えられるが、通常、 $(pdc)/(pdn)$ を -2.16 とする。従って、実験結果との比較から決定すべきパラメーターは、 Δ 、 U 、 (pdc) の3つになる。

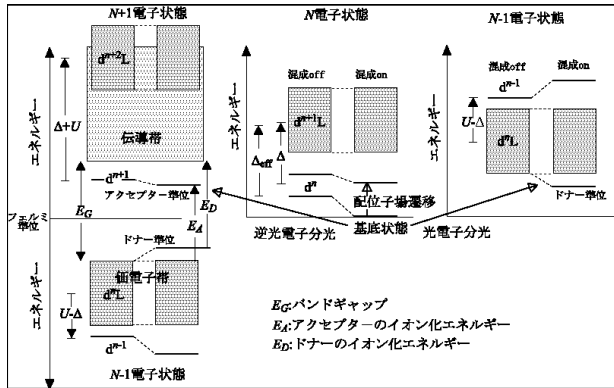


図1: 配置間相互作用 [1]

図2に、 $Cd_{1-x}Mn_xTe$ の光電子・逆光電子スペクトル [2] と、クラスターモデルでの配置間相互作用計算の結果を比較してある。1電子近似では説明できないサテライト構造を含めて、クラスターモデルでの配置間相互作用計算は実験結果をよく再現している。基底状態からエネルギーのより高いN電子状態への励起は配位子場遷移や電荷移動遷移に対応しているが、光電子・逆光電子スペクトルの計算から得られたパラメーターを用いて光吸収スペクトルに観測される配位子場遷移もよく再現される。 $Zn_{1-x}Mn_xTe$ 、 $Zn_{1-x}Mn_xSe$ 、

$Zn_{1-x}Mn_xS$ 、 $Zn_{1-x}Mn_xO$ および $Ga_{1-x}Mn_xAs$ の光電子スペクトルや光吸収スペクトルがクラスターモデルによって解析されており、その結果得られた Δ 、 U 、 (pdc) を表1に示す。

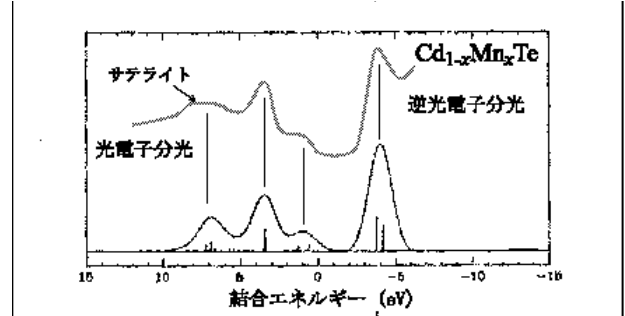


図2: $Cd_{1-x}Mn_xTe$ の光電子・逆光電子スペクトル [2]

	Δ	U	(pdc)	$N_0\beta$
$Zn_{1-x}Mn_xO$	7.0	5.0	-1.4	-2.1
$Zn_{1-x}Mn_xS$	3.0	4.0	-1.3	-1.3
$Zn_{1-x}Mn_xSe$	2.5	4.0	-1.2	-1.1
$Zn_{1-x}Mn_xTe$	2.0	4.0	-1.1	-0.9
$Ga_{1-x}Mn_xAs$	1.5	3.5	-1.1	-1.0

表1: 単位は eV

配置間相互作用計算の結果から p-d 交換相互作用を見積もることができる。光励起などによって点にホールが導入された場合を考えると、陰イオンのp軌道からなる点でのプロッホ軌道は、 t_2 軌道のみと混成できる。この混成によるエネルギーの利得を2次の摂動計算で求めることにより、例えば、 Mn^{2+} 不純物の p-d 交換相互作用は、

$$N_0b = -\frac{16}{S} \left(\frac{1}{d_{eff}} + \frac{1}{-d_{eff} + u + 4j} \right) \left(\frac{1}{3}(pds) - \frac{2\sqrt{3}}{9}(pdp) \right)^2$$

となり、反強磁性的である。 δ_{eff} は実効的電荷移動エネルギーであり、G点と価電子帯重心のエネルギー差の補正を Δ に施すことによって得られる。

$Cd_{1-x}Mn_xTe$ 、 $Zn_{1-x}Mn_xO$ 、 $Ga_{1-x}Mn_xAs$ 等の励起スペクトルを解析することにより、基底状態での局在スピンとキャリアとの交換相互作用を見積もることができる。 Cr^{2+} 不純物は軌道自由度のために強磁性的な p-d 交換相互作用を持つことも、同様に説明できる [3]。ますます多彩になっていくであろう希薄磁性半導体の電子状態を、光電子分光等の分光法によって系統的に調べることが望まれる。

- [1] T. Mizokawa and A. Fujimori, Phys. Rev. B 48, 14150 (1993); Phys. Rev. B 56, 6669 (1997).
- [2] M. Sato et al., Phys. Rev. B 56, 7222 (1997).
- [3] W. Mac et al., Phys. Rev. B 50, 14144 (1994).