

磁気強誘電体  $\text{NdCrTiO}_5$  の電気磁気効果

研究代表者名

名古屋大学・理学研究科・寺崎一郎

研究分担者名

名古屋大学・理学研究科・岡崎竜二

名古屋大学・理学研究科・岡村卓真

名古屋大学・理学研究科・郡 俊輔

明治大学・理工学部・安井幸夫

## 1. はじめに

磁気秩序と誘電秩序が共存する物質、いわゆるマルチフェロイック物質は、国内国外で精力的に研究されている。その多くは、Mn や Fe の古典スピンのらせん型磁気秩序に由来する誘電分極を伴う物質である。

本研究対象の酸化物  $\text{NdCrTiO}_5$  は、Nd, Ti, Cr が結晶学的に別のサイトを占有した層状構造をもつ。この物質の磁気誘電性は 70 年代に発見されて以来、ごく最近の一報(Phys. Rev. B 85, 024415 (2012))しかない。その起源については、単純な電気磁気効果によるという考え方とマルチフェロイック物質としての誘電秩序から来るという考え方があり、現在コンセンサスは得られていない。

この問題に取り組むべく、本研究では、多結晶試料を用いて低温電子物性学研究部門にて低温強磁場下での誘電率、分極の精密測定と解析を行った。

## 2. 研究経過

名古屋大学の PPMS 上に構築した分極測定システムでそ 7T までの分極を測定した後に、低温電子物性学研究部門にて 15 T までの分極および誘電率を測定した。

## 3. 研究成果

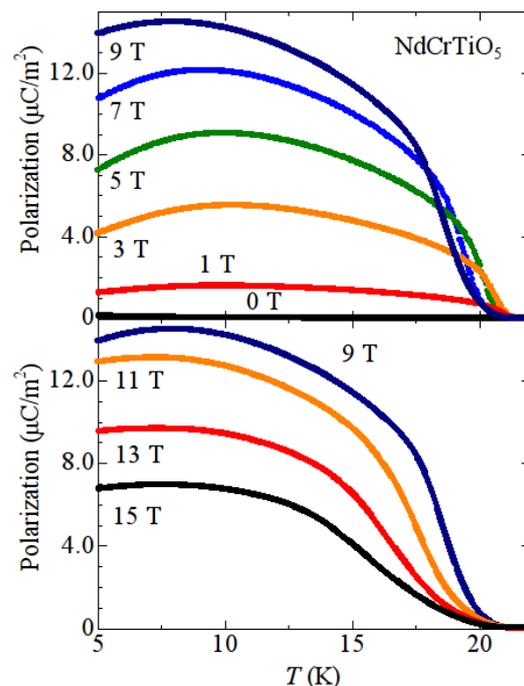
図 1 に実験結果を示す。7 T までの磁場中の電気分極は、先行研究と同様に磁場の増大に伴って大きくなる振る舞いを示した。さらに磁場を大きくした結果、電気分極の大きさは 9 T で最大値をとり、その後、減少していく振る舞いが見られた。

この結果は、この物質の電気磁気効果が単純でない ( $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の分極は外部磁場に比例する) でないことを明確に示す。すなわち、この磁気誘電性は何らかの電気双極子モーメントの秩序を伴うものであること、 $\text{NdCrTiO}_5$  がある種のマルチフェロイック物質であることを示す。

我々は non-collinear な磁気構造から期待される分極を Katsura-Nakagosa-Balatsky モデル(Phys. Rev. Lett. 95, 057205 (2005))で調べ、この系に反強誘電秩序というべき、電気双極子の反平行パターンを見出した。磁気構造が外部磁場によってねじれると誘電分極が生じてよく、強磁場極限で再び消失することも理解できる。

## 4. まとめ

本研究によって、この物質が電気磁気物質であるかマルチフェロイック物質であるかという論争に終止符を打つことができた。この物質は、noncollinear な反強磁性秩序と反強誘電的秩序が  $T_N \sim 20$  K 以下で共存するマルチフェロイック物質であり、分極は外場に対して非単調な応答を示す。今後は単結晶による精密計測と不純物置換された試料における分極と誘電率の振る舞いを詳細に調べることにより、この問題により深く迫りたい。

図 1  $\text{NdCrTiO}_5$  の分極

研究課題名  
カーボンナノ構造の電顕内通電加熱による構造変化その場観察

研究代表者名  
河野日出夫

研究分担者名  
増田悠介

1. はじめに

平均的な物理量ではなく、個々のナノ構造においてどのような物性が出現するのか、またどのような現象が起こりえるのか、そしてそれらはその構造とどう関連するのかという問題は、近年ますます重要視されている。しかし、対象物が極微である為に、こうした問題に取り組みそして解明していくことは、非常に困難である。東北大学金属材料研究所には、透過型電子顕微鏡内において、観察対象の電氣的及び光学的特性を評価する為の設備がある。この装置を有効に活用すれば、私達が作製する各種ナノ構造の構造と性質の関係をその個々において明かにしていくことが可能である。本研究課題では、各種カーボンナノ構造(カーボンナノチューブが潰れてできたカーボンナノリボン、カーボンナノ四面体、カーボンナノチューブ)の通電加熱の透過型電子顕微鏡その場観察を目指す。

2. 研究経過

研究代表者の所属機関である大阪大学理学研究科において、シリコン基板を用いた鉄ナノ粒子触媒化学気相堆積法によりナノチューブ、ナノリボン、ナノ四面体を生成した。これらを透過型電子顕微鏡内で動作するマイクロマニピュレーター付きの試料ホルダーにマウントし、個々のカーボンナノ構造にプローブを接触させ電圧を印加することによって電流を流し、ジュール加熱を行った。

3. 研究成果

ナノリボン/ナノ四面体複合体に3V程度の電圧を印加したところで電流値は数十から数百マイクロアンペアとなり、ナノリボンの破断が起こった。その際、ナノリボンはチューブ状に開くことなく、またナノ四面体はその形状を保ったまま、壊れることはなかった。このことから、カーボンナノリボン、ナノ四面体ともに、非常に高い熱的安定性を有することがあきらかになった。

4. まとめ

現在、上記研究成果に関する論文を準備中である。来年度はこれまでの研究成果を踏まえ、その高い熱的安定性の起源を開きらかにしていきたい。また、熱的安定性の層数依存性、サイズ依存性にも着目していく予定である。

## 研究課題名 窒化物半導体の光学的並びに電気的特性評価

研究代表者名

弘前大学・大学院理工学研究科・岡本 浩

研究分担者名

弘前大学・大学院理工学研究科・成田 英史  
京都工芸繊維大学・工芸科学研究科・播磨 弘、蓮池紀幸、岡田行彦  
千葉大学・大学院工学研究科・石谷 善博、今井 大地

### 1. はじめに

窒化物半導体(GaN、AlN、InN)とその混晶は将来の光・電子デバイスへの応用をめざして注目を集めているが、良質の結晶成長が困難で基礎的性質も未解明な点が多い。この傾向が特に顕著な InN や高 In 組成の混晶は通信用半導体レーザや太陽電池などの応用が期待されているにも関わらず成長技術の確立と物性の解明が後れている。また、最も実用化が進んでいる GaN に関しても N 極性の良好な表面や p 型の結晶を得ることが難しいという問題がある。

本研究では東北大金研の松岡研究室と密接な連携のもとに、試料の結晶性等について光学的特性と電気的特性の両面から詳細な評価を行い、結晶成長法の確立に資することを目的としている。具体的には、弘前大学グループにおいては松岡研究室で作製された N 極性と Ga 極性の GaN の電気的特性評価、京都工芸繊維大学グループにおいてはラマン散乱分光を中心とする同 GaN、および InGaN 混晶の評価、千葉大学グループでは InN のフォトルミネッセンスを中心とした光学的評価を行っている。

### 2. 研究経過

弘前大学グループにおいては松岡研究室で作製された N 極性と Ga 極性の n 型、p 型 GaN のショットキー、オーミック電極の検討と I-V、C-V、DLTS (deep level transient spectroscopy) 評価を進めた。この際、p 型 GaN 試料においてはアクセプタレベルが深いため、DLTS 用の 1 MHz 信号を用いた高速キャパシタンスメータでは評価ができないことがわかったため、高速電流アンプを用いた電流 DLTS 評価装置を構築した。

京都工芸繊維大学グループでは、同じく松岡研究室で作製された N 極性面の一連の試料の可視光励起顕微鏡ラマン散乱分光評価を行った (主な評価ポイントを括弧内に付す) : (a) Mg ドープ GaN (Mg ドープ量依存性)、(b) Mg ドープ GaN (Mg 活性化過程依存性)、(c) Si ドープ GaN (Si ドープ量依存性)、(d) Si ドープ InGaN 混晶 (Si ドープ量依存性)、(e) サファイア off 基板上的 N 極性 GaN (off 角依存性)、(f) トリメチルインジウム (TMI) を添加したサファイア off 基板上的 N 極性 GaN (サーファクタント効果)。

千葉大学グループでは、InN の発光デバイスへの応用を目的として、特に p 型 InN でフォトルミネッセンス強度が弱いことに着目し、非輻射再結合過程の解明を目指した。これまでに少数キャリア拡散長に着目し、p 型試料における電子が n 型試料における正孔に比べ 3 桁大きな速度で非輻射再結合欠陥に輸送されることが分かった。本研究では、非輻射再結合欠陥に輸送されたキャリアの再結合過程がどのように活性化されるかに着目し、フォノン相互作用の評価手法を開拓することを目的とした。

### 3. 研究成果

弘前大学グループの検討においては現状、以下のことが明らかとなっている。n 型 GaN : 容量 DLTS 評価によって E3 と呼ばれることがあるトラップの密度が試料によって大きく異なることが明らかになった。ただしこの差異は一般に大きいことが知られており、N 極性と Ga 極性試料による違いに関しては今後の検討を要する。p 型 GaN : 新たに構築した電流 DLTS 評価装置によってトラップの評価が可能となり、ドーパントの Mg による深いアクセプタ準位が高密度なトラップとして検出された。しかしながらスペクトルがこの信号と重なる位置にあるトラップは検出できないという原理的な問題が明らかになったため、今後は試料構造に工夫を加えた評価が必要である。

京都工芸繊維大学グループの主要成果は以下の通り : (1) Mg ドーピングを受けた GaN 層の p 型化が確認された。(2) Mg ドープ GaN 成長において、Mg 原料ガスの反応炉内流入量は単純に正孔濃度と比例するわけでは無いことが分かった。(3) Mg ドープ GaN 膜において、Mg 活性化過程の有無と GaN 層の p 型化には確実に対応関係があることが確かめられた。ちなみに今回測定した試料の p 濃度は  $\sim 1 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$  程度であった。(4) Si ドープ GaN 膜において、Si ドープ量の増加に比例して自由電子濃度の増加が確認された。(5) サファイア基板の off 角度を変化させることで成長する GaN の表面モフォロジーが変化し、基板からの受ける応力も変化することが確認された。(6) 成長時に添加する TMI は表面モフォロジーの改善に寄与

することが確認され、供給量の増大に伴ってキャリア密度（電子密度）が増加することも確認された。またその一方でキャリア移動度は低下する傾向が見られた。最後に、(7) どの試料についても比較的良好な結晶性を示すラマン散乱信号を観察した。なお、Si ドープ InGa<sub>N</sub> 混晶試料については未完了であった。

千葉大グループでは、InN の赤外発光強度とラマン散乱スペクトルピークエネルギーや半値幅との相関を得た。E<sub>2</sub>(high)モードでは、励起強度増加に対する格子膨張の観点からフォノン拡散状態について、結晶欠陥における散乱に由来する LA モードの半値幅から LA フォノンの散乱速度が見積もられた。発光強度の減少および残留電子密度の増加に伴うフォノン拡散の減少と LA フォノン散乱速度の増加が観測された。今後これを基に非輻射再結合過程との関連を追及してゆく。

#### 4. ま と め

N 極性と Ga 極性 GaN の電気的特性評価に関しては容量 DLTS による n 型 GaN の評価と電流 DLTS による p 型 GaN の評価が可能となった。N 極性と Ga 極性試料による違いに関しては今後、サンプル構造を工夫した検討を要する。

ラマン散乱評価に関しては当初予定された実験計画のうち Si ドープ InGa<sub>N</sub> 混晶試料を除き、ほぼ所望の実験成果を得ることができ、N 極性面成長 GaN 膜試料の p 型化過程に関わる諸性質、サファイア off 基板上の N 極性 GaN の結晶性および TMI のサーファクタント効果について有益な知見を得ることができた。

InN の光学的特性評価に関しては赤外発光強度とラマン散乱スペクトルの相関が得られた他、LA フォノンの散乱速度を見積ることができた。今後、非輻射再結合過程との関連の解明が期待できる。

以上の通り、窒化物半導体とその混晶 (GaN、InGa<sub>N</sub>、InN) に関する電気的特性並びに光学的特性を行い、各種の知見が得られている。今後、結晶成長条件と各種の特性の関連等を調べていくことにより、高い結晶品質を得るための成長技術の確立とこれまでに未知の物性の解明が期待できる。