

## 層状半導体(LaO)MnAs の Zn 置換効果

## An effect by the Zinc substitution of stratified formation semiconductor (LaO)MnAs

○内藤彰人<sup>1</sup>, 諸澤泰裕<sup>2</sup>, 渡辺忠孝<sup>3</sup>, 高野良紀<sup>3</sup>, 高瀬浩一<sup>3</sup>  
A.Naito<sup>1</sup>, Y. Morosawa<sup>2</sup>, T. Watanabe<sup>3</sup>, Y. Takano<sup>3</sup>, K. Takase<sup>3</sup>

Abstract: We have investigate the substitution effect of Mn's atom by Zn's atom on the physical properties of layered antiferromagnetic semiconductor (LaO)MnAs with high Néel temperature over room temperature. However, absolute value of substituted sample did not change.

## 1. はじめに

これまで、我々の研究室では、層状オキシカルコゲナイドやオキシプニクタイトの物性について研究してきた。近年、鉄を含むオキシプニクタイト(LaO)FeAs が超伝導になることが見いだされ<sup>[1]</sup>、それ以来、この物質系に関する研究が世界中で行われている。我々は、これらの物質群の中でも、半導体物質に注目し、(LaO)ZnAs や(LaO)MnAs に関する研究を行ってきた。本研究では反強磁性半導体である(LaO)MnAs<sup>[2]</sup>に注目し、この物質にキャリアドーパや非磁性元素での置換を行うことで、この半導体の電氣的、磁性的性質の制御を試みることを目的とする。

(LaO)MnAs の結晶構造を Fig. 1 に示す。晶系は正方晶、空間群は  $P4/nmm$  で、 $c$  軸方向に LaO 層と MnAs 層が交互に積層している。また As を頂点とした正四面体の中心に Mn が存在した構造を持つ。

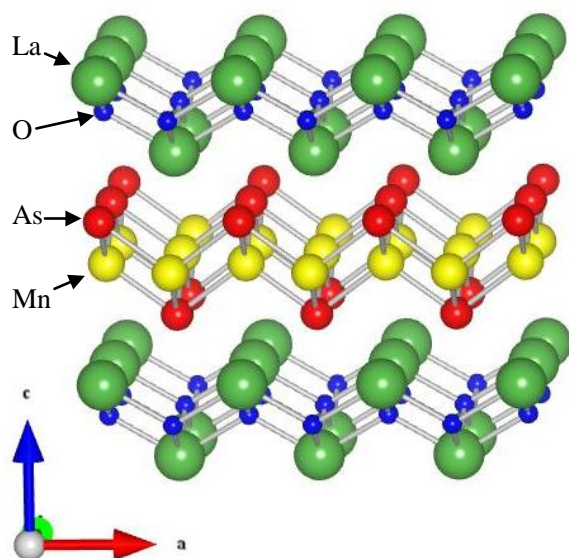


Fig 1. Crystal structure of (LaO)MnAs

## 2. 実験

試料作成には固相反応法を用いた。原材料には純度 99.9% の La, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Mn, Zn, As の粉末試料を用いた。Mn, Zn, As は大気中, La, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は Ar 雰囲気中で計量した。計量した試料を Ar 雰囲気中で 40 分混合し、6t の圧力下で 10 分間圧粉し、短冊状に成形した。その後、希土類元素が石英管と反応するのを防ぐため試料を Ta 管に入れ、それを石英管に真空封入し、950 °C で 48 時間の焼成を行った。

得られた試料の結晶構造評価のために CuK $\alpha$  ( $\lambda = 1.5418\text{\AA}$ )線による粉末 X 線回折測定をおこない、磁氣的性質評価のために SQUID を用いた磁化測定を 4 ~ 300 K の温度領域で行った。電気抵抗率は直流二端子法を用いて 100 ~ 300 K の温度領域で測定した。

## 3. 実験結果

作成した試料の粉末 X 線回折プロファイルとシミュレーション結果を Fig. 2 に示す。それぞれの試料のプロファイルはシミュレーション結果とよく一致しており、不純物のないほぼ純良な試料であることがわかる。しかし、(LaO)ZnAs には少量の La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が見られる。また、Zn の割合が増すにつれピークが広角度側にシフトしていることがわかる。

Cohen の最小二乗法を用いて試料の格子定数を求めた結果を Fig. 3 示す。ドーパ量に従って格子定数  $a$  が減少し  $c$  が増加する傾向があることがわかる。 $a$ ,  $b$  軸方向に比べ、 $c$  軸方向は結合が弱いことが予想される。

Fig. 4 に磁化率の温度依存性を示す。(LaO)MnAs, (LaO)ZnAs は温度に依存しない磁化率を示し、(LaO)MnAs は反強磁性<sup>[2]</sup>, (LaO)ZnAs は非磁性<sup>[3]</sup>であるという報告と一致する。また、(LaO)Mn<sub>0.5</sub>Zn<sub>0.5</sub>As は常磁性になっていることがわかる。これは、置換によって(LaO)MnAs の反強磁性秩序が乱されたためであると思われる。

Fig. 5 に電気抵抗率の温度依存性を示す。  
(LaO)MnAs, (LaO)ZnAs, (LaO)Mn<sub>0.5</sub>Zn<sub>0.5</sub>As はいずれも半導体であり、特に Mn を Zn で置換した試料においても大きな電気抵抗の減少や金属化は見られなかった。

酸素をフッ素で置換することにより電子ドーピングを試みた結果、電気抵抗の減少は確認されたものの、金属化することにはなかった。

#### 4. まとめ

本研究では(LaO)MnAs の Mn を Zn で、酸素をフッ素で置換することにより、この物質の電気的、磁気的性質の変化について調査した。その結果、電気抵抗の絶対値を小さくすることには成功したが、温度依存性は、半導体のままであった。Zn 置換は、Mn の反強磁性秩序を乱し、磁性を反強磁性から常磁性へと変化させたが、電気抵抗は、半導体のままであった。以上の結果より、(LaO)MnAs は、Mott 絶縁体でなくバンド絶縁体であると結論付けられる。

#### 5. 参考文献

- [1] Y. Kamihara, *et. al.* Soc. 130, 3296 (2008)
- [2] Nicolas Emery, *et. al.* Chem. Commun., 2010, 46, 6777–6779
- [3] Yoshiki Takano, *et. al.* Journal of Alloys and Compounds 451 (2008) 467–469

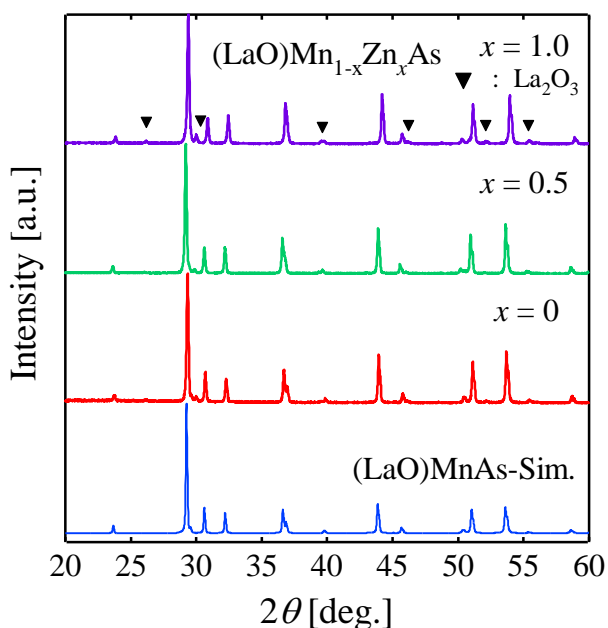


Fig. 2 XRD of (LaO)Mn<sub>1-x</sub>Zn<sub>x</sub>As. ( $x = 0 \sim 1.0$ )

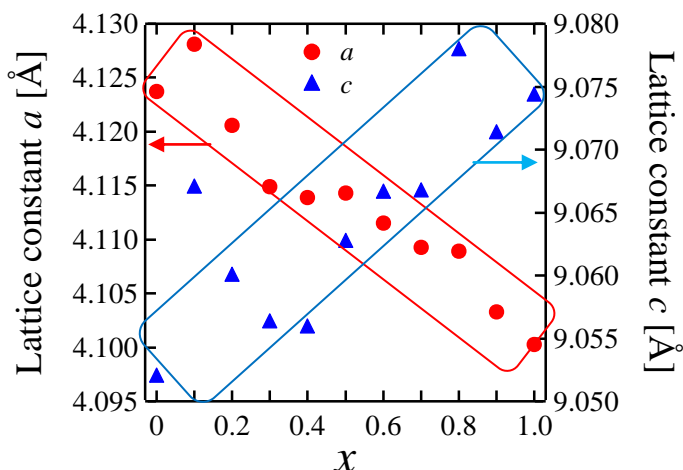


Fig. 3 Lattice constants of (LaO)Mn<sub>1-x</sub>Zn<sub>x</sub>As. ( $x = 0 \sim 1.0$ )

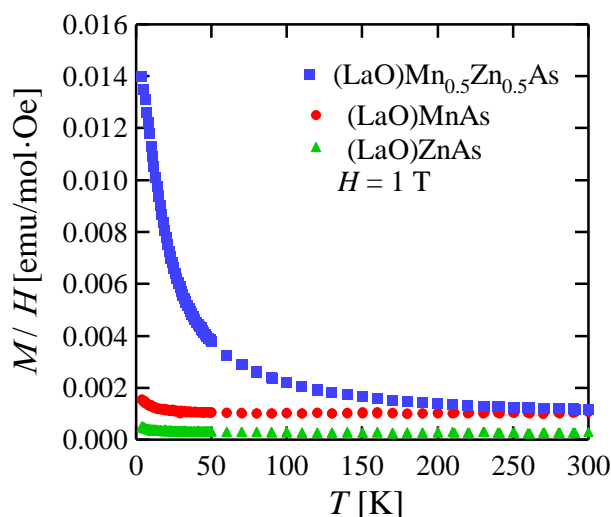


Fig. 4 Temperature dependence of magnetic susceptibilities in (LaO)Mn<sub>1-x</sub>Zn<sub>x</sub>As. ( $x = 0, 0.5, 1.0$ )

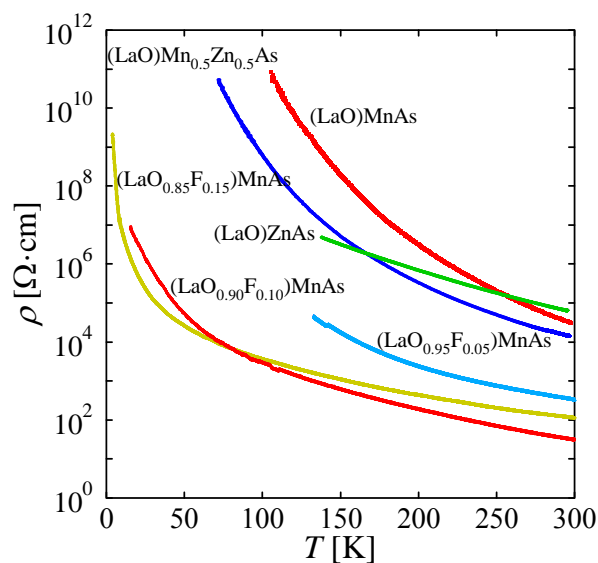


Fig. 5 The temperature dependence of resistivity of (LaO)Mn<sub>1-x</sub>Zn<sub>x</sub>As. ( $x = 0, 0.5, 1.0$ )