

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 14 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2012

課題番号：21710102

研究課題名（和文）窒化物半導体界面におけるスピン物性の制御

研究課題名（英文）Control of spin properties at nitride-semiconductor interfaces

研究代表者

合田 義弘（GOHDA YOSHIHIRO）

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：50506730

研究成果の概要（和文）：本研究では、GaNをはじめとする窒化物半導体と非磁性物質との界面における磁性の発現および制御を目指し第一原理計算を行った。まず、AlN/MgB<sub>2</sub>界面および GaN/ZrB<sub>2</sub>界面を理論解析し、AlN/MgB<sub>2</sub>界面では界面強磁性が発現する可能性を示した。また、界面スピン物性の応用として最も重要であると考えられるスピン伝導特性を量子コンダクタンスの計算により明らかにした。これらの結果はPhysical Review Lettersに掲載された。また、GaN/グラフェン界面のスピン物性も精査しその結果をApplied Physics Lettersに発表した。

研究成果の概要（英文）：Theoretical investigations on magnetism based on first-principles calculations were conducted for interfaces between nitride-semiconductors such as GaN and non-magnetic materials. Prediction of interface ferromagnetism for AlN/MgB<sub>2</sub> and its spin-transport properties were published in Physical Review Letters. In addition, findings on spin properties of GaN/graphene interfaces were disclosed in Applied Physics Letters.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010 年度	800,000	240,000	1,040,000
2011 年度	800,000	240,000	1,040,000
2012 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学、ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：ナノ表面・界面、ナノ材料、磁性、物性理論

## 1. 研究開始当初の背景

非磁性材料間の界面において磁性を発現させる事は、非超伝導材料界面において超伝導を発現させる事と同様、基礎的にも応用的にも有用であるが、現状では実現されていない。これまでの研究において非磁性材料の GaN が磁性を持ち得る事が示唆されたため、GaN と非磁性材料とのヘテロ界面においても磁性の発現が期待されると考えられたが、そのスピン状態・磁気

的性質に関する研究は現状では皆無という状態であった。したがって、密度汎関数法(DFT)に基づく第一原理計算による詳細な物性予測が望まれていた。

## 2. 研究の目的

本研究では、第一原理計算により GaN等窒化物半導体ヘテロ界面の電子状態における固有欠陥や磁性原子の影響に対し物性予測を行い、界面磁性のナノスケールでの制御に必要な

る本質的な要素を明らかにする事を目的とする。

### 3. 研究の方法

理論解析はDFTに基づく第一原理計算により行った。計算資源としては東京大学物性研究所および情報基盤センターのスーパーコンピュータシステムを用いた。

### 4. 研究成果

(1)我々は第一原理計算による理論解析により、GdをドーブしたGaN中におけるスピン分極したGa単原子空孔間の強磁性的相互作用が実験的に測定された巨大磁気モーメントの起源となっている事を明らかにしたが、窒化物半導体に対しては複空孔の性質に関してこれまで調べられていない。そこで我々は、GaN複空孔のスピン状態及び荷電状態を密度汎関数法により明らかにする事を試みた。原子構造を最適化した結果、Ga-N複空孔は2つの準安定な原子構造を取り得る事が分かった。その構造安定化のメカニズムとしては原子変位による電荷移動と交換分裂によるエネルギー利得があり、両者の微妙なバランス関係により二つの安定構造が存在する事が分かった。

(2)バルク中のスピン分極とは対照的に、窒化物半導体ヘテロ界面におけるスピン分極の可能性に関しては、まだ検討されていない。そこで、格子整合性の高い窒化物半導体/ホウ素化合物界面に着目し、密度汎関数法による第一原理計算により界面スピン状態を検討した。様々な界面原子構造を検討し、最安定となる界面原子構造を同定した。AlN/Mg<sub>2</sub>(0001)界面において強磁性的スピン分極が安定となるという結果を得た。AlN/Mg<sub>2</sub>界面に対して得られたエネルギーバンド構造によれば、界面では強磁性状態が再安定となり、界面の窒素原子あたり0.69  $\mu$ Bの磁気モーメントが得られた。さらに我々は、強磁性状態の起源は窒素原子の2p状態のスピン分極によるものである事を明らかにした。また、GaN/ZrB<sub>2</sub>(0001)界面に対する検討も行い、より大きな振幅を持つ金属誘起ギャップ状態(MIGS)による遮蔽のため、この界面ではスピン分極が起こらない事が分かった。ただし、GaN/ZrB<sub>2</sub>(0001)界面においても固有欠陥を導入する事により、スピン分極が起こる可能性が考えられる。

(3) 上記界面スピン分極は界面に局在しているという意味で2次元的であるため、南部-Goldstoneモードとの関連を検

討した。等方的Heisenbergモデルでは2次元強磁性は実現しないが、現実の系では界面垂直方向に対して対称性がないため実際には完全に2次元という訳ではなく擬2次元系と言える。さらに界面局所状態密度より磁気異方性の存在が明らかとなった。この2つの要因により、強磁性状態は許容される事が分かった。また、原子構造からは界面での化学結合は飽和している様に見えるため、このスピン分極は電子状態を実際に計算しなければ予測する事は出来ない事が特徴である。

(4) AlN/MgB<sub>2</sub>(0001)界面における窒素2p//状態の局所状態密度を計算しニッケルおよび鉄の状態密度と比較した結果、Fermi準位近傍においてスピン分極によりピーク位置がFermi準位からずれているという意味において類似している事が分かった。また、窒素2p//状態の局所状態密度はBloch状態となった後においても完全に2重縮退しており、AlN/MgB<sub>2</sub>界面における界面強磁性はHund結合とFermi準位近傍の高い局所状態密度による遍歴強磁性であると考えられる。

(5) GaN等の窒化物半導体を成長させ、他基盤に移植する事は重要である。また、グラフェンは基礎的興味のみならず、ナノエレクトロニクスにおける応用においても期待されている。グラファイト基盤上にGaNをパルスレーザー堆積法により成長させた実験が最近報告されており、グラファイト/GaN界面からグラフェン/GaN界面を力学的引きはがしやレーザー照射等により得る事は可能であると考えられる。グラファイトあるいはグラフェンとGaNの界面に対して第一原理計算は既に報告されているものの、グラフェン/GaN界面としては1x1周期しか考慮されていない。そこで、本研究では様々な周期構造を第一原理計算により検討し、再安定構造を予測した。第一原理計算はOpenMXコードを用い、密度汎関数理論の一般化密度勾配近似によるPBE汎関数により行った。グラフェンは2次元物質であるため、その上におけるGaNの成長に伴いGaNの格子定数に応じて引っ張りの応力を受ける。この状況はグラファイトにおいても、グラファイト層間の相互作用が弱いと同様である。本研究による検討の結果、グラフェン/GaN界面においてはこの引っ張り応力によりグラフェンのC-C結合が一部切断され、C-N-C結合が形成される事が分かった。この圧力誘起変態はグラフェン/AlN界面では起こらない事も分かった。また、これら両界面の電子基底状態はスピン分極するものの、GaN/MgB<sub>2</sub>界面と異なり強磁性は安定化せず超常磁性を示すと結論づけられた。

(6) 界面における固有欠陥として、陽イオン空孔を主として格子間原子、複空孔を検討した。また、GaNはワイドギャップ半導体であるため、金属と界面を構成した時の金属誘起ギャップ状態のショットキー障壁への影響は小さい事が明らかになっているが、欠陥誘起ギャップ状態の影響は知られておらず、これを明らかにする事は基礎的に興味深い。したがって、本研究では欠陥誘起ギャップ状態に着目しつつ、スピン物性とフェルミレベルピン留めとの相関関係の理論解析を行った。また半導体材料としてGaPとGaNとの比較も行った。これらの理論解析は、界面の原子スケールでの制御・物性予測への第一歩としても意義深いと考えられる。本研究により、界面スピン物性を制御する指針が得られ、新しい角度からのマテリアルデザインとしての大きな寄与が期待される。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

- (1) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Structural phase transition of graphene caused by GaN epitaxy, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 053111 (2012); doi: 10.1063/1.3680100. 査読あり
- (2) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Two-dimensional intrinsic ferromagnetism at nitride-boride interfaces, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 047201 (2011); doi: 10.1103/PhysRevLett.106.047201. 査読あり

[学会発表] (計 28 件)

- (1) Y. Gohda, First-principles interface science: structures and electronic states, Material simulation in petaflops era (MASP2012), 2012年07月12日 東京大学物性研究所 (千葉県) (招待講演)
- (2) Y. Gohda, First-principles predictions on properties of nano/energy materials, Collaborative Conference on Materials Research (CCMR2012) 2012年06月27日 Seoul, Korea (招待講演)
- (3) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Ab-Initio Identification of a New Structure of Graphene Induced by GaN Epitaxy, 2012 MRS Fall Meeting, 2012年11月27日, Boston, USA.
- (4) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Structural phase transition of graphene caused by GaN epitaxy predicted by ab-initio calculations, Graphene Nanoscience: from Dirac Physics to Applications, 2012年09月12日, Granada, Spain.

(5) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, First-principles predictions of graphene structure governed by GaN epitaxy, International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS16), 2012年07月02日, Genova, Italy.

(6) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Possibility of two-dimensional ferromagnetism at nitride-boride interfaces, The 13th International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces (ICFSI-13), 2011年7月5日, Praha, Czech Republic.

(7) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Magnetism at interfaces consisting of nonmagnetic materials, International Focus Workshop on Quantum Simulations and Design (QSD2011), 2011年9月27日, Dresden, Germany.

(8) 合田義弘、常行真司、非磁性元素界面における磁性の可能性、日本物理学会2011年秋季大会、2011年9月23日、富山大学 (富山県)

(9) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Intrinsic ferromagnetism at AlN-MgB<sub>2</sub> interfaces, 2011 APS March Meeting, 2011年3月22日, Dallas, USA.

(10) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, Interface atomic structures and electronic properties of group-III nitrides, Psi-k Conference 2010, 2010年9月13日, Berlin, Germany.

(11) Y. Gohda and S. Tsuneyuki, First-principles calculations on metal-induced gap states at metal-semiconductor interfaces, 2010 APS March Meeting, 2010年3月18日, Portland, USA.

(12) Y. Gohda and A. Oshiyama, Structural bistability and spin polarization of multi-vacancies in GaN identified by first-principles calculations, 25th International Conference on Defects in Semiconductors, 2009年07月20日, Sankt-Peterburg, Russia.

[図書] (計 1 件)

合田 義弘 (分担執筆)、コロナ社、シミュレーション辞典・項目「GaN 中不純物のシミュレーション」(2012) p366-366

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

合田 義弘 (GOHDA YOSHIHIRO)  
東京大学・大学院理学系研究科・助教  
研究者番号: 50506730

(2) 研究分担者 ( )

研究者番号 :

(3) 連携研究者 ( )

研究者番号 :