

平成 21 年 5 月 8 日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19740239

研究課題名（和文） クラスタ-CPA 法による不均一希薄磁性半導体の磁氣的及び電氣的特性

研究課題名（英文） Magnetic and electric properties of inhomogeneous dilute magnetic semiconductors calculated by the cluster CPA method

研究代表者 佐藤 和則 (SATO KAZUNORI)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・特任准教授（常勤）

研究者番号：60379097

## 研究成果の概要：

単一サイトCPAによる希薄磁性半導体の電子状態計算に、クラスタ埋め込み法により局所環境効果を取り入れる計算機プログラムを開発し、磁性不純物間の磁氣的相互作用への影響を調べた。その結果、特に第一近接原子間の磁氣的相互作用が局所環境効果の影響を大きく受けることがわかり、不純物の配置によっては磁氣的相互作用が符号を変える場合もあることが示された。しかしこの効果は磁氣的なパーコレーションのために系のキュリー温度には大きく影響しない。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,000,000	0	2,000,000
2008年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	390,000	3,690,000

## 研究分野：固体電子論

科研費の分科・細目：物理学・数理物理物性基礎

キーワード：第一原理計算、材料設計、スピントロニクス、不規則系、希薄磁性半導体、コヒーレントポテンシャル近似、局所環境効果、クラスタ法

## 1. 研究開始当初の背景

次世代エレクトロニクスとして、超高速、超高集積、超省エネルギーの半導体スピントロニクスが注目を集めており、その基礎材料として希薄磁性半導体が精力的に研究されている。希薄磁性半導体は半導体に磁性不純物を数%添加した不規則置換型半導体化合物である。従来第一原理計算には不規則性を取り入れるためにコヒーレントポテンシャル近似が用いられてきている。

近年、希薄磁性半導体について、磁性不純物の不均一分布が系の物性に大きく影響するということがわかってきている。しかし、不均一系の物性を第一原理から予測するこ

とは非常に難しく、従来の磁氣的交換相互作用等の計算では均一な不純物分布を仮定し単一サイトコヒーレントポテンシャル近似を適用しており、局所環境効果や、不純物の不均一分布の効果を無視しており、より精度の高い計算が望まれていた。

## 2. 研究の目的

本研究は、単一サイトコヒーレントポテンシャル近似では表すことのできない局所環境効果をクラスタ埋め込み法により電子状態計算に取り入れることを目的とする。特に希薄磁性半導体注目し磁氣的、電氣的な

特性に局所環境効果が及ぼす効果について調べる

さらに、クラスター法により局所環境効果を取り入れ電子状態を求め、不純物分布に揺らぎがある場合の磁氣的交換相互作用、原子対相互作用の計算を行う。計算した相互作用を用い希薄磁性半導体の磁氣的特性および電気的特性を第一原理から計算し、強い不均一が起きた希薄磁性半導体のスピントロニクス材料としての特性評価をおこなう。最終目標としては、積極的に不純物の不均一分布を制御し磁気特性電気特性を制御する方法を提案し、新しい半導体スピントロニクスデバイスデザインへの展開を目指す。

### 3. 研究の方法

単一サイトコヒーレントポテンシャル近似(CPA)を Korringa-Kohn-Rostoker (KKR)法に取り入れた電子状態計算パッケージ MACHIKANEYAMA が公開されているので、それを基にして、単一サイト CPA では表すことのできない局所環境効果をクラスター埋め込み法による電子状態計算プログラムを開発する。つぎに、開発したプログラムを使い希薄磁性半導体の電子状態を計算し、磁性不純物間の磁氣的相互作用をリヒテンシュタインの方法により計算するプログラムを開発する。開発した方法を実際の系に適用しモンテカルロシミュレーションまたは乱雑位相近似によりキュリー温度を具体的に計算することで、局所環境効果の重要性を調べる。

次に、CPA 媒質中での不純物間の原子対相互作用に局所環境効果を取り入れるプログラムコードを開発し、モンテカルロシミュレーションにより希薄磁性半導体の不均一分布のシミュレーションを行う。さらに不均一分布がある場合の電子状態や、磁氣的性質、電気的性質が、不純物が均一に分布している希薄磁性半導体と比べてどのように変わるかを定量的に調べる。

### 4. 研究成果

H19 年度は、KKR-CPA-LDA 電子状態計算パッケージにクラスター埋め込み法を取り入れ、単一サイト近似による磁氣的交換相互作用の計算法(リヒテンシュタインによる方法)と、本研究で開発した局所環境効果を取り入れた計算法(クラスター埋め込み法)を用いて、希薄磁性半導体の磁氣的交換相互作用における局所環境効果の影響を調べた。その結果、特に第一近接原子間の磁氣的相互作用が局所環境効果の影響を大きく受けることがわかった。また、局所環境効果は非常に大きく、不純物の配置によって磁氣的相互作用は大きくばらつき、符号を変える場合もあ

ることが示された。磁氣的相互作用は不純物配置に大きく依存し、磁氣的相互作用の分布は不純物配置により分類できる。

単一サイト CPA での有効交換相互作用の計算では CPA 媒質中に置かれた2つの不純物間の交換相互作用を計算し、注目している2つの不純物以外の不純物配置については配置平均がとられている。一方、キュリー温度の見積もりではスーパーセル中に不純物をランダムにばらまいてモンテカルロシミュレーションを行っている。このとき不純物間の相互作用として配置平均した交換相互作用を用いている。つまり、交換相互作用を求める段階とモンテカルロシミュレーションの段階で配置平均の取り方が一貫していない。本研究では不純物配置の効果を調べるため、交換相互作用を計算する2つの不純物周りにクラスターを考え、それを CPA 媒質中に埋め込むことで局所環境効果を考慮した交換相互作用の計算を行った。以下のようなことがわかった。Liechtenstein の方法では近似されている不純物による多重散乱を我々の計算ではすべて取り入れている。そのため、ただ2つの不純物を入れた計算(2-impurity-embedding)においても Liechtenstein の方法とは差がみられる。この効果は最近接原子間で大きく遠距離では両者は一致する。交換相互作用は磁性不純物の配置に大きく依存する。配置平均をとった結果は 2-impurity-embedding の値にほぼ一致する。

以上の計算で、Mn 不純物が高濃度に集まった場合、Mn 間の磁氣的相互作用が反強磁性的になり、スピントロニクスへの応用に必要な強磁性が失われる可能性が示唆された。一方、希薄磁性半導体は一般に溶解度ギャップを持つ系で熱平衡状態では相分離をおこし高濃度領域を作る傾向がある。具体的な計算機材料設計として、同時ドーピング法により相分離を抑制し母体半導体に遷移金属を高濃度に添加する方法を提案した。例えば GaMnN の場合、Mn のみの添加の時は混合エネルギーは正の大きな値となり相分離をおこすことがわかるが、Mn と同時に 0 を添加することで、混合エネルギーが大きく減少し、Mn 濃度の低い領域では負の値となる。これは同時ドーピングが Mn の高濃度均一添加に有効であることを示している。

希薄磁性半導体は一般に溶解度ギャップを持つ系で熱平衡状態では相分離をおこし高濃度領域を作る傾向がある。相分離を抑制し母体半導体に遷移金属を高濃度に添加することで高いキュリー温度の実現が可能となるが、そのために格子間不純物(Li, Na, Be, Mg, Cu 等)を磁性不純物と同時に添加する同時ドーピング法が有効と考えられる。特に GaMnAs に注目し、Mn のみの添加の場合と、

格子間不純物を同時添加した場合について混合エネルギーをKKR-CPA-LDA法を用いて計算し同時添加により混合エネルギーが大きく減少し、Mn濃度の低い領域では負の値となることを示した。これは同時ドーピングがMnの高濃度均一添加に有効であることを示している。

しかし、同時ドーパントはホール補償により強磁性を抑制する働きがあるので、モンテカルロシミュレーションにより格子間不純物の拡散をシミュレートし、熱処理による格子間不純物の除去法をデザインした。とくに格子間Liは拡散障壁が低く、また磁性不純物との相互作用もそれほど大きくないため除去が比較的容易であり、効率的な同時ドーパントとして非常に有望であることがわかった。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計14件)

① H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki and V. A. Dinh, 'Computational nano-materials design for the wide band gap and high  $T_C$  semiconductor spintronics', Semiconductors and Semimetals 82 (2008) 433-454 査読あり

② V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, 'New high- $T_C$  half Heusler ferromagnetic NiMnZ (Z = Si, P, Ge, As)', J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) 14705 (6 pages) 査読あり

③ H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and P. H. Dederichs, 'Computational nano-materials design for II-VI compound semiconductor-based spintronics', J. Kor. Phys. Soc. 53 (2008) 1-12 査読あり

④ K. Sato, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida, 'First-principles study on the ferromagnetism and Curie temperature of Mn-doped AlX and InX (X = N, P, As and Sb)', J. Phys. Soc. Jpn. 76 (2007) 24717 (12 pages) 査読あり

⑤ H. Kizaki, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, 'Effective exchange interactions in CuAlO<sub>2</sub>-based dilute magnetic semiconductors by first-principles calculations', Physica B, 401 (2007) 462-464 査読あり

⑥ K. Sato, T. Fukushima and H. Katayama-Yoshida, 'Super-paramagnetic blocking phenomena and room-temperature

ferromagnetism in wide band-gap dilute magnetic semiconductor (Ga, Mn)N', Jpn. J. Appl. Phys. 46 (2007) L682-L684 査読あり

⑦ K. Sato, T. Fukushima and H. Katayama-Yoshida, 'Ferromagnetism and spinodal decomposition in dilute magnetic nitride semiconductors', J. Phys. Condens. Matter 19 (2007) 365212 (8 pages) 査読あり

⑧ K. Sato and H. Katayama-Yoshida, 'Design of colossal solubility of magnetic impurities for semiconductor spintronics by the co-doping method', Jpn. J. Appl. Phys. 46 (2007) L1120-L1122 査読あり

[学会発表] (計18件)

① K. Sato, 'Control of spinodal decomposition in dilute magnetic semiconductors and computational materials design for semiconductor spintronics (invited)', Computational Magnetism and Spintronics International Workshop, Nov 7, 2008, Dresden, Germany

② K. Sato, 'Design of dilute magnetic semiconductors with room temperature ferromagnetism by controlling spinodal decomposition (invited)', American Physical Society March Meeting, 2008年3月13日, New Orleans, LA, USA

③ K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda and H. Katayama-Yoshida, 'Computational nano-materials design for semiconductor spintronics (invited)', The 4<sup>th</sup> conference of the Asian consortium on computational materials science, 2007年9月13日, Seoul, Korea

[図書] (計2件)

① 佐藤和則、豊田雅之、吉田博(シーエムシー出版)「ZnO系の最新技術と応用 (八百隆文監修)」第9.1章酸化亜鉛ベース希薄磁性半導体のマテリアルデザイン(2007)193-213ページ

② K. Sato, M. Toyoda, T. Fukushima, V. A. Dinh, H. Kizaki and H. Katayama-Yoshida (Transworld research network, Kerala, India) 'Computational materials design of ZnO-based semiconductor spintronics' in Magnetism in semiconducting oxides (Ed. N. G. Hong,) (2007) 140ページ (そのうち21ページ)

[その他]

<http://www-suzuki.mp.es.osaka-u.ac.jp>  
[http://www.cmp.sanken.osaka-u.ac.jp/index\\_jp.html](http://www.cmp.sanken.osaka-u.ac.jp/index_jp.html)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

佐藤 和則 (SATO KAZUNORI )

大阪大学・大学院基礎工学研究科・

特任准教授 (常勤)

研究者番号 : 60379097

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし