

## 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28日現在

機関番号：12701

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2009～2012

課題番号：21686003

研究課題名（和文）

Theory of embedded nanostructures

研究課題名（英文）

Theory of embedded nanostructures

研究代表者

RAEBIGER Hannes

横浜国立大学・工学研究院・准教授

研究者番号：20531403

研究成果の概要（和文）：半導体の特性は欠陥や不純物によって変えることができます。それらの欠陥が固まりになったら、さらにその物質の物性がかわってきます。本研究は固体物質中に不純物からナノクラスタ・ナノ構造を作ることについての理論研究です。主な成果は（1）不純物クラスタ理論（2）AlN,ZnTeなどの半導体中の1次元的なナノ構造の理論（3）物質中のナノ構造によって新たな太陽電池材料の理論予測。

研究成果の概要（英文）：The physical properties of semiconductors are governed by defects, and those of layered materials by their interfaces. This study investigates the possibility of constructing nanostructures embedded inside a bulk semiconductor. Main results include (1) a novel theory of defect clusters, (2) a theory of quasi-1D Cr chains embedded in ZnTe for the purpose of making the entire bulk magnetic, and (3) a nanostructured material based on metal precipitates in an insulator material is proposed as a solar cell material.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	16,000,000	4,800,000	20,800,000
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2011年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2012年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
総計	20,500,000	6,150,000	26,650,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用物性・結晶工学

キーワード：スピントロニクス・材料デザイン・物性理論

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 半導体中の遷移金属不純物によって磁性半導体を含む新たな材料は開発されています。それらの不純物が固まり・クラスタになることによって、物質全体の物性は劇的にかわることが本研究代表者に発表されています。当時、本研究代表が提案したクラスタ現象に基づいて、特に、昆布相や大理石相が発表されています。日本国内及び国際研究業界でクラスタ現象は注目されています。

(2) 本研究代表者により、半導体中の遷移金属不純物についての電化中性則理論が世界的に認められて*Nature*誌に掲載されて、その不純物理論をクラスタ・固まりに一般化する必要性があります。

## 2. 研究の目的

(1) 本研究に必要な計算機及び研究環境をたてること。

(2) 不純物クラスターの量子力学的な第一原理計算によって研究する。その計算成果によって新たな理論モデルを作ること。

(3) 個体中の遷移金属クラスターを明確にするために、遷移金属分子及び錯体の第一原理計算を行い、電子相関効果、スピン状態、酸化数を研究する。

(4) 1次元的不純物クラスターの理論計算及びそれによって理論モデルを作ること。

(5) 多次元的なナノ構造の理論計算及びそれによって理論モデルを作ること。

### 3. 研究の方法

(1) 並列化できるようなLinux計算機クラスターを作る。TFLOPSの制度を目指す。

(2) 個体系の理論計算はVASPなど第一原理計算ソフトで行う。本研究に必要な非局所できる汎関数などを本研究室で作る。

① LDA/GGA+U+NLEP+ $\lambda$ 手法開発を行う。

② 電化中性則をもとにして、理論開発。

(3) 分子・錯体系の第一原理計算はGAMESSなどの第一原理計算ソフトで行う。

① 1電子軌道理論・分子軌道法で計算する。

② 電子相関効果をCASSCF手法によって評価する。

### 4. 研究成果

(1) 80CPUのInfiniBandノード間スイッチで計算機を作りました。本研究に必要な第一原理計算をできるような環境を作りました。

(2) 電化中性則によって不純物クラスターの電子スペクトル予測できる理論を開発しました。

① GaN中のMn,Cr不純物と欠陥及び酸素不純物のクラスターの電子スペクトルを電化中性則によって計算して、Physical Review B誌掲載されました。

(3) 1次元的不純物ナノ構造に向けて、AlN半導体中のCr不純物間相互作用の第一原理計算を行いました。

① Cr不純物が対称性を破ってJahn-Teller効果を起こすことを発見しました。

② Cr不純物クラスターがさらに対称性を破ったりすることを発見しました。そのJahn-Teller効果及び複数の対称性の破れによって新たな磁気相互作用を発見しました。これらの成果も Physical Review B誌掲載されました。

(4) AlN半導体中にCr不純物の1次元的不純物ナノ構造の計算を行いました。熱力学的に安定であったり、磁気相互作用複雑であったりすることを発見しました。細かい成果は現在解析中です。

(5) ZnTe半導体中のCr不純物の1次元的不純物ナノ構造の第一原理計算を行いました。

① 1次元ナノ構造の成長には方向依存がないことを発見しました。化学的相互作用は等方的であることです。

② 1次元ナノ構造の断面積が大きくなったらエネルギー的に安定になります。

③ 1次元ナノ構造の磁性は科学相互作用と異なって、断面積が大きくなったら磁気励起エネルギーが小さくなります。

④ 上記の成果によって、非平衡的な断面積の小さいナノ構造を成長すれば磁気相互作用をさい最大化できることがわかりました。本成果は新たなデザイン原理に至ります。

(6) GaN半導体中にGd不純物を高濃度で入れれば、GdN金属相にスピノダル分解することが実験的に確認されています。だが、GaN/GdN界面はオーミックであるかショットキー接合であるか知られていません。その界面物性を明確にするために第一原理計算を行いました。

① GaN/GdN界面はショットキー接合であること予測できました。電位差を求めました。

② 上記のショットキー接合になっているスピノダル分解ナノ構造は色素増感と同じく不純物増感すれば太陽電池材料として使われることを予測しています。本成果は発表論文及び特許に向けて発展中です。

(7) 遷移金属錯体の研究において世界で初めて第一原理計算で低スピン状態を再現し、新たな配位子場における遷移金属のスピン理論はIUMRS-ICEM2012でMRS-J学会奨励賞を受賞した。

### 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3件)

1. H. Raebiger, T. Fujita, "Multiple exchange interactions induced by Jahn-Teller distortions in dilute magnetic semiconductors", Physical Review B **84**, 172406 (2011).

DOI: 10.1103/PhysRevB.84.172406

査読有

2. H. Raebiger, "Theory of defect complexes in insulators", Physical Review B **82**, 073104 (2010).

DOI: 10.1103/PhysRevB.82.073104

査読有

3. Zunger, S. Lany, H. Raebiger, “*The quest for dilute magnetism in semiconductors: Guides and misguides by theory*”, *Physics* **3**, 53 (2010).

DOI: 10.1103/Physics.3.53

招待論文・査読無

[学会発表] (計42件)

1. H. Raebiger, S. Fukutomi, and H. Yasuhara, “*Stability of high and low spin states*”, **oral presentation** at the APS March Meeting 2013, Baltimore MD, USA, March 18-22 (2013).  
口頭発表
2. H. Raebiger, S. Fukutomi, and H. Yasuhara, “*Spin multiplicity of octahedral cobalt complexes*”, **oral presentation** at the IUMRS-ICEM2012, Yokohama, September 23-28 (2012).  
口頭発表
3. H. Raebiger, “*Polaronic trapping in magnetic semiconductors*”, **oral presentation** at the APS March Meeting 2012, Boston MA, USA, February 27 - March 2 (2012).  
口頭発表
4. H. Raebiger, “*Self-interaction corrected calculations of polaronic states in magnetic semiconductors*”, **oral presentation** at the 21<sup>st</sup> MRS-J Academic Symposium, Yokohama, December 19-22 (2011).  
口頭発表
5. H. Raebiger, “*Magnetic interactions of 3d transition metal impurities in AlN*”, **oral presentation** at the APS March Meeting 2011, Dallas TX, USA, March 21-25 (2011).  
口頭発表
6. H. Raebiger, “*Theory of transition metal impurities in semiconductors and insulators: from defect complexes to magnetic interactions*”, **oral presentation** at Next Generation of First principles Calculations—Methods and Applications, Sendai, November 10 (2010).
7. H. Raebiger, “*Theory of transition metal impurities in semiconductors – charge self-regulation, magnetic interactions, and defect complexes*”, **oral presentation** at the Psi-k Conference 2010, Berlin, Germany, September 12-16 (2010).  
口頭発表
8. H. Raebiger, “*Impurity States*”, **Invited lecture** at Psi-k summer school on Computational Materials Sciences, San Sebastian, Spain, June 28-July 3 (2010).

招待講演

9. H. Raebiger, “*Theory of transition metal impurities and their complexes in semiconductors and insulators*”, **Invited talk** at International Conference on Core Research and Engineering Science of Advanced Materials + 3<sup>rd</sup> ICNDR, Osaka, Japan, May 30-June 4 (2010).

招待講演

10. H. Raebiger, “*Defect complexes in Semiconductors and Insulators*”, **oral presentation** at the APS March Meeting 2010, Portland OR, USA, March 15-19 (2010).

口頭発表

11. A. Zunger, S. Lany, J. A. Chan, H. Raebiger, “*A few ways in which LDA et al can predict false ferromagnetism in insulators and how to cure these problems*”, **Invited talk** at the 11<sup>th</sup> Joint MMM-Intermag Conference, Washington DC, USA, January 18-22 (2010).  
招待講演

12. H. Raebiger, “*Magnetism, electronic structure, and stability of defect complexes in semiconductors and insulators*”, **oral presentation** at the 11<sup>th</sup> Joint MMM-Intermag Conference, Washington DC, USA, January 18-22 (2010).

口頭発表

13. H. Raebiger, “*Defects and impurities in renewable energy materials*”, **two invited lectures** at the Psi-k Summer School of Computational Nanoscience for Renewable Energy Solutions, Helsinki, Finland, September 14-17 (2009).

二つの招待講演

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

投稿済みの論文。

1. H. Nakayama, T. Fujita, H. Raebiger, “*Magnetic properties and stability of quasi-1D Cr chains embedded in (Zn,Cr)Te*”, submitted to Applied Physics Express.
2. T. Momose, K. Shudo, H. Raebiger et al., “*Molecular Motion on Semiconductor Surfaces via Tip-enhanced Multiple Excitation*”, submitted to J. Phys. Chem (arxiv:1210.0963)
3. H. Raebiger, S. Fukutomi, H. Yasuhara, “*Crossover of high and low spin states in*

transition metal complexes”, submitted to  
Phys. Rev. Lett. (arxiv:1209.6432)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

**RAEBIGER Hannes**

横浜国立大学・工学研究院・准教授

研究者番号：20531403