

Title	Materials design of III-V/II-VI heterostructure and chalcopyrite based diluted magnetic semiconductors
Author(s)	鎌谷, 輝明
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/45075">https://hdl.handle.net/11094/45075</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	鎌谷輝明
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 18374 号
学位授与年月日	平成 16 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科物理学専攻
学位論文名	Materials design of III-V/II-VI heterostructure and chalcopyrite based diluted magnetic semiconductors (III-V/II-VI希薄磁性半導体超格子およびカルコパイライト希薄磁性半導体の物質設計)
論文審査委員	(主査) 教授 赤井 久純  (副査) 教授 斉藤 基彦 教授 吉田 博 助教授 キース・スレヴィン 基礎工学研究科助教授 草部 浩一

### 論文内容の要旨

希薄磁性半導体とは半導体に Mn などの磁性不純物をドーブした物質である。(Ga, Mn)As や(In, Mn)As は低温で強磁性を示し、しかもその磁性がキャリア濃度によって制御可能であることが分かった。これにより希薄磁性半導体は新しい工学の扉を開く材料として注目を集めてきたが、キュリー温度が極めて低いため実際のデバイスとしての応用は未だ実現できていない。

今日の目覚ましいコンピューター性能の発展に伴い、我々は第一原理計算を用いて複雑な結晶の電子構造の計算を高い精度で行うことが可能になった。その結果、実験結果の説明だけでなく、実験的には知られていない物性の予言や新しい機能を持つ材料の理論設計などが行われるようになった。これがいわゆる computational materials design である。実際、高い Tc を持つ III-V、II-VI 希薄磁性半導体が第一原理の予言をもとに作製されている。

これまで III-V、II-VI 希薄磁性半導体の理論計算は共に多くなされた。その一方で、実験的な見地に立つと、III-V 半導体への磁性不純物の高濃度ドーブと II-VI 族のキャリア制御の技術は、更なる向上が必要であり、今のところ容易ではない。そこで、我々は、新しい希薄磁性半導体として III-V/II-VI 希薄磁性半導体の超格子構造を提案し、その電子および磁気構造を調べた。計算には KKR-CPA-LDA を使用し、超構造として AlAs/(Cd, Mn)Te を用いた。その結果、III-V、II-VI 族を一層ずつ積み上げた系では、III-V 層のキャリア濃度を変えて、II-VI 層の磁性を制御できることが分かった。しかし、より磁性層の厚い場合は、界面にキャリアが強く束縛されるため、界面に平行な面での面内強磁性、面間での半強磁性状態が最安定状態となった。

最近、東京農工大学の佐藤教授のグループによって、カルコパイライト半導体をベースとする磁性半導体、Mn : CdGeP<sub>2</sub>、Mn : ZnGeP<sub>2</sub> が作製された。カルコパイライト半導体は 3 成分からなる化合物半導体であり、II-IV-V<sub>2</sub> 型と I-III-VI<sub>2</sub> 型の 2 つのタイプが存在する。また、3 成分からなるためその種類は非常に多く、材料選択の自由度が非常に高い。さらに Mn : CdGeP<sub>2</sub> や Mn : ZnGeP<sub>2</sub> は、Mn の固溶度が高く、室温で強磁性を示す事から、工学への応用が期待されている。しかし、まだ綺麗な単結晶を作る技術が確立しておらず、実験的な解析も不十分で、結晶構造や強磁性発現のメカニズムなど不明な点も多い。そこで、我々は第一原理計算を使い、これらを明らかにする

と共に、カルコパイライト半導体をベースにする新しい強磁性希薄磁性半導体の物質設計を行った。計算の結果、 $Mn : CdGeP_2$  や  $Mn : ZnGeP_2$  は格子欠陥や化学組成比のずれによるキャリアが強磁性を誘起している可能性が高い事が分かった。また、 $(Zn, Cr)GeAs_2$  と  $Cu(Al, Cr)S_2$ 、 $Ag(Ga, Cr)S_2$  が室温強磁性カルコパイライト希薄磁性半導体の候補である事を示した。

## 論文審査の結果の要旨

希薄磁性半導体はスピントロニクスを担う有望な材料として近年注目を浴びている。これまで知られていて、確実に固有の強磁性が実験的に確立している希薄磁性半導体は $(In, Mn)As$  と  $(Ga, Mn)As$  であるが、これらは強磁性転移温度が最高のもので  $70\text{ K}$  および  $160\text{ K}$  と室温よりはるかに低く、スピントロニクスとして工学的な応用を考えるとときには金属強磁性体にくらべて圧倒的に不利である。一方、半導体工学において格段に進んでいる微細加工技術やデバイスプロセス、通常の半導体デバイスへの集積、半導体とのインピーダンス整合等の要素を考慮すると、希薄磁性半導体はスピントロニクスの発展のためには特に重要である。このことから室温を超える希薄磁性半導体の出現が強く望まれている。

鎌谷君の研究は単純なIII-V族やII-VI族の化合物半導体ではなくIII-V/II-VI超構造のような複合的ヘテロ界面や、自然の超構造ともいえるカルコパイライト型の化合物半導体を用いた希薄磁性半導体の実現の可能性を第一原理計算と物理的な考察に基づいて探索し、その結果、室温希薄磁性半導体の有力な候補を見出したものである。

鎌谷君の研究の第一の特徴は、経験的なパラメータを一切用いずに純粋に量子力学に基づいたシミュレーションを行い、その結果に対する物理的考察によって物性発現の機構を解明し、それによって新しい物質を探索する点である。そのような方法を用いて、鎌谷君はまず、希薄磁性半導体の強磁性発現の機構がキャリア誘起強磁性であること、III-V族化合物半導体ではキャリア制御が容易である反面、磁性イオンを固溶することが困難であること、一方、II-VI族化合物半導体ではキャリア制御が困難であるが、磁性イオンを固溶することは容易であること等に注目して、III-V/II-VIタイプの超構造を用いて高い強磁性転移温度をえる可能性を追求した。その結果、磁性層1~2層とキャリア層からなる超構造には高い強磁性転移温度を示すものがあることを見出した。次に、カルコパイライト型のII-IV-V2型およびI-III-VI2型カルコパイライトについて、佐藤勝昭らによって見出された $(Cd, Mn)GeP_2$  や $(Zn, Mn)GeP_2$  はそのままでは強磁性にはならないが、格子欠陥や化学量論的組成からのずれがあれば高い強磁性転移温度を示すこと、それ以外のI-III-VI2型カルコパイライト $(Cd, TM)GeP_2$  や  $Cu(Al, TM)S_2$ 、 $Ag(Ga, TM)S_2$  などのII-IV-V2カルコパイライトではTMがCrやVの場合に高い強磁性転移温度を示すことを計算機マテリアルデザインによって見出した。また、これらの系が高い強磁性転移温度を示す理由を第一原理計算に基づいて明らかにした。

よって、本論文は博士(理学)の学位論文として十分価値あるものと認める。