

Title	Development and Application of Self-interaction Correction in First-principles Electronic Structure Calculations to Design New Materials for Spintronic Devices
Author(s)	豊田, 雅之
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/48746">https://hdl.handle.net/11094/48746</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〉をご参照ください。

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

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

Osaka University

氏 名	とよ だ まさ ゆき 豊 田 雅 之
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	第 2 1 7 4 3 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 20 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	Development and Application of Self-interaction Correction in First-principles Electronic Structure Calculations to Design New Materials for Spintronic Devices (第一原理電子状態計算における自己相互作用補正の開発と応用：スピントロニクス材料のマテリアル・デザイン)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 吉 田 博  (副査) 教 授 赤 井 久 純 教 授 小 川 哲 生 教 授 大 貫 惇 睦 准教授 白 井 光 雲

### 論 文 内 容 の 要 旨

次世代スピントロニクス・デバイスへの応用を目的として、第一原理電子状態計算とモデル計算を用いる材料設計手法の改良を行った。本研究では、半導体スピントロニクスを実現する上で最も期待される希薄磁性半導体 (DMS) 電子状態と磁気的な性質を計算する上で、次の二点の改良に取り組んだ。第一は、局所密度近似 (LDA) を用いた交換相関エネルギーに対して自己相互作用補正 (SIC) を適用すること、第二には、モデル計算において磁性不純物の不均一な分布の効果をとりいれるためにスピノーダル分解のシミュレーションを行うことである。DMS のような強い電子相関が働く系においては、LDA を用いた従来の計算では近似の精度が悪く、たとえば計算される電子状態密度のスペクトルが光電子分光実験で得られるスペクトルと一致しないことが知られている。この不一致は d バンドのエネルギーにおいて最も顕著である。しかし、d バンドのエネルギーこそが DMS の交換相互作用の性質を決める主要因であることが先行研究で示されている。そのため、この LDA の問題を改善して d バンドのエネルギーを正確に計算する必要があった。本研究では、KKR-CPA 法の電子状態計算において SIC を適用する新しい手法を開発し実装した。KKR-CPA 法は不規則な系の計算に適しており、SIC は LDA の交換相関エネルギーを改善する手法である。したがって、これらを組み合わせることで、DMS の不規則性と d 電子の局在性の両方を精度良く扱うことができるようになった。様々な DMS の計算を行い、電子状態密度が系統的に実験データとよく一致することを確認した。また (Ga, Mn) As などの計算結果をもとに見積もられたキュリー温度は実験データと良い一致を示した。しかしながら、ワイド・バンド・ギャップ半導体を母体とする (Ga, Mn) N などの物質については、いくつかの実験で報告されている室温を超える高いキュリー温度を計算することはできなかった。その主な原因は、これらの物質では磁性不純物の d バンドが母体半導体のバンド・ギャップ中に現れて局在した不純物バンドを形成し、そのために交換相互作用が短距離的になるためであることがわかった。そこで、短距離的な交換相互作用のネットワークを補強しうる可能性として磁性不純物の不均一な分布が考えられるため、第二の改良として、モデル計算によるスピノーダル分解のシミュレーションを行った。スピノーダル分解は微少な濃度のゆらぎが自発的に発生して進む相分離である。シミュレーション

ョンの結果、磁性不純物の濃度が低い場合には、孤立した磁性不純物のクラスターが形成され交換相互作用のネットワークを補強することはないが、ある程度（15～20%）以上の不純物濃度の場合には、3次元的に連結したクラスターが形成され、交換相互作用が補強されてキュリー温度が上昇することがわかった。

## 論文審査の結果の要旨

豊田雅之氏は、電子という素粒子のもつ電荷に加えてスピン自由度を同時に制御することにより、現在のシリコン半導体技術を凌駕する次世代ナノエレクトロニクスの候補である半導体ナノスピントロニクス・デバイスなどのデザインへの応用を目的として、従来から第一原理計算に用いられていた密度汎関数理論における局所密度近似（LDA）を超えるため、交換相関エネルギーに対して自己相互作用補正（SIC）を適用することにより、電子相関の強い系にも適用できる新しい第一原理電子状態計算手法開発を行った。具体的には、KKR-CPA法の電子状態計算において、交換相関相互作用に、SICを適用する新しい計算手法を開発し、SICを取り入れたKKR-CPA法を実装し、現在の汎用的なコンピュータをもちいたマテリアルデザインとして実行可能なソフトウェアを開発・公開した。半導体をベースとしたスピントロニクスを実現する上で最も期待されている希薄磁性半導体（DMS）の電子状態と磁気的性質を計算し、物性予測を可能にする新しい計算手法を提案し、これを現実の系である遷移金属不純物をドーブしたGa<sub>N</sub>、GaAs、ZnOなどのマテリアルデザインに適用できることを示した。LDAに基礎をおいた従来からの第一原理計算による電子状態と光電子分光実験データとに大きな違いがあったが、これを改善し、ほぼ定量的に電子状態を予測できることを示した。母体半導体及びDMSについて、バンドギャップやバンドギャップ中の不純物バンドに関する電子状態が系統的に光電子分光と良く一致することを明らかにした。また、強磁性、反強磁性、常磁性などの磁性状態の実験データとも、SICを取り入れた第一原理電子状態計算は、実験事実とよく一致することを示した。ワイドバンドギャップ半導体であるGa<sub>N</sub>やZnOをベースとしたDMSでは、局在性が特に強く、強い電子相関が働く系であることを示し、そのため、LDAを用いた従来の計算では交換相関相互作用に対する近似の精度が悪く、計算される電子状態密度のスペクトルが光電子分光実験で得られるスペクトルと一致しないこと明らかにし、SICを取り入れることでこれらが大きく改良できることを示した。強磁性機構についても、CoをドーブしたZnOでは、LDAでは強磁性超交換相互作用により絶縁体で強磁性を予測するが、SICを取り入れることにより、電子状態の大きな変更があり、反強磁性超交換相互作用のため常磁性状態となり、実験事実と良く一致することを示した。SICを取り入れた新しい第一原理電子状態計算手法が開発され、現時点でのコンピュータを用いて新機能材料や物性のデザインを可能にし、マテリアルデザインのコミュニティーに新しいデザインツールを提供したことは高く評価できる。さらには、磁気力定理を用いて第一原理計算により求めた磁気的交換相互作用の距離依存性からモンテカルロ法により強磁性転移温度を予測し、また、原子力定理によって求めた原子間相互作用をテデル計算に適用し、現実の系において磁性不純物の不均一な分布の効果を取り入れるためにスピノーダル分解のシミュレーションを行った。その結果、ZnOなどのワイドバンドギャップ半導体を母体とするいくつかの実験で報告されている室温を超える高いキュリー温度の主な原因は、3次元的に連結したクラスターが形成され、交換相互作用が補強されてキュリー温度が上昇することを明らかにし、現実実験でどのような非一様性が生じているかを明らかにした。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。