



Title	First-Principles Materials Design for Oxide Based Semiconductor Spintronics
Author(s)	木崎, 栄年
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/48848">https://hdl.handle.net/11094/48848</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">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

氏 名 木 崎 栄 年

博士の専攻分野の名称 博士（理 学）

学 位 記 番 号 第 2 2 1 2 0 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

基礎工学研究科物質創成専攻

学 位 論 文 名 First-Principles Materials Design for Oxide Based Semiconductor Spintronics  
(酸化物半導体スピントロニクスのための第一原理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 三 宅 和 正 教 授 木 村 剛 准教授 白 井 光 雲

## 論 文 内 容 の 要 旨

スピントロニクスの実用化に向けて、室温以上のキュリー温度 ( $T_C$ ) を持つ希薄磁性半導体材料の作製は欠かせない課題である。現在、II-VI族やIII-V族を母体としたものが研究の主流であり、(Zn, Cr) Te 等の様々な希薄磁性半導体で室温強磁性が観測されている。本研究では酸化物半導体母体の希薄磁性半導体に着目し、従来の希薄磁性半導体に代わる新しい物質として、 $\text{CuAlO}_2$  の Cu サイトまたは Al サイトに 3d 遷移金属を添加した希薄磁性半導体を第一原理計算に基づきデザインした。 $\text{CuAlO}_2$  は光学的に透明で p 型の電気伝導性酸化物であることが知られており、スピントロニクスだけでなく光学デバイスにも応用できる可能性を持つ。計算方法は電子状態について KKR グリーン関数法と局所密度近似 (LDA) を適用し、不純物のランダムネスについてはコヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を適用した。その結果、平均場近似の範囲内で Cu サイトに Fe、Co をドーブした系において強磁性を持つ可能性があることがわかった。次にその不純物同士の交換相互作用を第一原理から計算した結果、Cu サイトに遷移金属を置換した系において磁性イオン間の交換相互作用は短距離的であり、さらに Cu 面内では強磁性的であるが、Cu 面間の交換相互作用はほとんどないことがわかった。最後にこれらの結果を用いてモンテカルロシミュレーションを行い、 $T_C$  を見積もった。計算の結果 Cu サイトに Fe、Co を 20% ドーブした系においては 80 K 程度の  $T_C$  が得られた。次に同じ酸化物である (Ti, Co)  $\text{O}_2$  希薄磁性半導体におけるスピン状態を LDA の計算結果と自己相互作用を補正した結果 (SIC-LDA) を比較することにより調べた。より現実的な計算のため酸素欠損を導入し、 $\text{Co}^{2+}$  状態における電子状態を X 線光電子分光実験と比較したところ良い一致が見られ高スピン状態を再現した。このことから (Ti, Co)  $\text{O}_2$  における高スピン状態は酸素欠損が重要な役割を持っていることがわかった。

## 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

木崎栄年氏は、可視光を通す透明な酸化物半導体を母体とする希薄磁性半導体に着目し、スピントロニクスのための新しい物質として、デラッフォサイト構造をもつ  $\text{CuAlO}_2$  のダンベル構造をもつ二配位の Cu サイト、または、八

面体六配位の Al サイトを 3d 遷移金属で置換した強磁性希薄磁性半導体を第一原理計算に基づきデザインした。 $\text{CuAlO}_2$  は光学的に透明で、結晶成長時は p 型の透明な電気伝導性酸化物であることが知られており、スピントロニクスだけでなく、磁気光学効果を利用した光学デバイスにも応用できる可能性を持っている。第一原理電子状態計算方法は、KKR グリーン関数法と局所密度近似 (LDA) を適用し、不純物の不規則性についてはコヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を適用した。第一原理計算により、二重交換相互作用と超交換相互作用の競合に基づいて、磁性状態の 3d 遷移金属不純物の原子番号依存性と 3d 遷移金属不純物の結晶学的位置に対する磁性状態依存性の統一的描像を明らかにした。Cu サイトに Fe、Co をドーピングした系において二重交換相互作用が支配的な強磁性を示す可能性を予測した。次にその不純物同士の交換相互作用の距離依存性を磁気力定理に基づいて第一原理から計算した結果、Cu サイトに遷移金属を置換した系において磁性イオン間の交換相互作用は 3d 不純物バンドが部分的に占有された二重交換相互作用による短距離的なものであり、さらに Cu 面内では強磁性的であるが、Cu 面間の交換相互作用は、短距離であるため弱いことがわかった。最後にこれらの結果を用いて強磁性転移温度 ( $T_c$ ) のモンテカルロシミュレーションを行い、 $T_c$  を計算した結果 Cu サイトに Fe、Co を 20% ドーピングした系においては 80 K 程度の  $T_c$  が得られ、二重交換相互作用による高スピン状態をもつ透明強磁性であることを予測した。

次に八面体六配位構造を持ち、同じく透明酸化物である (Ti、Co)  $\text{O}_2$  希薄磁性半導体におけるスピン状態を LDA 計算と自己相互作用補正した第一原理計算 (SIC-LDA) を比較した。LDA 計算で無視されていた SIC を取り入れた計算により、交換相関相互作用をより正しく見積もり、さらには、 $\text{TiO}_2$  については結晶成長時には酸素欠損により n 型であるという現実を取り入れた計算を行い、 $\text{Co}^{2+}$  状態における電子状態を X 線光電子分光実験と比較したところ、光電子分光スペクトルとの良い一致が見られ高スピン状態であることを明らかにし、有効なマテリアルデザイン手法を提供した。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。