The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Ab Initio Materials Design of High-TC (Ga,Mn)As by Interstitial Codoping Method
Author(s)	藤井, 将
Citation	大阪大学, 2012, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/59083
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【71】

氏　　名	藤　井　　将（ふじい　ひとし）
博士の専攻分野の名称	博　士（理学）
学　位　記　番　号	第　２５２５６　号
学 位 授 与 年 月 日	平成 24 年 3 月 22 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	Ab Initio Materials Design of High-T_c (Ga,Mn)As by Interstitial Codoping Method （格子間同時ドーピング法による高いキュリー温度を有する (Ga,Mn)As の第一原理物質設計）
論 文 審 査 委 員	（主査） 教　授　吉田　　博 （副査） 教　授　北岡　良雄　　教　授　宮坂　　博

論　文　内　容　の　要　旨

半導体でありながら磁性を示す物質、希薄磁性半導体（DMS）は、既存の半導体技術との整合性がよく、且つ、電荷、スピンの同時制御による全く新しい機能を有するデバイス（スピントロニクスデバイス）の基礎材料として期待されており、数多くの研究がなされてきた。半導体に磁性を持ち込む方法としては、例えば、磁性不純物であるMnをGaAsに非平衡結晶成長法で少量添加する方法がある。その際、Mnは局所磁気モーメントの起源であるだけでなく、Ga原子と置換しアクセプターとしてホールを供給する。そして、添加された局所磁気モーメント同士はホールに依って媒介される相互作用の結果、強磁性的に配向する。今迄の所、その強磁性転移温度（キュリー温度）の最高値は(Ga,Mn)Asで観測された173Kである。これは、実際のデバイス応用を考えると低過ぎる値であり、このキュリー温度を上げる為の様々な研究がなされている。

本研究の主なる目的は、実用に耐え得るような高いキュリー温度をもつDMS、特に(Ga,Mn)Asを作成する方法を提案することにある。実験によると、(Ga,Mn)Asのキュリー温度はホール濃度、つまり、Mnの不純物濃度に依存することが示されており、また、理論的には、約30%の添加で468Kのキュリー温度が予測されている。　しかしながら、MnのGaAsに対する溶解度はとても低く、非平衡結晶成長法であっても約10%程度しか添加出来ない事が実験的に知られている。

本研究では第一原理電子状態計算に基づいて、このMnの溶解度を上昇させる方法、「格子間同時ドーピング法」を提案する。この手法は以下の２ステップから成る。

まず、Mnアクセプターに加えて、さらにドナー不純物を母体半導体に同時に添加し、それらのキャリア間の補償作用によるエネルギー利得で溶解度を上昇させる。実際、Korringa-Kohn-Rostoker coherent potential approximation (KKR-CPA)法に基づく第一原理計算の結果、(Ga,Mn)Asの格子間位置にCuなどのドナーを同時ドーピングした系ではMnの単一ドーピングの場合に比べ、MnのGaAsに対する混合のエネルギーが下がることが示された。

次に、その格子間同時ドーパントを結晶から追い出すことを考える。補償作用により失われたキャリア誘起強磁性を復活させる為である。(Ga,Mn)As中の格子間ドナー不純物の原子拡散の様子がprojected augmented wave (PAW)法によって調べられ、その結果、CuはMn原子との結合にもかかわらず、大きな有効拡散係数を有する事がわかった。これは結晶成長後の熱処理などによって、その不純物は容易に結晶外へと追い出されることを示している。以上のステップを経ることで、高いMn濃度の、高いキュリー温度を持ったDMSが作成可能であることが示された。

この格子間同時ドーピング法は、結果的に母体半導体に何の変化も残さずに不純物の溶解度を増大させることが可能であり、DMSに限らず、不純物ドーピングが困難な様々な系への応用を期待する。

論　文　審　査　の　結　果　の　要　旨

半導体でありながら磁性を示す物質、希薄強磁性半導体（DMS）は、既存の半導体技術との整合性がよく、且つ、電荷、スピンの同時制御による全く新しい機能を有するデバイス（スピントロニクスデバイス）が実現可能であると期待されており、数多くの研究がなされてきた。半導体に磁性を持ち込む方法としては、例えば、磁性不純物であるMnをGaAsに非平衡結晶成長法で少量添加する方法がある。その際、Mnは局所磁気モーメントの起源であるだけでなく、Ga原子と置換しアクセプターとしてホールを供給する。そして、添加された局所磁気モーメント同士はホールに依って媒介される相互作用の結果、強磁性的に配向する。しかし、その強磁性転移温度(キュリー温度)の最高値は(Ga,Mn)Asの173Kである。これは、室温で動作する実際のデバイス応用を考えると低過ぎる値であり、このキュリー温度を上げる為の様々な研究がなされている。藤井将氏の研究目的は、第一原理計算により、実用に耐え得るような高いキュリー温度をもつ(Ga,Mn)Asを作成する方法を提案することにある。実験によると、(Ga,Mn)Asのキュリー温度はホール濃度、つまり、Mnの不純物濃度に依存することが示されており、また、理論的には、約30%の添加で468Kのキュリー温度が予測されている。しかしながら、MnのGaAsに対する溶解度はとても低く、非平衡結晶成長法であっても約10%程度しか添加出来ない事が実験的に知られている。藤井将氏は、Mnの溶解度を上昇させる方法として、同時ドーピング法により、Mnアクセプターに加えて、さらにドナー不純物も同時に母体半導体に添加し、それらのキャリア間の補償作用によるエネルギー利得により、溶解度を上昇させることを第一原理計算に基づいてデザインした。Korringa-Kohn-Rostoker coherent potential approximation (KKR-CPA)法に基づく第一原理計算により、(Ga,Mn)Asの格子間位置にCuなどのドナーを同時ドーピングした系では、Mnの単一ドーピングの場合に比べ、MnのGaAsに対する混合エネルギーが下がることを示した。さらに、(Ga,Mn)As中のCuの原子拡散をprojected augmented wave (PAW)法によって調べ、その結果、Cuは格子間で大きな拡散係数を有する事を明らかにした。さらには、格子間位置でドナーであるCuは強磁性を誘起するMnのホールを補償してしまうため、強磁性は抑制されてしまうが、Cuは結晶成長後の熱処理などによって、容易に結晶外へと追い出されることを第一原理計算で示した。このようにして、Mnのホールが復活し、高いキュリー温度を持ったDMSが作成可能であることが示された。これら一連の結果は，高い強磁性転移温度をもつ磁性半導体の実現を可能にする物質創製法を提案すると同時に、アクセプター・ドナーの補償機構やその制御法に関する設計指針を提供した点に重要な意義があり、博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。