

修士学位論文要約（令和 4 年 3 月）

第一原理計算を用いた Cr 添加強磁性半導体に関する理論研究

久保田天弥

指導教員：白井正文 研究指導教員：新屋ひかり

Theoretical study on Cr-doped ferromagnetic semiconductors
by using first-principles calculations

Takaya KUBOTA

Supervisor: Masafumi SHIRAI Research Advisor: Hikari SHINYA

We investigated the mechanism of high Curie temperature in Cr-doped ferromagnetic semiconductors and the effect of magnetic percolation on the Curie temperature. For zinc-blende materials such as (Al,Cr)P, which was predicted to have a high Curie temperature in a previous study, we calculated the magnetic and inter-atomic interactions between Cr atoms and simulated annealing process to investigate the relationship between the Curie temperature and the distribution of Cr atoms. It was found that the ferromagnetic and attractive interactions acting simultaneously between the nearest neighboring Cr atoms promote the formation of Cr nanoclusters via the annealing process. These nanoclusters are connected with each other and mediate the ferromagnetic interactions throughout the system, leading to the enhancement of the Curie temperature.

1. 研究背景と目的

近年、電子の電荷とスピンという 2 つの性質を同時に扱うことで次世代の情報デバイス実現を目指すスピントロニクスが注目されている。強磁性半導体は非磁性半導体に磁性原子を添加することで得られるスピントロニクスに適用可能な材料であり、情報の不揮発性・省電力性・高集積性など優れた特長を兼ね備える材料として期待されている。一方で、デバイスへの実用化のためには室温以上のキュリー温度を有することが必要不可欠であり、より高いキュリー温度を持つ物質の探索が重要性を増している。そのような中で最近行われた閃亜鉛鉛型構造を持つ磁性半導体に対する網羅計算^[1]において、(Al,Cr)P をはじめとした Cr 添加強磁性半導体が、高いキュリー温度を有すると平均場近似により予測された。本研究では、それらが高いキュリー温度を持つメカニズムの解明や、磁氣的パーコレーション効果がキュリー温度に与える影響の調査、より高いキュリー温度を得るための方策の検討を目的として研究を行った。

2. 研究の流れ

本研究では、高いキュリー温度が予測された (Al,Cr)P と (Al,Cr)As に加え、比較対象として (Al,Cr)N や (Al,Cr)Sb を含めた系統的な調査を行った。まず、第一原理計算パッケージ AkaiKKR^[2]を用いて電子状態計算を行ったのち、Al サイトに置換

された Cr 原子間に働く磁氣的並びに力学的相互作用を計算した。以下では磁氣的な相互作用を交換結合定数 J_{ij} によって、引力・斥力的な相互作用を原子対ポテンシャル V_{ij} によって議論する。次に、導出された相互作用を基にキュリー温度の計算を行った。モンテカルロシミュレーションを用いて予測されたアニーリング後の構造について、乱雑位相近似を適用してキュリー温度を求めた。この手法は、磁氣的パーコレーションを考慮できない平均場近似に対して、高精度の結果を期待できる。

3. Cr 添加濃度の変化が磁性に与える影響

状態密度の計算結果を確認すると、いずれの場合もハーフメタリックな電子状態を示していた。図 1(a)には (Al,Cr)N および (Al,Cr)P における相互作用の計算結果を示した。 J_{ij} の結果から、二重交換相互作用の優位性により第 1 近接 Cr 間には強磁性的な相互作用が働いていた。(Al,Cr)N において、20% 以上の Cr 濃度及び第 2 近接以降では反強磁性的な相互作用が現れていたが、(Al,Cr)P やその他の場合には確認されなかった。図 1(b)には原子対相互作用の結果を示したが、こちらはいずれの場合も引力的であることが分かった。図 2 には (Al,Cr)P (Cr : 30%) におけるアニーリングの進行とそれに伴うキュリー温度の変化を図示した。引力的相互作用の影響により、初期配置ではまばらに存在していた Cr 原子が、アニーリングの進行と共にクラスターを形

成していた。初期のキュリー温度は226Kであったが最終的に500K以上を示し、室温を大きく超える値を得られた。一方で、反強磁性的相互作用が見られた(AI,Cr)Nでは、クラスタリングは確認されたがキュリー温度は上昇しなかった。ここまでの結果を踏まえると、高いキュリー温度を得られたのは、アニーリングにより生じたクラスターが互いに連結して、系全体に強磁性を伝播させるパスとなったためであり、Cr間相互作用が強磁性的かつ引力的であることが重要であると考えられる。

4. 格子定数の変化が磁性に与える影響

不純物濃度30%において室温以上のキュリー温度が予測されたが、これほど高い添加濃度は実現しがたい。そこで、磁氣的パーコレーション効果を考慮しつつ他の方法を探る必要がある。ここでは、結晶成長における基板と成長層での整合による電子状態の変化を利用しようと考え、格子定数を変えて各計算を行った。(Al,Cr)Pと(AI,Cr)Asにおいて、格子定数が小さくなるにつれ引力的相互作用は大きくなる傾向にあったが、強磁性的相互作用についてはピークが存在し、5.2Åよりも小さい格子定数では急激に弱くなった。5.2Å~5.6Åでは相互作用の大小にあまり差が無く、最終的なキュリー

ー温度が240K程度と横並びであった。相互作用のバランスが重要であることはうかがえるが、より高いキュリー温度を獲得するためには、より詳細な調査が必要である。

5. 結論

閃亜鉛鉱型Cr添加磁性半導体材料についてCr原子間に働く相互作用やキュリー温度の計算を行った。その結果、強磁性的かつ引力的な相互作用によりCrクラスターが互いに連結したパスが形成され、強磁性が系全体に伝播することを見出した。こうした強磁性的かつ引力的相互作用を有する系では、磁氣的パーコレーション効果の活用によって高いキュリー温度が得られることが分かった。今後、アニール条件の工夫など、高濃度でなくともキュリー温度を上昇させられる手段を探索することが重要である。

6. 文献

- [1] H. Shinya, T. Kubota, Y. Tanaka, and M. Shirai (submitted).
- [2] H. Akai, J. Phys.: Condens. Matter 1, 8045 (1989).

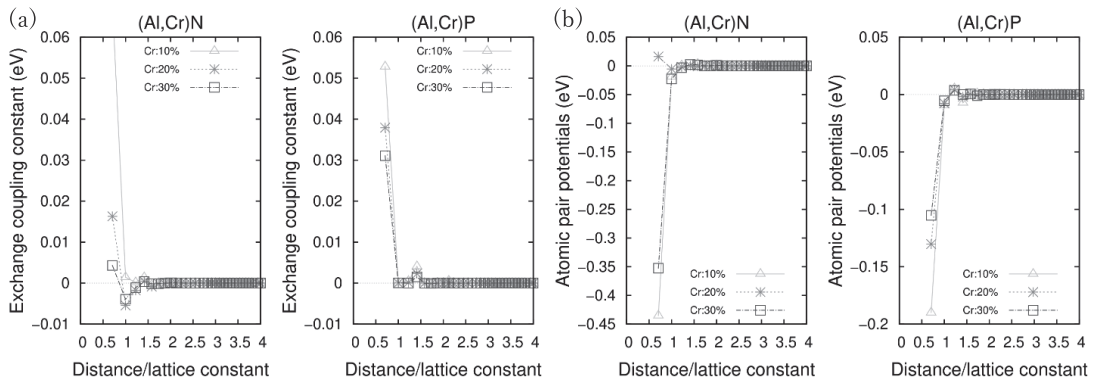


図1：(Al,Cr)Nと(AI,Cr)Pにおける(a)交換結合定数と(b)原子対ポテンシャルの計算結果

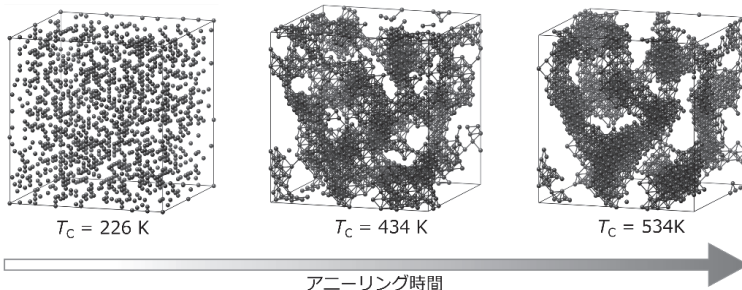


図2：(Al,Cr)Pにおけるアニーリングに伴うCr原子分布とキュリー温度 T_c の変化