

CREST「元素戦略」(玉尾総括)シンポジウム(H24年1月24日)

理論と実験の連携を目指して
“数値シミュレーションによる磁性材料設計”
-磁性半導体を中心に-

前川禎通

日本原子力研究開発機構

先端基礎研究センター

東海村

磁石:

- 永久磁石、
- ハイブリッド磁気デバイス、
(GMR, TMR...),
- スピントロニクス・デバイス材料としての
磁性半導体

磁性に対する計算科学的手法

(**多体**電子状態計算)

固体中の電子:

運動エネルギー + **クーロン相互作用**

結晶周期ポテンシャル → 第一原理計算(バンド計算)

磁性 → **電子間クーロン相互作用**

~~古典力学: 三体問題~~

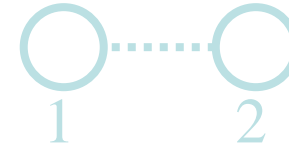
固体内電子(量子系): 多体問題

数値的厳密対角化法 (ED)

有限系で多体のハミルトニアンを対角化

例: 2原子2電子問題

ハバード・ハミルトニアン

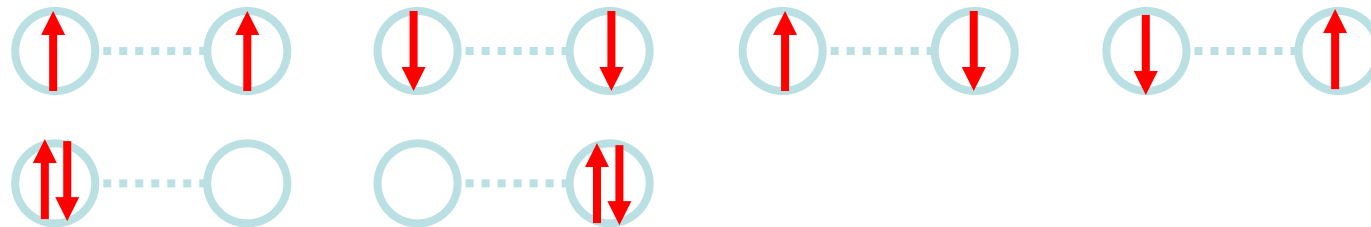


$$H = -t \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} (c_{1\sigma}^+ c_{2\sigma} + c_{2\sigma}^+ c_{1\sigma}) + U (n_{1\uparrow} n_{1\downarrow} + n_{2\uparrow} n_{2\downarrow})$$

(運動エネルギー)

(原子内クーロン反発)

可能な状態: 6コ → 6X6行列



一般に、N原子にNコの電子があると各原子に

 の4つの状態 ∴ $4^N \times 4^N$ 行列

N=16 なら $4^{16} \sim 4.3 \times 10^9$ 次元行列

計算の規模

	16 サイト	18 サイト	20 サイト
部分空間の次元 (最大数)	5,178,144	65,668,032	1,706,735,800
必要メモリ (配列一本あたり)	79.01 MB	0.98 GB	25.43 GB

ワークステーション

CPU : 2.67 GHz メモリ : 2 GB

固有値の計算時間

16 サイト : 4 時間 (1 ノード)
18 サイト : 51 時間 (4 ノード, MPI)

日立 SR11000 (分子科学研究所 グリッドコンピューティングシステム)

CPU : IBM Power4+ (1.7 GHz) 16way, 50 ノード

メモリ : 48 GB /node

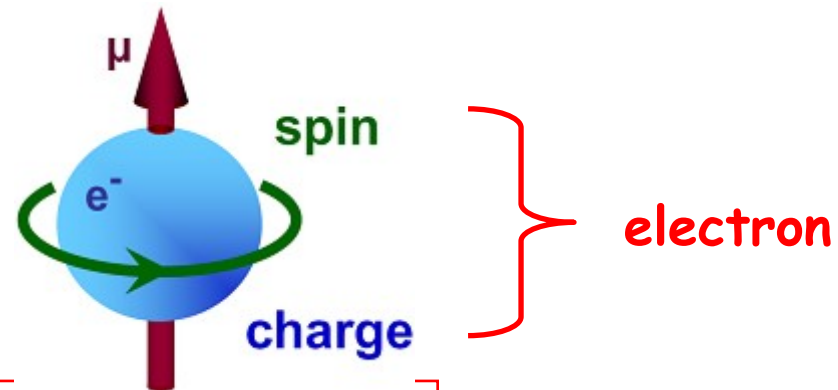
パフォーマンス : $R_{\max} = 2,909$ GFlops

固有値の計算時間

37 時間 (16 ノード, MPI)

スピントロニクス: 電子スピンを取り入れたエレクトロニクス

従来のエレクトロニクス: 電子の電荷(電流)に基づく!



Advantages:

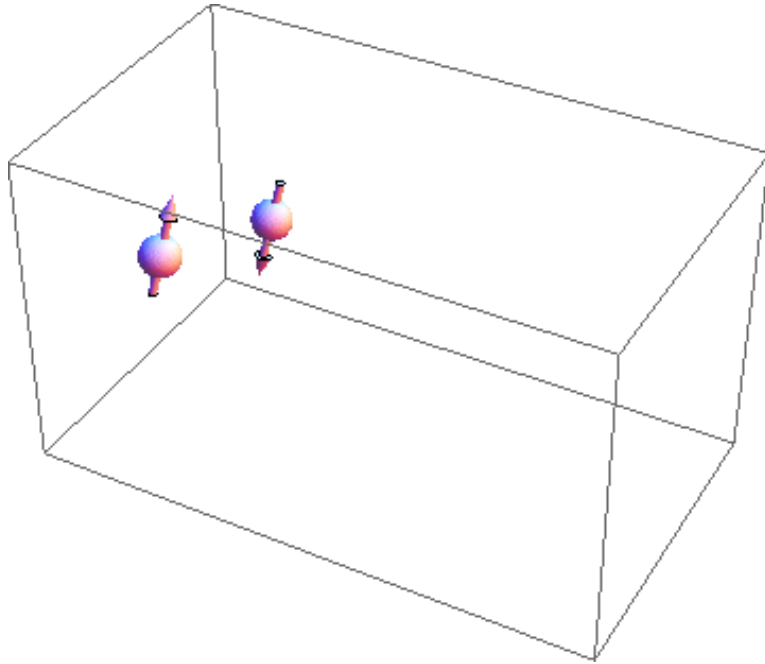
- Fast data processing speed
- Low electric power consumption
- Increased integration density

目的:

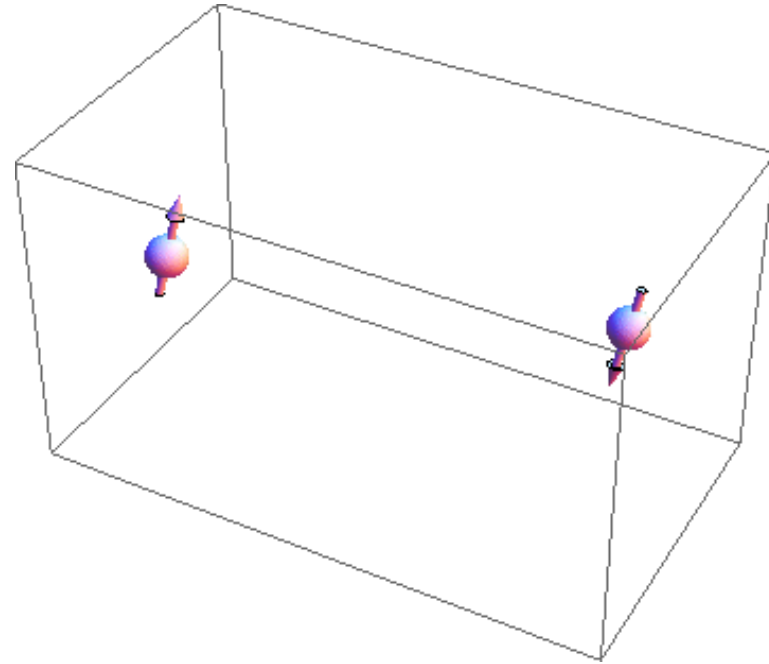
電流(電荷流)とスピン流を等価に!

チャレンジ:

- * 室温磁性半導体の開拓!!
- * p-型とn-型 磁性半導体の開拓!!
- * スピン軌道相互作用(相対論効果)の増強!!

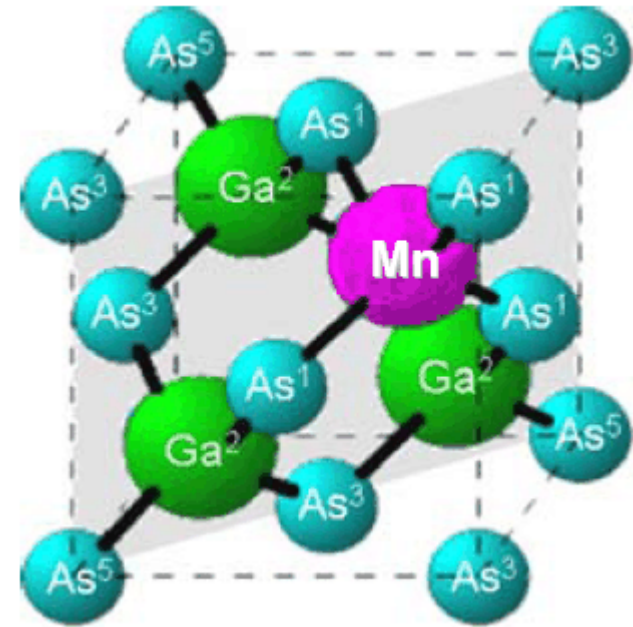
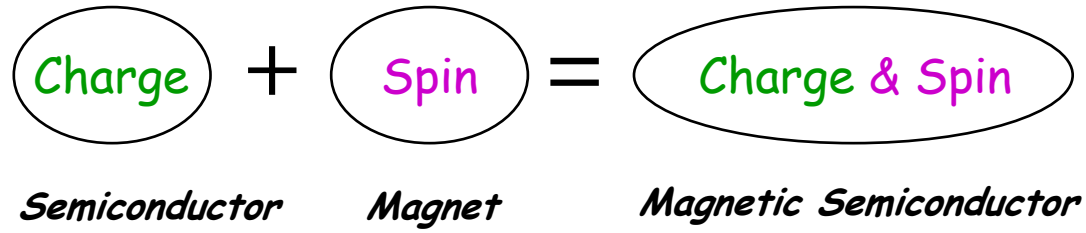


Charge current



Spin current
carried by conduction electrons

磁性半导体:



Control magnetism (spin) by electric way (charge) !

Challenge:

For present magnetic semiconductors, Curie temperature (~ 120K) << room temperature

Seek magnetic semiconductors with Curie temperature > room temperature !

室温磁性半导体 !!

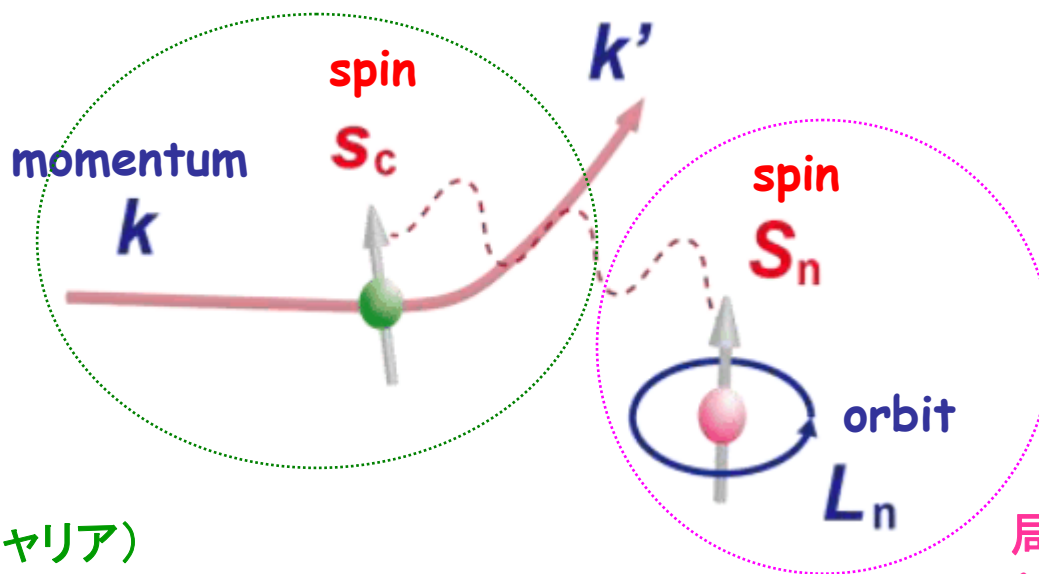
Magnetic Semiconductors:

	host	impurity	structure	T_c [K](concentration)	E_g [eV](~ 300 K)	$m_e^*[m_e]$	$m_h^*[m_e]$
II-VI	ZnTe	Mn		10(0.019)	2.391	0.122	0.42,0.17,0.72,0.14,0.89,0.14
		Cr		300(0.2)			
	BeTe	Mn		2.4(0.1)			
	ZnO	V	Wurtzite	$>350(0.15,0.25)$	3.2	0.24	1.8
		Mn		$>300(0.002+N)$			
		CoFe		$>300(0.15)$			
		Fe,Cu		$550(0.05Fe+0.01Cu)$			
III-V	GaAs	Mn	Zinc-blende	140(0.06)	1.429	0.0667	0.71,0.12
	InAs	Mn		35(0.14)	0.359	0.024	0.41,0.026
	InSb	Mn		85(0.028)	0.18	0.0139	0.32,0.016
	GaP	Mn		250(0.094)	2.261	1.7,0.254	0.55,0.13
	GaN	Mn	Wurtzite	300(0.03)	3.39	0.236	>0.6
		Cr		280(0.03)			
AlN	Cr	>350					
IV-VI	TiO ₂	Co	Rutile	>400	3.03-3.54		
			Anatase	>400	3.1-3.46		
d ⁰	MgO	N	Rocksalt	?	7.7	?	?
	SrO	N	Rocksalt	RT(Sawatzky, 2007)	5.3	?	?

UFO (Unidentified Ferromagnetic Objects)

(c.f., USO for High T_c Superconductors)

計算手法:



伝導電子(キャリア)
(s orbital)

局在電子(磁性電子)
(d-orbital)

結晶の周期ポテンシャル

電子間クーロン相互作用
(強磁性の起源)

band theory
(density functional theory)

+

Non-perturbative theory
(quantum Monte Carlo)

A general & powerful combined method !
First established

The Method:

Host semiconductor

→ *detailed band structure (LDA band calculation)*

Magnetism

→ *strong electron correlation (QMC)*
(Coulomb interaction)



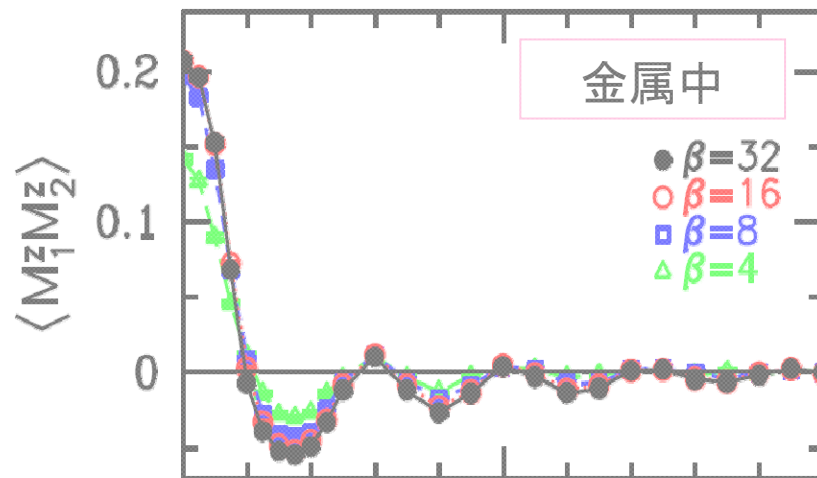
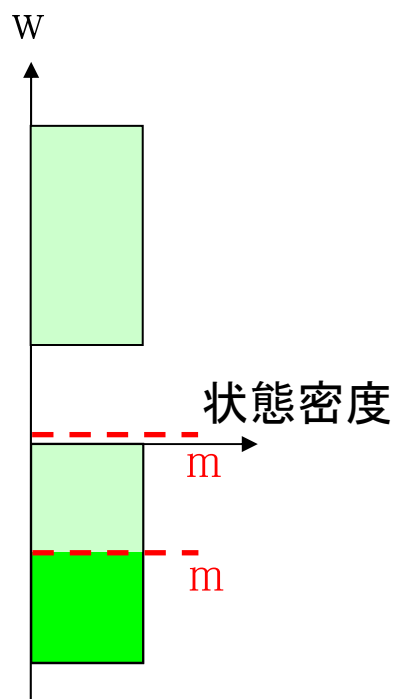
QMC method with Hirsch – Fye algorithm

$$H = \sum_{\alpha \mathbf{k} \sigma} \left(\epsilon_{\mathbf{k}}^{\alpha} - \mu \right) c_{\mathbf{k}\sigma}^{\alpha \dagger} c_{\mathbf{k}\sigma}^{\alpha} + \sum_{i\sigma} \left(\epsilon_d - \mu \right) d_{i\sigma}^{\dagger} d_{i\sigma} + \sum_{\alpha \mathbf{k} i \sigma} \left(V_{\mathbf{k}i}^{\alpha} c_{\mathbf{k}\sigma}^{\alpha \dagger} d_{i\sigma} + h.c. \right) + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}$$

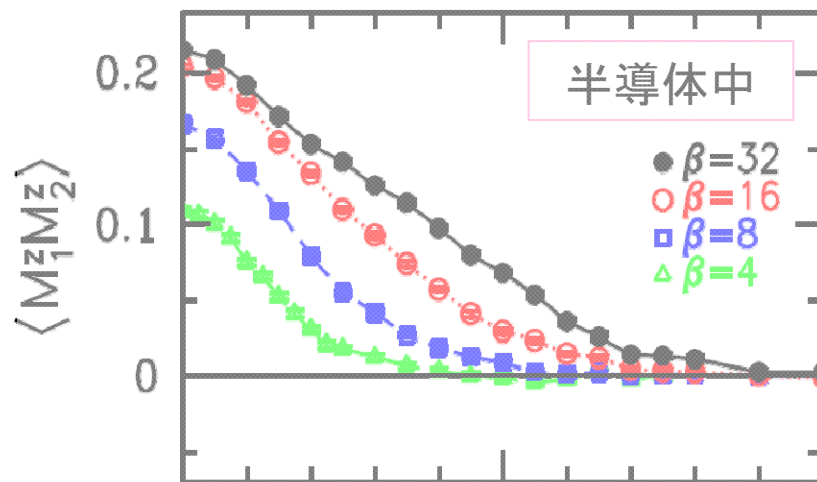
Material dependence
(LDA or tight binding band calculation)

Materials design of magnetic semiconductors

不純物間の磁気相関(2次元連続体モデル)



- RKKY振動が現れる
- 温度依存性は飽和



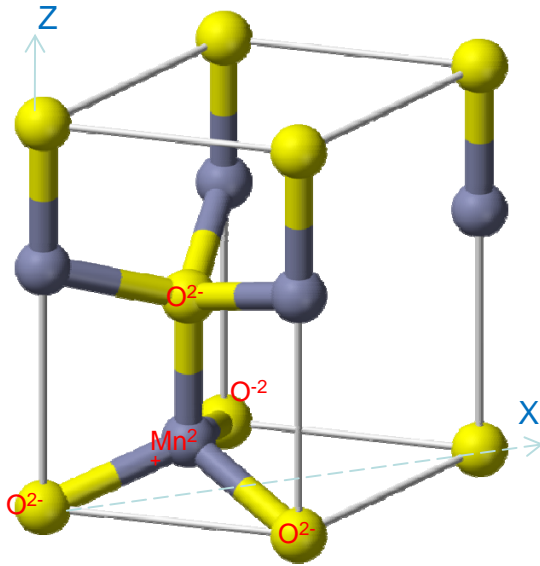
- 長距離の強磁性相関
- 低温ほど強く長距離

R [arb. unit.] (不純物間距離)

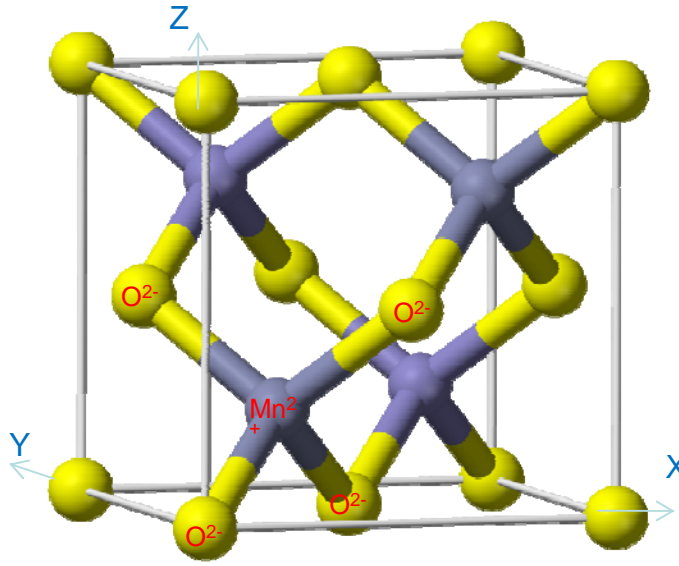
(Zn,Mn)O

Crystal structures

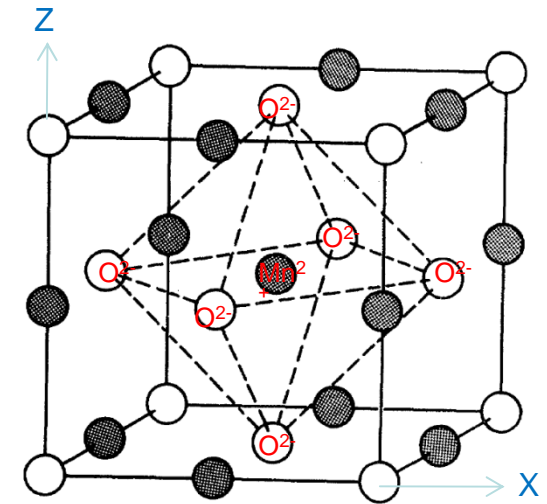
Wurtzite(hexagonal)



Zincblende (fcc)



Rocksalt(fcc)

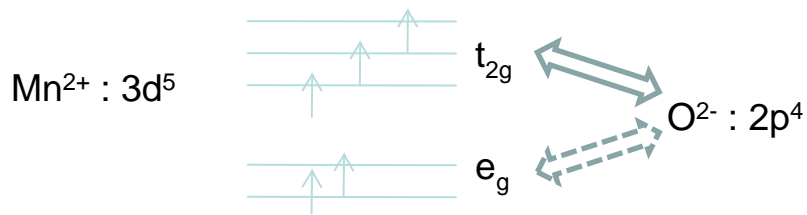


(Zn,Mn)O

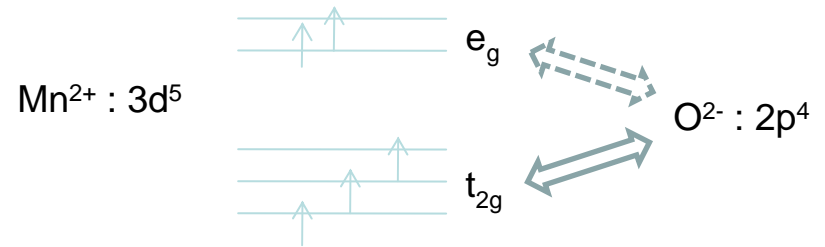
Zn²⁺ : 4s² conduction band

Mn²⁺ : 3d⁵

O²⁻ : 2p⁴ valence band



wurtzite and zincblende
(tetrahedral crystal field)



rocksalt
(octahedral crystal field)

Zincblende structure is better for ferromagnetism!!

Possible d^0 ferromagnetism:

Target materials:

$Sr(O,N)$, $Mg(O,N)$, $Ca(O,v)$, $Hf(O,v)$,.....

(v: vacancy)

N-doped diamond :

* n-type semiconductor

* N-impurity has spin $1/2$,

* deep impurity level,

* N-concentration.

(B-doped diamond: p-type \rightarrow superconductor)

Possible d^0 ferromagnetism in MgO doped with nitrogen

Bo Gu,¹ Nejat Bulut,^{1,2} Timothy Ziman,³ and Sadamichi Maekawa^{1,2}

¹Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Wide-gap Semiconductor
(MgO): Charge

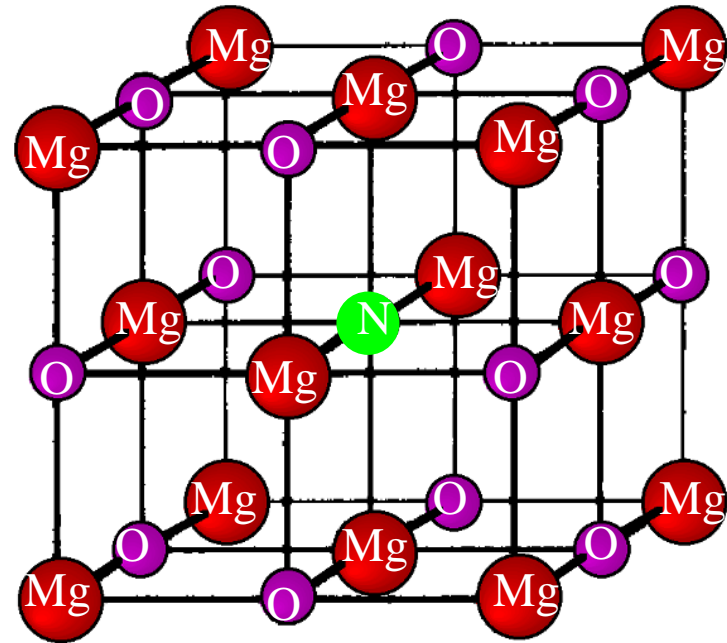
Non-Magnet (N): No active spin

⇒ *Magnetic semiconductor*
Mg(O,N): Charge & Spin

O : $2s^2 2p^4$

N : $2s^2 2p^3$

⇒ *A unpaired p-orbital hole at N site*



Predict a new magnetic semiconductor without magnetic ion !

c.f., Experiment of Mg(O,N): S. Parkin at IBM Almaden (unpublished).

New magnetic semiconductor: Li(Zn, Mn)As

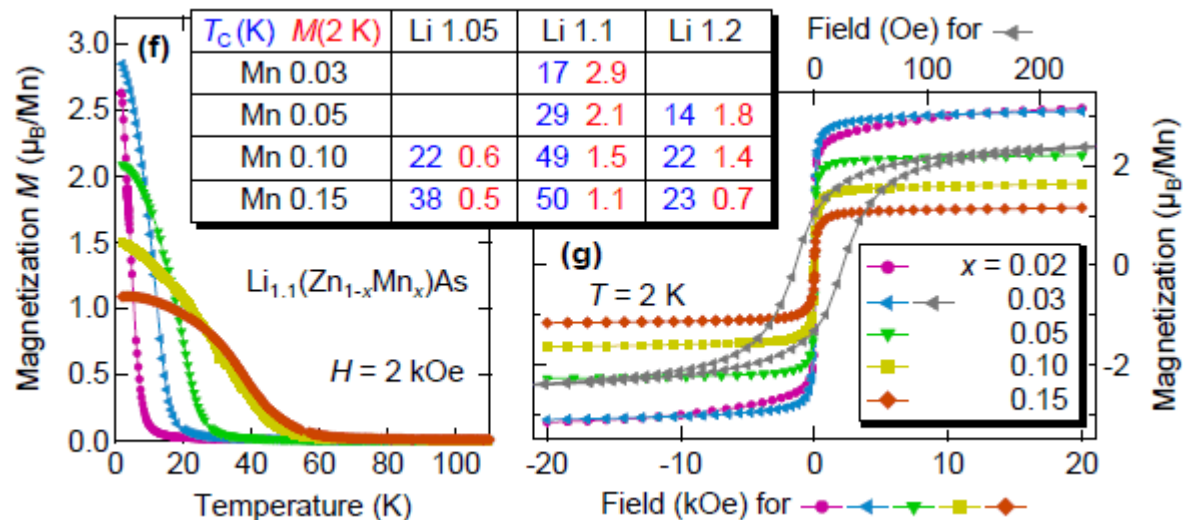
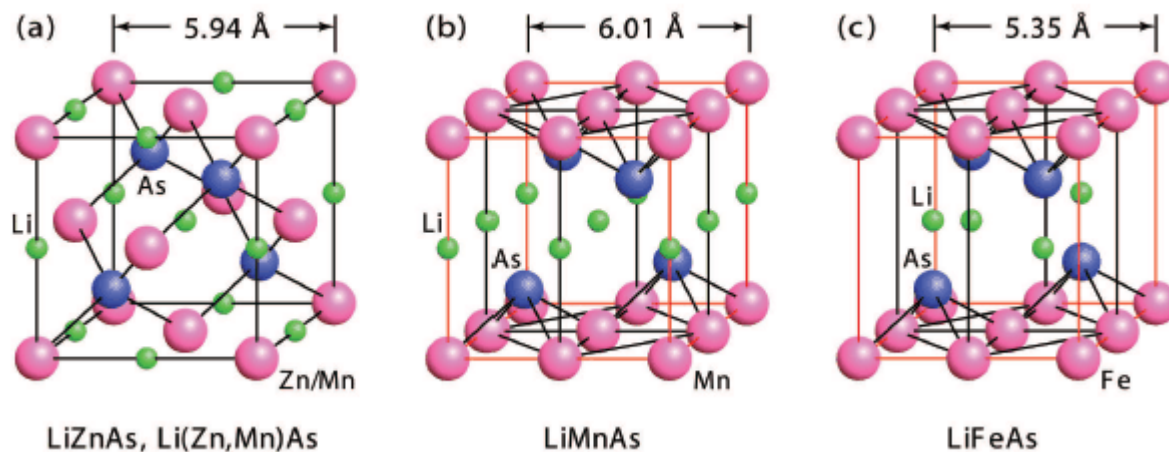
- *Bulk magnetic semiconductor,*
- *Magnetic ions and carriers are controlled independently,*
- *It is possible to have both p-type and n-type magnetic semiconductors,*
- *The crystal structure is similar to GaAs and Fe-As superconductors,*
- *.....*

- *J. Masek et al., PRL 98, 067202 (2007): The first theoretical proposal of ferromagnetic Li(Zn,Mn)As.*
- *Z. Deng et al., Nature Commun. (2011): The first observation of p-type ferromagnetic Li(Zn,Mn)As.*

*International Research Team organized by Prof. Y. Uemura
as a REIMEI Research Project*

New DMS (International research team (organizer: Y. Uemura))

Li(Zn,Mn)As



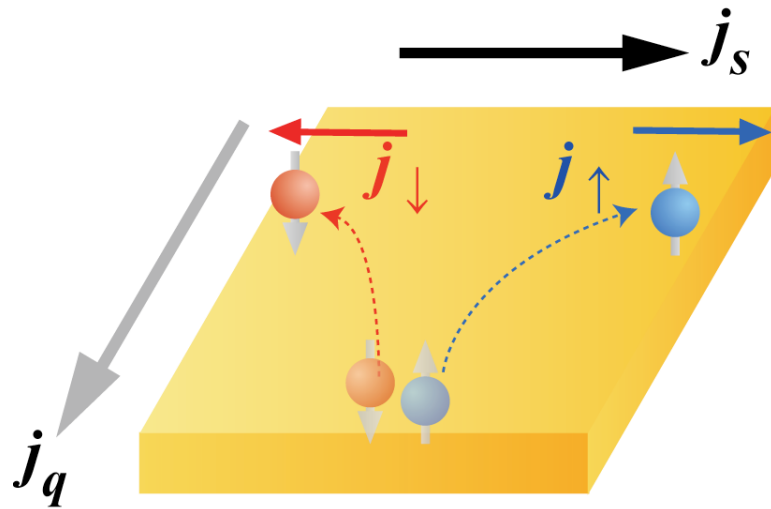
Z. Deng et al., to be published: The first observation of p-type ferromagnetic Li(Zn,Mn)As.

J. Masek et al., PRL 98, 067202 (2007): The first theoretical proposal of ferromagnetic Li(Zn,Mn)As.

スピホール効果: スピン-軌道相互作用による!
(Conversion between spin current and charge current)

スピホール効果

$$\hat{j}_s \propto \hat{z} \times \hat{j}_a$$

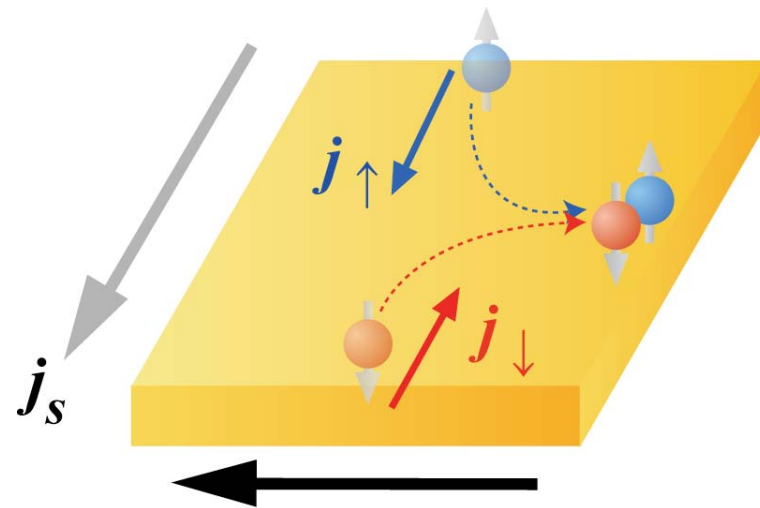


Charge current

Spin current

逆スピホール効果

$$\hat{j}_q \propto \hat{z} \times \hat{j}_s$$



Spin current

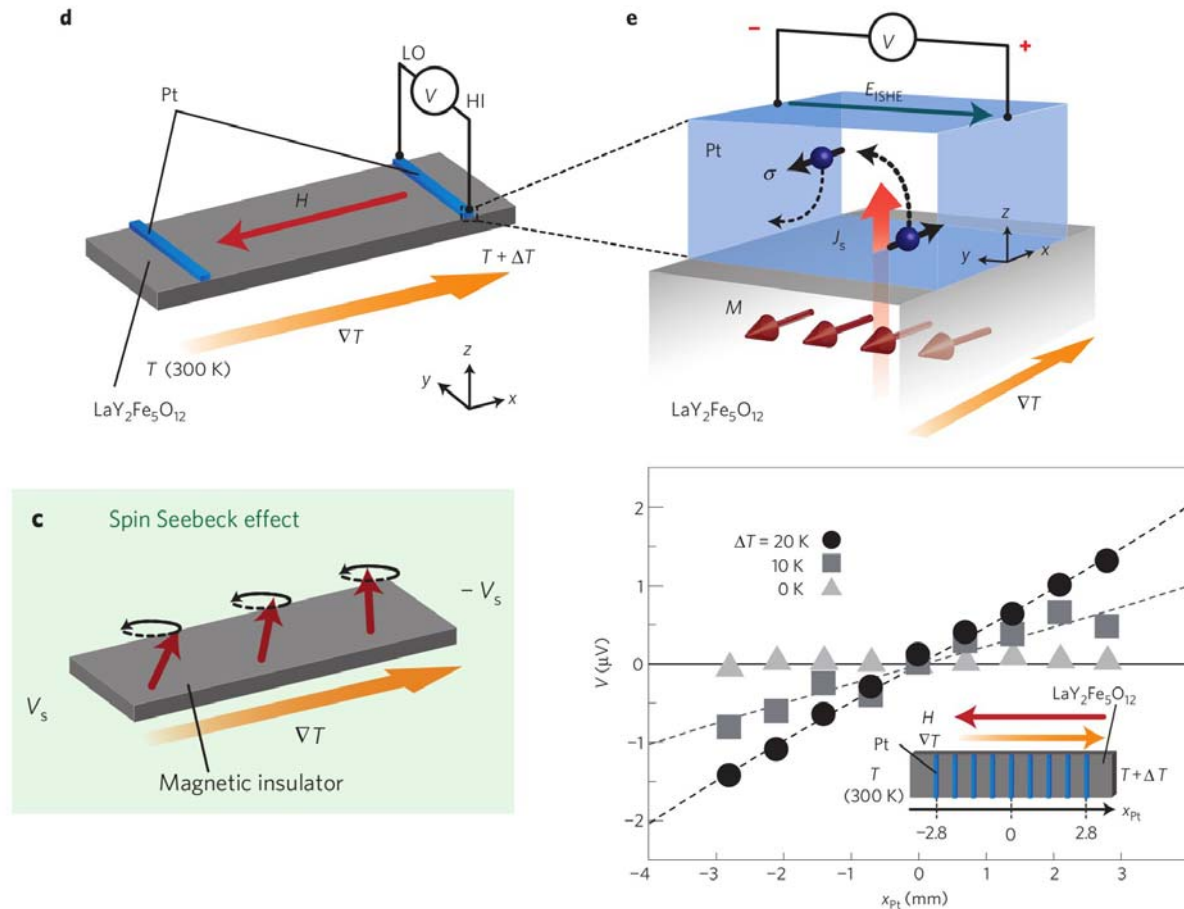
Charge current

スピンゼーベック効果:

熱でスピンの流れを生成、スピンホール効果で電流に変換

Spin Seebeck insulator (Nature Materials in press)

K. Uchida¹, J. Xiao^{2,3}, H. Adachi^{4,5}, J. Ohe^{4,5}, S. Takahashi^{1,5}, J. Ieda^{4,5}, T. Ota¹, Y. Kajiwara¹, H. Umezawa⁶, H. Kawai⁶, G. E. W. Bauer³, S. Maekawa^{4,5} and E. Saitoh^{1,4,7}*



スピホール効果:

電流(電荷流) \longleftrightarrow スピン流

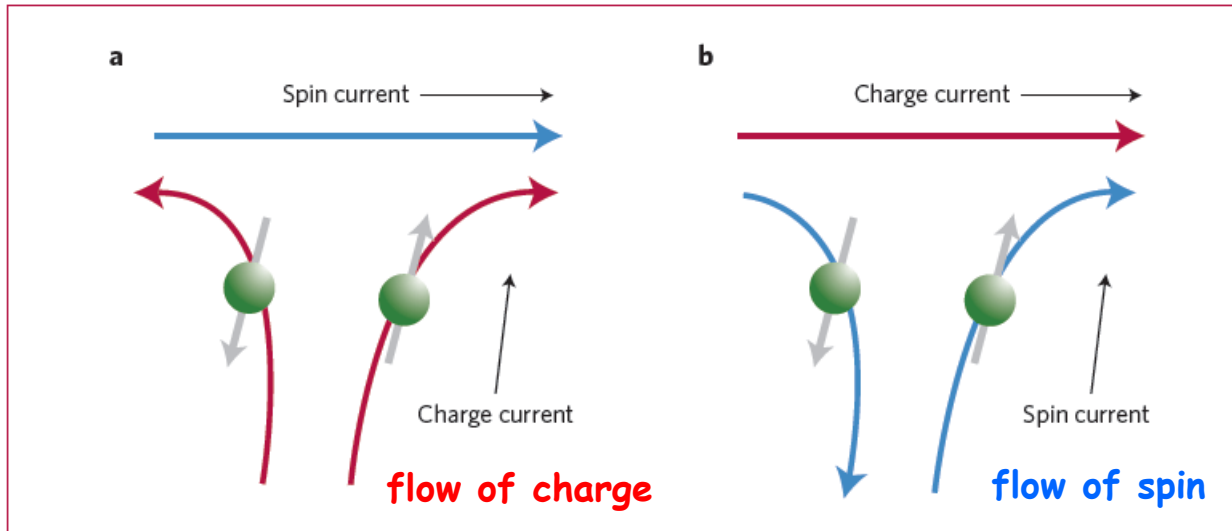


Figure 1 | Interacting charge and spin currents. **a,b**, Spin Hall effect (**a**) and the inverse spin Hall effect (**b**), where the longitudinal charge current is converted into the transverse spin current and vice versa.

Conversion efficiency is determined by spin-orbit interaction !

スピナー軌道相互作用の効果を強める！！

まとめ:

ターゲット:

室温磁性半導体の開拓

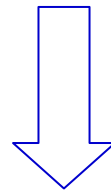
d^0 磁性体の開拓

スピンホール効果の増強

手法:

Band structure of the host materials (band (LDA) theory),

Strong electron correlation (Coulomb interaction) for magnetism (QMC).



> LDA → Anderson impurity Model → QMC → **Materials design**

→ *This simulation program may be applied to a variety of materials design.*

→ *Good supercomputer facilities.*