

第一原理計算による機能性半導体の材料設計

大阪大学産業科学研究所 吉田 博、佐藤 和則、加藤 竜次

1. はじめに

多数の原子からなる現実の物質の示す多様な物理的、化学的性質をうまく利用することで、我々の生活を支えている半導体産業の基礎が築かれてきたことを考えると、新機能材料の発見が産業社会に与える衝撃は測り知れない。ところで、物質の性質は微視的世界の基本法則(第一原理)である量子力学に支配されているが、近年のコンピュータの計算能力と計算物理学的手法の発展は目覚しく、経験的なパラメーター(実験データ)を一切用いることなく、原子番号のみを入力して第一原理からさまざまな物質が示す物性を説明することができるようになってきており、世の中にまだ存在しない物質の性質も第一原理計算により正しく予測できる可能性がある。我々のグループではそのような計算物理学的手法を用いた物質設計の可能性について議論してきており、例えばワイドギャップ半導体の低抵抗化のために新しい価電子制御法である同時ドーピング法を提唱し[1]、この方法論の有効性は実験でも確かめられつつある[2]。

本研究課題では特にワイドギャップ半導体ZnOとGaNを母体とした磁性半導体の材料設計を目指した。磁性イオンを不純物として含む希薄磁性半導体において、その磁気的な振舞いを半導体特有の価電子制御の技術を用いて制御しようという試みは、(Ga, Mn)Asや(In, Mn)AsなどのIII-V族希薄磁性半導体でキャリア誘起強磁性が発見され現実のものとなってきている。同様なキャリア誘起による強磁性が可視光に対して透明であるワイドギャップ半導体ベースの磁性半導体においてもみいだされれば、磁気光効果を利用した短波長オプトエレクトロニクスへの応用が期待される新機能材料の設計ができる。今までの研究は価電子制御技術の確立しているIII-V族磁性半導体中心であったが、III-V族半導体には2価の遷移金属イオンが融け込みにくいという問題があったことから、我々はまず、遷移金属に対して高い溶解度を示す[3]II-VI族半導体ZnOに注目し、その中での遷移金属不純物の磁性を第一原理から計算して、強磁性発現の可能性を探った。同じくIII-V族ワイドギャップ半導体であるGaNについても同様の計算をすすめた。

2. 計算結果

ZnOにMnを導入する場合、MnはZnと同じく2価であるので、置換によってキャリアは生じない。そのため、キャリアドーピングをしない場合には超交換相互作用により反強磁性的なMnのモーメントの配列が安定となる。この系に対して酸素を順次窒素で置換することでホールドーピングを行なうとMnのdバンドにキャリアが導入され二重交換相互作用により強磁性状態が安定となることがわかった(図1左)。一方、ZnをGaで置き換える電子ドーピングはMnのdバンドに電子が供給されないため、強磁性安定化には有効でないこともわかった。最近、同時ドーピングの方法を用いてII-VI族半導体であるZnOにおいても価電子制御が可能になってきたことから[2]、この系は強磁性半導体の有力な候補であるといえる。その他の可能性を探るために、Mn以外の遷移金属についても同様の計算を行なった。その結果、Mn以外の遷移金属イオンについてはキャリアドーピングを全くしない状態でも強磁性状態が安定となる可能性が示唆された(図1右)。例えばFeとMn,またはCrとMnをZnO中に適当な割合で混入させることで磁性状態を調整できるような材料設計が期待される。おなじように、III-V族半導体GaN中のMnイオンについても磁性の第一原理計算を行なった。MnイオンはGaと置き換わることでホールを供給するため、ドーピングをしない状態で強磁性となることが示され、この場合も遍歴的なd電子が強磁性発現に関与していることがわかった。

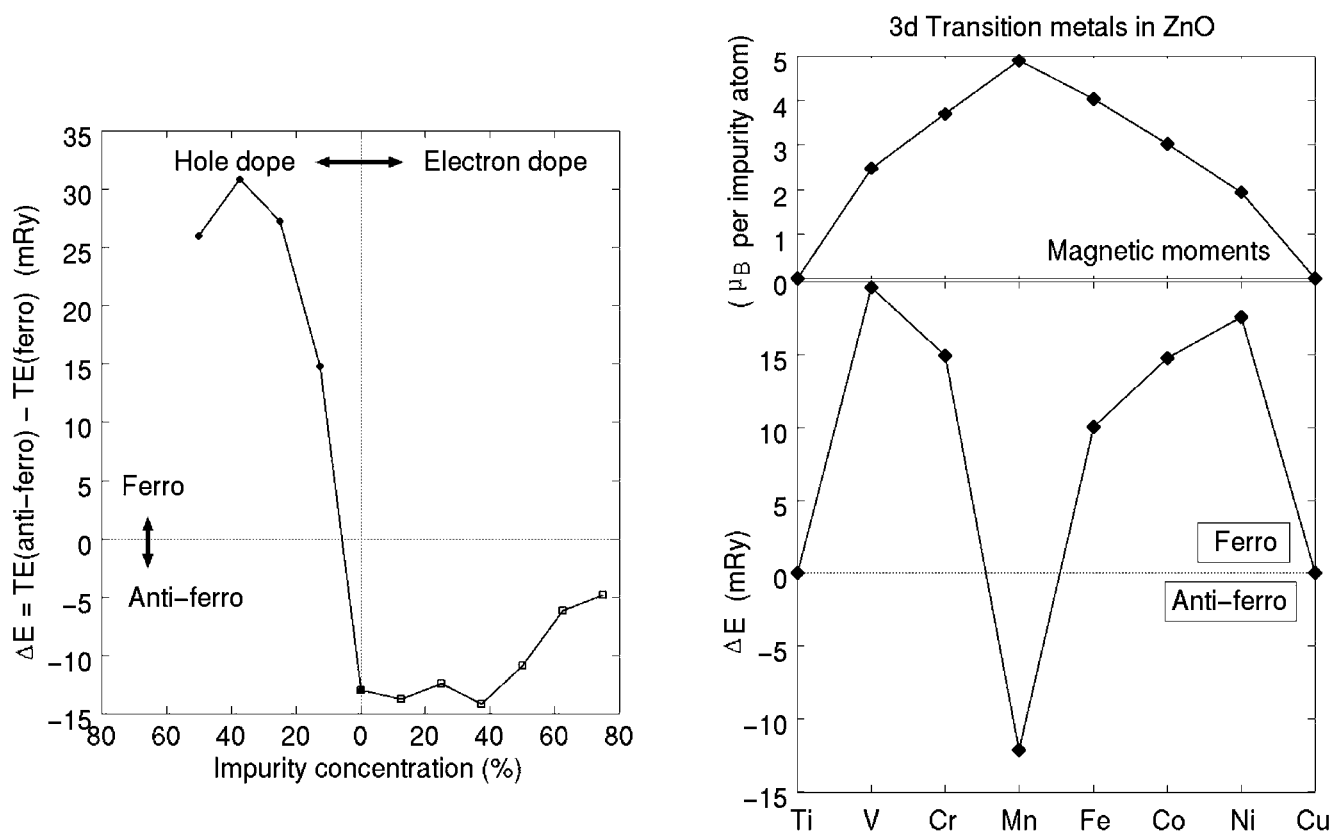


図1 ZnO中の遷移金属イオンの磁性。グラフの縦軸は強磁性状態と反強磁性状態とのエネルギー差を示す。左:Mnを含むZnOにホールまたは電子をドーピングした場合。右:ドーピングは行わず、ZnOに遷移金属を導入した場合。

3. まとめ

第一原理計算に基づいてワイドギャップ半導体をベースとする透明な強磁性体の材料設計をおこなった。その結果ZnO中のMnイオンについてはホールをドーピングすることで、また、ZnO中のV, Cr, Fe, Co, Niについては何らドーピングすることなしに強磁性状態が得られることが示唆された。また、GaN中のMnについても強磁性状態が安定であることがわかった。

参考文献

- [1] T. Yamamoto, H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 38 (1999) L166.
- [2] M. Joseph, T. Tabata, T. Kawai, Jpn. J. Appl. Phys. 38 (1999) to be published.
- [3] Z. Jin et al., Presented at the 9-th International Conference on II-VI Compounds in Kyoto (1999).

これは平成12年3月9日に開催した
計算科学技術活用型特定研究開発推進事業
研究報告会（主催 科学技術振興事業団）
の予稿集から抜粋したものです。