希薄磁性半導体の電子状態と強磁性に関する 動的クラスター近似を用いた解析*

松中 大介*¹・笠井 秀明*¹・Wilson Agerico DIÑO*^{1,*2}・中西 寛*¹

Analysis of the Electronic States and Ferromagnetism in Diluted Magnetic Semiconductors Within the Dynamical Cluster Approximation

Daisuke MATSUNAKA*¹, Hideaki KASAI*¹,
Wilson Agerico DIÑO*^{1,*2} and Hiroshi NAKANISHI*¹

*¹Department of Applied Physics, Osaka University, Suita, Osaka 565-0871

(Received October 29, 2004, Accepted December 4, 2004)

We present an analysis of the electronic states in diluted magnetic semiconductors, applying the dynamical cluster approximation. We show that the polarization of the carrier spins is suppressed by the antiferromagnetic superexchange interaction between nearest-neighbor sites more strongly at the higher impurity concentration.

1. はじめに

(In, Mn)As や (Ga, Mn)As などキャリア誘起の強磁性が発見されたのを契機に、化合物半導体に少量の遷移金属原子を添加した希薄磁性半導体はスピントロニクスに向けた新機能材料として期待され注目されている。室温を超える強磁性転移温度 T_c を目指して第一原理計算による物質設計^{1,2)}や試料作製が精力的に行われている。一方で、希薄磁性半導体における一般的な振る舞いを理解するために簡単化したモデルによる解析も重要であり、これまで幾つかの取り組みが行われている。RKKY 相互作用や二重交換相互作用に基づいた平均場理論は希薄磁性半導体における幾つかの特徴的な磁気特性及び輸送特性を説明した^{3,4)}。また最近、不規則系に対して最も広く用いられている理論の一つであるコヒーレントポテンシャル近似 (CPA) を用いた計算も行われ、不純物バンドが形成される場合にフェルミ面が不純物バンド内にあるならば高い T_c の強磁性が発現する可能性があることが指摘された^{5,6)}。しかし CPA は単一サイト近似であり不規則性に起因する非局所的な相関は考慮されていないため、磁性不純物間の直接的な相互作用の効果や磁性不純物の分布に関する局所的な偏りの影響などを議論するためには CPA の枠組みを超えた取り扱いが必要である。最近モンテカルロシミュレーションやパーコレーション理論などによって強磁性における乱れの重要性が指摘されており^{7,8)}、また実験からも希薄磁性半導体において強磁性と乱れの相互作用がみられている⁹⁾。そこで我々は希薄磁性半導体に対するモデル解析を動的クラスター近似 (DCA)^{10,11)}を用いて行った。DCA は電子相関の非局所的な動的効果を扱う新しい理論であるが、ランダムな非磁性不純物を含む不規則系においても不純物散乱に起因する非局所的相関を取り入れるために用いられている¹¹⁾。希薄磁性半導体はランダムな磁性不純物を含む不規則系であり、我々はこれに DCA を適用し、キャリアの電子状態における磁性不純物間の反強磁性的な超交換相互作用の効果調べた^{12,13)}。超交換相互作用によって近くの不純物同士は反強磁性的に結合するため遍歴するキャリアのスピンの偏極は抑制され、その効果はキャリアと磁性不純物間の相互作用が大きいほど強いことが分かった¹³⁾。本報では、この超交換相互作用によるキャリアのスピンの偏極の抑制に対する不純物濃度依存性について議論する。

2. 理 論

希薄磁性半導体に対しては、ランダムに分布する磁性不純物によるスピン系と、それと相互作用しながら遍歴するキャリア系からなるモデルが考えられる。

$$H = \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} - \sum_i J_i^C \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{S}_i + \sum_{i,j} J_{ij}^S \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (1)$$

第一項はキャリアの運動エネルギー項、第二項はキャリアと磁性不純物スピンの交換相互作用項、第三項は磁性不純物スピン間の直接的な交換相互作用項である。キャリアは不純物スピンとの相互作用によってスピン偏極し、キャリアのスピンの偏極が不純物スピンの秩序を引き起こす。すなわちスピン系とキャリア系はセルフコンシステントに決定される。しかし本研究では、キャリアの電子状態に対する不規則性の効果に着目し、ハミルトニアン(1)を次のようにスピン系とキャリア系に分けて考える。

$$H^{\text{SPIN}} = - \sum_i h^{\text{eff}} S_i^z + \sum_{i,j} S_i^z S_j^z \quad (2)$$

$$H^{\text{CARR}} = \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} - \sum_i J_i^C \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{S}_i \quad (3)$$

ここで h^{eff} はキャリアスピンの偏極によって誘起される有効磁場である。絶対零度 $T=0$ では、ある不純物分布に対してそれぞれの不純物スピンの向きは h^{eff} と J_{ij}^S の比によって決まる。キャリアはそれらの不純物スピンと相互作用しながら遍歴するためスピンに依存した自己エネルギーを持つ。

不純物散乱に起因する自己エネルギーを求めるために DCA^{11,13)}を適用する。系全体をクラスターで区切り、その

* 平成16年10月28日 第45回真空に関する連合講演会で発表

*¹ 大阪大学大学院工学研究科応用物理学専攻 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)

*² デ・ラ・サール大学理学部 (1004 マニラ、フィリピン)

クラスター内では複数の不純物サイトからの不純物散乱についても考慮して不純物散乱を正しく扱う。クラスターのサイズ N_c が系のサイズ N と同じとき ($N_c = N$) 正確な計算であり、 $N_c = 1$ のときは CPA に対応する。ある程度の N_c を用いることで、不純物散乱に起因する短距離であるが非局所的な相関を取り入れることができる。クラスターで区切ることによってブリルアンゾーンは N_c 個のセル (coarse-graining cells) に分割される。このセルのグリーン関数 (coarse-grained Green function) を

$$\bar{G}_\sigma(\mathbf{K}, \omega) \equiv \frac{N_c}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\omega - \varepsilon_{\mathbf{K}+\mathbf{k}} - \Sigma_\sigma^{\text{DCA}}(\mathbf{K}, \omega)} \quad (4)$$

で定義する。ここで $\mathbf{K}$ は各セルを特定する運動量であり $\mathbf{k}$ はセル内の運動量である。すなわち元の系の運動量 $\mathbf{k}$ とは $\mathbf{k} = \mathbf{K} + \mathbf{k}$ の関係がある。DCA において自己エネルギー $\Sigma_\sigma^{\text{DCA}}(\mathbf{K}, \omega)$ はクラスター内の不純物配置について平均したクラスターのグリーン関数が $\bar{G}_\sigma$ によって表されるように決められる。

$$\langle G_\sigma(I, J, \omega) \rangle_{\text{av}} = \bar{G}_\sigma(I, J, \omega) \quad (5)$$

ある不純物配置について $G_\sigma(I, J, \omega)$ を求めるために、我々はマルコフ過程を用い、目的の不純物配置に向けて一つずつ不純物を加えて計算する。一つ不純物を加えた新しい不純物配置でのグリーン関数 $G_\sigma^n(I, J, \omega)$ はその前の不純物配置のグリーン関数 $G_\sigma^{n-1}(I, J, \omega)$ によってダイソン方程式

$$\hat{G}^n(I, J) = \hat{G}^{n-1}(I, J) + \hat{G}^{n-1}(I, L) \hat{V}_L \hat{G}^n(L, J) \quad (6)$$

$$\hat{V}_L = \frac{1}{2} J^S \begin{pmatrix} S_L^z & S_L^- \\ S_L^+ & -S_L^z \end{pmatrix} \quad (7)$$

$$\hat{G}^n(I, J) = \begin{pmatrix} G_\sigma^n(I, J) & 0 \\ 0 & G_\sigma^n(I, J) \end{pmatrix} \quad (8)$$

から得られる。また $n=0$ に対しては $G_\sigma^0 = 1/[1/\bar{G}_\sigma + \Sigma_\sigma^{\text{DCA}}]$ である。

3. 計算結果

$S=5/2$ のランダムな不純物スピンを持つ三次元立方格子モデルに対して計算を行う。飛び移り積分は最近接サイト間 t を考え、バンド半値幅 $W=6t$ をエネルギーの単位とする。また J_{ij}^S は最近接サイト間の不純物間の直接的な相互作用とし、反強磁性的な超交換相互作用 $J^S > 0$ を考える。Fig. 1 にキャリアのスピンの偏極度

$$P(\omega) = \rho_{\text{maj}}(\omega) - \rho_{\text{min}}(\omega) \quad (9)$$

の計算結果を示す。ここで $\rho_{\text{maj}}(\omega)$ と $\rho_{\text{min}}(\omega)$ はそれぞれ多数スピンキャリアと少数スピンキャリアの状態密度である。紙面の都合上示さないが、ここで考えているキャリアと不純物スピンの交換相互作用の大きさではホストバンドの近くに不純物バンドが形成されており、 $\omega \leq -W$ での正の $P(\omega)$ は不純物バンドのスピンの偏極によるものである。いずれの不純物濃度 n_i においても超交換相互作用により $P(\omega)$ は抑えられているが、その抑制の度合いは n_i が大きいほど強い。これは n_i の増加とともに磁性不純物同士が隣に配置する確率が増加するためである。また、これまでの研究により、超交換相互作用によるキャリアのスピンの偏極の抑制はキャリアと磁性不純物間の相互作用が大きいほど強いことが分かって

Fig. 1 Optical carrier spin polarization for various J^S at (a) $n_i = 0.01$, (b) $n_i = 0.02$ and (c) $n_i = 0.05$.

いる¹³⁾。現在、より高い強磁性転移温度を実現するためにキャリアと磁性不純物の相互作用が強い物質の探索や不純物濃度を上げる試みが行われているが、我々の結果はそれらに対して超交換相互作用の影響の重要性を示唆している。

4. まとめ

希薄磁性半導体に対して DCA を適用したモデル解析を行い、キャリアのスピンの偏極に対する磁性不純物間の超交換相互作用の影響の不純物濃度依存性について調べた。キャリアのスピンの偏極は超交換相互作用によって抑制されるが、その抑制の度合いは不純物濃度が大きいほど強いことが分かった。

謝辞

著者の一人 (松中) は日本学術振興会特別研究員制度の援助を受けています。本研究は文部科学省科学研究費補助金、

基盤研究(c) (16510075), 科学技術振興調整費 (先導的研究等の推進)「ナノスピントロニクスデザインと創製」(平成14年度採択), 21世紀 COE プログラム「物質機能の科学的解明とナノ工学の創出」, 新エネルギー・産業技術総合開発機構「材料ナノテクノロジープログラム」, 及び科学技術振興事業団機構計算科学技術活用型特定研究開発推進事業の援助を受けています。また, 本研究における計算の一部は東京大学物性研究所, 京都大学基礎物理学研究所及び日本原子力研究所関西研究所の計算機を用いて行われています。

〔文 献〕

- 1) K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys., 39 (2000) L555.
- 2) M. Sirai: Physica, E 10 (2001) 143.
- 3) T. Dietl, A. Haury and Y. Merle d'Aubigné: Phys. Rev., B 55 (1997) R3347.
- 4) F. Matsukura, H. Ohno, A. Shen and Y. Sunagawa: Phys. Rev., B 57 (1998) R2037.
- 5) M. Takahashi and K. Kubo: Phys. Rev., B 66 (2002) 153202.
- 6) M. Yagi and Y. Kayanuma: J. Phys. Soc. Jpn., 71 (2002) 2010.
- 7) M. Berciu and R. N. Bhatt: Phys. Rev. Lett., 87 (2001) 107203.
- 8) S. R. Eric Yang and A. M. MacDonald: Phys. Rev., B 67 (2003) 155202.
- 9) T. Hayashi, Y. Hashimoto, S. Katsumoto and Y. Iye: Appl. Phys. Lett., 78 (2001) 1691.
- 10) M. H. Hettler, A. N. Tahvildar-Zadeh and M. Jarrell: Phys. Rev., B 58 (1998) R7475.
- 11) M. Jarrell and H. R. Krishnamurthy: Phys. Rev., B 63 (2001) 125102.
- 12) D. Matsunaka, M. M. Rahman, H. Kasai, W. A. Dino and H. Nakanishi: J. Phys.: Condens. Matter, 16 (2004) S5787.
- 13) D. Matsunaka, H. Kasai, W. A. Dino and H. Nakanishi: J. Phys. Soc. Jpn., 73 (2004) 3448.