Interface Electronic States and Spin Injection in Fe/GaAs Contacts

S. Honda, J. Inoue, and H. Itoh*

Department of Applied Physics, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603, Japan

*Department of Pure and Applied Physics, Kansai University, Yamate-cho, Suita 564-8680, Japan

Spin dependence of the conductance, that is, the spin-injection efficiency, of photo-excited electrons has been calculated for Fe/GaAs with a Schottky barrier by using a realistic tight-binding model. The conductance calculated by taking $k_{\parallel}$ summation, where $k_{\parallel}$ is the momentum of tunneling electrons parallel to layer planes, has been found to be strongly dependent on the height of the Schottky barrier, and the spin dependence of conductance may change the sign. We found that the latter result is caused by interfacial states near the contact between Fe and GaAs layers.

Key words: spin injection, Fe/GaAs contacts, interface electronic states, tight-binding model

Fe/GaAs 接合における界面電子状態とスピン注入

本多周太, 井上順一郎, 伊藤博介*

名古屋大学大学院工学研究科, 名古屋市千種区不老町 (〒464-8603)

* 関西大学システム理工学部, 吹田市山手町 (〒564-8680)

1 はじめに

スピントロニクス目標の一つは、半導体中の電子の持つ電荷とスピンの自由度を制御することにより、新しいデバイス原理を構築することである¹⁾。半導体中のスピンを制御する手法として、強磁性半導体の作製、強磁性体 (FM) から半導体 (SC) へのスピン注入、スピン軌道相互作用の利用などがある。本研究では、FM/SC 接合を介したスピン注入を理論的に取り扱う。具体的な物質は Fe/GaAs 接合である。FM/SC 接合におけるスピン注入は、拡散伝導領域では一般には困難であることが知られている²⁾。これは、金属強磁性体と半導体の電気伝導度不整合のためである。この困難は、金属強磁性体と半導体の間に絶縁層を挿入することで回避できることが示されている。そのような絶縁層として Al-O, MgO などが用いられている。ショットキー障壁もそのような絶縁層の役割を果たす^{3,4)}。この点を考慮して、数多くの実験がなされ、スピン注入効率の解析がなされている。一つは、FM/GaAs, FM/AlGaAs-GaAs 接合における量子井戸状態のスピン LED の測定からスピン注入効率 (電流のスピン分極率 P) の測定である。この測定では $P \leq 40\%$ の結果が得られている⁵⁻¹⁰⁾。また、絶縁体を挿入した接合での実験もなされており¹¹⁻¹³⁾、CoFe/MgO/GaAs において最大 $P = 52\%$ の値が得られている¹³⁾。

他方、第一原理計算による詳細な理論的研究がなされている。Wunnicke らは^{14,15)}、Fe/GaAs 接合において、ショットキー障壁がある場合とない場合におけるコンダクタンスのスピン分極率 P を計算した。ここで、

$$P = (\Gamma_{\uparrow} - \Gamma_{\downarrow}) / (\Gamma_{\uparrow} + \Gamma_{\downarrow})$$

であり、 Γ_{σ} はスピン σ のコンダクタンスである。ゼロ電圧極限では、コンダクタンスのスピン分極率は電流のスピン分極率と同じであるため、電流のスピン分極率としても P を用いる。彼らは、わずかに電子ドープされた GaAs を想定し、ゼ

ロ電圧極限における P を、GaAs の伝導帯端 E_c から計ったエネルギー、 $E - E_c$ の関数として計算している。このスピン分極率は、光励起された電子によるスピン注入効率に対応している。ショットキー障壁が無い場合には、 $E - E_c \sim 0$ において $P \sim 100\%$ 、 $E - E_c \gtrsim 0.1$ eV で $P = 40 - 80\%$ という結果が得られている。また、ショットキー障壁がある場合には、 $k_{\parallel} = (0, 0)$ ($\bar{\Gamma}$ 点) のみの計算が行われており、ほぼ 100% のスピン分極率が得られた。なお、 $k_{\parallel}$ は入射電子の持つ運動量の界面に平行な成分である。この高いスピン分極率は、Fe と GaAs のバンドの対称性に起因するものである。かれらはこれを "Symmetry enforced high spin polarization" と呼んでいる。この機構は、Fe/MgO/Fe における高トンネル磁気抵抗比と同じものである¹⁶⁻¹⁹⁾。

このような理論的研究は、バリスティック伝導領域においてドープ量の少ない n-型半導体へのスピン注入が効果的に行われること、つまり実験において報告されているスピン注入効率は試料作製手法の向上などによりさらに高めることが可能であることを示唆している。しかしながら、光励起電子によるスピン注入においては、フェルミ準位より高いエネルギー領域の電子状態がトンネル過程に関わる。したがって、ショットキー障壁がある場合においても、 $\bar{\Gamma}$ 点以外の $k_{\parallel}$ が伝導に寄与する可能性が予想される。最近では、光励起電子のトンネル過程においてスピン分極率が負となるという実験的報告もある^{20,21)}。そこで、本研究では、ショットキー障壁のある Fe/GaAs 接合における光励起電子のトンネル過程に対応するコンダクタンスのスピン分極率の計算を行う。光励起電子のトンネル過程に対しては、ショットキー障壁の高さが重要な因子となるため、スピン分極率のショットキー障壁依存性に着目した計算を行う。

本研究では現実的な tight-binding (TB) 模型を用いる。そこで、ショットキー障壁のない場合の計算結果が第一原理計算の結果を少なくとも半定量的に再現することを確かめたうえで、

Fig. 1 Model of Fe/GaAs junction for As-termination.

Fig. 2 Spatial dependence of Schottky barrier.

ショットキー障壁のある場合に対し、 $k_{\parallel}$ についての和を取った全コンダクタンスの計算を行う。その結果、ショットキー障壁の高さに依存して P の値が大きく変わることが明らかになった。また、 $P < 0$ となる場合も生じることが示される。これはショットキー障壁内に現れる界面準位のためであることが示される。これらの結果は、Wunnicke ら^{14,15)} の計算結果とは異なるものである。

2 模型と計算方法

取り扱う系は半無限の Fe と半無限の GaAs からなる Fe/GaAs 接合である。Fe と GaAs 層はそれぞれ (001) 方向で積層されたものとする。接合面は GaAs が Ga 原子層と As 原子層になる場合が考えられる。As 層で Fe と接合する場合、界面での Fe と GaAs が Fig. 1 のように接合すると仮定する (As 接合)。Ga 層で接合する場合は、GaAs の Ga と As が逆になったものを考える (Ga 接合)。格子の歪みなどの乱れは無いものとする。また、界面の As と最近接 Fe の距離は、第一原理バンド計算パッケージの VASP を用いた $\text{Fe}_{24}(\text{GaAs})_{12}(001)$ 接合系の計算結果から、 $2.448\text{\AA}$ とする。ハミルトニアンとして TB 模型を用いる。このときの、ポテンシャル・飛び移り積分の Fe のパラメータは D. A. Papaconstantopoulos²²⁾、GaAs は Xia *et al.* のパラメータを用いる²³⁾。また、界面の飛び移り積分は Fe, GaAs のパラメータの相乗平均を用いる。Fe, GaAs, 界面の飛び移り積分は、それぞれ、第三近接、最近接、第二近接まで取り入れる。

電子状態はリカーシブ・グリーン関数法を用い、コンダクタンスの計算には、線型応答に基づく久保公式を採用する²⁴⁾。系には乱れを含まないため、界面に平行方向の波数 $k_{\parallel}$ は保存され、コンダクタンスは各波数における透過係数の和で与え

Fig. 3 Calculated results of P for Fe/GaAs junctions for As, Ga-termination and $\bar{\Gamma}$ point.

られる。なお計算の便宜上、グリーン関数分母の虚部に微小量 10^{-10} eV を加える。この結果、各波数における $10^{-8} e^2/h$ 程度以下のコンダクタンスは数値的に信用できないものとなっている。

ショットキー障壁が無い場合は、Fe のバルクのフェルミ準位となるエネルギーを $E_F = 0.0\text{ eV}$ とし、GaAs のバルクの伝導帯の下端 E_c が $E_c - E_F = -0.05\text{ eV}$ となるように、GaAs 層の原子のポテンシャルエネルギーを調整する。ショットキー障壁を計算に取り入れるる場合には、その空間依存性を指数関数的と仮定して、界面近傍の GaAs のポテンシャルエネルギーを変更する。Fig. 2 にショットキー障壁の空間依存性を示す。伝導帯の下端 E_c が界面からの距離 (GaAs 層厚 ML) の関数としてプロットしている。ML=400 でショットキー障壁の高さが 0.0001 eV になり、ML > 400 では、ショットキー障壁は消えたとする。界面におけるショットキー障壁の高さ Δ_s は実験により様々な値が報告されているので、本研究では $\Delta_s = 0.4, 0.6, 0.8$ および 1.0 eV の値を用いる。なお、GaAs バルクの伝導帯下端は、ショットキー障壁が無いとき同様にフェルミ準位から 0.05 eV 下にとる。

3 計算結果

以下では、ショットキー障壁の無い場合、ある場合にたいして光励起された電流に対応するスピン分極率 P の計算を行う。励起エネルギー E は、フェルミ準位 E_F から測ることとする。ここではバイアス電圧ゼロの極限での計算に限ることとする。

3.1 ショットキー障壁が無い場合

ショットキー障壁のない Fe/GaAs 接合系に対して計算された P を $E - E_F$ の関数としてプロットした結果を Fig. 3 に示す。実線は $k_{\parallel}$ について和を取った (ブリルアルゾーン全体の透過率の和から求めた) 値であり、破線は $\bar{\Gamma}$ 点における P の値である。 $\bar{\Gamma}$ 点における P は、電子のエネルギーがダウンスピンの Δ_1 バンド ($=1.02\text{ eV}$) に達するまでは、 $\downarrow$ スピンのコンダクタンスが 0 であるため、 $P = 100\%$ と大きな値となる。 E が $\downarrow$ スピン Δ_1 バンドに達すると、 $\downarrow$ スピンのコンダクタンスが 0 から増加し、 P の値は急激に減少する。 $k_{\parallel}$ について和を取ったコンダクタンスにおいては、 $E - E_F = -0.05\text{ eV}$ では $P \sim 100\%$ であるが、電子の励起エネルギーが高くなるにつれ、 P の値が減少する。As 接合では、 $E - E_F = 0.6\text{ eV}$ まで $P \sim 95\%$ と

Fig. 4 Electronic density of states for Fe1, Fe2, and As at Fe/GaAs contacts for As-termination, and Ga contact for Ga-termination.

Fig. 5 $k_{||}$ resolved conductance at $E - E_F = 0.3$ eV for Ga-termination. (a) $\uparrow$ spin and (b) $\downarrow$ spin conductance.

大きな分極率であるが、それ以上 $E - E_F$ が増え、 P は大きく減少している。また、Ga 接合では、 $E - E_F$ が -0.05 eV から増えるにつれて、 P が減少している。これら P の減少は、 $E - E_F = -0.05$ eV では $\bar{\Gamma}$ 点しか伝導に寄与しないが、高エネルギーとなるにつれて $\bar{\Gamma}$ 点以外の状態が伝導に寄与するためである。なお、これらの結果は、Wunnicke らの計算結果と半定量的に一致しており、本研究で用いた TB 模型の妥当性を示すものとなっている。

Fig. 4 は接合界面の電子状態の計算結果である。ここで、太い実線は As 接合における Fe1 原子、太い波線は Fe2 原子、細い実線は As 原子、細い波線は Ga 接合における界面 Ga 原子位置での電子の状態密度である。As 接合と Ga 接合とで、Fe の界面における状態密度はほとんど変化しない。 E_F 近傍では、 $\downarrow$ スピンの電子状態の方が、 $\uparrow$ スピンよりも高くなっている。 E_F 近傍での高い $\downarrow$ スピン電子状態は Fe の界面状態である。計算で得られた非常に高いスピン分極率は、状態密度模型からは理解できないことがわかる。

Fig. 5 に Ga 接合における $E - E_F = 0.3$ eV での各スピンのコンダクタンスを界面平行方向の波数で分解した図を示す。 k_x 軸、 k_y 軸のなす面の中心が $\bar{\Gamma}$ 点である。また、 $\bar{\Gamma}$ 点周りの状態を確認するために、 $\bar{\Gamma}$ 点を中心ブリルアルゾーンの $1/2$ を拡大表示した。このエネルギーにおいては、GaAs バルクの電子の状態が $\bar{\Gamma}$ 点周りにしかないため、グラフに表示していない波数でのコンダクタンスは 0 である。 $\uparrow$ スピン電子に対しては、 $\bar{\Gamma}$ 点でのコンダクタンスは非常に高いが、 $\bar{\Gamma}$ 点から外れるにつれてコンダクタンスは減少する。また、GaAs の状態が無い波

Fig. 6 Calculated results of P for Fe/GaAs junctions with Schottky barrier. $\Delta_S = 0.4, 0.6, 0.8$, and 1.0 eV.

数になると、コンダクタンスは 0 になる。 $\downarrow$ スピン電子では、 $\bar{\Gamma}$ 点のコンダクタンスは 0 である。しかし、全体としてコンダクタンスは小さいものの、 $\bar{\Gamma}$ 点から少し外れた場所にピーク構造を持つ。この $\bar{\Gamma}$ 点以外の伝導の影響で、分極率 P が減少している。これらの結果も Wunnicke らの計算結果と同じであり、彼らの提唱する "Symmetry enforced high spin polarization" となっている。

3.2 ショットキー障壁のある場合

ショットキー障壁を取り入れた Fe/GaAs 接合系における分極率 P の計算結果を $E - E_F$ の関数として Fig. 6 に示す。ショットキー障壁の大きさとして、 $\Delta_S = 0.4, 0.6, 0.8, 1.0$ eV を用い、界面の接合は As 接合である。各 Δ_S で $P \sim -100\%$ となる負のピークができていくのがわかる。負のピーク以外のエネルギーでは $P \sim 100\%$ となっている。接合界面を Ga 接合にすると、負のピークは $\Delta_S = 0.8, 1.0$ eV において、それぞれ $E - E_F = 0.12, 0.25$ eV に形成される。 $\Delta_S = 0.4, 0.6$ eV においては、負のピークは $E - E_F < 0.05$ eV で形成されると思われるが、GaAs のバンドギャップに相当するエネルギーになるため、確認できない。また、As 接合で Δ_S を固定し、ショットキー障壁の厚さを倍 ($ML = 800$)、半分 ($ML = 200$) とした場合にも、ほぼ同じエネルギーで負のピークが観測される。なお、 $ML = 800$ ではピークは鋭くなり、 $ML = 400$ では緩やかになる。さらに、GaAs の伝導帯のバンドの下端を $E_c - E_F = -0.01, -0.15$ eV とした場合もほとんど同じエネルギーで負のピークが形成される。したがって、界面の電子状態が負のピークに大きく影響していると考えられる。なお、図には示されていないが、 $\bar{\Gamma}$ 点における分極率は、ショットキー障壁の高さ、厚さに寄らず $P \sim 100\%$ となることが確認されている。

$P < 0$ となるエネルギー領域が現れる理由を調べるために、波数分解したコンダクタンスと界面状態密度を計算する。 $E - E_F = 0.4$ eV、 $\Delta_S = 0.8$ eV における各スピンの波数分解したコンダクタンスを Fig. 7 に示す。表示範囲は Fig. 5 と同じである。ショットキー障壁が無い場合同様、 $\uparrow$ スピン電子のコンダクタンスは $\bar{\Gamma}$ 点で最大値を持っている。 $\downarrow$ スピンのコンダクタンスは $\bar{\Gamma}$ 点では 0 であるが、その周りで大きな値を持つ。

Fig. 8 に、 $E - E_F = 0.4$ eV、 $\Delta_S = 0.8$ eV における、波数分解した界面層の電子状態を示す。(a) が $\uparrow$ スピン、(b) が $\downarrow$ スピンの状態密度である。(b) は $\bar{\Gamma}$ 点の状態が見やすいように紙面手

Fig. 7 $k_{\parallel}$ resolved conductance for As-termination with $\Delta_S = 0.8$ eV at $E - E_F = 0.4$ eV. (a) $\uparrow$ spin conductance, (b) $\downarrow$ spin conductance.

Fig. 8 $k_{\parallel}$ resolved density of states at interfacial As site with $\Delta_S = 0.8$ eV at $E - E_F = 0.4$ eV. (a) $\uparrow$ spin state, (b) $\downarrow$ spin state.

前側 1/4 の高いピークを半分には減らしている．表示範囲は Fig. 7 と同じである． $\uparrow$ スピンは $\bar{\Gamma}$ 点周りにほとんど状態が無く， $\bar{\Gamma}$ 点から離れると幅の広い山型の状態がある．しかし，GaAs のバルクは $\bar{\Gamma}$ 点周りにしか状態がないため，この山型の状態は伝導には寄与しない．したがって， $\uparrow$ スピンの伝導はショットキー障壁によるトンネル伝導となり，コンダクタンスが大きく減少する． $\downarrow$ スピンのピークは 8 の字型で $\bar{\Gamma}$ 点を中心に形成されている．この状態は界面状態といえる．この状態の $\bar{\Gamma}$ 点近傍は， s ， p_z 軌道電子から形成されており，周辺は， p_x ， p_y 軌道の電子から形成されている．界面垂直方向に手を伸ばした p_z 軌道の電子と異方性の無い s 軌道の電子が，界面垂直方向の伝導にはよく寄与すると考えられるため， $\bar{\Gamma}$ 点近傍の状態により， $\downarrow$ スピンのコンダクタンスが大きくなる．

4 まとめ

ショットキー障壁が存在する Fe/GaAs 接合における光励起電子に対するスピン注入効率（コンダクタンスのスピン分極率）を現実的な tight-binding (TB) 模型を用いて計算した．ショットキー障壁がない場合の計算結果は，第一原理計算の結果を半定量的に再現するものであり，本計算手法の妥当性を示すものとなっている．ショットキー障壁のある場合，光励起電子がもたらすスピン分極率の計算結果は，ショットキー障壁に大きく依存すること，あるエネルギー領域ではスピン分極率が負の値をとることが示された．これらの結果は，ショットキー障壁内に形成される界面状態によることが明らかにされた．この点は，これまでの計算では見逃されていた点である．

絶縁体，例えば MgO 層を挿入した場合，大きなスピン分極

率が期待される．また，界面の乱れも大きな影響を与えそうである^{19,25)}．これらの効果およびスピン分極率のバイアス電圧依存性については今後計算を行う予定である．

謝辞

この研究を行うにあたり，科学研究費・特定領域研究シリコンナノエレクトロニクスの新展開，スピン流の創出と制御，次世代スーパーコンピュータプロジェクト・ナノサイエンスプログラム，21世紀 COE プログラム”計算科学フロンティア”に感謝いたします．

References

- 1) H. Ohno, *Science* **281**, 951 (1998).
- 2) G. Schmidt, D. Ferrand, L. W. Molenkamp, A. T. Filip, and B. J. van Wees, *Phys. Rev. B* **62**, R4790 (2000).
- 3) E. I. Rashba, *Phys. Rev. B* **62**, R16267 (2000).
- 4) A. Fert and H. Jaffres, *Phys. Rev. B* **64**, 184420 (2001).
- 5) O. M. J. van't Erve, G. Kioseoglou, A. T. Hanbicki, C. H. Li, B. T. Jonker, R. Mallory, M. Yasar, and A. Petrou, *App. Phys. Lett.* **84**, 4334 (2004).
- 6) A. T. Hanbicki, B. T. Jonker, G. Itkos, G. Kioseoglou, A. Petrou, *App. Phys. Lett.* **80**, 1240 (2002).
- 7) A. T. Hanbicki, O. M. J. van't Erve, R. Magno, G. Kioseoglou, C. H. Li, B. T. Jonker, G. Itkos, R. Mallory, M. Yasar, and A. Petrou, *App. Phys. Lett.* **82**, 4092 (2003).
- 8) S. E. Andresen, S. J. Steinmuller, A. Ionescu, G. Wastlbauer, C. M. Guertler, and J. A. C. Bland, *Phys. Rev. B* **68**, 073303 (2003).
- 9) S. J. Steinmuller, C. M. Gürtler, G. Wastlbauer, and J. A. C. Bland, *Phys. Rev. B* **72**, 045301 (2005).
- 10) C. Adelman, X. Lou, J. Strand, C. J. Palmström, and P. A. Crowell, *Phys. Rev. B* **71**, 121301(R) (2005).
- 11) V. F. Motsnyi, J. De Boeck, J. Das, W. Van Roy, G. Borghs, E. Goovaerts, and V. I. Safarov, *App. Phys. Lett.* **81**, 265 (2002).
- 12) T. Manago and H. Akinaga, *App. Phys. Lett.* **81**, 694 (2002).
- 13) X. Jiang, R. Wang, R. M. Shelby, R. M. Macfarlane, S. R. Bank, J. S. Harris, and S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 056601 (2005).
- 14) O. Wunnicke, Ph. Mavropoulos, R. Zeller, P. H. Dederichs, and D. Grundler, *Phys. Rev. B* **65**, 241306(R) (2002).
- 15) O. Wunnicke, Ph. Mavropoulos, R. Zeller, and P. H. Dederichs, *J. Phys: Cond. Matt.* **16**, 4643 (2004).
- 16) W. H. Butler, X.-G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren, *Phys. Rev. B* **63**, 54416 (2001).
- 17) J. Mathon and A. Umerski, *Phys. Rev. B* **63**, 220403 (2001).
- 18) S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando, *Nat. Mater.* **3**, 868 (2004).
- 19) H. Itoh and J. Inoue, *J. Mag. Soc. Jpn.* **30**, 1 (2006).
- 20) J. A. C. Bland, S. J. Steinmuller, A. Hirohata, and T. Taniyama, in *Ultrathin Magnetic Structure IV: Application*, edited by J. A. C. Bland and B. Heinrich, Springer, Berlin (2005).
- 21) H. Kurebayashi, S. J. Steinmuller, J. B. Laloë, T. Trypiniotis, S. Easton, A. Ionescu, J. R. Yates, and J. A. C. Bland, *App. Phys. Lett.* **91**, 102114 (2007).
- 22) D. A. Papaconstantopoulos, *HANDBOOK OF THE BAND STRUCTURE OF ELEMENTAL SOLIDS*, PLENUM PUBLISHING CORPORATION, New York, (1986).
- 23) J.-B. Xia, S.-F. Ren, and Y.-C. Chang, *Phys. Rev. B* **43**, 1692 (1991).
- 24) S. Honda, T. Kondo, H. Itoh, and J. Inoue, *Phys. Rev. B* **74**, 155329 (2006).
- 25) M. Zwierzycki, K. Xia, P. J. Kelly, G. E. W. Bauer, and I. Turek, *Phys. Rev. B* **67**, 092401 (2003).

2007 年 10 月 12 日受理，2008 年 2 月 14 日採録