

ナノ構造磁性半導体の巨大磁気光学機能の創出

研究代表 東北大学科学計測研究所 岡 泰夫

Studies of Giant Magneto-Optical Properties in Nanostructure Magnetic Semiconductors

Yasuo Oka, *Research Director of CREST*

Research Institute for Scientific Measurements, Tohoku University

1. はじめに

磁性半導体は、磁性イオンを含む混晶半導体である。本研究は、II-VI 族半導体をベースとした磁性半導体のナノメートル・スケールの構造における電子系に対する量子閉じ込め効果と磁気光学特性・機能性を開拓することを目的としている。研究組織は、東北大学科学計測研究所・岡研究室を主体としており、「ナノ構造形成グループ」、「ナノ構造評価グループ」および「共同研究者」の約20名により構成されている。

本研究プロジェクト発足以来、磁性半導体ナノ構造の形成、構造評価、磁気光学特性評価について、研究基盤となる研究機器を設置し、磁性半導体量子構造作製と巨大磁気光学効果の探求を行っている。ナノ構造形成は、II-VI 族磁性半導体をベースにして分子線エピタキシー (MBE)、リソグラフィ極微細加工、自己組織化法により、種々の量子井戸、量子細線、量子ドットなどの磁性半導体ナノ構造を作製している。これらのナノ構造の形状、結晶格子状態を X 線回折や電子顕微鏡・原子間力顕微鏡によって評価し、この知見をもとに、ナノ構造の電子状態と光学特性を超高速度時間分解分光により調べ、電子と磁性イオンの磁氣的相互作用とその磁気光学的ダイナミクスを明らかにしている。また、磁性半導体ナノ構造の新しい機能性と外場による制御を研究している。本年度に得られた主な成果を次に示す。

2. 研究成果

1) 磁性半導体二次元量子井戸の磁気光学特性

CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe, Cd_{1-x}Mn_xTe/Cd_{1-y}Mg_yTe, Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe および Cd_{1-x}Mn_xSe/Zn_{1-y}Cd_ySe の系における磁性半導体量子井戸が、MBE 法により作製された。本年度は、特に、「2重量子井戸」、「スピン超格子」の系統的な作製を重点的に行った。2重量子井戸における「励起子スピントンネル」、「励起子スピン輸送」に関して、新たな結果が得られた。図1は、CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe 系の2重量子井戸における励起子スピン輸送・注入の結果である。Cd_{1-x}Mn_xTe 磁性量子井戸で生成してスピン分極した励起子が、CdTe 非磁性量子井戸で、高いスピン分極を保ったまま、発光する過程を捕らえたものであり、電子・正孔のスピン情報が輸送されていることを示している。[2, 5, 13, 16 など]

「スピン超格子」は、非磁性層と磁性層からなる超格子で、ゼロ磁場下においてはエネルギーギャップ・エネルギーが同一で、外部磁場が印加されると磁性層のエネルギーギャップが大きなゼーマン分裂を起こし、上向きと下向き

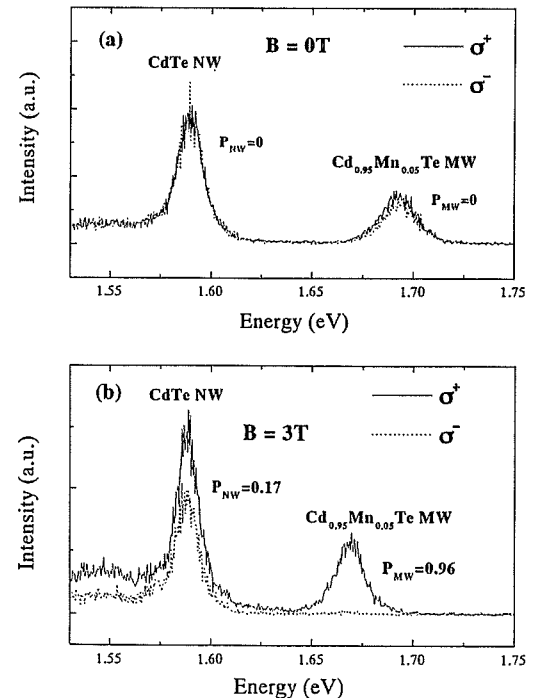


図1. CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe 系 2重量子井戸におけるスピン注入と発光

の電子スピンの状態が空間的に分離される超格子である。 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}/\text{Cd}_{1-y}\text{Mg}_y\text{Te}$ 量子井戸は、母材が同じ CdTe であるので井戸層と障壁層の Mn および Mg の濃度をコントロールすることにより、井戸層と障壁層のエネルギーギャップを同一にすることが可能である。MBE 法により $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}/\text{Cd}_{1-y}\text{Mg}_y\text{Te}$ スピン超格子の作製を行い、その磁気光学特性を研究した。[1, 7, 8, 10, 11, 15 など] これらの結果は、電子スピンの関与する「スピンエレクトロニクス」に密接に関連しており、今後さらに研究の展開を行う。

2) 磁性半導体量子細線の磁気光学特性

本研究で購入した 20 nm 線幅の描画性能をもつ電子線リソグラフィ装置を用いて、2 種類の磁性半導体量子細線の作製に成功した。第 1 は、2 次元量子井戸に細線描画を行い、化学エッチングにより量子細線を作製する方法、第 2 は、基板の GaAs をリソグラフィ法によりメサ構造加工を行い、このメサ上に MBE 法により磁性半導体量子井戸を成長させ、量子細線を形成させる方法である。この 2 種類の方法により、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 、 $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Mn}_y\text{Se}$ などの量子細線を作製した。図 2 は、 $[1-10]$ 方向の GaAs メサ上に形成させた磁性半導体多重量子井戸とその上部の量子細線を示す。これらの方法により、磁性半導体を用いた量子細線としては最も細い 20 nm の幅のものが形成できた。これらの量子細線の励起子発光は、細線の幅が狭まると高エネルギーシフトし、また細線の長さ方向に直線偏光している。この特性は、量子細線の 1 次元量子閉じ込め効果に由来している。細線幅 20 nm、厚さ 10 nm の $\text{Zn}_{0.69}\text{Cd}_{0.23}\text{Mn}_{0.08}\text{Se}$ 量子細線に Faraday 配置で磁場を 6 T 印加すると、32 meV のゼーマンシフトを示し、量子細線内の磁性イオンの影響を強く受けた磁気光学効果が現れることが分かった。しかし、このシフト量は、細線描画していない量子井戸部分のゼーマンシフト 43 meV より少なく、細線幅方向の端面での磁性イオンスピンの状態がゼーマンシフトを減少させていると考えられる。[3, 6, 12, 14, 17 など] 励起子の大きさに迫る量子細線の形成が可能になったため、設計した任意の形状の磁性半導体量子ナノ構造を作るための極微細加工技術を確立する。

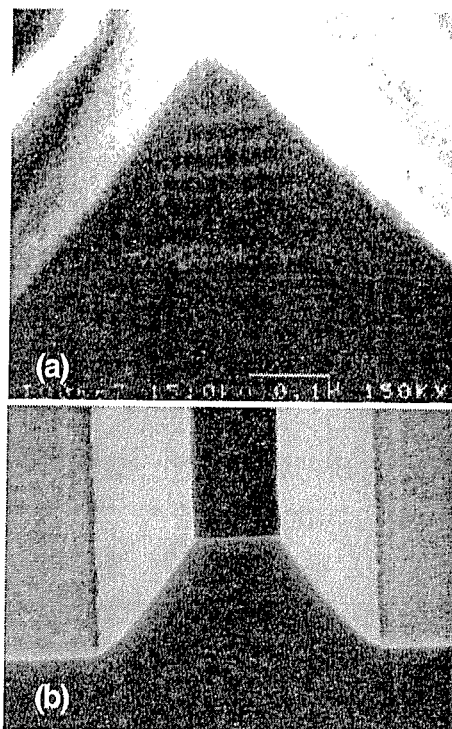


図 2. GaAs メサ基板上に形成した $\text{ZnSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子細線 (a) とメサ加工をした GaAs 基板 (b)

3) 磁性半導体量子ドットの磁気光学特性

磁性半導体量子ドットは、準 0 次元電子状態に磁気的な相互作用が働く系である。MBE 装置を用いて、自己組織化により $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ および $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子ドットを作製した。また、磁気光学特性の比較のために、CdSe 量子ドットを $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ の中に作製した。 $\text{Cd}_{0.88}\text{Mn}_{0.12}\text{Se}$ と CdSe 量子ドットに磁場を成長方向に平行 ($B//z$) に印加した場合の発光強度の変化を、図 3 に示す。 $\text{Cd}_{0.88}\text{Mn}_{0.12}\text{Se}$ 量子ドットでは、発光強度の磁場による顕著な増大が見られた。しかし、CdSe の量子ドットや $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子井戸では、磁場による発光強度の増大は見られず、磁性半導体系の量子ドット構造に特有の現象であると考えられる。ドット内の励起子発光の時間変化をストリークカメラにより測定すると、 $\text{Cd}_{0.97}\text{Mn}_{0.03}\text{Se}$ 量子ドットでは、0 T において励起子発光寿命は 20 ps であり、CdSe 量子ドットの 200 ps や $\text{Cd}_{0.88}\text{Mn}_{0.12}\text{Se}$ 単一量子井戸の 700 ps と比べて非常に短い値になっている。7 T ($B//z$) における $\text{Cd}_{0.97}\text{Mn}_{0.03}\text{Se}$ 量子ドットの発光寿命は、104 ps となった。 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 中の CdSe 量子ドットでも、同様に、0 T では発光寿命が短く、7 T では長くなることから、 $\text{Cd}_{0.97}\text{Mn}_{0.03}\text{Se}$ 量子ドットの発光寿命

の減少はドット界面に Mn による非発光捕獲中心が生じ、ここに励起子が捕獲されるためであると考えられる。

このような量子ドットにおける発光の磁場依存性は、励起子ボーア半径が磁場により収縮し、Mn ドープによって生じたドット表面の非発光捕獲中心に、励起子がトラップされる確率が減少するために起こる。 $B \perp z$ の場合には、発光強度、発光寿命ともに磁場による目立った変化が見られない。これは、ドットの形状が球面ではなく、成長面内に扁平な島状になったため、成長面に対して垂直な平面内での励起子半径の収縮効果は大きく効かないこと

が原因であると考えられる。 $Zn_{1-x}Mn_xSe$ 量子ドットでは、Mn 発光が観測され、ドット内での励起子からのオージェ過程により Mn イオンが励起され、Mn 発光過程が生じていると同定できる。

[3, 6, 12, 18 など]

3. まとめ

本プロジェクトの目標とする磁性半導体ナノ構造として、二次元量子井戸、量子細線、量子ドットを作製することに成功した。作製法としては、MBE 法、自己組織化法および電子線リソグラフィー極微細加工を用いた。これらのナノ構造について、フェムト秒パルスレーザーを用いて時間分解分光を行い、量子井戸中での電子、励起子のダイナミクスを測定し、励起子磁気ポーラロンの形成、スピン輸送過程、ナノ構造に起因する磁気光学特性に関する新たな成果が得られた。

「磁性半導体二次元量子井戸」では、 $CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe$ 、 $Cd_{1-x}Mn_xTe/Cd_{1-y}Mg_yTe$ 、 $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$ 、 $Cd_{1-x}Mn_xSe/Zn_{1-y}Cd_ySe$ などの系について、MBE 法によりスピン超格子、2 重量子井戸の系統的な作製に成功した。2 重量子井戸における「励起子スピントネル」、「励起子スピン輸送」、「スピン超格子」における磁気光学効果に関して新しい知見を得た。

「磁性半導体量子細線」では、電子線リソグラフィー法により、2 次元量子井戸に細線描画を行い量子細線を作製する方法と、基板の GaAs にメサ加工を行い、この上に MBE 法により量子細線を形成させる方法を用いて、2 種類の磁性半導体量子細線を作製した。その結果、20 nm の線幅の $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 、 $Zn_{1-x}Cd_xMn_ySe$ 量子細線を作製できた。これらの量子細線の励起子発光では、1 次元量子閉じ込め効果に由来した高エネルギーシフトと細線の長さ方向の偏光特性が見られた。

「磁性半導体量子ドット」では、自己組織化により $Cd_{1-x}Mn_xSe$ および $Zn_{1-x}Mn_xSe$ 量子ドットを作製した。磁性半導体量子ドットの励起子発光特性は、形成されたドットの形状に依存しており、磁場による励起子波動関数の収縮が関係していること、ドット界面の非発光過程が重要であることが明らかになった。

以上、磁性半導体ナノ構造として、目標とする二次元量子井戸、量子細線、量子ドットを系統立てて作製し、量子閉じ込め効果、励起子磁気ポーラロンの形成、スピン輸送過程、ナノ構造に起因する磁気光学特性に関する新たな結果を得ることができた。この作製技術を発展させて、量子井戸、量子細線、量子ドットなどを

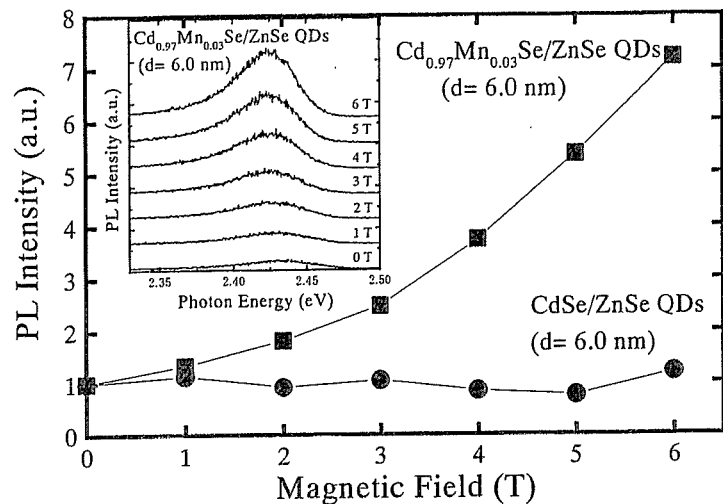


図3. $Cd_{0.97}Mn_{0.03}Se$ 量子ドットと $CdSe$ 量子ドットにおける磁場印加による発光強度の変化

組み合わせた任意の形状の磁性半導体量子ナノ構造を作ることは、本研究の最終目標の1つである。磁性半導体ナノ構造の励起子スピンドイナミクスの成果は、半導体へのスピン注入やスピン輸送など「スピンエレクトロニクス」に関連するものであり、今後新たな研究展開を行う。半導体の電子スピン状態については、「量子コンピューティング」など、新技術開発に関する活発な議論が行われている。このような次世代の「ナノサイエンス、ナノテクノロジー」に向けて、磁性半導体ナノ構造の結晶成長技術や磁気光学機能性の開発、不純物ドーピングによる電気伝導性制御などが重要な課題となる。

主な発表論文

1. *Transient behavior of the Excitonic Magnetic Polarons in $Cd_{1-x}Mn_xTe$ Epilayers*, R. Pittini, J.X. Shen, M.C. Debnath, I. Souma, M. Takahashi, and Y. Oka, *J. Appl. Phys.* **87**, 6454-6456 (2000).
2. *Spin-Flip Rate of Excitonic Magnetic Polarons in $(Cd, Mn)Te/(Cd, Mg)Te$ Quantum Wells*, M.C. Debnath, J.X. Shen, E. Shirado, I. Souma, T. Sato, R. Pittini, and Y. Oka, *J. Appl. Phys.* **87**, 6457-6459 (2000).
3. *Magneto-Luminescence in Quantum Dots and Quantum Wires of II-VI Diluted Magnetic Semiconductors*, N. Takahashi, K. Takabayashi, I. Souma, J.X. Shen, and Y. Oka, *J. Appl. Phys.* **87**, 6469-6471 (2000).
4. *Exciton dynamics in $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs$ Heterojunctions and $GaAs$ Epilayers*, J.X. Shen, R. Pittini, Y. Oka, and E. Kurtz, *Phys. Rev.* **B61**, 2765-2772 (2000).
5. *Spin Polarization Dependent Optical Transition Rates Observed in the Integer Quantum Hall Region*, R. Pittini, J.X. Shen, Y. Oka, W. Ossau, Kai Shum, *Physica E* **6**, 205-209 (2000).
6. *Exciton Luminescence in Quantum Dots and Quantum Wires of Diluted Magnetic Semiconductors*, K. Takabayashi, N. Takahashi, I. Yagi, K. Yui, I. Souma, J.X. Shen and Y. Oka, *J. Luminescence* **87/89**, 347-349 (2000).
7. *Temperature and Magnetic Field Effects of Transient Exciton Luminescence in $Cd_{1-x}Mn_xTe/Cd_{1-y}Mg_yTe$ Quantum Wells*, M.C. Debnath, J.X. Shen, E. Shirado, I. Souma, T. Sato, R. Pittini and Y. Oka, *J. Luminescence* **87/89**, 475-477 (2000).
8. *Exciton Energy Relaxation and Exciton Mobility Edge in $(CdMg)Te$ epilayers Studied by Time-Resolved Photoluminescence*, J.X. Shen, M.C. Debnath, I. Souma, E. Shirado, T. Saitou, T. Sato, R. Pittini, Y. Oka, *J. Luminescence* **87/89**, 908-910 (2000).
9. *Super-Linear Photoluminescence and Vertical Transport of Photo-Excited Carriers in Modulation Doped Heterojunctions*, J.X. Shen, R. Pittini, Kai Shum, W. Ossau, Y. Oka, *Proceedings of SPIE*, 27 Jan 2000, Session2.1.
10. *Recombination Dynamics of Excitons in $Cd_{1-x}Mn_xTe$ Epilayers and Quantum Wells by Time Resolved Photoluminescence*, M.C. Debnath, J.X. Shen, E. Shirado, I. Souma, T. Sato, R. Pittini and Y. Oka, *J. Crystal Growth* **214/215**, 797-800 (2000).
11. *Coexistence of Excitons and Free Carriers in $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$ Multiple Quantum Wells*, R. Pittini, J.X. Shen, M. Takahashi and Y. Oka, *J. Crystal Growth* **214/215**, 801-805 (2000).
12. *Fabrication and Optical Study of Quantum Dots, Quantum Wires and Quantum Wells of II-VI Diluted Magnetic Semiconductors*, N. Takahashi, K. Takabayashi, E. Shirado, I. Souma, J.X. Shen and Y. Oka, *J. Crystal Growth* **214/215**, 183-186 (2000).
13. *Tunneling of spin polarized excitons in double quantum wells of $Cd_{1-x}Mn_xTe$ and $CdTe$* , K. Kayanuma, E. Shirado, M.C. Debnath, I. Souma, S. Permogorov and Y. Oka, *Physica E* in print.
14. *Magnetic field induced type I to type II transition in $ZnSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$ quantum wires*, Z. H. Chen, T. Saitou, K. Shibata, T. Sato, and Y. Oka, *Proc. Int. Conf. Phys. Semiconductors* (2000) in print.
15. *Radiative recombination and spin relaxation of excitons in $Cd_{1-x}Mn_xTe$ quantum wells*, M. C. Debnath, J. X. Shen, I. Souma, M. Takahashi, T. Sato, R. Pittini, and Y. Oka, *Proc. Int. Conf. Phys. Semiconductors* (2000) in print.
16. *Spin transport of excitons in asymmetric double quantum wells of $Cd_{1-x}Mn_xTe$* , K. Kayanuma, E. Shirado, M.C. Debnath, I. Souma, J.X. Shen, S. Permogorov and Y. Oka, *Proc. Int. Conf. Phys. Semiconductors* (2000) in print.
17. *Magneto-optical properties of diluted-magnetic-semiconductor quantum wires*, T. Saitou, N. Takahashi, T. Ikada, K. Shibata, T. Sato, Z. Chen, I. Souma and Y. Oka, *Proc. Int. Conf. Phys. Semiconductors* (2000) in print.
18. *Exciton recombination processes in $Cd_{1-x}Mn_xSe/ZnSe$ and $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$ quantum dots under magnetic fields*, K. Shibata, K. Takabayashi, I. Souma, J.X. Shen, K. Yanata, and Y. Oka, *Proc. Int. Conf. Phys. Semiconductors* (2000) in print.