

「量子効果等の物理現象」
平成 8 年度採択研究代表者

岡 泰夫

(東北大学科学計測研究所 教授)

「ナノ構造磁性半導体の巨大磁気光学機能の創出」

1. 研究実施の概要

本研究は、磁性イオンを含む磁性半導体のナノ構造を設計・作製し、次元性を十分に制御したナノ構造により発現される巨大磁気光学機能を創出することを目的とする。このため、磁性半導体の $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 、 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ などをベースとした量子井戸、量子細線、量子ドットを、分子線エピタキシー(MBE)法と電子ビーム・リソグラフィ法により作製した。これらのナノ構造に生じる磁性イオンと相互作用する電子や励起子の超高速スピンドYNAMICS、磁気光学効果を解明し、この結果よりナノ構造磁性半導体の新しい巨大磁気光学機能について研究した。

2. 研究実施の内容

磁性半導体は、磁性電子と半導体バンド電子の交換相互作用によって、極めて大きな磁気光学的特性を示す。 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 、 $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ などの半導体は、このような性質を示す代表的な物質である。磁性半導体をナノスケール化して、電子状態に対する量子力学的な閉じ込め作用が働く「ナノ構造」を作ると、磁気光学特性はこのナノ構造の次元性によって制御される多彩なものとなる。このナノ構造に起因する多彩な磁気光学特性は、マイクロ磁気光学デバイス、スピントランジスタ、光スピンメモリーなど、将来のスピントロニクスやスピントロニクス分野への応用に大きな可能性をもつ。

本研究「ナノ構造磁性半導体の巨大磁気光学機能の創出」の実施は、研究代表者岡 泰夫の下に、「ナノ構造形成グループ」(これまでの総勢13名)と「ナノ構造評価グループ」(同15名)の研究体制のもとに行われている。この2つのグループは緊密な連携関係をもち、ナノ構造形成と特性・機能評価が効率的に行われてきた。その研究実施内容について以下に記す。

平成 8 年に開始された本研究は、CREST研究の趣旨と規模から、磁性半導体ナノ構造形成、構造評価、磁気光学特性計測の各研究分野について、基盤となる大型実験装置を重点的に購入し設置した。これらの装置の調整、整備などを経て、「ナノ構造形成グループ」では、磁性半導体ナノ構造の作製を開始した。現在、二次元量子井戸、量子細線、量子ドットを、MBE法と電子線リソグラフィ極微細加工により

作製しており、原子オーダーで制御された種々の磁性半導体ナノ構造が得られている。「ナノ構造評価グループ」では、X線回折、原子間力顕微鏡などによるこれらの磁性半導体ナノ構造の結晶性、形状についての研究、また超高速レーザー分光による電子状態、励起子と磁性イオンの相互作用とそのダイナミクスの研究を行い、新規な巨大磁気光学特性の起因を明らかにしている。さらに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追求し、その応用性について研究している。

1) 磁性半導体二次元量子井戸の作製と磁気光学特性制御

磁性半導体のエピタキシー成長は、本研究プロジェクトにより購入した「MBE装置」を用いて、 $Cd_{1-x}Mn_xTe$ 系、 $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 系と $Zn_{1-x}Mn_xSe$ 系の二次元量子井戸の成長を行っている。磁性半導体量子井戸は、(a)磁性イオンが井戸外の障壁層に含まれるタイプと、(b)井戸内に含まれるタイプの2種類がある。この2種の量子井戸構造は、異なった磁気光学特性をもつことが予測される。MBE法により、(a)タイプの量子井戸系では $CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe$ 、(b)タイプの量子井戸系では、 $Cd_{1-x}Mn_xTe/Cd_{1-y}Mg_yTe$ 、 $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$ および $Cd_{1-x}Mn_xSe/Zn_{1-y}Cd_ySe$ が作製された。井戸幅が10 - 300 Å、磁性イオンの濃度 $x = 0.05 - 0.25$ の単一量子井戸、多重量子井戸、非対称二重量子井戸などが作製できている。2つのタイプ(a, b)の量子井戸において、光励起により作られる励起子が、磁性イオンと交換相互作用を行い、励起子磁気ポーラロンを形成する。この超高速ダイナミクスを詳細に測定し、磁気ポーラロン形成と局在化の過程を明らかにした。またLOフォノンの関与する磁気ポーラロン形成過程も始めて見出された。磁性半導体量子井戸では、ふつうは光で観測されない「暗い励起子」(dark exciton)が、発光過程の遅い減衰成分に寄与しており、磁場により励起子発光寿命が大きく変わることが見出された。これは、外部磁場による発光寿命の制御が行えることを示している。また、非対称2重量子井戸を作製して、磁場のもとでの2つの井戸間の励起子トンネル過程を明らかにした。ここで見出された励起子スピンの超高速光物性は、スピン・トンネル効果などを磁場で制御でき、その機能性に期待ができる。本研究で行った広範な磁性半導体量子井戸の系統的な作製は、新しい物性・機能探索に極めて有効な知見を提供した。

2) 磁性半導体量子細線の作製と磁気光学特性

磁性半導体を用いて、任意の形状のナノ構造を作ることは、本研究の最終的な目標の1つである。このためには、リソグラフィ技術によるナノ構造加工が必要になる。本研究で購入した20 nm線幅の描画の行える電子線リソグラフィ装置を用いて、 $Cd_{1-x}Mn_xSe/Zn_{1-y}Cd_ySe$ 量子井戸に細線描画、加工を行った。その結果、26 nmの線幅の量子細線を作製することに成功した。これは、磁性半導体を用いた量子細線としては、われわれの知る限りで最も細い線である。この量子細

線は、良好な励起子発光を示し、細線の量子閉じ込め効果による高エネルギーシフトが見られる。また、発光は細線の長さ方向に偏光しており、この特性は、電子の1次元運動に由来していると理解され、励起子の大きさに迫る細線の形成が可能になった。磁性半導体量子細線は、量子光アイソレーターなどへの応用に興味もたれる。リソグラフィ法により設計した形状の磁性半導体量子細線の作製が実現できるようになったため、現在は、量子ドットの形成を試みており、さらに複雑なナノ構造の形成を行いつつある。

3) 磁性半導体量子ドットの成長と光学特性

磁性半導体量子ドットは、0次元電子系の中で磁気的な相互作用が働く特徴をもつ。われわれは、従来ガラスの中に磁性半導体微結晶を成長させる方法で、磁性半導体量子ドットを作製してきた。このプロジェクトでは、MBE装置を用いて、自己組織化法によるZnSe上の $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 量子ドットの作製を新たに行った。形成する量子ドットのサイズを精密に制御するためには、成長原子層厚を精密に制御する必要がある。この目的のため、「原子層エピタキシー成長」を採用して、平坦な5分子層を成長させ、その後、基板温度を上昇させて、 $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 量子ドットを自己形成させた。量子ドットの形成は、反射高速電子回折パターンが、ストリークなものからスポット状に変化することにより確認した。さらに、ドットの上部をZnSe層で覆い保護した。作製された自己組織化 $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 量子ドットは、粒径分布の広がりが小さく、また周囲の物質との格子不整合性も少ないために良質の結晶性をもった量子ドットである。

この量子ドットは、励起子の強い発光を2.3 - 2.4 eV付近に示し、直径5 - 10 nmの量子閉じ込め効果を受けている。また外部磁場により、大きなゼーマン効果があり、磁性イオンの影響を受けた励起子発光過程であることが確認できた。発光強度や発光寿命が磁場により大きく変化する興味ある性質を示す。これらの特性の解明が、磁場下の励起子発光の時間分解分光により行われた。その結果、この発光特性は、形成されたドットの形状や、ドット内のMnイオンの分布に関係しており、また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。ドット内のMnイオン密度の制御が、今後の課題である。本研究で、エピタキシー法により、巨大磁気光学効果を示す結晶性のよい磁性半導体量子ドットの形成が実現できた。

4) 磁性半導体ナノ構造における超高速磁気光学現象の解明

磁性半導体ナノ構造の磁場下の超高速電子現象は、その磁気光学的応用性と密接に関連している。この超高速電子現象を解明するために、磁場の下で磁性半導体ナノ構造を波長可変フェムト秒レーザーパルスで励起し、その後起きる励起子発光の時間変化を、ストリークカメラを用いて精密に計測する「超高速時間分

解発光測定システム」を構築した。このシステムにより、磁性半導体の量子井戸、量子細線、量子ドットからの励起子発光の詳細な研究が可能になった。その結果、量子井戸における励起子の磁気ポーラロン形成、量子井戸揺らぎによる励起子局在過程、LOフォノンを伴った磁気ポーラロン形成などの詳細が明らかになった。また、量子ドットでの磁場による励起子発光寿命の増大、量子細線における励起子発光特性についても、時間分解発光分光の結果より、その原因を明らかにすることができた。

発光の時間分解分光よりさらに時間分解能の高い超高速分光として、ポンププロブ過渡吸収分光システムが確立された。これは、200 fsの時間分解能の分光測定ができる。これより、磁性半導体量子井戸における熱い電子正孔の緩和、励起子磁気ポーロンの形成の初期過程、磁性イオンの光による整列などに関するフェムト秒ダイナミクスが新たに解明された。

これまでに0、1、2次元の磁性半導体のナノ構造を原子オーダーで制御して作製することが可能になった。これらのナノ構造について、電子状態の量子閉じ込め効果、巨大磁気光学効果、超高速電子緩和現象について特色ある新しい知見を得ることができ、磁性半導体ナノ構造の磁気光学機能性の創出が行えた。今後、リソグラフィ法を駆使して、量子ドット列、量子ドットと細線の結合などのさらに新しい極微細構造の磁性半導体の創製を行い、「ナノ構造磁性半導体の巨大磁気光学機能」のさらなる開拓を行う。本研究は、電子スピンドバイスや、将来の量子コンピューターの基礎をなすものである。

3 . 主な研究成果の発表（論文発表）

R. Pittini, H. Mitsu, M. Takahashi, J.X. Shen and Y. Oka, Time Resolved Magneto-Optical Experiments in $Cd_{1-x}Mn_xTe/ZnTe$ Multiple Quantum Wells, J. Appl. Phys. 85, 5938-5340 (1999)

M.C. Debnath, I. Souma, E. Shirado, H. Mitsu, T. Sato, J.X. Shen and Y. Oka, Dynamics of Photoexcited Carriers in Molecular Beam Epitaxy Grown Semimagnetic Epilayers in Magnetic Fields, J. Appl. Phys. 85, 5941-5943 (1999)

J.X. Shen, Y. Oka, W. Ossau, F. Fischer, A. Waag and G. Landwehr, Enlarged Paramagnetism by Electron-Electron Exchange Interactions in n-Type Modulation Doped $Cd_{1-x}Mn_xTe/Cd_{1-x-y}Mn_xMg_yTe$ Single Quantum Wells, J. Appl. Phys. 85, 5947-5949 (1999)

F.Y. Tsai, C.P. Lee, J.X. Shen, Y. Oka, and H.H. Cheng, Time-Resolved Photoluminescence Study of InGaAs/GaAs Quantum Wells on (111)B GaAs Substrates, Microelectronics Journal 30, 367-371 (1999)

Y. Oka, J.X. Shen, K. Takabayashi, N. Takahashi, H. Mitsu, I. Souma and R. Pittini,

Dynamics of Excitonic Magnetic Polarons in Nanostructure Diluted Magnetic Semiconductors, *J. Luminescence* 83/84, 83-89 (1999)

J.X. Shen, Y. Oka, H.H. Cheng, F.Y. Tsai, C.P. Lee, Exciton Relaxation in Ga_{1-x}In_xAs/GaAs Self-Organized Quantum Dots, Superlattices and Microstructures 25, 131-136 (1999)

M.C. Debnath, I. Souma, E. Shirado, T. Sato, J.X. Shen, Y. Oka, Excitonic magnetic polaron dynamics of MBE grown CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe, Cd_{1-x}Mn_xTe/Cd_{1-y}Mg_yTe single quantum wells in magnetic fields, *Superlattices and Microstructures* 25, 383-388 (1999)

Y. Oka, H. Okamoto, K. Yanata and M. Takahashi, Nanostructure Semimagnetic Semiconductors (Chapter 10), *Mesoscopic Materials and Clusters* (Kodansha/Springer, Eds. T. Arai et al. 1999) pp101-112

J.X. Shen, R. Pittini, and Y. Oka, Asymmetric Luminescence Line Shape and Exciton Energy Relaxation in Zn_{1-x-y}Mg_xCd_ySe Epilayers, *Appl. Phys. Lett.* 75, 3494-3496 (1999)

Y. Ono, S. Shamoto, K. Sato, T. Kamiya, T. Sato, Y. Oka, Y. Yamaguchi, K. Ohoyama, Y. Morii, T. Kajitani, Short-Range Spin Order and Magnetic Excitations in Diluted Magnetic Semiconductor Zn_{0.568}Mn_{0.432}Te, *J. Phy. Chem. Solids* 60, 1253-1255 (1999)

S. Chu, T. Saisho, K. Fujimura, S. Sakakibara, F. Tanoue, K. Ishino, A. Ishida, H. Harima, Y. Oka, K. Takahiro, Y. Chen, T. Yao, and H. Fujiyasu, Growth and Characterization of Hot-Wall Epitaxial InGaN Films Using Mixed (Ga+In) Source, *J. J. Appl. Phys.* 38, 4973-4979 (1999)

J.X. Shen, R. Pittini, and Y. Oka, Exciton Dynamics in GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs Heterojunctions and GaAs Epilayers, *Phys. Rev. B* 61, 2765-2772 (2000)

R. Pittini, J.X. Shen, Y. Oka, W. Ossau, Kai Shum, Spin Polarization Dependent Optical Transition Rates Observed in the Integer Quantum Hall Region, *Physica E* 6, 205-209 (2000)

R. Pittini, J.X. Shen, and Y. Oka, Transient Behavior of the Excitonic Magnetic Polarons in Cd_{1-x}Mn_xTe Epilayers, *J. Appl. Phys.* 87, 6454-6456 (2000)

J.X. Shen, M.C. Debnath, E. Shirado, I. Souma, T. Sato, R. Pittini, and Y. Oka, Spin-Flip Rate of Excitonic Magnetic Polarons in (Cd, Mn)Te/(Cd, Mg)Te Quantum Wells, *J. Appl. Phys.* 87, 6457-6459 (2000)

N. Takahashi, K. Takabayashi, I. Souma, J.X. Shen, and Y. Oka, Magneto-Luminescence in Quantum Dots and Quantum Wires of Diluted Magnetic Semiconductors, *J. Appl. Phys.* 87, 6469-6471 (2000)

K. Takabayashi, N. Takahashi, I. Yagi, K. Yui, I. Souma, J.X. Shen and Y. Oka, Exciton Luminescence in Quantum Dots and Quantum Wires of Diluted Magnetic

Semiconductors, J. Luminescence 87/89, 347-349 (2000)

S. Permogorov, A. Reznitsky, A. Klochikhin, L. Tenishev, W. von der Osten, H. Vogelsang, H. Stolz, M. Juette, Exciton-Phonon Interaction and Energy Relaxation in ZnSe-Based Low-Dimensional Heterostructures, J. Luminescence 87/89, 435-437 (2000)

M.C. Debnath, J.X. Shen, E. Shirado, I. Souma, T. Sato, R. Pittini and Y. Oka, Temperature and Magnetic Field Effects of Transient Exciton Luminescence in $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}/\text{Cd}_{1-y}\text{Mg}_y\text{Te}$ Quantum Wells, J. Luminescence 87/89, 475-477 (2000)

J.X. Shen, M.C. Debnath, I. Souma, E. Shirado, T. Saito, T. Sato, R. Pittini, Y. Oka, Exciton Energy Relaxation and Exciton Mobility Edge in (CdMg)Te Epilayers Studied by Time-Resolved Photoluminescence, J. Luminescence 87/89, 908-910 (2000)