

ナノ構造希薄磁性半導体の磁気光学特性

多元物質科学研究所 岡 泰夫 (oka@rism.tohoku.ac.jp)

1. はじめに

希薄磁性半導体は、Mn、Fe、Co などの磁性イオンを含む混晶半導体である。CdTe、ZnSe などの II-VI 族半導体をベースとした希薄磁性半導体は、バンド電子と磁性イオンの磁氣的相互作用により大きな磁気光学特性をもつ。[1,2] この素材を用いた光通信用の光アイソレーターが開発されている。

希薄磁性半導体を用いてナノメートル・スケールの構造を作ると、バンド電子に対するナノ構造量子閉じ込め効果と電子と磁性イオンの間の磁氣的相互作用が共に働く系になる。量子構造を様々に作ることで、磁気光学特性を変化させたり、制御したりすることができると考えられる。このようなナノ構造に起因する新しい磁気光学特性、機能性を開拓するために、分子線エピタキシー (MBE) 成長、自己組織化、電子線リソグラフィによる極微細加工により、希薄磁性半導体ナノ構造 (量子ドット、量子細線、二次元量子井戸) を作製した。これらのナノ構造を、原子間力顕微鏡 (AFM)、電子顕微鏡、X 線回折などにより評価し、またその電子状態、磁気光学特性を、超高速レーザー分光により調べ、電子スピン状態に起因するダイナミクスと機能性を研究した。

2. 希薄磁性半導体量子ドット

希薄磁性半導体量子ドットは、0 次元電子閉じ込め効果と共に電子と磁性イオンの間の磁氣的な相互作用が働く系である。[3-5] MBE 装置を用いて、GaAs 基板上に、ZnSe 層を成長させ、その上に 4~9 分子層の $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 層を成長させた。その後基板温度を上昇させると、 $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 層は自己組織化により

ドットの形状に変化する。この様子は、成長膜表面の反射高速電子回折 (RHEED) パターンが、表面の平坦性を示すストリークなものから、凹凸のある場合に現れるスポット状になることにより確認できる。AFM によりこの $Cd_{1-x}Mn_xSe$ ドットの形状が観察できる。量子ドットは、表面に ZnSe 層を成長させて覆い保護した構造とした。

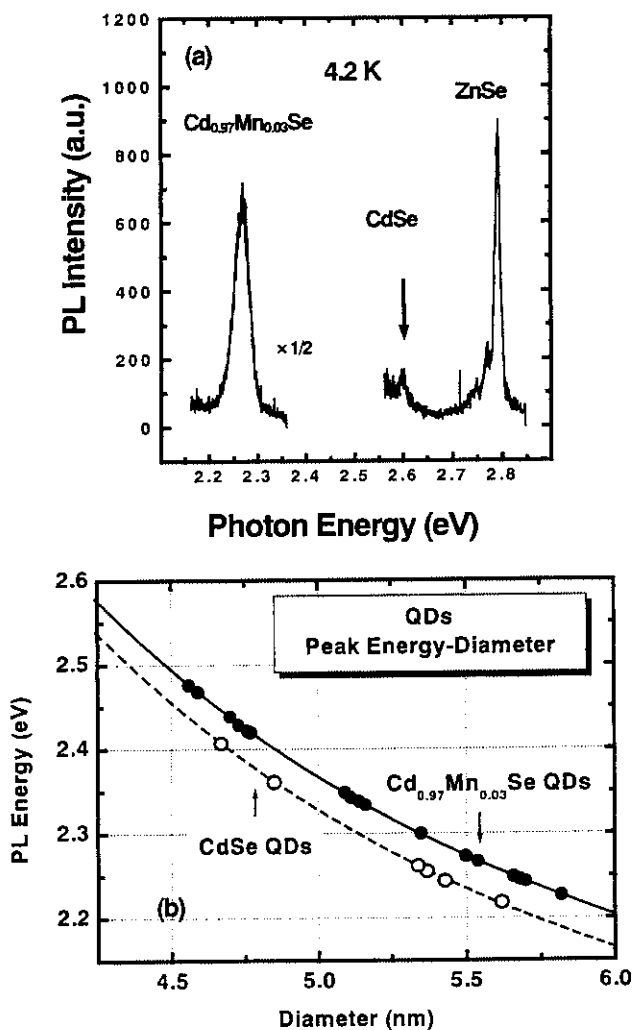


図1. (a) $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 量子ドットの発光スペクトル、(b) 励起子発光ピークエネルギーのドット径依存性。

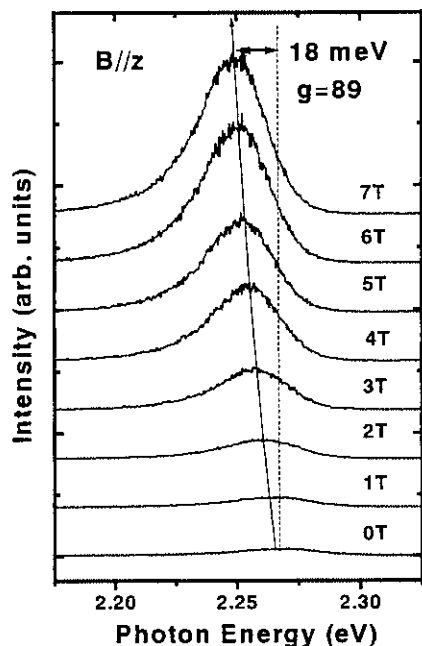


図2. 平均直径5.5 nm の $\text{Cd}_{0.97}\text{Mn}_{0.03}\text{Se}$ 量子ドットの励起子発光スペクトルの磁場依存性。

このように作製した $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子ドットは、励起子の強い発光を示す。図1(a)は、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子ドットの励起子発光 (2.25 eV 付近にピークのある成分) とその高エネルギー側に現れる CdSe の2分子膜濡れ層 (wetting layer) と ZnSe 障壁層の発光スペクトルである。 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子ドットのサイズは、量子ドット内への励起子の量子閉じ込め効果の計算値 (実線) と比較して、直径が4.5~5.8 nm である。磁性イオンの効果を確認するために、Mn を含まない CdSe 量子ドットも作製した。その励起子エネルギーの粒径依存性を、破線で示す。 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子ドットでは、図2に示すように、励起子発光は大きなゼーマンシフト (7Tで18 meVの低エネルギーシフト) が観測される。一方、CdSe 量子ドットでは、ゼーマンシフトは1 meV 以下であった。したがって、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子ドットの大きな磁気光学特性は、ドット内での励起子と磁性イオンの磁氣的相互作用によるものであることが分かる。また発光強度や発光寿命も磁場により大きく変化する。ゼーマン効果から与えられる励起子のg値は89であり、非磁性 CdSe 量子ドットの40倍以上の磁気光学効果を示している。

さらに $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ 量子ドットでは、2.0 eV 付近に Mn イオンの d 電子遷移の発光が観測され、ドット内で励起子から Mn イオンへオーージエ過程によるエネルギー伝達が起きていることが確認される。希薄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、ドット界面の非発光過程および Mn イオンへのエネルギー伝達により強く影響を受けていることが明らかになった。

3. 希薄磁性半導体量子細線

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種類の方法で希薄磁性半導体量子細線の作製を行なった。[6,7] その1つは、2次元量子井戸試料の表面にレジスト膜をつけ、電子線により細線描画を行い、化学エッチングにより量子細線

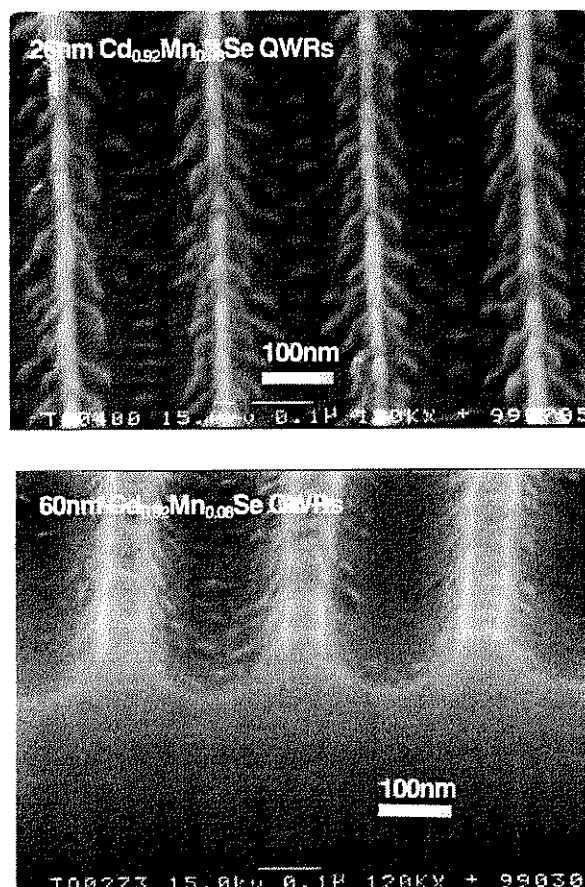


図3. 電子線リソグラフィ法で作られた $\text{Cd}_{0.92}\text{Mn}_{0.08}\text{Se}$ 量子細線。細線幅は、26 nm と 60 nm。

を作製する方法である。第2は、電子線描画したGaAs基板に、GaAsに対する選択エッチング性を用いてメサ構造を作り、このメサ上にMBE法により希薄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、 $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 、 $Zn_{1-x}Cd_xMn_ySe$ などの量子細線を作製した。図3は、細線描画を行い形成させた $Cd_{1-x}Mn_xSe$ 量子細線(26、60 nmの線幅)である。形成できた最小の線幅は20 nmであり、これは希薄磁性半導体を用いた量子細線としては報告されているうちで最も細い線である。これらの量子細線の励起子発光は、図4に示すように、細線の幅が狭まると少し高エネルギーシフトし、量子閉じ込め効果が働いていることが分かる。これらの発光は、細線の長さ方向に直線偏光しており、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。励起子の大きさ(バルク結晶では直径7.4 nm)に迫る量子細線の形成が可能になったため、任意に設計した形状の希薄磁性半導体量子ナノ構造を作るための極微細加工技術の確立をめざしている。

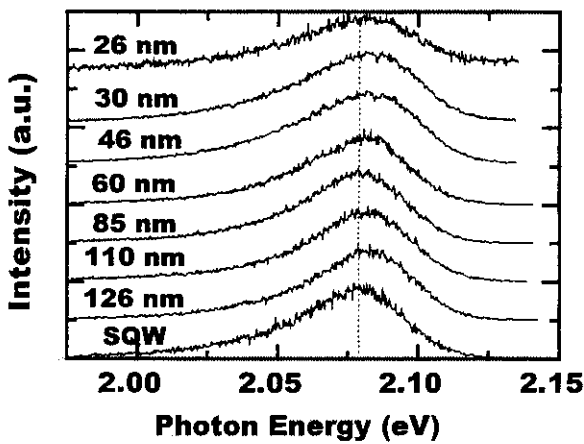


図4. 26–126 nm 幅の $Cd_{0.92}Mn_{0.08}Se$ 量子細線と単一量子井戸(SQW)の発光スペクトル。細線幅が減少すると、発光ピークの高エネルギーシフトが見られる。

4. 希薄磁性半導体量子井戸

MBE法により、図5に示す $CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe/Cd_{1-y}Mg_yTe$ 系の希薄磁性半導体「2重量子井戸」を作製し、「励起子スピン注入」を調べた。[8,9] 図6は、

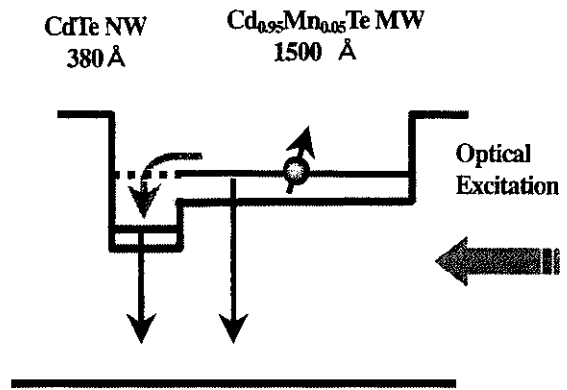


図5. $CdTe$ 非磁性井戸(NW)と $Cd_{0.95}Mn_{0.05}Te$ 磁性井戸(MW)からなる2重量子井戸における励起子スピン注入。光励起によりMWに生成された励起子スピンのNWに注入され発光する。

2重量子井戸における励起子スピン注入の結果である。図6(a)のゼロ磁場の場合は、 $Cd_{1-x}Mn_xTe$ 磁性井戸(MW)および $CdTe$ 非磁性井戸(NW)ともに左右円偏光(σ^+ , σ^-)スペクトルに差がなく、円偏光度がゼロ

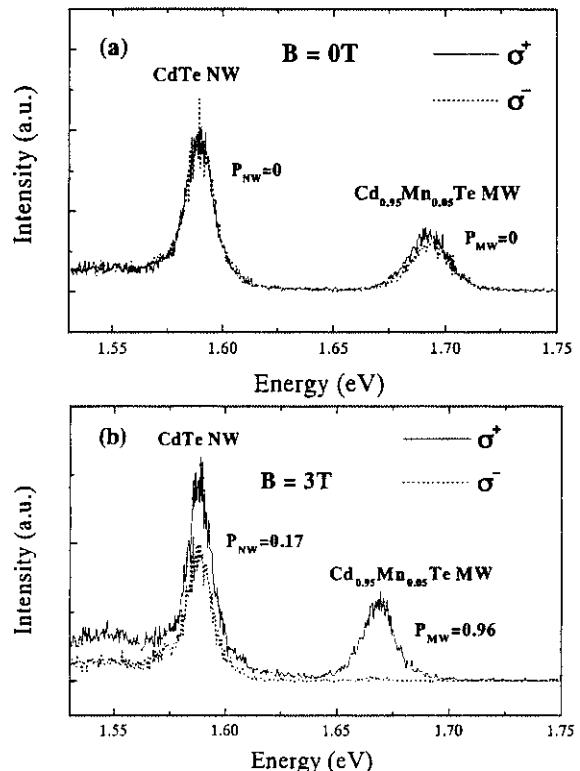


図6. $CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe$ 系2重量子井戸におけるゼロ磁場(a)と3 T(b)における円偏光励起子発光スペクトル。(b)においては、励起子スピンのMWからNWに注入されている。

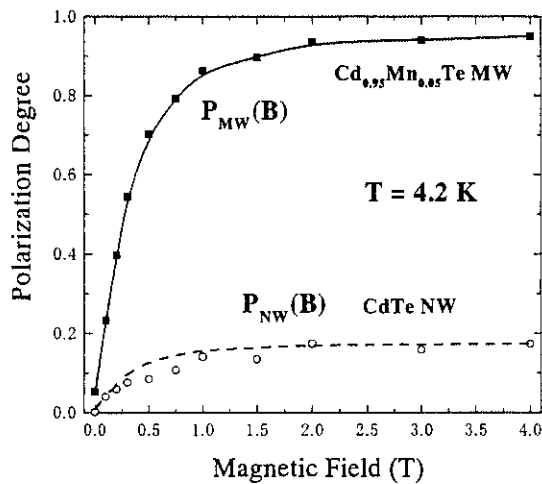


図7. $\text{Cd}_{0.95}\text{Mn}_{0.05}\text{Te}$ MW と CdTe NW における励起子発光の円偏光度の磁場依存性。黒丸と白丸は、MW と NW において観測された円偏光度。実線は、円偏光度 $P_{\text{MW}}(\text{B})$ の計算結果である。破線は、NW における円偏光度を、 $P_{\text{NW}}(\text{B}) = 0.18 \times P_{\text{MW}}(\text{B})$ と表したもので、MW からの 18% 程度の励起子スピン注入があることを示している。

口 ($P_{\text{NW}}, P_{\text{MW}} = 0$) である。これに対して、3 T の磁場ののもとでは、図 6 (b) に示すように、 $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 磁性量子井戸では、 $P_{\text{MW}} = 0.96$ の高い偏光度を示し、大きなゼーマン分裂を反映したスピン分極励起子の発光が観測される。これに伴って CdTe 非磁性量子井戸でも、17% のスピン分極を保った励起子発光成分があることが観測される。

図 7 は、磁性井戸、非磁性井戸における励起子発光の円偏光度の磁場依存性である。ブリルアン関数で表される $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 磁性井戸の $P_{\text{MW}}(\text{B})$ の磁場依存性に対して、 CdTe 非磁性井戸においても、18% の割合で P_{MW} に比例する円偏光成分 $P_{\text{NW}}(\text{B})$ が見られる。これより、電子・正孔のスピンが、磁性井戸から非磁性井戸に輸送され、注入されていることが分かる。

5. まとめ

希薄磁性半導体ナノ構造として、量子ドット、量子細線、量子井戸を、自己組織化法、電子線リソグラフィ極微細加工および MBE 法を用いて作製した。これらのナノ構造中での電子、励起子のダイナ

ミクスを測定し、ナノ構造に起因する磁気光学特性、励起子スピン注入に関する新たな結果を得た。

作製技術を発展させて、量子ドット、量子細線、量子井戸などを組み合わせた任意の形状の希薄磁性半導体量子ナノ構造を作ることが、今後の目標である。希薄磁性半導体ナノ構造での励起子スピンドイナミクス、スピン注入などは、「半導体スピエレクトロニクス」への応用に関連している。この分野では、半導体の電子スピンを用いた「量子コンピューティング」など、将来の新技术開発に関する議論が盛んに行われている。また、「希薄磁性半導体ナノ構造の創製」は、「ナノテクノロジー」として次世代科学技術開発の 1 分野と位置づけられる。これらの研究には、さらに希薄磁性半導体ナノ構造結晶成長技術や、電気伝導性を制御する不純物ドーピング技術を向上させることが不可欠である。また得られる知見より、希薄磁性半導体ナノ構造の巨大磁気光学機能を活かした新しい量子デバイスの研究を進める。

本研究は、科学技術振興事業団 CREST 研究プロジェクトの援助を受けて行なわれている。

参考文献

1. J.K. Furdyna and J. Kossut, *Semiconductors and Semimetals Vol. 25, "Diluted Magnetic Semiconductors"*, Academic Press (New York, 1988).
2. Y. Oka, *Phys. Stat. Sol. (b)* **202**, 795 (1997).
3. Y. Oka, J.X. Shen, K. Takabayashi, N. Takahashi, H. Mitsu, I. Souma and R. Pittini, *J. Luminescence* **83/84**, 83 (1999).
4. K. Yanata, K. Suzuki and Y. Oka, *J. Appl. Phys.* **73**, 4596 (1993).
5. K. Takabayashi, N. Takahashi, I. Yagi, K. Yui, I. Souma, J.X. Shen and Y. Oka, *J. Luminescence* **87/89**, 347 (2000).
6. N. Takahashi, K. Takabayashi, I. Souma, J.X. Shen, and Y. Oka, *J. Appl. Phys.* **87**, 6469 (2000).
7. N. Takahashi, K. Takabayashi, E. Shirado, I. Souma, J.X. Shen and Y. Oka, *J. Crystal Growth* **214/215**, 183 (2000).
8. M. Ostreich, J. Huebner, D. Hagele, P.J. Klar, W. Heimbrodt, W.W. Ruehle, D.E. Ashenford and B. Lunn, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1251 (1999).
9. K. Kayanuma, E. Shirado, M.C. Debnath, I. Souma, and Y. Oka, *J. Appl. Phys.* (2001) and *Physica E* (2001) in print.