

平成 22 年 5 月 14 日現在

研究種目：基盤研究(B)  
研究期間：2007～2009  
課題番号：19360001  
研究課題名（和文） 磁性ハイブリッド半導体量子ドットの創製と光スピン機能性開拓  
研究課題名（英文） Fabrication of magnetic hybrid structures of semiconductor quantum dots and the spin-functional optical properties  
研究代表者  
村山 明宏 (MURAYAMA AKIHIRO)  
北海道大学・大学院情報科学研究科・教授  
研究者番号：00333906

研究成果の概要（和文）： 顕著な磁氣的性質を示す半導体（希薄磁性半導体）と通常非磁性半導体の量子ドットを結合させた新規な磁性ハイブリッド半導体量子ドットを作製した。磁性半導体において電子スピン（特定のスピン状態を持つ電子）を光により生成し、その電子スピンを量子力学的なトンネル効果により非磁性量子ドットへと輸送・注入するとともに、量子ドットにおいてスピン状態の過渡的な保存を行った後、再び光によりスピン情報を取り出すための基礎的な研究を実施した。

研究成果の概要（英文）： Magnetic hybrid structures of semiconductor quantum dots (QDs) with diluted magnetic semiconductors (DMSs), indicating giant magneto-optical properties, were fabricated. Spin-polarized electrons were optically generated in the DMS and were subsequently transferred into non-magnetic QDs via quantum tunneling (spin injection). The spin states of the electrons were temporally conserved in the QDs and were also read-out by circularly polarized photoluminescence.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
2008年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2009年度	2,600,000	780,000	3,380,000
年度			
年度			
総計	11,600,000	3,480,000	15,080,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学、工学基礎・応用物性、結晶工学

キーワード：スピントロニクス、半導体物性、光物性、ナノ材料、スピンドYNAMICS

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 学術的に見て半導体と磁性体は大きな研究分野を形成するが、その境界領域は研究の端緒が開かれたところであった。本研究代表者は、両材料にまたがりナノ構造における電子スピンドYNAMICSの研究を行ってきており、この新しい領域に対して分光学的研究

が非常に有効であると考えていた。特に、磁性イオンを含む半導体材料であり顕著な磁氣的性質を示す希薄磁性半導体と結合した半導体ナノ構造を創製し、その光スピン特性を研究することにより得られる新しい知見、例えば、励起子を介した光と多数の磁性スピン間の多体的交換相互作用やスピンのナノ

スケール相関、量子効果の関わり合いとスピン偏極キャリアの波動関数の制御などは、固体物理学や物質科学においてインパクトを与えるものと考えられた。

(2) 希薄磁性半導体の研究は、新材料の開発やスピントランジスタを始めとする各種のスピン機能性素子の提案などを含めて内外で非常に盛んであり、国内では III-V 族である GaMnAs を用いて、主として電気伝導特性と磁気抵抗効果について進められていた。また海外では、II-VI 族半導体を含めた広範囲な研究がなされていた。

これらの動向に対して本研究代表者は、II-VI 族を用いた希薄磁性半導体の量子ドットなどの特色あるナノ構造の作製を他の研究グループに先駆けて進めてきた。例えば、ZnCdSe/MnSe 磁性デルタドープ量子井戸の作製と界面スピン構造の解明、ZnCdMnSe 量子井戸と強磁性金属 Co のハイブリッドナノ構造の作製と Co 局所磁束による巨大磁気光学効果の観測、磁性半導体量子井戸から非磁性量子井戸へのスピン注入ダイナミクスの研究とトンネル効果によるその制御、電子ビームリソグラフィによる磁性・非磁性半導体トンネル結合型二重量子ドットの作製とナノ構造における初めてのスピン注入の観測等を世界に先駆けて実現してきた。

このような背景を踏まえて、光学特性の優れた II-VI 族希薄磁性半導体を用いて各種量子ナノ構造を速やかに作製し、その基本特性や光物性を明らかにしつつその新しい光機能性を開拓していくことは非常に重要であると考えられた。

## 2. 研究の目的

(1) 希薄磁性半導体と非磁性半導体を用いた磁性ハイブリッド半導体量子ドットを創製する。ここで、量子ドットにおいては、電子のスピン緩和が抑制されそのスピン状態が比較的長く保たれるという重要な特長がある。また、半導体量子ドットは高効率の発光素子やレーザーなどへの応用がなされている優れた光学素子材料でもある。そこでこのような特長を生かし、磁性ハイブリッド量子ドットにおいて、磁性半導体に電子スピンを光生成し、スピン依存トンネルや共鳴スピントンネルにより非磁性ドットへと電子スピンを注入する。その後、スピン緩和の制御、スピンの空間的分離や結合などの量子力学的操作を行い、再び円偏光情報として取り出すための基礎的な研究を行うこととした。

(2) 具体的には、希薄磁性半導体を用いた各種の磁性ハイブリッド量子ナノ構造を作製し、以下のような光スピン機能性半導体ナノ構造素子のプロトタイプを実際に作製しそ

の機能性を実証していく； ナノ構造における光励起電子スピンの偏極、ナノ構造における高効率スピン輸送・注入、スピンの空間的分離（スピフィルター）等。

## 3. 研究の方法

(1) 本研究においては、本研究代表者のこれまでの研究成果である、希薄磁性半導体ナノ構造における磁場による可逆的かつ高精度の電子スピン制御手法を利用して、以下に述べるような新しい磁性ハイブリッド量子ドットを創製し、光と電子スピンの量子情報変換機能性を実現していく。

(2) 磁性半導体を用いた結合型量子ドットの創製；分子線エピタキシーを用いて作製した ZnMnSe 系希薄磁性半導体量子井戸を用いたトンネル結合型二重量子井戸などの磁性半導体結合量子井戸など、それまで取り組んできた基礎技術をもとにして、磁場により電子・正孔スピンを空間的に分離・結合させるスピフィルター素子、さらにスピン偏極キャリア波動関数を磁場により同調・結合させ空間的に離れたスピン情報を量子力学的に伝達するような機能性を持つ量子井戸構造などを新たに設計・創製する。

次に、分子線エピタキシーにより単層の CdSe 自己組織化量子ドット層や CdMnSe 系の磁性半導体の自己組織化量子ドットの作製を行う。

そして最終的に、これらの磁性半導体量子井戸と自己組織化量子ドット層との結合型量子構造、トンネル結合型磁性・非磁性二重量子ドット層などの新しい磁性結合型量子ドット構造の作製を行っていく。

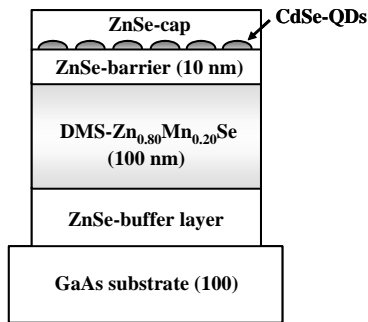
さらに、電子ビームリソグラフィにより、磁性半導体量子井戸を用いた直径 20 nm までのドット構造を作製する。これにより、分子線エピタキシーにより作製した上述の各種結合量子井戸構造を直ちに結合量子ドット構造へと展開する。

(3) 磁性ハイブリッド半導体量子ナノ構造における光スピンダイナミクスの計測；上述した各種の磁性ハイブリッド半導体量子ナノ構造の時間分解磁気光学分光を行い、その光・電子スピン変換機能性の研究を推進する。

具体的には、磁場印加が可能な円偏光時間分解ピコ秒発光分光システムとフェムト秒ポンププローブ過渡吸収分光システムにより、磁性半導体結合型量子ナノ構造の基本的な磁気光学特性と電子スピンダイナミクスを研究していく。また、磁場印加が可能な円偏光顕微発光分光システムと、電子ビームリソグラフィによるメサ加工を組み合わせることにより、単一量子ドットの発光スペクトル測定とスピン状態の計測を行っていく。

#### 4. 研究成果

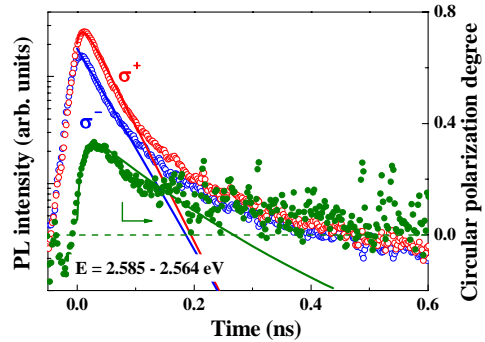
(1) 分子線エピタキシーにより、ZnMnSe 系希薄磁性半導体薄膜や量子井戸と CdSe 半導体自己組織化量子ドットからなる結合型ハイブリッドナノ構造を作製した。特に、ZnMnSe 磁性半導体に光生成した励起子スピンを CdSe 自己組織化量子ドットに注入・輸送するため、良好なエピタキシャル成長を示す ZnSe バリア層を間に挿入した ZnMnSe 磁性半導体結合エピタキシャル CdSe 量子ドットの作製を行った。このようにして作製した磁性ハイブリッド量子ドットの構造模式図を下図に示す。



また、電子ビームリソグラフィーにより、ZnCdMnSe 系希薄磁性半導体量子井戸を用いた直径 20 nm 程度までの磁性半導体ドット構造を作製した。

次に、このようにして作製した磁性ハイブリッド半導体量子ドットやナノ構造における光スピンドイナミクスを調べるため、円偏光を用いた磁場中ピコ秒発光分光測定を行った。また、磁場中顕微発光分光システムと、電子ビームリソグラフィーによる試料のメサ形状微細加工を組み合わせ、磁場中での単一量子ドットの発光測定を行った。

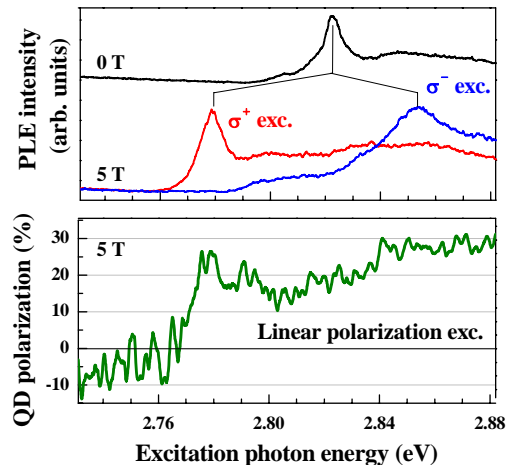
これにより、ZnMnSe を結合した半導体自己組織化 CdSe 量子ドットにおいて、量子ドットへの励起子スピン注入ダイナミクスの実時間計測を行うことに成功した。そして、磁性半導体に光生成した励起子スピンを 20 ps という非常に速い時定数により量子ドットへと注入することに成功した。実際に観測された量子ドットからの時間分解円偏光発光測定結果を下図に示す。時定数 20 ps で立ち上がる正の円偏光度 (Circular polarization degree) の時間応答が、本来弱い負の円偏光度を示す非磁性半導体 CdSe 量子ドットに対する磁性半導体 ZnMnSe (ほぼ 100% の電子スピン偏極を反映した 1 に近い円偏光度を示す) からの超高速スピン注入現象を示している。ここで円偏光度は、電子スピンの偏りを反映した  $\sigma^+$  および  $\sigma^-$  円偏光発光強度  $I$  より、 $[I(\sigma^+) - I(\sigma^-)] / [I(\sigma^+) + I(\sigma^-)]$  と定義される。



以上の研究成果は、本研究の目的である、希薄磁性半導体と非磁性半導体量子ドットからなるトンネル結合型量子ドット (磁性ハイブリッド半導体量子ドット) の創製と、磁性半導体において光生成した電子スピンの非磁性ドットへの超高速輸送・注入操作の実証である。

(2) 上述した各種磁性ハイブリッド半導体量子ナノ構造に対して、光・電子スピン変換機能性の研究を行った。

まず、希薄磁性半導体と CdSe 自己組織化量子ドットの結合構造に対する円偏光を用いた磁場中ピコ秒時間分解発光分光により、量子ドットへのスピン注入ダイナミクスの実時間計測を行い、得られた発光の減衰特性と円偏光特性の時間変化をもとに、注入後のドット内スピン緩和時定数を取り込んだレート方程式解析を行った。さらに、注入時のスピン損失を定量化するため、円偏光を用いた磁場中励起発光 (PLE) 分光を行った。測定結果例を下図に示す。上側の PLE 信号強度は、量子ドットからの発光強度でモニターした励起光エネルギーの効果で、信号強度のピークエネルギーは量子ドットと結合している磁性半導体中のスピン偏極エネルギー準位に対応している。



さらに下側の図は、このようにして測定された PLE 信号の円偏光特性をその円偏光度で示している。この円偏光度の値から、スピン注入される電子の注入時におけるスピン損失量、すなわちスピン緩和を定量的に求めることができた。このスピン注入時のスピン緩和の定量化により、量子ドットに対する高効率のスピン注入を実現するための重要な指針が与えられた。

これらの結果、スピン注入時にスピン損失が生じていること、スピン注入において時定数が数十 ps の超高速の注入過程と、数百 ps 以上の比較的遅い注入過程が存在することを明らかにした。さらに、注入時のスピンの保存状態や注入時間のトンネルバリア依存性を明らかにした。

(3) このような磁性ハイブリッド半導体量子ドットを素子化することにより、光スピン機能性を持つ新しい能動型光学素子の研究開発が可能になる。円偏光特性は、将来の量子情報通信や量子コンピューティングシステムにおける基本的な光の属性として重要であるばかりでなく、新しい画像情報処理（例えば衛星画像、生体分子カイラリティー、天体観測等）にも応用できる可能性がある。

なお本申請で提案する磁性ハイブリッド半導体量子ドット作製技術や光による電子スピン制御に関して得られる知見は、GaMnAs 系や今後期待される新しい磁性半導体材料など、スピントロニクス素子の研究開発における基本技術を提供するため、電気伝導に関する III-V 族磁性半導体研究とは相補的である。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 26 件)

① Transfer dynamics of spin-polarized excitons into semiconductor quantum dots, A. Murayama, T. Furuta他 7 名, *Journal of Luminescence*, 査読有, **129**, 2009, 1927-1930.

② Micro-photoluminescence study of electron-spin injection in self-assembled semiconductor quantum dots, K. Hyomi, M. Sakuma, and A. Murayama, *Journal of Luminescence* 査読有, **129**, 2009, 1715-1717.

③ Efficiency of optical spin injection and spin loss from a diluted magnetic semiconductor ZnMnSe to CdSe nonmagnetic quantum dots, D. Dagnelund, I. A. Buyanova, W. M. Chen, A. Murayama, T. Furuta他 3 名, *Physical Review B*, 査読有, **77**, 2008,

035437.

④ Exciton broadening and spin dynamics in III-V/II-VI:Mn heterovalent double quantum wells, A. A. Toropov, A. Murayama (7 番目) 他 8 名, *Physical Review B*, 査読有, **77**, 2008, 235310.

⑤ Dominant factors limiting efficiency of spin detection in ZnO-based materials, W. M. Chen, I. A. Buyanova, A. Murayama 他 5 名 *Applied Physics Letters*, 査読有, **92**, 2008, 092103.

⑥ Dynamics of exciton-spin injection, transfer, and relaxation in self-assembled quantum dots of CdSe coupled with a diluted magnetic semiconductor layer of  $Zn_{0.80}Mn_{0.20}Se$ , A. Murayama, T. Furuta他 6 名, *Physical Review B*, 査読有, **75**, 2007, 195308.

⑦ Direct observation of relaxation dynamics of spin-polarized electrons excited at a higher-energy spin-split subband in a diluted magnetic semiconductor quantum well, K. Saito, J. H. Park, I. Souma, Y. Oka, A. Murayama, *Applied Physics Letters*, 査読有, **90**, 2007, 262111.

⑧ Spin injection in self-assembled quantum dots coupled with a diluted magnetic quantum well, A. Murayama, T. Asahina他 5 名 *Journal of Luminescence*, 査読有, **122-123**, 2007, 800-803.

⑨ Dynamical spin separation in a double quantum well of diluted magnetic semiconductor due to spin-dependent type-II band alignment, T. Koyama, K. Kayanuma, I. Souma, A. Murayama, Y. Oka, *Journal of Luminescence*, 査読有, **122-123**, 2007, 831-833.

⑩ Magneto-photoluminescence from single quantum structures of diluted magnetic semiconductor fabricated by e-beam lithography, A. Murayama, H. Hirano他 4 名, *Journal of Luminescence*, 査読有, **122-123**, 2007, 834-837.

[学会発表] (計 38 件)

① 村山明宏, 希薄磁性半導体から量子ドットへのスピン注入ダイナミクス, 日本物理学会第 64 回年次大会シンポジウム, 2009 年 3 月 29 日, 東京.

② A. Murayama, Magnetic semiconductor nanostructures; toward spin manipulation in semiconductor quantum structures, International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures, July 27-28 (2009), Sapporo, Japan.

③ 田村宣裕, 山崎達誌郎, 菅原広剛, 村山明宏, 半導体自己組織化量子ドットにおける高効率スピン注入, 2009年9月9日, 第70回応用物理学学会学術講演会, 富山.

④ A. Murayama, T. Furuta他7名, Transfer dynamics of spin-polarized excitons into semiconductor quantum dots, The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter, July 7-11, 2008, Lyon, France.

⑤ S. Oshino, A. Murayama (4番目) 他5名, Transient magneto- photoluminescence in self-assembled quantum dots of a diluted magnetic semiconductor, The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter, July 7-11, 2008, Lyon, France.

⑥ K. Hyomi, M. Sakuma, A. Murayama, Micro-photoluminescence study of electron-spin injection in self-assembled semiconductor quantum dots, The 15th International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter, July 7-11, 2008, Lyon, France.

⑦ A. Murayama, T. Furuta他7名, Propagation dynamics of exciton spins in a high-density semiconductor quantum dot system,

The 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, June 22-27, 2008, Kyoto, JAPAN.

⑧ A. Murayama, K. Saito and I. Souma, Cooling and spin-relaxation dynamics of spin-polarized excitons in a diluted magnetic semiconductor quantum well, The 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, June 22-27, 2008, Kyoto, JAPAN.

⑨ 押野成人, 村山明宏他5名, 希薄磁性半導体 ZnMnSe と CdSe 量子ドットの結合構造における励起子と Mn イオンのスピン特性, 日本物理学学会第63回年次大会、2008年3月24日, 東大阪.

⑩ 村山明宏他7名, 半導体自己組織化量子ドットにおけるドット間スピントランスファーダイナミクス, 第55回応用物理学関係連合講演会, 2008年3月28日, 船橋.

⑪ 村山明宏他6名, 希薄磁性半導体から半導

体量子ドットへのスピン注入メカニズム, 2008年日本物理学学会秋季大会, 2008年9月21日, 盛岡.

⑫ 村山明宏他7名, 半導体自己組織化量子ドットへのスピン注入におけるスピン損失, 2008年度秋季応用物理学学会学術講演会, 2008年9月2-5日, 春日井.

⑬ T. Furuta, A. Murayama (4番目) 他6名, Spin-injection Dynamics and Effects of Spin Relaxation in Self-assembled Quantum Dots of CdSe,

The 13th International Conference on II-VI Compounds, September 10-14, 2007, Jeju, Korea.

⑭ 古田稔明, 氷見恭子, 相馬出, 村山明宏, 磁性半導体と結合した自己組織化量子ドットにおけるスピンダイナミクス, 日本物理学学会第62回年次大会, 2007年3月19日, 鹿児島.

⑮ 押野成人, 古田稔明, A. A. Toropov, 村山明宏, Type-II バンド構造を持つ Cd(Te, Se)/ZnSe 自己組織化量子ドットにおける励起子スピン緩和, 日本物理学学会秋季大会, 2007年9月22日, 札幌.

⑯ 古田稔明, 押野成人, 相馬出, 村山明宏, D. Dagnelund, I. A. Buyanova, W. M. Chen, 半導体量子ドットにおけるスピン注入ダイナミクス: スピン損失メカニズム, 日本物理学学会秋季大会, 2007年9月24日, 札幌.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

村山 明宏 (MURAYAMA AKIHIRO)

北海道大学・大学院情報科学研究科・教授  
研究者番号: 00333906