

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540315

研究課題名(和文)低温強磁場下での時間分解顕微鏡一回転計測による光誘起スピン偏極電子輸送の研究

研究課題名(英文) Study of photo-induced electron spin transfer with time-resolved micro Kerr rotation measurement under low temperature and high magnetic field

研究代表者

三野 弘文 (Mino, Hirofumi)

千葉大学・普遍教育センター・准教授

研究者番号：40323430

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：光誘起スピン偏極電子の時空間応答を捉える顕微鏡ポンプ・プローブKerr回転計測システムを構築した。空間分解能 $1\mu\text{m}$ 、走査領域 $100\mu\text{m}$ 四方、数 $\mu\text{W}$ の光弱励起下での超高感度スピン計測を実現した。光電流計測も可能とした。ZnSe/BeTe量子井戸では、光誘起スピンの異方的拡散の要因にドレッセルハウス効果以外の効果も加える必要があることを明らかにした。CdMnTe量子井戸では温度上昇でCdTeの励起子スピンに対するMnスピン偏極の影響が抑制され、有効 $g$ 因子がゼロとなり、スピン緩和時間が急増することを見出した。(BEDT-TTF)(TCNQ)結晶では反強磁性転移で光電流の急激な減少を捉えた。

研究成果の概要(英文)：To observe the spatial and temporal behavior of photo-created electron spins, we developed pump-probe micro-Kerr rotation measurement system, which has  $1\mu\text{m}$  spatial resolution,  $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$  scanning region, high sensitivity spin detection under several  $\mu\text{W}$  laser excitation. Photocurrent measurements were also made possible in this system. In ZnSe/BeTe quantum wells, not only the Dresselhaus effect but also another effect is found to be necessary to explain the anisotropic spin propagation. In CdMnTe quantum wells the suppression of the photo-induced exciton spin precession, which means the effective  $g$ -factor is zero, was observed at critical temperature. This result was well explained by the competition between the exciton Zeeman effect and exciton-Mn exchange interaction. The spin lifetime indicated intensive increase above the critical temperature. In (BEDT-TTF)(TCNQ) crystals the suppression of photogenerated carrier conduction was observed below the antiferromagnetic transition.

研究分野：半導体光物性

キーワード：光誘起スピン偏極 スピンイメージング 半導体量子井戸 スピン緩和 光電流

### 1. 研究開始当初の背景

半導体二次元電子ガスにおけるスピン偏極キャリア輸送の研究は次世代のスピントロニクスデバイスであるスピントランジスタの開発への期待から、非常に注目を集めている。スピン偏極キャリアの輸送の制御には、スピン軌道相互作用の定量的な理解と、物質パラメータ(種類・量子構造)や、外場(電場・磁場)による制御性の定量評価が必要である。このような背景から、光誘起スピン偏極電子の輸送現象を高精度、高空間分解能をもって捉える計測技術の確立は、電荷とスピンの空間操作を目指した応用研究において極めて重要な位置づけにある。

近年、申請者は、半導体タイプII量子井戸構造において、光照射のみで二次元電子ガスを生成し[ ], その偏光を制御することで長寿命のスピン偏極電子を生成できることを明らかにした[ ]。また、室温における顕微円二色性計測から、光照射で生成されたスピン偏極電子の拡散とスピン歳差運動の磁気異方性を観測し、その要因としてスピン軌道相互作用であるドレッセルハウス効果の可能性を示した[ ]。この結果を発展させて、顕微スピンイメージング計測によってスピン軌道相互作用を歳差運動の磁気異方性から定量的に評価するためには、スピン緩和時間が増大する極低温、強磁場下でスピン輸送を調べることが必要であった。また、物質パラメータの異なるGaAs, CdMnTe量子井戸の二次元電子系、その他、有機半導体といった系でもスピン輸送や光誘起された電子の電荷の輸送特性を調べることは光によるスピンや電荷の空間操作の可能性を広げるものとして重要であると考えた。

### 2. 研究の目的

ZnSe/BeTeタイプII量子井戸における光生成二次元電子のスピン空間輸送を室温・弱磁場下で調べたところ、異方的なスピン伝播を観測した。この異方性は結晶軸と磁場方向に依存し、電子拡散とスピン軌道相互作用に基づく有効磁場を反映していると考えられる。本研究では、この現象の顕在化が予測される、低温・強磁場下で時間分解・顕微カー回転測定を行うことにより、ラシュバ効果、ドレッセルハウス効果がスピン輸送に及ぼす効果を明らかにする。更に対象をGaAs, CdMnTe量子井戸の二次元電子系に広げて比較検討し、量子ホール状態やスカームイオンの形成の有無、局在磁性Mnの存在が電子スピン輸送に及ぼす影響についても調査することとした。また、光誘起スピン偏極に加えて、光生成キャリアの輸送特性についても調べることが目的とした。

### 3. 研究の方法

光誘起電子のスピン輸送を高感度・高空間分解能で捉えるには顕微・時間分解Kerr回転測定システムの構築が必要である。このシステムを完成させ、ZnSe/BeTeタイプ量子井戸の光生成二次元電子ガスのスピン輸送計測を行い、4.2K~室温における温度領域で、必要な性能(空間分解能1 $\mu$ m、面内走査領域100 $\mu$ m四方)を満たし、スピン計測が可能であることを実証することとした。システムの構築において、作動距離の短い顕微レンズを用いたカー回転計測を低温で可能とする顕微鏡用連続流式クライオスタットを導入した。磁場印加に関しては、サンプルホルダー内にネオジウム磁石を設置することで、ファラデー配置であれば最大で0.5テスラ、フォイクト配置であれば0.2テスラの磁場の印加を可能とした。顕微光学系で問題となる、集光による

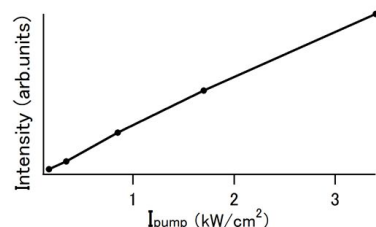
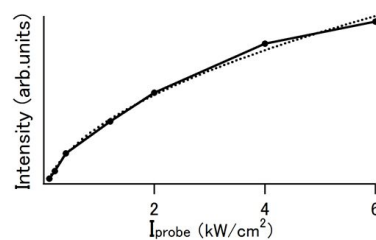
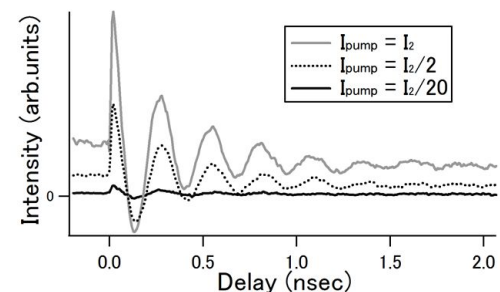
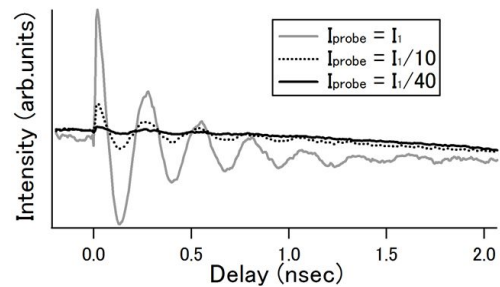


図1 プローブ及びポンプ光強度を変化させた時の時間分解カー回転信号とプローブ光、ポンプ光強度に対するカー信号の強度変化

励起密度の増大を低減し、更にポンプ・プローブ光の同一波長での励起（共鳴励起）を可能とするため、A0変調器を使用したヘテロダイン検波による周波数分離手法も導入し、数  $\mu\text{W}$  の光弱励起下での超高感度スピン計測を実現させた。図1はそれぞれポンプ光、プローブ光の強度を変化させた場合のカー回転信号の強度変化を捉えたものである。信号はプローブ光の入射強度のルートに比例して増加し、ポンプ光の入射強度に対しては線形に増加している。前者はプローブ光の電場の大きさに依存し、後者はスピン偏極電子数に依存するとして説明でき、ポンプ・プローブの入射強度を数  $\mu\text{W}$ （スポットサイズ  $1\mu\text{m}$  にて  $0.5\text{kW}/\text{cm}^2$  程度）まで下げてもカー回転信号を検出することができることを示した。本システムではポンプ光とプローブ光の試料表面上でのスポット位置を操作することで空間分解計測を可能とするが、光照射で生じる光電流を計測することで更に電荷の空間応答も捉えることができるので、それを可能とする改良も行った。

光誘起スピンや電荷の時空間応答の観測を可能とする上記のシステムを用いて、ZnSe/BeTeタイプ量子井戸のみでなく、GaAs量子井戸や、希薄磁性半導体CdMnTe量子井戸、さらには有機結晶を対象とした測定を行う事とした。

#### 4. 研究成果

光誘起スピン偏極電子の時間・空間応答を捉える顕微鏡・ポンプ・プローブ・カー回転測定システムを構築した。温度領域4.2K~室温、空間分解能  $1\mu\text{m}$ 、走査領域  $100\mu\text{m}$  四方、数  $\mu\text{W}$  の光弱励起下での超高感度スピン計測を実現した。また、上記のシステムを発展させ、光励起スポットを試料表面上で操作しながら、光電流の計測を行う光電流マッピングも可能とした。

ZnSe/BeTeタイプ量子井戸では、液体ヘリウム温度においても、図2に示すように光誘起スピンの異方的拡散を捉えることに成功した。図3は結晶方位依存性であるが、定性的には異方性がスピン軌道相互作用であるドレッセルハウス効果であることを示したが、スピン歳差運動の周期や、強度分布等の定量的な解析

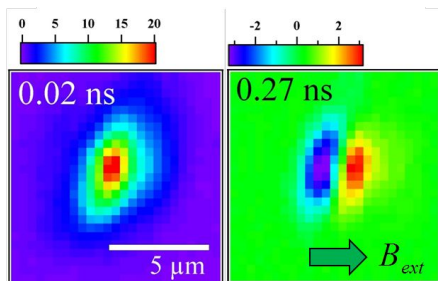


図2 温度4.2Kにおけるスピン偏極の二次元マップの時間変化

#### 結晶方位依存性

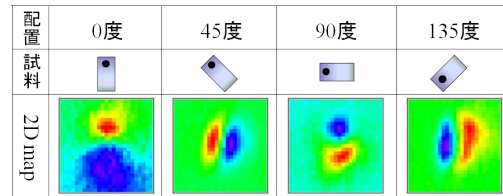


図3 スピン偏極の二次元マップの結晶方位依存性。結晶方位に依存したスピンの異方拡散を示す。

を行ったところ、ドレッセルハウス効果以外に、別の効果を加えて考える必要があることを明らかにした。

GaAs量子井戸、希薄磁性半導体CdTe/CdMnTe量子井戸を対象としたスピンダイナミクスの計測を行ったが、スピン緩和時間がZnSe/BeTeタイプ量子井戸と比べて短く、スピンの拡散や、それらの系特有の量子ホール状態、スカームオンや磁気ポラロンの空間応答振る舞いをカー回転信号として明確に示すには至らなかった。しかし、後者のCdTe/CdMnTe量子井戸におけるスピンダイナミクスの測定では図4に示すように、20Kで励起スピンの歳差運動の振動数が極小値（有効g因子がゼロ）を取る結果が得られた。この結果はCdTeの電子スピン（g因子の値が負）に対するMnのスピン偏極の影響（g因子の値が正）が温度上昇によって抑制され、20Kで丁度キャンセルするとして定量的にも説明することができた。更に、この臨界温度を超えた高温領域でスピン緩和時間が急激に増大することも明らかにした。

研究対象を有機モット絶縁体  $\beta'$ -(BEDT-TTF)(TCNQ)結晶とし、室温で光電流マッピング計測を行った。図5(a)は試料表面の光学顕微鏡写真であり、図5(b)は励起レーザースポットを試料表面上で走査しながら得られた光電流マッピングである。また、図5(c)は(b)の点線部分での光電流値を縦軸、光照射位置を横軸にとったものであり、 $60\mu\text{m}$  に及び光電流の拡散が得られた。図6はレーザ

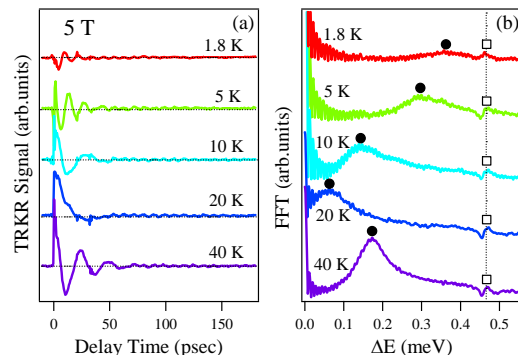


図4 CdTe/CdMnTe量子井戸における時間分解Kerr回転信号の温度変化(a)と、そのフーリエ変換信号(b)。温度に依存するCdTe量子井戸中の励起子(●)の信号と温度変化しない局在電子の信号(□)の存在を示す。



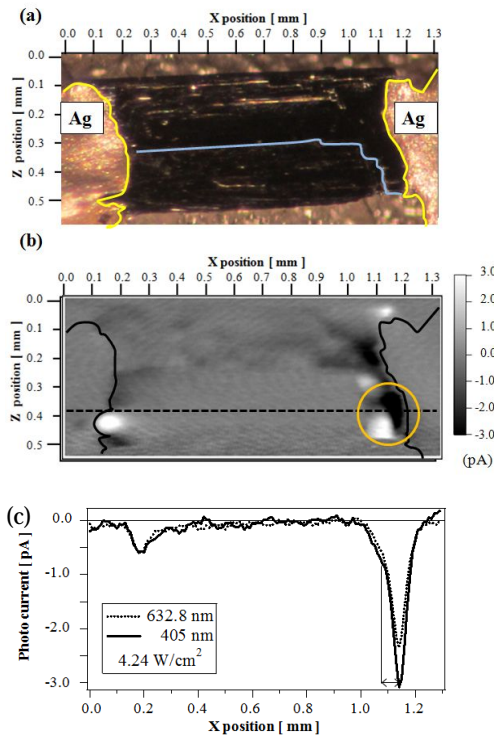


図5  $\beta'$ -(BEDT-TTF)(TCNQ) 結晶における空間分解光電流計測の結果。試料表面の光学顕微鏡写真(a)、光電流の空間応答(b)、(b)の点線的位置での光電流値のx方向依存(c)。2種類のデータは励起波長の違いを示す。

一励起スポット位置を固定し、光電流の温度変化を計測した結果である。温度の低下に伴い、光電流が急激に小さくなる結果が得られた。面内方向に電場を印加することで光電流が流れなくなる温度が低温側にシフトするが、反強磁性転移が生じる温度領域(16K)以下の温度では面内電場の大きさによらず、光電流が抑制されることを見出した。この光電流の抑制の一因として反強磁性状態において光励起

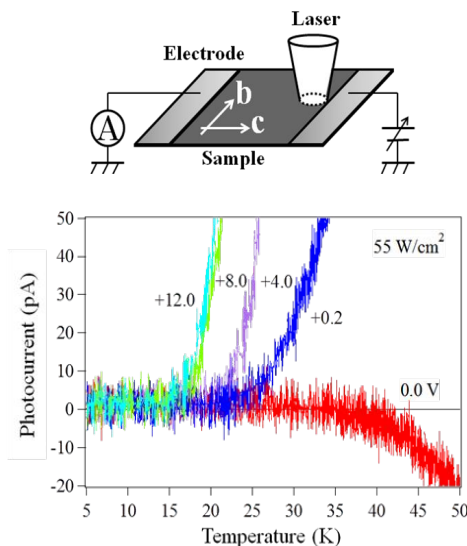


図6  $\beta'$ -(BEDT-TTF)(TCNQ) 結晶に面内電場を印加した状態での光電流の温度変化

で生成されることが理論的に予想されているホロン・ダブロンクラスターの形成の可能性を示した。

以上の研究成果は現在雑誌論文に投稿中、もしくは項目5で示した雑誌論文や学会発表において報告した。

#### <引用文献>

H. Mino *et al.*, JPCS **51**(2006)399.

Z. W. Ji, H. Mino *et al.*, Semiconductor Science and Technology **24** (2009) 095016.

H. Mino *et al.*, APL **92**(2008)153101.

H. Mino *et al.*, Rhys. Stat. sol.(c) **6**, No. 1, 272-275 (2009).

H. Mino *et al.*, APL **99** (2011) 161901.

#### 5. 主な発表論文等

##### [雑誌論文](計 1件)

Tomomichi Ginoza, Tetsuhito Shinohara, Masatoshi Sakai, Hirofumi Mino, Photocurrent suppression near antiferromagnetic transition in an organic Mott-Insulator  $\beta'$ -(BEDT-TTF)(TCNQ) crystal, Physica status solidi (b), **251**, 2014, 1248-1251, DOI: 10.1002/pssb.201350409

##### [学会発表](計 4件)

上村翔太、伊達晃良、中嶋誠、三野弘文、CdTe/Cd<sub>1-x</sub>MnxTe 量子井戸における光誘起励起子スピン歳差運動の観測、日本物理学会第69回年次大会、2014年3月29日、東海大学湘南キャンパス(神奈川県・平塚市)

伊達晃良、三野弘文、CdTe/Cd<sub>1-x</sub>MnxTe 量子井戸における光誘起時間分解 Kerr 回転、第24回光物性研究会、2013年12月13日、大阪市立大学杉本キャンパス(大阪府・大阪市)

宜野座智理、三野弘文、酒井政俊、有機モット絶縁体  $\beta'$ -(BEDT-TTF)(TCNQ)結晶における光電流特性、第24回光物性研究会、2013年12月13日、大阪市立大学杉本キャンパス(大阪府・大阪市)

田中周太、三野弘文、秋本良一、光ヘテロダイナミクス検波を用いた顕微 Kerr 回転計測システムの開発、第23回光物性研究会、2012年12月8日、大阪市立大学杉本キャンパス(大阪府・大阪市)

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

三野 弘文 (MINO, Hirofumi)

千葉大学・普遍教育センター・准教授  
研究者番号：40323430

(3)連携研究者

音 賢一 (OTO, Kenichi)  
千葉大学・理学研究科・教授  
研究者番号：30263198

土家 琢磨 (TSUCHIYA, Takuma)  
北海道大学・工学研究科・准教授  
研究者番号：40262597