

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月29日現在

機関番号：37112

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560342

研究課題名（和文） 紫青緑可視短波長 II-VI 光磁性半導体薄膜の開発

研究課題名（英文） DEVELOPMENT OF THE II-VI MAGNETO-OPTICAL SEMICONDUCTOR THIN FILMS FOR THEIR APPLICATION AT VIOLET, BLUE AND GREEN WAVELENGTHS

研究代表者

今村 正明（IMAMURA MASAOKI）

福岡工業大学・工学部・教授

研究者番号：40111794

研究成果の概要（和文）：II-VI 族で広いバンド幅を持つ磁性半導体は、緑色また青色半導体レーザへ光素子としての応用可能性を持つ。研究の主な対象とする ZnMnTe と ZnMnSe は、光吸収端がそれぞれ 428-544nm、428-458nm である。結晶性では、ZnMnTe と ZnMnSe において、CdMnTe で最も優勢に観測される<111>成長が同様に観測された。本研究では、主に石英ガラス上に 2 μ m の厚さに堆積させたそれらの膜のファラデー回転（光磁気特性）を研究し、532nm の緑色半導体レーザにその特性が適合することを明らかにした。また交流磁界下のファラデー回転を観測し、光磁気センサ応用の可能性を示した。

研究成果の概要（英文）：II-VI based magnetic semiconductors with a wide optical band gap are expected to show high potential for optical applications utilizing short wavelength laser diodes. ZnMnTe and ZnMnSe exhibit their absorption edges at 428-544 nm and 428-458 nm, respectively. We have confirmed that the Faraday rotation angle in the ZnMnTe films deposited on quartz glass substrates is large near the absorption edge. On crystallinity, the preferred (111) growth reported previously for CdMnTe films on QG substrates was also observed in the ZnMnTe and ZnMnSe films. The Faraday rotation angle of those films synthesised on QG substrates by using molecular beam epitaxy with a thickness of 2 micron-meters has been studied. A Faraday-effect signal observed for the ZnMnTe film using a 532-nm green LD has shown that ZnMnTe films are useful for green lights. We developed equipment for observing the Faraday effect directly under ac magnetic fields generated by a ring magnet. The results of a direct Faraday rotation observation successfully made for the ZnMnTe films under ac fields have been shown.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2010年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：光磁気工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：MBE・エピタキシャル・磁性半導体・超格子・スピントロニクス

1. 研究開始当初の背景

半導体レーザ (LD) における連続光のパワー向上と発振波長短波長化の進歩は著しく、可視短波長域 (550~450nm) においても出力 10~20mW クラスのレーザが実用に供され、緑色 LD や更に波長の短い青色 LD が赤色半導体レーザ (波長 630~670 nm) に代わって光エレクトロニクス・デバイスの主役光源になって来ている。405nm の紫色 LD はさらに波長が短いため、微細な対象物の検出用光源として有効で、バイオメディカル用途のさまざまな実験に利用が広がりつつある。その一方で、LD 光源にとって必須の受動素子である光アイソレータの青色~紫色対応は進んでおらず、また緑色~青色 LD を光源に用いる光磁気センサ用ファラデー素子の短波長化も遅れている。光エレクトロニクス・デバイスは、半導体基板上の平面導波路を基本とした電子・光集積回路 (Electronics Photonics Integrated Circuits, EPIC) へと発展していくと考えられるが、その際に蒸着技術を用いて基板上に形成できる光アイソレータは不可欠で、半導体を母材とした緑~青~紫波長域対応の TE-TM モード変換導波型光アイソレータの開発は光電子デバイスの将来にとって極めて重要である。したがって、その前提となる透明な光磁性体素材の開発が必要となる。

われわれはこれまで、分子線エピタキシャル (Molecular Beam Epitaxial: MBE) 装置を用いて作成する II-VI 族磁性半導体 (Magnetic Semiconductor: MS) 膜の研究に「光磁気特性 (ファラデー効果) の高性能化」の観点から取り組んできた。その結果、室温でファラデー効果が得られる三元 MS CdMnTe 膜中の Mn に加えて、第二の遷移元素である Co を微量添加した四元 MS CdMnCoTe 膜の開発により高性能化を実現し、ファラデー回転を一桁近く向上させることで実用特性を得た。しかしながら近年環境問題に関する評価が厳しくなり、環境負荷物質である Cd を含む CdMnCoTe 膜の産業応用は今後難しい状況になっている。後述するように、直接遷移の II-VI 磁性半導体では元素のさまざまな組み合わせで閃亜鉛鉱型の三元系半導体化合物を合成でき、しかも禁制帯幅を広範に変化させることができる。このことに関する設計指針も後に述べる

が、本研究計画では、(1) その設計指針による環境問題に抵触しない II-VI 磁性半導体膜の緑色~青色~紫色域対応光アイソレータおよび光磁気センサ用ファラデー回転素子の開発を行うことを目指すと同時に、(2) これまで培ってきた磁性半導体膜作成の技術的蓄積を活用して、短波長域対応の新しい磁性半導体超格子膜を開発し、これについてスピントロニクスの観点から新たな知見の獲得を目指す。

2. 研究の目的

これまでの研究で $Zn_{1-x}Mn_xTe$ 膜は、光透過率およびファラデー回転スペクトル両特性が光波長 532nm の緑色において良く整合し、高周波光磁気センサに応用可能な特性、すなわち歪みの極めて小さい線形特性に優れた出力信号波形を励振交番磁界 (1.6kHz) において示すこと、さらにその実験で観測した受光器出力は、高周波エンコーダの光磁気センサとして、また光変流器 (光 CT) 用の電流センサとして応用を十分期待できるデータが得られることを確認した。本計画ではさらに、 $Zn_{1-x}Mn_xSe$ あるいは禁制帯幅が $Zn_{1-x}Mn_xSe$ と $Zn_{1-x}Mn_xS$ の間に位置する $(Zn_{1-x}Mn_x)_{0.5}(Se_{1-y}S_y)_{0.5}$ 、あるいは $(Zn_{1-x}Mn_x)_{0.5}(Te_{1-y}S_y)_{0.5}$ について、青色 475nm および紫色 405nm に対する膜の光磁気特性の有効性を確認しつつ、新しい組成を含むそれらの磁性半導体膜開発を進める。これまでにわれわれが蓄積した緑~青色波長域での II-VI MS 膜についての研究成果を活用することにより、波長域をさらに広げた検討、また量子効果を実験的に検討して高性能の素子開発に繋げる研究を実施する。

3. 研究の方法

II-VI 磁性半導体は、元素のさまざまな組み合わせで閃亜鉛鉱型の三元系半導体化合物を合成でき、しかも禁制帯幅を広範に変化させることが可能である。磁性半導体膜の作成に用いる分子線エピタキシャル (MBE) 装置は、II-VI 化合物に対して本来の結晶基板上での超格子膜ないしはエピタキシャル単層膜作成から、ガラス基板上の蒸着膜の作成まで幅広く利用が可能で、シャッター付の蒸発源セルの温度制御により設計組成の膜を作成することができる。 $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ 型の II-VI 磁性半導体は、III-V 化合物 GaAs と同様そのバンドギャップの極値が Γ ポイントで

起こる直接遷移の閃亜鉛型半導体である。母材の $A^{II}B^{VI}$ 型半導体化合物と A^{II} が Mn で置換された磁性半導体 $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ に共通のバンドは、sp バンドとして知られる構成原子の s と p 軌道からの電子による励起のバンドへの寄与で決まる [6]。すなわち、GaAs と同様の結晶格子を作る閃亜鉛型の $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ 化合物は、 Γ ポイントでの sp バンドの振る舞いが母材の $A^{II}B^{VI}$ と同じであり、図 1 に示すように Γ ポイントでの直接遷移 ($\Gamma 8 \rightarrow \Gamma 6$) が光吸収端を決めるオープンギャップ型の半導体化合物となっている。そして $0 < x < 1$ で $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ の光吸収端を見積もる際には、図 2 に示す $A^{II}B^{VI}$ と MnB^{VI} 化合物のバンドギャップ・エネルギーの内挿法による光吸収端 (バンドギャップ) 推定が良い近似を与える。実際に図 2 の設計指針を $Zn_{1-x}Mn_xTe$ と $Zn_{1-x}Mn_xSe$ について調べたところ、内挿による設計 E_g 値と実験から求めた $(\alpha n \nu)^2 - E_g$ プロットによる E_g 値は非常によく一致した。

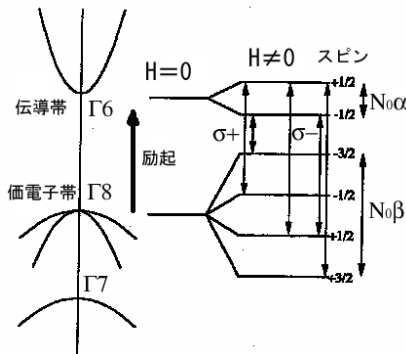


図 1. Γ ポイントでの sp バンド構造 (左) 及び価電子帯上部 ($\Gamma 8$) と伝導帯底部 ($\Gamma 6$) でのスピン準位の磁場による分裂 (右).

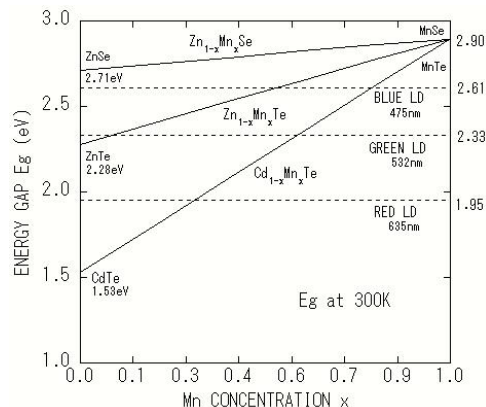


図 2. $A^{II}_{1-x}Mn_xB^{VI}$ 磁性半導体に対する $A^{II}B^{VI}$ と MnB^{VI} 間の内挿によるバンドギャップ推定値.

4. 研究成果

$Zn_{1-x}Mn_xSe$ あるいは禁制帯幅が $Zn_{1-x}Mn_xSe$ と $Zn_{1-x}Mn_xS$ の間に位置する

$(Zn_{1-x}Mn_x)_{0.5}(Se_{1-y}S_y)_{0.5}$ について、緑色 532nm また青色 475nm に対する膜の光磁気特性の有効性を確認しつつ、新しい組成を含むそれらの磁性半導体膜開発を進め、光波長をそれら短波長側に広げた利用可能域の検討から、高性能素子の開発に繋げる研究を実施した。この研究では、実施事項として次のことを掲げた。(1)高周波磁界パルス用光磁気センサ開発、(2)青色～紫色短波長用超格子膜の作成と量子効果研究、(3)フォトルミネッセンス効果形新方式光磁気センサ開発の検討、である。その結果、(1)と(2)の高周波磁界パルス用光磁気センサ開発及び青色短波長用膜の作成・検討考察は実施をほぼ終えて、実現可能性に関する実験データを蓄積することが出来た。しかし、さらに $Zn_{1-x}Mn_xTe$ について超格子膜を作成してフォトルミネッセンス効果を検討し、フォトルミネッセンス効果を利用する新方式の光磁気センサの実現可能性を探ることについては、 $ZnMnSe$ 膜と $ZnMnS$ 膜の作成の際に用いた $MnSe$ 、 MnS 化合物がクヌーセン・セルを用いた場合に、昇華温度の低い Se や S が成長室内に大量に昇華 (Se) または飛散 (S) し、イオンポンプや電源を損傷するなどの事故が起こったため、原因究明とその修理のため長期にわたり実験を休むことになった。このことにより、研究期間の後半において、計画した研究を行うことが出来なかった。現在 MBE 装置は故障から回復しつつある。実験を再構築して、 $Zn_{1-x}Mn_xTe$ 超格子膜のフォトルミネッセンス効果の研究を進めたいと考えており、実際に現在、超格子膜作成と PL 測定装置について具体的に研究を進めつつある。

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 2 件)

① 今村正明、山口俊尚、II-VI 磁性半導体 $CdMnCoTe$ 四元系薄膜における光磁気効果のエンハンスメント、福岡工業大学エレクトロニクス研究所所報、査読無、Vol. 27、2010、pp.1-4

② M. Imamura, T. Yamaguchi, Crystallographic and optical properties of Mn-substituted II-VI based magnetic semiconductor films, Journal of Physics:Conference Series, 査読有、Vol. 200 062009、2010、pp.1-4 doi:10.1088/1742-6596/200/6/062009

[学会発表] (計 4 件)

① 今村正明、II-VI 磁性半導体擬四元 $CdMnCoTe$ 薄膜の Co の効果による光磁気

効果、第 11 回九州・山口・沖縄磁気セミナー、2010.5.14-16、島根県隠岐の島町レインボーアリーナ [隠岐の島]

- ② 今村正明、岡田章、山口俊尚、Mn 置換 II-VI 磁性半導体薄膜の結晶性と磁気光効果、第 33 回日本磁気学会学術講演会、2009.9.13、長崎大学工学部 [長崎]
- ③ 今村正明、高城和美、山口俊尚、II-VI 磁性半導体擬四元 CdMnCoTe 薄膜の Co による光磁気効果のエンハンスメント、第 34 回日本磁気学会学術講演会、2009.9.4-7、茨城県つくば国際会議場 [つくば]
- ④ M. Imamura, T. Yamaguchi、Crystallographic and optical properties of Mn-substituted II-VI based magnetic semiconductor films、International Conference on Magnetism(ICM2009)、2009.7.30、Karlsruhe [Germany]

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称：ルミネッセンス型光磁気センサ
発明者：今村正明
権利者：福岡工業大学
種類：特許
番号：特願 2009-209688
出願年月日：平成 21 年 9 月 10 日
国内外の別：国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

今村正明 (IMAMURA MASA AKI)
福岡工業大学・工学部・教授
研究者番号：4 0 1 1 1 7 9 4

(2) 研究分担者

山口俊尚 (YAMAGUCHI TOSHINAO)
福岡工業大学・工学部・教授
研究者番号：5 0 0 3 7 9 2 5