

ZnSe/BeTe タイプII型量子井戸における 光誘起時間分解カー一回転

河野 悠、三野 弘文、音 賢一、室 清文、秋本 良一^A、嶽山 正二郎^B
千葉大院・理学研究科、産総研・超高速光デバイスラボ^A、東大物性研^B

Photo-induced time resolved Kerr rotation in ZnSe/BeTe type-II quantum wells

Y. Kouno, H. Mino, K. Oto, K. Muro, R. Akimoto^A, and S. Takeyama^B

Graduate School of Science, Chiba University

^AAIST Ultrafast Photonic Devices Laboratory

^BInstitute for Solid State Physics, University of Tokyo

Abstract

The spin coherence of photo-excited electrons in non-doped ZnSe/BeTe type-II quantum wells (QW) was investigated by the time-resolved Kerr rotation (TRKR) and the resonant spin amplification (RSA) measurements in magnetic fields up to 7 Tesla. The Larmor precession of photo-excited electron spins in ZnSe layers was clearly observed in both the TRKR and RSA signals and the spin relaxation time (T_2^*) was evaluated. The T_2^* reaches up to 15.7 nsec around zero magnetic fields at 1.4 K. Photo-excited holes in ZnSe layers quickly and efficiently move into neighboring BeTe layers. Therefore, photo-excited electrons can be accumulated and the electron spins are free from the major relaxation mechanism such as an exchange with holes. Temperature dependence of the electron spin coherency was investigated up to 200 K.

1.序論

ZnSe/BeTe タイプII型量子構造では、光励起で生成された電子と正孔がそれぞれ別の層に閉じ込められる。これまでにCWレーザーを用いたポンプ&プローブ分光によって電子が 10^{11} 個/cm² 程度 ZnSe 層に蓄積されることを励起子吸収飽和、荷電励起子遷移とそれらの磁場効果から明らかにした [1]。本研究では更に光励起で生成、蓄積される電子の過渡的な振る舞いとそのスピン状態の詳細を得ることを目的として、フェムト秒レーザーを用いた光誘起時間分解カー一回転測定を行った結果について報告する。

2.実験配置

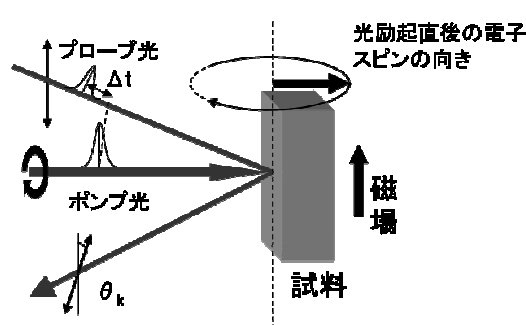


図1：時間分解カー一回転(TRKR)測定

図1に時間分解カー一回転(TRKR)測定の概略図を示す。円偏光制御されたポンプ光によって、スピンの向きの揃った電子を試料中に多数生成させる。その後、電子は外

部からの磁場を感じて、歳差運動を始める。ポンプ光入射の Δt 秒後に直線偏光制御されたプローブ光パルスを照射すると、その反射光の偏光面は電子スピンの向きに応じて回転する。遅延時間 Δt は、ポンプ光とプローブ光の光路長を変化させることで制御でき、このカー回転角 θ_k を検知することにより電子スピンの歳差運動を捉えられる。カー回転角 θ_k は以下の式で与えられる。

$$\theta_k = A \exp\left(\frac{\Delta t}{T_2^*}\right) \cos\left(\frac{g\mu_B B \Delta t}{\hbar}\right)$$

ここからスピン緩和時間 T_2^* と g 因子が得られる。 μ_B はボーア磁子、 B は磁場、 \hbar はディラック定数である。

試料は GaAs 基板上に MBE 法で結晶成長させたタイプ II 型対称二重量子井戸 ZnSe/BeTe/ZnSe(8 nm/3 nm/8 nm) で、井戸層は厚さ 250 nm の ZnMgBeSe の障壁層に挟まれている。温度は 1.4K、磁場は 7T まで印加した。波長可変フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーの倍波(パルス幅 200 fsec、繰り返し周波数 76 MHz)をビームスプリッターで 2 つに分け、それぞれ偏光を制御し、ポンプ光(3.4 W/cm²)、プロー

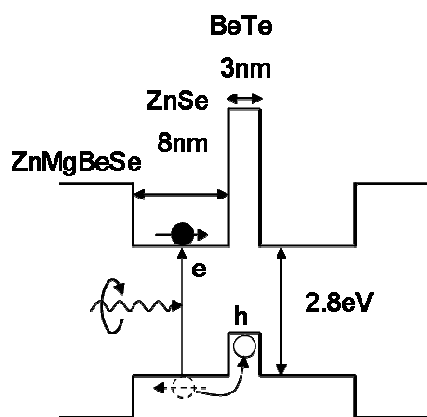


図 2 : ZnSe/BeTe タイプ II 対称二重量子井戸のバンド図

ブ光(0.57 W/cm²)とした。レーザーの中心波長は ZnSe 量子井戸の荷電励起子遷移(439 nm)に合わせた。ここでレーザーのスペクトル幅は 10 meV であり、励起子も直接励起している。

3. 実験結果と考察

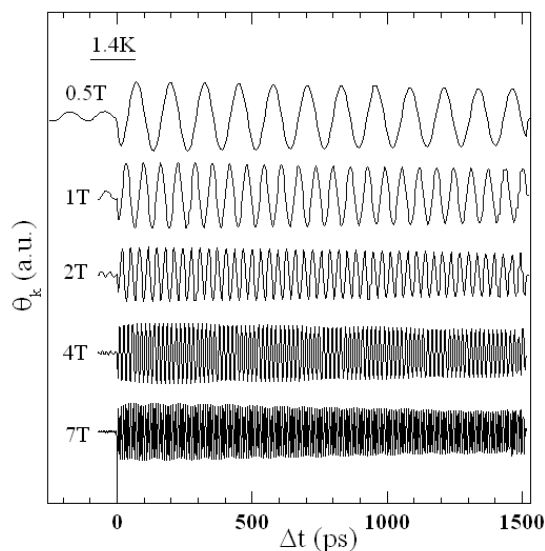


図 3: タイプ II 対称二重量子井戸の TRKR 信号の磁場依存性

図 3 は TRKR 信号の磁場依存性を示している。ここから求められる g 因子は 1.11 で、磁場に殆ど依存せず一定値であった。これは ZnSe 量子井戸における自由電子の g 因子と一致する。従ってこの TRKR の測定で得られた信号が ZnSe 層に蓄積した電子によるものであるといえる。また数 nsec に及ぶ長いスピン緩和時間が観測された。弱磁場側では特に $\Delta t < 0$ の領域でも信号が顕著に見られる。これはパルス間隔 13 nsec に比べて同程度か長い T_2^* を示す。このように長い T_2^* を正確に評価する手法として共鳴スピン増幅 (RSA) 測定がある[2]。この測定法では Δt を固定し、磁場を掃引しながら

Kerr 信号の測定を測定する。磁場の値によってちょうどスピンの歳差運動がポンプ光の周期と共鳴する場合信号が強くなり、位相が π ずれると信号が打ち消され、RSA 信号は以下の式で与えられる。

$$\theta_k(\Delta t, B) =$$

$$\sum_n \Theta(\Delta t + nt_{rep}) A e^{-(\Delta t + nt_{rep})/T_2^*} \cos\left[\frac{g\mu_B B(\Delta t + nt_{rep})}{\hbar}\right]$$

Θ は階段関数で、信号に寄与するパルス数が n で表される。 t_{rep} はレーザーパルスの繰り返しの時間間隔でこの実験の場合 13 ns である。

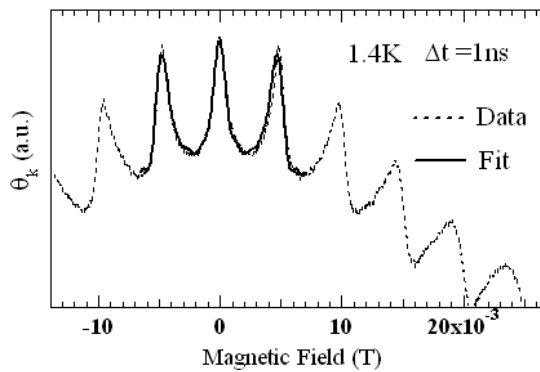


図 3 : 0T 近傍での RSA 信号

図 3 は実際に測定された RSA 信号であり、ここから前述の式でフィッティングを行い T_2^* を求めた。

図 4 は TRKR と RSA の 2 つの方法により、 T_2^* を求め、 T_2^* の逆数を縦軸にとり、磁場による変化をプロットしたものである。求められた T_2^* は TRKR と RSA の場合でほぼ一致する。0.5T 以上の領域では $1/T_2^*$ は磁場に対して線形増大した。 T_2^* の値が g 因子の不均一拡がりによって引き起こされている場合には $1/T_2^*$ が図 4 中の式で表されるように磁場に対して線形増大することになる。この傾きから不均一拡がりを見積も

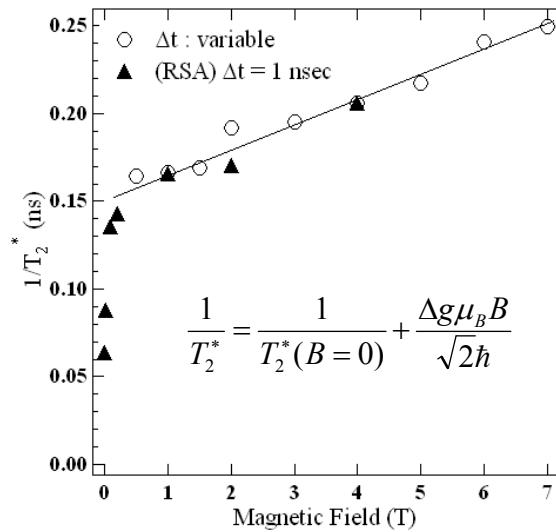


図 4 : スピン緩和時間 T_2^* の磁場依存性

ったところ、0.00023 と ZnSe 電子スピンの g 因子の 0.021% と非常に低い値が得られた。このことから、 g 因子の不均一が T_2^* を決めていたとした場合、その影響は非常に小さいといえる。このことは試料の質が良いことを反映していると考えられる。

ナノ秒以上長く続く電子スピン緩和は変調ドーピングされた量子井戸中で励起子、荷電励起子遷移において報告されている [3]。このメカニズムでは円偏光励起によって二次元電子ガス中にスピン偏極した電子と正孔を生成したとき、荷電励起子ができる過程で二次元電子ガス中に光励起によって生成した電子スピンと同じ向きの電子スピンが生成され、歳差運動を行う。この過程では、励起子或いは荷電励起子が再結合で消滅した後も二次元電子に誘起されたスピンは歳差運動を続けることができ、その緩和時間がナノ秒以上になる。

タイプ II 量子井戸の場合、序論で述べたように光励起で生成された電子が蓄積され二次元電子が形成される。この場合、変調

ドープされた量子井戸と同様に荷電励起子生成過程によって二次元電子ガスのスピン偏極が生じるため、ナノ秒以上長く続く電子スピン緩和が得られると考えられる。

図4において0 T近傍で $1/T_2^*$ が急激に減少する、すなわちスピン緩和時間が急激に増大し、 T_2^* は15.7 nsに及ぶという結果が得られた。図4中の式から明らかなように、0 Tにおいては不均一広がりとの寄与を除いた均一系の緩和で $1/T_2^*$ が決定されるが、 $T_2^*(B=0)$ が無限に長くても $1/T_2^*$ が減少することは無い。変調ドープされたCdTe量子井戸では同様の測定で T_2^* の逆数は0 T近傍で飽和することが確認されている[4]。本研究で得られた特異な結果は光励起で二次元電子を形成する系に特有の現象である可能性がある。

図5にスピン緩和時間 T_2^* の温度依存性を示す。磁場は2 T印加し、励起波長をそれぞれの温度における励起子共鳴付近で固定しTRKR測定を行い、その結果から T_2^* を求めた。50 Kまでは T_2^* は急激に減少し、その後200 Kまでは T_2^* ゆるやかに減少していることがわかる。50 K以下の低温では T_2^* が長くなるメカニズムが存在し、高密度凝縮相[5]との関連に興味を持たれる。また、

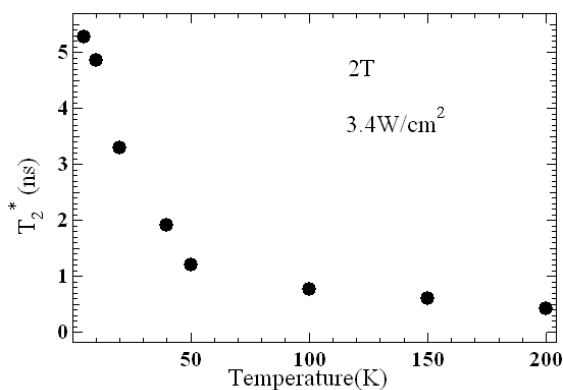


図5：スピン緩和時間 T_2^* の温度依存性

高温領域においての数百 ps以上の T_2^* が得られている結果に関しては、依然として高密度キャリアが存在していることを強く示唆する。

4.まとめ

ZnSe/BeTe タイプII型対称二重量子井戸を対象としてTRKR測定を行った。その結果、ノンドープの量子井戸において、数nsに及ぶ長いスピン緩和時間が得られた。また、スピン緩和時間 T_2^* は0 T近傍で急激に増大し15.7 nsという非常に大きな値になることが分かった。光励起で生成される正孔がBeTe層へと高速緩和し、電子正孔間のスピン交換相互作用、再結合が抑制されること、及び電子の蓄積による二次元電子ガス形成と荷電励起子遷移が生じていることが、ナノ秒オーダーの長い電子スピン緩和を引き起こす要因であると考えられる。

参考文献

- [1]H.Mino et.al., Journal of Physics:Coference Series 51 (2006) 399-402
- [2]J. M. Kikkawa et.al., Phys. Rev. Lett. 80, 4313 (1998)
- [3]R. Bratschitsch et.al., Appl Phys Lett 89, 221113 (2006)
- [4]E.A.Zhukov et.al., Phys.stat.sol. (b)243,878 (2006).
- [5]H.Mino et.al., Physica E 22 (2004) 640-643