

GaAs/AlAs DBR と MnAs ナノクラスターを含む 半導体積層構造の設計、作製及び磁気光学特性 Design, Fabrication, and Magneto-optical Properties of Multilayers Containing GaAs/AlAs DBR and MnAs Nano-clusters

上田和彦*・清水大雅*・田中雅明**

*東京大学大学院工学系研究科電子工学専攻, 東京都文京区本郷 7-3-1 (〒113-8656)

**科学技術振興事業団, 埼玉県川口市本町 4-1-8 (〒332-0012)

K. Ueda*, H. Shimizu*, and M. Tanaka**

*Department of Electronic Engineering, Graduate School of Engineering, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656

**Japan Science and Technology Corporation, 4-1-8 Hon-cho, Kawaguchi, Saitama 332-0012

We calculated the magneto-optical properties of semiconductor-based multilayer structures containing GaAs:MnAs nanoclusters sandwiched by GaAs/AlAs distributed Bragg reflectors (DBRs). Very large magneto-optical Kerr effects (Kerr rotation and ellipticity) are predicted in multilayers with suitable DBR numbers. On the basis of the calculation, we have grown multilayer structures by molecular beam epitaxy, and have demonstrated a large Kerr effect (more than 600 mdeg of Kerr ellipticity) at a designed wavelength of ~980 nm under a relatively low magnetic field at room temperature. This large magneto-optical effect in III-V semiconductor-based multilayer structures could be used for thin-film-type magneto-optical devices monolithically integrated with semiconductor opto-electronic circuitry.

Key words: MnAs, multilayer, cluster, Kerr rotation, Kerr ellipticity, distributed Bragg reflectors

1. はじめに

近年、磁気光学効果を用いたデバイスは光アインレータに代表される光通信分野、光磁気ディスクに代表される記憶媒体分野に広く用いられている。しかし、いずれの分野においてもその材料は金属及び金属酸化物が圧倒的に多いのが現状である。そこで、本研究では半導体レーザや光導波路など光エレクトロニクス・デバイスの主材料であるIII-V族半導体 GaAs をベースとした磁性層 GaAs:MnAs ナノクラスター材料^{1,2)}を作製し、その両端を同じくIII-V族半導体である GaAs および AlAs から成る分布ブラッグ反射鏡(DBR, Distributed Bragg Reflector)で両端を挟み込むことによって、半導体ベース材料でありながら反射において磁気光学効果を有するだけではなく、その磁気光学効果増大も狙った多層構造の設計を行った。設計に基づき分子線エピタキシーにより作製した DBR/GaAs:MnAs/DBR からなる多層構造³⁻⁵⁾は、室温で所望の波長において III-V 族半導体ベース材料としては最大級の磁気光学効果(カー効果)を示した。磁性層 GaAs:MnAs 層は比較的大きな消光係数を持つために、磁気光学効果の増大に伴い、その反射率は減少する傾向にあるが、非相反屈折率変化を用いた半導体導波路型光アインレータ⁶⁾など、光の損失を電流注入によって補償することができる半導体デバイスとの融合により、従来型の磁気光学デバイスとは異なるユニークな応用可能性が期待できる。

2. 材料及び構造設計

本研究において設計及び作製を行った構造の材料及びその膜厚を Fig. 1 に示す。磁性層より上側の DBR の積層周期数を

N_{top} 、下側を N_{bottom} と各々定義する。磁気光学効果を生み出す磁性層には、GaAs 中に MnAs ナノクラスターが分布している磁性グラニューラー構造(以下、GaAs:MnAs と表記)を用いた。MnAs は室温以上のキュリー温度(318K)をもつ強磁性金属であり、磁気光学効果を持つ。GaAs:MnAs は III-V 族半導体と整合性が極めて良い材料であり、GaAs 中に存在する MnAs クラスターの大きさによってその磁性は超常磁性にも強磁性にもなり、かつ磁気光学効果を示すという非常にユニークな磁気特性を持っている¹⁾⁻⁵⁾。

本研究においては、反射における磁気光学効果であるカー効果の増大を目的とし、動作波長は 980nm とした。今回用いた屈折率の異なる材料を周期的に積層させる構造は、一次元磁性フォトニック結晶⁷⁾とも呼ばれるもので、光を局在させる層の最薄膜厚は $\lambda/2n$ 、その上下の DBR の最薄膜厚は $\lambda/4n$ で各々与えられる(λ は局在を行う波長、 n は各材料の屈折率)。なお、

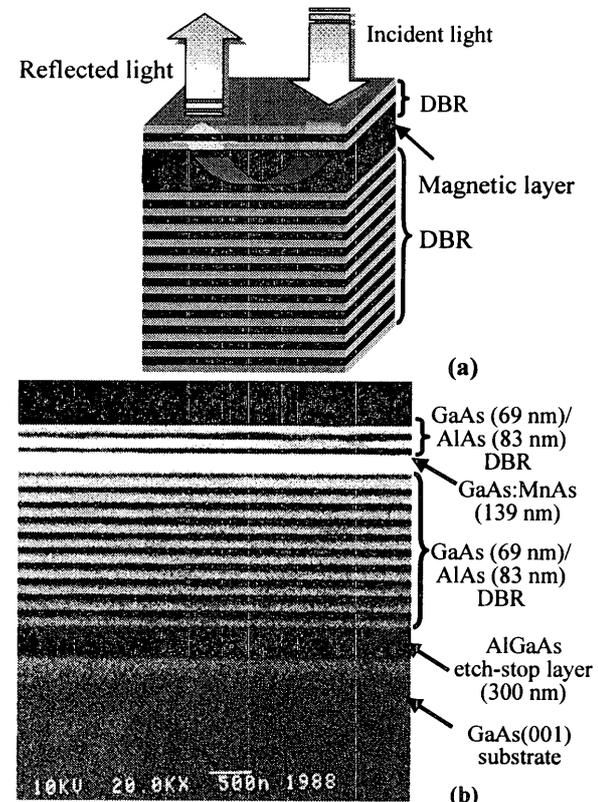


Fig. 1 (a) Schematic diagram of the multilayer structure, and (b) cross-sectional scanning electron microscopy (SEM) image of the sample.

磁性層 GaAs:MnAs の屈折率は GaAs の屈折率を用いた。従って AlAs, GaAs, GaAs:MnAs の膜厚はそれぞれ 83nm, 69nm, 139nm となる。

3. 計算方法及び計算結果

3.1 計算方法

同様の多層膜構造におけるファラデー効果の計算と実験については過去に我々のグループの研究³⁾⁵⁾で示されているように透過において行われており、Er ドープ光ファイバー増幅器のポンプ光波長 980 nm におけるファラデー効果を増大させるのに最適な DBR の積層数は $N_{\text{top}}=10$ 周期、 $N_{\text{bottom}}=10$ 周期であり、その場合の GaAs:MnAs の消光係数 κ は 0.125 と見積もられている。本研究においても磁気光学効果(カー効果)、反射率、透過率を求めるために、まずこの消光係数の値を用いた。

誘電率テンソルの対角項の実数成分を ϵ'_{xx} 、虚数部を ϵ''_{xx} とすると、一般に次の関係式より、屈折率 n 、消光係数 κ から誘電率テンソルの対角項が求められる。

$$\left. \begin{aligned} \epsilon'_{xx} &= n^2 - \kappa^2 \\ \epsilon''_{xx} &= 2n\kappa \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

GaAs, AlAs の各波長における屈折率 n 、消光係数 κ は既知であるので、式(1)より GaAs, AlAs 層の誘電率テンソルが求められる。また GaAs:MnAs 層の誘電率テンソルの対角項は GaAs の値を用いた。一方、誘電率テンソルの非対角項は実数成分を ϵ'_{xy} 、虚数部を ϵ''_{xy} とすると次式で表される。

$$\left. \begin{aligned} \epsilon'_{xy} &= -\frac{2c}{\omega d} (m\eta_F + \kappa\theta_F) \\ \epsilon''_{xy} &= -\frac{2c}{\omega d} (\kappa\eta_F - n\theta_F) \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

ここで、 c は光速、 ω は光の角周波数、 d は GaAs:MnAs の膜厚を表す。ファラデー回転角 θ_F 、ファラデー楕円率 η_F は GaAs:MnAs 単層膜において実測した値を用いた。計算の際には GaAs:MnAs の消光係数 κ をパラメータとして変化させ、最後には実験に合うようにフィッティングした。以上のように GaAs, AlAs, GaAs:MnAs 各層の誘電率テンソルを求め、最後にマトリクス・アプローチ法⁷⁾⁹⁾を用いて任意の積層数における磁気光学効果の計算を行った。

3.2 磁気光学効果の上部 DBR 周期数依存性

Fig. 1 の多層膜構造における反射率 R 、透過率 T 、カー回転角 θ_k 、カー楕円率 η_k の上部 DBR 周期数 N_{top} 依存性の計算結果を Fig. 2 に示す。 N_{bottom} は 10 周期で固定し、 N_{top} を 0~10 周期まで変化させた。波長 λ は 980nm とした。 N_{bottom} を 10 周期で固定した理由は、10 周期の DBR がある場合その反射率は非常に高く 90% 以上に達するためである。この計算により、 N_{top} を変化させることによって、上下の DBR による多重反射を利用し、磁性層に光をより強く局在させカー効果を大きくするための N_{top} の最適値を見積ることができる。計算結果から磁気光学効果(θ_k と η_k) 増大のための最適な N_{top} 値は 2 周期であることが分かった。また、 N_{top} が 6 周期以上においては反射率が急激に増加していることが分かる。これは N_{top} の周期数増加に伴い磁性層に光が入り込まず、上部 DBR 層によって反射されているもの

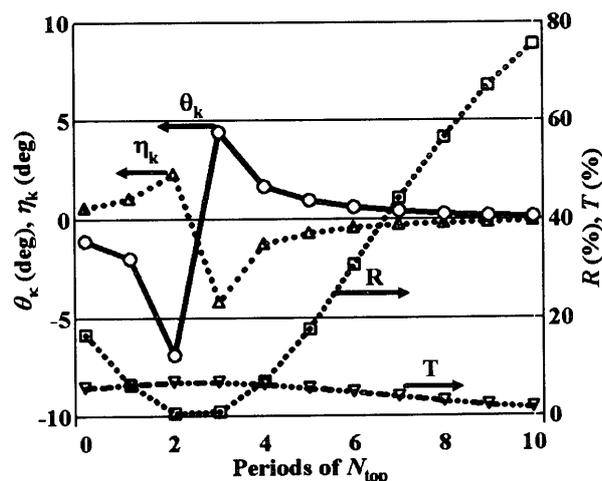


Fig. 2 N_{top} dependence of the Kerr rotation (θ_k), Kerr ellipticity (η_k), reflection (R), and transmission (T) of the multilayer, where $N_{\text{bottom}} = 10$, $\kappa = 0.125$ and $\lambda = 980$ nm.

だと考えられる。また、 N_{top} 周期が 2~3 周期の場合に反射率が急激に減少している理由は、上下の DBR による多重反射によって磁性層(GaAs:MnAs)へ光が強く局在しているために、消光係数を持つ磁性層の中で光が減衰したためと考えられる。

3.3 構造中の電界強度分布

次に、前節において最適とされる周期数 $N_{\text{top}}=2$ 周期、 $N_{\text{bottom}}=10$ 周期(ただし消光係数 $\kappa = 0.125$ の場合)における多層膜中の電界強度分布を Fig. 3 に示す。電界強度分布の図の下に多層膜構造の模式図が入っている。Fig. 3 の場合、光は左側より入射し、左側に反射するものと定義する。従って N_{top} 層は左側、 N_{bottom} 層は右側に位置することになる。ここで、入射光の電界成分強度は 1.0 として計算を行った。

この計算結果から入射光強度が 1.0 であるのに対し、磁性層 GaAs:MnAs 層ではその強度が 2.4 倍に増幅していることが分かる。さらに電界強度分布の形状より磁性層を挟んだ両側の DBR 層によって光が多重反射を起こしていることも分かる。以上の結果から前節で述べた $N_{\text{top}}=2$ 周期、 $N_{\text{bottom}}=10$ 周期におけるカー効果増大と反射率の急激な現象の原因は磁性層への光の局在が大きいためであることが明らかになった。

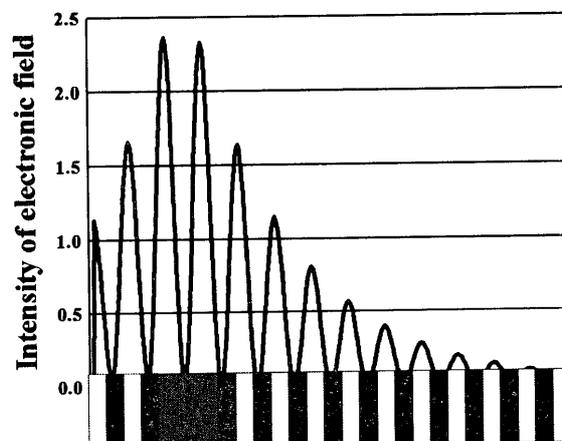


Fig. 3 Intensity distribution of the electronic field in the multilayer, where $N_{\text{top}} = 2$, $N_{\text{bottom}} = 10$, $\kappa = 0.125$, $\lambda = 980$ nm, and the incident light intensity is 1.0.

3.4 カー効果の波長依存性

3.2 及び 3.3 の結果から、カー回転角 θ_k 、カー楕円率 η_k が最大となる磁性層 (消光係数 $\kappa = 0.125$) を挟み込む DBR 積層数は $N_{\text{top}}=2$ 周期, $N_{\text{bottom}}=10$ 周期であることが分かった。そこでこの条件時の θ_k , η_k , T , R の波長依存性を計算によって求めた。その結果を Fig. 4 に示す。波長 980 nm 付近において非常に急峻に θ_k と η_k が増大している事が分かる。それに伴い反射率 R は波長 980 nm 付近において大きく減少していることが分かる。 η_k は波長 980 nm 付近において 5 deg を超えており、 θ_k については 7 deg 近くまで達している。この計算より、この多層膜構造の磁気光学効果は波長に対して特に敏感であることが分かる。

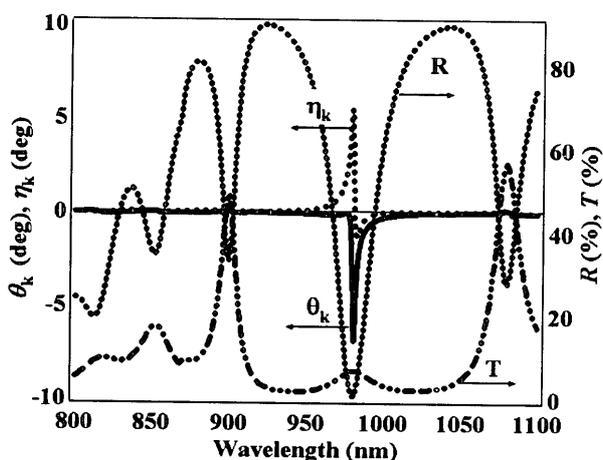


Fig. 4 Spectra of the Kerr rotation (θ_k), Kerr ellipticity (η_k), reflection (R), and transmission (T) of the multilayer, where $N_{\text{top}}=2$, $N_{\text{bottom}}=10$, and $\kappa=0.125$.

4. GaAs:MnAs 層の成長条件およびその物性

GaAs:MnAs ナノクラスター構造の作製条件を簡潔に述べる。まず分子線エピタキシーによって GaAs(001) 基板の上に (GaMn)As 薄膜 (Mn 濃度 4%~7%) を基板温度 280°C で低温成長し、その後、580~620°C でアニールすることによって GaAs 中に MnAs ナノクラスターが形成される。低温 MBE 成長時には Mn は Ga サイトに入り込んでおりその分布は一樣に GaAs 中に広がっているが、その後のアニールによって熱力学的により安定な MnAs クラスタになる。GaAs 中に直径 5~10nm の MnAs クラスタが分布している断面 TEM 像を Fig. 5 に示す。MnAs 単体では 125°C と 45°C に構造相転移点を持ち、125°C 以上及び 45°C 以下では六方晶の NiAs 型構造、中間温度である 45°C ~125°C では斜方晶の MnP 型構造をとる。45°C 以下の相では強磁性であるが、それ以外の高温相は常磁性である。しかし、本研究で用いた GaAs:MnAs 中では MnAs はナノスケールのクラスタ状になっているためその磁性は単体のそれとは少し異なる。つまり、クラスタのサイズが 10nm 以下になるとシングルドメインを持つクラスタとなり GaAs:MnAs は超常磁性となる。また、GaAs:MnAs 中の MnAs クラスタのサイズが 10nm 以上のときには、GaAs:MnAs は超常磁性ではなく強磁性を示す。MnAs クラスタサイズは Mn 濃度とアニール温度に依存する。つまり GaAs:MnAs 層は強磁性にも超常磁性にもなりうるユニークかつ制御可能な磁性を持つ III-V 族半導体ベースの材料である。本研究では強磁性を示す GaAs:MnAs を用いている。

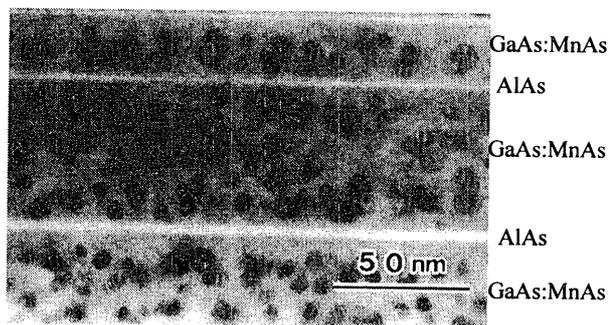


Fig. 5 Cross-sectional TEM image of GaAs:MnAs.

5. 多層構造の作製と磁気光学特性

実際の多層構造作製プロセスについて述べる。3.1~3.3 の計算結果をふまえ、磁性層 GaAs:MnAs を挟み込む DBR 層数は $N_{\text{top}}=2$ 周期, $N_{\text{bottom}}=10$ 周期とした。成長はすべて MBE によって行った。各層の膜厚及び材料は Fig. 1 に示す通りである。GaAs(001) 基板の上に $\text{Al}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{As}$ エッチストップ層を 580°C で成長し ($\text{Al}_{0.9}\text{Ga}_{0.1}\text{As}$ エッチストップ層は多重反射には寄与しないが、後に構造の透過率測定をする際に GaAs 基板を除去するために必要である)、その後、下部 DBR を形成している GaAs/AlAs 層 ($N_{\text{bottom}}=10$ 周期) を 580°C で成長した。その後、いったん基板温度を下げ、(GaMn)As 層 (Mn 濃度は 4%~7%) を 280°C で低温成長する。最後に、基板温度を上昇させ、上部 DBR を形成している GaAs/AlAs 層 ($N_{\text{top}}=2$ 周期) を 580°C で成長した。従って上部 DBR の成長を高温 (580°C) で行う間に GaMnAs 層はアニールされて MnAs ナノクラスターが作製され、GaAs:MnAs となる。

作製した多層膜試料のカー楕円率 η_k の波長依存性を Fig. 6 の太い実線で示す。磁性層 GaAs:MnAs の Mn 濃度は 5.9%、磁性層を挟む DBR の周期数は $N_{\text{top}}=2$, $N_{\text{bottom}}=10$ である。測定は室温にて行い、印加磁場は 10 kG、印加方向は試料に対して垂直方向である。実線で示したものが測定結果、太い実線の右に隣接している太い破線は $N_{\text{top}}=2$, $N_{\text{bottom}}=10$, $\kappa=0.28$ の場

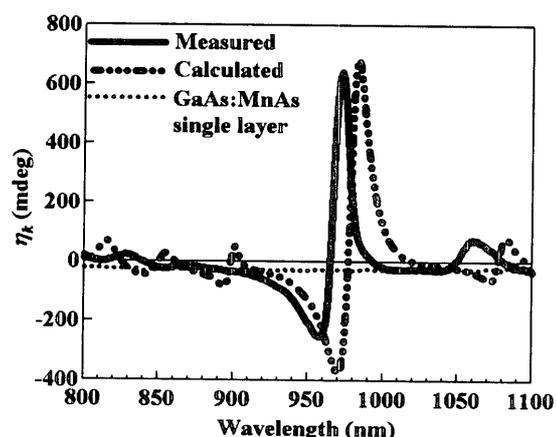


Fig. 6 Measured and calculated Kerr ellipticity (η_k) spectra of the multilayer with GaAs:MnAs sandwiched by DBRs ($N_{\text{top}}=2$, $N_{\text{bottom}}=10$, $\kappa=0.28$).

A spectrum of a 139-nm-thick GaAs:MnAs single layer without DBR is shown as a reference (dotted curve). All the measurements were done at room temperature and under a magnetic field of 10 kG applied perpendicular to the surface.

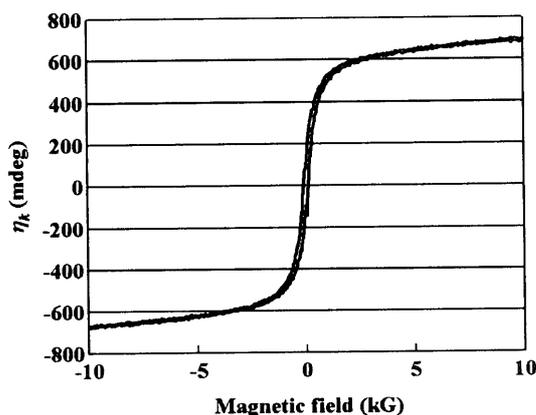


Fig. 7 Magnetic field dependence of the Kerr ellipticity (η_k) at 972 nm of the multilayer structure in Fig. 1 and Fig. 6, measured at room temperature.

合の計算結果である。また、波長依存性がほとんどない細い点線は DBR がない場合、すなわち GaAs:MnAs 単層膜での η_k である。単層膜の膜厚は DBR がある場合と同じ 139 nm、Mn 濃度は 5.7% である。アニールの条件は多層膜、単層膜ともに同じ 580°C、15 分間とした。測定結果より η_k は最大で 645 mdeg に達している。また、 $\kappa=0.28$ における計算結果と測定結果の形状及びそのピーク値共により一致を示している。計算結果に比べ測定結果の曲線がすべての波長に渡って 20 nm ほど短波長側にシフトしている原因は、DBR 及び磁性層の膜厚が設計より 2% 程度薄くなったためだと考えられる。また、測定結果と良い一致を得た $\kappa=0.28$ の値であるが 3.1~3.3 で述べた $\kappa=0.125^{(4),(5)}$ と大きく異なっている。この原因としては、実際にこの試料における GaAs:MnAs の作製条件では MnAs クラスタサイズが比較的大きくなっているために κ も大きくなったこと、また、計算のフィッティングパラメータが κ のみであるために磁性層 GaAs:MnAs、DBR 層 GaAs/AlAs の結晶性、及び各々の界面状態、また磁性層の Mn 濃度の違いをすべて κ のみに集約しフィッティングを行っていることも一因として考えられる。従って、試料の作製条件を最適化して光の損失を小さくし、 κ を 0.125 にすることができればカー楕円率は計算で求めた 5 deg 以上に達する可能性がある。さらに、GaAs:MnAs 単層膜と DBR を含む多層膜構造を比較すると、単層膜の η_k はすべての波長に対してブロードかつその強度も小さいのに対し、多層膜構造試料の η_k は波長に大きく依存し、ブラッグ波長である 980 nm 付近においては最大で η_k が単層膜の 20 倍に増大している。

反射率 R は波長 980 nm 付近で GaAs:MnAs 層の持つ大きな消光係数によって急激に減少し 14.8% である。測定装置の制約からカー回転角 θ_k は直接測定はしていないが、測定で求めたカー楕円率 η_k と計算結果を実験にフィッティングして求めた消光係数 κ を用いてカー回転角 θ_k を見積ると 980 nm 付近において約 800 mdeg に達している。このようにして得られたカー楕円率 η_k とカー回転角 θ_k を用いて性能指数 $Q = \sqrt{R(\theta_k^2 + \eta_k^2)}$ を見積もったところ 0.4 であった。この値は金属の中でも比較的大きなカー効果を示す MnBi が波長 480 nm において 1.13⁽¹⁰⁾ に比べて小さな値となっている。

Fig. 6 のカー楕円率 η_k の波長 972 nm における磁場強度依存性の測定結果を Fig. 7 に示す。Fig. 7 ではわずかながらヒステリシスが見られ、強磁性となっていることが分かる。また磁場

強度 2.7 kG において η_k が 600 mdeg に達していることから、低磁場でも、大きなカー楕円率を得ることができることが分かった。

6. まとめ

III-V 族化合物半導体をベースとした多層膜構造を設計・作製し、大きな光磁気カー効果を室温で観測した。磁性層としては GaAs 中に MnAs ナノクラスターが埋め込まれた半導体:磁性体グラニューラー構造 (GaAs:MnAs) を用い、磁性層の両側から AlAs/GaAs DBR で挟むことにより、光の強度分布を磁性層に閉じ込め、反射磁気光学効果 (カー効果) を増強できることを計算によって示した。下側 DBR の周期数を十分な反射率を示す値 (10 周期) に固定すると、上側 DBR 周期数の最適値は 2 であることがわかった。

実際に MBE を用いて DBR (2 周期) / GaAs:MnAs / DBR (10 周期) から成る多層構造を作製し、その透過率、反射率、反射磁気光学効果を測定した。所望の波長 (約 980 nm) においてカー楕円率 645 mdeg という半導体ベースの材料としては最大級の磁気光学効果を室温で観測した。GaAs:MnAs の消光係数 κ を 0.28 としたときに実験で得られたカー楕円率強度とそのスペクトルを良く説明することができた。また、作製した多層構造中の GaAs:MnAs はソフトな強磁性を示すため、2.7 kG の低磁場において 600 mdeg 以上の大きなカー楕円率が得られた。

本研究で設計・作製した多層構造は、1) すべて III-V 族半導体ベースの材料でできており、光エレクトロニクスデバイスとの整合性が良いこと、2) MBE で作製される単結晶エピタキシャル膜であるため、通常の磁性薄膜に比べて結晶が高品質で界面の急峻性・平坦性や膜厚制御性に優れ、設計自由度が大きいこと、3) III-V 族半導体材料や多層構造の膜厚を変えることにより、原理的には広い範囲で動作波長を選べること、4) これまでの磁性半導体とは異なり、室温かつ低磁場でも大きな磁気光学効果が得られること、など他の半導体材料系にはない優れた特色を持っている。

謝辞: 本研究は、科学技術振興事業団さきがけ研究、東レ科学振興会、文部省科学研究費補助金より助成を受けて行われた。

文献

- 1) J. De Boeck, R. Oesterholt, A. Van Esch, H. Bender, C. Bruynseraede, C. Van Hoof, and G. Borghs, *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 2744, (1966).
- 2) H. Akinaga, S. Miyanishi, K. Tanaka, W. Van Roy, and K. Onodera, *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 97, (2002).
- 3) H. Shimizu, M. Miyamura, and M. Tanaka, *J. Vac. Sci. Technol.*, **B18**, 2063, (2000).
- 4) H. Shimizu, M. Miyamura, and M. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, 1523, (2001).
- 5) M. Tanaka, M. Miyamura, H. Shimizu, *J. Cryst. Growth*, **227-228**, 839, (2001).
- 6) H. Shimizu and M. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.*, **81**, Dec, 30, (2002), in press.
- 7) M. Inoue, K. I. Arai, T. Fujii, and M. Abe, *J. Appl. Phys.*, **85**, 5768, (1999).
- 8) M. J. Steel, M. Levy, and R. M. Osgood, *J. Lightwave Technol.*, **18**, 1289, (2000).
- 9) M. J. Steel, M. Levy, and R. M. Osgood, *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **12**, 1171, (2000).
- 10) K. Egashira and T. Yamada, *J. Appl. Phys.* **45**, 3643, (1974).

2002 年 10 月 7 日受理, 2003 年 1 月 17 日採録