

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05243

研究課題名(和文)(110)面方位の半導体量子構造のスピンダイナミクスとスピンレーザーの実現

研究課題名(英文) Spin dynamics and realization of a spin laser in (110) semiconductor quantum structures

研究代表者

大野 裕三 (Ohno, Yuzo)

筑波大学・数理工学系・教授

研究者番号：00282012

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：トンネル結合した(110)GaAs/AlGaAs超格子のスピン緩和時間を測定した結果、結合の強い超格子でスピン緩和時間は0.7ns以上であった。スピン輸送距離と活性層におけるスピン偏極度の関係を計算した結果、円偏光発振に必要な偏極度(4%)を維持できることを示した。また、(110)GaAs/AlGaAs多重量子井戸構造を高As圧下で従来報告されている結晶成長温度(～450℃)よりはるかに高い540℃まで基板温度を上げて成膜したところ、室温での再結合寿命が40nsを超える非常に高品質な量子井戸構造を得ることができた。また、スピン緩和時間も室温で6nsになるなど、良好な結果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

非磁性半導体においてスピン自由度を活用する半導体スピントロニクスでは、スピン輸送技術の確立が必須である。今回トンネル結合量子井戸からなる(110)面GaAs/AlGaAs超格子においてスピン緩和を調べ、波動関数の広がり制御によりスピン緩和を抑制できることが示され、新しいスピン制御技術として有用であることが示された。また、(110)GaAs/AlGaAs分子線エピタキシ結晶成長では、従来報告されている成長温度より100℃近く高い温度で、高As2圧下で成長すると極めて長いキャリア寿命と、十分長いスピン緩和時間が得られることが初めて示され、(110)面結晶成長メカニズムの解明に一石を投じた。

研究成果の概要(英文)：We proposed to use (110) GaAs/AlGaAs superlattice with tunnel coupled quantum wells as a spin transport layer in a semiconductor spintronics devices. As a result of measuring the spin relaxation time of the tunnel-coupled (110) GaAs / AlGaAs superlattice, the spin relaxation time was 0.7 ns or more in the strongly coupled superlattice. As a result of calculations, it was shown that the polarity (4%) necessary for circular polarized lasing can be maintained in a semiconductor laser. As for the growth of high quality (110) GaAs/AlGaAs quantum well, when the substrate temperature is raised to 540 ° C., which is much higher than the crystal growth temperature (~450 ° C.) conventionally reported under high As pressure, a very high-quality quantum well structure with a recombination life of more than 40 ns at room temperature can be obtained. In addition, the spin relaxation time was 6 ns at room temperature, which showed good results.

研究分野：半導体スピントロニクス

キーワード：半導体スピントロニクス 半導体レーザー 分子線エピタキシ 面発光レーザー

1. 研究開始当初の背景

原子レベルの結晶成長制御やナノスケール微細加工技術、さらに金属・半導体など構造・物性の異なる物質の境界を越えた材料科学の進展により、将来の低消費電力 IT 技術を支える機能デバイス材料・物性として、電子のもつ電気的な性質（電荷）と磁気的な性質（スピン）の両方の自由度を活用するスピントロニクス、特に半導体をベースとする半導体スピントロニクス研究分野が大きく注目されている。

デバイス応用の一例として、半導体スピンレーザーが提案されている。半導体スピンレーザーは、図 1 に示すように半導体面発光レーザーに強磁性体電極を付した構造からなる。電圧を印加するとスピン偏極した電子が活性層に注入され、正孔と再結合したときに光学遷移の選択則により円偏光の光を発する。

活性層での電子スピン緩和が十分抑制されれば、片方のスピン偏極成分のみ閾値を超えて発振することから、閾値電流の半減、すなわち低消費電力化が図れるほか、円偏光を発するので偏光情報の活用が可能となる。このような半導体スピンレーザーを実現するうえで、解決すべき問題点とは何か。今日までこれが実現されていない理由のひとつとして、従来面発光半導体レーザーは(001)面方位の基板上に形成されるが、(001)面の量子井戸構造ではスピン・軌道相互作用によるスピン緩和の影響が強く働き、スピンは室温で数 10ps しか保持されないためスピンレーザーには不適であることがあげられる。一方、本申請者は GaAs 量子井戸構造の面方位を(110)にすることによりこのスピン軌道相互作用に起因するスピン緩和を抑制し数 ns まで伸長できることを世界で初めて実験的に示した(図 2) [1]。また、(110)GaAs/AlGaAs 垂直共振器面発光レーザー (VCSEL) で、光励起による円偏光発振が報告されている。 [2]

(In,Ga)As/(Al,Ga)As 量子井戸構造は、GaAs/ AlGaAs 量子井戸構造より低いエネルギーで発光するため、効率的なスピン偏極電子の電気的注入が可能であること、また GaAs 基板での光吸収が抑えられるため高効率であることが期待される。しかしながら、(110)面は特異な面方位であるため従来の分子線エピタキシー法などで作製する際その結晶成長条件は(001)のものとは大きく異なり、光学的・スピン物性的に高品質な(110)(In,Ga)As/(Al,Ga)As 量子井戸構造を製膜する条件などは現在のところ不明である。これまでの予備実験においては、低温 (<500 K) で成長した試料では非発光再結合が強まるのに対し、高温 (>500 K) では In の再蒸発による組成変化の問題が顕在化している。これをクリアするためには、系統的な試料作製・特性評価が不可欠である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、(110)(In,Ga)As/(Al,Ga)As 量子構造を結晶成長条件を変えながら系統的に成膜し、キャリア再結合寿命やスピン緩和時間など光・スピン物性について系統的な実験を積み重ねていくことにより、半導体スピンレーザーの基盤となる高品質な面発光レーザー (Vertical Cavity Surface Emitting Laser: VCSEL) 構造を作製し、光ポンピングによるレーザー発振、スピン増幅を実証することである。

3. 研究の方法

本研究では、(110)(In,Ga)As/(Al,Ga)As 系半導体ヘテロ構造を対象とし、(1)分子線エピタキシー法による高品質半導体量子構造の作製と、(2) スピンダイナミクス (スピン緩和) の制御、および(3)光ポンピングによるレーザー発振、スピン増幅の実現を目標とし、光デバイスへのスピントロニクス新機能の実現とその応用への展開を目的とする。各年度の研究内容、研究方法は以下のとおりである。

令和元年度

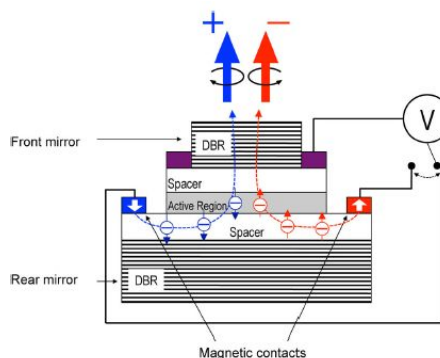


図 1 半導体スピンレーザーの構造・原理

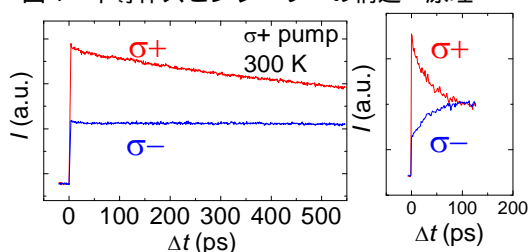


図 2 室温での(110)面(左)と(001)面(右)の GaAs/ AlGaAs 量子井戸構造の電子スピン緩和の様子 [1]

スピン制御(In,Ga)As/(Al,Ga)As 半導体量子構造の創生とスピンドYNAMIKSの解明
 高品質(110) (In,Ga)As/(Al,Ga)As 量子井戸構造を作製し、スピンドYNAMIKSを調べる。主たるスピン緩和機構はD'yakonov-Perel'効果やElliot-Yafet効果であると考えられるが、それを明らかにするために、井戸幅・組成・成膜条件の異なる(In,Ga)As/(Al,Ga)As 量子井戸構造を系統的に作製し、スピン緩和時間の温度依存性などからこれを明らかにする。スピン緩和時間の測定には、現有のフェムト/ピコ秒レーザーシステムを用いた時間分解ポンププローブ測定法、および現有のストリークカメラを用いた時間分解発光寿命測定を行うことにより明らかにする。(In,Ga)As/(Al,Ga)As 量子井戸構造試料は、産総研で分担者の揖場が分子線エピタキシ装置を利用して作製する。

令和2年度以降

スピン制御(In,Ga)As/(Al,Ga)As 半導体量子構造の創生とスピンドYNAMIKSの解明
 平成31年度に引き続き(110)面方位の(In,Ga)As/(Al,Ga)As 量子井戸構造を作製し、スピン緩和時間を時間分解ポンププローブ法または時間分解蛍光分光法により調べ、より長いスピン緩和時間を実現するための構造設計の最適化を図る。また、レーザー発振の実現の観点からキャリア寿命も測定しこれらを最適化する成膜条件を明らかにする。

(In,Ga)As/(Al,Ga)As ベース VCSEL 構造の設計・作製

・円偏光発振の実証(平成32年度)

VCSEL 構造を分子線エピタキシ装置で作製し、ピコ秒モードロックレーザーを用いて円偏光パルス光で励起し、円偏光発振および閾値の減少を確かめる。

・スピン増幅の実証(平成33年度)

VCSEL を直線偏光で励起して閾値に近い状態下に置くと、微弱な円偏光照射によって発振し強い円偏光が放出されると期待される。この原理に基づいてスピン増幅を実証する。

4. 研究成果

4.1 結合量子井戸からなる(110)GaAs/AlGaAs 超格子のスピン緩和[3]

半導体スピンレーザーを構成するスピン注入電極、スピン輸送層、およびスピン発光再結合(活性)層について検討し、デバイス設計指針を建てた。特にスピン輸送層については、デバイスの形状上、スピン注入電極からスピン偏極電子を積層方向に注入でき、かつ5 μm 以上積層面内をスピンを保持して活性層に注入できなければならない。これを解決する手段として、トンネル結合した多重量子井戸からなる(110)超格子を提案した。

超格子のスピン緩和時間は円偏光分解時間分解フォトルミネッセンス(PL)測定法により室温で測定を行った。試料は分子線エピタキシ法で作製した。10周期のGaAs 10nm/Al_{0.3}Ga_{0.7}As L_B nmの超格子構造で、L_B = 1, 1.5, 2, 3の試料を用意した。また、比較のため、60周期のL_B = 10 nmの孤立量子井戸サンプルおよびバルクGaAsも成長した。超格子の第一ミニバンド幅 Δ のL_B依存性を計算したところ、L_B = 1 nmで $\Delta \sim 25$ meVと室温熱エネルギーと同等で、L_B = 3 nmで Δ は5 meVである。これは室温のcw-PL測定結果のPL線幅測定でも確認した。

図3(a)は時間分解PLから求めたスピン偏極度のL_B依存性である。バルクGaAsでは0.1 ns程度で急速にスピン緩和が起こるのに対し、L_Bを厚くしていくと系統的にスピン緩和時間が長くなる。この結果から、スピン緩和時間をミニバンド幅の関数として図3(b)にプロットした。ミニバンド幅25 meVでスピン緩和時間は0.7 ns、17 meVで1.1 nsであった。十分孤立した量子井戸のスピン緩和時間は6 nsで、トンネル結合を強めると1/10近く減少するが、それでもバルクの7倍程度長いスピン緩和時間が得られることを確認した。

実際の面発光レーザー構造を模したモデルにおいて、初期スピン偏極度を20%としてスピン緩和時間をパラメータにレーザー活性層と電極間距離を変化させたときの活性層におけるスピン偏極度を見積もったところ、スピン緩和時間が0.7 nsあれば、円偏光発振に必要な4%以上のスピン偏極度が得られることを示した。これより、(110)GaAs/AlGaAs超格子は、バルクでは実現不可能なスピンレーザーのスピン輸送層として有用であることが示された。

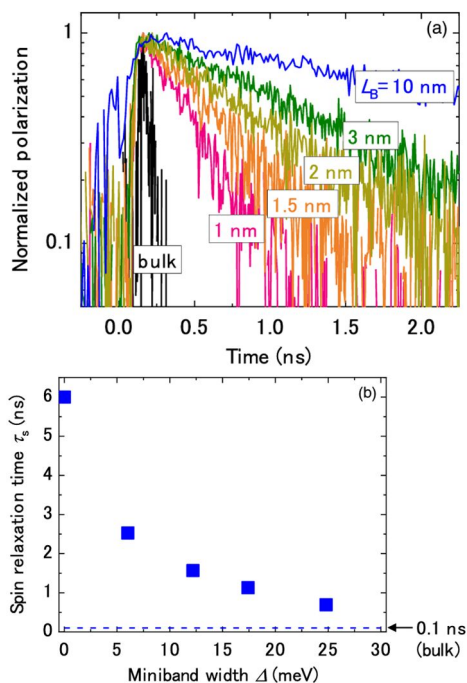


図3(a) GaAs/AlGaAs 超格子の時間分解PL測定における円偏光度の時間変化の障壁厚さ依存性。(b)スピン緩和時間のミニバンド幅依存性。

4.2 (110)GaAs 基板上に製膜した歪(In,Ga)As/AlGaAs 量子井戸の発光特性の改善

半導体スピナーレーザの基幹となる(110)面(In,Ga)As/(Al,Ga)As 多重量子構造を分子線エピタキシー法 (MBE) により成膜し、時間分解フォトルミネッセンス法によりキャリア再結合寿命およびスピン緩和時間を調べた。(110)GaAs/AlGaAs 多重量子井戸構造では、従来報告されている結晶成長温度(~ 450)より はるかに高い 540 まで基板温度を系統的に上げて成膜したところ、室温での再結合寿命が 40ns を超える非常に高品質な量子井戸構造を得ることがわかった。また、スピン緩和時間も 500 で成膜したものは室温で 6ns になるなど、良好な結果が得られた。[4]

レーザ活性層として有望な(In,Ga)As/(Al,Ga)As 構造においても、MBE 法の成長条件 (基板温度) を高温 (~ 540) で成膜することにより、測定温度 10~300K においてキャリア再結合寿命が ~ 2ns のものが得られた。これは従来の成膜条件で作ったものより約 1 桁長いキャリア寿命である。一方、スピン緩和時間については室温で 1ns を超えるものは得られていない。温度依存性を調べると、200K 付近でスピン緩和時間はピーク (~ 2ns) となり、それより高温側では急速に減少することが分かった。

4.3 (110)GaAs/AlGaAs 面発光レーザにおけるスピン増幅

レーザ発振の閾値付近では、強い非線形性が現れるため、ユニークな現象が期待される。円偏光励起におけるレーザ発振では、励起光の偏光度よりも高い発光偏光度が期待できる (スピン増幅)。ここでは、入射光の円偏光度をバビネソレイユ板の遅延量を連続的に変化させたとき、レーザ発振して発光される光の偏光度を室温で測定した。図 4(a) は測定系である。試料は(110)GaAs/AlGaAsVCSEL 構造である[2]。発振閾値付近の発光円偏光度が高い条件下で、ソレイユバビネ波長板による遅延量を $\lambda/4 \sim 3\lambda/4$ に変化させたときの右回りおよび左回りの発光強度 (I^+ , I^-) と、偏光度 $P = (I^+ - I^-) / (I^+ + I^-)$ を図 4(b) に示す。波長板の遅延量が $\lambda/4$ から $\lambda/2$ に向けて変化するとき、ほぼ 80% の範囲で偏光度 P はほぼ 1 になっている。つまり、励起光の円偏光度が 20% 程度になっても円偏光発振していることになる。遅延量が $\lambda/4$ のとき、自然放出光の偏光度がおよそ 20-30% 程度とすると、注入された電子のスピン偏極度は 4~6% でも、円偏光発振することがわかる。これは、レート方程式から求めた条件とよく一致する[2]。

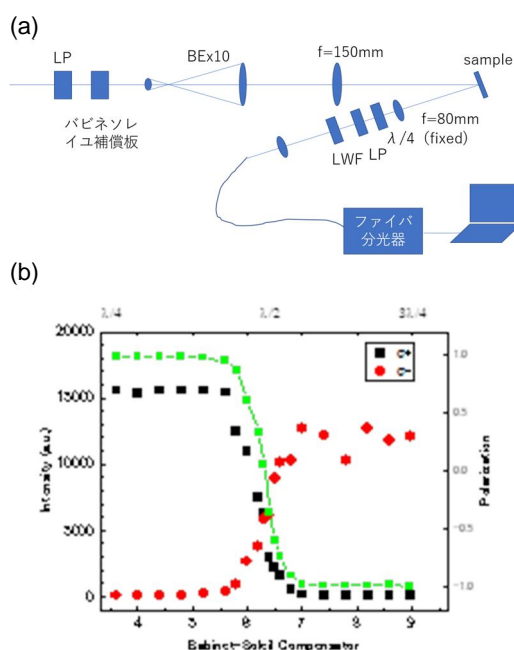


図 4(a) スピン増幅実験の測定系。(b) 発光偏光度の励起光偏光度依存性。

参考文献

- [1] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura, and H. Ohno, "Spin relaxation in GaAs (110) quantum wells", *Physical Review Letters* 83, 4196 (1999).
- [2] S. Iba, S. Koh, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, "Room temperature circularly polarized lasing in an optically spin injected vertical-cavity surface-emitting laser with (110) GaAs quantum wells", *Applied Physics Letters* 98, 081113 (2011).
- [3] Y. Ohno, S. Iba, R. Okamoto, Y. Obata, K. Obu, J.J.P. Dominguez, and H. Saito, "Room-temperature spin relaxation in a (110)-oriented GaAs/AlGaAs superlattice with tunnel-coupled quantum wells", *Applied Physics Express* 13, 123003 (2020).
- [4] S. Iba, R. Okamoto, K. Obu, Y. Obata, and Y. Ohno, "Impacts of Crystal Quality on Carrier Recombination and Spin Dynamics in (110)-Oriented GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Wells at Room Temperature", *Micromachines* 12, 1112 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ishihara Jun, Suzuki Takuya, Kitazawa Go, Mori Takachika, Ohno Yuzo, Miyajima Kensuke	4. 巻 105
2. 論文標題 Spatiotemporal spin dynamics of two-dimensional electron gas with ballistic motion in persistent spin helix state	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144412 ~ 144412
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.144412	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Iba Satoshi, Okamoto Ryogo, Obu Koki, Obata Yuma, Ohno Yuzo	4. 巻 12
2. 論文標題 Impacts of Crystal Quality on Carrier Recombination and Spin Dynamics in (110)-Oriented GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Wells at Room Temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Micromachines	6. 最初と最後の頁 1112 ~ 1112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/mi12091112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nakanishi Koichi, Arikawa Ayuki, Saito Yasuhito, Iizasa Daisuke, Iba Satoshi, Ohno Yuzo, Yokota Nobuhide, Kohda Makoto, Ishitani Yoshihiro, Morita Ken	4. 巻 119
2. 論文標題 Room-temperature spin/orbit magnetic fields in slightly misoriented (110) InGaAs/InAlAs multiple quantum wells	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 032405 ~ 032405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0055876	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ohno Yuzo, Iba Satoshi, Okamoto Ryogo, Obata Yuma, Obu Kouki, Domingez Jonathan Johan Pascual, Saito Hidekazu	4. 巻 13
2. 論文標題 Room-temperature spin relaxation in a (110)-oriented GaAs/AlGaAs superlattice with tunnel-coupled quantum wells	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 123003 ~ 123003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/abf66	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ishihara Jun, Kitazawa Go, Furusho Yuya, Ohno Yuzo, Ohno Hideo, Miyajima Kensuke	4. 巻 101
2. 論文標題 Zero-field spin precession dynamics of high-mobility two-dimensional electron gas in persistent spin helix regime	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 094438 ~ 094438
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.094438	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wang Zi-Han, Yoon Cheul-Hyun, Yoshida Shoji, Arashida Yusuke, Takeuchi Osamu, Ohno Yuzo, Shigekawa Hidemi	4. 巻 21
2. 論文標題 Surface-mediated spin dynamics probed by optical-pump/probe scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 7256 ~ 7260
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8cp07786j	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Keswani N., Nakajima Y., Chauhan N., Ukai T., Chakraborti H., Gupta K. D., Hanajiri T., Kumar S., Ohno Y., Ohno H., Das P.	4. 巻 116
2. 論文標題 Complex switching behavior of magnetostatically coupled single-domain nanomagnets probed by micro-Hall magnetometry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 102401 ~ 102401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5144841	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 揖場 聡、岡本 亮吾、小畑 優真、大部 公暉、PASCUAL DOMINGUEZ JONATHAN JOHAN、齋藤 秀和、大野 裕三
2. 発表標題 (110)GaAs超格子構造における室温スピン緩和時間
3. 学会等名 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 揖場 聡、岡本 亮吾、齋藤 秀和、大野 裕三
2. 発表標題 (110)GaAs/AlGaAs量子井戸の高温MBE成長
3. 学会等名 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大野 裕三、岡本 亮吾、小畑 優真、大部 公暉、PASCUAL DOMINGUEZ JONATHAN JOHAN、揖場 聡、齋藤 秀和
2. 発表標題 GaAs/Al _{0.3} Ga _{0.7} As (110)超格子におけるスピン緩和
3. 学会等名 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	揖場 聡 (Iba Satoshi) (90647059)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・ 製造領域・主任研究員 (82626)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------