

令和 4 年 6 月 24 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02181

研究課題名（和文）超高品質エピタキシャル成長技術によるスピン・フォトン変換デバイスの開発

研究課題名（英文）Development of spin-photon conversion device by ultra high quality epitaxial growth technology

研究代表者

揖場 聡（Iba, Satoshi）

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

研究者番号：90647059

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：電子スピンからフォトンへの変換機構を利用して円偏光で発振する半導体レーザー「スピンレーザー」の実現へ向けて基盤技術開発に取り組み、次の成果を得た。(i)新規スピン輸送層としてトンネル結合を有する(110)面超格子構造を提案し、当該構造においてスピン情報の長時間保持を実証した。(ii)(110)面InGaAs/AlGaAs量子井戸活性層の高品質結晶成長技術を確立した。(iii)(110)面LED構造上に磁性金属/トンネル障壁層からなるスピン注入電極を形成し、LED活性層への電氣的スピン注入に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発したスピンレーザーの基盤技術を基に、今後、高性能なスピンレーザーが実現され、光通信やセンシングなど様々な領域でスピンレーザーが次世代光源として利活用されることが期待される。また、(110)面超格子構造におけるスピン寿命の構造依存性などスピン物性を初めて明らかにすることもでき、学術的にも興味深い知見を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：We have developed elemental technologies towards the realization of a novel semiconductor laser "spin laser" that oscillates with circularly polarized light by utilizing an electron spin-to-photon conversion mechanism, and have achieved the following results. (i) We proposed a superlattice structure consisting of (110)-oriented tunnel-coupled quantum wells as a new spin transport layer, and demonstrated a long spin lifetime in the structure. (ii) We established a high-quality crystal growth technique for (110)-oriented InGaAs/AlGaAs quantum well active layers. (iii) Spin injection electrodes consisting of a magnetic metal/tunnel barrier layer were formed on the (110)-oriented LED structure, and electrical spin injection into the LED active layer was successfully achieved.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：電子スピン レーザ GaAs スピン緩和 円偏光 量子井戸

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、半導体中の電子スピンとフォトン偏光の変換機構を活用するレーザ「スピンレーザ」が注目されている。レーザ活性層において、片側のスピン数が他方よりも多い状態(スピン偏極状態)を実現すれば、再結合過程において円偏光が放射される。そのため、活性層中のスピン状態を制御すれば円偏光でレーザ発振させることが可能となる。スピンレーザの特徴であるコヒーレント円偏光は次世代の光通信や量子情報通信、更には、偏光を利活用した物体形状や量子状態のセンシングなど広範囲に応用できる可能性を秘めており、その技術発展が期待されている。

このようにスピンレーザには期待が大きいものの、その実用化には未だ多くの課題がある。スピンレーザ構造(図 1)は活性層および輸送層上に磁性金属/トンネル障壁層から成るスピン注入電極(図 1①)が形成されており、スピン偏極電子は当該電極から輸送層(図 1②)へ注入され(電気的スピン注入)、活性層(図 1③)へ輸送後、当該部で光学遷移選択則(電子と光子間での角運動量保存則)に従って偏光したレーザ光が生成される。輸送層や活性層は非磁性体であるためスピン偏極の保持時間(スピン寿命)が有限である。従って、輸送層へスピン注入後、活性層で発光再結合するまでの間、スピン偏極の減少を最小にする長スピン寿命の材料が求められるが、要求性能を満たす材料は未だ実現されていない。また、素子への効率的なキャリア・スピン注入も大きな課題である。

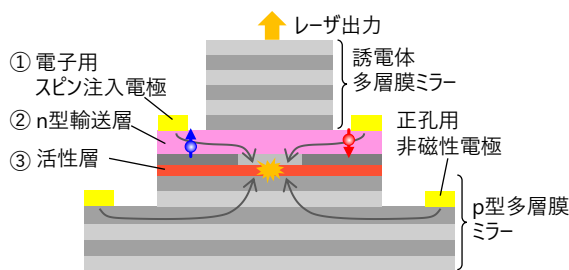


図 1 スピンレーザ構造図

※正孔スピン寿命は極めて短いため(電子の 1/10 以下)、発光の偏光は電子スピン偏極で決まる。

### 2. 研究の目的

以上の背景から、本研究では長スピン寿命を持つ新規スピン輸送層・活性層及び効率的なキャリア・スピン注入技術の開発に取り組み、スピンレーザの基盤技術を確立することを目的とする。

### 3. 研究の方法

#### 3. 1 スピン輸送層向け(110)GaAs 系超格子構造の作製とスピン物性評価

スピンレーザではデバイス構造上、電子スピンを面内および面直方向に輸送する必要がある。このような観点から先行研究[1]ではスピン輸送層として GaAs バルクが使用されているが、当該材料におけるスピン寿命は 0.1 ns 程度と極めて短い。それ故、電子を輸送中にスピン偏極が著しく減少し、円偏光発振特性が低下することが指摘されている。そこで本研究では長スピン寿命を示す材料候補として(110)面 GaAs 量子構造に着目した。(110)GaAs/AlGaAs 量子井戸は室温においてナノ秒台のスピン寿命を有することが知られているが[2]、面内に電子が閉じ込められるため、活性層へ面直方向の輸送を必要とする輸送層には不適である。そこで、面内および面直方向への移動を可能とするために、トンネル結合を有する(110)GaAs/AlGaAs 超格子構造を新規スピン輸送層として利用することを提案した。

超格子構造の作製には分子線エピタキシー法を利用し、成膜条件は成長温度 500 °C、As<sub>2</sub>/Ga フラックス比 80 とした。試料構造は GaAs(110)基板上の 10 周期のトンネル結合 GaAs(10 nm)/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As(L<sub>B</sub> = 1~3 nm)である。参照として非トンネル結合の多重量子井戸(L<sub>B</sub> = 10 nm)および GaAs バルク(3 μm)も成膜した。フォトルミネッセンス(PL)スペクトルから試料の電子状態、ストリークカメラを用いた偏光時間分解 PL 法により電子スピン寿命 τ<sub>s</sub> を評価した。

#### 3. 2 高品質な歪(110)InGaAs/AlGaAs 量子井戸の作製とスピン物性評価

上記で述べた通り(110)GaAs/AlGaAs QW では室温で $\tau_s$ がナノ秒台に達するなどスピンの観点から注目されてきたが[2]、スピンレーザの活性層材料としても期待が大きい。円偏光で発振するスピンレーザの応用を見据えると、発光波長を広帯域(860~1050 nm)で制御可能なGaAs(110)基板上の歪InGaAs/(Al)GaAs QW は有力な候補である。しかし GaAs(110)面は非極性面であるため、供給する As 原子の吸着係数が低く、結晶品質の指標である長いキャリア寿命 $\tau_c$ (1 ns 以上)と平滑な表面(平均粗さ  $R_a < 0.2$  nm)の両者を兼ね備える高品質結晶成長は実現されていない。先行研究では多数の非発光再結合中心により室温 $\tau_c$ が 50 ps 程度と極めて短い[3]。さらに、 $\tau_c$ が短いため $\tau_s$ の評価も困難であった。そこで、(110)InGaAs/AlGaAs QW のスピンレーザ活性層への応用を目指して、従来とは大きく異なる成長条件を探索した。

試料は分子線エピタキシー法により、GaAs(110)基板上に 5 周期の  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}(10 \text{ nm})/\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  量子井戸を作製した。成膜条件として、既報に比べて高い成長温度(460~500 °C)、高い  $\text{As}_2/\text{Ga}$  フラックス比(80~240)を採用した。表面平坦性の評価には原子間力顕微鏡(AFM)、室温での $\tau_c$ および $\tau_s$ の評価には偏光時間分解 PL 法を用いた。

### 3. 3 スピン注入電極を備えた(110)面 LED 素子の作製とスピン注入特性評価

(110)GaAs 系 QW は長い $\tau_s$ を有するためスピンレーザ活性層として有望な材料であるが、先行研究では当該材料へのスピン偏極生成には光励起手法が専ら利用されている。スピンレーザの実用化を見据えると、磁性電極を利用した(110)QW への電氣的スピン注入が必須であるものの、先行研究事例は極めて少ない。そこで本研究ではスピン注入電極の低抵抗化に資すると期待されている  $\text{GaO}_x$  をトンネル障壁層として採用したスピン LED 素子の開発を試みた。

活性層を(110)GaAs/AlGaAs とした pin 接合から成る LED ウェハ上にスピン注入電極(Fe 5 nm/ $\text{GaO}_x$  3 nm)を電子ビーム蒸着法により室温で成膜した。成膜中の反射高速電子線回折パターンより Fe は配向膜、 $\text{GaO}_x$  はアモルファス膜であることが分かった。微細加工により正孔用電極などを形成後、LED 発光の円偏光度を計測することでスピン注入特性を評価した。

## 4. 研究成果

### 4. 1 (110)GaAs 超格子構造における長スピン寿命

バリア幅  $L_B$  を狭くするにつれて PL ピーク波長が長波長側にシフトし、かつ、線幅が広がった(図 2(a))。これはバリア幅が狭くなると隣接井戸層間で電子波動関数が結合し、成長軸方向の量子化エネルギーがバンド状に幅を持って広がること、即ち、電子が面直方向へ移動し易くなることを表している。バリア幅を狭くするとスピン偏極度の時間波形の傾きが大きくなり( $\tau_s$  が減少)、 $L_B = 1$  nm の超格子試料では $\tau_s = 0.7$  ns の値を示した(図 2(b))。この値はバルク(0.1 ns)より 7 倍もの長い値である。これらの測定値を利用した簡単なスピン輸送モデル計算により、(110)GaAs 超格子構造を利用すると室温でスピンレーザの円偏光発振が期待できることが明らかとなった。

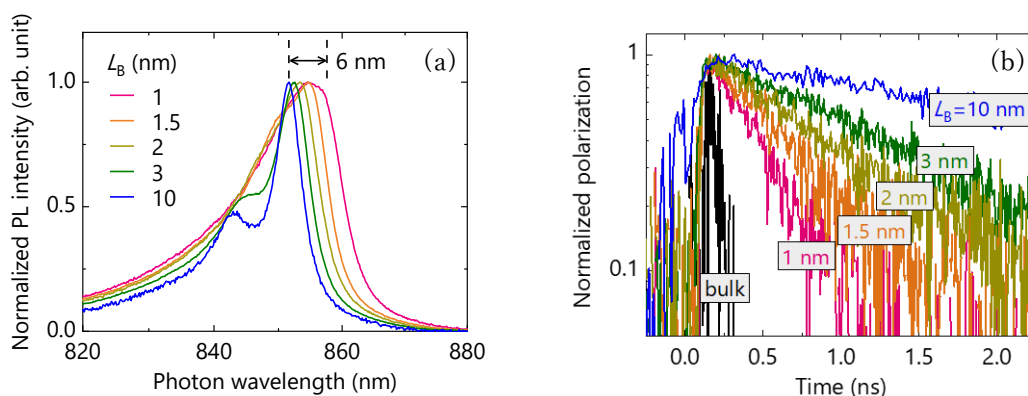


図 2(a)室温 PL スペクトル、(b)室温 PL 円偏光度(最大値で規格化)の時間波形

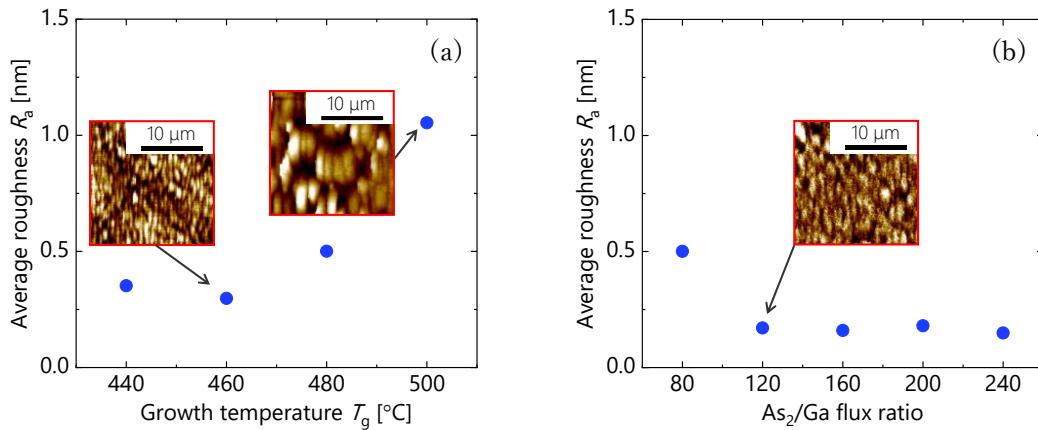


図3 AFM 表面粗さ ( $R_a$ ) の (a) 成長温度依存性、(b)  $As_2/Ga$  フラックス比依存性

#### 4. 2 歪(110)InGaAs/AlGaAs 量子井戸の平坦性とキャリア・スピン寿命

$As_2/Ga$  フラックス比を 80 で固定し成長温度を 460 から 500 °C へ上げると、 $\tau_c$  は長くなる傾向を示したが表面平坦性は 0.3 nm から 1.1 nm まで悪化した(図 3(a))。そこで成長温度を 480 °C で固定し、 $As_2/Ga$  フラックス比を高くすると、図 3(b) に示す通り表面平坦性が大幅に向上した(表面粗さ  $R_a < 0.2$  nm)。(110)面上の結晶成長ではファセット構造が形成されやすいが、 $As_2/Ga$  フラックス比を従来の 10 倍以上に上げることで平坦性のよい試料を作製できることが分かった。 $\tau_c$  も一段と長くなりナノ秒オーダーの値を示した。一例として成長温度 480 °C、 $As_2/Ga$  フラックス比 120 で成長した試料の偏光時間分解 PL 測定結果を図 4 に示す。室温の  $\tau_c$  は 2.4 ns であり、これは既報の約 50 倍に相当する極めて長い値である。これにより  $\tau_c$  を精度よく測定することが可能となり、当該材料の  $\tau_c$  が室温でナノ秒オーダーであることが初めて明らかとなった。一連の結果より、高い成長温度および高い  $As_2/Ga$  フラックス比の成長条件領域でデバイス品質の成膜が可能であることが分かった。

#### 4. 3 (110)スピン LED 活性層への電気的スピン注入特性

室温での電流電圧特性測定より、作製した LED 素子は立ち上がり電圧が 1.4 V と通常の LED 素子と同様な値を示した。GaAs(110)面上の Fe/GaO<sub>x</sub> スピン注入電極の作製は初めての試みであるが、期待通りの低い接合抵抗が得られることが分かった。低温(10 K)における LED 出力円偏光度の印加磁場依存性を図 5 に示す。Fe の磁化方向が面直となる印加磁場領域(> 2 T)では約 10%の円偏光度が観測された。10 K でのキャリア寿命とスピン寿命を勘案すると、約 20%のスピン偏極度を活性層に生成できたことを意味する。以上の結果より、低抵抗な Fe/GaO<sub>x</sub> スピン注入電極を利用して(110)LED 活性層への電気的スピン注入に成功した。

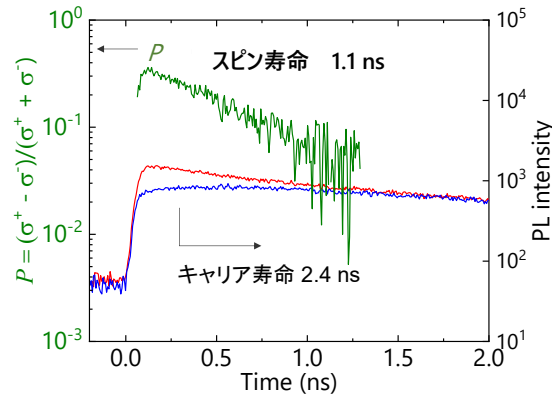


図4 偏光分解 PL の時間波形

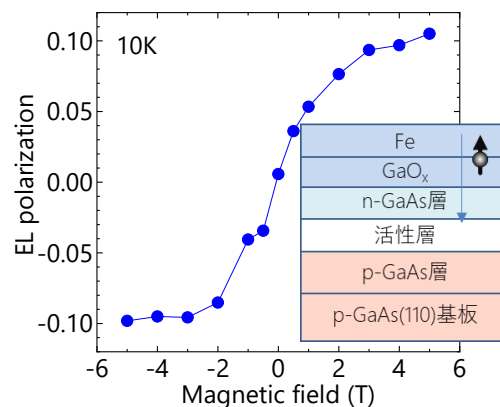


図5 LED 円偏光度の印加磁場依存性

#### 参考文献

- [1] D. Basu et al., APL 92, 091119 (2008). [2] Y. Ohno et al., PRL 83, 4196 (1999). [3] L. Schreiber et al., PSS B 244, 2960 (2007).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 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 オープンアクセスとしている（また、その予定である）	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 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 3件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Iba Satoshi, Ohno Yuzo
2. 発表標題 Spin relaxation in (110) GaAs superlattices with tunnel-coupled quantum wells for both lateral and vertical spin transport
3. 学会等名 SPIE Optics and Photonics 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Iba Satoshi, Saito Hidekazu, Ohno Yuzo
2. 発表標題 Recent progress on crystal growth of high-quality (110)GaAs-based quantum wells for spin laser
3. 学会等名 SPIE Optics and Photonics 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 揖場 聡, 大野裕三
2. 発表標題 高品質(110)歪InGaAs/AlGaAs量子井戸のMBE成長
3. 学会等名 PASPS-26
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 揖場 聡, 大野裕三
2. 発表標題 室温で長いキャリア寿命を有する(110)歪InGaAs量子井戸のMBE成長
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Iba Satoshi, Okamoto Ryogo, Obata Yuma, Obu Kouki, Domingez Jonathan Johan Pascual, Saito Hidekazu, Ohno Yuzo
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 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Ohno, R. Okamoto, Y. Obata, K. Obu, S. Iba, S. Saito
2. 発表標題 Spin dynamics in GaAs/AlGaAs superlattice
3. 学会等名 JSPS/EPSC/CNRS Core-to-core Seminar (招待講演)
4. 発表年 2019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 <sub>0.3</sub> Ga <sub>0.7</sub> As (110)超格子におけるスピン緩和
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020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 第67回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	大野 裕三 (Ohno Yuzo) (00282012)	筑波大学・数理物質系・教授  (12102)	

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
---------	---------