

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 27 日現在

機関番号：14603

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656240

研究課題名（和文） スピンフォトリックデバイスの創成

研究課題名（英文） Creation of spin-photonic devices

研究代表者

河口 仁司 (KAWAGUCHI HITOSHI)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授

研究者番号：40211180

研究成果の概要（和文）：半導体中の電子のスピン状態を制御し、光機能デバイスを創成する試みは、光・量子情報処理への新しい展開を拓くと期待される。電子スピンの揃った状態が長く続く結晶方位を用いた面発光半導体レーザを作製し、広い波長領域にわたり円偏光発振を得た。又、ナノサイズの構造を作製し、左右円偏光間的高速スイッチングを実現した。さらに光通信波長域で動作する材料で量子井戸構造を作製し、電子スピンの緩和時間を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：Creation of optical functional devices using electron-spin controlled semiconductor structures will develop new types of optical and quantum-electronic signal processing. We fabricated vertical-cavity surface-emitting lasers with long electron-spin relaxation times and achieved lasing with a circular polarization over a wide wavelength range. We also achieved fast switching between right and left circular polarizations with nano-size structures. Moreover, we grew quantum wells operating at the optical communication wavelength and evaluated their electron-spin relaxation times.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子デバイス・電子機器

キーワード：スピン注入、スピン緩和、スピン面発光半導体レーザ、円偏光レーザ発振、円偏光スイッチ、(110)量子井戸、フォトリックデバイス

## 1. 研究開始当初の背景

半導体中の電子のスピン状態を制御し、新しい光機能デバイスを創成する試みは、光エレクトロニクスとスピントロニクスとの融合領域を作り出す可能性があり、また、光・量子情報処理への新しい展開が期待される。

半導体中に片側スピン方向（up または down）の電子が多く存在する場合、量子井戸（QW）におけるスピン選択則を介して、電子のスピン偏極方向に依存した円偏光の発光が得られる。スピン偏極した電子を注入

することにより半導体レーザの発振しきい値が低減でき、又、円偏光発光デバイスは光通信システムの大容量化、セキュリティ性向上に寄与すると考えられる。

面発光半導体レーザ（VCSEL）は（100）GaAs 基板上に作製されるのが一般的である。（110）面上の GaAs QW ではスピン緩和時間が極めて長くなり、電子のスピン状態を制御することにより一層顕著にレーザ発振偏光を制御できる可能性がある。しかし、分子線エピタキシー（MBE）法により成長し

た(110)面上の GaAs 系の薄膜の平坦性は悪い。研究代表者らは成長条件を最適化し、長い電子スピン緩和時間(室温で約 2 ns)を持つ GaAs/AlGaAs QW を作製した。(110)GaAs/AlGaAs QW は室温においても長いスピン緩和時間をもつことから、電磁誘導透過(EIT)を用いたスローライト発生など、室温で動作する電子スピンを用いた新しい光機能デバイスの基盤技術になるものと期待される。

## 2. 研究の目的

半導体中の電子のスピン状態を制御し、光機能デバイスを創成する試みは、光エレクトロニクスとスピントロニクスとの融合領域を作り出す可能性があり、光・量子情報処理への新しい展開が拓けるものと期待される。本研究では、Fe/Pt など垂直に磁化した強磁性電極から、スピン緩和時間が長い(110)GaAs系 VCSEL に電流注入することにより円偏光レーザ発振を実現する。磁化方向が反平行な複数の電極を VCSEL 上に形成し、VCSEL の高速変調、レーザ発振偏光のスイッチ・双安定スイッチングを可能にする。又、(110)GaAs 量子井戸構造をもつ光導波路を作製し、電磁誘導透過(EIT)現象を観測すると共に、この現象を用いてスローライトの実現を目指す。

## 3. 研究の方法

研究開始当初の主要な研究計画・方法は以下の3点であった。

- (1) 光励起(110)VCSEL の高速円偏光スイッチングを実現する。
- (2) 電流注入による円偏光レーザ発振を実現する。
- (3) 電界によるスピン緩和時間制御を用いて VCSEL の高速スイッチングをめざす。

(1)を中心に研究を開始し、研究成果で述べられるように、円偏光レーザ発振とその高速スイッチングで大きな成果を得た。又、未公表ではあるが、電流注入による円偏光発光も確認し、円偏光レーザ発振実現まで、もう一歩のところまで来た。本研究を行っている間に、光通信で用いられる 1.55  $\mu\text{m}$  帯の VCSEL 材料となりうる(110)InGaAs/InAlAs 量子井戸の品質向上に成功し、初めてスピン緩和時間を評価し、電磁誘導透過(EIT)現象の観測や、この現象を用いたスローライトの実現などの下地をつくった。

## 4. 研究成果

- (1) スピン面発光半導体レーザの広波長帯域円偏光発振

半導体中のスピン状態を利用する種々の高機能スピン光デバイスが提案されている。その中でも、光学遷移選択則(図 1)を利用

して円偏光で発振するスピン面発光半導体レーザは、スピン情報の増幅や発振閾値の低減といったユニークな機能が期待できる。スピン VCSEL の重要な性能指数はレーザ発振出力光の円偏光度  $P_c = |(I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}) / (I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-})|$  であり、一般に、左右円偏光モードの光学利得の差が大きくなるほど  $P_c$  が大きくなる。ここで、 $I_{\sigma^-}$  および  $I_{\sigma^+}$  はそれぞれ VCSEL の光出力強度の左右円偏光成分である。円偏光でレーザ発振するためには、この光学利得差が発振中保持されること、即ち、伝導帯電子のスピン偏極状態がレーザ発振中保持されることが求められる。そのためには、長い電子スピン緩和時間が必要となる。また、光学遷移選択則において、スピンの揃った電子が正孔と再結合する際、重い正孔(hh)と軽い正孔(lh)では、反対の円偏光を発振する。そのため、円偏光発振特性は発振波長依存性を示すと考えられる。

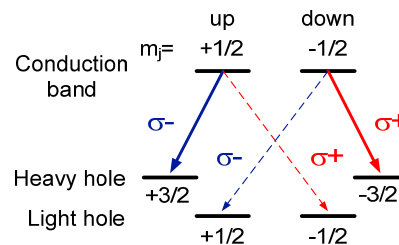


図 1. 直接遷移型閃亜鉛鉱構造半導体の光学遷移選択則

本研究では、室温でナノ秒オーダーの長い電子スピン緩和時間を示す(110)GaAs/AlGaAs QW を活性層とした VCSEL を作製し、室温において高  $P_c$  を持つ円偏光発振に成功した。さらに、e-lh から e-hh 波長に渡り、円偏光発振特性の発振波長依存性を調べた。

図 2(a)に作製した VCSEL の構造を示す。VCSEL ウエハは、半絶縁性 GaAs(110)基板上に MBE 法を用いて結晶成長しており、上下の分布ブラッグ反射鏡(DBR)で形成した共振器に QW が挿入されている。活性層には、9 層の GaAs/Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>As QW (井戸幅 10 nm、バリア幅 10 nm) を採用しており、2 $\lambda$  共振器中で光強度がピークとなる 3 つの位置に 3 層ずつ配置した。量子準位計算による QW の e-lh および e-hh 波長はそれぞれ 843, 853 nm である。DBR は、高屈折率層 Al<sub>0.21</sub>Ga<sub>0.79</sub>As と低屈折率層 Al<sub>0.91</sub>Ga<sub>0.09</sub>As を光学長が  $\lambda/4$  となる厚さで、上側 35 周期、下側 36.5 周期を積層して形成した。作製した VCSEL ウエハの断面構造を走査型電子顕微鏡(SEM)により観察した結果、結晶欠陥がなく高品質結晶であることが分かった(図 2(b))。MBE 法により作製された本試料には膜厚の

面内分布があるため、図3に示すように、共振器の共振波長は大きな面内分布を示した。一方、図中に破線で示したように、活性層の e-lh および e-hh 波長は面内ではほぼ変化しない。VCSEL の発振波長は主に DBR 共振器の共振波長で決まるため、光励起箇所を変えることで、同一ウエハ内で共振器の共振波長、即ち、レーザ発振波長を変化させ、e-lh から e-hh 波長に渡り、円偏光特性を評価することが可能となる。

作製した VCSEL の活性層中に、モード同期チタンサファイアレーザの円偏光励起パルスを使用してスピン偏極電子を生成し、室温におけるレーザ発振特性を評価した。VCSEL からの光出力スペクトルは CCD 分光器を用いて測定した。励起偏光は  $\sigma^+$  偏光、励起波長はレーザ発振に必要なキャリア密度を容易に得るために 730 nm とした。この励起波長では、GaAs 井戸層だけでなく、バリア層やスペーサー層を含め、活性層全体でキャリアを生成できる。

図4(a)に、VCSEL 光出力の左右円偏光( $\sigma^-$ ,  $\sigma^+$ )モードの発振閾値  $I_{th}$  および最大円偏光度  $P_c$  の波長依存性を示す。また、図4(b)に発振スペクトルを示す。e-lh 波長を含めて、いずれの発振波長においても  $\sigma^+$  成分で円偏光レーザ発振した。レーザ発振波長が長波長になるにつれて左右円偏光モードの  $I_{th}$  の差は大きくなった。また、 $P_c$  も長波長になるにつれて増大する傾向を示した。これらの結果は、 $\sigma^+$  モードが、e-lh から e-hh 波長に渡り  $\sigma^-$  モードより大きく、かつ、e-hh 波長側では両モードの利得差がより開いていることを示唆している。これを確かめるため、上部 DBR ミラーを除去した試料を用いて、活性層の円偏光フォトルミネセンス(PL)特性を評価した。励起強度  $I_{ex}$  を 0.2 kW/cm<sup>2</sup> から 0.8 kW/cm<sup>2</sup> へと増加させると、逆円偏光を発する 2 つの準位からのスペクトル重複により PL の円偏光度は減少したものの、e-lh 波長近傍においても  $\sigma^+$  成分の発光の方が強く、いずれの波長においても  $\sigma^+$  成分の発光が支配的であることが分かった。このような円偏光

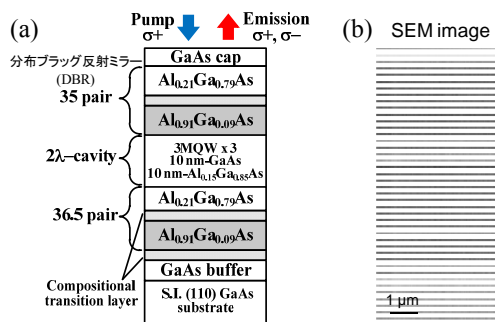


図2. (a) (110)VCSEL の構造, (b)断面 SEM 写真

PL 特性を生み出した要因としては、使用した QW の井戸幅が比較的厚く、lh と hh 準位間のエネルギー差が 15 meV 程度と小さいことが挙げられる。

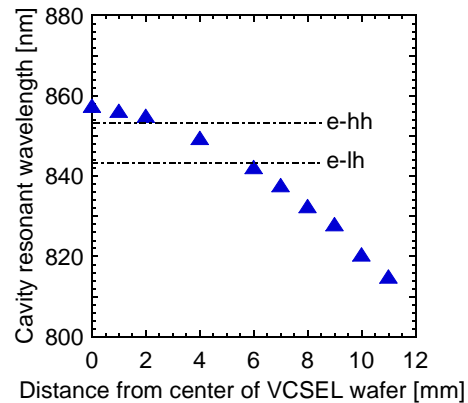


図3. 共振器の共振波長および遷移波長のウエハの中心からの距離依存

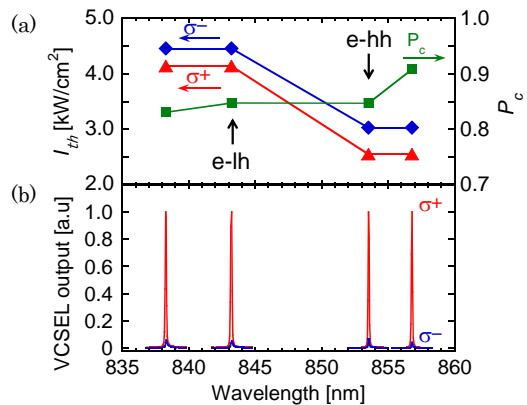


図4. (a)レーザ発振励起強度しきい値  $I_{th}$  と  $P_c$  の最大値のレーザ発振波長依存性, (b) VCSEL の発振スペクトル

## (2) 電子スピン緩和時間測定法の検討

半導体中に光励起した電子のスピン緩和時間測定法として、偏光時間分解フォトルミネッセンス (PTRPL) 測定法、カー回転や反射率変化を利用した反射型ポンプ・プローブ測定法などが知られているが、これらの測定による結果を比較した報告はない。GaAs/AlGaAs(110)多重量子井戸(MQW)を用い、これら 3 種類の測定法について比較した。

光源にはモード同期チタンサファイアレーザを用い、回折格子とスリットでパルス光の波長幅を約 1.2 nm (パルス幅: 約 1.7 ps) に制限して測定を行った。図5に 77 K において測定したフォトルミネッセンス励起 (PLE)スペクトル(a)、PTRPL 測定によるスピン偏極率と PL スペクトル(b)、ポンプ・プローブ測定によって得られたカー回転角(c)

と反射率変化(d)の励起後 50 ps における波長依存性を示す。PTRPL 測定(b)は電子のスピ  
ン偏極率が求まる点で有利であり、 $E_1$ - $HH_1$   
準位間の共鳴波長付近で最大となる。カー回  
転角の測定(c)からはスピ  
ン偏極率の値は求  
まらないが、 $E_1$ - $HH_1$  準位間の共鳴波長付近  
で明瞭な変化が得られ、スピ  
ン緩和時間の測  
定に有利であることがわかる。右回り( $\sigma^+$ )と  
左回り( $\sigma^-$ )の円偏光でプローブされた反射率  
変化( $L_+$ ,  $L_-$ )は、 $E_1$ - $HH_1$  準位間の共鳴励起波長  
において 100 %のスピ  
ン偏極率を仮定するこ  
とで、電子のスピ  
ン偏極を反映した phase  
space filling の効果と、スピ  
ン偏極に依存し  
ないクーロン効果に分離できるが、図 5(d)  
を見ると  $E_1$ - $HH_1$  準位間の共鳴励起波長にお  
いて  $L_+$ と  $L_-$ の差は小さく、クーロン効果による  
反射率変化が支配的であると考  
えられる。

また、室温において各測定方法を用いて電子  
スピ  
ン緩和時間を測定した結果、いずれの  
方法においても 1.5 ~ 2.1 ns の値が得られた。

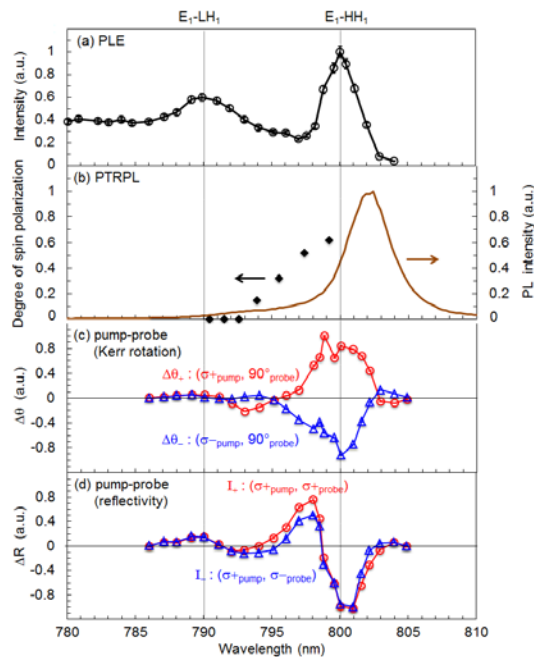


図 5. PLE スペクトル(a)、PTRPL 測定によるスピ  
ン偏極率と PL スペクトル(b)、ポンプ・プロ  
ープ測定によるカー回転角(c)と反射率変化  
(d)の波長依存性

### (3) マイクロポストの電子スピ ン緩和時間の 評価

スピ  
ン面発光半導体レーザ(VCSEL)では、  
活性層中の電子のスピ  
ン偏極を制御するこ  
とにより、発振閾値の低減や円偏光発振が実  
証されており、次世代の光通信用デバイスと  
して期待されている。電子スピ  
ン緩和時間  $\tau_s$   
の長い(110)MQW に着目し、これを活性層と  
したスピ  
ン VCSEL の円偏光発振と 1 GHz  
での発振円偏光スイッチングを実証してき

た。発振円偏光のスイッチングの高速化を  
実現するには、活性層に注入した電子の  $\tau_s$ を  
維持したままキャリア寿命  $\tau_c$ のみを短縮する  
ことが重要である。以前、マイクロポスト構  
造(図 6)によって  $\tau_c$ を短縮した時の  $\tau_s$ への  
影響について、偏光時間分解フォトルミネ  
センス法により検討した。しかし、測定に用  
いたストリークカメラの時間分解能の制限  
により、1  $\mu$ m 以下の微小なポストにおける  $\tau_s$   
の評価は困難であった。今回、ポンプ・プロ  
ープカー回転法を用いて MQW マイクロポスト  
における  $\tau_s$ を評価した。

電子線描画装置と  $N_2 \cdot Cl_2$  ガスを用いた電  
子サイクロトロン共鳴反応性イオンエッチ  
ング(ECR) 装置を用いて 30 ~ 0.5  $\mu$ m 角の正  
方形の断面形状をもつマイクロポストを作  
製した。77 K でポンプ・プローブカー回転測  
定を行った。光源にはパルス幅 75 fs のモ  
ード同期チタンサファイアレーザを用いた。平  
均強度 1 mW において  $E_1$ - $HH_1$  励起吸収ピ  
ーク(~801 nm)を共鳴励起し、MQW の界面  
で反射したプローブ光の偏光回転角をバラ  
ンスドディテクタで検出した。ここで、プロ  
ープ光は回折格子とスリットによって波長  
幅が 1.5 nm (パルス幅: 約 1.3 ps)に制限され  
ており、中心波長は MQW による吸収の小さ  
い 805 nm に設定した。30, 20, 10  $\mu$ m 角にお  
いては単一のポストを測定し、それよりも小  
さなサイズではビーム径 17  $\mu$ m 以内に含  
まれるポストを集団的に測定した。サンプル  
の  $\tau_c$ は(110)MQW 特有の複屈折による偏光回  
転角  $\Delta\theta_{biref}$ の時間変化より、 $\tau_s$ は  $\Delta\theta_{biref}$ と電子  
のスピ  
ン偏極を反映したカー回転角の時間  
変化より求めた。

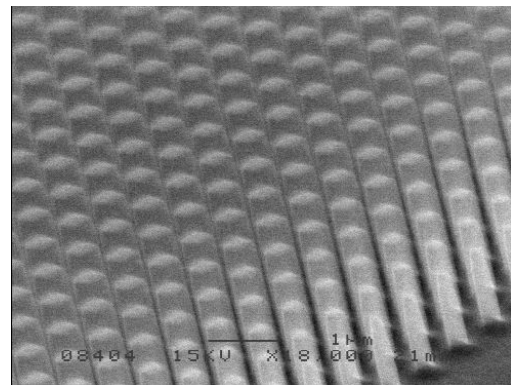


図 6. GaAs/AlGaAs(110) MQW マイクロポスト  
(0.5  $\mu$ m 角) の SEM 写真

図 7 に測定した  $\tau_c$ と  $\tau_s$ とポストサイズとの  
関係を示す。ポストサイズが小さくなるにつ  
れて、ポスト側面における非発光表面再結合  
によって  $\tau_c$ が劇的に短縮される。一方、 $\tau_s$ は  
概ね一定である。最も小さい 0.5  $\mu$ m 角のポ  
ストでは  $\tau_c$ が 30 ps 程度に短縮されるが、約  
0.74 ns の長い  $\tau_s$ の値が維持されており、マ

マイクロポスト構造がスピン VCSEL の発振円偏光スイッチング速度の高速化に有効であることがわかった。

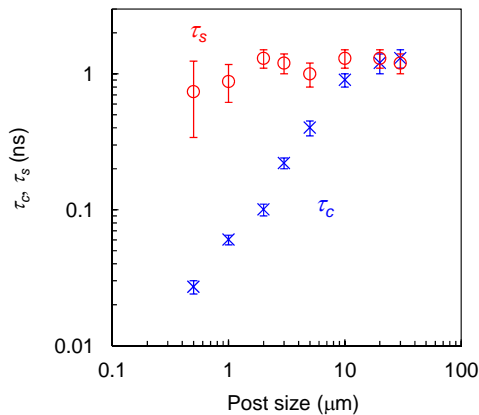


図7. キャリア寿命  $\tau_c$  と電子スピン緩和時間  $\tau_s$  のポストサイズ依存性

#### (4) 長波長帯 InGaAs/InAlAs 量子井戸中の電子スピン緩和

GaAs(110) 基板上 GaAs/AlGaAs 量子井戸 (QWs) では D'yakonov-Perel' (DP) スピン緩和機構が抑制されるため、一般的に用いられている (100) 基板上 QWs と比較して、数十倍長い電子スピン緩和時間 ( $\tau_s$ ) が得られる。1.55  $\mu\text{m}$  帯の光通信波長におけるスピン光デバイス実現を目指して、GaAs と同様に閃亜鉛鉱構造であり、長い  $\tau_s$  を持つ可能性のある InP(110) 基板上 InGaAs/InAlAs QWs に着目し、電子スピン緩和時間をポンププローブ法により測定した。

[111]B 方向へ  $3^\circ$  微傾斜した InP(110) 基板上に量子井戸層 8 nm/バリア層 5 nm 70 周期、10 nm/5 nm 50 周期の  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$  QWs を MBE 法により成長した。また、比較のために InP(100) 基板上にも同じ構造の量子井戸を成長した。X 線回折測定、透過測定、PL 測定により成長温度と V/III 比の最適化を行った。その結果、InP(100) 基板上では成長温度  $530^\circ\text{C}$ 、V/III 比 60、InP(110) 基板上では成長温度  $500^\circ\text{C}$ 、V/III 比 40 が最適であることが判った。

量子井戸層 8 nm、70 周期 QWs の 7K、150 K および 300 K における吸収スペクトルの測定結果を図 8 および図 9 に示す。InP(100) 基板上および InP(110) 基板上 QWs とともに、明瞭なエキシトン吸収ピークが確認できる。次に、透過型ポンププローブ測定系を用い、量子井戸層 8 nm の場合は光源の波長制限から 150~300 K の範囲で、量子井戸層 10 nm の場合は 77~300 K の範囲で  $\tau_s$  を測定した。但し、量子井戸層 10 nm の結果は成長条件の影響を見るため、InP(110) 基板上 QWs を InP(100) の最適条件、InP(100) 基板上 QWs

を InP(110) の最適条件でそれぞれ作製した。フェムト秒光源の波長を  $E_1\text{-HH}_1$  準位に相当する波長に調整し、円偏光透過率の時間変化から  $\tau_s$  を算出した。図 10 に示すように InP 基板の結晶方位による  $\tau_s$  の大きな違いは見られず、室温において 1 ns 程度、100 K において 1.7 ns 程度の値を得た。(100) QWs と (110) QWs の  $\tau_s$  に大きな差が見られないことは、InP(100) 基板上の InGaAs/InAlAs QW においては、DP 以外のスピン緩和機構が支配的となっている可能性を示唆している。

InGaAs/InAlAs(110) QW の結晶成長条件の最適化に予定以上の時間を要したが、室温で励起子が明瞭に観測できる良好なウエハが成長できるようになった。今後、当初目標としていた、光導波路構造の作製、電磁誘導透過 (EIT) 現象の観測、スローライトの実現へと発展していく下地ができたと考える。

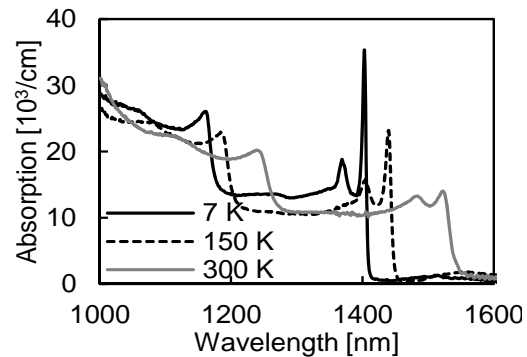


図8. InP(100) 基板上量子井戸の吸収スペクトル

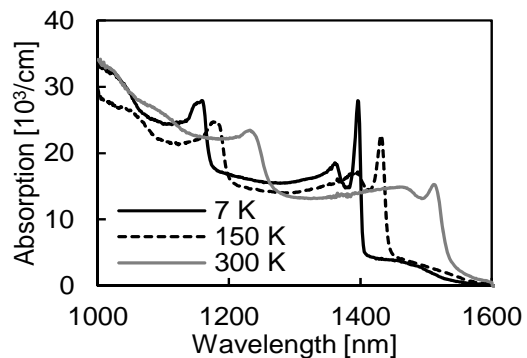


図9. InP(110)基板上量子井戸の吸収スペクトル

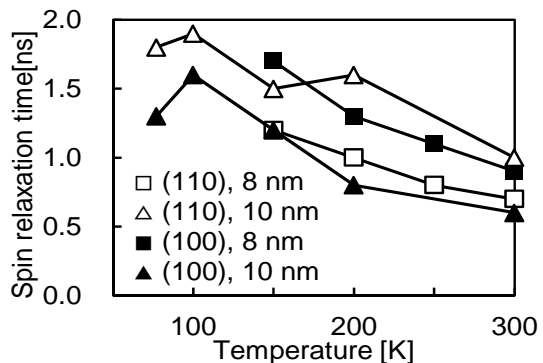


図10. 各種量子井戸のスピン緩和時間の温度依存性

## 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 6 件)

- (1) N. Yokota, Y. Tsunemi, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, Pump probe measurement of electron spin relaxation time in (110)-oriented GaAs/AlGaAs multiple quantum well microposts, Applied Physics Express, 査読有, Vol. 5, No. 12, 2012, pp. 122401-1~3.  
DOI: 10.1143/APEX.5.122401
- (2) Y. Yasuda, S. Koh, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, Crystal growth of InGaAs/InAlAs quantum wells on InP(110) by MBE, Journal of Crystal Growth, 査読有, Vol. 364, 2012, pp. 95-100.  
DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.11.039
- (3) S. Iba, S. Koh, K. Ikeda and H. Kawaguchi, Circularly polarized lasing over wide wavelength range in spin-controlled (110) vertical-cavity surface-emitting laser, Solid State Communications, 査読有, Vol. 152, No. 16, 2012, pp. 1518-1521.  
DOI: 10.1016/j.ssc.2012.06.009
- (4) N. Yokota, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, Comparison of measurement techniques for electron spin relaxation time in a GaAs/AlGaAs multiple quantum well, Physica E, 査読有, Vol. 44, No. 7-8, 2012, pp. 1176-1181.  
DOI: 10.1016/j.physe.2012.01.006
- (5) S. Koh, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, Correlation between morphology and electron spin relaxation time in GaAs/AlGaAs quantum wells on misoriented GaAs(110) substrates, Journal of Applied Physics, 査読有, Vol. 110, No. 4, 2011, pp. 043516-1~6.  
DOI: 10.1063/1.3622586

[学会発表] (計 17 件)

- (1) S. Koh, S. Iba, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, Circularly Polarized Lasing in Spin-Controlled Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers, International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS 2012), (招待講演), 2012 年 10 月 4 日, 奈良, 4pE-2, p. 294.

- (2) H. Kawaguchi, Room temperature laser oscillation with circular polarization in spin VCSELs, 2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), (招待講演), 2011 年 9 月 27 日, 京都国際会館 (京都府), K-8-1, pp. 1209-1210.
- (3) S. Iba, S. Koh, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, Circularly polarized lasing in (110) quantum well-based spin laser, SPIE Optics+Photonics 2012, NanoScience + Engineering, Spintronics V, (招待講演), 2012 年 8 月 6 日, サンディエゴ (米国), 8461-56.
- (4) H. Kawaguchi, Spin-photonic semiconductor devices based on (110) quantum wells: Spin-VCSELs and Spin-Switches, The 13th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON 2011), (招待講演), 2011 年 6 月 29 日, ストックホルム (スウェーデン), We.B5.1, pp. 1-4.
- (5) S. Iba, S. Koh, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, Optically-pumped circularly polarized lasing in a (110)VCSEL with GaAs/AlGaAs QWs at room temperature, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO /IQEC 2011), 2011 年 5 月 3 日, ボルチモア (米国), JTuI92.

[その他]

ホームページ等

奈良先端科学技術大学院大学

超高速フォトニクス研究室

<http://mswebs.naist.jp/LABs/kawaguchi/index-j.html>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

河口 仁司 (KAWAGUCHI HITOSHI)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授

研究者番号: 40211180