

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790066

研究課題名(和文)光電流によるスピン注入磁化反転に関する研究

研究課題名(英文)Study on spin-transfer-torque switching by photocurrent

研究代表者

池田 和浩(Ikeda, Kazuhiro)

独立行政法人産業技術総合研究所・ネットワークフォトニクス研究センター・研究チーム長

研究者番号：70541738

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、光電流によるスピン注入磁化反転の実現において欠かせない3つの要素技術の開発に取り組んだ。まず、GaAs(110)基板上にFeTb垂直磁化膜を作製する条件を検討し、主に成長レートを上昇させることで垂直方向の残留磁化109 emu/cm<sup>3</sup>を持つFeTb薄膜の作製に成功した。次に、Fe/AlO<sub>x</sub>電極を用いて、GaAs(110)基板上QWに、室温、高電流密度において9.3%のスピン注入に成功し、強磁性体・半導体間のスピン伝導を可能とした。さらに、時間分解顕微PL法を用いて、スピン光素子の活性領域における電子スピン拡散定数の同定方法を開発した。

研究成果の概要(英文)：In this project, we have investigated three essential technologies for realization of spin-transfer-torque switching by photocurrent. Firstly, we optimized deposition conditions for perpendicularly magnetized FeTb thin films on GaAs(110), and successfully obtained an FeTb thin film with a perpendicular remanence of 109 emu/cm<sup>3</sup> mainly by increasing the deposition rate. We next demonstrated an injected electron spin polarization of 9.3% from Fe/AlO<sub>x</sub> injector into GaAs(110) QWs at room temperature and a high current density, which means that spin conduction between ferromagnetic material and semiconductor is possible. Finally, using a time-resolved microscopic photoluminescence technique, we developed a method to identify the electron spin diffusion coefficient in an active region in spin-optoelectronic devices.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：スピン光デバイス スピン注入 スピン拡散 垂直磁化

## 1. 研究開始当初の背景

将来のシリコン集積回路技術の処理速度、消費電力における物理的限界を乗り越える技術として、電子のスピン状態を新たな自由度として用いるスピントロニクスが注目されている。不揮発性を有する新機能スピントロニクスデバイスの開発は、高度情報通信社会の革新的な省エネルギー化に向けて重要なテーマである。年率 40%におよぶインターネットトラフィックの増加に伴って、ネットワークの消費電力は、このまま推移すれば、2020 年には日本国内の総発電量に匹敵するという試算があり、これを克服するためにネットワークの全光化などの技術革新が求められている。本研究は、ネットワークの全光化に必要な全光型パケットルータの基幹装置となる光バッファメモリとして、スピントロニクスの不揮発性を導入した、低消費電力かつ集積化が容易な全く新しいスピントロニクスの実現を最終的な目的としている。

## 2. 研究の目的

本研究代表者らは、これまでに電子スピン緩和時間が非常に長い GaAs(110)基板上量子井戸を用いた面発光半導体レーザ (VCSEL) の光励起による室温円偏光発振および、1GHz での発振円偏光スイッチングに成功するなど、半導体スピントロニクス研究にいち早く取り組んできた。本研究代表者らは、この VCSEL 上に強磁性電極を形成し、円偏光光信号により励起したスピン偏極光電流によるスピン注入磁化反転 (書込み) および、強磁性電極からのスピン注入による円偏光発振 (読出し) を実現できれば、実用的にブレイクスルーとなりうる不揮発光メモリを創成できるという着想に至った (特許第 5688739 号、池田ほか、奈良先端大)。半導体部分に関しては、既に必要な機能をほぼ実証しており、今後の課題は垂直磁化電極に対するスピン偏極情報の書込み、読出しである。

本研究では、特に書込みの部分について、光電流によるスピン注入磁化反転において最適となる材料系や構造などを見出すことが目的である。半導体と強磁性金属の界面を介したスピン注入、光電流によるスピン注入磁化反転の知見を得ることは、上記不揮発光メモリに向けてだけでなく、学術的にも重要である。

## 3. 研究の方法

本研究期間内に、垂直磁化強磁性電極を半導体上への形成する技術を検討する。また、光電流によるスピン注入磁化反転に関しては、pin 構造を用いて、まず逆過程であるスピン注入の検討を行い、強磁性体 - 半導体間のスピン伝導についての知見を得る。

### (1) 垂直磁化電極の形成

垂直磁化強磁性電極用の材料は主として

TbFe とし、成長温度、成長レート、アニールなどの成長条件を見出す。現有のツインチャンパー-MBE 装置を用いて、GaAs 基板上に成長する。現有の X 線回折装置および振動試料型磁力計によって結晶性および磁化特性を評価し、成長条件を最適化する。

### (2) Fe/AlOx 電極(110)-量子井戸 LED の作製と評価

GaAs(110)基板上に GaAs/AlGaAs 量子井戸を i 層とする pin 構造 LED を既設の分子線エピタキシ(MBE)装置を用いて成長する。この LED 上に Fe/AlOx をエピタキシャル成長し、MOS 電極を形成する。

作製した LED に順バイアスを印加し、スピン選択則に従うエレクトロルミネセンス (EL) を偏光分解測定することで、注入電子のスピン偏極度を評価する。既設の超伝導マグネット/クライオスタットにより Fe の飽和磁場である約 ±2T 以上 (最大 10T 印加可能) の磁場を印加し、4K ~ 室温における EL を既設の光学素子および冷却 CCD 分光器を用いて高感度測定する。

## 4. 研究成果

### (1) GaAs(110)基板上垂直磁化 FeTb 薄膜の成長条件の検討

光電流によるスピン注入磁化反転、および電気的スピン注入によるスピン VCSEL の円偏光発振を実現するためには、基板面に垂直な方向にスピン方位を向かせる必要がある。次節に述べる測定では面直方向に強磁場を印加することにより、面内方向に磁化容易軸を有する Fe 薄膜の磁化を強制的に垂直方向に向かせることで垂直磁化を実現した。しかし、実用的には自発的に垂直磁化する強磁性電極が必要である。そこで本研究では、垂直磁化特性が報告されている FeTb 薄膜に着目した。これまでに GaAs(001)基板上 LED に Fe/Tb 多層膜を積層し、室温無外部磁場下でのスピン注入を発光の円偏光度によって評価した報告があるが、その円偏光度は 3%程度と低かった。一方、FeTb アモルファス合金は光磁気ディスク用垂直磁化膜として実用化されているが、使用されてきた基板はガラス等であり、スピン注入を目的として半導体上に作製した報告はない。本研究では、GaAs(110)上に FeTb 垂直磁化膜を作製することを目的とし、主に FeTb アモルファス合金を作製し、磁化特性の評価を行った。

MBE 装置を用いて、GaAs(110)基板上に FeTb アモルファス合金(100 nm)を Tb 組成 (12 ~ 30%)、成長レート(0.1 ~ 0.65 nm/s)を変えて成膜し、すべての試料において表面保護層として Au(5 nm)を成長した。Tb 組成 17% 以下では、最大磁化  $M_s$  (または飽和磁化)、残留磁化  $M_r$  とともに面内方向に顕著であり、[100]方向が磁化容易軸であることが分かった。このことは、Tb 組成 17% 以下では、Fe が下地の GaAs(110)表面を反映して配向して

いることを示しており、X線回折測定結果にもその特徴が見られた。Tb 組成 20%、25%では、面内の  $M_s$ 、 $M_r$  は小さくなり、面直と同程度になった。これは、この組成近傍に互いに反平行である Fe と Tb の磁化が相殺する補償組成が存在するためである。補償組成付近では、 $M_s$  が小さくなることで反磁界に起因する面内磁気異方性が小さくなるため、垂直磁化になりやすい。成長レートを上げた場合に Tb 組成 20% と 25% で面直の  $M_s$  が増大し、磁化が垂直方向に向きやすくなることが分かった。Tb 組成 25%、成長レート 0.65 nm/s の試料の VSM 測定結果から、 $M_s$  は面直方向が面内方向より大きく、面直にヒステリシスループが見られた。成長レートを上げたことで、Fe の分布が不均一化し Tb の 1 イオン異方性が増大したと考えられる。現在使用しているセルでは 0.65 nm/s が最速であったため、電子ビーム蒸着法などにより、さらにレートを速めることで面直方向に磁化容易軸を有する膜が得られると考えられる。成長した FeTb アモルファス合金において、そのフェリ磁性の特徴である補償組成および補償温度を確認し、成長方法を確立した。その上で主に成長レートを上昇させることで垂直方向の残留磁化  $109 \text{ emu/cm}^3$  を持つ FeTb 薄膜の作製に成功した。さらに成長設備を改良することによって、スピン VCSEL に適用できる垂直磁化 FeTb 薄膜を作製できると考えられる。

## (2) GaAs(110)基板上量子井戸への室温高電流密度スピン注入

光電流によるスピン注入磁化反転、および電気的スピン注入によるスピン VCSEL の円偏光発振を実現するためには、少なくともレーザ発振の得られる高電流密度において半導体活性層への電気的スピン注入が必須である。我々は、室温で電子スピン緩和時間が長く活性層として有望な GaAs(110)基板上量子井戸 (QW) に対して、Fe/AlOx 電極を用いた高電流密度スピン注入を検討した。特に、室温での動作を実現するために、エレクトロルミネッセンス (EL) 強度を確保できる LED 素子を作製し、室温において  $1.5 \text{ kA/cm}^2$  の高電流密度でスピン注入を確認した。

活性層である GaAs QW においてキャリアを高効率で捕獲するため、QW 層を 3 層とし、その直下に Al 組成の高い  $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$  層を配置した。LED ウエハ上に、Au/Ti 5 nm / Fe 100 nm / 結晶性 AlOx 1 nm から成るトンネル電極を成長し、FIB 装置を用いて、中心に  $\phi 10 \mu\text{m}$  の光取り出し窓を有する  $\phi 50 \mu\text{m}$  の大きさの電極に加工した。電極の周囲は benzocyclobutene (BCB) で埋込み、その上に Au/Cr を成膜した。また、Fe/AlOx 電極の代わりに Au 電極を用いた標準試料を作製し、測定結果におけるゼーマン効果の補正に用いた。

電流密度  $J = 1.5 \text{ kA/cm}^2$  における EL 円偏

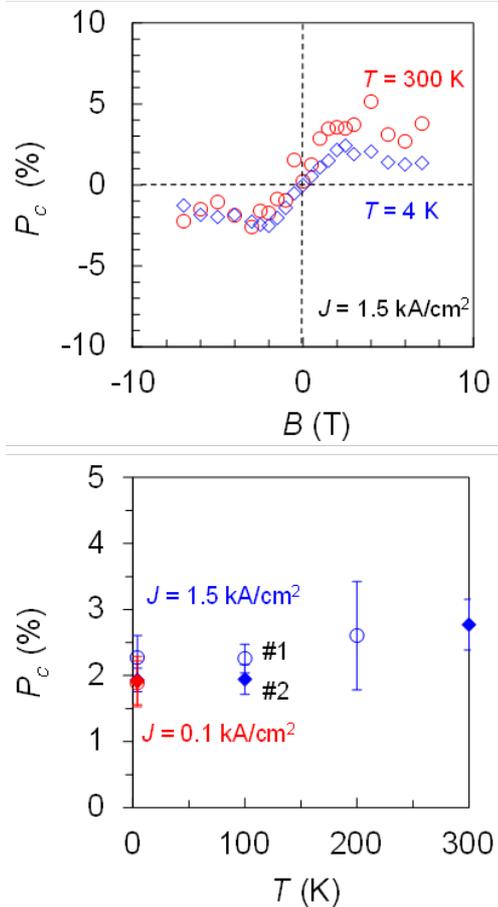


図1 (上) 電流密度  $J = 1.5 \text{ kA/cm}^2$  における EL 円偏光度  $P_c$  と磁場  $B$  の関係、(下)  $P_c$  と温度  $T$  の関係

光度  $P_c$  と磁場  $B$  の関係を図 1(上)に示す。測定系に起因する  $P_c$  のオフセットを補正している。4 K と 300 K のどちらの温度においても、Fe 薄膜の異方性磁界 2.2 T 付近で  $P_c$  が飽和しており、その値はそれぞれ約 1.9%、2.8%であった。 $P_c$  と温度  $T$  の関係を図 1(下)に示す。測定した二つのサンプルをそれぞれ #1、#2 とした。4 K から 300 K まで温度を上昇させても  $P_c$  に大きな変化は見られず、また、4 K において  $J$  を  $1.5 \text{ kA/cm}^2$  から  $0.1 \text{ kA/cm}^2$  に低下させても  $P_c$  の変化は小さく、1.9~2.3%の範囲内であった。以上のように  $P_c$  の  $T$  と  $J$  の両方に対する依存性が小さい傾向は、電極-QW 間と QW 内でのスピン緩和が影響していると考えられる。EL 円偏光度 2.6%を、注入直後の電子スピン偏極度に換算したところ 9.3%となった。

上記の結果は、スピン VCSEL を電流注入下で円偏光発振させることが可能であることを示唆している。

## (3) 微小領域における電子スピン物性の測定

光電流によるスピン注入磁化反転、および電気的スピン注入によるスピン VCSEL の円偏光発振においては、局所領域における電子スピン物性の評価がデバイス設計上非常に重要である。例えば、電子スピン緩和時間  $\tau_s$

や電子スピン拡散などは発振偏光に直接影響するため、その値を把握し、構造設計に反映する必要がある。そこで、時間分解顕微フオトルミネセンス (PL) 測定系を構築し、GaAs(110)量子井戸におけるスピン拡散定数の同定方法を開発した。

被測定サンプルはノンドープ (110) GaAs/AlGaAs 50 周期 QW であり、ns オーダの長い  $\tau_s$  により室温での測定・解析を容易にしている。PL 波長 (重い正孔帯への遷移) は室温で 849 nm である。励起光源にはモード同期チタンサファイアレーザ (パルス時間幅  $\sim 70$  fs, 繰り返し周波数 80 MHz, 波長 780 nm) を用い、円偏光パルスでサンプルを励起後、励起された電子のスピン偏極を反映した PL の左右円偏光成分の時間変化をストリークカメラで測定し、 $\tau_s$ 、キャリア寿命  $\tau_c$ 、および初期スピン偏極度  $P_0$  を評価した。顕微 PL 法では 10 倍の対物レンズを用い、約 4  $\mu\text{m}$  まで励起光を集光し、同じレンズで PL を受光した。スポットサイズ依存性を見るために、単レンズによる PL 測定も行い、この時の励起スポットサイズは 19  $\mu\text{m}$  および 25  $\mu\text{m}$  であった。

時間平均の励起強度 0.8 kW/cm<sup>2</sup> における  $\tau_s$ 、 $\tau_c$ 、 $P_0$  のスポットサイズ依存性を図 2 に示す。 $P_0$  はスポットサイズにほとんど依存せず、高い空間分解能で測定を行っても測定結果には影響がないと考えられる。 $\tau_c$  はスポットサイズが小さくなると短くなる傾向を示しており、これは発光再結合に加えて、励起キャリアが周囲に拡散し、受光領域のキャリア数が減衰するためである。一方、 $\tau_s$  はスポットサイズが 4  $\mu\text{m}$  の場合に長い値を示した。スピン状態を考慮したドリフト拡散方程式を用いて解析した結果 (同じく図 2) 励起強度の空間分布に起因する電子スピンの空間分布によってスピン拡散が生じ、受光領域においてスピン偏極度が維持されるように作用することで測定される  $\tau_s$  が長くなることが分かった。この時、フィッティングによって得られたスピン拡散定数はおよそ 100 cm<sup>2</sup>/s であり、これまでに報告されている値に近いものであった。

本成果は、微小領域において電子スピン緩和時間や電子スピン拡散定数を同定できるため、スピン光素子の開発において重要なツールになると期待される。

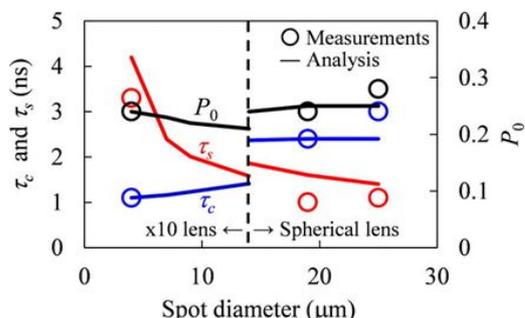


図2  $\tau_s$ 、 $\tau_c$ 、 $P_0$  のスポットサイズ依存性

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

Kazuhiro Ikeda, and Hitoshi Kawaguchi "Effects of spin diffusion on electron spin relaxation time measured with a time-resolved microscopic photoluminescence technique", J. Appl. Phys. 117, 053903 (2015). 査読有

DOI: 10.1063/1.4906847

N. Yokota, Y. Aoshima, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, "Room temperature spin transport in undoped (110) GaAs/AlGaAs quantum wells," Appl. Phys. Lett. 104, 072406 (2014). 査読有

DOI: 10.1063/1.4866168

[学会発表] (計 5 件)

N. Yokota, K. Ikeda, N. Nishizawa, H. Munekata, H. Kawaguchi, "Electron spin injection and transport in (110) quantum wells for room temperature operation of spin-controlled vertical-cavity surface-emitting lasers (招待講演)", SPIE Optics+Photonics 2015 (Spintronics VIII), paper 9551-41, San Diego, CA, Aug 2015.

横田信英, 青島洋平, 池田和浩, 西沢望, 宗片比呂夫, 河口仁司, "Fe/AlO<sub>x</sub> 電極による(110)GaAs QW への室温高電流密度スピン注入", 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 19p-S2-1, 北海道, 2014 年 9 月 19 日.

N. Yokota, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, "Space- and Time-Resolved Observation of Electron Spin Transport in a (110) GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Well at Room Temperature," the 58th Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference, paper DP-05, Denver, CO, Nov 2013.

K. Ikeda, and H. Kawaguchi, "Room Temperature Circularly Polarized Lasing in (110) Spin-VCSELs," (招待講演), NSF-Workshop on US-Japan Frontiers in Novel Photonic-Magnetic Devices, Nara, Japan, Sep 2013.

池田和浩, 横田信英, 青島洋平, 河口仁司, 西沢望, 宗片比呂夫, "Fe/AlO<sub>x</sub> 電極を用いた(110)GaAs/AlGaAs 量子井戸への高電流密度スピン注入", 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会 16p-C15-6, 京都, 2013 年 9 月 16 日.

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

池田 和浩 (IKEDA, Kazuhiro)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・ネットワークフォトンクス研究センター・研究チーム長

研究者番号: 70541738