

GaAs(110)量子井戸構造における
電子スピン緩和と光デバイス応用に関する研究

揖場 聡
奈良先端科学技術大学院大学
物質創成科学研究科 超高速フォトニクス講座
河口 仁司 教授

目次

第1章 序論	1
1-1 本研究の背景	1
1-2 本研究の目的	3
1-3 本論文の構成	4
第2章 半導体中の電子スピン物性と評価法	5
2-1 はじめに	5
2-2 半導体中の電子スピン緩和機構	5
2-2-1 D'yakonov-Perel'機構	5
2-2-2 Elliott-Yafet 機構	8
2-2-3 Bir-Aronov-Pikus 機構	8
2-2-4 GaAs(110)量子井戸におけるスピン緩和	9
2-3 電子スピン緩和時間の評価法	10
2-3-1 光学遷移選択則	10
2-3-2 測定方法	11
2-3-3 電子スピン緩和時間の導出方法	12
2-4 まとめ	15
第3章 GaAs(110)基板上の結晶成長	16
3-1 はじめに	16
3-2 分子線エピタキシー(MBE)法	16
3-3 GaAs(110)基板上ホモエピタキシャル成長	20
3-3-1 MBE 成長条件の検討	20
3-3-2 表面形態と結晶性の評価	23
3-4 GaAs/AlGaAs(110)量子井戸の作製と評価	30
3-4-1 試料構造	30
3-4-2 X線回折測定による構造評価	30
3-4-3 フォトルミネセンス測定による光学特性評価	31
3-5 まとめ	34
第4章 量子井戸中の電子スピン緩和と界面平坦性の相関	35
4-1 はじめに	35

4-2	成長中断の導入による量子井戸ヘテロ界面平坦化	35
4-2-1	試料構造と成長中断条件	36
4-2-2	原子間力顕微鏡および透過電子顕微鏡による評価	38
4-2-3	成長中断条件と界面平坦性の相関	40
4-3	電子スピン緩和時間に対する成長中断の効果	43
4-3-1	室温における成長中断条件と電子スピン緩和時間の相関	43
4-3-2	界面平坦性と電子スピン緩和時間の温度依存性	45
4-4	まとめ	47
第5章	電子スピン緩和の室温電場制御	48
5-1	はじめに	48
5-2	GaAs(110) <i>p-i-n</i> 構造の結晶成長	49
5-3	簡易プロセスによる素子作製と電流-電圧特性評価	50
5-4	GaAs(110) <i>p-i-n</i> 素子作製と評価	51
5-4-1	(110) <i>p-i-n</i> 素子作製工程	51
5-4-2	電流-電圧特性評価	54
5-4-3	容量-電圧特性評価	55
5-5	電子スピン緩和時間に対する電場効果	57
5-5-1	PL の印加電圧依存性	57
5-5-2	室温における電子スピン緩和時間の印加電圧依存性	58
5-6	まとめ	60
第6章	面発光半導体レーザ(VCSEL)における室温光励起円偏光発振	61
6-1	はじめに	61
6-2	VCSEL 構造設計	62
6-3	GaAs(110)基板上組成傾斜分布ブラッグ反射鏡の作製と評価	70
6-3-1	試料の作製	70
6-3-2	試料の反射特性評価	70
6-4	GaAs(110)基板上 VCSEL の作製と評価	73
6-4-1	試料の作製	73
6-4-2	試料の構造および反射特性評価	75
6-4-3	活性層の発光特性の評価	77
6-5	(110)VCSEL の発振特性の評価	78
6-5-1	円偏光励起による発振閾値および発振スペクトル	78

6-5-2 偏光時間分解測定による VCSEL 発振ダイナミクスの評価	80
6-6 活性層の電子スピン緩和時間の評価	82
6-7 レート方程式による円偏光発振特性の解析	84
6-7-1 解析モデル	84
6-7-2 レート方程式による実験結果の解析	85
6-8 まとめ	87
第7章 結論	89
参考文献	92
研究業績	96
謝辞	100

第 1 章 序論

1-1 本研究の背景

近年、CMOS に代表されるシリコンデバイスの微細加工技術による性能向上が限界に近付きつつある中、これを超える革新的な次世代デバイスを創成することを目標として、高速・大容量かつ高度な情報処理・情報蓄積・情報伝達を可能とするデバイスの研究開発が盛んである。このようなデバイスの有力な候補として、電子の電荷だけでなくスピン状態も同時に利用するスピントロニクス技術に関する研究が大きな注目を集めている。スピントロニクスにおいて、これまで、巨大磁気抵抗効果(GMR)[1,2]やトンネル磁気抵抗効果(TMR)[3-5]を利用した金属ベースのスピンデバイスが大きな成果を挙げてきた。

これに対して、半導体では、自在なキャリアドーピングやバンドギャップ制御をはじめとする高度なバンドエンジニアリング技術を利用することで、高性能半導体スピンデバイスを創出することが期待される。具体的には、情報処理及び情報蓄積機能を併せ持つスピン電界効果トランジスタ[6]や全光型スピン偏極スイッチ[7]、低閾値で円偏光を出力するスピンレーザ[8-13]など、半導体デバイスの優れた特性とスピン特有の機能の融合による新しい多機能素子などを創出し、さらにスピンの量子的操作による量子情報処理、量子情報通信を実現し得る可能性をも秘めている。上記のような半導体スピンデバイスを実現するための重要な基盤要素として、半導体中へのスピン偏極キャリアの注入・生成、そして、キャリアのスピンダイナミクスの制御が挙げられる。

半導体では、円偏光で励起することにより、光学遷移選択則[14]を介してスピン偏極キャリアを生成することができる。特に、GaAs などの直接遷移半導体は、 Γ 点において単純なバンド構造を取るため、1960~70年代から、はじめはバルク試料を用いた研究が行われてきた[15-17]。しかし、バルクの場合、価電子帯のバンドが縮退しているため、効率良くスピン偏極状態を生成することが難しい。その後、分子線エピタキシー法(MBE)や有機金属気相堆積法(MOCVD)などの半導体結晶成長技術の進展により、高品質な量子構造が作製された。量子構造中においては、価電子帯の縮退が解けているため、最大 100%スピン偏極したキャリアを生成することができる。また、これらの結晶成長技術の進展と同時に、励起光源であるパルスレーザの高速化と、時間分解測定技術の高精

度化が進み、半導体中のスピンドイナミクスに関する研究が飛躍的に発展した。特に、近年、ファラデー回転角やカー回転角の時間変化を測定するポンプ・プローブ法が新たに開発され[18,19]、これらの測定手法は試料からの発光を必要としないため、種々の試料において多数の研究報告がある。たとえば、GaMnAsなどの希薄磁性半導体中のスピンドイナミクスに関する研究に適用されている[20,21]。

上記のように半導体中のスピン偏極状態は円偏光励起によって容易に生成できるため、本手法は半導体中のスピンドイナミクスを評価するための強力なツールである。しかしながら、デバイス応用を考えた場合、電気的手法によるスピン注入が必要であり、近年、強磁性電極から半導体への電気的スピン注入について盛んに研究が行われている。GaAs へのスピン注入として、強磁性金属/GaAs(100)ショットキー接合や強磁性金属/絶縁体(AlO_x 又は MgO)/GaAs(100)トンネル接合を用いた研究が精力的に行われてきた[22,23]。また、最近では、 GaO_x /GaAs(100)トンネル接合を用いた研究報告もある[24,25]。しかし、これまでのところ、室温において高い偏極度とキャリア注入効率を両立するスピン注入は実現されていないため、今後、スピン注入機構の詳細な解明が必要である。

冒頭で述べたように、半導体スピンドバイスを実現するための基盤要素として、キャリアのスピンドイナミクスの制御も重要である。これまでに電子スピンドイナミクスの制御手法として様々な方法が検討されてきた。一つは電子の運動方向を量子井戸構造により制限することである。1999年に Ohno らによって、GaAs(110)上量子井戸(QW)において、室温で数 ns に達する極めて長い電子スピン緩和時間 τ_s が報告された[26]。これは、GaAs などの閃亜鉛鉱構造をとる化合物半導体において高温で支配的なスピン緩和機構である D'yakonov-Perel (DP)機構の内、バルク反転非対称性 (Bulk Inversion Asymmetry: BIA) 項によるスピン緩和が抑制されるためである[27]。この長い τ_s は、(100)基板上 QW における τ_s の 10 倍以上の値であることから、(110)QW は室温動作スピンドバイスの有望な系である。別の電子スピンドイナミクスの変調手法として、DP 機構の内、構造反転非対称性 (Structural Inversion Asymmetry: SIA) 項を制御する方法がある。この項は、QW のヘテロ界面平坦性により制御できることが指摘されているが[19]、これに関する実験報告は一報のみである[28]。また、SIA 項は印加電場によっても制御でき、これは Rashba 効果として知られている[29]。量子井戸に外部電場を印加するにはゲート電極を用いなければならないため、本手法は従来

の微細加工技術と親和性が良く、実用性に長けている。(110)基板上 QW では、BIA による DP 緩和が抑制されるため、(110)QW に比べて Rashba 効果が顕著に発現する。従って、(100)GaAs QW の数 ns に達する非常に長い τ_s をゲート電極を用いた印加電場により、広いダイナミックレンジで変調できる可能性が期待される。しかし、デバイスの逆バイアス耐久性の問題から測定は 230 K までに限られており[19]、応用上重要な室温での実証報告はない。このように、(110)QW における SIA に関する研究報告は少なく、その詳細が十分に理解されているとは言えない。また、前述したように、(110)QW は室温動作スピンデバイスの有望な系であるため、例えば(110)QW を活性層としたスピンレーザによる室温円偏光レーザ発振などが期待される。1998 年、安藤らは、バルクの GaAs を活性層とした面発光半導体レーザ(VCSEL)において、0.82 という高い円偏光度でレーザ発振することに成功した[8]。しかし、レーザ発振閾値の低減や出力の高速変調のためには、活性層は量子井戸の方が適している。これまで、(100)QW を活性層としたスピン VCSEL において、その発振特性が調べられてきたが、その短い電子スピン緩和時間(~100 ps)のため、高い円偏光度でレーザ発振するには至っていない($P_c < 0.5$)[10,12]。筆者の所属研究室では、(110)InGaAs/GaAs QW を活性層とした VCSEL を作製し、77 K で 2.8 ns という長い τ_s を反映して高円偏光度でレーザ発振することに成功した。しかしながら、室温においては、 τ_s が 0.4 ns と短く円偏光発振が得られなかった[13]。また、(110)QW の長い τ_s を利用した研究としては、他にも量子情報処理へ向けた核スピン制御(測定温度 5 K)[30]、表面弾性波を用いたスピン輸送(同 80 K) [31]や電磁波誘起透明化による光群速度遅延(同 RT) [32]に関する実験報告があるが、現状では、低温における報告が多く、応用上重要な室温における成果は少ない。

1-2 本研究の目的

本研究の目的は、GaAs(110)基板上スピン光デバイスへの応用に向けて、GaAs(110)基板上に良質な QW を作製する技術を確認すること、外部から電子スピン緩和時間を制御する技術を確認すること、および室温動作光励起スピン VCSEL を実現することである。

量子井戸構造中の電子スピンダイナミクスを評価するためには、高品質な結晶が必要である。そこで、MBE 法による系統的な結晶成長実験を通して、難し

いとされる GaAs(110)基板上の高品質成長技術を確立する。そして、高品質(110)QW を作製し、ヘテロ界面平坦性や印加電場による τ_s の制御について検討する。また、GaAs(110)基板上の室温動作スピンドバイスの実現を目指し、光励起スピン面発光半導体レーザを作製し、室温における発振偏光特性を明らかにする。

1-3 本論文の構成

本論文は以下に示す7つの章から構成される。

第1章では、本研究の背景として半導体スピントロニクス of 歴史、最近の研究状況を紹介する。

第2章では、代表的な半導体中の電子スピン緩和機構について説明する。また、電子スピンドダイナミクスの光学的評価法について述べる。

第3章では、GaAs(110)基板上の結晶成長実験について述べる。

第4章では、成長中断の導入によるQWのヘテロ界面の平坦化について説明し、次に、(110)量子井戸中の電子スピン緩和と界面平坦性との相関について述べる。

第5章では、GaAs(110)基板上スピンドバイスへの応用を目指した(110) *p-i-n* 素子の作製と、室温における電子スピン緩和時間の電場制御について述べる。

第6章では、GaAs(110)基板上VCSELの作製について説明し、次に、室温における光励起円偏光レーザ発振について述べる。

最後に、第7章で本論文の結論を述べる。

第 2 章 半導体中の電子スピン物性と評価法

2-1 はじめに

半導体スピンデバイスを実現する上で、半導体中の電子スピンダイナミクスを理解することは大変重要である。本章では、代表的な電子スピン緩和機構および本研究で着目している GaAs(110) QW 中のスピン緩和機構について述べる。また、電子スピン緩和時間の評価法として、光学遷移選択則を利用した偏光時間分解 PL 法について述べる。

2-2 半導体中の電子スピン緩和機構

非磁性半導体中に光学的または電気的手法により生成されたスピン偏極状態は非平衡状態であるため、外部環境からの擾乱によりスピン平衡状態へと緩和する。スピン緩和機構を理解し、得られた知見をもとに電子のスピン状態を制御できれば、革新的なスピンデバイスを実現できる可能性がある。ここでは、代表的な電子スピン緩和機構である D'yakonov-Perel'(DP)機構、Elliott-Yafet(EY)機構、Bir-Aronov-Pikus(BAP)機構について述べる。また、本研究で着目している GaAs(110) QW 中のスピン緩和機構についても述べる。

2-2-1 D'yakonov-Perel'機構[15,27]

GaAs などの閃亜鉛鉱構造をとる III-V 族化合物半導体において、室温近傍における主要なスピン緩和機構は、D'yakonov-Perel'(DP)機構であることが知られている。図 2-1 に示すように、閃亜鉛鉱構造をとる GaAs では、Ga と As 原子の中間の位置に関して反転対称性がないため、スピン軌道相互作用により、伝導帯の up と down スピン電子のエネルギー縮退が解けている[33]。このスピン分裂は印加磁場によるゼーマン分裂と等価な作用であり、電子スピンはこの有効磁場を軸とするラーモア歳差運動を行う。散乱によって電子の波数 k が変化すると、有効磁場はその方向と大きさが変化する。有効磁場の変動は電子スピンの歳差運動の方向を変化させ、結果的にスピン方向の変化（スピン緩和）を

引き起こす。このようなスピン緩和を DP 機構という。DP 機構による τ_s は次式で表される。

$$\frac{1}{\tau_s} \propto \frac{E(\mathbf{k})^3}{E_g} \tau_p^* \quad (2-1)$$

ここで、 E_g はバンドギャップ、 E は電子のエネルギー、 τ_p^* は運動量散乱時間である。DP 機構による τ_s は後に述べる EY 機構とは異なり、 τ_p^* に反比例する。これは運動量の散乱時間が短くなると、いわゆる運動の先鋭化[34]によりラモア歳差周波数の分布が小さくなることから、 τ_p^* が短くなるにつれて、スピン緩和が抑制される。また、DP 機構では、式(2-1)から分かるように、 τ_s が電子のエネルギー E ($\propto k_B T$, k_B : ボルツマン定数, T : 温度)の3乗に反比例することから、高温になるにつれて τ_s は減少する。

上記の結晶構造の反転対称性の欠如だけでなく、ヘテロ構造の形成や外部からの電場印加などにより対称性が崩れる場合にも同様の相互作用が生じる。前者は(A)バルク反転非対称性 (Bulk Inversion Asymmetry: BIA)、後者は(B)構造反転非対称性 (Structural Inversion Asymmetry: SIA) と呼ばれている。以下では、量子井戸における DP 機構について考える。

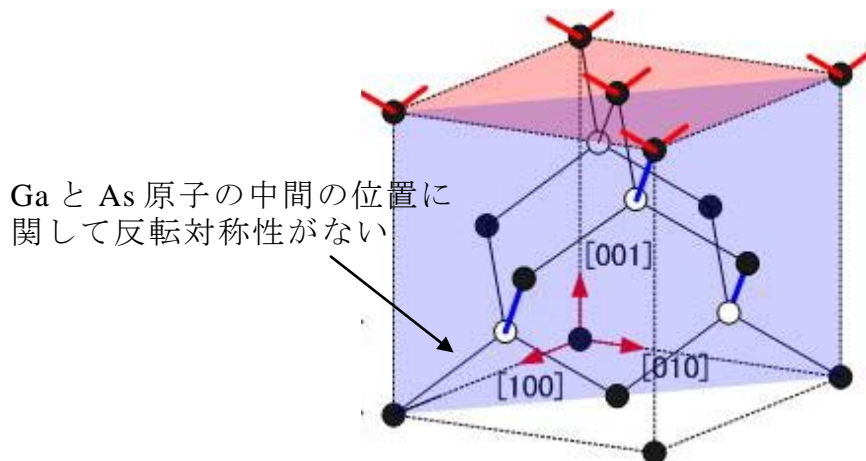


図 2-1 GaAs 結晶構造

(A) バルク反転非対称性

QW などの 2 次元系の場合、電子の量子閉じ込め効果によって電子の運動方向が制限されるため、DP 機構によるスピン緩和は、QW 面方位依存性をもつ。広く使用されている(100)基板上 QW では、BIA に起因する有効磁場は QW 面内方向を向く(図 2-2(a))。そのため、QW 面直方向を向いた電子スピンは、散乱前後で歳差運動の軸が変化するのでスピン緩和が起こる。一方、(110)QW の場合

には、図 2-2(b)に示すように、BIA に起因する有効磁場は QW 面内方向を向く。これは電子スピンの同方向であることから、散乱前後で歳差運動の軸が変化しない。このため、(110)QW では、BIA に起因した DP 機構によって電子スピンは緩和しない。従って(110)QW 中の電子スピン緩和時間は(100)に比べて長くなる。1999 年に Ohno らによって、GaAs(110) QW 中の電子スピン緩和時間は数 ns に達し、(100)QW の数十～百倍であることが実験的に示された[26]。

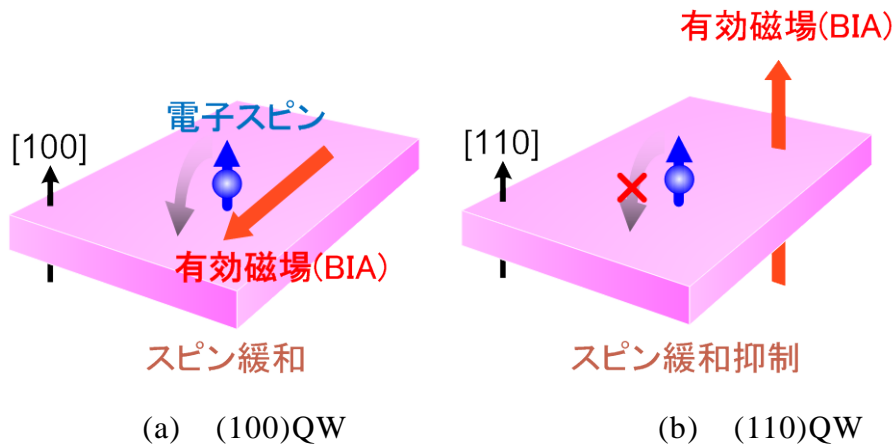
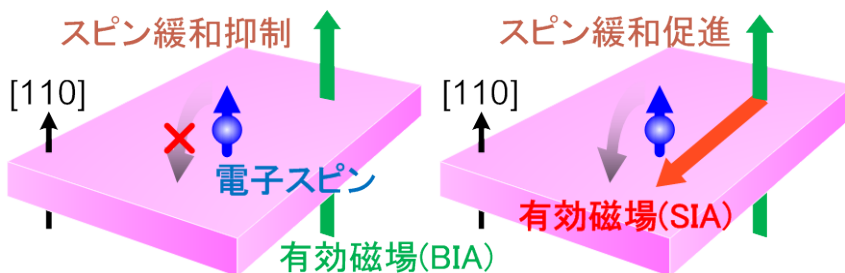


図 2-2 (100)QW と(110)QW における有効磁場の方向

(B) 構造反転非対称性

QW で生じる SIA について述べる。QW のヘテロ界面において、成長軸方向に非対称なラフネスが存在する場合や[19]、QW 面直方向に電場が印加されると[29]、QW 中の電子の波動関数が非対称となる。この場合、QW 面内方向を向いた有効磁場が生じ、スピン緩和が誘起される。



(b) ヘテロ界面平坦性が良いか印加電場がない場合 (a) ヘテロ界面平坦性が悪い
か印加電場がある場合

図 2-3 (110)QW における有効磁場の方向

2-2-2 Elliott-Yafet 機構[16]

EY 機構は、up と down スピン電子がスピン軌道相互作用のため、それぞれの波動関数が独立な基底状態では無くなり、両方のスピン状態が混合することに起因する。このため、スピンの無依存なイオン化不純物散乱やフォノン散乱でも、スピン方向が反転する可能性が生じる。EY 機構による τ_s は次式で表せる。

$$\frac{1}{\tau_s} \propto \left(\frac{\Delta_{so}}{E_g + \Delta_{so}} \right)^2 \left(\frac{E(\mathbf{k})}{E_g} \right)^2 \frac{1}{\tau_p^*} \quad (2-2)$$

ここで Δ_{so} はスピン軌道分裂の大きさである。この機構ではキャリアの散乱によってスピン緩和が起こるため、 τ_s は τ_p^* に比例する。閃亜鉛鉱構造の半導体では、伝導帯下端近傍の電子は、主に s 軌道で構成されるが、 $\mathbf{k} = 0$ から離れるに従って p 軌道との混成が大きくなる。このため、伝導帯で電子もスピン軌道相互作用の影響を受ける。また E_g が小さいほど p 軌道との混成は大きくなるため、この機構では E_g が小さいほど、またスピン軌道分裂が大きいほど、スピン緩和が起こりやすい。

2-2-3 Bir-Aronov-Pikus 機構[17]

BAP 機構は電子-正孔間の交換相互作用により引き起こされる緩和過程であり、特に p 型半導体において重要な機構であることが知られている。価電子帯上端近傍の正孔は主に p 軌道で構成されるため、強いスピン軌道相互作用により、正孔スピンは EY 機構の大きな影響を受ける。このため、正孔のスピン緩和時間は数 ps と極めて短い。したがって、電子と正孔が共存する系では、電子-正孔間の交換相互作用を通じたスピントリップによる電子スピン緩和が生じる。BAP 機構では、電子と正孔の波動関数の空間的な重なりが大きいほどスピン緩和が強く生じるため、励起子が形成されやすい低温域で支配的であり、かつ井戸幅の小さい量子井戸や量子ドットなどにおいて顕著に表れる。

2-2-4 GaAs(110)量子井戸におけるスピン緩和

2-2-1 において述べたように、(110)QW では、BIA による強い DP 緩和が抑制される。従って、ヘテロ界面が平滑、かつ、外部から電場が印加されていない場合、(110)QW では、電子-正孔間の交換相互作用によるスピン緩和が支配的になると考えられている。Ohno らはこれを励起子の熱解離モデルにより説明している[26]。また、彼らは(110)QW に適度な n 型ドーピングを施すことで、電子-正孔間の交換相互作用によるスピン緩和を抑え、室温で 20 ns に達する電子スピン緩和時間を得ている[35]。一方、低温(~20 K)では、電子-正孔間の交換相互作用が強くなるため、電子スピン緩和時間は 2 ns 程度まで減少するが[36]、測定において正孔の生成を伴わないスピンノイズ分光法を用いることにより、電子-正孔間の交換相互作用を抑制することができ、電子スピン緩和時間が約 20 ns まで増大することが報告されている[37]。このような状況下では、支配的な電子スピン緩和機構は、ランダムラッシュバ効果による DP 機構であると指摘されている[37,38]。

2-3 電子スピン緩和時間の評価法

半導体中の電子スピンと光子の偏光は、光学遷移選択則を通して関係しているため、発光の偏光状態を調べることにより、電子のスピン偏極状態に関する情報を得ることができる。ここでは、光学遷移選択則とそれを利用した偏光時間分解 PL 法、そして、得られたデータから電子スピン緩和時間を導出する方法について述べる。

2-3-1 光学遷移選択則[14]

半導体の電子遷移過程において、光子と励起される電子の間には角運動量の保存則が成立する。つまり、右回り($\sigma+$)、及び左回り($\sigma-$)円偏光の進行方向(z成分)の角運動量(+1、及び-1)が、電子に与えられ、電子と光子を合わせた系全体の角運動量が保存される。したがって、励起される電子のスピン状態を円偏光によって制御することができる。この光学遷移選択則は直接遷移半導体においてファラデー配置、すなわち光の進行方向とスピン量子化軸がともに基板と垂直になる場合に、 Γ 点でのみ厳密に成り立つ。図 2-4 に量子井戸中の電子を右回り円偏光($\sigma+$)で励起した場合の光学遷移選択則を示す。図中に、伝導帯(CB)、重い正孔帯(HH)、軽い正孔帯(LH)について、それぞれ全角運動量の z 成分 m_j を示している。 m_j は軌道角運動量の z 成分 m_{l_z} とスピン角運動量 m_s の和で表される。 Γ 点近傍において、伝導帯は主に s 軌道からなるため、 $m_{l_z} = 0$ となる。電子は $m_s = \pm 1/2$ のスピンを持つことから、 $m_j = \pm 1/2$ である。一方、価電子帯は主に p 軌道からなるため、 $m_{l_z} = 0, \pm 1$ となり、 $m_j = \pm 1/2$ (LH), $\pm 3/2$ (HH) である。例えば、 $\sigma+$ 偏光の励起光を用いて HH と LH の両者を励起した場合、 $\sigma+$ 偏光の角運動量の z 成分+1 により電子の m_{l_z} が+1 だけ増える。つまり、遷移において m_s は変化しない。従って、図中に示す①down スピンの HH ($m_j = -3/2$)から down スピンの CB ($m_j = -1/2$) ②up スピンの LH ($m_j = -1/2$)から up スピンの CB ($m_j = +1/2$)への遷移のみが許容となる。このとき、HH と LH の遷移確率の比 (3:1) に従い、down スピン電子がより多く励起される。このとき、式(2-3)で表されるスピン偏極度 P は 0.5 となる。

$$P \equiv \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-} \quad (2-3)$$

ここで、 N_+ 、 N_- はそれぞれ down スピン、up スピン伝導帯電子のキャリア密度である。

量子井戸の場合は、HH と LH のエネルギー準位が異なるため、HH のみを選択的に励起すると、理想的には $P=1$ の 100% スピン偏極した状態を生成することが可能である。

発光においてもこの選択則は成立し、down スピン伝導帯電子($m_j = -1/2$)が down スピンの HH ($m_j = -3/2$)へ遷移(再結合)する際、右回り円偏光を発する。同様に、up スピン伝導帯電子($m_j = +1/2$)が up スピンの LH ($m_j = -1/2$)へ遷移する際にも右回り円偏光を発する。

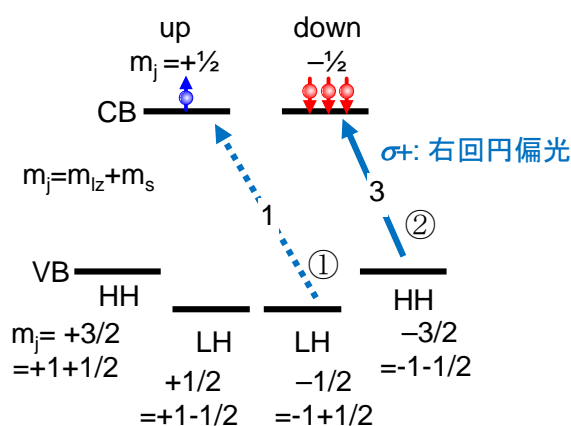


図 2-4 量子井戸中の光学遷移選択則

2-3-2 測定方法

2-3-1 で示したように、伝導帯に励起されたスピン偏極電子は、再結合過程において、そのスピン状態を反映した円偏光を発することから、発光の偏光状態の時間変化を調べることにより、伝導帯電子のスピンダイナミクスを評価することができる。そこで本研究では、円偏光パルスによりスピン偏極電子を量子井戸に光注入し、ストリークカメラによりフォトルミネセンス(PL)の時間変化の検出を行う偏光時間分解 PL 法を用いて電子スピン緩和時間を評価した[39]。図 2-5 に測定光学系を示す。励起光源にはパルス幅 70 fs、繰り返し周波数 80 MHz(パルス間隔 12.5 ns)のモード同期チタンサファイアレーザ (Spectra Physics 社 Tsunami)を使用した。試料の位置における励起ビーム径は約 25 μm である。チタンサファイアレーザから出力された光は約 90°の直線偏光(電場の振動方向が光学定盤に対して垂直)であるため、偏光子により 45°または 135°の

直線偏光に変換し、次に $\lambda/4$ バビネソレイユ補償板を用いて右回り円偏光($\sigma+$)または左回り円偏光($\sigma-$)に変換し、試料を励起した。試料からの光には、量子井戸からの PL だけでなく、GaAs 基板からの PL や試料表面で散乱された励起光も含まれるので、量子井戸の伝導帯—重い正孔の基底準位間の遷移による PL のみを波長選択するために、長波長透過フィルタ(LWPF)および半値全幅 10 nm のバンドパスフィルタ(BPF)を使用した。本光学系では、PL スペクトルを測定する際は CCD 分光器(浜松ホトニクス C5095)、PL の時間変化を測定する際にはストリークカメラ(浜松ホトニクス C4334)を使用した。ストリークカメラによる時間分解測定では、量子井戸からの左右円偏光 PL を $\lambda/4$ バビネソレイユ補償板により直交する 0° または 90° の直線偏光に変換し、その後、ビームデバイダによってこれらを空間的に分離する。そして、分離された PL をストリークカメラによって時間分解測定することで、最終的に PL の左右円偏光成分の時間変化を同時計測することができる。

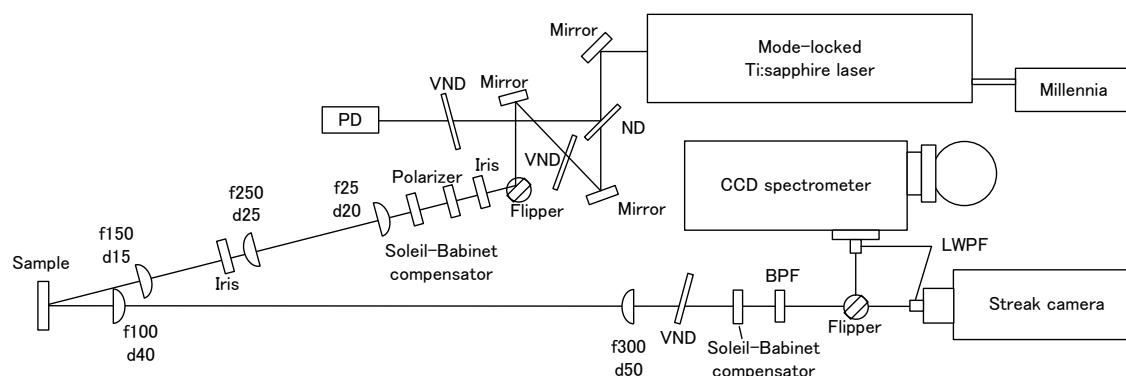


図 2-5 偏光時間分解 PL 測定系

2-3-3 電子スピン緩和時間の導出方法

偏光時間分解 PL 測定では、右回り($\sigma+$)、左回り($\sigma-$)円偏光によって試料を励起し、それぞれの円偏光励起時の PL を左回り、右回り円偏光成分に分離して検出する。図 2-6 に、偏光時間分解 PL 測定結果の典型例を示す。ここで、各円偏光励起時の PL 円偏光成分を次のように定義する。

$\sigma+$ 励起における PL の $\sigma+$ 成分 : I_{++}

$\sigma+$ 励起における PL の $\sigma-$ 成分 : I_{+-}

$\sigma-$ 励起における PL の $\sigma+$ 成分 : I_{-+}

σ -励起における PL の σ -成分 : I_{\pm}

とし、 I_+ および I_- を式(2-4)および(2-5)で定義する。ここでは、左右円偏光励起時の測定誤差を補正するために相乗平均を行っている。

$$I_+ = \sqrt{I_{++}I_{--}} \quad (2-4)$$

$$I_- = \sqrt{I_{+-}I_{-+}} \quad (2-5)$$

i) キャリア寿命の導出

PL 強度 $I(t)$ は電子密度 $N(t)$ に比例する。よって $I_+(t)$, $I_-(t)$ はそれぞれ down スピンの電子密度 $N_+(t)$ 、up スピンの電子密度 $N_-(t)$ に比例する。ここで、 N_+ , N_- とキャリア寿命 τ_c 、スピン緩和時間 τ_s との関係を表すレート方程式を式(2-6)および式(2-7)に示す。

$$\frac{dN_+}{dt} = -\frac{N_+}{\tau_c} - \frac{N_+}{\tau_s} + \frac{N_-}{\tau_s} \quad (2-6)$$

$$\frac{dN_-}{dt} = -\frac{N_-}{\tau_c} + \frac{N_+}{\tau_s} - \frac{N_-}{\tau_s} \quad (2-7)$$

これらの連立微分方程式より

$$\frac{d(N_+ + N_-)}{dt} = -\frac{(N_+ + N_-)}{\tau_c} \quad (2-8)$$

この微分方程式から

$$N(t) \equiv N_+(t) + N_-(t) = N^0 \exp(-t/\tau_c) \quad (2-9)$$

が求まる。 $I(t)$ は $N(t)$ に比例するから、 $I(t)$ と τ_c との関係は次式で表せる。

$$I(t) \propto \exp(-t/\tau_c) \quad (2-10)$$

この式を用いて、測定結果である図 2-7 にフィッティングすることによりキャリア寿命 τ_c が求まる。

ii) スピン緩和時間の導出

式(2-6), (2-7)より

$$\frac{d(N_+ - N_-)}{dt} = -\frac{(N_+ - N_-)}{\tau_c} - \frac{2(N_+ - N_-)}{\tau_s} \quad (2-11)$$

となる。この微分方程式を解くと

$$N_+(t) - N_-(t) = (N_+^0 - N_-^0) \exp(-t/\tau_c) \exp(-2t/\tau_s) \quad (2-12)$$

となる。よって、式(2-9), (2-12)よりスピン偏極率 $P(t)$ は

$$P(t) \equiv \frac{N_+(t) - N_-(t)}{N_+(t) + N_-(t)} = \frac{N_+^0 - N_-^0}{N_+^0 + N_-^0} \exp(-2t/\tau_s) \quad (2-13)$$

と表される。また、 $I_+(t), I_-(t)$ はそれぞれ $N_+(t), N_-(t)$ に比例することから

$$P(t) \propto \frac{I_+(t) - I_-(t)}{I_+(t) + I_-(t)} \propto \exp(-2t/\tau_s) \quad (2-14)$$

これより、測定結果から求めた $P(t)$ にフィッティングすることで電子スピン緩和時間 τ_s が求まる(図 2-8)。

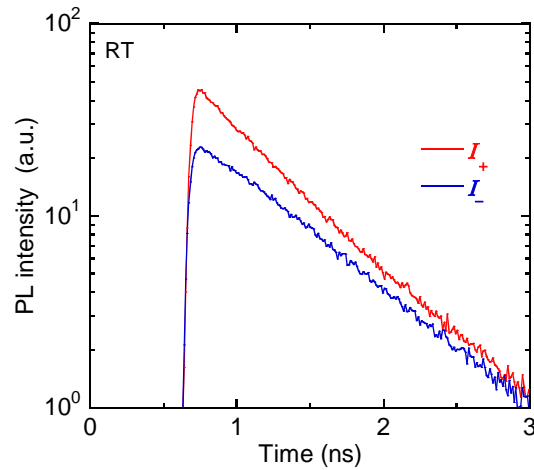


図 2-6 偏光分解 PL 強度の時間変化

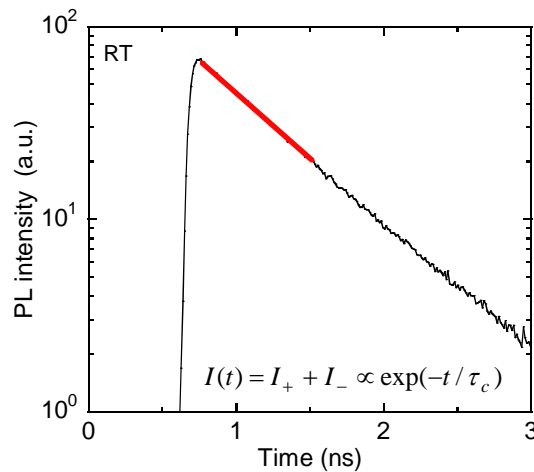


図 2-7 PL 強度の時間変化

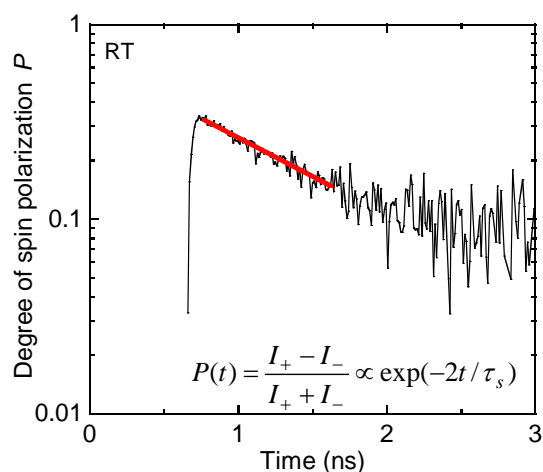


図 2-8 スピン偏極度の時間変化

2-4 まとめ

本章では、半導体中における代表的な電子スピン緩和機構および GaAs(110) QW 中のスピン緩和機構について述べた。また、電子スピン緩和時間の評価法として、光学遷移選択則を利用した偏光時間分解 PL 法について述べた。

第3章 GaAs(110)基板上の結晶成長

3-1 はじめに

量子井戸中の電子スピンドYNAMIXを評価するためには、高品質な結晶が必要である。しかしながら、GaAs(110)基板上的高品質な結晶成長は、広く使用されているGaAs(100)基板以上に比べて困難であり、成長条件の最適化が必要である。本章では、本研究で用いた分子線エピタキシー(MBE)法についてまず概説し、次に、GaAs(110)基板上MBE成長条件の最適化について述べる。最後に、最適成長条件を用いた(110)GaAs/AlGaAs QWの作製と評価について述べる。

3-2 分子線エピタキシー法[40]

結晶成長法の一つであるMBE法の原理と特徴について述べる。MBE法は、 $10^{-8} \sim 10^{-9}$ Pa程度の超高真空中において、結晶の種々の構成元素が入ったルツボ状の容器(セルと呼ぶ)を加熱し、加熱されて出てくる蒸気を分子線の形で放出させ、数百℃まで加熱した基板の清浄表面に当てることにより、基板上に単結晶薄膜やヘテロ構造をエピタキシャル成長させる結晶成長法である。図3-1に概略図を示す。

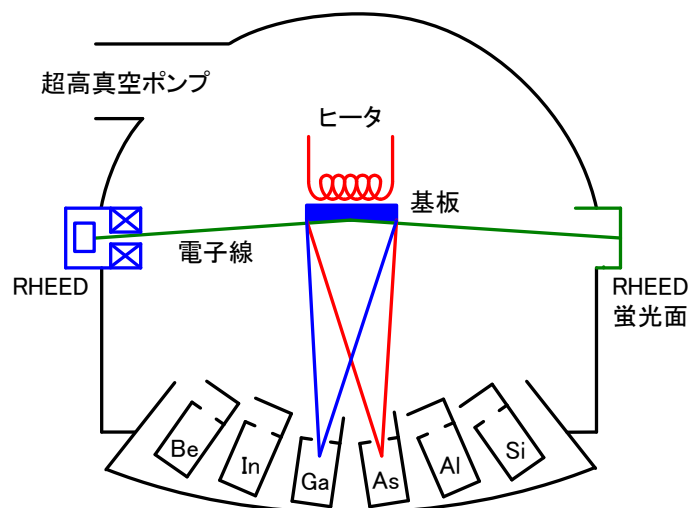


図 3-1 MBE 装置の概略図

MBE 成長法の第 1 の特徴としては、通常の真空蒸着法と異なり $10^{-8} \sim 10^{-9}$ Pa 程度の超高真空を用いているという点が挙げられる。従って、成長時の不純物の取り込みを極めて少なくすることができる。

第 2 の特徴としては、成長速度を極めて遅くすることができ ($0.1 \sim$ 数 $\mu\text{m/h}$)、かつ多くの半導体材料の場合で成長モードが 2 次元的であるため、原子レベルの膜厚制御が可能なことである。エピタキシャル結晶の成長モードは、図 3-2 に示すように 3 つの典型的なモードに分類できる。Frank-van der Merwe (FM) 型は、基板表面上に二次元核が形成され、それが成長して表面全体を覆い、再びこの過程を繰り返して、成長層が 1 原子層ずつ規則正しく層状成長する成長モードである。多くの半導体において、ホモエピタキシャル成長や、格子不整合度の小さなヘテロエピタキシャル成長では、この成長モードをとる。Stranski-Krastanov (SK) 型は、成長初期は二次元核から層状成長し、ある厚さになると、その上に三次元的な島が形成され、成長していくモードである。格子不整合度が比較的大きく、表面エネルギー、界面エネルギーが比較的小さな材料系に現れる。Volmer-Weber (VW) 型は、成長初期から三次元的な島が形成され成長していくモードである。格子不整合度が大きなヘテロエピタキシャル成長はこのモードをとる。

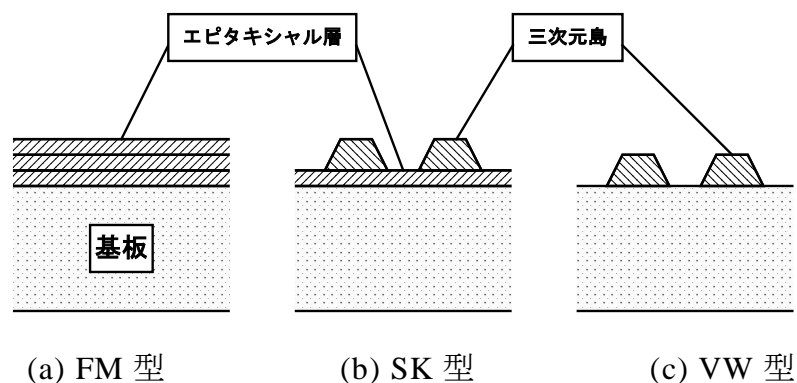


図 3-2 エピタキシャル結晶の成長モード

III-V 族化合物半導体の MBE 成長では、主に III 族原子の表面拡散が結晶品質を決める。III 族原子が十分に拡散して、ステップなどの活性なサイトに取り込まれればステップフロー成長となり、成長層表面は常に平坦になると考えられる(図 3-3)。しかし、拡散が不十分で、III 族原子がステップに到達できずにテラス上に留まった場合、そこが活性なサイトとして機能してしまい、核成長が始まる。従って、急峻なヘテロ界面を得るには、III 族原子を十分に拡散させる必

要がある。これにはいくつか方法がある。一つは、Ⅲ族原子を拡散させるために成長温度を高くすることが考えられる。しかし、必要以上に高温にすると相互拡散や表面偏析が生じ、ヘテロ界面が急峻でなくなる。また一つは、拡散時間を長くするために、成長速度を下げることや、成長を一時的に中断することが考えられる。チャンバー内に酸素等の不純物が全くないような理想的な環境では非常に有効であるが、現実にはチャンバー内に不純物が存在しており、必要以上に成長速度を下げることや、成長中断すると成長表面に不純物が吸着し、欠陥の発生要因となる。また、他にも、微傾斜基板の導入がある。つまり、テラス幅の狭い基板上で成長させることで、ステップフロー成長を行い、表面平坦性の高い試料を作製することが可能となる。このような手法は、困難とされている GaAs(110)基板上の MBE 成長を行う際、非常に重要となる。

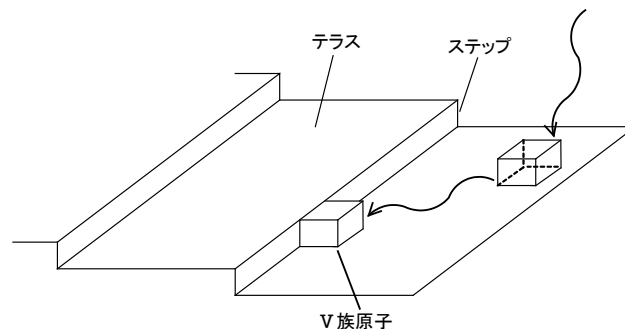


図 3-3 成長表面モデル

第 3 の特徴としては、各蒸着源セルにあるメカニカルなシャッターや、各セルの温度を制御することによって、成長方向の混晶の組成分布、不純物ドーピングの分布を任意に高精度で制御することができることである。従って、成長方向にほぼ任意のバンドプロファイルを持つ半導体ヘテロ構造を作製することができる。

第 4 の特徴としては、結晶成長中に種々の分析手法を用いて成長表面をその場観察することにより、成長機構に関する様々な情報が得られ、成長の制御にフィードバックさせることができることである。特に反射高速電子回折 (RHEED) は、成長表面の状態を観察する方法として極めて有用なその場観察の手段である。

第 5 の特徴としては、MBE 法はその原理の単純さ、得られる結晶の高品質性、原子レベルでの膜厚制御性、その場観察の能力など優れた特徴をもつことから、半導体材料ばかりではなく、金属、絶縁体、超伝導体、磁性体、あるいはそれ

らを組み合わせた人工格子や複合ヘテロ構造など、様々な人工材料の研究に利用できることである。

MBE 法による成長工程について述べる。図 3-4 に使用している MBE 装置の構成図を示す。本装置は投入室、基板搬送室、成長室の 3 室から構成されている。基板を入れるために大気開放する投入室と、結晶成長に使用する成長室の間に、搬送室を設けることで、成長室は常に超高真空状態を維持できるようになっている。本研究では成長室 1 を使用した。また、結晶成長の手順をフローチャートとして図 3-5 に示す。

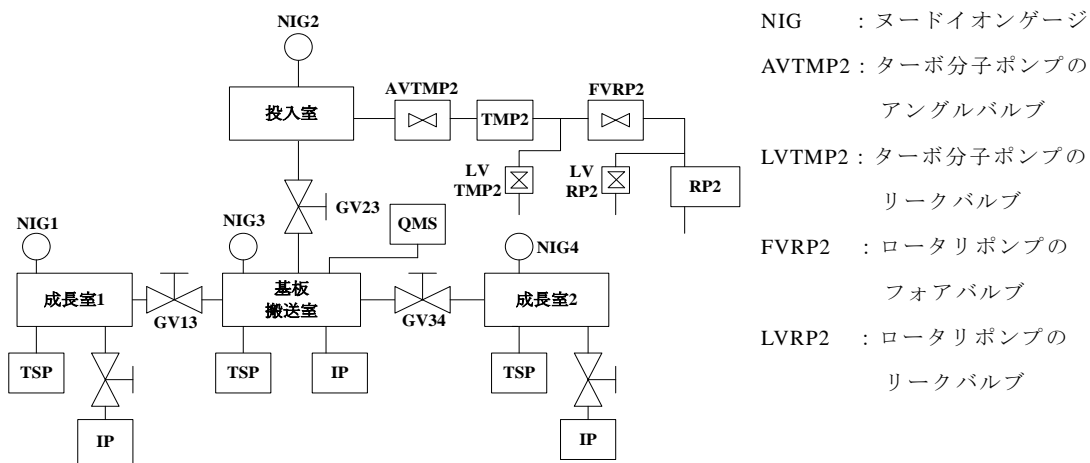


図 3-4 使用した MBE 装置の構成

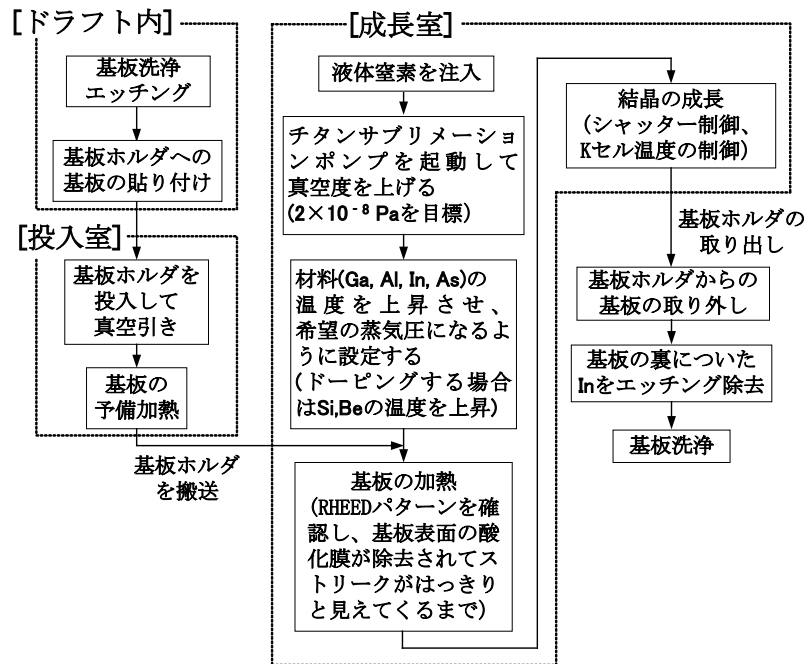


図 3-5 結晶成長の手順

3-3 GaAs(110)基板上ホモエピタキシャル成長

2-2-1 において述べたように、GaAs(110)基板上 QW は、室温において数 ns に達する非常に長い τ_s を示すことが実証されて以来、スピントロニクス分野において注目されている。また、それ以前は、(110)QW の持つ光学遷移の量子井戸面内異方性を利用した、レーザ発振偏光の安定化や低閾値化の面から注目されていた[41]。しかしながら、GaAs(110)基板上の MBE 成長は、通常用いられる GaAs(001)と比べて格段に困難である。ここでは、まず、GaAs(100)と(110)表面の違いについて説明し、これをもとに、高品質結晶成長に必要な成長条件の大枠を検討した。次に、この大枠内において、成長条件(成長速度、As 蒸気圧と Ga 蒸気圧の比(V/III比)、成長温度)を系統的に変化させ、成長条件の最適化を図った。

3-3-1 MBE 成長条件の検討

MBE 成長条件と基板表面構造・状態は密接に関係しているため、GaAs(110)と(100)表面の違いについて理解することは、高品質結晶成長を実現する上で重要である。図 3-6 に GaAs の結晶構造を示す。図 3-6 において、(001)面を赤、(110)面を青で示し、各表面におけるダングリングボンドも示している。各面方位とダングリングボンド数・表面状態との関係を表 3-1 にまとめた。GaAs(001)表面では 1 つの原子から出るダングリングボンドが 2 本あるのに対して、GaAs(110)には 1 本しかないことや、GaAs(110)表面は Ga 原子と As 原子の両方が存在する非極性表面(図 3-7)であることが分かる。これらのため、GaAs(110)表面では As 原子の吸着が起こりにくいと考えられる。実際、Joyce らにより、通常 GaAs(100)基板上 MBE 成長において使用される成長温度 580°C では、GaAs(001)への As 原子吸着係数が 0.42 であるのに対して、GaAs(110)では 0.08 程度に留まり、著しく小さくなることが報告されている(図 3-8[42])。このような小さな As 原子吸着係数は結晶品質の悪化を招く。しかし、図 3-8 から、成長温度を 480°C まで下げることにより、As 原子吸着係数が 0.22 まで増大することが分かる。以上より、GaAs(110)基板上の高品質結晶成長の実現には、As 原子吸着係数を上げるために低い成長温度が必要であることが分かる。また、高い V/III 比も高い As 原子吸着係数につながる。成長温度が低い場合、Ga 原子の表面マイ

グレーションが抑制され、結晶品質の低下につながる可能性があることから、マイグレーションを促すために低い成長速度も必要になるであろう。これまで既に報告されている GaAs(110)成長条件を表 3-2 にまとめた。参考として、通常の GaAs(100)基板上の MBE 成長条件も表に示す。表より、GaAs(110)成長条件として、成長速度は 0.25~0.50 $\mu\text{m}/\text{h}$ 、V/III比は 30~70、成長温度は 450~520 $^{\circ}\text{C}$ が有望な成長条件であろうと予測される。

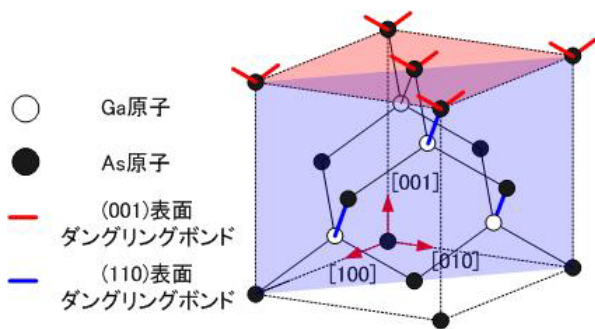


図 3-6 GaAs 閃亜鉛鉱構造

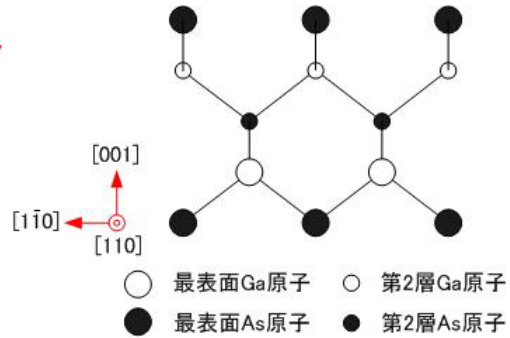


図 3-7 GaAs(110)表面模式図

表 3-1 GaAs(001)と(110)の表面状態

面方位	ダングリングボンド	表面状態
GaAs(001)	2 本	極性表面
GaAs(110)	1 本	非極性表面

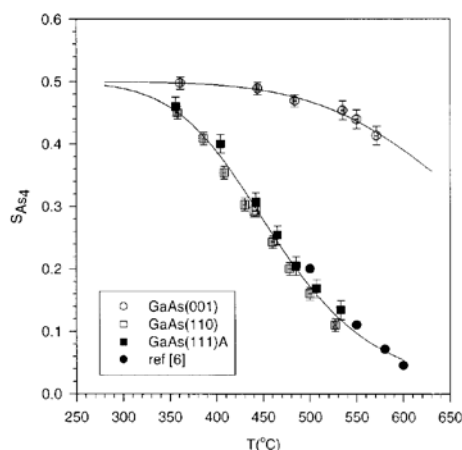


図 3-8 (001),(111)A,(110)における
As 原子吸着率の温度依存性[42]

表 3-2 GaAs(110)成長条件

文献番号	成長速度[$\mu\text{m}/\text{h}$]	V/Ⅲ比	成長温度[$^{\circ}\text{C}$]
43	0.2	70	490
44	0.43	70	490~520
45	0.5	30	480
46	0.42	10 以上	450
GaAs(100)	1	10~20	580

3-3-2 表面形態と結晶性の評価

GaAs(110)基板上 MBE 成長条件の最適化を行うにあたり、表 3-2 の成長条件を参考にし、成長温度・成長速度・V/Ⅲ比を系統的に変えて半絶縁性 GaAs(110)基板上にホモエピタキシャル成長をおこなった。膜厚は 500 nm とし、意図的な不純物ドーピングは行っていない。作製した成長条件を表 3-3 に示す。作製した試料の表面形態を RHEED・光学顕微鏡、結晶性を XRD により評価した。

表 3-3 ホモエピタキシャル成長条件一覧

試料	成長速度 [$\mu\text{m/h}$]	V/III比	成長温度 [$^{\circ}\text{C}$]
A-1	0.50	40	430
A-2	0.50	40	480
A-3	0.50	40	530
B-1	0.50	80	430
B-2	0.50	80	480
B-3	0.50	80	530
C-1	0.25	40	430
C-2	0.25	40	480
C-3	0.25	40	530
D-1	0.25	80	430
D-2	0.25	80	480
D-3	0.25	80	530

i) RHEED による表面構造の測定

MBE 成長においては、RHEED によるその場観察により、試料の表面構造を調べることができる。図 3-9 に、GaAs(110)成長前および成長終了直後の RHEED パターンを示す。それぞれ、試料に対して電子銃を $[001]$ 、 $[\bar{1}12]$ 、 $[\bar{1}10]$ 方向へ入射させたときのパターンである。これらのパターンはストリーク状であることから、本試料は平坦な表面を形成していると考えられる。また、図 3-10 に、GaAs(110)表面構造を示す。図中に、 $[001]$ 、 $[\bar{1}12]$ 、 $[\bar{1}10]$ 方向への各原子間距離を示している。図 3-9 において、これらのストリーク間隔を測定すると、その比は 5.9 : 7.1 : 4.0 であった。実格子ではストリーク間隔の逆数をとるので 3.83 : 3.18 : 5.65 となり、この間隔はそれぞれ電子銃を $[001]$ 、 $[\bar{1}12]$ 、 $[\bar{1}10]$ 方向へ入射させたときの理想的な間隔 3.99 : 3.25 : 5.65(図 3-10)にかなり近くなった。従って、これらのパターンにおける電子銃の入射方向は設定どおりそれぞれ $[001]$ 、 $[\bar{1}12]$ 、 $[\bar{1}10]$ 方向になっていると考えられる。また、いずれの RHEED パターンにおいても、観察されているのは、既報と同様に、バルクの原子配列に由来するストリークのみである[47]。広く使用されている GaAs(100)表面では、表面再

構成と呼ばれる現象が生じており、表面エネルギーの安定化のために、最表面の原子配列周期はバルクのそれとは異なっている。そのため、GaAs(100)表面のRHEEDパターンでは、バルクだけでなく、再構成した表面の原子配列周期性を反映したパターンも観測される。一方、GaAs(110)表面では、GaAs(100)とは異なり、バルクの原子配列周期性に起因するストリークパターンのみが観測されていることから、表面再構成が生じておらず、最表面においてもバルクと同様な原子配列(図 3-10)が保持されていることが分かる。

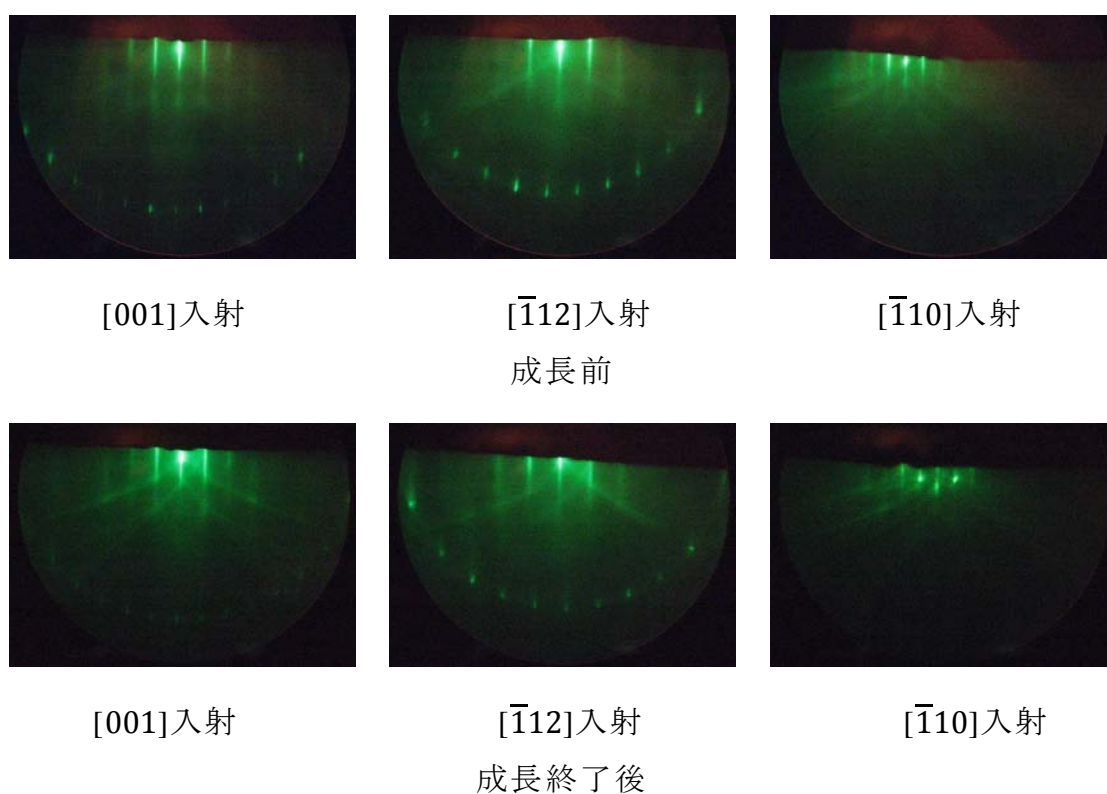


図 3-9 GaAs(110) RHEED pattern

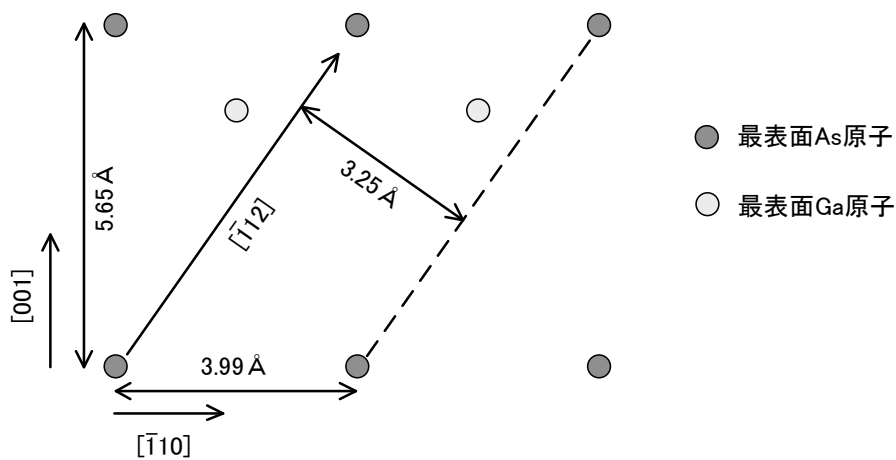


図 3-10 GaAs(110)表面構造

ii) 光学顕微鏡による表面形態

図 3-11 に前述の 12 成長条件で成長した GaAs(110)試料の光学顕微鏡によるノマルスキー表面形態をまとめて示す。既報と同様に、試料表面には三角形形状のファセットが見られ、すべて共通して $[001]$ 方向を向いている[47]。このような形状のファセットは、GaAs(100)表面では観察されておらず、GaAs(110)に特有な形状である。非極性表面である GaAs(110)表面には Ga{111}と As{111}面が存在し(図 3-12)、これらの面への As 原子や Ga 原子の吸着率が異なることから、三角形形状のファセットが形成されたと考えられる[48]。

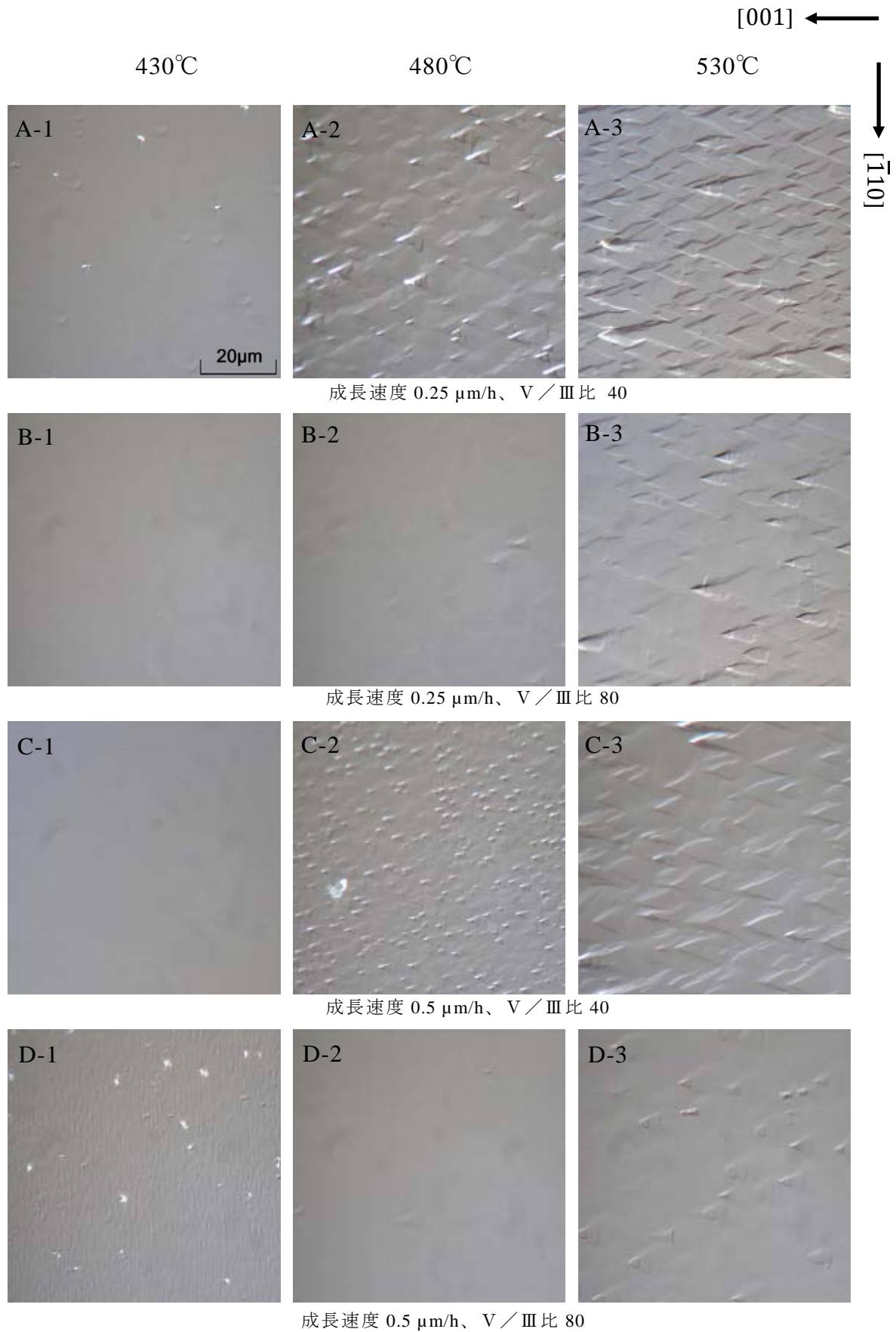


図 3-11 各成長条件における光学顕微鏡による表面形態

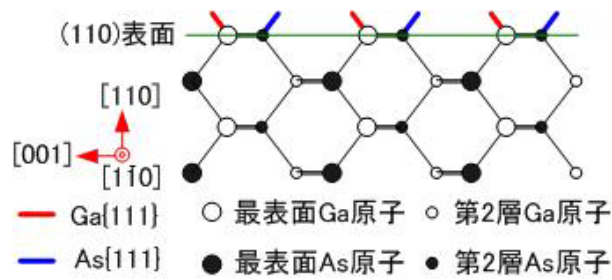


図 3-12 Ga{111}と As{111}面

図 3-11 に示した結果から成長条件の違いにより表面形態が大きく異なることがわかる。

① V/Ⅲ比

V/Ⅲ比 40 と 80 の試料に関して、試料 A と D を除き、フラックス比を増やすと三角形状欠陥の密度が減少した。

② 成長温度

成長速度 0.5 $\mu\text{m/h}$ 、V/Ⅲ比 80 のシリーズ以外では、成長温度が低い側ほど三角形状欠陥の密度が減少した。

③ 成長速度

成長速度に関しては、全体として一様な傾向は見られなかった。

iii) XRD による結晶性評価

前記 12 条件で作製した試料の結晶性を XRD ロッキングカーブ測定により評価した(PANalytical 製 X'Pert-MRD を使用)。測定された回折ピークの幅が面方位の揺らぎの度合いに比例しており、回折ピークの半値全幅から試料の結晶性を評価することができ、回折ピークの半値全幅が小さいほど試料の結晶性は高いと言える。図 3-13 に、試料 D-2 の XRD(220)面ロッキングカーブ測定結果を示す。本試料の回折ピークの半値全幅は 14 arcsec であった。この値は、最適成長条件(成長速度 1.0 $\mu\text{m/h}$ 、V/III比 15、成長温度 580 $^{\circ}\text{C}$)で作製した GaAs(100)試料と同程度の値である。また、GaAs(110)基板の半値全幅も同様な値であることから、本試料は高い結晶性を有していると言える。

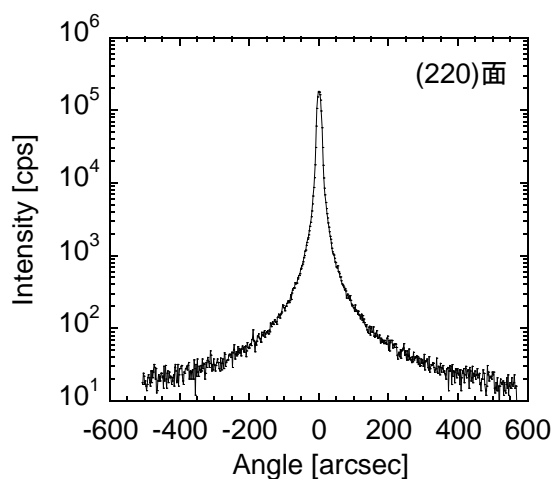


図 3-13 GaAs(110) XRD ロッキングカーブ(試料 D-2)

図 3-14 に、12 条件で作製した試料の XRD(220)面ロックングカーブ半値全幅と成長条件の関係をまとめた。図から、成長温度 480°C で回折ピークの半値全幅が小さくなる傾向があり、その中でも成長速度 0.50 $\mu\text{m/h}$ 、V/III 比 80 の試料の半値全幅が最も小さく、結晶の完全性に優れていることがわかる。また、低成長速度(0.25 $\mu\text{m/h} = 0.69 \text{ \AA/s}$)では、全体的に半値全幅が大きくなっているが、これは、成長速度が遅いことによりチャンバー内の不純物が試料に取り込まれ、その結果、結晶性が悪くなっていると考えられる。成長速度 0.25 $\mu\text{m/h}$ では、V/III 比を 80 にすると半値全幅が大きくなり、結晶性が悪くなっているが、これは成長速度が遅いことにより、Ga 原子が基板表面に到達する前に、過剰 As 原子が本来のサイトではない場所に取り込まれてしまうためと考えられる。

これらの一連の表面形態および結晶性に関する結果から、今回作製した 12 条件の中では成長速度 0.50 $\mu\text{m/h}$ 、V/III 比 80、成長温度 480°C が最適成長条件であると判断した。また、この結果は、従来報告されている GaAs(110)の成長条件、つまり、GaAs(100)に比べて低い成長温度・低い成長速度・高い V/III 比と同様な傾向である。

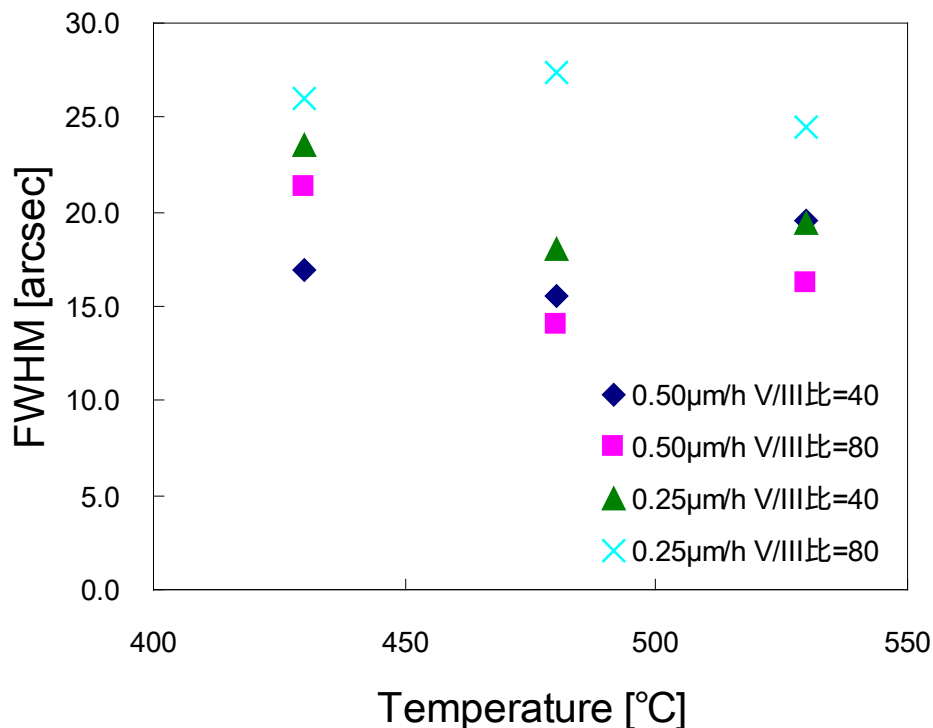


図 3-14 各成長条件における XRD(220)面ロックングカーブ半値全幅

3-4 GaAs/AlGaAs(110)量子井戸の作製と評価

次に、3-3 において最適化した成長条件を用いた GaAs(110)基板上 GaAs/AlGaAs 多重量子井戸の作製および XRD による構造評価、PL 測定による光学特性評価について述べる。

3-4-1 試料構造

最適成長条件(成長速度 0.50 $\mu\text{m}/\text{h}$ 、V/III比 80、成長温度 480 $^{\circ}\text{C}$)を用いて、半絶縁性 GaAs(110)基板上に GaAs/AlGaAs 多重量子井戸(MQW)を MBE 成長した。試料の目標構造を模式的に図 3-15 に示す。試料は、全層アンドープであり、厚さ 9 nm の GaAs 井戸層と厚さ 20 nm の $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ 障壁層から成る量子井戸が 20 層含まれている。

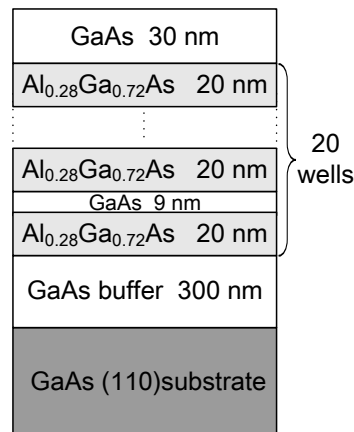


図 3-15 目標構造模式図

3-4-2 X 線回折測定による構造評価

作製した試料の構造を XRD により評価した。図 3-16 に(220)面の ω - 2θ 測定結果を示す。図より、構造の周期性に起因したサテライトピークが観察されていることから、本試料は量子井戸構造が積層されていることが分かる。また、図 3-16 に、井戸層の膜厚・バリア層の Al 組成および膜厚をパラメータとしてフィッティングを行った結果も示している。試料構造の目標値およびフィッティングにより得られた値を表 3-4 に示す。表 3-4 より、フィッティング値は膜厚・Al 組成比ともに目標値とほぼ一致しており、制御性良く結晶成長できていることが分かる。

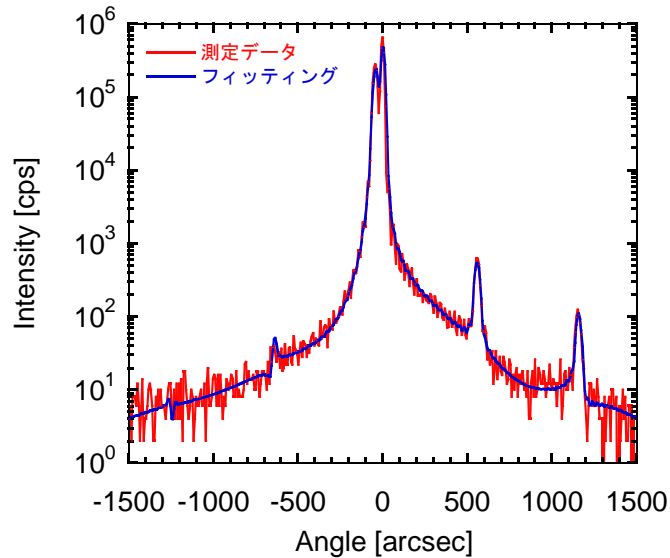


図 3-16 XRD による(220)面の ω - 2θ 測定結果

表 3-4 各成長条件

	目標構造	フィッティング
GaAs well 膜厚 [nm]	9.0	8.9
AlGaAs barrier 膜厚 [nm]	20.0	19.8
Al 組成比	0.28	0.28

3-4-3 フォトルミネセンス測定による光学特性評価

作製した試料の室温における光学特性を PL 測定により評価した。使用した測定光学系を図 3-17 に示す。励起光源には、波長 632.8 nm の連続波(CW)発振 He-Ne レーザを使用した。試料は 90° の直線偏光(電場の振動方向が光学定盤に対して垂直)で励起した。ビームスポットサイズは約 300 μm 、励起強度は 2 mW である。試料からの直線偏光 PL をダブルモノクロメーター(SPEX 社 1402)によって分光し、光電子増倍管(浜松ホトニクス R5509-73)で検出した。また、励起光をチョッパーで変調し、ロックインアンプ(EG&G 社 5207)を用いてロックイン検出している。図 3-18 に室温における PL スペクトルを示す。スペクトルは、波長 837 nm、847 nm でピークを示した。そこで、これらのピークの同定を行うため、図 3-17 に示した光学系を用いて偏光分解 PL 測定を室温で行った。(110)量子井戸は光学対称性から分類すると 2 軸結晶に分類され、量子井戸面内の直交する直線偏光間で遷移行列要素の大きさに違いが生じる。表

3-5 に、Luttinger-Kohn モデルによる(110)QW の伝導帯および価電子帯の電子状態をもとに計算された遷移行列要素の大きさを示す[49]。ここでは、バルクの遷移行列要素で規格化した値を示している。表から、伝導帯-重い正孔間の遷移では、 $[\bar{1}10]$ 方向の光学遷移行列要素の方が $[001]$ 方向より大きい、伝導帯-軽い正孔間の遷移では、大小関係が逆転している。PL 強度は光学遷移行列要素の大きさに関係しているため、 $[\bar{1}10]$ および $[001]$ 方向に偏光分解した PL 測定によりピークの同定が可能となる。偏光分解 PL 測定結果を図 3-19 に示す。図において、青線と赤線は、それぞれ、偏光子により $[\bar{1}10]$ および $[001]$ 方向に偏光分解された PL スペクトルである。ピーク①では、 $[\bar{1}10]$ 方向の PL 強度が強く、ピーク②では逆傾向を示していることから、それぞれ、伝導帯-重い正孔間、伝導帯-軽い正孔間の遷移による発光であると考えられる。また、これらのピーク波長は、量子化エネルギー準位の計算値とも良く一致しており、上記のピーク同定が正しいと考えられる。

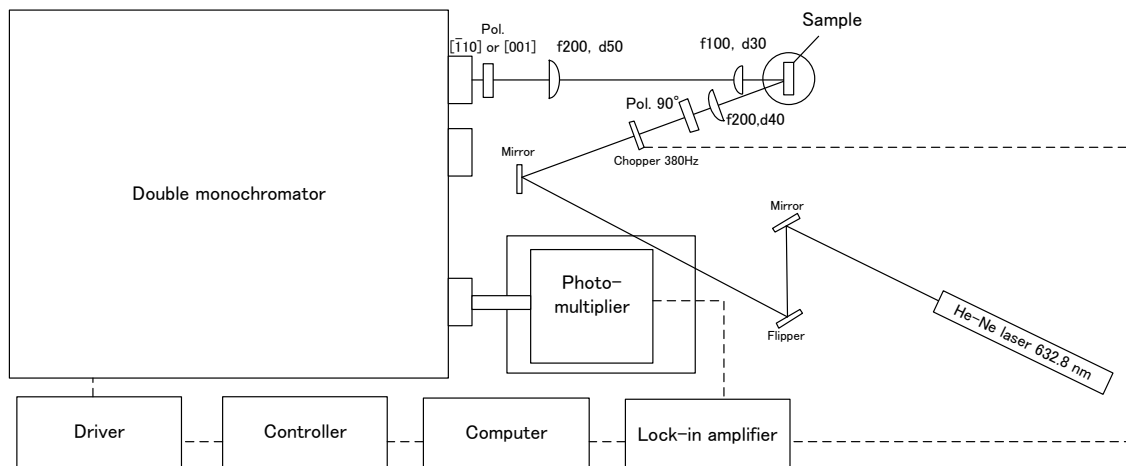


図 3-17 CW 励起 PL 測定光学系

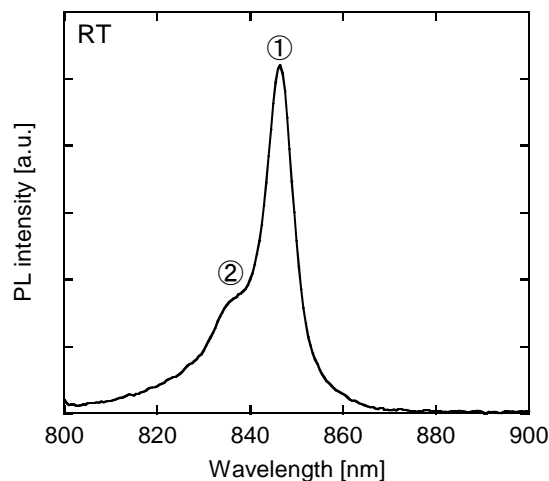


図 3-18 室温 PL スペクトル

表 3-5 光学遷移行列要素[49]

	$ M ^2 / M_b ^2$	
	e-hh	e-lh
$\bar{1}10$]偏光	1.61	0.39
[001]偏光	1.39	0.61

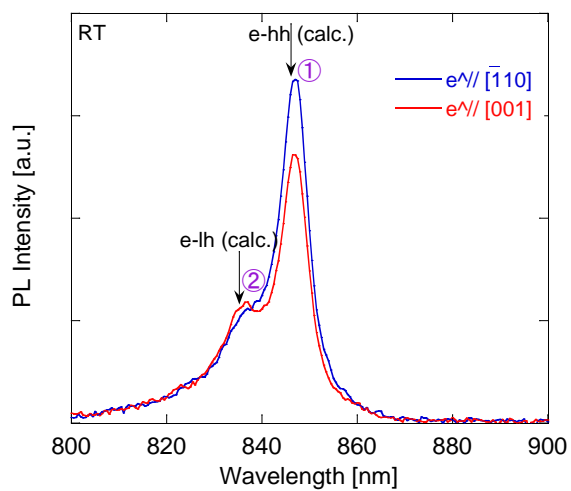


図 3-19 偏光分解 PL スペクトル

3-5 まとめ

本章では、GaAs(100)基板以上に比べて困難な GaAs(110)基板上の GaAs/AlGaAs 成長条件の最適化を検討し、この最適成長条件を用いて(110)QW を作製した。以下に得られた知見を示す。

- A) 成長条件(成長速度、As 蒸気圧と Ga 蒸気圧の比(V/Ⅲ比)、成長温度)を系統的に変え、GaAs(110)基板上の MBE 成長条件の最適化を図った。光学顕微鏡による表面観察より、V/Ⅲ比を増やすと三角形状欠陥の密度が減少することが分かった。また、成長温度が低いほど三角形状欠陥の密度が減少した。最適成長条件(成長速度 0.50 $\mu\text{m/h}$ 、V/Ⅲ比 80、成長温度 480 $^{\circ}\text{C}$)で作製した試料は、XRD 測定から GaAs(100)試料や基板と同程度の非常に高い結晶性を有していることが分かった。
- B) 最適成長条件を用いて、(110)GaAs/AlGaAs QW を MBE 成長した。作製した試料の室温における PL 測定において量子構造が分解された PL スペクトルが得られた。作製した試料は、XRD 測定においてもシャープなサテライトピークが得られており、高品質 QW の作製に成功したと言える。また、(110)QW の面内光学遷移行列要素の異方性を利用して量子構造のピークの同定を行った。

今回得られた高品質結晶成長に関する知見は、今後、(110)基板上のスピンデバイスを実現する上で必要な成果であると考えられる。

第 4 章 量子井戸中の電子スピン緩和と界面平坦性の相関

4-1 はじめに

2-3 において述べたように、QW のヘテロ界面において、成長軸方向に非対称なラフネスが存在すると、構造反転非対称性 SIA による井戸面内方向の有効磁場が生じるため、これによりスピン緩和が起こると考えられる。従って、QW のヘテロ界面平坦性に応じて電子スピンドYNAMICS が変化すると予測される [19,50]。(110)QW では、バルク反転非対称性 BIA による強いスピン緩和が生じないため、ラフネスで誘起されるスピン緩和を検出でき、より長い電子スピン緩和時間 τ_s の実現に関する知見が得られる可能性がある。最近、(110)GaAs/AlGaAs QW において、AlGaAs 表面上の成長中断が τ_s に与える影響について報告されたが [28]、界面平坦性と τ_s の相関は、まだ十分には理解されていないため、成長中断条件を系統的に変化させ、両者の相関を詳細に調べることが重要である。そこで、本章では、QW のヘテロ界面における MBE 成長中断時間を系統的に変化させることにより界面平坦性の向上を図り、界面平坦性と τ_s との相関を明らかにすることを目的とした。

4-2 成長中断の導入による量子井戸ヘテロ界面平坦化

本研究では、量子井戸ヘテロ界面において成長中断法(Growth interruption: GI)を導入することにより界面平坦化の向上を図った。成長中断法とは、MBE 成長時、III 族原子(Al や Ga)のビームを止め、As ビームのみを試料に照射することで、III 族原子のマイグレーションを促し、表面の再配列を誘起する手法である [51]。ここでは、成長中断条件を系統的に変えて試料を作製し、4 K における PL スペクトルの半値全幅から試料の界面平坦性を評価した。

4-2-1 試料構造と成長中断条件

図 4-1 に 3-3 で最適化した成長条件を用いて作製した試料構造の模式図を示す。図において矢印で示されているヘテロ界面において成長中断を行った。各試料に対する成長中断条件を表 4-1 に示す。試料 C-E では、各 GaAs 井戸層の成長終了直後に、成長中断をそれぞれ 15、30、60 秒行った。また、試料 F と G では、各 GaAs 井戸層の成長終了直後に成長中断を 30 秒行うだけでなく、各 AlGaAs 障壁層の成長終了直後にも、成長中断をそれぞれ 30、60 秒行った。参照試料として(100) QW も作製した(試料 B)。試料 B において使用した成長条件は、(100)QW の成長条件として一般的なものであり、成長速度 1.0 $\mu\text{m/h}$ 、As/Ga フラックス比 20、成長温度 580°C である。

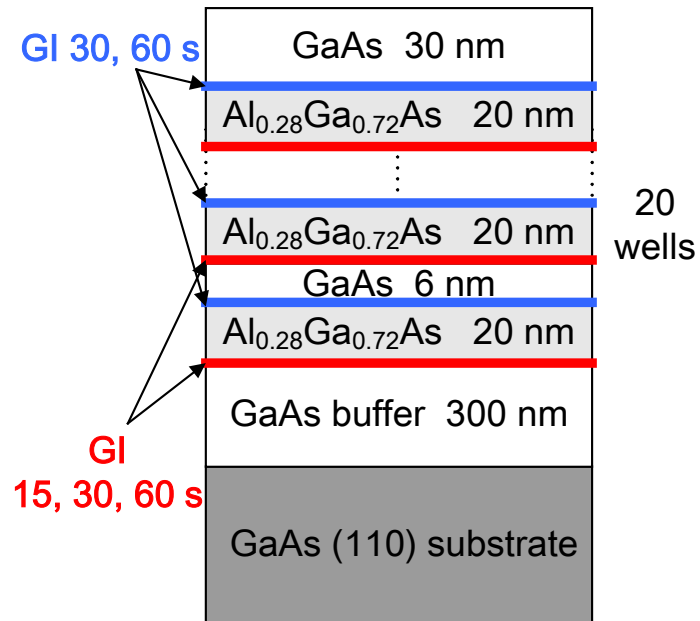


図 4-1 試料構造の模式図

表 4-1 成長中断条件

Sample	Substrate orientation	Growth interruption time (s)		FWHM (meV)
		on GaAs	on AlGaAs	
A	(110)	0	0	8.6
B	(100)	0	0	3.2
C	(110)	15	0	8.0
D	(110)	30	0	7.9
E	(110)	60	0	8.6
F	(110)	30	30	6.1
G	(110)	30	60	6.0

4-2-2 原子間力顕微鏡および透過電子顕微鏡による評価

作製した試料の表面および断面を、それぞれ原子間力顕微鏡(AFM)、透過電子顕微鏡(TEM)を用いて観察した。図 4-2(a)および(b)に、試料 A と D の表面の AFM 像を示す。図 4-2(a)から、成長中断を実行していない試料の表面では、ステップの方位がランダムであり、また、図中に矢印で示すように、テラス上で核形成されていることが分かる。一方、GaAs 上で成長中断を 30 秒行った試料の表面では、ステップの向きが揃っていることが分かる(図 4-2(b))。しかしながら、図 4-2(a)および(b)において、測定した領域($2\ \mu\text{m} \times 2\ \mu\text{m}$)の面粗さの二乗平均平方根(RMS)はともに約 0.18 nm であり、成長中断時間依存性は見られていない。

次に、図 4-2(c)に、電子線を[001]方向へ入射した際の、試料 D の断面 TEM 像を示す。図から、試料はシャープなヘテロ界面を有しており、転位等の結晶欠陥が発生していないことが分かる。しかし、今回の TEM 測定で用いた試料の膜厚が比較的厚かったため($\sim 100\ \text{nm}$)、界面ラフネスに関する情報が試料厚さ方向に渡って平均化されてしまい、TEM 像から界面ラフネスを正確に評価することは不可能であった。

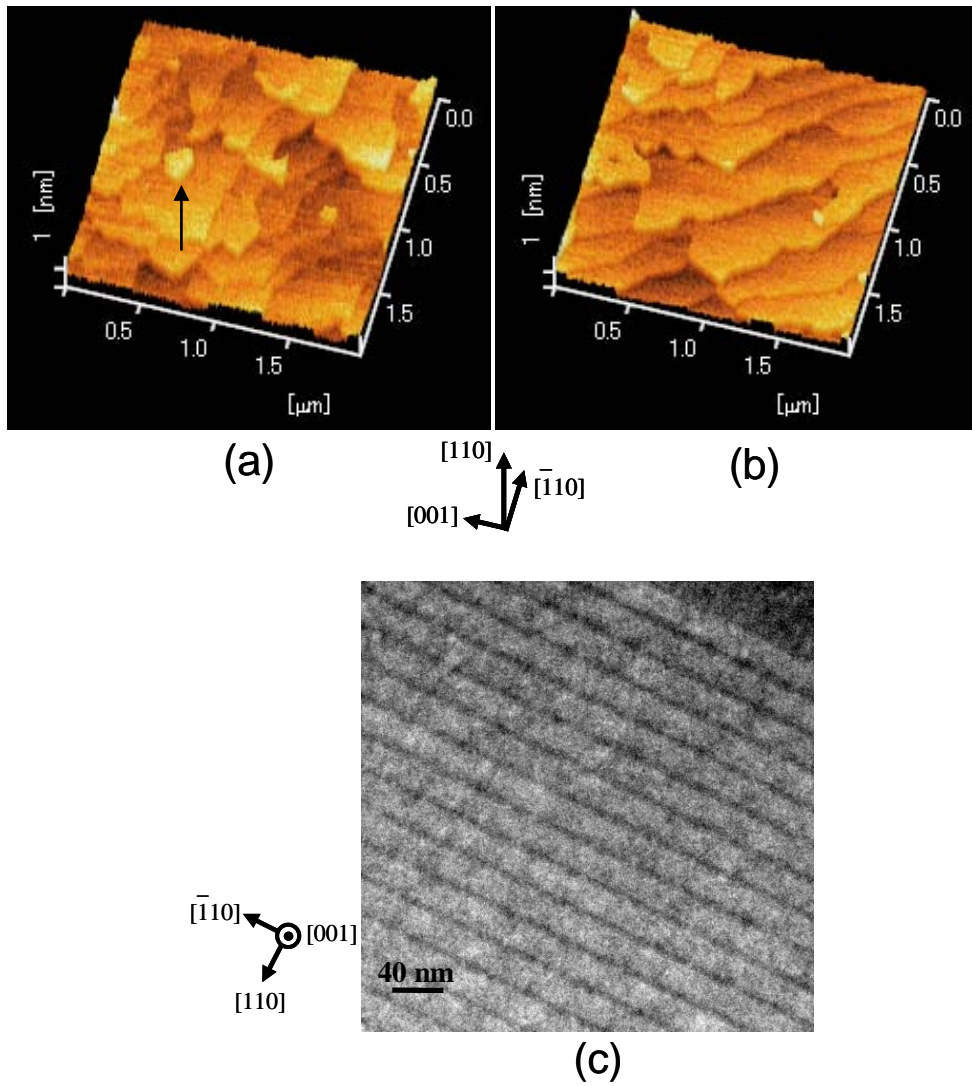


図 4-2 (a), (b) 試料 A および D の表面における AFM 像
 (c) 電子線を $[001]$ 方向へ入射した際の試料 D の断面 TEM 像

4-2-3 成長中断条件と界面平坦性の相関

前述したように、得られた TEM 像から界面ラフネスを正確に評価することはできなかつたため、4 K における PL スペクトルの半値全幅から試料の界面平坦性を評価した。励起光源には He-Ne レーザ(波長 632.8 nm)を使用した。ビーム径は約 300 μm である。従って、測定される PL スペクトルの半値全幅は、ビーム径内における平均化された量子井戸幅の揺らぎを反映している。4 K の熱エネルギーは約 0.3 meV であることから、本手法では、オングストロームオーダーの膜厚揺らぎを観測できる。表 4-1 に、各試料の PL スペクトルの半値全幅をまとめた。図 4-3(a)に、試料 A-E について、成長中断時間と PL スペクトルの半値全幅の関係を示す。黒四角と黒丸はそれぞれ(110) QW および(100) QW についての半値全幅である。また、図中に試料 B と D の PL スペクトルを示す。GaAs 上へテロ界面における成長中断時間が 0-30 秒の範囲では、中断時間が増えるにつれて PL スペクトルの半値全幅は減少し、中断時間が 30 秒において最も半値全幅が狭くなり、7.9 meV であった。しかし、中断時間が 60 秒である試料 E では半値全幅が 8.6 meV まで増加した。半値全幅が狭いほど量子化エネルギーの揺らぎが小さく、膜厚揺らぎ、つまり、界面ラフネスが小さいと考えることができるので、これらの結果から、成長中断を 30 秒行った試料 D が最も平坦な界面を有していることが分かった。また、成長中断を 30 秒以上実行すると、界面平坦化が悪化していることが分かる。これは、必要以上成長中断を行うと、表面マイグレーションによる界面平坦化よりも、MBE チャンバー内の不純物の吸着による界面平坦性の悪化の影響が顕在化したためであろうと考えられる。図 4-3(b)に、試料 D、F、G について、成長中断時間と PL スペクトルの半値全幅の関係を示す。GaAs 表面上だけでなく、AlGaAs 表面上においても成長中断を行うことにより、PL スペクトルの半値全幅はさらに減少し、試料 G においては、半値全幅が 6.0 meV まで狭小化した。この結果から、AlGaAs 表面上で成長中断を行うことによっても界面は平坦化することが分かった。また、GaAs 上では、成長中断を 30 秒以上実行すると、界面平坦性が悪化しているのに対して、AlGaAs 上では、成長中断を 60 秒実行しても、界面平坦性は悪化していない。Al 原子は、Ga 原子に比べて表面運動が弱いため[51]、AlGaAs 上のヘテロ界面平坦化には、より長い成長中断が必要であったと考えられる。

参考として、厚さ 6 nm の GaAs 井戸層と厚さ 20 nm の $\text{Al}_{0.28}\text{Ga}_{0.72}\text{As}$ 障壁層か

ら成る(110)単一量子井戸も作製した。成長条件および成長中断時間は試料 A、D、E、F、G と同様である。単一量子井戸について測定した PL スペクトルの半値全幅は、多重量子井戸とおよそ同程度の値を示した(例えば GaAs 上で成長中断を 30 秒行うことにより FWHM は最も狭くなり、9.7 meV から 8.1 meV まで減少した)。これより、(110)QW における広い半値全幅は、20 層の井戸間の膜厚変化ではなく、それぞれの量子井戸のビーム径内における平均化された量子井戸幅の揺らぎが主に反映されていると考えられる。最も半値全幅が狭小化した試料 G においても、半値全幅は(100)QW(試料 B)の 2 倍程度広い。これは、3-3-2 で述べたように、非極性表面である GaAs(110)表面には Ga{111}と As{111}面が存在し、これらの面への As 原子や Ga 原子の吸着率が異なることから、三角形状のファセットが形成され易いことに起因していると考えられる。そのため、Ⅲ族原子とⅤ族原子を交互に供給することでⅢ族原子の表面運動が活発化し安定なサイトに入りやすい、Migration-Enhanced Epitaxy (MEE)法[52]を導入すれば、界面平坦性が更に向上する可能性がある。

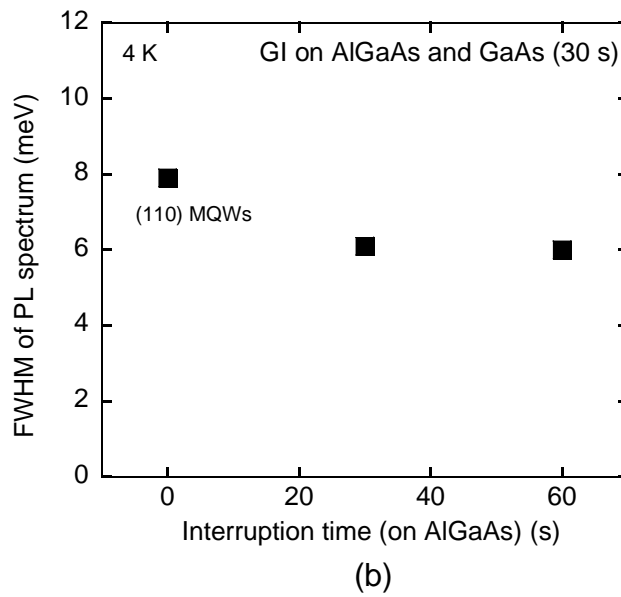
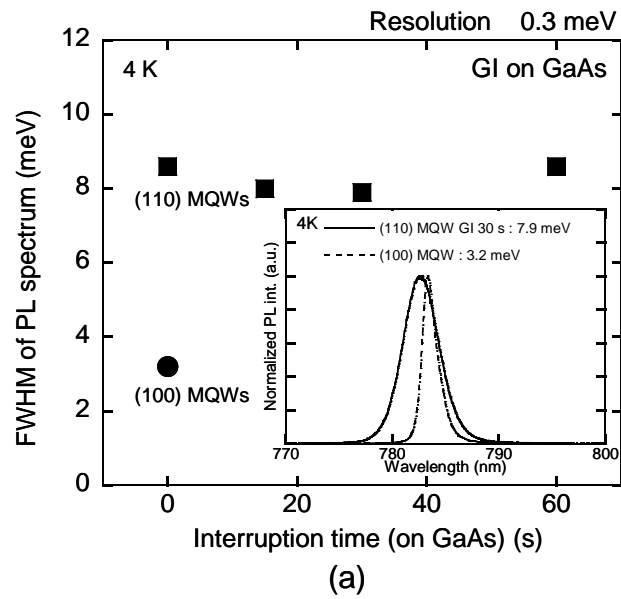


図 4-3 成長中断時間と PL スペクトルの半値全幅

(a)GaAs 上成長中断(b)AlGaAs 上成長中断

(a)挿入図において、実線は試料 D、破線は試料 B の PL スペクトル

4-3 電子スピン緩和時間に対する成長中断の効果

本節では、4-2 において作製した試料を用いて、室温における電子スピン緩和時間 τ_s を 2-3 において述べた偏光時間分解 PL 法により評価する。さらに、前節 4-2 において評価した界面平坦性と τ_s の相関、また、その温度依存性について述べる。

4-3-1 室温における成長中断条件と電子スピン緩和時間の相関

図 4-4(a)に、GaAs 上における成長中断時間と、室温で測定した電子スピン緩和時間 τ_s および PL スペクトルの半値全幅の関係を示す。成長中断時間が 0-30 秒の範囲では、中断時間が増えるにつれて τ_s は 1.8 ns から 2.1 ns まで増加し、さらに成長中断時間が 60 秒まで延びると τ_s は減少した。この結果から、PL スペクトルの半値全幅が狭い試料ほど、つまり、平坦な界面を有する試料ほど、より τ_s が長くなる傾向にあることが分かった。これは、ヘテロ界面が平坦化されたことにより、SIA による DP 緩和が抑制されたためであると考えられる。

図 4-4(b)に、AlGaAs 上における成長中断時間と、室温で測定した τ_s および PL スペクトルの半値全幅の関係を示す。AlGaAs 上で成長中断を行うと、 τ_s は 2.1 ns から 1.7 ns まで減少し、中断時間を 30 秒から 60 秒に変えても τ_s は同様な値であった。また、GaAs 上成長中断実験の結果と異なり、PL スペクトルの半値全幅が狭くなるにも関わらず τ_s は減少した。AlGaAs 表面は GaAs に比べて活性な表面状態であるため、成長中断実行中に MBE チャンバー内の不純物を取り込まれ易い。図 4-5 に示すように、AlGaAs 上で成長中断を行うと、キャリア寿命が 0.7 ns から 0.4 ns まで減少したことから、不純物が生成するトラップによりスピン緩和が促進されている可能性がある[28]。

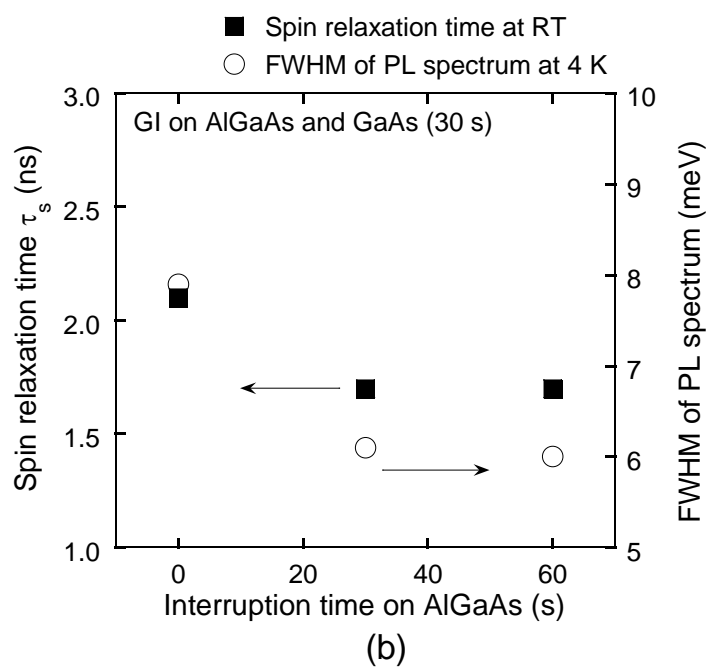
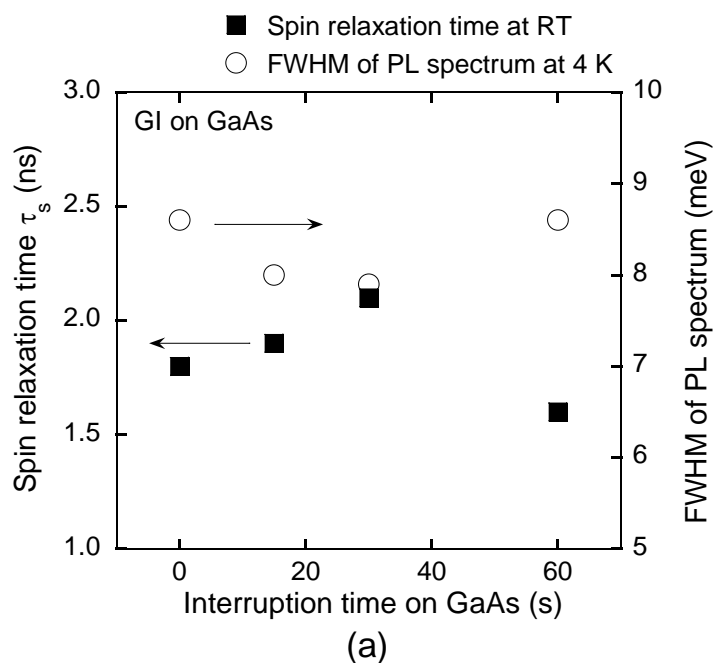


図 4-4 成長中断時間に対する電子スピン緩和時間
と PL スペクトルの半値全幅
(a)GaAs 上(b)AlGaAs 上成長中断

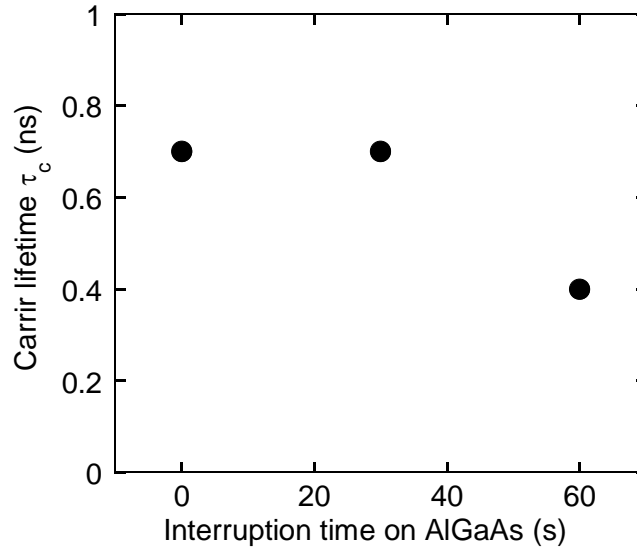


図 4-5 AlGaAs 上成長中断時間に対するキャリア寿命

4-3-2 界面平坦性と電子スピン緩和時間の温度依存性

次に、試料 A、B、D について τ_s の温度依存性を図 4-6 に示す。(100)QW(試料 B)の τ_s は、高温になるにつれて減少した。これは、(100)QW では、BIA による強い DP 緩和が生じているためである。2-2-1 で述べたように、DP 緩和機構が支配的な場合、 τ_s は高温になるにつれて減少する。一方、(110)QW(試料 A、D)では、 τ_s が高温になるにつれて増加し、正の温度依存性を示した。また、室温における(110)QW の τ_s は、既報と同様に(100)QW に比べて 1 桁長いことが分かった[26]。これらの結果は、(110)QW が室温動作スピndeバイスの有望な系であることを示唆している。(110)QW では、BIA による DP 緩和が抑制されているが、スピン緩和は電子と正孔との相互作用(電子正孔交換相互作用)によっても生じる。この正の温度依存性は、温度が上昇するにつれて励起子の熱解離が促進され、電子と正孔の波動関数の重なりが小さくなるため、電子正孔交換相互作用によるスピン緩和が抑制される、というモデルにより説明できる[26]。

さらに、試料 A と D の τ_s は異なる温度依存性を示した。高温では、試料 D の τ_s は試料 A よりも長い、77 K では、両者の関係は逆転している。このような τ_s の温度依存性は次のように説明できる。DP 緩和機構では、 τ_s は(4-1)式で表される。

$$\tau_s^{-1} = \langle \Omega_{\text{SIA}}^2 \rangle \tau_p^* \quad (4-1)$$

ここで、 Ω_{SIA} はラーモア歳差ベクトルの量子井戸面内成分であり、電子に対する有効磁場の大きさに比例する。 τ_p^* は電子の運動量散乱時間である。ドーピングしていない量子井戸において、 τ_p^* は、電子移動度を決定する運動量緩和時間 τ_p に一致する[19]。(4-1)式の右辺に関して、成長中断の導入は Ω_{SIA} と τ_p の両方に影響を及ぼすと考えられる。

まず、有効磁場について考えると、界面平坦化により SIA によるスピン緩和が抑制されるため、試料 D における Ω_{SIA} は、試料 A よりも小さくなると考えられる。運動量緩和時間については、高温における強いフォノン散乱のために、試料 A、D の τ_p は同程度の時間である。それ故、高温における τ_s は Ω_{SIA} の大きさにより主に決定されるので、界面平坦性の良い試料 D の方が τ_s は長くなると考えることができる。一方、77 K では、界面平坦性の良い試料において、電子の移動度が高くなるため、 τ_p が非常に長くなる[53]。従って、77 K のような低温では、 Ω_{SIA} の減少よりも τ_p の増加による寄与が大きいため、界面平坦性の良い試料 D の方が τ_s は短くなると考えられる。

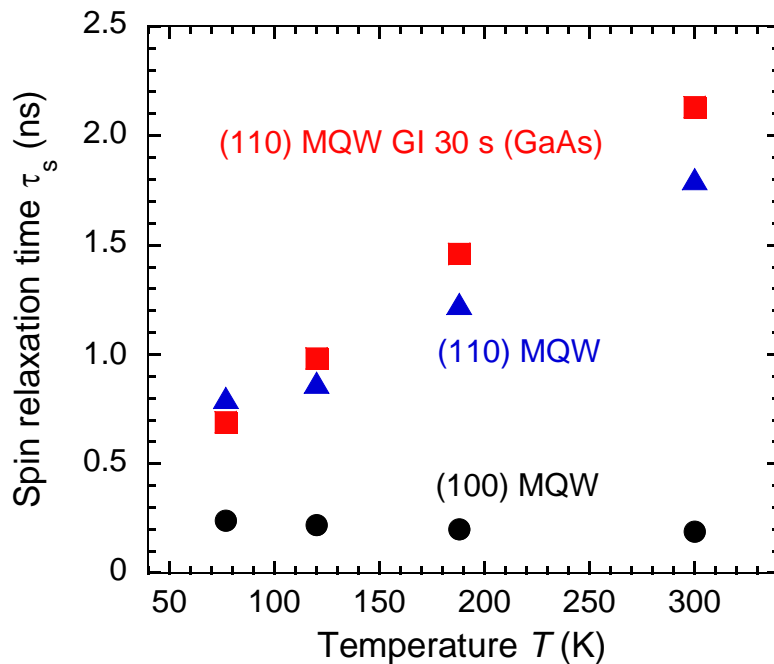


図 4-6 成長中断時間に対する電子スピン緩和時間の温度依存性

4-4 まとめ

本章では、成長中断条件を系統的に変化させることにより、界面平坦性と電子スピン緩和時間の相関について検討を行った。以下に得られた知見を示す。

- A) GaAs 上へテロ界面において成長中断を 30 秒行うことにより、界面平坦性が最も向上し、 τ_s が約 2.1 ns まで増大することが分かった。これは、試料の界面平坦性が向上したことにより、SIA による DP 緩和が抑制されたためであると考えられる。

- B) 電子スピン緩和時間の温度依存性を調べた。(100)QW の τ_s は、高温になるにつれて減少した。一方、(110)QW では、 τ_s が高温になるにつれて増加した。また、室温において(110)QW の τ_s は、(100)QW に比べて 1 桁長く、既報と同様な値を示すことが分かった。これらの結果は、(110)QW が室温動作スピndeバイスの有望な系であることを示唆している。最後に、界面平坦性の異なる試料間における電子スピン緩和時間の温度依存性の違いを DP 緩和機構に基づいて説明した。

本研究により得られた電子スピン緩和に関する知見は、今後、(110)QW の有する長い τ_s をデバイスへ応用する上で、重要な成果であると考えられる。

第 5 章 電子スピン緩和の室温電場制御

5-1 はじめに

半導体スピンドバイスを実現する上で、電子スピン制御技術は重要な要素技術であるため、これまで、様々な手法が検討されてきた。たとえば、外部からの印加磁場により、微小な磁石である電子スピンの歳差運動を誘起し、そのスピン状態を制御する方法が挙げられる。しかしながら、この手法は、磁場印加装置を必要とすることから、従来の微細加工技術と親和性よく集積化することは困難である。また、外部からの磁場を印加することは、意図しない浮遊磁場による誤動作を招く恐れがある。外部磁場を使用しないスピン制御法として、GaMnAs 等の希薄磁性半導体中のキャリアを使用することも考えられる。これらの材料は GaAs 上にエピタキシャル成長できるメリットを有しているが、これまでのところ、そのキュリー温度は 200 K 以下であり、実用性を鑑みると有望な手法とは言えない。

これに対して、最近、非磁性半導体 QW に電場を印加し、Rashba 効果[29]により電子スピンを制御する手法が大きな注目を集めている[19,54-58]。量子井戸に外部電場を印加するにはゲート電極を用いればよいため、本手法は従来の微細加工技術と親和性が良く、実用性に長けている。2-2 において述べたように、QW 面直方向に電場を印加した場合、面内を運動する電子から見ると、相対論的效果で電場の一部が磁場として感じられることになる(スピン軌道相互作用)。電子の慣性系では、この磁場がスピんに作用し、その結果、スピン緩和が生じる。(110)基板上 QW では、BIA による DP 緩和が抑制されるため、(100)QW に比べて Rashba 効果が顕著に発現する[19]。従って、数 ns に達する非常に長い τ_s をゲート電極を用いた印加電場により、広いダイナミックレンジで変調できる可能性が期待される。しかし、これまでに報告された GaAs/AlGaAs (110)QW における τ_s の制御は、デバイスの逆バイアス耐久性の問題から 230 K までに限られており[19,55,57]、応用上重要な室温での実証報告はない。そこで、本研究では、室温動作スピンドバイスへの応用を目指し、一般に使用される *p-i-n* 構造を利用して GaAs/AlGaAs (110)QW の電子スピン緩和時間の電場制御を検討した。

5-2 GaAs(110) *p-i-n* 構造の結晶成長

(110)QW において、面直方向に電場を印加し、電子スピン緩和時間を評価するため、MBE 法により半絶縁性 GaAs(110)基板上に *p-i-n* 構造を結晶成長した。成長条件は成長レート 0.50 $\mu\text{m/h}$ 、V/III 比 80、成長温度 480°C である。図 5-1 に試料構造の模式図を示す。試料構造は下から、アンドープ GaAs buffer 層(500 nm)、アンドープ AlAs (10 nm)、 p^+ -type ($5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ (1000 nm)、アンドープ組成傾斜(Al 組成: 0.25 \rightarrow 0.40) AlGaAs 層 (50 nm)、アンドープ多重 QW (MQW)領域, アンドープ組成傾斜(Al 組成: 0.40 \rightarrow 0.25 AlGaAs 層 (50 nm)、 n -type ($7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ (600 nm)、 n^+ -type ($7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) GaAs (100 nm) である。MQW は 50 層の GaAs/ $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ (井戸幅 10 nm、バリア層幅 15 nm) から成る。既報において、室温では、光励起キャリアの雪崩増倍によりデバイスが破壊されたと報告されている[55]。そこで、今回、これを防ぐことを目的として、アンドープ組成傾斜と n^+ -type GaAs の間のポテンシャル差を小さくするために、低濃度($7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$)の n -type $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ を挿入した。また、必要に応じて基板と buffer 層の除去を可能とするために、buffer 層上にエッチストップ層として AlAs 層を挿入した。

n^+ - GaAs 100 nm ($7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)
n - $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ 600 nm ($7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$)
i - $\text{Al}_{0.4 \rightarrow 0.25}\text{GaAs}$ 50 nm
i - $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 600 nm
i - 50MQW well : GaAs 10 nm Barrier : $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 15 nm
i - $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 600 nm
i - $\text{Al}_{0.25 \rightarrow 0.4}\text{GaAs}$ 50 nm
p^+ - $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ 1000 nm ($5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)
i -AlAs 10 nm
i -GaAs 500 nm
S.I. (110) GaAs substrate

図 5-1 (110) *p-i-n* ウエハの構造模式図

5-3 簡易プロセスによる素子作製と電流-電圧特性評価

本研究では、作製した *pin* デバイスを用いて、逆バイアス下で偏光時間分解 PL 測定を行うことから、プロセスに用いる試料には、結晶欠陥の少ない極めて高品質なウエハが求められる。そこで、プロセスを行う前に、ウエハの電流電圧特性を、光学顕微鏡下でプローバにより評価した。

I-V 特性を測定するために、ウェットエッチングによりメサ加工を施した。まず、コンタクトアライナを用いて、ウエハ表面に塗布したポジレジストに直径 170 μm のフォトマスクパターンを転写した。次に、転写されたポジレジストをマスクとして硫酸系エッチャントを用いてウェットエッチングを行った。エッチング条件を下記に示す。DEKTAK によりエッチング深さを測定した結果、3.5 μm であり、目標通り、p-Al_{0.25}Ga_{0.75}As 層までエッチングされていることが分かった(図 5-2)。

ウェットエッチング

- ・エッチャント : H₂SO₄:H₂O₂:H₂O = 1:1:10
- ・温度 : 室温
- ・エッチング速度 : 1.7 $\mu\text{m}/\text{min}$

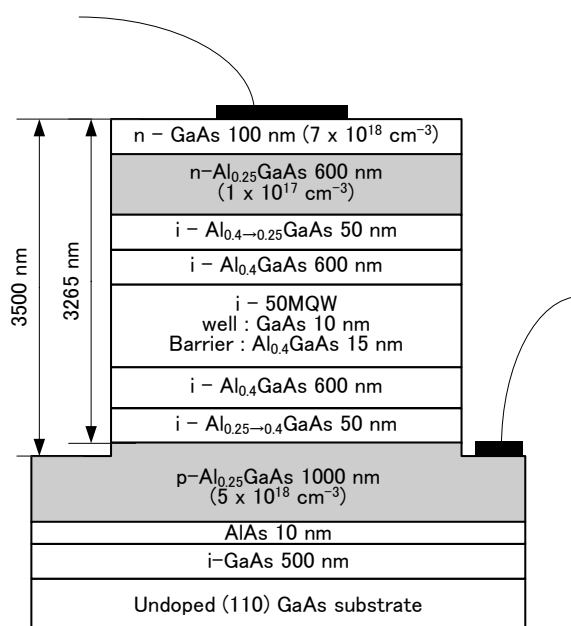


図 5-2 簡易プロセス後の(110) *p-i-n* 構造模式図

その後、図 5-2 に示すように、メサ上部およびエッチング底面に In を使用してオーミック電極を形成し、カーブトレーサにより I-V 測定を行った。測定結果を図 5-3 に示す。順方向に関して、内蔵電圧は 1.1 V であった。逆方向では、-20 V 印加時においても降伏は見られないことから、作製したウエハは高品質結晶であることが分かった。

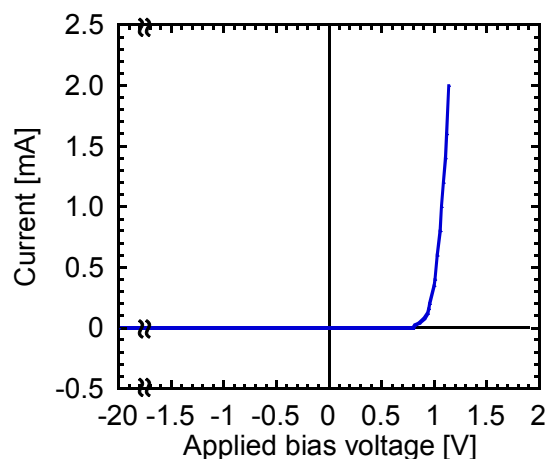


図 5-3 (110) *p-i-n* 構造の I-V 特性

5-4 GaAs(110) *p-i-n* 素子作製と評価

前述したように、MBE 成長した(110) *p-i-n* ウエハは高いバイアス耐性を有していることから、本試料を用いてフォトリソグラフィー技術やエッチング、ポリイミドによる埋め込みを用い、直径 100 μm のメサ構造に加工した。

5-4-1 (110) *p-i-n* 素子作製工程

(110) *p-i-n* 素子のプロセス工程を以下に示す。

1) メサパターニング、ウエットエッチング

ウエットエッチング用のマスクを形成するためにポジレジスト ZPP1700(日本ゼオン)でパターニングした。露光には、コンタクトアライナを用いた。一連のプロセス工程において、露光は、すべてコンタクトアライナにより行っている。次に、5-3 で述べた硫酸系エッチャントを用いてウエットエッチングにより直径 $100\ \mu\text{m}$ のメサ構造を形成した。

2) ポリイミドパターニング、キュア

ポリイミド PW-1000(東レフオトニース)を用いて n 型電極用のパッドを形成した。ポリイミドのキュアは $50\ ^\circ\text{C}$ から $170\ ^\circ\text{C}$ の間を $3.5\ ^\circ\text{C}/\text{min}$ で上昇し、 $170\ ^\circ\text{C}$ で 30 分保持した。その後、 $170\ ^\circ\text{C}$ から $310\ ^\circ\text{C}$ の間を $3.5\ ^\circ\text{C}/\text{min}$ で上昇し、 $310\ ^\circ\text{C}$ で 1 時間保持した。その後、 $50\ ^\circ\text{C}$ まで自然冷却した。

3) p 電極パターニング、リフトオフ、シンタリング

まず p 型電極形成のため、ネガレジスト ZPN1150(日本ゼオン)でパターニングし、p 型オーミック電極となる $\text{Au}_{0.855}\text{Zn}_{0.095}\text{Ni}_{0.05}$ を抵抗加熱蒸着装置を用いて $100\ \text{nm}$ 蒸着した。その後、アセトンに浸け置きしてフォトリソグラフ上の AuZnNi をリフトオフした。続いて、赤外加熱炉 (ULVAC PHL-P610C-N)を用いて、 N_2 雰囲気中にて $390\ ^\circ\text{C}$ で 1 分間シンタリングを行った。

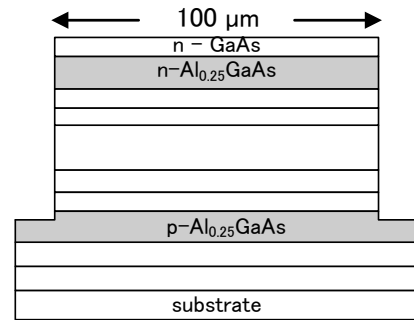


図 5-4 メサパターニング、ウエットエッチング

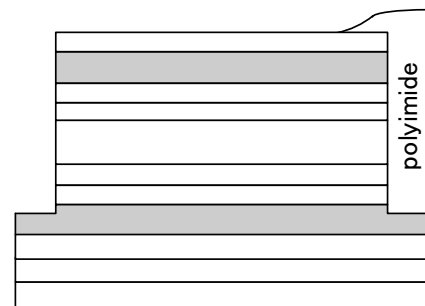


図 5-5 ポリイミドパターニング、キュア

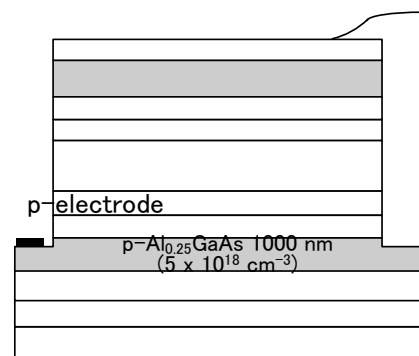


図 5-6 p 電極パターニング、リフトオフ、シンタリング

4) n 電極パターニング、リフトオフ、シンタリング、

n 型電極形成のため、ネガレジスト ZPN1150 でパターニングし、抵抗加熱蒸着装置を用いて、n 型オーミック電極 $\text{Au}_{0.83}\text{Ge}_{0.12}\text{Ni}_{0.05}$ を 100 nm 蒸着した。その後、リフトオフし、続いて、赤外加熱炉を用いて、 N_2 雰囲気中にて 380°C で 1 分間シンタリングを行った。

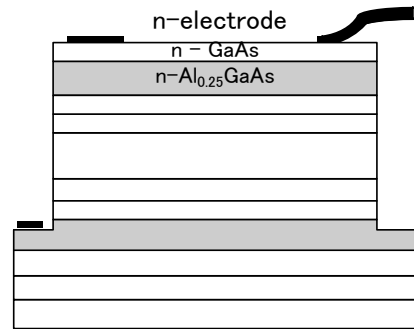


図 5-7 n 電極パターニング、リフトオフ、シンタリング

5) 表面 Cr/Au パターニング、リフトオフ、ウエットエッチング、裏面研磨

Cr/Au 蒸着のため、ネガレジスト ZPN1150 でパターニングし、抵抗加熱蒸着装置を用いて、Cr を 20 nm、Au を 300 nm 蒸着し、その後、リフトオフを行った。続いて、Cr/Au をマスクとして最上層の n-GaAs をクエン酸系エッチャントを用いてウエットエッチングにより除去した。

(クエン酸水和物: H_2O : H_2O_2 =60g:60ml:15ml)

その後、素子の厚さが $70\ \mu\text{m}$ 程度になるまで研磨剤 A-800(Al_2O_3)で荒研磨を行い、鏡面研磨剤 INSEC-FP を用いて鏡面研磨を行った。

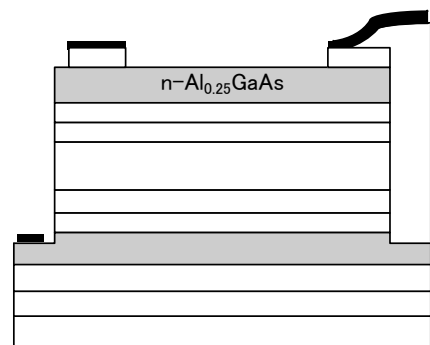


図 5-8 表面 Cr/Au パターニング、リフトオフ、ウエットエッチング、裏面研磨

6) 裏面 Cr/Au 蒸着、溝パターニング、溝加工、劈開、ボンディング

抵抗加熱蒸着装置を用いて、裏面全体に Cr を 20 nm、Au を 300 nm 蒸着した。次に、GaAs は $[\bar{1}10]$ 方向への劈開が不可能であることから、素子のチップ化を可能とするために、 $[\bar{1}10]$ と $[001]$ 方向へウエットエッチングにより溝加工を施す必要がある。そこで、

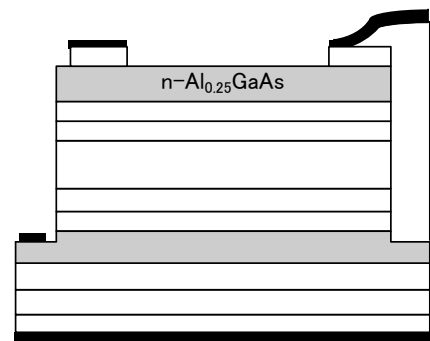


図 5-9 裏面 Cr/Au 蒸着、溝パターニング、溝加工、劈開、ボンディング

500 μm 角の枠状のマスクを用いてパターンニングを行い、硫酸系エッチャントを用いて深さ約 60 μm までエッチングした。その後、劈開器を使用してチップ状に分割し、続いて、チップキャリアに Si サブマウントを介してマウントし、最後に、チップキャリアの 2 端子と p、n 型電極パッド間を金線をつないだ。作製した素子の表面写真を図 5-10 に示す。

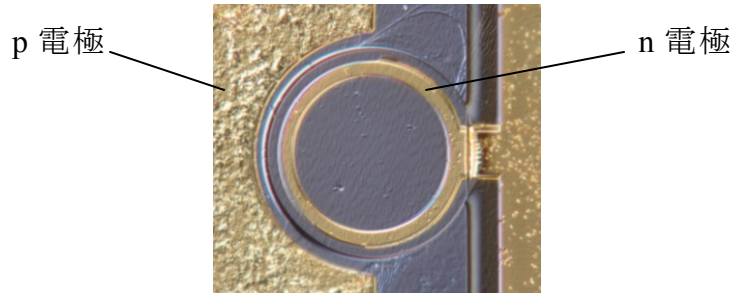


図 5-10 (110) *p-i-n* 素子表面写真

5-4-2 電流-電圧特性評価

5-3 において作製した(110) *p-i-n* 素子の室温における I-V 特性を評価した。測定は、図 2-5 で示した光学系を用いて、励起強度(平均パワー)を 50、150、250 μW と変えた。励起波長は 780 nm とした。GaAs 基板と GaAs バッファ層を除き、他の AlGaAs はこの波長で透明であり、井戸層のみを励起できる。結果を図 5-11 に示す。順方向に関して、内蔵電圧は約 1.2 V であり、図 5-3 に示した簡易プロセス素子の結果とほぼ同様であった。逆方向では、励起強度を増加するにつれ電流も増加し、電圧-20.4 V 印加時に励起強度 250 μW で励起した場合、電流が 150 μA 流れた。しかし、素子は破壊せず、高い逆バイアス耐性を示した。

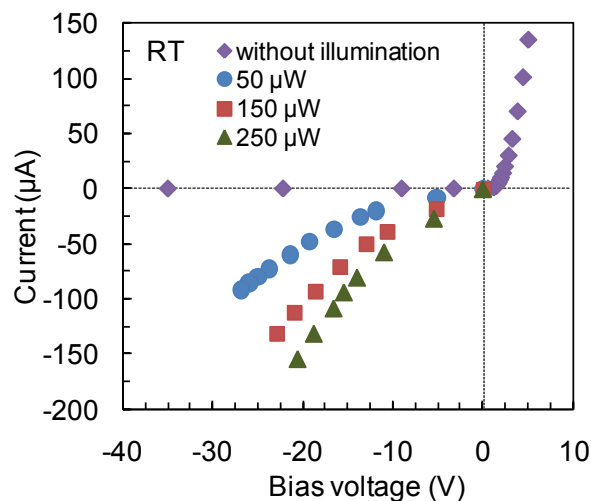


図 5-11 (110) *p-i-n* 素子の I-V 特性

5-4-3 容量-電圧特性評価

次に、室温におけるアンドープ層のバックグラウンドキャリア密度を評価するために、容量-電圧(C-V)特性を評価した。測定結果を図 5-12 に示す。-10 V 以上印加することにより容量が飽和した。つまり、この電圧で MQW 層が空乏化し、電場が MQW 層に印加され始めることを示唆している。また、C-V 測定およびホール効果測定より、バックグラウンドのキャリアタイプは p 型であり、密度は $2-4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ であることが分かった。アンドープ層のキャリア密度を $3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ として計算した(110) *p-i-n* 素子のバンドプロファイルを図 5-13(a)に示す。内蔵電圧はアンドープ層のバックグラウンドキャリアの空乏化に使われるため、MQW には、ほぼ電場が印加されていないことが分かる。簡単のため、構造を図 5-13(b)に示す $\text{Al}_{0.3}\text{GaAs}$ (n 層: $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, 600 nm)/ $\text{Al}_{0.3}\text{GaAs}$ (p 層, 2500 nm)として、印加電圧を変えて計算したバンドプロファイルと電場プロファイルを図 5-13(c),(d)に示す。図より、バックグラウンドキャリアのため、-20 V 印加時では MQW に印加される電場は 60-100 kV/cm 程度の不均一性があると考えられる。

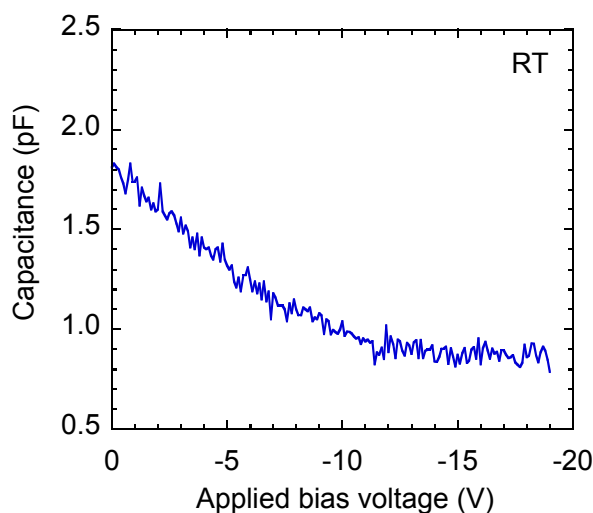


図 5-12 (110) *p-i-n* 素子の C-V 特性

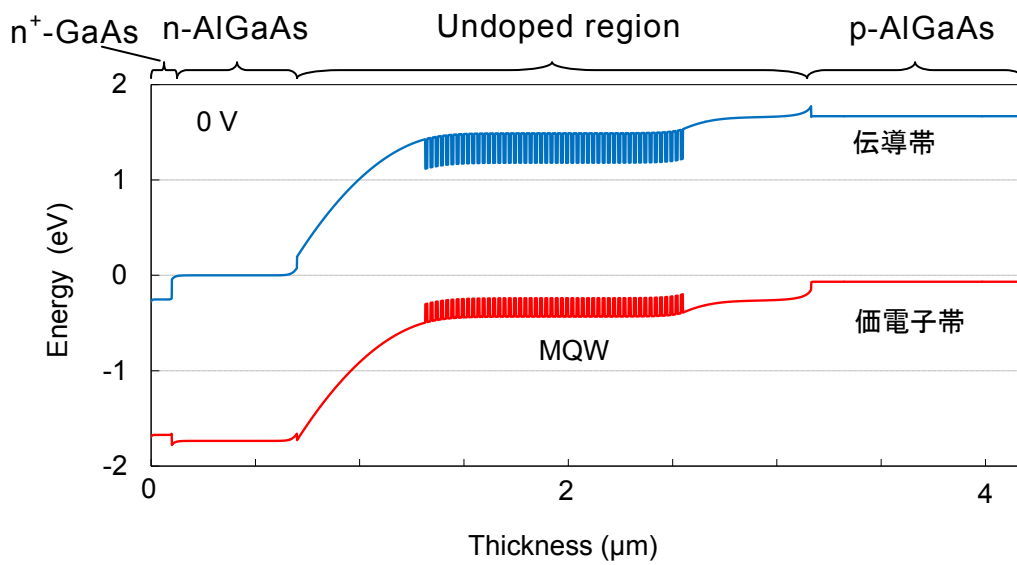
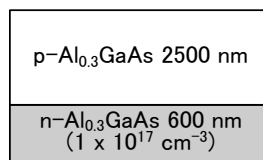
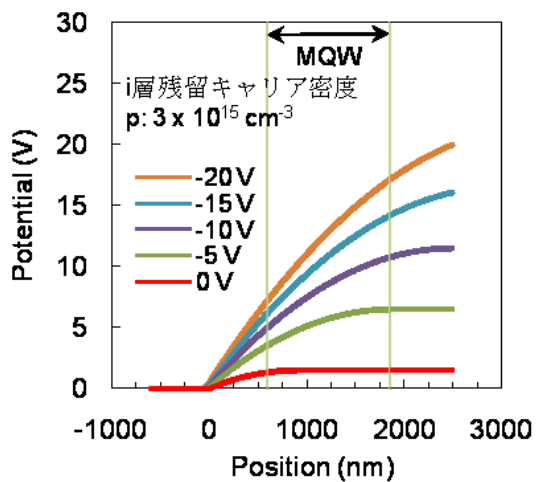


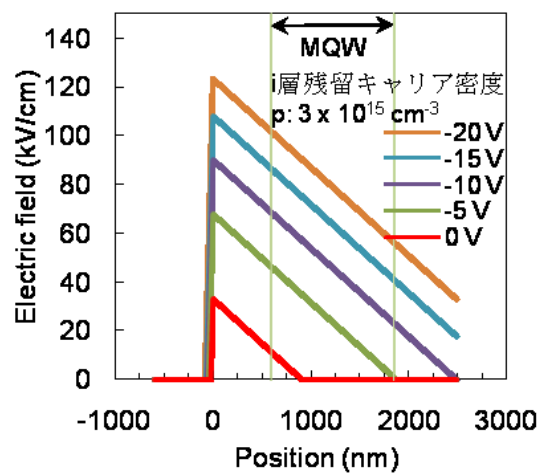
図 5-13(a) (110) *p-i-n* 素子のバンドプロファイル



(b) 構造図



(c) バンドプロファイル



(d) 電場プロファイル

5-5 電子スピン緩和時間に対する電場効果

5-1 において述べたように、(110)QW の数 ns に達する非常に長い τ_s を印加電場により、広いダイナミックレンジで変調できる可能性がある。本節では、(110) *p-i-n* 素子を用いた室温における τ_s の制御について述べる。

5-5-1 PL の印加電圧依存性

図 2-5 に示した光学系を用いて、(110) *p-i-n* 素子の室温における PL スペクトルの印加電圧依存性について調べた。励起強度は平均パワー 250 μW 、励起波長は 780 nm である。測定した PL のピークエネルギーの印加電圧依存性を図 5-14 に示す。図中に 0 V および -20.4 V 印加時の PL スペクトルも示している。スペクトルにおける、1.452 eV (0 V) および 1.448 eV (-20.4 V) の PL ピークはともに伝導帯一重の正孔基底準位間の遷移によるものである。図 5-14 から、印加電圧 -10 V までは PL ピークエネルギーはほぼ一定であるが、-10 V 以上印加すると、低エネルギー側へシフトし始め、-20.4 V 印加することにより、約 4 meV のエネルギーシフトを示した。また、図中の PL スペクトルより、-20.4 V 印加時では PL 強度も減少していることが分かる。これらの振る舞いは、主に量子閉じ込めシュタルク効果によるものであり [59]、-10 V 以上印加することにより、はじめて MQW に電場が印加されることを意味している。これは C-V 測定とコンシステントな結果である。また、5-4-3 において述べたように、アンドープ MQW では、 $2\text{-}4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 程度のバックグラウンドキャリアが存在していることから、測定された PL スペクトルは、異なる大きさの電場を受けた各 QW からの PL スペクトルの重ね合わせであると考えられる。

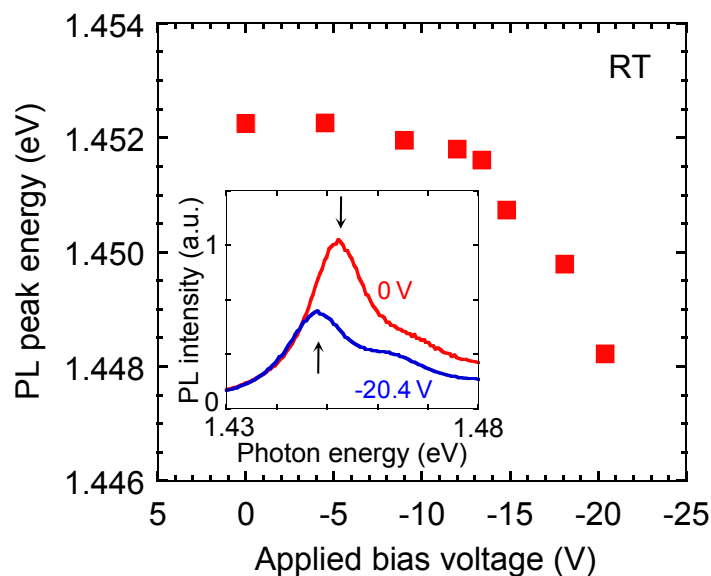


図 5-14 PL ピークエネルギーの印加電圧依存性

5-5-2 室温における電子スピン緩和時間の印加電圧依存性

5-5-1 と同様に、図 2-5 に示した光学系を用いて、(110) *p-i-n* 素子の室温における電子スピン緩和時間 τ_s を偏光時間分解 PL 法により評価した。励起強度は平均パワー 250 μW 、励起波長は 780 nm である。図 5-15 に 0 V、-14.8 V、-20.4 V 印加時のスピン偏極度 P の時間変化を示す。印加電圧を 0 V から -20.4 V まで上げると、 P の傾きが急となり、 τ_s は 4.0 ns から 0.3 ns まで著しく減少した。図 5-16 に τ_s の印加電圧依存性を示す。 τ_s は -12.0 V までは緩やかに減少し、-12.0 V 以上印加すると、急激に減少した。図 5-16 から、 τ_s と PL ピークエネルギーの電圧依存性の振る舞いが一致していることが分かる。これは、(110)QW において、室温で Rashba 効果を通して印加電場により τ_s が 1 桁変調された初めての結果である。前述したように、今回作製した(110) *p-i-n* 素子のアンドープ MQW では、 $2\text{-}4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 程度のバックグラウンドキャリアが存在している。そのため、今後の課題として、より均一かつ効率的に量子井戸に電場を印加し、さらに広いダイナミックレンジで τ_s を変調するために、バックグラウンドキャリア密度の低減や試料構造の最適化を図る必要がある。また、井戸数を減らし、高感度なカー回転時間分解法により評価することも解決策の一つである。

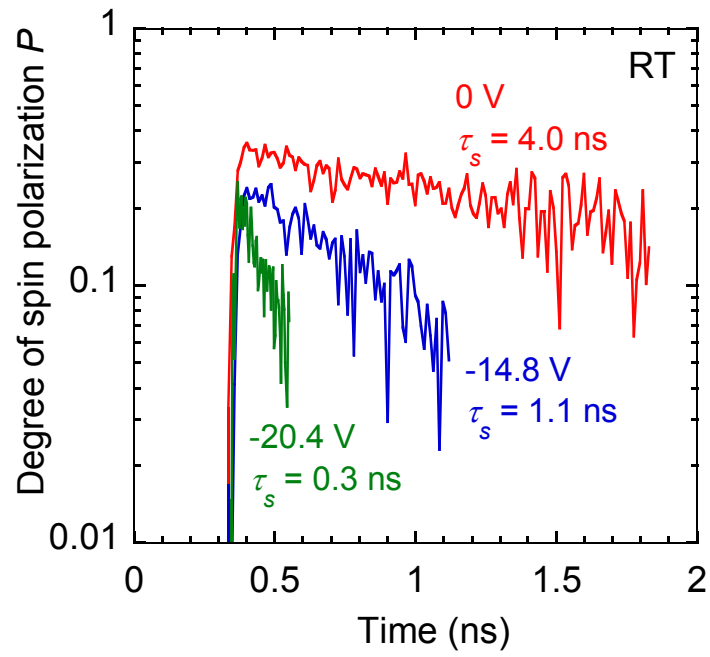


図 5-15 スピン偏極度 P の時間変化の電圧依存性

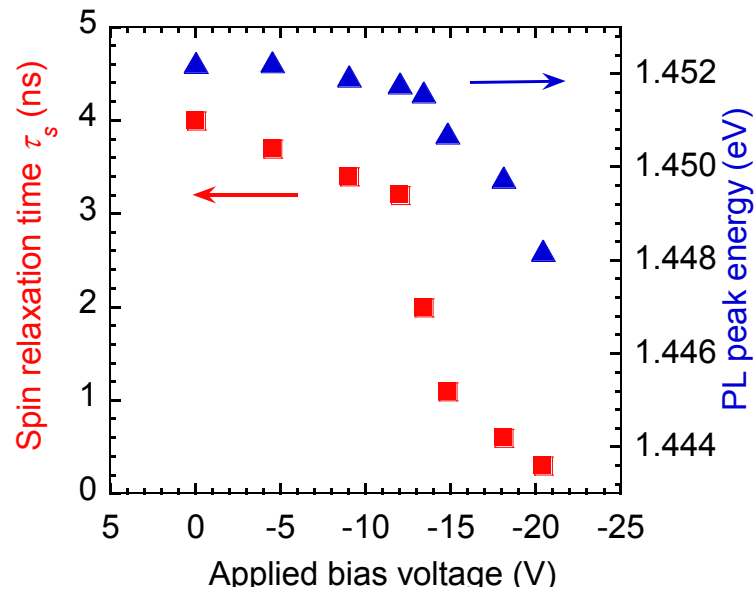


図 5-16 τ_s の印加電圧依存性

5-6 まとめ

本章では、室温動作スピンドバイスへの応用を目指し、*p-i-n* 構造を利用して GaAs/AlGaAs (110) QW の電子スピン緩和時間の電場制御を検討し、以下に示す知見を得た。

- A) 通常用いられる GaAs(100) 基板上に比べ高品質な結晶成長が困難な GaAs(110) 基板上において *p-i-n* 構造を作製した。メサ加工した(110)*p-i-n* 素子において、電圧-20.4 V 印加時、励起強度(平均パワー)250 μW で励起し、電流が 150 μA 流れてもデバイスは破壊せず、高い逆バイアス耐性を示すことが分かった。
- B) C-V 測定より、作製した(110)*p-i-n* 素子のアンドープ MQW には、 $2\text{-}4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 程度のバックグラウンドキャリアが存在していることが分かった。また、PL のピークエネルギーの印加電圧依存性も C-V 測定結果と同様な振る舞いを示すことが分かった。
- C) (110) *p-i-n* 素子の室温における電子スピン緩和時間 τ_s を偏光時間分解 PL 法により評価し、初めて室温において、 τ_s を 1 桁変調することに成功した。また、作製した素子において、 τ_s の印加電圧依存性も PL のピークエネルギーの印加電圧依存性も C-V 測定結果と同様な振る舞いを示すことが分かった。

本研究により得られた一連の成果は、(110)基板上量子井戸の大きな特徴である長い電子スピン緩和時間を活用したスピンドバイスの実現に向けた重要な知見である。これにより、スピン電界効果トランジスタやスピンレーザといった高機能・低消費電力を特徴とするスピンドバイスの研究開発が進展することが期待される。

第 6 章 面発光半導体レーザーの室温光励起円偏光発振

6-1 はじめに

最近、円偏光を出力するスピン面発光半導体レーザー(VCSEL)が注目を集めている。スピン VCSEL では、活性層中の電子スピンを制御することにより円偏光でレーザー発振することができ、量子情報通信[60]やスピン光メモリ[61]、また、キラル分子の識別[62]等への応用が期待されている。これらの応用においては、高い偏光度(degree of circular polarization: P_c)をもつ円偏光レーザー発振が求められる。そのためには、レーザー発振中、電子のスピン偏極状態が保持されていることが必要である。安藤らは、バルクの GaAs を活性層とした VCSEL において、0.82 という高い円偏光度でレーザー発振することに成功した[8]。しかし、レーザー発振閾値の低減や出力の高速変調のためには、活性層は量子井戸の方が適している。これまで、(100)QW を活性層としたスピン VCSEL において、その発振特性が調べられてきたが、その短い電子スピン緩和時間(~100 ps)のため、高い円偏光度でレーザー発振するには至っていない($P_c < 0.5$)[10,12]。一方、(110)QW においては、(100)QW に比べて電子スピン緩和時間が一桁長いこと、(110)QW を活性層として用いることで、発振円偏光度の向上が期待できる。筆者の所属研究室において、(110)InGaAs/GaAs QW を活性層とした VCSEL を作製し、77 K で 2.8 ns という長い τ_s を反映して高円偏光度でレーザー発振することに成功した($P_c=0.94$)。しかしながら、室温においては、 τ_s が 0.4 ns と短く円偏光発振が得られなかった($P_c=0.42$)[13]。また、(110)InGaAs/GaAs QW の室温におけるキャリア寿命(τ_c)は 40 ps と非常に短く、結晶品質も低いものであった。これに対して、(110) GaAs/AlGaAs QW では、高品質な結晶を得ることができ、室温における τ_s が ns オーダーに達し、 τ_c も ns オーダーである。従って、(110) GaAs/AlGaAs QW を活性層として用いることにより、室温において、低発振閾値かつ高円偏光度のレーザー発振が期待されるが、これまでに(110)GaAs QW スピン VCSEL に関する研究報告はない。そこで、本研究では、(110)GaAs/AlGaAs QW を活性層として用いたスピン VCSEL を作製し、室温における高円偏光度レーザー発振を実現することを目的とした。本章では、はじめに VCSEL の構造設計について述べ、それに基づいて作製した VCSEL のレーザー発振特性の評価について示す。

6-2 VCSEL 構造設計

ここでは、(110)GaAs/AlGaAs QW を活性層として用いたスピン VCSEL の構造設計について述べる。

はじめに、一般的な VCSEL 構造について簡単に説明する。VCSEL は、半導体基板と垂直にレーザ共振器を構成することで、発振光を表面から取り出せるようにしたレーザである。VCSEL ウエハの構造概念図を図 6-1 に示す。VCSEL は、半導体基板上に分布ブラッグ反射鏡(Distributed Bragg Reflector: DBR)、活性層、DBR の順で結晶成長され、上下の DBR で共振器を形成している。DBR は活性層の発光波長の 1/4 の厚さ(光学長)の屈折率が異なる半導体を交互に積層した構造である。活性層で発生した光は、DBR で反射を繰り返しながら誘導放出によって増幅されてレーザ発振する。VCSEL では、端面発光半導体レーザと異なり、共振器が結晶成長の段階で作製されるため、加工せずにレーザ発振測定を行うことができる。

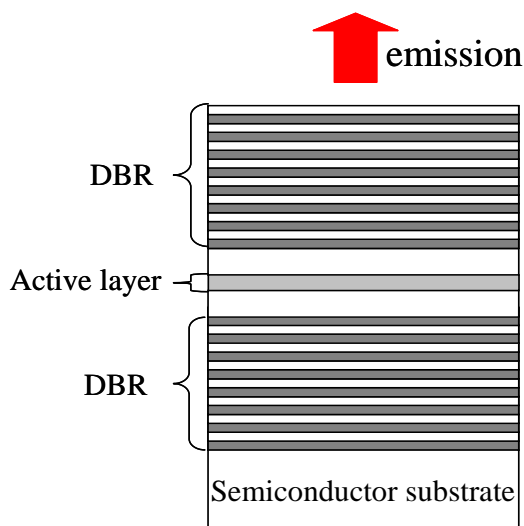


図 6-1 VCSEL ウエハの構造概念図

次に、今回設計した VCSEL の具体的な構造を図 6-2 に示す。また、図 6-2 の構造に基づいて計算した VCSEL のエネルギーバンドプロファイル、光強度と屈折率のプロファイルおよび反射スペクトルを図 6-3 から図 6-6 に示す。

筆者の所属研究室では、これまで種々の VCSEL ウエハにおいて光励起レーザ発振測定が行われてきたが、活性層の井戸層のみを励起した場合、十分なキャリア密度が得られず、レーザ発振に至っていない。一方、活性領域のバリア層も励起した場合には、発振に必要なキャリア密度が得られ、レーザ発振に成功している。そこで今回も、レーザ発振に必要な十分なキャリア密度を得るため、活性領域(中間層)において、井戸層だけでなく、バリア層およびスペーサ層においても光励起によりキャリアを生成できる構造とした。

まず、光励起波長について考える。励起用光源として使用するチタンサファイアレーザの短波長側の限界が 720 nm であることから、レーザ出力の安定性を考慮して、励起波長は 730 nm とした。

次に、活性層について検討する。波長 730 nm の光子エネルギーでも、バリア層およびスペーサ層において十分なキャリア密度を生成するために、これらの層では、Al 組成を 0.15 とした AlGaAs を使用する($\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ のバンドギャップは 773 nm に相当)。井戸層である GaAs の膜厚は 10 nm とした。この場合、計算される伝導帯-重い正孔の基底準位間エネルギーは 1.454 eV (853 nm) である。MBE 法により成膜された試料には、成長中、試料を回転した場合においても膜厚の面内分布が存在する。この面内分布は小さいため、量子準位に対しては、ほとんど影響を与えないが、VCSEL や DBR の反射スペクトルに対しては大きな影響を及ぼす。具体的には、試料の回転中心から 5 mm 離れると、VCSEL の共鳴波長は 8 nm 程度短波長側へシフトする。従って、回転中心から離れた場所で利得ピークと共鳴波長のマッチングを取ることができれば、ウエハ内の広い領域でレーザ発振が得られる。そこで、設計発振波長、即ち、回転中心の共鳴波長を、QW の基底準位間波長よりも 15 nm 長波長である 868 nm とした。光利得の増大を目的として、井戸数を通常の VCSEL において使用されている 5 層から 9 層へと増加させた。これに伴い、中間層の厚みを 2λ (λ : 共鳴波長) とし、9 層の GaAs QW を 3 ヶ所の光強度ピーク近傍に 3 層ずつ配置した(図 6-2)。

最後に DBR について述べる。今回設計した VCSEL では、井戸層を GaAs とする量子井戸を活性層としている。そこで、励起光および発振光に対して DBR

を透明とするために、高屈折率層として $\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{As}$ (バンドギャップは 743 nm に相当)を使用する。低屈折率層としては、屈折率差を大きくするために AlAs が使用される場合がある。しかし、(110)基板上の DBR においては、(100)DBR に比べて臨界膜厚が小さくなるため、 AlAs を使用すると臨界膜厚を超えることに起因して試料の劣化が著しく進むという報告がある[63]。そこで、今回は、 $\text{Al}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}\text{As}$ を低屈折率層として使用することにより、(110)DBR の構造の安定化を図った。また、結晶成長において使用する MBE 装置は、Ga・Alセルともに 1 本ずつであるため、高屈折率層 $\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{As}$ と低屈折率層 $\text{Al}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}\text{As}$ の間に組成遷移層(膜厚 15 nm)を設け、Al と Ga セル温度を変化させることで連続的な結晶成長を可能とした。しかしながら、 $\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{As}$ と $\text{Al}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}\text{As}$ の間の低い屈折率差や組成遷移層の導入は、DBR の反射率の低下を招く。これを補償するため、DBR のペア数を通常より増やし、下部 DBR は 36.5 ペア、上部 DBR は 35 ペアとした。DBR のペア数を 35 ペアとした場合、計算されるピーク反射率は 99.999%であり、レーザ発振するには十分な反射率となっている。反射率の計算には、特性マトリックス法を用いた。以下にその概要を示す。

特性マトリックス法による反射率計算[64]

屈折率の異なる 2 種類の媒質が、厚さ d_j で交互に積層されている構造を考える(図 6-7)。2 層の屈折率をそれぞれ n_I 、 n_{II} とする($n_I > n_{II}$)。垂直に光が入射するとき、屈折率 n_j 、厚さ d_j の層を伝播することによる位相の変化 δ_j は、

$$\delta_j = \frac{2\pi}{\lambda} n_j d_j \quad (6-1)$$

となる。

次に、各層境界における電場 \mathbf{E} と磁場 \mathbf{H} の接線成分が連続であることから、入射波、反射波をそれぞれ+、-と表記すると、 j 層境界面では、

$$E_{j-1} = E_{j-1}^+ + E_{j-1}^- = E_j^+ e^{+i\delta_j z} + E_j^- e^{-i\delta_j z} \quad (6-2)$$

$$H_{j-1} = H_{j-1}^+ + H_{j-1}^- = \frac{n_j}{c\mu_0} (E_j^+ e^{+i\delta_j z} - E_j^- e^{-i\delta_j z}) \quad (6-3)$$

となり、 $j+1$ 層境界では、

$$E_j = E_j^+ + E_j^- \quad (6-4)$$

$$H_j = \frac{n_j}{c\mu_0} (E_j^+ - E_j^-) \quad (6-5)$$

となる。これら式(6-2)から式(6-5)と $H/E=n/c\mu$ より、

$$\begin{pmatrix} E_{j-1} \\ H_{j-1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \delta_j & i \frac{c\mu_0}{n_j} \sin \delta_j \\ i \frac{n_j}{c\mu_0} \sin \delta_j & \cos \delta_j \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_j \\ H_j \end{pmatrix} \quad (6-6)$$

となる。ここで

$$[M_j] = \begin{pmatrix} \cos \delta_j & i \frac{c\mu_0}{n_j} \sin \delta_j \\ i \frac{n_j}{c\mu_0} \sin \delta_j & \cos \delta_j \end{pmatrix} \quad (6-7)$$

と表すと、式(6-7)は、単層膜の特性マトリックスである。そして、多層膜を挟む両側の境界面の電界と磁界の関係は、

$$\begin{pmatrix} E_0 \\ H_0 \end{pmatrix} = [M] \begin{pmatrix} E_{m-1} \\ H_{m-1} \end{pmatrix} \quad (6-8)$$

となる。ここで多層膜を表わす特性マトリックスは、各層に対応するマトリックス積として、

$$[M] = \prod_{j=1}^{m-1} [M_j] = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix} \quad (6-9)$$

で与えられる。そして、媒質 n_0 側からみた多層膜の反射率は、

$$R = \frac{|E_0^-|^2}{|E_0^+|^2} = \frac{n_0(m_{11} + n_m m_{12}) - (m_{21} + n_m m_{22})}{n_0(m_{11} + n_m m_{12}) + (m_{21} + n_m m_{22})} \quad (6-10)$$

となる。

組成傾斜層では、組成の変化を 100 分割し、階段状に屈折率が変化する薄膜が積層された構造で近似し、計算を行った。

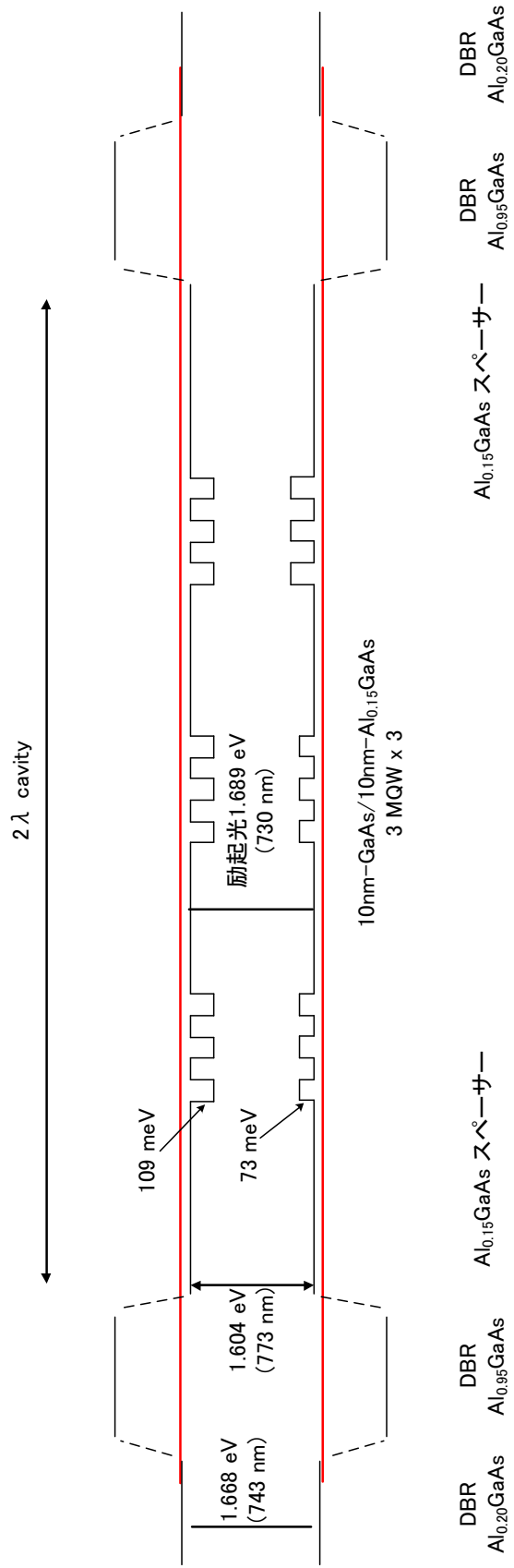


図 6-3 (110)VCSEL エネルギーバンドプロファイル

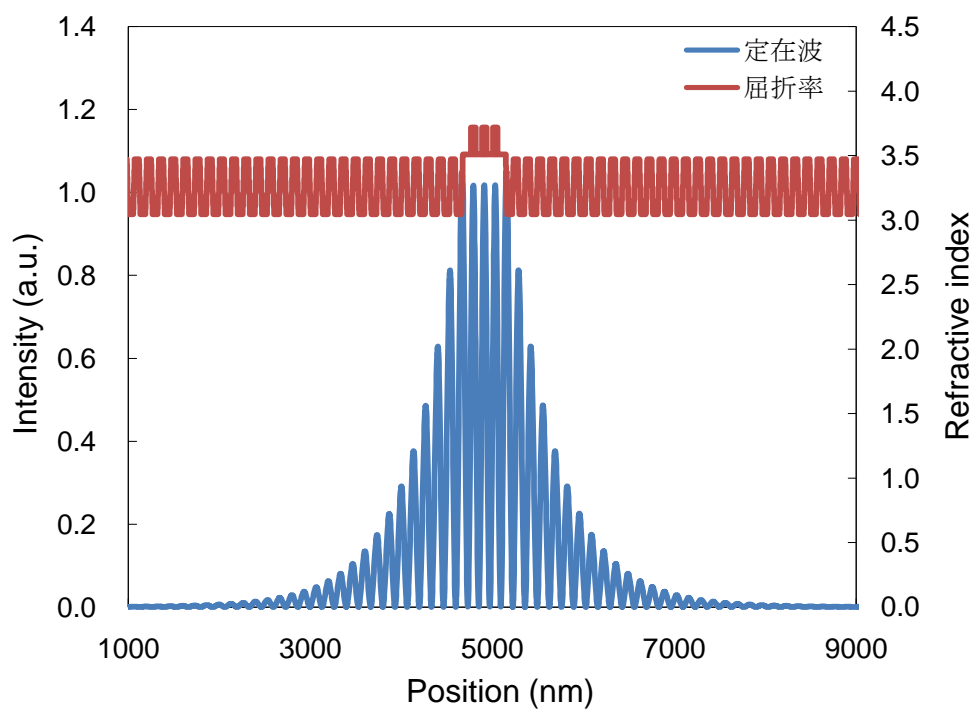


図 6-4 光強度と屈折率のプロファイル(全体図)

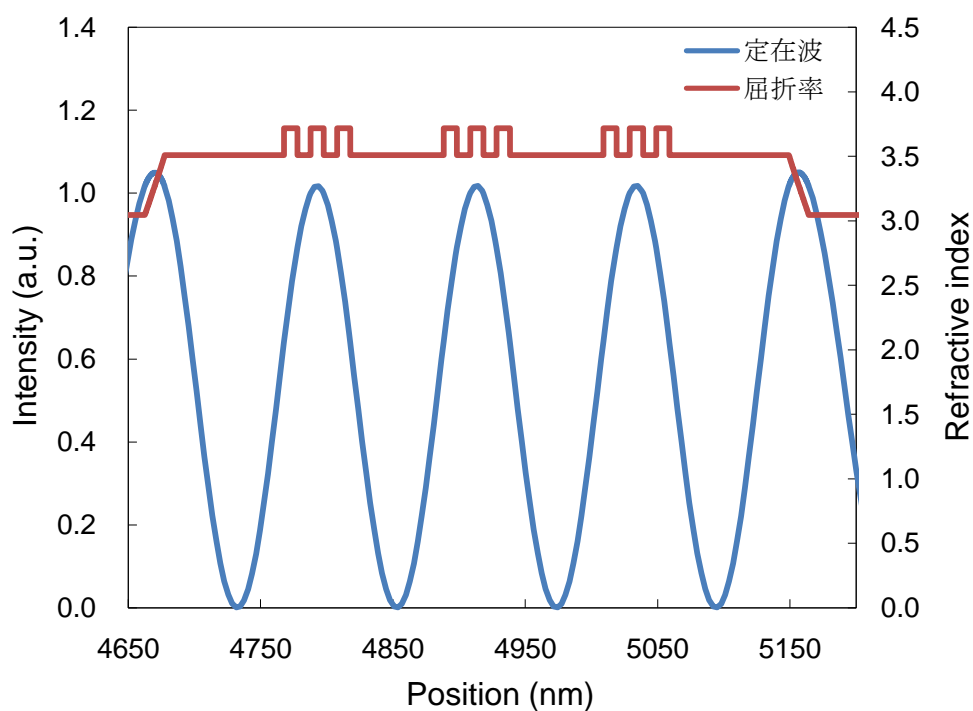


図 6-5 光強度と屈折率のプロファイル(活性領域の拡大図)

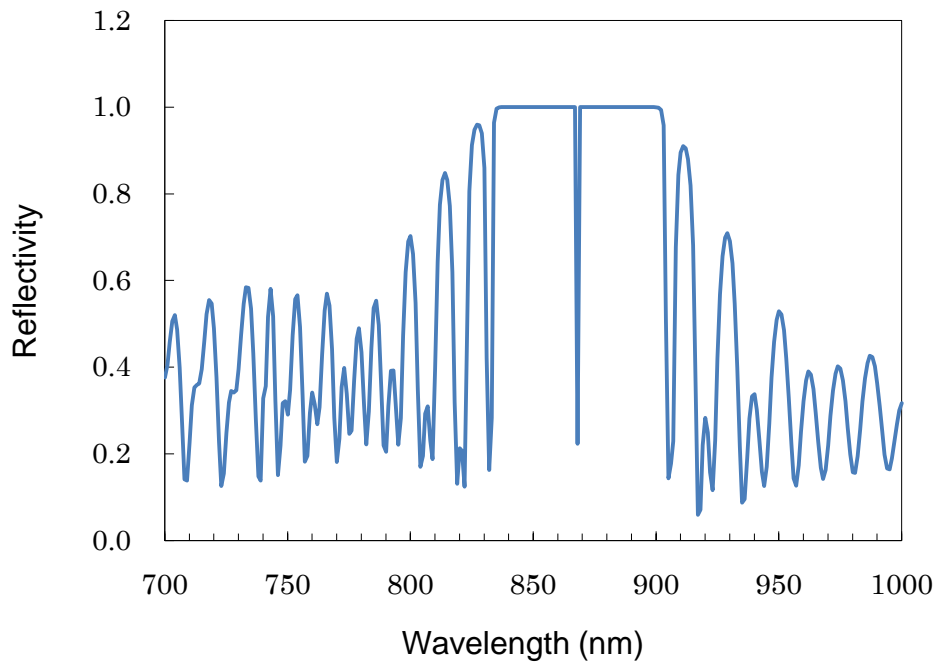


図 6-6 計算による(110)VCSEL の反射スペクトル

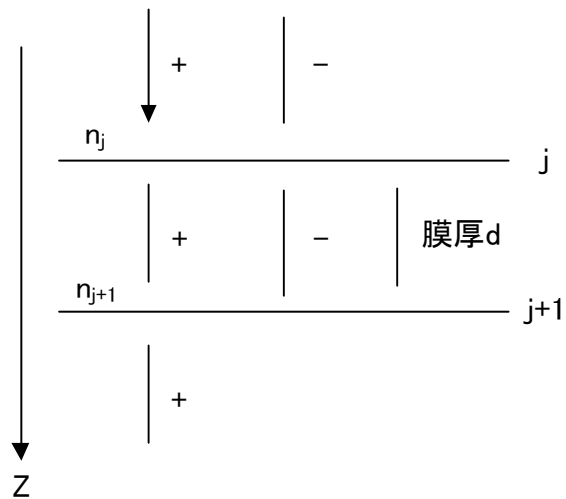


図 6-7 反射率計算における構造モデル

6-3 GaAs(110)基板上組成傾斜分布ブラッグ反射鏡の作製と評価

VCSEL を作製する前に、組成傾斜 DBR の反射特性を調べるため、まず、図 6-2 の上部 DBR を作製し、その反射特性を調べた。

6-3-1 試料の作製

図 6-8 に示す構造(ストップバンド中央波長：868 nm)を目標として、組成傾斜 DBR を MBE 法により結晶成長した。成長条件は成長速度 0.50 $\mu\text{m/h}$ 、V/III 比 80、成長温度 480°C である。

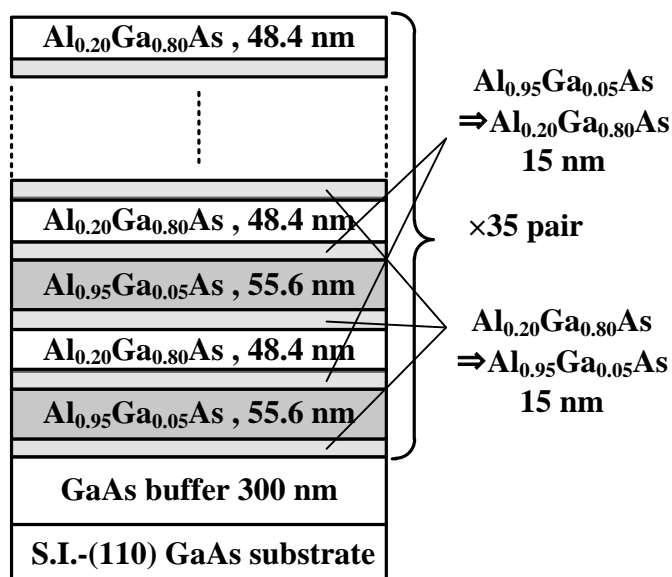


図 6-8 組成傾斜 DBR の構造

6-3-2 試料の反射特性評価

作製した組成傾斜 DBR の室温における反射特性を図 6-9 の光学系を用いて測定した。白色光源としてハロゲンランプを使用し、試料からの反射光をダブルモノクロメーター(SPEX 社 1402)によって分光し、光電子増倍管(浜松ホトニクス R5509-73)で検出した。ハロゲンランプ、分光器や光電子増倍管など光学系

の波長依存を除去するため、Au 平面鏡の反射スペクトルを同一の系で測定し、DBR の反射スペクトルを Au 平面鏡のそれで割ることにより補正を行った。図 6-10 に、試料の MBE 回転中心近傍に対し測定した、補正後の反射スペクトルを示す。測定されたストップバンドの中央波長は 911 nm であり、目標値に対して 43 nm 長波長であった。これは、本試料が組成傾斜 DBR であり、結晶成長において Al と Ga セルが複雑な温度シーケンスを経ているためであると考えられる。測定された反射スペクトルのストップバンドに対して Al 組成をパラメータとしてフィッティングを行った結果、作製した試料の高屈折率層と低屈折率層は、それぞれ $\text{Al}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{As}$ (膜厚 51.9 nm) と $\text{Al}_{0.91}\text{Ga}_{0.09}\text{As}$ (同 59.0 nm) であることが分かった。次に、反射特性の面内分布を調べた。図 6-11 に、測定したストップバンド中央波長の面内分布を示す。回転中心から 5 mm の場所では、回転中心に比べて、ストップバンド中央波長が約 10 nm 短波長側へシフトした。このシフト量は、これまで当研究室において作製してきた試料と同様な値である。

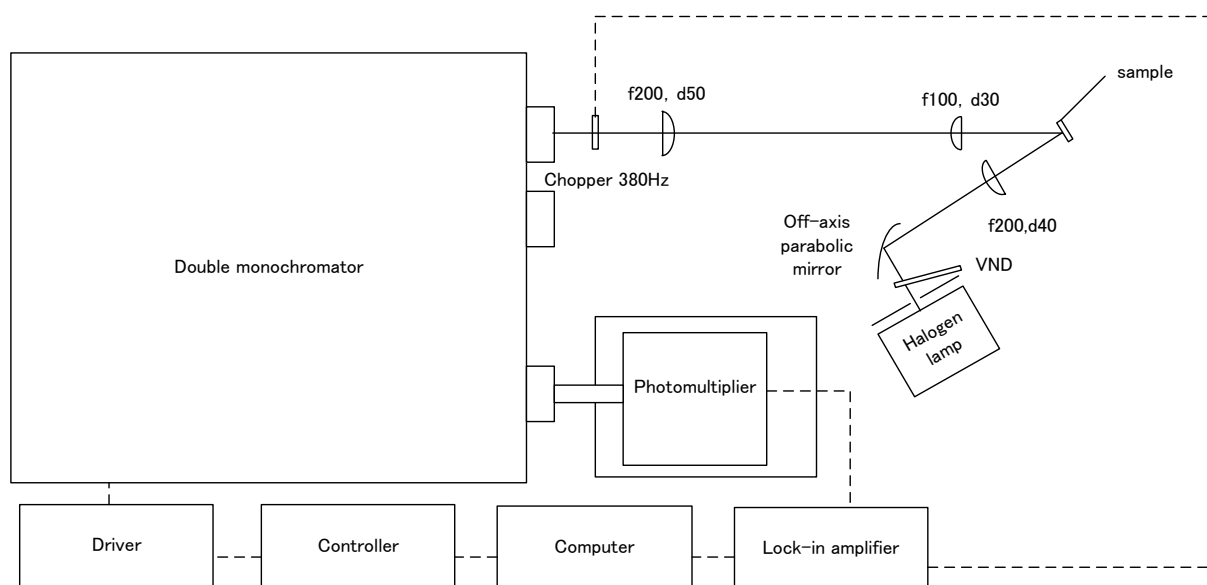


図 6-9 反射測定光学系

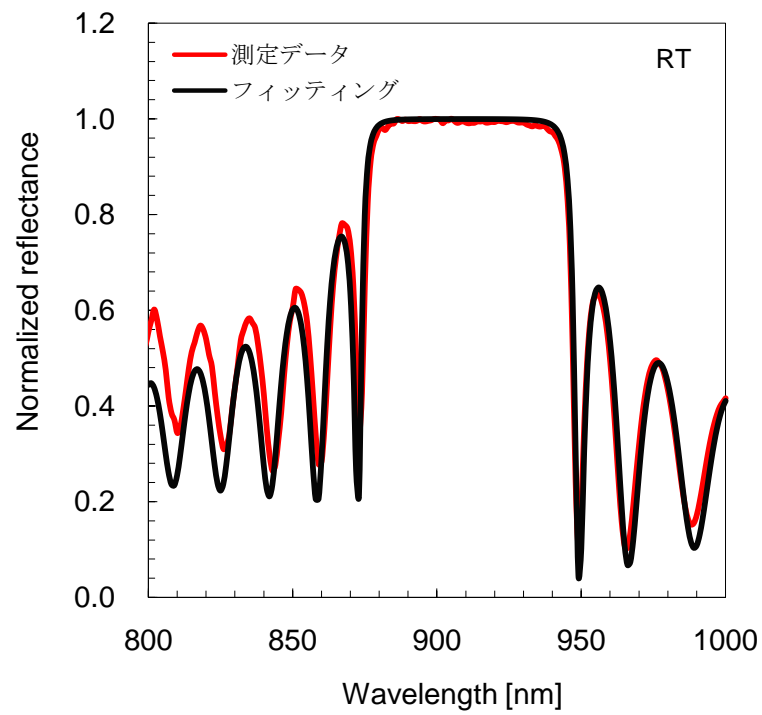


図 6-10 組成傾斜 DBR の反射スペクトル(回転中心近傍)

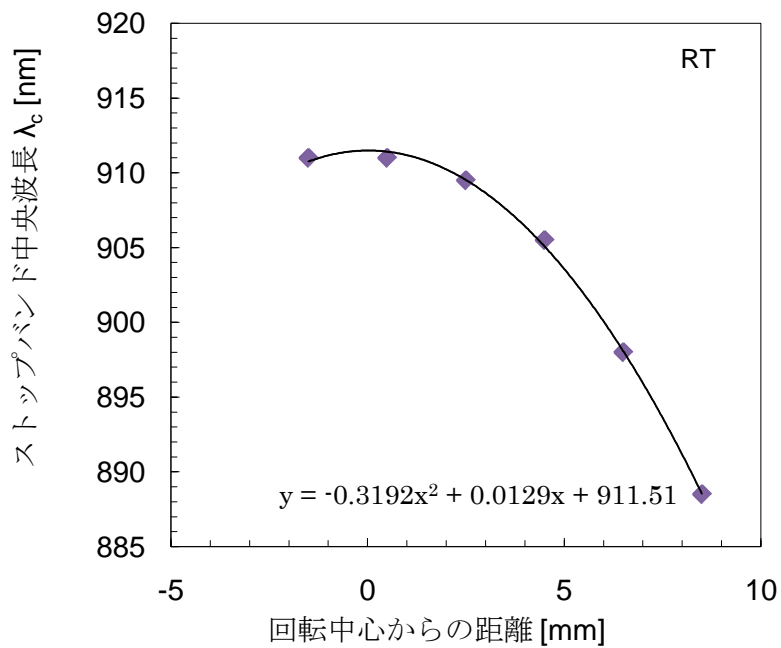


図 6-11 ストップバンド中央波長の面内分布

6-4 GaAs(110)基板上 VCSEL の作製と評価

6-3 において得られた DBR に関する知見をもとに、VCSEL を作製し、劈開断面の走査電子顕微鏡(SEM)観察により試料構造を調べた。また、試料の室温における反射特性を測定した。

6-4-1 試料の作製

前述したように、作製した組成傾斜 DBR の高屈折率層と低屈折率層は、それぞれ $\text{Al}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{As}$ (膜厚 51.9 nm) と $\text{Al}_{0.91}\text{Ga}_{0.09}\text{As}$ (同 59.0 nm) であり、ストップバンド中央波長は 911 nm であった。これらの値は当初の目標構造からずれていたが、Al 組成および各層の膜厚に関する情報を同時にフィードバックし、当初の目標構造通りに VCSEL ウエハを結晶成長することは非常に困難である。フィッティングにより得られた組成傾斜 DBR の構造から計算されるストップバンドのピーク反射率は 99.997% であり、レーザ発振を得るのに十分な反射率を有しているため、今回、Al 組成は変化させず、組成傾斜 DBR の構造を $\text{Al}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{As}$ /組成傾斜層/ $\text{Al}_{0.91}\text{Ga}_{0.09}\text{As}$ とした VCSEL ウエハを作製することにした。設計共鳴波長は 868 nm であるため、VCSEL ウエハの作製においては、DBR の成長時間を既に作製した組成傾斜 DBR の 95% とした ($868\text{nm}/911\text{nm}=0.95$)。図 6-12 に目標構造の模式図を示す。本研究では、光励起によりレーザ発振測定を行うため、試料は全層アンドープである。使用した MBE 成長条件は成長速度 0.50 $\mu\text{m}/\text{h}$ 、V/III 比 80、成長温度 480°C である。

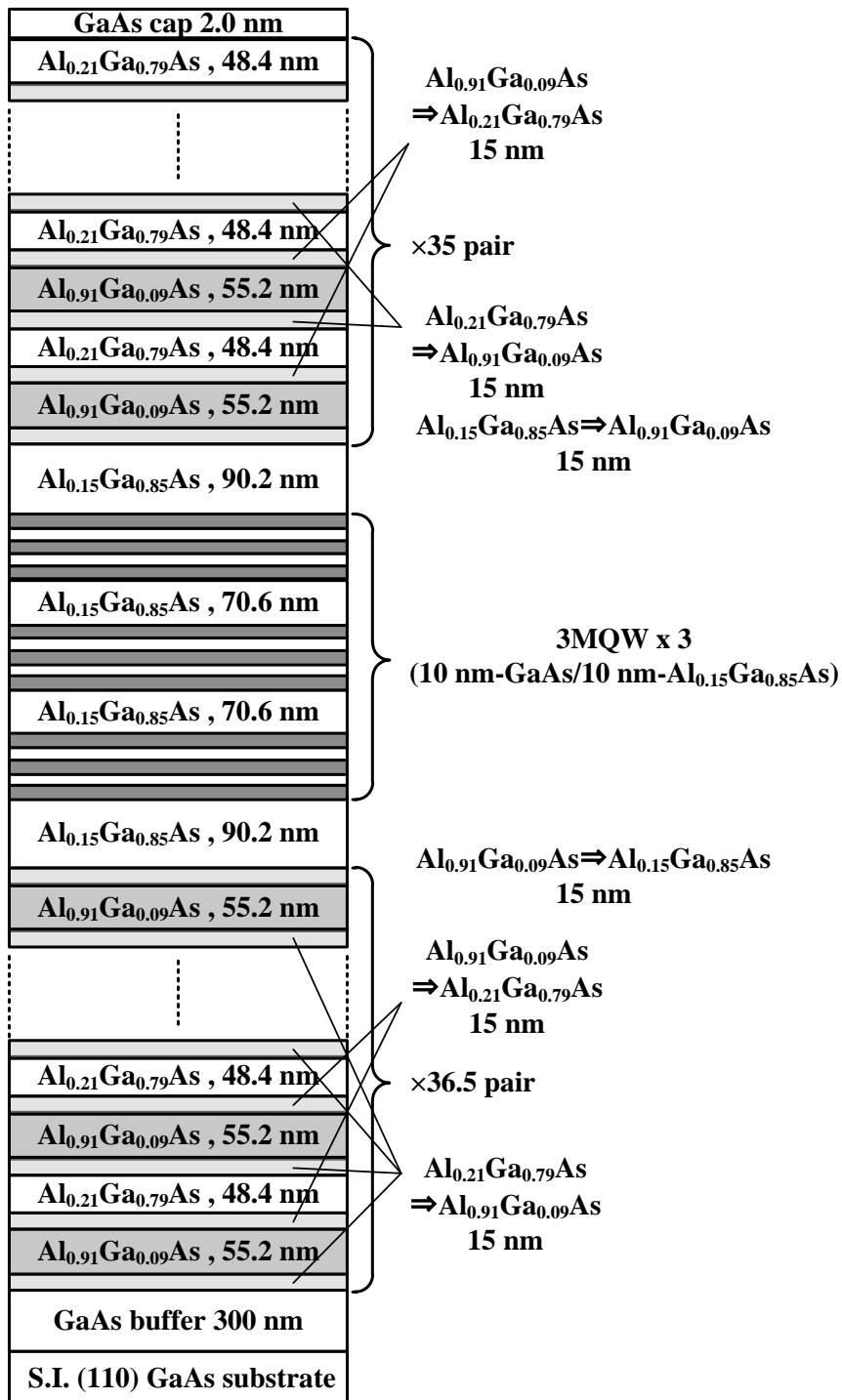


図 6-12 (110)VCSEL 目標構造

6-4-2 試料の構造および反射特性評価

作製した VCSEL ウエハの構造を評価するため、劈開断面を SEM により観察した。図 6-13 に得られた SEM 像を示す。GaAs(100)基板上では、AlAs の臨界膜厚が 104 nm であるが、(110)基板上では、その臨界膜厚が 59 nm と薄い[63]。従って、(110)DBR の臨界膜厚は(100)DBR に比べて薄くなる。そのため、(110)DBR において AlAs を使用すると欠陥や転移が多数存在している場合があるが[63]、SEM 像より、 $\text{Al}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{As}$ /組成傾斜層/ $\text{Al}_{0.91}\text{Ga}_{0.09}\text{As}$ とした VCSEL においては欠陥が観察されておらず、高品質な結晶成長ができたと言える。

次に、図 6-9 で示した光学系を用いて、VCSEL の室温における反射スペクトルを評価した。回転中心における VCSEL の反射スペクトルを図 6-14 に示す。ストップバンド中央波長は 862 nm であった。設計波長に比べて 6 nm 短波長となったが、ほぼ目標通りの構造が結晶成長できたと言える。測定されたストップバンド幅は、目標構造において計算したそ速度ほぼ同程度であることから、ストップバンドにおける最大反射率は 99%以上であると考えられる。次に、反射スペクトルの面内分布を調べた。図 6-15 に、測定したストップバンド中央波長の面内分布を示す。回転中心から 5 mm の場所では、回転中心に比べて、ストップバンド中央波長が約 10 nm 短波長側へシフトした。このシフト量は、6-3 において述べた組成傾斜 DBR と同様な値である。

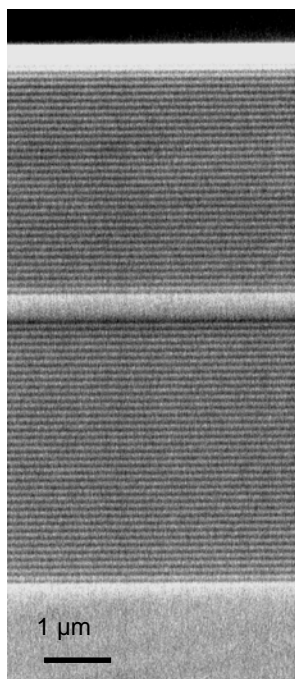


図 6-13 (110)VCSEL 断面 SEM 像

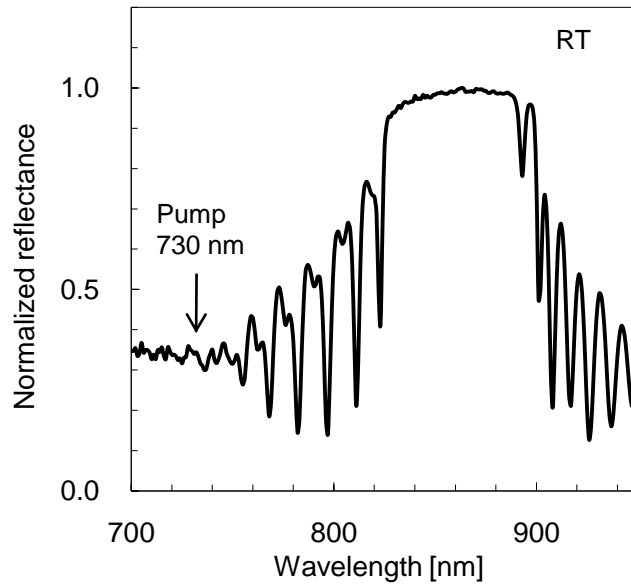


図 6-14 回転中心における VCSEL 反射スペクトル

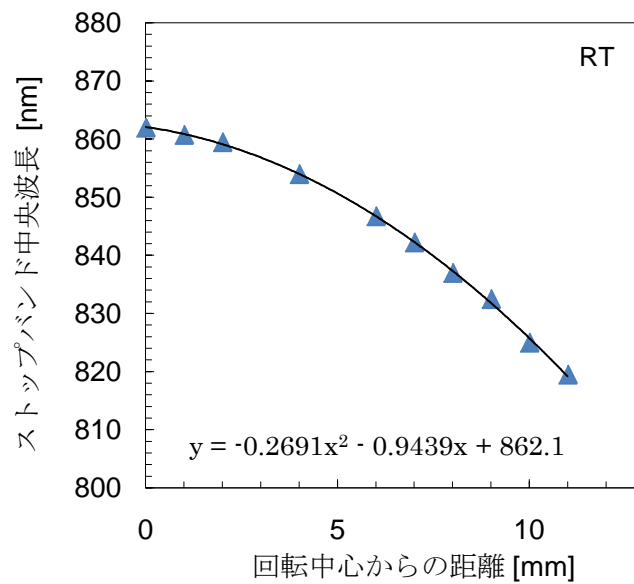


図 6-15 ストップバンド中央波長の面内分布

6-4-3 活性層の発光特性の評価

作製した VCSEL ウエハのレーザ発振測定を行う前に、活性層の発光波長と共振器の共鳴波長との一致を調べておく必要がある。そこで、活性層の発光特性を評価するために、VCSEL ウエハの一部を用いて、上部 DBR をウエットエッチングにより除去した。エッチング条件は以下の通りである。

- ・ エッチャント $\text{H}_2\text{SO}_4:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O} = 1:1:10$
- ・ 温度 室温
- ・ 攪拌なし
- ・ エッチング速度 $1.7 \mu\text{m}/\text{min}$

次に、上部 DBR を除去した試料を用いて、室温において PL 測定を行った。励起波長は 730 nm 、励起強度は $0.2 \text{ kW}/\text{cm}^2$ とした。DBR の場合と異なり、量子井戸のエネルギー準位は面内でほぼ均一であるため、今回の測定では、回転中心から約 10 mm の場所を光励起した。計算による伝導帯-重い正孔の基底準位間エネルギーは、回転中心で 1.453 eV (853 nm)、回転中心から約 10 mm の場所では 1.455 eV (852 nm) である。図 6-16 に測定した PL スペクトルを示す。PL ピーク波長は 853 nm であった。これは計算値にほぼ一致することから、目標通りの活性層を作製できたことが分かる。図 6-14 に示したストップバンド中央波長の面内分布と、図 6-15 の PL 測定結果より、回転中心から約 5 mm 以内の領域においてレーザ発振が得られる可能性がある。

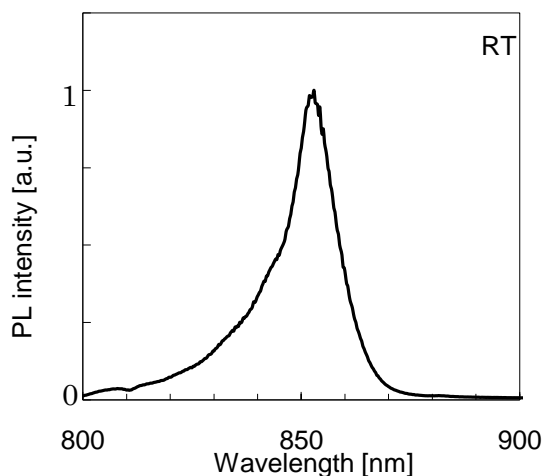


図 6-16 活性層の PL スペクトル

6-5 (110)VCSEL 発振特性の評価

6-4 において述べた VCSEL ウエハの反射特性と活性層の PL 特性から、回転中心から約 5 mm 以内のエリアにおいてレーザ発振が得られる可能性がある。そこで、作製した VCSEL ウエハのこの領域を円偏光パルスにより励起し、出力の発振偏光特性を評価した。

6-5-1 円偏光励起によるレーザ発振閾値および発振スペクトル

図 6-17 に示す光学系を用いて、室温における VCSEL の発振偏光特性を評価した。励起には右円偏光パルスを使用し、励起波長は 730 nm、励起強度(平均パワー)は 2.4 kW/cm^2 - 4.3 kW/cm^2 、ビーム径は 25 μm である。励起光学系にチョッパーを設置し、励起パルスのデューティを下げ、熱による影響の低減を図った。この測定では VCSEL 出力光の左円偏光成分を、速軸を 45° とした $\lambda/4$ バビネソレイユ補償板で、 90° 直線偏光に変換し、 90° 直線偏光のみを偏光子で選択し、CCD 分光器で測定した。VCSEL 出力光の右円偏光成分を測定する場合は、バビネソレイユ補償板の速軸を 135° とすることにより、 90° 直線偏光に変換し、 90° 直線偏光のみを偏光子で選択した。

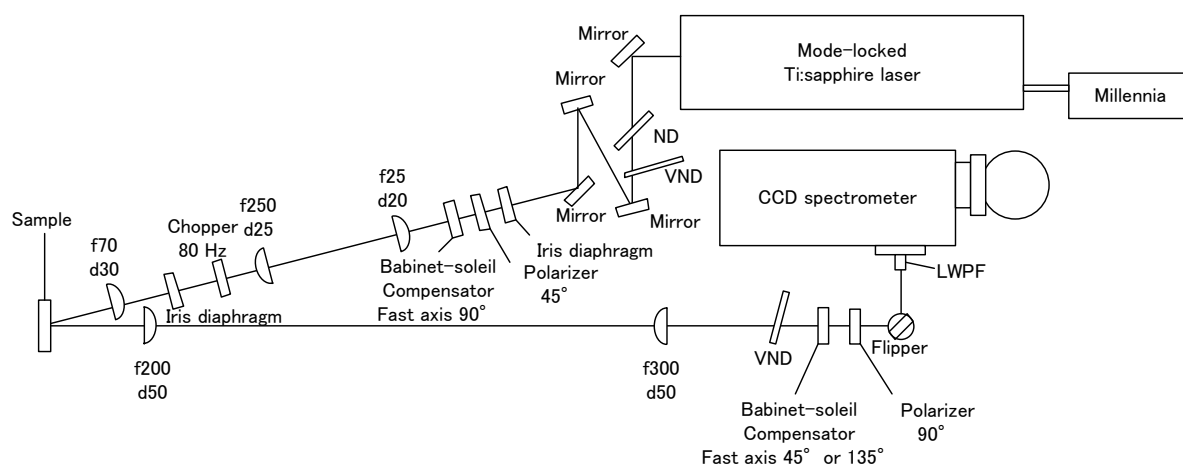


図 6-17 発振スペクトル測定光学系

図 6-18 に、回転中心近傍で測定した VCSEL 出力の左右円偏光成分(σ^- 、 σ^+)と、 $P_c = (I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}) / (I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-})$ で定義される円偏光度の励起強度依存性を示す。図 6-18 において、 σ^+ と σ^- 成分の発振閾値は、それぞれ平均パワー密度が 3.3 と 3.7 kW/cm²であった。 σ^+ 成分の発振閾値以下の励起強度では、 P_c はほぼ一定の値を示した($P_c \sim 0.2$)。 σ^+ 成分がレーザ発振し始めると、 P_c は 0.2 から急激に増加し、励起強度 3.7 kW/cm²では P_c が 0.9 に達した。そして、励起強度 4.0 kW/cm²において P_c は最大値 0.96 を示した。これは、 σ^+ 成分と σ^- 成分の強度比で表すと 42:1 であり、ほぼ完全な円偏光と言える。励起強度が 3.7 kW/cm² から 4.2 kW/cm²の範囲において、 P_c は 0.9 を超えており、室温における高 P_c での円偏光発振に成功した。励起強度を 4.2 kW/cm²まで増加させると、 σ^- 成分の出力強度がレーザ発振に伴い急激に増大し、 P_c は急激に低下し始めた。これは、励起強度を変化させることで、レーザ発振光の円偏光度を変調できることを意味する。

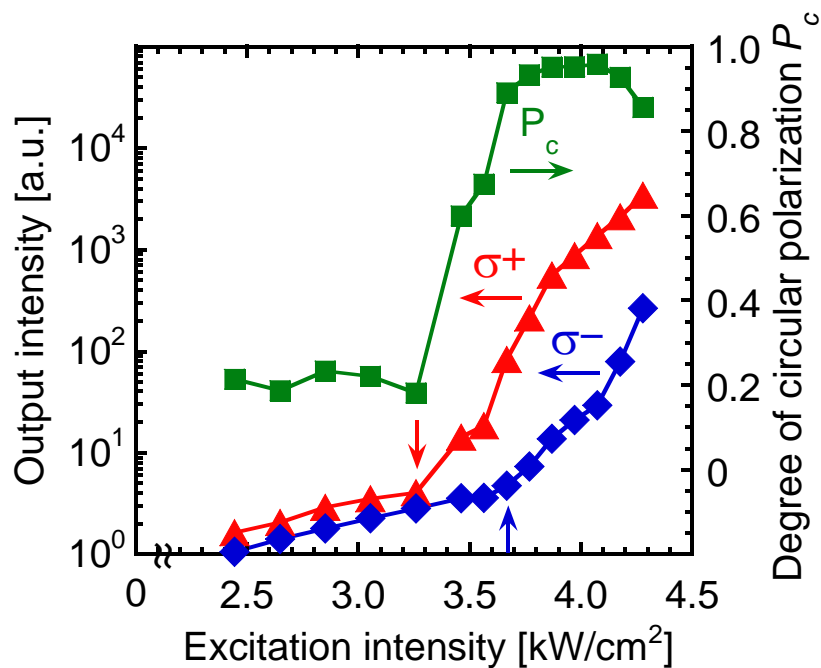


図 6-18 VCSEL 出力の σ^+ 、 σ^- 成分と P_c の励起強度依存性

6-5-2 偏光時間分解測定による VCSEL 発振ダイナミクスの評価

次に、室温における VCSEL の発振偏光ダイナミクスを偏光時間分解測定により評価した。測定光学系を図 6-19 に示す。励起光学系は図 6-17 と同様であり、励起には右円偏光パルスを使用し、励起波長は 730 nm、励起強度は 4.0 kW/cm² である。この励起強度において、6-5-1 で述べたように、最大円偏光度 0.96 の VCSEL 出力が得られている。図 6-20(a)に、VCSEL 光出力強度と P_c の時間変化を示す。また、図 6-20(b)に、VCSEL 出力のスペクトルを示す。図 6-20(b)において、 σ_+ 成分の発振波長は 856 nm であり、単一縦モードでレーザ発振していることが分かる。レーザ発振中 σ_+ 成分の出力強度は σ_- 成分に比べて著しく強く、0.9 以上の高い P_c が保持された。

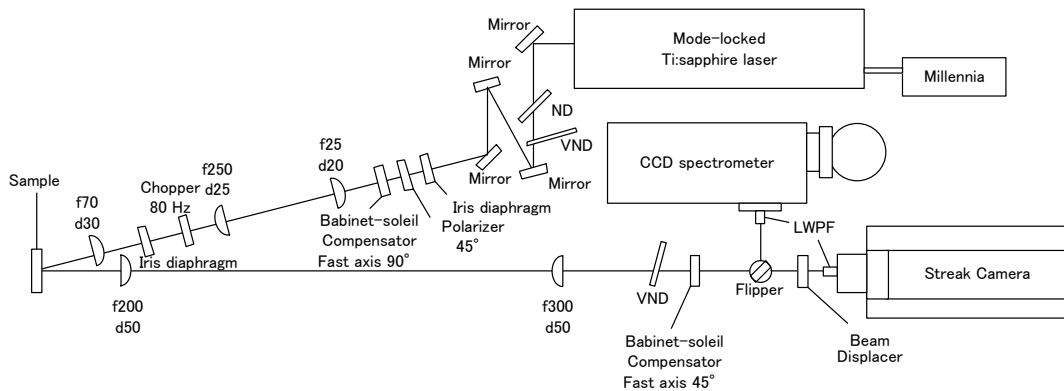


図 6-19 偏光時間分解測定光学系

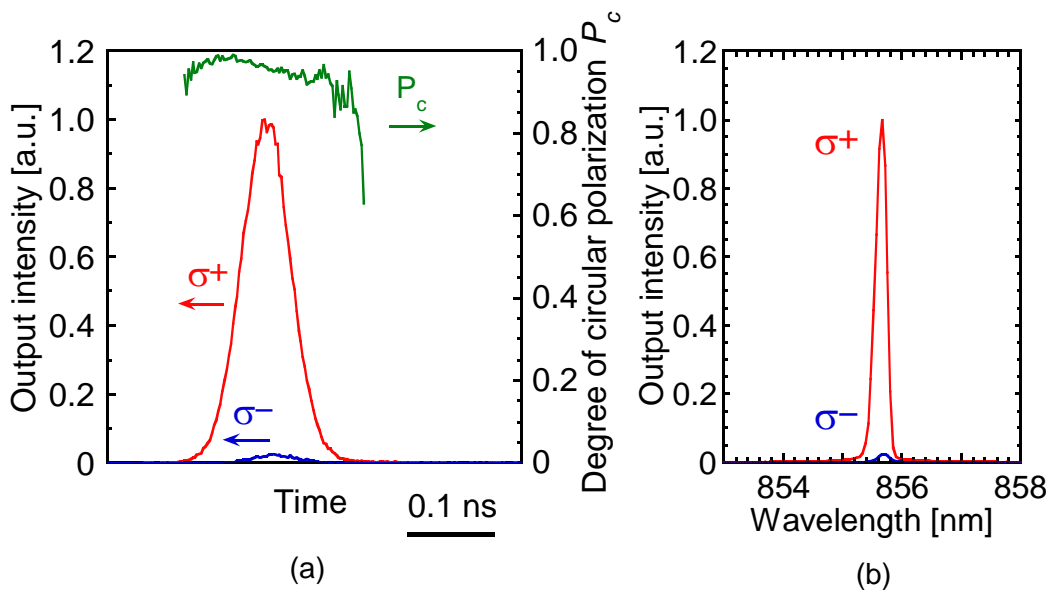


図 6-20 (a) VCSEL 出力強度と P_c の時間変化及び(b) VCSEL 出力のスペクトル

ここで、図 6-18 および図 6-20 に示した発振偏光特性について検討する。スピン VCSEL の発振偏光特性は、活性層の電子スピン偏極状態の影響を強く受ける。スピン VCSEL のエネルギー—光学利得特性のスピン偏極依存性[65]を図 6-21 に示す。活性層がスピン偏極していない場合、上向きスピンを持つ電子密度と下向きスピンを持つ電子密度が等しいため、光学遷移選択則により、 σ^- 、 σ^+ 成分に対する光学利得も同じ大きさとなる(図 6-21(a))。それ故、励起強度を増加させていくと、 σ^- 、 σ^+ モードは同時に発振閾値を超え、両者がレーザ発振する。一方、活性層がスピン偏極している場合、 σ^- 、 σ^+ 成分に対する光学利得にも差が生じる(図 6-21(b))。従って、励起強度の増加に伴い、片側の円偏光モードが先に発振閾値を超え、かつ、他方の円偏光モードが発振閾値以下である状態がレーザ発振中保持された場合、高い円偏光度でレーザ発振する。このような状態を実現するためには、レーザ発振中、伝導帯電子のスピン偏極状態が保持されている必要がある。つまり、レーザ発振持続時間に比べて電子スピン緩和時間 τ_s が十分に長いことが求められる。今回、活性層として用いた(110) GaAs/AlGaAs QW の τ_s は長いため、このような条件を満たし、高い円偏光度でレーザ発振することに成功したと考えられる。

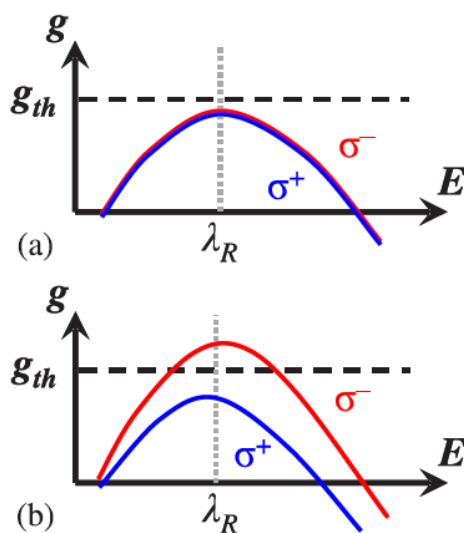


図 6-21 エネルギー—光学利得特性[65]

- (a) スピン偏極していない場合
- (b) スピン偏極している場合

6-6 活性層の電子スピン緩和時間の評価

6-5-2 で述べたように、活性層として用いた(110) GaAs/AlGaAs QW の τ_s がレーザー発振持続時間に比べて十分に長いため、0.9 を超える高い円偏光度でレーザー発振できたと考えられる。そこで、これを確かめるために、活性層の(110) GaAs/AlGaAs QW における τ_s を偏光時間分解 PL 測定により評価した。試料は、6-4-3 において述べた、上部 DBR をウエットエッチングにより除去したサンプルを使用した。測定は、図 2-5 に示した光学系を使用し、室温で行った。図 6-22 に活性層の電子スピン緩和時間の励起強度依存性を示す。励起強度 0.2 kW/cm^2 における τ_s は 2.1 ns であり、従来報告されてきた τ_s と同程度である[29]。励起強度を 1.0 kW/cm^2 まで増加させると、 τ_s は 0.9 ns まで急激に減少し、 2.0 kW/cm^2 以上では、ほぼ一定の値を示した($\tau_s=0.7 \text{ ns}$)。励起強度の増加に伴う τ_s の減少は、電子-正孔間交換相互作用[17,26]によるスピン緩和が強く生じたためではないかと考えられる。レーザー発振測定において円偏光度が最大となった励起強度 4.0 kW/cm^2 では、 τ_s が 0.7 ns であったが、この値は、図 6-20(a)における σ_+ 成分のレーザー発振持続時間 0.2 ns に比べて十分に長い。そのため、レーザー発振中、活性層のスピン偏極状態が保持され、高い円偏光度でレーザー発振したと考えられる。

また、図 6-22 にキャリア寿命 τ_c と初期スピン偏極度 P_0 の励起強度依存性も示している。 τ_c は励起強度の増加に伴って長くなり、励起強度 4.0 kW/cm^2 における τ_c は 1.8 ns であった。室温におけるキャリア寿命は、通常、非発光再結合寿命に律速されていることから、励起強度の増加に伴い、非発光再結合寿命が長くなる、つまり、非発光性の再結合が抑制されたと考えられる。 P_0 は τ_s と同様な振る舞いを示し、励起強度を 1.0 kW/cm^2 まで増加させると、 P_0 は 0.3 から 0.1 まで急激に減少し、 2.0 kW/cm^2 以上では、ほぼ一定の値を示し、励起強度 4.0 kW/cm^2 における P_0 は 0.04 という非常に小さな値であった。

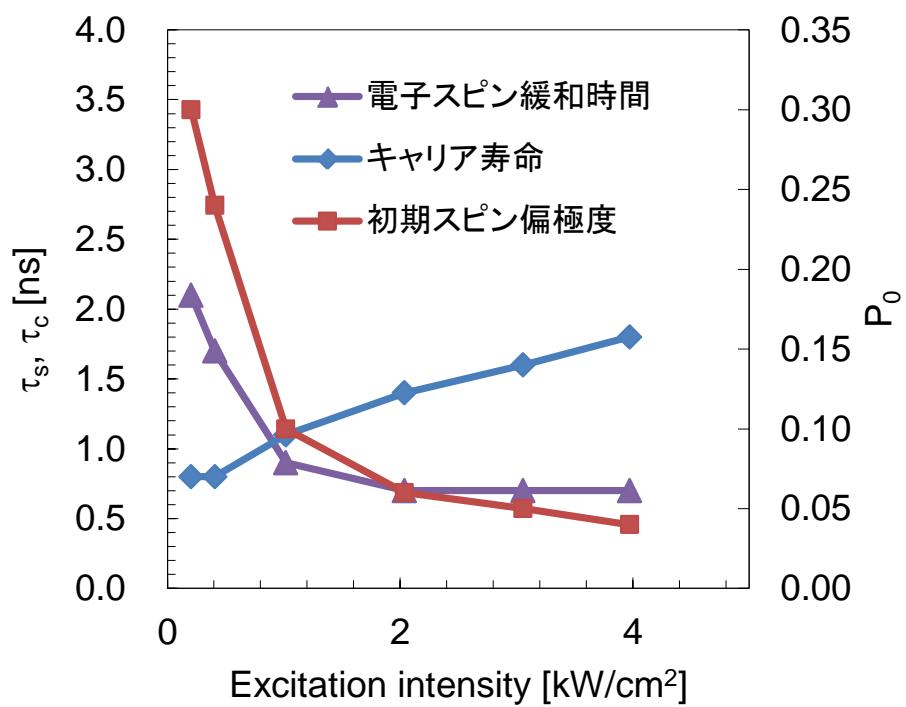


図 6-22 活性層の電子スピン緩和時間、キャリア寿命および初期スピンの偏極度の励起強度依存性

6-7 レート方程式による円偏光発振特性の解析

図 6-20(a)に示した VCSEL の発振偏光ダイナミクスを考察するために、レート方程式を用いて数値解析を行った。

6-7-1 解析モデル

以下にレート方程式による解析モデルを示す[9,65]。式(6-11) は DBR を含むバリアでの電子密度の時間変化、式(6-12) は活性層での電子密度の時間変化、式(6-13) は光子密度の時間変化である。電子密度についてはアップスピンとダウンスピンの電子密度の時間変化(n^+ 、 n^-)について、光子密度については右回りおよび左回りの光子密度の時間変化(S^+ 、 S^-)について、合わせて 6 個の連立偏微分方程式を 4 次のルンゲクッタ法により数値解析した。解析に用いたパラメータを表 6-1 に示す。パラメータのうち、 τ_s 、 τ_c および P_0 については、6-6 において示した励起強度 4.0 kW/cm^2 における測定値を用いた。共振器体積 V_c 、MQW 体積 V_{MQW} 、光閉じ込め係数 Γ については、今回作製した VCSEL 構造から求めた。その他のパラメータは文献 66 を参考にした。透明キャリア密度、微分利得、利得飽和係数に関しては、 σ_+ 成分が励起強度 3.3 kW/cm^2 でレーザ発振が得られるように調整した。

$$\frac{\partial n_c^\pm}{\partial t} = -\frac{n_c^\pm}{\tau_{cap}} \pm \left(\frac{n_c^-}{\tau_s} - \frac{n_c^+}{\tau_s} \right) \quad (6-11)$$

$$\frac{\partial n^\pm}{\partial t} = \frac{V_c}{V_{MQW}} \cdot \frac{n_c^\pm}{\tau_{cap}} - v_g \frac{dg}{dn} \frac{n^\pm - n_{tr}}{1 + \varepsilon S^\pm} S^\mp - \frac{n^\pm}{\tau_c} \pm \left(\frac{n^-}{\tau_s} - \frac{n^+}{\tau_s} \right) \quad (6-12)$$

$$\frac{\partial S^\pm}{\partial t} = \Gamma v_g \frac{dg}{dn} \frac{n^\mp - n_{tr}}{1 + \varepsilon S^\pm} S^\pm + \Gamma \beta \frac{n^\mp}{\tau_c} - \frac{S^\pm}{\tau_{ph}} \quad (6-13)$$

表 6-1 レート方程式解析に用いたパラメータ

Symbol	Quantity	Value
V_c	Volume of the cavity	$2.3 \times 10^{-10} \text{ cm}^3$
V_{MQW}	Volume of the MQW	$4.4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3$
τ_{cap}	Carrier capture time	$20 \times 10^{-12} \text{ s}$
τ_s	Spin relaxation time	$0.7 \times 10^{-9} \text{ s}$
τ_c	Carrier lifetime	$01.8 \times 10^{-9} \text{ s}$
τ_{ph}	Photon lifetime	$1 \times 10^{-12} \text{ s}$
v_g	Group velocity	$0.86 \times 10^{10} \text{ cm/s}$
dg/dn	Differential gain	$1.0 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$
n_{tr}	Transparency carrier density	$9.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$
ε	Gain saturation coefficient	$4.0 \times 10^{-16} \text{ cm}^3$
Γ	Mode confinement factor	0.03
β	Spontaneous emission factor	1.7×10^{-4}

6-7-2 レート方程式による実験結果の解析

図 6-23 に、レート方程式による数値解析から得られた光子密度と円偏光度の時間変化を示す。初期スピン偏極度 P_0 は測定値である 0.04 という非常に小さな値を用いたが、最大円偏光度は、図 6-20(a)において示した測定結果と同様に 0.96 という高い値を示した。これは、大きな初期スピン偏極度を得るのが難しいスピン偏極電子注入によっても比較的容易に高い円偏光度でレーザ発振できる可能性があることを示している。次に、解析に用いたパラメータの内、 τ_s のみを変化させて計算したときの、最大円偏光度の推移を図 6-24 に示す。図 6-24 より、今回作製した VCSEL 構造においては、0.9 以上の高い円偏光度を得るためには、活性層の τ_s は約 0.3 ns 以上必要であることが分かる。

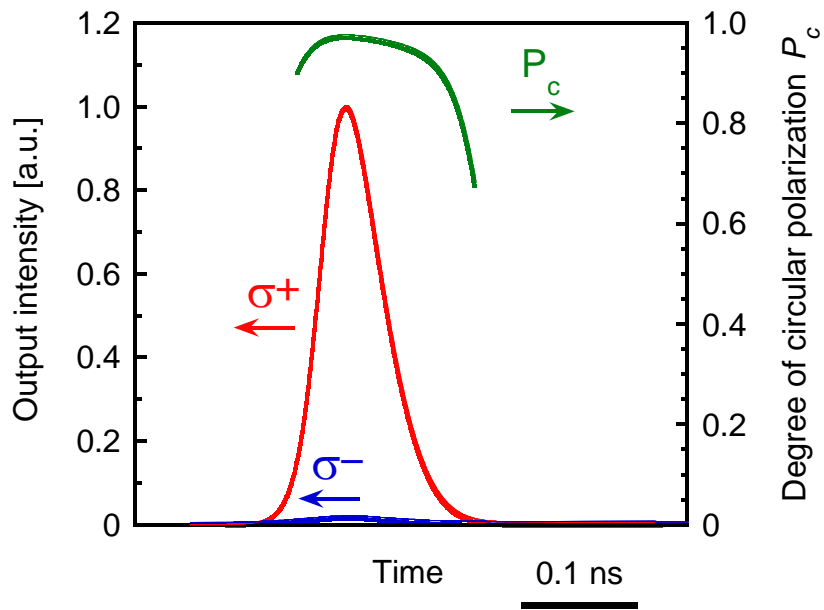


図 6-23 レート方程式解析により求めた VCSEL 出力強度と P_c の時間変化

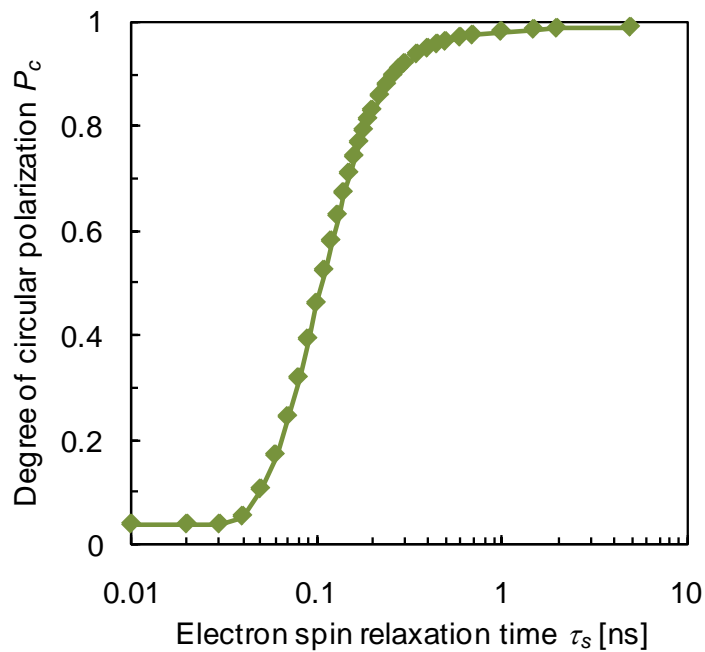


図 6-24 レート方程式解析により求めた 最大円偏光度の τ_s 依存性

6-8 まとめ

本章では、(110)GaAs/AlGaAs QW を活性層として用いたスピン VCSEL を作製し、室温において高円偏光度レーザ発振を実現した結果について述べた。(110)GaAs/AlGaAs QW がスピン VCSEL の活性層として有望な系であることを実験および数値解析により示した。以下に得られた知見を示す。

- A) 組成傾斜 DBR (Al_{0.21}Ga_{0.79}As/組成傾斜層/Al_{0.91}Ga_{0.09}As) を有する (110)VCSEL を作製し、断面 SEM 観察を行った。その結果、試料は欠陥のない高品質な結晶であることが分かった。
- B) 作製した VCSEL を右円偏光パルスにより励起し、室温において、VCSEL 出力の発振偏光特性を評価した。励起強度 4.0 kW/cm² では P_c が最高値 0.96 に達し、目的とした、室温における高 P_c での円偏光発振に成功した。また、室温における VCSEL の発振偏光ダイナミクスを偏光時間分解測定により評価した。レーザ発振中、 σ_+ 成分の出力強度は σ_- 成分に比べて著しく強く、0.9 以上の高い P_c が保持された。
- C) 活性層の(110) GaAs/AlGaAs QW における τ_s 、 τ_c および P_0 を偏光時間分解 PL 測定により評価した。レーザ発振測定において円偏光度が最大となった励起強度 4.0 kW/cm² では、 τ_s が 0.7 ns であったが、この値は、 σ_+ 成分のレーザ発振持続時間 0.2 ns に比べて十分に長い。これにより、レーザ発振中、活性層のスピン偏極状態が保持され、高い円偏光度でレーザ発振したと考えられる。 τ_c は励起強度の増加に伴って長くなり、励起強度 4.0 kW/cm² における τ_c は 1.8 ns であった。 P_0 は τ_s と同様に励起強度を増加させると急激に減少し、励起強度 4.0 kW/cm² における P_0 は 0.04 という非常に小さな値であった。
- D) 測定した VCSEL の発振偏光ダイナミクスを考察するために、実験により測定した τ_s 、 τ_c および P_0 を取り入れたレート方程式を用いて数値解析を行った。その結果、 P_0 として測定値である 0.04 という非常に小さな値を用いたにもかかわらず、最大円偏光度は、測定結果と同様に 0.96 という高い値を

示した。解析に用いたパラメータの内、 τ_s のみ変化させて計算し、今回作製した VCSEL 構造においては、0.9 以上の高い円偏光度を得るには、活性層の τ_s は約 0.3 ns 以上必要であることが分かった。

上記で得た知見より、室温においてもスピンの注入により比較的容易に高い円偏光度でレーザ発振が得られる可能性があることが分かった。

第7章 結論

本研究では、スピン光デバイスへの応用に向けて、GaAs(110)基板上に良質な量子井戸を作製する技術を確立すること、外部から電子スピン緩和時間を制御する技術を確立すること、および室温動作光励起スピン VCSEL を実現することを目的とした。

第1章では、本研究の背景として半導体スピントロニクス歴史、最近の研究状況を中心に述べた。

第2章では、半導体スピン光デバイスにとって重要な光学遷移選択則や代表的な電子スピン緩和機構について述べた。また、電子スピンドYNAMIKSの評価法として、光学遷移選択則を利用した偏光時間分解 PL 法について説明した。

第3章では、GaAs(100)基板上の成長に比べて困難とされてきた GaAs(110)基板上の成長条件の最適化を検討し、基板と同程度の高品質結晶を MBE 成長することに成功したことを述べた。得られた最適成長条件は、GaAs(110)の表面構造を反映して、(100)基板上に比べて低い成長温度・低い成長速度・高いV/III比であった。次に、最適成長条件を用いて(110)QW を作製し、室温において量子構造が分解された PL スペクトルを観測した。得られた2つの PL ピークは、(110)QW の面内光学異方性を利用した偏光分解 PL 測定により同定した。また、XRD 測定においてもシャープなサテライトピークが得られており、高品質 QW の作製に成功したと言える。得られた高品質結晶成長に関する知見は、今後、(110)基板上のスピンデバイスを実現する上で必要な成果であると考えられる。

第4章では、成長中断条件を系統的に変化させることにより、界面平坦性と電子スピン緩和時間の相関について検討した結果について述べた。GaAs 上へテロ界面において成長中断を30秒行うことにより界面平坦性が最も向上し、 τ_s が約2.1 ns まで増大することが分かった。これは、試料の界面平坦性が向上したことにより、SIA による DP 緩和が抑制されたためであると考えられる。

次に、電子スピン緩和時間の温度依存性を調べた。(100)MQW の τ_s は、高温になるにつれて減少したが、一方、(110)MQW では、 τ_s が高温になるにつれて増加した。室温における(110)MQW の τ_s は、(100)MQW に比べて1桁長いことが分かった。これらの結果は、(110)QW が室温動作スピンデバイスの有望な系であることを示している。また、界面平坦性の異なる試料間における電子スピン緩和時間の温度依存性の違いを DP 緩和機構に基づいて説明した。本研究に

より得られた電子スピン緩和に関する知見は、今後、(110)QW の有する長い τ_s をデバイスへ応用する上で、重要な成果であると考えられる。

第5章では、室温動作スピndeバイsへの応用を目指し、*p-i-n*構造を利用してGaAs/AlGaAs (110) QW の電子スピン緩和時間の電場制御を検討した結果について述べた。メサ加工した(110)*p-i-n*素子において、電圧-20.4 V印加時、励起強度(平均パワー)250 μW で励起し、電流が150 μA 流れてもデバイsは破壊せず、高い逆バイas耐性を示すことが分かった。

C-V測定により、今回作製した(110)*p-i-n*素子のアンドープMQWには、 $2-4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 程度のバックグラウンドキャリアが存在していることが分かった。また、PLピークエネルギーの印加電圧依存性を調べた。電圧-10 V以上印加することによりPLピークエネルギーが減少した。この振る舞いは、主に量子閉じ込めシュタルク効果によるものであり、-10 V以上印加することにより、はじめてMQWに電場が印加されることを意味している。これはC-V測定とコンシステントな結果であることが分かった。

(110)*p-i-n*素子の室温における電子スピン緩和時間を偏光時間分解PL法により評価し、初めて室温において、 τ_s を1桁変調することに成功した。また、 τ_s の印加電圧依存性を調べた。電圧を-10 V以上印加すると τ_s が急激に減少した。測定された τ_s の変調はRashba効果を通した印加電場によるものであると考えられる。本研究により得られた一連の成果は、(110)基板上量子井戸の大きな特徴である長い電子スピン緩和時間を活用したスピndeバイsの実現に向けた重要な知見である。これにより、スピン電界効果トランジスタやスピンレーザといった高機能・低消費電力を特徴とするスピndeバイsの研究開発が進展することが期待される。

第6章では、(110)GaAs/AlGaAs QWを活性層として用いたスピンVCSELを作製し、室温において高円偏光度レーザ発振を実現した結果について述べた。組成傾斜DBR (Al_{0.21}Ga_{0.79}As/組成傾斜層/Al_{0.91}Ga_{0.09}As)を有する(110)VCSELを作製し、断面SEM観察を行った。その結果、試料は欠陥のない高品質な結晶であることが分かった。

次に、作製したVCSELを右円偏光パルスにより励起し、室温において出力の発振偏光特性を評価した。励起強度4.0 kW/cm²では P_c が最高値0.96に達し、目的としていた、室温における高 P_c での円偏光発振に成功した。また、室温におけるVCSELの発振偏光ダイナミクスを偏光時間分解測定により評価した。

レーザ発振中、 σ_+ 成分の出力強度は σ_- 成分に比べて著しく強く、0.9 以上の高い P_c が保持された。

活性層の(110) GaAs/AlGaAs QW における τ_s 、 τ_c および P_0 を偏光時間分解 PL 測定により評価した。レーザ発振測定において円偏光度が最大となった励起強度 4.0 kW/cm^2 では、 τ_s が 0.7 ns であったが、この値は、 σ_+ 成分のレーザ発振持続時間 0.2 ns に比べて十分に長いことが分かった。これにより、レーザ発振中、活性層のスピンの偏極状態が保持され、高い円偏光度でレーザ発振したと考えられる。 τ_c は励起強度の増加に伴って長くなり、励起強度 4.0 kW/cm^2 における τ_c は 1.8 ns であった。 P_0 は τ_s と同様に励起強度を増加させると急激に減少し、励起強度 4.0 kW/cm^2 における P_0 は 0.04 という非常に小さな値であった。

測定した VCSEL の発振偏光ダイナミクスを考察するために、実験により測定した τ_s 、 τ_c および P_0 を取り入れた速度方程式を用いて数値解析を行った。その結果、 P_0 は測定値である 0.04 という非常に小さな値を用いたにもかかわらず、最大円偏光度は、測定結果と同様に 0.96 という高い値を示した。解析に用いたパラメータの内、 τ_s のみ変化させて計算し、今回作製した VCSEL 構造においては、0.9 以上の高い円偏光度を得るには、活性層の τ_s は約 0.3 ns 以上必要であることが分かった。これらの得られた知見より、室温においてもスピン偏極電子の注入により比較的容易に高い円偏光度でレーザ発振できる可能性があることが分かった。

参考文献

1. M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
2. G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1989).
3. T. Miyazaki and N. Tezuka: *J. Magn. Magn. Mater.* **139**, L231 (1995).
4. S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando, *Nat. Mater.* **3**, 868 (2004).
5. S. S. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S.-H. Yang, *Nat. Mater.* **3**, 862 (2004).
6. S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 665 (1990).
7. O. Wada, *New Journal of Physics*, **6**, 183 (2004).
8. H. Ando, T. Sogawa, and H. Gotoh, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 566 (1998).
9. J. Rudolph, D. Hägele, H. M. Gibbs, G. Khitrova, and M. Oestreich, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4516 (2003).
10. M. Holub, J. Shin, D. Saha, and P. Bhattacharya, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 146603 (2007).
11. C. Gøthgen, R. Oszwaldowski, A. Petrou, and I. Zutic, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 042513 (2008).
12. S. Hövel, A. Bischoff, N. C. Gerhardt, M. R. Hofmann, T. Ackemann, A. Kroner, and R. Michalzik, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 041118 (2008).
13. H. Fujino, S. Koh, S. Iba, T. Fujimoto, and H. Kawaguchi, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 131108 (2009).
14. *Optical Orientation*, edited by F. Meir and B. P. Zakharchenya (Elsevier, Amsterdam, 1984).
15. M. I. D'yakonov and V. I. Perel', *Sov. Phys. JETP* **33**, 1053 (1971).
16. R. J. Elliot, *Phys. Rev.* **96**, 266 (1954).
17. G. L. Bir, A. G. Aronov, and G. E. Pikus, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **69**, 1382 (1975) [*Sov. Phys. JETP* **42**, 705 (1976)].
18. J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4313 (1998).
19. O. Z. Karimov, G. H. John, R. T. Harley, W. H. Lau, M. E. Flatté, M. Henini, and

- R. Airey, Phys. Rev. Lett. **91**, 246601 (2003).
20. Y. Mitsumori, A. Oiwa, T. Slupinski, H. Maruki, Y. Kashimura, F. Minami, and H. Munekata, Phys. Rev. B **69**, 033203 (2004).
 21. J. P. Zahn, A. Gamouras, S. March, X. Liu, J. K. Furdyna, K. C. Hall, J. Appl. Phys. **107**, 033908 (2010).
 22. X. Jiang, R. Wang, R. M. Shelby, R. M. Macfarlane, S. R. Bank, J. S. Harris, and S. S. P. Parkin, Phys. Rev. Lett. **94**, 056601 (2005).
 23. O. M. J. van Erve, A. T. Hanbicki, M. Holub, C. H. Li, A. Awo-Affouda, P. E. Thompson, and B. T. Jonker, Appl. Phys. Lett., **91**, 212109 (2007).
 24. H. Saito, J. C. Le Breton, V. Zayets, S. Yuasa, and K. Ando, Appl. Phys. Express **2**, 083003 (2009).
 25. H. Saito, J. C. Le Breton, V. Zayets, Y. Mineno, S. Yuasa, and K. Ando, Appl. Phys. Lett. **96**, 012501 (2010).
 26. Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukara, and H. Ohno, Phys. Rev. Lett. **83**, 4196 (1999).
 27. M. I. D'yakonov and V. Yu. Kachorovskii, Sov. Phys. Semicond. **20**, 110 (1986).
 28. L. S. Liu, W. X. Wang, Z. H. Li, B. L. Liu, H. M. Zhao, J. Wang, H. C. Gao, Z. W. Jiang, S. Liu, H. Chen, and J. M. Zhou, J. Crystal Growth **301**, 93 (2007).
 29. Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, J. Phys. C **17**, 6039 (1984).
 30. H. Sanada, Y. Kondo, S. Matsuzaka, K. Morita, C. Y. Hu, Y. Ohno, and H. Ohno, Phys. Rev. Lett. **96**, 067602 (2006).
 31. O. D. D. Couto, Jr., F. Iikawa, J. Rudolph, R. Hey, and P. V. Santos, Phys. Rev. Lett. **98**, 036603 (2007).
 32. P. Palinginis, F. Sedgwick, S. Crankshaw, M. Moewe, and C. J. Chang-Hasnain, Opt. Express **13**, 9909 (2005).
 33. G. Dresselhaus, Phys. Rev. **100**, 580 (1955).
 34. *Semiconductor Spintronics and Quantum Computing*, edited by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (Springer, New York, 2002).
 35. T. Adachi, Y. Ohno, F. Matsukura, and H. Ohno, Physica E (Amsterdam) **10**, 36 (2001).
 36. S. Döhrmann, D. Hägele, J. Rudolph, M. Bichler, D. Schuh, and M. Oestreich, Phys. Rev. Lett. **93**, 147405 (2004).

37. G. M. Müller, M. Römer, D. Schuh, W. Wegscheider, J. Hübner, and M. Oestreich, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 206601 (2008).
38. Y. Zhou and M. Wu, *EPL* **89**, 57001 (2010).
39. R. J. Seymour and R. R. Alfano, *Appl. Phys. Lett.* **37**, 231 (1980).
40. 「分子線エピタキシー」, 権田俊一 (培風館, 1994).
41. D. Sun, E. Towe, P. H. Ostdiek, J. W. Grantham, and G. J. Vansuch, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **1**, 674 (1995).
42. E. S. Tok, T. S. Jones, J. H. Neave, J. Zhang, and B. A. Joyce, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3278 (1997).
43. R. Hey, A. Trampert, U. Jahn, O. D. D. Couto, Jr., and P. Santos, *J.Cryst.Growth*, **301**, 158 (2007).
44. M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *J.Appl.Phys.* **101**, 103541 (2007).
45. E. S. Tok, J. H. Neave, M. J. Ashwin, B. A. Joyce, and T. S. Jones, *J.Appl.Phys.* **83**, 4160 (1998).
46. 「半導体中の電子・核スピンドYNAMIKSの制御に関する研究」, 眞田治樹 (東北大学博士論文, 2005).
47. G. R. Bell, T. S. Jones, J. H. Neave, and B. A. Joyce, *Surf. Sci.* **458**, 1, 247 (2000).
48. A. Ishii, T. Aisaka, J. W. Oh, M. Yoshita, and H. Akiyama, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 4187 (2003).
49. Y. Kajikawa, *Phys. Rev. B* **51**, 16790 (1995).
50. W. H. Lau and M. E. Flatté, *J. Appl. Phys.* **91**, 8682 (2002).
51. M. Tanaka, H. Sakaki and J. Yoshino, *Jpn. J. Appl. Phys.* **25**, 155 (1986).
52. Y. Horikoshi, M. Kawashima, and H. Yamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, 169 (1998).
53. H. Hillmer, A. Forchel, R. Sauer and C. W. Tu, *Phys. Rev. B* **42**, 3220 (1990).
54. J. Nitta, T. Akazaki, H. Takayanagi, and T. Enoki, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1335 (1997).
55. M. Henini, O. Z. Karimov, G. H. John, R. T. Harley, and R. J. Airey, *Physica E (Amsterdam)* **23**, 309 (2004).
56. K. C. Hall, K. Gundogdu, J. L. Hicks, A. N. Kocbay, M. E. Flatte, T. F. Boggess,

- K. Holabird, A. Hunter, D. H. Chow, and J. J. Zinck, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 202114 (2005).
57. P. S. Eldridge, W. J. H. Leyland, P. G. Lagoudakis, O. Z. Karimov, M. Henini, D. Taylor, R. T. Phillips, and R. T. Harley, *Phys. Rev. B* **77**, 125344 (2008).
58. M. Kohda, T. Bergsten, and J. Nitta, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 031008 (2008).
59. D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Phys. Rev. B* **32**, 1043 (1985).
60. P. W. Shor and J. Preskill, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 441 (2000).
61. V. Zayets, and K. Ando, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 121104 (2009).
62. M. Yamauchi, K. Mawatari, A. Hibara, M. Tokeshi, and T. Kitamori, *Anal. Chem.* **78**, 2646 (2006).
63. R. Hey, U. Jahn, Qian Wan and A. Trampert, *Phys. Stat. Sol. (c)* **5**, 2917 (2008).
64. 「光学薄膜と成膜技術」, 李正中 (株式会社 アグネ技術センター, 2002).
65. M. Holub and P. Bhattacharya, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, R179 (2007).
66. K. Ikeda, T. Fujimoto, H. Fujino, T. Katayama, S. Koh, and H. Kawaguchi, *IEEE Photonics Technol. Lett.* **21**, 1350 (2009).

研究業績

原著論文

- (1) **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,”
Appl. Phys. Lett. vol.98, no.8, 081113, 2011.
- (2) **S. Iba**, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“Room temperature gate modulation of electron spin relaxation time in (110)-oriented GaAs/AlGaAs quantum wells,”
Appl. Phys. Lett. vol.97, no.20, 202102, 2010.
- (3) H. Fujino, S. Koh, **S. Iba**, T. Fujimoto, and H. Kawaguchi,
“Circularly polarized lasing in a (110)-oriented quantum well vertical-cavity surface-emitting laser under optical spin injection,”
Appl. Phys. Lett. vol.94, no.13, 131108, 2009.
- (4) **S. Iba**, H. Fujino, T. Fujimoto, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“Correlation between electron spin relaxation time and hetero-interface roughness in (110)-oriented GaAs/AlGaAs multiple-quantum wells,”
Physica E, vol.41, no.5, pp.870-875, 2009.

国際学会

査読付き

- (1) **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,”
CLEO 2011, JTuI92, Baltimore, USA, May 3, 2011.
- (2) **S. Iba**, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“Room temperature gate-controlled electron spin relaxation time in (110) GaAs/AlGaAs quantum wells,”
The 23rd Annual Meeting of the IEEE Photonics Society, WAA 4, Denver, USA, November 10, 2010.

- (3) H. Fujino, **S. Iba**, T. Fujimoto, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“Optically-pumped circularly-polarized lasing in a (110)-oriented VCSEL based
on InGaAs/GaAs QWs,”
CLEO/IQEC 2009, CMSS5, Baltimore, USA, June 1, 2009.
- (4) **S. Iba**, H. Fujino, T. Fujimoto, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“Effect of growth interruption on electron spin relaxation in (110)-oriented
GaAs/AlGaAs quantum wells,”
The 2008 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM
2008), P-12-4, Tsukuba, Japan, September 25, 2008.

査読なし

- (1) H. Fujino, **S. Iba**, T. Fujimoto, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“Electron spin relaxation time in (110)-oriented InGaAs/GaAs quantum wells
grown by molecular beam epitaxy,”
The 8th GIST/NAIST Joint Symposium on Advanced Materials, P-24, Nara,
Japan, November 26, 2008.
- (2) **S. Iba**, H. Fujino, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“MBE growth of MQW on a (110) GaAs substrate for obtaining long lifetime of
electron spins,”
JSPS-UNT Winter School on Nanophotonics, Texas, USA, February 14, 2008.
- (3) **S. Iba**, H. Fujino, S. Koh, and H. Kawaguchi,
“Fabrication and characterization of GaAs/AlGaAs quantum wells on GaAs(110)
by molecular beam epitaxy,”
The 7th GIST/NAIST Joint Symposium on Advanced Materials, Gwangju, Korea,
November 22, 2007.

国内学会

- (1) 揖場 聡, 黄 晋二, 池田 和浩, 河口 仁司,
“光スピン注入(110)GaAs 量子井戸面発光半導体レーザの室温円偏光発振,”
2011 年春季第 58 回応用物理学会関係連合講演会, 27a-KM-7, 神奈川, 2011
年 3 月 27 日.
- (2) 揖場 聡, 黄 晋二, 河口 仁司,
“スピン光デバイスに向けた(110) GaAs/AlGaAs 量子井戸の作製と電子スピ
ン緩和の電場制御,”
応用電子物性分科会・スピントロニクス研究会 共同主催研究会, 東京,
2010 年 11 月 2 日.
応用電子物性分科会会誌, vol. 16, no.4, pp.140-142, 2010.
- (3) 揖場 聡, 黄 晋二, 河口 仁司,
“室温における GaAs (110)量子井戸中の電子スピン緩和時間の電場制御,”
2010 年秋季第 71 回応用物理学会学術講演会, 14a-J-14, 長崎,
2010 年 9 月 14 日.
- (4) 揖場 聡, 黄 晋二, 河口 仁司,
“GaAs/AlGaAs (110)量子井戸中の電子スピン緩和時間に対する電場効果,”
2010 年春季第 57 回応用物理学会関係連合講演会, 19a-ZA-5, 神奈川,
2010 年 3 月 19 日.
- (5) 揖場 聡, 黄 晋二, 河口 仁司,
“GaAs (110)上の GaAs/AlGaAs 量子井戸の結晶成長と電子スピン緩和時間
の評価,”
電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス(LQE)研究会, 金沢,
2009 年 5 月 22 日.
電子情報通信学会 信学技報, vol. 109, no. 49, LQE2009-9, pp. 43-48, 2009.
- (6) 藤野 寛之, 中西 慧, 揖場 聡, 藤本 稔泰, 黄 晋二, 河口 仁司,
“GaAs (110)基板上面発光半導体レーザの作製と光励起円偏光レーザ発振,”
2009 年春季第 56 回応用物理学会関係連合講演会, 1p-Q-5, 茨城,
2009 年 4 月 1 日.
- (7) 揖場 聡, 藤野 寛之, 藤本 稔泰, 黄 晋二, 河口 仁司,
“GaAs/AlGaAs (110)量子井戸中の電子スピン緩和時間に対する成長中断の
効果,”

2008 年秋季第 69 回応用物理学会学術講演会, 3a-P8-1, 愛知,
2008 年 9 月 3 日.

- (8) 揖場 聡, 阿田 祐樹, 黄 晋二, 河口 仁司,
“GaAs/AlGaAs (110)量子井戸におけるスピン緩和時間の評価,”
2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 30a-G-2, 千葉,
2008 年 3 月 30 日.

謝辞

本研究を進めるに当たって、多くの方にご指導いただきました。末文ではありますが、感謝の辞を述べさせていただきます。

本研究を進める上で研究環境を整えていただき、実験方法や結果、研究発表や論文作成になど全般にわたって、御指導、御鞭撻を賜りました河口仁司教授に深く感謝致します。

黄晋二准教授には、実験全般に関して様々なご助言や励ましの言葉をいただき、特に結晶成長に関する実験において細かい指導をしていただきました。また、研究発表や論文作成等に関して非常に多くの助言をいただき深く感謝いたします。

副指導教官の冬木隆教授には、研究を進めるにあたり様々なご助言をいただき感謝いたします。

スーパーバイザーの相原正樹教授には、研究を進めるにあたり理論面からご助言をいただき感謝いたします。

片山健夫助教には、ディスカッションなどを通して、実験方法や測定系に関して様々なご助言をいただき感謝いたします。

池田和浩助教には、ディスカッションなどを通して、実験方法や測定系、また測定結果の解釈に関して非常に多くのご助言をいただき感謝いたします。

佐藤祐喜元研究員には、実験装置の扱い方や実験の進め方に関してご助言をいただき感謝いたします。

服部聡史元研究員には主にプロセスにおいて実験方法や実験装置についてご助言をいただき感謝いたします。

研究室創設以来、同期、後輩の皆さんには多くの助言サポートをいただきました。特に、歴代の MBE・スピングループの皆さんには非常に多くのサポートをいただき深く感謝しています。

最後に博士後期課程を修了するにあたり、これまで支えてくれた両親に感謝いたします。