

スピン光デバイスに向けた電子スピン緩和・輸送の研究

横田 信英

平成 25 年度

奈良先端科学技術大学院大学
物質創成科学研究科

目次

第 1 章 序論	1
1.1. 研究背景	1
1.2. 研究目的	4
1.3. 本論文の構成	4
1.4. 参考文献	5
第 2 章 半導体における電子スピンの緩和・輸送とその評価方法.....	8
2.1. はじめに	8
2.2. 半導体におけるスピン軌道相互作用およびスピン緩和	8
2.2.1. スピン軌道相互作用と有効磁場.....	8
2.2.2. スピン緩和の基本的要因[4]	10
2.2.3. D'yakonov-Perel'機構[6]	11
2.2.4. Elliott-Yafet 機構[8,9]	12
2.2.5. Bir-Aronov-Pikus 機構[8,11].....	12
2.3. GaAs(110)量子井戸における電子スピン緩和	13
2.4. 電子スピンのドリフトおよび拡散.....	14
2.5. 電子スピンドイナミクス測定法	15
2.5.1. 光学遷移選択則[17].....	15
2.5.2. 電子スピン緩和時間と電子スピン寿命の定義	17
2.5.3. 偏光時間分解フォトルミネッセンス(PL)法	18
2.5.4. 時間分解反射率法	19
2.5.5. 時間分解カー回転法	22
2.5.6. その他の電子スピンドイナミクス測定法	25
2.6. まとめ	25
2.7. 参考文献	26
第 3 章 電子スピンドイナミクス測定法の比較	28
3.1. はじめに	28
3.2. サンプルの構造と光学特性	28

3.2.1. サンプル構造.....	28
3.2.2. フォトルミネッセンス励起(PLE)測定	28
3.3. 電子スピン緩和時間の測定条件	29
3.4. 電子スピン緩和時間の比較	31
3.5. 測定信号の励起波長依存性の比較.....	32
3.6. クーロン効果の励起波長依存性	35
3.7. まとめ.....	38
3.8. 参考文献	39
第4章 (110) MQW マイクロポストの電子スピン緩和時間測定.....	40
4.1. はじめに	40
4.2. 偏光時間分解 PL 法によるキャリア寿命・電子スピン緩和時間評価 42	
4.2.1. サンプル構造.....	43
4.2.2. 偏光時間分解 PL 測定	44
4.2.3. 測定結果・考察	45
4.3. 時間分解カー回転法によるキャリア寿命・電子スピン緩和時間評価 50	
4.3.1. サンプル構造.....	50
4.3.2. 時間分解カー回転測定	52
4.4. レート方程式によるスピン面発光半導体レーザの発振円偏光スイッチング解析	55
4.4.1. 解析モデル	56
4.4.2. 励起パワーとレーザ出力の関係.....	57
4.4.3. 円偏光レーザ出力と電子密度の時間変化	58
4.4.4. 発振円偏光スイッチング速度の電子スピン緩和時間依存性.....	62
4.4.5. 発振円偏光スイッチング速度の励起強度依存性.....	63
4.4.6. 発振円偏光スイッチングの高速化方法	64
4.4.7. ポストサイズと発振閾値の関係.....	65
4.5. まとめ.....	67
4.6. 参考文献	68
第5章 GaAs(110) MQW における電子スピン輸送の室温観測	70

5.1.	はじめに	70
5.2.	デバイスの作製とその特性評価	70
5.2.1.	デバイス構造	71
5.2.2.	デバイスの作製方法	72
5.2.3.	MQW の PL スペクトルおよびキャリア寿命の評価	74
5.2.4.	デバイスの電流-電圧特性の評価	74
5.3.	電子スピン輸送距離の評価	75
5.3.1.	空間・時間分解カー回転測定	75
5.3.2.	電子スピン輸送距離の電場依存性	78
5.3.3.	電子スピン輸送距離の励起キャリア密度依存性	81
5.4.	スピンドリフト拡散方程式解析	82
5.4.1.	解析モデル	82
5.4.2.	解析結果	85
5.5.	まとめ	87
5.6.	参考文献	88
第 6 章	結論	90
研究業績	92
謝辞	96

第1章 序論

1.1. 研究背景

近年、ブロードバンド光回線利用者数の増大に伴い、要求される通信速度やデバイスの消費電力が劇的に増大している。現在の光エレクトロニクス技術では、将来的にこのような問題に対処することが困難になると予想され、従来とは異なる革新的なデバイスの創成が強く求められている。

電子の電荷とスピンの両者を利用したスピndeバイスは、磁性体の不揮発性による格段な省電力化が可能な磁気抵抗メモリなど、従来に比べて性能を大幅に向上させることが可能なため精力的に研究されてきた。近年では、このような電子スピンの自由度を半導体デバイスに応用するための研究が盛んに行われている。その代表例が、メモリ機能を兼ね備えたスピントランジスタ[1]であり、これまでに数多くの研究成果が報告されている[2,3]。同様に、スピン偏極した電子を光デバイスへ応用したスピン光デバイスに関する研究も報告されている。このデバイスは電子のスピン偏極状態と光子の円偏光状態の間に成り立つ光学遷移選択則[4]を利用した新規光デバイスであり、円偏光発振[5]や発振閾値の低減[6]が可能なスピン面発光半導体レーザ(VCSEL)や、高速なスピン緩和を利用した光スイッチングデバイス[7]、光励起されたスピン偏極電子による強磁性電極の磁化反転を利用したスピン光メモリ[8]などが報告されている。

上記のような半導体スピndeバイスを実現するためには、スピン偏極電子の半導体への電氣的注入と輸送に加えて、半導体中でのスピン偏極度の維持や動的制御などの課題を克服する必要がある。半導体への電氣的スピン注入を妨げる要因は、半導体と強磁性電極の界面における電氣伝導率の不整合であることが知られている[9]。これを回避するために半導体と電極の間に絶縁層やショットキー障壁層を挿入し、スピン偏極電子をトンネル注入するなど、室温でも動作可能な構造が精力的に研究されており[10,11]、CoFe/MgO トンネル電極を用いることで、GaAs へのスピン注入率が 290 K において 32%に到達したという報告がある[12]。

電子スピン偏極の維持に関しても多数の研究報告がある。半導体の代表例である Si では、60 K において約 500 ns の長い電子スピン緩和時間 τ_s が得られており[13]、室温でも数 ns 以上の値が得られている[14]。一方、直接遷移型半導体の代表例である GaAs では、 $10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 程度の Si (n 型)ドーピングを行うことで、4 K において 100 ns 程度の長い τ_s が得られるが[15]、室温では

D'yakonov-Perel' (DP)スピン緩和機構[16]によって数十 ps 程度まで短縮される[17]。ここで、Si の τ_s が室温でも長い理由は DP 機構が抑制されているためであり、GaAs においても同様に DP 機構を抑制するための研究が行われた。Holleitner らは、n 型 InGaAs 量子井戸(QW)のチャネル幅を狭くすることで、DP 機構が抑制されることを実証した[18]。また、大野らは GaAs(110) QW における τ_s が室温で約 2 ns と、通常用いられる GaAs(100) QW に比べて数十倍長く、GaAs(110) QW において DP 機構が抑制されていることを実証した[19]。

電子スピンの輸送に関しては、GaAs QW における表面弾性波を用いた輸送が報告されており、80 K 以下の温度で 60 μm 程度の電子スピン輸送距離が得られている[20,21]。また、n 型 GaAs に電場を印加することで、4 K 以下の低温ではあるが約 50 μm の輸送距離を観測した報告もある[22,23]。この電子スピン輸送は、前に述べた極低温における n 型 GaAs の長い τ_s を利用しており、温度の上昇に伴って DP 機構によるスピン緩和が生じるため、室温では電子スピン輸送が観測されていない。一方、Si では約 0.6 μm の電子スピン輸送が室温で観測されている[24]。ただし、Si はスピン軌道相互作用が小さいため、ゲート電極を用いた電子スピンの電氣的な制御が困難である[14]。

スピンの電氣的な制御として、スピン軌道相互作用の大きな InGaAs における電子スピン歳差運動の制御[25]や、GaAs(110) QW における電場による τ_s の一桁に及ぶ短縮[26,27]が行われている。また、GaAs(111) QW に電場を印加することでスピン軌道相互作用を制御し、 τ_s を長くする試みも報告されている[28]。

このように、半導体中におけるスピンドイナミクスの基礎的な研究は活発に行われており、近年ではデバイスの応用を視野に入れた研究も増加している。前に述べたスピン VCSEL は、図 1-1 に示すように、活性層における電子スピン偏極を制御することにより、発振偏光を直線偏光のみでなく、右回り円偏光 σ_+ と左回り円偏光 σ_- に制御することが可能であり、これを利用した多値変調や量子暗号鍵配送が可能な次世代の光通信用デバイスとして期待されている。

スピン VCSEL の長所を最大限に引き出すためには、活性層に注入した電子のスピン偏極状態を長く維持することが重要である。したがって、室温で τ_s の長い GaAs(110) QW を活性層に用いることが有効であり、これまでに、光励起によって GaAs(110) VCSEL を 0.96 という高い円偏光度で発振させることに室温で成功した報告がある[29]。室温で高い円偏光度が得られる(110) VCSEL は、 σ_+ と σ_- の発振円偏光間のスイッチングを利用した光通信への応用に適しており、これまでに、二連続円偏光パルス励起による(110) VCSEL の発振円偏光スイッチングが 1 GHz で実証されている[30]。また、スイッチング速度を高速化

させるためには、GaAs(110) QW の長い τ_s を維持したままキャリア寿命のみを短縮することが有効であることも報告されている[30]。キャリア寿命の短縮方法として、ドライエッチング加工によるキャリアの非発光表面再結合を利用することが一般に知られており[31,32]、更にこの方法によって微小なポスト構造のVCSELを2次元的に集積させることで、大規模な並列光信号処理の実現が期待できる。このように、ポスト構造によってスピン VCSEL の発振円偏光スイッチングを高速化することは魅力的であるが、ドライエッチングによって導入された速い非発光表面再結合が、GaAs(110) QW における τ_s に及ぼす影響はよく知られていない。したがって、まず微小ポスト構造をもつ GaAs(110) QW の τ_s を評価する必要がある。

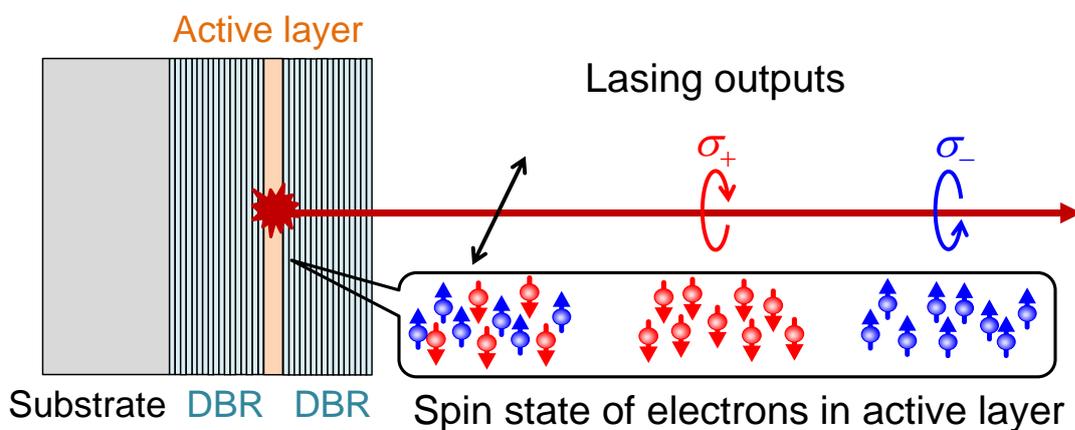


図 1-1 スピン VCSEL の概念図

また、スピン VCSEL の電流注入発振に向けた研究も行われている。Holub らは Fe/AlGaAs ショットキー電極からスピン偏極電子を注入することで、50 K において VCSEL を円偏光発振させることに成功している[33]。ただし、その時の円偏光度は 0.23 と非常に小さいものであった。円偏光度が小さくなった原因には、レーザ発振までの間や、電極から活性層までの距離(数 μm 程度)を電場によって輸送される間に、電子がスピン緩和したことが挙げられる。一般的な VCSEL では、発振閾値電流を低下させるために電流狭窄構造[34]が用いられており、将来的にはスピン VCSEL にも導入が検討されると考えられるが、このような構造はスピン偏極電子の輸送距離を増大させるため、発振円偏光度を低下させる。このように、スピン偏極電子をスピン緩和させることなく、 μm オーダの距離にわたって輸送することは重要な課題であると言える。また、電子デバイスと比較して nm オーダへの微細化が困難な光デバイスでは、利用する電子スピンの輸送距離が必然的に μm オーダとなることが多い。したがって、

μm オーダのスピンの輸送はスピン VCSEL のような光源に限らず、スピン光デバイス全般において重要である。

スピン光デバイスに向けて、電子スピンの基本的な特性を理解することも重要である。その一つである τ_s については、これまでに数多くの測定法が報告されている[35-39]。特にパルス光を用いた時間分解測定は、電子スピンドイナミクスを直接測定することができる有用な測定法であり、例えばサンプルの発光を利用する偏光時間分解フォトルミネッセンス(PL)法や、透過率変化、反射率変化、ファラデー効果、カー効果などを利用するポンプ・プローブ法が挙げられる。これらの測定法は用いる光学系や物理現象が異なり、場合に応じて使い分けられるが、各測定法において同等の τ_s が得られるかどうかは明らかでない。様々な測定法で評価される τ_s を絶対的な値として位置付けるために、異なる測定法で得た τ_s の値を比較することは有益であると言える。

1.2. 研究目的

本研究では、DP スピン緩和機構の抑制により、室温で長い τ_s が得られる GaAs(110) QW に着目し、電子スピンの緩和と輸送を調べることで、スピン光デバイスとその高性能化に向けた知見を得ることを目指す。

まず、電子スピンの緩和と輸送を研究する手段として、偏光時間分解 PL 法、時間分解反射率法、時間分解カー回転法による測定系を構築し、各測定法による測定結果を比較することで本研究に適した測定法を選定する。そして、スピン VCSEL の発振円偏光スイッチングを高速化するための方法として、ドライエッチングによるマイクロポスト構造の導入を検討する。ポスト加工された GaAs(110)多重量子井戸(MQW)のキャリア寿命と τ_s の測定結果をもとに、マイクロポスト構造によってスピン VCSEL の発振円偏光スイッチングをどの程度まで高速化可能であるか、レート方程式による解析結果から見積る。また、室温で動作するスピン光デバイスに向けて、GaAs(110) MQW を用いたスピン輸送デバイスを作製し、その室温における輸送特性を明らかにする。

1.3. 本論文の構成

本論文は 6 つの章で構成されている。第 1 章では研究背景と研究目的、そして本論文の構成について述べた。第 2 章では半導体におけるスピン軌道相互作用とスピン緩和、電子スピンのドリフトおよび拡散、そして電子スピンドイナ

ミクス測定法について説明する。第3章では GaAs(110) MQW を偏光時間分解 PL 法、時間分解反射率法、時間分解カー回転法を用いてそれぞれ測定し、その結果を比較・考察する。第4章ではマイクロポスト構造をもつ(110) MQW におけるキャリア寿命と τ_s を評価し、ポスト加工によるスピン VCSEL の発振円偏光スイッチングの高速化について、レート方程式解析を交えて述べる。第5章では GaAs(110) MQW に電場を印加することで、数十 μm オーダの電子スピン輸送を室温で初めて観測した結果について述べる。最後に、第6章において本論文の結論を述べる。

1.4. 参考文献

- [1] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 665 (1990).
- [2] I. Žutić, J. Fabian, and S. D. Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323 (2004).
- [3] D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth, “Semiconductor Spintronics and Quantum Computing,” Springer, (2002).
- [4] M. Holub and P. Bhattacharya, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, R179, (2007).
- [5] H. Ando, T. Sogawa, and H. Gotoh, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 566 (1998).
- [6] J. Rudolph, D. Hägele, H. M. Gibbs, G. Khitrova, and M. Oestreich, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4516 (2003).
- [7] T. Kawazoe, T. Mishina, and Y. Masumoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, L1756 (1993).
- [8] V. Zayets and K. Ando, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 121104 (2009).
- [9] A. Fert and H. Jaffres, *Phys. Rev. B.* **64**, 184420 (2001).
- [10] P. Van Dorpe, V. F. Motsnyi, M. Nijboer, E. Goovaerts, V. I. Safarov, J. Das, W. Van Roy, G. Borghs, and J. De Boeck, *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, L502 (2003).
- [11] H. J. Zhu, M. Ramsteiner, H. Kostial, M. Wassermeier, H.-P. Schönherr, and K. H. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 016601 (2001).
- [12] 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).
- [13] B. Huang, D. J. Monsma, and I. Appelbaum, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 177209 (2007).
- [14] R. Jansen, *Nat. Mater.* **11**, 400 (2012).
- [15] R. I. Dzhioev, K. V. Kavokin, V. L. Korenev, M. V. Lazarev, B. Y. Meltser, M. N. Stepanova, B. P. Zakharchenya, D. Gammon, and D. S. Katzer, *Phys. Rev. B* **66**, 245204 (2002).

- [16] M. I. D'yakonov and V. Yu. Kachorovskii, *Sov. Phys. Semicond.* **20**, 110 (1986).
- [17] S. Oertel, J. Hübner, and M. Oestreich, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 132112 (2008).
- [18] A.W. Holleitner, V. Sih, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 036805 (2006).
- [19] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura, and H. Ohno, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4196 (1999).
- [20] T. Sogawa, P. V. Santos, S. K. Zhang, S. Eshlaghi, A. D. Wieck, and K. H. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 276601 (2001).
- [21] O. D. D. Couto, Jr., R. Hey, and P. V. Santos, *Phys. Rev. B* **78**, 153305 (2008).
- [22] J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom, *Nature* **397**, 139 (1999).
- [23] M. Furis, D. L. Smith, S. A. Crooker, and J. L. Reno, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 102102 (2006).
- [24] T. Suzuki, T. Sasaki, T. Oikawa, M. Shiraishi, Y. Suzuki, and K. Noguchi, *Appl. Phys. Express* **4**, 023003 (2011).
- [25] S. Kuhlen, K. Schmalbuch, M. Hagedorn, P. Schlamme, M. Patt, M. Lepsa, G. Güntherodt, and B. Beschoten, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 146603 (2012).
- [26] 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).
- [27] S. Iba, S. Koh, and H. Kawaguchi, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 202102 (2010).
- [28] A. Hernandez-Minguez, K. Biermann, R. Hey, and P. V. Santos, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 266602 (2012).
- [29] S. Iba, S. Koh, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 081113 (2011).
- [30] K. Ikeda, T. Fujimoto, H. Fujino, T. Katayama, S. Koh, and H. Kawaguchi, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **21**, 1350 (2009).
- [31] K. Tai, T. R. Hayes, S. L. McCall, and W. T. Tsang, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 302 (1988).
- [32] Y. Nambu, H. Yokoyama, T. Yoshikawa, Y. Sugimoto, and K. Asakawa, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 481 (1994).
- [33] M. Holub, J. Shin, D. Saha, and P. Bhattacharya, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 146603 (2007).
- [34] T. Katayama, A. Yanai, K. Yukawa, S. Hattori, K. Ikeda, S. Koh, and H. Kawaguchi, *IEEE Photon. Tech. Lett.* **23**, 1811 (2011).
- [35] R. J. Seymour and R. R. Alfano, *Appl. Phys. Lett.* **37**, 231 (1980).

- [36] J.M. Kikkawa, I.P. Smorchkova, and D.D. Awschalom, *Science* **277**, 1284 (1997).
- [37] S. Izumi, S. Gozu, T. Mozume, Y. Saeki, T. Nukui and A. Tackeuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 04DM03 (2010).
- [38] T. M. Holden, G. T. Kennedy, A. R. Cameron, P. Riblet, and A. Miller, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 936 (1997).
- [39] G. M. Müller, M. Römer, D. Schuh, W. Wegscheider, J. Hübner, and M. Oestreich, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 206601 (2008).

第2章 半導体における電子スピンの緩和・輸送とその評価方法

2.1. はじめに

半導体中のスピン偏極した電子と正孔は様々な機構によってスピン緩和する。GaAs の場合、電子のスピン緩和時間は室温で数十 ps 程度であるが[1]、正孔のスピン緩和時間は室温で 100 fs 程度と非常に短いことが知られている[2]。本研究では、正孔に比べてスピン緩和時間が非常に長い電子のスピンに注目する。本章では、半導体におけるスピン軌道相互作用と代表的なスピン緩和機構、電子スピンのドリフトおよび拡散、そして電子スピンドYNAMIKSの測定法について述べる。

2.2. 半導体におけるスピン軌道相互作用およびスピン緩和

ここでは、半導体におけるスピン緩和の基本的要因となるスピン軌道相互作用と、代表的なスピン緩和機構、そして本研究で用いる GaAs(110) QW において支配的なスピン緩和機構について述べる。

2.2.1. スピン軌道相互作用と有効磁場

微小な磁石として振舞う電子スピンの磁気モーメントは、電子の軌道運動によって生じる磁場と相互作用する。これはスピン軌道相互作用と呼ばれ、次式のように表される[3]。

$$H_{so} = -\frac{\hbar}{4m_0^2c^2} \sigma \cdot p \times (\nabla V_0) = -\mu_B \sigma \cdot \left[\frac{p \times E}{2m_0c^2} \right] \quad (2-1)$$

ここで、 \hbar は換算プランク定数、 m_0 は電子の静止質量、 c は光速、 σ はパウリのスピン行列、 p は運動量演算子、 V_0 はポテンシャル、 μ_B はボーア磁子、 E は電場を表す。式(2-1)は磁場 B におけるアップスピン電子とダウンスピン電子のエネルギー差が $\mu_B \sigma \cdot B$ で与えられることに対応しており、電場の中を運動する電子が有効磁場を感じることを意味する。また、式(2-1)より有効磁場の方向は電場と電子の運動方向の両方に直交することがわかる。

半導体中において、有効磁場の要因である電場 E は以下に述べる反転非対称性によって生じる。その代表例であるバルク反転非対称性(BIA)は、バルク結晶構造の反転非対称性に起因するものである。例えば、閃亜鉛鉱構造をもつ GaAs

では、Ga と As の中間位置に関して反転対称性が欠如しているため、BIA による有効磁場が存在するが、ダイヤモンド構造をもつ Si や Ge では存在しない。閃亜鉛鉱構造における BIA に起因した有効磁場 B_{BIA} は次式で与えられる[4]。

$$B_{BIA} = \gamma \{ k_x (k_y^2 - k_z^2), k_y (k_z^2 - k_x^2), k_z (k_x^2 - k_y^2) \} \quad (2-2)$$

ここで、 γ は Dresselhaus 係数であり、材料に依存するパラメータである。次に、 z 方向へ QW 構造を導入し、電子の運動を x - y 平面内に制限した場合について考える。量子化により、 $\langle P_z^2 \rangle \gg P_x^2, P_y^2$ が成り立つことを仮定すれば、結晶成長方向 [001]、[110]、[111] に対する有効磁場はそれぞれ以下のように表される[5]。

$$B_{BIA[001]} = \gamma \langle k_z^2 \rangle \{ -k_x, k_y, 0 \} \quad (2-3)$$

$$B_{BIA[110]} = \frac{\gamma}{2} \langle k_z^2 \rangle \{ 0, 0, k_y \} \quad (2-4)$$

$$B_{BIA[111]} = \frac{2\gamma}{\sqrt{3}} \langle k_z^2 \rangle \{ k_y, -k_x, 0 \} \quad (2-5)$$

式(2-3)~(2-5)によって各面方位に対する B_{BIA} のベクトル場を計算した結果を図 2-1(a)~(b)にそれぞれ示す。 B_{BIA} は電子の波数ベクトル k_x, k_y に依存してその大きさや方向が変化する様子がわかる。ここで、[001]方向や[111]方向に QW 構造を形成した場合、 B_{BIA} は常に QW 面内方向に存在することがわかる。この場合、QW に対して面直に偏極した電子スピンはトルクが働くため、電子スピンは B_{BIA} の方向に沿って歳差運動する。これに対して、[110]方向に QW 構造を形成した場合、 B_{BIA} は QW に面直な成分しか持たないため、面直方向の電子スピンを歳差運動させない。

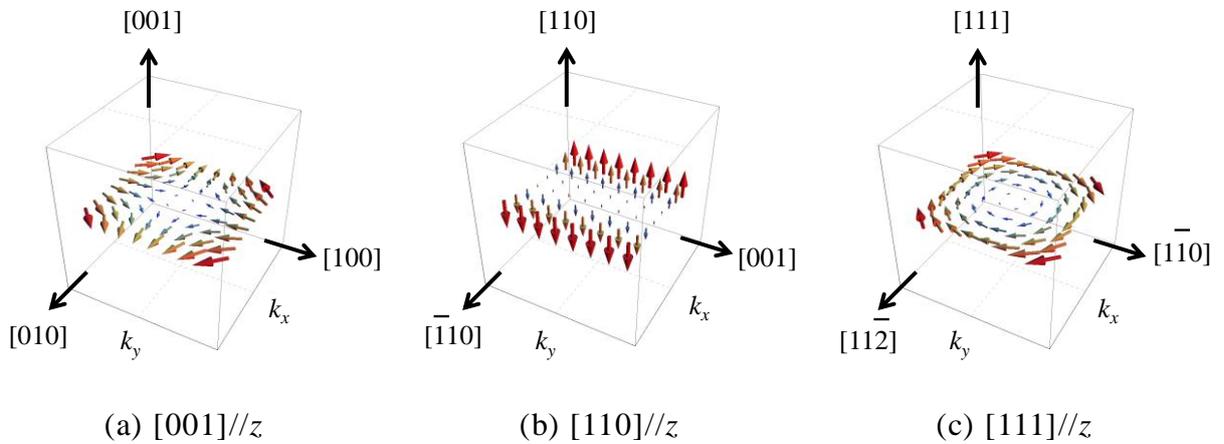


図 2-1 z 方向に量子化された閃亜鉛鉱構造における B_{BIA} のベクトル場

もう一つの代表的な反転非対称性は、構造反転非対称性(SIA)である。これはヘテロ構造によって非対称なポテンシャル分布を形成する場合や、結晶に外部電場を印加する場合に生じ、BIAとは異なり制御性がある。SIAによって生じる有効磁場 B_{SIA} は次のように表される[4]。

$$B_{SIA} = \beta E \times p \quad (2-6)$$

ここで、 β は Rashba 係数である。次に、 z 方向に形成された QW 中の電子が感じる B_{SIA} について考える。電場を x 、 y 、 z の各方向に印加した場合、 B_{SIA} はそれぞれ以下のように表される。

$$B_{SIA(E//x)} = \beta E \{0, 0, -k_y\} \quad (2-7)$$

$$B_{SIA(E//y)} = \beta E \{0, 0, k_x\} \quad (2-8)$$

$$B_{SIA(E//z)} = \beta E \{k_y, -k_x, 0\} \quad (2-9)$$

式(2-7)~(2-9)による B_{SIA} のベクトル場を図 2-2(a)~(b)にそれぞれ示す。QW に対して面直に電場を印加すると B_{SIA} が面内に生じる一方、電場が QW 面内であれば B_{SIA} は面直に生じることがわかる。したがって、(110) QW の面内方向へ電場を印加する場合、 B_{BIA} と B_{SIA} はどちらも面直方向であり、面直方向の電子スピンは歳差運動しない。また、(111) QW に面直電場を印加することで B_{BIA} と B_{SIA} を相殺し、電子スピンの歳差運動を抑制することも可能である[5]。

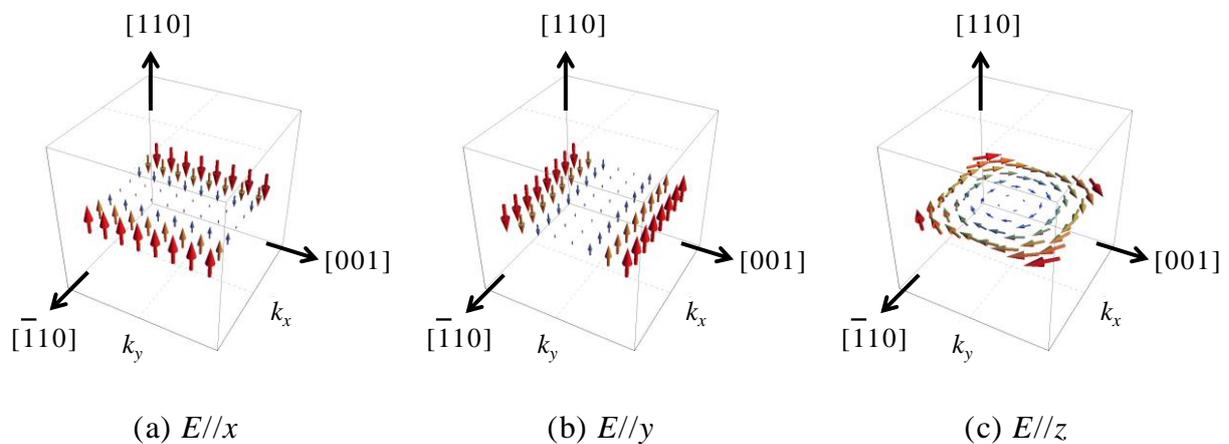


図 2-2 z 方向に量子化された QW における B_{SIA} のベクトル場

2.2.2. スピン緩和の基本的要因[4]

一般的に、電子のスピン緩和を引き起こす要因は、時間的にランダム変動する磁場によって説明できる。この変動磁場に相当するものは、先に述べたスピン軌道相互作用を通じて電子が感じる有効磁場であり、その大きさ、方向、相

関時間(磁場が概ね一定であると見なせる時間)が重要な要素となる。

有効磁場に沿って周波数 ω で歳差運動するスピンについて考える。相関時間が経過すると、有効磁場の大きさと方向は変化しているため、スピンは新たな有効磁場の方向に沿って歳差運動を始める。これを何度か繰り返す間に、初期のスピンの方向は失われる。このようなスピン緩和の確率は、相関時間 τ の間にスピンが歳差運動した角度 $\omega\tau$ によって定量的に表すことができる。

半導体中の電子スピンなど、通常成り立つ $\omega\tau \ll 1$ の場合について考える。時間 t の間にスピンの歳差運動軸の変化する回数は t/τ であり、最終的な歳差運動角の二乗値は $(t/\tau)(\omega\tau)^2$ と表される。スピンが歳差運動によって一周する時間をスピン緩和時間 τ_s に対応させると、

$$\tau_s \sim \frac{1}{\omega^2\tau} \quad (2-10)$$

と表すことができる。このような変動磁場に起因したスピン緩和は、後で述べる D'yakonov-Perel'機構の概念である。

2.2.3. D'yakonov-Perel'機構[6]

D'yakonov-Perel' (DP)機構は、GaAs を代表とした III-V 族化合物半導体において室温で支配的なスピン緩和機構である。DP 機構によるスピン緩和の概念を図 2-3 に示す。前節で述べたとおり、GaAs は反転対称性が欠如しているため、スピン軌道相互作用によって有効磁場 B_{BIA} が生じる。電子スピンは B_{BIA} に沿って歳差運動するが、 B_{BIA} は散乱によって電子の波数 k が変化するたびに方向と大きさが変化するため、アンサンブルとしての電子スピン偏極は一定の時間が経過すると失われる。また、これには式(2-10)のスピン緩和モデルが相当する。

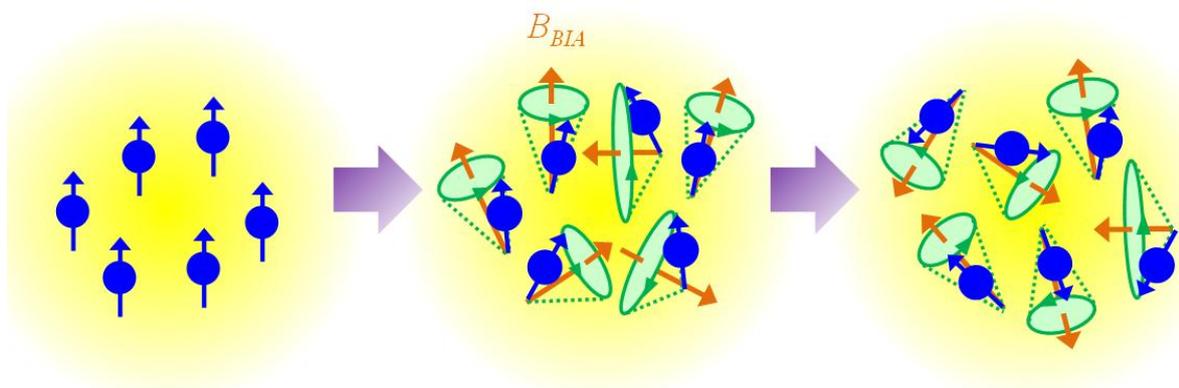


図 2-3 DP 機構によるスピン緩和

QW に閉じ込められた電子の、DP 機構によるスピン緩和時間 τ_s は次式で表すことができる[7]。

$$\tau_s \propto \frac{\hbar^5}{16k_B T m^{*3} (\gamma E_{1e})^2} \frac{1}{\tau_p} \quad (2-11)$$

ここで、 k_B はボルツマン定数、 T は絶対温度、 m^* は電子の有効質量、 γ はスピン分裂係数、 E_{1e} は閉じ込めエネルギー、 τ_p は運動量緩和時間である。 τ_p は式(2-10)における相関時間 τ に相当し、 τ_p が短くなるにつれてスピン緩和は抑制される。結晶品質の良いアンドープの半導体では τ_p が長くなるため、DP 機構によるスピン緩和は顕著になる。また、 E_{1e} が大きくなる井戸幅の狭い QW でも同様に DP 機構の寄与が大きくなる。

2.2.4. Elliott-Yafet 機構[8,9]

スピン軌道相互作用が生じる半導体において、伝導帯の状態が価電子帯の状態と混合し、アップスピン電子とダウンスピン電子は互いに独立なスピン状態では無くなる。このような状況下では、スピンに無依存なフォノン散乱やイオン化不純物散乱でもスピンの反転する可能性が生じ、散乱を繰り返すうちにスピン緩和する。このようにして生じるスピン緩和機構を Elliott-Yafet (EY)機構と呼び、QW において EY 機構による τ_s は次式で表される[10]。

$$\tau_s \sim \frac{9}{8} \left(\frac{E_g + \Delta_{so}}{\Delta_{so}} \right)^2 \left(1 - \frac{m^*}{m_0} \right)^{-2} \frac{E_g^2}{E_{1e} k_B T} \tau_p \quad (2-12)$$

ここで、 E_g はエネルギーギャップ、 Δ_{so} はスピン軌道分裂エネルギー、 m^* は電子の有効質量である。この機構は、キャリアが運動している間にスピン緩和が生じる DP 機構とは対照的に、キャリアの散乱時にスピン緩和が生じるため、 τ_s は τ_p に比例する。また、 E_g が小さいほど伝導帯と価電子帯の混成は強くなるため、 E_g が小さい材料系では EY 機構によるスピン緩和が顕著に生じる。

2.2.5. Bir-Aronov-Pikus 機構[8,11]

Bir-Aronov-Pikus (BAP)機構は電子と正孔の交換相互作用によるスピン緩和機構であり、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。電子に比べて正孔のスピン緩和時間は非常に短いため、電子はスピン無偏極の正孔と交換相互作用することになり、これが電子のスピンを緩和させる。BAP

機構による τ_s は次のように表される[11]。

$$\tau_s = \frac{1}{N_h} \left(\frac{8}{(5\pi)^{1/2} a_{x,1s}} \frac{E_{x,1s}}{\Delta_{x,1s} a_{x,1s}} \right)^2 \left(\frac{m^*}{2\varepsilon} \right)^{1/2} \quad (2-13)$$

ここで、 N_h は正孔密度、 $E_{x,1s}$ は励起子束縛エネルギー、 $a_{x,1s}$ は励起子のボーア半径、 ε は電子のエネルギーである。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なるため、励起子が形成されやすい低温において支配的である。

2.3. GaAs(110)量子井戸における電子スピン緩和

GaAs(110) QW では DP 機構によるスピン緩和が抑制され、室温でも数 ns オーダの長い τ_s が得られることが知られている[12]。前節で述べた QW における B_{BIA} を図 2-4 に示す。(100) QW では B_{BIA} が QW に対して面内方向に存在するため、電子スピンは B_{BIA} に沿って歳差運動し、徐々にスピン緩和する一方、(110) QW では、 B_{BIA} が QW に対して面直方向に存在するため、面直方向に偏極した電子スピンを歳差運動させない。このように DP 機構が抑制された GaAs(110) QW では、BAP 機構が低温から室温までの全温度領域で支配的であると考えられている。電子-正孔間の交換相互作用が強くなる励起子状態は低温において形成されやすいため、GaAs(110) QW における τ_s は低温よりも室温で長くなる[12]。また、GaAs(110) QW を n 型にドーピングし、電子-正孔間の交換相互作用を抑制することで、約 20 ns の τ_s が室温で得られたという報告がある[13]。DP 機構と BAP 機構がどちらも抑制された状況下では、不純物イオンの局所電場がスピン軌道相互作用を通じて電子スピン緩和を引き起こす効果(ランダムラッシュバ効果)が τ_s を制限するという報告もある[14,15]。

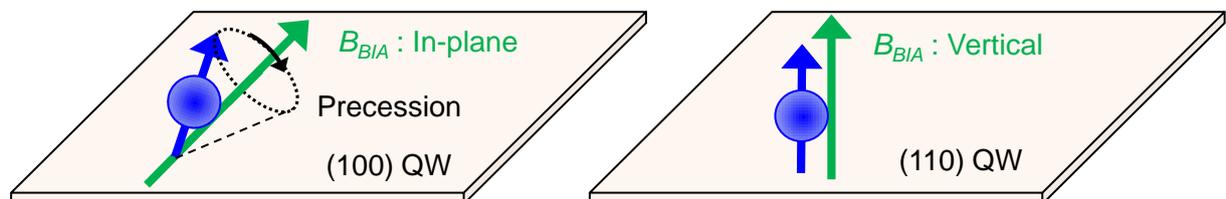


図 2-4 (100) QW と(110) QW における B_{BIA}

2.4. 電子スピンのドリフトおよび拡散

まず、スピン偏極していない電子と正孔のドリフトおよび拡散について考える。半導体中へ不均一に光励起された過剰電子と過剰正孔は、電場を印加すると互いに逆方向へドリフトする。しかし、図 2-5 に示すように、正電荷をもつ正孔と負電荷をもつ電子が空間分離されることで内部電場 E_{int} が生じ、これは外部電場 E を遮蔽するように働くため、電子と正孔は空間的に不均一な電場によって輸送されることになる。

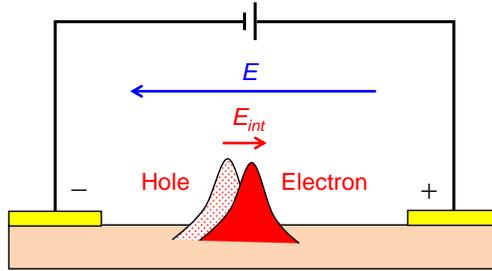


図 2-5 過剰電子と過剰正孔のドリフトと内部電場

熱平衡状態において均一な電子密度 n_0 と正孔密度 p_0 をもつ半導体中に、過剰電子密度 Δn と過剰正孔密度 Δp を不均一に光励起した場合について考える。ここで、全電子密度 $n = \Delta n + n_0$ 、全正孔密度 $p = \Delta p + p_0$ である。 Δn と Δp のドリフト拡散方程式は次のように表される。

$$\frac{\partial(\Delta n)}{\partial t} = D_n \frac{\partial^2(\Delta n)}{\partial x^2} + \mu_n \left(E \frac{\partial(\Delta n)}{\partial x} + n \frac{\partial E}{\partial x} \right) - \frac{\Delta n}{\tau_c} \quad (2-14)$$

$$\frac{\partial(\Delta p)}{\partial t} = D_p \frac{\partial^2(\Delta p)}{\partial x^2} - \mu_p \left(E \frac{\partial(\Delta p)}{\partial x} + p \frac{\partial E}{\partial x} \right) - \frac{\Delta p}{\tau_c} \quad (2-15)$$

ここで、 D_n は電子拡散定数、 D_p は正孔拡散定数、 μ_n は電子移動度、 μ_p は正孔移動度、 τ_c はキャリア寿命を表す。式(2-14)/ $\mu_n n$ + 式(2-15)/ $\mu_p p$ を計算し、 $\Delta n = \Delta p$ の条件を適用すると、

$$\frac{\partial(\Delta n)}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2(\Delta n)}{\partial x^2} + \mu_a E \frac{\partial(\Delta n)}{\partial x} - \frac{\Delta n}{\tau_c} \quad (2-16)$$

の関係が得られる。ここで、

$$D_a = \frac{\mu_n n D_p + \mu_p p D_n}{\mu_n n + \mu_p p} \quad (2-17)$$

$$\mu_a = \frac{\mu_n \mu_p (p - n)}{\mu_n n + \mu_p p} \quad (2-18)$$

である。すなわち、光励起された過剰電子分布と過剰正孔分布の時間変化は、単一のドリフト拡散方程式によって記述され、電子と正孔が同じ方向へ同じ速度で動く。 D_a はアンバイポーラ拡散定数、 μ_a はアンバイポーラ移動度と呼ばれ、このような状況下では、一般的に移動度の高い電子は移動度の低い正孔の動きに支配される。式(2-18)に示す通り、 μ_a は n と p の大きさによって符号が反転し、 p 型半導体では $\mu_a \sim \mu_n$ 、 n 型半導体では $\mu_a \sim -\mu_p$ の関係が近似的に成り立つ。すなわち、キャリアの輸送は少数キャリアの移動度によって支配される。電子がスピン偏極している場合、アップスピン電子とダウンスピン電子の間に働く、クーロン力に起因したスピנקーロンドラッグ効果[16]が拡散定数と移動度に影響を及ぼすことが知られているが、キャリア濃度が約 10^{16} cm^{-3} 以下の半導体において、室温付近ではその寄与は小さく無視できる。このような場合、上記のようなアンバイポーラ輸送モデルが電子スピン密度 s についても同様に成り立ち、それは次式で表される。

$$\frac{\partial s}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 s}{\partial x^2} + \mu_a E \frac{\partial s}{\partial x} - \frac{s}{T_s} \quad (2-19)$$

ここで、 T_s は電子スピン寿命である。このように、電子スピン密度は光励起された過剰電子や過剰正孔と寿命が異なるものの、共に同じ方向へ同じ速度で移動する。ただし、これまでの議論で適応した $\Delta n = \Delta p$ の条件は、光励起直後のみ成り立つ条件であるため、厳密には式(2-14)と(2-15)をポアソン方程式と連立させて解く必要がある。このような解析は第5章にて行う。

2.5. 電子スピンドイナミクス測定法

ここでは、半導体中にスピン偏極電子を光励起する上で重要な役割を果たす光学遷移選択則と、電子スピンドイナミクスの測定法である偏光時間分解フォトルミネッセンス(PL)法、時間分解反射率法、時間分解カー回転法について、本研究で構築した測定系の構成を例に挙げて説明する。

2.5.1. 光学遷移選択則[17]

GaAs のような直接遷移型半導体を円偏光で励起すると、光学遷移選択則(図2-6)に従ってスピンの偏極した電子正孔対を生成することができる。この選択則は角運動量の保存則に基づいており、直接遷移型半導体の Γ 点付近において、ファラデー配置のときに成り立つ。スピン角運動量 1 をもつ円偏光の光子を吸

収する場合、伝導帯(CB)と価電子帯(VB)の間で角運動量の差が1である遷移のみが許容される。図 2-6 において、右回り円偏光(σ_+)の光子を吸収した場合、実線で示す遷移のみが許容され、左回り円偏光(σ_-)の光子を吸収した場合は点線で示す遷移のみが許容される。また、この選択則は発光においても同様に成り立ち、スピン偏極電子が再結合するときには円偏光の光子が生成される。前に述べたように、正孔のスピン緩和時間は電子のスピン緩和時間に比べて短いため、基本的に放出される光子の偏光は電子のスピン偏極を反映する。

重い正孔帯(HH)に関係した遷移は軽い正孔帯(LH)に関係した遷移に比べて3倍の遷移確率をもつため、HH と LH を同時に励起したとしても、最大で50%まで電子をスピン偏極させることが可能である。発光についても同様であり、100%スピン偏極した電子から放出される光子を全て検出した場合、最大で50%の円偏光度を得ることができる。ただし、GaAs(110) QW では、GaAs(100) QW とは違って価電子帯における波動関数の固有状態が全角運動量の固有状態でないため、HH に関係した遷移と LH に関係した遷移の比が2.988 : 0.996 となり、GaAs(100) QW の場合(3 : 1)と若干異なる[18]。

量子閉じ込めや歪などを導入すると、HH と LH のバンドの縮退は解けるため、伝導帯と HH の第一準位間(E_1 -HH₁)と伝導帯と LH の第一準位間(E_1 -LH₁)のどちらか一方のみを共鳴励起することも可能である。この場合、初期スピン偏極度は最大で100%となる。実際、GaAs/AlGaAs QW の励起波長を E_1 -HH₁ 共鳴波長に近づけることで、90%以上の初期スピン偏極度が得られることが知られている[19-21]。

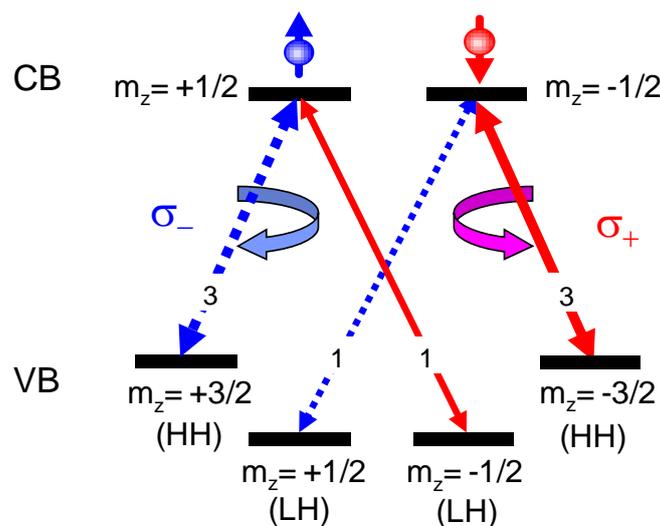


図 2-6 QW における光学遷移選択則

2.5.2. 電子スピン緩和時間と電子スピン寿命の定義

まず、スピン偏極電子密度の時間変化から電子スピン緩和時間 τ_s と電子スピン寿命 T_s を定義する。アップスピン電子密度 n_\uparrow とダウンスピン電子密度 n_\downarrow の時間変化は、それぞれ次のように表すことができる。

$$\frac{dn_\uparrow}{dt} = -\frac{n_\uparrow}{\tau_c} - \frac{n_\uparrow}{\tau_s} + \frac{n_\downarrow}{\tau_s} \quad (2-20)$$

$$\frac{dn_\downarrow}{dt} = -\frac{n_\downarrow}{\tau_c} - \frac{n_\downarrow}{\tau_s} + \frac{n_\uparrow}{\tau_s} \quad (2-21)$$

ここで、 τ_c はキャリア寿命である。式(2-20)、(2-21)は $1/\tau_c$ のレートで n_\uparrow と n_\downarrow がそれぞれ減衰する効果に加えて、 $1/\tau_s$ のレートで n_\uparrow と n_\downarrow が互いに反転し合う効果を含んでいる。式(2-20)と(2-21)の和と差より、全電子密度 $n = n_\uparrow + n_\downarrow$ と電子スピン密度 $s = n_\uparrow - n_\downarrow$ の時間変化はそれぞれ次のように表すことができる。

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{n}{\tau_c} \quad (2-22)$$

$$\frac{ds}{dt} = -\frac{s}{\tau_c} - \frac{2s}{\tau_s} \quad (2-23)$$

そして、式(2-22)と(2-23)の解は以下に示すような指数関数の形で表される。

$$n(t) = n_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) \quad (2-24)$$

$$s(t) = s_0 \exp\left\{-\left(\frac{1}{\tau_c} + \frac{2}{\tau_s}\right)t\right\} \quad (2-25)$$

$n(t)$ と $s(t)$ を測定し、それぞれに式(2-24)と(2-25)をフィッティングすることにより、 τ_c と τ_s を得ることができる。また、 s/n と s_0/n_0 をそれぞれスピン偏極度 P と初期スピン偏極度 P_0 と定義すれば次の関係が得られる。

$$P(t) = P_0 \exp\left(-\frac{2t}{\tau_s}\right) \quad (2-26)$$

したがって、 $P(t)$ の測定結果に式(2-26)をフィッティングすることにより、 τ_s を直接得ることもできる。

式(2-26)はスピン緩和レートを $2/\tau_s$ で表すことになるが、ここで係数 2 が表れる理由は、 n_\uparrow と n_\downarrow の各電子スピンが互いに全電子密度の半値へ収束するように時間変化するためである。この係数を考慮せず、 $2/\tau_s \rightarrow 1/\tau_s$ の置き換えをしたうえで τ_s を定義する場合もあるが[22]、本研究では式(2-26)で表される τ_s の定義

を採用する。同様に、 s の寿命を $T_s = 1/\tau_c + 2/\tau_s$ として定義し、本論文で用いる。

2.5.3. 偏光時間分解フォトルミネッセンス(PL)法

偏光時間分解 PL 法は、励起したスピン偏極電子が光学遷移選択則に従って円偏光で発光することを利用した電子スピンドイナミクス測定法である[23]。 σ_+ と σ_- の各円偏光 PL 強度(I_{σ_+} 、 I_{σ_-})は、光学遷移選択則で関係づけられる電子スピンの密度に比例し、 $I_{\sigma_+} \propto n_{\downarrow}$ 、 $I_{\sigma_-} \propto n_{\uparrow}$ である。 I_{σ_+} と I_{σ_-} をそれぞれ測定することにより、次式で定義される円偏光度 P_c を求めることができる。

$$P_c(t) = \frac{I_{\sigma_+}(t) - I_{\sigma_-}(t)}{I_{\sigma_+}(t) + I_{\sigma_-}(t)} = P(t) \quad (2-27)$$

ここで、 P_c は式(2-26)で示したスピン偏極度 P に等しい。偏光時間分解 PL 法は、サンプルから放出される PL の P_c を時間分解測定することで τ_s を得ることができる。

本研究で用いた偏光時間分解 PL 測定系を図 2-7 に示す。モード同期チタンサファイアレーザ(Spectra Physics、Tsunami、繰返し周波数 80 MHz、パルス幅~80 fs)から出力されるパルス光を $\lambda/4$ 板によって円偏光に変換し、これによってサンプル中にスピン偏極電子を励起する。励起された電子のスピン偏極を反映した σ_+ と σ_- の各円偏光 PL は、 $\lambda/4$ 板を用いて互いに直交する直線偏光に変換された後、偏光子によって片側の偏光成分が切り出され、ストリークカメラ(浜松ホトニクス、C4334)によって時間分解される。通常はサンプル表面で散乱されたポンプ光を除去するために長波長透過フィルタ(LWPF)が必要である。

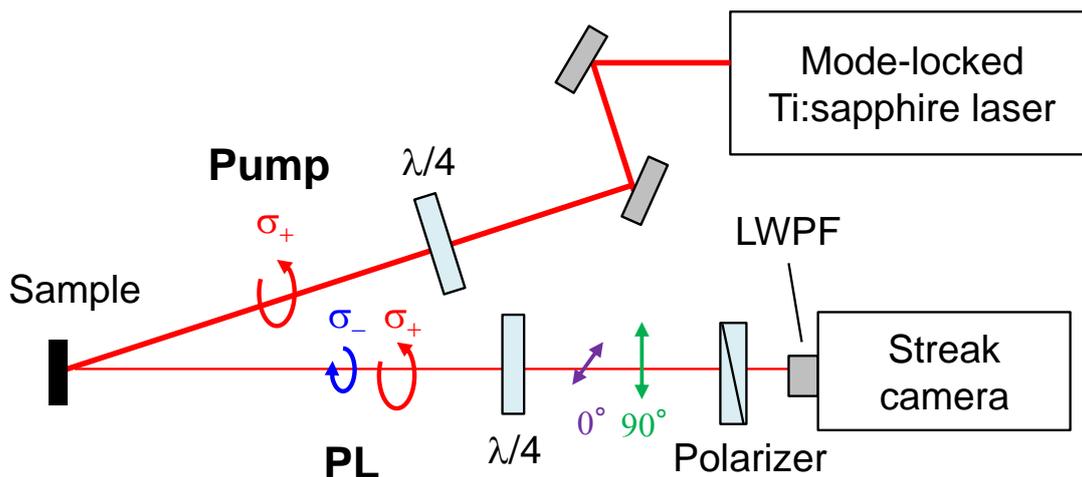


図 2-7 偏光時間分解 PL 測定系

典型的な測定結果として、各円偏光 PL 強度の時間変化を図 2-8(a)に示す。光

学遷移選択則によると、 σ_+ の円偏光でダウンสปิน電子を励起した場合、主に σ_+ で発光し、逆にアップสปิน電子は主に σ_- で発光する。したがって、各円偏光 PL 成分 I_{σ_+} 、 I_{σ_-} の差が電子のスピンの偏極を反映し、その寿命は電子スピン寿命に相当する。一方、全 PL 強度 $I_{\sigma_+} + I_{\sigma_-}$ の寿命はキャリア寿命を反映する。図 2-8(b) のように、 $P(t)$ を式(2-27)によって算出し、それに式(2-26)をフィッティングすればその傾きから τ_s が求まる。また、この測定法を用いた場合、 τ_s と同様に重要なパラメータである P_0 が求まり、スピン偏極電子の注入率を評価することが可能である。

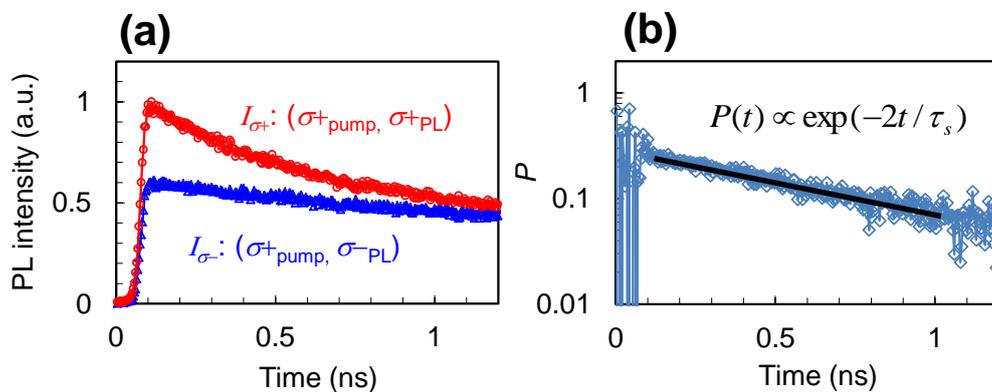


図 2-8 (a) 典型的な偏光時間分解 PL 測定結果、(b) P の時間変化

2.5.4. 時間分解反射率法

サンプルの PL を用いる偏光時間分解 PL 法の外に、ポンプ・プローブ法が電子スピンドイナミクス測定に広く用いられている。ポンプ・プローブ法はポンプ光によって誘起されたサンプルの物性変化(透過率や反射率など)を、ポンプ光に対して遅延させたプローブ光によって検出する方法である。

時間分解反射率法は、ポンプ光によって励起された電子密度の時間変化をサンプルの反射率変化によって測定する方法であり、この反射率変化はサンプルの吸収係数の変化とそのクラマース・クロニッヒの関係にある屈折率変化の両方に起因する。光学遷移選択則によると、伝導帯における電子がスピン偏極している場合、図 2-9 に示すように σ_+ と σ_- の光子に対する吸収係数に差(円二色性)が生じるため、これを利用すればサンプルの反射率変化から電子のスピンの緩和を調べることができる[24,25]。

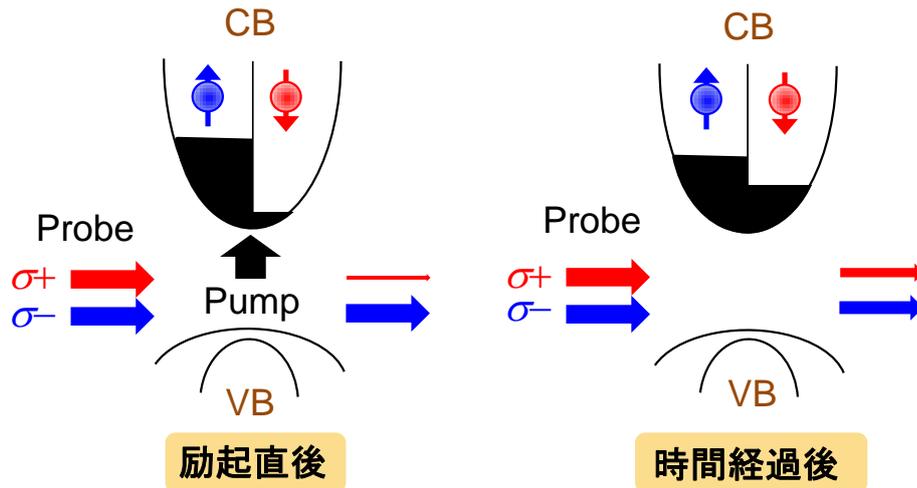


図 2-9 電子スピン偏極と円二色性

本研究で用いた時間分解反射率測定系の構成を図 2-10 に示す。ポンプ光とプローブ光はビームスプリッタ(BS)によって分離し、遅延時間はコンピュータで制御された自動ステージ(シグマ光機、SGSP46-500)によって光路長差として与えられる。反射率変化の検出にはバランスドディテクタ(New Focus、2307)を用いており、これによってレーザー光源の強度変動が測定結果へ与える影響を抑制できる。また、チョッパを用いてポンプ光とプローブ光をそれぞれ異なる周波数で強度変調し、その和周波数や差周波数を参照信号としてロックインアンプ(SRS、SR830)で検出することにより、信号の検出感度を向上させると共に、サンプル表面で散乱されたポンプ光がノイズとして検出されることを防ぐことができる。

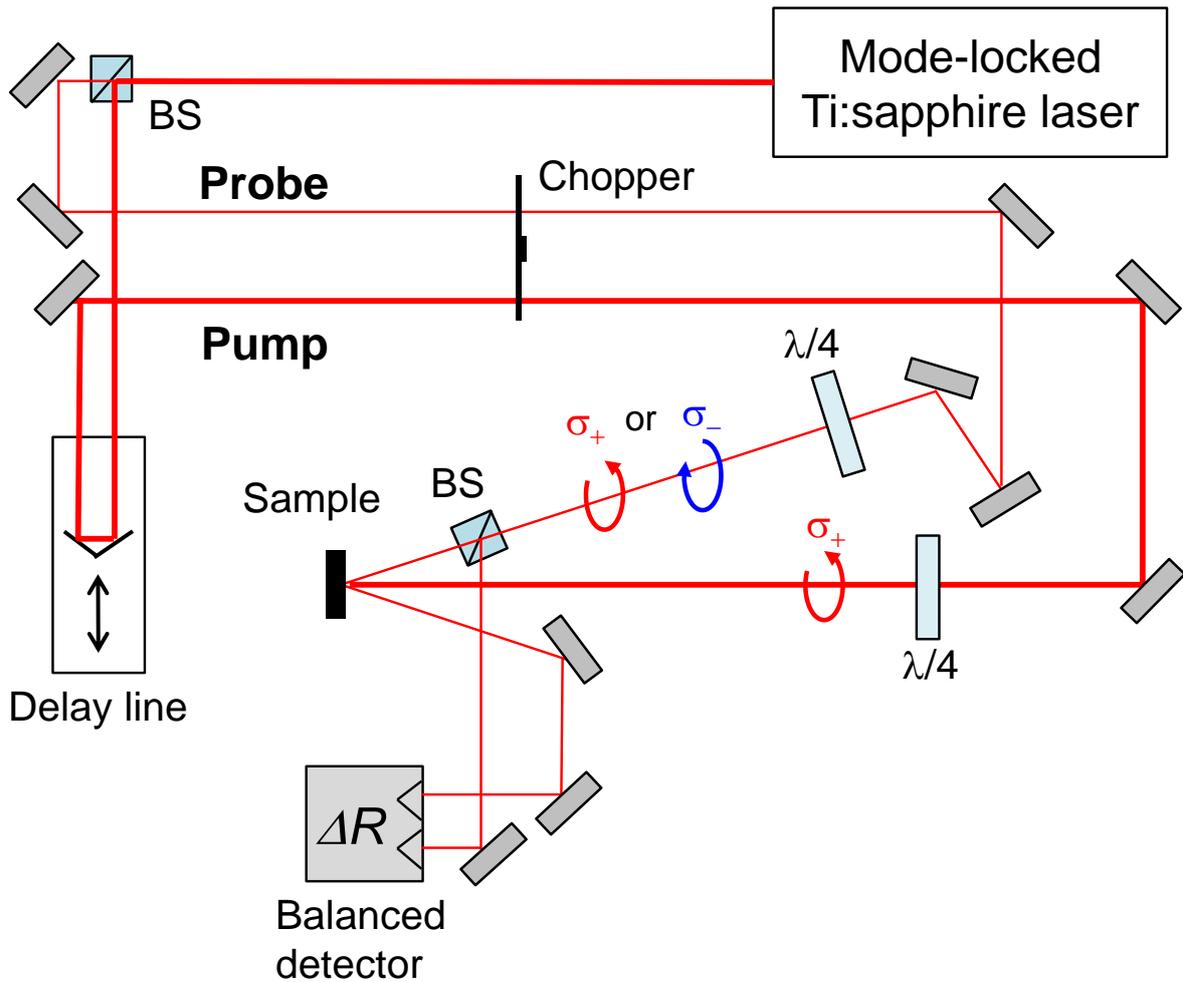


図 2-10 時間分解反射率測定系

典型的な測定結果を図 2-11(a)に示す。ポンプ光とプローブ光の円偏光が同じ場合($\sigma_{+pump}, \sigma_{+probe}$)と直交する場合($\sigma_{+pump}, \sigma_{-probe}$)についてそれぞれ反射率変化 ΔR を測定しており、両者の差が 1 ns 程度で無くなる様子がわかる。偏光時間分解 PL 法の場合と同様に、次式のように ΔR_{σ_+} と ΔR_{σ_-} の和分の差で定義される S に単一指数関数 $\exp(-2t/\tau_s)$ をフィッティングすることで、 τ_s を得ることができる(図 2-11(b))。

$$S = \frac{\Delta R_{\sigma_+} - \Delta R_{\sigma_-}}{\Delta R_{\sigma_+} + \Delta R_{\sigma_-}} \propto \exp\left(-\frac{2t}{\tau_s}\right) \quad (2-28)$$

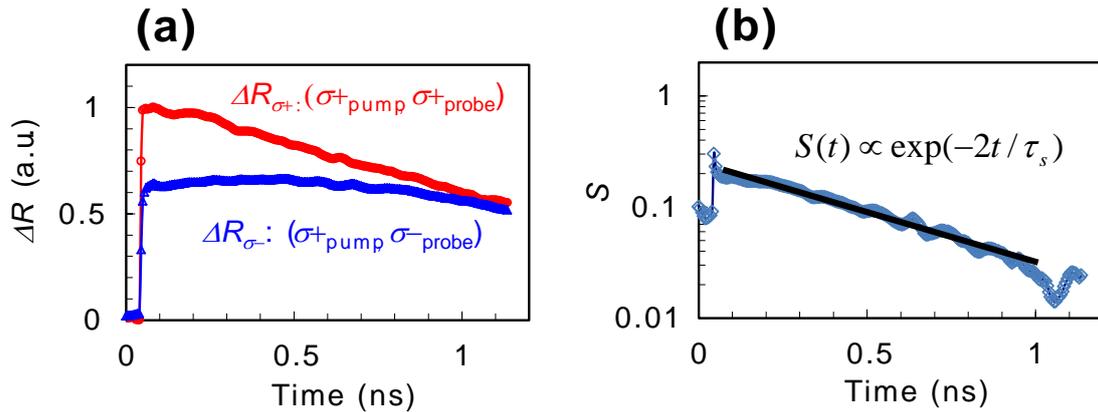


図 2-11 (a)典型的な時間分解反射率測定結果、(b) S の時間変化

時間分解反射率法において測定される反射率変化は、主に位相空間のフィリング効果とクーロン効果に起因する[26]。位相空間のフィリング効果は、電子がパウリの排他律に従って状態密度を占有していくことに関係しており、励起子に対するバンドフィリング効果と考えることができる。この効果は電子のスピンの偏極を反映するため、 τ_s の測定において重要な役割を果たす。一方、クーロン効果は電子のスピンの偏極を反映しない効果であり、励起キャリア密度のみに依存して反射率変化を引き起こす。クーロン効果は、自由キャリアが励起子を形成する電子-正孔間の結合を遮蔽することで励起子吸収量を低下させる効果と、キャリア間の散乱によって励起子吸収の線幅が広がる効果に分けられる[26]。後者はプローブ光の線幅が励起子吸収の線幅に比べて狭い場合に、ピーク吸収係数が実効的に減少することに等価である。

時間分解反射率法で得られる S は偏光時間分解 PL 法で得られる P によく似ているが、上記のように S は電子スピン偏極に依存する信号と依存しない信号の両方を含むため、励起した電子のスピンの偏極度を S によって評価することは困難である。

2.5.5. 時間分解カー回転法

時間分解反射率法と同様に、ポンプ・プローブ法に基づいた時間分解カー回転法も広く用いられている[27,28]。まず、本研究で用いる時間分解カー回転測定系を図 2-12 に示す。 σ_+ または σ_- のポンプ光によってスピン偏極電子を励起すると、前に図 2-9 を用いて解説した通り、スピン偏極を反映したサンプルの円二色性が生じ、それは σ_+ と σ_- の各円偏光に対する屈折率差を与える。これに

より、サンプル表面で反射した直線偏光のプローブ光は偏光回転し、この偏光回転角をカー回転角 $\Delta\theta_{Kerr}$ と呼ぶ。 $\Delta\theta_{Kerr}$ は電子スピン密度に比例し、その時間変化は次式で表されるように電子スピン寿命 T_s を反映する。

$$\Delta\theta_{Kerr}(t) \propto \exp\left(-\frac{t}{T_s}\right) = \exp\left\{-\left(\frac{1}{\tau_c} + \frac{2}{\tau_s}\right)t\right\} \quad (2-29)$$

このように、時間分解カー回転法において $\Delta\theta_{Kerr}(t)$ から得られるパラメータは T_s である。

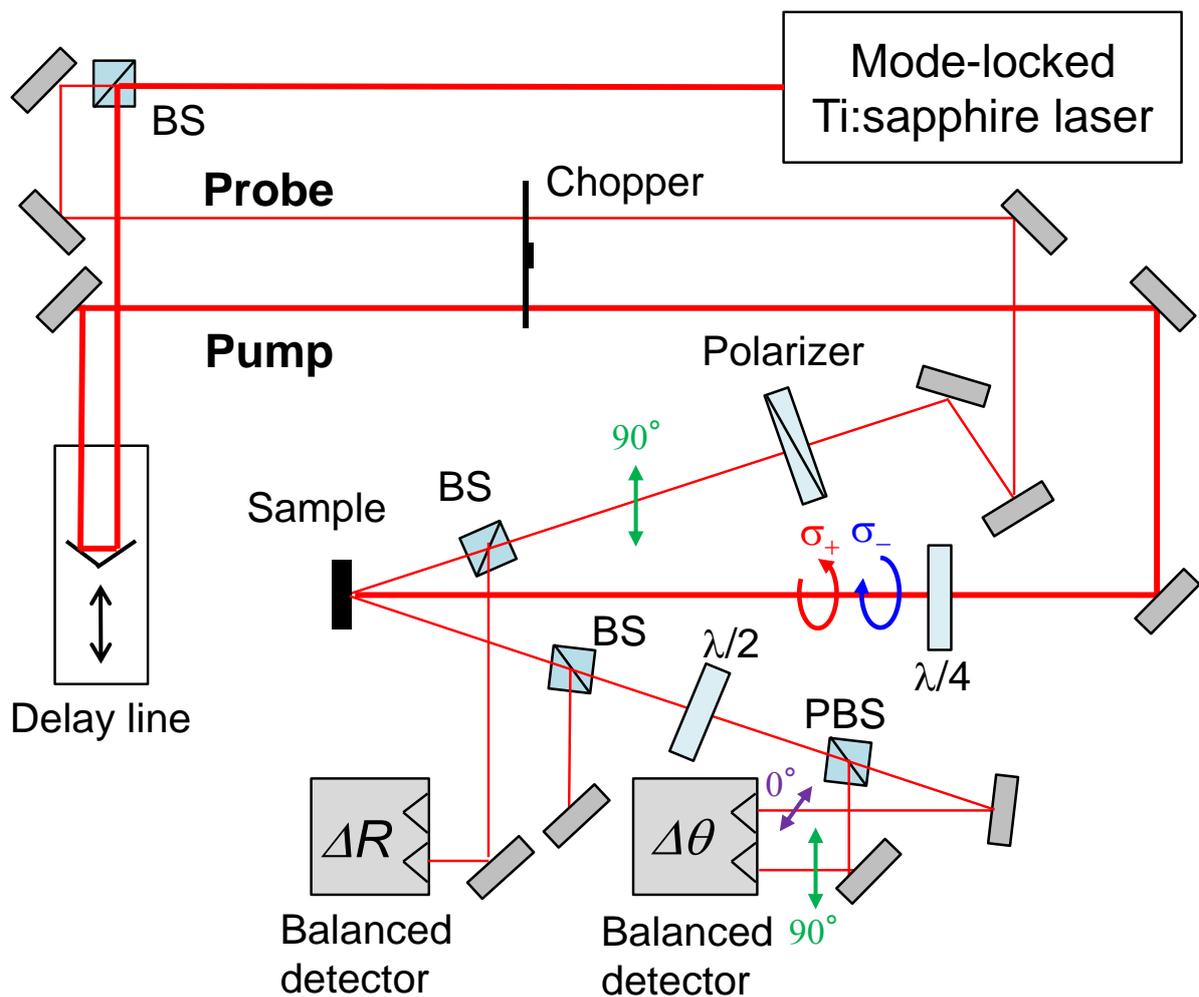


図 2-12 時間分解カー回転測定系

プローブ光の偏光回転角を検出するための方法として、クロスニコル配置にした偏光子を用いる方法が簡単であるが、バランスドディテクタを用いた検出方法によって偏光回転角をより高感度に測定できる[4]。クロスニコル配置の偏

光子を用いた場合に検出される光強度 I は、 $I = I_0 \cos^2(\Delta\theta_{Kerr})$ で表され、これをテイラー展開すると近似的に $I \propto (\Delta\theta_{Kerr})^2$ となる。ここで、一般的に半導体において生じる $\Delta\theta_{Kerr}$ は $10^{-3} \sim 10^{-4}$ degree 程度と非常に小さいため[29,30]、 $(\Delta\theta_{Kerr})^2$ に比例したこの検出方法では信号対雑音比(S/N)の良い信号を得ることが困難である。一方、バランスドディテクタを用いた方法では、プローブ光の偏光回転角を $\lambda/2$ 板によって 45° 回転させた後、偏光ビームスプリッタ(PBS)によって互いに直交する二つの直線偏光に分離し、両者の差分を検出する。偏光面を 45° 回転させたことで $I = I_0 \cos^2(\Delta\theta_{Kerr} + 45^\circ) \propto \Delta\theta_{Kerr}$ となり、この方法が微小な $\Delta\theta_{Kerr}$ の測定に有利であることがわかる。図 2-12 に示した測定系では、このような $\Delta\theta_{Kerr}$ の差分検出法が採用されている。

$\Delta\theta_{Kerr}$ の S/N を更に向きさせるための方法として、光弾性変調器(PEM)を用いた変調方法が挙げられる。PEM は石英等の透明な結晶の一軸方向に応力を印加することで光弾性効果による複屈折を発生させ、結晶を透過する光の位相を変調するものである。 σ_+ と σ_- の偏光が周期的に繰り返されるように、PEM を用いてポンプ光の位相を変調することで、光学遷移選択則に従って励起される電子のスピンを下向きと上向きの間で変調できるため、この変調周波数の信号をロックイン検出すれば $\Delta\theta_{Kerr}$ の測定感度が向上する。本論文の第 5 章では、PEM とチョッパの両方を用いたタンデムロックイン検出法[31]を採用している。

時間分解カー回転法による典型的な測定結果を図 2-13(a)に示す。 σ_+ または σ_- のポンプ光でサンプルを励起し、 90° 直線偏光に設定したプローブ光の偏光回転角 $\Delta\theta$ を測定している。ポンプ光の偏光が σ_+ から σ_- に変化すると励起される電子のスピンの偏極方向が反転するため、それに対応して $\Delta\theta$ の符号が反転していることがわかる。これらの差 ($\Delta\theta_{\sigma_+} - \Delta\theta_{\sigma_-}$) を改めてカー回転角 $\Delta\theta_{Kerr}$ と定義し、その時間変化に式(2-29)をフィッティングすることで T_s が求まる(図 2-13(b))。

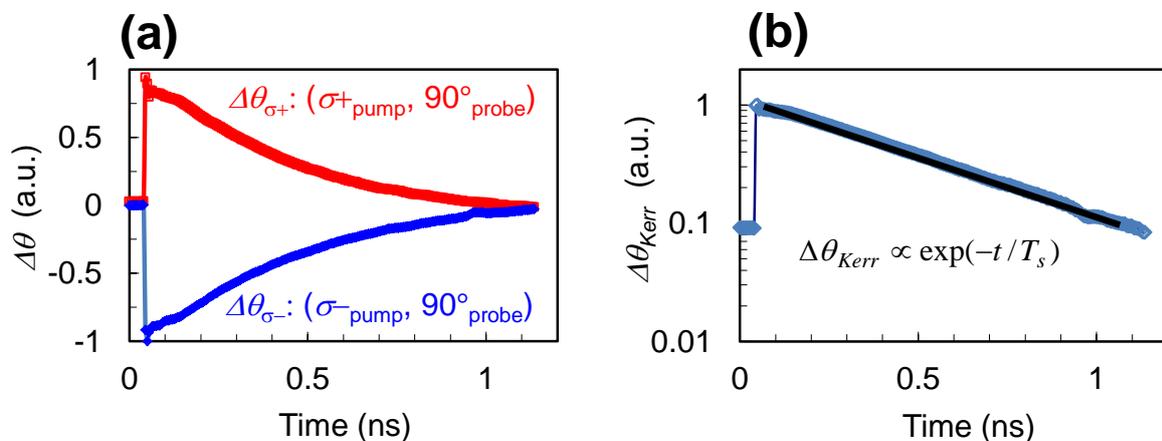


図 2-13 (a)典型的な時間分解カー回転測定結果、(b) $\Delta\theta_{Kerr}$ の時間変化

時間分解カー回転法によって τ_s を得るためには、式(2-29)の関係からわかるように τ_c を測定する必要がある。例えば、図2-12の測定系で採用しているように、サンプルの反射率の時間変化を測定することで τ_s と τ_c が同時に得られる。その他に、(110) QWにおいて特有の複屈折性に起因した偏光回転角 $\Delta\theta_{biref}$ を利用することによって τ_c を測定することができる[32]。この方法を用いた場合、測定系の構成を簡単化することができる。 $\Delta\theta_{biref}$ は式(2-30)の関係をもつため、 $\Delta\theta_{Kerr}/\Delta\theta_{biref}$ を計算することで式(2-31)に示すように、 τ_s のみを変数とした単一指数関数が得られる。

$$\Delta\theta_{biref}(t) \propto \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) \quad (2-30)$$

$$\frac{\Delta\theta_{Kerr}(t)}{\Delta\theta_{biref}(t)} \propto \exp\left(-\frac{2t}{\tau_s}\right) \quad (2-31)$$

本研究の第4章では、式(2-31)を測定データにフィッティングすることで τ_s を得ている。また、電子のスピン偏極を反映しない $\Delta\theta_{biref}$ はPEMによって変調されないため、第5章で述べる偏光回転角の測定結果には $\Delta\theta_{biref}$ が含まれない。

2.5.6. その他の電子スピンドイナミクス測定法

これまでに述べた測定法以外にもいくつかの電子スピンドイナミクス測定法が報告されている。時間分解反射率法と時間分解カー回転法はどちらも反射型の構成であるが、これらを透過型の構成にしたものは、それぞれ時間分解透過率法[26]、時間分解ファラデー回転法[33]と呼ばれる。透過型の構成を用いる利点は、サンプルを厚くすることによって信号のS/Nを向上できる点であるが、基板の除去や反射防止膜の蒸着が必要になる場合が多い。その他の特殊な測定法として、スピンノイズ分光法[14]が知られている。この測定法では、熱平衡状態でサンプル中に存在する時間的・空間的にランダムな電子スピンの変動(スピンノイズ)を利用するため、ポンプ・プローブ法のようにキャリアを励起する必要が無く、熱平衡状態における τ_s を測定することが可能である。

2.6. まとめ

本章では、半導体におけるスピン軌道相互作用と代表的な電子スピン緩和機構、GaAs(110) QWにおける電子スピン緩和、電子スピンのドリフトおよび拡

散について述べた。また、電子スピンドダイナミクスの測定法である偏光時間分解 PL 法、時間分解反射率法、時間分解カー回転法の原理や特徴について述べた。

2.7. 参考文献

- [1] S. Oertel, J. Hübner, and M. Oestreich, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 132112 (2008).
- [2] D. J. Hilton and C. L. Tang, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 146601 (2002).
- [3] R. Winkler, “Spin–Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems,” Springer (2003).
- [4] M. I. Dyakonov, “Spin Physics in Semiconductors,” Springer (2008).
- [5] X. Cartoixa, D. Z.-Y. Ting, and Y.-C. Chang, *Phys. Rev. B* **71**, 045313 (2005).
- [6] M. I. D’yakonov and V. Yu. Kachorovskii, *Sov. Phys. Semicond.* **20**, 110 (1986).
- [7] A. Tackeuchi, O. Wada, and Y. Nishikawa, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1131 (1997).
- [8] I. Žutić, J. Fabian, and S. D. Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 323 (2004).
- [9] R. J. Elliot, *Phys. Rev.* **96**, 266 (1954).
- [10] A. Tackeuchi, T. Kuroda, S. Muto, Y. Nishikawa, and O. Wada, *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, 4680 (1999).
- [11] G. Fishman and G. Lampel, *Phys. Rev. B* **16**, 820 (1977).
- [12] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura, and H. Ohno, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4196 (1999).
- [13] T. Adachi, Y. Ohno, F. Matsukura, and H. Ohno, *Physica E* **10**, 36 (2001).
- [14] G. M. Müller, M. Römer, D. Schuh, W. Wegscheider, J. Hübner, and M. Oestreich, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 206601 (2008).
- [15] E. Y. Sherman, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 209 (2003).
- [16] I. D’Amico and G. Vignale, *Phys. Rev. B* **65**, 085109 (2002).
- [17] M. Holub and P. Bhattacharya, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, R179, (2007).
- [18] 眞田治樹, 「半導体中の電子・核スピンドダイナミクスの制御に関する研究」, 東北大学, 大野研究室 (2005).
- [19] S. Pfalz, R. Winkler, T. Nowitzki, D. Reuter, A. D. Wieck, D. Hägele, and M. Oestreich, *Phys. Rev. B* **71**, 165305 (2005).
- [20] L. Lombez, D. Lagarde, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, B. L. Liu, W. X. Wang, Q. K. Xue, and D. M. Chen, *Phys. Status Solidi C* **4**, 475 (2007).

- [21] N. Yokota, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, *Physica E* **44**, 1176 (2012).
- [22] R. S. Britton, T. Grevatt, A. Malinowski, R. T. Harley, P. Perozzo, A. R. Cameron, and A. Miller, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2140 (1998).
- [23] R. J. Seymour and R. R. Alfano, *Appl. Phys. Lett.* **37**, 231 (1980).
- [24] S. Izumi, S. Gozu, T. Mozume, Y. Saeki, T. Nukui, and A. Tackeuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 04DM03 (2010).
- [25] H. Ma, Z. Jin, L. Wang, and G. Ma, *J. Appl. Phys.* **109**, 023105 (2011).
- [26] A. Miller, P. Riblet, M. Mazilu, S. White, T. M. Holden, A. R. Cameron, and P. Perozzo, *J. Appl. Phys.* **86**, 3734 (1999).
- [27] J. M. Kikkawa, I. P. Smorchkova, and D. D. Awschalom, *Science* **277**, 1284 (1997).
- [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. Cryst. Growth* **93**, 301 (2007).
- [29] Z. Chen, R. Bratschitsch, and S. T. Cundiff, *Opt. Lett.* **30**, 2320 (2005).
- [30] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Science* **306**, 1910 (2004).
- [31] A. Kanno, Y. Masumoto, *J. Lumin.* **119**, 178 (2006).
- [32] P. S. Eldridge, P. G. Lagoudakis, M. Henini, and R. T. Harley, *Phys. Rev. B* **81**, 033302 (2010).
- [33] L. Schreiber, D. Duda, B. Beschoten, G. Güntherodt, H.-P. Schönherr, and J. Herfort, *phys. stat. sol. (b)* **244**, 2960 (2007).

第3章 電子スピンドイナミクス測定法の比較

3.1. はじめに

半導体における電子スピンの緩和と輸送を測定するための手段として、偏光時間分解 PL 法、時間分解反射率法、時間分解カー回転法による測定系を構築した。各測定法は異なる物理現象を観測するため、得られる物理パラメータや測定感度、時間分解能が異なり、各測定法による結果を比較することで新しい知見が得られると期待される。本章では、GaAs(110) MQW において各測定法で得られる信号の励起波長依存性と τ_s の測定値をそれぞれ比較した結果について述べる。

3.2. サンプルの構造と光学特性

ここでは、測定に用いたサンプルの構造と、その光学特性をフォトルミネッセンス励起測定によって評価した結果について述べる。

3.2.1. サンプル構造

用いたサンプルの構造を図 3-1 に示す。これは本研究室において分子線エビタキシ(MBE)法によって結晶成長された、GaAs と $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ から成る 50 周期の MQW であり、膜厚はそれぞれ 9.3 nm と 20.3 nm である。場合に応じてサンプルの基板を選択エッチングによって除去できるように、MQW 直下には 200 nm の $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ 層と 5 nm の AlAs 層が配置されている。第 2 章で述べたように、GaAs(110)基板を用いているこの MQW では長い τ_s が得られるため、 τ_s を精度良く測定することが可能であり、異なる測定法の間で τ_s を比較するために都合が良い。

3.2.2. フォトルミネッセンス励起(PLE)測定

サンプルの光学特性を PLE 測定によって評価した。77 K におけるサンプルの PL スペクトルを図 3-2(a)に示す。励起光源にはモード同期チタンサファイアレーザを用い、PL スペクトルの検出には CCD 分光器(浜松ホトニクス、C5095)を用いている。ここで、励起波長は 750 nm、平均強度は 125 μW とした。図 3-2(a)

において、波長 801 nm におけるピークは GaAs QW の E_1 -HH₁ による PL である。LWPF を用いてこのピークよりも長波側($\lambda \geq 805$ nm)のみを CCD 分光器で受光し、LWPF で除去可能な範囲($\lambda < 805$ nm)において励起光源の波長を掃引することで、図 3-2(b)に示すような、サンプルの吸収特性を反映した PLE スペクトルが得られる。図中に矢印で示すように、 E_1 -HH₁ と E_1 -LH₁ における励起子吸収がピークとして明瞭に観測されており、サンプルの結晶品質は良いと言える。

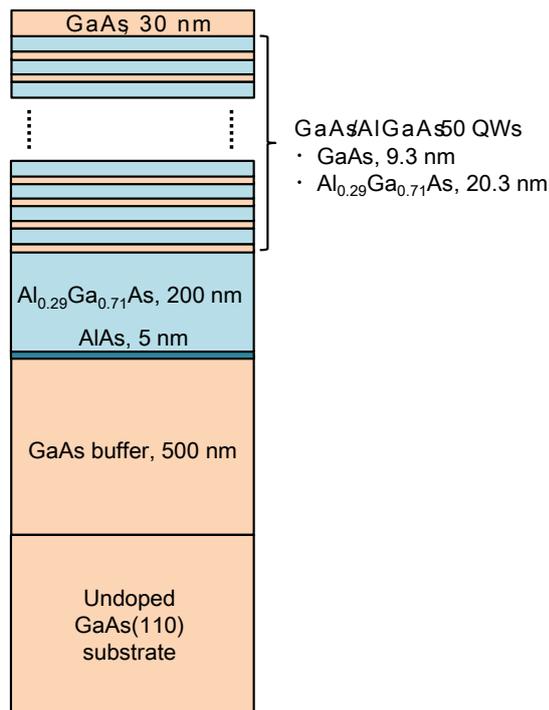


図 3-1 GaAs/AlGaAs(110) MQW の構造図

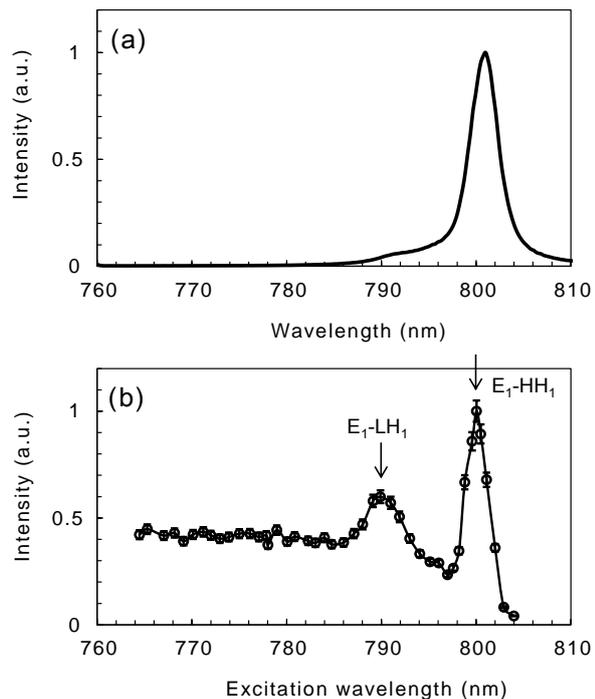


図 3-2 サンプルの(a)PL スペクトルと (b)PLE スペクトル

3.3. 電子スピン緩和時間の測定条件

比較対象である偏光時間分解フォトルミネッセンス(PTRPL)法、時間分解反射率(TRR)法、時間分解カー回転(TRKR)法を用いた各測定系の構成は第 2 章で述べた通りである。光源にはモード同期チタンサファイアレーザを用い、 σ_+ または σ_- の円偏光によってサンプルを励起した。ここで、レーザから出力されるパルスの時間幅は約 80 fs と短いため、そのフーリエ変換で関係づけられるパルスの波長幅は約 12 nm と広く、波長分解能は失われている。本研究では、時間分解能と波長分解能を両立するために、図 3-3 に示すような回折格子、レンズ、スリットを用いた構成[1]によりパルスの波長幅制限を行った。図 3-4 に示

すように、波長幅 2.0 nm で矩形にスペクトルが切り出されたパルスと元のパルスとの相互相関測定[2]を行った。その結果を図 3-5 に示す。矩形関数のフーリエ変換である $\text{sinc}^2(t)$ 型の相関波形(パルス幅 1.0 ps)が得られており、時間帯域幅積は $\text{sinc}^2(t)$ 型を仮定した値(0.886)にほぼ一致する 0.89 であった。したがって、図 3-3 に示す構成を用いることで理想的にパルス変換できたと言える。構築したパルスの波長幅制限系を用い、パルスの波長幅と時間幅をそれぞれ 1.2 nm、1.7 ps に調節した。

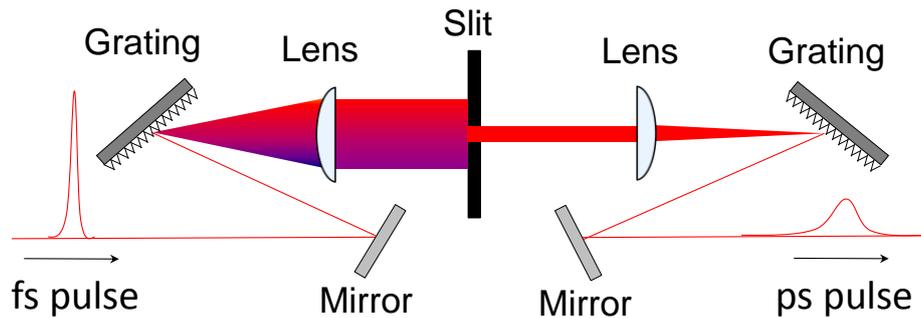


図 3-3 パルスの波長幅制限系

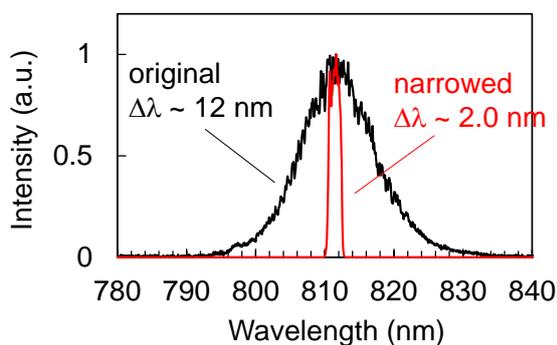


図 3-4 パルスの波長制限結果

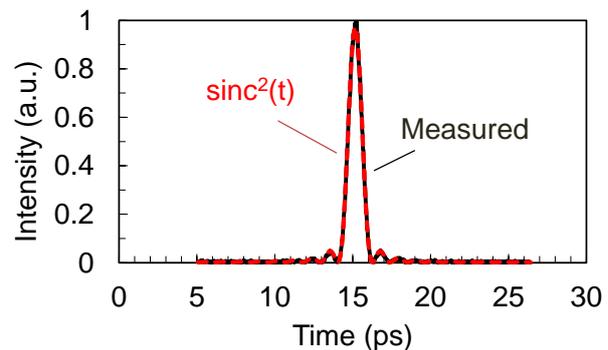


図 3-5 相互相関測定結果

PTRPL 法では、LWPF によって $E_1\text{-HH}_1$ に相当する PL (~801 nm) を切り出した後、 $\lambda/4$ 板と偏光子を用いて σ_+ と σ_- の各円偏光 PL 成分の一方のみを選択し、それらを順番にストリークカメラによって時間分解測定した。ピンホールスキヤン法によって測定したポンプ光のスポットサイズは約 25 μm であり、形状はガウシアンである。ポンプ光の平均強度は 125 μW であり、励起密度に換算すると 50 W/cm^2 である。

TRR 法および TRKR 法では、ポンプ光とプローブ光のスポットサイズをそれぞれ 37 μm 、20 μm とし、平均強度はそれぞれ 1 mW、100 μW とした。励起密度は 50 W/cm^2 であり、PTRPL 法の場合と同じ値である。

すべての測定はサンプルを 77 K に冷却した状態で行った。この理由は、図 3-2(b)で示したように、77 K では E_1 -HH₁ と E_1 -LH₁ の励起子吸収が大きいため、 τ_s の測定において得られる信号強度が大きくなると共に、励起子吸収スペクトルが明瞭に分離するため、各測定法において得られる信号の励起波長依存性をこれらの励起子共鳴波長と対応させて考察することが容易であるためである。

3.4. 電子スピン緩和時間の比較

PTRPL 法、TRR 法、TRKR 法を用いて GaAs(110) MQW の τ_s を測定した。その結果を励起波長と τ_s の関係として図 3-6 に示す。励起波長が E_1 -LH₁ 共鳴波長付近の時に PTRPL 法で測定した τ_s の誤差範囲が大きい理由は、後で示すように、この波長付近で初期スピン偏極度が 0 に近づくためである。 τ_s は励起波長に対して弱い依存性を示しており、 E_1 -HH₁ 共鳴波長付近で値が短くなっている。これには、励起キャリア密度の励起波長依存性が関係していると考えられる。GaAs(110) MQW では、励起キャリア密度が大きいほど電子-正孔間の交換相互作用が大きくなり、 τ_s が短くなることが知られている[3]。この傾向は、 E_1 -HH₁ 共鳴波長付近で吸収量が最大となることを考慮すると、この波長の周辺で τ_s が短くなった本測定結果と辻褃が合う。

PTRPL 法、TRR 法、TRKR 法による τ_s の測定値を励起波長 797 nm において比較すると、それぞれ 1.2 ns、0.98 ns、0.83 ns であり、励起波長 795 nm ではより良い値の一致が見られた(1.1~1.2 ns)。PTRPL 法によって測定した τ_s は他の測定法に比べてやや長い値であるが、考えられる理由としてスピン偏極電子の分布を検出する領域の違いが挙げられる。PTRPL 法では 50 W/cm² で励起した全領域からの PL を受光しているが、TRR 法と TRKR 法ではポンプ光のスポットサイズ 37 μ m に対してプローブ光は 20 μ m と小さく集光しているため、比較的キャリア密度の高い領域を検出することになる。この影響は、前に述べた(110) QW における τ_s の励起キャリア密度依存性を通じて、TRR 法および TRKR 法による τ_s の測定値を短縮するように働くと考えられる。また、プローブ光がポンプ光に対して相対的に小さいスポットサイズをもつことで、 τ_s の測定値がキャリアの拡散によって影響されることも考えられる。GaAs QW に光励起したキャリアの拡散定数を 80 cm²/s とすると[4]、1 ns ($\sim \tau_s$)の間にキャリアは約 2.8 μ m 拡散するため、このようなキャリアの拡散効果も τ_s の測定値に影響すると考えられる。

三つの異なる測定法を用いて測定した τ_s の値を比較すると、0.83 ns ~ 1.2 ns の範囲内で同等の値が得られ、測定に利用する物理現象は異なっても τ_s の測定値に影響しないことがわかった。

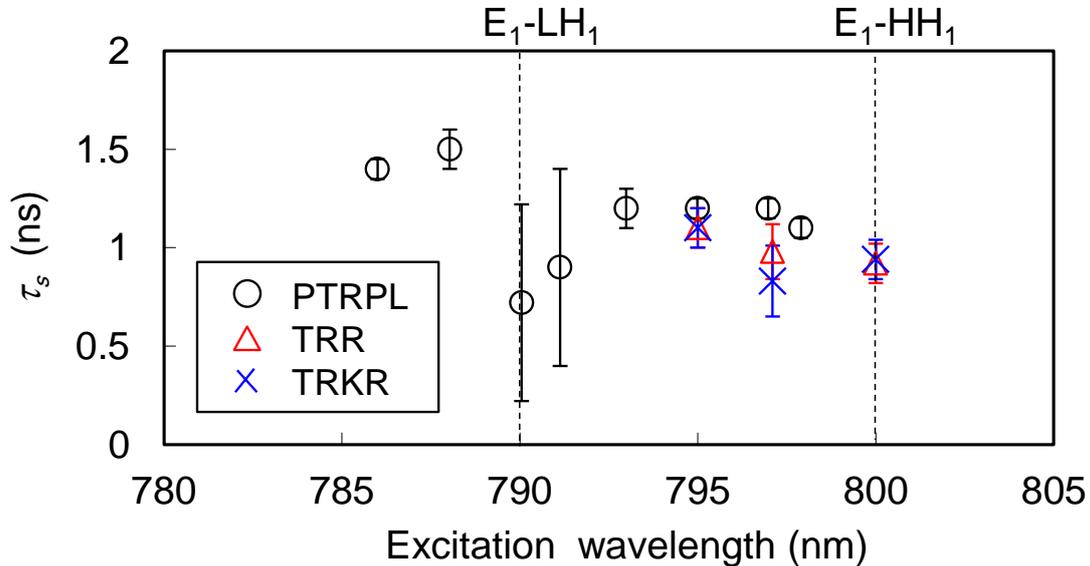


図 3-6 各測定法における励起波長と τ_s の関係

3.5. 測定信号の励起波長依存性の比較

前に述べた通り、 τ_s はどの測定法を用いても同等な値が得られるが、測定される信号の励起波長依存性は大きく異なる。まず、各測定法によって得られた励起波長 795 nm における時間分解測定結果を図 3-7 に示す。図 3-7(a)の $I_{\sigma+}$ には時間 0.1 ns までの間に速い寿命成分が見られるが、これは LWPf をわずかに通過したポンプ光がストリークカメラで検出されたものである。ポンプ光(プローブ光)の偏光状態が $\sigma+$ と $\sigma-$ の間で入れ替わると、光学遷移選択則に従って励起(検出)されるスピン偏極電子の偏極方向が反転するため、これを利用して PTRPL 法、TRR 法、TRKR 法における測定信号をそれぞれ $P = (I_{\sigma+} - I_{\sigma-}) / (I_{\sigma+} + I_{\sigma-})$ 、 $S = (\Delta R_{\sigma+} - \Delta R_{\sigma-}) / (\Delta R_{\sigma+} + \Delta R_{\sigma-})$ 、 $\Delta\theta_{Kerr} = \Delta\theta_{\sigma+} - \Delta\theta_{\sigma-}$ と定義する。ここで、 $\Delta\theta_{\sigma+} - \Delta\theta_{\sigma-}$ によって $\Delta\theta_{Kerr}$ を定義する理由は、(110) QW に特有の電子スピン偏極に依存しない複屈折による偏光回転角 $\Delta\theta_{biref}$ の寄与を相殺するためである[5]。すなわち、

$$\Delta\theta_{\sigma+} - \Delta\theta_{\sigma-} = (\Delta\theta_{Kerr} + \Delta\theta_{biref}) - (-\Delta\theta_{Kerr} + \Delta\theta_{biref}) = 2\Delta\theta_{Kerr} \quad (3-1)$$

の関係を利用する。

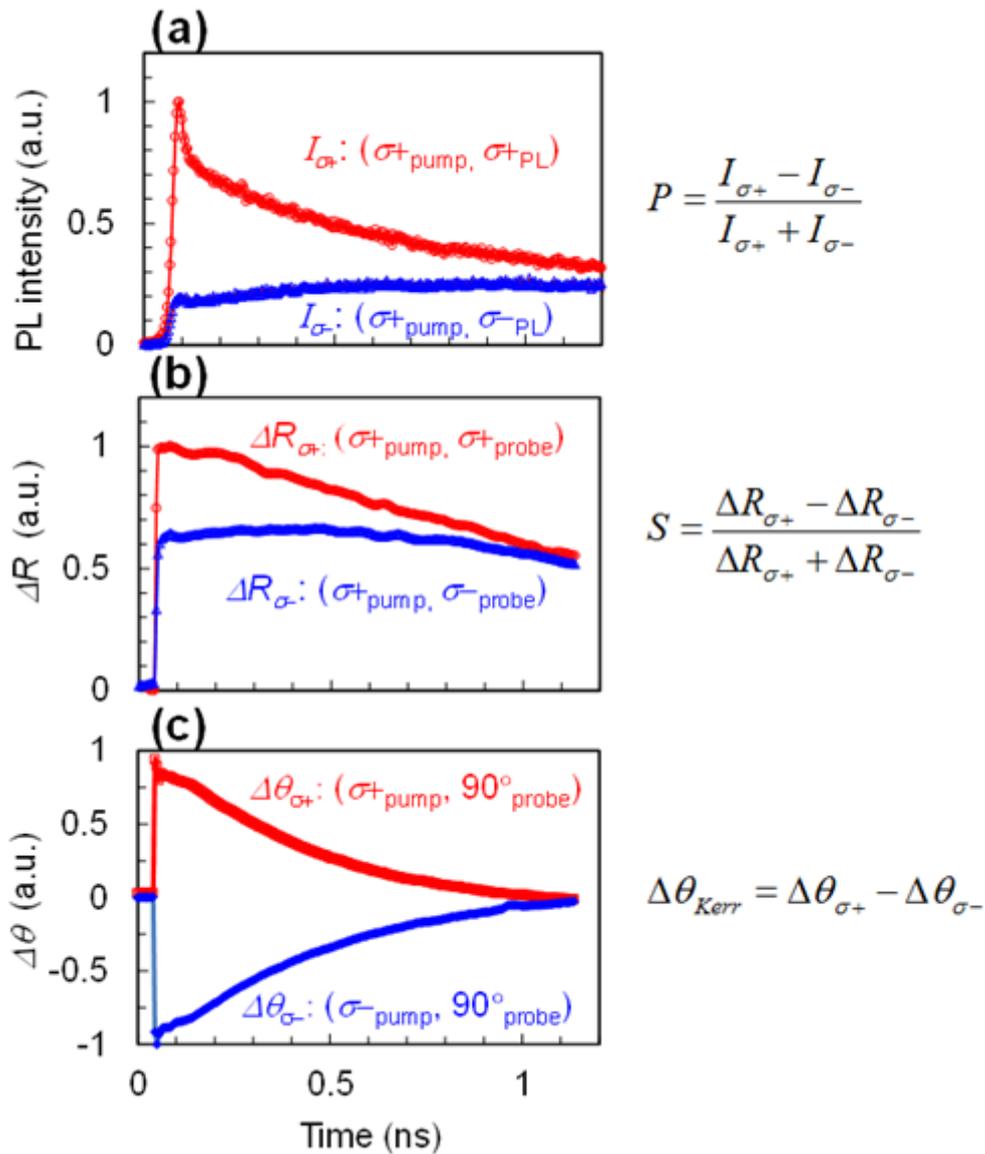


図 3-7 (a)PTRPL 法、(b)TRR 法、(c)TRKR 法による時間分解測定結果 (励起波長 795 nm)

サンプルの PLE スペクトル(図 3-8(a))に対応させて、励起後 50 ps において各測定法で得た信号(P 、 S 、 $\Delta\theta_{Kerr}$)の励起波長依存性を図 3-8(b)-(d)にそれぞれ示す。まず、各測定法で得た信号に含まれる励起子の影響について述べる。QW にキャリアを励起子の状態で励起した場合、自由キャリアを励起した場合に比べて大きな吸収飽和が生じることが知られている。これは励起子が解離して自由キャリアになるまでの過渡的な吸収飽和となり、その寿命は GaAs/AlGaAs MQW において室温で約 300 fs である[6]。本研究で設定したサンプル温度 77 K における励起子解離寿命は 30 ~ 40 ps 程度であり、熱平衡状態では励起子密度は自由キャリア密度の約 20% である[7]。各測定法で得た信号は励起子間のスピ

ン依存交換相互作用によって生じたスピン分裂の影響を受けるが、本測定条件においてこの影響は小さいと考えられる。Damen らの報告によると、GaAs/AlGaAs MQW におけるスピン分裂エネルギーは 10 K において 1.5 meV 以下である[8]。本研究では、PTRPL 測定において E_1 -HH₁ 準位間の PL を約 5.4 meV のスペクトル幅で積分して検出しているため、上記のようなスピン分裂の影響は検出できない。同様に、プローブ光のスペクトル幅が約 2.3 meV である TRR 測定と TRKR 測定においてもスピン分裂の影響は検出されない。また、本研究で設定したサンプル温度 77 K では、励起子間の交換相互作用による影響は文献[8]の報告に比べて小さい。したがって、励起子間のスピン依存交換相互作用が本研究で測定したスピン依存信号に与える影響は無視することができる。

図 3-8(b)に PTRPL 法によって測定したスピン偏極度 P の励起波長依存性を示す。光学遷移選択則に従って、 E_1 -HH₁ 励起子共鳴波長付近においてほぼ完全なスピン偏極度(0.91)が得られている。この結果は他の研究報告[9,10]と同等であるため、PTRPL 法によって測定された P の励起波長依存性は妥当な結果であると言える。 E_1 -LH₁ 励起子を共鳴励起した場合、この吸収が E_1 -HH₁ 準位間のバンド遷移による吸収を上回り、結果的に P が負の値を示す場合がある[9]。実際、図 3-8(b)ではこの状況が観測されている。

次に、TRR 法によって測定した S の励起波長を図 3-8(c)に示す。図 3-8(b)で示したように、 E_1 -HH₁ 励起子共鳴波長付近において P は 1 に近い値であったが、 S の測定値は 0.22 程度と非常に小さい。この原因は、TRR 法によって測定された S は、電子スピン偏極を反映した位相空間のフィリング効果[11]による成分だけではなく、電子スピン偏極を反映しないクーロン効果[11]による成分を含むためであり、 S の値は P と一致しない。TRKR 法によって測定した $\Delta\theta_{Kerr}$ の励起波長依存性を図 3-8(d)に示す。 P が最大となる E_1 -HH₁ 励起子共鳴波長において $\Delta\theta_{Kerr}$ が最大となっているが、 $\Delta\theta_{Kerr}$ は励起されたスピン偏極電子密度と屈折率変化のスペクトル形状の両者を反映するため、やはりこの測定法を用いても P を得ることはできない。

このように、各測定法ではそれぞれ異なる物理現象を反映した特有の信号が得られ、その励起波長依存性が電子スピン偏極度に対応するものは PTRPL 法のみである。大きな信号強度が得られる、すなわち、 τ_s を高精度に測定することのできる励起波長は測定法ごとに異なり、PTRPL 法と TRKR 法では E_1 -HH₁ 励起子共鳴波長付近で信号強度が最大になることがわかった。一方、TRR 法では電子スピン偏極を反映しないクーロン効果により、信号強度が最大となる励起波長は励起子共鳴波長に対して明瞭な関係を示さないことがわかった。

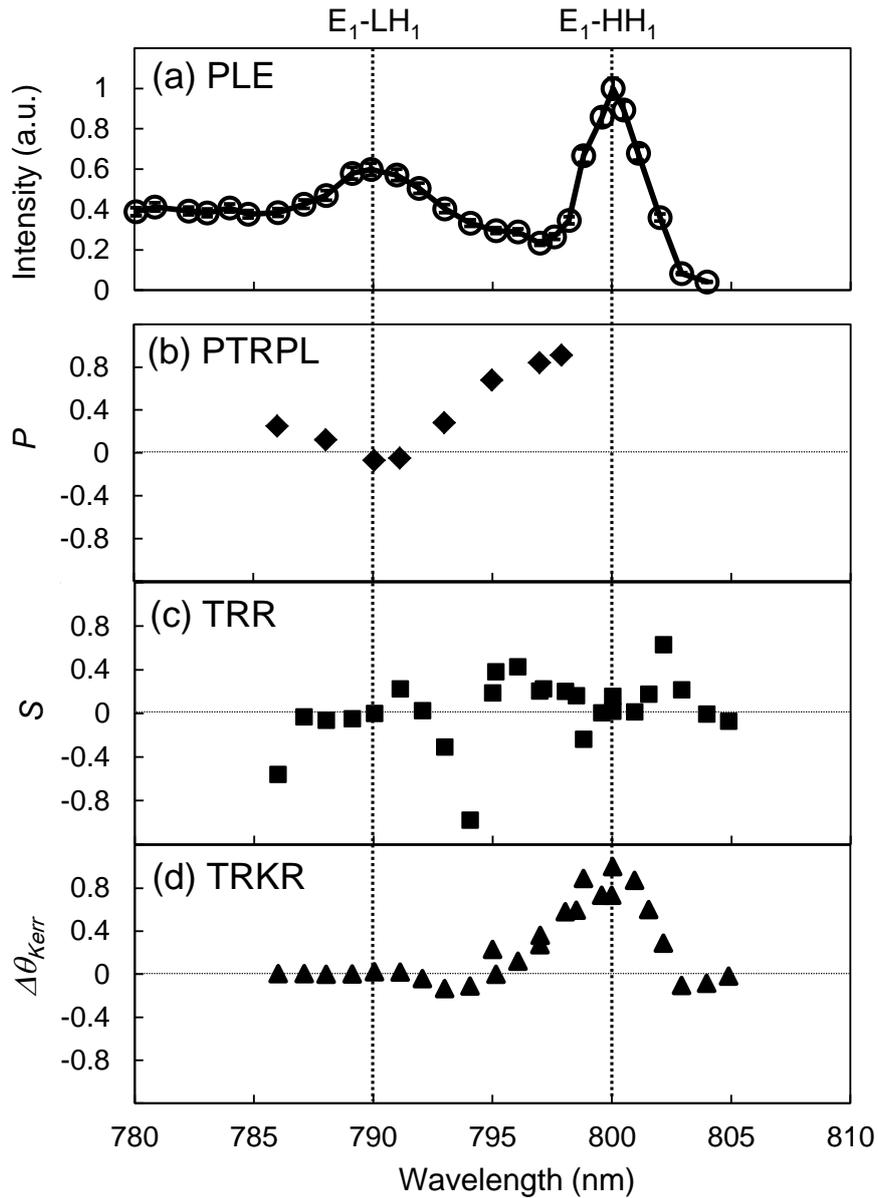


図 3-8 (a)PLE スペクトル、(b)-(d)励起後 50 ps における P 、 S 、 $\Delta\theta_{kerr}$ の励起波長依存性

3.6. クーロン効果の励起波長依存性

次に、異なる測定法で得た信号を組み合わせることで、クーロン効果の励起波長依存性について考察する。前に述べたとおり、PTRPL 法と TRKR 法ではスピン偏極を反映した信号のみが得られる一方、TRR 法ではスピン偏極を反映する位相空間のフィリング効果と反映しないクーロン効果による信号が混在している。TRR 法において、 τ_s は S の時間変化から求まるため、 τ_s の測定に関して

クーロン効果の寄与は TRR 信号に含まれる不要なオフセット成分であり、 τ_s の測定精度を低下させる。また、TRR 法で P の測定ができない理由もこの寄与のためである。 $P = 1$ という E_1 -HH₁ 励起子共鳴波長においてのみ成り立つ仮定により、Holden らは GaAs/AlGaAs MQW におけるクーロン効果の寄与の大きさについて議論している [12]。本研究では、TRR 法と励起条件を統一した上で PTRPL 法によって P を測定しているため、TRR 信号のスペクトル全域でクーロン効果の寄与を抽出することができる。まず、クーロン効果の寄与に関する議論を拡張するため、以下に示すような式を定義する。

$$P = \frac{(\Delta R_{\sigma_+} - \Delta R_{Cl}) - (\Delta R_{\sigma_-} - \Delta R_{Cl})}{(\Delta R_{\sigma_+} - \Delta R_{Cl}) + (\Delta R_{\sigma_-} - \Delta R_{Cl})} \quad (3-2)$$

$$\Delta R_{Cl} = \frac{\Delta R_{\sigma_+} + \Delta R_{\sigma_-}}{2} - \frac{\Delta R_{\sigma_+} - \Delta R_{\sigma_-}}{2P} \quad (3-3)$$

ここで、 ΔR_{Cl} は TRR 信号である ΔR に含まれるクーロン効果の寄与であり、 P は PTRPL 法によって測定したスピン偏極度である。図 3-8(b)で示したように P は S に比べてデータ数が少ないため、 P の値を線形補間した値も計算に用いた。

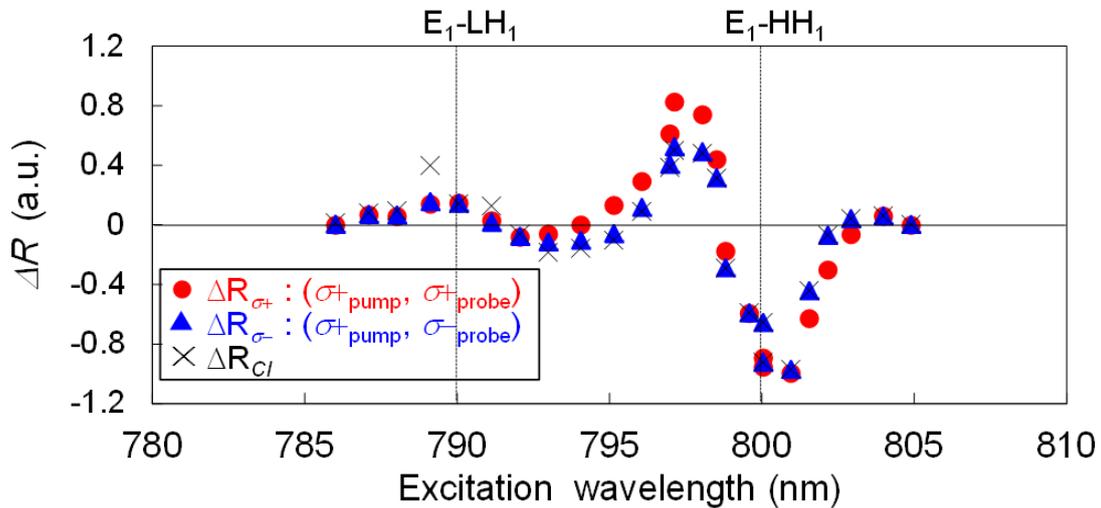


図 3-9 ΔR の励起波長依存性

ΔR の励起波長依存性を図 3-9 に示す。式(3-3)によると、 $P = 1$ の場合には $\Delta R_{Cl} = \Delta R_{\sigma_-}$ となるが、図 3-9 を見ると、 P が小さくなる E_1 -LH₁ 励起子共鳴波長付近においても ΔR_{Cl} は ΔR_{σ_-} に非常に近い値を示している。 ΔR が大きく得られる波

長領域は E_1 - HH_1 励起子共鳴波長付近であるが、この波長領域の ΔR はクーロン効果による寄与が支配的であると言える。また、それは $\Delta R_{\sigma+}$ と $\Delta R_{\sigma-}$ の差が非常に小さいことからわかる。

広いスペクトル幅をもつパルス光源を用いることで ΔR_{CI} は低減可能であることについて少し述べる。Holden らは GaAs/AlGaAs MQW の E_1 - HH_1 励起子共鳴波長において円偏光励起でスピン偏極電子を生成し、それによって生じた円二色性を測定している[12]。パルス光源のスペクトル幅は約 10 nm と約 1 nm の二種類が用いられ、それぞれのスペクトル幅に対応するパルス時間幅は約 100 fs と約 1 ps である。彼らは、スペクトル幅の広いパルス光を用いた方がスピン偏極を反映しないクーロン効果の寄与が小さくなる結果を示している。またその理由として、スペクトル幅の広いパルス光を用いることで、キャリアの励起によって生じた励起子吸収線幅の増大が透過率変化へ与える影響が小さくなるためであると説明している。ただし、このようなパルス光を用いた場合、図 3-9 のようなデータを測定するために必要なスペクトル分解能は失われる。

最後に、三つの測定法の特徴を表 3-1 に示す。PTRPL 法はスピン偏極度が得られるという長所があるが、通常は検出器としてストリークカメラを用いるため、時間分解能は数 ps 程度に制限される。また、散乱光と PL を波長領域で分離できないため共鳴励起が困難であり、発光が弱いサンプルは室温での測定が困難である。一方、TRR 法と TRKR 法では時間分解能が光源のパルス幅で決まるため、数十 fs オーダの高い時間分解能が得られ、共鳴励起や室温での測定が比較的容易である。TRR 法はサンプル表面で反射したプローブ光の偏光を分解する必要が無いため、測定系の構成が簡単であり、顕微測定系のような偏光依存素子を含む光学系の導入に有利である。TRKR 法はスピン依存信号を高い SN 比で測定できるが[13]、前に述べたように(110) QW のような複屈折性をもつサンプルでは、複屈折による偏光回転の効果を適切に相殺させる必要がある。

表 3-1 電子スピンドイナミクス測定法の比較

測定方法	時間分解能	スピン偏極度	測定上の利点・欠点
PTRPL	> 数 ps	得られる	<ul style="list-style-type: none"> ▶ 散乱光と PL を分けられないため共鳴励起が困難 ▶ 発光が弱いサンプルは室温での測定が困難
TRR	パルス幅 (> 数 10 fs)	得られない	<ul style="list-style-type: none"> ▶ 反射光を偏光分解する必要がない <ul style="list-style-type: none"> ● 構成が簡単 ● 偏光依存素子を含む顕微測定系の導入などに有利
TRKR	パルス幅 (> 数 10 fs)	得られない	<ul style="list-style-type: none"> ▶ 複屈折により偏光回転が生じる場合がある ▶ スピン偏極に依存した信号の SN 比が良い

3.7. まとめ

本章では、偏光時間分解 PL 法、時間分解反射率法、時間分解カー回転法による電子スピンドイナミクス測定系をそれぞれ構築した。これらの測定法を用いて得られる GaAs(110) QW の τ_s を 77 K にて同じ測定条件下で比較したところ、いずれの測定法を用いても同等の τ_s が得られ、 τ_s の測定に利用する物理現象は測定値に影響しないことがわかった。

これら三つの測定法では、利用する物理現象の違いに起因して測定される信号の励起波長依存性に違いが見られ、大きな信号強度が得られる、すなわち、 τ_s を高精度に測定可能な励起波長は測定法ごとに異なることがわかった。偏光時間分解 PL 法と時間分解反射率法では、 E_1 - HH_1 励起子共鳴波長付近で信号強度が最大になるが、TRR 法では電子スピン偏極を反映しないクーロン効果により、信号強度が最大となる励起波長は励起子共鳴波長に対して明瞭な関係を示さないことがわかった。

偏光時間分解 PL 法によって測定したスピン偏極度 P を利用することで、時間分解反射率法によって測定した信号 S に含まれるスピン偏極を反映しないクーロン効果の寄与を、 E_1 - HH_1 励起子共鳴波長のみでなく、 E_1 - HH_1 と E_1 - LH_1 の両励起子共鳴波長周辺において抽出した。その結果、この波長域における時間

分解反射率信号は、スピン偏極を反映した位相空間のフィリング効果の寄与が小さく、スピン偏極を反映しないクーロン効果の寄与が支配的であることを明らかにした。

3.8. 参考文献

- [1] A. M. Weiner, J. P. Heritage, E. M. Kirschner, *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 1563 (1988).
- [2] C. Rulliere, “Femtosecond Laser Pulses,” Springer, (2004).
- [3] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura, and H. Ohno, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4196 (1999).
- [4] N. Yokota, K. Ikeda, Y. Nishizaki, S. Koh, and H. Kawaguchi, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **22**, 1689 (2010).
- [5] P. S. Eldridge, P. G. Lagoudakis, M. Henini, and R. T. Harley, *Phys. Rev. B* **81**, 033302 (2010).
- [6] W. H. Knox, R. L. Fork, M. C. Downer, D. A. B. Miller, D. S. Chemla, C. V. Shank, A. C. Gossard, and W. Wiegmann, *Phys. Rev. Lett.* **54**, 1306 (1985).
- [7] A. Malinowski, R. S. Britton, T. Grevatt, R. T. Harley, D. A. Ritchie, and M. Y. Simmons, *Phys. Rev. B* **62**, 13034 (2000).
- [8] T. C. Damen, L. Viña, J. E. Cunningham, J. Shah, and L. J. Sham, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3432 (1991).
- [9] S. Pfalz, R. Winkler, T. Nowitzki, D. Reuter, A. D. Wieck, D. Hägele, and M. Oestreich, *Phys. Rev. B* **71**, 165305 (2005).
- [10] L. Lombez, D. Lagarde, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, B. L. Liu, W. X. Wang, Q. K. Xue, and D. M. Chen, *Phys. Status Solidi C* **4**, 475 (2007).
- [11] A. Miller, P. Riblet, M. Mazilu, S. White, T. M. Holden, A. R. Cameron, and P. Perozzo, *J. Appl. Phys.* **86**, 3734 (1999).
- [12] T. M. Holden, G. T. Kennedy, A. R. Cameron, P. Riblet, and A. Miller, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 936 (1997).
- [13] M. I. Dyakonov, “Spin Physics in Semiconductors,” Springer, Berlin, (2008).

第4章 (110) MQW マイクロポストの電子スピン緩和時間測定

4.1. はじめに

スピン VCSEL は活性層における電子スピン偏極を制御することで、直線偏光だけでなく円偏光で発振可能な新しいレーザとして注目を集めている。図 4-1(a)に示すように、スピン VCSEL の活性層における電子がスピン偏極していない場合、 σ_+ と σ_- の各円偏光モードの利得曲線は同じであり、これは通常の VCSEL に相当する。一方、図 4-1(b)に示すように、活性層の電子がスピン偏極することで各円偏光モード間に利得差が生じる。この利得差は光学遷移選択則に従ってアップ(ダウン)スピン電子が σ_- (σ_+)で発光することに起因しており、これを利用すれば片側の円偏光モードのみを発振閾値に到達させることが可能である。このような円偏光モード間の利得差により、スピン VCSEL では円偏光発振や発振閾値の低減が可能である。

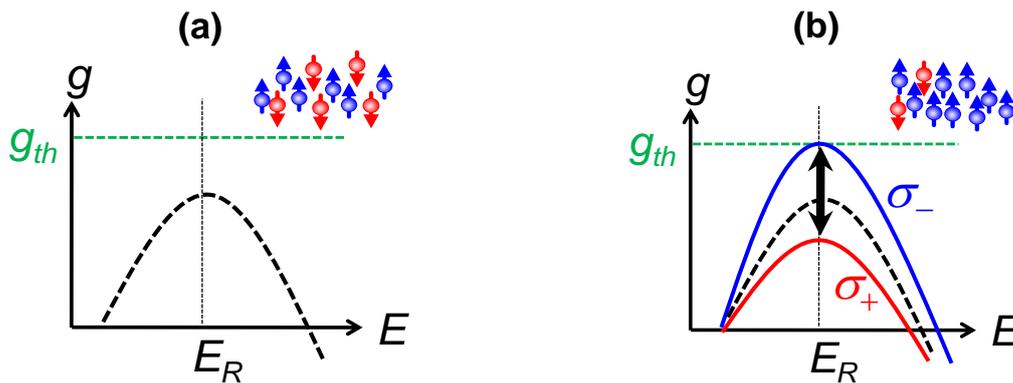


図 4-1 スピン VCSEL の利得曲線 (a)スピン無偏極状態、(b)スピン偏極状態

これまでに、光励起によって 0.9 以上の高い円偏光度でスピン VCSEL のレーザ発振が得られている[1, 2]。この高い円偏光度を維持したまま、図 4-2 に示すような二連続円偏光パルス励起を行い、スピン VCSEL の発振円偏光を 1 GHz でスイッチングすることに成功したという報告もある[3]。このような発振円偏光スイッチングを高速化することは、スピン VCSEL の光通信デバイスへの応用に向けて重要である。

そこで本研究では、スピン VCSEL の発振円偏光スイッチングを高速化するための方法について検討する。

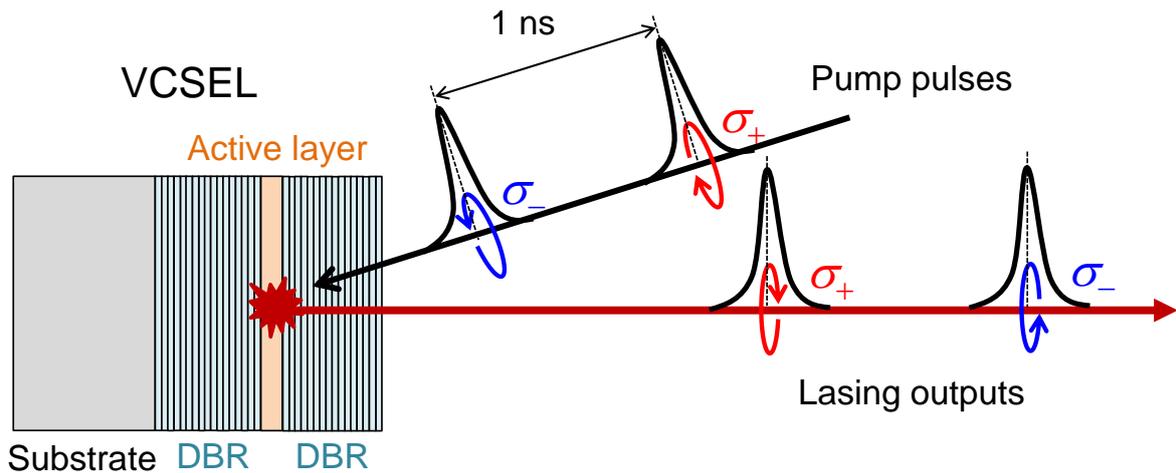


図 4-2 スピン VCSEL の発振円偏光スイッチング

スイッチング速度を制限する要因の一つは、スピン無偏極状態のキャリアが活性層に残留する効果である。文献[3]より引用した、二連続パルス励起によるスピン VCSEL の発振円偏光スイッチングのレート方程式解析結果を図 4-3 に示す。時間 0.5 ns において一度目のパルス励起(σ^-)が行われ、そこから 0.2 ns 後、または 1 ns 後に二度目のパルス励起(σ^+)が行われており、それぞれ解析した結果が両方とも図中に示されている。図 4-3(a)において、一度目のパルス励起(σ^-)によって VCSEL は σ^- で発振しており、そのときの円偏光度は 1 に近い。二度目のパルス励起(σ^+)では、励起の遅延時間が 1 ns の場合には σ^+ で発振しており、その時の円偏光度は 1 に近いが、遅延時間が 0.2 ns の場合には σ^+ と σ^- の両方の円偏光モードで発振しており、円偏光度は 0.4 以下の小さな値となっている。この結果を発振閾値電子密度 n_{th} で規格化された電子密度の時間変化(図 4-3(b))と比較すると、片側の円偏光モードで発振しているときには片側のスピン偏極電子密度のみが n_{th} を超えているが、両方の円偏光モードで発振している場合(二度目のパルス励起が 0.2 ns 後の場合)には、両方のスピン偏極電子密度が n_{th} を超えていることがわかる。これらの結果より、活性層に励起された電子密度を高速に減衰させることが、発振円偏光スイッチングの高速化に有効であると言える。また、上記の解析ではスピン VCSEL の活性層において長い τ_s (2.8 ns) が仮定されているため、短いキャリア寿命と長い τ_s を両立させることも重要である。

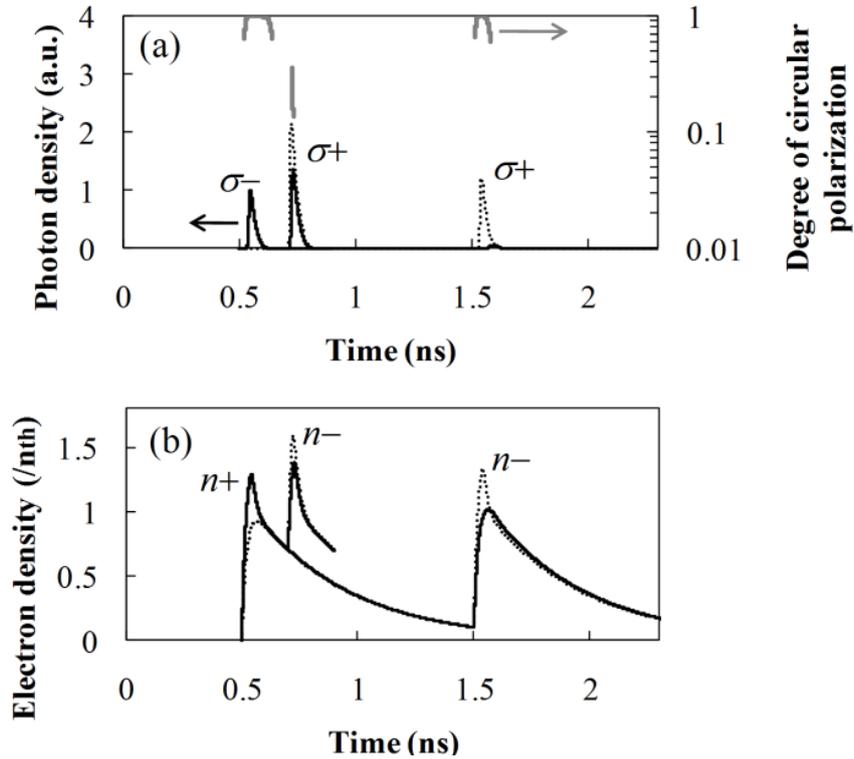


図 4-3 スピン VCSEL の発振円偏光スイッチング解析結果[3]
 (a)光子密度と円偏光度の時間変化、(b)電子密度の時間変化

キャリア寿命 τ_c の短縮方法として、マイクロポスト構造の導入が挙げられる [4, 5]。この方法は、ドライエッチング加工されたポスト側面の速い非発光表面再結合を利用することで、GaAs における τ_c を数十ピコ秒程度まで劇的に短縮可能であると同時に、将来的に微細化によるデバイスの集積化が期待できる。

そこで本研究では、スピン VCSEL の活性層に室温で τ_s の長い(110) MQW を用いることを視野に入れ、マイクロポスト構造をもつ(110) MQW の τ_c と τ_s を評価した。測定には注入した電子のスピンの偏極度が得られる偏光時間分解 PL 法と、高い時間分解能が得られる時間分解カー回転法をそれぞれ用いた。また、測定結果に基づいたレート方程式解析を行い、マイクロポスト構造をもつスピン VCSEL の発振円偏光スイッチング速度とその更なる高速化について議論した。

4.2. 偏光時間分解 PL 法によるキャリア寿命・電子スピン緩和時間評価

本節では、マイクロポスト構造をもつ GaAs(110) MQW と InGaAs(110) MQW の偏光時間分解 PL 測定結果について述べる。

4.2.1. サンプル構造

サンプル構造を図 4-4 に示す。GaAs(110)基板上に MBE 法によって結晶成長された GaAs/Al_{0.25}Ga_{0.75}As MQW と In_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs MQW を用いており、どちらも電子サイクロトロン共鳴反応性イオンエッチング(ECR-RIE)によって正方形断面をもつポスト構造が加工されている。どちらのサンプルも GaAs 基板までエッチングされており、MQW の側面は露出している。また、正方形断面をもつポストの一边の長さは 30 μm ~ 0.5 μm であり、これをポストサイズと定義する。ポストサイズ 0.5 μm の GaAs MQW における走査型電子顕微鏡(SEM)写真を図 4-5 に示す。垂直かつ平坦な側面をもつポスト構造が加工されていることがわかる。ここで、ポスト(非加工領域)の面密度は約 11%である。これらのサンプルは本研究室の西崎仁貴氏に作製して頂いた。

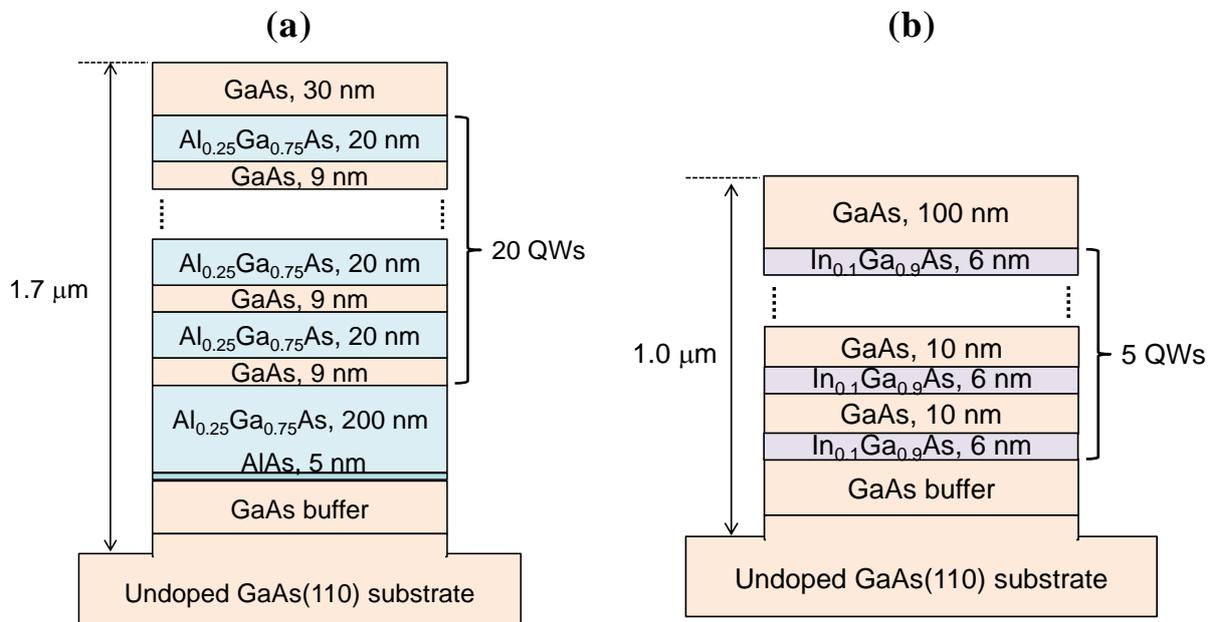


図 4-4 サンプル構造 (a)GaAs MQW、(b)InGaAs MQW

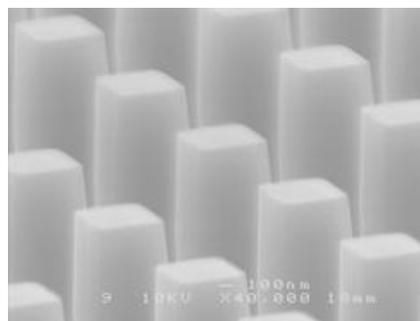


図 4-5 0.5 μm ポストの SEM 写真 (GaAs MQW)

4.2.2. 偏光時間分解 PL 測定

図 4-5 に示す偏光時間分解 PL 測定系を用いて τ_c と τ_s を測定した。パルス幅~80 fs、繰り返し周波数 80 MHz のモード同期チタンサファイアレーザから出力されたパルス光を、 $\lambda/4$ 板(QWP)を用いて円偏光に変換し、光学遷移選択則に従って MQW にスピン偏極電子を励起した。励起強度 1 mW、スポットサイズ~25 μm とし、MQW からの PL 強度が強くなるように、サンプルを 77 K に冷却して測定を行った。ここで、サイズが 30 μm ~ 5 μm のポストは、ポンプ光のスポットサイズ 25 μm に含まれるポストの数が単一になるように設計されている一方、4 μm 以下のサイズをもつポストでは複数のポストが含まれており、それらの特性が平均化されて測定される。また、励起波長は GaAs MQW において 730 nm、InGaAs MQW において 750 nm に設定した。サンプルからの PL を $\lambda/4$ 板を用いて互いに直交する直線偏光に変換した後、それらをビームディスプレーサによって空間的に分離し、各円偏光成分をストリークカメラで同時に時間分解した。サンプル表面で散乱されたポンプ光は LWPf で除去した。また、時間分解測定時には、GaAs バルク層からの PL を取り除き、QW における E_1 - HH_1 準位間の PL のみを切り出すため、半値幅約 10 nm のバンドパスフィルタ(BPF)を用いた。

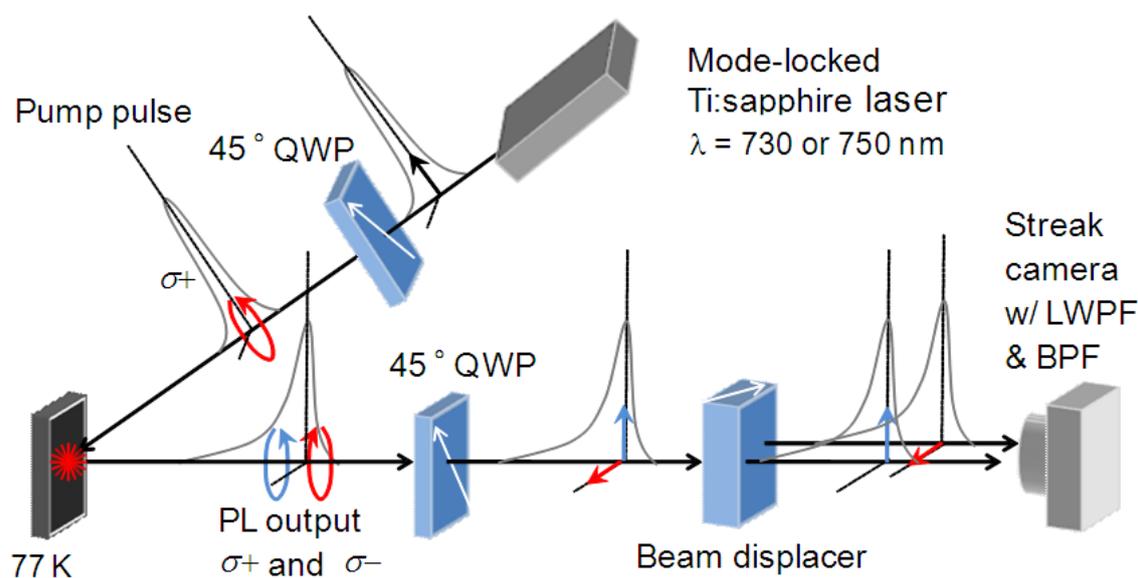


図 4-6 偏光時間分解 PL 測定系

4.2.3. 測定結果・考察

まず、各サンプルの PL スペクトルについて述べる。図 4-7(a)に示す GaAs MQW の PL スペクトルを見ると、加工前のウエハでは約 804 nm に QW の PL が強く得られているが、ポストサイズ 1 μm に加工することで QW の PL が弱くなり、代わりにバルクの GaAs による PL が強くなっていることがわかる。この主な原因は、ポストの面密度が 11% と小さく、MQW を含む領域の面積よりも露出した GaAs 基板の占める面積が大きいためである。次に、図 4-7(b)に示す InGaAs MQW の PL スペクトルを見ると、GaAs MQW の場合と同様に、ポストサイズ 1 μm に加工することで露出した GaAs 基板からの PL が強くなっていることがわかる。

このように、両サンプルにおいてポスト加工により GaAs 基板の PL が QW の PL よりも強くなるが、前に述べたとおり、時間分解測定時には BPF を用いて QW からの PL を切り出して測定した。

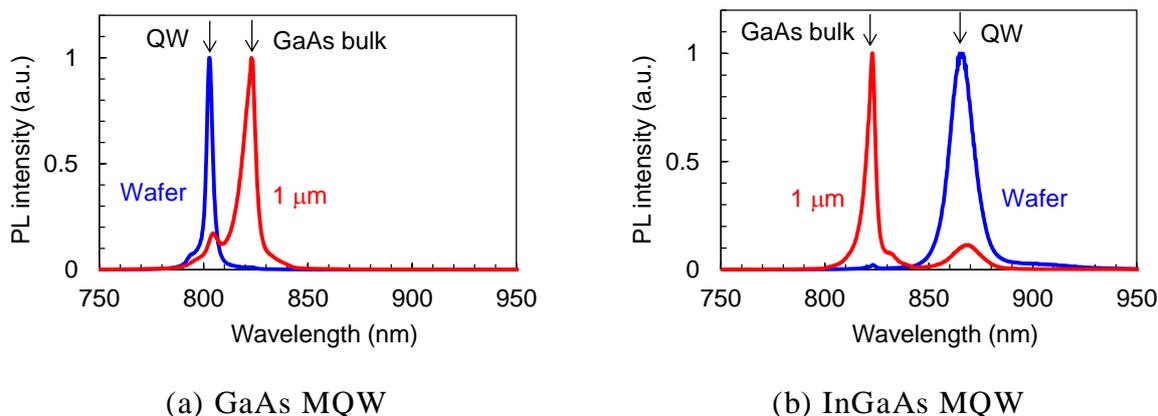


図 4-7 PL スペクトルの測定結果

各サンプルにおける全 PL 強度の時間変化を図 4-8(a)、(b)にそれぞれ示す。ここで、全 PL 強度の寿命は τ_c に相当する。GaAs MQW と InGaAs MQW の両方において、ポスト加工前のウエハの τ_c が最も長く、ポストサイズが小さくなるにつれて τ_c が短縮される様子がわかる。また、図 4-8(a)において、1 μm のポストでは全 PL 強度の傾きが単一指数関数型でなく、寿命の長い成分が含まれているが、これは図 4-7(a)の PL スペクトルにも表れていた、ポスト加工によって露出した GaAs 基板からの PL によるものである。実際に、MQW の無い領域で露出した GaAs 基板の τ_c を測定するとその値は 0.13 ns であり、これは 1 μm の

ポストに含まれる長い寿命成分(0.12 ns)と同等である。

次に、スピン偏極度 P の時間変化を図 4-9 に示す。ポストサイズが小さくなるにつれて短縮された τ_c とは対照的に、 P の時間変化は傾きがほぼ等しく、 τ_s は維持されていることがわかる。ただし、GaAs MQW に比べて InGaAs MQW では、異なるポストサイズの間で初期の P の大きさに違いが見られた。

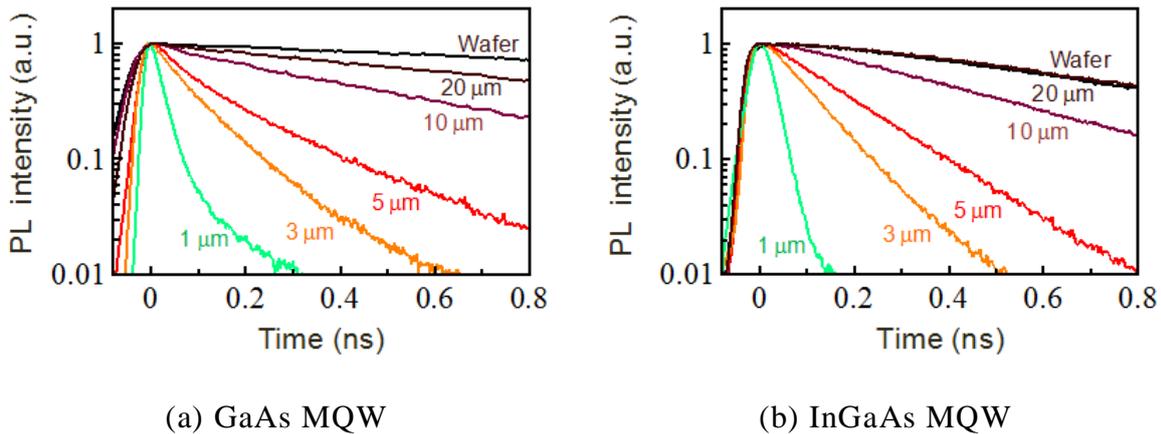


図 4-8 PL 強度の時間変化

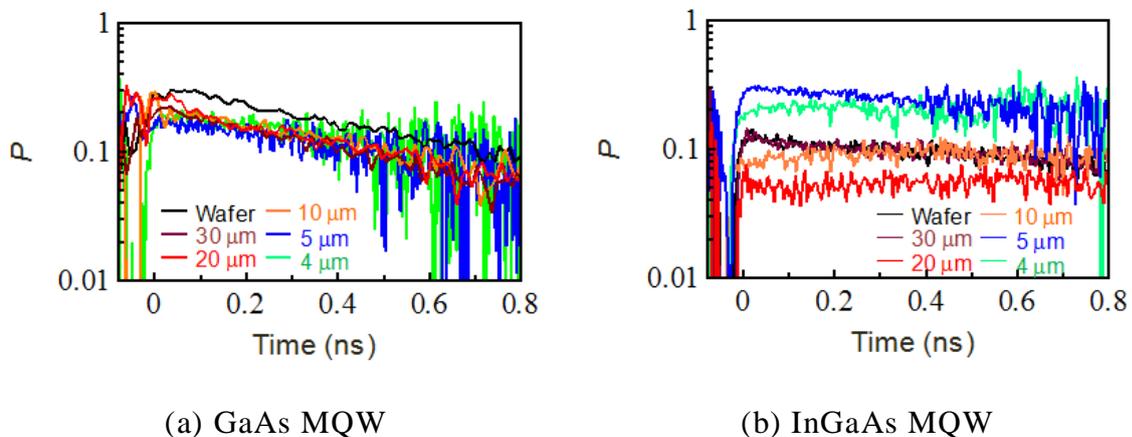


図 4-9 スピン偏極度 P の時間変化

本測定では、励起波長を InGaAs 井戸層と GaAs 障壁層の両方を励起する波長 (750 nm) に設定することで、障壁層から井戸層へキャリアが流れ込み、井戸層からの発光強度が大きくなることを利用したが、この効果は初期スピン偏極度 P_0 に影響を与える可能性がある。そこで、励起パルスの波長幅を 1.1 nm (時間幅 1.8 ps) に制限した上で、その中心波長を InGaAs 井戸層のみを励起可能な波長である 840 nm に設定し、再度 InGaAs MQW における各ポストの P_0 を測定し

た。測定結果を図 4-10(a)に示す。励起波長 750 nm の場合と同様に、 P_0 のポストサイズ依存性は見られず、同じポストサイズにおいて光学系のアラインメントの再調節に対する P_0 の再現性も得られていない。このように、 P_0 はポストサイズに対する依存性を示さず、その値のばらつきは障壁層から井戸層へのキャリアの流れ込みによるものではなかった。一方、加工前の InGaAs MQW ウエハにおいて、互いに 100 μm 離れた励起場所 (Spot 1, Spot 2) において測定した P_0 は、それぞれ 0.29、0.19 であり、ウエハの面内で P_0 は変化した。Spot 1 と Spot 2 における PL スペクトルを図 4-10(b)に示す。波長 865 nm の鋭いピークが InGaAs QW からの PL であり、880 nm ~ 940 nm に見られる広い幅をもつ PL は、ウエハの欠陥準位に起因したものであると考えられる。このような PL 成分の寄与が Spot 1 と Spot 2 で異なることから、InGaAs MQW ウエハの面内に存在する欠陥準位の不均一性が P_0 を変化させる原因の一つであると考えられる。

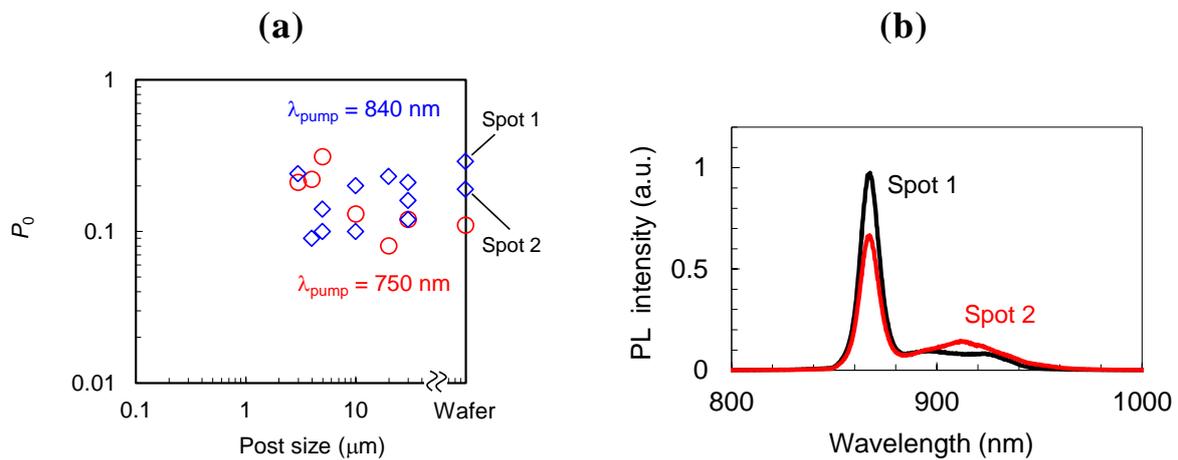


図 4-10 InGaAs MQW における(a)ポストサイズと P_0 の関係、(b)PL スペクトル

各サンプルにおいて測定した τ_c と τ_s のポストサイズ依存性を図 4-11 に示す。ここで、どちらのサンプルにおいても数 μm 以下の小さなポストでは τ_s が得られていない。ストリークカメラの時間分解能 (~25 ps) 付近まで τ_c が短縮されると、PL が減衰するまでに得られるデータ点数は少なくなり、また、PL が弱くなると P はノイズを多く含むようになる。このような P の時間変化に単一指数関数をフィッティングして傾きを求めることは困難であるため、小さなポストにおいて τ_s が得られていない。

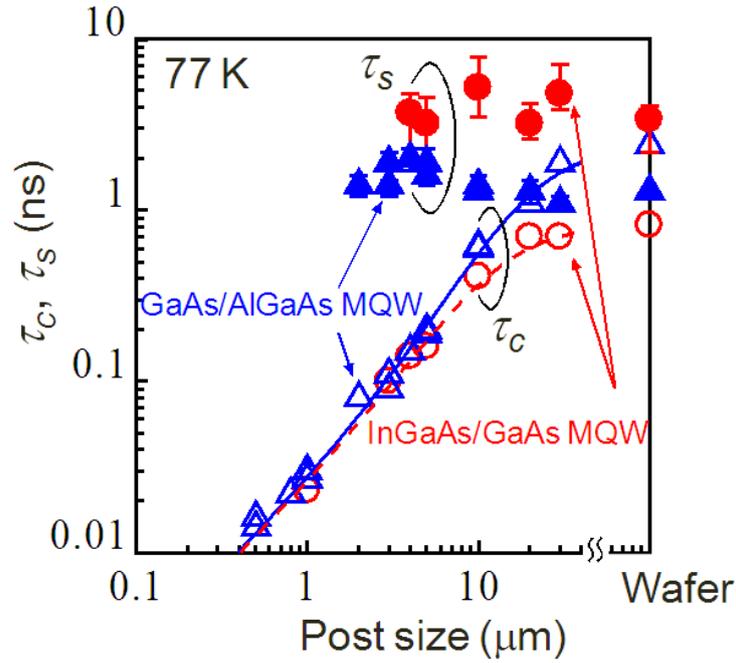


図 4-11 キャリア寿命 τ_c と電子スピン緩和時間 τ_s のポストサイズ依存性

次に、得られた τ_c のポストサイズ依存性について考察するため、キャリアの拡散モデル[4,5]によって解析を行った。まず、拡散を考慮したキャリアに対するレート方程式は次式で表される。

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D\nabla^2 n - \frac{n}{\tau_{wafer}} \quad (4-1)$$

ここで、 n はキャリア密度、 D はキャリアの拡散定数、 τ_{wafer} はポスト加工前の MQW ウエハにおけるキャリア寿命である。式(4-1)において、右辺第 1 項はキャリアの濃度勾配による拡散効果を表し、第 2 項はキャリアの再結合効果を表している。表面再結合速度を S と定義し、ポスト構造が円柱型であるという近似の下で次の境界条件、

$$D \frac{\partial n}{\partial r} + Sn = 0 \quad (4-2)$$

を適用すると、式(4-1)の解は固有モードの和として、

$$n(r, t) = \sum_{i=1}^{\infty} a_i e^{-\Gamma_i t} J_0\left(\frac{x_i r}{R}\right) \quad (4-3)$$

と表され、固有値 Γ_i は次式で表される。

$$\Gamma_i = \tau_{wafer}^{-1} + \frac{Dx_i^2}{R^2} \quad (4-4)$$

ここで、 R は円柱型を仮定したポストの半径、 a_i は初期状態 $n(r, t=0)$ で決まる

係数、 x_i は次に示すベッセル方程式の解を表す。

$$J_0(x) = \left(\frac{Dx}{SR} \right) J_1(x) \quad (4-5)$$

ポストを均一に光励起しているという仮定のもとで、式(4-4)において $i = 1$ の固有値 Γ_1 のみ考慮すれば良い近似となるため、 Γ_1 が各ポストサイズにおける τ_c の測定値と一致するように、最小二乗法によってフィッティングを行い、最も一致したフィッティング曲線を図 4-11 に実線(GaAs MQW)と点線(InGaAs MQW)で示した。GaAs MQW のフィッティング曲線は、ポストサイズが $3 \mu\text{m}$ 以下の範囲と $3 \mu\text{m} \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲で傾きが異なっている。これは、ポストサイズが $3 \mu\text{m} \sim 10 \mu\text{m}$ の範囲であれば τ_c が D とポストサイズの 2 乗によって決定される一方で、 $3 \mu\text{m}$ 以下の微小ポストでは τ_c が S とポストサイズによって決定されていることに起因する[5]。すなわち、ポストが微小化されるとそのキャリア寿命は、非発光表面再結合が生じるポスト側面へキャリアが拡散によって到達するまでの所要時間ではなく、非発光表面再結合の速度 S によって支配される。フィッティングから両サンプルにおける S と D を求めた結果、GaAs MQW において、 $S \sim 1.0 \times 10^6 \text{ cm/s}$ 、 $D \sim 80 \text{ cm}^2/\text{s}$ が得られ、InGaAs MQW において $S \sim 1.1 \times 10^6 \text{ cm/s}$ 、 $D \sim 90 \text{ cm}^2/\text{s}$ が得られた。ここで、得られた S の値は、ドライエッチングされた III-V 族化合物半導体の典型的な値 $10^4 \sim 10^6 \text{ cm/s}$ の範囲[4,5]では比較的大きな値である。二つのサンプルにおいて、 τ_c のポストサイズ依存性がどちらも同じ傾向を示し、 S の値が近いことから、両サンプルのポスト側面は同様な荒れを有していると考えられる。

次に、どちらのサンプルでもポストサイズによらずほぼ一定である τ_s について述べる。(100) QW の場合、QW をチャンネル構造に加工することで、チャンネル側面における反射や散乱によって DP スピン緩和機構が抑制されることが数値計算によって予想され[6]、 μm オーダの InGaAs QW チャンネルにおいて実証されている[7,8]。しかしながら、第 2 章で述べたように、(110) QW では DP 機構の起源である有効磁場 B_{BIA} の方向が電子スピンの方向と平行であるため歳差運動を起こさず、DP 機構に起因した τ_s のポストサイズ依存性は無いと考えられる。また、本サンプルでは表面再結合速度 S が大きいため、ポスト側面における反射や散乱が抑制されて、微小化による影響がより小さくなっていることも考えられる。

GaAs(110)基板上 GaAs MQW と InGaAs MQW におけるナノ秒オーダの長い τ_s は、ポストサイズを数 μm 程度まで微小化しても維持されることがわかった。しかし、 τ_c が数十 ps 程度まで短縮される数 μm 以下の微小ポストでは、測定に

用いたストリークカメラの時間分解能(~25 ps)が足りず、 τ_s は得られなかった。スピン VCSEL の発振円偏光スイッチングを大幅に高速化するには、 τ_c が劇的に短縮されるサブミクロンオーダーの微小ポスト構造が重要であるため、次節では、短い τ_c の間に τ_s を測定可能な高時間分解能の測定系を用いた τ_s の測定結果について述べる。

4.3. 時間分解カー回転法によるキャリア寿命・電子スピン緩和時間評価

本節では、スピン VCSEL における発振円偏光スイッチングを劇的に高速化する上で重要な、サブミクロンサイズのポストにおける τ_c と τ_s を、時間分解カー回転法によって測定した結果について述べる。

4.3.1. サンプル構造

前節で述べたサンプルはポスト(非加工部)の面密度が約 11%と小さく、 τ_s の測定に必要な信号の S/N が十分に得られなかった。そこで、図 4-4(a)に示した GaAs/AlGaAs(110) MQW を用い、ポストの加工パターンのみを変更して再度サンプルを作製した。以下にサンプルの作製手順を示す。

- ① レジスト(FOX-16)をウエハ上にスピコートする (4000 rpm, 1 分間)。
- ② ホットプレート上でベーキングする (90°C, 5 分間)。
- ③ 電子線描画装置でレジストを露光する。
- ④ 現像液(TMAH)で現像する (1 分間)。
- ⑤ ECR-RIE でエッチングする (ガス流量 : N₂ 4.0 sccm, Cl₂ 4.4 sccm)。
- ⑥ BHF でレジストを除去する (20 秒間)。

サンプルを作製するにあたって、電子線描画装置と ECR-RIE 装置の操作を本研究室の常深義博氏に依頼した。

図 4-12 にポストの加工パターンを示す。0.5 μm ~ 30 μm のポストを 100 μm 角の領域にそれぞれ配置している。サイズが 10 μm 以上の大きなポストは単一のポストのみを評価できるように各ポストを孤立させており、5 μm 以下の小さなポストでは、ポストの面密度が約 44%になるように設計している。作製したサンプルの SEM 画像を図 4-12 に示す。ポストの面密度が高くても微細なポスト形状が得られていることがわかる。

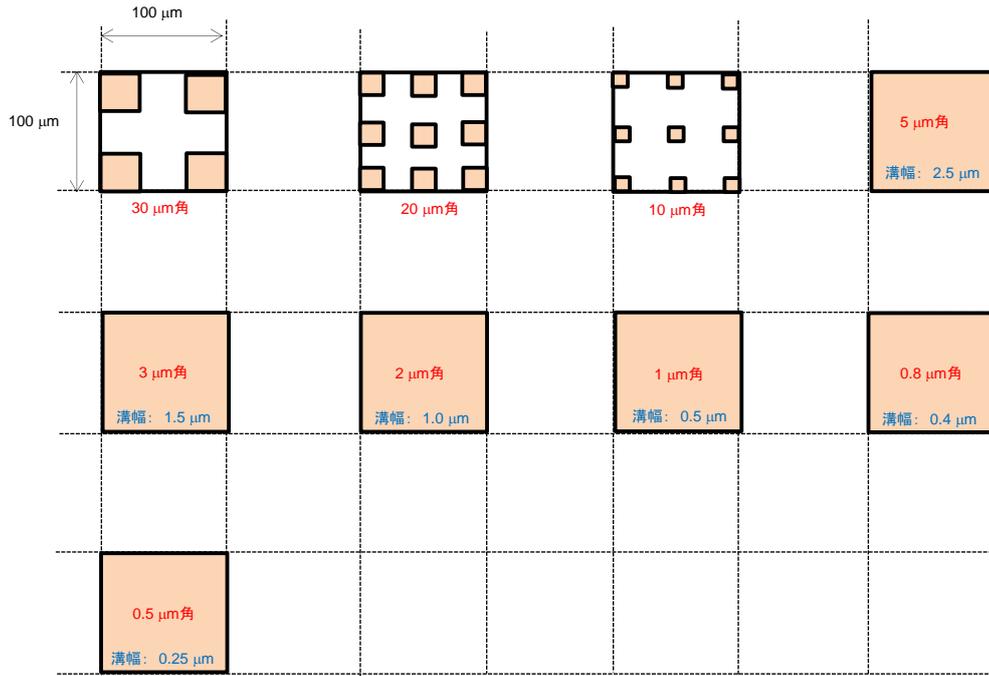
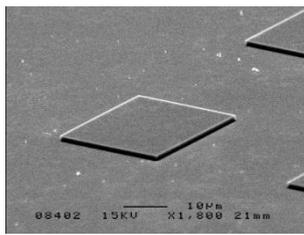
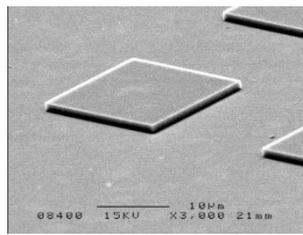


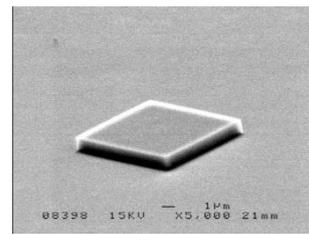
図 4-12 ポストの加工パターン



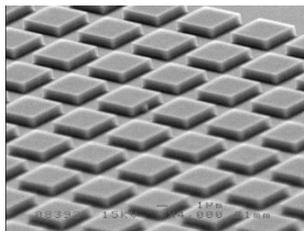
(a) 30 μm



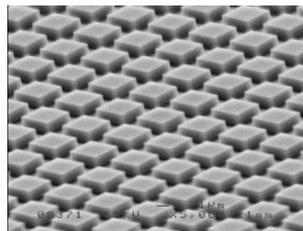
(b) 20 μm



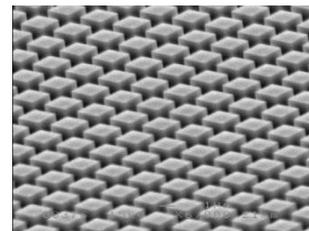
(c) 10 μm



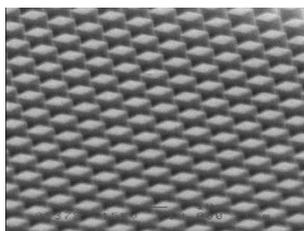
(d) 5 μm



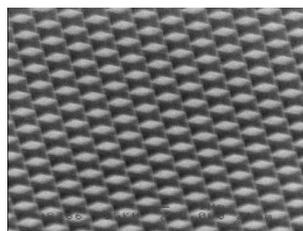
(e) 3 μm



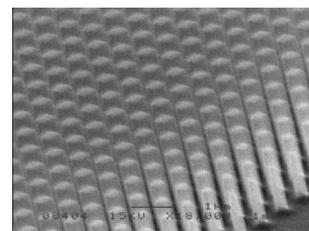
(f) 2 μm



(g) 1 μm



(h) 0.8 μm



(i) 0.5 μm

図 4-13 マイクロポストの SEM 画像

4.3.2. 時間分解カー回転測定

時間分解カー回転測定系を図 4-14 に示す。クライオスタットで 77 K に冷却されたサンプルは、繰り返し周波数 80 MHz のモード同期チタンサファイアレーザのパルス光によって励起される。ここで、サンプルを冷却する理由は、 E_1 -HH₁ 励起子の吸収量を増大させることで測定信号の SN 比を向上させるためである。ポンプ光の偏光は σ_+ または σ_- の円偏光とし、プローブ光については 90° の直線偏光とした。30 μm のポストにおいて測定した PLE スペクトル(図 4-15)を参考に、ポンプ光の中心波長は E_1 -HH₁ 励起子が共鳴励起される 801 nm に設定し、プローブ光については MQW 層における吸収が無視できる 805 nm に設定した。また、ポンプ光とプローブ光の設定については表 4-1 にまとめた。測定系の時間分解能は、ポンプ光とプローブ光においてパルス時間幅の大きい方によって決まるため、本測定系ではプローブ光のパルス時間幅 1.3 ps が時間分解能となる。

サンプル表面で反射したプローブ光の偏光回転角は、PBS とバランストディテクタを用いて測定した。ここで、測定信号はポンプ光とプローブ光の強度変調周波数の和である 3.3 kHz においてロックイン検出した。本測定で検出される偏光回転角には、スピン偏極電子密度を反映したカー回転角 $\Delta\theta_{Kerr}$ に加えて、(110) QW に特有の複屈折を反映した偏光回転角 $\Delta\theta_{biref}$ が含まれている。 $\Delta\theta_{biref}$ は電子密度を反映するため、これを利用することにより、偏光回転角のみを測定するだけで τ_c と τ_s を両方得ることができる。 $\Delta\theta_{biref}$ と $\Delta\theta_{Kerr}$ はそれぞれ、 $\Delta\theta_{biref}(t) = A \exp(-t/\tau_c)$ 、 $\Delta\theta_{Kerr}(t) = B \exp\{-(1/\tau_c + 2/\tau_s)t\}$ で表される。ここで、 A と B は任意の定数である。これらから得られる $\Delta\theta_{Kerr}(t)/\Delta\theta_{biref}(t) \propto \exp(-2t/\tau_s)$ の関係を利用すると、この関数の傾きから τ_s が直接求まる。プローブ光のスポットサイズ(17 μm)に含まれるポストは、サイズが 10 μm 以上の大きなポストの場合では単一であるが、5 μm 以下の小さなポストでは複数個含まれ、それらの測定結果が平均化される。

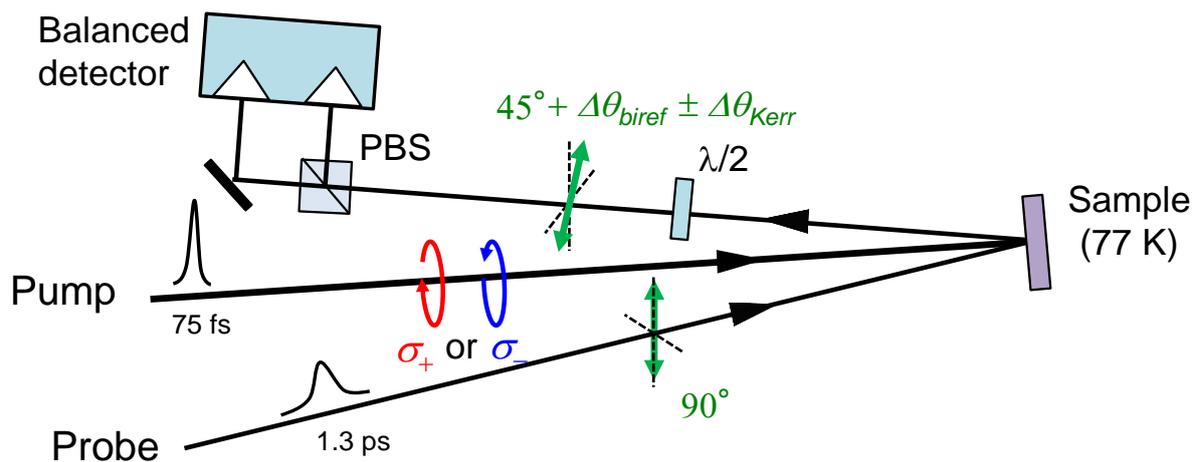


図 4-14 時間分解カー回転測定系

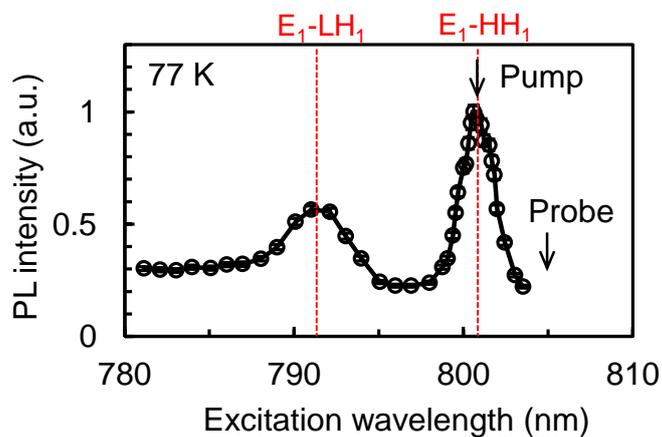


図 4-15 PLE スペクトル (ポストサイズ 30 μm)

表 4-1 ポンプ光とプローブ光の設定

設定項目	設定値	
	ポンプ光	プローブ光
中心波長	801 nm	805 nm
時間幅	75 fs	1.3 ps
波長幅	11 nm	1.5 nm
平均強度	1 mW	200 μW
スポットサイズ	30 μm	17 μm
強度変調周波数	1.8 kHz	1.5 kHz

各ポストサイズにおいて測定した $\Delta\theta_{biref}$ と $\Delta\theta_{Kerr}/\Delta\theta_{biref}$ の時間変化を図4-16に示す。ポストサイズが小さくなるにつれて、ポスト側面の非発光表面再結合によって $\Delta\theta_{biref}$ の寿命が短く、すなわち、 τ_c が短縮されることがわかる。この傾向は、前節で述べた偏光時間分解 PL 法を用いた測定結果と同じである。 τ_s を反映する $\Delta\theta_{Kerr}/\Delta\theta_{biref}$ の寿命は、ポストサイズが小さくなっても一定であることがわかる。ここで、偏光時間分解 PL 法では τ_s が得られなかった $2\ \mu\text{m}$ 以下の微小なポストでも $\Delta\theta_{Kerr}/\Delta\theta_{biref}$ の時間変化が得られている。これは時間分解能が $1.3\ \text{ps}$ と十分に高いため、キャリア寿命の間に電子スピンの緩和を調べることが可能になったためである。

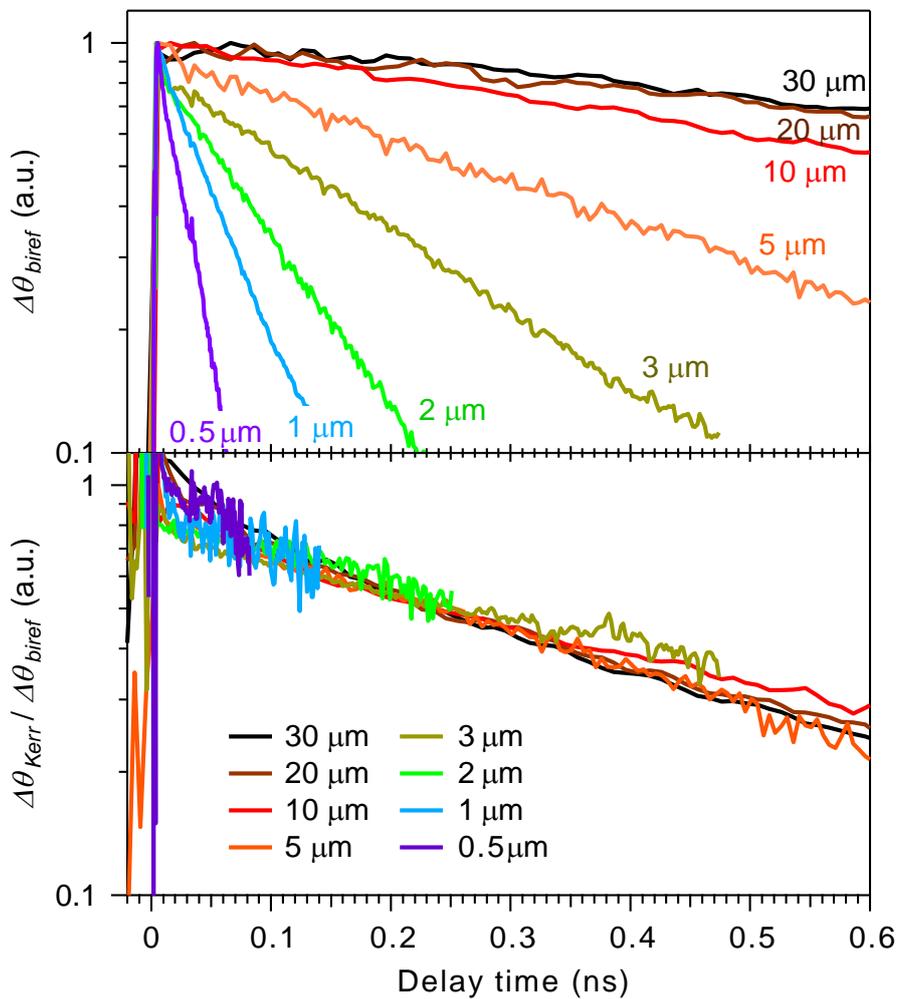


図 4-16 $\Delta\theta_{biref}$ と $\Delta\theta_{Kerr}/\Delta\theta_{biref}$ の時間変化

τ_c と τ_s のポストサイズ依存性を図 4-17 に示す。前節で述べたキャリアの拡散方程式解析を同様に行い、測定した τ_c のポストサイズ依存性を最も再現する S と D を算出した。最も一致したフィッティング曲線を図中に示しており、この

時の $S = 4.3 \times 10^5 \text{ cm/s}$ は前節で用いたサンプルの値($1.0 \times 10^6 \text{ cm/s}$)に比べてわずかに小さい。これは変更したドライエッチング加工条件がポストの表面再結合密度を低減させるように働いたためである。

図 4-17 より、ポストサイズを $30 \mu\text{m}$ から $0.5 \mu\text{m}$ まで微小化することで、 τ_c は 1.3 ns から 27 ps まで劇的に短縮される一方、 τ_s は τ_c に比べて値の変化が小さいことがわかる。ポストサイズ $30 \mu\text{m}$ における τ_s は 1.2 ns であり、サイズが小さくなってもその値は概ね維持されるが、サイズ $1 \mu\text{m}$ 、 $0.5 \mu\text{m}$ における τ_s はそれぞれ 0.88 ns 、 0.74 ns とやや短縮されており、この理由は現在わかっていない。先に述べたように、(110) QW では DP 機構が抑制されているため、 τ_s はポストサイズに依存性しないことが予想されたが、 $1 \mu\text{m}$ 以下の微小なポスト構造をもつ(110) QW では、新たなスピン緩和の要因が寄与していると考えられる。

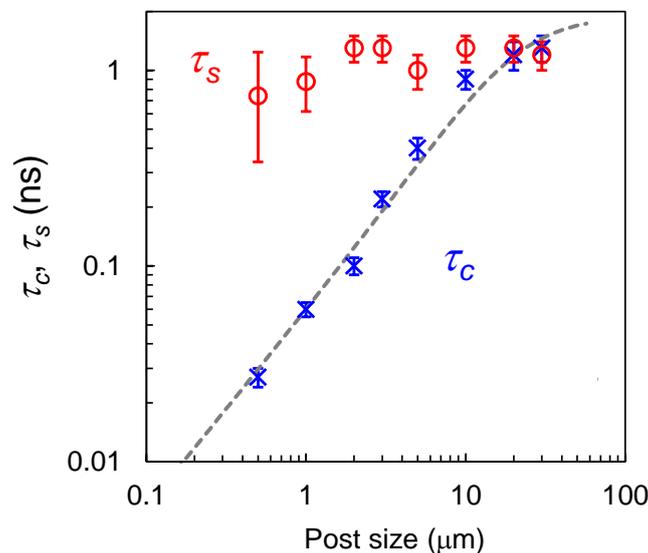


図 4-17 τ_c の τ_s ポストサイズ依存性

4.4. レート方程式によるスピン面発光半導体レーザの発振円偏光スイッチング解析

前節にて述べた通り、GaAs(110) MQW をポスト加工することで、長い τ_s を維持したまま τ_c のみを短縮することが可能であることがわかった。ここでは、測定結果に基づいたレート方程式解析を行い、GaAs(110) MQW を活性層に用いたスピン VCSEL にポスト構造を導入することで、発振円偏光スイッチングをどの程度まで高速化可能であるかを見積もった。また、 τ_c の短縮とは異なるスイッチングの高速化方法についても考察した。

4.4.1. 解析モデル

発振円偏光スイッチングの解析には、スピン VCSEL をモデル化したレート方程式(4-6)~(4-8)を用いた[9]。ここで、用いたパラメータの意味と値は表 4-2 に示している。

式(4-6)は共振器内におけるスピン偏極電子密度 n_c^\pm の時間変化を表し、電子の MQW への捕獲とスピン緩和が考慮されている。MQW におけるスピン偏極電子密度 n^\pm は式(4-7)で表され、共振器内で捕獲された電子による増加分と、誘導放出・再結合による減少分が反映されている。また、ここでも電子のスピン緩和が考慮される。式(4-8)は n^\pm が誘導放出や自然放出によって円偏光光子密度 S^\pm を生じ、それが光子寿命にしたがって減衰する効果をモデル化している。これらのレート方程式を 4 次の Runge-Kutta 法を用いて数値解析した。

$$\frac{\partial n_c^\pm}{\partial t} = -\frac{n_c^\pm}{\tau_{cap}} \pm \left(\frac{n_c^-}{\tau_s} - \frac{n_c^+}{\tau_s} \right) \quad (4-6)$$

$$\frac{\partial n^\pm}{\partial t} = \frac{V_c}{V_{MQW}} \cdot \frac{n_c^\pm}{\tau_{cap}} - v_g \frac{dg}{dn} \frac{n^\pm - n_{tr}}{1 + \varepsilon S^\pm} S^\mp - \frac{n^\pm}{\tau_c} \pm \left(\frac{n^-}{\tau_s} - \frac{n^+}{\tau_s} \right) \quad (4-7)$$

$$\frac{\partial S^\pm}{\partial t} = \Gamma v_g \frac{dg}{dn} \frac{n^\mp - n_{tr}}{1 + \varepsilon S^\pm} S^\pm + \Gamma \beta \frac{n^\mp}{\tau_c} - \frac{S^\pm}{\tau_{ph}} \quad (4-8)$$

表 4-2 に示す通り、 τ_c と τ_s は時間分解カー回転法による GaAs(110) MQW マイクロポストの測定値を用いた。本解析では、スピン VCSEL をポスト加工する効果が τ_c と τ_s のポストサイズ依存性によって与えられる。共振器体積 V_c 、MQW 体積 V_{MQW} 、微分利得 dg/dn 、透明キャリア密度 n_{tr} 、利得飽和係数 ε については、本研究室において作製された GaAs/AlGaAs(110) VCSEL の構造を参考に行っている[2]。その他のパラメータについては、文献[9]の値を引用した。計算の時間間隔は 0.1 ps であり、 n_c^\pm を注入する励起パルスはデルタ関数として与えているため、励起パルス幅は約 100 fs に相当する。注入される電子の初期スピン偏極度 P_0 は、指摘がない限り 0.2 を用いている。この値は、4.2 節で述べた GaAs(110) MQW マイクロポストにおいて、偏光時間分解 PL 測定によって得られた典型的な値である。

表 4-2 レート方程式に用いたパラメータ

記号	意味	値
V_c	共振器体積	$2.3 \times 10^{-10} \text{ cm}^3$
V_{MQW}	MQW 体積	$4.4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3$
τ_{cap}	キャリア捕捉時間	20 ps
τ_s	電子スピン緩和時間	測定値
τ_c	キャリア寿命	測定値
τ_{ph}	光子寿命	1.0 ps
v_g	群速度	$0.86 \times 10^{10} \text{ cm/s}$
dg/dn	微分利得	$1.0 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$
n_{tr}	透明キャリア密度	$9.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$
ε	利得飽和係数	$4.0 \times 10^{-16} \text{ cm}^3$
Γ	閉じ込め係数	0.03
β	自然放出光係数	1.7×10^{-4}

4.4.2. 励起パワーとレーザ出力の関係

まず、ポストサイズ $0.5 \mu\text{m}$ の VCSEL を単一の円偏光パルス($\sigma+$)で励起した場合について解析した。この時の励起パワーに対するレーザ出力と円偏光度 $P_c = (I_{\sigma+} - I_{\sigma-}) / (I_{\sigma+} + I_{\sigma-})$ の関係を図 4-18 に示す。ここで、 $P_0 = 0$ と $P_0 = 0.2$ の場合について解析した結果を両方示している。図 4-18 より、注入した電子がスピン偏極することで、 $\sigma+$ と $\sigma-$ の各円偏光モードの発振閾値に差が生じていることがわかる。これは図 4-1 で示したように、電子がスピン偏極することで光学遷移選択則に従った各円偏光モード間の利得差が生じるためである。主に片側の円偏光モードを発振させることで 1 に近い P_c が得られていることがわかる。VCSEL の発振円偏光スイッチングについて解析する場合は、まず図 4-18 に示すような $P_0 = 0$ における発振閾値 I_{th} を調べ、その値に合わせてポンプ光の励起パワーを設定した。

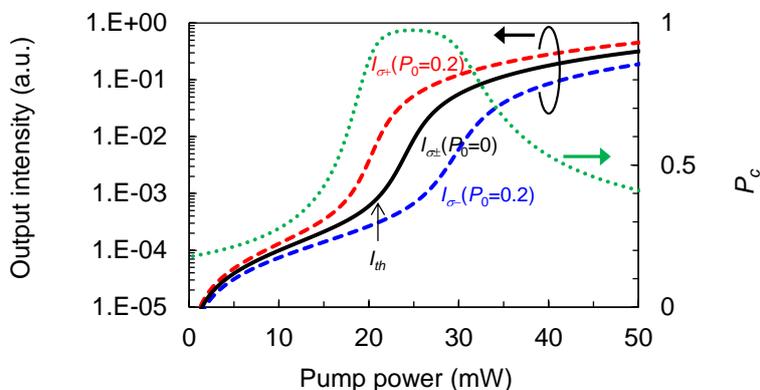


図 4-18 励起パワーに対するレーザ出力と P_c の関係

4.4.3. 円偏光レーザ出力と電子密度の時間変化

ポストサイズ $0.5 \mu\text{m}$ の VCSEL を、 1 ns 間隔(1 GHz)で交互に切り替わる円偏光パルスで励起した時の、VCSEL 出力と閾値電子密度 n_{th} で規格化された電子密度の時間変化を図 4-19 に示す。VCSEL はポンプ光と同じ円偏光のモードで発振しており、その時の P_c は 1 に近い値を示している。ポンプ光が切り替わるたびに発振円偏光モードも切り替わり、 1 GHz に相当するスイッチング動作が得られていることがわかる。また、電子密度の時間変化を見ると、パルス励起直後に n_+ または n_- のどちらか一方のみが n_{th} を超えており、パルス励起間隔である 1 ns 後には十分に減衰していることがわかる。

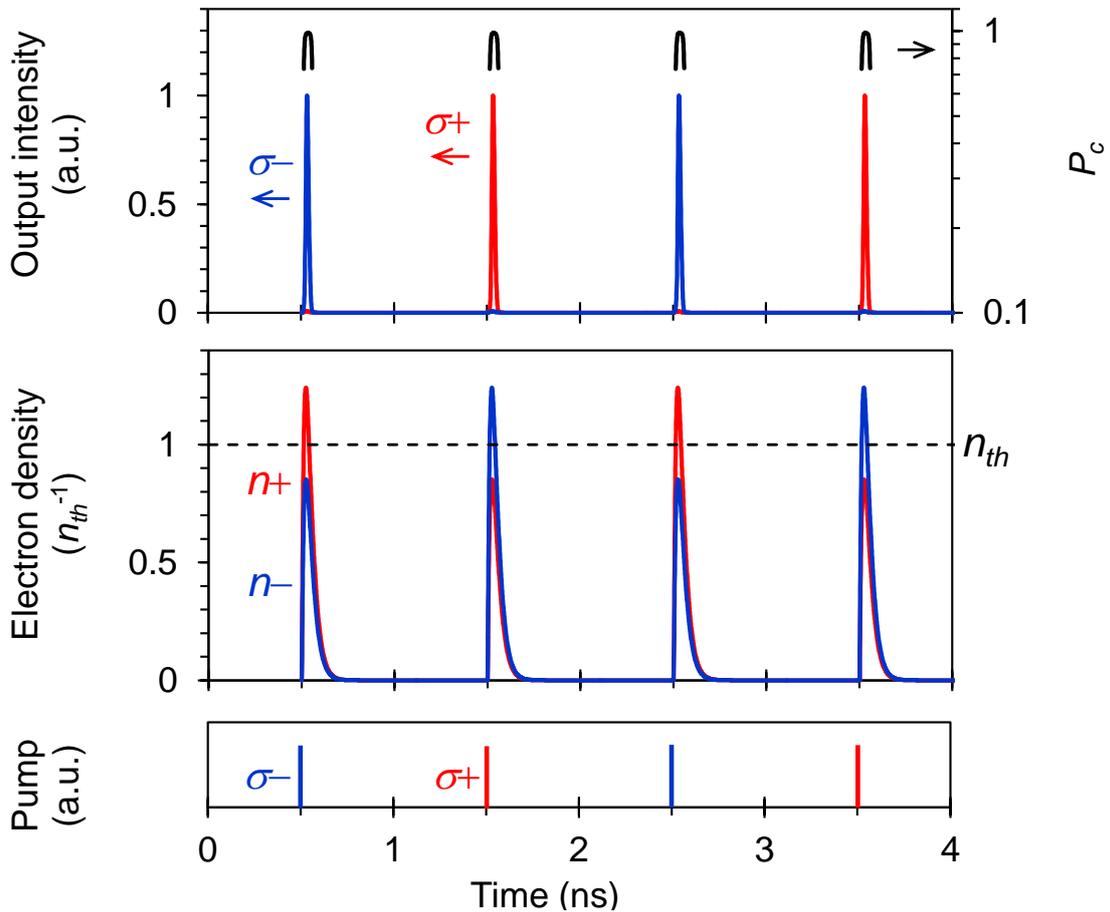


図 4-19 $0.5 \mu\text{m}$ ポスト VCSEL の発振円偏光スイッチング解析結果(1 GHz)

次に、このような発振円偏光スイッチングをどの程度まで高速化可能であるかどうかを見積もった。ポストサイズ $0.5 \mu\text{m}$ の VCSEL について解析した、スイッチング速度と P_c の関係を図 4-20 に示す。この解析では、共振器内のキャリア密度が定常状態と見なせる 20 番目のパルス励起後に、VCSEL の全光出力強度が最大となる時間において P_c を調べ、 $P_c > 0.9$ を満たす最大のスイッチング速度を調べている。ここで、 $P_c > 0.9$ の条件は偏光消光比 13 dB に相当し、直接変調方式で要求される一般的な消光比(9~14 dB)の範囲内である[10]。図 4-20 より、 $P_c > 0.9$ を満たす最大のスイッチング速度は 13 GHz であり、それよりもスイッチングを高速化しようとするれば P_c が急激に低下することがわかる。

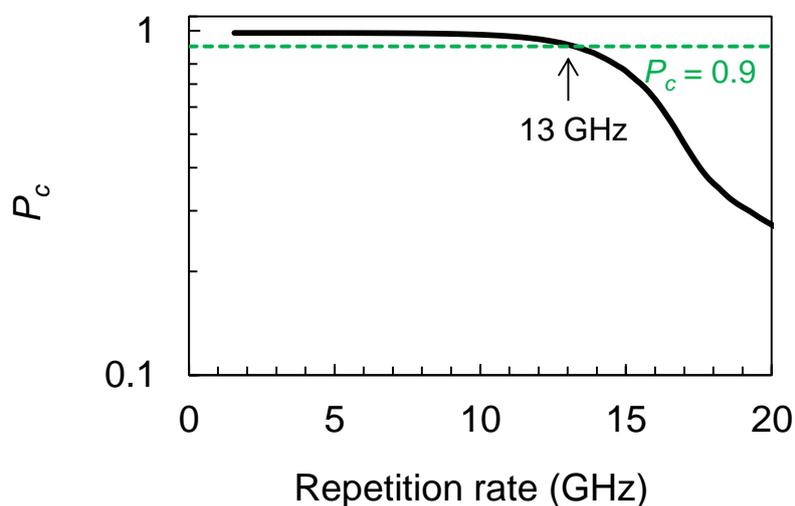


図 4-20 $0.5 \mu\text{m}$ ポスト VCSEL におけるスイッチング速度と P_c の関係

ポストサイズ $0.5 \mu\text{m}$ の VCSEL を、 77 ps 間隔(13 GHz)で交互に切り替わる円偏光パルスで励起した時の、VCSEL 出力と電子密度の時間変化を図 4-21 に示す。図 4-19 で示した 1 GHz における解析結果とは異なり、2 度目以降のパルス励起後には電子が蓄積されており、その結果 n_+ と n_- の両電子密度が n_{th} を超えていることがわかる。電子の蓄積効果は、1 度目のパルス励起後に得られる VCSEL の出力光強度が 2 度目以降に比べて小さいことから明らかである。しかしながら、主に片側の円偏光モードで発振しているため、各円偏光パルス励起後の P_c は 0.9 以上の高い値を維持している。

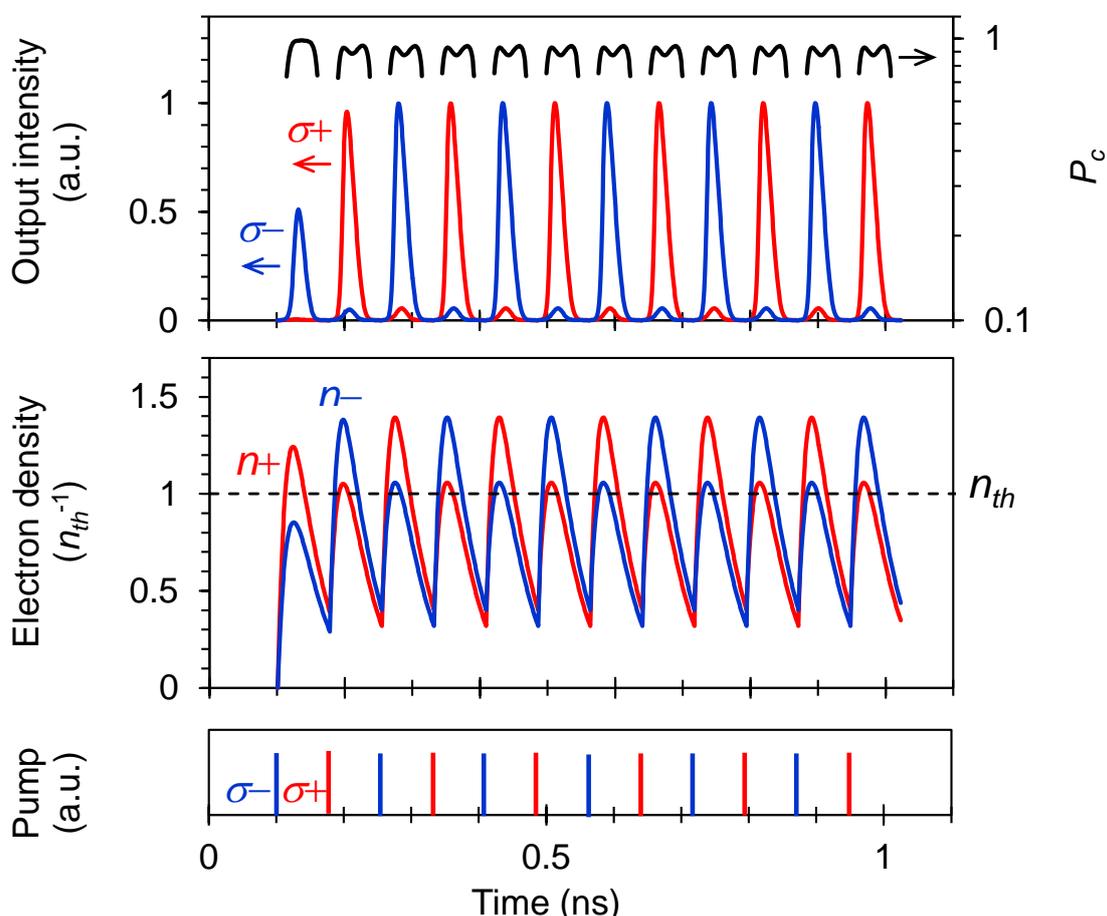


図 4-21 $0.5 \mu\text{m}$ ポスト VCSEL の発振円偏光スイッチング解析結果(13 GHz)

さらに高速な 20 GHz のスイッチング速度について同様に解析した結果を図 4-22 に示す。パルス励起間隔が 50 ps と短くなったことで電子の蓄積が更に顕著になり、 n_+ と n_- の両電子密度が n_{th} を大きく超えていることがわかる。このため、最大光出力が得られるときの P_c は 0.3 程度まで低下している。各パルス励起後約 18 ps において最大光出力が得られ、その約 28 ps 後に最大 $P_c \sim 0.7$ が得られているが、この時には既に光出力が 1/10 程度まで減衰している。

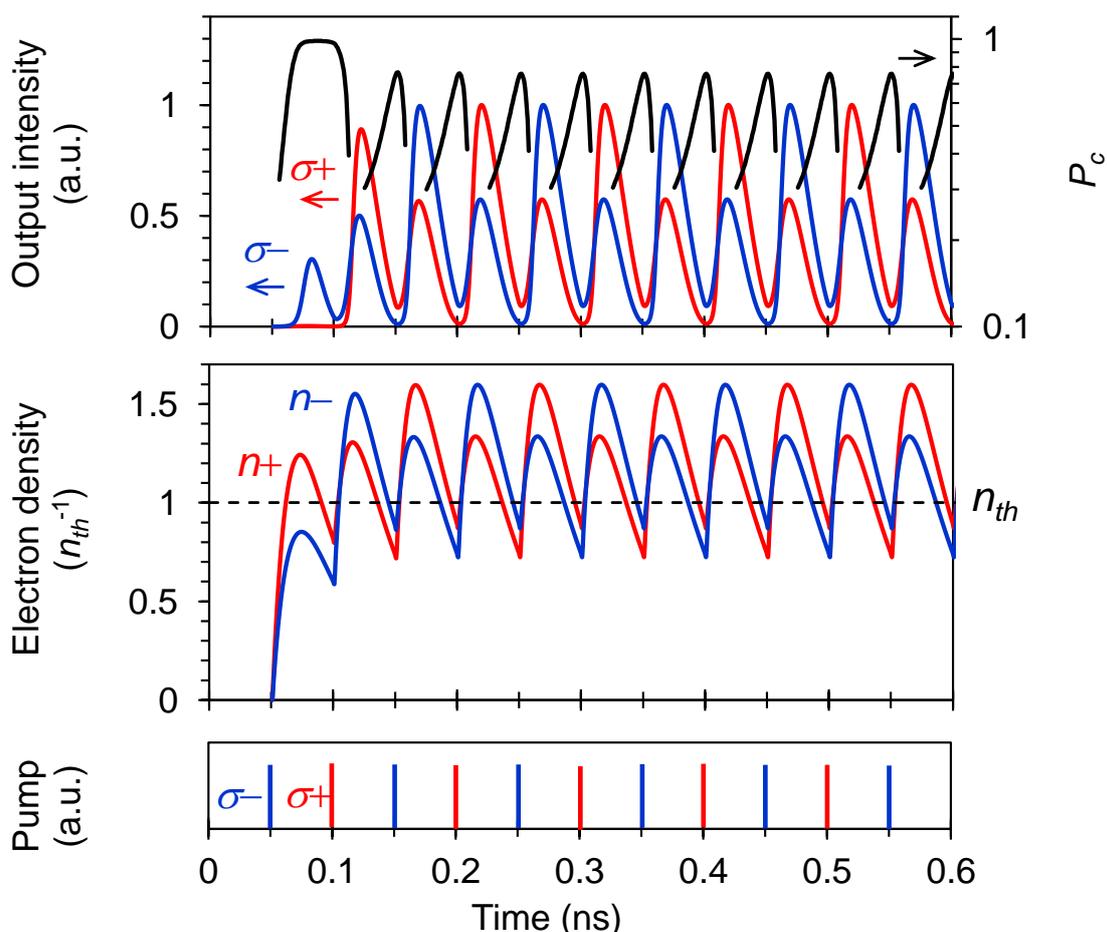


図 4-22 0.5 μm ポスト VCSEL の発振円偏光スイッチング解析結果(20 GHz)

他のポストサイズについても同様に解析を行い、発振円偏光スイッチング速度とポストサイズの関係性を調べた。その結果を前節で示した τ_c の測定値と共に図4-23に示す。サイズが10 μm 以上の場合は、非発光表面再結合による τ_c の短縮効果が小さく、ポストの微小化によるスイッチングの高速化が顕著に表れていない。ポストサイズが30 μm から0.5 μm まで微小化されると、 τ_c は1.4 nsから27 psまで劇的に短縮される一方、 τ_s は1.2 nsから0.74 nsと概ね維持され、これによってスイッチング速度は1.2 GHzから13 GHzまで高速化できることがわかった。

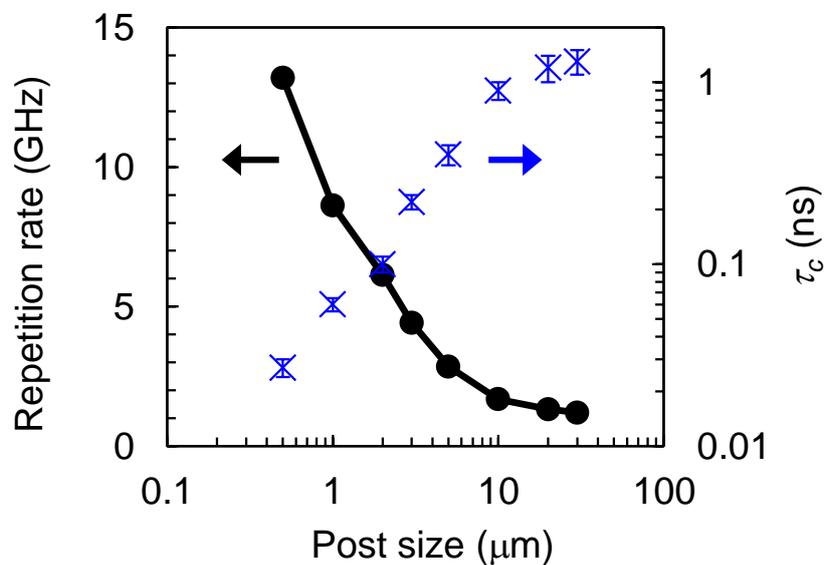


図 4-23 ポストサイズに対する発振円偏光スイッチング速度と τ_c の関係

4.4.4. 発振円偏光スイッチング速度の電子スピン緩和時間依存性

次に、VCSELの発振円偏光スイッチング速度と τ_s の関係を図4-24に示す。この解析では、 τ_s をパラメータとして変化させており、丸や三角の記号で示された点は、その値が時間分解カー回転測定値に等しいことを表す。どのポストサイズにおいても、 τ_s が約0.1 ns以下になるとスイッチング速度が急激に低下していることがわかる。これは、スピンVCSELがレーザ発振に至るまでの間に、活性層の電子がスピン緩和してしまうことに起因する。さらに τ_s が低下すると、 σ_+ と σ_- の両円偏光モードで発振し始めることで P_c が急激に低下し、スイッチング速度を定義している $P_c > 0.9$ の条件を満足できなくなる。

図4-24より、本研究における τ_s の測定値は、いずれのポストサイズにおいて

も、スイッチング速度の最大値を得るために十分な長さであることがわかる。ここで、前節で述べた通り τ_s の測定は 77 K において行われたが、GaAs(110) MQW における τ_s は、低温よりも室温の方が長くなるため[2]、上記のスイッチング速度に関する議論は室温に関しても妥当である。典型的な GaAs(100) MQW の τ_s は、室温で 20 ~ 200 ps 程度であることが知られているが[11-13]、図 4-24 によると、このように短い τ_s ではスイッチング速度の低下や、 P_c の大幅な低下をもたらすことになる。したがって、GaAs(110) MQW を活性層に用いたマイクロポスト VCSEL は、高速な発振円偏光スイッチングを室温で得るために有効であると言える。

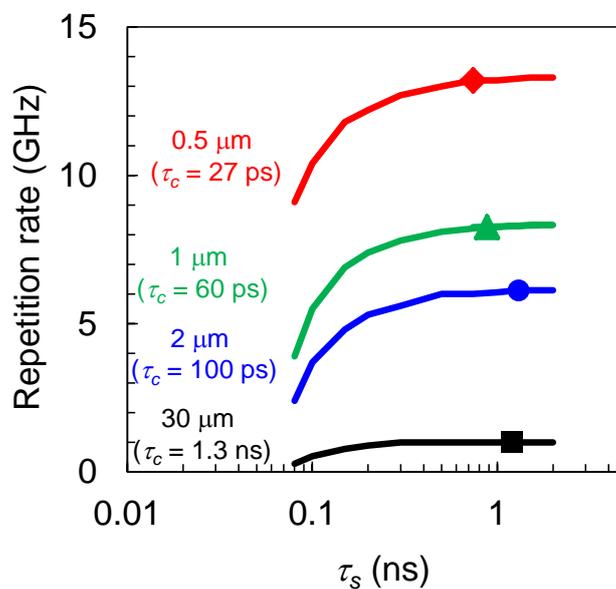


図 4-24 発振円偏光スイッチング速度と τ_s の関係

4.4.5. 発振円偏光スイッチング速度の励起強度依存性

スピン VCSEL を高い円偏光度で発振させるには、片側の円偏光モードのみを主に発振させることが必要であるため、これまでに述べたレート方程式解析では、単一パルス励起によって片側の円偏光モードのみが発振するように、発振閾値励起強度 I_{th} に等しい励起強度 I_{pump} を設定した。ここで、共振器内における電子の蓄積を考慮して I_{pump} を適度に下げることによって、発振円偏光スイッチングをさらに高速化することができる。

ポストサイズ 0.5 μm の VCSEL において、 I_{th} で規格化された I_{pump} とスイッチング速度に対する P_c の解析結果を図 4-25 に示す。スイッチング速度が速くなるにつれて、共振器内の残留電子のために I_{th} よりも低い I_{pump} において高い P_c

が得られていることがわかる。 I_{th} に対して約 0.75 倍の I_{pump} を設定することにより、 $P_c > 0.9$ を満たすスイッチング速度は 18 GHz まで高速化することが可能である。

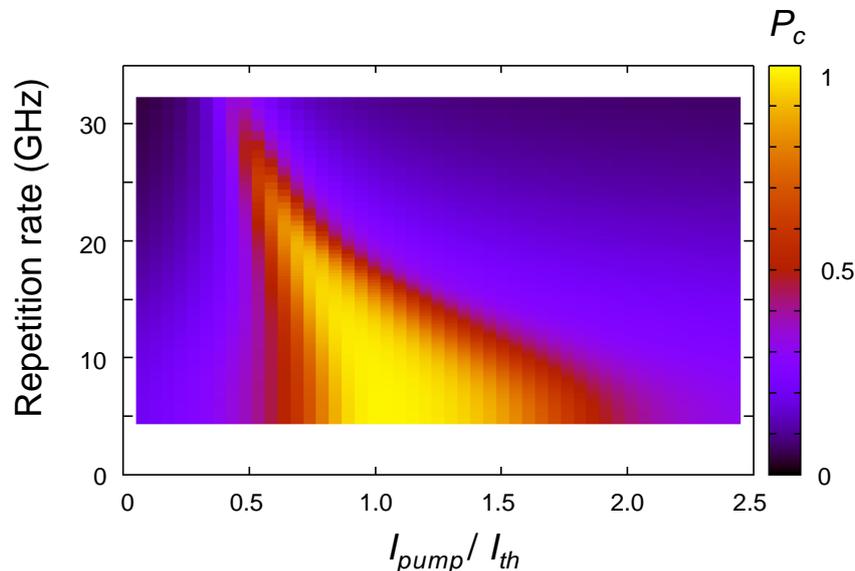


図 4-25 規格化励起強度とスイッチング速度に対する P_c の関係

4.4.6. 発振円偏光スイッチングの高速化方法

これまでに、 τ_c の短縮による発振円偏光スイッチングの高速化について述べた。ここでは、その他の高速化方法を検討するため、注入電子の初期スピン偏極度 P_0 とキャリア捕獲時間 τ_{cap} がスイッチング速度に与える影響について調べた。

P_0 と τ_{cap} に対する発振円偏光スイッチング速度の関係を図 4-26 に示す。ここで、これまでの解析で用いた P_0 と τ_{cap} の値は前に述べた通り、それぞれ 0.2、20 ps であった。図 4-26 より、 $P_0 = 1$ 、 $\tau_{cap} = 1$ ps の条件で約 60 GHz のスイッチング速度が得られることがわかる。 P_0 が大きくなることで片側の円偏光モードのみに利得を与えやすくなるため、スピン緩和した電子が QW に蓄積されていたとしても高い P_c で発振しやすい。そのため、 P_0 が 1 に近づくにつれてスイッチング速度が高速化されている。VCSEL の活性層である GaAs QW にスピン偏極電子を光励起する場合、 E_1 - HH_1 準位間を共鳴励起することで $P_0 > 0.9$ の高効率スピン注入が実現できる[14,15]。ポンプ光と VCSEL 出力光を波長分離すると共に高い DBR の反射率を回避するために、共振波長よりも短波側にポンプ光の波長を設定する方が実験的に容易であるが、この場合の P_0 は 0.2~0.4 程度

に低下する[14,15]。また、VCSELを発振させるために必要な kW/cm^2 オーダの強励起条件下で GaAs QW における P_0 を測定すると、その値は 0.1 以下まで低下することも知られており[16,17]、光励起によって現実的に得られる P_0 は 0.1~0.2 程度であると考えられる。

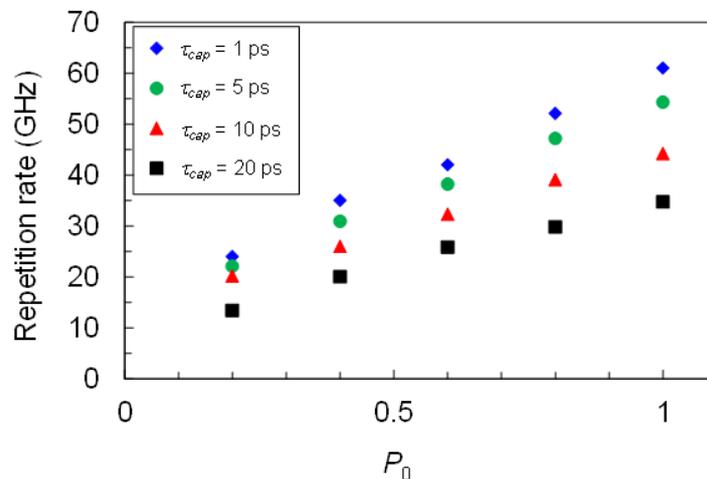


図 4-26 P_0 と τ_{cap} に対する発振円偏光スイッチング速度の関係

P_0 と同様に τ_{cap} もスイッチング速度に大きく影響する。 τ_{cap} は共振器に注入された電子が活性層に捕獲されるまでの時間である。 τ_{cap} が短くなると、例えば図 4-22 において、パルス励起後の VCSEL 出力波形の立ち上がりが急峻になる。本解析モデルでは、MQW における障壁層に励起された電子が QW へエネルギー緩和するまでの時間が τ_{cap} に相当する。QW におけるエネルギー準位は量子化されているため、電子が QW へ捕獲されるために必要な運動量緩和、すなわちフォノン散乱も量子化され、井戸幅や障壁高さなどのパラメータが τ_{cap} を大きく変化させることが知られている。また、その値は GaAs/AlGaAs QW において室温で 1 ps ~ 数 10 ps 程度である[18,19]。QW 構造の最適化によって τ_{cap} を 1 ps まで短縮することで、図 4-26 に示すように発振円偏光スイッチングを大幅に高速化することができる。ただし、 τ_{cap} が短縮されるように QW 構造を最適化すると同時に、レーザとしての共振器構造を設計する必要があるため、設計の自由度はある程度制限される。

4.4.7. ポストサイズと発振閾値の関係

これまでに述べたように、スピン VCSEL にマイクロポスト構造を導入することで、発振円偏光スイッチングを大幅に高速化することが可能であるが、図

4-27 に示すように、ポストサイズが小さくなるにつれて、非発光表面再結合の影響により発振閾値が増大する。スピン VCSEL のポストサイズを $30\ \mu\text{m}$ から $0.5\ \mu\text{m}$ に微小化することで、スイッチング速度を $1.2\ \text{GHz}$ から $13\ \text{GHz}$ まで高速化できるが、図 4-28 に示すように、単位面積当たりの閾値パルスエネルギーが約 2 倍に増大することが予想される。本解析では、実験で用いたサンプルと同様に、ポストの面密度がポストサイズによらず一定であるとし、スポットサイズ $30\ \mu\text{m}$ のポンプ光を仮定してスピン偏極電子を光励起しているため、活性層の面積はポストサイズによらずスポットサイズによって決定されている。しかしながら、将来的に電流注入型の構造を導入することで、活性層の面積はポストサイズによって決定されるため、発振閾値を低減できる可能性がある。単位ポスト辺りに注入電子密度を集中した場合における、閾値パルスエネルギーとポストサイズの関係を図 4-29 に示す。閾値パルスエネルギーはポストサイズ d の二乗に比例しており、非発光表面再結合に起因した発振閾値の増大は、ポスト加工による活性層の微小化によって緩和できると期待される。また、連続波励起によってキャリアを注入する場合は、発振閾値の増大がより顕著になるため、マイクロポスト構造は短いパルス励起によるキャリア注入に適していると言える。

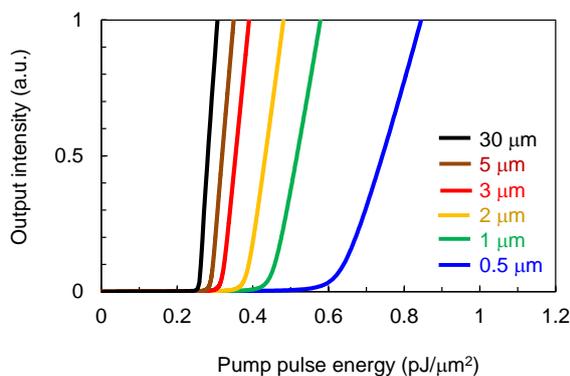


図 4-27 VCSEL 出力強度と励起パルスエネルギーの関係

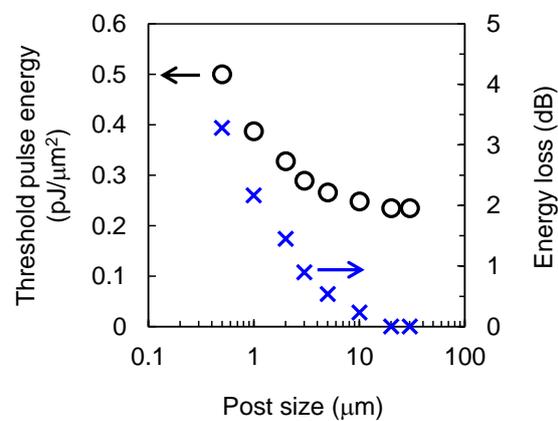


図 4-28 閾値パルスエネルギーとポストサイズの関係

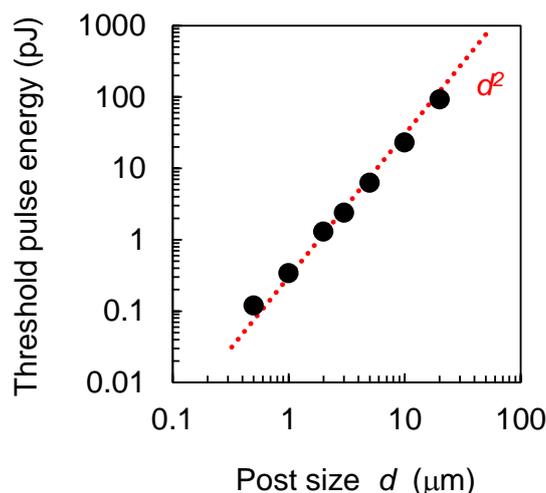


図 4-29 閾値パルスエネルギーとポストサイズの関係
(単位ポスト辺りに注入電子密度を集中した場合)

4.5. まとめ

本章では、まずマイクロポスト構造をもつ GaAs(110)基板上 GaAs/AlGaAs MQW と InGaAs/GaAs MQW において、キャリア寿命 τ_c と電子スピン緩和時間 τ_s を偏光時間分解 PL 測定によって 77 K にて評価した。どちらの MQW においてもマイクロポスト構造を導入することで、ポスト側面における速い非発光表面再結合によって τ_c が劇的に短縮される一方、 τ_s は維持されることがわかった。しかしながら、測定に用いたストリークカメラの時間分解能(~ 25 ps)では $2 \mu\text{m}$ 以下の微小なポストの τ_s を評価することが困難であった。

微小ポストにおける短い τ_c の間に τ_s を測定できるように、時間分解能が 1.3 ps と高い時間分解カー回転法を用い、GaAs(110) MQW マイクロポストの τ_c と τ_s を 77 K にて測定した。その結果、 $0.5 \mu\text{m}$ のポストにおいて τ_c が 27 ps まで短縮されるが、 0.74 ns の長い τ_s が維持されることがわかった。

τ_c と τ_s の測定結果をもとに、マイクロポスト構造の導入されたスピン VCSEL のレート方程式解析を行った。その結果、サイズ $0.5 \mu\text{m}$ のポスト構造により約 13 GHz の高速な発振円偏光スイッチングが期待できることがわかった。また、 $0.5 \mu\text{m}$ のポストにおける τ_s (0.74 ns) は、典型的な GaAs(100) QW では室温で到達できない長さであるが、これは高速なスイッチングを実現するために必要な長さであることを示した。さらに、励起パルス強度を発振閾値以下の適切な値に設定することで、ポストサイズ $0.5 \mu\text{m}$ の VCSEL における発振円偏光スイッチングは、最大で 18 GHz まで到達することがわかった。

4.6. 参考文献

- [1] H. Fujino, S. Koh, S. Iba, T. Fujimoto, and H. Kawaguchi, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 131108 (2009).
- [2] S. Iba, S. Koh, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 081113 (2011).
- [3] K. Ikeda, T. Fujimoto, H. Fujino, T. Katayama, S. Koh, and H. Kawaguchi, *IEEE Photon. Technol. Lett.* **21**, 1350 (2009).
- [4] K. Tai, T. R. Hayes, S. L. McCall, and W. T. Tsang, *Appl. Phys. Lett.* **53**, 302 (1988).
- [5] Y. Nambu, H. Yokoyama, T. Yoshikawa, Y. Sugimoto, and K. Asakawa, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 481 (1994).
- [6] A. A. Kiselev and K. W. Kim, *Phys. Rev. B* **61**, 13115 (2000).
- [7] A. W. Holleitner, V. Sih, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 036805 (2006).
- [8] Y. Kunihashi, M. Kohda, and J. Nitta, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 226601 (2009).
- [9] M. Holub and P. Bhattacharya, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, R179 (2007).
- [10] E. Säcker, “Broadband Circuits for Optical Fiber Communication,” Wiley, New York, (2005).
- [11] A. Tackeuchi, Y. Nishikawa, and O. Wada, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 797 (1996).
- [12] R. S. Britton, T. Grevatt, A. Malinowski, R. T. Harley, P. Perozzo, A. R. Cameron, and A. Miller, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2140 (1998).
- [13] A. Malinowski, R. S. Britton, T. Grevatt, and R. T. Harley, *Phys. Rev. B* **62**, 13034 (2000).
- [14] S. Pfalz, R. Winkler, T. Nowitzki, D. Reuter, A. D. Wieck, D. Hägele, and M. Oestreich, *Phys. Rev. B* **71**, 165305 (2005).
- [15] L. Lombez, D. Lagarde, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, B. L. Liu, W. X. Wang, Q. K. Xue, and D. M. Chen, *Phys. Status Solidi C* **4**, 475 (2007).
- [16] 揖場聡, 「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」, 奈良先端科学技術大学院大学, 超高速フォトニクス研究室 (2011).
- [17] 好井淳平, 「顕微フォトルミネッセンス法による微小領域での電子スピン緩和時間測定」, 奈良先端科学技術大学院大学, 超高速フォトニクス研究室 (2012).
- [18] M. R. X. Barros, P. C. Becker, D. Morris, B. Deveaud, A. Regreny, and F. Beisser,

Phys. Rev. B **47**, 10951 (1993)

[19]P. W. M. Blom, J. Claes, J. E. M. Haverkort, and J. H. Wolter, Opt. Quantum Electron. **26**, S667 (1994).

第5章 GaAs(110) MQW における電子スピン輸送の室温観測

5.1. はじめに

半導体スピンデバイスにおいて、スピン偏極した電子をスピン緩和させる事無く輸送することは重要な課題の一つである。特に、スピン VCSEL などのスピン光デバイスでは μm オーダの輸送距離が要求される。

これまでに、表面弾性波(SAW)のピエゾ電場を用いて、GaAs QW における数十 μm オーダの電子スピン輸送が 80 K 以下の温度で報告されている[2,3]。ただし、この方法では SAW を発生させるためのトランスデューサが必要であり、SAW の強度を強めるためには半導体表面に ZnO などの薄膜を形成することも必要である。他に、アンドープの GaAs に 6 kV/cm の電場を印加することで、数 μm 程度の電子スピン輸送を 10 K 以下の低温で観測した報告がある[4-6]。また、n 型 GaAs を用いることで、約 50 μm の非常に長い輸送距離を 4 K 以下の温度で観測した報告もある[7,8]。しかしながら、このような μm オーダのスピン輸送をより高温で実現するには困難が伴う。GaAs は $10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 程度の Si (n 型)ドーピングを行うことで、極低温において数百 ns 程度の τ_s が得られるが、温度の上昇にしたがって DP 機構によるスピン緩和が生じるため、文献[7,8]では室温における電子スピン輸送は観測されていない。Soldat らは室温で GaAs 層の膜厚が異なるスピン LED を複数作製し、GaAs 層膜厚に対する LED の円偏光度からスピン輸送距離を調べた[9]。その値は約 26 nm と非常に短く、これ以外の室温におけるスピン輸送は III-V 族化合物半導体において報告されていない。一方、鈴木らは Si において約 0.6 μm のスピン輸送を室温で観測している[10]。将来的には、三端子構造のゲート電圧により、輸送される電子スピンの歳差運動制御などの実現が期待されるが、スピン軌道相互作用の小さい Si はそのような制御が困難である[11]。

そこで本研究では、DP 機構の抑制によって室温で τ_s が長い GaAs(110) MQW [12]を用いることで、電場による μm オーダの電子スピン輸送を室温で観測することを目的とした。

5.2. デバイスの作製とその特性評価

ここでは、デバイスの構造とその作製方法、そして作製したデバイスの PL 測定結果と電流-電圧測定結果について述べる。

5.2.1. デバイス構造

作製したデバイスの構造を図 5-1 に示す。アンドープの GaAs(110)基板の上に MBE 法によって結晶成長された、厚さ 9.3 nm の GaAs 井戸層と厚さ 20.3 nm の $\text{Al}_{0.29}\text{Ga}_{0.71}\text{As}$ 層から成る 50 周期の MQW を用いており、これは本研究室の中西慧氏に成長して頂いた。Au/Cr/AuZnNi から成る電極が二つ形成されており、その間隔は 200 μm である。電極間に光励起されたスピン偏極電子は、電場によって MQW 面内を輸送される。MQW をアンドープにすることで、不純物のドーピングによる結晶品質の低下、すなわち、キャリア寿命と電子移動度の低下を避けることができ、デバイスに大きな電場を印加することも可能である。これらは全て電子スピン輸送距離を長くするために有効な手段である。

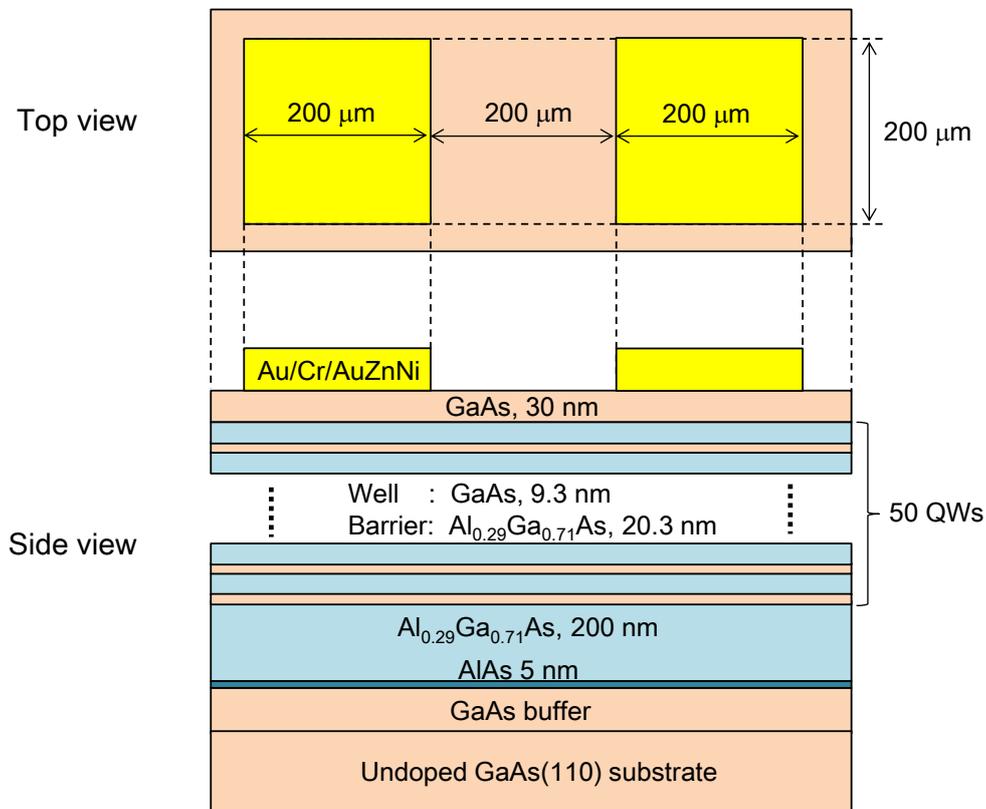


図 5-1 スピン輸送デバイス構造

図 5-1 のデバイス構造は MQW に対して面内方向に電場を印加するため、第 2 章で述べたように、SIA によって τ_s が短縮されない。図 5-2 に示すように、本研究で用いる GaAs(110) QW では、外部電場の有無によらず BIA に起因した有効磁場 B_{BIA} が QW に対して面直方向に存在し、これは面直にスピン偏極した電子を歳差運動させない。ここへ外部電場 E を面直に印加した場合、SIA に起因

した有効磁場 B_{SIA} が面内方向に生じる。面内方向の B_{SIA} は電子スピンを歳差運動させるため、 τ_s が短縮されることが知られている[13,14]。一方、本研究のように面内方向へ電場を印加する場合は、 B_{SIA} が B_{BIA} と同じ面直方向となり τ_s を短縮しない。

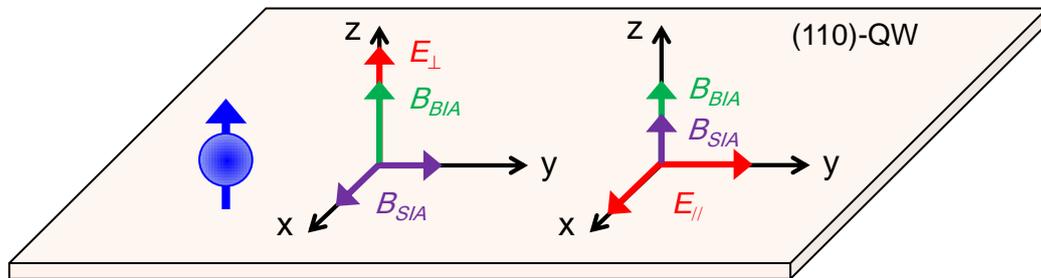


図 5-2 (110) QW における電場と有効磁場の関係

5.2.2. デバイスの作製方法

スピン輸送デバイスの作製工程を以下に示す。

① 電極形成

まず、ネガレジスト ZPN1150 をサンプル上にスピコートし、コンタクトアライナによる露光と ZTMA100 による現像によって電極用マスクをパターンニングした (図 5-3)。次に、抵抗加熱蒸着装置 (旭商会 KAA) を用いて $\text{Au}_{0.855}\text{Zn}_{0.095}\text{Ni}_{0.05}$ を 100 nm 蒸着した後、サンプルをアセトンに漬け置きすることでレジスト上の AuZnNi をリフトオフし、200 μm の間隔をもつ 200 μm 角の電極をパターンニングした (図 5-4)。続いて、赤外加熱炉 (ULVAC RHL-P610C-N) によって窒素雰囲気中にて 390°C で 1 分間アニールした。AuZnNi 電極の形成と同じ手順で Cr を 20 nm、Au を 300 nm の順に蒸着し、リフトオフを行った。

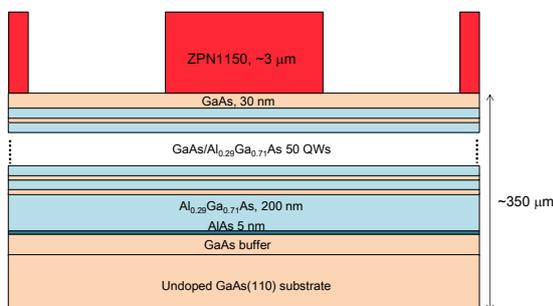


図 5-3 電極用マスクのパターンニング

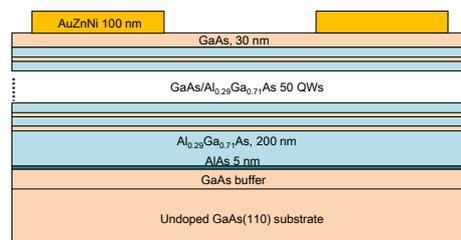


図 5-4 AuZnNi 電極のパターンニング

② 裏面研磨

劈開によってデバイスを分離するために、サンプルの裏面研磨を行った。まず、研磨剤 A-800(Al_2O_3)で約 $80\ \mu\text{m}$ の厚さまで荒研磨を行い、その後に研磨剤 INSEC-FP を用いて鏡面研磨を行った (図 5-5)。

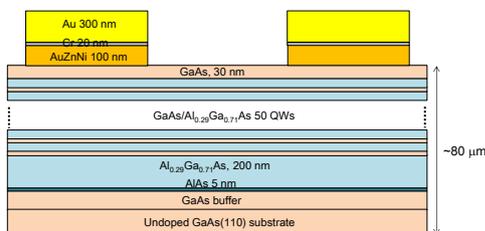


図 5-5 デバイスの裏面研磨

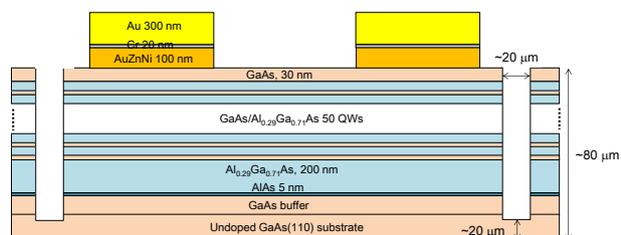


図 5-6 デバイス分離のための溝加工

③ デバイスの分離：溝加工、劈開、ボンディング

まず、ポジレジスト ZPP1700 PG-30 をパターンニングし、 $\text{H}_2\text{SO}_4 : \text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{O} = 3 : 1 : 1$ のエッチャントを用いて、幅 $20\ \mu\text{m}$ の溝を格子状に形成した (図 5-6)。ここで、溝の格子は GaAs における劈開方向[001]と劈開できない[110]方向に沿っている。そこで、溝深さはデバイスの分離が容易である約 $60\ \mu\text{m}$ とした。その後、スクライバを用いて形成した格子状の溝に沿ってデバイスを分離した。分離されたデバイスは、ダイボンダによってシリコンサブマウントを介してチップキャリア上にマウントした。最後に、 $200\ \mu\text{m}$ 角の二つの電極をそれぞれチップキャリアの二端子にワイヤボンダを用いて金線で接合した。

完成したデバイスの光学顕微鏡写真を図 5-7 に示す。作製工程において、デバイスに応力の加わる裏面研磨や劈開を行っているが、電子スピンを輸送する二つの電極間において損傷は見られず、期待通りのデバイスが作製できたと言える。

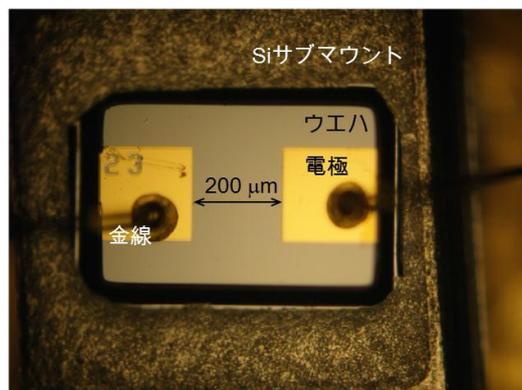


図 5-7 デバイスの光学顕微鏡写真

5.2.3. MQW の PL スペクトルおよびキャリア寿命の評価

作製したデバイスのスピン輸送層となる MQW の PL を室温で評価した。モード同期チタンサファイアレーザのパルス光でキャリアを励起し、CCD 分光器で PL を受光した。ここで、励起波長は 780 nm、平均強度は 1 mW である。

図 5-8(a)に測定した PL スペクトルを示す。848.5 nm と 838.5 nm にそれぞれピークが見られ、これらは QW における E_1 -HH₁ と E_1 -LH₁ からの発光である。閉じ込めエネルギーを考慮して計算した、 E_1 -HH₁ と E_1 -LH₁ に相当する波長を図中に示してあるが、この結果は PL スペクトルの各ピークに良く一致している。室温でも結晶の欠陥を反映した PL 成分が見られないため、この MQW の結晶品質は良いと言える。結晶品質の良い MQW を用いることは、高い電子移動度を得ることができるため、スピン偏極電子の長距離輸送を行う上で重要である。また、後で述べるように、量子閉じ込めによって生じた GaAs バルクと GaAs QW のエネルギー差を利用することで、QW 面内の輸送と GaAs バルク層の輸送を切り分けて検出することが可能になる。

次に、ストリークカメラを用いて時間分解測定した PL 強度の時間変化を図 5-8(b)に示す。得られたキャリア寿命 τ_c は約 3.0 ns と長く、この結果からも MQW の結晶品質は良いと言える。

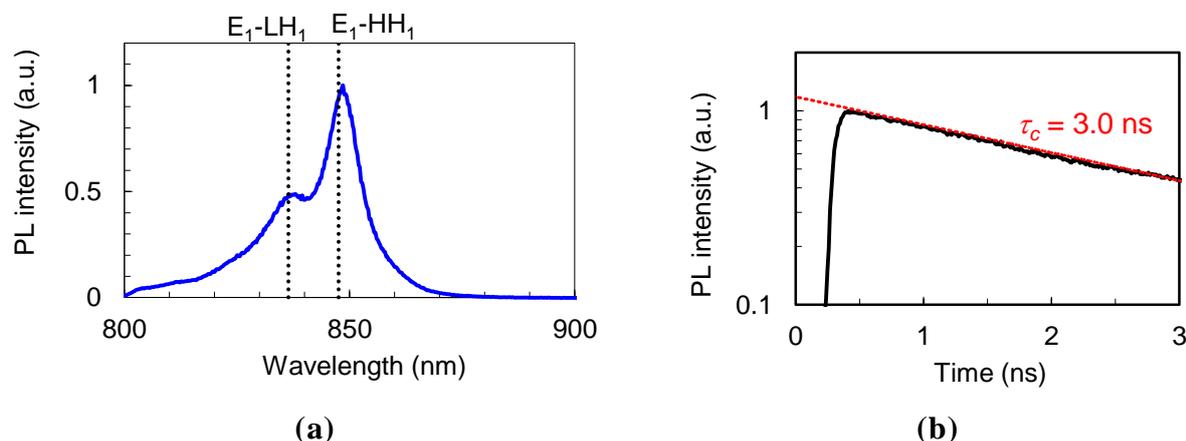


図 5-8 ウエハの(a)PL スペクトルと(b)時間分解 PL 強度

5.2.4. デバイスの電流-電圧特性の評価

作製したデバイスの電流-電圧特性を図 5-9 に示す。電流の流れる半導体領域は全てアンドープであるため、デバイスの抵抗値は約 280 k Ω と高い。次に、電

極間にモード同期チタンサファイアレーザのパルス光を照射した。励起強度と励起波長はそれぞれ $10 \mu\text{W}$ 、 846 nm とした。励起光のスポットサイズ $70 \mu\text{m}$ と GaAs QW における吸収係数 $1 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ [15] を考慮することで見積もられる励起キャリア密度 n_{ex} は $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ である。図 5-9 に示すように、光照射によってデバイスの抵抗は小さく(約 $175 \text{ k}\Omega$)なり、 35 V において約 $71 \mu\text{A}$ の光電流が流れた。 $200 \mu\text{m}$ の間隔をもつ電極間に 35 V の電圧を印加すると、印加電場は 1.75 kV/cm に相当する。このような大きな電場を長時間印加してもデバイスは壊れず、期待通りのデバイスを作製することができたと言える。

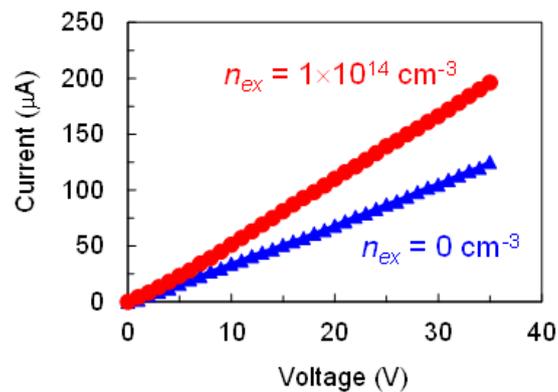


図 5-9 デバイスの電流-電圧特性

5.3. 電子スピン輸送距離の評価

本節では、空間・時間分解カー回転法を用いてスピン偏極電子の輸送を観察した結果について述べる。

5.3.1. 空間・時間分解カー回転測定

スピン偏極電子の空間分布とその時間発展を調べるために、図 5-10 に示す空間・時間分解カー回転測定系を構築した。この方法は磁気抵抗によるスピン輸送距離の評価とは異なり、輸送されるスピン偏極電子を直接観察することが可能である[7]。

光源には繰り返し周波数 80 MHz 、パルス幅 80 fs のモード同期チタンサファイアレーザを用い、その中心波長は QW における $E_1\text{-HH}_1$ 共鳴波長(846 nm)に設定した。スピン偏極電子の空間分布とその時間発展は、サンプル表面で反射した 90° 直線偏光のプローブ光のカー回転角 $\Delta\theta_{Kerr}$ を偏光ビームスプリッタ(PBS)、 $\lambda/2$ 板、バランスドディテクタを用いて測定した。高感度に $\Delta\theta_{Kerr}$ を測定するた

めに、タンデムロックイン法を用いた[16,17]。ポンプ光とプローブ光はそれぞれ 100 Hz と 83 Hz (差周波数 17 Hz)でチョッピングし、更にポンプ光は PEM (Hinds II/FS42)によって 42 kHz で変調した。ここで、PEM には $\lambda/4$ の位相差を与えているため、ポンプ光の偏光は σ_+ と σ_- の間で周期的に切り替わる。これにより、光学遷移選択則に従って MQW に励起されるアップスピン電子とダウンスピン電子の密度が変調される。バランスドディテクタの出力信号は、まず、42 kHz においてロックイン検出し、その検出信号をもう一つのロックインアンプを用いてポンプ光とプローブ光の差周波数である 17 Hz において再度検出した。

測定に用いたポンプ光とプローブ光の設定は表 5-1 にまとめた。空間分解能が要求されるプローブ光は 10 倍の対物レンズを用いて集光しており、スポットサイズは約 $4.2 \mu\text{m}$ である。ポンプ光は平凸レンズを用いて約 $70 \mu\text{m}$ に集光した。プローブ光のスポットを一軸方向に掃引するために、対物レンズを自動ステージによって平行移動させた。ポンプ光の遅延時間を光路長変化として調節するためにも自動ステージを用いており、これらを制御することで空間と時間の両方を分解する。スピン偏極電子の輸送される方向は[001]方向とし、これ以降の測定は全て室温で行った。

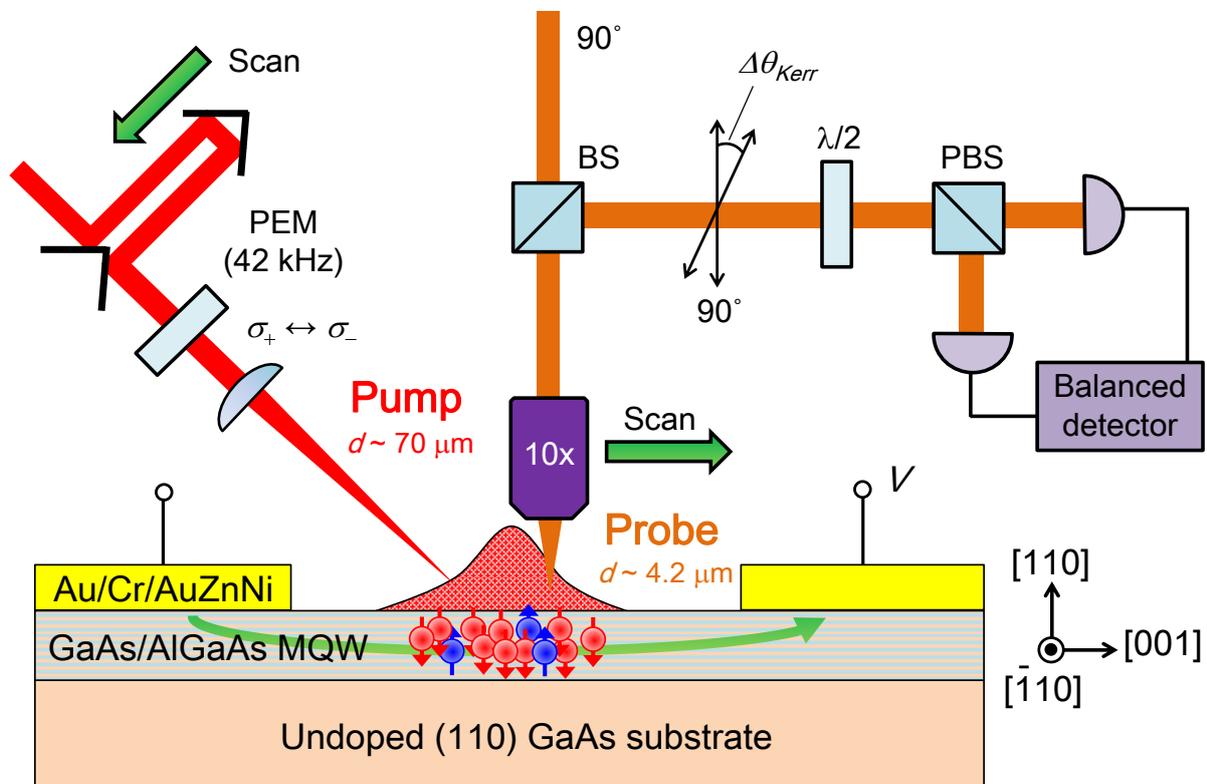


図 5-10 空間・時間分解カー回転測定系

表 5-1 ポンプ光とプローブ光の設定

設定項目	設定値	
	ポンプ光	プローブ光
中心波長	846 nm	
時間幅	80 fs	
波長幅	11 nm	
平均強度	10~200 μW	100 μW
スポットサイズ	70 μm	4.2 μm
強度変調周波数	100 Hz	83 Hz
位相変調周波数	42 kHz	—

電場 $E = 0 \text{ kV/cm}$ および 1.75 kV/cm における空間・時間分解カー回転測定結果を図 5-11(a)、(b)にそれぞれ示す。ここで、ポンプ光の平均強度は $10 \mu\text{W}$ であり、QW における励起キャリア密度 n_{ex} は $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ である。スピン偏極電子の空間分布に対応する $\Delta\theta_{Kerr}(x)$ は、ポンプ光のビームプロファイルを反映して約 $70 \mu\text{m}$ の幅をもっている。この空間分布は、 $E = 0 \text{ kV/cm}$ では変化せず時間が経過するにつれて減衰する様子が見られる。一方、 $E = 1.75 \text{ kV/cm}$ では明確な電子スピン輸送が観測されている。 $\Delta\theta_{Kerr}(x)$ のピーク値のシフト量を x_s と定義すると、その時間変化は図 5-11(c)に示すように電場に比例している。このデータへ $x_s = v_s t$ の関係をフィッティングすることにより、 $E = 1.75 \text{ kV/cm}$ において約 $3 \times 10^6 \text{ cm/s}$ の電子スピン輸送速度 v_s をパラメータとして得た。次に、 $\int_X \Delta\theta_{Kerr} dx$ の時間変化を図 5-11(d)に示す。ここで、積分範囲である X はプローブ光を掃引した全領域である。このデータに $\int_X \Delta\theta_{Kerr} dx \propto \exp(-t/T_s)$ をフィッティングすることで電子スピン寿命 T_s を求めた。 $E = 0 \text{ kV/cm}$ 、 1.75 kV/cm において T_s はそれぞれ 2.1 ns 、 1.2 ns であり、電場の印加によって T_s が短縮されていることがわかる。ここで、 T_s は $1/T_s = 1/\tau_c + 2/\tau_s$ の関係で表されるため、キャリア寿命 τ_c と電子スピン緩和時間 τ_s の両方が T_s に寄与する。

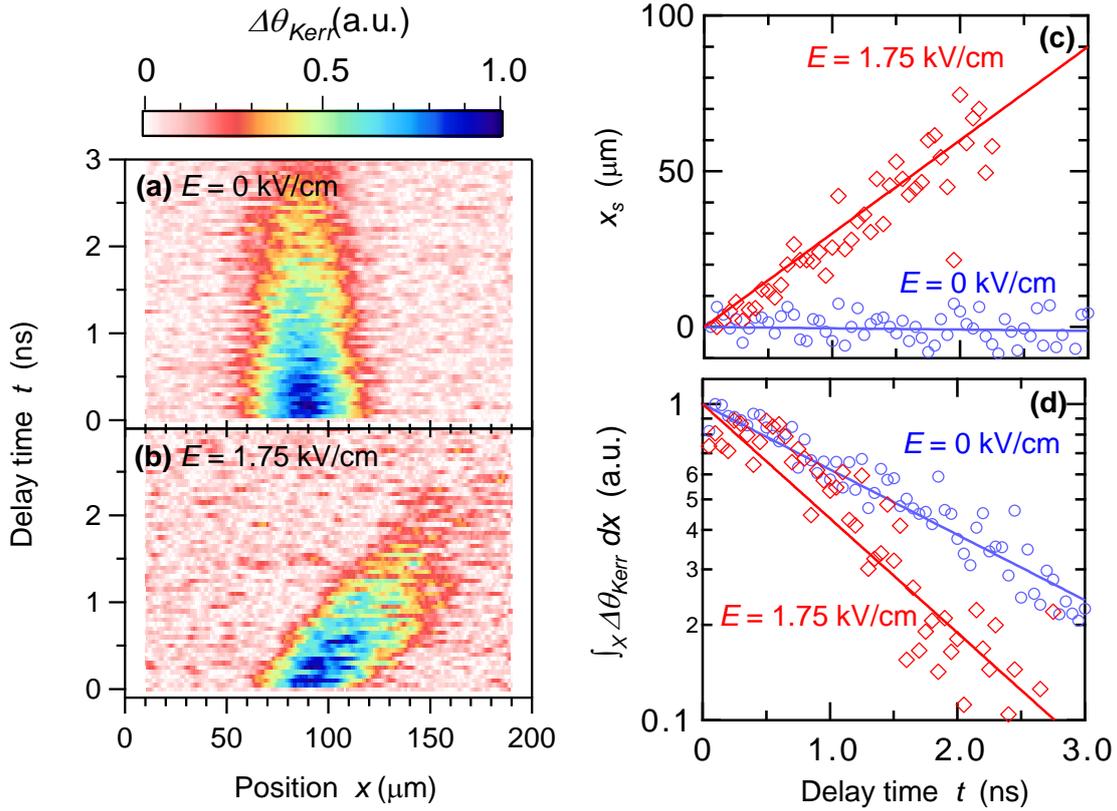


図 5-11 空間・時間分解カー一回転測定結果

5.3.2. 電子スピン輸送距離の電場依存性

次に、 $n_{ex} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ における空間・時間分解カー一回転測定結果と E の関係を図 5-12(a) に示す。 E が大きくなるにつれて徐々に電子スピン輸送距離が大きくなる様子がわかる。また、代表的な遅延時間における $\Delta\theta_{Kerr}$ の空間分布を図 5-12(b) に示しており、この結果からも E が大きくなるにつれて輸送距離が大きくなることわかる。

測定した T_s と v_s 、そして $L_s = T_s v_s$ によって定義される電子スピン輸送距離 L_s の E 依存性を図 5-13 に示す。 v_s は E に比例して増大しており、この測定結果に $v_s = \mu_s E$ をフィッティングすることで、その傾きから電子スピン移動度 $\mu_s = 1.9 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を得た。アインシュタインの関係式 $D_s/\mu_s = k_B T/e$ より求めた電子スピン拡散定数 D_s は $50 \text{ cm}^2/\text{s}$ であり、これはスピングレーティング法を用いて Hu らが測定した GaAs/AlGaAs(110) MQW における D_s の値の範囲内 ($50\text{-}100 \text{ cm}^2/\text{s}$) に含まれる [18]。高い電子密度かつ低温において重要なスピנקーロンドラッグ効果 [19] は、アンドープ MQW の測定を室温下で行う本測定において影

響が無視されるため、 v_s 、 μ_s 、 D_s はそれぞれ電子ドリフト速度、電子移動度 μ_n 、電子拡散定数 D_n に相当する。

T_s に関しては E が増大するにつれて短縮されており、その結果 $E > 1.5$ kV/cmの範囲を超えると E による L_s の増大値は飽和している。最大印加電場である1.75 kV/cmにおいて37 μm の輸送距離を室温で観測することができた。この L_s はn型GaAsを4 K以下の低温に冷却することで達成された先行研究の輸送距離 ~ 50 μm [7,8]に匹敵する。数 μm 程度の輸送であれば0.5 kV/cm以下の電場によって到達可能であり、(110) QWは室温動作する半導体スピンドバイスのスピン輸送層として有望であると言える。

次に、電場によって T_s が短縮された理由として考えられるものを述べる。まず、 T_s は $1/T_s = 1/\tau_c + 2/\tau_s$ によって定義されるため、 τ_c と τ_s の両方が T_s に寄与する。 $n_{ex} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ における τ_c を調べるために空間・時間分解反射率測定と時間分解PL測定を行ったが、このような弱い励起強度では測定信号のSN比が十分に得られなかった。ここで、 $n_{ex} = 8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ における τ_c は室温で3.0 nsである。したがって、電子スピン輸送を行った励起条件である $n_{ex} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ では、 T_s における τ_c と τ_s の寄与を分離することは困難であった。

電場による τ_s の短縮に関して、バルクのGaAsに電場を印加することで電子温度が上昇し、それがDP機構によるスピン緩和を促進させることが報告されている[5,20]。DP機構は(110) QWにおいて本来抑制されているが、井戸層と障壁層の界面にラフネスや組成のばらつきが存在する場合、これらは内蔵電場として働くため、SIAに起因したQW面内方向の有効磁場が生じる。このような効果は、(110) QWにおけるDPスピン緩和を残留させるため、電場によるスピン緩和の促進を生じる可能性がある。このような場合、図2-1(b)で示した(110) QWにおけるBIAに起因した有効磁場の関係から、本研究で電子スピンを輸送した[001]方向よりも、[110]方向に輸送した方が面直成分の有効磁場が大きくなるため、電子スピン緩和が抑制されると考えられる。しかしながら、本デバイスにおいて、 T_s が電場によって短縮された理由は現在わかっていない。

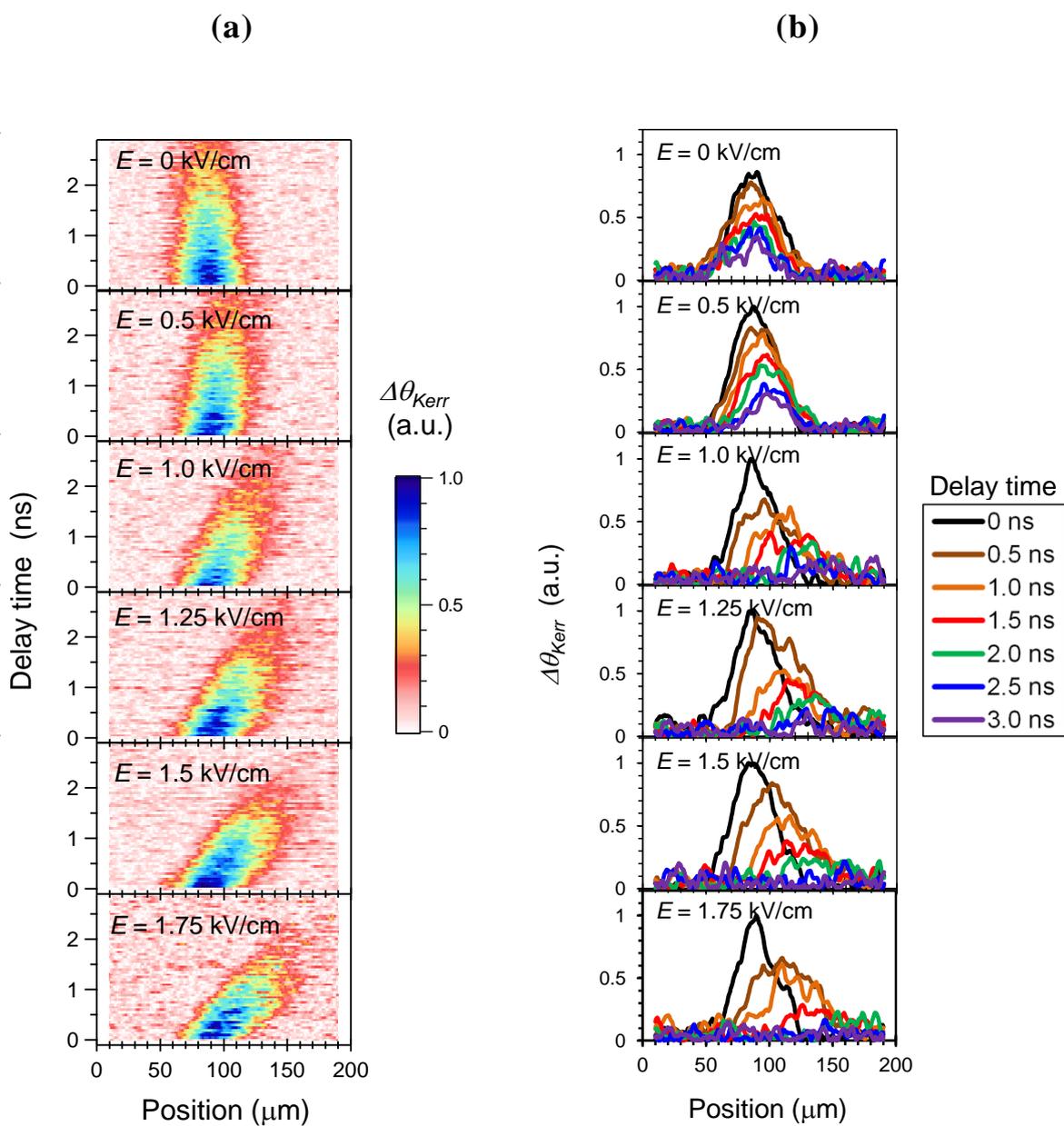


図 5-12 空間・時間分解力一回転測定結果の E 依存性

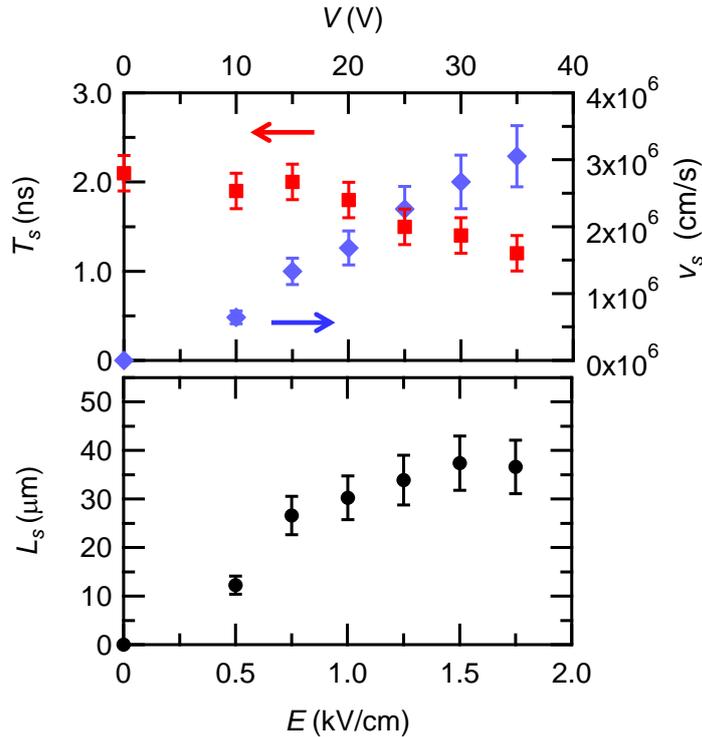


図 5-13 T_s 、 V_s 、 L_s の E 依存性

5.3.3. 電子スピン輸送距離の励起キャリア密度依存性

次に、 $E = 1.75$ kV/cm における空間・時間分解カー回転測定結果の n_{ex} 依存性を図 5-14(a) に示す。約 $37 \mu\text{m}$ の電子スピン輸送を観測した $n_{ex} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ における測定結果と比較すると、 n_{ex} が大きくなるにつれて $\Delta\theta_{Kerr}$ 、すなわち、スピン偏極電子の空間分布のシフト量が小さくなることがわかる。 $n_{ex} = 2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \sim 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ では $\Delta\theta_{Kerr}$ の空間・時間変化がひれ状に分布している点が特徴的である。これは電子スピンが輸送される間にその空間分布が左右非対称な形状へと変化するためであり、それは図 5-14(b) に示す代表的な遅延時間における $\Delta\theta_{Kerr}$ の空間分布を見ても明らかである。また、電子スピンの輸送距離は n_{ex} が大きくなるにつれて徐々に短くなっており、 $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 程度まで大きくなると、スピン偏極電子は励起された初期の位置からほとんど動いていないこともわかる。Kikkawa らは n 型 GaAs に 16 V/cm の電場を印加することで、 1.6 K において約 $50 \mu\text{m}$ の電子スピン輸送を観測しているが、アンドロップの GaAs では $E = 400 \text{ V/cm}$ においても輸送は観測されず、また、その原因についてはわかっていない[7]。この結果は、図 5-14 に示した本研究における測定結果に対応している可能性があり、物理的な解釈が必要である。

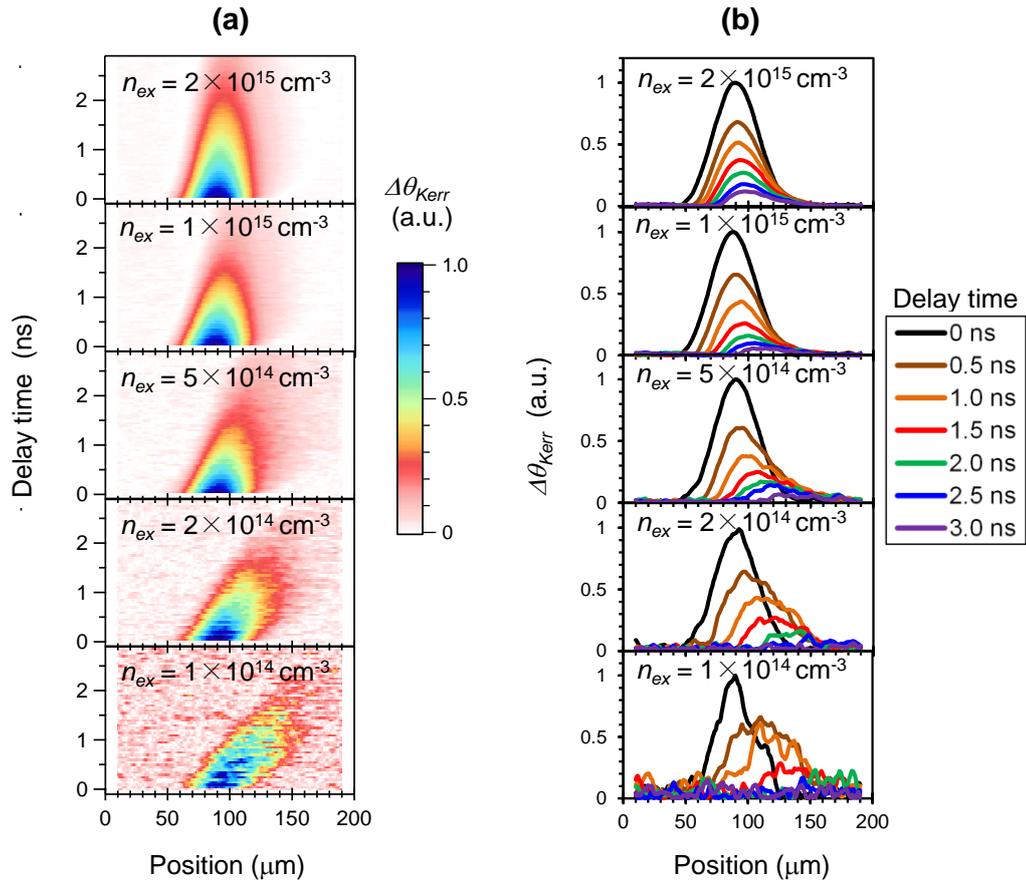


図 5-14 空間・時間分解カー回転測定結果の n_{ex} 依存性

5.4. スピンドリフト拡散方程式解析

ここでは、空間・時間分解カー回転測定結果の励起キャリア密度依存性について考察するため、スピンドリフト拡散方程式とポアソン方程式を連立させた解析を行い、測定結果と比較する。

5.4.1. 解析モデル

解析モデルは、第 2 章で述べた電子スピンのドリフトおよび拡散に関するものである。MQW 中に励起された電子と正孔は外部電場によって互いに逆方向へ移動するため、両者の空間分布は分離されて空間電荷を形成する。この空間電荷によって生じる内部電場は外部電場を弱めるように働くため、キャリアの励起された領域付近では外部電場は遮蔽されると考えられる。このようなモデルについて定量的に検討するため、以下に示す 4 つの式を用いて解析を行った。

$$\nabla^2 V = -\frac{e(p - n - N_a + N_d)}{\varepsilon} \quad (5-1)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_n \frac{\partial n}{\partial x} - n \mu_n E \right) - \frac{n - N_d}{\tau_c} \quad (5-2)$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_p \frac{\partial p}{\partial x} + p \mu_p E \right) - \frac{p - N_a}{\tau_c} \quad (5-3)$$

$$\frac{\partial s}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_s \frac{\partial s}{\partial x} - s \mu_s E \right) - \frac{s}{T_s} \quad (5-4)$$

ここで、式(5-1)はポアソン方程式であり、 V は電位、 e は電気素量、 p は正孔密度、 n は電子密度、 N_a はアクセプタ密度、 N_d はドナー密度、 ε は誘電率を表す。計算領域を $x = 0 \sim L$ とし、ポアソン方程式を境界条件 $V(0) = 0$ 、 $V(L) = 35 \text{ V}$ の下で反復法を用いて各時間ステップの最初に解き、 V の差分から電場 E を求めた。その後、式(5-2)~(5-4)を有限差分法によって解き、 n と p 、そして電子スピン密度 s の空間分布とその時間変化を調べた。ここで、 D_n は電子拡散定数、 μ_n は電子移動度、 D_p は正孔拡散定数、 μ_p は正孔移動度、 D_s は電子スピン拡散定数、 μ_s は電子スピン移動度である。式(5-2)と(5-3)はそれぞれ電子と正孔のドリフト拡散方程式であり、拡散とドリフトの項に加えてキャリアの再結合を反映する項が含まれている。式(5-2)と(5-3)は本来独立しているが、本解析では n と p の空間分布が更新されるたびにその結果が式(5-1)で解析された E を介してフィードバックされる。式(5-4)はスピンドリフト拡散方程式と呼ばれ[24,25]、この式から求まる s の空間分布とその時間発展が空間・時間分解カー回転測定結果に対応する。一般的に電子と比較して正孔のスピン緩和時間が非常に短いことを考慮し、ここでは正孔のスピン偏極を無視している。先に述べたように、本解析では空間電荷の影響を定量的に考慮したスピンドリフト拡散方程式解析を行うため、式(5-4)のみでなく式(5-1)~(5-4)を全て用いて解析する。

解析に用いたパラメータを表 5-2 に示す。 T_s 、 τ_c 、 D_s 、 μ_s には測定値を用い、 $D_n = D_s$ 、 $\mu_n = \mu_s$ とした。また、 D_p 、 μ_p 、 ε には文献[26]の値を引用した。本研究グループの MBE 装置で結晶成長したウエハの典型的な残留不純物密度は $2 \times 10^{15} \sim 4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ であり、p型である[14]。これは、MBE 装置では結晶成長中に炭素がアクセプタとして取り込まれ、故意にドーピングしていなくても p型の特性を示すことが多いという一般的な報告と同じである[27]。そこで本解析では、表 5-2 に示すように $N_d = 0 \text{ cm}^{-3}$ 、 $N_a = 2.0 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ とした。また、室

温における測定結果に対応させることから、解析では不純物が全てイオン化されていることを仮定した。

表 5-2 スピンドリフト拡散方程式解析パラメータ

記号	意味	値
T_s	電子スピン寿命	1.0 ~ 1.3 ns
τ_c	キャリア寿命	3.0 ns
D_n	電子拡散定数	50 cm ² /s
D_p	正孔拡散定数	8.3 cm ² /s
D_s	電子スピン拡散定数	50 cm ² /s
μ_n	電子移動度	1.9×10 ³ cm ² /Vs
μ_p	正孔移動度	3.2×10 ² cm ² /Vs
μ_s	電子スピン移動度	1.9×10 ³ cm ² /Vs
N_d	ドナー密度	0 cm ⁻³
N_a	アクセプタ密度	2.0×10 ¹⁵ cm ⁻³
ϵ	誘電率	1.1×10 ⁻¹² F/cm
e	電気素量	1.602×10 ⁻¹⁹ C

電極と半導体の界面に相当する計算領域の境界は、準熱平衡状態にあると仮定した。すなわち、境界である $x = 0$ と $x = L$ において以下の電荷中性条件が成り立つと仮定する。

$$N_d(x) - N_a(x) + p(x) - n(x) = 0 \quad (5-5)$$

$$p(x)n(x) = n_i^2 \quad (5-6)$$

ここで、 n_i は真性キャリア密度である。不純物密度が均一かつ $N_d = 0$ であることを考慮すると式(5-5)、(5-6)は簡単化され、 $x = 0$ 、 $x = L$ において $p(x)$ と $n(x)$ に適応される境界条件は以下のように表すことができる。

$$p(x) = \frac{N_a}{2} \left\{ 1 + \sqrt{1 + \left(\frac{2n_i}{N_a} \right)^2} \right\} \quad (5-7)$$

$$n(x) = \frac{n_i^2}{p(x)} \quad (5-8)$$

n 、 p 、 s の初期分布は全て同じであり、測定条件と対応させた密度のガウシアン分布($1/e^2$ 幅: $70 \mu\text{m}$)を与えた。したがって、この解析では注入した電子の初期スピン偏極度は 100% である。

5.4.2. 解析結果

前節で示した空間・時間分解カー回転測定結果と、それに対応する s の解析結果を図 5-15(a)、(b)にそれぞれ示す。解析結果は $n_{ex} = 2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \sim 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ において、空間・時間分解されたスピン偏極電子がひれ状に分布するという特徴を良く再現していることがわかる。また、 n_{ex} が増大するにつれてスピン輸送距離が短くなる点も一致している。

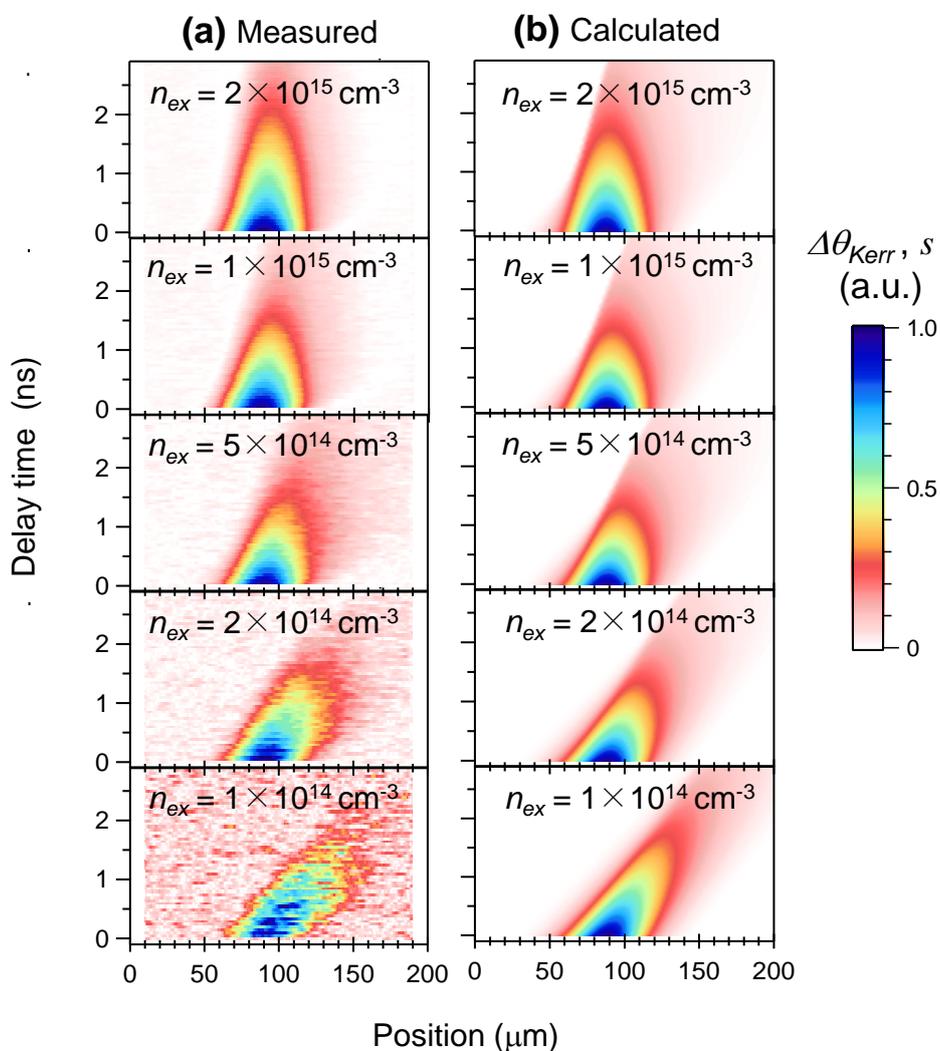


図 5-15 $\Delta\theta_{Kerr, s}$ と s の空間・時間変化

次に、キャリアと電場の空間分布について考察する。図 5-16 に $n_{ex} = 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ における過剰電子密度 $n-N_d$ 、過剰正孔密度 $p-N_a$ 、電子スピン密度 s 、電場 E 、過剰電子と過剰正孔の密度差 $(n-N_d)-(p-N_a)$ の空間分布を示す。図 5-16(a) はキャリアの励起直後 ($t = 0$) における解析結果であるため、 $n-N_d$ 、 $p-N_a$ 、 s は全て同じ位置に分布している。また、 E は空間的に均一であり、その値は印加電場である 1.75 kV/cm に等しい。一方、キャリアを励起してから 1 ns 後の解析結果である図 5-16(b) を見ると、まず、 $n-N_d$ 、 $p-N_a$ 、 s は全て同じ方向へ輸送されていることがわかる。これは、第 2 章で述べたアンバイポーラのドリフト・拡散モデルが成り立っていることを意味する。本解析ではわずかに p 型の不純物密度を考慮しているため、少数キャリアである電子の輸送される方向へ正孔も輸送されている。電子スピンについても同様に輸送されるが、 $T_s < \tau_c$ であるため速く減衰している。また、キャリアの空間分布は非対称であり、 $(n-N_d)-(p-N_a)$ が局所的に大きくなる領域が見られる。このように、キャリアは輸送される間に非対称な分布を形成しており、これは図 5-15 で比較したように $\Delta\theta_{Kerr}$ の測定結果と同様である。また、キャリア密度の高い領域付近では E が小さくなっていることから、電子と正孔によって形成される空間電荷が外部電場を遮蔽するというモデルが成り立っていると考えられる。

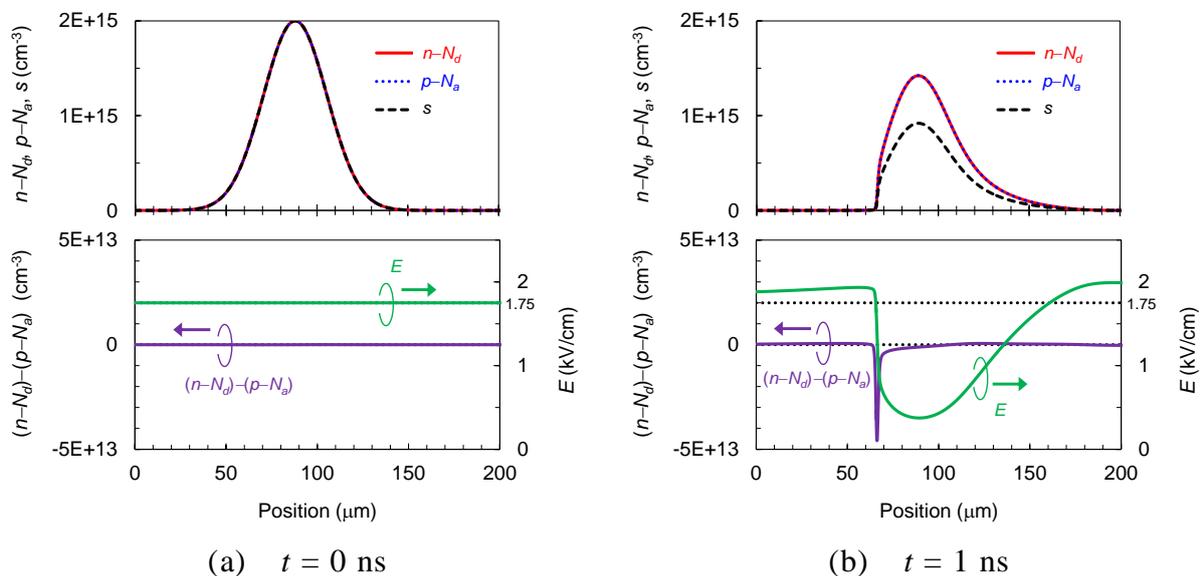


図 5-16 キャリアと電場の空間分布の解析結果 ($n_{ex} = 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$)

同様の解析を $n_{ex} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ の場合について行った結果を図 5-17 に示す。
 $n_{ex} = 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ における解析結果と比較すると、 $t = 1 \text{ ns}$ におけるキャリアの空間分布はより対称的であり、電子と正孔の密度差も小さい。また、電場の遮蔽効果が小さく、1.4 kV/cm 以上の電場が概ね均一に印加されていることがわかる。

これらの結果から、 n_{ex} が大きくなるとスピン輸送距離が制限された理由は、予想通り電場の遮蔽効果であったと言える。

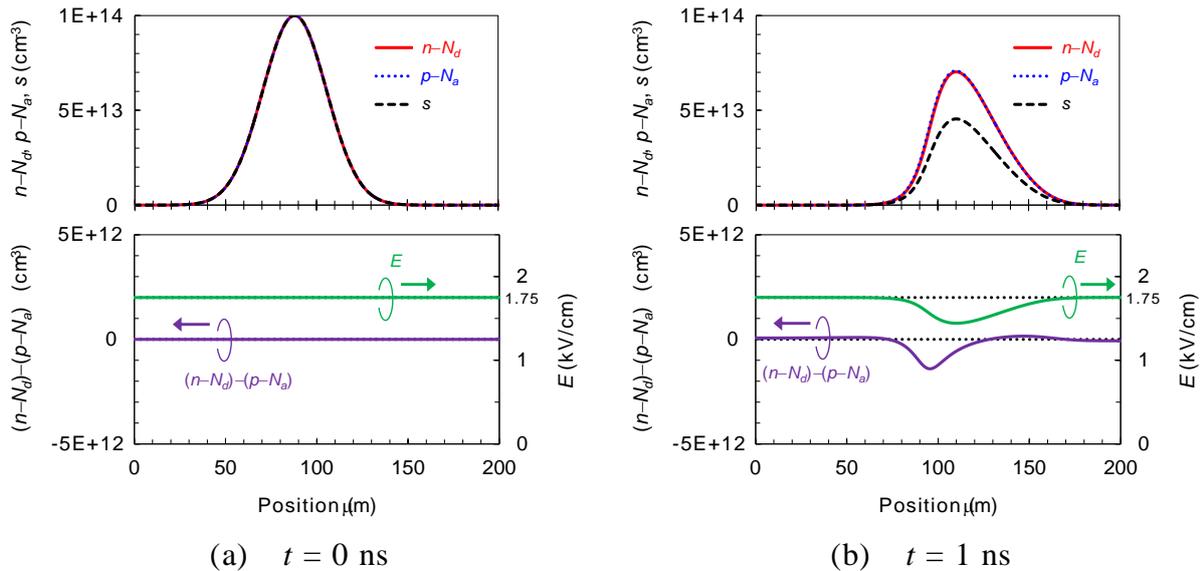


図 5-17 キャリアと電場の空間分布の解析結果($n_{ex} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$)

上記のような空間電荷による外部電場の遮蔽効果は、空間的に不均一なキャリア分布によって生じる現象である。そのため、ドーピングした QW にスピン偏極電子を電流注入する場合には遮蔽効果が生じない。しかしながら、ドーピング濃度を高くするとデバイスの抵抗値が低下するため、本研究で用いたアンドープの QW のように、大きな電場を印加することが困難となる。この場合は、要求されるスピン輸送距離が得られる電場が印加できるように、QW のドーピング濃度を設定する必要がある。また、(110) QW では結晶成長方向に対して非対称にドーピングすると、SIA に起因した面内方向の有効磁場が生じて τ_s が短縮されるため[28]、(110) QW のドーピングは対称的に行うことが重要である。

5.5. まとめ

本研究では、 μm オーダの電子スピン輸送を室温で観測するために GaAs(110) MQW の面内方向へ電場を印加し、光励起されたスピン偏極電子の輸送距離を

空間・時間分解カー回転法によって調べた。その結果、電場 1.75 kV/cm において約 37 μm の電子スピン輸送を室温で観測することに成功した。この距離は、これまでに報告されている半導体中の室温における輸送距離として最長であり、室温で動作するスピン光デバイスにおいては、GaAs(110) MQW をスピン輸送層として用いることが有効であることがわかった。また、スピンドリフト拡散方程式とポアソン方程式の連立解析より、電場によって輸送される電子スピンの空間分布の非対称性と輸送距離、そしてそれらの励起キャリア密度依存性を、空間電荷による電場の遮蔽効果によって説明した。

5.6. 参考文献

- [1] M. Holub, J. Shin, D. Saha, and P. Bhattacharya, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 146603 (2007).
- [2] T. Sogawa, P. V. Santos, S. K. Zhang, S. Eshlaghi, A. D. Wieck, and K. H. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 276601 (2001).
- [3] O. D. D. Couto, Jr., R. Hey, and P. V. Santos, *Phys. Rev. B* **78**, 153305 (2008).
- [4] D. Hägele, M. Oestreich, W. W. Rühle, N. Nestle, and K. Eberl, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1580 (1998).
- [5] H. Sanada, I. Arata, Y. Ohno, Z. Chen, K. Kayanuma, Y. Oka, F. Matsukura, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2788 (2002).
- [6] Y. Sato, Y. Takahashi, Y. Kawamura, and H. Kawaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, L230 (2004).
- [7] J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom, *Nature* **397**, 139 (1999).
- [8] M. Furis, D. L. Smith, S. A. Crooker, and J. L. Reno, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 102102 (2006).
- [9] H. Soldat, M. Li, N. C. Gerhardt, M. R. Hofmann, A. Ludwig, A. Ebbing, D. Reuter, A. D. Wieck, F. Stromberg, W. Keune, and H. Wende, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 051102 (2011).
- [10] T. Suzuki, T. Sasaki, T. Oikawa, M. Shiraishi, Y. Suzuki, and K. Noguchi, *Appl. Phys. Express* **4**, 023003 (2011).
- [11] R. Jansen, *Nat. Mater.* **11**, 400 (2012).
- [12] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura, and H. Ohno, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4196 (1999).
- [13] 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).
- [14] S. Iba, S. Koh, and H. Kawaguchi, Appl. Phys. Lett. **97**, 202102 (2010).
- [15] S. Koh, A. Nakanishi, and H. Kawaguchi, Appl. Phys. Lett. **97**, 081111 (2010).
- [16] A. Kanno, Y. Masumoto, J. of Lumin. **119**, 178 (2006).
- [17] A. Hernández-Mínguez, K. Biermann, S. Lazić, R. Hey, and P. V. Santos, Appl. Phys. Lett. **97**, 242110 (2010).
- [18] C. Hu, H. Ye, G. Wang, H. Tian, W. Wang, W. Wang, B. Liu, X. Marie, Nanoscale Res. Lett. **6**, 149 (2011).
- [19] I. D'Amico and G. Vignale, Phys. Rev. B **65**, 085109 (2002).
- [20] M. Idrish Miah, Phys. Lett. A **372**, 6981 (2008).
- [21] 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. Cryst. Growth **301**, 93 (2007).
- [22] S. Iba, H. Fujino, T. Fujimoto, S. Koh, and H. Kawaguchi, Physica E **41**, 870 (2009).
- [23] M. Henini, O. Z. Karimov, G. H. John, R. T. Harley, and R. J. Airey, Physica E **23**, 309 (2004).
- [24] H. Zhao, M. Mower, and G. Vignale, Phys. Rev. B **79**, 115321 (2009).
- [25] Y. V. Pershin, Physica E **23**, 226 (2004).
- [26] J. S. Blakemore, J. Appl. Phys. **53**, R123 (1982).
- [27] 冷水佐壽, 佐野直克, 森芳文, 「エピタキシャル成長技術実用データ集」, サイエンスフォーラム (1986).
- [28] V. V. Bel'kov, P. Olbrich, S. A. Tarasenko, D. Schuh, W. Wegscheider, T. Korn, C. Schüller, D. Weiss, W. Prettl, and S. D. Ganichev, Phys. Rev. Lett. **100**, 176806 (2008).

第6章 結論

本研究では、D'yakonov-Perel' スピン緩和機構の抑制により、室温で長い電子スピン緩和時間 τ_s が得られる GaAs(110) MQW に着目し、電子スピンの緩和と輸送を調べることで、スピン光デバイスとその高性能化に向けた知見を得ることを目指した。

第1章では、研究背景として半導体スピンデバイスの歴史と課題について述べた上で、本研究の目的を示した。

第2章では、スピン軌道相互作用とそれに起因する有効磁場の概念、そして主要なスピン緩和機構と電子スピンのドリフト・拡散について説明した。また、代表的な電子スピンドイナミクス測定法について述べた。

第3章では、電子スピンの緩和と輸送を測定する手段として構築した、偏光時間分解 PL 法、時間分解反射率法、時間分解カー回転法による測定系について述べた。各測定法は異なる物理現象を観測するため、得られる物理パラメータや測定感度、時間分解能が異なり、各測定法による GaAs(110) MQW の測定結果を比較することで新しい知見が得られた。まず、励起キャリアが励起子吸収飽和に与えるクーロン効果の励起波長依存性を明らかにした。さらにこれらの測定法で得られる τ_s を比較し、0.83 ns ~ 1.2 ns の範囲で同等の値が得られ、利用する物理現象は異なっても τ_s の測定値に影響しないことがわかった。

第4章では、マイクロポスト構造によるスピン VCSEL の発振円偏光スイッチングの高速化に関して述べた。まず、GaAs(110) MQW と InGaAs(110) MQW をもつマイクロポスト構造を作製し、偏光時間分解 PL 法を用いて τ_s とキャリア寿命 τ_c を 77 K にて測定した。どちらの MQW においても、ポスト側面における速い非発光表面再結合によって τ_c が劇的に短縮される一方、 τ_s はその長い値を維持することがわかった。しかし、測定に用いたストリークカメラの時間分解能 (~25 ps) では、大幅なスイッチングの高速化が期待できる 2 μm 以下の微小なポストの τ_s を評価することが困難であった。そこで、より高い時間分解能 (1.3 ps) をもつ時間分解カー回転法を用い、GaAs(110) MQW における τ_c と τ_s を測定した。その結果、0.5 μm のポストにおいて τ_c が 27 ps まで短縮されるが、 τ_s は 0.74 ns の長い値が維持されることがわかった。

τ_c と τ_s の測定結果をもとに、マイクロポスト構造をもつスピン VCSEL のレート方程式解析を行った結果、サイズ 0.5 μm のポスト構造により約 13 GHz の高速な発振円偏光スイッチングが期待できることがわかった。

第 5 章では、スピン光デバイスにおいて要求される μm オーダの電子スピン輸送を室温で観測するために、GaAs(110) MQW の面内方向に電場を印加し、光学的に励起した電子スピンの輸送距離を空間・時間分解カー回転法によって調べた。その結果、電場 1.75 kV/cm において、電子スピン寿命 1.2 ns の間に約 $37 \mu\text{m}$ の電子スピン輸送を室温で観測することに成功した。この距離はこれまでに報告されている半導体中の室温におけるスピン輸送距離として最長であり、室温で動作するスピン光デバイスにおいては、GaAs(110) MQW をスピン輸送層として用いることが有効であることがわかった。

励起キャリア密度を $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ から $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ まで増大させると、輸送されるスピン偏極した電子の空間分布が徐々に非対称になり、輸送距離が短縮された。スピンドリフト拡散方程式とポアソン方程式の連立解析により、このような電子スピン輸送の励起キャリア密度依存性は、電子と正孔の分離によって生じた空間電荷が外部電場を遮蔽する効果によって説明できることを明らかにした。

以上の成果は、スピン光デバイスにおける(110) MQW の有用性ととも、電子スピンの緩和と輸送の評価に関する基本的な知見を与える。また、スピン VCSEL の光通信への応用に向けた重要な知見を示した。

研究業績

【学術論文】

1. N. Yokota, K. Ikeda, Y. Nishizaki, S. Koh, and H. Kawaguchi, “Carrier Lifetime and Electron Spin Relaxation Time in (110)-Oriented GaAs-AlGaAs Quantum-Well Micro-Posts,” *IEEE Photon. Technol. Lett.* **22**, 1689 (2010).
2. N. Yokota, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, “Comparison of measurement techniques for electron spin relaxation time in a GaAs/AlGaAs multiple quantum well,” *Physica E* **44**, 1176 (2012).
3. N. Yokota, Y. Tsunemi, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, “Pump Probe Measurement of Electron Spin Relaxation Time in (110)-Oriented GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Well Microposts,” *Appl. Phys. Express* **5**, 122401 (2012).
4. Y. Tsunemi, N. Yokota, S. Majima, K. Ikeda, T. Katayama, and H. Kawaguchi, “1.55- μm VCSEL with polarization-independent HCG mirror on SOI,” *Opt. Express* **21**, 28685 (2013).
5. 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).

【国際会議発表】

1. K. Ikeda, Y. Nishizaki, N. Yokota, K. Ohnishi, S. Koh, and H. Kawaguchi, “Shortening of carrier lifetime and its effect on electron spin relaxation time in GaAs/AlGaAs (110) multiple quantum wells,” The International Conference on Nanophotonics (OSA Topical Meeting), paper P-B20, Tsukuba, Japan, June 2010.
2. N. Yokota, K. Ikeda, S. Koh, and H. Kawaguchi, “Evaluation of carrier lifetime and electron spin relaxation time in (110)-oriented GaAs/AlGaAs quantum well micro-posts,” GIST-NCTU-NAIST International Exchange Program, Nara, Japan, November 2010.
3. N. Yokota, K. Ikeda, S. Koh, and H. Kawaguchi, “Spin-controlled switching of lasing circular polarizations in (110)-oriented VCSELs,” SPIE Photonics West, paper 7937-28, San Francisco, California, USA, January 2011.
4. N. Yokota, K. Ikeda, and H. Kawaguchi, “(110)-Oriented GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Well Microposts for High-Speed Polarization Switching of Spin-Controlled VCSELs,” The European Conference on Lasers and

Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-IQEC), paper CF/IE-P.31, Munich, Germany, May 2013.

5. 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 Conference, paper DP-5, Denver, Colorado, USA, November 2013.
6. Y. Tsunemi, N. Yokota, S. Majima, K. Ikeda, T. Katayama, and H. Kawaguchi, "Room Temperature Operation of Optically Pumped 1.55-mm VCSEL with Polarization-Independent HCG Mirror on SOI," Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), San Jose, California, USA, June 2014. (submitted)

【国内学会発表】

1. 池田和浩, 西崎仁貴, 横田信英, 大西和樹, 黄晋二, 河口仁司, 「GaAs/AlGaAs(110)多重量子井戸のキャリア寿命の短縮と電子スピン緩和時間」, 第57回応用物理学会春季学術講演会, 17a-TM-24, p. 14-061, 神奈川, 2010年3月.
2. 横田信英, 池田和浩, 片山健夫, 黄晋二, 河口仁司, 「GaAs/AlGaAs MQWの電子スピン緩和時間測定法に関する検討」, 第72回応用物理学会秋季学術講演会, 1p-S-5, p. 10-091, 山形, 2011年9月.
3. 横田信英, 「偏光制御による高機能フォトニックデバイス」, 日本学術会議公開シンポジウム: 第2回先端フォトニクスシンポジウム, 日本学術会議総合工学委員会 ICO 分科会, No. 23, 東京, 2011年10月.
4. 常深義博, 横田信英, 池田和浩, 河口仁司, 「光導波路結合型 HCG-VCSELにおける結合効率の構造依存性」, 2012年電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ大会, C-4-28, p. 238, 富山, 2012年9月.
5. 横田信英, 常深義博, 池田和浩, 河口仁司, 「GaAs/AlGaAs(110) MQW マイクロポストにおける電子スピン緩和時間の評価」, 第73回応用物理学会秋季学術講演会, 14a-H6-2, p. 10-092, 愛媛, 2012年9月.
6. 常深義博, 横田信英, 池田和浩, 河口仁司, 「光導波路結合型 HCG-VCSELにおける光出力特性の解析」, 電子情報通信学会技術研究報告, Vol. 112, No. 398, pp. 19-24, 大阪, 2013年1月.
7. 安田祐介, 横田信英, 池田和浩, 河口仁司, 「InP(110)基板上 InGaAs/InAlAs 量子井戸の電子スピン緩和時間」, 第60回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 28p-A8-2, p. 10-104, 2013年3月.

8. 横田信英, 池田和浩, 河口仁司, 「GaAs/AlGaAs(110)MQW における面内スピンの輸送の室温観測」, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 京都, 16p-C15-5, 10-080, 2013 年 9 月.
9. 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_x 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, 京都, 16p-C15-6, p. 10-081, 2013 年 9 月.
10. 常深義博, 横田信英, 間嶋翔太, 池田和浩, 片山健夫, 河口仁司, 「SOI 基板上 1.55 μm 帯 HCG-VCSEL の光励起レーザ発振」, 2013 年 電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ大会, C-4-18, p. 226, 福岡, 2013 年 9 月.
11. 常深義博, 横田信英, 間嶋翔太, 池田和浩, 片山健夫, 河口仁司, 「HCG 領域の形状による偏光無依存 HCG-VCSEL の発振偏光制御」, 2014 年 電子情報通信学会総合大会, C-4-28, 新潟, 2014 年 3 月. (発表予定)

【競争的研究支援】

学外の財団による研究支援

1. 横田信英, 公益財団法人 中部電気利用基礎研究振興財団, 国際交流援助, 「Spin-controlled switching of lasing circular polarizations in (110)-oriented VCSELs」, 平成 22 年度, 助成額: 8 万円.
2. 横田信英, 一般財団法人 テレコム先端技術研究支援センター, 研究奨励金, 「次世代大容量光通信に向けたスピン面発光半導体レーザの高速発振円偏光スイッチング」, 平成 23-25 年度, 助成額: 月額 12 万円 (合計 432 万円).
3. 横田信英, 公益財団法人 NEC C&C 財団, 国際会議論文発表者助成, 「Space- and Time-Resolved Observation of Electron Spin Transport in a (110) GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Well at Room Temperature」, 平成 25 年度, 助成額: 20 万円.

学内の競争的研究支援

4. 横田信英, 奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科, 競争的研究支援, 「マイクロポスト構造をもつ GaAs(110)基板上面発光半導体レーザの高速発振円偏光スイッチング」, 平成 22 年度, 助成額: 34 万円.
5. 横田信英, 奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科, 競争的研究支援, 「マイクロポスト構造によるスピン面発光半導体レーザの高速発振円偏光スイッチング」, 平成 23 年度, 助成額: 40 万円.

6. 横田信英, 奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科, 競争的研究支援, 「スピン光デバイスに向けたスピン流イメージング」, 平成 24 年度, 助成額 : 40 万円.
7. 横田信英, 公益財団法人 奈良先端科学技術大学院大学支援財団, 海外派遣支援, 「(110)-Oriented GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Well Microposts for High-Speed Polarization Switching of Spin-Controlled VCSELs」, 平成 25 年度, 助成額 : 18 万円.
8. 横田信英, 奈良先端科学技術大学院大学 物質創成科学研究科, 競争的研究支援, 「室温動作スピンデバイスに向けた n 型変調ドープ量子井戸構造におけるスピン輸送特性の評価」, 平成 25 年度, 助成額 : 40 万円.

謝辞

本研究を進めるに当たって、多くの方に御指導および御協力頂きました。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。

本研究の一部は、一般財団法人 テレコム先端技術研究支援センターによる研究奨励金の援助のもとで行われました。心よりお礼申し上げます。

本研究を進める上で研究環境を整えて頂き、研究計画や実験結果、学会発表、論文執筆などに関する御助言に加え、研究者としての姿勢から将来の進路まで非常に多くの御指導、御鞭撻を賜りました河口仁司教授に深く感謝致します。

本研究に関して、半導体の結晶構造などの理論的な観点から御助言を頂きました大門寛教授に感謝致します。

半導体の物性に関する御助言や本研究の応用分野や新奇性を改めて考え直す機会を与えて頂きました石河泰明准教授に感謝致します。

輪講や日々の議論によって、結晶成長や他の研究グループの動向に関して多くの知識を与えて頂きました黄晋二准教授(現 青山学院大学 准教授)に感謝致します。

半導体量子構造における電子の輸送に関して御助言を頂きました、同志社大学の佐藤祐喜准教授に感謝致します。

研究計画の立案から、実験結果の議論、学会発表、論文執筆などに渡って、研究に関するあらゆることを御指導頂いた他、日々の苦労を緩和する良き話し相手になって頂いた池田和浩助教に感謝致します。

実験装置の詳細な構造・原理や使い方など、研究者に必要とされる装置に対する深い知識が得られるように御指導頂いた他、非常に多くの事務手続きを支援して頂きました片山健夫助教に感謝致します。

光信号処理に関する基礎知識や測定機器の使用方法について御助言を頂きました博士研究員の林大介氏に感謝致します。

出張に関する事務手続きでお世話になりました、秘書の杉田奈穂子氏と前秘書の前川彩美氏に感謝致します。

結晶成長や結晶構造、コンピュータの操作方法などに関する御助言を頂きました博士後期課程3年の安田祐介氏に感謝致します。

博士課程を修了するまでの間、共に切磋琢磨し、良き友人であり、良き相談相手でもあった博士後期課程3年の常深義博君には、心強い支えとなって頂きました。深く感謝致します。

半導体ウエハを結晶成長して頂いた博士前期課程 2 年の青島洋平君に感謝致します。

また、共に研究に取り組み、有意義な時間を過ごさせて頂きました超高速フォトニクス研究室の皆様に感謝致します。

最後に、修士・博士課程を修了するまでの 5 年間を支えてくれた両親に深く感謝致します。