



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	スピン偏極発光ダイオードにおける電子スピン保持輸送とスピン増幅発光に関する研究
Author(s)	江藤, 亘平
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16506号
Issue Date	2025-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k16506
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/95027
Type	doctoral thesis
File Information	Kohei_Etou.pdf



令和 6 年度

Doctoral Dissertation

博士学位論文

スピン偏極発光ダイオードにおける

電子スピン保持輸送とスピン増幅発光に関する研究

**Study on spin-conserved electron transport and
spin-amplified luminescence in spin-polarized
light-emitting diodes**

Graduate School of Information Science and Technology

Hokkaido University

北海道大学大学院 情報科学院

Kohei Etou

江藤 亘平

目次

第1章 序論	5
第2章 III-V 族化合物半導体を用いたスピン光変換.....	8
第1節 はじめに.....	8
第2節 強磁性体電極から半導体へのスピン注入.....	10
第1項 強磁性体電極の磁化特性とファラデー回転.....	10
第2項 コンダクタンスミスマッチを回避するスピントンネル注入.....	11
第3項 半導体/酸化物界面における電子捕獲.....	13
第3節 光学活性層へのスピン偏極電子の輸送.....	14
第1項 D'yakonov-Perel'スピン緩和機構.....	14
第2項 Bir-Aronov-Pikus スピン緩和機構.....	16
第3項 Elliot-Yafet スピン緩和機構.....	17
第4項 電子スピンの輸送長と超格子スピン輸送層.....	18
第4節 スピン偏極電子の発光再結合.....	20
第1項 発光再結合確率.....	20
第2項 円偏光選択則.....	21
第3項 p ドーピングによる DP スピン緩和の抑制.....	22
第4項 希薄窒化 GaNAs におけるスピン依存再結合.....	23
第3章 研究目的	25
第4章 研究方法	26
第1節 試料の作製方法.....	26
第1項 分子線エピタキシー法を用いた量子ドット LED 構造の成膜.....	26
第2項 電子線蒸着法を用いたスピン注入層の成膜.....	27
第3項 リフトオフ法を用いた Au ボンディングパッドの形成.....	28

第4項 ウェットエッチングとLEDの表面実装	30
第2節 試料の評価方法.....	31
第1項 磁場中円偏光エレクトロルミネッセンス測定	31
第2項 円偏光時間分解フォトルミネッセンス測定	32
第5章 研究結果	33
第1節 p ドープ量子ドットを持つスピン偏極発光ダイオード	33
第1項 試料構造.....	33
第2項 電流電圧特性とバンド計算結果.....	34
第3項 室温環境におけるELスペクトル.....	35
第4項 注入電流を一定にしたときのEL円偏光度の磁場依存性	36
第5項 注入電流を一定にしたときのEL円偏光度の温度依存性	37
第6項 PL減衰時間とスピン緩和時間の温度依存性	39
第7項 PL円偏光度の電圧依存性	42
第8項 結論	44
第2節 希薄窒化GaNaNs量子井戸とトンネル結合した量子ドットを持つスピン偏極発 光ダイオード	45
第1項 試料構造.....	45
第2項 電流電圧特性とバンド計算結果.....	46
第3項 注入電流を一定にしたときのEL円偏光度の磁場依存性	47
第4項 室温環境におけるEL円偏光度の電流依存性.....	48
第5項 室温環境におけるPL円偏光度の励起光強度依存性	50
第6項 異なる温度におけるEL円偏光度の電流依存性	51
第7項 励起光強度を一定にしたときのPL円偏光度の電圧依存性	53
第8項 印加電圧を一定にしたときのPL円偏光度の励起光強度依存性	54

第9項 結論	55
第3節 GaAs/AlGaAs 超格子による電界下スピン偏極保存輸送.....	56
第1項 試料構造.....	56
第2項 電流電圧特性とバンド計算結果.....	58
第3項 励起光強度を一定にしたときの PL 特性の励起エネルギー依存性	59
第4項 励起光強度を一定にしたときの積分 PL 強度の電圧依存性	60
第5項 励起光強度を一定にしたときの PL 発光減衰の電圧依存性	62
第6項 励起光強度を一定にしたときの PL 円偏光度の電圧依存性	63
第7項 励起エネルギーを一定にしたときの PL 特性の励起光強度依存性	64
第8項 結論	65
第6章 結論	66
第1節 結論	66
第2節 謝辞	68
第3節 引用文献.....	69
第4節 研究業績.....	76

第1章 序論

近年、AI・IoTをはじめとする高度 IT 技術が社会に浸透し、情報機器の消費電力増大に焦点が当てられ始めている。科学技術振興機構によれば、データセンター・パーソナルコンピュータ・ネットワーク機器の技術革新が行われず、データトラフィック量のみが増加し続けた場合、2050 年の消費電力は 176.2 EWh/year に達すると試算されている(図 1(a))。これは 2016 年の消費電力量の 180 倍に相当する電力量である [1]。また、社会様式が今後大きく変化すれば、消費電力量は必然的に増加する。実際、2019 年前期まで 1 年あたりのデータトラフィックの増加量は約 1700 Gbps/year であったが、新型コロナウイルス感染症によるパンデミック発生後は在宅勤務や在宅学習が普及し社会のデジタル化が急速に進んだことにより、約 7500 Gbps/year のペースで増加している [2]。これは、従来の電力需要予測よりも早い時期に、情報機器による電力消費が電力供給能力を上回る可能性を示唆している。

情報機器の消費電力を低減させるためには、情報機器の各動作における消費電力に注目する必要がある。図 1(b)に情報機器の動作ごとに消費される 1bit あたりのエネルギーを示す [3]。情報機器における消費電力の大半は、情報伝送と情報記憶に用いられ、演算処理で消費される電力は僅かであることが分かる。そこで注目されているのが、低消費電力での情報保持と情報伝送が可能な磁気スピンメモリ(MRAM)と光配線である。

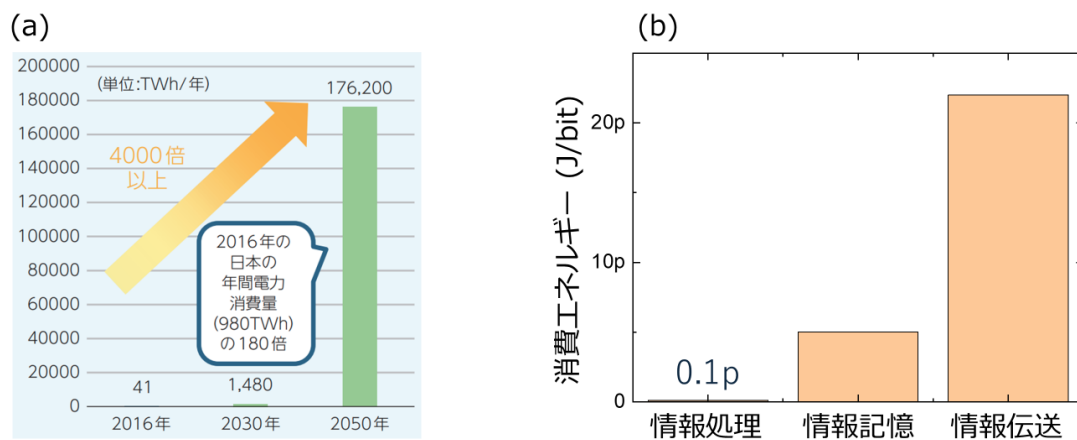


図 1 (a) 情報機器の国内消費電力予測[1], (b) 1 ビットあたりの消費エネルギー[3]

図 2(a)に L1 キャッシュと L2 キャッシュに SRAM、スピントランスファートルク磁気スピンメモリ(STT-MRAM)、スピン軌道磁気スピンメモリ(SOT-MRAM)をそれぞれ用いた場合における消費電力のシミュレーション結果を示す [4]。アーキテクチャはハーバード方式であり、磁気スピンメモリの磁化反転モデルは出典 [5, 6]を用いている。シミュレーション結果から、MRAM を用いることで 45%の消費電力削減が見込まれることが分かった。これは STT-MRAM は低リーク電流で動作できるためである。図 2(b)に電気配線と光配線における遅延時間の配線長依存性を示す [7]。電気配線の計算モデルは配線容量と配線抵抗を考慮した抵抗-容量(RC)線路モデルが用いられている。電気配線では伝送距離が増加することで遅延時間が飛躍的に増加するうえに、設計ルールの微細化に伴う遅延時間の増大も生じることが分かる。これは中央演算装置(CPU)のクロック周波数増加と情報素子の高密度集積化が、電気配線を用いた場合に実現しにくいことを示している。一方、光配線では伝送距離が増加しても遅延時間がほとんど変化しない。これは情報担体となるフォトンが電荷を持たないため導波路中の容量を充電しないためと考えられる [7]。

本章で紹介した磁気スピンメモリと光配線は低消費電力かつ低遅延で動作する次世代のメモリ技術と信号配線技術である。両技術は現在、独立に研究開発が行われているが、情報機器の低消費電力化と低遅延化という目標は共通している。すなわち、磁気スピンメモリと光配線を同時に搭載した情報機器が求められる蓋然性は高いと考えられる。その場合、キーテクノロジーとなることが予想されるのが、次章で述べる磁気スピン情報の光変換である。

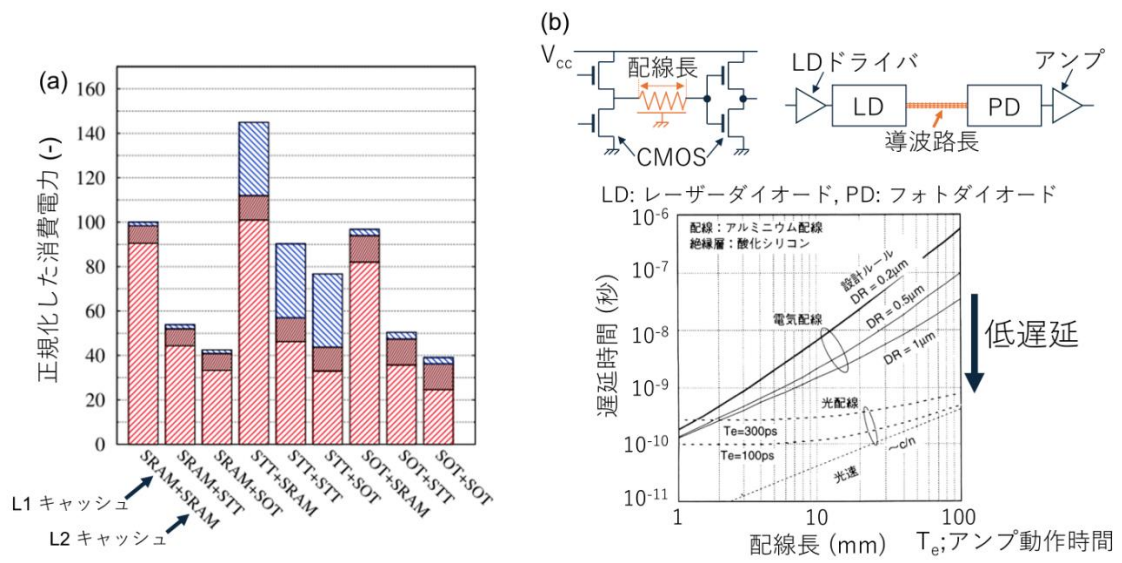


図 2 (a) L1 および L2 キャッシュに SRAM, STT-MRAM, SOT-MRAM を使用した場合の正規化した消費電力 [4]。 (b) 電気配線と光配線における遅延時間の配線長依存性 [7]。

第2章 III-V 族化合物半導体を用いたスピン光変換

第1節 はじめに

磁気スピン情報を光学的に検出する方法は数多く存在する。最もシンプルな方法は、磁性体へ直線偏光を入射し、反射光の旋光角を測定する Kerr 効果である。本方法は検出系が単純な一方で、中間層の測定が困難というデメリットがある。これは多層化による記憶容量の増大に対応できないことを意味している。第2に考えられるのは、スピンホール効果による起電力や巨大磁気抵抗効果による抵抗変化をトリガーとした発光素子の駆動であるが、これも増幅回路や検出回路を必要とするため簡便な方法とは言えない。そこで III-V 族半導体を用いたスピン光変換に注目する。

GaAs をはじめとした III-V 族化合物半導体は Si を凌ぐ高い電子移動度を有し、その多くが直接遷移型であるため、電流注入発光素子の主要構成材料として広く用いられている [8]。また半導体中における電子スピン緩和は、その組成や構造、外場によって自在に制御できることから、現在まで様々な半導体スピndeバイスが提案、作製されている [9–11]。以上の特徴から、スピン偏極電子の光変換においては III-V 族化合物半導体を用いたスピン偏極発光ダイオード(LED)が最適な素子である。図3にスピン偏極 LED の動作原理を示す。まず電流が強磁性膜を通過することでスピン偏極し、トンネル酸化膜を介して半導体へ電子スピンの注入される。その後、n型半導体中を輸送され光学活性層において正孔と発光再結合する。このとき、電子スピンの向きは光のスピン(円偏光)へ転写される。円偏光の偏りを大きくするためには、強磁性体電極で偏極した電子スピンの偏極率を高く保ったまま光学活性層へ輸送し、スピン偏極が緩和する前に発光再結合させる必要がある。本章では上記の物理現象を理解するために必要な基礎知識を提供する。

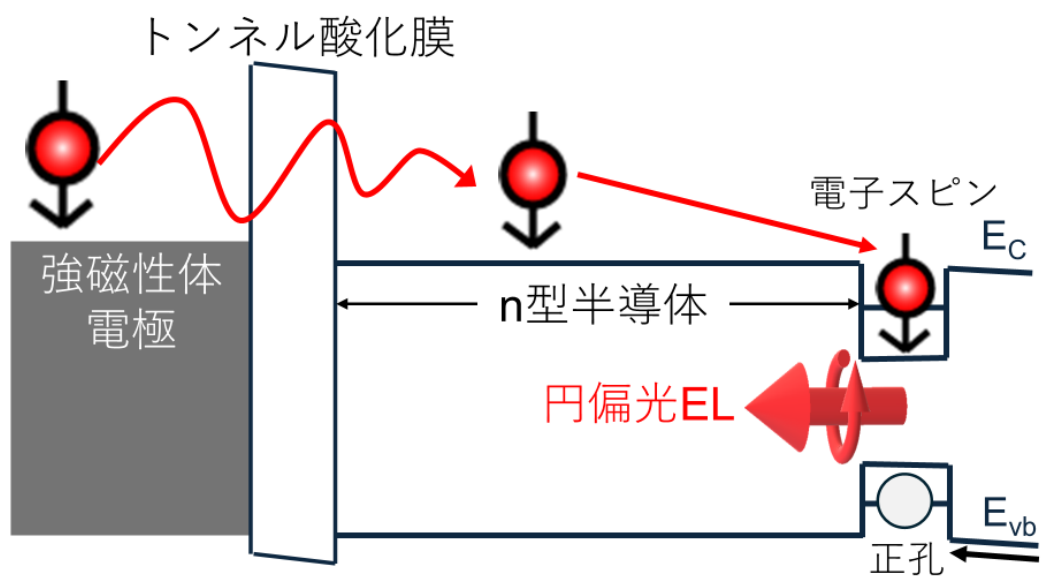


図 3 スピン偏極 LED の動作原理を示す模式図

第2節 強磁性体電極から半導体へのスピン注入

第1項 強磁性体電極の磁化特性とファラデー回転

強磁性体金属は、残留磁化を有する磁性体であり、次世代の不揮発性メモリ材料として研究がなされている(図 4(a))。さらに強磁性を担う Fe 原子や Co 原子のキュリー温度はそれぞれ 770°C と 1121°C であり、それらの強磁性原子により構成された合金は室温環境でも消磁に至らない高い熱耐性を有する。スピン偏極 LED のスピン注入源としての強磁性体を考えた場合、強磁性体電極の磁化曲線と EL 円偏光度の外部磁場依存性は一致するはずである。実際、図 4(b)に示すとおり、スピン偏極 LED の EL 円偏光度は磁化曲線と類似した磁場依存性を取る [12]。また、EL 円偏光度には、スピン偏極に対応した円偏光成分と、強磁性体電極を通過することで生じるファラデー回転の成分が混在している [13, 14]。ただし、電流拡散層を持たないファラデー配置のスピン偏極 LED からの電流注入発光に限る¹。ファラデー回転が円偏光 EL に対して十分に小さいことを証明するためには、図 4(b)に示すとおり、磁場中での直線偏光 PL の旋光角が十分に小さいことを示せばよい [12]。

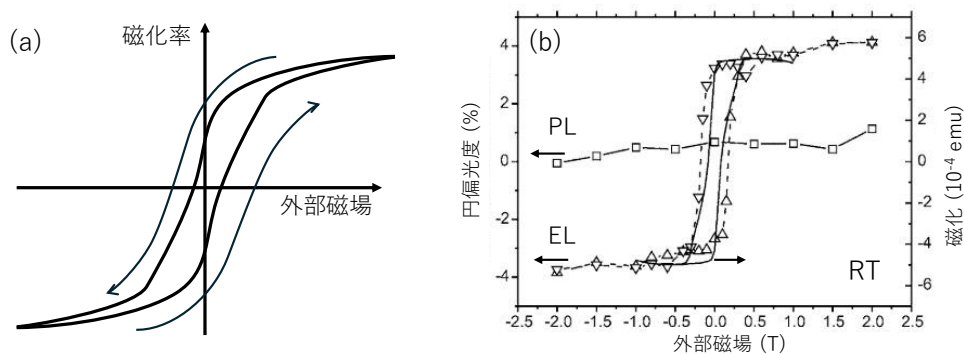


図 4 (a) 強磁性体金属の磁化特性。(b) 強磁性 Fe/Tb 多層膜を持つスピン偏極 LED の EL 円偏光度と磁化の外部磁場依存性 [12]。

¹ 電流拡散層を設けた場合、電極直下だけでなく電極の周囲からも電流注入発光が得られるため、ファラデー効果の影響を受けない発光を得ることができる。

第2項 コンダクタンスミスマッチを回避するスピントネル注入

半導体へのスピン注入が研究され始めた 1990 年代後半、強磁性体と半導体を用いて検出したスピバルブ信号は 1%未満であった [15]。一方で、同時期に発表された希薄磁性半導体をスピン偏極源としたスピン偏極 LED では 40%の EL 円偏光度が観測された [16]。両者の違いは、スピン偏極源の抵抗率と半導体の抵抗率の差である。これは後にコンダクタンスミスマッチと呼ばれることになる [17]。Schmidt らはコンダクタンスミスマッチを回避する構造条件について強磁性体電極のスピン偏極率を考慮したシミュレーションを行った [18]。その結果、強磁性体のスピン偏極率を 100%にするか（ハーフメタル材料を用いるか）、半導体の抵抗率を強磁性体電極と同等にしなければいけないことが分かった(図 5(a))。特に、前者の条件は磁気スピンメモリと光配線を用いたスピン光変換において、磁気スピンメモリの構成材料を強く制限するものであった。そこで、Rashba は厚さ数 nm 程度のトンネル酸化膜を金属半導体界面に挿入する方法を提案した [19]。これはスピン偏極を保持できる $\Delta 1$ バンドを介して電子スピンを半導体にトンネル注入することができ、注入時のスピン緩和を無視できるという大きな利点がある [20]。トンネル酸化膜の材料としては、理論的に $\Delta 1$ バンドによるスピン注入が期待できる AlOx [21]、 GaOx [22]、 MgO [23, 24]などが考えられる。特に MgO は、良好な結晶品質に由来する $\Delta 2$ と $\Delta 5$ バンドとの混成が生じにくいいため、近年のスピン偏極 LED の研究において多用されている [25]。

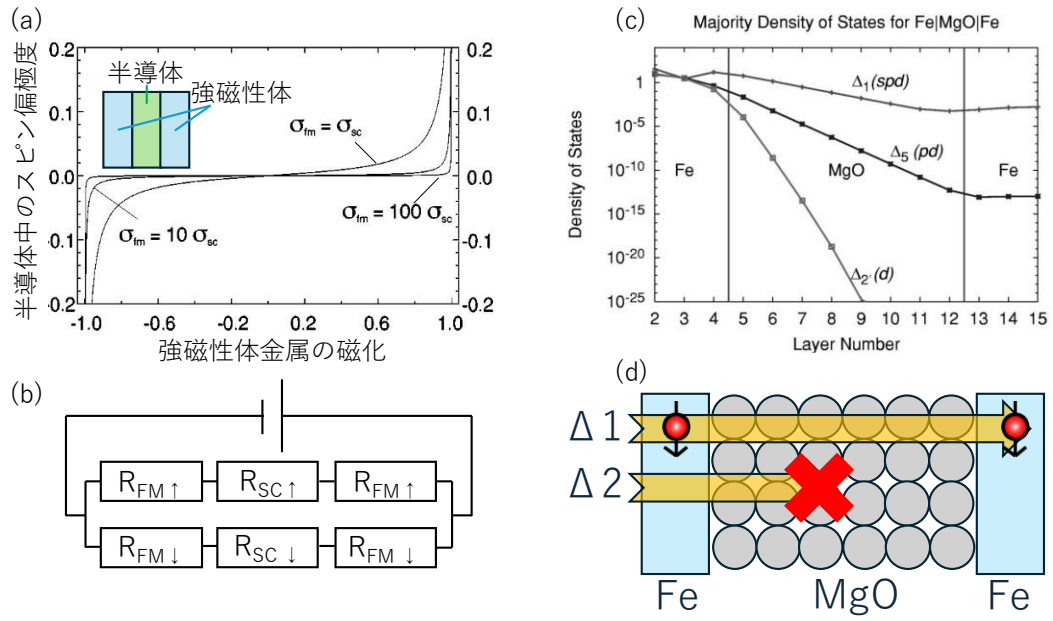


図 5 (a) 半導体中のスピン偏極率の磁化率依存性と(b) 等価回路 [18]。 (c) 多数個スピンの状態密度の層数依存性 [24]。 (d) Δ_1 バンドを介したスピントンネリングを示す模式

図。

第3項 半導体/酸化物界面における電子捕獲

前項で述べたコンダクタンスミスマッチは、薄いトンネル酸化膜(MgO, AlOx)を半導体/金属界面に挿入することで原理的に解決できる [25,26]。しかし、これらの酸化物と GaAs の界面には $\sim 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ eV}^{-1}$ もの高密度な界面準位が存在することが知られており、効率的な電子スピン注入を阻害する主要因となっている [27]。これは、電子スピンの MgO/GaAs 界面において多数捕獲され、光学活性層に到達する伝導電子数が減少する結果となる(図 6(a))。界面準位を埋めるほどの大電流を注入した場合、電子は光学活性層に到達しうが、スピン偏極 LED に印加される電圧も同時に増加する(図 6(b))。これは伝導電子のスピン緩和を促進することにつながり、電流注入による円偏光発光の偏りを低下させてしまう (p. 33, 第5章 1 節 5 項)。したがって、界面準位密度の抑制はスピン偏極 LED の性能向上において重要な課題の一つと言える。斎藤らは、これらの界面準位の問題にいち早く取り組んだ(図 6(c))。MgO, GaOx, n^+ -AlGaAs 薄膜を金属電極と半導体の間に挿入した結果、GaOx 薄膜を用いた場合に最も高い EL 発光強度を得ている [28]。また、2 K の極低温であるが、EL 円偏光も確認しており、スピン注入構造としての Fe/GaOx/n-GaAs 構造の有用性を実証している [29]。

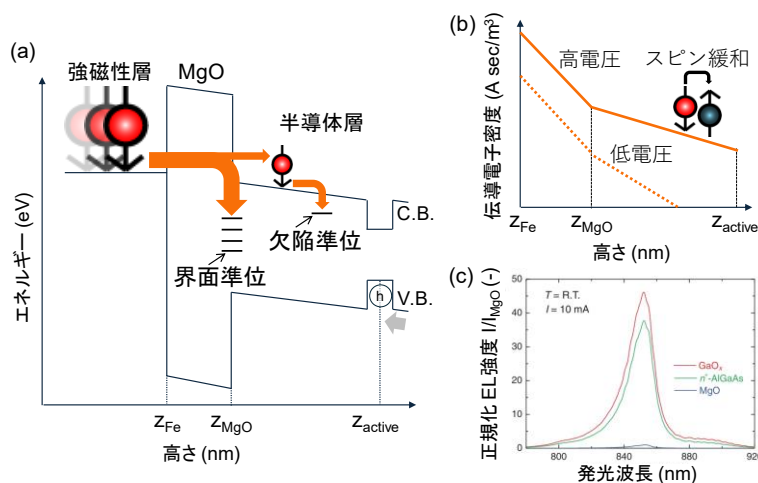


図 6 (a) MgO/GaAs 界面準位への伝導電子の捕獲を示す模式図。 (b) 伝導電子密度の位置依存性。 (c) トンネル酸化膜の違いによる EL スペクトルの変化 [28]。

第3節 光学活性層へのスピン偏極電子の輸送

第1項 D'yakonov-Perel'スピン緩和機構

GaAs などの III-V 族化合物半導体結晶は、単位格子の中心から[111]方向と[-1-1-1]方向において、空間反転対称性が欠如している(図 7(a))。そのため、単位格子内に非零な電場を生じさせ、ドリュッセルハウス型のスピン軌道相互作用が電子スピン偏極へ影響を与える [30]。このとき、[001]方向に電子スピンの移動するとき、電子スピンは D'yakonov-Perel'(DP)スピン緩和過程を経てスピン緩和する。その DP 機構によるスピン緩和時間 τ_s は

$$\frac{1}{\tau_s} = \alpha \left(\frac{\gamma}{\hbar} \right)^2 \frac{E^3}{E_g} \tau_p \quad (1)$$

と書ける [31]。ここで、 γ はドリュッセルハウス項の係数、 E は電子のエネルギー、 E_g はバンドギャップ、 τ_p は運動量の緩和時間、 α は運動量緩和プロセスに依存する無次元量である。ドリュッセルハウス項の係数 γ は、波数の 3 乗に比例し、伝導電子スピンの挙動を決定する。運動量緩和プロセスに関する無次元量 α は、主たる緩和過程によって 0.8 から 2.7 まで変化する値であり、例えば、縦光学フォノンまたは圧電フォノンによる緩和が支配的な場合は 0.8 となる [32]。GaAs などの空間反転対称性が破れている結晶では、 $\mathbf{k} \neq \mathbf{0}$ の伝導スピンバンドの縮退が解けているため、同じ波数で異なるエネルギー状態にある電子スピンが共存する(図 7(b))。これは原子から感じる有効磁場が増大し DP スピン緩和を促進させる [31]。また、運動量緩和はフォノンや不純物と衝突する際に生じるため、電子温度の増加に比例して増加し、またドーピング濃度にも依存する [33]。

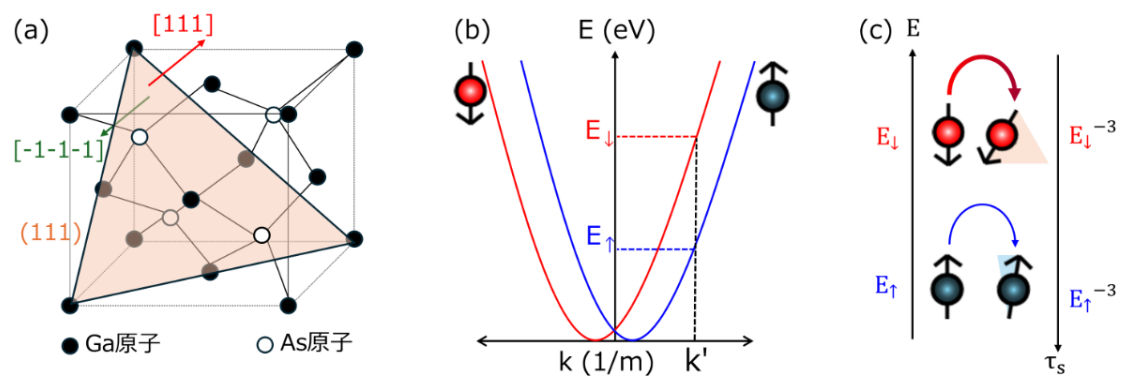


図 7 GaAs 結晶の(a) 原子配置, (b) スピン依存の分散関係, (c) 電子スピン緩和

第2項 Bir-Aronov-Pikus スピン緩和機構

Bir-Aronov-Pikus(BAP)スピン緩和は、正孔スピン状態の変化に応じて電子スピン状態も変化するスピン緩和機構である(図 8)。電子と正孔の状態変化は、両者が近接した場合に顕著となる。これは、DP スピン緩和が原理的に働かない量子ドットにおいてスピン緩和時間が有限値をとる一因である。ここで、BAP 機構によるスピン緩和時間 τ_s は、

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{3}{\tau_0} n_h a_b^3 \frac{\langle v_k \rangle k_B T}{v_B E_F^h} \quad (2)$$

と書ける [34]。 a_b は励起子のボーア半径、 $1/\tau_0$ はボーアエネルギー、 n_h は正孔密度、 $\langle v_k \rangle$ は電子の平均速度、 v_B は電子正孔対の換算質量、 E_F^h は正孔のフェルミエネルギー、 T は温度である。

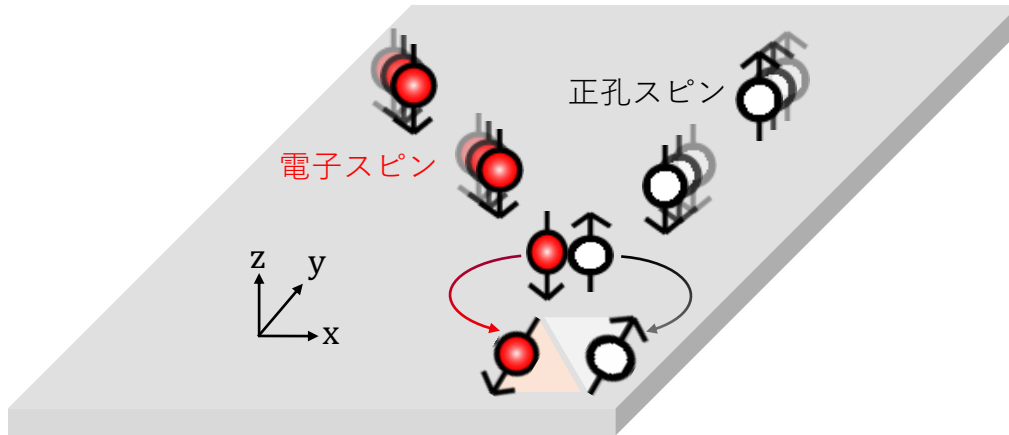


図 8 BAP スピン緩和の模式図

第 3 項 Elliot-Yafet スピン緩和機構

Elliot-Yafet(EY)スピン緩和機構は、結晶欠陥や不純物を作る局所電場が引き起こすスピン緩和機構である [35, 36]。並進対称性を持つ結晶では周期的にハミルトニアンが変化するため、波動関数の周期成分 $u(x)$ は図 9(a) のようになり、マクロな電場を感じる包絡線成分 $\phi(x)$ はラシュバ型のスピン軌道相互作用を受ける [37]。一方で、図 9(b) に示すとおり、対称性を持たない GaAs においては 3 K 以上の温度では一貫して DP スピン緩和が支配的なスピン緩和機構となる [33]。

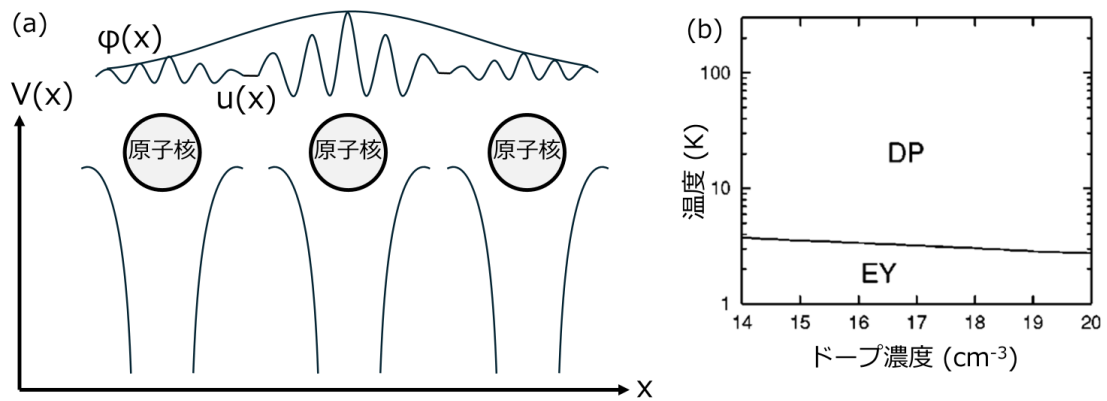


図 9 (a) 周期ポテンシャル中における波動関数, (b) n -GaAs で支配的なスピン緩和機構の温度依存性 [33]

第4項 電子スピンの輸送長と超格子スピン輸送層

前項までに論じた種々のスピン緩和機構は、すべてバルクの半導体中で生じる機構であった。本項では、半導体の膜厚が与える電子スピン偏極への影響について論じる。図 10(a) に強磁性体 Fe/n-GaAs 接合におけるスピン注入後のスピン緩和過程を示す [38]。電子スピンの半導体中を長距離輸送されるほどスピン偏極が減少し、150 nm 地点ではスピン偏極がほぼ消失していることが分かる。この結果は、スピン偏極 LED のスピン輸送層の膜厚を変化させた結果とも一致している [39]。単純に考えると n ドープ層を薄くすることがスピン偏極 LED の性能を向上するために有効であるように思える。しかし、発光量においてはその限りではない。先行研究によれば GaAs-LED の外部量子効率にはバリア膜厚に比例することが明らかになっている。これは、p(n)-AlGaAs ポテンシャル上部における電子(正孔)拡散電流の変化が対応しているためと考えられている [40]。このように、EL 発光強度の観点ではスピン輸送層を厚くすることが望ましいが、EL 円偏光度においては薄い輸送層が望ましい。このジレンマを解決する手段が、半導体超格子を用いた電子スピン輸送である [41, 42]。

超格子はバンドギャップが異なる 2 種類の材料を交互に積層した構造である(図 10(c, d))。江崎らによって発明されたこの構造は、隣り合う量子井戸に波動関数がトンネル効果により染み出すことで、電子のスピン状態を保ったまま長距離輸送できる [42, 43]。この原理に基づいて、先行研究では GaAs/AlGaAs 超格子のスピン輸送特性が研究されている(図 10(e))。実験結果によると、厚い量子井戸を持つ超格子ではスピン緩和時間は室温で約 200 ps に達することが分かる [44]。これは超格子中でスピン緩和が促進される前に電子スピンを光学活性層に輸送できることを示唆している。次節では、光学活性層に輸送された電子スピンの発光再結合について解説する。

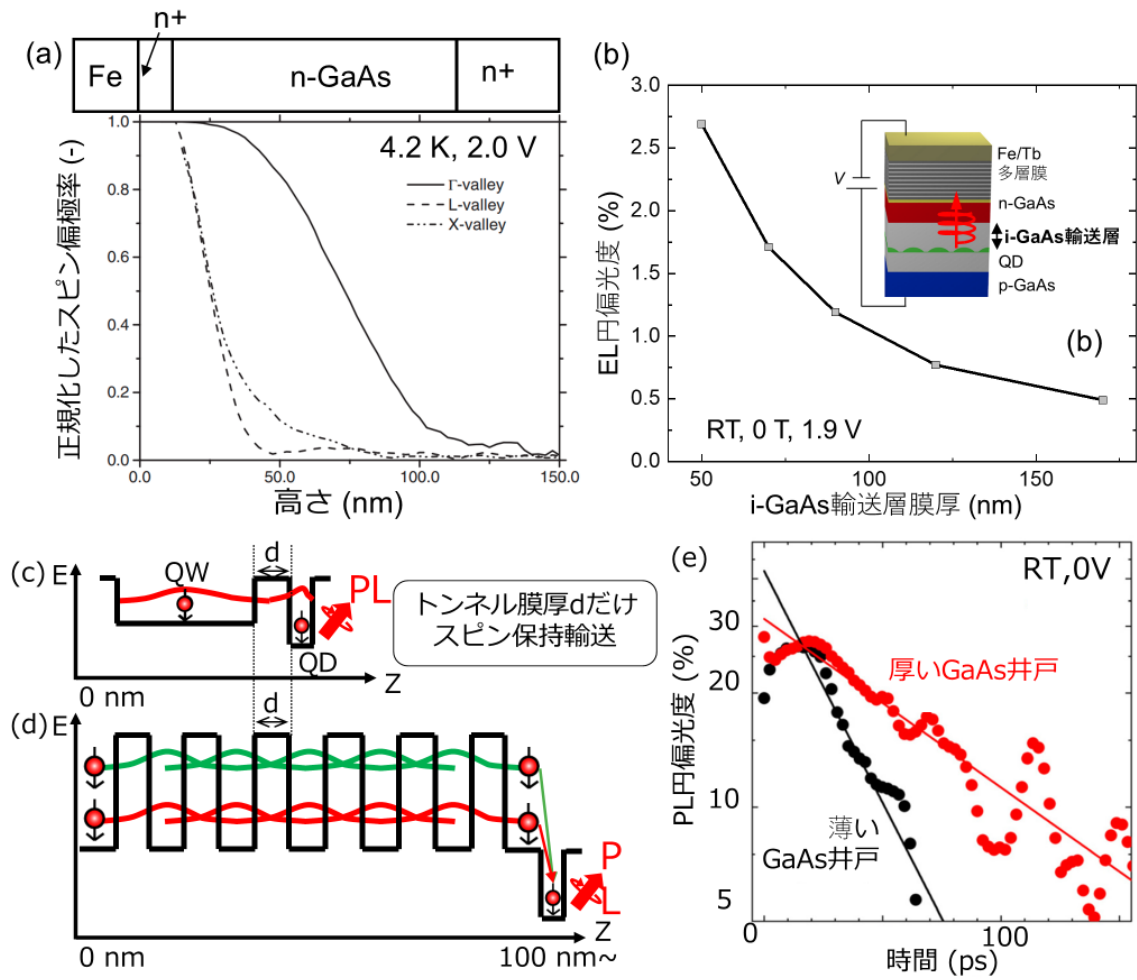


図 10 (a) 正規化したスピン偏極率の位置依存性 [38]。 (b) EL 円偏光度の輸送層膜厚依存性 [39]。 (c) 井戸-ドットトンネル結合構造と (d) 超格子のバンド構造の模式図。 (e) 超格子-ドット結合構造における超格子の PL 円偏光度の時間変化 [44]。

第4節 スピン偏極電子の発光再結合

第1項 発光再結合確率

直接遷移型半導体に注入された電子と正孔は、クーロン力によって電子正孔対を形成する。電子正孔対は、種々のエネルギー緩和過程を経てやがて、発光もしくは非発光に再結合する。このとき、再結合確率 $1/\tau_r$ は

$$\frac{1}{\tau_r} = \frac{1}{\tau_{nr}} + \frac{1}{\tau_{rad}} \quad (3)$$

と表せるように、非発光再結合確率 $1/\tau_{nr}$ と発光再結合確率 $1/\tau_{rad}$ の和で記述できる。非発光再結合は、励起子が欠陥や不純物準位などに捕獲されることで生じる(図 11(a))。したがって、温度上昇に伴い励起子の高い熱エネルギーによって非発光再結合が生じやすくなり、再結合確率は低下する。その結果、発光強度も大幅に低下する。この課題は、結晶欠陥の少ない高品質な結晶を成長することで回避できるほか、電子と正孔の運動を制限できる量子構造を用いることでも回避できる。図 11(b)に量子構造を用いた場合の電子と正孔のダイナミクスを示す。量子構造では、電子正孔対が空間的に狭い領域に局在するため発光再結合確率が高いことが分かる。特に、量子ドット構造は、三次元方向にキャリアを閉じ込めることができるため、高い発光再結合確率を持つ。

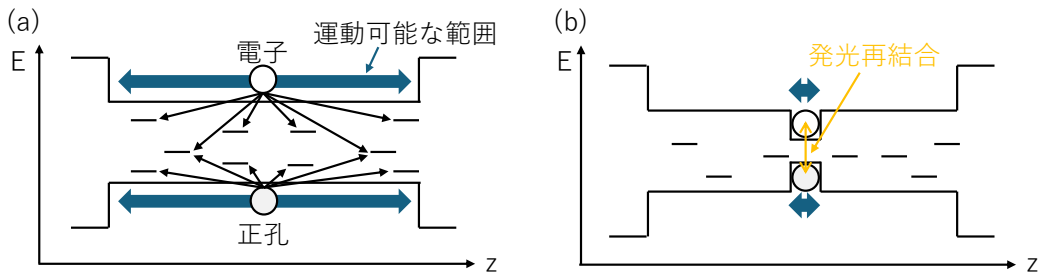


図 11 (a) バルクおよび(b) 量子構造を用いた場合での電子と正孔のダイナミクス

第2項 円偏光選択則

電子スピンの半導体中で発光再結合するとき、スピン偏極に対応した円偏光が放射される。このとき許容される光学遷移を円偏光選択則と呼ぶ。円偏光選択則は正孔バンドの縮退によって変化する。GaAs バルクのような軽い正孔 (LH) バンドと重い正孔 (HH) バンドが縮退した系では、電子スピン偏極に対応して最大で 50% の円偏光度が得られる。これは図 12(a) に示すように、閃亜鉛鉱型結晶で s, p 軌道を基底に取ったとき LH における振動子強度が 1 であり HH における振動子強度が 3 であることに起因する [32]。一方で、LH バンドと HH バンドの縮退が解けている歪み量子井戸等の系では、よりエネルギーの低い HH バンドでの光学遷移が優先的に生じるため、最大で 100% の円偏光度を得ることができる。なお LH バンドに注入された正孔は、直ちに HH バンドへとエネルギー緩和するため、LH バンドからの発光はほとんど得られないと考えられる。また、円偏光選択則は受光時にも適用されるため、LH バンドと HH バンドが縮退している系では、100% の円偏光度を持つ励起光で 50% のスピン偏極率を持つ電子正孔対が生成される。これは、スピン緩和せずに発光した場合でも最大の円偏光度が 25% となることを示しており、円偏光励起による実験データを解析する上で留意すべき点である。

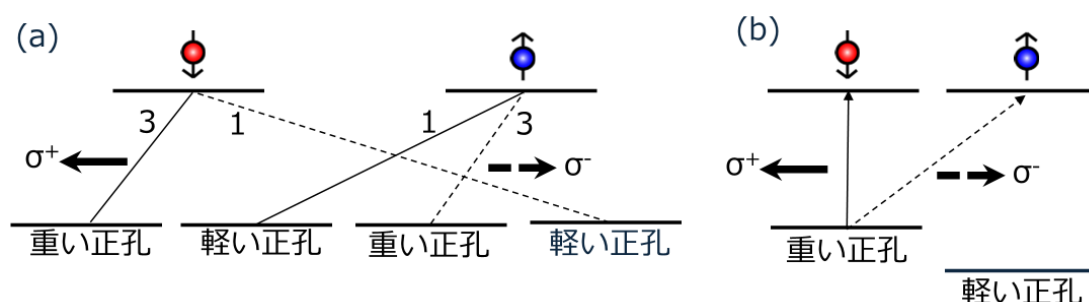


図 12 (a) III-V 族半導体バルク、(b) III-V 族半導体量子ドットにおける円偏光選択則

第3項 p ドーピングによる DP スピン緩和の抑制

高温で支配的な DP スピン緩和を抑制する方法として p ドーピングがある。DP スピン緩和において運動量緩和時間とスピン緩和時間は反比例の関係にあること(p. 14, 式(1))から、不純物ドーピングを行うことにより電子の散乱頻度が高くなりスピン偏極を長く保持できる [33, 45]。先行研究によれば、InGaAs 量子ドットを埋め込む GaAs キャップ層に p ドーピングを行った試料のスピン緩和時間は、温度の-1.5 乗であった [45]。DP スピン緩和機構が働くスピン緩和時間は温度の-3 乗であることを考慮すると、量子ドットから熱脱離した電子のスピン偏極が p ドープ GaAs バリア中で保持され、量子ドットに再注入されたことを示している [46, 47]。

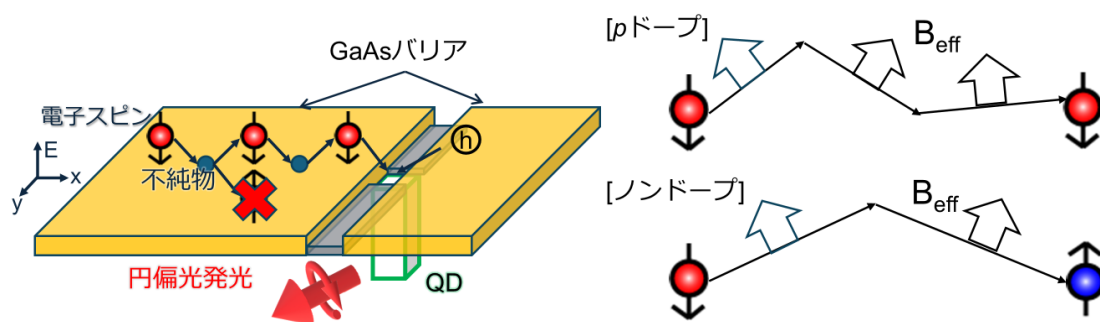


図 13 p ドーピングによる運動量緩和がもたらす DP スピン緩和の抑制

第4項 希薄窒化 GaNAs におけるスピン依存再結合

実用上重要な室温で電子スピン偏極を保持あるいは増幅できる半導体として希薄窒化 GaNAs がある [48]。原子配置の模式図を図 14(a)に示す。本構造は GaAs 成長時に RF プラズマによって数%程度の窒素を導入した系であり、格子間に Ga^{2+} 原子が誘起された構造である [49]。窒素添加によって誘起された格子間原子はバンドギャップ中に深い局在準位を形成し、スピンドYNAMICS に大きな影響を与える。最も簡単な例を図 14(b, c)に示す。希薄窒化 GaNAs の伝導帯にスピン偏極電子が注入されると、多数個スピンの 1 つ局在準位にエネルギー緩和する。時間初期に少数個スピンの注入されないのは、多数個スピンの比べて電子密度が小さいためである（スピン 1 個あたりのエネルギー緩和確率はスピンの向きによらず同一）。次に、両向きスピンの 1 つずつ局在準位にエネルギー緩和しようとする。ここで、少数個スピンはエネルギー緩和できるが、多数個スピンはエネルギー緩和できないという現象が生じる。これは時間初期にエネルギー緩和した多数個スピンによりエネルギー緩和のスピン選択性が生じるためである。伝導帯から少数個スピンを選択的に排除するこの現象をスピントラッキング効果と呼ぶ。スピントラッキング効果は $\text{p-Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ からのドナーアクセプター対発光においても確認されている一般的な現象である [50]。希薄窒化 GaNAs の特徴は、室温以上の温度でもスピントラッキング効果が機能する点である。これは局在準位が十分に深く、伝導帯への電子の熱励起が生じにくいいためである [51]。また、窒素添加によって生じるバンドギャップボーイング効果は伝導帯を主に変調する。これは正孔が GaNAs に局在せず、電流注入発光において外部量子効率を低下させる要因となる。この課題を解決できるのが希薄窒化 GaNAs と量子ドットをトンネル結合させた光学活性層である。量子ドットは伝導帯と価電子帯の両方のエネルギーが低く、発光再結合確率も高い。さらに、強い量子効果により LH と HH バンドの縮退が解けているため、最大の円偏光度は 100%に達する。第5章の2節では、この希薄窒化 GaNAs と量子ドットをトンネル結合させた光学活性層を持つスピン偏極 LED を作製し評価している。

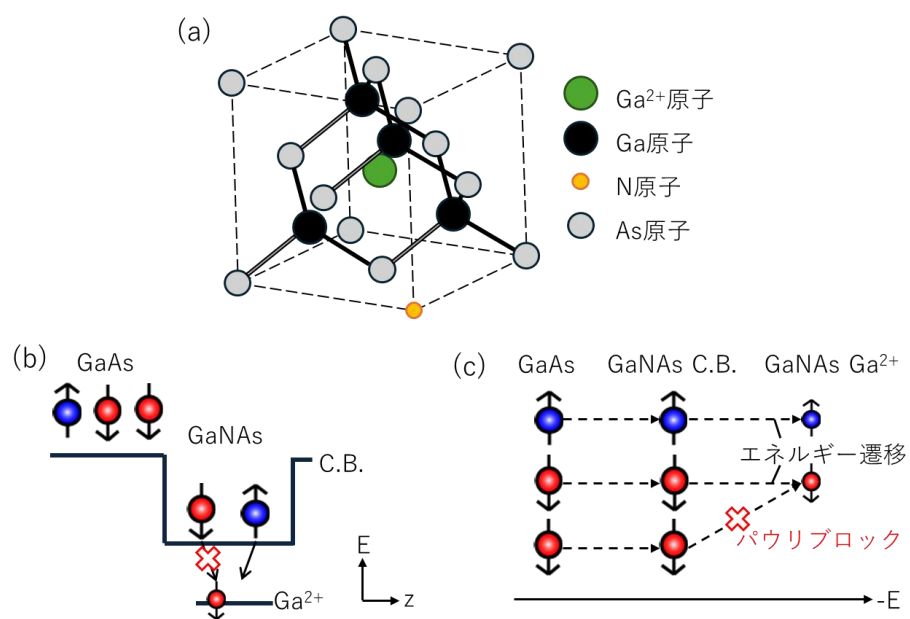


図 14 希薄窒化 GaNAs における(a) 原子配置と(b) バンド構造の模式図,
(c) スピントリタリング効果の模式図

第 3 章 研究目的

ここまで III-V 族化合物半導体を用いた電子スピンの光変換の基礎について述べてきた。ここで、本研究の立ち位置を明確にする。本研究の目的は、室温・高電圧下で高い EL 円偏光度を達成できるスピン偏極 LED の作製である。一般に、スピン偏極率を反映する EL 円偏光度は、EL 発光強度に反比例する [21]。これは、高輝度発光時に印加される高電圧によって DP スピン緩和が促進されるためである [52]。この課題を解決するために、先行研究では、スピン偏極 LED のデバイス面積を大きくする試みが行われてきた [53]。これは電極の抵抗が電極面積に反比例することを利用し、スピン注入時の電子のエネルギー緩和を抑制した研究である。しかし、先行研究は強い EL 発光強度が見込めない単層の量子ドットを活性層に用いた成果である。一方で、我々は発光強度が高い上にレーザー応用において高い光学利得が見込める 3 層の量子ドットを持つスピン偏極 LED について研究を行ってきた。本論文ではまず、3 層の量子ドットスピン LED の円偏光 EL 特性と円偏光 PL 特性から、温度と電流が与える輸送中のスピン緩和への影響について議論した。その結果明らかになった輸送中に生じるスピン緩和の対策として、第 2 項においては光学活性層への輸送後のスピン偏極の増幅が見込める希薄窒化 GaNAs とトンネル結合した量子ドットを、第 3 項においては輸送中のスピン偏極の保持が見込める GaAs/AlGaAs 超格子を提案した [41, 43, 48, 53]。

第 4 章 研究方法

第 1 節 試料の作製方法

第 1 項 分子線エピタキシー法を用いた量子ドット LED 構造の成膜

pin-LED 構造は p 型 GaAs(100)基板上に成膜した。成膜装置には Eiko 社製多元分子線エピタキシー装置を用いた。分子線エピタキシー法は、分子線を試料に照射することで原子レベルでの成膜(エピタキシー)が可能な方法である。in-situ 観察としては反射高速電子線回折法(RHEED)を用いた。図 15 に 20 nm の GaNAs を持つ LED 構造の成長過程で取得した RHEED 像と暗視野走査型透過電子顕微鏡(DF-STEM)像を示す。1 層目の量子ドット層成長時の RHEED パターンでは、3 次元成長特有のスポットパターンが見える一方で、キャップ層成長後の RHEED 像を見ると、ストリークパターンに変化している(図 15(b, c))。これは 1 層目の量子ドットがキャップ層に完全に埋め込まれ 2 次元成長が再開していることを示している。試料構造の詳細は第 5 章の各節を参考にされたい。

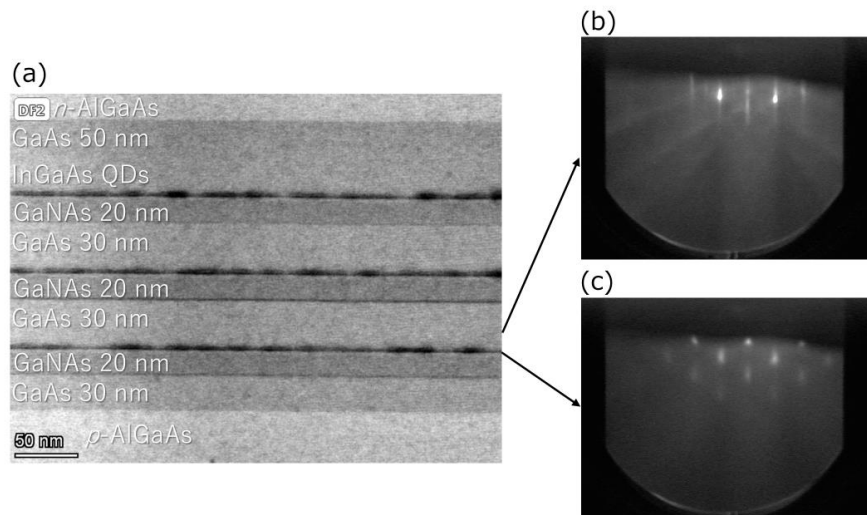


図 15 20 nm の GaNAs を持つ量子ドットスピン偏極 LED の(a) 半導体構造の暗視野走査透過型電子顕微鏡像と(b) 最下層 QD キャップ層, (c) 最下層 QD 層成長後の RHEED 像。

第2項 電子線蒸着法を用いたスピン注入層の成膜

LED 構造を成膜した試料はその後、超高真空一貫のトランスファーチャンバーを介して、MgO 成膜チャンバーへ直ちに移送される。MgO は電子線蒸着法により成膜した。膜厚は 3 nm であり、成膜時の基板温度は 300 °C である。その後、金属強磁性体電極を蒸着するため、試料を一度大気中に取り出し、別の超高真空チャンバーへ導入する。このとき、MgO 表面では炭素系不純物の吸着や酸素欠損が生じやすいため、酸素雰囲気下で加熱する。加熱時の酸素分圧は 7.0×10^{-5} Pa であり、加熱温度と加熱時間はそれぞれ 300 °C と 30 分とした。なお、酸素雰囲気下での加熱処理は電流スピン注入による円偏光 EL 発光の観測を目的とした p ドープ量子ドットを持つスピン偏極 LED(p. 33, 第 5 章 1 節)と GaNAs 量子井戸を持つスピン偏極 LED(p. 45, 第 5 章 2 節)に対して行った。スピン注入源となる 10 nm の強磁性体 Fe 電極は電子線蒸着法により成膜し、酸化防止膜として 3 nm の Au を成膜した。図 16 に n-GaAs/MgO/Fe 構造の断面 STEM 像を示す。観察試料は 20 nm の GaNAs を持つスピン偏極 LED である。エピタキシャル成長した n-GaAs 層の上に結晶化した MgO 薄膜と強磁性体 Fe 電極層が成膜されており、高品質なスピン注入構造が形成されていることが分かる [28, 54]。

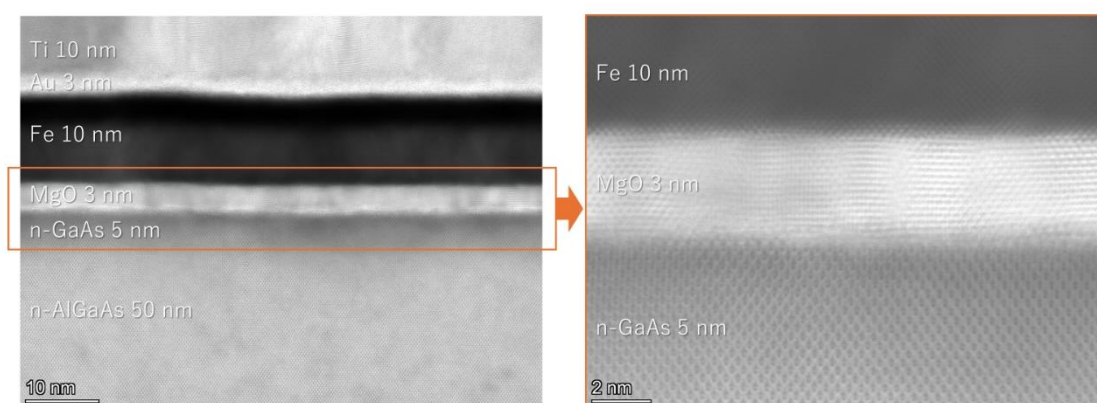


図 16 20 nm の GaNAs を持つ量子ドットスピン偏極 LED の Fe 電極近傍の DF-STEM 像。

第3項 リフトオフ法を用いた Au ボンディングパッドの形成

本工程では、ワイヤーボンディングのための電極パターンを形成する。まず試料表面の不純物を除去するために、ジメチルホルムアミド、アセトン、イソプロピルアルコールの順番で超音波洗浄を 5 分間行う。次に、リフトオフレジストをスピコートする。レジストは日本化薬製 LOR-1A を使用した。コーティング条件は 5 秒 400 rpm の初期回転の後、45 秒 5000 rpm である。なおコーティング条件は、使用する試料サイズがメーカー推奨の試料サイズよりも小さい場合は、エッジビードの影響を考慮して回転速度を推奨速度の 10~20% 程度早めた。プリベークは 160 °C で 5 分間行った。次に、g 線レジストとして使用する OFPR 800LB をスピコートする。コーティング条件は 4 秒、800 rpm の初期回転の後、20 秒、5000 rpm である。プリベークは 160 °C で 5 分間行った。十分に粗熱を取ってから、試料を g 線ステッパーへ導入する。g 線ステッパーは SUSS 製 MA-6 であり、Dose 量は 55 mWsec である。露光マスクはガラス基板上に Cr を蒸着したものをを用いた。露光パターンを図 17 に示す。露光終了後は東京応化製 NMD-3 をを用いた現像を 65~75 秒行う。現像後は逆テーパー形状の有無や、マスクコンタクト不良に起因するフラウンホーファー的回折の有無を評価する。アンダーカット長が 1 μm 以下の場合は追加の現像を行い、回折が生じている場合はプロセスをやり直す。評価には金属顕微鏡を用いた。露光に成功したら、ポストベークを 5 分間 120 °C で行い次の工程へと進む。

ボンディングパッドの蒸着は電子線蒸着と抵抗加熱蒸着法を用いた。パッドの膜厚はリフトオフレジストよりも薄いことが望ましい。蒸着速度は Ti が 0.4 $\text{\AA}/\text{s}$ 、Au が 1.0 $\text{\AA}/\text{s}$ であり、室温で蒸着した。蒸着後は、試料洗浄と同様の有機溶液を用いてリフトオフを実施する。これにより Au ボンディングパッドの形成を行うことができる。

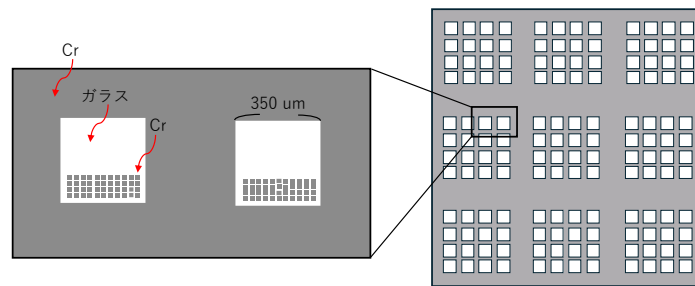


図 17 ボンディングパッドの形成に用いた露光マスク。白の領域では光が透過し、グレーの領域では光が反射する。

第4項 ウェットエッチングと LED の表面実装

本工程では、Au ボンディングパッド間の絶縁を行うために MgO 層までエッチングし、マウンティングのために銅板へ試料をダイボンディングする。まず前項と同様のフォトリソグラフィと現像を実施し、ウェットエッチングを行う。エッチングは、5 倍に希釈した AURUM-304 と 350 倍に希釈した塩酸にそれぞれ 30 秒間揺動させ行った。エッチング後は試料に残存したレジストを取り除くために、有機溶剤を用いた洗浄を行う。次に、作製した LED を銅板へダイボンディングする。ここで銅を基材に用いたのは透磁率が高く熱伝導率が良いためである。まず、銅板を 35%の塩酸に 5 分間入れ表面の洗浄化を行った。次に、銅板上に銀ペーストを塗布する。使用した銀ペーストは日本ハンダ製 ECA-300 である。塗布後、直ちに試料を静置し、200℃で 1 時間ベーキングを行った。ベーキングが終了したら、ワイヤーボンディングするデバイスを決めるために IV 測定を行った。評価は理想因子が 2 に近いうえに、EL 発光を室温で観測できるかで行った。また、理想因子の抽出はランベルトの W 関数により陽関数表示された発光ダイオードの電流電圧曲線より行った。ワイヤーボンディング時の基板温度は 100℃である。

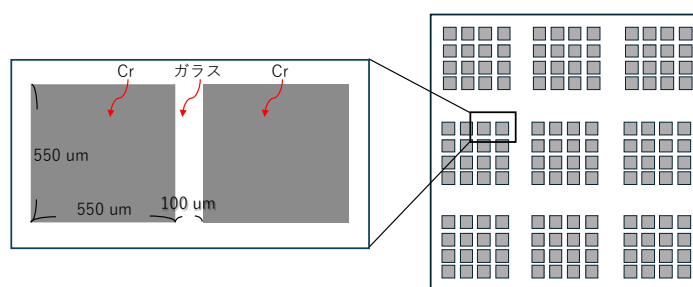


図 18 トレンチ形成に用いた露光マスク。白の領域では光が透過し、グレーの領域では光が反射する。

第2節 試料の評価方法

第1項 磁場中円偏光エレクトロルミネッセンス測定

本研究では主にスピンの偏極 LED の光学特性を評価した。円偏光度が 100%未満の光は、左右円偏光が混在した楕円偏光であるため、 $\lambda/4$ 板の回転により、発光を周方向成分ごとに区別して取得する必要がある。図 19 に光学評価系を示す。EL 発光は、開口数が高い対物レンズによって平行光としたのち、 $\lambda/4$ 板を通過して直線偏光となる。直線偏光の偏光角は、左右円偏光で 90 度を成すことから、 $\lambda/4$ 板の回転により測定する円偏光成分を選択できる。EL 発光は最終的に、光ファイバーを通して CCD カメラに到達し発光スペクトルとして測定できる。測定装置には Andor 社製 Kymera 328i を用いた。強磁性体電極の磁化を垂直配向するために必要な直流磁界は、超伝導マグネットによって印加した。磁場の発生装置は Oxford Instruments 社製 BT であり、磁場の方向は EL の出射方向と同一である（ファラデー配置）。

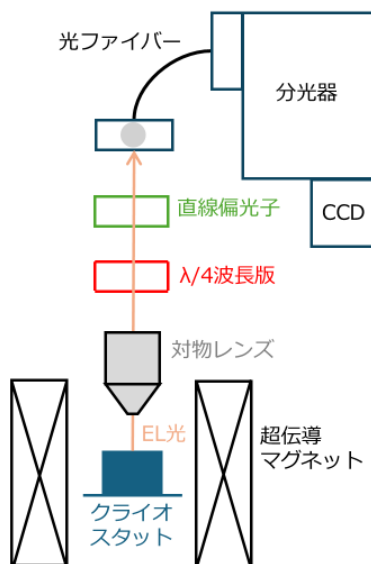


図 19 磁場中円偏光 EL 測定系の模式図

第2項 円偏光時間分解フォトルミネッセンス測定

図 20 に円偏光時間分解フォトルミネッセンス (PL) 測定系を示す。前項の磁場中円偏光 EL 測定系との相違点は、励起レーザー光源の有無と測定システムの時間同期に関する部分に限られる。励起パルスレーザーは Spectra Physics 社製モードロック Ti: サファイアレーザー一Maitai HP である。レーザーのパルス幅は 100 fs 以下であり、フォトディテクターを介してフォトカソードと時間的に同期している。フォトカソードは Hamamatsu Photonics 社製 S-1 であり、同社製ユニバーサルストリークシステム C13440-20C を構成している。クライオスタットはナガセ社製高温対応型クライオスタットを用いた。

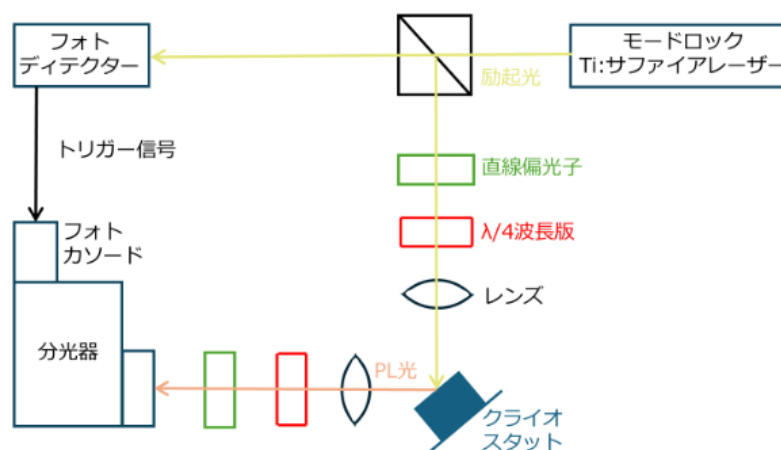


図 20 円偏光時間分解 PL 測定系

第5章 研究結果

第1節 p ドープ量子ドットを持つスピンの偏極発光ダイオード

第1項 試料構造

図 21(a)にスピンの偏極 LED の試料構造を、(b)に同条件で作製した QD の AFM 像を示す。半導体層は分子線エピタキシー法、スピンの注入電極は電子線蒸着法により作製した。基板には p 型 GaAs(100)を用いた。光学活性層は p ドープ GaAs でキャップした $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 量子ドット 3 層で構成されている。量子ドットの面内密度は $1.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ であり、平均直径は 27 nm である。ここで、In 組成は図 21(c, d)に示すとおり、QD の状態充填効果が生じない 4 mA の注入電流における EL スペクトルのピークエネルギーから 0.4 と算出した。また、電子の熱脱離後の再注入を促進するために光学活性層を挟むように AlGaAs 層を設けている。

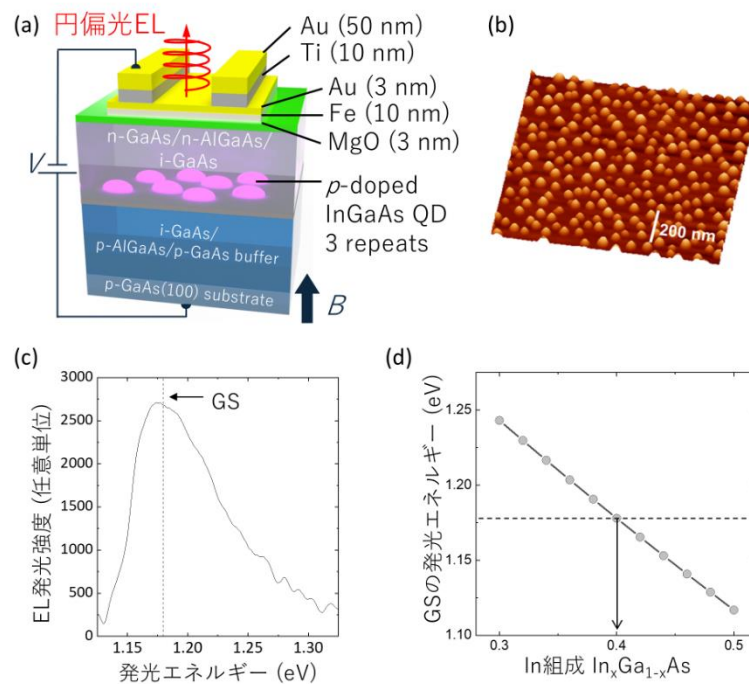


図 21 (a) p ドープ InGaAs 量子ドットを持つスピンの偏極 LED の試料構造。(b) 同条件で作製した InGaAs 量子ドットの原子間力顕微鏡(AFM)像。(c) 4 mA の注入電流における室温での EL スペクトル (d) 量子ドット基底準位の光学遷移エネルギーと In 組成の関係

第 2 項 電流電圧特性とバンド計算結果

図 22 に格子温度を室温とした場合における 1 次元バンド計算結果を示す。バンド計算には nextnano を用いた [55]。ここで、単純化のため $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 量子ドット層は 5 nm の $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ 井戸層として計算した。印加電圧の掃引範囲は 0 V から 3 V である。2 V 以上の電圧を印加すると強磁性体 Fe のフェルミエネルギーが半導体層の伝導帯よりも高くなることが分かる。実際、図 22(b)に示す IV 特性から分かるように、順方向電流は 2 V 以上の電圧から注入され始める。

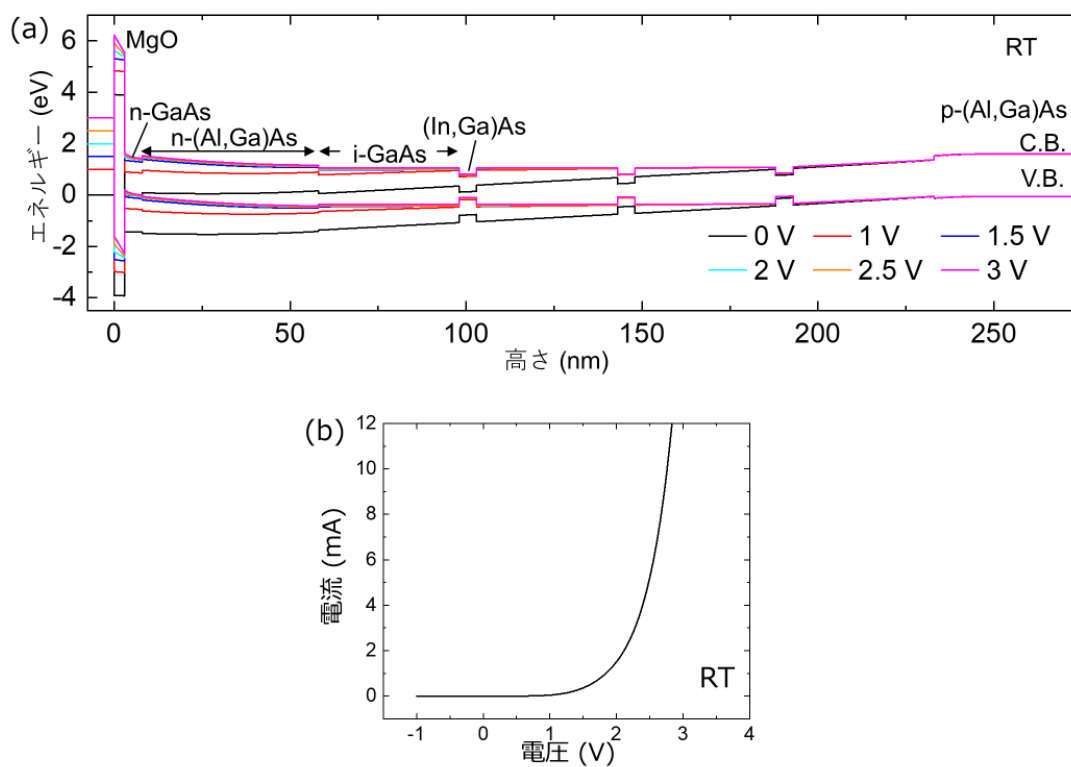


図 22 (a) p ドープ InGaAs 量子ドットを持つスピニ偏極 LED の 1 次元バンド計算結果

(b) p ドープ InGaAs 量子ドットを持つスピニ偏極 LED の室温での IV 特性

第3項 室温環境における EL スペクトル

図 23(a, b)に室温における EL スペクトルを示す。EL スペクトルのピーク位置は、3 次元量子構造計算により得られた量子ドットの光学遷移エネルギーと一致していることから、量子ドット層において発光再結合が生じていると理解できる。また、主要ピークに対して高エネルギー側の発光も観測した。この高エネルギー側の発光は温度上昇に伴って消失する性質を持つ。これは電子のボルツマン分布を反映した熱的再分布に起因するものである [56]。積分 EL 強度は高電流において急激に増加した。この EL 強度の増加は、量子ドットの状態充填効果によるものではなく、外部量子効率が向上したためと考えられる。これは、正規化した EL スペクトルにおいて、基底準位と励起準位の発光強度比が電流にほとんど依存していないことから分かる。外部量子効率が向上した原因は、印加電圧の増加によって電子の運動エネルギーが増加したためと考えられる [57]。Fe のフェルミエネルギーは、EL スペクトルが観測され始める 2 V よりも高い電圧では半導体の伝導帯のエネルギーよりも高くなることが分かっている(p. 34, 図 22)。さらに半導体へ電子が注入された後も、正電界が n ドープ層に印加されていることが分かっており、スピン注入後に生じる電子の運動エネルギーの低下が抑えられている(p. 43, 図 28(b))。次に、注入電子のスピン偏極率を評価するために、EL 円偏光度の磁場依存性を測定した。

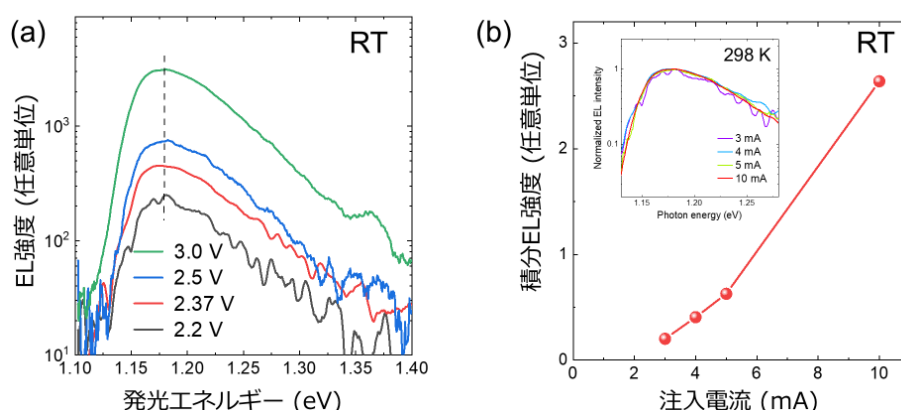


図 23 (a) 印加電圧を変化させた場合の室温での EL スペクトル。(b) 積分 EL 強度の注入電流依存性。挿入図は正規化した室温での EL スペクトルを示している。

第4項 注入電流を一定にしたときの EL 円偏光度の磁場依存性

図 24(a)に 4 mA の注入電流における EL 円偏光度の磁場依存性を示す。測定温度は 150 K であり、円偏光度の解析エネルギー範囲は量子ドットの基底準位である。外部磁場の極性反転に対応した EL 円偏光度の反転を確認した。また、外部磁場の増加とともに EL 円偏光度は大きく増加し、 ± 2.2 T 以降で EL 円偏光度はほぼ飽和した。本試料で用いた磁性材料は Fe であり、その飽和磁場は 2.2 T であることから、観測された EL 円偏光度は Fe から半導体層に注入された電子スピンの由来していることを確認した [58]。一方で、飽和磁場以上の強磁場において EL 円偏光度が緩やかに増加していることが分かる。円偏光度の増加量は、150 K において正磁場で 0.35%/T、負磁場で 0.28%/T となり平均して 0.32%/T であった(図 24(a))。なお温度を上昇させても、この EL 円偏光度の増加量はほぼ変化しなかった(図 24(b))。この磁場印加による EL 円偏光度の増加は、有効磁場によって生じる DP スピン緩和が外部磁場により抑制されたためである [59]。強磁場下での DP スピン緩和の抑制分を差し引いた EL 円偏光度の磁場依存性を図 24(c)に示す。EL 円偏光度は最大で 8% に達した。これは、Fe のスピン偏極率 40% のうち、20% を円偏光へ変換することができたことを意味している。

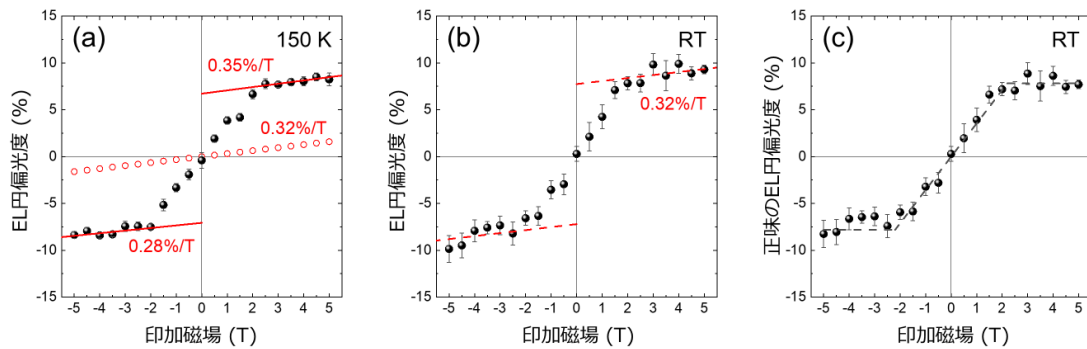


図 24 (a) 150 K, (b) 室温で取得した量子ドット基底準位における EL 円偏光度の磁場依存性。 (c) 磁場による DP スピン緩和の抑制分を差し引いた EL 円偏光度の磁場依存性。

第 5 項 注入電流を一定にしたときの EL 円偏光度の温度依存性

図 25(a-c)に 4 mA の注入電流における温度を変えた場合の円偏光 EL スペクトルと EL 円偏光度を示す。全ての EL スペクトルのメインピークは量子ドット基底準位からの発光であった [56]。また、温度上昇による発光波長のレッドシフトは Varshni 則に従ったバンドギャップエネルギーの減少によるものである。125 K で得られた EL スペクトルを見ると、1.30 eV にも小さなピークがある。これは、量子ドットを埋め込むキャップ層への p ドーピングによって正孔が量子ドットに十分に供給され、量子ドットの励起状態(ES)における発光再結合確率が増加したためと考えられる [45]。この特異な高エネルギー側の発光は室温でも観測され、電子の熱的再分布によるものと考えられる [56, 60]。図 25(d)に各注入電流における EL 円偏光度の温度依存性を示す。円偏光度の解析範囲は量子ドットの基底準位である。なお、室温かつ低電流注入条件での EL 円偏光度は、EL 発光強度が非常に小さかったため観測されなかった。観測された EL 円偏光度は 200 K よりも高い温度範囲で強い電流依存性を示した。以上の実験結果における物理的洞察を深めるため、スピン偏極 LED のスピン光変換を担う量子ドット光学活性層に対して時間分解円偏光 PL 測定を実施した。

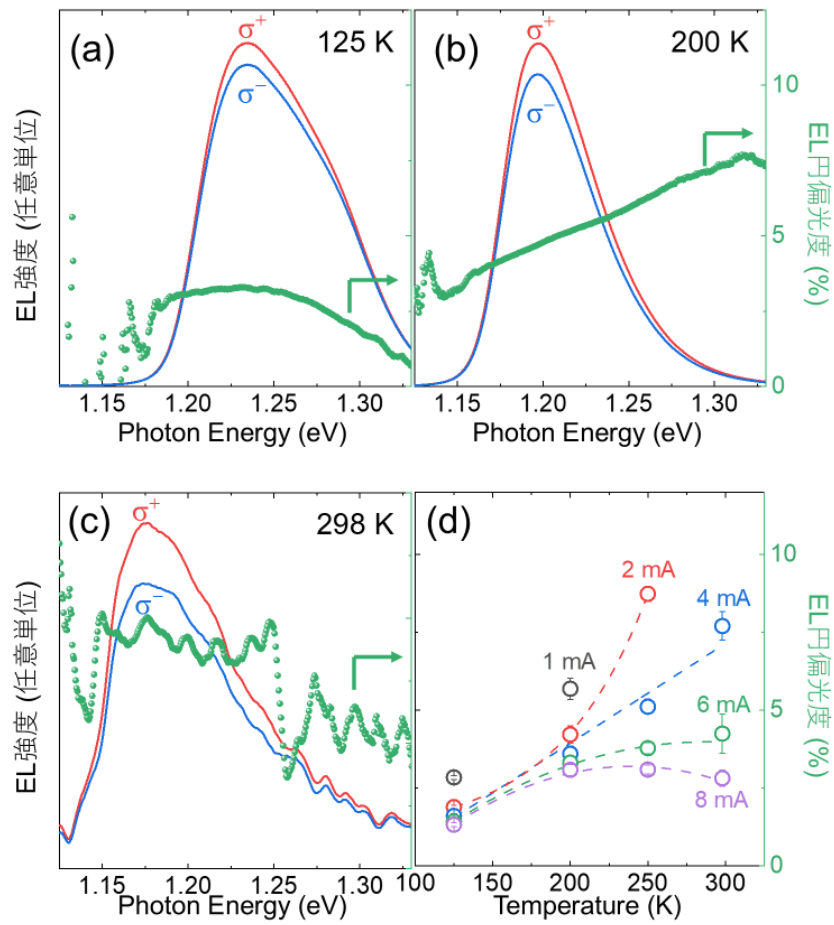


図 25 (a) 125 K, (b) 200 K, (c) 室温で取得した円偏光 EL スペクトル。赤と青の実線は右回りおよび左回り円偏光の EL 強度、緑のデータ点は各発光エネルギーの EL 円偏光度を表している。(d) 各注入電流における EL 円偏光度の温度依存性。印加磁場は 5 T である。

第 6 項 PL 減衰時間とスピン緩和時間の温度依存性

図 26 に 200 K と 298 K でそれぞれ取得した時間分解円偏光 PL の測定結果を示す。励起光強度は 0.5 mW であり、無磁場かつ無電界下で行った。200 K では PL 減衰時間は円偏光度の減衰時間よりも長くなっているが、室温ではほぼ同等になった。図 26(c)に単一指数減衰関数のフィッティングによって得られた発光減衰時間 τ_r とスピン緩和時間 τ_s の温度依存性を示す。特筆すべきは量子ドットのスピン緩和時間が温度に依存しないことであり、しかもその値は量子井戸やバルクと比較して 1 桁高くなった [61,62]。これは電子の運動が量子ドット内では強く制限されることで DP スピン緩和が生じないためである [63]。一方で、発光減衰時間は 175 K 以上の温度で急速に減少した。これは量子ドットから電子スピンの熱脱離し非発光再結合成分が増大したためと考えられる [64]。次に、スピン緩和時間と発光減衰時間から量子ドットのスピン光変換効率 CE_{QD} を算出する [60]。 CE_{QD} は

$$CE_{QD} = \frac{\tau_s}{\tau_s + \tau_r} \quad (4)$$

で表される。図 26(d)に算出した量子ドットのスピン光変換効率の温度依存性を示す。スピン光変換効率は温度上昇に伴って急激に増加した。これは前述したとおり、量子ドットに特有の温度に無依存なスピン緩和時間と比較的短い発光減衰時間に起因する。以上の測定結果から、強磁性体 Fe 電極から量子ドットへの電子スピン輸送中のスピン保持率を算出する [65]。EL 円偏光度 P_{EL} は

$$P_{EL} = P_{FM} D_{tr}(T) CE_{QD}(T) \quad (5)$$

と表される。ここで、 P_{FM} は強磁性体電極のスピン偏極率、 D_{tr} は強磁性体電極から光学活性層へのスピン輸送中のスピン保持率である。式(5)において $P_{FM} = 40\%$ [66]、 P_{EL} と CE_{QD} は測定値であることから D_{tr} の温度依存性を導出できる(図 27(a))。

D_{tr} は、100 K から 200 K にかけて電流に依存せず増加したのに対して、200 K から室温にかけて電流に強く依存して減少傾向を示した。この傾向は、電圧と温度による複合的な作用を考慮することで説明できる。まず、式(1)に示すとおり、DP スピン緩和は電子のエネルギーの3乗に反比例することが知られている。電子のエネルギーは温度に比例するため、温度上昇によって DP スピン緩和は促進される。しかし、DP スピン緩和の促進は 100 K から 200 K では観測されなかった。これは電子の高速輸送により輸送中のスピン緩和が実効的に抑制されたためと考えられる [57]。ダイヤモンドにおける電子輸送の先行研究では 100 K から

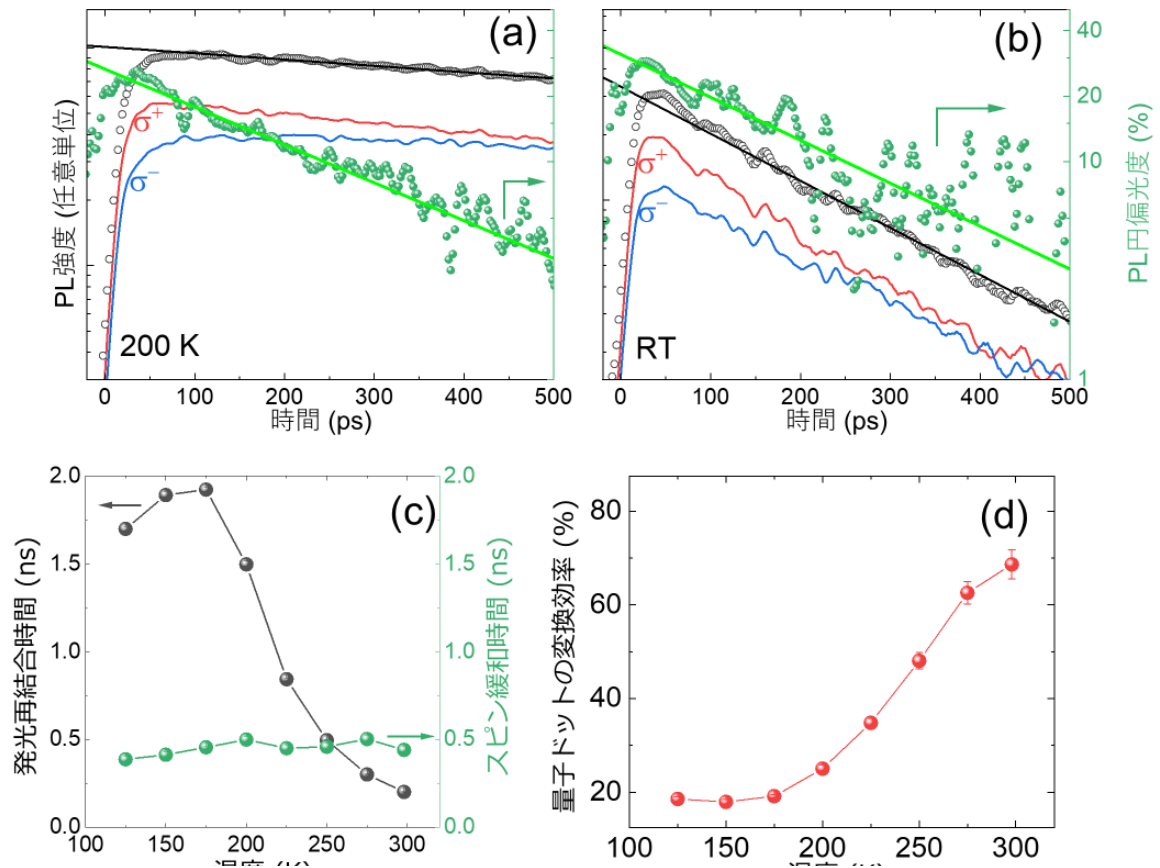


図 26 (a) 200 K、(b) 室温で取得した時間分解円偏光 PL。赤と青の実線は右回り・左回り円偏光 EL、緑と黒のデータ点はそれぞれ PL 円偏光度と PL 強度を表し、緑と黒の直線はそれぞれ単一指数的減衰関数フィッティングの結果である。無電界かつ無磁場で実施された。(c) 発光減衰時間 τ_r とスピン緩和時間 τ_s の温度依存性。(d) 量子ドットのスピン光変換効率の温度依存性。

200 K において電子のドリフト速度が顕著に増加することが分かっている [67]。半導体バルク中を走行する電子の速度は電子スピン偏極と関係があり、遅いドリフト速度はスピン偏極を低下させる可能性がある。

また、電界も電子のエネルギーを増加させるが、電界を決定する抵抗値は温度に依存する。図 27(b)に IV 特性の温度依存性を示す。温度上昇に伴う閾値電圧の低下が確認できる。さらに注入電流が 1 mA と 4 mA の場合での印加電圧を見ると、高電流注入時の室温における電圧値は、低電流注入時の全ての温度における電圧値を上回っている。これは、室温環境下における電界誘起の DP スピン緩和が、低電流時のあらゆる温度条件より常に強く作用することを示している。

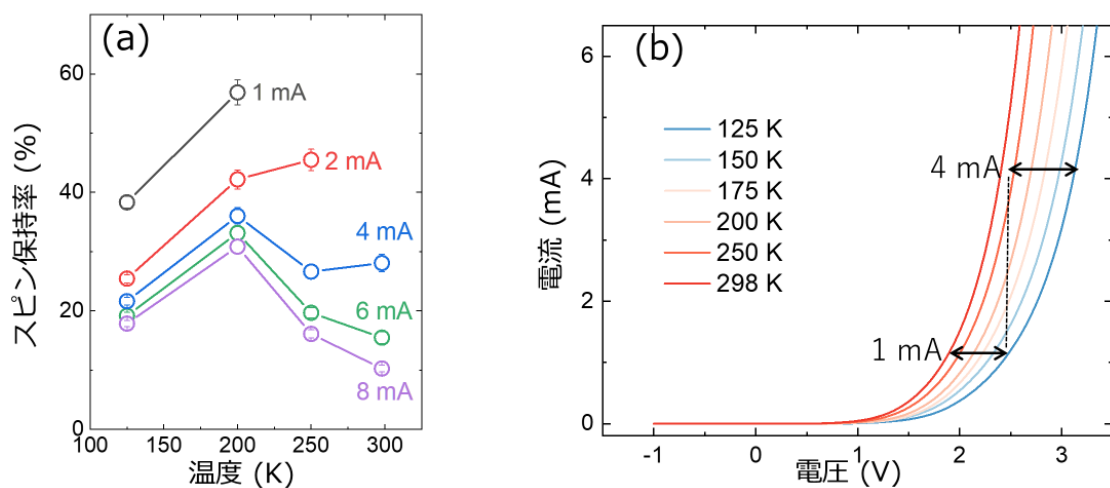


図 27 各温度における(a) 輸送中のスピン保持率と(b) IV 特性

第 7 項 PL 円偏光度の電圧依存性

最後に、室温かつ高電圧下での低いスピン輸送効率の原因を特定するために、印加電圧と励起エネルギーを変えた場合の PL 円偏光度を測定した。電圧はスピン偏極 LED から十分な EL 発光が得られる 2.2 V から 3.0 V まで変えた。なお、測定時に同時に観測される EL 発光分は減算処理により除いた。励起エネルギーは GaAs 層と AlGaAs 層を励起できる 2 種類とした。測定温度は室温である。電圧が増加すると PL 円偏光度は低下した。これは前節までの結論と同様に、光学活性層への電子輸送中に生じる電界誘起の DP スピン緩和に起因するものと考えられる。また、励起エネルギーを変えた場合の PL 円偏光度は、GaAs 励起と AlGaAs 励起ともに PL 円偏光度と電圧増加に対する減少量ともに大きく変化しなかった。すなわち、室温かつ高電圧下における低いスピン輸送効率の原因は、GaAs 層での電界誘起の DP スピン緩和にあることが分かった。

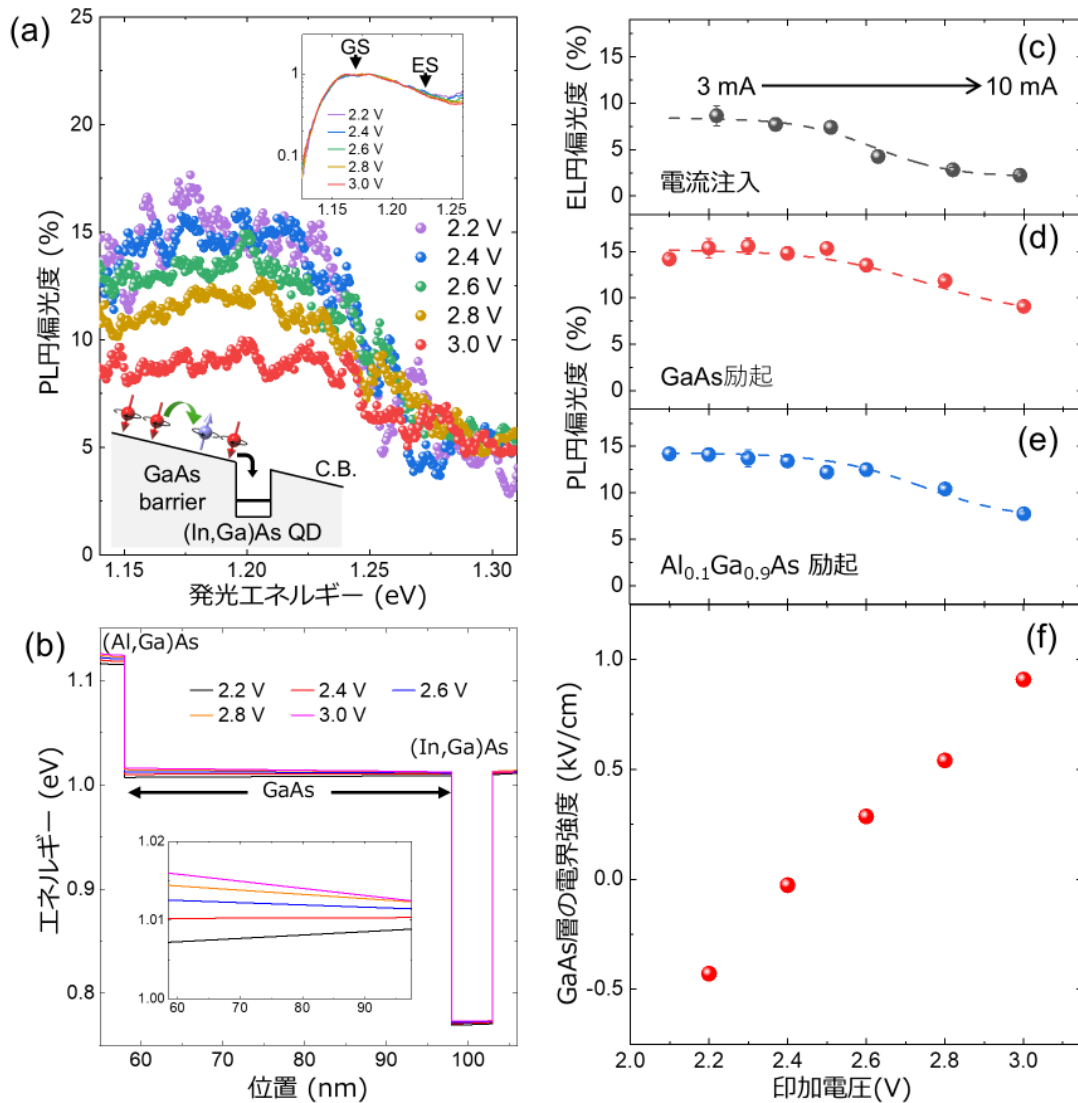


図 28 (a) 室温における PL 円偏光度スペクトルの電圧依存性と規格化 PL スペクトル。
 (b) 格子温度を室温とした場合での 1 次元バンド計算結果 (c) EL 円偏光度、(d) GaAs 励起
 時の PL 円偏光度、(e) AlGaAs 励起時の PL 円偏光度の電圧依存性。(f) (b) の 1 次元バンド
 計算により算出された GaAs 層における電界強度。

第 8 項 結論

本節では、p ドープ InGaAs 量子ドットを持つスピン偏極発光ダイオードの円偏光 EL 特性について研究した。まず、125 K から室温まで温度を変化させたときの注入電流ごとの EL 円偏光度を測定した。その結果、125 K から 200 K までは EL 円偏光度は電流に依存せずに増加したが、200 K から室温までは電流ごとに異なる温度依存性を示した。この特異な傾向を理解するため、EL 円偏光度が量子ドットのスピン光変換効率、半導体誘電バリア層でのスピン緩和の程度を反映するスピン輸送効率、強磁性体電極のスピン偏極率の積で近似できるとするモデルを構築した [65, 68]。その結果、スピン輸送効率と EL 円偏光度の温度依存性は類似した傾向を示した。これは、量子ドットを活性層に用いたスピン偏極 LED の EL 円偏光度はバルクであるスピン輸送層に支配されていることを示している。さらに、室温かつ高電圧下ではスピン輸送効率は 10% まで大きく低下してしまうことが分かった。これは、室温での量子ドットのスピン光効率が 69 % であることを考慮すると、強磁性体 Fe 電極から光学活性層に輸送注入され円偏光へと変換された電子スピンの偏極率がたった 2.8 % であったことを示している。最終項では、励起エネルギーを変化させた PL 測定を用いて、スピン緩和がスピン輸送層を構成する GaAs 層と AlGaAs 層のどちらで支配的であるかを調べた。その結果、どちらの励起条件で PL 円偏光度に差は見られなかった。これは、輸送中のスピン緩和が GaAs 層で支配的に生じていることを示している。本研究で見出したスピン偏極 LED のスピン輸送層を定量的に研究する手法は、スピン偏極 LED の研究をより一層加速させるものである。

第2節 希薄窒化 GaNAs 量子井戸とトンネル結合した量子ドット を持つスピン偏極発光ダイオード

第1項 試料構造

図 29(a)に試料構造を示す。試料は GaNAs 量子井戸(d nm)と InGaAs 量子ドットのトンネル結合構造を 3 周期持つスピン偏極 LED である。 $d = 0, 5, 20$ nm の 3 種類の試料を作製した。GaNAs は量子ドットの下側に配置した [69]。また、GaNAs の窒素濃度は 2 次イオン質量分析法(SIMS)により求めた(図 29(b))。その結果、窒素濃度は上下層が 0.9%、中間層が 1.4% であった。この窒素濃度は、典型的なサイズの InGaAs 量子ドットと GaNAs 量子井戸が効率よくトンネル結合する組成条件である [48]。図 29(c)に、同条件で作製した量子ドットの原子間力顕微鏡(AFM)像を示す。量子ドットの面内密度は、 $3.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ であり、平均直径は 22 nm であった。量子ドットの高さは AFM 像および TEM 像(p. 26, 図 15)から 4 nm であった。Fe/MgO スピン注入層の成膜を含む以降のプロセスは第 4 章 1 節と同様である(p. 27)。

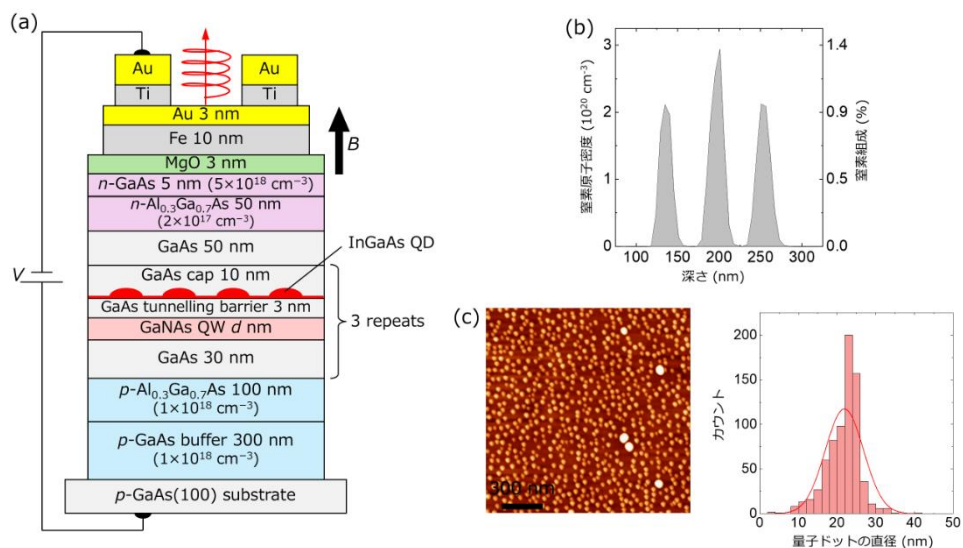


図 29 希薄窒化 GaNAs 量子井戸とトンネル結合した量子ドットを持つスピン偏極 LED の
(a) 試料構造と(b) 窒素濃度の SIMS 結果。(c) 同条件で作製した量子ドットの AFM 像。

第2項 電流電圧特性とバンド計算結果

図 30(a)に格子温度を室温とした場合における 1 次元バンド計算結果と図 30(d)に電流電圧特性を示す。バンド計算には *nextnano* を用いた [55]。計算モデルには $d = 5 \text{ nm}$ のスピン偏極 LED 試料を用いた。量子ドット層の計算には、本章 1 節で導入した近似的な手法を適用した(p. 34)。電圧の掃引範囲は 0 V から 3.0 V である。計算結果より、 2 V 以上の電圧印加において電流注入発光が観測されると予測された。図 30(b, c)に *i*-GaAs における伝導帯のエネルギーと電界強度をそれぞれ示す。先行研究において、GaAs に 1 kV/cm 以上の電界が印加されると、縦光学フォノンを介した DP スピン緩和が促進されることが知られている [70]。したがって、本試料においては、伝導電子スピンは 2.6 V 以上の高電圧下で電界誘起の DP スピン緩和が生じると予想した。

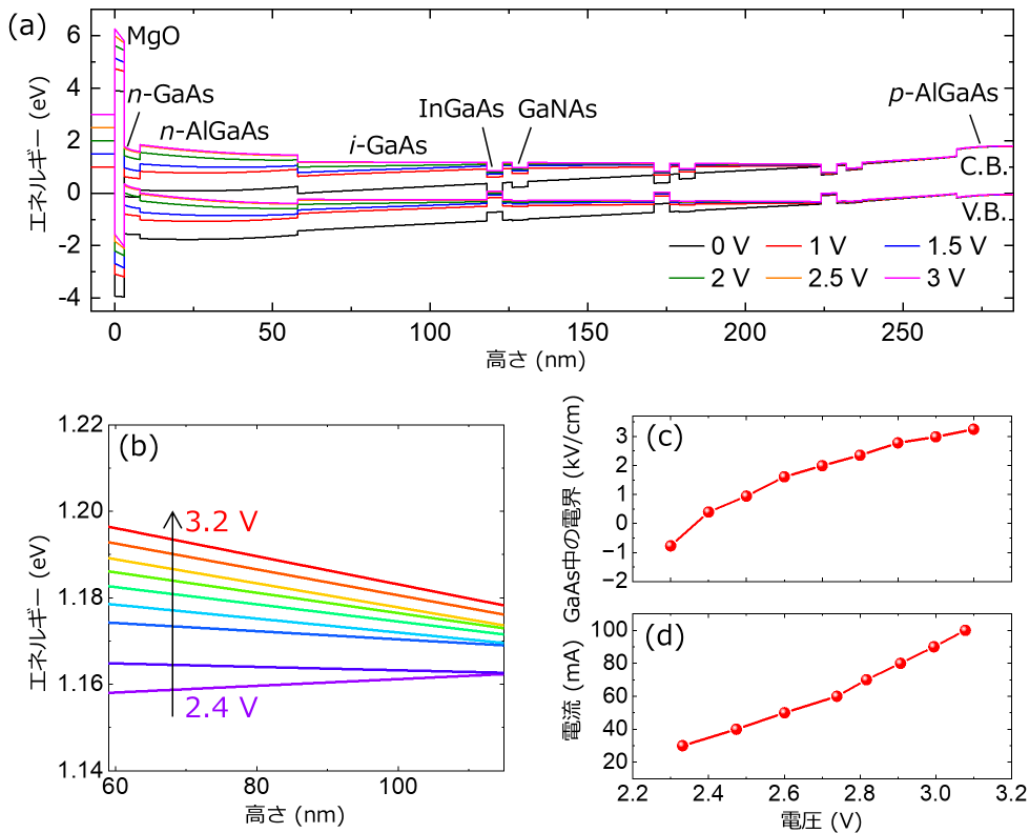


図 30 (a) 5 nm の GaNAs を持つスピン偏極 LED の 1 次元バンド計算結果。i-GaAs 層の各電圧における(b) 伝導帯エネルギーと(c) GaAs 中の電界強度。(d) 電流電圧特性。

第3項 注入電流を一定にしたときの EL 円偏光度の磁場依存性

図 31 に 5 nm の GaNAs 量子井戸を持つスピン偏極 LED と GaNAs を持たないスピン偏極 LED における量子ドット基底準位の EL 円偏光度の磁場依存性を示す。測定温度は室温である。両試料の EL 円偏光度は 2.2 T より高い磁場中で飽和傾向を示しただけでなく、正負の磁場下でそれぞれ正負の円偏光度を示した。これは飽和磁場が 2.2 T である Fe 電極から半導体層に注入された電子スピンの量子ドット活性層で発光再結合したことを示している [58]。なお、ここでは磁場印加による DP スピン緩和の抑制分は減算処理されている (p. 37, 第 5 章 1 節 4 項)。両試料における強磁場印加時の EL 円偏光度は、同一電圧条件にも関わらず、GaNAs を持つ試料の方が約 3 倍高い値を示した。この結果を理解するために、EL 円偏光度の電流依存性を測定した。

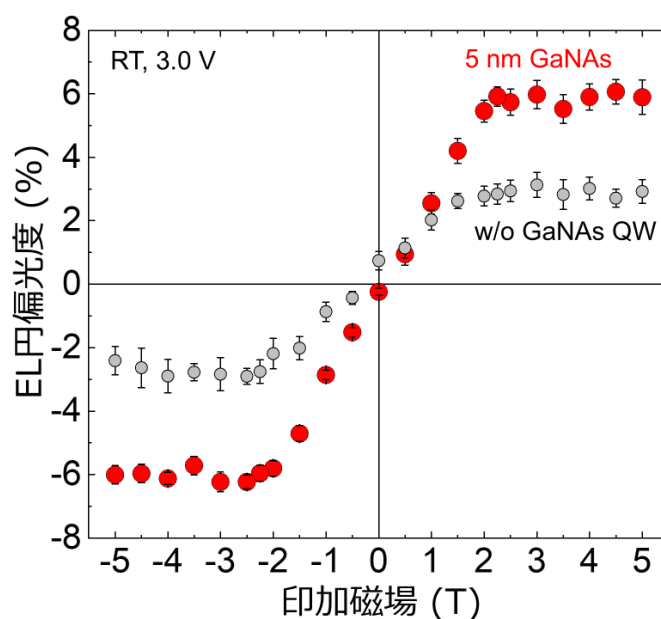


図 31 5 nm の GaNAs を持つスピン偏極 LED 試料(赤点)および GaNAs を持たないスピン偏極 LED 試料(黒点)から得られた量子ドット基底準位の EL 円偏光度の磁場依存性

第 4 項 室温環境における EL 円偏光度の電流依存性

図 32(a, b)に 5 nm の GaNAs 量子井戸を持つスピン偏極 LED、図 32(c)に GaNAs 量子井戸を持たないスピン偏極 LED の円偏光 EL スペクトルを示す。測定温度は室温である。GaNAs 量子井戸の有無に関わらず EL スペクトルのメインピークは InAs 量子ドットの基底準位からの光学遷移エネルギーと一致する 1.06 eV 付近に現れた。これは下部の GaNAs 量子井戸層がもたらす歪みの影響による量子ドットの成長変化が軽微であることを示している [71]。なお 1.21 eV 付近のピークは、液晶ディスプレイに起因する発光である。次に、積分 EL 強度に注目した(図 32(d))。GaNAs 量子井戸を持たない試料の方が、より低い電流から EL 発光が始まり、電流増加に対する EL 発光強度の増大も大きくなった。これは窒素添加に起因する格子欠陥を持つ GaNAs 量子井戸層を挿入することで内部量子効率が低下したためと考えられる。次に、GaNAs 量子井戸層のスピン偏極増幅効果を確認するために、EL 円偏光度の電圧依存性を測定した。その結果、GaNAs 量子井戸を持たない試料の EL 円偏光度は最大で 5%を観測し、電圧が増加するにつれて緩やかに減少した。これは GaAs 層で生じる電界誘起の DP スピン緩和によって伝導電子のスピン偏極率が低下したためと考えられる [65]。一方で、GaNAs 量子井戸を持つ試料では最大 7%の EL 円偏光度が得られ、高電圧印加時にも維持した。これは GaNAs を持たないスピン偏極 LED の傾向とは対照的である。実際、図 32(f)に示す EL 円偏光度の積分 EL 強度依存性において、GaNAs を持つ試料は GaNAs を持たない試料と同じ発光強度でありながら、3 倍程度高い EL 円偏光度を示している。次節では、観測された特異な円偏光 EL 特性を特徴づける光学活性層の円偏光 PL 特性に注目した。

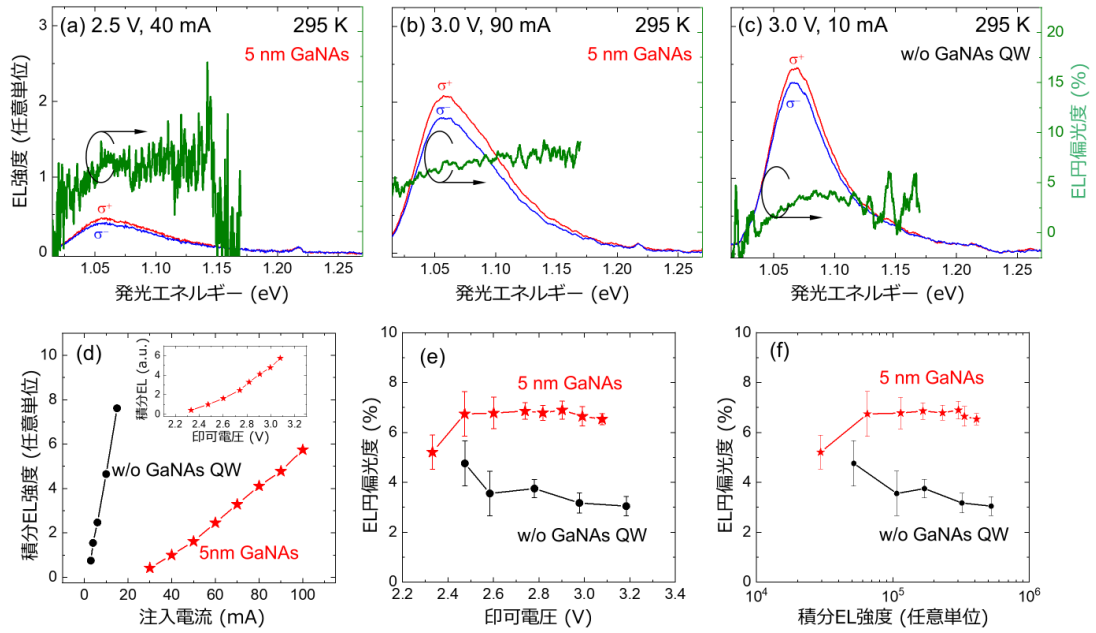


図 32 (a) 2.5 V、(b) 3.0 V の印加電圧における 5 nm の GaNAs を持つスピンの偏極 LED の円偏光 EL スペクトル。(c) 3.0 V の印加電圧における GaNAs を持たないスピンの偏極 LED の円偏光 EL スペクトル。赤線と青線はそれぞれ右回りおよび左回り円偏光の EL 強度を表し、緑線は EL 円偏光度を表している。測定温度はすべて室温である。(d) 量子ドットの積分 EL 強度の電流依存性。挿入図は 5 nm の GaNAs を持つスピンの偏極 LED における積分 EL 強度の電圧依存性。量子ドットの EL 円偏光度の(e) 電圧依存性と(f) 積分 EL 強度依存性。

第 5 項 室温環境における PL 円偏光度の励起光強度依存性

図 33(a)に GaNAs を持つスピン偏極 LED と持たないスピン偏極 LED における PL 円偏光度の励起光強度依存性を示す。測定温度は室温であり、無電界かつ無磁場である。ここで、PL 円偏光度は量子ドット基底準位における電子スピン偏極度を示している。GaNAs を持たない試料の PL 円偏光度は励起光強度の増加とともに大きく減少した一方で、GaNAs を持つ試料の PL 円偏光度は、励起光強度の増加とともに大きく増加した後に飽和した。この傾向は、図 33(b, c)に示す光学活性層のみを持つ参照試料($d = 0, 5 \text{ nm}$, i-GaAs 基板)の時間分解円偏光 PL によって説明できる。5 nm の GaNAs を持つ試料において、PL 円偏光度は時間初期の 20%程度から発光中に大きく増加し最大で 50%に達成した(図 33(b))。この結果は GaNAs の局在準位によるスピントラッキング効果を直接表している [48]。一方で、GaNAs を持たない試料では量子ドットの状態充填効果に起因する低い PL 円偏光度が観測された。次に温度を変化させた場合に GaNAs が EL 円偏光度に与える影響について調べた [51]。

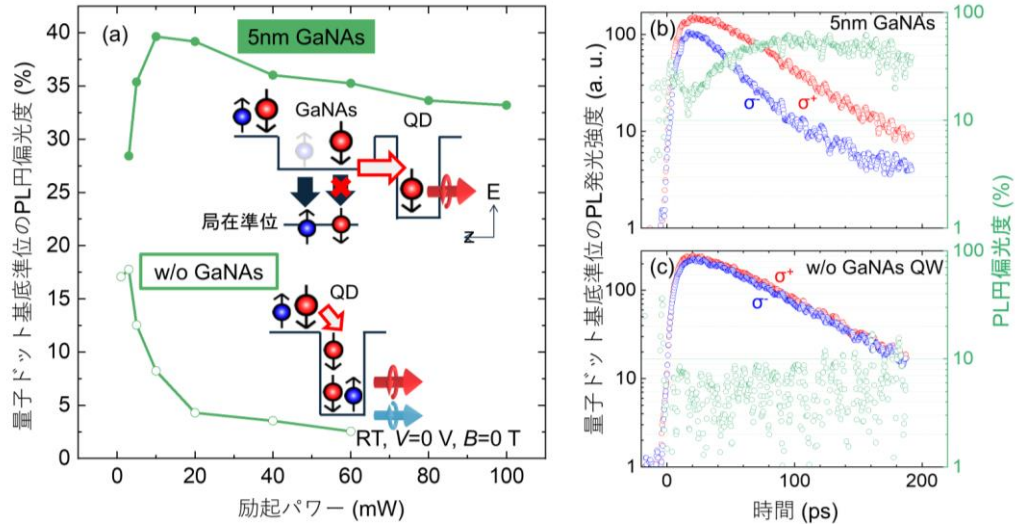


図 33 (a) 5 nm の GaNAs を持つスピン偏極 LED と GaNAs を持たないスピン偏極 LED における PL 円偏光度の励起光強度依存性。室温・無電界・無磁場で実施した。(b) 5 nm の GaNAs とトンネル結合した量子ドットを持つ参照試料と(c) GaNAs を持たない量子ドット単体の参照試料における室温での時間分解円偏光 PL。励起光強度は 30 mW である。

第 6 項 異なる温度における EL 円偏光度の電流依存性

図 34(a)に 5 nm の GaNAs を持つスピン偏極 LED と GaNAs を持たないスピン偏極 LED における異なる温度での EL 円偏光度の電流依存性を示す。測定温度は 100 K, 200 K, 室温であり、試料面直方向に磁場を 5 T 印加した。EL 円偏光度はいずれの温度でも GaNAs を持つスピン偏極 LED の方が高かった。また、GaNAs を持つスピン偏極 LED では 100 K から 200 K にかけて EL 円偏光度は増加したが、200 K から室温では EL 円偏光度はほとんど変化しなかった。この傾向を理解するために、量子ドットの PL 円偏光度の温度依存性を測定した。なお、PL 特性に対する GaNAs のスピントラッキング効果の寄与を強調するために 20 nm の GaNAs を持つ試料の PL 円偏光度を測定した。100 K から 200 K にかけて PL 円偏光度は顕著に増加し、EL 円偏光度と同様の傾向を示した。これは先行研究で明らかになっている GaNAs のスピン緩和時間の温度依存性と一致している [51]。ただ、温度上昇によって増大する円偏光度の幅は、PL 円偏光度の方が大きくなった。これには複数の要因が考えられる。まず、PL 測定のような光学的スピン注入と EL 測定のような電気的スピンではスピン輸送距離に大きな違いがある。輸送距離は DP スピン緩和の寄与を決定する因子である [39, 70]。また、電界印加の有無も円偏光度の絶対値を左右する。電界下では DP スピン緩和の促進によって発光の円偏光度は低下することが知られている。実際、図 34(b)に示すように、PL 円偏光度の最大値は 40%であったのに対して、EL 円偏光度の最大値は 7%程度にとどまった。すなわち、スピン偏極 LED におけるスピン緩和を定量的に評価するためには、電流と電圧がそれぞれ与えるスピン緩和の影響を分離する必要がある。これは GaNAs のスピントラッキング効率が、電圧の影響を受ける伝導電子のスピン偏極率と、電流の影響を受ける伝導電子密度に強く依存するためである。そこで、スピン偏極 LED が駆動する電圧印加下で PL 円偏光度を測定した。

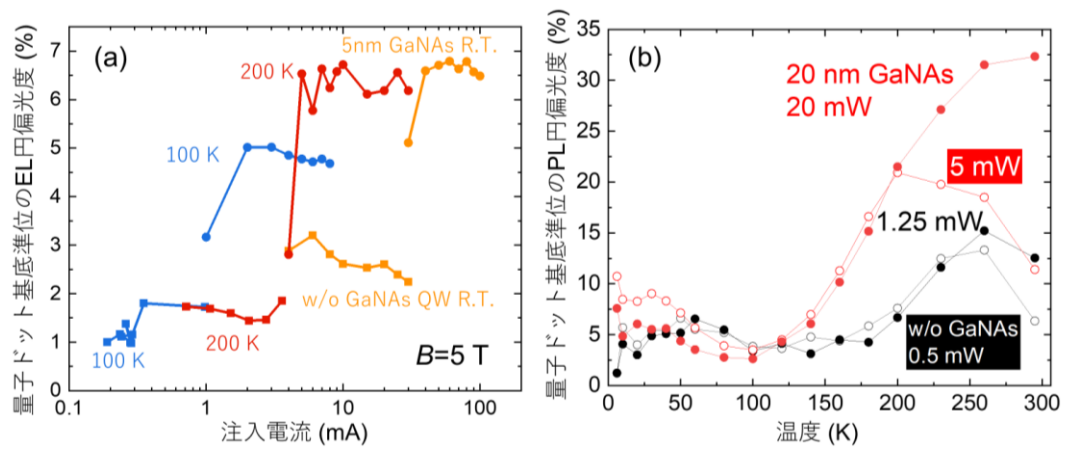


図 34 5 nm の GaNAs を持つスピン偏極 LED と GaNAs を持たないスピン偏極 LED における(a)異なる温度での量子ドット基底準位の EL 円偏光度の電流依存性。(b) 20 nm の GaNAs を持つ試料と GaNAs を持たない試料における量子ドット基底準位の PL 円偏光度の温度依存性。

第7項 励起光強度を一定にしたときの PL 円偏光度の電圧依存性

図 35 に 5 nm の GaNAs 量子井戸を持つスピン偏極 LED における PL 円偏光度の電圧依存性を示す。励起光強度は 5 mW と 20 mW で変化させた。GaAs 層を円偏光励起し、測定は室温かつ無磁場下で実施した。ここで、電圧印加により放射される EL 発光（無偏光成分）は測定後に減算処理した。これにより、スピン偏極 LED の電界のみを変化させたときの電子スピン偏極について議論できる [72]。励起光強度が高い場合での PL 円偏光度は、励起光強度が低い場合よりも 10%以上高かった。これは伝導電子のスピン偏極増幅が GaNAs 量子井戸層で生じたためと考えられる。また、励起光強度が低い場合、電圧増加とともに円偏光度は減少したが、励起光強度が高い場合には電圧増加に対して円偏光度は一定であった。これは、GaNAs のスピン増幅が DP スピン緩和よりも強いこと、電界印加により光学活性層へ電子スピンの効率的な注入を示唆している。次に、DP スピン緩和の強さを変動させるパラメータである印加電圧を一定にしたときの励起光強度依存性について議論する。

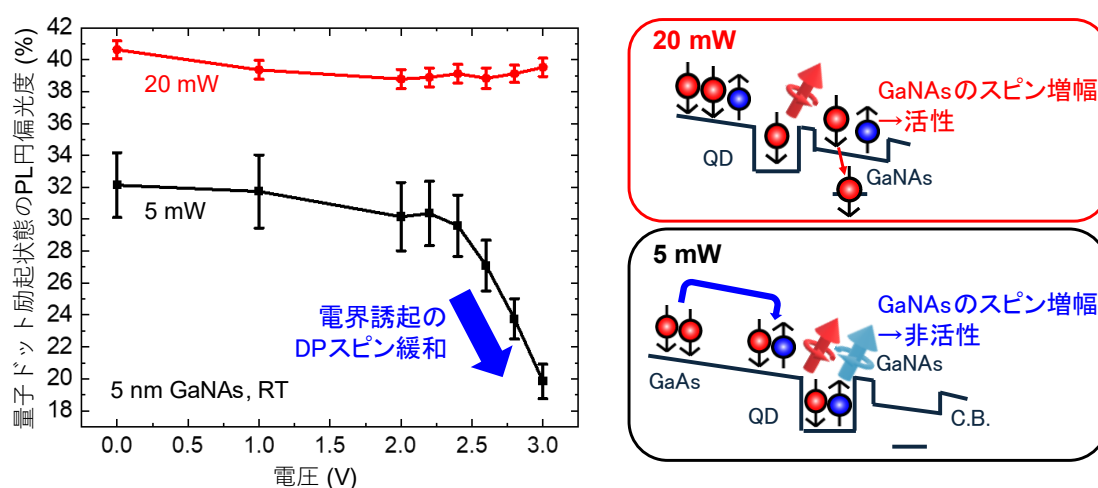


図 35 室温における異なる励起光強度での PL 円偏光度の電圧依存性。

印加電圧を一定にしたときの PL 円偏光度の励起光強度依存性

図 36 に 5 nm の GaNAs 量子井戸を持つスピン偏極 LED における PL 円偏光度の励起光強度依存性を示す。解析エネルギー範囲は量子ドット基底準位であり、印加電圧は 2 V と 3 V とした。GaAs 層を円偏光励起し、測定は室温かつ無磁場下で実施した。両電圧において、励起光強度が増加すると PL 円偏光度は増加した。一般的に、量子ドットの電子スピン偏極率は、励起光強度が増加すると状態充填効果や BAP スピン緩和によって著しく低下することが知られている [73]。しかし、本研究で用いた GaNAs 量子井戸と量子ドットのトンネル結合構造は、各種のスピン緩和よりも強く働くスピン増幅効果によって、伝導電子のスピン偏極率を効率的に高めることができる [48]。また、PL 円偏光度が飽和する励起光強度 P_{sat} は印加電圧が大きいほど増加することがわかった。これは印加電圧の増加によって、量子ドットへの電子注入時のスピン偏極率が低下し、スピン増幅効果の動作に必要な電子密度が増加したためと考えられる。高電圧下で注入時のスピン偏極率が低下することは、5 mW の励起光強度において 3 V での PL 円偏光度がより低くなっていることから分かる。

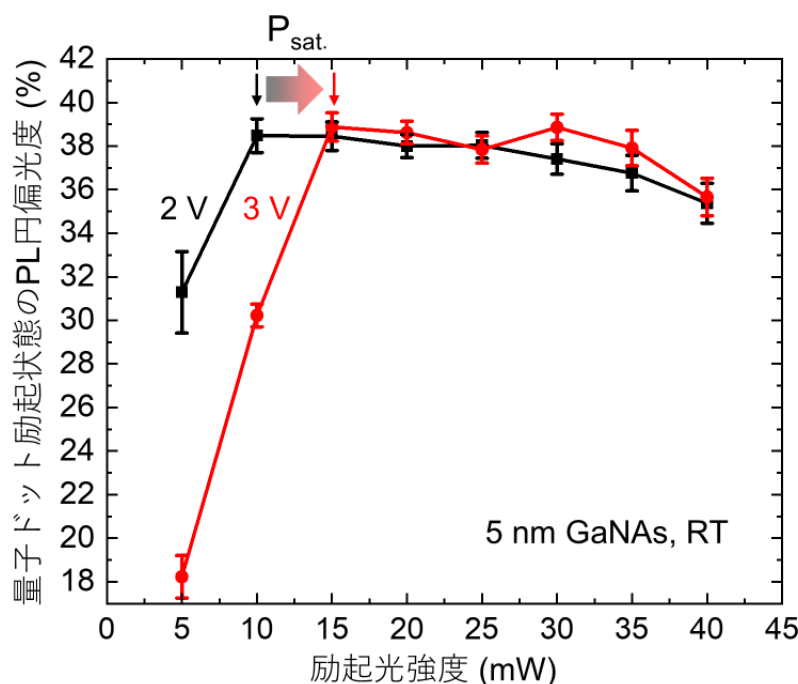


図 36 室温における異なる印加電圧での PL 円偏光度の励起光強度依存性。

第 8 項 結論

本節では、GaNA_s 量子井戸とトンネル結合した InGaAs 量子ドットを持つスピン偏極 LED の円偏光 EL 特性について研究した。試料は主に GaNA_s を持つスピン偏極 LED と GaNA_s を持たないスピン偏極 LED の 2 種類を作製した。まず、室温かつ磁場下において、両試料における EL 円偏光度の電圧依存性を測定した。その結果、GaNA_s を持たない試料では電圧が増加すると EL 円偏光度が低下した一方で、GaNA_s を持つ試料では電圧が増加しても EL 円偏光度が維持された。次に、この特徴を理解するために、PL 円偏光度の励起光強度依存性を測定した。その結果、GaNA_s を持つ試料では励起光強度の増加とともに PL 円偏光度が大きく増加した。これは伝導電子密度が増加したことで GaNA_s のスピントラッキング効果が促進されたためであり、高電圧下での高い EL 円偏光度を支持する結果であると考えられる。GaNA_s のスピン増幅効果を引き起こすには深い局在準位の伝導電子捕獲が重要であるため、その効果の強さは温度に依存することが知られている。そこで、室温から 100 K までの EL 円偏光度の温度依存性を測定した。その結果、室温から 200 K までは EL 円偏光度が維持され、200 K から 100 K において EL 円偏光度が減少した。この傾向は PL 円偏光度の温度依存性と一致しており、温度に依存した GaNA_s のスピントラッキング効果がスピン偏極 LED の性能に影響を与えていることを確認した。最後に、電流増加により活性化されるスピントラッキング効果と電界増加により促進される DP スピン緩和を区別するために電界印加下で円偏光 PL 測定を実施した。その結果、弱励起の場合において電界の増加とともに PL 円偏光度が減少した一方で、強励起時の場合には電界に依存せず高い PL 円偏光度が維持された。これは、高電圧印加と高電流注入が同時に生じるスピン偏極 LED にとって、希薄窒化 GaNA_s とトンネル結合した量子ドットが、理想的なスピン増幅発光構造であることを示している。

第3節 GaAs/AlGaAs 超格子による電界下スピン偏極保存輸送

第1項 試料構造

図 37(a)に試料構造を示す。試料は pin 半導体層の上部に 3 nm のトンネル酸化膜を持つダイオードであり、一般的なスピン偏極 LED と同様の構造である [26, 74]。光学活性層の材料には、伝導帯オフセットが大きいことにより電子の熱脱離を抑制でき、室温で強い発光強度が期待できる希薄窒化 GaInNAs 量子ドットを用いた [75, 76]。量子ドットの窒素組成は、図 37(b, c)に示す低温における PL 測定と 3 次元量子構造計算から 3.2%程度と推定される。超格子は i-GaAs 量子井戸 5 nm と n-Al_{0.3}Ga_{0.7}As バリア 5 nm を繰り返し積層した構造である。超格子の電子スピン輸送特性は構造条件に大きく依存することが明らかになっている [77]。先行研究では、量子井戸厚が薄いときに電子輸送効率が高く、バリア厚が薄いときにスピン状態を長時間保持できることが分かっている [41, 78]。本研究では量子井戸とバリアの膜厚がともに比較的薄い構造を採用した。また、超格子の繰り返し周期については 5 周期とした。これは繰り返し周期が多いと GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 界面準位に捕獲される電子が増加し、移動度が低下するためである [79]。また、超格子全体の膜厚は、スピン偏極 LED のスピン輸送層の膜厚と同様にするために 50 nm とした [53]。さらに、p 型半導体層は p-GaAs のみを設けた。これは、基板側から正孔が量子ドットへ効率よく注入されることで、電子と正孔の有効質量の違いによる輸送速度の差を解消する狙いがある [80]。n 型半導体層は、超格子および励起電子スピン生成層として i-Al_{0.2}Ga_{0.8}As 量子井戸層を設けた。試料構造の成膜方法は第 4 章第 1 節を参照されたい。

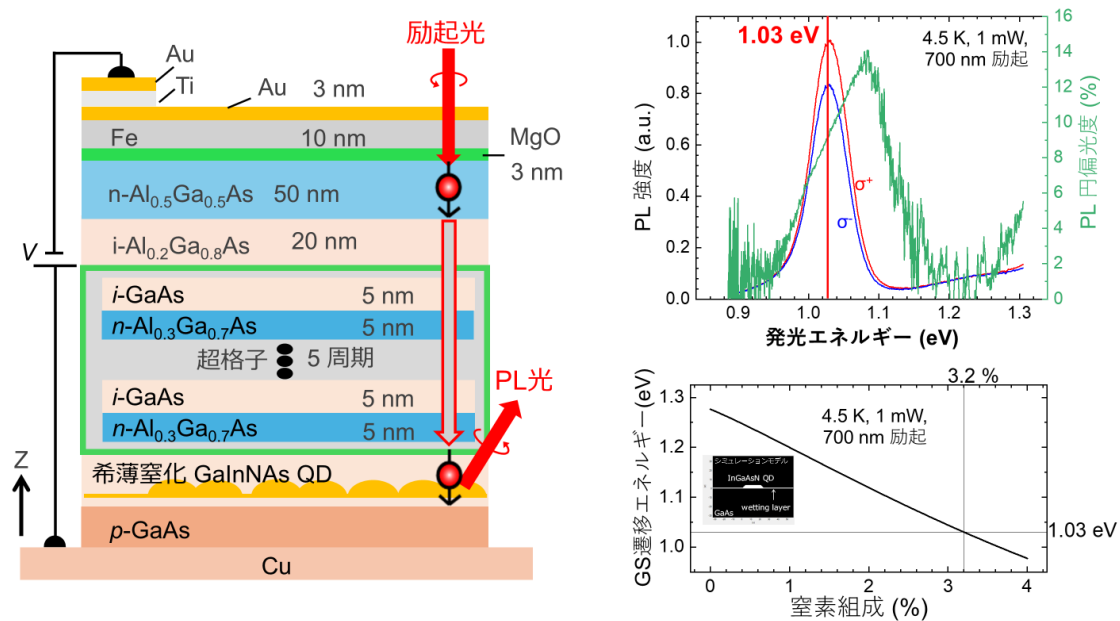


図 37 (a) 超格子バリアを持つ量子ドット LED 試料構造。 (b) 低温で得られた量子ドットの円偏光 PL スペクトル。 (c) 量子ドット基底準位の遷移エネルギーと窒素組成の関係。

第2項 電流電圧特性とバンド計算結果

図 38(a)に格子温度を室温とした場合における 1 次元バンド計算結果を示す。バンド計算には nextnano を用いた [55]。4 V 程度の電圧で n-AlGaAs 量子井戸層および超格子の伝導帯エネルギーが量子ドット層の伝導帯エネルギーを上回ることが分かる。この結果は十分に高い正バイアス印加下では電子を超格子バリアから量子ドット層へ輸送可能であることを示唆している。実際、室温での IV 特性において 4 V の閾値電圧を観測しており、期待した電圧範囲で高い順方向電流が得られた(図 38(b))。

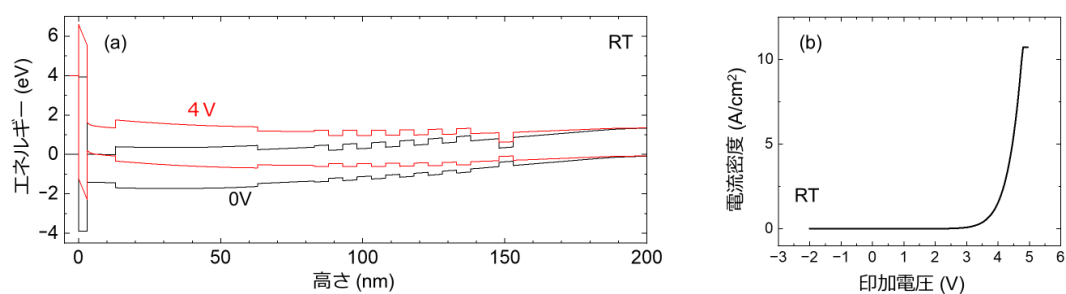


図 38 (a) 超格子バリアを持つ量子ドット LED の 1 次元バンド計算結果。(b) 室温で得られた LED 試料の IV 特性

第3項 励起光強度を一定にしたときの PL 特性の励起エネルギー依存性

図 39 に励起光強度を一定にした場合における量子ドットの PL スペクトルの励起エネルギー依存性を示す。印加電圧は 4 V であり、励起光密度は 650 W/cm^2 である。励起エネルギーは GaAs 層を励起できる条件から $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 層を励起できる条件まで変化させた。励起エネルギーを増加すると PL 発光強度は増加した。これは励起される半導体層が GaAs 層から $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 層まで拡大することによって伝導電子密度が増加したためである [41]。また、励起エネルギーが増加すると円偏光度スペクトルは高エネルギー側にシフトする傾向を示した。これは、伝導電子密度の増加に誘起された量子ドットの状態充填効果によるものと考えられる。量子ドット基底準位の PL 円偏光度は、超格子の励起エネルギーよりも高い励起エネルギーでは高い PL 円偏光度が維持された。これは多数の伝導電子がスピン偏極を高く保持したまま量子ドットへ輸送された可能性がある。次に、超格子の電子スピン輸送ダイナミクスを明らかにするために、発光の観測エネルギーを超格子まで広げ、PL 発光強度の電圧依存性を調べた。

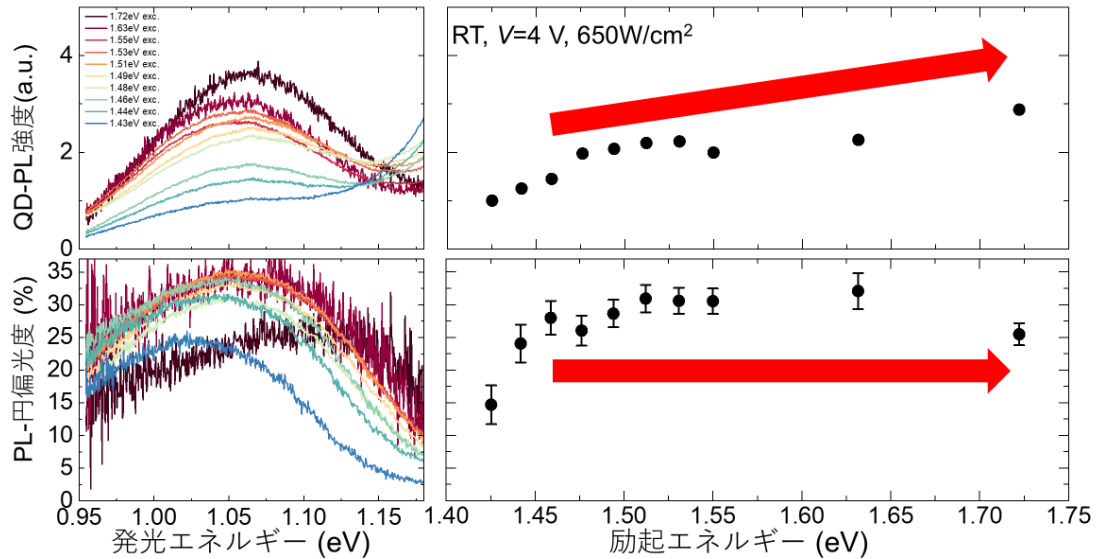


図 39 励起エネルギーを変化させた場合での (a) 量子ドットの PL スペクトルと(c) PL 円偏光度スペクトル、量子ドットの基底準位における(b) PL 発光強度と(d) PL 円偏光度。

第4項 励起光強度を一定にしたときの積分 PL 強度の電圧依存性

図 40 に $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 層を励起する条件下での量子ドット、GaAs、超格子からの室温での PL スペクトルを示す。測定は無電界下で行われた。3 つのピークが観測された。これらは、低温での PL 測定によって、低エネルギー側から GaInNAs 量子ドット、n(p)-GaAs のドナー(アクセプター)準位、超格子のミニバンドからの発光(図 40(c))であることが分かった。次に、各発光エネルギーにおける積分 PL 強度の電圧依存性を測定した。ここで、超格子のミニバンドからの発光と GaAs からの発光はエネルギー的に近く、強度差も非常に大きいため明確なピーク分離ができなかった(図 40(b)に示すように PL 発光強度の電圧依存性は大きく異なっている)。3 V 以下の電圧では全ての発光エネルギーで PL 強度が $\pm 10\%$ 程度しか変化しなかったが、3 V 以上の電圧では量子ドットからの発光が 30%増加したのに対して、GaAs からの発光が 15%低下、超格子からの発光が 45%低下した。特に、超格子における発光強度の低下が大きかった。本研究で作製した試料の閾値電圧は 4 V 程度であったことを考慮すると、電界印加によって超格子から量子ドットへ電子が輸送されていることを示唆している(p. 58, 図 38(b))。次項では、超格子から量子ドットへ電子が輸送された証拠として、超格子の発光減衰時間が減少したことを示す。

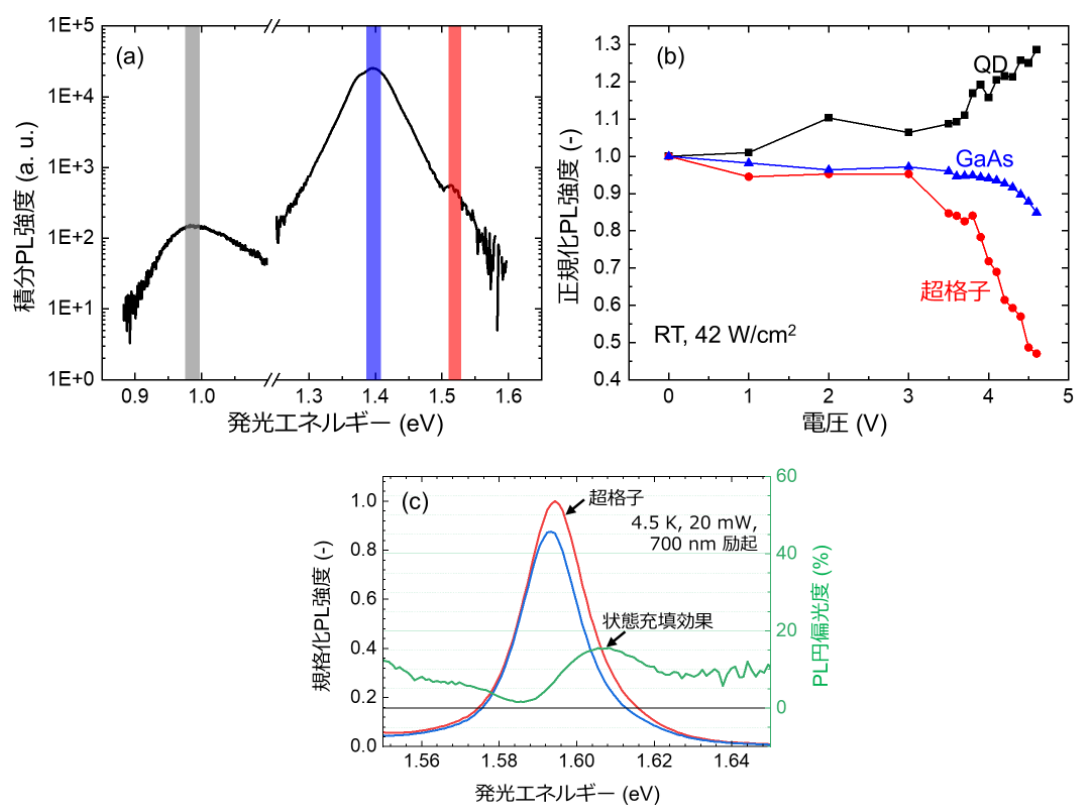


図 40 $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 層の励起条件下での(a) 試料全体の PL スペクトル。(b) 各層における PL 発光強度の電圧依存性。(c) 超格子のミニバンドからの低温での円偏光 PL スペクトル。

第5項 励起光強度を一定にしたときの PL 発光減衰の電圧依存性

図 41(a)に超格子からの PL 発光減衰の電圧依存性を示す。電圧が増加すると消光に係る時間が早くなっていることが分かる。つぎに exponential-decay フィッティングにより発光減衰定数を算出した。図 41(b)に示す。結果は閾値電圧より高い電圧印加で急激に発光減衰時定数減少することが分かった。これは、発光減衰時定数 τ が発光再結合成分と非発光成分の逆数の和で表せられることから、電界の印加によって超格子における電子スピンの速度が増加し非発光再結合時間 τ_{nr} が増加したと考えることができる(p. 20, 式(3))。ここで τ_r は発光再結合時間である。これらの PL 発光強度(図 40(b)), PL 発光減衰時間の電圧依存性(図 41)により、超格子から電子が輸送されていることが明らかとなった。次項では、輸送される電子のスピンの偏極について論じる。

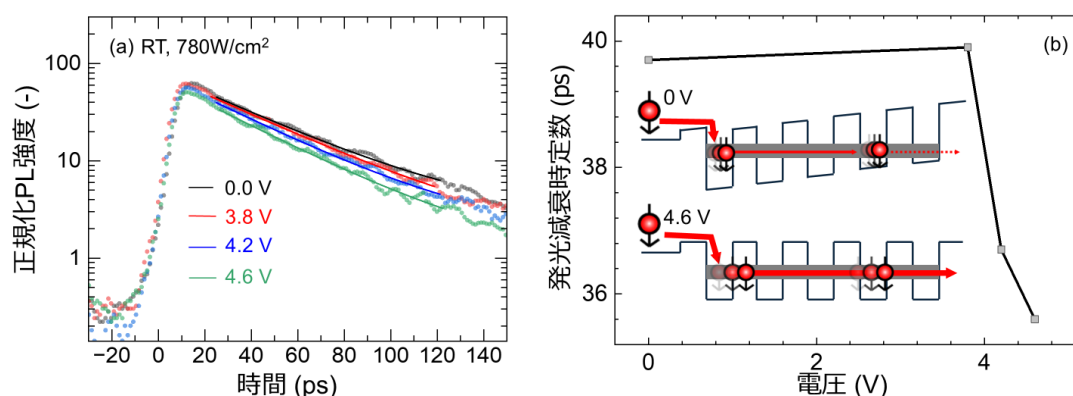


図 41 $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 層の励起条件での(a) 異なる電圧における超格子層の時間分解 PL。(b) 発光減衰時間の電圧依存性。測定温度は室温であり、励起光密度は 780 W/cm^2 。

第6項 励起光強度を一定にしたときの PL 円偏光度の電圧依存性

図 42 に室温で得られた量子ドットと超格子の PL 円偏光度の電圧依存性を示す。量子ドットと超格子の PL 円偏光度は、印加電圧を増加してもほとんど減少しなかった。さらに、超格子における電子輸送を促進する 3.8 V 以上の電圧範囲においても PL 円偏光度は電圧にほとんど依存しなかった。次に、量子ドット層と超格子層におけるスピン偏極率を推定する。スピン偏極率と円偏光度の関係は、超格子では2倍、量子ドットでは1倍の関係にある [32]。興味深いことに超格子層と量子ドット層でスピン偏極率は同等であった。これは、超格子中でスピン偏極が保持された電子スピンの量子ドット層へ輸送されたことを示唆している。次項では、超格子が持つ電子スピンの輸送性能について述べる。

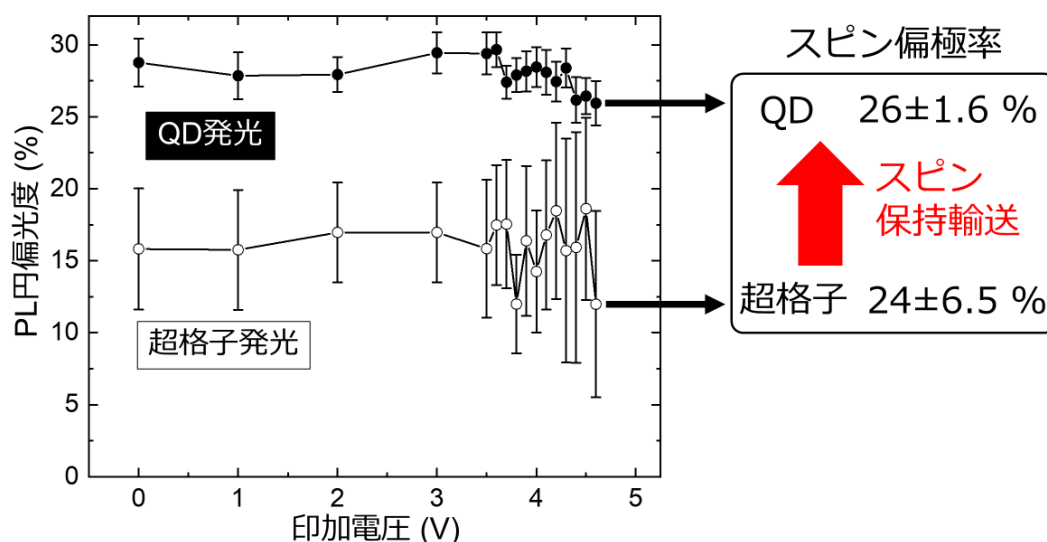


図 42 $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 層の励起条件での量子ドットの基底準位および超格子層からの PL 円偏光度の電圧依存性。測定温度は室温であり、励起光密度は 42 W/cm^2 。

第7項 励起エネルギーを一定にしたときの PL 特性の励起光強度依存性

図 43 に励起エネルギーを一定にしたときの量子ドットの PL スペクトルと PL 円偏光度スペクトルの励起光強度依存性を示す。励起光強度は 130、390、650 W/cm² と変化させた。励起光強度を増加すると、円偏光度スペクトルのピーク位置の高エネルギー側へのシフト量は励起エネルギーに大きく依存した。これは量子ドットの状態充填効果によるものと考えられる(図 43 挿入図)。状態充填効果とは電子スピンの過剰に量子ドットに注入されると基底準位のスピンの偏極率は減少する一方で、励起準位のスピンの偏極率が増加する現象である [73]。本試料では、GaAs 層の励起条件よりも高い励起エネルギーでは多くの電子スピンを量子ドットへ注入できる(p. 59, 図 39)。すなわち、励起エネルギーが増加するほど、多くの電子スピンの量子ドットへ注入され、その結果、円偏光度スペクトルの高エネルギー側へのシフトが顕著になったと考えられる。しかしながら、励起光強度が最も強く励起エネルギーが最も高い条件下でも、量子ドット基底準位の PL 円偏光度は約 20 %であり、GaAs 励起時と比較しても 10 %程度の低下に抑制されている。これは、超格子のスピンの保持・輸送によるものであり、スピン偏極 LED のスピン輸送層に適していると言える。

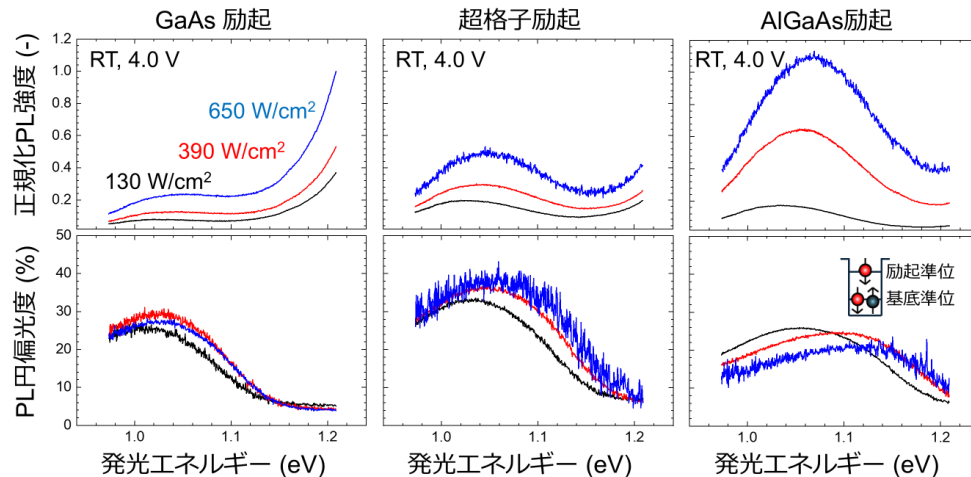


図 43 Al_{0.2}Ga_{0.8}As 層の励起条件での量子ドットの PL スペクトルと PL 円偏光度の励起光強度依存性。測定温度は室温であり、印加電圧は 4.0 V である。挿入図は量子ドットの基底準位における状態充填効果の様子を示している。

第 8 項 結論

本研究では、スピン偏極 LED のスピン輸送層に超格子を導入した試料の室温かつ高電圧下におけるスピン輸送特性を評価した。まず、電界印加下で励起エネルギーを変化させ、量子ドットの円偏光 PL 特性を測定した。その結果、励起エネルギーの増加とともに PL 発光強度は増加し、PL 円偏光度は増加した後に飽和した。これは励起エネルギーの増加による光吸収体積の増加と伝導電子スピン偏極の保持を示唆している。次に、PL 発光強度の電圧依存性を測定した。その結果、電界を印加することで量子ドットからの PL 発光強度は 30% 増加した一方で、超格子からの PL 発光強度は 54% 減少した。この明確な傾向は、超格子から量子ドットへ電子が輸送されたことを示唆している。さらに、電界印加下での超格子の時間分解 PL 測定を行い、電界印加時に発光減衰時間が顕著に減少することが分かった。これらの結果は、超格子内の伝導電子が電界によって加速され発光再結合成分が減少し、量子ドットへ電子が注入されたためである。次に、超格子から輸送される電子のスピン偏極率を評価するため、PL 円偏光度の電圧依存性を測定した。その結果、電圧に依存しない高い PL 円偏光度が量子ドットと超格子の両方で観測された。これは電界誘起の DP スピン緩和が量子ドット中および超格子中で強く働いていないことを示唆している。得られた PL 円偏光度からスピン偏極率を推定すると、量子ドット層と超格子層のスピン偏極率は同一であった。これは超格子中では電子のスピン偏極が高く保持されたまま、量子ドットへ輸送されたことを示している。最後に、PL スペクトルと PL 円偏光度の励起光強度依存性を各励起エネルギー条件下で測定した。その結果、励起エネルギーが高いほど PL 発光強度は増大した一方で、量子ドット基底準位の PL 円偏光度は低下した。これは量子ドットへのスピン偏極電子の高密度注入が原因であると同時に、超格子構造による電子の高効率輸送がもたらした結果であると言える。以上の研究によって、スピン偏極 LED における電子輸送中のスピン緩和を原理的に抑制できる超格子構造が、室温かつ高電圧下で機能することを実証した。

第6章 結論

第1節 結論

本研究は、室温かつ高電圧下で低下する量子ドットスピン偏極 LED の EL 円偏光度を向上させるために、輸送中のスピン緩和を定量的に評価できる手法を確立し、希薄窒化 GaNAs によるスピン増幅発光と GaAs/AlGaAs 超格子によるスピン偏極保持輸送を実現した。

半導体量子ドットは、室温で長いスピン緩和時間と高い発光再結合確率を同時に有する高効率なスピン光変換構造である。しかし、量子ドットを光学活性層に用いたスピン偏極 LED の安定的な室温動作は未だ達成されていない。これは、量子ドットへの電子注入時のスピン偏極率を決定する輸送中のスピン緩和の程度が明らかになっていないためである。そこで本研究では、輸送中のスピン緩和を定量的に評価する手法を確立し、輸送中に散逸するスピン偏極を補償あるいは保持する2つの構造について提案した。

第5章の第1節では p ドープ量子ドットを持つスピン偏極 LED を用いて輸送中のスピン緩和を定量的に評価する手法について研究した。まず、室温環境下で磁場中円偏光 EL 測定を実施した。その結果、最大 8% の EL 円偏光度が得られた。これは強磁性体 Fe 電極のスピン偏極率を考慮すると、20% のスピン偏極率を EL 円偏光度へ変換できたことを示している。次に、EL 円偏光度は強磁性体電極のスピン偏極率、光学活性層へのスピン輸送効率、光学活性層のスピン光変換効率の積で近似できるとするモデルを構築し、スピン輸送効率を算出した。その結果、室温かつ高電圧下では、スピン輸送効率は 10% まで低下してしまうことが分かった。室温での量子ドットのスピン光変換効率は 69% であったことを考慮すると、EL 円偏光度の向上にむけてはスピン輸送効率の改善が必須であることが明らかになった。

第5章の第2節では希薄窒化 GaNAs 量子井戸とトンネル結合した量子ドットを持つスピン偏極 LED について研究した。本構造は、GaNAs の深い局在準位のスピンフィルタリング効果によって伝導電子のスピン偏極率を増幅できる構造であり、スピン偏極 LED において

は光学活性層への輸送後のスピン増幅発光が期待できる。GaNA_s を持つ試料と GaNA_s を持たない試料の 2 種類を作製した。まず、室温で EL 円偏光度を測定した。その結果、GaNA_s を持つ試料の EL 円偏光度は持たない試料と比較して約 3 倍高くなった。さらに、印加電圧を増加させても GaNA_s を持つ試料の EL 円偏光度は維持された。この特徴が GaNA_s に由来することを確認するために、電界印加下で PL 円偏光度の励起光強度依存性を測定した。その結果、励起光強度の増加とともに PL 円偏光度は大きく増加した。これは電界誘起の DP スピン緩和よりも GaNA_s のスピン増幅効果の方が強く作用することを示している。

第 5 章の第 3 節では GaAs/AlGaAs 超格子を用いた電界下での電子スピン輸送特性に関する研究である。発光層には電子の熱脱離の抑制により室温で強い発光が期待できる希薄窒化 GaInNA_s 量子ドットを用いた。まず、各層における PL 発光強度の電圧依存性を測定した。電圧を増加させると量子ドットの PL 発光強度は増加した一方で、量子ドットよりもバンドギャップが大きい超格子の PL 発光強度は減少した。これは、電界印加によって超格子から量子ドットへの電子輸送が促進されたことを示している。一方で、電子のスピン偏極特性を反映する円偏光度は、電圧を増加させても超格子と量子ドットともに変化しなかった。さらに、円偏光度から求められる電子のスピン偏極率は、超格子と量子ドットで同等であった。これは、電界印加時に超格子中で電子のスピン偏極が高く保持されるとともに、量子ドットへ効率的に電子スピンの輸送注入されたことを示している。

第2節 謝辞

本研究の遂行にあたり、多くの皆様に多大なるご協力を賜りましたことを、ここに深く感謝申し上げます。特に樋浦諭志准教授には貴重なご助言をいただき、厚く御礼申し上げます。また、所属研究室の村山明宏特任教授、菅原広剛准教授には、研究者としての心得から固体物理学的見地に至る幅広い知識をご教授頂きました。大変お世話になりました。また、副査の植村哲也教授には様々なアドバイスやご意見をいただき、感謝申し上げます。また、技術系職員として結晶成長・光学測定・マイクロファブリケーションにおいて多大なるご協力を賜りました高山純一技術専門職員、白田聡技術補助員、成澤良明技術補佐員にも御礼申し上げます。また、電子材料学研究室の学生の皆様には、日々の議論や実験において多大なるご協力をいただきました。特に、マイクロファブリケーションの推進に携わった皆様とは、創意工夫に富んだ大変有意義な議論を交わすことができました。ここに、深く感謝申し上げます。また、本研究はナノエレクトロニクス研究室との共同研究により実施されました。Agus Subagyo 准教授、末岡和久教授には、多大なるご助言を賜りました。心より感謝申し上げます。また、研究の基礎となる知見と知識をご教授くださった釧路工業高専の大前洸斗元講師に、心より感謝申し上げます。さらに、本研究の遂行にあたり、似鳥国際奨学財団様より北海道大学みらい IT 人財奨学金を通じた財政的なご支援を賜りました。この場を借りて、深く御礼申し上げます。また、博士後期課程2年次からは、日本学術振興会様より特別研究員DC2を拝命し、研究に専念する貴重な機会をいただきました。これにより、本研究をより発展させることができたことを、改めて感謝申し上げます。

第3節 引用文献

- [1] 国立研究開発法人科学技術振興機構 低炭素社会戦略センター, 情報化社会の進展がエネルギー消費に与える影響 Vol. 1, (2019).
- [2] 総務省 情報通信審議会 情報通信技術分科会, 第27回技術戦略委員会資料 (2021).
- [3] D. A. B. Miller, *Journal of Lightwave Technology* **35**, 346 (2017).
- [4] F. Oboril, R. Bishnoi, M. Ebrahimi, and M. B. Tahoori, *IEEE Transactions on Computer-Aided Design of Integrated Circuits and Systems* **34**, 367 (2015).
- [5] W. Guo, G. Prenat, V. Javerliac, M. El Baraji, N. de Mestier, C. Baraduc, and B. Diény, *J. Phys. D Appl. Phys.* **43**, 215001 (2010).
- [6] K. Jabeur, L. D. Buda-Prejbeanu, G. Prenat, and G. Di Pendina, *International Journal of Electrical and Computer Engineering* **7**, (2013).
- [7] 岩田穆, 光学 (光インターコネクション特集号) **25**, 126 (1996).
- [8] S. M. Sze and J. C. Irvin, *Solid State Electron.* **11**, 599 (1968).
- [9] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 665 (1990).
- [10] T. Koga, J. Nitta, H. Takayanagi, and S. Datta, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 126601 (2002).
- [11] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047204 (2005).
- [12] S. Hövel, N. C. Gerhardt, and M. R. Hofmann, *Appl. Phys. Lett* **93**, 021117 (2008).
- [13] S. T. Ruggiero, A. Williams, C. E. Tanner, S. Potashnik, J. Moreland, and W. H. Rippard, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4599 (2003).

- [14] M. C. Hickey, C. D. Damsgaard, I. Farrer, S. N. Holmes, A. Husmann, J. B. Hansen, C. S. Jacobsen, D. A. Ritchie, R. F. Lee, G. A. C. Jones, and M. Pepper, Appl. Phys. Lett. **86**, 252106 (2005).
- [15] S. Gardelis, C. G. Smith, C. H. W. Barnes, E. H. Linfield, and D. A. Ritchie, Phys. Rev. B **60**, 7764 (1999).
- [16] R. Fiederling, M. Keim, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag, and L. W. Molenkamp, Nature **402**, 787 (1999).
- [17] W. Y. Lee, S. Gardelis, B. C. Choi, Y. B. Xu, C. G. Smith, C. H. W. Barnes, D. A. Ritchie, E. H. Linfield, and J. A. C. Bland, J. Appl. Phys. **85**, 6682 (1999).
- [18] G. Schmidt, D. Ferrand, L. Molenkamp, A. Filip, and B. van Wees, Phys. Rev. B **62**, R4790 (2000).
- [19] E. I. Rashba, Phys. Rev. B **62**, R16267 (2000).
- [20] T. Akiho, T. Uemura, M. Harada, K. Matsuda, and M. Yamamoto, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 02BM01 (2012).
- [21] V. F. Motsnyi, P. Van Dorpe, W. Van Roy, E. Goovaerts, V. I. Safarov, G. Borghs, and J. De Boeck, Phys. Rev. B **68**, 245319 (2003).
- [22] T. Inokuchi, T. Marukame, M. Ishikawa, H. Sugiyama, and Y. Saito, Appl. Phys. Express **2**, 023006 (2009).
- [23] G. Salis, R. Wang, X. Jiang, R. M. Shelby, S. S. P. Parkin, S. R. Bank, and J. S. Harris, Appl. Phys. Lett. **87**, 262503 (2005).
- [24] W. H. Butler, X. G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren, Phys. Rev. B **63**, 544161 (2001).
- [25] 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).

- [26] T. Manago and H. Akinaga, Appl. Phys. Lett. **81**, 694 (2002).
- [27] M. Passlack, M. Hong, J. P. Mannaerts, J. R. Kwo, and L. W. Tu, Appl. Phys. Lett. **68**, 3605 (1996).
- [28] H. Saito, J. C. Le Breton, V. Zayets, S. Yuasa, and K. Ando, Appl. Phys. Express **2**, 083003 (2009).
- [29] H. Saito, J. C. Le Breton, V. Zayets, Y. Mineno, S. Yuasa, and K. Ando, Appl. Phys. Lett. **96**, 012501 (2010).
- [30] G. Dresselhaus, Phys. Rev. **100**, 580 (1955).
- [31] M. I. Miah, J. Phys. D Appl. Phys. **41**, 185503 (2008).
- [32] F. Meier and B.P. Zakharchenya, *Optical Orientation* (North-Holland, Amsterdam, New York, 1984).
- [33] P. H. Song and K. W. Kim, Phys. Rev. B **66**, 035207 (2002).
- [34] J. H. Jiang and M. W. Wu, Phys. Rev. B **79**, 125206 (2009).
- [35] Y. Yafet, Solid State Physics **14**, 1 (1963).
- [36] R. J. Elliott, Phys. Rev. **96**, 266 (1954).
- [37] R. Winkler, *Spin-Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*, Vol. 191 (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2003).
- [38] S. Saikin, M. Shen, and M.-C. Cheng, J. Phys.: Condens. Matter **18**, 1535 (2006).
- [39] 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).
- [40] O. Heikkilä, J. Oksanen, and J. Tulkki, J. Appl. Phys. **105**, 093119 (2009).

- [41] S. Hiura, K. Itabashi, K. Takeishi, J. Takayama, T. Kiba, and A. Murayama, Appl. Phys. Lett. **114**, 072406 (2019).
- [42] S. L. Chen, T. Kiba, X. J. Yang, J. Takayama, and A. Murayama, Appl. Phys. Lett. **108**, 152103 (2016).
- [43] L. Esaki and R. Tsu, IBM J. Res. Dev. **14**, 61 (1970).
- [44] S. Hiura, S. Hatakeyama, M. Jansson, J. Takayama, I. Buyanova, W. Chen, and A. Murayama, Phys. Chem. Chem. Phys. **27**, 2210 (2025).
- [45] S. Sato, S. Hiura, J. Takayama, and A. Murayama, Appl. Phys. Lett. **116**, 182401 (2020).
- [46] Y. Zhou, J. H. Jiang, and M. W. Wu, New J. Phys. **11**, 113039 (2009).
- [47] H. C. Schneider and M. Krauß, *Electronic Dynamics Due to Exchange Interaction with Holes in GaAs* 76001D (2010).
- [48] Y. Huang, V. Polojärvi, S. Hiura, P. Höjer, A. Aho, R. Isoaho, T. Hakkarainen, M. Guina, S. Sato, J. Takayama, A. Murayama, I. A. Buyanova, and W. M. Chen, Nat. Photonics **15**, 475 (2021).
- [49] Y. Puttisong, I. A. Buyanova, and W. M. Chen, Phys. Rev. B **89**, 195412 (2014).
- [50] C. Weisbuch and G. Lampel, Solid State Commun. **14**, 141 (1974).
- [51] D. Lagarde, L. Lombez, X. Marie, A. Balocchi, T. Amand, V. K. Kalevich, A. Shiryayev, E. Ivchenko, and A. Egorov, Phys. status solidi. (a) **204**, 208 (2007).
- [52] M. I. Dyakonov, M. I. D'yakonov, and V. I. Perel', Sov. Phys. JETP **33**, 1053 (1971).
- [53] P. A. Dainone, N. F. Prestes, P. Renucci, A. Bouché, M. Morassi, X. Devaux, M. Lindemann, J. M. George, H. Jaffrès, A. Lemaitre, B. Xu, M. Stoffel, T. Chen, L. Lombez, D. Lagarde, G. Cong, T. Ma, P. Pigeat, M. Vergnat, H. Rinnert, X. Marie, X. Han, S.

Mangin, J. C. Rojas-Sánchez, J. P. Wang, M. C. Beard, N. C. Gerhardt, I. Žutić, and Y. Lu, *Nature* **627**, 783 (2024).

[54] P. Barate, S. Liang, T. T. Zhang, J. Frougier, M. Vidal, P. Renucci, X. Devaux, B. Xu, H. Jaffrès, J. M. George, X. Marie, M. Hehn, S. Mangin, Y. Zheng, T. Amand, B. Tao, X. F. Han, Z. Wang, and Y. Lu, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 012404 (2014).

[55] S. Birner, T. Zibold, T. Andlauer, T. Kubis, M. Sabathil, A. Trellakis, and P. Vogl, *IEEE Trans Electron Devices* **54**, 2137 (2007).

[56] C. H. Li, G. Kioseoglou, O. M. J. Van 't Erve, M. E. Ware, D. Gammon, R. M. Stroud, B. T. Jonker, R. Mallory, M. Yasar, and A. Petrou, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 132503 (2005).

[57] A. E. Giba, X. Gao, M. Stoffel, X. Devaux, B. Xu, X. Marie, P. Renucci, H. Jaffrès, J. M. George, G. Cong, Z. Wang, H. Rinnert, and Y. Lu, *Phys. Rev. Appl.* **14**, 034017 (2020).

[58] A. T. Hanbicki, B. T. Jonker, G. Itskos, G. Kioseoglou, and A. Petrou, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1240 (2002).

[59] V. A. Marushchak, M. N. Stepanova, and A. N. Titkov, *JETP Lett* **37**, 337 (1983).

[60] S. Hiura, M. Takishita, J. Takayama, S. Sato, and A. Murayama, *Phys. Rev. Appl.* **14**, 044011 (2020).

[61] A. Tackeuchi, Y. Nishikawa, and O. Wada, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 797 (1996).

[62] S. Oertel, J. Hübner, and M. Oestreich, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 132112 (2008).

[63] D. Basu, D. Saha, C. C. Wu, M. Holub, Z. Mi, and P. Bhattacharya, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 091119 (2008).

- [64] J. Beyer, I. A. Buyanova, and S. Suraprapapich, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 203110 (2011).
- [65] K. Etou, S. Hiura, S. Park, K. Sakamoto, J. Takayama, A. Subagyo, K. Sueoka, and A. Murayama, *Phys. Rev. Appl.* **16**, 014034 (2021).
- [66] R. Allenspach, M. Taborelli, and M. Landolt, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2599 (1985).
- [67] H. Jansen, D. Dobos, T. Eisel, H. Pernegger, V. Eremin, and N. Wermes, *J. Appl. Phys.* **113**, 173706 (2013).
- [68] M. P. Hautzinger, X. Pan, S. C. Hayden, J. Y. Ye, Q. Jiang, M. J. Wilson, A. J. Phillips, Y. Dong, E. K. Raulerson, I. A. Leahy, C. S. Jiang, J. L. Blackburn, J. M. Luther, Y. Lu, K. Jungjohann, Z. V. Vardeny, J. J. Berry, K. Alberi, and M. C. Beard, *Nature* **631**, 307 (2024).
- [69] S. Sato, *Electron Spin Dynamics of Dilute Nitride GaNAs Quantum Well – InAs Quantum Dots Tunnel-Coupled Nanostructures*, doctoral theses, Hokkaido University, 2024.
- [70] H. Sanada, I. Arata, Y. Ohno, Z. Chen, K. Kayanuma, Y. Oka, F. Matsukura, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2788 (2002).
- [71] Y. Shoji, K. Akimoto, and Y. Okada, *J. Phys. D Appl. Phys.* **46**, 024002 (2013).
- [72] K. Etou, S. Hiura, S. Park, J. Takayama, A. Subagyo, K. Sueoka, and A. Murayama, *Phys. Rev. Appl.* **19**, 024055 (2023).
- [73] T. Yamamura, T. Kiba, X. Yang, J. Takayama, A. Subagyo, K. Sueoka, and A. Murayama, *J. Appl. Phys.* **116**, 94309 (2014).
- [74] G. L. Sir, A. G. Aronov, and G. E. Pikus, *Sov. Phys. JETP* **42**, 706 (1976).
- [75] A. Morita, S. Hiura, J. Takayama, and A. Murayama, *J. Appl. Phys.* **134**, 224303 (2023).

- [76] M. Kondow, T. Kitatani, S. Nakatsuka, M. C. Larson, K. Nakahara, Y. Yazawa, M. Okai, and K. Uomi, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **3**, 719 (1997).
- [77] Y. Ohno, S. Iba, R. Okamoto, Y. Obata, K. Obu, J. J. Pascual Domingez, and H. Saito, Appl. Phys. Express **13**, 123003 (2020).
- [78] S. Hatakeyama, S. Hiura, J. Takayama, and A. Murayama, in *Spin Relaxation Property after Spin Transfer from a Semiconductor Superlattice Barrier to Quantum Dots* (The Japan Society of Applied Physics, 2020).
- [79] J. R. Meyer, D. J. Arnold, C. A. Hoffman, and F. J. Bartoli, Appl. Phys. Lett. **58**, 2523 (1991).
- [80] S. Hiura, S. Hatakeyama, J. Takayama, and A. Murayama, Appl. Phys. Lett. **116**, 262407 (2020).

第4節 研究業績

1. 論文(学位論文関係)

1.1 査読付学会誌

- (1) Kohei Etou, Satoshi Hiura, Soyoung Park, Kazuya Sakamoto, Junichi Takayama, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka, and Akihiro Murayama: 「Room-Temperature Spin-Transport Properties in an In_{0.5}Ga_{0.5}As Quantum Dot Spin-Polarized Light-Emitting Diode」, Physical Review Applied 16, 014034:1-10 (2021). (IF=3.8, TC=14)
- (2) Kohei Etou, Satoshi Hiura, Soyoung Park, Junichi Takayama, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka, and Akihiro Murayama: 「Efficient Room-Temperature Operation of a Quantum Dot Spin-Polarized Light-Emitting Diode under High-Bias Conditions」, Physical Review Applied 19, 024055:1-9 (2023). (IF=3.8, TC=9)

1.2 査読付国際学会プロシーディング

- (1) Kohei Etou, Satoshi Hiura, Junichi Takayama, and Akihiro Murayama: 「Fabrication of p-doped quantum dot spin-polarized light-emitting diodes」, 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2020), pp.567-568, Virtual conference, September 30 (2020).
- (2) Kohei Etou, Satoshi Hiura, Junichi Takayama, Soyoung Park, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka and Akihiro Murayama: 「Temperature effects on performances of a spin-polarized light emitting diode using p-doped InGaAs quantum dots」, 2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2021), pp.287-288, Virtual conference, September 8, (2021).

(3) Kohei Eto, Satoshi Hiura, Junichi Takayama, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka, and Akihiro Murayama: 「Room-temperature operation characteristics of a spin-polarized light-emitting diode using InAs quantum dots tunnel-coupled with GaNAs」, 2022 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2022), pp.39-40, Chiba, Japan, September 28, (2022).

2. 論文(その他)

なし

3. 講演(学位論文関係)

(1) Kohei Eto, Satoshi Hiura, Junichi Takayama, and Akihiro Murayama: 「Fabrication of p-doped quantum dot spin-polarized light-emitting diodes」, 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2020), 9a-Z04-8, Virtual conference, September 30, (2020)-oral

(2) Kohei Eto, Satoshi Hiura, Junichi Takayama, Soyoung Park, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka and Akihiro Murayama: 「Temperature effects on performances of a spin-polarized light emitting diode using p-doped InGaAs quantum dots」, 2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2021), E-5-03, Virtual conference, September 8, (2021)-oral

(3) Kohei Eto, Satoshi Hiura, Junichi Takayama, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka, and Akihiro Murayama: 「Room-temperature operation characteristics of a spin-polarized light-emitting diode using InAs quantum dots tunnel-coupled with GaNAs」, 2022 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2022), A-6-05, Chiba, Japan, September 28, (2022)-oral

(4) Kohei Etou, Satoshi Hiura, Soyoung Park, Junichi Takayama, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka and Akihiro Murayama: 「Circularly polarized electroluminescence properties of quantum dot spin-polarized light-emitting diodes using GaNAs spin filter」, 83th JSAP Autumn Meeting 2022, Sendai(Hybrid), 23a-B201-5, September 23, (2022)-oral

(5) Kohei Etou: 「Temperature Effects on Performances of a Spin-Polarized Light Emitting Diode using p-Doped InGaAs Quantum Dots」, Opinion Exchange Meeting of Hokkaido University-Hitachi Joint Cooperative Support Program for Education and Research in Hitachi Cambridge Laboratory, Cambridge, United Kingdom, December 1, (2023) -oral

(6) Kohei Etou, Junichi Takayama, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka, Akihiro Murayama, and Satoshi Hiura: 「Electron spin transport properties of GaAs/AlGaAs superlattice barriers under an application of electric field」, 37th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2024), 15P-1-20, Kyoto, Japan, November 15, (2024)-poster

4. 講演(その他)

(1) 江藤亘平, 樋浦諭志, 高山純一, 村山明宏: 「電流注入型 p ドープ量子ドットスピン発光ダイオードの作製」, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 9a-Z04-8 (オンライン, 2020).

(2) 江藤亘平, 樋浦諭志, パクソヨン, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「量子ドットスピン偏極発光ダイオードの円偏光発光特性の温度依存性」, 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, 10p-N303-12 (オンライン, 2021).

(3) 日置拓実, 江藤亘平, 樋浦諭志, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「半導体量子ドットを用いたスピン受光ダイオードの光電流特性」, 21a-C101-8 (仙台, 2022).

(4) 日置拓実, 江藤亘平, 樋浦諭志, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「希薄窒化 GaNAs スピンフィルターを用いたスピン受光ダイオードの作製」, 20a-C501-1 (熊本, 2023).

(5) 矢野龍弥, 日置拓実, 江藤亘平, 樋浦諭志, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「半導体量子ドットと超格子バリアを用いたスピン受光ダイオードの円偏光受光特性」, 22p-P10-13 (熊本, 2023).

(6) 沈承赫, 江藤亘平, 樋浦諭志, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「半導体超格子バリアを有する量子ドットスピン偏極発光ダイオードの作製」, 22p-P10-12 (熊本, 2023).

(7) 沈承赫, 江藤亘平, 樋浦諭志, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「GaOx トンネルバリアを持つ量子ドットスピン偏極発光ダイオードの作製」, 17a-C302-10 (新潟, 2024).

(8) 峯山大輝, 矢野龍弥, 江藤亘平, 樋浦諭志, 中間海音, 橋本英季, 峰久恵輔, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 石川史太郎, 村山明宏: 「希薄窒化 GaNAs を用いた近赤外フォトダイオードにおける室温での光電流の偏光依存性」, 17a-C302-11 (新潟, 2024).

(9) 矢野龍弥, 峯山大輝, 江藤亘平, 樋浦諭志, 中間海音, 橋本英季, 峰久恵輔, 高山純一, 石川史太郎, 植村哲也, 樋浦諭志, 村山明宏: 「希薄窒化 GaNAs を用いた近赤外スピン受光ダイオードの磁場特性」, 17a-C302-12 (新潟, 2024).

(10) 田中 竜, 沈承赫, 江藤 亘平, 樋浦諭志, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「InGaAs 量子ドットの積層数を変えたスピン偏極発光ダイオードの研究」, 19p-P09-13 (新潟, 2024).

(11) 江藤 亘平, 樋浦諭志, 高山純一, スバギョアグス, 末岡和久, 村山明宏: 「電界印加下における半導体超格子バリアの電子スピン輸送特性」, 19p-P06-9 (新潟, 2024).

(12) Tatsuya Yano, Daiki Mineyama, Kohei Etou, Kaito Nakama, Hidetoshi Hashimoto, Keisuke Minehisa, Mineto Ogawa, Junichi Takayama, Fumitaro Ishikawa, Tetsuya Uemura, Akihiro Murayama and Satoshi Hiura: 「Fabrication of a near-infrared spin photodiode using dilute nitride GaNAs」, 37th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2024), 14P-1-34, Kyoto, Japan, November 15, (2024)-poster

(13) Seunghyeok Sim, Kohei Etou, Junichi Takayama, Agus Subagyo, Kazuhisa Sueoka, Akihiro Murayama, and Satoshi Hiura: 「Circularly polarized electroluminescence properties of quantum dot spin-polarized light-emitting diode using GaOx tunneling barrier」, 37th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2024), 14P-1-35, Kyoto, Japan, November 15, (2024)-poster

5. 特許

なし

6. 受賞

なし

7. メディア報道

- (1) 江藤亘平: 「スピン LED、室温で動作 北大、変換素子の開発期待」, 日刊工業新聞, 23 面, 2021 年 7 月 20 日.
- (2) 江藤亘平: 「スピン LED 高電圧動作」, 日刊工業新聞, 25 面, 2023 年 2 月 22 日.

8. 競争的資金の獲得

- (1) 江藤亘平: 令和 4 年度 北海道大学アンビシャス博士人材フェローシップ
(情報・AI)
- (2) 江藤亘平: 令和 5 年度-令和 6 年度 日本学術振興会特別研究員 DC2