

## IX - 2. 半導体物性グループ

教授 舛本 泰章  
 准教授 野村 晋太郎、池沢 道男  
 助教 富本 慎一  
 研究員 伊藤 宙陸  
 大学院生 11名

### 【1】 半導体量子構造のスピノ光物性 (舛本泰章, 富本慎一)

#### (1) 1電子ドープ量子ドットにおける共鳴励起光パルスによるスピンの偏極と緩和 (富本慎一, 川名啓介, 村上瑛, 舛本泰章) [論文3,6]

1電子をドープした半導体量子ドットはスピンを用いた固体量子ビットの候補として期待されている。この系は、それぞれ2つのスピン状態をとりうる基底状態（電子）と光励起状態（負の荷電励起子、トリオン）の4つの準位によって記述できる（図1）。電子とトリオンの状態

間に共鳴する励起光（図のエネルギー $\varepsilon_T$ ）によって電子スピンの状態を変化させることができ、それが量子ビットに求められる高速操作を可能にすると期待されている。この4準位系では、2種類の量子コヒーレンスを定義できる。ひとつはスピノコヒーレンスであり、2つの電子スピン状態間

( $|x\rangle$ と $|\bar{x}\rangle$ 、 $x$ は量子化軸) またはト

リオンスピン状態間 ( $|Tx\rangle$ と $|T\bar{x}\rangle$ ) のコヒーレンスである。他のひとつは光学的コヒーレンスであり、電子とトリオンの状態間（図1(a)の両矢印で結ばれた4通りの組合せがある) のコヒーレンスである。これら2種類の量子コヒーレンスは、量子ドットにおいては非常に長い寿命をもつ。1電子をドープしたInP/InGaP量子ドットにおいて、共鳴励起光パルスを照射した後のスピノダイナミクスを時間分解カー回転 (TRKR) 測定によって観察し、光学的コヒーレンスに強く影響された特異な電子スピンの振る舞いを見出した。

図2(a)–(g)はTRKRの励起強度依存性の測定結果である。強励起の場合(a)または(b)では、47 psの周期をもつ振動が2 ns程度の長い寿命で観測された。これは、量子ドット中の電子の偏極した

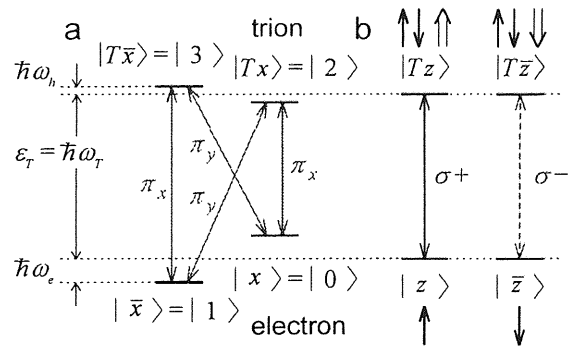


図1: 1電子ドープ量子ドットの4準位系

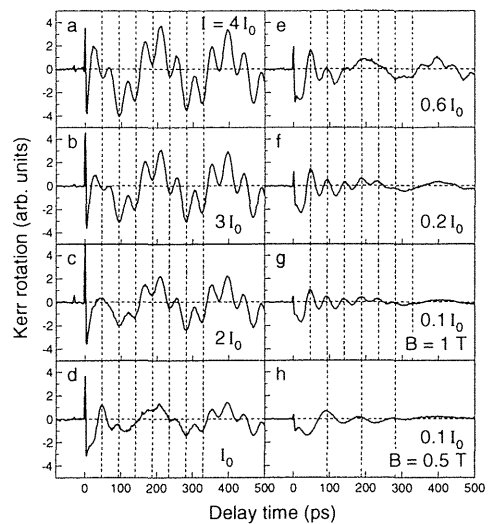


図2: 1電子ドープInP/InGaP量子ドットにおけるTRKRの励起強度依存性の測定結果

スピンの歳差運動による。一方、弱励起の場合(f)または(g)では、同じ周期で逆位相の振動が200 ps程度の寿命で速く減衰する様子が観測された。位相の反転はスピンの偏極の方向が逆になったことを意味しており、自己形成量子ドットがもつ光学的異方性に起因するものとして説明出来る。弱励起の場合に見られる速い減衰が光学的コヒーレンスによるものである。これを示すために、4準位系の密度行列を用いたモデル計算を行った。

図3(a)と(b)はそれぞれ弱励起と強励起の場合の計算結果である。電子スピンの観測軸(z軸)方向成分の期待値 $\langle s_z \rangle$ を光パルス入射後の時間の関数としてプロットしている。図2の実験結果で見られた位相の反転と振動寿命の変化を再現出来た。特に、弱励起の場合(a)での振動の速い減衰は、コヒーレントな自然放出光が4準位系にもたらす反作用をモデルに取り入れることによって現れる振る舞いである。この反作用がなければ、図3(e)のように速い減衰は現れない。したがって、図2のTRKRの測定結果は、光学的コヒーレンスがスピニコヒーレンスに強い影響を与えていることを示している。

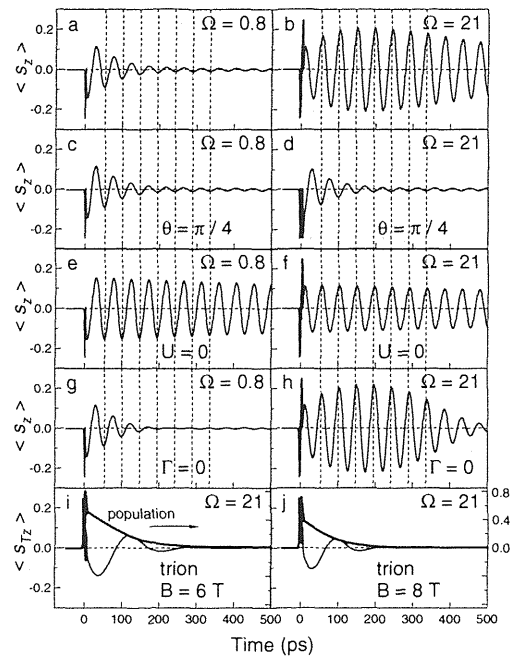


図3：4準位系の密度行列を用いたモデルによる電子スピンの期待値 $\langle s_z \rangle$ の時間発展の計算結果( $\Omega$ は励起光強度を表すパラメタ)

## (2) ZnO中の電子スピンの長時間コヒーレンス

(富本慎一, 村上瑛, 舛本泰章, 加藤裕幸<sup>A</sup>, 佐野道宏<sup>A</sup>, 松本貴裕<sup>A</sup> <sup>A</sup>スタンレー電気)

半導体中の中性ドナー原子( $D^0$ )に束縛された電子のスピンは、量子ドット中の電子と同程度の長いスピニコヒーレンス時間( $T_2^*$ )を持つ。また、ドナー束縛励起子( $D^0X$ )状態と $D^0$ との間の遷移( $D^0X$ - $D^0$ 間遷移)は均一な周波数を持つため、空間的に遠く離れた場所にある別個の電子のスピンの状態間の量子もつれ(エンタングルメント)を、光子を介して生成出来ると期待される。ウルツ鉱型結晶構造をもつZnOでは、結晶場とスピ軌道相互作用の影響で価電子帯が $\Gamma$ 点においても3つに分裂しており、 $D^0X$ の内部状態が比較的単純であるという特長がある。本研究では、ドナー原子としてGaを含むZnOで時間分解カー回転(TRKR)測定を行い、 $D^0$ の $T_2^*$ を調べた。

図4に、温度 $T=1.8$  K、磁場 $B=0.5$  T (フォークト配置)で測定したTRKRの時間変化を示す。試料は、サファイアのa面基板上にMBE法で成長したZnOの薄膜(厚さ $1.4 \mu\text{m}$ )であり、 $7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ の濃度でGaを含んでいる。ポンプ・プローブ光の波長(370 nm)は $D^0X$ - $D^0$ 間遷移に共鳴している。負の遅延時間においても振動が観測されており、レーザーパルスの繰り返し間隔(12.2 ns)と同じ程度の長いコヒーレンス時間を持つことが分

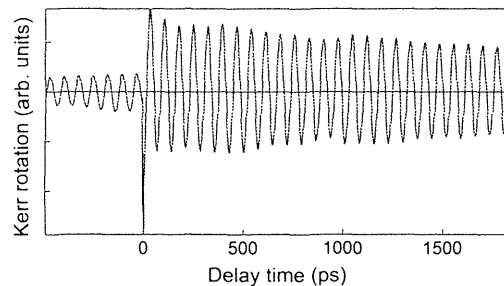


図4：GaをドーブしたZnO薄膜におけるTRKRの測定結果

かる。 $T_2^*$ を正確に求めるために、共鳴スピン増幅 (RSA) 測定を行った (図5)。これは、遅延時間を $-250$  psに固定して、TRKRを磁場の関数として測定する実験である。実験結果 (点) の $B=0$  T近傍に現れているピークに理論式をフィッティング (実線) することで、 $T_2^*$ は $12$  nsと求められた。ドナー原子に束縛されている電子のスピンは、その付近の結晶格子中のイオンがもつ核スピンと相互作用しており、それがスピン緩和の原因である。核スピンが電子に及ぼす影響を、有効磁場の大きさとして定量的に評価するために、TRKRの磁場依存性の測定をファラデー配置でも行った (図6)。実験結果は $B=0$  T付近にディップを示す。この幅から有効磁場の大きさは $1.3$  mTと求まった。

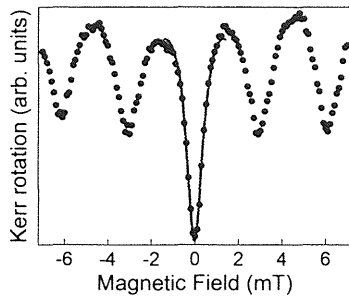


図5 : RSA の測定結果

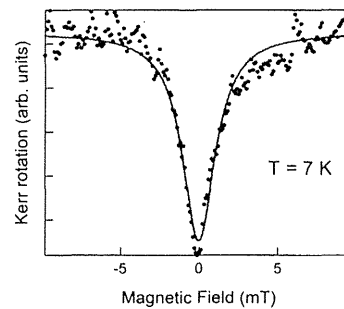


図6 : ファラデー配置での測定結果

## 【2】 量子ドットの分光研究 (池沢道男, 舛本泰章)

### (1) エネルギーの揃った GaAs:N 等電子トラップからの単一光子発生

(池沢道男, 張遼, 佐久間芳樹<sup>A</sup>, 舛本泰章<sup>A</sup>物質・材料研究機構) [論文 4, 9]

GaAs 中の窒素等電子発光中心は、良く知られた GaP 中の NN ペアなどと比べて明るさでは優れているものの、エネルギーが揃わないという問題があった。これを改善するために、昨年度、有機金属気相成長法 (MOCVD) で N ドーピングのガス導入シーケンスなど、成長条件に検討を加え、 $NN_A$  と呼ばれる特定の発光中心を再現性良く得られるようになった。この発光中心を利用して、エネルギーの揃った単一光子を得ることを試みた。

試料成長は減圧 MOCVD 法で  $550^\circ\text{C}$ にて行った。基板には半絶縁性 GaAs(001)を使い、GaAs の原料ガスは TEGa と  $\text{AsH}_3$ を用いた。N 原料にはジメチルヒドラジン (DMHy) を使った。200 nm の GaAs バッファ層を成長後、表面に 1 原子層相当の TEGa を供給して Ga 終端面を形成し、引き続き DMHy を 2s 供給、さらに 100 nm の GaAs キャップ層を積層した。 $\delta$  ドープした N の面密度  $[N]_{2D}$  は  $1.8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  である。サンプル面内での  $NN_A$  発光中心の分布と、その発光中心の発光スペクトル (温度 5K) を図 7(a)(b)にそれぞれ示す。個々の  $NN_A$  は空間には十分離れて存在しており、また、その発光エネルギーの不均一性は  $100 \mu\text{eV}$  以下と、極めてよく揃っていることがわかる。発光は二つの直線偏光成分から成るが、すべての  $NN_A$  について低エネルギー側のピークが  $[110]$  方向となっており、偏光の方向も良く揃っている。この点は、GaP に N をドープしたときに形成される NN ペアとは異なっているようである。 $NN_A$  発光中心を一つ選び、その発光の強度相関測定を行

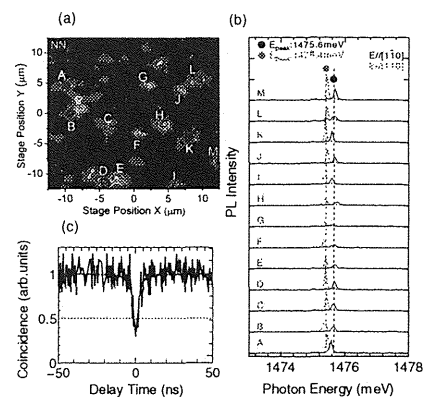


図7: (a)  $\delta$ ドープ GaAs:N 試料内の  $NN_A$  発光中心の分布。 (b) 各々の  $NN_A$  の PL スペクトル。 (c) 一つの  $NN_A$  について得られたアンチバンチング信号。

った結果が図 7(c)である。明瞭なアンチバンチングが観測され、GaAs からエネルギーの揃った単一光子を初めて得ることができた。

### (2) GaAs:N 等電子トラップに束縛された励起子の均一幅 (準共鳴励起)

(張遼, 池沢道男, 佐久間芳樹<sup>A</sup>, 舛本泰章<sup>A</sup> 物質・材料研究機構) [論文 10]

等電子トラップに束縛された励起子のコヒーレンス時間  $T_2$  が発光寿命  $T_1$  の 2 倍で与えられる上限値に達する事は、2 光子の干渉性を利用する多くの応用にとって重要である。我々は、単一発光中心の発光線幅を干渉計を利用して高精度に求めることによって、束縛された励起子の均一幅 ( $h/\pi T_2$ ) を調べている。

昨年度の研究で、GaAs:N 中の等電子トラップに束縛された励起子の均一幅は、低温で、高品質の量子ドットと同程度に長いことが分ったが、2K 以下の低温でも寿命広がりまでは達していなかった。その原因として、非共鳴なバンド間励起を行っていることにより、発光中心周りのトラップサイトに電荷が捕獲・解放されることによる発光中心位置での電場の揺らぎによるスペクトル拡散が起こっているためと考えられた。それを調べるため、より共鳴に近い条件でフーリエ分光測定を行った。試料は MOCVD 法により一原子層の窒素をデルタドープした GaAs ( $[N]_{2D} = 2.9 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$ ) である。温度 5K で単一不純物発光中心に対して励起スペクトル (PLE) を測定した。図 8(a) の様に GaAs のバンドギャップ内に鋭い吸収ピーク (約 1508.8 meV) が現れ、この吸収ピークで励起すると、図 8(b) の様に 1878meV の非共鳴励起の時と比べて発光スペクトルがかなり単純になり、この単一発光中心だけが選択的に励起されていることが分かった。しかし、予想に反して、この温度ではフーリエ分光測定で二つの励起方法で位相緩和時間に図 8(c) の様に大きな違いがなかった。原因としては、準共鳴励起のエネルギーが十分に低くなく、連続的な吸収バンドの裾を励起してしまっているために、スペクトル拡散が十分抑えられていない可能性や、測定温度が十分低くなかったために、フォノンの影響の方が大きい可能性などが考えられる。

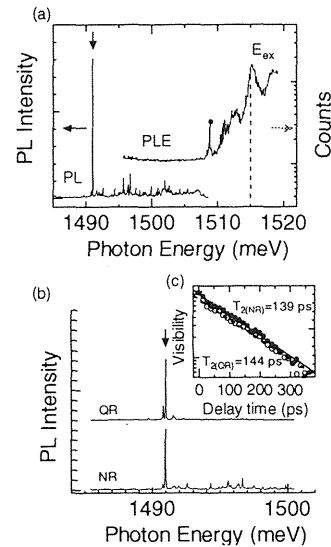


図 8: (a) ある単一発光中心の発光スペクトルと励起スペクトル。(b) 非共鳴励起と準共鳴励起の発光スペクトル比較。下(NR)は 1878meV の非共鳴励起の PL で、上(QR)は 1508.8meV での準共鳴励起の PL である。(c) 非共鳴励起と準共鳴励起のフーリエ分光の結果。

### (3) 単一等電子トラップの共鳴励起による単一光子の発生

(池沢道男, 佐久間芳樹<sup>A</sup>, 舛本泰章<sup>A</sup> 物質・材料研究機構)

単一の二準位系を、狭い線幅を持つレーザー光で共鳴的に励起したときに、レーザー光と同程度の高いコヒーレンスを持つ単一光子が得られる事が知られている。励起条件によっては寿命広がりの幅よりも狭くなりうるため、物質の性質に縛られない、超コヒーレントな単一光子の発生法として興味深い。我々は、GaAs 中の単一の窒素等電子不純物について、狭線幅レーザーによる共鳴励起を行った。

試料は、窒素デルタドーパ GaAs 薄膜で、励起光源には、リング型共振器の cw チタンサファイアレーザー（線幅 約 5MHz）を用いた。励起光の不要な散乱光が検出系に入り込まないように、励起光は試料の側面から入射させ、試料表面で全反射させるようにした。試料からの共鳴蛍光は、共焦点光学系とピンホールを用いて単一の発光中心からの信号を空間的に選択した。

図 9(a)は低分解能の分光器を用いて測定された、温度 5K における典型的な単一発光中心の共鳴蛍光のスペクトル（実線）と、共鳴蛍光強度の励起スペクトル（黒丸、白丸）である。発光は 330 $\mu$ eV 程度分裂した直交する二つの偏光成分からなり、それぞれで幅 30 $\mu$ eV 程度の鋭い共鳴構造が確認された。共鳴の幅は均一幅を反映しており、温度とともに増大することも確認されている（図 9(b)）。また、その幅は発光のフーリエ分光によって求めた均一幅と同程度である。このような共鳴条件下で、光子の強度相関を測定したところ、明らかなアンチバンチングが観測され、単一の発光中心の共鳴励起による単一光子発生が初めて観測された。線幅が実際に自然幅よりも狭くなっているかどうかは、今後フーリエ分光法などにより研究する必要がある。

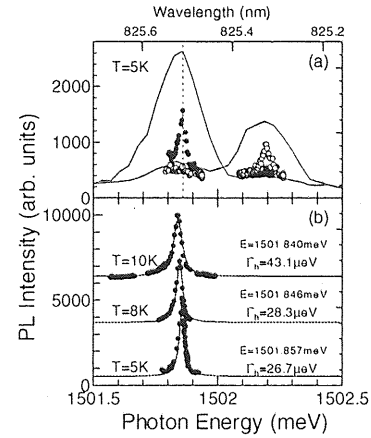


図9: (a)実線は5Kでの共鳴励起下での単一発光中心の発光スペクトル。励起エネルギーは縦点線で示す。直交する2つの偏光成分が見られる。黒丸と白丸はそれぞれのピークで検出したときの検出偏光の異なるPLEスペクトル。(b)低エネルギー側の共鳴構造の温度依存性。温度上昇とともに幅が広がり、低エネルギーシフトする。

### 【3】新しい半導体ナノ構造（舛本泰章）

#### (1) 量子ドットから透明ナノ粒子への電子移動

(舛本泰章, 高木勇人, 鈴木孝行, 海野晃, 孫建輝) [論文1, 7, 8]

シリコン太陽電池に比べて安価な色素増感太陽電池は、研究室レベルで現在 12% の効率で発電が可能であるが、この高効率の鍵になっているのは、Grätzelにより導入された色素から圧倒的大面積の界面を持つ伝導性ポーラス透明ナノ粒子への高速電子移動である。量子ドットでは、高いエネルギーを持つ一光子から多励起子を生成する事により、劇的に量子収率の向上が期待されているが、色素増感太陽電池の色素を量子ドットに置換した量子ドット増感太陽電池で光を励起子に変換した量子ドットから電子を取り出す際のポイントとなるのが、量子ドットから量子ドットが吸着する導電性ポーラス透明ナノ粒子への高速電子移動である。本研究では、赤外域からの光吸収や紫外域からの多励起子生成が可能な PbS や PbSe 量子ドットからポーラス TiO<sub>2</sub> への電子移動をサイズを変えた量子ドットを用いてポンププローブ・フェムト秒過渡吸収分光法、発光のフェムト秒アップコンバージョン分光法、

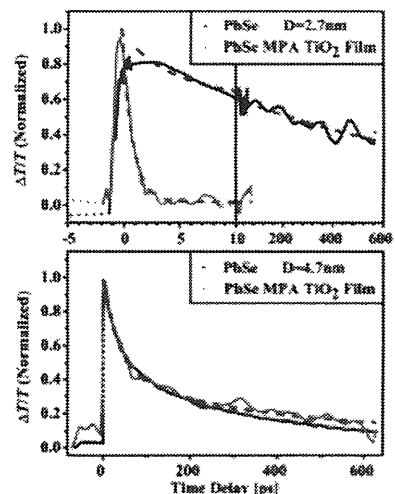


図 10: PbSe 量子ドットからポーラス TiO<sub>2</sub> への高速電子移動に伴う減衰が直径 2.7nm のドットでは見られるが 4.7nm のドットでは見られない。

発光のナノ秒時間相関単一光子計数法を動員して研究し、図10に示す様にアナターゼ型ポーラス TiO<sub>2</sub> フィルムの伝導帯エネルギーを超える量子化 LUMO 準位を持つ 2.7nm の直径の PbSe 量子ドットでは、電子移動が 1ps の短時間で起き、TiO<sub>2</sub> に吸着しない PbSe 量子ドット中の電子寿命に比べて 10<sup>6</sup> 倍短く、高効率期待できることを明らかにした [論文1, 8]。

次に、バンドギャップの高い ZnS をシェルにし CuInS<sub>2</sub> をコアとする量子ドットからポーラス TiO<sub>2</sub> への電子移動を量子ドット発光のナノ秒時間相関単一光子計数により研究した。シェルを付けない場合、直径が 2.5nm から 4.0nm にわたる CuInS<sub>2</sub> 量子ドットでは、電子の量子化 LUMO 準位はポーラス TiO<sub>2</sub> の LUMO 準位より高く CuInS<sub>2</sub> 量子ドットからリンクしたポーラス TiO<sub>2</sub> へおこる電子移動を反映して CuInS<sub>2</sub> 量子ドットの発光寿命がポーラス TiO<sub>2</sub> に分子リンカーを用いてリンクすると大幅に短くなった。電子移動の速度は 4.5-6.0 × 10<sup>7</sup> s<sup>-1</sup>、効率は 83%-69% である。シェルでコアをカバーすることで、非輻射過程が抑制され発光効率が増加しシェルの厚さが増加するにつれ CuInS<sub>2</sub> コアからポーラス TiO<sub>2</sub> への電子移動速度が遅くなるのが観測された。図11に示すように、電子移動の速度がシェル厚に依存して指数関数的に減少することから電子がシェルをトンネル過程で透過している事が明らかになった [論文7]。

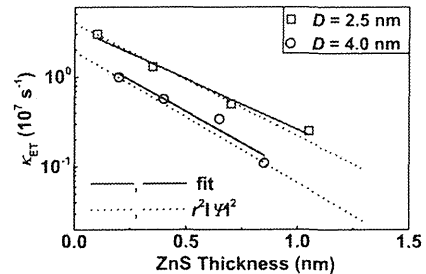


図 11: CuInS<sub>2</sub>/ ZnS 量子ドットからポーラス TiO<sub>2</sub> への電子移動速度を 2 種類のコア直径 (D) に対してシェル厚の関数としてプロット。シェル厚 (d) の関数として exp(-βd) で実験データは良く表され、電子がシェルをトンネル過程で透過している事を示している。コア直径 (D) が 2.5nm から 4.0nm に増加すると β は 1.1nm<sup>-1</sup> から 1.4nm<sup>-1</sup> に増加するのはシェル表面での電子波動関数の染み出し分の増加として説明できる。

#### 【4】半導体ナノメートル構造の光物性 (野村晋太郎)

##### (1) 希釈冷凍機温度近接場光学顕微鏡を用いた量子ホール端状態空間分解測定 (伊藤、柴田、野村)

前年度までに私達のグループでは、希釈冷凍機中の近接場光学顕微鏡を用いた局所光励起により局所的に任意の場所に電子を注入すること、共鳴励起により選択的に準位を励起することが可能であることを示した。この手法により量子ホール端状態の空間分布を得ることに成功した。本年度は、局所光励起により局所的にスピン注入するために、スピン偏極した光照射手法の開発を実施した。局所的に光照射をするために、光近接場プローブには光ファイバーをエッチングにより先端を先鋭化し、金属蒸着をした上で開口部をもうけたものを用いた。高い光透過率を有する 2 段テーパ型の光近接場プローブを作製した。特に、本研究目的のために素材の改良を進め、さらに集束イオンビーム (FIB) 加工により真円度の高い開口部を作製して偏光の乱れを極小に留めるようにした。一般に通常のシングルモード光ファイバー中の伝搬光ではファイバーの曲げ等による屈折率の異方性が生じる。また、前述の改良にも関わらず近接場光プローブ先端部の形状の軸対称からのずれによる異方性が残る。これらの異方性は吸収が小さい場合には補正することが可能である。そこで、私達は Berek 補償子を挿入し、屈折率の異方性を補正した。その際、光ファイバーの曲げ等が変化しないように経路を固定した。まず、室温において出射光が直線偏光、円偏光となり条件を探索した。次に、スピン偏極している電子占有数奇数近傍において、量子ホール端状態への光照射から円偏光となる条件を探索してスピン注入を行い、初期的なデータを取得した。本研究は低温物性グループの大塚教授、産業技術総合研究所柏谷聡氏、NTT 物性科学基礎研究所赤崎グループとの共同研究である。

(2) 量子井戸中荷電励起子と二次元電子系のクロスオーバーに関する研究 (野村) [論文 11]

二次元電子系において、乱雑静電ポテンシャルが支配する低電子密度での局在状態が電子密度の増加に伴って二次元電子ガス状態へと変化することと、光励起下の二次元電子+正孔系において、低電子密度領域で存在する荷電励起子状態が電子密度増加に伴って二次元電子ガス正孔状態へとクロスオーバーすることの対応関係は、両者の生じる電子密度が重なり合っているためこれまで不明瞭であった。本研究では、極低温において電子密度と電場をパラメータとした発光スペクトルを測定し、電子密度の増加に伴う二次元電子系の遮蔽長の減少と、荷電励起子中の電子-正孔間のクーロン引力の遮蔽に伴う荷電励起子半径増大との対応関係を明らかにし、遮蔽長が荷電励起子半径とほぼ一致する電子密度を境にして荷電励起子状態と二次元電子ガス正孔状態がクロスオーバーすることを見出した。

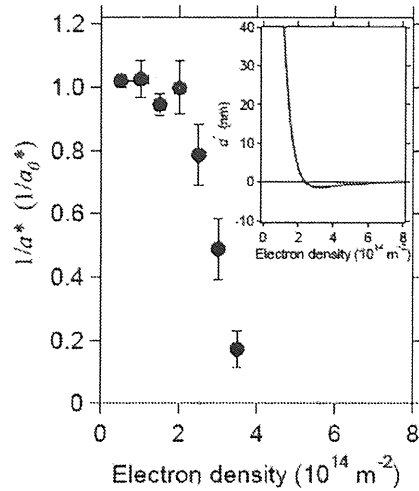


図 12: 荷電励起子半径の逆数の電子密度依存性. 挿入図: スクリーニング長の電子密度依存性.

図 12 に示すように、電場下における発光線幅の変化から荷電励起子有効半径  $a^*$  の電子密度依存性を求めた。スクリーニング長は非線形遮蔽モデルにより見積もられる。 $a^*$  はスクリーニング長が減少する電子密度  $2 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$  を超えたところで急激に増大することを見いだした。これは二次元電子ガスの遮蔽によって荷電励起子が二次元電子ガス - 正孔状態へとクロスオーバーしていることを示している。

本研究は NTT 物性科学基礎研究所赤崎達志氏のグループとの共同研究である。

(3) 半導体二次元電子系の分数荷電準励起子状態の観測 (野村)

分数量子ホール状態では、分数電荷の準電子、準正孔、スピン反転した準電子からなる励起状態があることが知られている。光励起下において、これらの準粒子と価電子帯の正孔とが結合した分数荷電準励起子の存在が議論されているが今まで明確なデータは示されていなかった。分数量子ホール領域の分光学的研究は従来 10 T 以上の強磁場で行われ、基底状態は完全スピン偏極状態とされていた。私達は、散乱の要因となるドナー層がなくゲート電圧によって高移動度、極低電子密度の二次元電子系を誘起可能な試料を用いて、極低温において電子占有数  $1/3$  近傍の発光スペクトルを 6 T 以下の比較的小さい磁場において円偏光分解してスピン状態を含めた発光分光の研究を行った。その結果、 $\nu = 1/3$  近傍の  $\sigma^-$  円偏光発光に、明確に分離された 4-5 つの発光ピークを初めて観測した。その内の一つは準電子励起の存在する  $\nu \geq 1/3$  においてのみ観測され、 $\nu < 1/3$  には見られなかった。この発光ピークは  $T \geq 700 \text{ mK}$  の高温で消失した。これらの結果は、球面上のスピン自由度を含む電子と正孔の有限系での厳密対角化に基づく数値計算結果と比較された。その結果、 $\nu = 1/3$  近傍で電子系のスピン偏極度が低下すること、電荷  $e/3$  の準電子の関わる発光が  $\nu > 1/3$  で見られることが初めて示された。私たちの設定した条件では、従来の観測例と比較して磁場が低いいため、光励起下での基底状態の全スピンが低下した状態をとりやすいことが、従来、報告されていない分数荷電準励起子状態の観測につながったと考えられる。

本研究は NTT 物性科学基礎研究所赤崎達志氏のグループ、東北大学教授平山祥郎氏、NRC Canada, Pawel Hawrylak 氏のグループとの共同研究である。

(4) <電子-電子間、電子-正孔間相関効果制御によるスピン分裂の解明> (野村) [論文 12]

二次元電子系では有効  $g$  因子が電子間相互作用により変化することが知られている。磁場 ( $B$ ) 中ではランダウ準位電子占有率  $\nu$  に応じて、上向きスピンと下向きスピンの電子数の差が  $\nu$  奇数において極大になり、有効  $g$  因子が極大となる。これまでの研究では数 T から 20 T 程度の強磁場において行われてきた。私達は、低電子密度において移動度の高い試料を用いて、従来研究例の皆無であった 1 T 以下の低磁場にて発光スペクトルから  $3 \leq \nu \leq 10$  の範囲で有効  $g$  因子の  $\nu$  依存性を測定した。図 13(a) に示すように得られた有効  $g$  因子は、 $\nu$  偶数で極小、 $\nu$  奇数で極大となる振動を示した。この測定結果と図 13(b) に示す自己無撞着ボルン近似の範囲で不純物散乱の影響を取り入れて電子の自己エネルギーを計算した理論との比較を行った。その結果、 $\nu=5, 7$  において観測された有効  $g$  因子の電子密度依存性は理論で良く説明され、電子間交換相互作用による増大が観測されたと結論付けられた。 $\nu=3$  において理論との乖離が見られ、そこでは電子間交換相互作用による有効  $g$  因子の増大が電子-正孔間相関効果すなわち励起子効果により部分的に打ち消されていることがわかった。また、電子密度の低下に伴う  $\nu$  偶数における有効  $g$  因子の大きさの増大は観測されなかった。

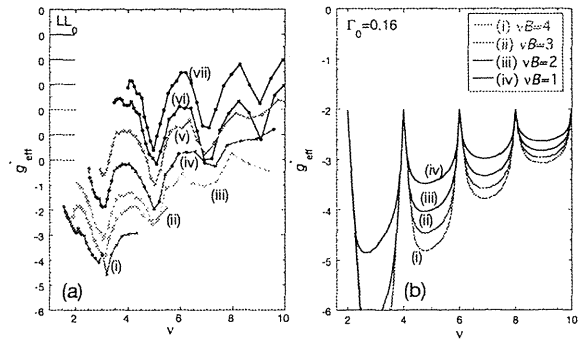


図 13: (a) 電子密度  $n_s =$  (i)  $2.9 \times 10^{10}$ , (ii)  $4.0 \times 10^{10}$ , (iii)  $5.0 \times 10^{10}$ , (iv)  $6.0 \times 10^{10}$ , (v)  $7.1 \times 10^{10}$ , (vi)  $8.6 \times 10^{10}$ , および (vii)  $1.0 \times 10^{11}$   $\text{cm}^{-2}$  における観測された電子占有数  $\nu$  に依存した有効  $g$  因子  $g_{eff}^*$ . (b)  $\nu B =$  (i) 4, (ii) 3, (iii) 2 および, (iv) 1,  $\Gamma_0 = 0.16$  の場合における計算で求められた有効  $g$  因子。

本研究は NTT 物性科学基礎研究所赤崎達志氏のグループ、東北大学教授平山祥郎氏との共同研究である。

(5) 非対称二重量子井戸の発光分光 (野村)

磁場中の二次元電子+正孔系の発光では電子間相互作用と電子-正孔間相互作用に依存した興味深い現象が観測されている。電子占有数  $\nu$  を連続的に変化させた場合に  $\nu=1$  において発光エネルギーの跳びが生じることが知られている。この跳びの大きさはランダウ準位を占有する電子間クーロン相互作用と電子-価電子帯正孔間クーロン相互作用の差によって決まることが示されている。本研究では図 14 に示すような GaAs/Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As 非対称二重量子井戸を用いて、温度  $T=0.3$  K、磁場 0-8 T の範囲で、電子-正孔間距離  $d$  と電子密度を表面ゲート ( $V_F$ ) と裏面ゲート ( $V_B$ ) とで制御し、 $\nu=1$  近傍の発光を観測した。共通の電子系に対して、 $d$  の大きい井戸間遷移と  $d$  の小さい井戸内遷移の発光を同時に観測することに成功した。その結果  $\nu=1$  において発光エネルギー

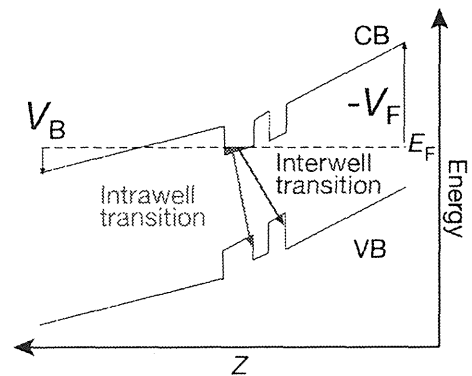


図 14: ゲート付き非対称二重量子井戸のポテンシャルと光遷移の概略図。



ギーの跳びが井戸間遷移と井戸内遷移とで異なることが示された。観測された発光エネルギーの跳びの大きさより井戸内遷移、井戸間遷移それぞれの場合について電子と正孔の層間距離が見積もられた。この手法により電子間相互作用と電子-正孔間相互作用を分離して議論することが可能となった。

本研究は NTT 物性科学基礎研究所赤崎達志氏のグループとの共同研究である。

#### (6) 半導体中スピン観測のためのナノ SQUID の開発 (柴田、野村) [論文 13]

少数電子スピンの直接的な観測のために、走査型ナノ SQUID プローブの研究を行った。ナノスケールでの局所磁気観察用プローブとして、SQUID と測定対象との直接的な磁気カップリングさせる方式に基づき、マッピング可能な走査型 SQUID プローブを開発した。空間分解能の向上のためには、測定対象と SQUID プローブ間の距離を最小化する必要がある。そのため、プローブ先端の直近に高精度に SQUID を作製する必要がある。そこで、走査型 SQUID プローブは、リソグラフィーによって形状を定め、シリコンの深堀ドライエッチングにより作製した。SF<sub>6</sub>によるシリコンのエッチングと、C<sub>4</sub>F<sub>6</sub>によるエッチング面への保護膜の堆積を交互に行い、高いアスペクト比を持った深堀加工が可能となった。図 15 にこのボッシュプロセスにて作製された SQUID プローブの端面の走査型顕微鏡写真と水晶振動子上にマウントされた SQUID プローブの光学顕微鏡写真を示す。この結果、再現性良く多数の走査型 SQUID プローブを一度のプロセスで作製することに成功した。

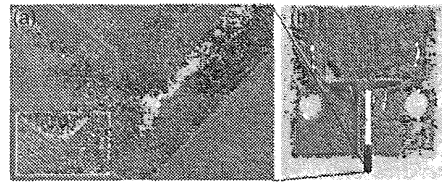


図 15: (a) ボッシュプロセスにて作製された SQUID プローブの端面の走査型顕微鏡写真と (b) 水晶振動子上にマウントされた SQUID プローブの光学顕微鏡写真。

SQUID ループは FIB による直接加工によって作製した。FIB 加工は、ナノオーダーの加工が可能であるという長所がある反面、イオン照射により超伝導膜の損傷により超伝導転移温度の増大が生じる。そこで、Nb 薄膜上に Au 保護薄膜を形成した上で、Ar イオンビーム照射による直接加工にて SQUID ループの作製を行った。Au 保護膜の膜厚の最適化により、FIB 照射による損傷を最小に留めつつ微小ループサイズの SQUID の作製に成功した。以上のように作製された走査型 SQUID プローブの臨界電流 ( $I_c$ )-磁場 ( $B$ ) の特性を図 16 に示す。このように良好な SQUID の  $I_c$  の磁場に対する振動が得られた。

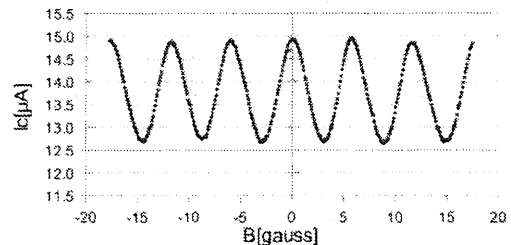


図 16: FIBにより作製された走査型 SQUID プローブの  $I_c$ - $B$  特性。

本研究は産業技術総合研究所柏谷聡氏のグループ、東京理科大学教授高柳英明氏のグループとの共同研究である。

### (7) Si ナノレイヤ・ナノワイヤの発光分光 (櫻井、野村)

光強励起された半導体において、再結合時間が十分長い場合は光生成キャリアが熱力学的平衡状態に達して格子温度まで冷却し、電子-正孔系の量子凝縮が起こる。高温において、励起子ガスの密度が高くなり Mott 転移の密度を超えると、電子と正孔が個々に運動して金属的な状態となる電子-正孔プラズマ状態が安定となる。低温において、励起子ガスから液体と気体の共存相である電子正孔液滴相 (EHD) を経て電子-正孔液体相 (EHL) となると考えられている。これまで、バルク半導体においてこのような量子凝縮は調べられてきた。Si-ナノレイヤやナノワイヤにおいて、閉じ込め効果によって静電遮蔽効果の低減と電子-正孔間のクーロン力の増大が見込まれる一方、バルクで6重に縮退している谷縮退が解けるため、量子凝縮状態の相図がどのようになるか自明ではない。閉じ込め構造では量子状態を擾乱すると不規則性が不可避であるため、十分に高品質の試料が欠かせないが、本研究では、実デバイス品質の試料を得て、閉じ込め系における量子凝縮状態の研究を実施した。

電子正孔液相からの発光スペクトル形状は、キャリア温度、閉じ込め状態の状態密度、キャリアの化学ポテンシャルを反映する。発光スペクトルの解析からこれらの値を求めることが可能である。図 17 に試料の格子温度 6 K における厚さ 25.2 nm の Si ナノレイヤ試料からの規格化発光強度、低エネルギーバンドピークと励起子ピークとの強度比の光励起密度依存性を示す。光励起密度の増大に伴い低エネルギーバンドピークの相対強度が、50 nm 以上の Si ナノレイヤと比較して顕著に増大することがわかった。格子温度 6 K、厚さ 25.2 nm の試料では、キャリア温度とキャリア密度との関係から、低エネルギーバンドは電子正孔液相であることが示された。以上により、厚さ 25.2 nm のナノレイヤ試料において電子正孔液相への転移が促進されていることを示された。

本研究は白石賢二教授、山田啓作教授、大毛利健治准教授、東京工業大学教授岩井洋氏、准教授角嶋邦之氏、との共同研究である。

### (8) 通信用半導体光変調器の動作限界 (秋山、野村) [論文 14, 15]

インターネットのトラフィック増大を支えるためには、システム全体の規模を維持した上で、光通信システムの伝送容量増大が不可欠であり、伝送路の末端で電気/光信号変換を担う光変調器に対してより高速/高効率な動作が求められる。しかしながら光変調器において高速動作と高効率動作は相反する要求である。そのため従来の光変調器構造におけるパラメータの最適化では一方の特性を犠牲にすることなく他方の特性を改善することに限界があった。図 18 に示すような多段に接続したリング共振器をマッハツェンダ干渉計に組み込んだ構造の新しいリング共振器型変調器では、共振

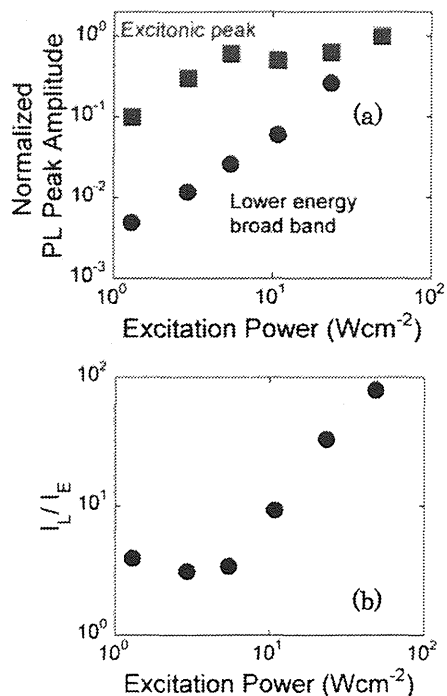


図 17: 厚さ 25.2 nm の Si ナノレイヤ試料からの (a) 規格化発光強度、(b) 低エネルギーバンドピークと励起子ピークとの強度比の光励起密度依存性。

器のQ値とリング共振器の段数  $N$  と二つのパラメータを用いることができ、設計の自由度が大きくなった。この新しいリング共振器型変調器の動的応答特性の解析計算と数値シミュレーションにより図19に示すように25 GHz以上の高速動作において従来の素子構造と比べて高効率であることを示された。従来の素子構造の光変調器の特性限界を超えた高速動作/高効率動作が可能であることが示された。

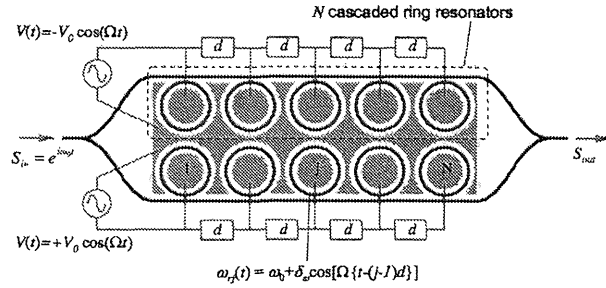


図18: 多段に接続したリング共振器をマッハツェンダ干渉計に組み込んだ構造の新しい光変調器の概略図。  $d$  は隣あったリング共振器間の電気信号の時間遅延を表す。

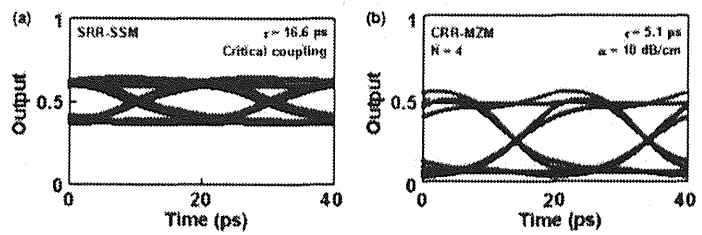


図19: (a) 単一リング共振器型変調器 (SRR-SSM)、(b) 多段リング共振器型変調器 (CRR-MZM) の50 Gb/s 擬似ランダムビットシーケンスにおけるアイダイアグラムの計算結果。

<論文>

1. Y. Masumoto, H. Takagi, H. Umino, E. Suzumura: "Fast electron transfer from PbSe quantum dots to TiO<sub>2</sub>", *Appl. Phys. Lett.* 100, 252106 (2012).
2. X. Yuan, J. Zhao, P. Jing, W. Zhang, H. Li, L. Zhang, X. Zhong, Y. Masumoto: "Size- and Composition-Dependent Energy Transfer from Charge Transporting Materials to ZnCuInS Quantum Dots", *J. Phys. Chem. C* 116, 11973 (2012).
3. S. Tomimoto, K. Kawana, A. Murakami, Y. Masumoto: "Influence of optical coherence on the electron spin in singly-charged InP quantum dots excited by resonant laser pulses", *Phys. Rev. B* 85, 235320 (2012).
4. M. Ikezawa, Y. Sakuma, L. Zhang, Y. Sone, T. Mori, T. Hamano, M. Watanabe, K. Sakoda, Y. Masumoto: "Single-photon generation from a nitrogen impurity center in GaAs", *Appl. Phys. Lett.* 100, 042106 (2012).
5. Y. Masumoto, K. Goto, S. Tomimoto, P. Mohan, J. Motohisa, T. Fukui: "Bimolecular interlayer scattering of electrons in InP/InAs/InP core-multishell nanowires", *J. Lumin.* 133, 135 (2013).
6. S. Tomimoto, K. Kawana, A. Murakami, Y. Masumoto: "Coherence of an electron spin in quantum dots generated by a resonant optical pulse with elliptic polarization", *J. Lumin.* 133, 162 (2013).
7. J. Sun, J. Zhao, Y. Masumoto: "Shell-thickness-dependent photoinduced electron transfer from CuInS<sub>2</sub>/ZnS quantum dots to TiO<sub>2</sub> films", *Appl. Phys. Lett.* 102, 053119 (2013).
8. Y. Masumoto, H. Takagi, H. Umino, E. Suzumura: "Fast Electron Transfer from PbSe Quantum Dots to TiO<sub>2</sub>", 31th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012) Proceeding (to be published).
9. M. Ikezawa, L. Zhang, Y. Sakuma, T. Mori, K. Sakoda, Y. Masumoto: "Fourier Spectroscopy of Individual Nitrogen Impurity Centers in GaAs", 31th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012) Proceeding (to be published).
10. L. Zhang, M. Ikezawa, T. Mori, S. Umehara, Y. Sakuma, K. Sakoda, Y. Masumoto: "Single photon generation from an impurity center with well-defined emission energy in GaAs", *Jpn. J. Appl. Phys.* (to be published).
11. M. Yamaguchi, S. Nomura, H. Tamura, and T. Akazaki: "Measurement of photoluminescence spectral linewidth of a GaAs quantum well in perpendicular electric fields: Evidence of a crossover from trions to an electron-hole gas", *Phys. Rev. B* 87, 081310 (2013).
12. S. Nomura, H. Tamura, M. Yamaguchi, and T. Akazaki, and Y. Hirayama, "Exchange energy enhanced g-factors obtained from Landau fan diagrams at low magnetic fields", *Phys. Rev. B* 87, 085318 (2013).
13. Yusuke Shibata, Ryosuke Ishiguro, Hiromi Kashiwaya, Satoshi Kashiwaya, Hideaki Takayanagi, and Shintaro Nomura: "Development of scanning nano-SQUIDs for local magnetic imaging", *Technical Digest for Asia-Pacific Workshop on Fundamentals and Applications of Advanced Semiconductor Devices 2012*, 255 (2012).
14. S. Akiyama, T. Kurahashi, K. Morito, T. Yamamoto, T. Usuki, and S. Nomura, "Cascaded-ring-resonator-loaded Mach-Zehnder modulator for enhanced modulation efficiency in wide optical bandwidth", *Optics Express* 20, 16321 (2012).
15. S. Akiyama and S. Nomura: "Dynamic response of modulators based on cascaded-ring-resonator", *Optics Express* 20, 21847 (2012).

<学位論文>

数理工学物質科学研究科ナノサイエンス・ナノテクノロジー専攻博士論文 (2013年3月)

1. 秋山 傑: 「通信用半導体光変調器の高速/高効率動作に関する研究」

数理解物質科学研究科物質創成先端科学専攻修士論文 (2013年3月)

1. 森達哉 : 「GaAs:N 中の単一不純物中心の共鳴蛍光」
2. 村上瑛 : 「時間分解カー回転測定法による半導体中の電子のスピンコヒーレンスの研究」

<国際会議>

1. S. Mamyoda, H. Ito, Y. Shibata, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka and S. Nomura: "High resolution spatial mapping of quantum Hall edge states by a near-field scanning optical microscope", The Eighth International Nanotechnology Conference on Communication and Cooperation, (Tsukuba Congress Center, Tsukuba, 2012.5).
2. Yusuke Shibata, Ryosuke Ishiguro, Hiromi Kashiwaya, Satoshi Kashiwaya, Hideaki Takayanagi, and Shintaro Nomura: "Development of scanning nano-SQUIDs for local magnetic imaging", Asia-Pacific Workshop on Fundamentals and Applications of Advanced Semiconductor Devices 2012 (AWAD2012), (Okinawa Seinen-kaikan, Naha, 2012.6).
3. Y. Masumoto, H. Takagi, H. Umino, E. Suzumura: "Fast Electron Transfer from PbSe Quantum Dots to TiO<sub>2</sub>", 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012) (ETH, Zurich, 2012.8).
4. M. Ikezawa, L. Zhang, Y. Sakuma, T. Mori, K. Sakoda, Y. Masumoto: "Fourier Spectroscopy of Individual Nitrogen Impurity Centers in GaAs", 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012) (ETH, Zurich, 2012.8).
5. S. Nomura, M. Yamaguchi, H. Tamura, T. Akazaki, Y. Hirayama, M. Korkusinski, and P. Hawrylak: "Fine structures in photoluminescence in the fractional quantum Hall regime in low magnetic field", 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012), (ETH, Zurich, 2012.8).
6. H. Ito, Y. Shibata, S. Mamyoda, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka, and S. Nomura: "Imaging of quantum Hall edge states under quasiresonant excitation by a near-field scanning optical microscope", 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012), (ETH, Zurich, 2012.8).
7. Y. Sakurai, T. Tayagaki, K. Ohmori, K. Yamada, Y. Kanemitsu, K. Shiraishi, S. Nomura: "Fast luminescence decay of electron-hole quasi-two dimensional systems in Si nanolayer" 31st International Conference on the Physics of Semiconductors, (ICPS2012), (ETH, Zurich, 2012.8)
8. M. Yamaguchi, S. Nomura, H. Tamura, T. Akazaki: "Narrowing of photoluminescence linewidth in the non-linear screening regime", 31st International Conference on the Physics of Semiconductors, (ICPS2012), (ETH, Zurich, 2012.8).
9. K. Ohtaki, K. Ohmori, and S. Nomura: "Time resolved measurements of ultrafast transport pulses using photoconductive switches", 31st International Conference on the Physics of Semiconductors, (ICPS2012), (ETH, Zurich, 2012.8).
10. M. Ikezawa, L. Zhang, Y. Sone, T. Mori, T. Hamano, Y. Sakuma, K. Sakoda, Y. Masumoto: "Optical spectroscopy of individual nitrogen impurity centers in GaAs and single photon emission from a bright center", 7th International Conference on Quantum Dots (QD2012) (SANTA FE, NEW MEXICO, USA, 2012.5).
11. S. Nomura: "Optical probing of dynamically correlated electrons in integer and fractional quantum Hall systems", The DYCE International Workshop (Kussharo, Hokkaido, 2012.8).
12. L. Zhang, M. Ikezawa, T. Mori, S. Umehara, Y. Sakuma, K. Sakoda, Y. Masumoto: "Single photon generation from an impurity center with well-defined emission energy in GaAs", 2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012) (Kyoto International Conference Center, Kyoto, 2012.9).
13. L. Zhang, M. Ikezawa, T. Mori, Y. Sakuma, K. Sakoda, Y. Masumoto: "Homogeneous linewidth of the nitrogen

impurity single photon source in GaAs”, IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012) (Pacifico Yokohama, Yokohama, 2012.9).

14. H. Ito, Y. Shibata, S. Mamyoda, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka and S. Nomura: “The optical excitation energy dependence of mapping of quantum Hall edge states”, IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM012), (Pacifico Yokohama, Yokohama, 2012.9).

<講演>

1. 野村晋太郎:「分数量子ホール状態からの発光」平山核スピンエレクトロニクス ERATO-セミナー (招待講演) (2012年6月)
2. A. Murakami, S. Tomimoto, H. Kato, M. Sano, T. Matsumoto, Y. Masumoto: “Resonant spin amplification measurement on bound electrons of Ga donors in ZnO films” 2012 Tsukuba Nanotechnology Symposium (TNS'12) (2012年7月)
3. 張遼, 池沢道男, 森達哉, 梅原晋太郎, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舛本泰章: 「GaAs:N 中の発光エネルギーが揃った発光中心から単一光子の発生」 第73回応用物理学会学術講演会 (2012年9月)
4. 村上瑛, 冨本慎一, 加藤裕幸, 佐野道宏, 松本貴裕, 舛本泰章: 「ZnO 薄膜中の Ga ドナーに束縛された電子スピン緩和時間の計測」 第73回応用物理学会学術講演会 (2012年9月)
5. 野村晋太郎, 伊藤宙陸, 間明田周平, 柴田祐輔, 大塚洋一, 柏谷聡, 山口真澄, 田村浩之, 赤崎達志: 「二次元電子系端状態中非平衡キャリア」 第73回応用物理学会学術講演会 (2012年9月)
6. 土屋翔吾, 松野美砂, 石黒亮輔, 柏谷聡, 柏谷裕美, 野村晋太郎, 前野悦輝, 高柳英明: 「micro-SQUID による微小 Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> 片まわりの局所的磁場観測」 第73回応用物理学会学術講演会 (2012年9月)
7. 村上瑛, 冨本慎一, 加藤裕幸, 佐野道宏, 松本貴裕, 舛本泰章: 「ZnO 薄膜中の Ga 不純物に束縛された電子のスピン緩和」 日本物理学会 2012 年秋季大会 (2012年9月)
8. 石黒亮輔, 土屋省吾, 柏谷裕美, 柏谷聡, 野村晋太郎, 高柳英明, 前野悦輝: 「micro-SQUID による Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> 微小片の磁化測定」 日本物理学会秋季大会 (2012年9月)
9. 山口真澄, 野村晋太郎, 田村浩之, 赤崎達志: 「発光線幅から見たトリオン-2 次元電子正孔クロスオーバー」 日本物理学会秋季大会 (2012年9月)
10. 野村晋太郎, 山口真澄, 田村浩之, 赤崎達志, 平山祥郎: 「低磁場低電子密度領域における電子占有数に依存した g-因子の増大」 日本物理学会秋季大会 (2012年9月)
11. 野村晋太郎: 「分数荷電励起子発光」 平成24年度東北大プロジェクト研究会、仙台市茂庭荘 (2012年12月)
12. 野村晋太郎: 「低次元電界効果素子における多体量子相関効果の分光計測」 第7回DYCEシンポジウム (2012年12月)
13. 山口真澄, 野村晋太郎, 田村浩之, 赤崎達志: 「荷電励起子-2次元電子ガス正孔クロスオーバー」 第7回DYCEシンポジウム、(2012年12月)
14. 舛本泰章: 「量子ドットのスピン緩和」 日本物理学会第68回年次大会 (招待講演) (2013年3月)
15. 森達哉, 池沢道男, 張遼, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舛本泰章: 「超コヒーレントな単一光子発生のための単一発光中心の共鳴励起」 日本物理学会第68回年次大会 (2013年3月)

16. 張遼, 池沢道男, 森達哉, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舛本泰章: 「GaAs : N 中の単一不純物発光中心のフーリエ分光測定」 日本物理学会第 68 回年次大会 (2013 年 3 月)
17. J. Sun, J. Zhao, Y. Masumoto: “Shell Thickness Dependent Photoinduced Electron Transfer from CuInS<sub>2</sub>/ZnS quantum dots to TiO<sub>2</sub> films” 日本物理学会第 68 回年次大会 (2013 年 3 月)
18. 野村晋太郎, 山口真澄, 田村浩之, 赤崎達志, 平山祥郎: 「ゲート付非対称二重量子井戸における井戸内および井戸間二次元電子系発光」 日本物理学会第 68 回年次大会 (2013 年 3 月)
19. 佐久間大輔, 須山聡大, 持永裕太, 田野佑典, 石黒亮輔, 野村晋太郎, 高柳英明: 「微小 Josephson 接合における臨界電流の温度依存性」 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 (2013 年 3 月)
20. 土屋翔吾, 小関貴司, 石黒亮輔, 松野美砂, 柏谷聡, 柏谷裕美, 野村晋太郎, 前野悦輝, 高柳英明: 「Micro-SQUID によるメゾスコピック Al disk および Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> 片の磁気特性」 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 (2013 年 3 月)