

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540334

研究課題名(和文) 強磁場コヒーレントサイクロトロン共鳴の研究

研究課題名(英文) Coherent cyclotron resonance in high magnetic field

研究代表者

今中 康貴 (Imanaka, Yasutaka)

独立行政法人物質・材料研究機構・表面構造・物性ユニット・グループリーダー

研究者番号：70354371

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：近年様々な分野で注目されているテラヘルツ時間領域分光法を、強磁場極低温下の物性研究に活用するため、周辺のシステムも含めて様々な技術開発を行った。またベクトルネットワークアナライザ、高周波ガンダイオード、フーリエ分光装置などによる強磁場極低温下でのテラヘルツサイクロトロン共鳴測定システムの改良を行い、InGaAsやCdMnTeといった量子ホール系やグラフェン、トポロジカル絶縁体などの多様な物質に対して適用し、様々な興味深い結果を得ることに成功した。

研究成果の概要(英文)：We have tried to develop a new terahertz time-domain spectroscopy system with optical fibers for high magnetic field and low temperature measurements. We also carried out the cyclotron resonance in InGaAs and CdMnTe quantum Hall systems, Graphene and a topological insulator under high magnetic field with the use of the vector network analyzer, the Gunn oscillators and the FT-IR spectrometer. Various new aspects of the cyclotron resonance were observed in our present investigation.

研究分野：半導体、強磁場物性

キーワード：サイクロトロン共鳴 テラヘルツ光 強磁場

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ周波数帯は、我々に共に馴染み深い「光」と「電波」の周波数帯の間にあり、長い間未踏周波数帯とも言われており、現在もまだ精力的に開発が進んでいる周波数域である。また物性研究においても様々な励起エネルギーがこの周波数帯にあるため、テラヘルツ領域の測定範囲の拡大が大変重要であることは言うまでもない。

これまで物性研究において使われてきたミリ波からテラヘルツ波帯の光源としては、ガンダイオード、後進波管、遠赤外レーザー、炭酸ガスレーザー、高圧水銀灯などがあげられるが、出力は大きいが発振波長が限られていたり、発振波長は連続であるが出力が極めて小さかったりなど、他の周波数帯での分光実験と比べると、未だに制約された条件の中で研究が行われている状況である。

その中で、強磁場や極低温と言った極限環境物性研究では、比較的早くからミリ波やテラヘルツ波を使った研究が進んでおり、例えば、ガンダイオードや遠赤外レーザーとパルス強磁場磁石を使って、磁性体のスピン準位間の遷移である電子スピン共鳴や、半導体のランダウ準位間の遷移であるサイクロトロン共鳴により非常に多くの成果が得られている。この場合、強い波長ラインを使って、磁場を掃印することで実験を行う場合が多いが、精密測定の見点からは、磁場を止めた状態で広いテラヘルツ帯域での「分光」実験もまた重要になる。しかしながらこの周波数帯で分光を行う場合、高圧水銀灯などの光源が弱く、非常に長時間の積算が必要なため、例えば20テスラを超えるような定常強磁場での実験を行うには、マシンタイムとの制約もあり、非現実的な状況であった。

すなわち電子物性、スピン物性の研究に極めて重要である強磁場テラヘルツ光研究を更に様々な物質材料に適用可能にするためには、従来行われてきている磁場範囲や温度範囲の拡大も重要であるが、周波数域の拡大、可能ならばコヒーレント光源による新しい分光手法の開拓が必要になっていた。

2. 研究の目的

我々はこれまで強磁場、極低温下での様々なテラヘルツ光システムを使って、サイクロトロン共鳴測定を中心に、様々な物質での強磁場分光研究を行ってきた。

そこで今回、これまで開発してきたシステムの更なる拡張と、特に最新のテラヘルツ分光法であるテラヘルツ時間領域分光を利用した定常強磁場磁石を使ったテラヘルツサイクロトロン共鳴の実現を目指し、様々な技術開発を行う。またそうして開発したシステムを新しい物質への適用を行い、新規物性現象の観測を目指す。

3. 研究の方法

今回、以下のようにシステム改良や技術開発を行い、各種物質試料においてサイクロトロン共鳴の実験を行った。

- (1) 光ファイバー式テラヘルツ時間領域分光システムの軽量小型化
- (2) フーリエ分光法の高感度化と量子ホール二層系、グラフェンのサイクロトロン共鳴測定
- (3) サブミリ波帯の角形導波管プローブの導入による「非接触」伝導度測定システムの開発と磁性半導体 CdMnTe、ワイドギャップ半導体 GaN 量子ホール系、トポロジカル結晶絶縁体におけるサイクロトロン共鳴測定

4. 研究成果

(1) テラヘルツ時間領域分光は、フェムト秒可視レーザーパルス光を光伝導アンテナに照射して発生するテラヘルツ光を、同様なアンテナやポッケルス効果により検出する方法であるが、我々が得意としている20テスラ以上の磁場領域への拡張のためには、光学台上で使用可能な窓付き光学クライオスタットでは基本的に不可能である。

実際、NIMSにある35テスラまで発生可能なハイブリッド磁石との組み合わせを考えると図1のように光ファイバーを使ったシステムは1つの方法であり、これまで我々は要素技術も含めて開発を行ってきた。

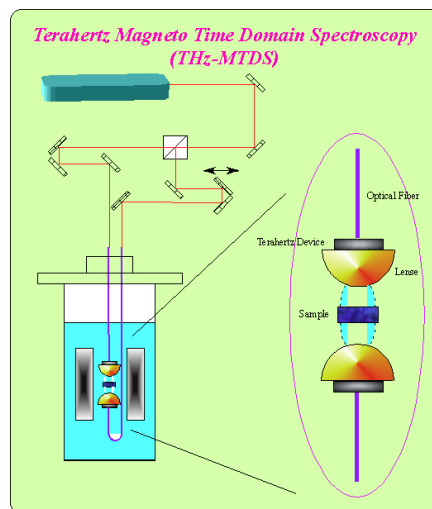


図1：光ファイバー式 THz-MTDS

今回、その先端部に市販の光ファイバー付きアンテナを利用して、非磁性材料で各部品を置き換えることで強磁場下でも十分に使用可能なモジュールを作成した。

結果、図2にあるように外径30φ程度の筐体の中に光ファイバー、光伝導アンテナ、コリメーションレンズ、フォーカシングレンズが組み込まれ、ディレイステージも含めて、持ち運び可能なシステムを組み上げた。

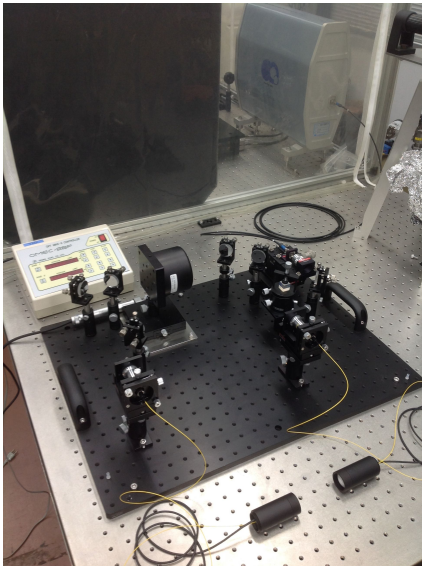


図2：光ファイバー式テラヘルツ時間領域分光システムの一部

(2) フーリエ分光法は、テラヘルツ領域のみならず、光源、検出器、ビームスプリッターなどの組み合わせを変えることで、原理的には非常に広範囲な周波数帯での分光が可能である。但しテラヘルツ領域では、光源である高圧水銀灯の出力が小さいこと、強磁場磁石と組み合わせるために使われる導波管での減衰が大きいことなどから、試料にも依るが、精度の高い測定を行うためには、非常に長い時間（6～12時間）データを積算する必要があった。

そこで今回問題点の1つであったディテクタ直前の集光ミラーを無くし、導波管をディテクタに直接接するような配置に改良したところ、約3倍程度の光量を稼ぐことができ、積算時間としても同程度のノイズレベルのデータを取得するのに、1スペクトル2～3時間程度で十分ようになった。またノイズ環境がほぼ同一である時間帯に、現実的な積算時間で、より精度の高い実験が可能となった。

次に改良されたフーリエ分光システムを用いて、強磁場テラヘルツサイクロトロン共鳴測定を、半導体量子ホール系やグラフェンに適用して実験を行った。特に InGaAs においては、これまでハイブリッド磁石を用いての強磁場輸送測定により、幅広量子井戸試料にて異常な整数量子ホール効果が観測されていた。その原因は井戸を挟む2つの両側の界面にたまる2つの二次元電子系によるものではないかとして説明が行われていたが、その詳細は明らかでなかった。そこで二層電子系の存在を明らかにするため、強磁場テラヘルツサイクロトロン共鳴実験を行った。

その結果、図3にあるように、低い磁場で共鳴周波数が低い場合でも明瞭なサイクロトロン共鳴を得ることに成功した。また低磁場領域では1つの共鳴にしか見えないものが、磁場を高くしていくことで、徐々に分裂していく様子が観測された。これは量子井戸

の両側界面における電子系の有効質量がわずかに異なることを意味しており、幅広量子井戸試料において二層電子系になっている、すなわち量子ホール二層系が実現していることが明らかとなった。

わずかに有効質量の異なる電子系が二層存在することにより、通常電子間相互作用が観測できないサイクロトロン共鳴測定において、電子間相互作用が現れる特殊な状況が実現する可能性もあり、それに関しても井戸幅を変えた実験などを行った。しかしながら結論としては二層系を実現できる井戸幅では、二層間の距離が大きすぎるため、電子間相互作用による共鳴位置の変化等を観測するには至らなかった。

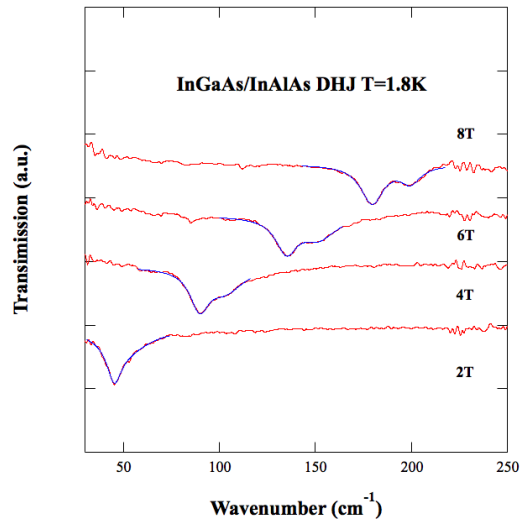


図3：InGaAs 幅広量子井戸におけるサイクロトロン共鳴の磁場依存性

(3)

1テラヘルツ以下の周波数帯は、フーリエ分光法でも高圧水銀灯の出力の関係で、超伝導磁石以外の定常強磁場下で行う場合、非常に難しい状況である。代わりにガンダイオードなどを使っての方法もあるが、500GHzを越えてくるような周波数になるとガンダイオードも原理的に難しくなってくる。

我々のところでは1テラヘルツ以下の測定には、ミリ波ベクトルネットワークアナライザと呼ばれるシステムを用い、サイクロトロン共鳴や電子スピン共鳴などを行っており、拡張システムと併せることで、40GHzから700GHz程度までの周波数範囲で変化させることができる。

これまで比較的径の大きな真鍮の円形導波管をベースのプロープを使用してきたが、導波管内の様々なモードを有効利用して、強磁場下で単なる透過、吸収測定を行うだけでなく、高周波電場に対する応答、すなわち1テラヘルツ前後での高周波伝導測定が行えないかと考え、35テスラまでの強磁場下での測定を念頭に、先端径が1.8φで、ハイブリッド磁石測定用クライオスタットに挿入可能な角形導波管プロープを作成した。

結果、超伝導磁石を使い、図4にあるように円形導波管の場合と遜色ないサイクロトロン共鳴を得ることに成功した。また円形導波管プローブでは原理的に難しいプローブ先端部の狭径化ができたことで、図5にあるようなフレキシブル角形導波管を使用することが可能となり、ハイブリッド磁石などの一般に漏れ磁場が大きい磁石との組み合わせも原理的に可能になった。電力やヘリウム事情の問題で実際に35テスラまでの定常強磁場実験は難しい状況にあるが、今後機会があれば、サイクロトロン共鳴や電子スピン共鳴実験を行う予定である。

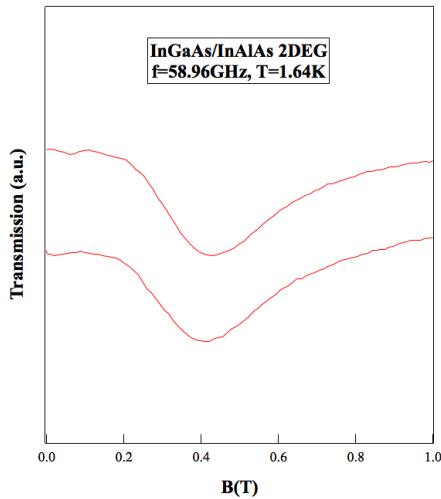


図4：角形導波管プローブによる InGaAs 二次元電子系のサイクロトロン共鳴

次に実際にこれらのシステムを用い、15テスラの超伝導磁石と併せ、GaN 量子ホール系、CdMnTe 量子ホール系、トポロジカル結晶絶縁体 SnTe において、サイクロトロン共鳴の実験を行った。



図5：角形導波管プローブとフレキシブル導波管

まず GaN であるが、近年 GaAs や Si といった高移動度試料の代名詞であった材料系以外の材料でも量子ホール効果が観測されるようになり、例えば ZnO では分数量子ホール効果が観測されるなど、物質パラメータの違いにより、従来では不可能であった領域の研究が可能になっている。昨年ノーベル賞が GaN ベースの青色発光ダイオードの功績に関

して授与され、光学的な側面で重要であることは明らかであるが、ワイドギャップ半導体であることからパワーデバイスの材料としても非常に注目を集めている。

近年のエピタキシャル成長技術の進展に伴って、GaN においても高品質な二次元電子系が作成されるようになり、より詳細な物性パラメータが必要になってくるため、今回サイクロトロン共鳴の測定を行った。

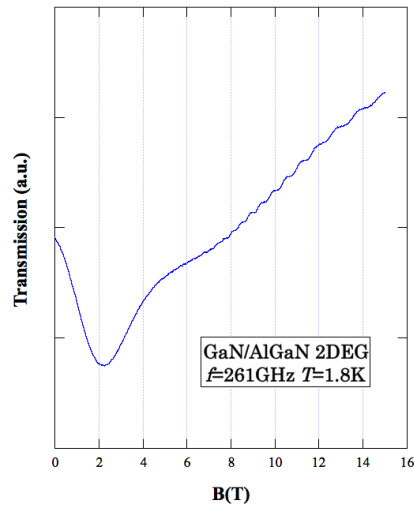


図6：GaN/AlGaIn 二次元電子系におけるサイクロトロン共鳴

結果、図6のように非常に明瞭なサイクロトロン共鳴が観測され、その周波数依存性から、二次元電子の有効質量が $m^*=0.23m_0$ と決定された。この値はこれまでの報告とほぼ同じであるが、試料の電子濃度が非常に高いため、若干バンドの非放物線性が寄与して重くなっていると思われる。

またサイクロトロン共鳴磁場以上の磁場範囲で、明瞭な振動が観測された。これは磁気輸送測定との比較から、シュブニコフドハース振動の周期と完全に一致しており、テラヘルツ光による非接触シュブニコフドハース測定と言うこともできる。この量子振動部分のみを切り分け、FFT をかけたところ、約 $8.5 \times 10^{12} \text{cm}^{-1}$ とキャリア濃度を見積もることができた。これは輸送測定から得られたキャリア濃度と完全に一致している。

こうした磁気透過光における量子振動は GaN に限らず、他の量子ホール系でも観測されている。図7に CdMnTe 系における極低温でのサブミリ波サイクロトロン共鳴のデータを示す。この場合、プローブしている周波数が約 650GHz と高く、GaN のサイクロトロン共鳴とは異なり、共鳴吸収に量子振動が重なっている様子が窺える。

シュブニコフドハース振動の振動周期はキャリア濃度で決まっているため、プローブ光の周波数が変化しても変わらないはずであるが、サイクロトロン共鳴磁場はプローブ光の周波数に比例して強磁場側にシフトしていくため、今回、プローブ光の周波数を変

化させていき、サイクロトロン共鳴磁場がシュブニコフドハース振動の磁場領域にあるように調整した。

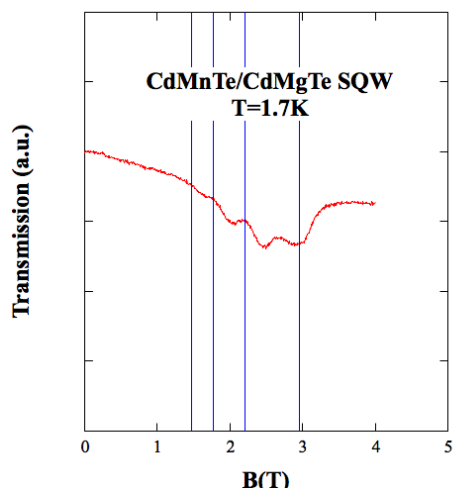


図7 : CdMnTe/CdMgTe 二次元電子系におけるサイクロトロン共鳴

その結果、サイクロトロン共鳴磁場（約 2.6T 付近）を境にシュブニコフドハース振動の振動位相が逆転する様子を観測することに成功した。図7の青色の縦線はそれぞれ占有率が 3, 4, 5, 6 である。丁度占有率が 3 の場合には下に凸であった振動が、4, 5, 6 では上に凸になっている様子が分かる。これは Ando の理論で 1970 年代に予言されていたもので、Si の反転層のサイクロトロン共鳴で観測されていたが、今回のようにブローブ周波数を連続的に変えて測定を行った例はこれまでになく、振動位相の反転という興味深い現象を正確にとらえることに成功した。

また近年非常に注目を集めているトポロジカル絶縁体に関して実験を行った。トポロジカル絶縁体は、トポロジーの要請により、表面が金属であり、内部は絶縁体というものであるが、表面の物性研究は STM や光電子分光などの表面敏感な手段に限られており、オーソドックスな輸送測定などでは、試料のバルクにある程度のキャリアが存在すると、表面の情報がマスクされてしまうなどの問題があった。そこで表面キャリアとバルクキャリアに有効質量や移動度などの違いを利用して、サイクロトロン共鳴測定で表面とバルクの切り分けを行うため、実験に取り組んだ。

試料は筑波大学の黒田研究室から、結晶格子の反転対称性が保持されているトポロジカル結晶絶縁体 SnTe を提供していただいた。

その結果、明瞭ではないが、ややブロードなサイクロトロン共鳴的な応答が磁場の往復で共に観測された。単純に計算を行うと、有効質量は約 $0.16m_0$ 程度と得られている。これが表面或いはバルクのどちらからの応答であるかはまだ不明であるが、今後試料の改善と測定領域の拡張を行うことで、強磁場テラヘルツ光システムを、こうしたトポロジカル絶縁体の表面伝導の研究に適用していけ

るものと考えている。

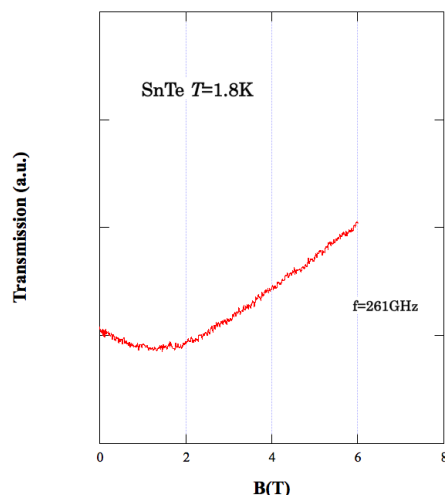


図8 : SnTe のサブミリ波サイクロトロン共鳴

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

- ① N. Terada, D. D. Khalyavin, P. Manuel, YI. Bei, H. Suzuki, N. Tsujii, Y. Imanaka and A. A. Belik, *Ferroelectricity Induced by Ferri-axial Crystal Rotation and Spin Helicity in a B-site Ordered Double-Perovskite Multiferroic In₂NiMnO₆*, *Physical Review B* Vol.91, Number 10, Page 104413-1-104413-6, 2015, 査読有
- ② B. Ghosh, Y. Masuda, Y. Wakayama, Y. Imanaka, J. Inoue, K. Hashi, K. Deguchi, H. Yamada, Y. Sakka, S. Ohki, T. Shimizu and N. Shirahata, *Hybrid White Light Emitting Diode Based on Silicon Nanocrystals / Hybrid White Light Emitting Diode Based on Silicon Nanocrystals*, *Advanced Functional Materials* Vol.24, Number 45, Page 7151-7160, 2014, 査読有
- ③ K. Takehana, Y. Imanaka, T. Takamasu, Y. Kim and K. -S. An, *Substrate dependence of cyclotron resonance on large-area CVD grapheme*, *Current Applied Physics* Vol.14, Number Supplement1, Page S119-S122, 2014, 査読有
- ④ Y. Imanaka, *Cyclotron Resonance in ZnO Heterostructures at High Magnetic Fields*, *J. Low Temp. Phys* Vol.170, Number 5-6, Page 389-396, 2013, 査読有

[学会発表] (計 16 件)

- (1) 国際会議 (以下を含めて 4 件)

- ① Y. Imanaka, T. Wojtowicz, G. Karczewski, Shubnikov-de Haas type oscillation in cyclotron resonance of CdMnTe two-dimensional electron systems, The 32nd International Conference on the Physics of Semiconductors, 2014/08/14, Austin Convention Center, Austin, Texas, U.S.A.
- ② Y. Imanaka, T. Takamasu, H. Tampo, H. Shibata and S. Niki, Optical and Transport Shubnikov-de Haas Oscillation in ZnO Two-dimensional Electron Systems, The 16th International Conference on II-VI compounds, 2013/09/11, Nagahama Royal Hotel, Nagahama, Shiga, Japan
- ③ Y. Imanaka, T. Takamasu, S. Nitta, M. Akabori and S. Yamada, Anomalous cyclotron resonance in InGaAs/InAlAs Rashba systems, The 31st International Conference on the Physics of Semiconductors, 2012/08/03, ETH Zurich main building, Zurich, Switzerland
- ④ Y. Imanaka, Cyclotron resonance in ZnO heterostructures at high magnetic fields, The 10th International Conference on Research in High Magnetic Fields, 2012/07/04, Ramada Plaza Optics Valley Hotel, Wuhan, China

(2) 国内会議 (以下を含めて 12 件)

- ① 竹端寛治、今中康貴、金子智昭、高村真琴、関根佳明、日比野浩樹、SiC 上成長二層グラフェンにおけるサイクロトン共鳴 II、日本物理学会第 70 回年次大会、2015/03/22、早稲田大学、東京都新宿区
- ② 今中康貴、定常強磁場下での光による量子ホール系の研究、強磁場科学研究会「強磁場が切り拓く物質科学のフロンティア」、2014/12/04、大阪大学、大阪府豊中市
- ③ 竹端寛治、今中康貴、高村真琴、関根佳明、日比野浩樹、SiC 上成長二層グラフェンにおけるサイクロトン共鳴、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014/09/09、中部大学、愛知県春日井市
- ④ 寺田典樹、鈴木博之、辻井直人、今中康貴、YI. Bei, A. A. Belik, D. D. Khalyavin, P. Manuel、ダブルペロブスカイト型化合物 In₂NiMnO₆ の長周期磁気構造と強誘電分極、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014/09/09、中部大学、愛知県春日井市
- ⑤ 今中康貴、竹端寛治、胡ガイ、日高志郎、

- 岩瀬比宇麻、赤堀誠志、山田省二、InGaAs/InAlAs 量子井戸におけるサイクロトン共鳴の井戸幅依存性、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014/09/07、中部大学、愛知県春日井市
- ⑥ 今中康貴、竹端寛治、日高志郎、岩瀬比宇麻、赤堀誠志、山田省二、InGaAs/InAlAs 量子井戸におけるサイクロトン共鳴 II、日本物理学会第 69 回年次大会、2014/03/28、東海大学、神奈川県平塚市
 - ⑦ 石田晋一、胡ガイ、張諸君、日高志郎、岩瀬比宇麻、赤堀誠志、山田省二、竹端寛治、今中康貴、InGaAs 2 次元電子ガス 2 層系における量子ホール効果、日本物理学会第 69 回年次大会、2014/03/27、東海大学、神奈川県平塚市
 - ⑧ 今中康貴、高増正、量子ホール系の光学的 SdH 振動測定、東京大学物性研究所短期研究会、2013/10/30、東京大学物性研究所、千葉県柏市
 - ⑨ 今中康貴、高増正、G. Karczewski、ミリ波サブミリ波による量子ホール系の量子振動測定 II、日本物理学会 2013 年秋季大会、2013/09/26、徳島大学、徳島県徳島市
 - ⑩ 今中康貴、高増正、G. Karczewski、ミリ波サブミリ波による量子ホール系の量子振動測定、日本物理学会第 68 回年次大会、2013/03/27、広島大学東広島キャンパス、広島県東広島市
 - ⑪ 今中康貴、定常強磁場を使った半導体低次元物性研究の現状、金属材料研究所強磁場超伝導材料研究センター研究会、2012/11/26、東北大学金属材料研究所、宮城県仙台市
 - ⑫ 今中康貴、高増正、韋威、森本幸作、岩瀬比宇麻、赤堀誠志、山田省二、InGaAs/InAlAs 量子井戸におけるサイクロトン共鳴、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012/09/21、横浜国立大学常盤台キャンパス、神奈川県横浜市

[その他]

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/nmp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

今中 康貴 (IMANAKA, Yasutaka)

物質・材料研究機構・表界面構造・物性ユニット・グループリーダー

研究者番号：70354371

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし