

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月27日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2009～2012

課題番号：21246052

研究課題名（和文） 不純物ナノ構造の局所光応答とスケーラブル光子デバイスの実現

研究課題名（英文） Local optical response of impurity nanostructures and development of scalable photon devices

研究代表者

小島 磨（KOJIMA OSAMU）

神戸大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：00415845

研究成果の概要（和文）：

半導体中の不純物の電子状態は均一であり、理想的な量子ドットとして扱うことができる。このような均一な電子状態を有する量子ドットでは不純物密度の制御によって励起子と光の相互作用を連続的に制御でき、窒素濃度に依存したデバイス性能の制御を実現できる。本研究ではGaAsへの窒素の δ ドーピング技術を開発し、窒素ペアに束縛された励起子の微細構造を明らかにした。また、磁場によって励起子微細構造を精密に制御し、共振器によるスケーラブルな励起子光子相互作用を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Electronic states of impurities doped in semiconductors are extremely uniform and can be treated as ideal QDs. Such QDs with the uniform electronic states enable to control the interaction between the exciton and photon, and, resultantly, the device performance will come to depend on the impurity density. We developed a novel technique of nitrogen delta-doping into GaAs and clarified the optical properties of the exciton fine structure bound to nitrogen pairs. Furthermore, we demonstrated that the precise control of the fine structure using magnetic field and a scalable change in the strength of the exciton-photon interaction.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	10,500,000	3,150,000	13,650,000
2010年度	12,500,000	3,750,000	16,250,000
2011年度	7,200,000	2,160,000	9,360,000
2012年度	4,500,000	1,350,000	5,850,000
総計	34,700,000	10,410,000	45,110,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：窒素ペア、励起子、光子デバイス、GaAs

1. 研究開始当初の背景

大きな遷移双極子モーメントを持つ物質中の局所電子状態は光子と固体との量子インターフェースを構築する上で不可欠であり、これを利用した究極的な光子操作は、量子通信にかかわる未来型デバイスの基礎原理には欠かせない。固体を利用したこのような究極的な光の制御には光の源である励起子構造の自在なデザインと制御が不可欠であり、原子レベルで操作した中心の創製無くして

実現できない。

近年、励起子を局所空間に閉じ込めることによって理想的な2準位系を作り、光子やスピンにかかわる新しい物性を発現させることが可能になってきている。しかし一般によく用いられている自己形成量子ドットはサイズのばらつきや形状の不均一性によって個々のドットの励起子状態がバラバラで、スケーラブルな量子デバイスには不向きである。一方、半導体結晶に電子状態が大きく異

なる不純物原子を添加すれば、局所的な不純物固有の電子状態は究極の量子ドットと等価であり、その均一な電子状態はすぐれたスケラビリティを生み出すと期待できる。

2. 研究の目的

本研究では半導体中に不純物原子を規則的に配列することによって、不純物の局所構造に基づく新しい物性を発現させることを目的にして研究を推進した。また、電場と磁場による交換相互作用の精密制御と制御光による励起子コヒーレント状態の制御によって量子情報通信で利用できる光子発生、励起子位相制御などを実現し、それらの基礎物性を明らかにした上で、スケラブルな励起子量子ビットを作製し、ゲート操作や光子スイッチ等の未踏の光子デバイスを実現することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究ではエピタキシャル結晶成長技術によって精密に制御した窒素原子のオーダリングを利用して GaAs 中に配列した窒素ペアを作製し、制御された窒素ペアに局在する励起子ナノ構造の局所光応答の基礎物性を明らかにした。そして、GaAs 中の窒素ペアのスケラブル光子デバイスへの応用を検討した。

試料作製には分子線エピタキシー結晶成長技術を駆使して GaAs (001) ウエファ表面に (2×4) 再構成構造を作り、その上に原子レベルで制御してプラズマセルで生成した原子状窒素を吸着させた。これまでの研究から窒素添加表面の (3×3) 原子オーダリングを確認している。本研究では、窒素原子の際蒸発の最適化を行い、結合に寄与しない余計な窒素を排除して高品質で超高均一な窒素デルタドーピングを実現した。制御された窒素ペアに局在する励起子ナノ構造の局所光応答の解明にはフォトルミネッセンス (PL) を用いて、物性を評価した。

4. 研究成果

(1) 励起子微細構造の発光偏光特性

高分解能の顕微分光システムを用いて、GaAs 中の窒素ペアに束縛された励起子の微細構造の偏光特性を明らかにした。図 1 に、1.444 eV 帯と 1.493 eV 帯の発光線の直線偏光特性を示す。 J - J 結合と局所結晶場効果を取り入れた、 Γ_6 - Γ_8 励起子微細構造の計算結果から、直交する直線偏光で分離できる 4 本の微細構造は C_{2v} の対称性を持つ窒素ペア構造の形状異方性に起因することを明らかにした。さらに窒素ペア濃度の異なる試料における励起子微細構造を比較することによって、励起子微細構造の発光強度分布に非発光準位を介した励起子トランスファーが重要

な役割を果たしていることを明らかにした。

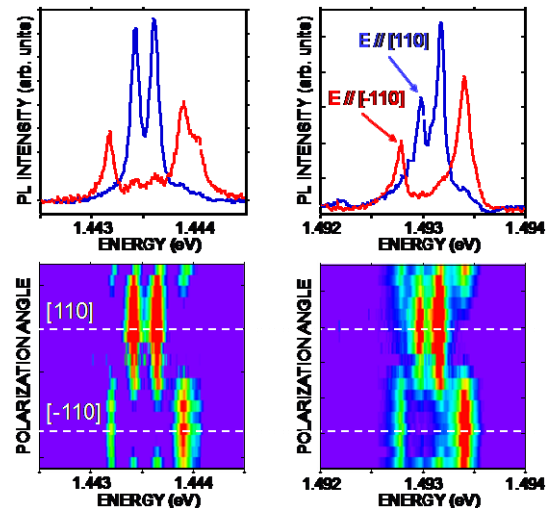


図 1: 励起子微細構造の直線偏光特性。

(2) 励起子微細構造の磁気発光特性

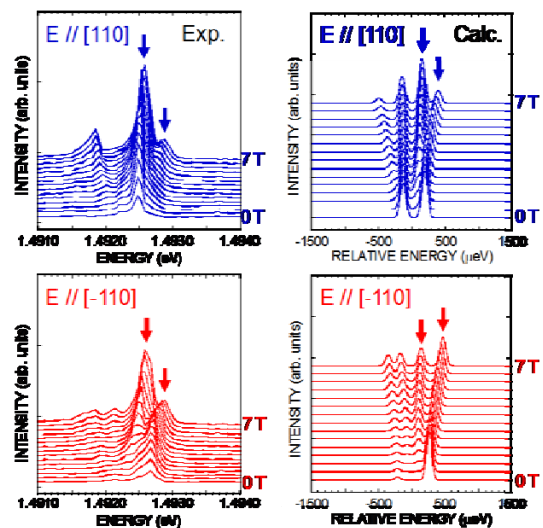


図 2: Voigt 配置 ($B // [-110]$) における磁気 PL。

磁場による励起子微細構造の制御性を明らかにするために、Voigt 配置 ($B // [-110]$) における磁気 PL スペクトルを測定した。図 2 に、Voigt 配置における 1.493 eV 帯の磁気 PL スペクトルの実験結果と計算結果を示す。Zeeman 相互作用によって、各直線偏光成分において 4 本の励起子微細構造が観測された。図 3 に、励起子微細構造の磁場依存性の計算結果を示す。3 T 付近において直交する直線偏光特性を示す準位が縮退している結果は、励起子微細構造の磁場制御によるもつれ光子対生成の可能性を示唆している。

また、各発光線における励起子波動関数の空間広がりを評価するために Faraday 配置 ($B // [001]$) における磁気 PL スペクトルを測

定した。図4に、Faraday配置における1.444 eV帯と1.493 eV帯の磁気PLスペクトルを示す。各発光線における反磁性シフト係数の大きさは励起子波動関数の空間広がりを反映しているため、励起子微細構造の直線偏光特性と反磁性シフト係数から、1.444 eV帯と1.493 eV帯の発光線の起源が第一近接窒素ペアと第四近接窒素ペアであることが明らかになった。

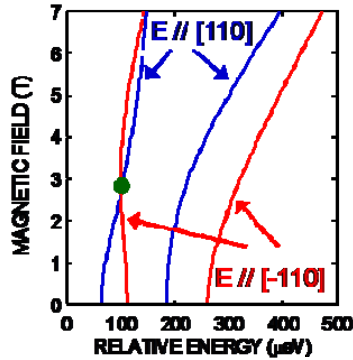


図3：励起子微細構造の磁場依存性の計算結果。

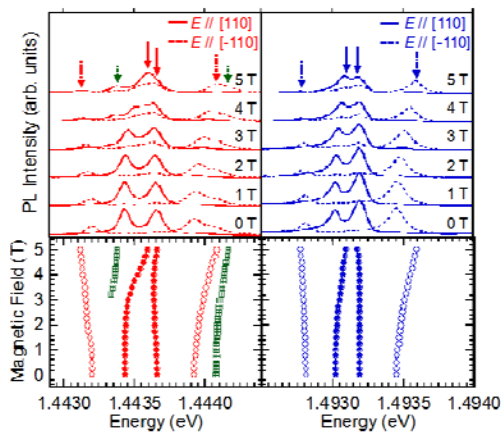


図4：Faraday配置 ($B // [001]$)における磁気PL。

(3) 発光イメージング特性

単一の窒素ペア発光を素子化していくために、顕微分光システムの2次元CCD発光イメージングセンサによって励起子ナノ構造空間配列を評価した。図5に、バンドパスフィルターを用いた束縛励起子発光線の発光イメージングを示す。図5上部は従来の試料、図5下部は原子層窒化後のGaAsキャップ層の成長温度を最適化した試料における結果である。背景信号の抑制に起因する明瞭なスポット状の発光イメージングが得られていることが分かる。ブロードな背景信号の抑制は、GaAs中の窒素ペアを利用した固体光子源の実現に向けた重要な知見である。また、図

6に示すように、単一の窒素ペアに束縛された励起子発光の観測に成功した。

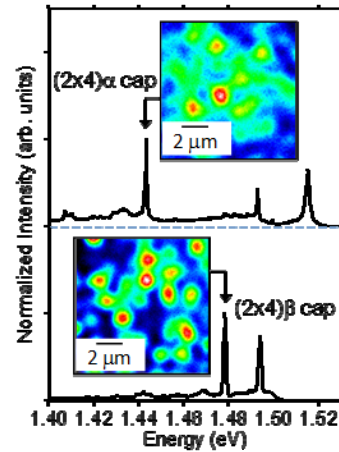


図5：束縛励起子発光線の発光イメージング。

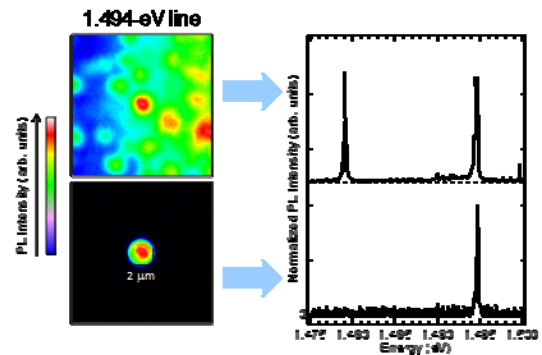


図6：単一の窒素ペアに束縛された励起子発光の観測。

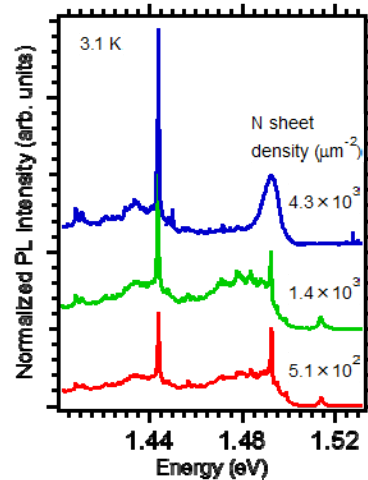


図7：PLスペクトルの窒素濃度依存性。

(4) 電子状態の窒素濃度依存性

窒素をデルタドープしたGaAsの電子状態の窒素濃度依存性を評価した。図7に窒素濃度を変化させた試料におけるPLスペクトルを示す。最も窒素濃度の高い試料において、1.49 eV帯にブロードな発光線を観測した。

この結果は窒素デルタドーピングによるバンドの形成を示唆している。図8に、1.49 eV帯のブロードな発光線における、PLピークエネルギーの磁場依存性を示す。測定温度に依存したPLピークエネルギーの磁場依存性は、熱エネルギーによるキャリアの非局在化と、磁場によるキャリアの局在化の競合を示唆している。

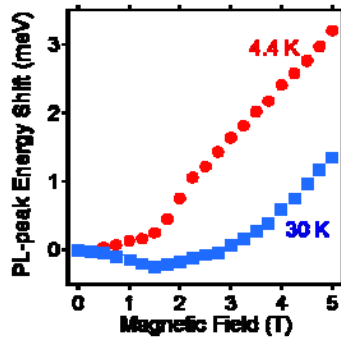


図8：PLピークエネルギーの磁場依存性

(5) 光共振器によるスケラブルな光子-励起子相互作用

GaAs中の窒素ペアを利用したスケラブル光子デバイスの実現に向けて、光共振器を用いたスケラブルな光子-励起子相互作用を検討した。図8に、直径10 μm のマイクロピラーキャビティにおける結合定数の窒素ペア濃度依存性の計算結果を示す。マイクロピラーキャビティのQ値を3700と仮定すると、この計算結果は、窒素ペア濃度が102 μm^{-2} 以上では強結合領域に、窒素ペア濃度が1 μm^{-2} 以上では弱結合領域になることを示している。計算に用いたマイクロピラーキャビティの直径や、窒素ペア濃度の値は十分に実現可能な値であり、この結果は光共振器によるスケラブルな光子-励起子相互作用の実証が可能であることを示唆している。

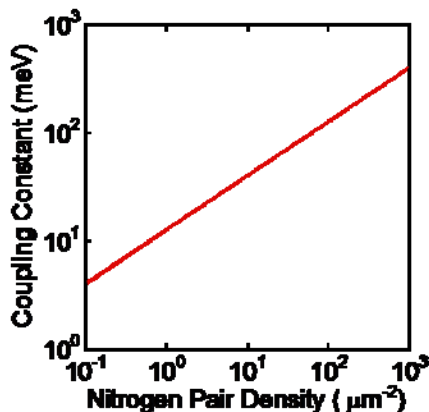


図8：結合定数の窒素ペア濃度依存性。

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20件)

- (1) H. Tanaka, O. Kojima, T. Kita, and K. Akahane "Enhancement of Optical Anisotropy by Interconnection Effect along Growth Direction in Multistacked Quantum Dots" (Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 52, 012001-1~4, 2013, 査読有)
DOI: 10.7567/JJAP.52.012001
- (2) O. Kojima, S. Ohta, T. Kita, and T. Isu "Effects of Pumping on Propagation Velocities of Confined Exciton Polaritons in GaAs/Al_xGa_{1-x}As Double Heterostructure Thin Films Under Resonant and Non-Resonant Probe Conditions" (J. Appl. Phys. Vol. 113, 013514-1~6, 2013, 査読有)
DOI: 10.1063/1.4772717
- (3) T. Kita, T. Maeda, and Y. Harada "Carrier Dynamics of the Intermediate State in InAs/GaAs Quantum Dots Coupled in a Photonic Cavity under Two-Photon Excitation" (Phys. Rev. B, Vol. 86, 035301-1~7, 2012, 査読有)
DOI: 10.1103/PhysRevB.86.035301
- (4) O. Kojima, K. Mizoguchi, and M. Nakayama "Quantum beats of type-I and type-II excitons in an In_xGa_{1-x}As/GaAs strained single quantum well" (J. Appl. Phys., Vol. 112, 043522-1~4, 2012, 査読有)
DOI: 10.1063/1.4748339
- (5) S. Ohta, O. Kojima, T. Kita, and T. Isu "Observation of quantum beat oscillations and ultrafast relaxation of excitons confined in GaAs thin films by controlling probe laser pulses" (J. Appl. Phys., Vol. 111, 023505-1~4, 2012, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3676429
- (6) O. Kojima, N. Tobita, T. Kita, K. Akahane "Dynamics of above-barrier state excitons in multi-stacked quantum dots" (J. Appl. Phys. Vol. 110, 093515-1~4, 2011, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3660210
- (7) Y. Harada, T. Kubo, T. Inoue, O. Kojima, and T. Kita "Extremely Uniform Bound Exciton States in Nitrogen δ -doped GaAs Studied by Photoluminescence Spectroscopy in External Magnetic Fields" (J. Appl. Phys. Vol. 110, 083522-1~5, 2011, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3654015
- (8) O. Kojima, S. Hamano, T. Kita, and O. Wada "Depolarization Effect on Optical of Exciton States Confined in GaAs Thin Films" (J. Appl. Phys. Vol. 110, 083521-1~5, 2011, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3653228
- (9) T. Yamashita, O. Kojima, T. Kita, and

- T. Isu "Depolarization Effect on Optical of Exciton States Confined in GaAs Thin Films" (J. Appl. Phys. Vol. 110, 043514-1~5, 2011, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3624667
- (10) C. Y. Jin, O. Kojima, T. Kita, O. Wada, and M. Hopkinson "Observation of Phase Shifts in a Vertical Cavity Quantum Dot Switch" (Appl. Phys. Lett. Vol. 98, 231101-1~3, 2011, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3596704
- (11) O. Kojima, S. Watanabe, T. Kita, O. Wada, and T. Isu "Dephasing of Excitonic Polaritons Confined in GaAs Thin Films" (J. Phys. Soc. Jpn, Vol. 80, No. 3, 034704-1~5, 2011, 査読有)
DOI: 10.1143/JPSJ.80.034704
- (12) O. Kojima, S. Watanabe, T. Kita, O. Wada, and T. Isu "Propagation velocity of excitonic polaritons confined in GaAs thin films" (Phys. Status Solidi C, Vol. 8, No. 2, pp. 378-380, 2011, 査読有)
DOI: 10.1002/pssc.201000480
- (13) Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada "Interaction Between Conduction-band Edge and Nitrogen-related Localized Levels in Nitrogen δ -doped GaAs" (Phys. Status Solidi C, Vol. 8, No. 2, pp. 365-367, 2011, 査読有)
DOI: 10.1002/pssc.201000515
- (14) Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada "Bound biexciton luminescence in nitrogen δ -doped GaAs" (Phys. Status Solidi B, Vol. 248, No. 2, pp. 464-467, 2011, 査読有)
DOI: 10.1002/pssb.201000653
- (15) T. Yamashita, O. Kojima, T. Kita, O. Wada, and K. Akahane "Excitation power dependence of nonlinear optical response of excitons in GaAs/AlAs superlattices" (Phys. Status Solidi C, Vol. 8, No. 1, pp. 50-53, 2011, 査読有)
DOI: 10.1002/pssc.201000674
- (16) O. Kojima, M. Mamizuka, T. Kita, O. Wada, and K. Akahane "Intraband relaxation process in highly stacked quantum dots" (Phys. Status Solidi C, Vol. 8, No. 1, pp. 46-49, 2011, 査読有)
DOI: 10.1002/pssc.201000661
- (17) C. Jin, O. Kojima, T. Inoue, T. Kita, O. Wada, M. Hopkinson, and K. Akahane "Detailed design and characterization of all-optical switches based on InAs/GaAs quantum dots in a vertical cavity" (IEEE J. Quantum Electron., Vol. 46, pp. 1582-1589, 2010, 査読有)
DOI: 10.1109/JQE.2010.2053916
- (18) C. Jin, S. Ohta, M. Hopkinson, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada "Detailed design and characterization of all-optical switches based on InAs/GaAs quantum dots in a vertical cavity" (Appl. Phys. Lett., Vol. 96, 151104-1~3, 2010, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3396187
- (19) O. Kojima, H. Nakatani, T. Kita, O. Wada, K. Akahane "Temperature dependence of photoluminescence characteristics of excitons in stacked quantum dots and quantum dot chains" (J. Appl. Phys. Vol. 107, 073506-1~4, 2010, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3366711
- (20) C. Jin, O. Kojima, T. Kita, O. Wada, M. Hopkinson, and K. Akahane "Vertical-geometry all-optical switches based on InAs/GaAs quantum dots in a cavity" (Appl. Phys. Lett. Vol. 95, 021109-1~3, 2009, 査読有)
DOI: 10.1063/1.3180704
- [学会発表] (計 22 件)
- (1) 原田幸弘、山本益輝、馬場健、喜多隆 "窒素を高密度デルタドーピングした GaAs の磁気光学特性" (第 60 回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、2013. 3. 27-30)
- (2) 山本益輝、木村航平、原田幸弘、喜多隆 "窒素デルタドーピングによる GaAs 電子状態の制御" (第 23 回光物性研究会、大阪市立大学、2012. 12. 7)
- (3) 喜多隆 "GaAs エピタキシャル界面への窒素デルタドーピングと超高均一発光" (第 42 回結晶成長国内会議 (NCCG-42)、九州大学筑紫キャンパス、2012. 11. 10) 特別講演 (招待講演)
- (4) M. Yamamoto, K. Kimura, Y. Harada, and T. Kita "Control of Electronic Structure of GaAs Using Nitrogen δ -doping Technique" (The17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Nara, September 23-28, 2012)
- (5) 原田幸弘、前田剛志、喜多隆 "光共振器構造中の InAs/GaAs 量子ドットにおける 2 段階光吸収の増強" (第 73 回応用物理学会学術講演会、愛媛大学、松山大学、2012. 9. 11-14)
- (6) 喜多隆 "III-V 族量子構造を用いたナノフォトニクス応用" (シリコン・フォトニクス時限研究専門委員会第 17 回研究会、神戸大学、2012. 7. 12-13) (招待講演)
- (7) M. Yamamoto, K. Kimura, Y. Harada, and T. Kita "Delocalization of Electronic States Formed by Nitrogen Pairs in GaAs" (31th Electronic Materials Symposium, Izu, July11-13, 2012)
- (8) Y. Harada, T. Kubo, T. Inoue, O. Kojima, and T. Kita "Strong Electron-Hole Correlation in Bound Exciton in Nitrogen δ -Doped GaAs" (The 10th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter,

- Nanostructured and Molecular Materials, Groningen, July 1-6, 2012)
- (9) Y. Harada, and T. Kita “Extremely Uniform Excitonic States in Nitrogen δ -Doped GaAs” (International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications, Nara, June 3-7, 2012) (招待講演)
- (10) 喜多隆、原田幸弘 “GaAs エピタキシャル界面への窒素のデルタドーピングと高均一発光特性” (第 59 回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学、2012. 3. 15-18) (招待講演)
- (11) 原田幸弘、久保輝宜、井上知也、小島磨、喜多隆 “GaAs 中の窒素ペアに束縛された励起子における励起子-格子相互作用” (第 22 回光物性研究会、熊本大学、2011. 12. 9-11)
- (12) Y. Harada, T. Kubo, T. Inoue, O. Kojima, and T. Kita “Effect of Capping Layer Growth on Bound Exciton Luminescence in Nitrogen δ -Doped GaAs” (2011 International Conference on Solid State Devices and Materials, Aichi, September 28-30, 2011)
- (13) 原田幸弘、久保輝宜、井上知也、小島磨、喜多隆 “GaAs 中の窒素ペアに束縛された励起子分子の磁気光学特性” (日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学、21pPSA-37、2011. 9. 21-24)
- (14) 原田幸弘、久保輝宜、井上知也、小島磨、喜多隆 “GaAs 中の窒素ペアに束縛された励起子のフォノンサイドバンド発光” (第 72 回応用物理学関係連合講演会、山形大学、2011. 8. 29-9. 2)
- (15) Y. Harada, T. Kubo, T. Inoue, O. Kojima, and T. Kita “Capping Layer Dependence of Bound Exciton Luminescence in Nitrogen δ -Doped GaAs” (30th Electronic Materials Symposium, Biwako, June 29-July 1, 2011)
- (16) Y. Harada, T. Kubo, T. Inoue, O. Kojima, T. Kita “Diamagnetic Shift of Exciton Bound to the Nitrogen Pairs in GaAs” (38th International Symposium on Compound Semiconductors, Germany May 22-26, 2011)
- (17) 原田幸弘、喜多隆 “III-V 半導体中不純物制御と励起子物性” (第 71 回応用物理学学会学術講演会、長崎大学、2010. 9. 14-17) (招待講演)
- (18) Y. Harada, Y. Horiuchi, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada “Magneto-Photoluminescence Spectroscopy of Exciton Fine Structure in Nitrogen δ -Doped GaAs” (The 30th International Conference on the Physics of Semiconductors, Seoul, Korea, July 25-30, 2010)
- (19) Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada “Bound Biexciton Luminescence

- in Nitrogen δ -Doped GaAs” (The 9th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials, Brisbane, Australia, July 11-16, 2010)
- (20) Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada “Interaction between Conduction-Band Edge and Nitrogen-Related Localized Levels in Nitrogen δ -Doped GaAs” (The 37th International Symposium on Compound Semiconductors, Takamatsu, May 31-June 4, 2010)
- (21) Y. Harada and T. Kita “Emission properties of excitons strongly localized to nitrogen pairs in GaAs” (The International Conference on Nanophotonics 2010, Tsukuba, May 30-June 3, 2010) (Invited Talk)
- (22) Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada “Magnetic-field control of exciton fine structure splitting in nitrogen δ -doped GaAs” (The 18th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems and the 14th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, Kobe, July 19-24, 2009)

[その他]

ホームページ等

<http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-photonics/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小島 磨 (KOJIMA OSAMU)

神戸大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：00415845

(2) 研究分担者

喜多 隆 (KITA TAKASHI)

神戸大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：10221186