

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24年 5月28日現在

機関番号：14501

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760229

研究課題名（和文） 不純物束縛励起子における電子励起状態の解明とスピン制御

研究課題名（英文） Study on bound exciton states of isoelectronic centers

研究代表者

原田 幸弘 (HARADA YUKIHIRO)

神戸大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：10554355

研究成果の概要（和文）：

大きな遷移双極子モーメントを持つ半導体中の励起子は、量子情報通信において光子と固体間のインターフェースを担うと期待できる量子状態である。本研究では、GaAs 中の窒素ペアが形成する等電子トラップに束縛された励起子に着目し、多数の不純物発光中心が関与したスケラブルな相互作用の実証に必要な不可欠な、極めて均一性の高い不純物発光中心を実現した。そして均一性の高い不純物発光中心を利用して、束縛励起子波動関数の空間拡がりや束縛励起子-フォノン相互作用の大きさなどの、不純物束縛励起子における電子励起状態を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Impurity centers in a semiconductor have been attracting a strong interest for the realization of the solid-state photon sources with the specific emission wavelength. In this work, we achieved an extremely high uniformity of the emission wavelength for the exciton bound to the nitrogen (N) pairs. We studied the spatial localization of excitons bound to N pairs in N δ -doped GaAs. Furthermore, we studied the bound exciton-acoustic phonon coupling in N δ -doped GaAs.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2011年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

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：束縛励起子、等電子トラップ、光物性

1. 研究開始当初の背景

量子情報通信の実現に向けて、3方向からの量子閉じ込め効果によって理想的な2準位系を形成できる量子ドット (QD) が注目されており、これまでにマイクロキャビティ中の InAs QD を用いた単一光子の生成や、InAs QD における励起子分子-励起子のカスケ

ド発光を用いたもつれ光子対の生成が報告されている。しかし、Stranski-Krastanov 成長モードを用いた自己形成 QD は配置の制御ができず、サイズや組成、あるいは歪みの不均一性により発光波長の制御が困難なため、多数の QD 間にスケラブルな相互作用が発現しないという欠点をもつ。そこで近年、ホ

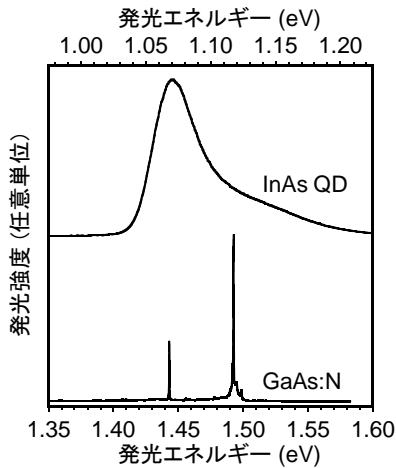


図1 InAs QD と GaAs:N の発光スペクトル

スト結晶と不純物の組み合わせで決まる固有の電子状態によって特定の発光波長を示す、ダイヤモンド中の窒素と空孔による複合欠陥 (NV センター) などの不純物発光中心を利用した量子情報科学の研究が注目されている。

本研究では、不純物発光中心として、(Ga, In)As 中の窒素等電子トラップに着目した。この不純物発光中心は GaAs (001) 面上に窒素をデルタドーピングすることによって作製でき、マクロ発光スペクトルがサブ meV の半値全幅を示す (図 1)。研究代表者はこれまでの研究によって、(Ga, In)As:N における直線偏光した励起子微細構造分離が、電子-正孔間交換相互作用と、窒素ペア構造による局所歪みによって引き起こされていることを明らかにしてきた。しかし、不純物束縛励起子における電子励起状態や励起子スピンの制御性には未解明な部分が多く、多数の半導体中不純物中心が関与したスケラブルな相互作用を実証するためにはこれらの定量的な評価が必要不可欠である。

2. 研究の目的

本研究は、多数の半導体中不純物中心が関与したスケラブルな相互作用の実証に向けた、不純物束縛励起子における電子励起状態の解明を目的とした。まず、多数の不純物発光中心が関与したスケラブルな相互作用の実証に必要な、均一性の高い不純物発光中心を作製した。そして均一性の高い不純物発光中心を利用して、束縛励起子波動関数の空間拡がりの評価、同一の不純物発光中心に束縛された励起子発光線と励起子分子発光線の同定、束縛励起子-フォノン相互作用の大きさの評価による、不純物束縛励起子における電子励起状態の解明を行った。

3. 研究の方法

試料作製には分子線エピタキシー法を用いて、GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As ダブルヘテロ構造中の GaAs (001) 面に原子層窒化を行った。原子層窒化は、高周波プラズマソースを用いて、(2×4)α表面再構成構造を示す成長表面に行った。

上記の窒素をデルタドーピングした GaAs 試料における、窒素ペアに束縛された励起子の特性を、顕微発光分光、磁気発光分光、時間分解発光分光によって評価した。

4. 研究成果

本研究で得られた研究成果を以下にまとめる。

(1) 均一性の高い不純物発光中心の実現

顕微発光分光測定によって、窒素をデルタドーピングした GaAs 中の窒素ペアに束縛された励起子からの発光が、均一幅よりも不均一幅の方が狭くなるほど高均一であることを実証した。図 2 に、1.444 eV 帯の発光線における発光スペクトル形状の発光中心数依存性を示す。発光スペクトルから見積もった均一幅と不均一幅はそれぞれ 70 μeV と 15 μeV であった。極めて均一性の高い発光中心の実現は、多数の不純物発光中心が関与したスケラブルな相互作用の実証に必要な不可欠である。

(2) 不純物束縛励起子における電子励起状態の解明

① 束縛励起子波動関数の空間拡がりの評価

反磁性シフトエネルギーの磁場依存性から、束縛励起子波動関数の空間拡がりを評価した。図 3 に、1.444 eV 帯と 1.493 eV 帯の

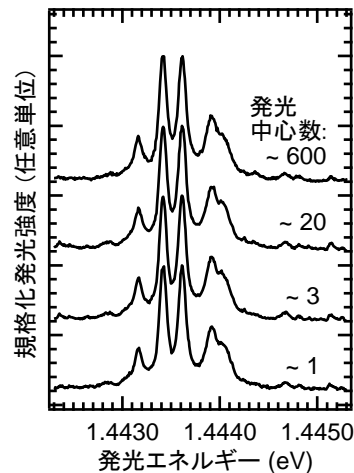


図2 発光スペクトルの発光中心数依存性.

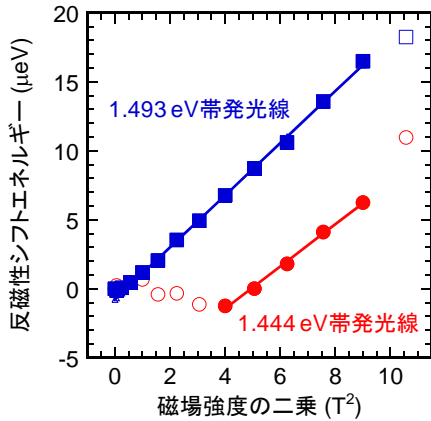


図 3 反磁性シフトエネルギーの磁場依存性.

発光線における結果を示す。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。さらに、1.444 eV 帯の発光線における励起子波動関数の空間広がりが、1.493 eV 帯の発光線よりも小さいことを発光減衰時間から確認した。

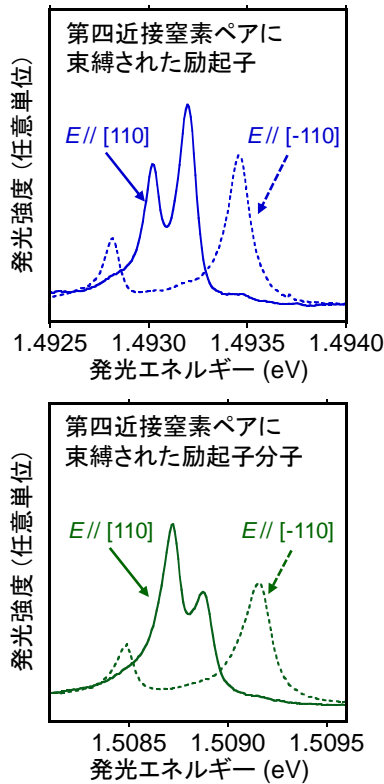


図 4 同一の発光中心に束縛された励起子と励起子分子からの発光スペクトル.

②同一の不純物発光中心に束縛された励起子発光線と励起子分子発光線の同定

励起子微細構造の励起光強度依存性と直線偏光特性から、図 4 に示す 1.493 eV 帯と 1.509 eV 帯の発光線の起源が、第四近接窒素ペア構造に束縛された励起子と励起子分子であることを明らかにした。同一の不純物発光中心に束縛された励起子発光線と励起子分子発光線の同定は、励起子分子-励起子のカスケード発光過程を利用したもつれ光子対生成の実現に向けた重要な知見である。

③束縛励起子-フォノン相互作用大きさの評価

第一近接窒素ペアと第四近接窒素ペアに束縛された励起子からの発光線の温度依存性に注目し、第一近接窒素ペアに束縛された励起子からの発光線において励起子-フォノン相互作用が顕著に抑制されており、その起源が電子波動関数と正孔波動関数の相関相互作用であることを明らかにした (図 5)。さらに、第四近接窒素ペアに束縛された励起子と励起子分子からの発光線のスペクトル形状から、励起子-音響フォノン相互作用の交換項に起因すると考えられる、束縛励起子分子発光線における顕著な音響フォノンサイドバンドを観測した。束縛励起子-フォノン相互作用の大きさの評価は、高温で動作する固体光子源の実現に向けた重要な知見となると期待できる。

(3)背景信号の抑制

従来の窒素デルタドーピング技術では、ブロードな背景信号が束縛励起子発光線に重なってしまうという課題があった。そこで、原子層窒化後の GaAs キャップ層の成長温度を従来よりも低温にすることによって、背景信号の抑制を実現した。図 6 に、バンドパスフィルターを用いた発光イメージング測定結果を示す。成長条件を見直した試料におい

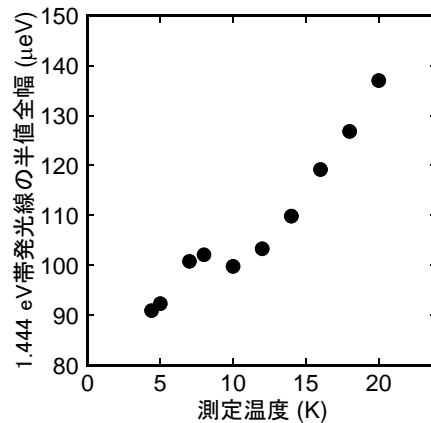


図 5 1.444 eV 帯の発光線における半値全幅の測定温度依存性.

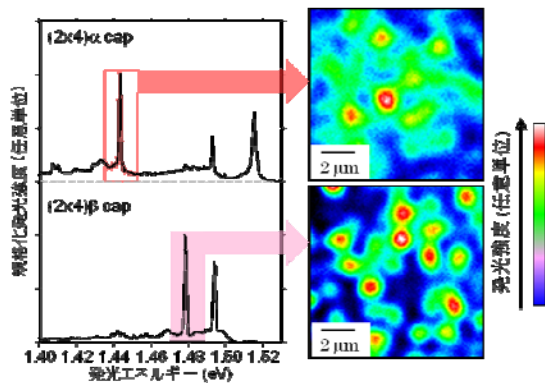


図6 束縛励起子発光線の発光イメージング.

て、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(図6下側)。ブロードな背景信号の抑制は、GaAs中の窒素等電子トラップ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。

以上の結果は、多数の半導体中不純物中心が関与したスケラブルな相互作用の実証に向けて重要な知見を与えるものである。

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) (総計8件)

- ① Y. Harada, Y. Horiuchi, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada, "Magneto-Photoluminescence Spectroscopy of Exciton Fine Structure in Nitrogen δ -Doped GaAs", AIP Conference Proceedings, Vol. 1399, pp. 87-88 (2011). (査読有)
- ② 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", Journal of Applied Physics, Vol. 110, No. 8, 083522-1-5 (2011). (査読有)
http://www.lib.kobe-u.ac.jp/infolib/meta_pub/G0000003kernel_90001617
- ③ Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada, "Interaction between conduction-band edge and nitrogen-related localized levels in nitrogen doped GaAs", Physica Status Solidi C, Vol. 8, No. 2, pp. 365-367 (2011). (査読有)

- ④ Y. Harada, O. Kojima, T. Kita, and O. Wada, "Bound biexciton luminescence in nitrogen δ -doped GaAs", Physica Status Solidi B, Vol. 248, No. 2, pp. 464-467 (2011). (査読有)

他4件

[学会発表] (計19件) (総計28件)

- ① 原田幸弘, 久保輝宜, 井上知也, 小島磨, 喜多隆, "窒素をデルタドーブしたGaAsにおける束縛励起子発光線幅の温度依存性", 第59回応用物理学関係連合講演会, 18a-E1-2, 早稲田大学(2012年3月).
- ② 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, 15p-E1-7, 早稲田大学(2012年3月). (招待講演)
- ③ 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, III B-106, 熊本大学(2011年12月).
- ④ 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, P-9-11, Aichi Industry & Labor Center (WINC AICHI), Nagoya, September 28-30 (2011).
- ⑤ 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, 21pPSA-37, 富山大学(2011年9月).
- ⑥ 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回応用物理学会学術講演会, 1p-K-10, 山形大学(2011年9月).
- ⑦ 原田幸弘, 久保輝宜, 井上知也, 小島磨, 喜多隆, "窒素をデルタドーブしたGaAsにおける束縛励起子発光線の起源", 第72回応用物理学会学術講演会, 30p-ZA-6, 山形大学(2011年8月).
- ⑧ 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, Th3-10, Laforet Biwako, Moriyama, June 29-July 1 (2011).
- ⑨ Y. Harada, T. Kubo, T. Inoue, O. Kojima, and T. Kita, "Diamagnetic shift of exciton bound to the nitrogen pairs in GaAs", The 38th International

Symposium on Compound Semiconductors, Tu-1B.4, Berlin, Germany, May 22-26 (2011).

- ⑩ 原田幸弘, 久保輝宜, 井上知也, 小島磨, 喜多隆, “窒素をデルタドープした GaAs における束縛励起子発光線のキャップ層成長条件依存性”, 第 58 回応用物理学関係連合講演会, 25p-BQ-3, 神奈川工科大学 (2011 年 3 月) .
- 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の磁気光学特性”, 第 58 回応用物理学関係連合講演会, 25a-KV-6, 神奈川工科大学 (2011 年 3 月) .
- ⑫ 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輻射再結合寿命”, 「ナノ構造・物性」第 3 回研究会, G-11, 神戸大学 (2011 年 3 月) .
- ⑬ 久保輝宜, 井上知也, 原田幸弘, 小島磨, 喜多隆, “GaAs 中の窒素等電子トラップ束縛励起子の発光ダイナミクス”, 第 21 回光物性研究会, III A-86, 大阪市立大学 (2010 年 12 月) .
- ⑭ 原田幸弘, 久保輝宜, 小島磨, 喜多隆, “窒素をデルタドープした GaAs における励起子微細構造の反磁性シフト”, 第 21 回光物性研究会, II B-74, 大阪市立大学 (2010 年 12 月) .
- ⑮ 原田幸弘, 喜多隆, “III-V 半導体中不純物制御と励起子物性”, 2010 年秋季第 71 回応用物理学学会学術講演会, 15p-NB-8, 長崎大学 (2010 年 9 月) . (招待講演)
- ⑯ 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, P2-056, COEX, Seoul, Korea, July 25-30 (2010).
- ⑰ 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, 13P01, Brisbane, Queensland, Australia, July 11-16 (2010).
- ⑱ 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, FrE1-2, Takamatsu, Japan, May 31-June 4 (2010).
- ⑲ Y. Harada and T. Kita, “Emission

properties of excitons strongly localized to nitrogen pairs in GaAs”, The International Conference on Nanophotonics 2010, IN-06, Tsukuba, Japan, May 30-June 3 (2010). (Invited Talk)

他 9 件

〔その他〕

ホームページ等

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

原田 幸弘 (HARADA YUKIHIRO)

神戸大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：10554355