

「ナノと物性」研究領域 領域活動・評価報告書

—平成17年度終了研究課題—

研究総括 神谷 武志

1. 研究領域の概要

この研究領域は、原子・分子レベルで制御された物質、それらの集合体、異種材料の融合、さらに組成や構造をナノメートルレベルで制御・加工した材料、すなわち「ナノ材料」に関する研究を対象とする。

具体的には、機能材料として従来のバルク材にない特異な能力を発揮することが期待される究極の人工物質であるナノ材料が、今後情報、医療、エネルギー等、あらゆる産業分野を支える技術となる状況を踏まえ、新規ないし高度な機能発現を目指した材料設計、合成・形成の方法、またはナノ物性評価やデバイス試作に関する研究が含まれる。

2. 研究課題・研究者名

別紙一覧表参照

3. 選考方針

選考の基本的な考えは下記の通り。

- 1) 選考は「ナノと物性」領域に設けた選考委員8名と研究総括で行う。
- 2) 選考方法は、書類選考、面接選考及び総合選考とする。
- 3) 選考に当たっては、基本的には募集要項に公表した選考基準に沿って行ったが、特に以下の点に留意した。

テーマ選択に関しては、

- ①本領域は非常に広い分野をカバーしており、それぞれの分野できらりと光る、すなわち強いインパクトを与えるものであれば分野を問わない、また分野間のバランスも特には考慮しない。
- ②ナノに関してはかなり前から研究が進められており、ある程度の基礎は出来ているので、その基礎に立脚してどのような花(社会貢献)が開かせられるかという部分にも注目する。

また、研究者個人に関しては、

- ①独立して、自分の考えで研究を進められること。
- ②自ら手を下し、研究に専念できること。

4. 選考の経緯

一応募課題につき領域アドバイザー8名が書類審査し、書類選考会議において面接選考の対象者を選考した。続いて、面接選考および総合選考により、採用候補者を選定した。

選考	書類選考	面接選考	採用者
対象者数	125名	19名	11名

5. 研究実施期間

平成14年11月～平成18年3月

6. 領域の活動状況

領域会議:7回

研究総括(または技術参事)の研究実施場所訪問:46回

研究総括の研究実施場所訪問について:

研究実施期間中に全研究者を訪問し、研究環境の整備や研究進捗状況の確認、組織の責任者への協力依頼を行った。

7. 評価の手続き

研究者の課題別評価報告書を基に、研究総括が評価を行った。これに先立って同じく課題別評価報告書に基づいて領域アドバイザーが行った研究者評価レポートを参考にした。

(評価の流れ)

平成 17 年 10 月	van der Wiel 研究者研究期間終了
平成 18 年 1 月	研究報告書及び研究課題別評価提出
平成 18 年 3 月	研究報告会開催
平成 18 年 3 月	研究総括による評価
平成 18 年 3 月	研究期間終了(van der Wiel 研究者を除く)

8. 評価項目

- (1) 研究開始時点の研究構想を基準とした研究の達成度;
- (2) 外部発表(学術論文、口頭発表等)、特許など研究成果の発信状況;
- (3) 学術賞、学会招待講演、新聞記事等外部からの評価状況;
- (4) 得られた研究成果の科学技術への貢献(基礎、応用を含む。外部からの評価に至らなくとも独創性の高い着手は評価)。

9. 研究結果

第 2 期研究者 11 名が行った研究結果とそれに対する評価を個別に記述する。

○ **Wilfred van der Wiel 研究者**

半導体中の電子スピン状態を自由に制御することは将来の量子情報処理への有力な方法として期待されている。本研究は少数の電子を閉じ込める微細な量子ドットを対象に、電子スピン共鳴(ESR)の手法を用いて制御することを目的に行った実験的研究である。主要な研究成果として次の 3 点を挙げる事が出来る。第 1 に量子井戸結晶成長と微細加工法を用いて作成した柱状量子ドット素子を自作し、磁気測定を行うことにより、 g 因子が 3 次元状態と異なること($g=0.33$)を明らかにしたこと; 第 2 に当初計画した ESR 法によるスピン制御は、残留交流電場の存在のために正しい動作が出来ないことが明らかとなり、これに代わるものとして傾斜磁場を用いた新しい制御法を考案し、理論予測を行ったこと; 第 3 にスピン状態のコヒーレンス時間(T_2 時間)を支配する電子-フォノン相互作用を直接に明らかにするために、2 重トンネル量子井戸構造の素子に表面波超音波を照射し、フォノンに助けられたトンネル効果の直接観察に初めて成功し、フォノン結合の強さを推定したこと、である。

研究成果は 9 篇の原著論文、1 篇の解説論文、8 件の招待講演等で公表している。特に半導体量子ドット構造を用いた電子制御の一連の研究をまとめた総合報告(Rev. Mod. Phys.誌)は約 150 回も引用され、また量子情報に関するゴードン会議の座長を勤めるなど、当分野の第一線の研究者として認知されている。本研究の結果は電子スピンを一つずつ制御するための基礎となる重要な知見であり、当初の予想とは異なるものの全体として予想を超える成果と判断する。

○ **岩井伸一郎 研究者**

電子間相互作用の強い物質(強相関物質)においては外力の印加によって引き起こされる状態変化が系全体に伝搬し、巨大な物質定数の変調として現れることが知られている。外力としてフェムト秒光パルスを用いた場合の光学定数の高速な変化を理解し、適切な材料選択を行えば将来の超高速光スイッチングの候補となることが期待できる。

本研究の提案時点で無機強相関物質(ハロゲンブリッジニッケル鎖化合物)についての光誘起モット遷移の研究を行っていたが、研究期間中には主として 2 次元有機導体(BEDT-TTF)₂X (Xはアクセプタ分子)を対象に研究した。近赤外フェムト秒光パルスによって誘起された超高速構造変化を中赤外線プローブによって観察し、過度的な金属状態が平衡状態に緩和する過程が相転移に特有な臨界減速を示す明確なデータを獲得し、弱励起条件では応答時定数が 1ps 程度であることを明らかにした。これらの成果は 5 篇の国際学術誌原著論文、2 篇の国際会議プロシーディングス、1 件の専門書の分担執筆として公表されている。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断する。

○ **大岩顕 研究者**

近年注目を集めているスピンを用いた情報処理技術、いわゆるスピントロニクスの可能性を広げるものとして磁場を用いない信号入出力法の探求がある。本研究では対象として磁性半導体材料を取り上げ、光ないし電流によるスピン状態の観察および制御を試みている。

主要な成果として次の 4 点が挙げられる。第 1 に(Ga,Mn)As への円偏光励起パルスによって強い Kerr 回転が生じ、数ピコ秒および数十ピコ秒の緩和時間で復元することを見出したこと; 第 2 に Mn をデルタドーピングした GaAs 結晶において Mn スピンの円偏光誘起歳差運動を観測したこと; 第 3 に(Ga,Mn)As への円偏光励起パルスによって過度的な歳差運動を観測したこと; 第 4 に(Ga,Mn)As トンネル磁気抵抗効果素子において電流誘起磁化反転を観測したこと、である。円偏光励起による強い Kerr 回転は誘起された正孔のスピン一つあたり約 100 個の Mn スピンに作用を及ぼ

す複合体形成として説明できる。

研究成果は 9 篇の英文原著論文、4 件の招待講演等で公表している。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断する。

○ 尾上順 研究者

本研究者は C_{60} フラーレンに電子照射すると導電性のあるピーナツ型ナノカーボン分子が生成することを発見したが、本研究では理論、実験の両面からその物性を明らかにしている。

主な研究成果として次の4点が挙げられる。第 1 に電子線照射条件によってフルーレン分子が融合反応し、ピーナツ型構造を持つ新しい分子が生成されていることを明らかにしたこと(同定は主として赤外振動スペクトルの理論予測との比較による);第 2 に電子線照射装置に組み込まれた紫外線光電子分光装置によって価電子帯の光電子スペクトルを観測し、フェルミ準位を横切って状態密度が連続的に伸びており、グラファイトの半金属性とは違って金属状態であることを明らかにしたこと;第 3 に擬 1 次元構造をもつピーナツ型フルーレンポリマーのバンド構造計算を行い、7 員環を含む場合半導体に、8 員環を含む場合金属になることを示したこと;第 4 に電子状態とナノポロジの関連を明らかにするため、ナノ分光顕微鏡装置を開発したこと、である。

これらの成果を 13 篇の原著論文、1 篇の解説論文、11 件の招待講演として発表している。また、2005 年に手島記念研究賞を受賞している。全体として予想の程度の成果が出ていると判断する。

○ 近藤高志 研究者

コヒーレント光のエネルギー応用、情報応用が進む中で、非線形光学材料による波長変換素子の利用が広がっている。化合物半導体材料は実用化されているニオブ酸リチウムと比較すると、2 次非線形光学定数が大きく、将来性があるが、変換効率を高めるために必要とされる擬位相整合(QPM)構造の導入が困難であった。本研究がこれを解決する方法として提案した副格子交換法による周期構造の作成と制御性の向上が研究の課題である。

主要な研究成果は次の 3 点である。第 1 に InP 基板上に Ge バッファ層を介して InGaAs 層を分子ビームエピタキシャル法で成長させる際基板結晶方位を適切に傾け、QPMに必要な副格子交換結晶成長を可能にしたこと;第 2 に平坦化処理後に行う再成長で発生する成長速度差の原因が異方性拡散によることを理論的、実験的に明らかにしたこと;第 3 に QPM 構造を持つ GaAs/AlGaAs 系光導波路におけるパラメトリック蛍光で予想値の変換効率(単位長あたり)を実現したこと、などである。結晶成長の面内不均一性が解消されれば在来の非線形光学材料を凌駕すると予想される。

研究成果は4篇の英文原著論文、2篇の解説論文等として公表されている。また2003年度に高岡市民文化賞(学術研究)を受賞している。全体として予想された程度の達成度と評価する。

○ 須田淳 研究者

現代の半導体エレクトロニクスを支える基礎素材であるシリコンの本質的な限界を超える素材としてバンドギャップエネルギーの大きい半導体が注目され、IV 族の SiC や III-V 族の GaN の結晶成長およびデバイス開発が進められている。本研究の狙いは原子層の制御が可能な分子ビームエピタキシーを用いて IV 族と III-V 族のヘテロ接合結晶成長技術を開拓し、両者の利点を兼ね備えた機能融合材料を創出することである。

本研究で得られた主要な成果として次の 4 点を挙げる事が出来る。第 1 に界面を精密に制御することにより、SiC 基板上に品質の良い AlN 単結晶膜を成長させたこと;第 2 にこれを用いて MIS 型電界効果トランジスタを試作し、良好なトランジスタ特性を得たこと;第 3 にワイヤレス応用を目指して、GaN/SiC エピタキシャル結晶を用いたヘテロバイポーラトランジスタ(HBT)を試作し、良好な特性を得たこと;新しい基板方位での結晶成長を行い、4H-SiC 基板上の AlN を世界で始めて成長させることに成功したこと、である。

本研究の成果は 10 篇の英文原著論文、1 篇の解説論文、2 件の招待講演で発表した。また日本結晶成長学会から講演奨励賞を受けている。全体として予想された程度の達成度と評価する。

○ 田中健太郎 研究者

DNA が分子内および分子間相互作用によって特異な高次構造を持つことに着目し、水素結合の代わりに金属配位結合を利用することによって金属原子を含む錯体人工 DNA を合成し、新しい機能を見出すことを研究の目的とした。

主要な研究成果として次の4点を挙げる事が出来る。第 1 に配位数、配位構造の異なる種々の人工ヌクレオシドを合成し、これを用いて銅イオンを含む金属錯体型人工 DNA を構築するとともに、紫外吸光度の温度依存性より、銅イオンの添加が熱的安定性を顕著に向上させることを見出したこと;第 2 に酵素的遺伝子関連反応の制御を目的として DNA ポリメラーゼによる伸張反応に及ぼす人工 DNA の効果を調べ、顕著な阻害効果の存在を確認したこと;第 3 にヒドロキシピリドン型ヌクレオシド 6 を系統的に配列した二重鎖 DNA を合成し、二重鎖内への銅イオンの集積を行い、5 個のイオンの一次元配列を実現し、紫外吸光度の銅イオン滴定による変化で確かめたこと;第 4 に人工錯体型人工 DNA をテンプレートとした異種金属イオンの集積化を行ったこと、である。これらは今後材料科学的、生物化学的に有用な物質合成の基礎として重要な知見である。

研究成果は Science 誌を含む国際学術誌への6篇の原著論文、7 篇の解説論文、13 件の招待講演などで公表され、錯体化学会より研究奨励賞を受賞している。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断する。

○ **町田友樹 研究者**

量子情報処理を実現するため種々の物理現象の探索が精力的に続けられているが、外界との相互作用が弱い核スピンはコヒーレンス緩和時間が長い利点を持つ。制御性の観点から固体中の核スピんに注目し、化合物半導体中の量子ホール素子において電子スピン-核スピン間超微細相互作用を介した核スピンの電氣的制御を行った。

主要な研究成果として次の3点を挙げることができる。第1にAlGaAs/GaAsヘテロ構造ホール効果素子にサイドゲート電極を設けて量子ホール端状態を制御し、核スピンの偏極・検出実験を行い、50%程度の核スピン初期化率が実現できることを示したこと;第2に局所核磁気共鳴により位相緩和時間 T_2^* 、 T_2 を決定したこと;第3にサイドゲート電圧の調節によって核スピンと電子スピンの結合の強さを制御できることを見出したこと、である。また、新しい材料としてSi/SiGeホール素子を作成し、より長い時定数の量子端効果を確認している。

これらの研究成果は4篇の英文原著論文、5 篇の解説論文および国内外での7 件の招待講演等で公表している。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断する。

○ **松田一成 研究者**

波長によって分解能が制限される光学顕微鏡を超えた近接場顕微鏡の格段の性能向上と新しい応用を研究の目的としている。従来公表されていた分解能 100nm を大幅に上回る 30nm の分解能を実現することが出来た。

主要な研究成果として次の3点を挙げることが出来る。第1に先端を尖らせたファイバースコープを覆う遮光金属膜の表皮効果を理論的に解析し、局在プラズモン共鳴の利用によって100倍以上の増強が可能であることを示すとともに、プローブの最適化を図って最小分解能 20nm を達成したこと、第2に半導体量子ドットに閉じ込められた励起子波動関数のマッピングを行い、孤立した励起子と励起子分子の空間分布の違いを見出したこと;第3に局在光電磁場による禁制緩和を利用して励起子の励起準位を測定したこと、である。また、これらの成果を発展させて、生体物質への適用を視野に入れたナノイメージ分光システムを開発中である。

研究の成果は8 篇の国際学術誌への原著論文、5 篇の解説論文、9 件の招待講演などで公表され、また、光科学技術研究振興財団から研究表彰を受けている。全体として当初の予想を超える成果が得られたと判断する。

○ **山本雅哉 研究者**

外科的な再生医療の困難な肝硬変、肺線維症などの慢性線維性疾患に対する新しい対応として、生体シグナル分子の遺伝子と水溶性高分子とのナノ複合体を用いたドラッグデリバリーシステムを開発することを研究の目的としている。

主要な研究成果として次の2点を挙げることが出来る。第1に肝臓に高い親和性を持つ多糖分子プルランに生体内ポリアミンの一つであるスペルミンを導入し、これとプラスミド DNA を混合して得られるポリイオンコンプレックスをヒト肝がん細胞株に適用し、遺伝子発現率を最大にする最適のスペルミン導入率が存在することを明らかにしたこと;第2に、開発した物質をマウスの肝臓に適用し、遺伝子発現率を最大化する条件を求めたこと、である。実際リンパ腫細胞を静脈内から移植したマウスにおいて肝臓に転移する確率はナノ複合体の投与によって有意な生存期間の延長が認められた。

研究成果は3 件の国際会議発表、招待講演1 件、解説論文1 篇のほか、2 篇の英文学術誌への原著論文掲載が決定している。これらを勘案し全体として予想の程度の成果が出ていると判断する。

○ **湯浅新治 研究者**

トンネル磁気抵抗効果素子は高感度の磁気ヘッドおよび高速・大容量・不揮発ランダムアクセスメモリー(MRAM)の有力な候補として世界的に激しい研究開発が続けられている対象である。本研究はトンネルを担うスピン偏極電子のコヒーレンスを劣化させるトンネルバリア膜および界面状態の抜本的な改善によって性能向上を図ろうとする研究であり、結晶性 MgO をバリア層として用いるというアプローチを取った。

主要な研究成果として次の3点を挙げることが出来る。第1に分子ビームエピタキシー法によって Fe/MgO/Fe 単結晶積層構造を作成し、トンネル電子流のコヒーレンスを向上させた結果、オンオフ比を従来の70%より大幅に上回る180%まで向上させ、さらに近年 Co/MgO/Co 系で410%という世界記録を樹立したこと;第2にコヒーレントトンネリングを実証する現象としてオンオフ比のバリア膜厚依存性が振動性の挙動を示すことを発見したこと;第3に大面積で生産性の高い製造方法としてスパッタリングとポストアニーリングの組み合わせで結晶性の良い MgO バリア膜を作成する方法を考案し、室温でのオンオフ比230%を記録したこと、である。これらの成果は次世代メモリー産業の最も有力な新技術を提供するものと考えられ、開発研究に向かって研究をさらに加速している。また、種々の手法を用いてトンネル過程の詳細な分析も行っており、制御性の向上の基礎として重要な知見を蓄積している。

研究成果は11 篇の原著論文、25 件の招待講演、4 篇の解説論文等で公表している。2005 年度文部科学大臣若手科学者賞、応用物理学会 JJAP 論文賞を含む7 件の表彰を受けており、社会的な評価の高さを裏付けている。全体として予想を大幅に超える画期的な成果を挙げた研究と判断する。

9. 評価者

[研究総括]

神谷 武志 独立行政法人 大学評価・学位授与機構 学位審査研究部 教授

[領域アドバイザー]

青柳 克信 東京工業大学大学院総合理工学研究科物理電子システム創造専攻 教授
理化学研究所ナノサイエンス研究プログラム推進本部 ナノサイエンス研究技術開発・支援チーム
チームリーダー

荒川 泰彦 東京大学先端科学技術研究センター 教授
生産技術研究所 教授

小倉 睦郎 独立行政法人 産業技術総合研究所光技術研究部門
量子ナノ構造グループ グループリーダー

片岡 一則* 東京大学大学院 工学系研究科マテリアル工学専攻 教授

川畑 有郷 学習院大学理学部物理学科 教授

神原 秀記 株式会社 日立製作所中央研究所 フェロー

曾根 純一 日本電気株式会社基礎・環境研究所 所長

樽茶 清悟 東京大学大学院工学系研究科 教授

横山 浩 独立行政法人産業技術総合研究所ナノテクノロジー研究部門 研究部門長

*平成15年7月より参画

(参考)

(1) 外部発表件数

	国内	国際	計
論文	1	92	92
口頭	186	113	293
その他	21	8	29
合計	208	213	414

※平成18年3月現在

(2) 特許出願件数

国内	国際	計
19	19	38

(3) 受賞等

- ・尾上 順
平成17年度 手島記念研究賞(H18年2月)
- ・近藤 高志
第14回高岡市民文化賞(学術研究)(H15年4月)
- ・須田 淳
日本結晶成長学会 第33回結晶成長国内会議講演奨励賞 (H15年11月)
- ・田中 健太郎
錯体化学会 錯体化学会研究奨励賞 (平成15年9月)
- ・松田一成
光科学技術研究振興財団 研究表彰(H16年3月)
- ・湯浅 新治
丸文学術賞(2006年3月)
応用物理学会 JJAP 論文賞 2005年9月
市村学術賞(貢献賞)2005年4月
文部科学大臣表彰 若手科学者賞 2005年4月
日本応用磁気学会 優秀研究賞 2004年9月

(4) 招待講演

国際 28件

国内 49件

「ナノと物性」領域 研究課題名および研究者氏名

研究者氏名 (参加形態)	研究課題名 (研究実施場所)	所属機関 (応募時所属)	研究費 (百万円)
Wilfred Gerard van der Wiel (兼任)	半導体人工原子・分子における高周波電子スピン操作 (東京大学 大学院工学系研究科)	Twente University, Institute for NanoTechnology Research Program Director (東京大学 大学院工学系研究科 客員研究員)	35
岩井 伸一郎 (兼任)	強相関ナノ電子構造における光誘起協同現象による超高速スイッチング (東北大学 大学院理学研究科)	東北大学 大学院理学研究科 助教授 ((独) 産業技術総合研究所 強相関電子技術研究センター 主任研究員)	63
大岩 顕 (兼任)	ナノ強磁性半導体におけるスピン注入磁化反転の研究 (東京大学 大学院工学系研究科)	東京大学 大学院工学系研究科 講師 (東京工業大学 像情報工学研究施設 講師)	46
尾上 順 (兼任)	新しい多面体ナノ炭素質の創製と機能発現 (東京工業大学 原子炉工学研究所)	東京工業大学 原子炉工学研究所 助教授 (同上)	49
近藤 高志 (兼任)	副格子交換ヘテロ構造半導体の高度制御 (東京大学 大学院工学系研究科)	東京大学 大学院工学系研究科 助教授 (同上)	39
須田 淳 (兼任)	界面ナノ構造制御によるワイドギャップ半導体の機能融合とパワーデバイスへの展開 (京都大学 大学院工学研究科)	京都大学 大学院工学研究科 講師 (同上 助手)	43
田中 健太郎 (兼任)	錯体型人工 DNA を用いた金属イオン配列制御と機能発現 (東京大学 大学院理学系研究科)	東京大学 大学院理学系研究科 助教授 (同上)	44
町田 友樹 (兼任)	量子ホール系における核磁気共鳴を利用した固体量子ビット素子の開発 (東京大学 生産技術研究所)	東京大学 生産技術研究所 助教授 (科学技術振興事業団 基礎的研究発展推進事業 研究員)	59
松田 一成 (兼任)	極限光ナノプローブによる半導体ナノ構造の波動関数イメージング・操作 (京都大学 化学研究所)	京都大学 化学研究所 助教授 (財団法人 神奈川科学技術アカデミー 研究員)	49
山本 雅哉 (兼任)	ナノ複合体を用いた遺伝子治療による内科的再生医療 (京都大学 再生医科学研究所)	京都大学 再生医科学研究所 助手 (同上)	38

<p>湯浅 新治</p> <p>(兼任)</p>	<p>超Gbit-MRAMのための単結晶TMR素子の開発</p> <p>((独)産業技術総合研究所エレクトロニクス研究部門)</p>	<p>(独)産業技術総合研究所エレクトロニクス研究部門スピントロニクスグループ長</p> <p>(同上 主任研究員)</p>	<p>38</p>
--------------------------	--	--	-----------

研究課題別評価

1 研究課題名:

High-frequency electron-spin manipulation in semiconductor artificial atoms and molecules

2 研究者氏名:

Wilfred G. van der Wiel

3 研究のねらい:

The aim of the project is high-frequency (GHz) electron-spin manipulation in semiconductor few-electron quantum dots. The main motivation of this proposal is formed by the possible application of electron spins as basic building blocks for quantum logic.

One concrete aim is to rotate a single-electron spin in a few-electron quantum by means of a locally generated electron spin resonance (ESR) field. A key experiment that still needs to be done is the determination of the single-electron spin decoherence time T_2 in a semiconductor environment. The next logical step after studying single dots is to look at double dot systems. The entanglement of two electron spins using tunnel-coupled quantum dots is of great importance for the realization of the XOR (or controlled-NOT) gate operation.

4 研究成果:

4.1. Few-electron quantum dot devices for single electron spin resonance

We have fabricated vertical few-electron quantum dot (QD) devices with an integrated high-frequency line to generate an ac magnetic field in the vicinity of the QD [1,2]. This ac magnetic field is intended for realizing single electron spin resonance (ESR) and measuring the single-electron coherence time T_2 . The effective g -factor in our GaAs dot is derived and microwave experiments show the importance of photon assisted tunneling (PAT) and pumping.

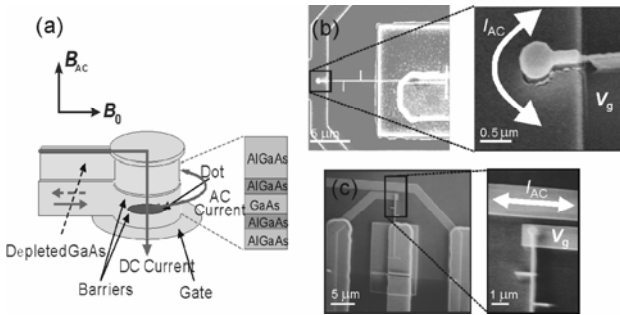


FIGURE 1. (a) Schematic of a vertical quantum dot (VQD) with a ring gate used for generating an ac magnetic field B_{ac} . The device is positioned in a static magnetic field B_0 parallel to the dot plane. (b) Scanning electron microscope (SEM) pictures of a VQD device with a local ac magnetic field generator. In the "combination type" a Ti/Au gate electrode is used for applying both a DC voltage and an ac current. (c) SEM pictures of a VQD device with a separate local magnetic field generator. In the "separate wire type" a Ti/Au wire is fabricated in the vicinity ($\sim 1 \mu\text{m}$) of the dot.

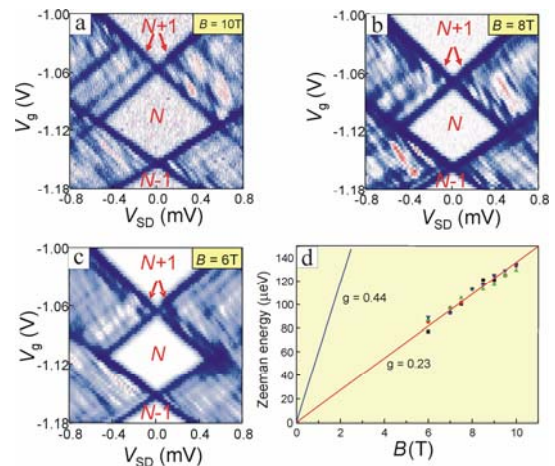


FIGURE 2. Plots of the differential conductance dI/dV vs. gate voltage V_g and source-drain voltage V_{sd} for three different parallel magnetic fields, $B = 10 \text{ T}$ (a), 8 T (b), and 6 T (c). The B -evolution of a Zeeman split state (indicated by arrows) is clearly observed. (d) Zeeman energy as a function of B . The Zeeman energy cannot be resolved for $B < 6 \text{ T}$. From the linear fit to the data (red line) $|g_{\text{dot}}| = 0.23 \pm 0.02$ is derived. The Zeeman energy in bulk GaAs ($|g_{\text{GaAs}}| = 0.44$) is plotted for comparison. The different symbols correspond to different positions in the Coulomb diamond where the Zeeman splitting has been evaluated.

Examples of our ESR devices are shown in Fig. 1. Ideally, a single electron is confined in the QD and its discrete orbital energy level is Zeeman split due to a static magnetic field B_0 by $\Delta E_Z = g_{\text{dot}} \mu_B B_0$ with g_{dot} the g -factor in the dot and μ_B the Bohr magneton. A microwave magnetic field, B_{ac} , in a plane perpendicular to B_0 and in resonance with the precession rate, causes coherent oscillations between the states $|\uparrow\rangle$ and $|\downarrow\rangle$ (electron spin resonance: ESR). The rotation frequency, or Rabi frequency, is proportional to the strength of B_{ac} : $f_{\text{Rabi}} = g_{\text{dot}} \mu_B B_{\text{ac}} / h$. The field B_{ac} is generated by driving an ac current I_{ac} through a microstripline in the vicinity of the QD. The Larmor precession and the B_{ac} -induced Rabi oscillations offer two perpendicular axes of rotation, enabling in principle any desired qubit rotation.

Since g_{dot} is expected to differ significantly from the value in bulk GaAs we first independently determined g_{dot} , using excited state spectroscopy, as shown in Fig. 2. The Zeeman energy is derived for a series of magnetic fields from the energy spacing between the ground state and the Zeeman excited state (indicated by red arrows). We derive $|g_{\text{dot}}| = 0.23 \pm 0.02$, which is smaller than that of bulk GaAs ($|g_{\text{GaAs}}| = 0.44$), probably due to the effect of electron confinement and the influence of the $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ barriers (bulk g -factor +0.4).

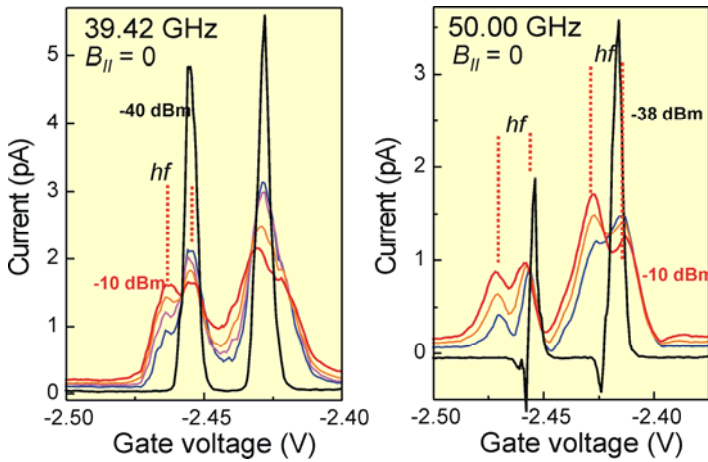


FIGURE 3. I - V_g plots at $B = 0$ for microwave powers from -40 to -10 dBm, $f = 39.42$ GHz (a) and from -38 to -10 dBm, $f = 50$ GHz (b). Satellite peaks ascribed to photon assisted tunneling are indicated.

Our microwave results (Fig. 4) indicate that instead of generating only an AC magnetic field, we also create a significant AC electric field near the dot. We have not been able to confirm ESR in our system, hampered by the spurious electric ac field. Our results confirm that microwave signals up to 50 GHz reach the sample, but also indicate that we have to reduce the AC voltage generated in the dot and possibly also the heating of the sample.

As an alternative for the above strategy, we have described a general concept for realizing a solid-state quantum two-level system (Fig.4), based on a single electron in a quantum dot (Fig.5), which combines ease of manipulation with long coherence times [3]. An ac voltage is applied to let an electron in a QD oscillate under a static slanting Zeeman field. This effectively provides the electron spin with the necessary time-dependent magnetic field. Note the analogy with the Stern-Gerlach experiment, where the spin and orbital degrees of freedom are coupled by employing an inhomogeneous magnetic field. A robust single pseudo-spin system is obtained that can be controlled by voltage only, without the need for an external time-dependent magnetic field or spin-orbit coupling. This unique and important feature is expected to considerably facilitate experimental realization of qubits based on single electrons. It is shown that both single qubit rotations and the C-NOT operation can be realized, thereby providing a universal set of gates for quantum computation. Using this approach it is also possible to determine the intrinsic single electron spin coherence time in the system.

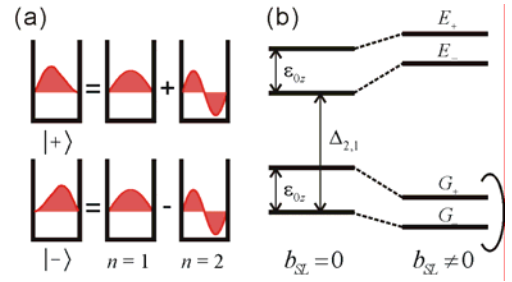


FIGURE 4. (a) Schematic hybridization of multiple orbital states. (b) Energy spectrum of a quantum dot (QD) with two orbital levels (level spacing $\Delta_{2,1}$) and Zeeman energy ϵ_{0z} with/without a magnetic field gradient b_{SL} . The lowest levels, $|G_{\pm}\rangle$, constitute a qubit. $|E_{\pm}\rangle$ are excited states.

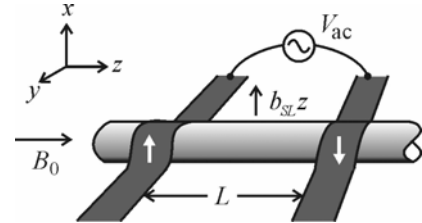


FIGURE 5. Model of the 1D QD in a slanting Zeeman field. Ferromagnetic gate electrodes (dark grey) are located at either end of the dot and are magnetically polarized in the plus/minus x -direction, creating a magnetic field gradient b_{SL} . A uniform magnetic field B_0 is applied in the z -direction. The spin in the dot is controlled by applying an oscillating voltage V_{ac} between the two gates.

4.2. Electron-phonon Coupling in a Double Quantum Dot

Electron-phonon coupling often leads to dissipation and decoherence problems in nanoelectronic devices. The decoherence in a tunable two-level quantum system (qubit), such as a double quantum dot (DQD) [4], is of particular interest in the recent light of quantum computation and information. In analogy to quantum states in natural atoms – which dominantly couple to, and are successfully controlled by photons – the electronic states in solid state systems may be controlled by phonons, taking advantage of the strong electron-phonon coupling. We have observed non-adiabatic transport through a double quantum dot under irradiation of surface acoustic waves generated on-chip [5]. At low excitation powers, absorption and emission of single and multiple phonons is observed. At higher power, sequential phonon assisted tunneling processes excite the double dot in a highly non-equilibrium state. The present system is attractive for studying electron-phonon interaction with piezoelectric coupling.

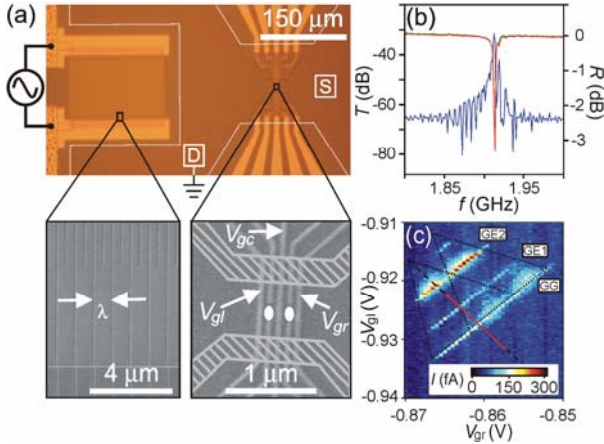


FIGURE 6. (a) Picture of the device with interdigital transducer (IDT, left) and double quantum dot (DQD, right). The source (S) and drain (D) reservoirs are indicated. The IDT-DQD distance is $227.5 \mu\text{m}$. In the scanning electron micrograph (SEM) of the IDT, the electrodes, separated by $\lambda = 1.4 \mu\text{m}$, are visible. In the hatched regions of the DQD SEM the 2DEG is depleted by dry etching. The position of the dots is indicated by white dots. (b) Transmission T (blue curve) and reflection R (red and green curves) at room temperature of two IDTs similar to the one used in the experiments, separated by a distance of $455 \mu\text{m}$. A peak in T and a dip in R are visible at 1.92 GHz . (c) Color scale plot of the DQD current vs. gate voltages V_{g_i} and V_{g_r} at source drain voltage $V_{SD} = 500 \mu\text{V}$ without SAWs. The dual gate sweep direction for the SAW experiments is indicated by the red arrow.

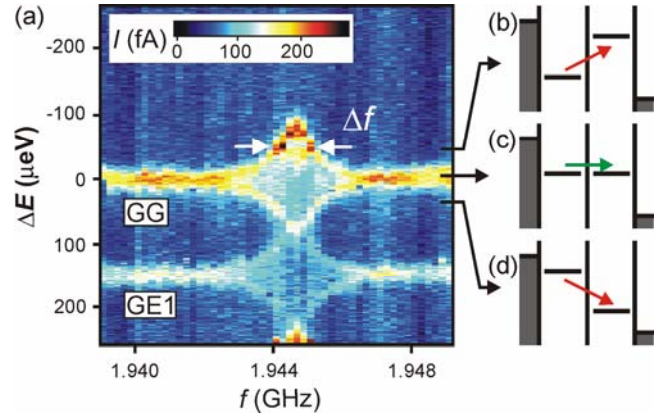


FIGURE 7. (a) Color scale plot of the DQD current versus ground state level spacing ΔE and microwave frequency f applied to the IDT (-40 dBm microwave power). V_{g_i} and V_{g_r} are swept along the red arrow indicated in Fig. 1(c). The current at $\Delta E=0$ and $150 \mu\text{eV}$ corresponds to resonant tunneling through the ground states (GG), and through the left ground state and an excited state in the right dot (GE1), respectively. A clear resonance is observed at 1.9446 GHz ($\Delta f = 1.4 \text{ MHz}$), corresponding to the IDT resonance frequency. The inelastic current is due to absorption and emission of SAW phonons, as schematically depicted in the energy diagrams (b) and (d), respectively. The energy diagram for elastic resonant tunneling is shown in (c).

Our device is described in Fig. 6. Figure 6(c) shows the single-electron tunneling current through the DQD versus gate voltages V_{g_i} and V_{g_r} with a large bias voltage of $500 \mu\text{V}$ with no microwave power ($P=0$) applied to the IDT. When microwaves are applied to the IDT, we observe significant broadening and splitting of the resonant tunneling peaks only at the IDT resonant frequency, $f_{\text{SAW}} = 1.9446 \text{ GHz}$, as seen in the frequency dependence of the current spectrum in Fig. 7(a). The resonance frequency corresponds very well to that of the GaAs reference sample (1.92 GHz) of Fig. 6(b).

The microwave power dependence of the current spectra is presented in Fig. 8(a). The peak splitting clearly increases with microwave power P . In Fig. 8(d) the splitting is plotted (black dots) as function of the amplitude of the microwave voltage applied to the IDT, V_{IDT} , confirming the linear dependence. The non-adiabatic calculation in Fig. 8(c) shows clear additional structure in between the split peaks. This structure originates from the phonon satellite peaks that should be individually resolvable at $\Delta E = nhf_{\text{SAW}}$ if the peak width is smaller than the phonon energy. In our case, however, the peak width exceeds hf_{SAW} (but is less than $2hf_{\text{SAW}}$). We actually find good agreement between the calculated current spectra and the experimental data (including the inter-peak fine

structure) at finite microwave power as shown in Fig. 8(b), where we have applied the α -PdBm conversion derived in Fig. 8(d). Our data thus reveal clear quantum behavior, even when we cannot resolve individual phonon satellites. Quantum behavior is also observed in multiple excitation processes between excited states at higher power [Fig. 8(e)].

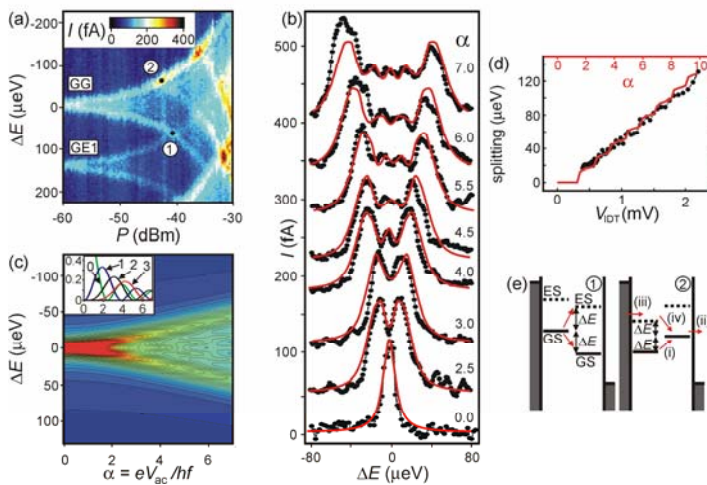


FIGURE 8. (a) Color scale plot of the DQD current versus ΔE and microwave power P , at $f_{\text{SAW}} = 1.9446$ GHz, for the same transitions as in Fig. 2. (b) Experimental (black dots) and calculated (red curves) current spectra for different microwave powers, extracted from (a) and (c), respectively. The experimental microwave power incident on the IDT is converted to normalized potential amplitude α using (d). The current height of the calculated spectra is fitted to the experimental data. (c) Calculated DQD current versus ΔE and α in the non-adiabatic limit, as explained in the text. Inset: squared Bessel functions $J_n^2(\alpha)$ for $n = 0, 1, 2$ and 3. (d) Splitting of the current peaks as function of the amplitude of the microwave voltage V_{IDT} applied to the IDT for the experimental data (black data points and axes), and current peak splitting derived from the calculated spectra

in (c) as function of α (red curve and axes). By matching the experimental and calculated curves, the conversion between P and α is found. (e) Schematic energy level diagrams for the positions 1 and 2 indicated in (a).

The current spectra reflect the amplitude of the local piezoelectric potential. The lowest power at which we can resolve peak splitting is -58 dBm, corresponding to $V_{\text{pe}} = 24$ μV , which is several orders of magnitude smaller than the power used to induce dynamical quantum dots and to induce lattice displacements measurable by optical interferometry. We find that the DQD can be employed as a very sensitive SAW detector and is promising for studying electron-phonon interaction.

References

- [1] T. Kodera, W.G. van der Wiel, K. Ono, S. Sasaki, T. Fujisawa and S. Tarucha, *Physica E* **22**, 518 (2004).
- [2] T. Kodera, W.G. van der Wiel, T. Maruyama, Y. Hirayama and S. Tarucha, in *Realizing controllable quantum states*, H. Takayanagi, J. Nitta (eds.), pp. 445–450, World Scientific Publishing, Singapore (2005).
- [3] Y. Tokura, W.G. van der Wiel, T. Obata and S. Tarucha, *Phys. Rev. Lett.*, in press; [cond-mat/0510411](#) (2005).
- [4] W. G. van der Wiel, S. De Franceschi, J. M. Elzerman T. Fujisawa, S. Tarucha and L. P. Kouwenhoven, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 1 (2003).
- [5] W.J.M. Naber, T. Fujisawa, H.W. Liu and W.G. van der Wiel, submitted to *Physical Review Letters*; [cond-mat/0601158](#) (2006).

5 自己評価:

The original goal of realizing single-electron electron spin resonance (ESR) has turned out to be extremely hard. The main problem is formed by spurious ac electric fields that obscure a possible ESR signal. Similar kind of problems have been described by groups at Harvard University and Delft University of Technology, where also attempts have been made to realize single-electron ESR. Motivated by the practical problems we came across, we have started working on a pulse-and-probe scheme that should, in principle, be able to cope with the problems. In addition, we have developed an alternative scheme based on a single electron in a slanting magnetic field, as discussed above. This work has resulted in a publication in *Physical Review Letters*. Experimental work on the realization of single-electron ESR will continue, based on the ideas developed.

As far as double quantum dots are concerned, we have made important progress in studying electron-phonon interaction in a potential two-qubit system. The work was recently submitted to *Physical Review Letters* and is expected to function as a stimulus for research on controlled electron-phonon interaction.

6 研究総括の見解:

半導体中の電子スピン状態を自由に制御することは将来の量子情報処理への有力な方法として期待されている。本研究は少数の電子を閉じ込める微細な量子ドットを対象に、電子スピン共鳴(ESR)の手法を用いて制御することを目的に行った実験的研究である。主要な研究成果として次の3点を挙げる事が出来る。第1に量子井戸結晶成長と微細加工法を用いて作成した柱状量子ドット素子を自作し、磁気測定を行うことにより、g因子が3次元状態と異なること($g=0.33$)を明らかにしたこと;第2に当初計画したESR法によるスピン制御は、残留交流電場の存在のために正しい動作が出来ないことが明らかとなり、これに代わるものとして傾斜磁場を用いた新しい制御法を考案し、理論予測を行ったこと;第3にスピン状態のコヒーレンス時間(T_2 時間)を支配する電子-フォノン相互作用を直接に明らかにするために、2重トンネル量子井戸構造の素子に表面波超音波を照射し、フォノンに助けられたトンネル効果の直接観察に初めて成功しフォノン結合の強さを推定したこと、である。

研究成果は9篇の原著論文、1篇の解説論文、8件の招待講演等で公表している。特に半導体量子ドット構造を用いた電子制御の一連の研究をまとめた総合報告(*Rev. Mod. Phys.*誌)は約150回も引用され、また量子情報に関するゴードン会議の座長を勤めるなど、当分野の第一線の研究者として認知されている。本研究の結果は電子スピンを一つずつ制御するための基礎となる重要な知見であり、当初の予想とは異なるものの全体として予想を超える成果と判断する。

7 主な論文等:

論文

05. **Surface acoustic wave induced transport in a double quantum dot**
W.J.M. Naber, T. Fujisawa, H.W. Liu and W.G. van der Wiel
Physical Review Letters, *in press*, [cond-mat/0601158](#) (2006).
04. **Coherent single electron spin control in a slanting Zeeman field**
Y. Tokura, W.G. van der Wiel, T. Obata and S. Tarucha
Phys. Rev. Lett. **96**, 047202 (2006).
03. **Fabrication and characterization of quantum dot single electron spin resonance devices**
T. Kodera, W.G. van der Wiel, T. Maruyama, Y. Hirayama and S. Tarucha, in *Realizing controllable quantum states*, H. Takayanagi, J. Nitta (eds.), pp. 445-450, World Scientific Publishing, Singapore (2005).
02. **Fabrication and characterization of quantum dot single electron spin resonance devices**
T. Kodera, W.G. van der Wiel, T. Maruyama, Y. Hirayama and S. Tarucha, in *Realizing controllable quantum states*, H. Takayanagi, J. Nitta (eds.), pp. 445-450, World Scientific Publishing, Singapore (2005).
01. **Electron transport through double quantum dots**
W.G. van der Wiel, S. De Franceschi, J.M. Elzerman, T. Fujisawa, S. Tarucha and L.P. Kouwenhoven
Rev. Mod. Phys. **75**, 1 (2003). [163 citations]

特許: なし

受賞: なし

招待講演等

05. **Electron charge and spin in semiconductor quantum dots (plenary)**
37th Conference of the European Group for Atomic Systems (EGAS37), Dublin, Ireland,
3-6 August 2005
04. **Electron spin qubits in semiconductor quantum dots (invited seminar)**
Stanford University, USA, 15 November 2004
03. **Quantum computation using electron spins in semiconductor quantum dots**
42nd Kaya Conference, Zaou, Japan, 22-25 August 2004
02. **Electron transport experiments in semiconductor quantum dots**
International Summer School for Young Researchers on Quantum Transport in
Mesoscopic Scale & Low Dimensions, Kashiwa, Japan, 13-21 August 2003
01. **Microwave electron spin manipulation in semiconductor artificial atoms and molecules**
PASPS8, The 8th Symposium on the Physics and Application of Spin Related
Phenomena in Semiconductors, Sendai, Japan, 19-20 December 2002

その他

- 2005 chair of the 2005 Gordon Research Conference on Quantum Information Science, Ventura CA, USA

研究課題別評価

1 研究課題名: 強相関ナノ電子構造の光誘起協同現象による超高速光スイッチング

2 研究者氏名: 岩井伸一郎

3 研究のねらい:

微弱な光の照射によって物質相が、(熱的にはなく電子的に)変化する現象、“光誘起相転移”の機構を解明し、高速光スイッチやコヒーレント制御への応用の可能性を探る。この現象の本質は、光励起状態が、物質相の秩序を不安定化し、別の秩序へと向かわせることである。まず第一に、典型例として知られる電荷移動錯体(tetrathiofulvalene chloranil: TTF-CA)の中性-イオン性転移において、その仕組みを理解する。第二に、上記の機構の理解に立脚し、フェムト秒パルス対励起によるコヒーレントフォノンの増幅など、通常の半導体の励起状態には見られない新機能を見出す。第三に、3d 遷移金属化合物や分子性導体など、より複雑ではあるが、新奇な物性や機能の発現が期待できる強相関電子系物質において光誘起絶縁体-金属転移のダイナミクスを探索する。特に、これらの系では、電子相関によって物質相が支配されることから、フェムト秒レーザーを用いることにより、大きな構造転移を伴わない、高速な物質相の光スイッチングが期待できる。物質の種類、温度や励起強度、圧力などさまざまな実験条件を広範に変化させ、絶縁体金属転移ダイナミクスの支配要因を明らかにする。

4 研究成果:

1) 有機擬一次元電荷移動錯体(TTF-CA)の中性-イオン性転移の初期過程

(Okamoto, Iwai et al. Phys. Rev. B70, 165202(2004), Iwai et al. Phys. Rev. Lett.96, 057403 (2006))

擬一次元交互積層型電荷移動錯体(TTF-CA)の中性(N)-イオン性(I)転移は、光誘起相転移の典型例として、さまざまな測定手法を用いて10年来研究されているが、その初期過程は、解明されていない。本研究では、中赤外と可視光領域におけるポンププローブ分光によって、N-I 転移の本質である電荷移動度(ρ)の変化と、二量体化ひずみがそれぞれ、いつ、どのように始まるのかを明らかにした。NI 転移の初期過程は、以下のように考えられる(図1参照)。(a) 励起によって作られたCT 励起状態は、(b) <100 fs の極めて短い時間の中に、(二量体化歪をとみなさないまま)イオン性の一次元ドメイン(ストリング)に広がる。(c)この非二量体化イオン性状態は、一次元ハイゼンベルグスピン鎖に類似の状態であるため、スピンパイエルズ転移によって二量体化する。(d) 二量体化は、コヒーレントに起こり、そのまま周期 0.6 ps のコヒーレントフォノンが発生する。また、このコヒーレントフォノンは、分子間振動と電荷移動度の変化の結合したモードである。

2): 光誘起相転移におけるコヒーレント制御(Iwai et al. Phys. Rev. Lett. 96, 057403 (2006))

最近、コヒーレントフォノンを、テラヘルツの電磁波の発生原理とする提案がなされている。しかしながら、振幅が小さいため効率的な分極の発生は困難である。これまでに、半金属、半導体を対象に、フェムト秒パルス列による、コヒーレントフォノン振幅の増幅の試みが行われているが、成功していない。我々は、光誘起相転移系において、このコヒーレントフォノンの増幅を始めて試みた。図2は、TTF-CA において、パルス対励起後に観測される、TTF-CA の反射率変化を示す。灰色の実線で示すように、単一の励起パルスによる励起下では、イオン性ドメインの生成による反射率の変化と周期 0.6 ps の電荷・振動結合コヒーレントフォノンが観測される。励起パルス対の間隔(Δt)が、コヒーレントフォノンと同期したとき(b)、振動の振幅が増大することがわかる。その振幅は、1 パルス励起の場合に比べて、3 倍以上に達し、単なる重ねあわせでは説明ができない。さらに、振幅は励起強度に対し非線形な依存性を示すことから、コヒーレントフォノン同士の非線形な相互作用が明確に示される。このようなコヒーレントフォノンの非線形増幅は、従来、半金属や半導体では、観測されたことがない。

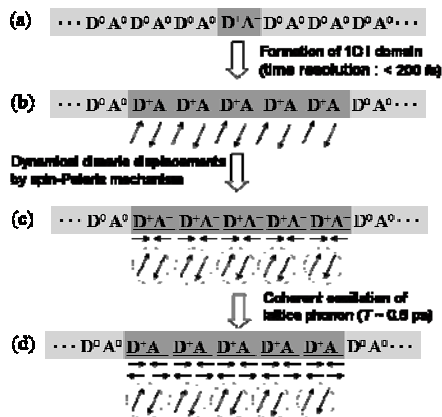


図 1: 光誘起イオン性ドメインの生成過程。
 (a)CT 励起子、(b)非二量体化 Iドメイン、
 (c)二量体化 Iドメイン、(d)コヒーレントフォノン

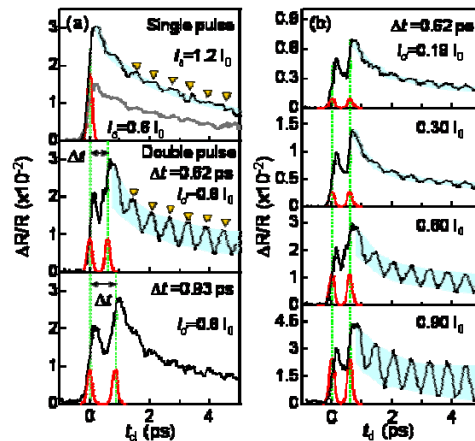


図 2: パルス対励起による反射率変化の時間発展。
 (a)パルス対間隔 (Δt) 依存性。(b)励起強度依存性
 ただし、 $I_0 = 1 \times 10^{16} \text{ photons/cm}^2$

3) 強相関電子系における光誘起絶縁体金属転移の探索

(Iwai et al. Phys. Rev. Lett. 91, 057401(2003).)

3d遷移金属化合物の光モット転移に関しては、 $[\text{Ni}(\text{chxn})_2\text{Br}]\text{Br}_2$ 錯体、コバルト酸化物において、フェムト秒中赤外分光により、光モット転移(光誘起絶縁体金属転移)を観測した。反射率変化が極めて大きいこと(Ni錯体において、中赤外域の反射率が 0.18 から 0.65 に増加)や金属状態の寿命が、1ps程度と極めて速いことなど、超高速光スイッチとしての可能性を示すなど、デモンストレーションとしては十分な結果を得ることが出来た。しかしながら、Ni錯体 や一次元、二次元動酸化物では、金属状態の生成は観測出来ず、3d遷移金属化合物に関しては、光モット転移の系統的な探索を行うことが出来なかった。

そこで、光誘起絶縁体金属の支配要因を、より系統的に明らかにするために、強相関有機導体への展開をはかった。この系は、電子相関(U,V)や、トランスファー(t)などのパラメータが異なる多彩な物質群を擁することが知られる。また、i) 絶縁体金属転移に関するパラメータのエネルギースケールが、無機物(遷移金属化合物)にくらべ、約一桁小さいため、時間分解が容易になることや、ii) 1-2 GPa の比較的低压の印加によって、電子状態が大きく変化することなど、系統的な研究を行う上で、3d 遷移金属化合物にはない利点がある。

分子性導体においては、 π 電子がその物性を支配し、3d 電子系のように特に強いクーロン斥力が存在するわけではないが、分子間トランスファーが小さいため、結果的に強相関電子系として扱うことが出来る。かつて、有機高温超伝導を目指した研究によって、広範な物質探索が行われたことでも知られる。特に、1/4 フィリングと呼ばれるD(ドナー)とA(アクセプター)分子が 2:1 で錯体を作る系においては、電荷秩序(電荷整列)と呼ばれる強相関絶縁相の形成を軸にして、極めて多様な伝導、磁気物性が現れる。

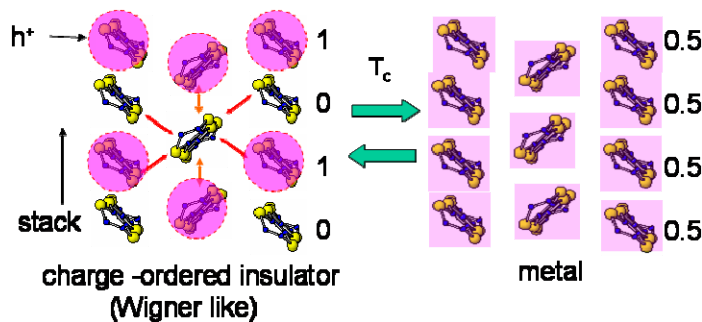


図 3:二次元有機導体
 (BEDT-TTF) $_2$ X (Xは、アクセプター分子)における
 BEDT-TTF分子配列の模式図。左(電荷秩序状態:
 低温相)の赤丸は、電荷(正孔)の局在を表す。右
 (金属状態:高温相)では、電荷は、均一に広がる。

図3は、二次元系の(BEDT-TTF)₂X(Xは、アクセプター分子)における、D(BEDT-TTF)分子の配列を示す。1/4 フィリングと言われるように、最外郭電子軌道からなるバンドは、未充填である。このことは、系が金属であることを意味するが、低温では、長距離クーロン斥力が、分子間のトランスファーを上回ることによって、電子は、分子の積層軸(矢印)方向にそって、101010 というパターンに電荷整列して絶縁化する(赤丸は、電荷(正孔)の分布を表す)。

我々は、波長 1400nm (0.89 eV)のフェムト秒パルスによって、電荷秩序相の励起を行い、中赤外スペクトルの変化を観測することによって、励起直後に電荷秩序が融解し、金属状態が光生成することを確認した。励起直後における反射率変化(ΔR/R)の強度は、0.001-0.1mJ/cm²において光強度に比例し、この過程が線形過程であることがわかる。また、励起強度は、最も強い励起(0.1mJ/cm²)において、100 分子に一個程度の励起に相当する。観測される反射率変化の大きさから、相転移効率を見積もると、50 分子/1 光子程度になる。

中赤外スペクトルの変化は、電荷秩序状態が、光励起によって融解し、金属状態へ変化していることを示唆する。しかし、これは必ずしも、相転移が起きておることを直接意味しない。なぜなら、我々は、D分子間の電荷移動励起という、D分子の電荷の偏りという局所的なプローブによって、電子状態の変化を観察しているからである。相としての変化を実験的に示すためには、たとえば、臨界緩和などの巨視的な性質を捉える必要がある。そこで、我々は、次に、温度依存性を詳細に検討し、光誘起金属状態の臨界挙動を調べた。以下の議論によって、α-(BEDT-TTF)₂I₃(以下α-I₃)において観測される金属ドメインは、単一の励起状態とは明確に異なり、「相のゆらぎ」として記述できることが示される。図4は、各励起強度における光誘起金属状態の寿命の温度依存性を示す。全ての励起強度において、寿命は、温度が転移温度近傍で臨界的に増大し、 $\tau \propto |1 - T/T_c|^{-\nu z}$ に従う(νは相関長の臨界指数、zは動的臨界指数)。このことは、弱励起下において、寿命が 1psに満たない超高速緩和を示すときでさえ、光誘起金属状態は、「相のゆらぎ」としての性質を持つことを明確に示す証拠といえる。さらに、最も注目すべき結果は、励起強度が、0.003 mJ/cm²から0.01mJ/cm²へ増加する際、臨界指数は、0.6から二次元Isingモデルによる計算値2.17に比較的近い1.8へ不連続に変化することである。励起強度の増加にともなう、不連続な臨界指数の変化は、単に、凝集ドメインのサイズが大きくなるだけではなく、安定化の起源が変化することを示唆する。例えば、弱励起においては、微視的なドメインが、分子内振動モードによって安定化し、強励起下では、大きなドメインが、長波長の格子振動によって安定化することも考えられる。また、静水圧の印加によって、この金属ドメインは、飛躍的に安定化(寿命が300倍に増大)することを発見した。

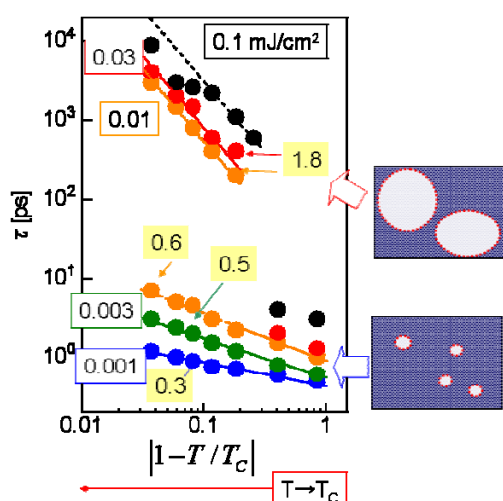


図4: 各励起強度における光誘起金属状態の寿命の温度依存性

4) 光誘起相転移ダイナミクス分類

3d 遷移金属錯体や酸化物(c)、および有機導体(d)などの強相関電子系物質における光誘起絶縁体金属転移のダイナミクスは、物質に依存して多彩な変化を示す。ここでは、この多彩な光誘起相転移のダイナミクスを、電子的転移と構造転移という観点から分類してみる。図5(a)は、光誘起相転移が、大きな構造変化を伴わず、電子的な転移によって支配される場合を示す(クラス1)。図5(b),(c)は、電子的な転移によって、構造変化が副次的に誘起される場合(b, クラス2)、および、励起状態の不安定性によって、直接構造変化が誘起される場合(c, クラス3)をそれぞれ示す。クラス2とクラス3は、いずれも、転移に構造変化を伴うが、その違いは、電子的転移が主役(b, クラス2)か、構造転移が主役(c,

クラス 3)かと言う点にある。

(c)で議論した、Ni錯体やCo酸化物における光誘起金属状態は、クラス1に分類できる。一方、(a)で議論したTTF-CAの中性イオン性転移においては、クラス2に分類することが出来る。また、(d)で議論した、二次元有機導体は、微視的な金属状態は、励起後瞬時に出来た後、格子ひずみを伴ったドメインの凝集と安定化が起こることから、クラス2に分類できる。本研究で対象とした物質では、クラス3に分類される例はなかったが、アルカリTCNQにおける、光誘起逆スピンパイエルス転移(Okamoto et al. to be published)や、VO₂における絶縁体金属転移(Cavalleri et al. Phys. Rev. Lett. 87, 237401(2001)など)はこれにあたりと考えられる。アンダードープのマンガン酸化物における電荷秩序の融解(Fiebig et al. Appl. Phys. 71,211.(2000)など)は、クラス2あるいは、クラス3に分類されると考えられる。(→ Iwai and Okamoto, JPSJ, 75, 011007 (2006))

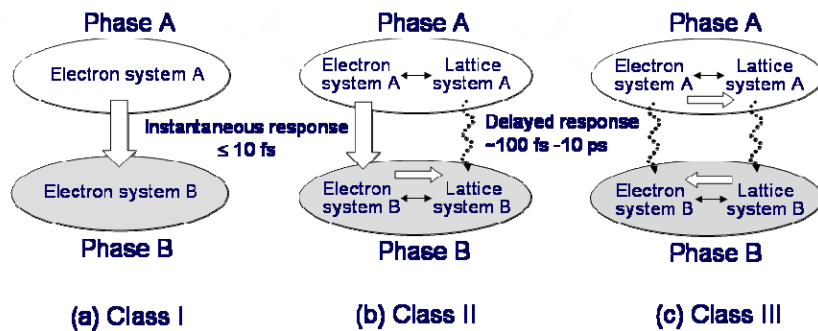


図 5:光誘起相転移ダイナミクス分類 (a) 電子的転移、(b) 電子転移に構造変化が追従、(c) 構造転移

5 自己評価:

a) 一次元電荷移動錯体(TTF-CA)の中性-イオン性転移において、電子的な転移(電荷移動度の変化)と構造変化(スピンパイエルス転移による二量体化)を時間分解できたことは、コヒーレントフォノンの観測とともに、当初の狙いどおりの結果と言える。この物質は、単に初めて光誘起相転移が見出された系というだけでなく、光誘起ドメインが、光励起状態(CT 励起子)が増殖、凝集したものであるという点で、機構解明に適している。このような光誘起相転移のモデルケースにおいて、電荷と格子の変化を切り分け、”変数分離”出来たことは、転移の基本的な機構解明に大きな役割を果たし、今後、より複雑な系における機構解明にも役立つ。

(→ Phys. Rev. B70, 165202(2004), Phys. Rev. Lett. 96, 057403 (2006))

b) フェムト秒パルス列を用いた、コヒーレントフォノンの増幅に関しては、当初の予想とは少し異なる方向に進むことになった。すなわち、当初計画では、電荷移動度の変化と結合しているコヒーレントフォノンを伴った光誘起ドメイン同士の協同効果により、同相励起と逆位相励起の場合で、光誘起ドメインの生成効率や寿命に差異がでることを期待していた。しかしながら、有意な違いは観測されず、そのかわり、同位相励起では、コヒーレントフォノンの振幅の非線形増大を発見した。これは半導体や半金属においては、従来まったく観測されておらず、光誘起相転移系特有の現象と言ってよい。この現象は、コヒーレントフォノンによるテラヘルツ電磁波の高効率な発生原理としても期待できる。これを検証することは今後の課題としたい。

(→ Phys. Rev. Lett. 96, 057403 (2006))

c) 3d遷移金属化合物の光モット転移に関しては、[Ni(chxn)₂Br]Br₂錯体、コバルト酸化物については、成功したものの、他の多くのNi錯体 や一次元、二次元動酸化物では、金属状態の生成は観測出来なかった。理由としては、単位堆積あたりの 3d金属原子の密度が、Ni錯体では、(銅酸化物に比べて約一桁)低いいため、吸収される光エネルギーに対して、3d軌道当たりのキャリアドープ数が大きくなることなど考えられる。3d遷移金属化合物に関しては、光モット転移の系統的な探索

は出来なかった。

(→Phys. Rev. Lett.91, 057401(2003).)

d) 3d 遷移金属化合物において、光誘起絶縁体金属転移の系統的探索が成功しなかったのも、もうひとつの強相関電子系である有機導体へと展開をはかった。この系は、3d 遷移金属化合物にはない以下のような利点もある。

i) 次元性や構造などを含め、多彩な物質群を擁し、(基本的な電子構造を変えないまま)系統的な光誘起相転移の探索が可能となる。

ii) 電子相関(U,V)や、トランスファー(t)など、絶縁体金属転移に関係するエネルギースケールが、無機物(遷移金属化合物)にくらべ、約一桁小さい(t: 酸化物 ~1 eV、有機物 ~0.1 eV)。我々の用いている測定系の時間分解能が、30~100 fs 程度であることを考慮するならば、有機物の方が、ダイナミクスの追跡に遥かに有利である。

iii) 有機物は、“やわらかく”、1-2 GPaの比較的低压の印加によって、電子状態が大きく変化する。特に、強相関電子系の絶縁体金属転移においては、転移のパラメータを大きく制御できることが知られている。

これらの利点を生かし、様々に物質や条件を変えて実験を行うことによって、極めて広い時間領域(サブピコ~ナノ秒)での臨界緩和や、励起強度に依存した複雑なコヒーレントフォノンの挙動など、光誘起相転移の「相の揺らぎ」としての特徴を見出した。これらは、単なる励起子のダイナミクスとは本質的に異なる現象である。特に、サブピコ秒から 1 ピコ秒程度の超高速時間領域においても、「相ゆらぎ」を誘起できることを示したことは、光誘起相転移の研究に、新しい展開をもたらしたといえる。今後、顕微測定やテラヘルツ領域での分光へ展開することにより、「金属相」の性質をより詳しく検証して行く予定である。

6 研究総括の見解:

電子間相互作用の強い物質(強相関物質)においては外力の印加によって引き起こされる状態変化が系全体に伝搬し、巨大な物質定数の変調として現れることが知られている。外力としてフェムト秒光パルスを用いた場合の光学定数の高速な変化を理解し、適切な材料選択を行えば将来の超高速光スイッチングの候補となることが期待できる。

本研究の提案時点で無機強相関物質(ハロゲンブリッジニッケル鎖化合物)についての光誘起モット遷移の研究を行っていたが、研究期間中には主として 2 次元有機導体(BEDT-TTF)₂X (Xはアクセプタ分子)を対象に研究した。近赤外フェムト秒光パルスによって誘起された超高速構造変化を中赤外線プローブによって観察し、過度的な金属状態が平衡状態に緩和する過程が相転移に特有な臨界減速を示す明確なデータを獲得し、弱励起条件では応答時定数が 1ps程度であることを明らかにした。これらの成果は 5 篇の国際学術誌原著論文、2 篇の国際会議プロシーディングス、1 件の専門書の分担執筆として公表されている。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断する。

7 主な論文等:

論文: 7 件

1: S. Iwai, M. Ono, A. Maeda, H. Matsuzaki, H. Kishida, H. Okamoto and Y. Tokura: Ultrafast optical switching to a metallic state by photoinduced Mott transition in a halogen-bridged nickel-chain compound, Phys. Rev. Lett. 91,057401(2003).

2: H. Okamoto, S. Iwai, H. Matsuzaki: Photoinduced phase transition in one-dimensional correlated electron systems, photoinduced phasetransition ed. K. Nasu., chapter 6, (World Scientific, Singapore, 2003)

3: H. Okamoto, Y. Ishige, S. Tanaka, H. Kishida, S. Iwai and Y. Tokura: Photoinduced phase transition in tetrathiafulvalene-p-chloranil (TTF-CA) observed in femtosecond reflection spectroscopy, Phys. Rev. B70, 165202(2004).

4: S. Iwai and H. Okamoto; Ultrafast phase control in one-dimensional correlated electron systems, J. phys. Soc. Jpn.,75,011007 (2006)

5: S. Iwai, Y. Ishige, S. Tanaka, Y. Okimoto, Y. Tokura, H. Okamoto; Coherent control of charge and lattice dynamics in a photoinduced neutral-to-ionic transition of a charge-transfer compound. Phys. Rev. Lett. 96,057403(2006)

特許: 研究期間累積出願件数4件

発明者: 岩井伸一郎、岡本博

発明の名称: 有機電荷移動錯体のコヒーレントコントロールによる遠赤外光スイッチ

出願人: 科学技術振興機構

出願番号(出願日): 特願 2003-329123(平成 15 年 9 月 19 日)

公開番号(公開日): 特開 2005-092147(平成 17 年 4 月 7 日)

発明者: 岩井伸一郎

発明の名称: 光スイッチング素子

出願人: 国立大学法人 東北大学

出願番号(出願日): 特願 2004-218958(平成 16 年 7 月 27 日)

公開番号(公開日): 特開 2006-039214(平成 18 年 2 月 9 日)

その他出願中 2 件

その他

解説 1件 岩井伸一郎、岡本博: 光で起こすモット転移、固体物理 38, 677(2003).

国際会議口頭発表 4件

1: S.Iwai, H. Kishida, H. Okamoto, and Y. Tokura; Ultrafast Photoinduced Phase Transition in 1-Dimensional Correlated Electron Systems as Studied by Femtosecond Mid-Infrared Spectroscopy, International Conference on Dynamical Process in Excited State of Solids (DPC03), 2003/8/4, Christchurch, New Zealand.

2: S. Iwai, Y. Okimoto, M. Ono, H. Matsuzaki, A. Maeda, H. Kishida, H. Okamoto, Y. Tokura: Ultrafast insulator-to-metal switching by photoinduced Mott transition, 14th International Conference on Ultrafast Phenomena (UP04), 2004/7/26, Nigata, Japan.

3: S. Iwai, A. Kashiwazaki, F. Hiramatsu, K. Yamamoto, Y. Yakushi, H. Okamoto, H. Mori: Critical behaviors in ultrafast insulator to metal switching and vibrational coherence in 1/4 filling organic crystal (BEDT-TTF)2X, International Conference on luminescence (ICL2005), 2005/7/27, Beijing, China.

4: S. Iwai, A. Kashiwazaki, F. Hiramatsu, H. Nakaya, K. Yamamoto, Y. Yakushi:

Hydrostatic pressure control of ultrafast insulator to metal transition and vibrational coherence in charge ordered organic crystal (BEDT-TTF)₂X, International Conference on Dynamical Process in Excited State of Solids (DPC'05), 2005/8/4, Shanghai, China.

研究課題別評価

1 研究課題名:

ナノ強磁性半導体におけるスピン注入磁化反転の研究

2 研究者氏名:

大岩 顕

3 研究のねらい:

III-V族化合物半導体に遷移金属を添加した磁性半導体(III-V族強磁性半導体)は強磁性を発現する。このとき添加された磁性元素のもつ局在磁気モーメント間の強磁性相互作用は、半導体中のキャリアによって媒介されるキャリア誘起強磁性であることが明らかにされている。この性質は、光学的・電気的なキャリア制御により強磁性転移温度や、保磁力などの磁氣的性質が操作可能であるという、従来の強磁性体にはない重要な特徴をもたらしている。本研究課題では、このIII-V族強磁性半導体においてキャリアの「スピン」を光学的・電気的な手法で制御して磁化反転の実現を目指す。強磁性体の磁化方向の制御には従来、外部磁場が用いられてきた。これは現在でも強磁性体の不揮発性を利用した記憶媒体などの動作原理の一つとなっている。しかし近年、MRAM(磁気ランダムアクセスメモリ)の実用化に向けて、高密度・低消費電力化を実現するため、金属強磁性体からなる磁気抵抗素子ではスピン注入磁化反転が注目され、臨界電流を 10^6 A/cm²以下へ低減する研究が世界中の大学や企業で活発になされている。こうした電気的な磁化反転と並行して、本研究では光を使った強磁性体磁化方向制御も目標に掲げてきた。近年、青色レーザーの実用化で光ディスクの容量が急速に増加しており、光磁気記録における高速な書き込み法の提案として、光による無磁場磁化反転の研究を位置づけている。本研究提案では、強磁性半導体のナノ構造において電気的スピン注入磁化反転とともに、光、特に円偏光を用いたキャリアスピン制御による磁化反転の実現を目標とした。

4 研究成果:

III-V族強磁性半導体はキャリア誘起強磁性という特徴を有す。代表的な強磁性半導体(Ga,Mn)Asを例にすると、価電子帯の正孔(*p*的)とMn(*d*的)の間には負の*p-d*交換相互作用が働き、キャリアスピンの偏極とMnスピンの偏極との間に密接な相関が生ずる。キャリアスピンの方向を外部刺激で変えたとき、*p-d*交換相互作用を介してMnスピンの方向が操作できると期待できる。そこで本研究課題ではキャリアスピンの制御法として、円偏光を用いた光学的スピン注入法と強磁性体三層構造を用いた電気的スピン注入法を用い、磁場を使わない強磁性体磁化反転と磁化ダイナミクスの研究に取り組んできた。

1 (Ga,Mn)Asにおける円偏光誘起磁化ダイナミクス

本研究課題を開始時に、III-V族強磁性半導体Ga_{0.989}Mn_{0.011}As(200nm)/GaAs薄膜の試料面に垂直に円偏光を照射すると、ホール抵抗が右回り(σ^+)円偏光に対して正の方向に、左回り(σ^-)円偏光では負の方向に変化し、異常ホール効果によって磁化を検出したとすると、 10^{11} – 10^{14} cm⁻³の光生成正孔が 10^{19} cm⁻³ものMnを揃えるという劇的な結果を得ていた[1]。円偏光を使った高効率な磁化反転が実現できると期待し、この現象の解明のために、(Ga,Mn)Asにおける磁化ダイナミクスの測定を行った[2]。試料は先の円偏光照射実験で用いたものと同じである。パルスTi:sapphireレーザー(繰り返し周波数75MHz、パルス幅170ps)を使った時間分解磁気光学効果の測定を行った。光エネルギーは1.58eVに合わせ、ポンプ光の強度は $0.5\mu\text{J}/\text{cm}^2$ とした。ポンプ光は波長板を用いて右・左円偏光または直線偏光のいずれかとした。プローブ光は直線偏光で、試料にほぼ垂直に入射し、反射光の偏光面の回転を測定する。これは極カー効果で、主に円偏光で誘起された試料面に垂直方向の磁化成分が検出できる。

図 1(a)に強磁性転移温度以下で測定した時間分解カー一回転を示す。円偏光を照射した場合にのみ指数関数的に緩和する信号が観測された。この信号は偏光に依存して符号が変わる。図 1(b)に片対数表示したように、速い成分と遅い成分の 2 つの指数関数緩和が存在している。カー一回転の速い成分は、伝導帯に生成されたスピン偏極電子の緩和過程を反映している。一方、図 1(c)に示すように遅いカー一回転成分は強磁性転移温度以下でのみ現れるので、強磁性秩序と関係した成分であることが分かる。このことは円偏光によって試料面に垂直方向に磁化成分が誘起されたことを示唆している。また 2 つの指数関数でよくフィットできるということは、速い成分も遅い成分もパルス幅 170ps 程度の内急速に立ち上がることを意味する。このような超高速な磁化の立ち上がりは、 p - d 交換相互作用による交換磁場が Mn スピンにトルクを与え歳差運動によって磁化が回転する機構[3]では説明できない。そこで我々は次のようなシナリオを検討した。円偏光パルスによって試料面に垂直方向にスピン軸を持つわずかな正孔が励起される。ここで p - d 交換相互作用の非対角項を介した正孔と局在磁気モーメント間のスピンフリップ過程による動的偏極により、非平衡磁化が試料面垂直方向へ生じ、Mn スピン軸が垂直方向にわずかに傾いたと考えられる。このとき、Mn スピンと正孔スピンは一種の複合体を形成し一体となって緩和する。ごく最近、 p - d 交換相互作用を介したエネルギーと角運動量の受け渡しが 1ps 以下の時間領域で起こることが考察されている[4]。また円偏光誘起磁化の大きさは飽和磁化の約 0.5%で、注入された 1 個の正孔スピンにより 100 個程度の Mn スピンが複合体の形成に寄与していることを示す。しかし先の連続光の実験との間の定量的な違いは解明できていない。

さらに、この結果を元に(Ga,Mn)As/AlAs 量子井戸構造を作製し、光誘起磁化ダイナミクスの測定を行った[5]。強磁性半導体を量子井戸にした構造で量子準位が形成されることを磁気円二色性スペクトルの系統的な測定から明らかにするとともに、時間分解カー一回転の測定では 1 個の正孔が 1000 個程度の Mn スピンを揃えるという結果を得た。これは量子準位が形成されると、重い正孔と軽い正孔の縮退が解けるため、バルク試料に比べて高い偏極度を持つ光生成スピン偏極電子・正孔が生成されたために、円偏光誘起磁化が増大したと説明できる。バルク試料と同様に Mn-正孔スピン複合体が生成・緩和しているようであるが、量子井戸構造を使って、光生成キャリアスピンを操作することで光誘起磁化を増大できることを示した。

2 Mn デルタドープ系の光学的スピン注入歳差運動

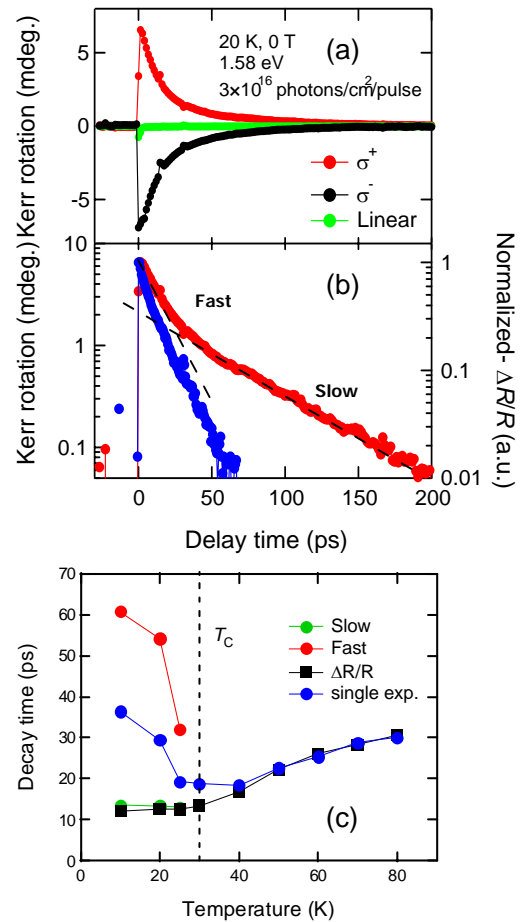


図 1: Ga_{0.989}Mn_{0.011}As(200nm)の時間分解カー一回転。(a)右(σ^+)・左(σ^-)円偏光と直線偏光励起に対する時間分解カー一回転。光エネルギーと励起強度はそれぞれ 1.59eVと $0.5\mu\text{J}/\text{cm}^2$ であった。(b)右(σ^+)円偏光励起のデータの片対数プロット。青丸は反射率の過渡応答。(c)時間分解カー一回転と反射率の緩和時間の温度依存性。T_cより低温ではカー一回転は速い成分と遅い成分の 2 つの緩和時間をプロットした。

上述した低温成長(Ga,Mn)As では、正孔に対する強いスピントリプ散乱が、Mn-正孔スピン複合体が直ちに形成される理由の一つであると考えられる。そこで、低温成長を回避するため混晶(Ga,Mn)Asを離れ、デルタドープによる Mn 添加を試みた。GaAs(4nm)/AlGaAs量子井戸構造の量子井戸中に Mn を 0.1ML 添加した試料を 400°C で作製した(図 2(a))。この試料では電子・正孔の最低量子準位間の遷移による発光が観測されている。

図 2(b)に示すように、時間分解カー回転では、円偏光を照射した場合に速い振動と遅い振動が観測された。両方の振動は右左円偏光に応じて位相が変わる。さらに歳差運動周波数の磁場依存性(図 2(c))から、速い振動成分は g 値がほぼ 2 であり、Mn スピンによる歳差運動であることが示唆される [6]。つまり光生成スピン偏極キャリアがトルクを与えて、Mn スピンが歳差運動していると考えられる。これらの結果は III-V 族半導体をベースにした磁性半導体で初めて光学的スピン注入による歳差運動を実現した成果である。また比較的高温で作製して非発光中心を低減したために、円偏光から Mn スピンへ角運動量の移送が効率的に起こったとすれば、円偏光による磁化反転実現にとって重要な結果である。Mn スピンにトルクを与えるのが電子か正孔かを見極めることは重要で今後の課題である。また今回は高品質膜を得るため Mn 濃度は強磁性を示す濃度よりも低くしたが、強磁性を示すデルタドープ量子井戸での光スピン注入誘起歳差運動の実現が次の展開である。

3 光照射によって誘起される Mn スピンの歳差運動

(Ga,Mn)As では円偏光に依存した歳差運動は観測されておらず、光生成スピン偏極キャリアの交換磁場が効果的には働いていないことが明らかになりつつある。光照射で歳差運動が実現できれば、光によって III-V 族強磁性半導体の強磁性的な Mn スピンに有効磁場を与えて回転させることが可能であることを示すことができる。正孔誘起強磁性では強磁性転移温度だけでなく、磁気異方性も正孔濃度に依存するので、パルス光照射により過渡的に正孔濃度を増加させると、磁気異方性が瞬時に変化しパルスの有効磁場を Mn スピンに与えて歳差運動が起こる。この効果を実際に観測した[7]。

図 3(a)は時間分解カー回転の信号である。800ps の時間領域にわたって振動する信号が

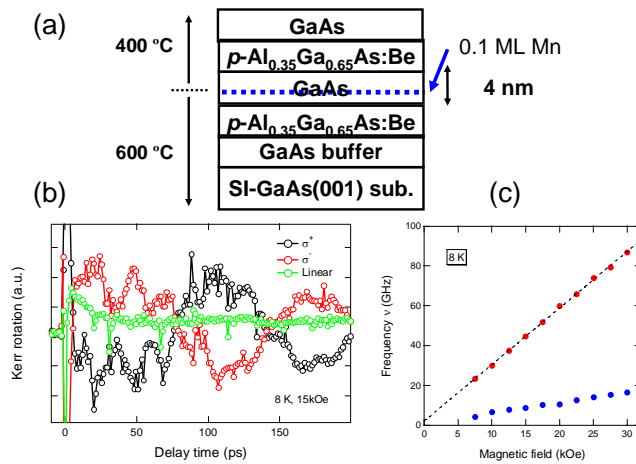


図 2: (a) MnデルタドープGaAs/AlGaAs量子井戸構造。(b) Mnデルタドープ量子井戸の時間分解カー回転プロファイル。光エネルギーと励起強度はそれぞれ 1.66eVと $2\mu\text{J}/\text{cm}^2$ であった。(c) 歳差運動周波数の磁場依存性。

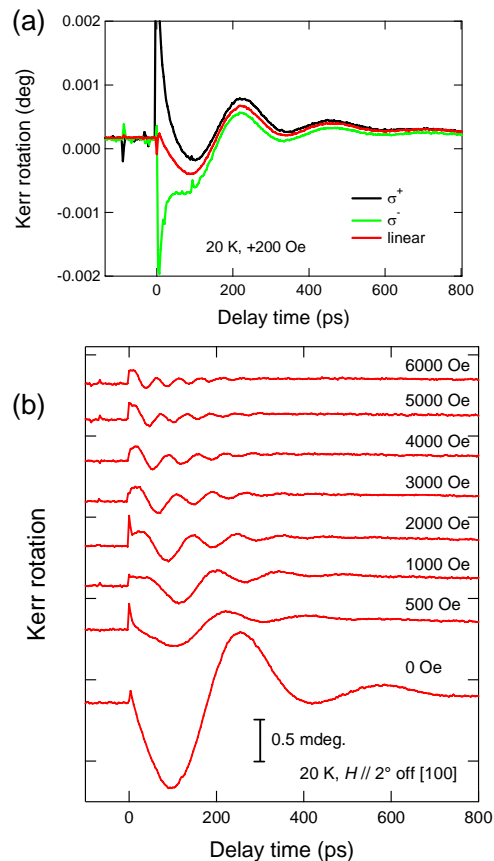


図 3: (a) $\text{Ga}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{As}(100\text{nm})$ の円偏光と直線偏光励起による時間分解カー回転。励起光強度と光エネルギーは $3.7\mu\text{J}/\text{cm}^2$ と 1.59eV。(b) 異なる磁場で測定した時間分解カー回転プロファイル。磁場は [100:方向より 2° だけ [110] 方向に傾けている。

観測された。図1で議論した円偏光誘起磁化と異なる点は、カー回転の変化が円偏光に依存しないことと、一度外部磁場をかけて試料を磁化した後に観測されることである。外部磁場を強くしてゆくと振動が速くなる様子が見て取れる。別途行ったXバンド(9.47 GHz)の強磁性共鳴測定で得られた共鳴条件(共鳴磁場 1670 Oe)と、光で観測した歳差運動周波数と良く一致することから、観測された振動は強磁性 Mn スピンの歳差運動である。

この振動の起源が Mn スピン系の温度上昇ではなく、期待したように正孔濃度に依存する異方性磁場が光パルスによって変化したことによる効果であることは、試料の異方性の詳細な解析と外部磁場の配置を注意深く選んで実験することで確認した。磁気異方性の変化によって 10-20 Oe 程度の有効磁場が働くという結果が得られた。この光誘起歳差運動は直接的なキャリア生成による強磁性半導体の磁化の歳差運動を世界で初めて実現するとともに、強磁性半導体 (Ga,Mn)As の磁気異方性がキャリア濃度に依存するという性質を実験的に示した結果である。

4 電流誘起磁化反転

本研究では強磁性半導体三層構造 (Ga,Mn)As/AlAs/(Ga,Mn)As を電子線描画装置で直径 1 μ m の円柱状に加工したトンネル磁気抵抗(TMR)素子を作製し(図 4(a))、電流誘起磁化反転の実験を行った[8]。その結果、電流方向に依存した磁気抵抗変化が観測された。これは電流注入による温度上昇や電流が作る磁場の効果とは区別できている。磁気抵抗の変化は飽和磁化の約 26%程度であった。また反転を観測した電流から算出した電流密度として 1×10^5 A/cm² が得られた。これは発表した 2004 年 4 月では強磁性金属 GMR 素子で報告されていた値よりも 1~2 桁小さいものであった。

磁化変化が飽和磁化の約 26% であるのは、直径 1 μ m の円形ドットは単磁区ではなく多磁区構造になりやすいため、部分的な磁区の反転にとどまっているためであると考えられる。低い反転電流密度は主に (Ga,Mn)As の磁化が小さいことに起因するが、反転電流の表式[9]による検討から、反転層へのスピン注入効率が低いことが分かった。これはトンネル過程においてマグノン散乱などにより正孔のスピン分極が低下していることが原因であると考えられる。障壁層の調節によりスピン注入効率を上げることで反転電流を低減できる余地がありそうである。

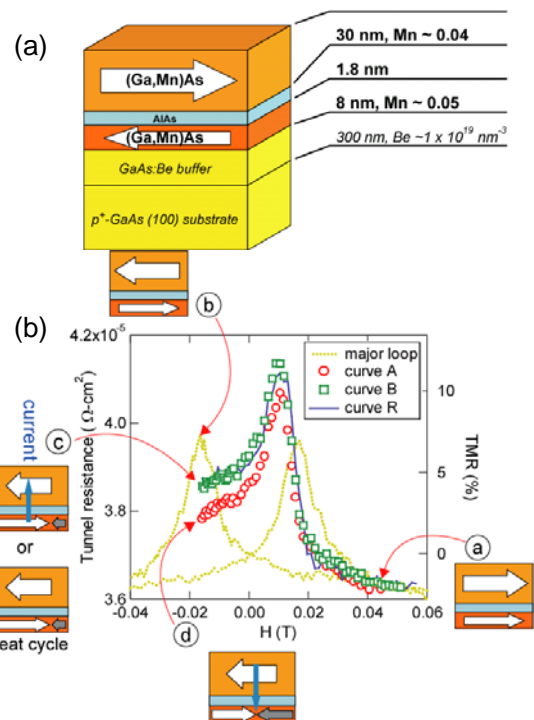


図 4: (a) (Ga,Mn)As 3 層構造. (b) 電流注入磁化反転の実験. (a)(b)(c)(d) はそれぞれの磁場における固定層と反転層の磁化配置. 実験は 10K で行った.

参考文献

- [1] A. Oiwa et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 137202 (2002).
- [2] Y. Mistumori et al., Phys. Rev. B **69**, 033203 (2004).
- [3] S. A. Crooker et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 2814 (1996); S. A. Crooker et al., Phys. Rev. B **56**, 7574 (1997); R. Akimoto et al., Phys. Rev. B **57**, 7208 (1998).
- [4] J. Wang et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 167401 (2005).
- [5] A. Oiwa et al., J. Mag. Mag. Mater., **272-276**, 2016 (2004); Y. Kashimura et al., Physica E, **21**, 987 (2004).
- [6] 大岩他、応用物理学会 第 52 回応用物理学関係連合講演会
- [7] A. Oiwa, H. Takechi, and H. Munekata, J. Supercond. Nov. Magn. **18**, 9 (2005).

[8] R. Moriya et al., Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L825 (2004).

[9] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. **159**, L1 (1996).

5 自己評価:

さきがけ研究申請書では1) III-V 族磁性半導体の磁区構造制御、2) 光学的・電氣的スピン注入による磁化反転の実現、3) 微小磁性体における磁化反転ダイナミクス、4) 光学的時間分解強磁性共鳴の4つの副課題を挙げ、大きな変更はなく各課題に沿って本研究課題を遂行してきた。以下に、各副課題について評価(○:計画通り達成、△:部分的に達成、×:未達成)とコメントを記す。

副課題	評価	コメント
磁区構造制御	△	本研究課題のみの研究ではなく、共同研究として取り組み磁気異方性とともかなり解明することができた。1 μm 以下でも結晶磁気異方性が支配的で、形状に大きな異方性をつけることで形状異方性も付与できることが分かった。現在では磁区構造や磁化過程をおおよそ想定して微細加工できる。
光学的・電氣的スピン注入磁化反転の実現	光スピン注入: ×	(Ga,Mn)Asにおける円偏光誘起磁化のダイナミクスを中心に、磁化反転の実現を目指したが達成できなかった。(Ga,Mn)Asにおける円偏光誘起磁化が光生成キャリアによるトルクの効果ではないことがほぼ解明され、低温成長に由来する欠陥などを改善する必要があることが分かってきた。ただし光キャリアのトルクを利用して磁化を回転できることをMnデルタドープ量子井戸で見出し、今後の展開の足がかりをつかんだ。
	電氣スピン注入: △	(Ga,Mn)Asトンネル磁気抵抗素子を作製し、電流による部分的な磁化反転を低い反転電流で実現できた。しかし磁区構造を制御した素子での完全な磁化反転や電流方向による可逆反転の実証など、現時点で実現できていない項目も残されている。
微小磁性体の磁化ダイナミクス	×	2年次に微細加工を施したナノドットアレイについて時間分解力一回転測定を行った。しかしさまざまな試料について系統的に実験を継続して行うことができず、この課題について更なる成果を得ることができなかった。しかし特に光スピン注入磁化反転は試料の微細化は必要な事柄であるため、今後は優先して取り組むべき課題である。
光学的強磁性共鳴	△	当初の計画では光スピンで誘起される歳差運動とその共鳴現象を期待していた。しかし(Ga,Mn)Asではこの実現が困難であることが明らかになりつつある。しかし本研究では異方性の変化を利用した(Ga,Mn)Asの歳差運動を時間分解測定で初めて観測することができた。

本研究課題は、分子線エピタキシーによる試料の作製から、電子線描画装置による微細加工とデバイスの作製、磁気光学効果測定、伝導測定、磁化測定まで多岐に渡るため、個人研究の提案としてはやや課題が多かったと思われる。しかし多くの方々との共同研究などにより、この両面からほぼ遂行することができたことは何よりも感謝と満足していることである。現時点では光と電氣の両面の展開を持ち続けているという点は、現在の強磁性半導体の研究としては重要である。電氣的スピン注入では今後の展開で述べたように、金属強磁性体で電流誘起磁化反転の進展が目覚しく、室温強磁性半導体の確立が必要不可欠な段階になると考える。最近、逆ファラデー

一効果を利用した歳差運動がフェライトの一種で報告されるなど[Kimel et al., Nature (2005)], 光による磁化操作は強磁性体では依然、注目される課題である。一方で、広く光学的性質は主に低温成長ゆえに強磁性半導体ではこれまで欠けていた半導体としての基本的性質で、試料の改善により物理的に光学物性が研究されそれとともに光スピン注入磁化反転へと結びついてゆくことが、強磁性半導体の今後の展開として望ましいと考える。

6 研究総括の見解:

近年注目を集めているスピンを用いた情報処理技術、いわゆるスピントロニクスの可能性を広げるものとして磁場を用いない信号入出力法の探求がある。本研究では対象として磁性半導体材料を取り上げ、光ないし電流によるスピン状態の観察および制御を試みている。

主要な成果として次の4点が挙げられる。第1に(Ga,Mn)Asへの円偏光励起パルスによって強いKerr回転が生じ、数ピコ秒および数十ピコ秒の緩和時間で復元することを見出したこと;第2にMnをデルタドーピングしたGaAs結晶においてMnスピンの円偏光誘起歳差運動を観測したこと;第3に(Ga,Mn)Asへの円偏光励起パルスによって過度的な歳差運動を観測したこと;第4に(Ga,Mn)Asトンネル磁気抵抗効果素子において電流誘起磁化反転を観測したこと、である。円偏光励起による強いKerr回転は誘起された正孔のスピン一つあたり約100個のMnスピンの作用を及ぼす複合体形成として説明できる。

研究成果は9篇の英文原著論文、4件の招待講演等で公表している。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断する。

7 主な論文等:

(1)論文(原著論文)発表 9件

- 1) Photoinduced magnetization rotation and precessional motion of magnetization in ferromagnetic (Ga,Mn)As, A. Oiwa, H. Takechi, and H. Munekata, J. Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism **18**, 9 (2005).
- 2) Current-Induced Magnetization Reversal in a (Ga,Mn)As-Based Magnetic Tunnel Junction, R. Moriya, K. Hamaya, A. Oiwa, and H. Munekata, Jpn. J. Appl. Phys., **43**, L825 (2004).
- 3) Formation of quantized states and spin dynamics in III-V-based ferromagnetic quantum wells, A. Oiwa, R. Moriya, Y. Kashimura, and H. Munekata, J. Mag. Mag. Mater., **272-276**, 2016 (2004).
- 4) Photo-induced magnetization rotation in III-V ferromagnetic alloy semiconductor quantum wells, Y. Kashimura, R. Moriya, A. Oiwa, and H. Munekata, Physica E, **21**, 987 (2004).
- 5) Dynamics of photoinduced magnetization rotation in ferromagnetic semiconductor p-(Ga,Mn)As, Y. Mitsumori, A. Oiwa, T. Slupinski, H. Maruki, Y. Kashimura, F. Minami, and H. Munekata, Phys. Rev. B **69**, 033203 (2004).

(2)特許出願

研究期間累積件数:2件

発明者: 大岩顕、宗片比呂夫、守谷頼、櫻村之哉

発明の名称: 量子サイズ効果を用いたスピン注入磁化反転磁気抵抗素子

出願人:JST

出願番号(出願日):特願 2003-172473(平成 15 年 6 月 17 日)

公開番号(公開日):特開 2005-011907(平成 17 年 1 月 13 日)

発明者: 大岩顕、宗片比呂夫、黒澤良太

発明の名称: キャリア誘起強磁性体を用いた強磁性共鳴周波数の制御方法及びそれを用いた周波数フィルタ素子

出願人:JST

出願番号(出願日):特願 2004-100417(平成 16 年 3 月 30 日)

公開番号(公開日):特開 2005-286867(平成 17 年 10 月 13 日)

(3)その他の成果

受賞 なし

招待講演等 4 件

- 1) Optical charge and spin injection in (Ga,Mn)As, A. Oiwa, CIMTEC 2006 (Sicily, Italy) June 4-9, 2006.
- 2) III-V族強磁性半導体における光誘起スピンドイナミクス, 大岩 顕, 三森康義, 宗片比呂夫, 2004年日本物理学会秋季大会 領域3・4・5合同シンポジウム,(青森大学, 青森)平成16年9月12日-15日, 2004年.
- 3) Photo-induced magnetization rotation and its dynamics in ferromagnetic alloy semiconductor heterostructures, A. Oiwa, and H. Munekata, International workshop on nano-scale magnetoelectronics, (Nagoya, Japan) Nov., 25-27, 2003.
- 4) Optical manipulation of magnetization orientation in ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)As and related heterostructures, A. Oiwa, Y. Mitsumori, and H. Munekata, International Symposium on Photonics and Spintronics in Semiconductor Nanostructures, November 2-3, Apical Inn Kyoto,Kyoto, Japan.

研究課題別評価

1 研究課題名:

新しい多面体ナノ炭素物質の創製と機能発現

2 研究者氏名:

尾上 順

3 研究のねらい:

フラーレン薄膜に電子線を照射するとフラーレン分子同士が融合反応して、室温かつ大気中で金属的性質を示す新しい多面体構造をもつナノ炭素物質を発見した。本研究では、炭素の多様な結合性により創製される新しいトポロジカルな構造を有するナノカーボンの構造と物性をナノスコピックおよびマクロスコピックの両面で調べ、機能性ナノ材料としての応用を目指すことを目的とする。

4 研究成果:

(1) 導電性ピーナッツ型ナノカーボンの発見

C₆₀フラーレン薄膜に加速電圧 3kVの電子線を照射すると、フラーレン分子同士が融合反応し、ピーナッツ型構造をもつ新しいナノカーボンポリマーが生成していることを赤外振動分光および理論解析により見いだした(図1)。また、振動分光の結果、グラファイトやナノチューブに対応する振動ピークは観測されなかった。

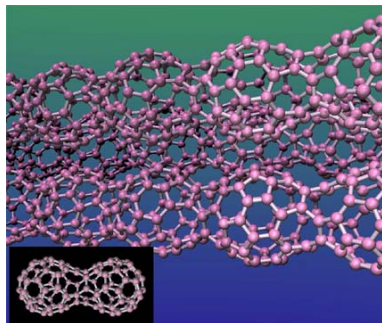


図1 導電性ピーナッツ型ナノカーボンポリマーの構造図

このピーナッツ型ナノカーボンポリマーを室温・大気下で四端子測定した結果、電流-電圧特性が図2に示すようなオーミック特性をもつことから、ピーナッツ型ナノカーボンが金属的な導電性を示す物質であることを発見した。

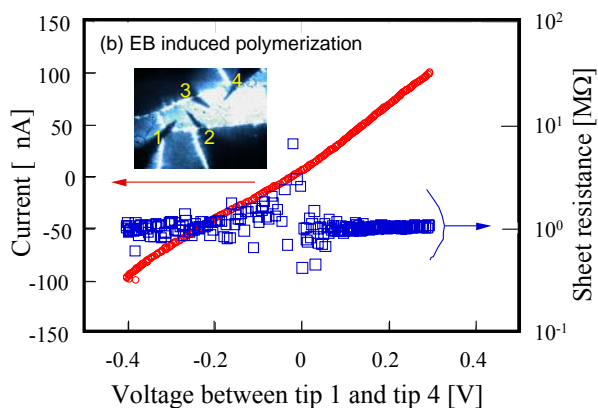


図2 ピーナッツ型ナノカーボン薄膜の電流-電圧特性(大気下、室温)

比抵抗を調べてみると、照射前のフラーレン薄膜では 10^8 - 10^{14} Ωcmであるのに対して、電子線照射により生成したピーナッツ型ナノカーボンでは、1-10 Ωcmと桁違いに減少していることがわかった。この結果は、ピーナッツ型ナノカーボンの膜厚および測定場所には依らず、膜全体が導電性になっていることがわかった。電子線を照射したことにより、絶縁性だった薄膜が導電性に変化したことは、電子デバイスの細線への応用展開が期待できる。

(2) 導電性ピーナッツ型ナノカーボンの価電子構造と導電性起源

ピーナッツ型ナノカーボンポリマーの導電性の起源を解明するために、その価電子構造を紫外光電子分光により

in situ 測定した。図3に価電子全体のスペクトル(a)とフェルミ準位付近のスペクトル(b)を示す。図中、ブルーは照射前のフラーレン薄膜、ピンクは20時間照射後、スカイブルーは50時間照射後、オレンジは HOPG グラファイト、のスペクトルをそれぞれ示している。

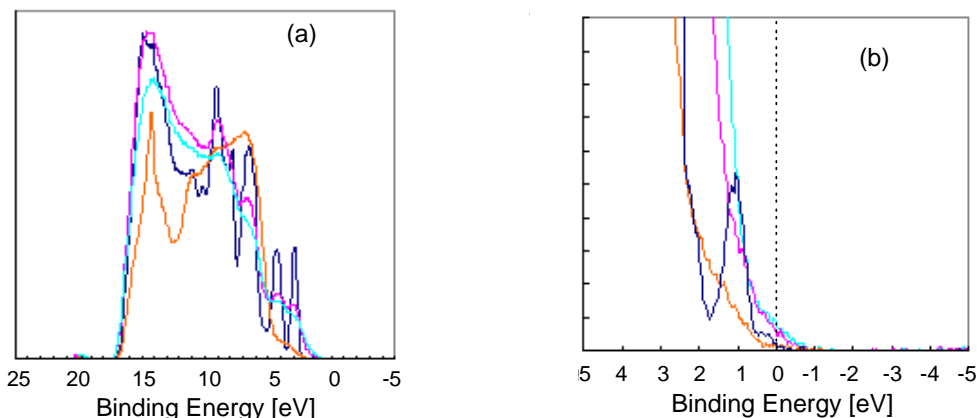


図3 電子線照射前後のフラーレン薄膜の in situ 紫外光電子分光スペクトル

図3(a)が示すように、電子線照射前のフラーレン薄膜では、分子性に特有な狭いバンド幅のピークが現れているが、電子線照射するとフラーレン分子同士が重合するため分子性固体からバルク固体へ変わるにつれて、ピークがブロードになっていることがわかる。フェルミ端付近のスペクトル変化を見てみると(図3b)、照射前のフラーレン薄膜で、1eV 付近にピークが現れているが、モノクロ化していない紫外光源(HeI)を使っているために HOMO のサテライトが観測されている。モノクロ化した光源を使うと、ピークは観測されない。電子線を照射していくと、状態密度がフェルミ端へ伸びていき、横切っていることがわかる。参照物質として測定したグラファイトでは、図3b に示すように、半金属なので、フェルミ端を横切ることない。これからの結果から、ピーナッツ型ナノカーボンは金属であることがわかった。

以上の結果は、すべて超高真空下での結果であるが、図2に示す電流-電圧特性は大気下での結果であるため、図3の結果は必ずしも対応していない。そこで、50時間照射後のピーナッツ型ナノカーボン薄膜を大気下に5日間放置した後、再度光電子分光測定を行った結果を図4に示す。図中、グリーンが大気解放後のスペクトルである。

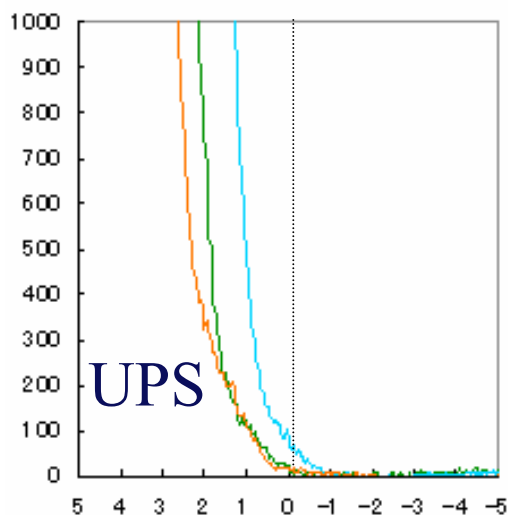


図4 50時間照射後のピーナッツ型ナノカーボンの大気解放前後のスペクトル

図4からわかるように、大気解放後のピーナッツ型ナノカーボンは、大気解放前に比べて、フェルミ端付近で状態密度が減少しているが、グラファイト程度の状態密度があることから、大気下室温で電流-電圧特性がオーミックを示すことは容易に理解できる。大気解放により、状態密度が減少したのは、X線光電子分光による価電子構造測定した結果、大気解放後に CO ピークが観測されていることから、酸素分子(または水分子)の解離吸着により、 π 電子共役系が減少したことによると考えられる。

図3(または図4)において、通常のパルク金属の場合、フェルミ端で不連続な変化(フェルミ分布)を示すが、ピーナツ型ナノカーボンではフェルミ端で不連続な変化を示さず、なだらかにフェルミ端を横切っている。このような傾向を示す物質として、パイエルズ転移を示す擬1次元物質(金属相のとき)がある。このことは、ピーナツ型ナノカーボンポリマーが擬1次元構造を形成していることを示唆するものであり、興味深い。

(3) ピーナツ型ナノカーボンの電子状態計算

光電子分光の結果から、ピーナツ型ナノカーボンが擬1次元構造をしている可能性があることがわかってきた。実験的に検証することと平行して、1次元ピーナツ型構造が理論的に金属であるかどうかを検討した。

3-1) 1次元ピーナツ型フラーレンポリマー

手始めに、計算時間が少なく済む対称性の高いピーナツ型構造を選んで、図5に示すような、2量体、3量体、1次元系、について、第一原理計算により構造最適化した後、それぞれについてエネルギーギャップを計算した。

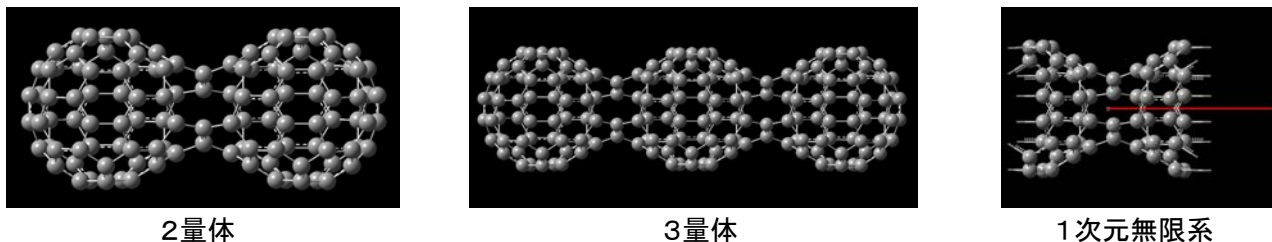


図5 1次元ピーナツ型フラーレンポリマーの構造図

その結果、 C_{60} 単体のエネルギーギャップ(1.67 eV)に比べて、2量体では0.33 eV、3量体で0.11 eVと減少し、1次元系では0.02 eVと非常に小さくなることがわかった。

3-2) 擬1次元ピーナツ型フラーレンポリマー

擬1次元パルク構造について、図6に示す2種類のピーナツ型フラーレンポリマーについて第一原理計算によりバンド構造を計算した。その結果、7員環を含むピーナツ型構造では、バンド図に示すように半導体となるが、8員環を含むピーナツ型構造では、金属になることがわかった。このように、僅かなナノ構造の違いがマクロな物性に大きく影響していることは大変興味深い。

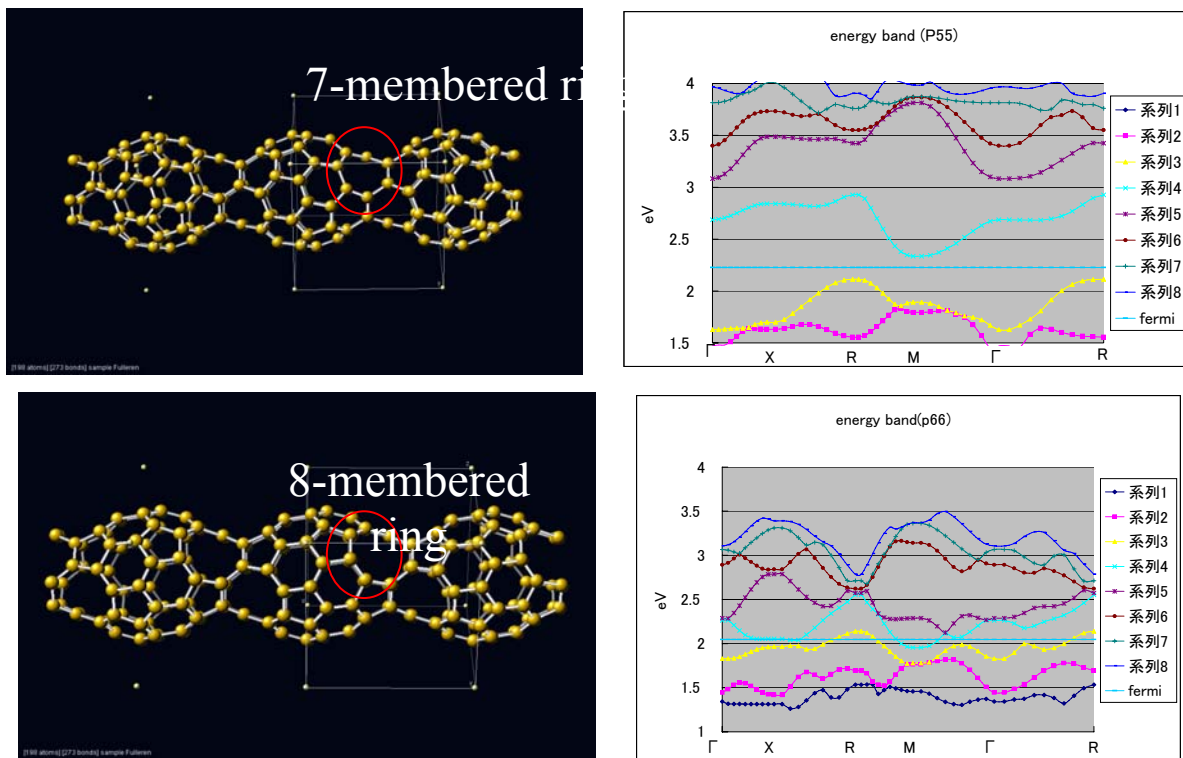


図6 擬1次元ピーナツ型ポリマーの構造とバンド構造。上段が7員環を含むピーナツ型ポリマー、下段が8員環を含むピーナツ型ポリマーの構造とバンド構造をそれぞれ示す。

(4) シリコン固体中の白金欠陥のナノ分光

極めて高い空間分解能で非接触測定が可能な走査プローブ顕微鏡技術と波長をチューニングすることで物質中の電子状態をエネルギー選択的に励起できるレーザー分光技術を融合させ局所的(空間分解能: 数 nm)かつ高精度(エネルギー分解能: 数 meV)に分光解析できる計測手法(Photoassisted STM)が知られている。ピーナツ型ナノカーボンのナノ構造とそこに局在する電子状態を調べ、ナノポロジとマクロ物性との相関関係を明らかにする目的で、上記計測手法をナノ構造作製超高真空装置と組み合わせたナノ分光顕微鏡装置(写真1)を製作した。製作したナノ分光顕微鏡装置を用いて、シリコン基板中にドーパした Pt 原子欠陥のナノ分光を行った。p 型シリコン基板 Si(100)に Pt をドーパした後アニールすると、マクロな光吸収スペクトルに置換した Pt 原子に由来するピークの他に図7のような3本の吸収ピークが新たに現れることが知られているが、これまでこれら3本のピークの起源は解明されていない。

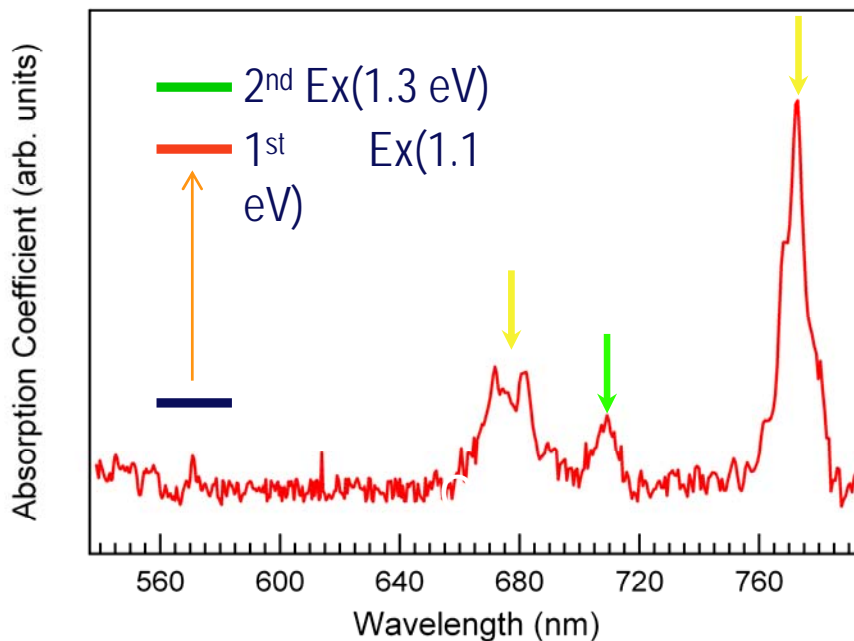
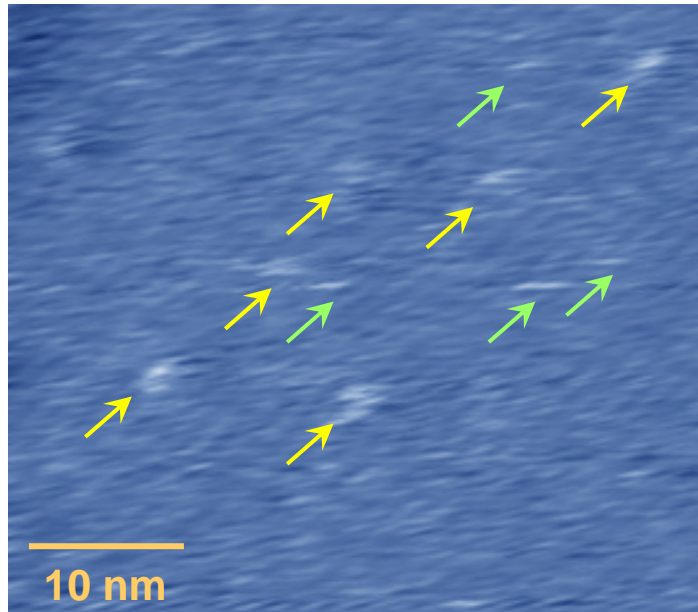


図7 Ptドーパ p-Si(100)のアニール後に観察した STM 像(上図)と同定した光吸収スペクトル(下図)。2種類の Pt クラスター欠陥(黄色と緑の矢印)とそれらに対応する光吸収ピーク。黄色で示した欠陥には2つの励起状態がある

ことがわかった。

そこで、本研究で製作したナノ分光顕微鏡を用いて、上記の3本のピークの同定を行った結果、図7に示すように、2種類のPtクラスターの欠陥に由来することがわかった。また、1つのPtクラスター欠陥に2つの励起準位があることもわかった。

5 自己評価:

新しい多面体ナノ炭素質として、負の曲率の曲面をもつシュバルツ構造の一種であるピーナッツ型ナノカーボンが金属的な導電性を有し、光電子分光の結果から、フェルミ端を横切る金属であることを明らかにし、その起源として、ピーナッツ型結合により π 電子共役系が形成されていることを理論的に示した。また、7員環と8員環の僅かなナノ構造の差がマクロな物性に大きく影響することも理論的に明らかにした。以上の結果は、トポロジーと物性科学の新しい接点として大変興味深く、当初の目標の半分は達成した。

このナノ構造とそこに局在する電子状態とマクロな物性との相関関係を明らかにする目的で、ナノメートルの空間分解能と数 meV のエネルギー分解能をもつナノ分光顕微鏡装置の製作を行ってきたが、真空関係のトラブル等で予想外に時間がかかってしまい、研究期間内によく世界最高水準レベルの性能を有するナノ分光顕微鏡装置を製作し、この装置を用いて、ピーナッツ型ナノカーボンのナノスコピックレベルでの、ナノトポロジーと局在量子物性との相関関係の解明という当初の目標には至っていない。

6 研究総括の見解:

本研究者は C_{60} フラレンに電子照射すると導電性のあるピーナッツ型ナノカーボン分子が生成することを発見したが、本研究では理論、実験の両面からその物性を明らかにしている。

主な研究成果として次の4点が挙げられる。第1に電子線照射条件によってフラレン分子が融合反応し、ピーナッツ型構造を持つ新しい分子が生成されていることを明らかにしたこと(同定は主として赤外振動スペクトルの理論予測との比較による);第2に電子線照射装置に組み込まれた紫外線光電子分光装置によって価電子帯の光電子スペクトルを観測し、フェルミ準位を横切って状態密度が連続的に伸びており、グラファイトの半金属性とは違って金属状態であることを明らかにしたこと;第3に擬1次元構造をもつピーナッツ型フラレンポリマーのバンド構造計算を行い、7員環を含む場合半導体に、8員環を含む場合金属になることを示したこと;第4に電子状態とナノトポロジーの関連を明らかにするため、ナノ分光顕微鏡装置を開発したこと、である。

これらの成果を13篇の原著論文、1篇の解説論文、11件の招待講演として発表している。また、2005年に手島記念研究賞を受賞している。全体として予想の程度の成果が出ていると判断する。

7 主な論文等:

論文 13報

- 1) J. Onoe, T. Nakayama, M. Aono, and T. Hara: "Structural and electrical properties of an electron-beam irradiated C_{60} film", Appl. Phys. Lett. **82**, 595-597 (2003).
- 2) **J. Onoe**, T. Nakayama, M. Aono, and T. Hara: "The electron transport properties of photo- and electron-beam-irradiated C_{60} films", J. Phys. Chem. Solids **65**, 343-348 (2004).
- 3) J. Onoe, A. Nakao, and A. Hida: "Valence photoelectron spectra of an electron-beam irradiated C_{60} film", Appl. Phys. Lett. **85**, 2741-2743 (2004). □
- 4) S. Ueda, Y. Noguchi, T. Ishii, **J. Onoe**, and K. Ohno: "Calculation of energy bands for peanuts-shaped fused fullerene polymers", J. Metastable & Nanocrystalline Materials **24-25**, 249-252 (2005). □
- 5) T.A. Beu, J. Onoe, and A. Hida: "First-principle calculations of the electronic structure of one-dimensional C_{60} polymers", Phys. Rev. B **72**, 155416 (2005).

そのほか8編

特許 0件

解説・本など

中山知信、尾上 順: "フラレン"、"ナノテクノロジー大事典" (工業調査会)、2章21節、143-150 (2003)

受賞

2006年2月 平成17年度 手島記念研究賞

招待講演 11 件(国際会議2件)

(1) 尾上 順:”トポジカルナノカーボンの創成と電子物性”、分子研研究会、岡崎、2月(2003)

(2) 尾上 順:”ナノ構造をユニットに用いる材料科学”、第70回電気化学会、東京、4月1-3日(2003)

(3) J. Onoe: ”Structural and electronic properties of new nano-carbon materials synthesized using C60 fullerene” , Advanced Spectroscopies on Biomedical and Nanostructured Systems, Cluj-Napoca, Romania, 19-22 September (2004)

(4) 尾上 順:”電子ビームを用いたフラーレン薄膜の物性制御”、理研シンポジウム、和光、7月(2004)

(5) 尾上 順:”未来材料としてのナノカーボン”、REC R&D フォーラム、和光、11月(2004)

(6) J. Onoe:”Electronic structure and electrical properties of a peanut-shaped C60 polymer” , 3rd Quantum Transport Nano-Hana International Workshop on Applications for Ubiquitous Electronics using Nano-materials and Nano-Dvices, Chiba, March 1 (2006).

そのほか5件

研究課題別評価

1 研究課題名:

副格子交換ヘテロ構造半導体の高度制御

2 研究者氏名:

近藤高志

3 研究のねらい:

本研究の目的は、副格子交換ヘテロ構造半導体を用いた疑似位相整合型非線形光学デバイスの実用化を見据えて、その基礎となる副格子交換エピタキシー技術の高度化を図ることにある。副格子交換エピタキシー法は、本研究者のオリジナルの技術で、閃亜鉛鉱型 III-V 族化合物半導体のエピタキシャル成長の際に IV 族中間層を挿入することにより、その上下で副格子の配列を交換すること、すなわち空間反転を実現することが可能となる。これまでの研究で、GaAs(100)基板上での GaAs/Ge/GaAs の組み合わせで、実際に副格子交換が可能であることを実証してきた。本研究では、これをさらに推し進めて、実用デバイスの作製の基盤としての副格子交換エピタキシー技術をより洗練させることと、より汎用の技術としてその一般性を高めることを第一の狙いとした。具体的には、高効率導波路デバイス作製に必要な再成長過程の最適化、GaAs 基板以外への拡張に取り組んだ。また、この手法と微細加工・最成長法とを組み合わせることで作製した導波路デバイスにおける波長変換特性の基礎評価、この種のデバイスが不可避免的に抱え込むことになる逆位相境界の特性評価、窒化物半導体の非線形光学特性評価、ランダム位相整合の適用の可否についても検討を加え、半導体疑似位相整合デバイスというまったく新しい分野の開拓の基礎を築くことを狙って研究を進めた。

4 研究成果:

1) GaAs 基板上副格子交換 AlGaAs 周期反転再成長の最適化

副格子交換エピタキシー法を用いた半導体疑似位相整合波長変換デバイスを実用化するためには、以下の条件を満たす再成長条件を確立する必要がある。ひとつは、波長変換効率に直接影響するデューティ比をコントロールするために反転・非反転境界(人工逆位相境界)が(100)基板に対して垂直に伝播するように制御すること、もうひとつは、伝搬損失を低減するために再成長表面・界面の平坦性を確保することである。GaAs(100)基板上の GaAs/Ge/GaAs 副格子交換エピタキシーと周期エッチング、MBE 再成長と化学機械研磨(CMP)による平坦化によって作製した周期反転 GaAs テンプレート上での GaAs の MBE 再成長について、最適化をおこない、上記の 2 点を満足する再成長条件を見出すことに成功した。

前者の逆位相境界の伝播方向は、MBE 成長時の V-III 比のみでほぼ完全に制御できる。GaAs 成長時の Ga と As のフラックス比を 44 前後に設定することにより、逆位相境界が垂直に伝播するようになる(V-III 比がこれよりも高くても低くても、逆位相境界は反転層が拡大する方向に傾く)。図 1 に最適条件(V/III = 44)で再成長した周期反転 GaAs と、非最適条件下(V/III = 33)で再成長したものの断面 SEM 像を示す。最適条件で成長した場合には、境界の結晶性も向上し、ステンエッチングを受けにくくなっていることもわかる(図中、上部の白い線が逆位相境界である)。

後者の再成長表面・界面の平坦性に関しては、もっぱら成長温度が支配的要因となっている。これは、再成長

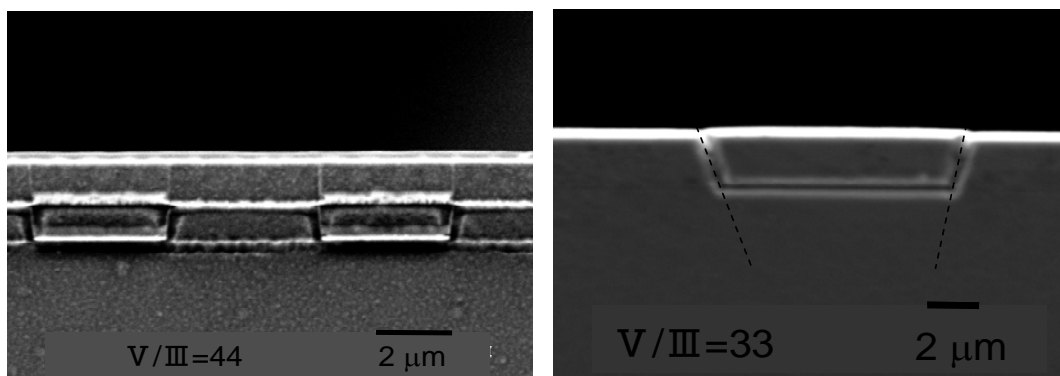


図 1 最適条件下(V/III = 44)で再成長した周期反転 GaAs(左)と非最適条件下で再成長した周期反転 GaAs(右)の断面 SEM 像。逆位相境界を可視化するためにステンエッチングを施した。

