

# チャージチューナブル量子ドットの スピン緩和と制御

(研究課題番号 18204028)

平成18年度～平成19年度科学研究費補助金 (基盤研究 (A))

研究成果報告書

平成20年3月

研究代表者 舛本 泰章

(筑波大学大学院数理物質科学研究科教授)

# チャージチューナブル量子ドットの スピン緩和と制御

(研究課題番号 18204028)

平成18年度～平成19年度科学研究費補助金(基盤研究(A))

研究成果報告書

平成20年3月

研究代表者 舛本泰章

(筑波大学大学院数理物質科学研究科教授)

---

## 目次

---

### I. 研究組織および研究経費

1. 研究組織
2. 研究経費

### II. 研究発表

1. 学会誌等
2. 口頭発表
3. 出版物
4. 研究成果による工業所有権の出願・取得状況

### III. 研究成果

1. 研究の背景と目的
2. 研究実績の概要
  2. 1 チャージチューナブル量子ドットのスピン緩和
  2. 2 量子ドットの分光研究
  2. 3 新しいナノ構造の光物性
3. 研究の総括と今後の展望

### IV. 発表論文集

---

## I. 研究組織および研究経費

### 1. 研究組織

研究代表者：舩本泰章（筑波大学大学院数理物質科学研究科教授）

研究分担者：池沢道男（筑波大学大学院数理物質科学研究科講師）

### 2. 研究経費

（金額単位：千円）

	直接経費	間接経費	合計
平成18年度	25,900	7,770	33,670
平成19年度	12,300	3,690	15,990
総計	38,200	11,460	49,660

## II. 研究発表

### 1. 学会誌等

- 1) Y. Masumoto, K. Mizuochi, K. Bando and Y. Karasuyama:  
“Optical anisotropy of excitons and biexcitons in InP quantum dots”  
J. Lumin. 122-123, 424 (2007); Int. Conf. on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL'05) (Beijing, 2005).
- 2) M. Ikezawa, S.V. Nair, F. Suto, Y. Masumoto, C. Uchiyama, M. Aihara and H. Ruda:  
“Photon echo study of excitons and excitonic complexes in self-assembled quantum dots”  
J. Lumin. 122-123, 730 (2007); Int. Conf. on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL'05) (Beijing, 2005).//INVITED PAPER//
- 3) A. Kanno and Y. Masumoto:  
“Highly sensitive time-resolved Kerr rotation measurements on single-layer quantum dots”  
J. Lumin. 119-120, 178 (2006); 15<sup>th</sup> Int. Conf. on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC'05), (Shanghai, 2005).
- 4) K. Bando, T. Nakamura, Y. Masumoto, F. Sasaki, S. Kobayashi and S. Hotta:  
“Origin of the amplified spontaneous emission from thiophene/phenylene co-oligomer single crystals: Towards co-oligomer lasers”  
J. Appl. Phys. 99, 013518 (2006).
- 5) A. Kanno and Y. Masumoto:  
“Spin relaxation mechanism of strain-induced GaAs quantum dots studied by time-resolved Kerr rotation”  
Phys. Rev. B 73, 073309 (2006).
- 6) M. Ikezawa, S.V. Nair, H.-W. Ren, Y. Masumoto and H. Ruda:  
“Biexciton binding energy in parabolic GaAs quantum dots”  
Phys. Rev. B 73, 125321 (2006).
- 7) B. Pal, M. Ikezawa, Y. Masumoto and I.V. Ignatiev:  
“Millisecond-range electron spin memory in singly-charged InP quantum dots”  
J. Phys. Soc. Jpn. 75, 054702 (2006).
- 8) Y. Masumoto:  
“Spin relaxation in charge tunable quantum dots”  
Abstracts of the 4th NIMS Int. Conf. on Photonic Processes in Semiconductor Nanostructures (2nd Int. Symp on Functionality of Organized Nanostructures), p.27 (Tsukuba, 2006).
- 9) A.Yu. Egorov, V.K. Kalevich, M.M. Afanasiev, A.Yu. Shiryaev, V.M. Ustinov, M. Ikezawa and Y. Masumoto:  
“Spin relaxation in charge tunable quantum dots”  
Proc. Ioffe Institute 14th Int. Symp. “Nanostructures: Physics and Technology”, p.158 (St. Petersburg, 2006).
- 10) V.K. Kalevich, E.L. Ivchenko, M.M. Afanasiev, A.Yu. Egorov, A.Yu. Shiryaev, V.M. Ustinov, B. Pal and Y. Masumoto:  
“Optical pumping and spin-dependent recombination in GaAsN alloys”  
Proc. Ioffe Institute 14th Int. Symp. “Nanostructures: Physics and Technology”, p.59 (St. Petersburg, 2006).
- 11) Y. Masumoto, B. Pal, S. Oguchi and M. Ikezawa:  
“Spin lifetime in electron-doped InP quantum dots”  
Proc. 28th Int. Conf. Physics of Semiconductors, pp. 369-370 (Vienna, 2006).
- 12) S.Yu. Verbin, B. Pal, M. Ikezawa, I.V. Ignatiev and Y. Masumoto:  
“Nuclear spin effects in negatively charged InP quantum dots”  
Proc. 28th Int. Conf. Physics of Semiconductors, p. 233 (Vienna, 2006).
- 13) Y. Masumoto, S. Oguchi, B. Pal and M. Ikezawa:  
“Spin dephasing of doped electrons in charge-tunable InP quantum dots: Hanle-effect measurements”  
Phys. Rev. B 74, 205332 (2006).

- 14) M. Sugisaki, H.-W. Ren, S.V. Nair, E. Tokunaga, K. Nishi, Y. Masumoto and H.E. Ruda:  
“Anisotropic optical response of InP self-assembled quantum dots studied by pump-probe spectroscopy”  
Phys. Rev. B 75, 125315 (2007).
- 15) B. Pal, S.Yu. Verbin, I.V. Ignatiev, M. Ikezawa and Y. Masumoto:  
“Nuclear-spin effects in singly negatively charged InP quantum dots”  
Phys. Rev. B 75, 125322 (2007).
- 16) B. Pal, K. Goto, M. Ikezawa, Y. Masumoto, P. Mohan, J. Motohisa and T. Fukui:  
“Time- and Spectrally-Resolved PL Study of a Regular Array of InP/InAs/InP Core-multishell Nanowires”  
Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO'07) and Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS'07, Baltimore), JThD37.pdf (2007).
- 17) Y. Masumoto, B. Pal, S. Oguchi and M. Ikezawa:  
“Spin Relaxation in Charge Tunable InP Quantum Dots”  
Technical Digest of Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS'07, Baltimore), QFD3.pdf (2007).
- 18) S. Fujiwara, K. Bando and Y. Masumoto, F. Sasaki and S. Kobayashi, S. Haraichi, S. Hotta:  
“Laser oscillations of whispering gallery modes in thiophene/phenylene co-oligomer microrings”  
Appl. Phys. Lett. 91, 021104 (2007).
- 19) 池沢道男, 舛本泰章:  
“半導体量子ドットにおけるコヒーレンスの超高感度光検出—光ヘテロダイン検出法を利用したフォトンエコー—”  
日本物理学会誌 62, 609 (2007).
- 20) M. Ikezawa, Y. Sakuma and Y. Masumoto:  
“Single Photon Emission from Individual Nitrogen Pairs in GaP”  
Jpn. J. Appl. Phys. 46, L871 (2007).
- 21) S. Tomimoto, A. Kurokawa, Y. Sakuma, T. Usuki and Y. Masumoto:  
“Radiative recombination of excitons in disk-shaped InAs/InP quantum dots”  
Phys. Rev. B 76, 205317 (2007).
- 22) F. Sasaki, S. Kobayashi, S. Haraichi, S. Fujiwara, K. Bando, Y. Masumoto and S. Hotta:  
“Microdisk and Microring Lasers of Thiophene–Phenylene Co-Oligomers Embedded in Si/SiO<sub>2</sub> Substrates”  
Adv. Mater. 19, 3653 (2007).
- 23) K. Bando, T. Nakamura, S. Fujiwara and Y. Masumoto:  
“Optical selection rule for the lower Davydov excitons in co-oligomer single crystals”  
Phys. Rev. B 77, 045205 (2008).
- 24) J. H. Kim, K. Kyhm and Y. Masumoto:  
“Ultrafast Dynamics of the Band-Gap Renormalization and the State-Filling Effect in Strongly-Confined CdSe/ZnS Nanocrystals”  
J. Korean Phys. Soc. 52, 64 (2008).
- 25) Y. Masumoto, K. Toshiyuki, T. Suzuki and M. Ikezawa:  
“Resonant spin orientation at the exciton level anticrossing in InP quantum dots”  
Phys. Rev. B 77, (2008) [in press].
- 26) I. Ya Gerlovon, I. V. Ignatiev, I. A. Yugova and Y. Masumoto:  
“Quantum Beats of Spin States in the InP Quantum Dots”  
Optica i Spectroscopia 104, 662 (2008) [Russian]; Opt. Spectroscopy 104 No.4 (2008) [English translation: in press].
- 27) K. Bando and Y. Masumoto:  
“Interferometric spectroscopy for excitons in InP single quantum dots”  
J. Lumin. (2008) [in press].

## 2. 口頭発表

- 1) Yu. Egorov, V.K. Kalevich, M.M. Afanasiev, A.Yu. Shiryayev, V.M. Ustinov, M. Ikezawa and

- Y. Masumoto: “Spin relaxation in charge tunable quantum dots” Ioffe Institute 14th Int. Symp. “Nanostructures: Physics and Technology”, St. Petersburg, June 2006.
- 2) V.K. Kalevich, E.L. Ivchenko, M.M. Afanasiev, A.Yu. Egorov, A.Yu. Shiryaev, V.M. Ustinov, B. Pal and Y. Masumoto: “Optical pumping and spin-dependent recombination in GaAsN alloys” Ioffe Institute 14th Int. Symp. “Nanostructures: Physics and Technology”, St. Petersburg, June 2006.
  - 3) Y. Masumoto, B. Pal, S. Oguchi and M. Ikezawa: “Spin lifetime in electron-doped InP quantum dots” 28th Int. Conf. Physics of Semiconductors, Vienna, July 2006.
  - 4) S.Yu. Verbin, B. Pal, M. Ikezawa, I.V. Ignatiev and Y. Masumoto: “Nuclear spin effects in negatively charged InP quantum dots” 28th Int. Conf. Physics of Semiconductors, Vienna, July 2006.
  - 5) 後藤健, パル ビプル, 舛本泰章, モハン プリミーラ, 本久順一, 福井孝志: “InP/InAs/InP コアマルチシェル型ナノワイヤの時間分解発光スペクトル” 日本物理学会 (2006年9月)
  - 6) 黒川篤, 冨本慎一, 佐久間芳樹, 臼杵達哉, 舛本泰章: “原子層レベルの離散的高さ分布を持つディスク状 InAs 量子ドットの時間分解発光分光” 日本物理学会 (2006年9月)
  - 7) 阪東一毅, 舛本泰章: “InP 単一量子ドットの発光干渉測定” 日本物理学会 (2006年9月)
  - 8) 藤原聖士, 阪東一毅, 舛本泰章, 佐々木史雄, 小林俊介, 原市聡, 堀田収: “(チオフェン・フェニレン)コオリゴマー結晶のリング状マイクロレーザー” 日本物理学会 (2006年9月)
  - 9) 後藤健, パル ビプル, 舛本泰章, モハン プリミーラ, 本久順一, 福井孝志: “InP/InAs/InP コアマルチシェル型ナノワイヤの時間分解発光スペクトルII” 日本物理学会 (2007年3月)
  - 10) 藤原聖士, 阪東一毅, 舛本泰章, 佐々木史雄, 小林俊介, 原市聡, 堀田収: “(チオフェン・フェニレン)コオリゴマー結晶のリング状マイクロレーザーII” 日本物理学会 (2007年3月)
  - 11) 阪東一毅, 舛本泰章: “InP 単一量子ドットにおける励起子の発光自己相関測定” 日本物理学会 (2007年3月)
  - 12) 利行健, 鈴木宰, 池沢道男, 舛本泰章: “チャージチューナブル InP 単一量子ドットにおけるスピン緩和” 日本物理学会 (2007年3月)
  - 13) 舛本泰章, 小口修平, パル ビプル, 池沢道男: “InP 単一量子ドットにおけるドーパ電子のスピン緩和” 日本物理学会 (2007年3月)
  - 14) 阪東一毅, 中村俊輝, 藤原聖士, 舛本泰章, 小林俊介, 佐々木史雄, 下位幸弘, 堀田収: “(チオフェン・フェニレン)コオリゴマー結晶の励起子遷移における会合体的性質” 日本物理学会 (2007年3月)
  - 15) 阪東一毅, 中村俊輝, 舛本泰章, 小林俊介, 佐々木史雄, 堀田収: “(チオフェン/フェニレン) コオリゴマー結晶の光学遷移における会合体的性質” 応用物理学会 (2006年9月)
  - 16) 冨本 慎一, 黒川 篤, 佐久間 芳樹, 臼杵 達哉, 舛本 泰章: “原子層数で決まる離散的な高さ分布を持つディスク状 InAs 量子ドットの発光寿命測定” 応用物理学会 (2006年9月)
  - 17) 佐々木史雄, 小林俊介, 原市聡, 藤原聖士, 阪東一毅, 舛本泰章, 堀田収: “(チオフェン/フェニレン) コオリゴマー(TPCO)薄膜におけるマイクロレーザー発振” 平成 18 年度ナノサイエンス特別プロジェクト研究成果発表会 (2007年3月)
  - 18) 後藤健, パル ビプル, 舛本泰章, モハン プリミーラ, 本久順一, 福井孝志: “InP/InAs/InP コアマルチシェル型ナノワイヤにおける励起子緩和過程” 平成 18 年度ナノサイエンス特別プロジェクト研究成果発表会 (2007年3月)
  - 19) 利行健, 鈴木宰, 池沢道男, 舛本泰章: “チャージチューナブル InP 量子ドットにおける励起子準位の交差・反交差” 平成 18 年度ナノサイエンス特別プロジェクト研究成果発表会 (2007年3月)
  - 20) 渡辺伸人, 池沢道男, 舛本泰章: “ZnP<sub>2</sub>単結晶中の超短パルス伝播” 平成 18 年度ナノサイエンス特別プロジェクト研究成果発表会 (2007年3月)
  - 21) 冨本慎一, 黒川篤, 佐久間芳樹, 臼杵達哉, 舛本泰章: “ディスク状 InAs 量子ドットにおける励起子再結合寿命の測定” 平成 18 年度ナノサイエンス特別プロジェクト研究成果発表会 (2007年3月)
  - 22) S. Tomimoto, A. Kurokawa, Y. Sakuma, T. Usuki, and Y. Masumoto: “Recombination lifetime measurements of excitons confined in ultrathin disk-shaped InAs quantum dots” 第1回アトミックテクノロジー国際シンポジウム (2007年3月)

- 23) 後藤健, パル ビプル, 舛本泰章, モハン プリメーラ, 本久順一, 福井孝志: “InP/InAs/InP コアマルチシェル型ナノワイヤにおける励起子緩和過程” 日本物理学会 (2007年9月)
- 24) 阪東一毅, 舛本泰章: “単一 InP 量子ドットにおける励起子位相緩和過程の非指数関数的減衰” 日本物理学会 (2007年9月)
- 25) 鈴木宰, 川名啓介, 池沢道男, 舛本泰章: “チャージチューナブル InP 量子ドットにおける励起子準位の交差・反交差に伴うスピン偏極” 日本物理学会 (2007年9月)
- 26) 富本慎一, 黒川篤, 佐久間芳樹, 臼杵達哉, 舛本泰章: “InAs/InP 量子井戸及びディスク状量子ドットにおける励起子輻射再結合寿命” 日本物理学会 (2007年9月)
- 27) 岩井滋人, 奥村恒雄, 徳永英司, 小林孝嘉, 李定植, 西研一, 舛本泰章: “InP, CuCl 量子点の顕微非線形吸収分光” 日本物理学会 (2007年9月)
- 28) 池沢道男, 佐久間芳樹, 舛本泰章: “GaP 中の単一窒素等電子トラップによる単一光子発生” 日本物理学会 (2007年9月)
- 29) 後藤健, 富本慎一, パル ビプル, 舛本泰章, モハン プリメーラ, 本久順一, 福井孝志: “InP/InAs/InP コアマルチシェル型ナノワイヤにおける光励起キャリアの過渡現象” 日本物理学会 (2008年3月)
- 30) 池沢道男, 佐久間芳樹, 舛本泰章: “窒素を $\delta$ ドーピングした GaP における単一等電子トラップの顕微 PL と単一光子発生” 応用物理学会 (2007年9月)
- 31) 鈴木宰, 川名啓介, 池沢道男, 舛本泰章: “チャージチューナブル InP 量子ドットの励起子準位の反交差に伴うスピン偏極” 日本物理学会 (2008年3月)
- 32) 池沢道男, 佐久間芳樹, 渡邊真人, 舛本泰章: “窒素を $\delta$ ドーピングした GaP の単一等電子トラップ分光” 日本物理学会 (2008年3月)
- 33) 池沢道男, 佐久間芳樹, 渡邊真人, 舛本泰章: “窒素を $\delta$ ドーピングした GaP における単一等電子トラップの高分解能発光測定” 応用物理学会 (2008年3月)
- 34) 渡邊真人, 池沢道男, 佐久間芳樹, 舛本泰章: “窒素を $\delta$ ドーピングした GaP における NN ペア空間分布の濃度依存性” 応用物理学会 (2008年3月)
- 35) 阪東一毅, 舛本泰章: “半導体量子ドットにおける励起子線幅の温度上昇による先鋭化” 応用物理学会 (2008年3月)
- 36) 藤田祥一, 柴田大地, 坂東弘之, 松末俊夫, 奥野剛史, 舛本泰章: “InP 及び InGaAs における 2 光子吸収係数の波長・偏波依存性” 応用物理学会 (2008年3月)

### 3. 出版物

- B1) 舛本泰章: フェムト秒分光の原理, 技術と応用 (「フェムト秒テクノロジー—基礎と応用」平尾一之, 邱建榮編, 化学同人, 2006)

### 4. 研究成果による工業所有権の出願・取得状況

- [1] 舛本泰章: 「アップ・コンバージョン素子」, 出願番号: 特願 2000-008029, 出願日 2000.1.17, 特許番号: 特許第 3789708 号, 登録日: 2006.4.7
- [2] 岡本紘, 坂東弘之, 舛本泰章, 奥野剛史: 「超高速・広帯域の光可飽和吸収半導体装置」, 出願番号: 特願 2002-1577, 2002.01.08 出願
- [2'] [2]より手続き補正 岡本紘, 坂東弘之, 舛本泰章, 奥野剛史: 「超高速・広い波長帯域の光可飽和吸収半導体, それを用いた半導体装置及び導波路型光-光スイッチ」, 出願番号: 特願 2002-141011, 2002.05.16 出願 公開番号: 特開 2003-270696, 特許第 3830858 号, 登録日: 2006.7.21

### III. 研究成果

#### チャージチューナブル量子ドットのスピン緩和と制御

筑波大学大学院数理物質科学研究科 舛本泰章

#### 1. 研究の背景と目的

Ⅲ-V族半導体量子ドット中の電子スピンは、量子通信の媒体となる光との整合性が良い長いスピン緩和時間を持つスピン量子メモリーとして有望であり、注目されている。量子ドット中に閉じ込められた電子のスピンの緩和は、Dyakonov-Perelメカニズムが働かず、低温では電子・正孔間の交換相互作用や電子スピン・核スピン間の超微細相互作用にのみ支配されるため極めて長くなることが期待される。実際、本研究グループでは、電子をドープされたInP量子ドット中の発光寿命により時間の制約を受けない電子スピンの緩和時間を、発光のポンプ・プローブ法により計測し、サブミリ秒に達することを明らかにしてきた。チャージチューナブル量子ドットとは、量子ドット中の電荷数を自由に変えることのできる系で、電子をドープされた基板中のフェルミエネルギーと量子ドット中の電子の量子エネルギーの差を電気バイアスで制御することで、電子の量子ドット中の電子の数を0個、1個、2個と変えることができる。中性の量子ドットを人工原子と言うことにすると、電子をドープされた量子ドットは人工イオンと言うことができる。電子は $s=\pm 1/2$ のスピンの持つフェルミ粒子であるので、電子の抜けた孔であるホールも $s=\pm 1/2$ のスピンをもち、互いに強く相関するので、量子ドット中の電子の数を0個、1個、2個と変えると、電子、ホールや励起子のスピン緩和は大きく変化すると予想できる。また、電子スピン・核スピン間の超微細相互作用は電子スピンの寿命に上限を与えると予想される。本研究がねらいとして掲げたのは

- 量子ドット中の電子スピンの緩和時間は、量子ドット中の電子や正孔の数やスピン依存のエネルギー微細構造に極めて敏感に影響されると考えられる。電子の数を制御できるチャージチューナブル量子ドット中のスピンの緩和時間と緩和機構を電子の数を変えながら明らかにする。
  - 超微細相互作用（オーバーハウザー効果）で互いに相互作用する量子ドット中の電子スピンと核スピンの相互作用を明らかにして電子スピンの寿命の上限を求める。
- ことである。

#### 2. 研究実績の概要

##### 2. 1 チャージチューナブル量子ドットのスピン緩和

チャージチューナブル量子ドットとは、電荷数を自由に変えることのできる量子ドットで、研究代表者らは、電気バイアスとともにInP量子ドットが示す発光の量子ビートが顕著に系統的に変化する現象を2000年に見出して到達した概念である[総説論文26に詳述]。やがて、このチャージチューナブル量子ドットが、量子ドット中の電子や正孔の数やスピン依存のエネルギー微細構造に極めて敏感に影響されるスピン緩和の研究に理想的な量子ドットであることに気づき、本研究に発展した。

##### <電子ドープ InP 量子ドット中のミリ秒の電子スピン寿命> [論文7]

量子情報処理には、光との整合性が良いⅢ-V族半導体量子ドット中の長いスピン緩和時間を持つ電子スピンが有用であろう。ナノ秒程度の発光寿命により時間の制約を受ける光生成電子に比べ、ドープされた電子のスピンを光によりそろえるこ

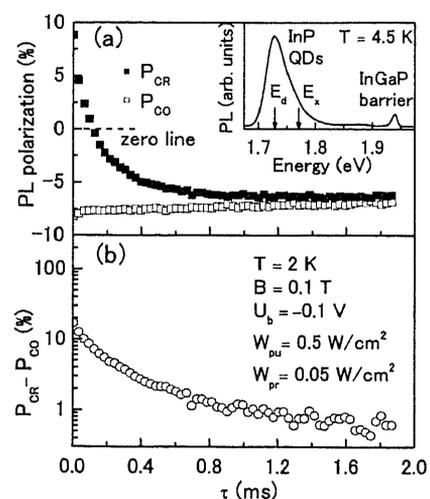


図 1: 電子がドープされた InP 量子ドットの発光の負の円偏光成分のミリ秒領域の時間依存性。

とができれば発光寿命がないので長いスピン寿命という点で有利である。実際、電子を1個ドーピングしたInP量子ドットの発光の円偏光度を計測し、電子のスピン偏極がサブミリ秒からミリ秒に達する寿命をもつことを見いだした。チャージチューナブル自己形成InP量子ドットを円偏光ピコ秒レーザーパルスにより準共鳴励起し、ファラデー配置で縦磁場を加え、偏光フォトルミネッセンスおよびその時間応答を系統的に研究した。原子核スピンの揺らぎの電子スピン緩和への影響を抑えられる0.1Tの縦磁場下で、InP量子ドットの発光帯を円偏光で準共鳴励起すると、励起光エネルギーからストークスシフトが大きいエネルギー領域では、負の円偏光度(NCP)をもつ発光となる。発光ポンプ・プローブ法を用いた時間分解測定により、プローブ円偏光励起に対して負の円偏光度が現れ、減衰カーブは単純な指数関数ではないが、サブミリ秒からミリ秒の長い時間経過後もポンプ光の円偏光がプローブ光の円偏光とが同じco-pumpと反対のcross-pumpの間に相当の差がある。実際、図1に示すように、電子スピン偏極は1ms程度まで保たれていることが示された。負の円偏光度は温度や磁場に依存し、磁場の増加、温度の上昇とともに緩和時間が短くなっていくのが明らかとなった。

<InP量子ドットにおける動的核スピン分極>  
[論文 12,15]

動的核スピン分極がInP量子ドットにおいて起こっていることを2個の電子と1個の正孔からなるトリオンの負の円偏光発光を縦磁場下で観測することで確認できる。動的核スピン分極がおこると、電子スピンの感じる有効外部磁場  $B_{\text{eff}}$  は外部磁場  $B$  と有効核磁場  $B_N$  の和として  $B_{\text{eff}} = B + B_N$  と表わされる。右(左)円偏光励起下でトリオンの発光の円偏光度を外部磁場  $B$  の関数として測定すると、図2の様に  $\pm B_N$  (励起強度40 mWのとき $\sim 4.5$  mT) で負の円偏光度が鋭く減少する半値半幅15 mTのLorentz型の磁場依存性が得られる。右(左)円偏光で負の円偏光度が最小になる外部磁場が- (+) にシフトすることから、有効核磁場  $B_N$  を相殺する外部磁場のとき、すなわち有効外部磁場が0のとき、負の円偏光度が最小になり、核スピンのゆらぎによる核磁場が15mTであるとして図2は理解できる。図2

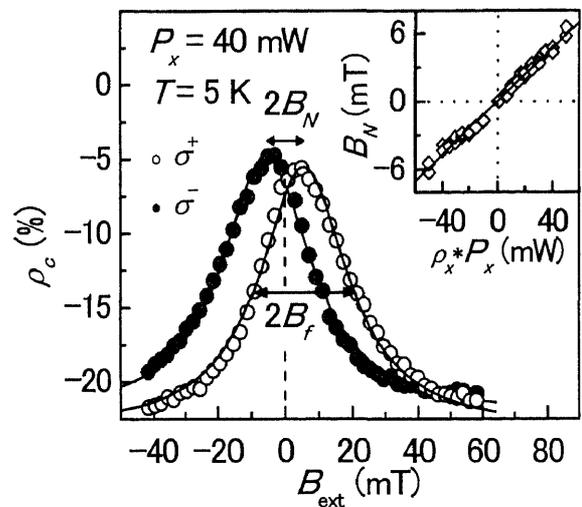


図2: 円偏光励起により、核スピン分極が起こり負の円偏光度が最小になる外部磁場が- (+) にシフトする。

の挿入図に示すように、光照射強度の増加に比例して有効核磁場  $B_N$  は線形に増加し、比較的励起強度の強い50 mWでも、 $B_N \cong 6$  mTであることは、InP量子ドットにおける超微細相互作用は比較的弱いことを示している。

<チャージチューナブルInP量子ドット中の電子スピンの緩和時間> [論文 13, 17]

チャージチューナブルInP量子ドットは、電気バイアスを-0.6Vにすると中性、-0.1Vにすると1電子がドーピングされ、+0.5Vにすると2電子がドーピングされる。準共鳴励起で、Hanle効果測定を行うと、1電子ドーピングされた時のみ円偏光レーザー励起に対し負の円偏光度をゼロ磁場で示す発光を示す。Hanle曲線は半値半幅1.54 T、128 mT、4.6 mTの3ローレンツ成分の和で構成される(図3)。4.6 mTの幅の最も鋭いローレンツ成分は負で、トリオン量子ビートが観測される同じバイアスで現れるから、ド

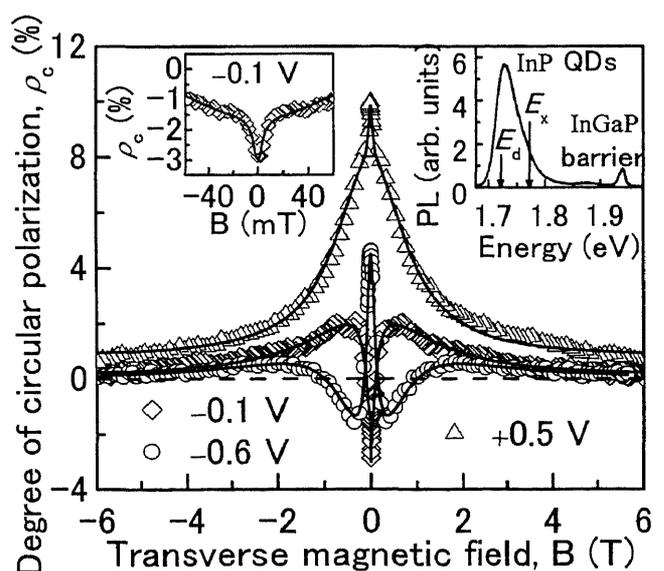


図3: チャージチューナブルInP量子ドットのHanle効果。

ープされた1電子のスピンの緩和によるものと同定できる。4.6 mT から  $gT_2^* = 2.5$  ns が導かれ、InP 量子ドットの電子の g-因子は 1.5 なのでドープ電子のスピンの緩和時間は  $T_2^* = 1.7$  ns と導かれる。この値は、超微細構造相互作用を通して、核スピン揺らぎが引き起こす電子スピン緩和として説明される。実際、核スピン揺らぎの有効磁場を円偏光度の縦磁場依存性から求めた値 15 mT が引き起こす電子スピン緩和として比較的良い一致を示した。これは、量子ドットを構成する原子の核スピンゆらぎが超微細相互作用を通して量子ドット中の電子スピンの寿命の上限を決めることを明らかにしたという意味を持ち、核スピンの 0 にはならない III-V 族半導体量子ドット中の電子スピンの限界を示すものである。128 mT の幅のローレンツ成分は、1 電子ドープに呼応して負になるので光励起電子・正孔対のスピンフリップによると同定されスピンの緩和時間は  $T_2^* = 51$  ps と導かれる。最も広い 1.54 T の幅のローレンツ成分は、1 粒子正孔のスピン緩和と同定されスピンの緩和時間は  $T_2^* = 29$  ps と導かれる。ドットの発光ピーク波長における Hanle 効果はドープ電子数を変えると劇的に変化する。2 電子ドープの時には、Hanle 曲線は正の 2 成分ローレンツ関数の和から構成される。この場合、最も低い電子の量子状態は終始、上向きスピン、下向きスピンの 2 電子で占められているので、正孔のスピン緩和を反映している。中性の時は、Hanle 曲線は 3 成分ローレンツ関数 (2 つの正と 1 つの負) の和から構成される。

#### <GaAsN 混晶のスピンの緩和> [論文 10]

GaAs<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub> 混晶は新しい近赤外域半導体材料として注目され、N を 1%~3.4% 含む GaAs<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub> 混晶には歪みが内在し重い正孔と軽い正孔のバンド分裂をおこしている。N を 2.1~3.4% 含む GaAs<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub> 混晶において観測された現象は、混晶中の深い常磁性センターの偏極と伝導電子のスピンの依存したトラップにより説明され、局在した電子のおそいスピンの緩和時間は 1 ns になることが Hanle 効果によりすでに示した。より強い磁場領域の Hanle 効果は電子の速いスピンの緩和時間の成分の存在を示しこれを計測した。スピンの依存した近赤外域の発光は応用上重要な特性であり、応用が期待される。

#### <チャージチューナブル InP 量子ドットにおけるスピンの偏極> [論文 25]

直線偏光による準共鳴励起の下、量子ドット中の励起状態にアップ・ダウンスピンを等量生成し基底状態からの発光の円偏光度を検出することで量子ドットでの励起子の共鳴スピンの偏極と微細構造準位を明らかにした。チャージチューナブル InP 量子ドットでは、電圧を印加することでドット内の電子の数を操作する事ができる。量子ドット中に電子が 1 つドープされている時には磁場の増加とともに円偏光度が単調に変化しており、これは残留電子のゼーマン準位間の熱平衡にともなうスピンの偏極と荷電励起子形成時の正孔のスピン偏極、活性な荷電励起子準位間の熱平衡

化により理解できるであろう。また、量子ドット中に電子が 2 つドープされている時にも磁場の向きに合わせて円偏光度が単調に変化しており、これは光励起された電子と正孔対がそれぞれのゼーマン準位間で相関をもちながら熱平衡化することにより理解できる。これとは対照的に中性の時 (図 4) では円偏光度が 1.5 T と 2.5 T 付近に極値を持ち変化する。この 2 つのピークは横磁場下では現れず、縦磁場成分が大きくなるにつれて表れるようになる。また温度を上げていくとこの 2 つのピークは失われていく。これらの事からこの振る舞いは光学的に不活性と活性な励起子のゼーマン準位が交差・反交差することによると考えられる。2 つの異なる励起子の準位がエネルギー的に近くなると寿命が長いので分布が多くなる不活性励起子が右回りまたは左回り円偏光を発する活性励起子と混ざり発光するようになるからである。活性励起子と不活性励起子の混合状態は、スピンのもつれ合い状態を意味し、スピンのも

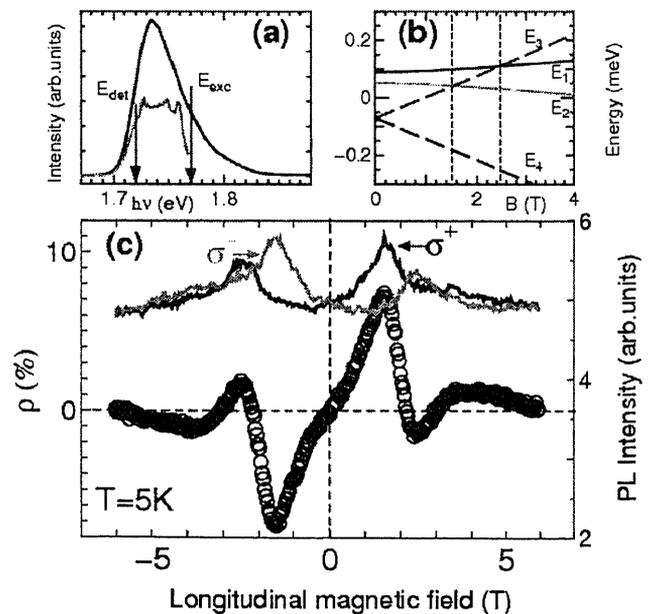


図 4: 発光スペクトル (a)、励起子準位の縦磁場依存性 (b) と、直線偏光励起下の発光の円偏光度の磁場依存性 (c)。

つれ合い状態が磁場により制御できたことになる。またこの2つのピーク間隔よりInP 量子ドットにおけるホールのg 因子を1.02 と求められる。InP 量子ドット中の励起子準位の計算結果を図4(b)に示す。これは1.5 T、2.5 Tの磁場で準位が交差しており実験結果を支持する。

## 2. 2 量子ドットの分光研究

### <単一 InP 量子ドットの励起子・励起子分子の光学異方性> [論文 1]

自己形成した InP 量子ドットはサイズの不均一性を持ち、多数の量子ドットからのマクロな光学スペクトル測定では、個々の量子ドットが持つ微細なエネルギー構造を測定することはできない。InAs 量子ドットでは、単一量子ドット分光で得られる偏光依存性が[110], [1 $\bar{1}$ 0]方向にあるのに対し、InP 量子ドットでは母体である GaInP の自然超格子オーダーを反映して個々に偏光方向が異なることが報告されている。InP 単一量子ドットの個々の光学異方性を調べるため、単一量子ドットにおける光学スペクトル測定を行った。

図6は10Kにおける InP 単一量子ドットの励起子・励起子分子の発光強度の偏光依存性を極座標プロットしたものである。励起子と励起子分子が同じ偏光依存性を示した。偏光方向が[110], [1 $\bar{1}$ 0]方向とはずれているのが分かる。

図7は図6における発光強度が(a)最大(124°), (b)最小(34°)となる偏光方向に対する発光スペクトルを示している。白丸は測定結果、実線はローレンツ関数によるフィットの結果を示す。最大の際は最小の時に比べ、励起子分子の発光ピーク(XX)は低エネルギー側へ、励起子の発光ピーク(X)は高エネルギー側へシフトしている様子が分かる。これは励起子中の電子と正孔間の交換相互作用により励起子のエネルギー準位が分裂し、そのエネルギー準位のうち、124°(34°)の時は高い(低い)準位の励起子が発光する一方、励起子分子は高い(低い)励起子を残して発光することに起因している。

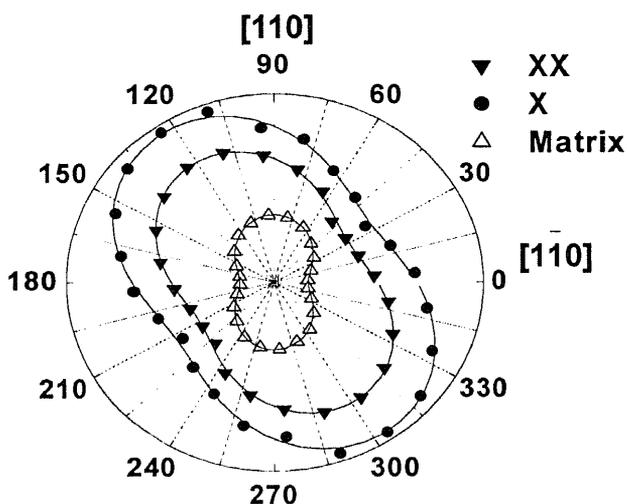


図6: InP 単一量子ドットの励起子・励起子分子発光強度の偏光角依存性。

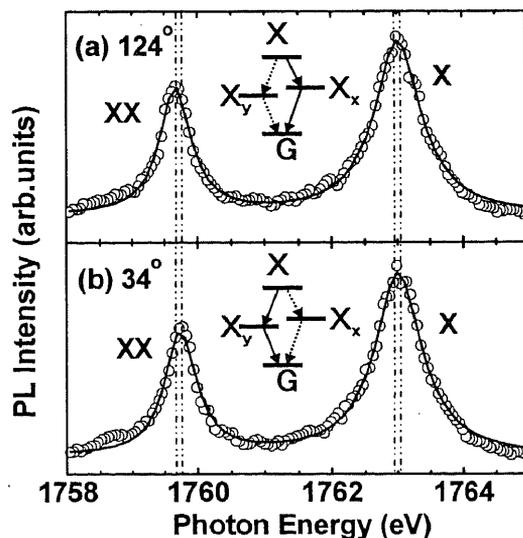


図7: InP 単一量子ドットの発光スペクトルの偏光依存性。

### <単一 InP 量子ドットのスピンの関わる光スペクトル>

単一 InP ドット中の励起子のスピンに関わる光スペクトルを調べた。超伝導マグネットを用いた強磁場環境下で操作できる共焦点型の顕微分光測定システムを作成し、単一量子ドットからの発光の磁場特性を調べた。表面を光リソグラフィー技術により表面積 $10^{-7}$  cm $^2$  のメサ構造に加工された InP 量子ドット試料を用いて、ファラデー配置において0 T から8 T まで磁場を印加した時の、直線偏光励起における単一 InP 量子ドットの発光スペクトルの磁場依存性の測定を行った。図8にその結果を示す。ゼロ磁場における1724 meV 付近、1725.5 meV 付近の発光ピークはそれぞれ、荷電励起子(X $^-$ )、励起子(X)からの発光に対応する。どちらの発光ピークも磁場を増大させるにつれ、高エネルギー側へシフトしていき、徐々に二つに分裂していく。X $_a^0$ (X $_a^-$ )、X $_b^0$ (X $_b^-$ ) はそれぞれ分裂した発光ピークにおける低エネルギー側、高エネルギー側のピークを指し、ゼロ

磁場において電子・正孔間の異方的交換相互作用で分離した励起子準位からの発光に対応する。

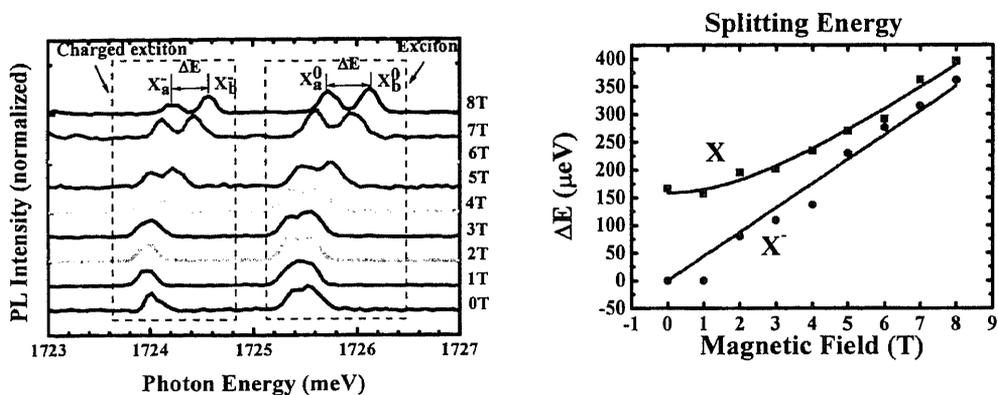


図8: 縦磁場下、単一 InP 量子ドットの発光スペクトルと励起子。

図8の発光ピークエネルギーのシフトはゼーマン分裂、反磁性シフトに起因しており、発光ピークエネルギーの分裂は、ゼロ磁場における異方的交換相互作用に起因するエネルギーの分裂と磁場印加によるゼーマン分裂に起因している。Xの発光はゼロ磁場においても $\delta_1$  (ゼロ磁場における交換分裂エネルギー) だけ分裂しているのに対し、 $X^-$ の発光はゼロ磁場においてクラマース縮重によりピークの分裂が起こっていないことが確認できる。フィッティング結果から、単一InP量子ドットの X,  $X^-$ における $g_{ex}$  (励起子g因子) と $\gamma_2$  (反磁性係数) の値を求めることができた。Xにおける値は、 $g_{ex} = 0.77 \pm 0.02$ 、 $\gamma_2 = 7.50 \pm 0.64 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ 、 $X^-$ における値は、 $g_{ex}^{X^-} = 0.76 \pm 0.03$ 、 $\gamma_2 = 6.35 \pm 0.44 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ となり、誤差の範囲内でX,  $X^-$ における $g_{ex}$ と $\gamma_2$ の値はほぼ一致した。InP量子ドットにおいて電子のg因子は $g_e = 1.5$ より、正孔のg因子が求められ、 $g_h = g_e \cdot g_{ex} \approx 0.73$ という結果を得た。磁場下で単一InP量子ドットの発光の分光によりX,  $X^-$ の $\delta_1$ の有無という違いを明確にし、 $X^-$ におけるg因子や $\gamma_2$ の値を得た。

### <GaP:N 等電子トラップからの単光子発生> [論文 20]

III-V族半導体にドーパした光学活性な等電子トラップ不純物を究極の量子ドットと見なして、1個の不純物原子あるいは不純物原子ペアに束縛された励起子に着目し、これら単一の不純物準位からの自然放出光を単一光子発生に利用する可能性を明らかにするため、GaP結晶中にドーパされた窒素原子(N)による等電子トラップに着目した研究を行った。

物質・材料研究機構の佐久間芳樹博士により、窒素原子を1~2原子層だけドーパしたGaP:N試料を有機金属気相成長法(MOCVD)で作製された。孤立窒素原子ではなく、近接する窒素原子が2つペアになったNNと呼ばれる束縛準位を用いることにより、約3桁ほどトラップの面内数密度を下げる事が出来るので、通常の顕微分光の分解能の範囲に含まれるトラップの数は数個程度に抑えられ、単一トラップの検出も可能になる。例えば $NN_3$ や $NN_4$ は1つの窒素原子が原点(000)に存在するとした時に、もう一つの窒素原子がそれぞれ(211)と(220)の位置にあるときに形成される束縛準位である。

不純物の面内分布の様子を得るために、顕微鏡下の試料の発光イメージを分光器スリットに結像する方法で得られた結果を図9に示す。(b)は分光器に取り付けられた2次元検出器上の光強度

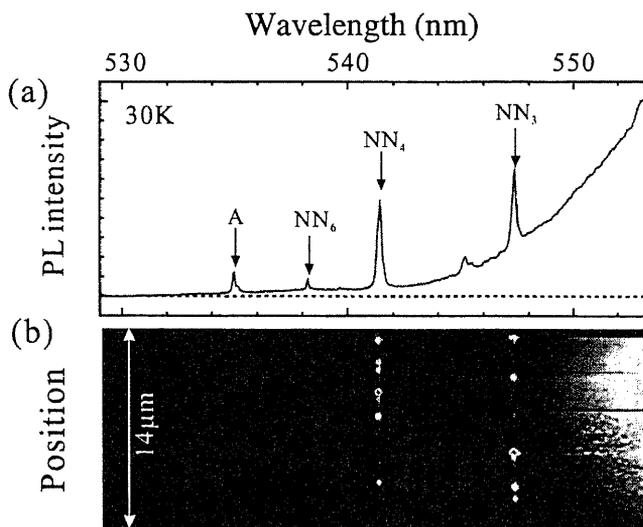


図9: 希薄なGaP:N試料の発光スペクトル(a)と試料上の一次元的な位置と発光スペクトルの関係(b)を示す。

分布であり、縦方向が試料上の位置に直接対応する。横方向は分光器で分光された波長である。強度分布には $\text{NN}_3$ および $\text{NN}_4$ の波長に輝点は何点か観測されている。これら1つ1つの点が単一の $\text{NN}_3$ および $\text{NN}_4$ からの発光である。孤立窒素原子によるピーク A は、同図中の青線のようになり、こちらには全く構造が観測されない。これは、孤立 N 原子は NN ペアの数よりも数千倍多く均一に存在している事を考えれば理解できる。

これらの輝点が単一のトラップセンターによるものかどうかは、Hanbury-Brown Twiss 型の強度相関測定を行うことによって確認した。図 10 は同試料に対してピンホールを用いて数ミクロンサイズの領域からの発光を選択し、狭帯域フィルターで $\text{NN}_4$ に相当する波長だけを切り出して得られた二次の相関関数である。遅延時間 0 ns の位置に明瞭なディップが観測されている。バックグラウンド成分を含んでいるためゼロまでは落ちていないものの、単一トラップセンターからの単一光子の発生を示す結果と言える。これまで III-V 族半導体中の等電子トラップによる単一光子発生は報告が無く、本研究により初めて実現された。

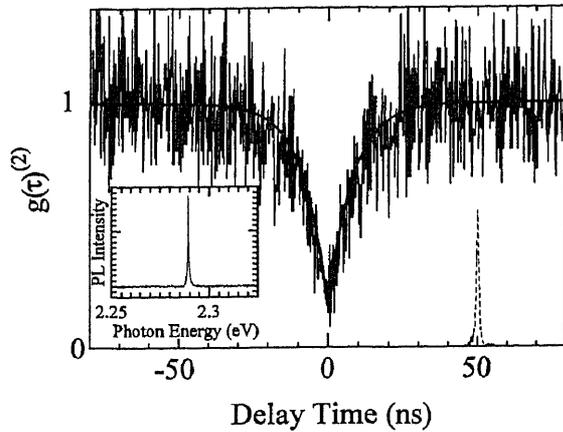


図 10: GaP:N 中の単一  $\text{NN}_4$  トラップセンターについて初めて観測されたアンチバンチング。

### <単一半導体量子ドットの発光自己相関測定による位相緩和過程の観測> [論文 27]

単一量子ドットにおける励起子状態は単一光子源や、長い励起子位相緩和時間を用いた量子ゲート操作など、量子情報処理への応用が期待されている。励起子位相緩和時間の測定は非線形分光法を用いるのが一般的であるが、信号が微弱なため単一ドットでの測定は極めて困難である。しかし、単一量子ドットから発光により生じる単一光子は高感度な検出が可能であり、それを自己相関測定することによって位相緩和過程の測定が可能となる。GaInP マトリックス中に成長された InP 量子ドットでは構造非対称性及びトラップキャリアなどの周囲の環境からの影響が個々の量子ドットによって異なり、個々の光学的特徴が現れてくる。この InP 量子ドットについて、単一ドット中の励起子の位相緩和過程を調べるために発光の自己相関測定を行った。

試料は基板上にメサ構造が微細加工されたものを用い、低温下での単一 InP 量子ドットからの発光を観測した。CW グリーンレーザー(532 nm)によって障壁層をバンド間励起し、顕微分光によって得られた発光をマイケルソン干渉計に導入し、一方の光路に光学遅延を設けて干渉させる。この干渉計からの出力を分光器に通し CCD 検出した。10 K での単一量子ドットからの発光スペクトル中の、励起子による発光(A)と荷電励起子による発光(B)の干渉信号の振幅を干渉計の遅延時間に対してプロットしたものが図 11 である。二つの発光ピーク A,B に対する遅延時間依存性は明らかに位相緩和の振る舞いが異なり、B では $\sim 40$  ps の長い位相緩和時間を示した。さらに特徴的なことは通常の位相緩和過程において見られる指数関数的な減衰ではなく、非指数関数的な振る舞いを示していることである。

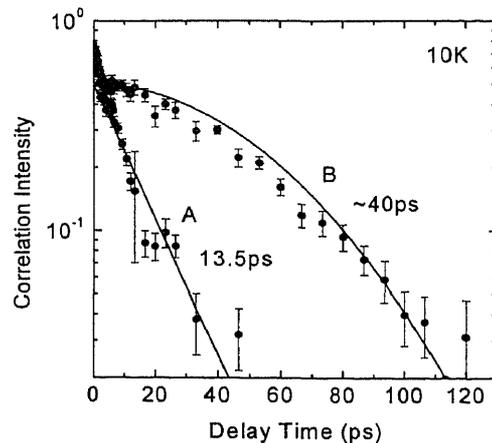


図 11: 単一 InP 量子ドットの励起子と荷電励起子発光の自己相関強度。

これはドットの周囲にトラップされたキャリアによるものと考えられ、そのようなトラップキャリアが生成と消滅を比較的ゆっくりした時間スケールで繰り返すために、ドットに対してその時間スケールを反映したエネルギー変調が生じ、非指数関数的な振る舞いを示すと考えられる。

### <ディスク状 InAs/InP 量子ドットにおける励起子輻射再結合過程の研究> [論文 20]

ディスク状量子ドットにおいて励起子のディスク面内方向の閉じ込めが輻射再結合寿命にどのような影響を与えているかを調べるため、InAs/InP 系のディスク状量子ドットと量子井戸の2種類の試料について、フォトルミネッセンス (PL) 寿命の温度依存性の測定を行い比較した。これらの試料の PL スペクトルを図 12 に示す。平均積層厚 2 ML の量子井戸試料が1つのピークのみを示すのに対して[図 12(a)], ディスク状量子ドット試料は分裂した複数のピーク (f3 ~ f9) を示している[図 12(b)]。これは1原子層の厚みを単位とする離散的な量子ドットの高さ分布のためであり、f3 ~ f9 のピークはそれぞれ 3 ~ 9 ML の高さに対応している。図 13 はこれらの試料についてアップ・コンバージョン法を用いて PL を時間分解測定した結果である。この図の曲線のように1成分の指数関数的な減衰を仮定して PL 寿命を求め、それを温度に対して調べ、PL 時間積分強度の温度依存性 (図 12) を考慮して、輻射再結合寿命を求めることができる。量子井戸中の励起子の輻射再結合寿命は強く温度に依存し、最低温度を除いて温度に比例するように増大しているが、これは GaAs/AlGaAs 系量子井戸などにおいて示されている結果と同様である。これに比べ、ディスク状量子ドットでは、温度依存性がかなり抑えられていることが分かった。これは量子ドットに固有の離散的なエネルギースペクトルを反映したものと考えられる。

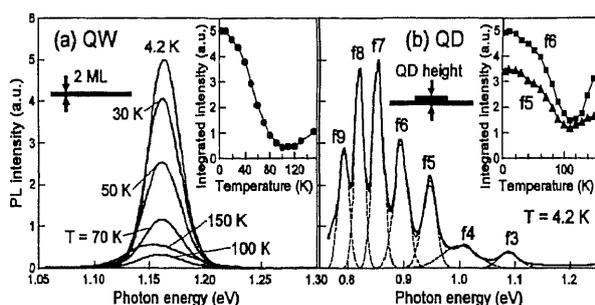


図 12: (a) InAs/InP 量子井戸及び (b) ディスク状量子ドットの PL スペクトル。積分強度の温度依存性を各パネルの右上に示す。

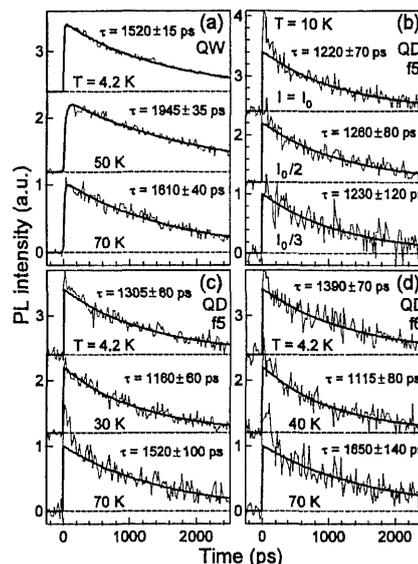


図 13: 時間分解 PL の測定結果。(a) InAs/InP 量子井戸、(c) (d) ディスク状量子ドットの f5、f6 ピークにおける温度依存性。(b) は f5 ピークにおける励起密度依存性。

## 2. 3 新しいナノ構造の光物性

### <InP/InAs/InP コアマルチシェル型ナノワイヤ光物性>

断面が六角形をしているウルツ鉱型 InP/InAs/InP コアマルチシェルナノワイヤは InP ナノワイヤに内包された 1~3 原子層の InAs 超薄膜層が量子井戸となり、その層厚が 1 原子層ずつ変化するのに応じて発光エネルギーが 1.05eV から 1.35eV の間で離散的に変化する。発光の励起スペクトルのピークは発光のピークより 70 meV も高エネルギー側に見られ、発光バンドの幅 30 meV の 2 倍以上である。発光のピークは励起強度の増加とともに高エネルギー側にシフトし、そのシフトは励起光強度に対して 1/3 乗に比例し、光励起電子・正孔の分離に伴う過渡的なバンド曲がりによって説明されるタイプ II 型の量子井戸の特徴を示す。準共鳴励起下で数 ns までの時間領域をストリークカメラで数十 ns までの時間領域を単一光子検出法で発光の時間依存性を測定した。数 ns の時間領域では発光の重心が時間と共にゆっくりと低エネルギー側にシフトしていき、量子井戸中の低エネルギー領域へ励起子が移動していく過程が観測された。発光は数百 ns まで非指数関数型の裾をひき、タイプ II 型の量子井戸の特徴をもっていることが明らかになった。1~3 原子層量子井戸では、InAs より 4.5% 小さな格子定数を持つ InP が内面だけでなく外面からも、六角形を保ったまま外周からも取り囲んでいるので、大きな静水圧が働き、伝導帯を大きく上げるので電子の波動関数が InP 層に大きく広がっていると考えられる。

### < (チオフェン/フェニレン) コオリゴマー結晶の励起子光学遷移 > [論文 4,23]

$\pi$ 電子共役系化合物は有機電界発光(EL)素子などの発光デバイスへの応用や、その優れた電気的特性より有機薄膜 FET への応用が期待されている。特に (チオフェン/フェニレン) コオリゴマー [2,5-Bis(4-biphenyl)oligothiophenes (BP $n$ T)]結晶は室温において非常に高い発光量子効率を有し、光強励起下で自然放射増幅光(ASE)を発生するので、有機半導体レーザーなどへの応用が期待される。しかし、詳細な基礎光学遷移やレーザー作用の起源については未解明で、これに関して解明をめざした。

BP $n$ T( $n=1-4$ )単結晶はそれぞれほぼ同じ分子振動モードを持っているため、発光及び吸収スペクトルにそれらの結合モードが生じ、ほぼ同じエネルギー間隔で光学遷移のピークが現れることが確認されてきた。まず、レーザー作用は分子振動モードを伴った光学遷移で起こることを誘導放出スペクトルと発光スペクトルを低温から室温まで温度を変えて調べることで解明した。次に、振動モードを介さない 0-0 遷移に関しては  $n=2-4$  の BP $n$ T 結晶では明瞭な吸収ピークが観測されて

いたが、BP1T 結晶のみ発光、吸収ともに 0-0 遷移に対応するピークが観測できないというパズルがあったが、結晶構造中の分子配列から、この振る舞いは分子の遷移双極子モーメントの向きと電子的に結合した隣接分子の遷移双極子モーメントの向きとの間関係によって説明できることが明らかにされた。BP1T 結晶では分子の遷移双極子モーメントの向きがほぼ平行に配列しているため、H 会合体様の光学遷移の振る舞いを示し、0-0 遷移が禁制遷移となる。実際、これらの結晶で 0-0 遷移ピーク付近における吸収スペクトルの偏光依存性を調べたところ、明らかな異方性が見られた。図 14 は BP3T 結晶の吸収スペクトルで、ab 面内における b 軸方向からの偏

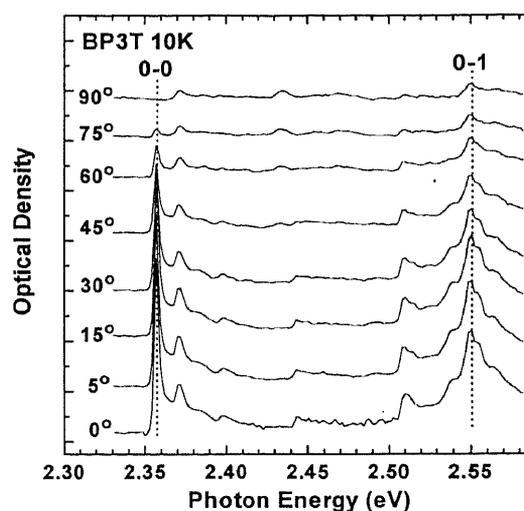


図 14: BP3T 結晶の吸収スペクトルの偏光依存性。

光角度依存性を示したものである。0-0, 0-1 遷移ともに b 軸方向に強く偏光していることがわかる。これは分子がお互い平行な配列方向からわずかに傾いており、結晶 b 軸方向には遷移双極子モーメントの位相が合うため光学遷移が生じると解釈できる。このような偏光異方性は BP2T 結晶でも同様に見られるため、BP $n$ T 結晶( $n=1-4$ )の光学遷移の振る舞いは結晶構造中の分子間の遷移双極子モーメントの向きに大きく支配されていることが解明された。

### < (チオフェン/フェニレン) コオリゴマー結晶のリング状マイクロレーザー > [論文 18,22,23]

(チオフェン/フェニレン) コオリゴマー結晶は、室温において高密度励起を行なうことにより、バルク結晶や薄膜結晶でも、自然放射増幅光が観測されている。また電界発光も観測されており、電流注入型有機半導体レーザーへの応用が期待されている。この研究では、BP1T の薄膜結晶を用いてマイクロサイズの光閉じ込め構造を作製し、光励起下で共振器モードによるレーザー発振を実現した。励起光源としてチタンサファイアレーザー増幅器の第二高調波(3.12eV)を用い、リソグラフィ加工によって形成された直径 10-40  $\mu\text{m}$  のマイクロリング及びマイクロディスク構造からの発光を観測した。マイクロリング及びマイクロディスク構造は Si 基板上に BP1T 薄膜を蒸着・アニールし結晶化させた後、電子ビーム露光と反応性イオンエッチングによって作製された。マイクロリング構造の共振器モードを反映したレーザー発振が観測された。バルク薄膜とマイクロリング構造のレーザー発振閾値を比較すると、マイクロリング構造の場合 1/7 程度の低減があること、スペクトルに見られる共振器モードを反映したモード間隔はリングの円周長の逆数に比例することが明らかにされた。共振器長は円周長に対応することから円周上に分布した周回モードであると解明された。この振る舞いはマイクロディスク構造でも同様に観測された。

### 3. 研究の総括と今後の展望

半導体中のスピンを光学的に研究するオプティカルオリエンテーション (Optical Orientation) は、すでに 50 年の研究の歴史があり、*Optical Orientation*, ed. by F. Meier and B.P. Zakharchenya (North-Holland, 1984) という有名な本が存在する。それにもかかわらず、このオ

プティカルオリエンテーションを量子ドットのスピンの分光学的研究に使う例は少なく、研究がロシア圏に局在していたように感じていた。この分野の専門家のV. Kalevich博士(Ioffe Physico-Technical Institute)が、2003年以来数回、研究代表者のグループの研究に参加したことを契機として、高感度に半導体中のスピンを光学的に計測できるオプティカルオリエンテーションやオプティカルラインメントを量子ドットのスピンの研究に用い始め、本研究ではこの手法を用いてチャージチューナブルInP 量子ドットを対象にして、

- 1電子ドープInP 量子ドットにおけるミリ秒まで保存される電子スピン、
- 1電子ドープInP 量子ドットにおける動的核スピン分極、
- 超微細構造相互作用を通して核スピン揺らぎが引き起こすドープ電子のスピン緩和を解明し、更に
- 中性InP 量子ドットにおける励起子の共鳴スピン偏極

を見いだした。

1電子ドープInP 量子ドットにおける残留電子のスピンを光により偏極させ、このスピンのミリ秒にわたって保持されることを発光の円偏光度の時間依存性から見出したが、これにより実際、スピンを用いて量子情報を保持する可能性を示した。続いて、電子のスピン分極が原子核のスピンを分極させること、外部磁場がないと核スピン揺らぎが電子のスピン緩和を引き起こすことを利用して動的核スピン分極と核スピン揺らぎを発光の円偏光度の弱磁場領域の磁場依存性から観測した。また、1電子ドープInP 量子ドットにおける残留電子のスピン緩和時間 ( $T_2^*$ ) を、ハンレ効果を用いて測定し、これが核スピン揺らぎに起因することを結論した。これは、量子ドットを構成する原子の核スピン揺らぎが超微細相互作用を通して量子ドット中の電子スピンの寿命の上限を決めることを明らかにしたという意味を持ち、核スピンを持つIII-V族半導体量子ドットにおける電子スピンの緩和時間の長さの限界を示すものである。中性InP 量子ドットにおいては、光学的に不活性と活性な励起子のゼーマン準位が交差・反交差することによる励起子の共鳴スピン偏極現象を量子ドットにおいて初めて観測した。これは磁場によりスピンのもつれ合い状態を制御できることを示した意義もある。

こうしたチャージチューナブル InP 量子ドット中のスピン緩和に直接関わる研究以外の研究も行った。主な方向は、GaP:N 等電子トラップからの単光子発生、InP/InAs/InP コアマルチシェル型ナノワイヤ光物性、(チオフェン/フェニレン) コオリゴマー結晶の光物性で、特に、GaP:N 等電子トラップからの単光子発生の研究は、III-V族半導体中の等電子トラップによる初めての単光子発生で、人工原子の範囲を広げた将来に期待できる成果となった。

本書で引用した研究代表者のグループの研究は、筑波大学大学院数理物質科学研究科・物理学系の池沢道男博士、阪東一毅博士(先端学際領域研究センター)、富本慎一博士、B. Pal 博士(日本学術振興会外国人特別研究員)および、大学院学生(菅野敦史、水落清、小口修平、須藤史敬、後藤健、利行健、烏山陽子、黒川篤、藤原聖士、鈴木宰)との共同研究である。また、多くの研究が佐久間芳樹博士(物質・材料研究機構) S. Verbin 博士、I. Ignatiev 博士(St. Petersburg University)、V. Kalevich 博士(Ioffe Physico-Technical Institute)、P. Mohan 博士、本久順一教授、福井孝志教授(北大量子集積エレクトロニクス研究センター)、K. Kyhm 准教授(Pusan National University)、佐々木史雄博士、小林俊介博士、原市聡博士(産業技術総合研究所)、堀田収教授(京都工芸繊維大学)、杉崎満准教授(大阪市立大学)、相原正樹教授(奈良先端科学技術大学院大学)、内山智香子准教授(山梨大学)との共同研究として行われた。これらの各氏の研究協力に対し深く感謝したい。

#### IV. 発表論文集

以降は学術雑誌掲載論文から構成されていますが、著作権者(出版社、学会等)の許諾を得ていないため、筑波大学では電子化・公開しておりません。

なお、下記については電子ジャーナルとして出版社から公開されています。契約している場合は全文を読むことができます。詳しくは下記のリンク先をご覧ください。

- 論文 1) <http://dx.doi.org/10.1016/j.jlumin.2006.01.178>
- 論文 2) <http://dx.doi.org/10.1016/j.jlumin.2006.01.273>
- 論文 3) <http://dx.doi.org/10.1016/j.jlumin.2005.12.028>
- 論文 4) <http://dx.doi.org/10.1063/1.2159083>
- 論文 5) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.73.073309>
- 論文 6) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.73.125321>
- 論文 7) <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.75.054702>
- 論文 13) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.74.205332>
- 論文 14) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.75.125315>
- 論文 15) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.75.125322>
- 論文 16) <http://dx.doi.org/10.1109/QELS.2007.4431111>
- 論文 17) <http://dx.doi.org/10.1109/QELS.2007.4431565>
- 論文 18) <http://dx.doi.org/10.1063/1.2755925>
- 論文 20) <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.46.L871>
- 論文 21) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.76.205317>
- 論文 22) <http://dx.doi.org/10.1002/adma.200701008>
- 論文 23) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.77.045205>
- 論文 25) <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.77.115331>
- 論文 27) <http://dx.doi.org/10.1016/j.jlumin.2007.11.021>

なお、論文19)につきましては、日本物理学会のご承諾を得て、下記URL から著者最終原稿

をご覧くださいことができます。

- 論文 19) <http://hdl.handle.net/2241/100157>