

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340084

研究課題名(和文)人工原子の新機能性の開拓

研究課題名(英文)Developing New Functionality in Artificial Atoms

研究代表者

舩本 泰章(MASUMOTO, Yasuaki)

筑波大学・名誉教授

研究者番号：60111580

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,100,000円、(間接経費) 4,530,000円

研究成果の概要(和文)：電子ドーピングInP/InGaP量子ドットでの励起強度に依存する時間分解カー回転信号を観測し、密度行列計算と比較してコヒーレントな自然放出光が電子・トリオン4準位系に及ぼす反作用が弱励起の場合にあらわに働くことを明らかにした。GaAs:N中の単一等電子トラップ(NNペア)に束縛された励起子からの発光に単光子発生を表すアンチバンチング現象をHanbury-Brown-Twiss量子相関測定により初めて見いだした。また、最短発光寿命が650psであることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Excitation-intensity-dependent time-resolved Kerr rotation signal was observed in singly electron-doped InP/InGaP quantum dots. The phenomenon was reproduced by density-matrix calculation allowing for the reaction on the quantum dot electron-trion four-level system during its coherent radiation emission. Single photon emission was observed as antibunching from an exciton bound to a single isoelectronic trap in GaAs:N by means of Hanbury-Brown-Twiss intensity correlation measurement. The shortest lifetime of 650ps was observed.

研究分野：物性I

科研費の分科・細目：光物性

キーワード：電子スピン 単光子発生 時間分解カー回転 等電子トラップ ZnO

1. 研究開始当初の背景

人工原子—量子ドットや半導体中の単一トラップが発する光子と内在するスピンの量子性は、量子演算・量子情報処理への応用に直結している。局在するために長い緩和時間を持つ電子スピンは、量子通信の媒体となる光との整合性が良いスピン量子メモリとして働き、そのスピン緩和・操作は、世界的に活発に研究が進歩していた。また、単一ドットが発する光子の単光子性、量子性の解明が進み、量子通信における半導体単光子源への期待が、人工原子の概念を拡張して単一光子を発する半導体中の単一の不純物や等電子トラップの研究を急展開させていた。本研究グループでは、本研究に直接関わる (1) 量子ドット中のドーピングされた電子スピンの操作と (2) 半導体中の等電子トラップの単一光子発生と原子配置の同定について先立つ研究成果があり、研究の将来性を取り入れて本研究“人工原子の新機能性の開拓”の着想に至った。本研究は、人工原子の分光研究を通じて (1) スピン量子メモリのための電子スピンの操作、(2) スピントロニクスのための希薄磁性量子ドットの光磁化ダイナミクスの理解、および (3) 量子通信のための半導体等電子トラップの理解と単光子発生の研究を格段に進展させることを狙ったものである。

2. 研究の目的

本研究は、(1) スピン量子メモリのための電子スピンの操作、(2) スピントロニクスのための希薄磁性量子ドットの光磁化ダイナミクスの理解、および (3) 量子通信のための半導体等電子トラップの理解と単光子発生の研究を格段に進展させることを狙って、高感度時間分解カー回転法により電子スピンの才差運動を直視することで量子ドット中にドーピングされた電子スピンや半導体中の不純物中心に束縛された電子スピンのスピン操作を可視化し、完全な結晶対称性をもつ人工原子—半導体中の単一等電子トラップの偏光分光・磁気偏光分光により等電子トラップ原子配置を同定し、束縛された励起子の波動関数、微細構造と位相緩和を解明する。また、単一光子を発生する物質群の拡大 (人工原子の概念の拡大) をめざした研究を行う。

3. 研究の方法

高感度時間分解カー回転法により電子スピンの才差運動を直視することで、InP 量子ドット中にドーピングされた電子スピンや半導体中の不純物中心に束縛された電子スピンの光パルスによる初期化と緩和、光パルス、電場、磁場による電子スピン操作を可視化しダイナミクスを明らかにする。

デルタドーピングと単一等電子トラップの偏光分光により原子配置を同定し、磁気偏光分光により完全な結晶対称性をもつ人工原子—単一等電子トラップに束縛された

励起子の波動関数、微細構造と位相緩和を解明する。半導体の等電子トラップには、GaP:N ばかりでなく GaAs:N も単一の等電子トラップに束縛された励起子は単一光子を発生する可能性がある。この予想に従って単一光子を発生する物質群の拡大 (人工原子の概念の拡大) をめざして実証を行う。協力研究者による MOCVD 結晶成長により試料作成を行う。この試料作成では、制御された低濃度の不純物ドーピングが重要となる。

4. 研究成果

(1) 共鳴円偏光ピコ秒パルスによる量子ドット中の電子スピン初期化と操作

量子ドット当たり平均で 1 個の電子をドーピングしたチャージチューナブル InP/InGaP 量子ドットでの時間分解カー回転の測定の結果、図 1 に示すように磁場 $B=1\text{T}$ では 47ps の周期をもつ量子ドット中の電子の横磁場の周りのスピン歳差運動が観測され、この振動が励起強度の増大によって位相が反転し、振動寿命が長くなることを見いだした (弱励起の場合は 200ps 程度、強励起の場合は 1ns 以上)。この現象は共鳴パルス光によって生じたスピン偏極の方向が光強度の増加により反転していることを示している。この位相反転の様子は、共鳴円偏光パルスを、光電場強度に比例するラビ周波数を $\Omega_0=0.8\text{THz}$ から 21THz に変えて電子・トリオン 4 準位系に共鳴励起する設定で、電子・トリオン 4 準位系の密度行列シミュレーション計算に、弱励起の場合にあらわになるコヒーレントな自然放出光が 4 準位系に及ぼす反作用を導入すると再現することが出来る。あわせて観測される励起強度による電子スピンの緩和時間の変化も、弱励起の場合にあらわになるコヒーレントな自然放出光が 4 準位系に及ぼす反作用により説明できる。

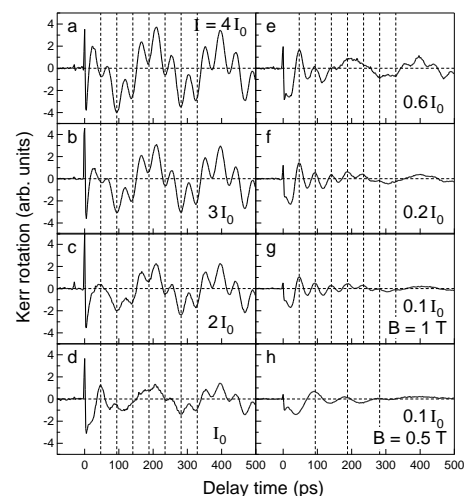


図 1 : 電子ドーピング InP/InGaP 量子ドットでの励起強度に依存する時間分解カー回転信号。

(2) ZnO 中の電子スピンの長時間コヒーレンス

量子情報処理において、光で書き込み読み出しができる半導体中の電子スピンに要求されるのは、長時間のスピンコヒーレンスである。半導体中の局在電子スピンの横緩和時間(T_2)は核スピンとの超微細相互作用を通して働く核磁場の揺らぎに律速されるので、核スピンがゼロの核の自然存在比が大きい ZnO では、長い電子スピンの横緩和時間が期待される。Ga を $6 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ の濃度でドーブした ZnO 薄膜中の束縛励起子 D^0X に共鳴励起下で電子スピンのスピンコヒーレンスを時間分解カー回転測定法により計測し、12ns と長い時間を得た。電子スピンのコヒーレンス時間はモード同期レーザーの繰り返し時間 12.2ns に匹敵し、共鳴スピン増幅の手法を用いて $T_2^* = 12\text{ns}$ の緩和時間が温度 $T = 1.8\text{K}$ で得られた。縦磁場をゼロ磁場付近で掃引してカー回転を計測しゼロ磁場付近で観測されたディップの半値半幅は核スピン磁場の揺らぎの大きさを示し、1.3mT と求まる。1.3mT から核磁場の揺らぎによる電子スピンの緩和時間は 13ns と見積られ、実測緩和時間と概ね一致する。観測された緩和時間は、III-V 族半導体量子ドット中の電子のスピンのコヒーレンス緩和時間に比べ 1 桁長い。

(3) CdS 量子ドットの電荷移動とスピンドィフェージング

高効率量子ドット太陽電池においては極めて重要な要素である CdS 量子ドット (平均直径 = 2.8nm) から電子輸送 TiO_2 ナノ粒子や正孔輸送ポリマー分子への高速電荷移動を、室温で時間分解ファラディ回転を用いて異なる g 因子を持つ電子、正孔や励起子による信号を分離してスピン歳差運動とディフェージングを測定した。時間分解ファラディ回転信号は $g = 1.95$ の局在電子の歳差運動がもたらす減衰振動成分と正孔・励起子の g 因子の異方性がもたらす非振動成分からなり、室温で $T_2^* = 0.35\text{ns}$ の量子ドット集団にある局在電子のスピンドィフェージングと正孔輸送ポリマーへの正孔が少しゆっくり移動しているのが観測された。

(4) GaAs:N 中の単一等電子トラップからの単光子発生

半導体中の格子点に置かれた不純物に束縛された電子・正孔対 (励起子) が、エネルギーのそろった狭いエネルギー幅を持つ単光子を発生することが実証されてきたが、発光エネルギーの揃った単光子源として応用に近い III-V 族半導体では窒素 N をデルタドーブされたリン化ガリウム結晶 GaP:N 中の単一等電子トラップ (NN ペア) に束縛された励起子に続いて、N をデルタドーブされた砒化ガリウム結晶 GaAs:N 中の単一等電子トラップ (NN ペア) に束縛された励起子からの発光の光を、図 2 に示すように

Hanbury-Brown-Twiss 量子相関測定により調べ、単光子発生を表すアンチバンチング現象を初めて見いだした。また、発光寿命が 650ps であることを明らかにした。

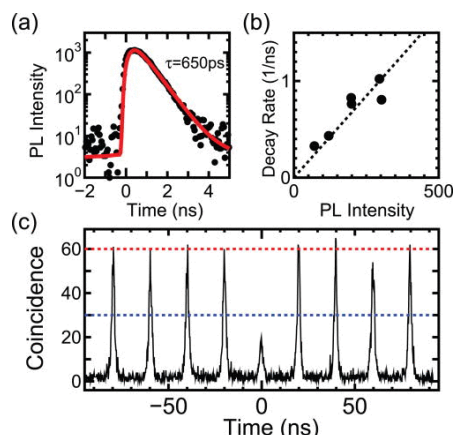


図 2 : (a) 最短発光寿命が 650ps である GaAs:N 中の単一等電子トラップ (NN ペア) に束縛された励起子。 (b) 発光速度が発光強度に比例する。 (c) 単光子発生を表すアンチバンチングを示す Hanbury-Brown-Twiss 量子相関測定。

(5) GaAs:N 中の単一等電子トラップに束縛された励起子の位相緩和時間のフーリエ分光測定

GaAs:N 中の単一等電子トラップ (NN ペア) からの単光子をマイケルソン干渉測定することで位相緩和時間を測定し、位相緩和時間が温度上昇に伴い短くなりフォノン吸収を伴って位相緩和する温度依存性を見いだした。温度 2 K で GaAs:N に対してフーリエ分光測定により求めた不純物窒素に束縛された励起子の位相緩和時間は 370ps と長い、発光寿命により決まるフーリエ変換限界と比べて若干短い。その原因の一つは非共鳴励起により生成される余剰キャリアのため、スペクトル拡散が起こっていると考えられる。

(6) 単一等電子トラップの共鳴励起による超コヒーレントな単光子発生

窒素デルタドーブ GaAs 薄膜を用いて、GaAs 結晶中の単一の窒素等電子トラップに束縛された励起子の発光は、5K の低温で励起エネルギーを掃引すると得られる $30\mu\text{eV}$ 程度の共鳴発光の励起スペクトルから、 $30\mu\text{eV}$ の均一幅が確認される。均一幅を与える寿命広がり幅よりも狭い線幅を持つリング型チタンサファイアレーザー (線幅 約 5MHz: $0.02\mu\text{eV}$) を用いた共鳴励起を行い、発生した光子の強度相関にはアンチバンチングが明瞭に観測され、共鳴励起条件下での単光子の発生が確認された。半導体中の単一等電子トラップを十分狭い線幅を持つレーザー光で共鳴的に励起することで、寿命広がりによって決まるコヒーレンス時間よりも長いコ

ヒーレンス時間を持つ、超コヒーレントな単一光子を発生させた。

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 15 件)

(1) Jianhui Sun, Dehua Zhu, Jialong Zhao, Michio Ikezawa, Xiuying Wang, Yasuaki Masumoto: "Ultrafast carrier dynamics in CuInS₂ quantum dots", Applied Physics Letters, 査読有, 104, 2014, 023118-1-4.
DOI: 10.1063/1.4862274

(2) Liao Zhang, Michio Ikezawa, Tatsuya Mori, Shintaro Umehara, Yoshiki Sakuma, Kazuaki Sakoda, Yasuaki Masumoto: "Single photon generation from an impurity center with well-defined emission energy in GaAs", Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, 52, 2013, 04CG11-1-3.
DOI: 10.7567/JJAP.52.04CG11

(3) Pengtao Jing, Wenyu Ji, Xi Yuan, Michio Ikezawa, Ligong Zhang, Haibo Li, Jialong Zhao, Yasuaki Masumoto: "Photoinduced Charge Separation and Recombination Processes in CdSe Quantum Dot and Graphene Oxide Composites with Methylene Blue as Linker", The Journal of Physical Chemistry Letters, 査読有, 4, 2013, 2919-2925.
DOI: 10.1021/jz401460j

(4) 舛本泰章: "量子ドットのスピン緩和", 固体物理, 査読有, 48, 2013, 485-496.

(5) Michio Ikezawa, Liao Zhang, Yoshiki Sakuma, Tatsuya Mori, Kazuaki Sakoda, Yasuaki Masumoto: "Fourier Spectroscopy of Individual Nitrogen Impurity Centers in GaAs", AIP Conference Proceedings, 査読有, 1566, 2013, 544-545.
DOI:10.1063/1.4848526

(6) Yasuaki Masumoto, Hayato Takagi, Hikaru Umino, Eri Suzumura: "Fast Electron Transfer from PbSe Quantum Dots to TiO₂", AIP Conference Proceedings, 査読有, 1566, 2013, 520-521.
DOI:10.1063/1.4848514

(7) Jianhui Sun, Jialong Zhao, Yasuaki Masumoto: "Shell-thickness-dependent photoinduced electron transfer from CuInS₂/ZnS quantum dots to TiO₂ films", Applied Physics Letters, 査読有, 102, 2013, 053119-1-4.
DOI:10.1063/1.4790603

(8) Yasuaki Masumoto, Ken Goto, Shinichi

Tomimoto, Premila Mohan, Junichi Motohisa, Takashi Fukui: "Bimolecular interlayer scattering of electrons in InP/InAs/InP core-multishell nanowires", Journal of Luminescence, 査読有, 133, 2013, 135-137.
DOI:10.1016/j.jlumin.2011.09.036

(9) Shinichi Tomimoto, Keisuke Kawana, Akira Murakami, Yasuaki Masumoto: "Coherence of an electron spin in quantum dots generated by a resonant optical pulse with elliptic polarization", Journal of Luminescence, 査読有, 133, 2013, 162-168.
DOI: 10.1016/j.jlumin.2011.09.047

(10) Shinichi Tomimoto, Keisuke Kawana, Akira Murakami, Yasuaki Masumoto: "Influence of optical coherence on the electron spin in singly-charged InP quantum dots excited by resonant laser pulses", Physical Review B, 査読有, 85, 2012, 235320-1-6.
DOI:10.1103/PhysRevB.85.235320

(11) Xi Yuan, Jialong Zhao, Pengtao Jing, Wenjin Zhang, Haibo Li, Ligong Zhang, Xinhua Zhong, Yasuaki Masumoto: "Size- and Composition-Dependent Energy Transfer from Charge Transporting Materials to ZnCuInS Quantum Dots", The Journal of Physical Chemistry C, 査読有, 116, 2012, 11973-11979.
DOI:10.1021/jp3037236

(12) Yasuaki Masumoto, Hayato Takagi, Hikaru Umino, Eri Suzumura: "Fast electron transfer from PbSe quantum dots to TiO₂", Applied Physics Letters, 査読有, 100, 2012, 252106-1-3.
DOI:10.1063/1.4729881

(13) Michio Ikezawa, Yoshiki Sakuma, Liao Zhang, Yoshinori Sone, Tatsuya Mori, Takenobu Hamano, Masato Watanabe, Kazuaki Sakoda, Yasuaki Masumoto: "Single-photon generation from a nitrogen impurity center in GaAs", Applied Physics Letters, 査読有, 100, 2012, 042106-1-3.
DOI:10.1063/1.3679181

(14) Yasuaki Masumoto, Yuuki Hirata, Premila Mohan, Junichi Motohisa, Takashi Fukui: "Polarized photoluminescence from single wurtzite InP/InAs/InP core-multishell nanowires", Applied Physics Letters, 査読有, 98, 2011, 211902-1-3.
DOI:10.1063/1.3592855

(15) Pengtao Jing, Xi Yuan, Wenyu Ji, Michio Ikezawa, Xueyan Liu, Ligong Zhang, Jialong Zhao, Yasuaki Masumoto: "Efficient energy transfer from hole transporting materials to CdSe-core CdS/ZnCdS/ZnS-multishell quantum

dots in type II aligned blend films", Applied Physics Letters, 査読有, 99, 2011, 093106-1-3. DOI:10.1063/1.3633110

[学会発表] (計 26 件)

(1) 海野晃, 舩本泰章: "CdS 量子ドットの電荷移動とスピンドイフェージング", 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 30 日, 東海大学.

(2) Jianhui Sun, Jialong Zhao, Yasuaki Masumoto: "Ultrafast carrier dynamics in CuInS₂ quantum dots", 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 30 日, 東海大学.

(3) 張遼, 池沢道男, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "GaAs 中の単一窒素発光中心の共鳴蛍光", 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 29 日, 東海大学.

(4) 池沢道男, 張遼, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "単一発光中心の共鳴励起による単一発光発生", 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 18 日, 青山学院大学.

(5) Yasuaki Masumoto: "Fast charge transfer from quantum dots for solar cells", 1st International Conference on Nano-Bio-Medicine Convergence (NBMC-2014), 2014 年 2 月 24 日, Pusan National University, Korea (招待講演) .

(6) Yasuaki Masumoto, Hayato Takagi, Hikaru Umino, Eri Suzumura: "Fast electron transfer from small PbSe quantum dots to TiO₂", 18th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids, 2013 年 8 月 8 日, Fuzhou, China.

(7) Jianhui Sun, Jialong Zhao, Yasuaki Masumoto: "Shell Thickness Dependent Photoinduced Electron Transfer from CuInS₂/ZnS quantum dots to TiO₂ films", 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 28 日, 広島大学.

(8) 張遼, 池沢道男, 森達哉, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "GaAs:N 中の単一不純物発光中心のフーリエ分光測定", 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 27 日, 広島大学.

(9) 森達哉, 池沢道男, 張遼, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "超コヒーレントな単一光子発生のための単一発光中心の共鳴励起", 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 27 日, 広島大学.

(10) 舩本泰章: "量子ドットのスピン緩和", 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 27 日, 広島大学 (招待講演) .

(11) 村上瑛, 冨本慎一, 加藤裕幸, 佐野道宏, 松本貴裕, 舩本泰章: "ZnO 薄膜中の Ga 不純物に束縛された電子のスピン緩和", 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 20 日, 横浜国立大学.

(12) 張遼, 池沢道男, 森達哉, 梅原晋太郎, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "GaAs:N 中の発光エネルギーが揃った発光中心から単一光子の発生", 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 12 日, 松山大学.

(13) 村上瑛, 冨本慎一, 加藤裕幸, 佐野道宏, 松本貴裕, 舩本泰章: "ZnO 薄膜中の Ga ドナーに束縛された電子スピン緩和時間の計測", 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 11 日, 愛媛大学.

(14) Yasuaki Masumoto, Hayato Takagi, Hikaru Umino, Eri Suzumura: "Fast Electron Transfer from PbSe Quantum Dots to TiO₂", 31th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012), 2012 年 8 月 2 日, スイス連邦工科大学 (スイス) .

(15) Michio Ikezawa, Liao Zhang, Yoshiki Sakuma, Tatsuya Mori, Kazuaki Sakoda, Yasuaki Masumoto: "Fourier Spectroscopy of Individual Nitrogen Impurity Centers in GaAs", 31th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2012), 2012 年 8 月 2 日, スイス連邦工科大学 (スイス) .

(16) 鈴木孝行, 高木勇人, 海野晃, 舩本泰章, Diane Youker, David Watson: "PbS 量子ドットの時間分解発光: 透明ナノ粒子への電荷移動", 日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 27 日, 関西学院大学.

(17) 張遼, 池沢道男, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "GaAs:N 中の単一発光中心のフーリエ分光による発光均一幅の測定", 日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 27 日, 関西学院大学.

(18) 張遼, 池沢道男, 森達哉, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "GaAs 中の窒素不純物発光中心に束縛された励起子の位相緩和時間", 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 2012 年 3 月 18 日, 早稲田大学.

(19) 佐久間芳樹, 池沢道男, 森達哉, 張遼, 舩本泰章, 迫田和彰: "MOCVD 法により窒素をδドープした GaAs からのエネルギーの揃った PL 輝線発光", 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 2012 年 3 月 17 日, 早稲田大学.

(20) 張遼, 森達哉, 濱野毅信, 池沢道男, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 舩本泰章: "GaP:N 中の

二軸異方性単一NNペアの磁気光学", 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 23 日, 富山大学.

(21) 舛本泰章, 平田裕基, Premila Mohan, 福井孝志, 本久順一: "単一ウルツ鉱型 InP/InAs/InP コアマルチシェルナノワイヤーの偏光ルミネッセンス", 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 23 日, 富山大学.

(22) 富本慎一, 川名啓介, 村上瑛, 舛本泰章: "量子ドットにドーピングされた電子の共鳴パルス光によるスピン偏極と緩和", 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 21 日, 富山大学.

(23) 高木勇人, 鈴木孝行, 舛本泰章: "PbSe ナノクリスタルにおけるマルチエキシトン生成", 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 21 日, 富山大学.

(24) Jianhui Sun, Xiuying Wang, Jialong Zhao, Yasuaki Masumoto: "Time-resolved photoluminescence in CuInS₂/ZnS core/shell quantum dots", 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 21 日, 富山大学.

(25) Shinichi Tomimoto, Keisuke Kawana, Akira Murakami, Yasuaki Masumoto: "Coherence of an electron spin in quantum dots generated by a resonant optical pulse with elliptic polarization", 16th International Conference on Luminescence (ICL2011), 2011 年 6 月 29 日, ミシガン大学 (アメリカ).

(26) Yasuaki Masumoto, Ken Goto, Shinichi Tomimoto, Premila Mohan, Junichi Motohisa, Takashi Fukui: "Bimolecular interlayer scattering of electrons in InP/InAs/InP core-multishell nanowires", 16th International Conference on Luminescence (ICL2011), 2011 年 6 月 28 日, ミシガン大学 (アメリカ).

[図書] (計 1 件)

(1) 舛本泰章 (分担執筆): 「物性物理学ハンドブック」, 朝倉書店, 2012, 676 (437-452).

[その他]

舛本・池沢研究室ホームページ
<http://www.px.tsukuba.ac.jp/~ikezawa/lab/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

舛本 泰章 (MASUMOTO, Yasuaki)
筑波大学・名誉教授
研究者番号: 60111580

(2) 研究分担者

池沢 道男 (IKEZAWA, Michio)
筑波大学・数理物質系・准教授

研究者番号: 30312797

富本 慎一 (TOMIMOTO, Shinichi)
筑波大学・数理物質系・助教
研究者番号: 90396599