

平成18年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究終了報告書

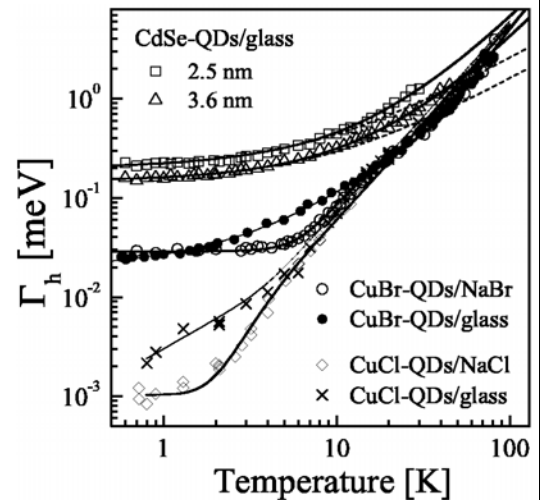
◆記入に当たっては、「平成18年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究終了報告書記入要領」を参照してください。

ローマ字	MASUMOTO YASUAKI					
①研究代表者氏名	舛本 泰章			②所属研究機関・部局・職	筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授	
③研究課題名	和文	量子ドットの緩和とコヒーレント制御				
	英文	Relaxation and Coherent Control of Quantum Dots				
④研究経費 金額単位：千円	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	総合計
	25,000	32,300	11,700	11,600	11,600	92,200
⑤研究組織（研究代表者及び研究分担者） *平成18年3月31日現在						
氏名	所属研究機関・部局・職	現在の専門	役割分担（研究実施計画に対する分担事項）			
舛本 泰章	筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授	固体の光物性実験	研究の立案、遂行および総括			
池沢 道男	筑波大学・大学院数理物質科学研究科・助手	固体の光物性実験	量子ドットのコヒーレント制御実験研究の遂行			
⑥当初の研究目的（交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。）						
本研究では、						
1) レーザー分光法を用いスペクトル領域と時間領域の両面から、低温の極限で量子ドット中に量子化された電子や励起子のコヒーレント緩和（均一幅）を明らかにする。すなわち半導体量子ドットの量子化されたエネルギースペクトルの“線幅がどこまで狭くなるか？”言い換えれば、“どこまで長いコヒーレンス時間を持つか？”を明らかにする。この問題は、“原子状”の、しかし原子とは異なる量子ドットの本質と関わる基本問題である。						
2) 次に、量子ドットのコヒーレント制御を実現する。長時間コヒーレンスを利用して量子ドットのコヒーレント制御とその応用が可能になる。量子ドットの大極子のコヒーレント振動を励起したり、止めたり、自由自在に制御することで、量子コンピューティングに繋がる基本的技術を開拓する。						
3) また、量子化された電子準位間のエネルギー緩和（フォノン緩和）機構を明らかにする。フォノンボトルネック効果に関する実験と理論の対立を明確な形で決着させる。						
の3項目を当初の研究目的とした。						

⑦ 研究成果の概要 (研究目的に対する研究成果を必要に応じて図表等を用いながら、簡潔に記入してください。)

1) 量子ドットの光スペクトルの均一幅とコヒーレンス緩和機構の解明。 [論文 1,2,11,14,18,B1,B3,B4]

“原子状”の量子ドットの本質と関わる基本問題である量子ドット中のコヒーレント緩和(均一幅)を解明した。マイケルソン干渉計で作られたフェーズロック光パルス列で励起しながら、共鳴二次発光を用いた歪誘起 InGaAs/GaAs 量子ドットの位相緩和測定[論文 2,11,14]を実証し、励起子の均一幅を蓄積フォトンエコー法により時間領域からマトリックス中の CdSe および CuBr 量子ドットにおける励起子の位相緩和メカニズム[論文 1,18,B1,B3,B4]を 0.7K の極低温まで測定し、量子ドットにおける低温均一幅の温度依存性は、温度に依存しない成分、励起子-二準位系間の相互作用、励起子-閉じ込め音響フォノン間の相互作用(2フォノンラマン過程)の3つの和で統一的・普遍的に記述できることを明らかにした(右上図)。



2) 量子ドット中の高速エネルギー緩和(フォノン緩和)の解明。 [論文 3,7,B1,B4]

InP や InGaAs 自己形成量子ドットに負の電気バイアスをかけ、量子ドットから光励起された正孔を抜き取る非輻射緩和速度を制御し、量子ドット中の離散的なエネルギー準位間の電子の光学型フォノン(LO)、音響型フォノンを伴うエネルギー緩和と競合させながら、定常発光スペクトルおよび時間分解発光の両面からフォノン緩和の様子が明らかにされた。音響型フォノン緩和は 50ps の立ち上がり時間を示し、フォノンボトルネック効果を示す理論計算で予想されるフォノン緩和に比べはるかに速い緩和速度になっている。LO フォノン緩和は十分速く、理想的量子ドットについて考えられたフォノンボトルネック効果は、自己形成量子ドットでは実験的に否定されたことになる。

3) 超高感度ヘテロダイナ検出フォトンエコーの開発と単層量子ドットへの応用 [論文 25,26,32,36]

単層の歪み誘起 GaAs 量子ドットおよび電場をかけた単層の InP 量子ドットのヘテロダイナ検出フォトンエコー測定に成功し、前者では量子井戸に比べ量子ドットでは励起子のコヒーレンス時間が長く、励起子分子の束縛エネルギーが増大することを明らかにし[論文 36]、後者では電場により電子のドーピング量を変えることで Pauli Blocking 効果、電場により正孔をトンネル過程で量子ドットから引き抜く過程を初めて観測することに成功した。[論文 32]

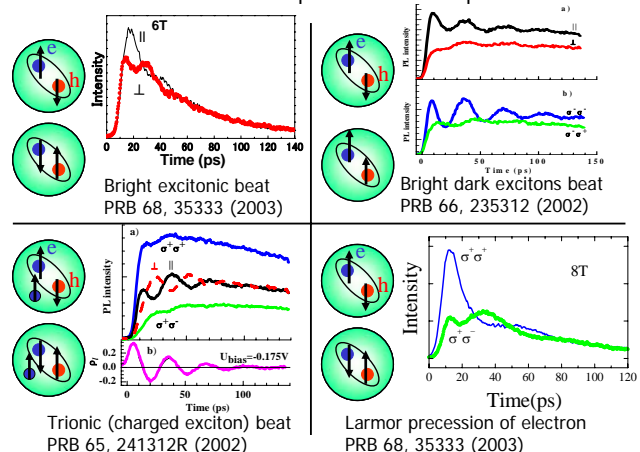
4) 量子ビートによる量子ドットのスピン依存微細構造の研究[論文 9,10,13,16,19-21,23]

ゼロ磁場で、トリオン発光の量子ビートを InP 量子ドットで初めて見出し[論文 9]、更に、量子ドットの4種類の量子ビート(右下図)を発見した。これらはチャージチューナブル量子ドットの新概念を生み出した独創的な研究である。

5) 電子をドーピングされた InP 量子ドット中のサブミリ秒の電子スピン緩和時間 [論文 27,34,37]

電子がドーピングされた 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、新開発の発光ポンプ・プローブ法により計測し、サブミリ秒からミリ秒に達することを明らかにした[論文 27,34,37]。次に、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示し、ハンレ効果によりスピン位相緩和時間が核スピンの揺らぎで決まるナノ秒であることを明らかにした。

Four kinds of luminescence quantum beat in quantum dots



6) 電子スピンの緩和時間に対する弱磁場による核スピン揺らぎの凍結効果 [論文 29,30]

Amand(仏/Toulouse)のグループと共同研究により、正孔をドーピングされた InAs 量子ドットにおいて、無磁場で光励起電子スピンの緩和時間が 500ps であったのが、わずか 0.1T の磁場で 4ns になる、核スピン揺らぎの電子スピン緩和への影響を相殺する効果を見いだした[論文 30]。

⑧特記事項 (この研究において得られた独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、当該研究分野及び関連研究分野への影響等、特記すべき事項があれば記入してください。)

本研究の主要な成果を列挙すると

- 1) 量子ドットにおける励起子のコヒーレント緩和機構について統一的な描像を得た事、
- 2) 量子ドットのエネルギー緩和におけるフォノンボトルネック効果を実験的に否定した事、
- 3) 超高感度ヘテロダイン検出フォトンエコーの開発により単層量子ドットのコヒーレンス研究が可能になった事、
- 4) チャージチューナブル量子ドットを発見し、長い電子スピン緩和を明らかにした事、である。

特記したいことは、

- 1) 強い閉じ込め領域から弱い閉じ込め領域にわたる量子ドットで、量子ドットに閉じ込められ量子化された音響フォノンと、それを囲むマトリクス中の微小エネルギーの励起が、寿命に加えて低温における量子ドットの均一幅を決定づける普遍的メカニズムであると実験的に明らかにでき、量子ドットにおける励起子のコヒーレント緩和機構について統一的な描像を得た事。
- 2) トリオン発光の量子ビートを、ゼロ磁場で電気バイアスをかけた InP 量子ドットで初めて見出し、原子様”から”イオン様”にまで特性を自由に変えられる系—チャージチューナブル量子ドット”の概念を生み出した事。
- 3) 数原子層のフォトンエコーが計測できるまでに超高感度ヘテロダイン検出フォトンエコーを進化させ、実際に単層 InP 量子ドットと単層歪み誘起 GaAs 量子ドットにおいて成果を得た事。
- 4) 電子がドーパされた量子ドット中の電子スピンの長い緩和時間を見いだした事。また、核磁場が電子スピンの緩和時間を短くする効果を相殺する簡単な手法を見いだした事。

新しい概念の誕生として、1)、2) は特に重要であり、また、2)、3) は研究手法として応用・発展が期待される。一方、4) は量子ドット中の電子スピンの量子情報処理への応用を可能にする重要な結果である。

今後、チャージチューナブル量子ドットを舞台にこの中の少数多体系のコヒーレンス、電子波束の運動、電子と核のスピン緩和を明らかにし、かつ制御する研究が進んでいくと期待できる。

数原子層のフォトンエコーが計測できるまでに進化した超高感度ヘテロダイン検出フォトンエコーは、大幅に適用範囲を広げ、新しいレーザー分光学の発展になると期待できる。

⑨研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(掲載が確定しているものを含む。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会、特許等の発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付してください。)

論文

- 1) Y. Masumoto, M. Ikezawa, B.-R. Hyun, K. Takemoto and M. Furuya:
"Homogeneous Width of Confined Excitons in Quantum Dots at Very Low Temperatures"
physica status solidi (b) 224, 613-619 (2001); Int. Conf. Semiconductor Quantum Dots (Munich, 2000). //INVITED PAPER//
- 2) A.V. Baranov, V. Davydov, A.V. Fedorov, H.-W. Ren, S. Sugou and Y. Masumoto:
"Coherent Control of Stress-Induced InGaAs Quantum Dots by Means of Phonon-Assisted Resonant Photoluminescence"
physica status solidi (b) 224, 461-464 (2001); Int. Conf. Semiconductor Quantum Dots (Munich, 2000).
- 3) Y. Masumoto, I.V. Ignatiev, I.E. Kozin, V.G. Davydov, S.V. Nair, H.-W. Ren, J.-S. Lee and S. Sugou:
"Breakdown of the Phonon Bottleneck Effect in Self-Assembled Quantum Dots"
Jap. J. Appl. Phys. 40, 1947-1950 (2001); Proc. Third Int. Symp on Formation, Physics and Device Application of Quantum Dot Structures (Sapporo, 2000).
- 4) K. Nishibayashi, T. Okuno, T. Mishina, S. Sugou, H.-W. Ren and Y. Masumoto:
"Optical Study of Strain-Induced GaAs Quantum Dots"
Jap. J. Appl. Phys. 40, 2084-2086 (2001); Proc. Third Int. Symp on Formation, Physics and Device Application of Quantum Dot Structures (Sapporo, 2000).
- 5) M. Sugisaki, H.-W. Ren, K. Nishi and Y. Masumoto:
"Fluorescence Intermittency in Self-Assembled InP Quantum Dots"
Phys. Rev. Lett. 86, 4883-4886 (2001).
- 6) J. Zhao, S.V. Nair and Y. Masumoto:
"Exciton-phonon coupled states in CuCl quantum cubes"
Phys. Rev. B 63, 033307-1-4 (2001).
- 7) I.V. Ignatiev, I.E. Kozin, V.G. Davydov, S.V. Nair, J.-S. Lee, H.-W. Ren, S. Sugou and Y. Masumoto:
"Phonon resonances in photoluminescence spectra of self-assembled quantum dots in an electric field"
Phys. Rev. B 63, 075316-1-11 (2001).
- 8) M. Ikezawa, T. Okuno, Y. Masumoto and A.A. Lipovskii:
"Complementary detection of confined acoustic phonons in quantum dots by coherent phonon measurement and Raman scattering"
Phys. Rev. B 64, 201315-1-4(R) (2001).
- ⑨ I.E. Kozin, V.G. Davydov, I.V. Ignatiev, A.V. Kavokin, K.V. Kavokin, G. Malpuech, H.-W. Ren, M. Sugisaki, S. Sugou and Y. Masumoto:
"Zero-field spin quantum beats in charged quantum dots"
Phys. Rev. B 65, 241312-1-4(R) (2002).
- 10) I.A. Yugova, V.G. Davydov, I.Ya. Gerlovin, I.V. Ignatiev, I.E. Kozin, M. Sugisaki and Y. Masumoto:
"Spin Quantum Beats in the Stokes Shifted Photoluminescence of InP Quantum Dots"
physica status solidi (a) 190, 547-550 (2002).
- 11) A.V. Baranov, V. Davydov, A.V. Fedorov, M. Ikezawa, H.-W. Ren, S. Sugou and Y. Masumoto:
"Interferometric coherence measurement of stress-induced $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dots at the resonant-luminescence phonon sideband"
Phys. Rev. B 66, 075326-1-7 (2002).
- 12) Y. Masumoto, M. Nomura, T. Okuno, Y. Terai, S. Kuroda and K. Takita:
"Highest-order optical phonon-mediated relaxation in CdTe/ZnTe quantum dots"
J. Lumin. 102-103, 623-628 (2003); Int. Conf. on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL '02) (Budapest, 2002).
- 13) Y. Masumoto:
"Coherent spectroscopy of semiconductor quantum dots"
J. Lumin. 100, 191-208 (2002).
- 14) A.V. Fedorov, A.V. Baranov and Y. Masumoto:
"Coherent Control of the fundamental transition in a single quantum dot"
Solid State Commun. 124, 311-315 (2002).
- 15) M. Sugisaki, H.-W. Ren, S.V. Nair, K. Nishi and Y. Masumoto:
"External-field effects on the optical spectra of self-assembled InP quantum dots"
Phys. Rev. B 66, 235309-1-10 (2002).

- ⑨研究成果の発表状況（続き）（この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文（掲載が確定しているものを含む。）の全著者名、論文名、学協会誌名、巻（号）、最初と最後のページ、発表年（西暦）、及び国際会議、学会、特許等の発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付けてください。）
- 16) I.A. Yugova, I. Ya. Gerlovin, V.G. Davydov, I.V. Ignatiev, I.E. Kozin, H.W. Ren, M. Sugisaki, S. Sugou and Y. Masumoto:
"Fine structure and spin quantum beats in InP quantum dots in a magnetic field"
Phys. Rev. B 66, 235312-1-9 (2002).
 - 17) T. Okuno, M. Nomura, Y. Masumoto, Y. Terai, S. Kuroda and K. Takita:
"Optical Study of Phonon-Mediated Carrier Relaxation in CdTe/ZnTe Self-Assembled Quantum Dots"
J. Phys. Soc. Jpn. 71, 3052-3058 (2002).
 - ⑩18) K. Takemoto, B.-R. Hyun, M. Furuya, M. Ikezawa, J. Zhao and Y. Masumoto:
"Universal Dephasing Mechanism in Semiconductor Quantum Dots Embedded in a Matrix"
J. Phys. Soc. Jpn. 72, 249-252 (2003).
 - 19) I.V. Ignatiev, I.Ya. Gerlovin, M. Ikezawa, V.K. Kalevich, S.Yu. Verbin and Y. Masumoto:
"Long-lived spin polarisation in the charged InP quantum dots"
Physica E 17, 361-364 (2003).
 - 20) I.V. Ignatiev, T. Okuno, S.Yu. Verbin, I.A. Yugova and Y. Masumoto:
"Spin quantum beats in charged and neutral InP quantum dots"
Physica E 17, 365-366 (2003).
 - 21) K. Nishibayashi, T. Okuno, Y. Masumoto and H.-W. Ren:
"Luminescence quantum beats of strain-induced GaAs quantum dots"
Phys. Rev. B 68, 035333-1-6 (2003).
 - 22) J. Zhao, A. Kanno, M. Ikezawa and Y. Masumoto:
"Longitudinal optical phonons in the excited state of CuBr quantum dots"
Phys. Rev. B 68, 113305-1-4 (2003).
 - 23) Y. Masumoto, I.V. Ignatiev, K. Nishibayashi, T. Okuno, S.Yu. Verbin and I.A. Yugova:
"Quantum beats in semiconductor quantum dots"
J. Lumin. 108, 177-180 (2004); 14th Int. Conf. on Dynamical Processes in Excited States of Solids (Christchurch, 2003).
 - 24) A.V. Baranov, A.V. Fedorov, I.D. Rukhlenko and Y. Masumoto:
"Intraband carrier relaxation in quantum dots embedded in doped heterostructures"
Phys. Rev. B 68, 205318-1-7 (2003).
 - 25) Y. Masumoto, F. Suto, M. Ikezawa, C. Uchiyama and M. Aihara:
"Tunneling-induced dephasing in InP quantum dots"
Physica E 26, 413-416 (2005); Quantum Dots 2004 (Banff, 2004).
 - 26) M. Ikezawa, Y. Masumoto and H.-W. Ren:
"Observation of biexcitonic quantum beat in strain-induced GaAs quantum dots"
Physica E 26, 149-152 (2005); Quantum Dots 2004 (Banff, 2004).
 - 27) S.Yu. Verbin, I.V. Ignatiev, I.Ya. Gerlovin and Y. Masumoto:
"Optical orientation of electron and nuclear spins in negatively charged InP QDs"
Proc. 27th Int. Conf. Physics of Semiconductors, pp. 1417-1418 (Flagstaff, 2004).
 - 28) V.K. Kalevich, I.A. Merkulov, A.Yu. Shiryaev, K.V. Kavokin, M. Ikezawa, T. Okuno, P.N. Brunkov, A.E. Zhukov, V.M. Ustinov and Y. Masumoto:
"Optical spin polarization in double charged InAs self-assembled quantum dots"
physica status solidi (a) 202, 387-391 (2005); 4th Int. Conf. Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (St. Petersburg, 2004).
 - 29) Y. Chen, T. Okuno, Y. Masumoto, Y. Terai, S. Kuroda and K. Takita:
"Spin relaxation in CdTe quantum dots"
Phys. Rev. B 71, 033314-1-4 (2005).
 - 30) P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V.K. Kalevich, K.V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin and Y. Masumoto:
"Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots"
Phys. Rev. Lett. 94, 116601-1-4 (2005).
 - 31) V.K. Kalevich, I.A. Merkulov, A.Yu. Shiryaev, L.V. Kavokin, M. Ikezawa, T. Okuno, P.N. Brunkov, A.E. Zhukov, V.M. Ustinov and Y. Masumoto:
"Optical spin polarization and exchange interaction in doubly charged InAs self-assembled quantum dots"
Phys. Rev. B 72, 045325-1-8 (2005).

- ⑨研究成果の発表状況(続き) (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(掲載が確定しているものを含む。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会、特許等の発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付してください。)

- 32) Y. Masumoto, F. Suto, M. Ikezawa, C. Uchiyama and M. Aihara:
 “Non-Markovian tunneling induced dephasing in InP quantum dots”
 J. Phys. Soc. Jpn. 74(11), 2933-2936 (2005).
- 33) M. Ikezawa, J. Zhao, A. Kanno, and Y. Masumoto:
 “Confined Acoustic Vibration Modes in CuBr Quantum Dots”
 J. Phys. Soc. Jpn. 74(11), 3082-3087 (2005).
- 34) M. Ikezawa, B. Pal, Y. Masumoto, I.V. Ignatiev, S.Yu. Verbin and I.Ya. Gerlovin:
 “Submillisecond electron spin relaxation in InP quantum dots”
 Phys. Rev. B 72, 153302-1-4 (2005).
- 35) A. Kanno and Y. Masumoto:
 “Spin relaxation mechanism of strain-induced GaAs quantum dots studied by time-resolved Kerr rotation”
 Phys. Rev. B 73, 073309-1-4 (2006).
- 36) 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, 125321-1-5 (2006).
- 37) B. Pal, M. Ikezawa, Y. Masumoto and I.V. Ignatiev:
 “Millisecond-range electron spin memory in singly-charged InP quantum dots”
 To be published in J. Phys. Soc. Jpn.

出版物

- B1) Y. Masumoto and T. Takagahara, eds., *Semiconductor Quantum Dots - Physics, Spectroscopy and Applications*, Springer-Verlag, 2002.
- B2) Y. Masumoto: "Persistent Spectral Hole Burning in Semiconductor Quantum Dots" in "Semiconductor Quantum Dots - Physics, Spectroscopy and Applications" eds. Y. Masumoto and T. Takagahara p.209-p.244 (Springer-Verlag, 2002).
- B3) Y. Masumoto: "Homogeneous Width of Confined Excitons in Quantum Dots - Experimental" in "Semiconductor Quantum Dots - Physics, Spectroscopy and Applications" eds. Y. Masumoto and T. Takagahara p.325-p.351 (Springer-Verlag, 2002).
- B4) 舛本泰章: 人工原子, 量子ドットとは何か (pp.129-204) (「現代物理最前線6」大槻義彦編、共立出版、2002)
- B5) 舛本泰章: 28・5・1 超高速分光—1 (pp.665-670) (「レーザーハンドブック(第2版)」レーザー学会編、オーム社、2005)
- B6) 舛本泰章: フェムト秒分光の原理, 技術と応用 (pp.187-197) (「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)

特許

- [1] 舛本泰章: 「輝尽性発光素子及びその製造方法」、出願番号: 特願平11-024578、出願日: 1999.2.2、公開番号: 特開2002-219877、公開日: 2000.8.8、特許番号: 特許第3529654号、登録日: 2004.3.5
- [2] 舛本泰章: 「アップ・コンバージョン素子」、出願番号: 特願2000-008029、2000.1.17出願
- [3] 戚継発、舛本泰章: 「酸化珪素のナノワイヤの製造方法」、出願番号: 特願2000-342408、2000.11.9出願 特許第3571287号、登録日: 2004.7.2
- [4] 岡本紘、舛本泰章、奥野剛史、佐久間康、早崎裕一、門野真二郎: 「面型光—光スイッチおよびその製造方法」、出願番号: 特願2001-105633、2001.04.04出願、公開番号: 特許公開2002-303893
- [5] 岡本紘、舛本泰章、奥野剛史、佐久間康、早崎裕一、門野真二郎: 「半導体光非線形装置」、出願番号: 特願2001-273313、2001.09.10出願、公開番号: 特許公開2003-084321
- [6] 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
- [6'] [6]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・広帯域の光可飽和吸収半導体装置、それを用いた半導体装置および導波路型光—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
- [7] 岡本紘、坂東弘之、舛本泰章、奥野剛史、樋口彰、吉野英生、高橋了: 「光非線形半導体装置およびその製造方法」、出願番号: 特願2003-297542、2003.08.22出願
- [8] 岡本紘、坂東弘之、高橋了、吉野英生、舛本泰章、奥野剛史: 「半導体素子」、出願番号: 特願2004-249408、2004.8.30出願