SURE 静岡大学学術リポジトリ
Shizuoka University REpository

半導体単一量子ドットにおける励起子複合体位相緩和過程の高感度測定

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 静岡大学 公開日: 2010-02-08 キーワード (Ja): 励起子, 量子ドット, コヒーレンス キーワード (En): 作成者: 阪東, 一毅 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10297/4528

様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成２１年　４月　３日現在

研究種目：若手研究（Ｂ）
研究期間：２００７～２００８
課題番号：１９７４０１７５
研究課題名（和文）　半導体単一量子ドットにおける励起子複合体位相緩和過程の高感度測定

研究課題名（英文）　High sensitive detection of decoherence processes of exciton complexes in single semiconductor quantum dots

研究代表者
阪東　一毅　（BANDO KAZUKI）
静岡大学・理学部・助教
研究者番号　５０３４４８６７

研究成果の概要：フーリエ分光法によって半導体単一量子ドット中の励起子の位相緩和過程を調べることに成功した。これまで励起子位相緩和を支配するものはフォノンであると考えられてきたが、本研究ではフォノンとは別に周囲にトラップされた余剰電荷がフォノンよりも時間スケールの長い位相緩和をもたらすことを明らかにした。さらに、フォノンと余剰電荷による位相緩和の競合により、温度上昇で一時的にスペクトル線幅が狭くなる場合があることを見出した。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合　計
２００７年度	2,000,000	0	2,000,000
２００８年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総　計	3,200,000	360,000	3,560,000

研究分野：光物性
科研費の分科・細目：（分科）物理学　（細目）物性Ｉ
キーワード：励起子，量子ドット，コヒーレンス

１．研究開始当初の背景
半導体量子ドットにおける位相緩和メカニズム解明は、量子情報分野での展開上極めて重要な課題である。これまで位相緩和評価にはフォトンエコー法や発光線幅からの見積もりによる方法などが多く用いられてきたが、微弱な信号と装置分解能の制限により、一部のドットを除いて単一量子ドットでの位相緩和評価はいまだ発展途上である。しかし最近になり、単一量子ドットからの発光を自己相関測定することで位相緩和を観測する手法が取り上げられ始め、その有効性が示された。発光を検出するため、単一ドットで極めて高感度な測定が可能となる上、スペクトル分解能に左右されない。この手法を用いた報告は国内外においてまだ数例しかなく、まだ有効性が示されたばかりの段階のため、今後単一量子ドットレベルでの励起子系位相緩和過程に対してこの手法を用いれば、新たに重要な情報が多く得られることが期待できる。

２．研究の目的
III-V 族半導体量子ドットにおける励起子系

の位相緩和メカニズムを発光のフーリエ分光法によって単一量子ドットのレベルで明らかにすることを目的とした。

３．研究の方法

(1)これまでに構築していた発光の自己相関測定システムに対して、より高精度かつ高感度なフーリエ分光を実現するために、共焦点光学系と干渉計ステージの駆動プログラムなどの改良を試みた。

(2)多数の量子ドットを選び出し、それぞれの量子ドットからの発光をフーリエ分光検出し、その位相緩和過程の振る舞いを解析した。また特に温度依存性について詳細に調べ、新たな位相緩和メカニズムの詳細を調べることを試みた。

４．研究成果

試料として、GaInPマトリックス中に成長されたInP量子ドットを用いた。InP量子ドットは、組成の異なる障壁層のために歪を持ち、構造非対称性が生じる。さらに混晶である障壁層内でInの偏析があるため、ドット周囲にキャリアのトラップ準位が形成される。このように、周囲の環境が個々の量子ドットに対して僅かにエネルギー変化などの影響を及ぼす。その周囲環境は個々のドットによって異なるため、エネルギーや電子波動関数なども個々のドットによって異なるという特徴を持っている。

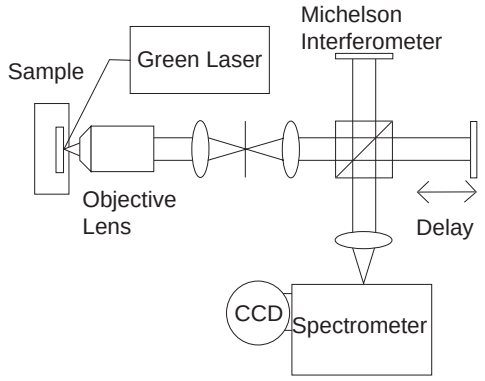

図１ フーリエ分光システム

このような個々のドットの周囲環境が重要である単一InP量子ドットにフーリエ分光法を適用し、その周囲環境が引き起こすドットの位相緩和過程を調べた。フーリエ分光システムはマイケルソン干渉計（図1）で構成され、単一ドットからの発光を通し、干渉させたあと分光器を通してCCDで検出する。位相緩和過程はおおよそ数十psで、これから見積もられるスペクトル線幅は使用した分光器の分解能より十分狭い。分光器は注目する発光ピークを他の起源のものと分解するために用いられており、実際の位相緩和過程の情報を直接含む線幅は干渉計によってスペクトル分解されていることになる。このような手法を用いて、10-50Kにおける量子ドット中の励起子位相緩和過程を計測した。

図2は干渉計を通した励起子発光強度の自己相関強度をプロットしたものである。6K-50Kまでのいずれの温度においても数十ps程度の速いデコヒーレンスによる減衰が観測されている。しかしこの減衰プロファイルにおいて二つの特異的な振る舞いが見られた。一つは指数関数減衰というよりもむしろガウス関数様の減衰を示していること。もう一点は20Kにおける減衰カーブが最も減衰レートが小さいことである。前者の特異的なガウス型減衰形状はスペクトルが不均一幅を持つことが可能性として挙げられる。また後者の特異的な振る舞いは20Kにおけるスペクトル幅が最も狭いことが結論付けられる。いずれにしても、これら二つは極めて奇妙な振る舞い

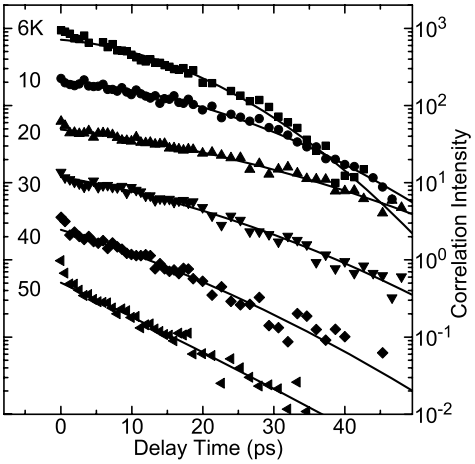

図２　励起子発光の自己相関強度

である。

これらの特異的な減衰曲線を詳細に観察すると、単なるガウス関数形状ではなことがわかった。これらを解析するために、指数関数とガウス関数の積で表される関数を用いてフィッティングを行なった。この二つの関数の積を用いる理由は次の通りである。InP量子ドットではこれまでドットの明滅現象がミリ秒スケールで生じることが確認されており、ドット周囲のトラップサイトにキャリアがトラップされ、ドット内の励起子の光学遷移がシュタルク効果によって影響を受けるためであると解釈されている。このようなトラップサイトがドット周囲に多数あった場合、比較的位置の離れたトラップサイトはからの影響はごく小さいものであるが、そのシュタルクシフトの量は線幅の増大を引き起こすことが考えられる。この場合、スペクトルは、均一幅を与えるローレンツ関数と不均一幅を与えるガウス関数のコンボリューションであるフォークト関数となるはずである。このフォークト関数を時間領域にフーリエ変換したものは指数関数とガウス関

数の単純な積となることが知られている。このような理由により、二つの関数の積を用いてフィッティングを行なった。図 2 における実線がそれぞれのフィッティング結果である。この積の関数により見事に実験結果が再現できていることがわかる。このように、InP 量子ドット内の励起子位相緩和は、均一幅と不均一幅の両方からの寄与があると考えられることがわかった。

次に、図 2 の減衰曲線から 20K におけるスペクトル幅が最も狭いことが予想されることについて、スペクトルを考察することにより、そのメカニズムを考えた。そのために、得られた時間領域のフィッティング関数を逆フーリエ変換することによってスペクトルを計算した。前述したように、スペクトル形状は不均一幅によるガウス関数と均一幅によるローレンツ関数のコンボリューションであるフォークト関数で表される。これらのガウス関数とローレンツ関数及びフォー

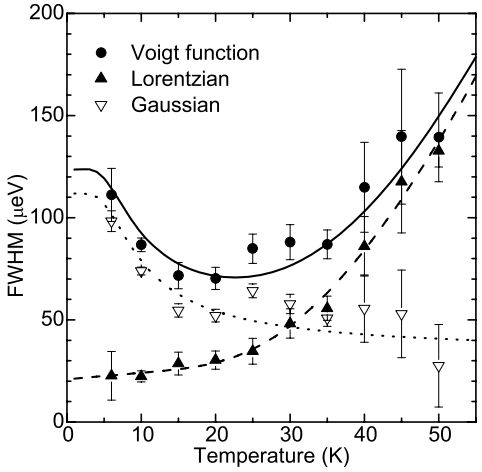

図 3　励起子線幅の温度依存性

クト関数の線幅はフィッティングパラメータから得られる。

図 3 はそのような方法で得た全体のスペクトル幅（フォークト関数）とガウス成分の幅及びローレンツ成分の幅を温度に対してプロットしたものである。ローレンツ成分は温度に対して単調増加であり、通常のフォノンによる位相緩和の温度依存性を示しているのがわかる。一方ガウス成分は温度に対して単調減少の振る舞いを示しており、ローレンツ成分の温度依存性とは逆の振る舞いを示していることがわかる。これは前述したように、ドット周囲のトラップサイトにあるキャリアによってドット内励起子のエネルギーが僅かに変調を受けていることを示している。そのトラップサイトのキャリアは温度の増加により、トラップサイトから熱的に励起され抜け出す確率が増加していると考えられ、このエネルギー変調の時間スケールが早くなることにより見かけの線幅が減少することになる。これらの二つの線幅を与える起源が共存しながら、お互い逆の温度依存性を持っており、これらのコンボリューションによる全体の線幅は約 20K において最も小さくなるという特異な振る舞いが見られることが結論できる。結果として低温下において温度上昇とともに励起子線幅が先鋭化する、つまりコヒーレンスが回復するという極めて興味深い結果が見出された。このような一見奇妙と思われる振る舞いが必ずしも全てのドットで起こっているわけではないが、一部のドットでは近傍のトラップサイトのとの位置関係により、このような振る舞いを生じるドットがあると考えられる。

５．主な発表論文等
（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計　６件）

① K. Bando and Y. Masumoto, "Narrowing of exciton linewidth of a quantum dot with increasing temperature", physica status solidi (c), **6**, 57-60 (2009).査読有

② K. Bando, T. Nakamura, S. Fujiwara, Y. Masumoto, F. Sasaki, S. Kobayashi, Y. Shimoi, and S. Hotta, "Optical selection rule for the lower Davydov excitons in co-oligomer single crystals", Physical Review B, **77**, 045205-1/6 (2008).査読有

③ K. Bando and Y. Masumoto, "Interferometric spectroscopy for excitons in InP single quantum dots", Journal of Luminescence, **128**, 855-857 (2008).査読有

④ 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_2 substrates", Advanced Materials, **19**, 3653-3655 (2007).査読有

⑤ S. Fujiwara, K. Bando, Y. Masumoto, F. Sasaki, S. Kobayashi, S. Haraichi, and S. Hotta, "Laser oscillations of whispering gallery modes in thiophene/phenylene co-oligomer microrings", Applied Physics Letters, **91**, 021104-1/3 (2007).査読有

⑥ Y. Masumoto, K. Mizuochi, K. Bando, and Y. Karasuyama, "Optical anisotropy of excitons and biexcitons in InP quantum dots", Journal of

Luminescence, **122**, 424-426 (2007). 査読有

〔学会発表〕(計　6件)

① K. Bando and Y. Masumoto, "Narrowing of exciton linewidth of a quantum dot with increasing temperature Interferometric Spectroscopy for Excitons in InP Single Quantum Dots", 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Kyoto, Japan, June 22-27 2008.

② 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", 第 55 回応用物理学関係連合講演会 2008 年春季, 日本大学理工学部船橋キャンパス, 2008/3/27-30.

③ K. Bando and Y. Masumoto, "Interferometric Spectroscopy for Excitons in InP Single Quantum Dots", 16th International Conference on Dynamicl Excited States of Solids, Segovia, Spain, June 17-22 2007.

④ 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", 日本物理学会第 62 回年次大会, 北海道大学札幌キャンパス 2007/9/21-24.

⑤ 阪東一毅, 舛本泰章, "単一 InP 単一量子ドットにおいて非指数関数的減衰を示す励起子位相緩和過程", 第 68 回応用物理学会学術講演会 2007 年秋季, 北海道工業大学, 2007/9/4-8.

⑥ 佐々木史雄, 小林俊介, 原市　聡, 藤原聖士, 井門靖樹, 阪東一毅, 舛本泰章, 堀田　収, "Si 基板上の埋め込み型（チオフェン/フェニレン）コオリゴマーマイクロレーザー", 第 68 回応用物理学会学術講演会 2007 年秋季, 北海道工業大学, 2007/9/4-8.

６．研究組織

(1)研究代表者

阪東　一毅　(BANDO KAZUKI)

静岡大学・理学部・助教

研究者番号　５０３４４８６７

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし