

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340090

研究課題名(和文) 液滴エピタキシーによる高対称量子ドットを用いた電子相関と光子対発生の研究

研究課題名(英文) Study on electronic correlation and photon-pair generation with highly symmetric quantum dots by droplet epitaxy

研究代表者

迫田 和彰 (Sakoda, Kazuaki)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・ユニット長

研究者番号：90250513

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,400,000円、(間接経費) 4,620,000円

研究成果の概要(和文)：格子整合系量子ドットの複合励起子の電子相関の解明と、励起子分子準位からのカスケード発光による量子もつれ合い光子対発生の実証を目的として、液滴エピタキシー法による量子ドットの自己成長、単ドット分光法による光子相関測定、および、配置間相互作用の方法による励起子準位の理論解析を実施した。AlGaAs(111)A面上の液滴エピタキシーにより、構造制御された高対称GaAs量子ドットの作製に成功し、これを用いて世界最高性能である忠実度86%の量子もつれ合い光子対発生成に成功した。さらに、液滴エピタキシーの適用対象を拡張して、通信波長帯に励起子発光帯をもつ、格子整合系InAs量子ドットの作製にも成功した。

研究成果の概要(英文)：To clarify the electronic correlation of exciton complexes in lattice-matched quantum dots and to demonstrate the entangled photon-pair generation by cascade emission from their biexciton states, we performed self-assembly of quantum dots by droplet epitaxy, photon-correlation measurement by single-dot spectroscopy, and theoretical analysis of exciton states by the configuration interaction method. We succeeded in fabricating highly symmetric GaAs quantum dots on AlGaAs(111)A substrates by the droplet epitaxy and generating entangled photon pairs with the world highest fidelity of 86%. In addition, we extended the material system for the droplet epitaxy and succeeded in the fabrication of lattice-matched InAs quantum dots that have excitonic emission bands in the telecommunication wavelengths.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：液滴エピタキシー 量子ドット 電子相関 光子対 励起子複合体 有限要素法 配置間相互作用 微細構造分裂

1. 研究開始当初の背景

通常行われるように、量子ドットを取り囲むバリア層を光励起して量子ドットに光キャリアを注入する場合、励起光強度の選択によりドット内の荷電粒子数を調節できる。単一ドット分光法で蛍光スペクトルを測定すると、励起子、正負のトリオン、および、励起子分子の鋭い発光線を観測できる。電子とホールとの対消滅による励起子分子から励起子への光学遷移、および、それに引き続く励起子から基底状態への光学遷移により、量子暗号通信などで必要な量子もつれ合い光子対が生成可能である。

しかし、従来から広く用いられている Stranski-Krastanov 法による歪み系量子ドットの自己成長では、基板と量子ドットの格子定数の差に起因する内部応力により、荷電粒子間のクーロン力に匹敵するほどの大きなピエゾ電場がドット内に発生して、エネルギー準位をランダムに大きくシフトさせてしまう。また、ドット形状の異方性に伴う閉じ込めポテンシャルやピエゾ電場の異方性によって、本来は縮退して円偏光の発光を与える $J_z = \pm 1$ (J_z は全角運動量の基板に垂直成分) の励起子準位が、直線偏光の発光を与える 2 つの準位に分裂する (微細構造分裂)。このような励起子準位のシフトや分裂は交換相互作用の量子サイズ効果を覆い隠してしまうので、少数多体系の電子相関の研究にとって大きな障害になっている。さらに、量子もつれ合い光子対の発生においては、2 つの経路で発生する 2 組の光子対が互いにエネルギー的に区別されてしまうので、もつれ合いの程度を減少させるという問題を引き起こす。

これに対して、物質・材料研究機構で考案され、申請者らが精力的に取り組んできた液滴エピタキシー法による格子整合系量子ドットの自己成長では、基板と量子ドットの格子定数が等しいので、内部応力によるピエゾ電場が生じないという極めて優れた特長をもつ。そのため、液滴エピタキシー法による量子ドットは、少数多体系の電子相関の研究やもつれ合い光子対発生の検証実験にとって理想的な材料である。

さらにごく最近、従来から使用してきた AlGaAs(100) 基板面に代えて、より対称性の高い (111)A 面を用いることで、生成する量子ドットの円対称性を向上させることに成功した。この結果、構造異方性に伴う微細構造分裂幅も格段に減少し、ドットのサイズに依らず (したがって、ドットの発光エネルギーに依らず)、世界最高レベルの小さな分裂幅を達成した。

2. 研究の目的

液滴エピタキシー法による格子整合系量子ドットは、基板と量子ドットの格子定数が等しいので、内部応力に伴うピエゾ電場が発

生しないという優れた特長をもつ。このため、励起子複合体 (励起子、トリオン、励起子分子) の電子相関の研究や量子もつれ合い光子対発生の検証実験にとって理想的な材料である。そこで、本研究は、格子整合系 GaAs 量子ドットを用いて、励起子複合体の電子相関の量子サイズ効果を解明することを目的とする。また、励起子分子からの発光過程を利用して、量子もつれ合い光子対発生の実証を目的とする。

3. 研究の方法

まず、液滴エピタキシー法による AlGaAs (111)A 面上への GaAs 量子ドットの自己成長について、バリア層形成前後でのアニール条件を詳しく検討して、優れた構造対称性と低い欠陥密度が両立する結晶成長条件を探索する。これと並行して、単一ドット分光法により GaAs 量子ドットの微細構造分裂を詳しく測定して、試料作製にフィードバックする。また、有効質量近似と配置間相互作用の方法による理論計算と、励起子複合体 (励起子、トリオン、励起子分子) の結合エネルギーの実測値を比較することにより、電子相関の量子サイズ効果を明らかにする。さらに、励起子分子からの発光の光子相関測定により、量子もつれ合い光子対の発生を実証する。

4. 研究成果

(1) 高対称 GaAs 量子ドットの試料作製 (発表論文)

AlGaAs の (111)A 面を基板面に用いて液滴エピタキシー法で GaAs 量子ドットを作製し、結晶化温度を調節することで六角形ピラミッド構造から三角ピラミッド構造まで形状制御できることを見出した (図 1)。原子間力顕微鏡測定によりドットの立体構造と側面の結晶面方位が決定できた。また、Ga の供給量を調節することにより、単一ドット分光が可能な程度までドットの面密度を低減できた。

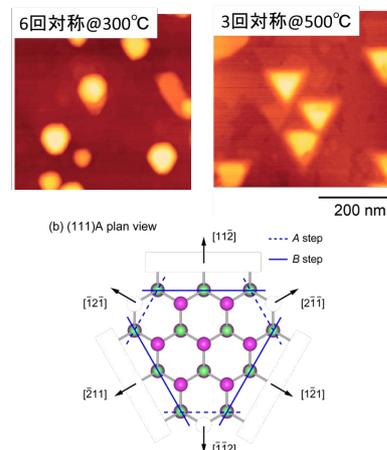


図 1 (上) (111)A 面上の GaAs 量子ドットの AFM 像と、(下) 成長速度の方位依存性

(2) 世界最高面密度量子ドットの自己形成 (発表文献)

これまでのGaAs(100)基板に代えて,原子拡散が抑制される(311)A基板を用い,さらに,Ga液滴の形成温度を従来の200度から30度に下げることにより,1平方センチメートル当たり7000億個のGa液滴の形成に成功した(図2)。同じ基板温度でAs分子線を照射してGaAs量子ドットの結晶成長を行い,AlGaAsキャップ層作製後に800度で急速熱処理を行うことで,上記の超高面密度を保持しながら結晶成長時の欠陥を修復して,GaAs量子ドットの高品質化も達成した。

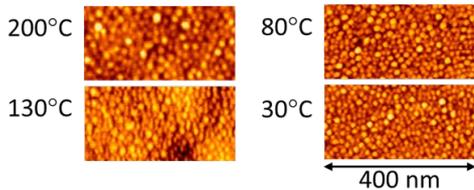


図2 基板温度による粒径の変化

(3) 光通信波長帯への拡張 (発表論文)

液滴エピタキシー法をInP(111)A基板上のInAs量子ドット形成に拡張することに成功し,1.3~1.55μm帯のPL発光を確認した。これにより,光通信波長帯での高忠実度もつれ合い光子対発生の実現が期待された。

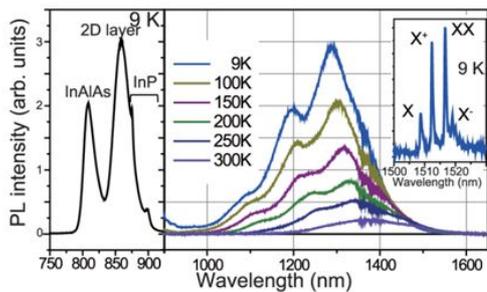


図3 (右)InP(111)A基板上に作製したInAs量子ドットの発光スペクトルと,(左)基板の発光スペクトル。挿入図は単一ドットの励起子,トリオン,励起子分子の発光線

(4) 励起子分子からのカスケード発光によるもつれ合い光子対発生 (発表論文)

液滴エピタキシー法で作製した微細構造分裂の小さい高対称性GaAs量子ドットを用いて,励起子分子からのカスケード発光(図4)による,偏光状態が量子もつれした光子対発生の検証実験を行った。(111)A面上に作製した,高対称GaAs量子ドットについて,種々の偏光の組合せで2光子相関を測定して密度行列を再構成することにより,量子もつれの忠実度の世界最高値86%を達成した。

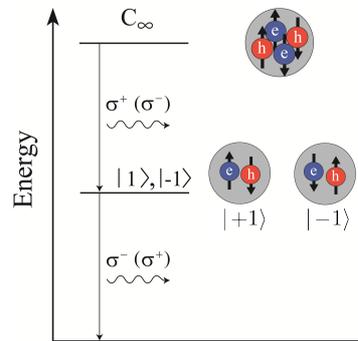


図4 励起子分子準位からのカスケード発光

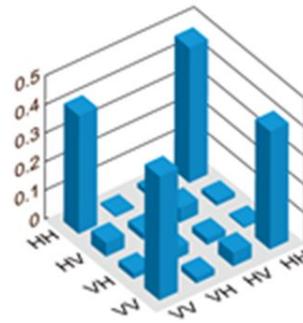
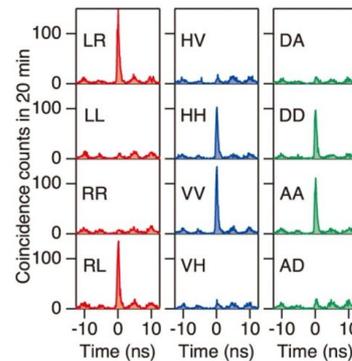


図5 (上) 種々の偏光の組合せに関する励起子分子からのカスケード発光の2光子相関と,(下)光子の密度行列

(5) 多体系の束縛エネルギーのドット形状・ドットサイズ依存性の理論解析 (発表論文)

有効質量近似と有限要素法による1電子状態の波動関数の算出,および,配置間相互作用の方法により励起子準位の解析を進めた。この方法をCdTe, CdS, CdSe, ZnTe, ZnSe量子テトラポッドの励起子準位に適用し,吸収スペクトルや蛍光スペクトルの実験観測値とよく一致する計算結果を得ることができた。さらに,同法をCdTeナノプレートに適用して,実験結果をたいへん良く再現する計算結果が得られた。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計27件)

N. Ha, X. Liu, T. Mano, T. Kuroda, K. Mitsuishi, A. Castellano, S. Sanguinetti, T. Noda, Y. Sakuma, K. Sakoda, Droplet epitaxial growth of highly symmetric quantum dots emitting at telecommunication wavelengths on InP (111)A, Applied Physics Letters, 査読有, Vol. 104, 143106/p.1-p.4 (2014). DOI: 10.1063/1.4870839

G. Sallen, S. Kunz, T. Amand, L. Bouet, T. Kuroda, T. Mano, D. Paget, O. Krebs, X. Marie, K. Sakoda, B. Urbaszek, Nuclear magnetization in gallium arsenide quantum dots at zero magnetic field, Nature Communications, 査読有, Vol. 5, 3268/p.1-p.7 (2014). DOI: 10.1038/ncomms4268

Y. Yao, T. Kuroda, D. N. Dirin, A. Irkhina, R. B. Vasiliev, K. Sakoda, Exciton states of II-VI tetrapod-shaped nanocrystals, Optical Materials Express, 査読有, Vol. 3, No. 7, p.977-p.988 (2013). DOI: 10.1364/OME.3.000977

T. Kuroda, T. Mano, N. Ha, H. Nakajima, H. Kumano, B. Urbaszek, M. Jo, M. Abbarachi, Y. Sakuma, K. Sakoda, I. Suemune, X. Marie, T. Amand, Symmetric quantum dots as efficient sources of highly entangled photons: Violation of Bell's inequality without spectral and temporal filtering, Physical Review B, 査読有, Vol. 88, 041306(R)/p.1-p.5 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevB.88.041306

M. Jo, T. Mano, M. Abbarachi, T. Kuroda, Y. Sakuma, K. Sakoda, Self-limiting growth of hexagonal and triangular quantum dots on (111)A, Crystal Growth & Design, 査読有, Vol. 12, No. 3, p.1411-p.1415 (2012). DOI: 10.1021/cg201513m

M. Jo, T. Mano, Y. Sakuma, K. Sakoda, Extremely high-density GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy, Applied Physics Letters, 査読有, Vol. 100, 212113/p.1-p.3 (2012). DOI: 10.1063/1.4721663

M. Abbarachi, T. Kuroda, T. Mano, M. Gurioli, K. Sakoda, Bunched photon statistics of the spectrally diffusive photoluminescence of single self-assembled GaAs quantum dots, Physical Review B, 査読有, Vol. 86, 115330/p.1-p.4 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.86.115330

K. Sakoda, Y. Yao, T. Kuroda, D. N. Dirin, R. B. Vasiliev, Exciton states of CdTe tetrapod-shaped nanocrystals, Optical Materials Express, 査読有, Vol. 1, No. 2, p. 379-p.390 (2011). DOI: 10.1364/OME.1.000379

G. Sallen, B. Urbaszek, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, T. Kuroda, T. Mano, S. Kunz, M. Abbarachi, K. Sakoda, D. Lagarde, A.

Balocchi, X. Marie, T. Amand, Dark-bright mixing of interband transitions in symmetric semiconductor quantum dots, Physical Review Letters, 査読有, Vol. 107, 166604/p.1-p.5 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.166604

[学会発表](計31件)

Kazuaki Sakoda, Nanophotonics studies based on modern optics and materials science, International Workshop on Wave Functional Materials, 2013年11月09日, 蘇州大学(中国・蘇州市)

間野高明, 定昌史, 黒田隆, 野田武司, 佐久間芳樹, 迫田和彰, 液滴エピタキシー法による格子整合系量子ナノ構造の自己形成とその光物性, 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 2013年09月16日, 同志社大学(京都府京田辺市)

Takaaki Mano, Droplet epitaxy of nano-structures and their applications, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, 2012年09月23日, 奈良新公会堂(奈良県奈良市)

Kazuaki Sakoda, Recent developments of droplet epitaxy of GaAs quantum dots and their spectroscopic studies, The 5th OSA International Conference on Nanophotonics, 2011年5月22日, 復旦大学(中国・上海市)

Takaaki Mano, Recent Development in Droplet Epitaxy, The 7th International Conference on Low Dimensional Structure, 2011年5月22日, Reef Hotel Telchac(メキシコ・テルチャックプエルト市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

迫田 和彰 (SAKODA, Kazuaki)

物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・ユニット長

研究者番号: 90250513

(2) 連携研究者

黒田 隆 (KURODA, Takashi)

物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・主幹研究員

研究者番号: 00272659

間野 高明 (MANO, Takaaki)

物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・主任研究員

研究者番号: 60391215