

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008 ～ 2010

課題番号：20340080

研究課題名(和文) GaAs2 重量子リングの共振器 QED

研究課題名(英文) Cavity QED of GaAs quantum double rings

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・量子ドットセンター・センター長

研究者番号：90250513

研究成果の概要(和文)：GaAs ナノ粒子の共振器 QED (量子電気力学) 効果の実証を目的として、ナノ粒子の自己成長とフォトニック結晶共振器の作製、顕微分光法による特性評価、理論計算による解析、および、関連する応用研究を実施した。格子定数が約 200 nm のフォトニック結晶共振器に埋め込んだ GaAs ナノ粒子について発光促進(パーセル効果)を実証した。自己成長法の改良により結晶の高品質化を達成し、GaAs ナノ粒子で初めての電流注入型レーザー発振に成功した。フォトニックバンド端の光の小さな群速度による自然放出の 2 重増強を明快に実証した。

研究成果の概要(英文)：To give a definite experimental proof of the cavity QED (quantum electrodynamics) effect of GaAs nano particles, we performed self-assembly of nano particles, fabrication of photonic crystal microcavities, characterization by micro spectroscopy, theoretical analysis of electronic states and electromagnetic modes, and studies on relevant applications. We proved the Purcell effect, or acceleration of photon emission, for GaAs nano particles embedded in photonic crystal microcavities with lattice constants around 200 nm. We also achieved high crystal quality by improvement of the self-assembling technique, so we succeeded for the first time in lasing by current injection with GaAs nano particles. In addition, we clearly demonstrated doubly enhanced spontaneous emission due to the small group velocity of photon at photonic band edges.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	9,200,000	2,760,000	11,960,000
2009年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2010年度	2,800,000	840,000	3,640,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：光物性

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：GaAs, 量子リング, 量子ドット, フォトニック結晶, QED

1. 研究開始当初の背景

一般に用いられている SK 法 (Stranski-Krastanov 法) とは異なり、液滴エピタキシーによる GaAs ナノ粒子の自己成長では、基板とナノ粒子間の格子定数の違いを必要としない。したがって、格子歪みやピエゾ電場

を内部に含まないナノ粒子が作製できる。さらに近年の研究から、結晶成長時の砒素の供給速度の調節などにより、球形に近い量子ドットから同心円状の 2 重量子リングまで、種々の形状のナノ粒子が合成可能になった。また、液滴エピタキシー法はフォトニック結

晶(PC)共振器の加工プロセスとも両立する。そこで、無歪み系ナノ粒子を埋め込んだ PC 共振器による QED 効果の実証や、その基礎となるナノ粒子の電子状態の解明などが当面の重要課題であった。

2. 研究の目的

そこで、本研究では、PC 共振器に埋め込んだ GaAs 2 重量子リングを用いて共振器 QED 実験を進めることとした。具体的には、(1) シュタルク効果による発光波長のチューニング技術の確立、(2) いっそう大きなパーセル効果と真空ラビ分裂、(3) フォトニック結晶共振器に共振する 2 重量子リングをフォトン源に利用した、フォトニック結晶導波路による単一フォトン伝搬、(4) 単一フォトンを経路として、マクロな距離離れた 2 つの 2 重量子リング間の量子もつれの実現を目指して研究を開始した。

3. 研究の方法

GaAs ナノ粒子については、この分野のエキスパートである、物質・材料研究機構の岡野高明主任研究員の協力を得て液滴エピタキシー法で作製した。PC 共振器については、関連する多数の試料作製の実績をもつ物質・材料研究機構の杉本喜正主席研究員の協力を得て、電子線リソグラフィにより作製した。顕微分光法による特性評価では、液体ヘリウム温度まで冷却した試料について、連続発振レーザー光源と CCD 検出器付き分光器の組合せ、および、サブピコ秒パルスレーザー光源とストリークカメラの組合せを用いて励起子発光スペクトルなどを測定した。顕微分光は、この分野のエキスパートである物質・材料研究機構の黒田隆主幹研究員の協力で実施した。PC バンド端における 2 重増強の実証実験では、波長可変色素レーザー光源と波長可変ノッチフィルター付きトリプル分光器を使用した。理論解析について、ナノ構造の 1 電子状態は有効質量近似に基づいて有限要素法で算出し、励起子準位は配置間相互作用ハミルトニアンの数値対角化により算出した。PC 共振器のモード解析は FDTD 法（時間領域差分法）で行った。

4. 研究成果

(1) 液滴エピタキシーによる GaAs 量子ドットの創製（発表論文③、④）

研究期間の 3 年間に 2 つのたいへん大きな進展があった。第 1 に、顕著な形態変化が生じること無しに、GaAs ナノ結晶の自己成長後のアニール温度を従来の 200°C から 400°C に引き上げることに成功した。このことから、AlGaAs バリア層の成長温度も 400°C に引き上げることができ、試料中の過剰な砒素原子と格子欠陥の大幅な低減を達成した。

バリア層中の格子欠陥密度の指標である、ヘリウム温度における励起子発光の均一幅を従来の 4 分の 1 (35 μeV) にまで低減できた。第 2 に、従来の (100) 基板面に代えて (111) 基板面を利用することで、ドット形状の対称性を大きく高めることができた。対称性の指標である微細構造分裂（励起子発光エネルギーの偏光依存性）が、すべてのドットサイズで 30 μeV 以下と世界最高レベルの値を達成した。小さな微細構造分裂の実現により、励起子分子状態からのカスケード発光による量子もつれ光子対の発生に明かな展望が開かれた。

(2) 顕微分光による GaAs 量子ドットの荷電キャリアの電子相関の解明（発表論文①）

量子ドットの自己成長に一般に用いられている SK 法とは異なって、液滴エピタキシーは AlGaAs 基板上の GaAs 量子ドットのような、基板と量子ドット間に格子定数の差の無い「無歪み系」に適用可能である。このことから、液滴エピタキシー法で作製された無歪み系量子ドットは内部に格子歪みが無く、したがって、格子歪みに起因するピエゾ電場も存在しない。これに対して、一般に SK 法で作製される歪み系量子ドットでは、荷電キャリア間のクーロン力に匹敵するほどの大きなピエゾ電場が発生する。このために、量子ドットが本来は少数キャリアの電子相関を研究する格好の素材であるにもかかわらず、

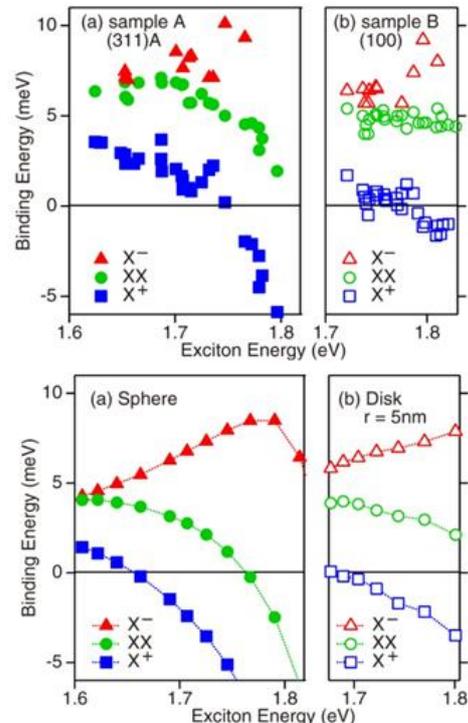


図 1 励起子（緑○）、正トリオン（青□）、負トリオン（赤△）の結合エネルギーのサイズ（励起子発光エネルギー）依存性。上：実測値、下：計算値。

SK 法による歪み系量子ドットではピエゾ電場によるランダムなエネルギーシフトが、明瞭な電子相関の観測を阻んでいた。

そこで、液滴エピタキシー法による GaAs 量子ドットについて励起子分子および正負のトリオンの結合エネルギーを顕微分光法により詳細に評価した。実験は AlGaAs の (311) と (100) 基板面上に作製した量子ドットについて行った。図 1 に顕微分光法による測定結果と量子モンテカルロ法による理論計算（北海道大学土家琢磨準教授による計算）の結果を示す。図の横軸は励起子発光エネルギーで、量子ドットのサイズと 1 対 1 に対応する。実測値は球形や円筒ディスク形を仮定した理論計算とたいへんよく一致した。SK 法による従来の研究では、ドットの形状などに依存したランダムなピエゾ電場のために、励起子分子やトリオンなどの多体系の結合エネルギーについて明瞭なドットサイズ依存性が観測されていなかった。これに対して、今回の研究ではドットサイズ依存性が明瞭に観測できたことから、液滴エピタキシー法による無歪み系ドットが少数キャリアの電子相関の研究に格好の素材であることが分かり、今後のこの分野の大きな研究の進展が期待される。

(3) GaAs 量子ドットのパーセル効果（発表論文⑥、⑨）

GaAs ナノ結晶の共振器 QED によるパーセル効果の検証を目的として、GaAs 量子ドットを埋め込んだフォトニック結晶共振器を電子線リソグラフィで作製し、顕微分光法により励起子発光の増強効果の有無を調べた。図 2 に示すように、フォトニック結晶の格子定数を変えることで共振波長を変化させると、共振波長に一致する量子ドットの励起子発光の増強が観測された。また、図 3 に示すように、共振器に共鳴する励起子発光は発光寿命

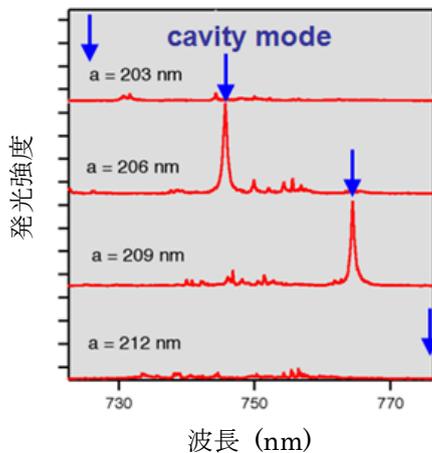


図 2 フォトニック結晶共振器中の GaAs 量子ドットの励起子発光が短く、非共鳴の場合には発光寿命が長くな

ることが分かった。これら 2 つの観測結果から、フォトニック結晶共振器による励起子発光のパーセル効果が確認できた。

ただし、GaAs 量子ドットの発光波長は約 750 nm で、他機関で従来から検討が進められている InAs 系量子ドットと比較して発光波長が約半分である。したがって、フォトニック結晶共振器の格子定数も約半分の 200 nm 程度に加工する必要があるが、技術的にたいへん難しい。このため、これまでのところ共振の Q 値は 2000 程度にとどまっております、ラビ分裂の観測にはいっそうの高 Q 値化が必要であった。PC 試料の作製の難しさから研究目的の項目 (3) と (4) は 3 年間の研究期間では実現できなかった。

その一方で、以下で述べるようにナノ構造の電子状態の解明や PC バンド端における自然放出の 2 重増強の実証、GaAs 量子ドットのレーザー発振など、研究開始当初には予想していなかった大きな成果が得られた。

(4) 2 重量子リングのシュタルクシフトの理論計算（発表論文⑤）

上記 (3) の実験研究では、フォトニック結晶共振器中に存在する多数の GaAs 量子ドットのうち、励起子発光波長がたまたま共振波長に一致するものについて測定を行った。これに対して、試料に電場を印加して励起子発光波長を調節（シュタルク効果）することで測定を効率化できるとともに、実験の自由度が増えるのでこれまでよりも多くの情報が得られることが期待できる。そこで、大きなシュタルク効果が予想される 2 重量子リン

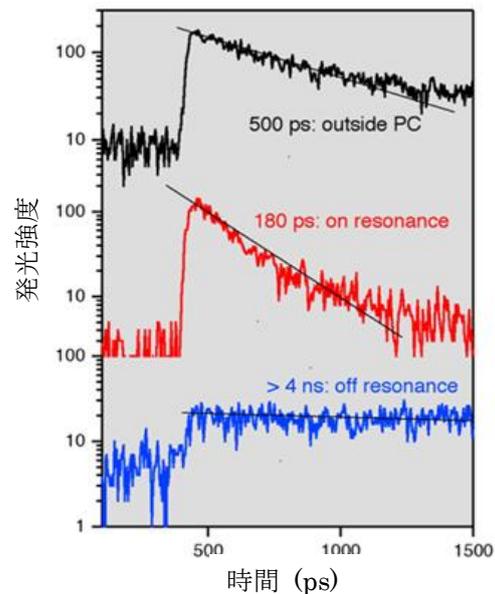


図 3 励起子発光強度の時間変化。黒：共振器の外側のドット、赤：共振したドット、青：非共振のドット
グについて、電子とホールのシュタルクシフ

トを有限要素法で計算した。

図4は、AFM（原子間力顕微鏡）による2重量子リングの形状の実測値を用いて有効質量近似で算出した、伝導帯の電子と価電子帯のホールのエネルギー準位の印加電場依存性である。大きな印加電場に対してはエネルギー準位がほぼ線形に変化するのに対して、小さな印加電場に対しては、同じ対称性をもつ準位が互いに反発し合うために、エネルギー準位の振る舞いが複雑である。小さな印加電場に対する電子準位の振る舞いは、2重量子リングの直径が約150 nmと大きく、エネルギー準位の間隔が狭いことに起因する。

(5) 量子テトラポッドの励起子準位の理論解析（論文投稿中）

量子テトラポッドは2000年に最初の合成がCdSeについて報告され、その後CdTe, CdS, ZnTeやこれらのコア・シェル構造についても合成が進められ、そのユニークな構造に注目が集まっている。2重量子リングの解析に用いたのと同じ手法で励起子準位の計算が可能なので、本研究の1つの応用として検討を進めた。量子テトラポッドの場合には構造のサイズが15 nm程度と小さいので1電子状態のエネルギー間隔が広く、配置間相互作用ハミルトニアンの数値対角化における収斂は速やかである。

まず、電子顕微鏡で観測されたCdTe量子テトラポッドの実際の構造に従って、有効質

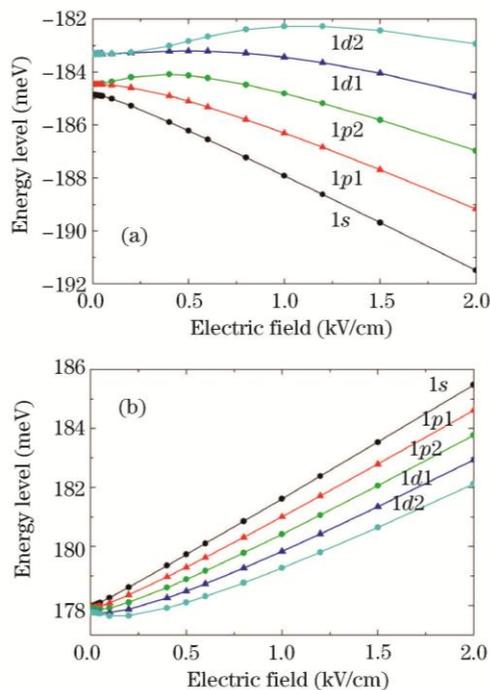


図4 電子準位のシュタルクシフト。
上：伝導帯電子，下：ホール

量近似の範囲で有限要素法を用いて1電子

状態を算出した。試料構造の正四面体の対称性が電子状態の対称性に反映し、例えば伝導帯電子の第1と第2のエネルギー準位は図5に示すようにともに A_1 対称である。

次に、標準的なモンテカルロ法で配置間相互作用ハミルトニアン行列要素を計算し、これを数値対角化して励起子のエネルギーと波動関数を求めた。その結果、まず、最低励起子準位は A_1 対称で、基底状態との間の光学遷移は双極子許容であることが分かった。また、励起子発光波長の計算結果はすでに知られている測定値と誤差約3%で一致した。

さらに、CdTe/CdSe コア・シェル型量子テトラポッドの場合へ計算を拡張したところ、CdTe 単体には見られなかった新たな特徴として、張り出した4本のアームの軸の周りを回転運動する電子状態が比較的低いエネルギーをもつことが分かった。このような電子準位による光吸収の有無が重要であり、数値計算と群論による解明が今後期待される。

(6) 球形およびディスク状量子ドットの理論解析（論文準備中）

上記の数値計算法の2つ目の応用として、項目(2)で述べた球形およびディスク状量子ドットの電子準位の計算に着手した。まず、球形ドットについては、1電子状態の解析解が知られているので、有限要素法による数値解と比較して良好な計算精度が得られていることを確認した。

今後は、励起子、トリオン、励起子分子のエネルギー準位の計算を行い、先の量子モンテカルロ法の結果と比較して計算精度を確認する。さらに、AFMで実測したドット形状にしたがって数値計算を行い、結合エネルギーのドットサイズ依存性の詳細な検討を進める予定である。

(7) フォトニックバンド端における蛍光発光の2重増強（発表論文②, ⑦）

パーセル効果が電磁モードの局在を利用した自然放出の増大であるのに対して、フォトニックバンド端の大きな光の状態密度と小さな群速度によっても自然放出の増大が期待できる。この効果については、研究代表者の理論計算などでかなり以前から提案が

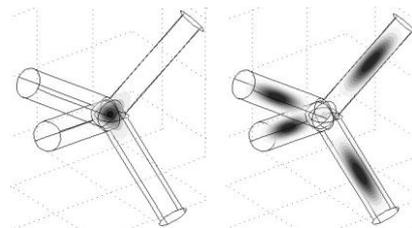


図5 CdTe量子テトラポッドの
(左)第1, (右)第2電子準位

なされていたが、十分に規則性の高い試料の

作製が難しかったことなどから、これまで明確な実験検証がなされていなかった。

ところが、この3年間の研究の過程で、市販のノッチフィルターがこの増強効果の検証用試料として利用できることを偶然発見した。ノッチフィルターは2種の金属酸化物誘電体膜を多数、交互に積み重ねた構造をもつ、1次元フォトニック結晶である。市販のノッチフィルターの1つに発光性の酸素欠損を含むものがあり、この発光を利用して増強効果が検証できた。

図6(左上)に示すように、フォトニックバンド端では光の分散曲線が水平であり、1次元フォトニック結晶の場合、状態密度が発散する。このことにより、発光増強が期待される。前述のノッチフィルターでは酸素欠損からのブロードな発光帯がフォトニックバンド端の周波数を含んでおり、図6(下)に示すようにバンドギャップを挟んで2つの明瞭な発光ピークが観測された。

光励起過程についても小さな群速度による増強効果があり、45度入射の光励起の場合について、励起波長をバンド端の波長に一致させることで2重増強が実証できた。

(8) GaAs 量子ドットレーザー (発表論文⑧, および、投稿中論文1報)

項目(1)に記したように結晶品質の良いGaAs量子ドットが得られたので、デバイス応

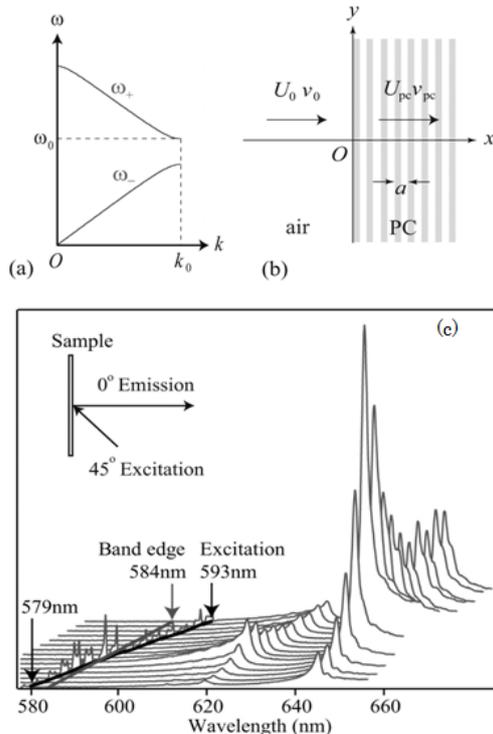


図6 PCによる蛍光発光の2重増強効果。(a)バンド構造の模式図、(b)入射電場の増強、(c)発光スペクトル。

用としてレーザーのプロトタイプを作製し

た。まず、パルス光励起による室温までのレーザー発振を確認した。次に、量子ドット層をp型とn型のAlGaAs層で挟んだ電流注入型のレーザーを作製した(図7)。その際、量子ドットの発光波長を揃えて効率的なレーザー発振を実現するために、低砒素圧での結晶成長や高温熱処理による高さの均一化など、ドットのサイズ揺らぎを低減する工夫を行ったところ、不均一幅が14 meVとたいへん小さなGaAs量子ドットを得ることができた。77Kにおいてパルス電流注入でレーザー発振が確認でき、その際の発振閾値電流は8.4 kA/cm²であった。格子整合系(無歪み系)量子ドットのレーザー発振は世界初である。今後はさらに、室温連続発振に向けて検討を進める予定である。

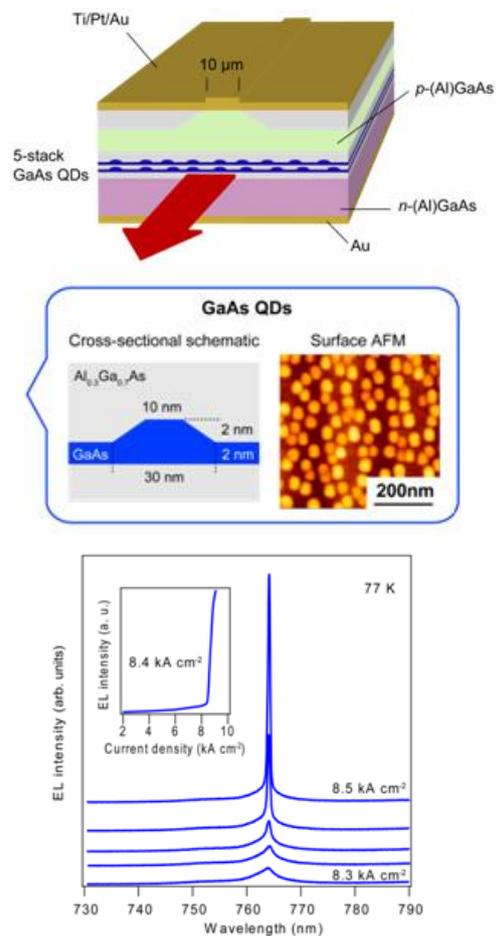


図7 GaAs量子ドットレーザー。上：デバイス構造、中：量子ドットの形状、下：発振特性。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計42件)

① M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, C. A. Mastrandrea, A. Vinattieri, M. Gurioli, and T. Tsuchiya, Energy renormalization of exciton complexes in

self-assembled GaAs/Al_{1-x}Ga_xAs quantum dots, *Physical Review B*, 査読有, Vol. 82, 201301(R)/p.1-p.4 (2010)

② K. Kuroda, T. Sawada, T. Kuroda, K. Watanabe, and K. Sakoda, Enhanced spontaneous emission observed at one-dimensional photonic band edges, *Journal of Optical Society of America B*, 査読有, Vol. 27, No. 1, p.45-p.50 (2010)

③ T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, B. McSkimming, A. Ohtake, K. Mitsuishi, and K. Sakoda, Self-assembly of symmetric GaAs quantum dots on (111)A substrates: suppression of fine-structure splitting, *Applied Physics Express*, 査読有, Vol. 3, 065203/p.1-p.3 (2010)

④ T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, C. A. Mastrandrea, A. Vinattieri, S. Sanguinetti, K. Sakoda, and M. Gurioli, Ultra-narrow emission from single GaAs self-assembled quantum dots grown by droplet epitaxy, *Nanotechnology*, 査読有, Vol. 20, No. 39, 395601/p.1-p.5 (2009)

⑤ Y. Yao, T. Ochiai, T. Mano, T. Kuroda, T. Noda, N. Koguchi, and K. Sakoda, Electronic structure of GaAs/AlGaAs quantum double rings in lateral electric field, *Chinese Optics Letters*, 査読有, Vol. 7, No. 10, p.882-p.885 (2009)

⑥ K. Sakoda, T. Kuroda, N. Ikeda, T. Mano, Y. Sugimoto, T. Ochiai, K. Kuroda, S. Ohkouchi, N. Koguchi, and K. Asakawa, Purcell effect of GaAs quantum dots by photonic crystal microcavities, *Chinese Optics Letters*, 査読有, Vol. 7, No. 10, 879-881 (2009)

⑦ K. Kuroda, T. Sawada, T. Kuroda, K. Watanabe, and K. Sakoda, Doubly enhanced spontaneous emission due to increased photon density of states at photonic band edge frequencies, *Optics Express*, 査読有, Vol. 17, No. 15, p.13168-p.13177 (2009)

⑧ T. Mano, T. Kuroda, K. Mitsuishi, Y. Nakayama, T. Noda, and K. Sakoda, GaAs/AlGaAs quantum dot laser fabricated on GaAs(311)A substrate by droplet epitaxy, *Applied Physics Letters*, 査読有, Vol. 93, No. 20, 203110/p.1-p.3 (2008)

⑨ T. Kuroda, N. Ikeda, T. Mano, Y. Sugimoto, T. Ochiai, K. Kuroda, S. Ohkouchi, N. Koguchi, K. Sakoda, and K. Asakawa, Acceleration and suppression of photoemission of GaAs quantum dots embedded in photonic crystal microcavities, *Applied Physics Letters*, 査読有, Vol. 93, No. 11, 111103/p.1-p.3 (2008)

[学会発表] (計58件)

① 定昌史, 間野高明, 迫田和彰, 液滴エピタキシにより作製した GaAs 量子ドットの電流注入発振, 応用物理学関係連合講演会, 2011年3月24日, 神奈川工科大学(厚木市)

② 迫田和彰, 液滴エピタキシー法による量子ドット創製の最近の進展, 先端光 ICT シンポジウム, 2011年2月18日, 東京ビッグサイト(東京)

③ 迫田和彰, フォトニック結晶共振器の基礎と Cavity QED への応用, 原子・分子・光科学討論会, 2010年6月12日, つくば国際会議場(つくば市)

④ K. Sakoda, T. Kuroda, N. Ikeda, T. Mano, Y. Sugimoto, T. Ochiai, K. Kuroda, S. Ohkouchi, N. Koguchi, and K. Asakawa, Lifetime control of GaAs quantum dots by photonic crystal microcavities, OSA Conference on Nanophotonics, 2009年5月13日, ハルビン(中国)

⑤ K. Sakoda, Laser Spectroscopy of GaAs QDs Made by Droplet Epitaxy, *Advanced Laser Technologies*, 2008年9月14日, ショフォーク(ハンガリー)

[図書] (計1件)

① K. Sakoda and J. W. Haus, Elsevier, "Science and Engineering of Photonic Crystals", *Progress in Optics*, Vol. 54, Chapter 3, 2009, pp. 271-317

6. 研究組織

(1) 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・量子ドットセンター・センター長

研究者番号: 90250513

(2) 研究協力者

黒田 隆 (KURODA TAKASHI)

独立行政法人物質・材料研究機構・量子ドットセンター・主幹研究員

研究者番号: 00272659

間野 高明 (MANO TAKAAKI)

独立行政法人物質・材料研究機構・量子ドットセンター・主任研究員

研究者番号: 60391215

杉本 喜正 (SUGIMOTO YOSHIMASA)

独立行政法人物質・材料研究機構・量子ドットセンター・主席研究員

研究者番号: 60415784

(3) 連携研究者

なし