

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 22 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21310064

研究課題名（和文） 単一量子ドット分光による非平衡核スピン分布の可視化

研究課題名（英文） Nuclear imaging with single quantum dot spectroscopy

研究代表者

黒田 隆 (KURODA TAKASHI)

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・主幹研究員

研究者番号：00272659

研究成果の概要（和文）：本研究では、単一量子ドット発光における核磁場効果（オーバーハウザー効果）を観測することにより、母体結晶の核スピン空間分布の可視化を目指した。オーバーハウザー効果は高々 10 マイクロ eV 程度のスペクトル変化である。そのため、極めて高いエネルギー分解能を持つ顕微発光測定系を構築した。それを用い、電子・正孔の長距離交換相互作用による微細構造分裂やサイズ依存性、および高指数面成長による微細分裂の抑制などの量子基礎物性の知見を得た。

研究成果の概要（英文）：We propose to demonstrate nuclear spin imaging by means of single quantum dot spectroscopy. Since the photoluminescence spectral shift due to the nuclear effect is as small as 10 μeV , we built up ultra high-resolution spectrometers for this purpose. As a result we successfully observed fine-structure splits due to the electron-hole long-range interactions, their quantum dot size dependence, and their removal in highly-symmetric QDs which is newly grown by droplet epitaxy.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	7,500,000	2,250,000	9,750,000
2010 年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
2011 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ構造科学

キーワード：ナノ構造物性

1. 研究開始当初の背景

(1) 半導体量子ドット（図 1）の光学スペクトルは、量子閉じ込めによる状態密度の離散化および、電子・格子相互作用の抑制効果を反映して、原子気体の輝線に似た線スペクトルとなる。このため、従来、原子分光で行われてきた精緻な分光探査が、固体で実現でき、様々な相互作用の詳細が明らかになってき

た。例えば最近、電子と核スピンの相互作用によるスペクトル変化（オーバーハウザー効果）が、10 μeV （ $\sim 2\text{GHz}$ ）のスケールで観測された。これは、量子ドット内の電子が、核スピン偏極による有効磁場を感じ、発光エネルギーがわずかに変化するものである。核磁場によるエネルギー・シフトは、マクロな試料を用いる限り、幅広いスペクトルに被さるた

め検知できなかった。量子ドットでは、狭線幅のスペクトル特性のために、このような極微エネルギー構造が観測可能となる。

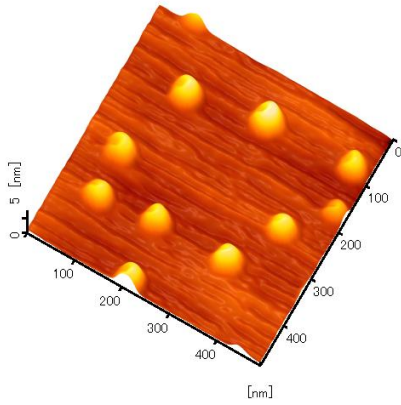


図1. GaAs 量子ドットの原子間力顕微鏡写真

(2) 量子ドットにおけるオーバーハウザー効果の観測は、2001年に米国のグループが発表して以来、我々も含め、複数のグループにおいて発展研究を報告しており、現在、半導体分光におけるハイトピックスの1つとなっている。しかし、本提案のように、発光信号を局所的な核磁場プローブに用いるといった視点の研究は無かった。

(3) 一方で核スピン分布の可視化として、MRI (Magnetic Resonance Imaging) が広く知られている。これは、傾斜磁場と核磁気共鳴を用いるものであり、現在、医療用として1ミリ程度の空間分解能が知られている。しかし、より高い分解能には、鋭い傾斜磁場と高感度が要求され、10ミクロン以下の分解能は原理的に到達不可能との認識がある。

(4) より高い分解能のスピンイメージングとして、MRI と原子間力顕微鏡を組み合わせた MRFM (Magnetic Resonance Force Spectroscopy) が提案されている。しかし、MRFM を用いたほぼ全ての実験は、大きな磁気力を持つ電子スピンを扱っており、核スピンを対象とする研究はごく小数に過ぎない。

(5) 研究立案時までに我々は、GaAs 量子ドットに対して、各種の分光探査を行ってきた。さらに、単一量子ドットにおける動的核偏極とオーバーハウザー効果の観測に成功し、四重極相互作用による核スピン緩和を見出す

ことに成功した (図2)。実験を通じ、量子ドットを用いて核スピンをプローブすることは、ピックアップ・コイルや超伝導磁束素子を用いた、従来型のNMRと比較して、感度は劣るものの、原理的にはナノの空間分解能を実現できる特徴があることを感じ、本提案の着想に至った。

2. 研究の目的

(1) 電子と核スピンは接触的な超微細相互作用で結合しており、また相互作用を受ける電子は量子ドットに局在している。そのため核磁場効果は、個々の量子ドットの原子のみに影響する。換言すれば、局所的な核スピンを検知するナノ・プローブとして、量子ドットを適用できる期待がある。そこで本研究では、量子ドットが埋め込まれた試料に非平衡な核スピン分布を形成し、その空間分布を単一量子ドットの発光観測から可視化することを目的とした。

(2) オーバーハウザー効果は高々10マイクロeV程度のスペクトル変化であり、この観測には、極めて高いエネルギー分解能を持つ顕微発光測定系を用いねばならない。高分解能分光装置を設計・構築し、これを用いることで、今まで観測出来なかった、電子・正孔の長距離交換相互作用による微細構造分裂やサイズ依存性、および高指数面成長による微細分裂の抑制、単一量子ドット発光線のブロードニングの起因解明など、量子ドット物性の基礎的知見を得ることも目的とした。

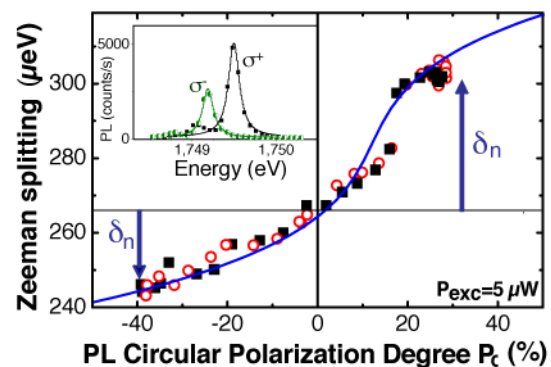


図2: 単一 GaAs 量子ドットにおけるオーバーハウザー効果。横軸は光キャリアの円偏光度で、縦軸がゼーマン分裂量である。円偏光度がゼロから増減すると、核磁場が誘起され、ゼーマン分裂が変化する様子がわかる。挿入図は、磁場中の発光スペクトル。

3. 研究の方法

今回の研究では、NIMSの独自開発による液滴エピタキシー手法で作製した量子ドットを用いた。この手法は、従来手法と異なり、ヘテロ界面で完全に格子整合した量子ドットの作製が可能である。このため、内部歪みの無いクリーンな量子閉じ込め構造が実現できた。実験では、格子整合した材料種であるガリウム砒素とアルミニウム・ガリウム砒素で構成した量子ドットを用いた。

4. 研究成果

(1) 量子閉じ込めによる多電子相関の制御
相互作用する3個以上の物体の運動は、解析的に解くことが出来ない。古典力学で知られるこの予想は量子力学でも成立する。特に、最も単純な3粒子系である水素陰イオン（電子+電子+陽子）については、量子力学の黎明期から様々な近似法を用いて解析が行われてきた。

近年、半導体のナノ構造における3粒子系の問題が注目されている。半導体中の伝導電子と正孔は、水素原子に類似した励起子と呼ばれる束縛状態をつくる。さらに伝導電子や正孔を加えると、イオン化励起子と呼ぶ3粒子の束縛状態を形成する。微細加工技術により、伝導電子をナノメートルスケールの極微空間に閉じ込めることができ、電子の閉じ込めや低次元化によって、多粒子の量子状態が劇的に変化すると期待されていた。

1990年代には、2次元量子井戸と呼ばれる厚さ数10ナノメートルの薄膜構造において、イオン化励起子の存在が初めて確認された。3粒子の束縛の強さを示す安定化エネルギーは1~2ミリ電子ボルトであり、バルク半導体の予想値に比べて1桁以上大きい。これは、伝導電子を2次元空間に閉じ込めたことにより、粒子間の距離が小さくなって相互作用が増したからである。そこで、全ての方向から電子を閉じ込められる量子ドット（大きさ数10ナノメートルの微結晶）を用いれば、より粒子を近接させることができ、多粒子状態がより安定になると予想できるが、確定的な実験はなかった。これは、従来手法で作製する量子ドットにおいては、界面での格子不整合が本質的に避けられなかったからである。このため量子ドット内部には常に大きな歪みが加わっており、粒子間相互作用の効果が露わな形で発現しておらず、実証には至っていなかった。

実験では単一の量子ドットからの発光信号を精密計測することにより、イオン化励起子の安定化エネルギーの値と、量子ドットの大きさとの関係性を世界で初めて明らかにした（図3）。特に得られた発見として以下が挙げられる。

・陰イオン化した励起子の安定化エネルギー

は、最大で約10ミリ電子ボルトとなることがわかった。この値は、以前知られていた同種材料の量子井戸構造での測定値に比べて5倍以上の値である。

・一方、陽イオン励起子は、量子井戸構造とは質的に異なる挙動を示した。陽イオンが安定に存在するのは、大きさが約10ナノメートル以上の比較的大きな量子ドットにおいてのみであり、小さな量子ドットにおいては、安定には存在出来ないことがわかった。

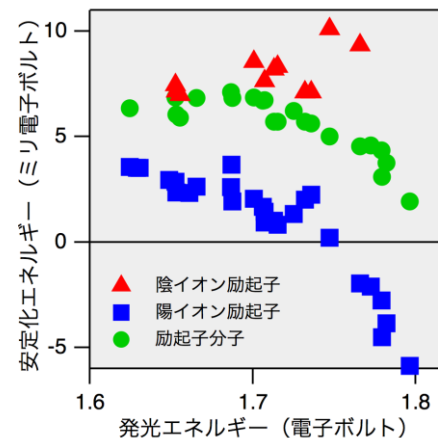


図3. イオン化励起子の安定化エネルギーと量子ドットの大きさとの関係図。陰イオン化した励起子の安定化エネルギーは最大10ミリ電子ボルトとなることを見出した。一方、陽イオン化した励起子は、質的に異なるサイズ依存性となる。

(2) 単一量子ドット発光線のブロードニング機構

我々の量子ドット試料は、線幅が100マイクロ電子ボルトのオーダーで広がっており、そのため精緻な核磁場計測が困難であった。そこで本年度は、単一量子ドット発光線のブロードニングの起因解明を進めた。一般に共鳴線の広がり、均一広がりとはスペクトル拡散に分別でき、おのおのは環境擾乱のタイムスケールで定まる。単一分子分光やコロイド量子ドットでは、秒~分の時間スケールで発光スペクトルが揺らぐことがよく知られている。一方、エピタキシャル成長の量子ドットでは、環境揺らぎのタイムスケールが短く、その同定はこれまで実現できなかった。今回我々は、スペクトル揺らぎの観測に光子相関手法を適用することにより、ナノ秒からマイクロ秒に渡る時間領域でスペクトル相関関数を決定し、超高速のスペクトル拡散過程の実証に成功した。特に得られた発見として以下が挙げられる。

・エピ成長量子ドットのスペクトル拡散は、典型的には、マイクロ秒のタイムスケールで

起こっているが、その相関時間は量子ドットの局所環境に強く依存する。

・多くの場合、スペクトル相関関数は単一指
数関数で表される。これは局所環境の影響が、
個々の量子ドットに最近接する局在センタ
ーの状態で定まることを示唆している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計9件)

- ① Dark-bright mixing of interband transitions in symmetric semiconductor quantum dots, G. Sallen, B. Urbaszek, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, T. Kuroda, T. Mano, S. Kunz, M. Abbarchi, K. Sakoda, D. Lagarde, A. Balocchi, X. Marie, and T. Amand, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 166604/1-5 (2011); doi:10.1103/PhysRevLett.107.166604.
- ② Scanning Fabry-Perot interferometer with largely tunable free spectral range for high resolution spectroscopy of single quantum dots; M. Abbarchi, T. Kuroda, R. Duval, T. Mano, and K. Sakoda: *Rev. Sci. Instrum.* **82**, 073103/1-5 (2011); doi:10.1063/1.3601016.
- ③ Energy renormalization of exciton complexes in GaAs quantum dots; M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, C.A. Mastrandrea, A. Vinattieri, M. Gurioli, and T. Tsuchiya: *Phys. Rev. B* **82**, 201301(R)/1-4 (2010); doi:10.1103/PhysRevB.82.201301.
- ④ Distribution of exciton emission linewidth observed for GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy; K. Kuroda, T. Kuroda, K. Watanabe, T. Mano, G. Kido, N. Koguchi, and K. Sakoda: *J. Lumin.* **130**, 2390-2393 (2010); doi:10.1016/j.jlumin.2010.07.025.
- ⑤ Impact of heavy hole-light hole coupling on optical selection rules in GaAs quantum dots; T. Belhadj, T. Amand, C.-M. Simon, T. Kuroda, M. Abbarchi, T. Mano, K. Sakoda, S. Kunz, X. Marie, and B. Urbaszek: *Appl. Phys. Lett.* **97**, 051111/1-3 (2010); doi:10.1063/1.3473824.
- ⑥ Self-assembly of symmetric GaAs quantum dots on (111)A substrates: Suppression of fine-structure splitting; T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, B. McSkimming, A. Ohtake, K. Mitsuishi, and K. Sakoda: *Appl. Phys. Express* **3**, 065203 (2010); doi:10.1143/APEX.3.065203.
- ⑦ Fine structure splitting of quantum dot excitons: Role of geometry and environment; M. Abbarchi, T. Kuroda, C. Mastrandrea, A. Vinattieri, S. Sanguinetti, T. Mano, K. Sakoda, M. Gurioli: *Physica E* **42**, 881-883 (2010); doi:10.1016/j.physe.2009.11.033.
- ⑧ Magneto-optical properties of excitonic complexes in GaAs self-assembled quantum

dots; M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, M. Gurioli: *Phys. Rev. B* **81**, 035334 (2010); doi:10.1103/PhysRevB.81.035334.

- ⑨ Ultra-narrow emission from single GaAs self-assembled quantum dots grown by droplet epitaxy; T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, C. A. Mastrandrea, A. Vinattieri, S. Sanguinetti, K. Sakoda, M. Gurioli: *Nanotechnology* **20**, 395601 (2009); doi:10.1088/0957-4484/20/39/395601.

〔学会発表〕(計2件)

- ① T. Kuroda, Energy renormalization on exciton complexes in strain-free GaAs quantum dots, The 16th International Conference on Superlattices, Nanostructures and Nanodevices, July 18, 2010, Beijing, China (Invited).
- ② T. Kuroda, GaAs quantum dots with type-II band alignment, The 30th International Conference on Physics of Semiconductors, Aug. 2010, Seoul, Korea.

〔図書〕(計1件)

黒田 隆, シーエムシー出版, バンドギャップエンジニアリング (2011) pp. 9-19.

〔その他〕

- ① ホームページ

http://www.nims.go.jp/laser_kuroda

- ② プレス発表

<http://www.nims.go.jp/news/press/2010/10/p201010220.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

黒田 隆 (KURODA Takashi)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォ
トニクス材料研究ユニット・主幹研究員
研究者番号: 00272659

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

間野 高明 (MANO Takaaki)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォ
トニクス材料研究ユニット・主任研究員
研究者番号: 60391215

野田 武司 (NODA Takeshi)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォ
トニクス材料研究ユニット・主幹研究員
研究者番号: 90251462