

## 舩本単一量子点プロジェクト事後評価報告書

総括責任者：舩本泰章（筑波大学物理学系 教授）

研究体制：量子点形成グループ	研究員	菅生繁男	他 3 名
分光解析グループ	研究員	杉崎 満	他 6 名
計算解析グループ	研究員	松浦直樹	他 1 名

評価委員 荒川泰彦(東京大学生産技術研究所 教授)  
伊藤 正(大阪大学大学院基礎工学研究科 教授)  
山西正道(広島大学工学部 教授)  
和田 修(フェムト秒テクノロジー研究機構 チームリーダー)

### 1. 研究の内容

1,000-100,000 個程度の少数原子からなる微結晶は 0 次元の量子構造、すなわち量子点として振舞う。自己形成法による InGaAs 量子点の報告以来、量子点の実験研究は非常に活発化し、非線形分光や近接場顕微鏡などの多様な手法により、新物性が続々と解明されてきている。舩本単一量子点プロジェクトは、このような単一量子点分光研究の隆盛に先だって、( )量子点形成グループ、( )分光解析グループ、( )理論解析グループの3つの研究チームを組織し、単一量子点の本質を究めるための研究活動を行い、孤立した量子点としてだけでなく外界との相互作用が大きい量子点の特性の理解をめざした。

#### 1.1. 量子点形成グループ

本グループは、量子点の作成にその重点をおきながら、さらに他のグループと共同で研究をすすめた。

##### (1) InGaAs 系、InP 系量子点の形成と配列化

基板の性質を利用して量子点の配列を制御しようとする試みである。

##### (2)量子点形成モニターとしてのエリプソメトリー法の採用

MBE (molecular beam epitaxy) 法など超高真空における結晶成長のその場モニター法である RHEED (reflection high-energy electron diffraction) 法は、ガスを利用する結晶成長法である MOVPE (metal organic vapor phase epitaxy) 法には適用できない。そのため、これまでの MOVPE 結晶成長は正確なモニターなしに行われてきた。本課題は、薄膜成長のモニター法として使われているエリプソメトリー法を MOVPE 法における量子点作成のモニターに利用する斬新な試みである。

## 1.2. 分光解析グループ

本グループは、当プロジェクトの中核をなすものであり独自の手法の開発も行われた。

### (3)励起子波動関数の決定

励起子分子波動関数の形状に関する 20 年来の課題に答える本課題は、その方法論を含めて独自性が極めて強く、水準も高い研究である。未踏の課題への挑戦といえる。

### (4)多チャンネル2重ロックイン検出法の開発

微弱光での光非線形スペクトル検出用の画期的な測定装置による挑戦であり独自性・水準とも注目に値するものである。

### (5)励起電子の緩和過程への電場効果

電場印加により非輻射緩和速度を増加させ、電子のフォノン緩和速度と競合させることで、時間積分スペクトルからフォノン緩和過程を明確に知ろうとする試みであり、他に例のない研究手法である。

### (6)量子点の励起電子状態のコヒーレンスに関する研究

量子点で注目される電子状態の高いコヒーレンスに着目する研究は水準の高いテーマ設定といえる。

### (7)発光の明滅現象

半導体量子点の明滅現象は、既に他の研究グループから報告されているが、本課題はデバイスに近い材料である III-V 族半導体の量子点の発光明滅現象の機構を系統的に解明する研究である。

### (8)ポーラスシリコンの表面重水素置換の研究

ポーラスシリコンの発光現象が表面状態に関係する事を実証しようとの試みで、発光の原因についての議論に一定の回答を与えようとするものであり、水準の高い研究といえる。

## 1.3. 理論解析グループ

本グループは、実験グループの補完的な役割を果たすものあり、特に上記の課題 (3)、(5)、(7)および (8) に強く関わった。

## 2. 研究成果の状況

プロジェクトの成果は、上の研究課題のごとく多岐にわたっており、それぞれ国際的学

術論文や国際会議で発表される形で国際的評価を受けている。とくに、中間評価において、励起子の束縛エネルギーが大きく量子点中の励起子物理の特徴を打ち出す材料として期待された CuCl 系を用いた研究などにプロジェクトの独自性と高い水準が認められ、後半の大きな進展をみることができた。

## 2.1. 量子点形成グループ

### (1) InGaAs 系および InP 系量子点の形成と配列化

基板の性質に注目した配列化のための成長条件を検討し、高指数基板を利用した配列化手法において大きな進歩があった。

### (2) 量子点形成モニターとしてのエリプソメトリー法の採用

本手法を用いて MOVPE による量子点の過程を、実時間・その場観測して、エリプソメトリー法を MOVPE による量子点の 1 原子層成長過程を正確にモニターできる実用化レベルの技術にした。

## 2.2. 分光解析グループ

### (3) 励起子波動関数の決定

CuCl バルク結晶の励起子分子が励起子の各励起状態へ光崩壊する過程を鮮やかに捉え、解析し、古くからの課題に明確に答えた点で励起子光物性研究への貢献は多大である。これによって、「励起子分子の閉じ込め効果」について、今後どのような進んだ議論が出来るかが期待される。

### (4) 多チャンネル 2 重ロックイン検出法の開発

大変意欲的な挑戦であり、期間内には満足できる十分な成果は得られなかったが、微弱光による光非線形性を捉える新しい手法として、今後何らかの形で継続して所期の目的を達成すると共に、その技術が一般にも公開されることを望む。

### (5) 励起電子の緩和過程への電場効果

電場印加に応じて非輻射緩和速度を制御し、競合する電子のフォノン緩和の様子を明視することに世界で初めて成功した。その結果、従来の仮説であった「量子点におけるフォノンボトルネック効果による非輻射化」を明確に否定し、光学型フォノンと並んで音響型フォノンによる緩和も十分に速いことを示した。

### (6) 量子点の励起電子状態のコヒーレンスに関する研究

バイアス下での帯電した励起子の量子ビートや 2 パルスの干渉による吸収変化などの新現象を観測している。今後は「光子のアンチバンチング現象」などの未知への挑戦も期待

される。

#### (7)発光の明滅現象

半導体量子点の明滅現象は、90年代半ばに、コロイド中のII-VI族半導体の量子点について発見されていたが、本プロジェクトは、デバイスに近い材料であるIII-V族半導体の量子点についての発光明滅現象の機構を解明した。発光の電場依存性、温度依存性、および明滅現象の励起スペクトルによるトラップレベルの決定により、その明滅機構が光による量子点のイオン化と、それに引き続く励起電子状態と内部電場の発生に拠ることを実証した。

#### (8)ポーラスシリコンの表面重水素置換の研究

水素終端ポーラスシリコンと重水素終端ポーラスシリコンの系統的な比較研究により、光吸収はポーラスシリコンの中心部、発光は表面付近で起こっていることを実証した。本研究は将来重要な応用に繋がる可能性を秘めているので、発光状態の局在性や非局在性の詳細な解明による学術的な進展も期待される。

### 2.3. 理論解析グループ

中間評価では、本グループが多少人材不足であったのでグループの強化を望んだ。その指摘をうけ、プロジェクトでは、研究の後半に積極的に共同研究を行い、その結果、種々の実験結果、特に(3)、(5)、(7)、(8)の実験結果の考察に有効に機能したと認められる。ただし、実験を逆に触発するような目立ったアイデアの提供はなされなかった模様である。

### 2.4. 結論

本プロジェクトがあげた研究成果には世界的水準のものが少なくない。なかでも、CuCl微結晶に対して、ポンプ・プローブ法によって励起分子の励起状態を解明し、永続的ホールバーニングの観測を手段にして励起状態でのLO(longitudinal optical)フォノンのソフトニングを世界で初めて明かにするなど、特に光物性分野の発展に極めて重要な貢献をした。革新的な科学技術を目指した手法・技術の試みとして、エリプソメトリー法、多チャンネル、2重ロックイン法、量子ビート等がそれを強く意識させる。エリプソメトリー法をMOVPEによる結晶成長の実用的なモニター法とした成果は高く評価されるが、一方、多チャンネル、2重ロックイン法、量子ビートについてはまだ確実な科学技術の芽には育っていない感がある。本成果をもとにして「スクイーズド光の発生」など、伝統的な光物性の殻を打ち破るような新たな挑戦も行って欲しい。

本プロジェクトの活動は、奇抜さよりも堅実な学術性を重んじて専門雑誌に多くの成果を発表しており、特にプロジェクトの後半では、狭い領域の専門雑誌だけでなく、物理学全般を網羅する一流雑誌への掲載も目立った(Phys. Rev. Lett. 2件、Phys. Rev. 10件、Appl. Phys. Lett. 4件、J. Appl. Phys. 5件、Jpn. J. Appl. Phys. 15件など)。成果の中には量子

ビート、位相緩和など多くの重要な未発表のものがあると思われるので、速報論文などを中心としながら有効に公表して欲しい。

### 3. 研究成果の科学技術への貢献

量子点とそれを取りまく環境を一体として論じることや単一量子点の多励起電子状態を考えることは、量子点の表面を介した電荷やエネルギーの移動、極微弱光による光学非線形性を論じる際に極めて重要であり、これらについて最先端水準の研究成果を挙げたことは、今後の量子点の新しい物性や応用への流れを創出する基盤を築くのに相当の貢献をしたと評価される。一方、Si ナノ結晶や CdS:Mn 等については応用を強く意識した研究内容と思われるが、発光材料として直接産業界への刺激になりうるかどうかは、現状では不明である。

### 4. 波及効果

本研究成果は基礎科学発展への寄与が大部分であり、現在のところは社会的に重要な関心事への貢献に直接結びつくまでには至っていないように見えるが、将来的にはナノサイエンスやナノテクノロジーの今後の展開に寄与できると期待される重要な結果が多く含まれている。研究員に関しては個人参加で従来の仕事が量子点と少し違う場合に、新しい着眼点が出たように思われ、新規かつ短期プロジェクトの利点が発揮された。また、人材の流動化については、外国人研究者、特に旧ソ連圏の中堅の光物性研究者を多用したことは時期を得たものとして注目される。最後に、量子点研究に携わった研究員達がさらに広い視野でこれらの成果を生かす研究を行えるポストにつき、この研究領域を深めるための更なる活躍ができることを期待したい。

### 5. その他の特記事項

ERATO は、科学技術の新しい展開を図るための探索的要素の強い基礎研究ではあるけれども、本プロジェクトの成果の中には、焦点を絞った基礎的研究を続けることで、将来、重要な応用に繋がる可能性を有する芽も認められる。この項では、それらについて触れる。

#### 5.1. アンチストークス発光・輝尽性発光の素子化

本プロジェクトでは、InP 量子点においては電場印加によるアンチストークス発光を、また CuCl 量子点においては輝尽性発光を検証することにはじめて成功している。これらの独自性の高い成果は、アップコンバージョン素子や低雑音高感度イメージングプレートなどの量子点素子への応用の可能性が認められる。そのためには、それぞれアンチストークス発光のスイッチ特性や輝尽性発光の温度特性などの基礎研究が必要であろう。

#### 5.2. Si ナノ結晶の発光素子の研究

ポーラスシリコンを用いた発光素子の研究において、終端の重水素置換による長寿命化と Eu 共存 (EuSiO) によるスペクトル幅の狭くなった広がり効果 (白色発光) は、応用面から興味深い。そのためには、今後 Eu イオンと表面の関係などを追求する研究が必要であろう。

### 5.3. 量子点の偏光の応用研究

量子点を囲むマトリックスの組成変調により強い偏光光学異方性が生じることを InP/GaInP の系で見出している。この成果を、例えば量子点構造自体が異方性を持つ面発光 InGaAs 量子点レーザーに応用できる可能性がある。そのためには、組成変調マトリックス面発光量子点レーザーについて、その偏光特性、変調時の偏光特性と雑音との関係など、詳細に研究する必要があるだろう。

以 上