

研究課題別評価

1 研究課題名：

時空間制御光を用いた単一量子ドットの量子状態制御

2 研究者氏名：戸田泰則

3 研究の狙い：

通常、固体中の電子(キャリア)コヒーレンスは熱浴である格子(フォノン)との相互作用により擾乱を受ける。したがって量子情報処理への応用を考えるならば、フォノンとの相互作用の小さい量子状態や物質を選ぶことが望ましい。例えばナノスケール空間にキャリアを閉じ込めた半導体量子ドットでは離散化したエネルギーと運動量のためにフォノン散乱はバルク構造に比べて著しく抑圧される。しかしながら特異的な 0 次元性を有する量子ドットにおいてさえ、フォノンとの相互作用がキャリアコヒーレンスに及ぼす影響は大きい。したがってキャリア-フォノン相互作用の詳細を明らかにすることは、長いコヒーレンスを獲得するための材料設計や励起手段の最適化に役立つ。他方、ナノスケール空間に閉じ込められたキャリアとフォノンの間には、従来の弱結合近似から逸脱した相互作用の増強が生じる可能性が指摘されている。例えばキャリアの励起準位間エネルギーが光学フォノンのエネルギーとちょうど一致する場合は、フォノンとの強結合状態であるポーラロンを形成し、励起準位に対してラビ振動やエネルギー反交差を与える可能性がある。したがってキャリア-フォノン相互作用を積極的に利用することにより、新しい量子状態制御につながることを期待される。以上の観点から本研究では、ナノ量子構造におけるキャリア-フォノン相互作用の解明と、時空間制御光による相互作用制御を目的として研究を遂行した。

4 研究成果：

4.1 自己形成量子ドットにおけるキャリア-フォノン相互作用の解明

4.1.1 励起子基底準位の位相緩和とフォノンサイドバンド

離散準位に励起されたキャリアの緩和経路を考えると、励起子基底準位の位相緩和は励起準位に比べて長いコヒーレンスを持つことが予想される。すなわちキャリアコヒーレンスに対してエネルギーと運動量の離散化が最も有効に利用できる。別の見方をすると、励起子基底準位の位相緩和、とくに低温域の位相緩和は、最終的に励起キャリアのコヒーレンスを決定する散乱機構の理解につながる。本研究では単一量子ドット発光の時空間分解測定により、キャリアコヒーレンスを決定する散乱要因とその機構を明らかにした。

単一量子ドットの発光スペクトルを観測すると、その線幅は $\Gamma_{ph}=100 \mu\text{eV}$ 以下であり、高次元構造と比べて著しく狭いことが確認される。この狭い線幅は準位の離散化を反映したものであるが、必ずしも発光再結合寿命とは一致しない。通常、再結合寿命は 1ns に達するが、この値から逆算される Γ_0 は $1 \mu\text{eV}$ に満たない大きさであり、この違いから自然幅に付随する何らかの散乱機構の寄与が予想される。しかしながら μeV 程度の発光線幅を議論する場合、通常の分光器を用いた計測は適当ではなく、より精度の高い周波数分解測定が必要とされる。ここでは自己遅延干渉相関法を用いて単一量子ドット発光の一次相関

を直接観測することで、測定機器の周波数分解能に制限されない発光線幅の評価を行った(図 1(a))。 $\Gamma_{ph}=10\mu\text{eV}$ 前後の線幅に対して、 μeV オーダーの周波数差は位相相関長としてmmのオーダーに相当するので、位相相関長を直接測定することで精度の高い解析が可能となる。図 1(b)は温度 3.5K における単一自己形成量子ドットの発光スペクトルであり、対応する自己遅延干渉による振幅包絡線(c)に示す。遅延変位に対する振幅変化に着目し、指数関数的な減衰と見なして線幅を計算すると $\Gamma_{ph}=19\mu\text{eV}$ と求まる。

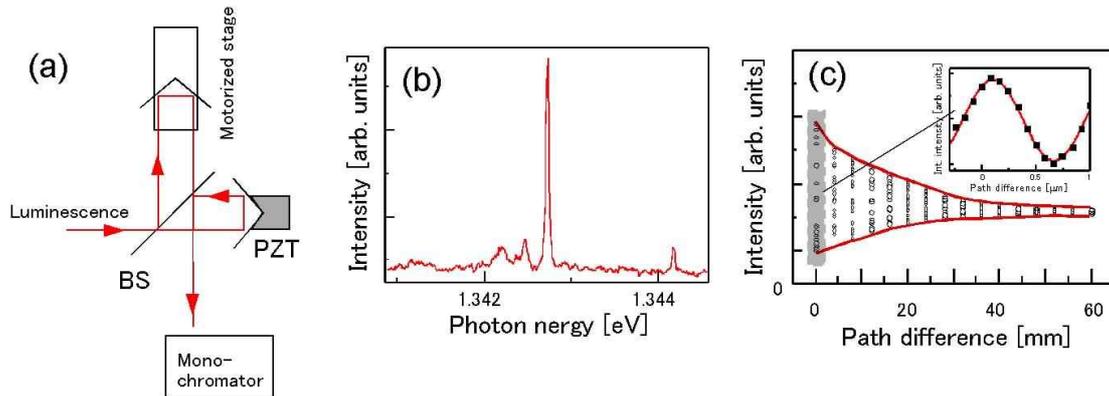


図 1 (a)自己遅延干渉相関法の概略.発光相関をマイケルソン干渉計を通して遅延変位に対する強度変化として観測する.(b)単一量子ドットの発光スペクトル.(c)相関波形

着目した量子ドットは比較的細い発光線幅を有するものであり、均一幅との違いが明瞭に存在することが分かる。

自己形成量子ドットの励起子基底準位-励起準位のエネルギー差は 30meV 以上に達するため、低温における励起子基底準位におけるキャリア散乱機構は音響フォノンとの相互作用のみ期待される。しかしながら量子ドットにおける閉じ込めと低次元化はキャリアの運動量の離散化をもたらすため、散乱に寄与できるフォノン状態数はバルクに比べると著しく小さいはずである。この点を考慮して、再度図に見られる相関波形を検討してみよう。図 2(a)に包絡線から見積られる振幅の変化を示す。近似曲線との比較から明らかのように、干渉振幅の変化は指数関数的な振る舞いから外れている。この結果をスペクトルで考えると、発光線幅が非ローレンツ型の広がりをもっていることに対応する。この線幅広がりには音響フォノンとの強い結合、すなわちポーラロン準位の形成を考えると良く説明できる。強結合のもとでは連続的なエネルギーを持つ音響フォノンがローレンツ型のゼロフォノン線のまわりにサイドバンドを形成する。そのため発

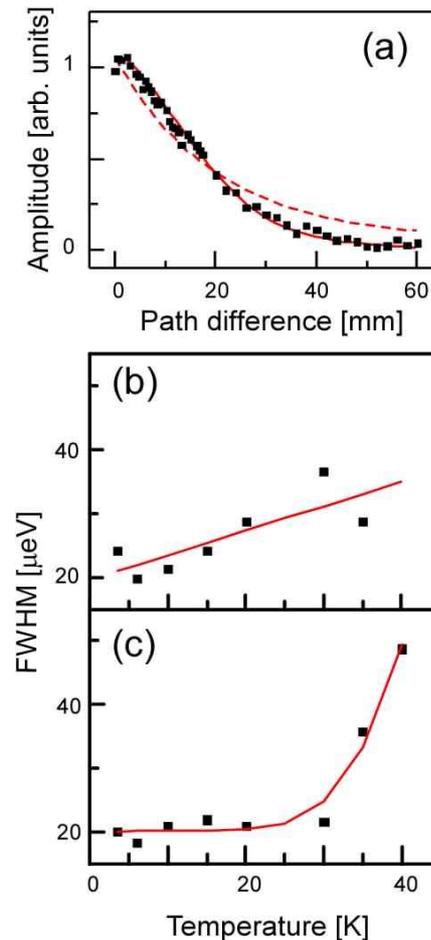


図 2 (a)遅延距離に対する相関振幅の変化.破線は指数関数近似曲線.(b)非ローレンツ成分、(c)ローレンツ成分の温度依存性。

光スペクトルにはフォノン放出、吸収を伴う非ローレンツ型の広がり均一幅に付随して現れる。図 2(a)の実線はローレンツ関数からの差分をガウス関数で補正することで得られた近似曲線であり、実験結果を良く再現している。この解析をもとにローレンツ成分と非ローレンツ成分を区別して議論することが可能となる。各成分の位相緩和を独立な線幅広がりへの寄与として考えると、その温度依存性は図(b)と(c)に示す違いが観測された。低温における各成分の線幅広がり同程度に存在することが確認できる。他方、非ローレンツ成分は温度上昇に対して直線的な変化を示しており、音響フォノンを起源としていることが示唆される。サイドバンドにもとづく非ローレンツ型の線幅広がり高温域で指数関数的に増大するはずであるが、この傾向は観測されていない。これは恐らく $T > 30\text{K}$ でローレンツ成分に支配的となる光学フォノンの影響が大きいためであろう。この温度は光学フォノンエネルギーに比べて小さいように感じるが、ゼロフォノン線幅が $20\mu\text{eV}$ と狭いため、わずかに熱励起された光学フォノンが位相緩和に大きく影響していると考え妥当である。逆に $T < 30\text{K}$ で光学フォノンの影響は小さく、音響フォノンサイドバンドが顕著となる。低温域におけるサイドバンドの寄与は約50%にも達し、励起基底準位の位相緩和を決定する要因に成り得ることが理解される。

サイドバンドの存在を直接的に観測した結果を図 3 に示す。測定に用いた単一量子ドットは $\Gamma_{ph} = 200\mu\text{eV}$ と広い発光線幅を有している。したがって特殊な量子ドットと見なせるが、広い線幅のおかげで通常分光測定でサイドバンドの存在が容易に確認できる。見積られるサイドバンドの広がり少なくとも 2meV 以上であり、音響フォノンとの強い相互作用の存在が示唆される。この基底準位発光に対する励起スペクトルを図 3(b)に示す。レーザ光の影響が少なからず存在するため、単一量子ドット発光が厳密に区別できる領域で励起波長を掃引している。図から明らかのように、発光と同様

の幅広い連続準位が存在している。とくに負の緩和エネルギー領域に共鳴が広がっており、いわゆるアップコンバージョン励起が可能であることを示唆している。励起スペクトルより見積られる線幅は 4.2meV であり、ゼロフォノン線の広がりに対して大きなサイドバンドを形成することが確認できた。

4.1.2 励起共鳴におけるキャリア-フォノン相互作用

先述のとおり、励起準位は終状態とならないため、緩和過程には下の準位への複数の緩和

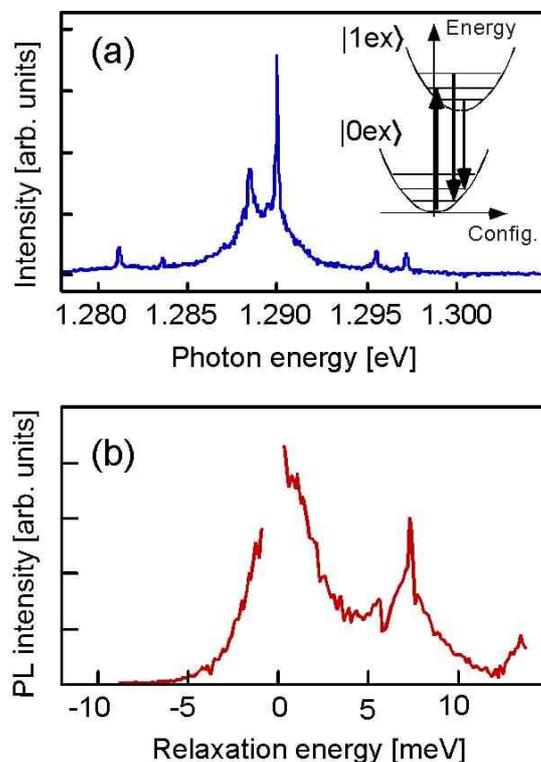


図 3 (a)サイドバンドを伴う単一量子ドット発光スペクトルと(b)対応する励起スペクトル。

和経路が存在することを考慮しなければならない。したがって一般的に励起準位の位相緩和時間は励起子基底準位よりも短くなる。しかしながら発光をプローブとしたコヒーレント制御を考えるならば、励起子基底準位の利用は困難が生じる。なぜならばレーリー散乱により共鳴発光は雑音レベルに埋もれてしまうからである。反面、励起準位は発光エネルギーと大きく離れているため、共鳴に励起エネルギーを設定しても発光をレーリー散乱と区別して観測できる利点がある。実際これまで実現されているキャリア-光子(フォトン)相互作用にもとづくコヒーレント制御の多くは励起準位を利用したものである。他方、自己形成量子ドットの励起準位は光学フォノンエネルギーに近いため、しばしば光学フォノン共鳴が顕著に現れる。波数 0 において有限エネルギーの状態密度を有する光学フォノンは、エネルギーさえ一致すれば効率的な緩和を与えると同時に散乱機構として位相緩和を決定する大きな要因と考えられる。本小節では励起共鳴の特徴を利用した光学フォノンの同定と、連続状態が深く関連した共鳴の特異な振る舞いを明らかにする。

励起子基底準位における T_2 との違いを明らかにするために、さきがけ研究以前に得られた結果から単一量子ドットの励起スペクトルとその位相緩和の特徴について簡潔にまとめる。図 4 は自己形成量子ドットの典型的な発光及び励起スペクトルである。ここで横軸は発光エネルギーと励起エネルギーの差を緩和エネルギーとして表示してある。バルク半導体に特徴的な緩やかな変化とは異なり、原子スペクトルに近い鋭い励起共鳴が観測される。また共鳴以外のエネルギー帯で発光強度はほぼ 0 となり、離散的な状態密度を反映しているといえる。自己形成量子ドットには濡れ層と呼ばれる 2 次元状態が付随しており、大きなキャリア溜めとして振る舞う。その吸収端

以下の領域には幾つかの共鳴ピークとともに連続的な吸収スペクトルの存在が確認されている。この連続状態は緩和エネルギー 50meV 程度に達しており、本来量子ドットに期待される 0 次元領域に大きくしみだしている。いくつかの励起共鳴に対して、位相緩和を測定した結果を図に示す。前小節に示した自己遅延干渉相関法を励起側に用いることで、干渉信号を測定している。図において黒丸は干渉振幅の遅延時間変化であり、位相緩和に対応する指数関数減衰が観測される。連続状態よりも低いエネルギーに存在する共鳴に対しては位相が長い時間保持されている($T_2 \sim 15$ ps)。これは励起共鳴に対する典型的な T_2 であり、励起エネルギーやドットごとにばらつきがあるものの数 ps から数十 ps 程度の値が得られる。前述の励起子基底準位と比較すると、均一幅として 10 倍前後の広がりをもつことが分かる。また連続状態に近い共鳴では数 ps 程度の速い位相緩和が確認されている。これは連続状態における散乱確率の増大を反映していると考えられる。

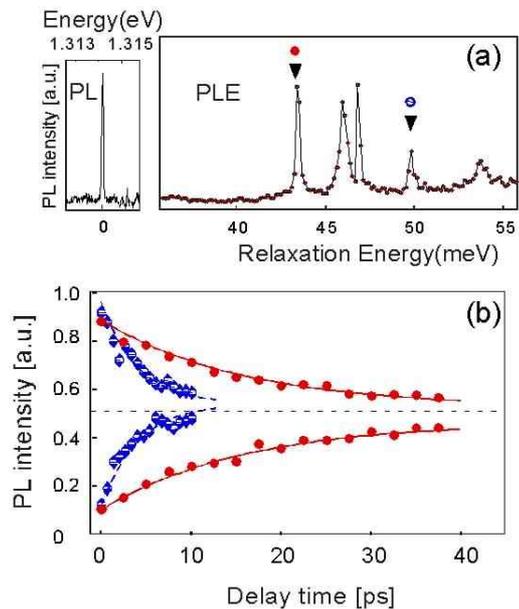


図 4 (a)単一量子ドットの発光スペクトル(左)と対応する励起スペクトル(右).(b)励起発光相関により得られた位相緩和特性.(a)において矢印で示す共鳴に対応する。

図 4(a)に見られるように、自己形成量子ドットの特徴的な離散性は励起子基底準位付近に現れる非共鳴域である。InAs/GaAs 系の SK 量子ドットの閉じ込めポテンシャルはヘテロエピタキシャル成長のドットとしては比較的強く、励起準位の間隔として 50meV 前後に達する。その結果、励起子基底準位付近には広い非共鳴域が観測される。その結果、励起スペクトルはラマン過程を反映したフォノンレプリカが容易に観測される。通常のラマン散乱が仮想準位を経由する一次の光学遷移であるのに対し、ここで観測されているのは発光を伴う二次の光学遷移過程である。したがって散乱強度は、励起光もしくは散乱光が実準位と一致するとき増強される。非共鳴域に観測される共鳴ラマン散乱過程は励起子基底準位に対する出射光共鳴として理解できる。図 5 は単一量子ドット発光を含むバルク GaAs 光学フォノン周辺の励起エネルギーに対する発光強度の分布を示している。図(a)の横軸は検出エネルギーに対応し、縦軸には励起エネルギーが示されている。単一量子ドットからの発光強度分布は矢印で示す直線軸上に存在し、励起エネルギーに依存して変化している。その他の共鳴はそれぞれ GaAs バルクの LO と TO フォノンエネルギーに対応し、これから励起スペクトルに見られるラマン共鳴が TO に重畳して出現していることが確認できる。このラマンピークは 265cm^{-1} 付近に存在し、InAs 量子ドットに帰属すると考えられる。注目すべき点は、その共鳴線幅の広がりである。ガウシアン曲線による近似から線幅は 2meV と見積られ、統計平均の結果(b)とほぼ同程度に広がりをもつことが確認できる。この結果は、歪分布が個々の量子ドットにおいて存在しており、フォノンスペクトルに広がりを与えることを示唆している。

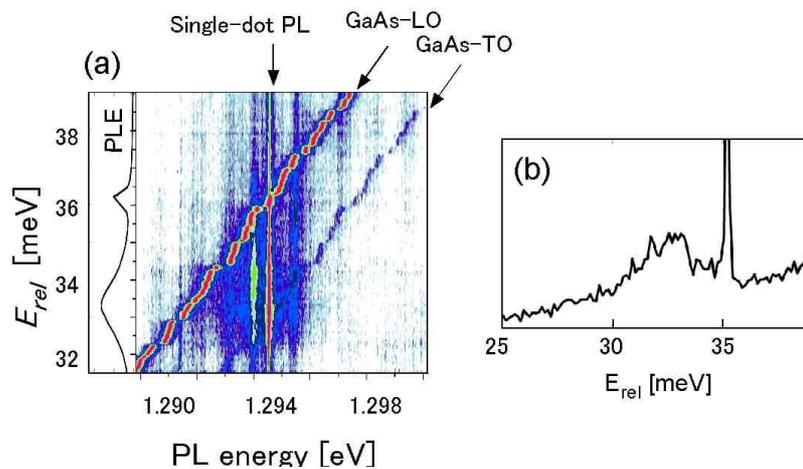


図 5 (a)量子ドット島から得られた発光強度の等高図。縦軸は励起エネルギーに対応し、検出エネルギーがシフトしているピークはバリア層からのバルク光学フォノンに対応する。(b)量子ドットアンサンブルにおいて観測された共鳴ラマン散乱。強いピークは GaAsLO フォノンに対応する。

次に連続状態の存在が深く関与した励起共鳴の特異な振る舞いについて励起スペクトルの励起強度依存性の結果を示す。ここでは励起緩和メカニズムを詳細に調べるため、多体効果として現れる励起子分子の励起共鳴についても考える。励起強度を増加するとき、飽和に達したいくつかの共鳴ピークは、その中心に窪みを形成する様子が観測された。図 6 では、破線の引かれている共鳴がそのような窪みを伴うピークに対応している。励起強度をさらに上げていくと、多くのピークで同様の振る舞いが観測される。対照的に、対応する励起子分子発光(XX)の励起スペクトルには、窪みと同じ励起エネルギーにおいて鋭い共鳴ピークが現れる。強励起における窪みの線幅は $300\ \mu\text{eV}$ であり、これは励起子分子共鳴の線幅とよい一致を示す。したがって両者の間には相関があることが理解される。励起子分子の励起スペクトルに観測される共鳴の生成機構は次の二つが考えられる。ひとつは二光子励起による励起子分子の直接励起であり、もうひとつは発光再結合準位を介した励

起である。観測された励起子分子共鳴がこれら二つの生成過程のどちらが当てはまるかという問題に関してはより詳細な測定が必要であるが、励起子共鳴とエネルギーが一致することと、その狭い線幅から後者の遷移過程が支配的であると考えられる。この結論にしたがって、励起共鳴に見られる窪みの生成メカニズムについて考える。窪みが励起子分子共鳴に一致することから、発光再結合の前にキャリア同士が結合することで励起子分子の効率的な励起に寄与していることが理解される。他方、窪み以外の共鳴領域では、窪み中心におけるキャリア数と同数もしくはそれ以上の数のキャリアを励起しているにもかかわらず、励起子分子励起に寄与していない。このことは励起共鳴に異なる二種類の緩和過程が存在することを意味している。すなわち共鳴中心の速いキャリア緩和に対して、遅い緩和

速度を持つサイドバンドが形成されていると考えられる。このような共鳴サイドバンドを与える大きな要因は、連続状態の存在にあると考えられる。例えばフォノンを介した共鳴ラマン過程を考えると、連続状態の存在によって入射光、出射光ともに共鳴条件を満たす遷移が可能となる。したがって共鳴は大きな散乱断面積を持ち、また速い励起子緩和が起こるため、効率的な励起子分子励起が可能となる。これに対してサイドバンドでは連続状態の存在によって LA+LO による緩和が可能となる。このとき LA フォノンによる遅い緩和速度のために、励起子分子励起は共鳴中心よりも非効率的になるであろう。そのためフォノン共鳴においては、励起強度の上昇に伴い窪みの形成が観測されることになる。

以上、単一量子ドットにおける励起スペクトルの観測を通して比較的多くのドットに共通な励起共鳴の特徴に着目し、その緩和機構の解明を試みた。励起子基底準位と励起準位の両者で同様のサイドバンドが観測されたことは注目に値する。両者が同一の起源を有しているか否かについてさらなる研究が必要であるが、ナノスケールに閉じ込められたキャリアと音響フォノンの間に強い相互作用の存在する可能性を示唆するものである。自己形成量子ドットにおける励起準位やキャリア-光学フォノン相互作用を反映した共鳴は、この他にも多様な振る舞いが確認されている。複雑な現象の多くは離散化された状態密度と共存する連続状態の寄与が重要な役割を果たしていると考えられる。細かい相互作用を個別に明らかにしていくことは困難を伴うが、後半で示した共鳴窪みの形成は顕著な変化のひとつであり、光励起による相互作用制御として有望な現象であることも強調したい。

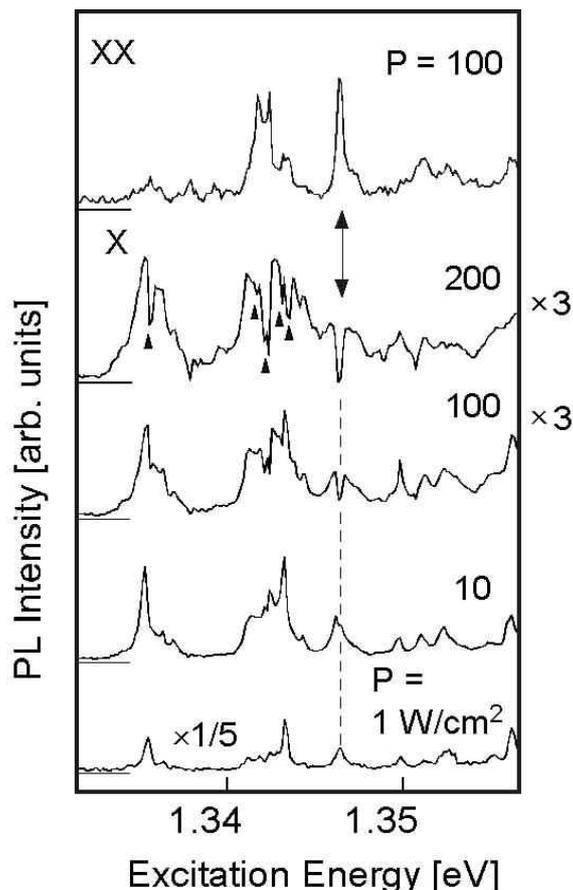


図6 単一量子ドット励起スペクトルの励起強度依存性.

4.2 電子-格子結合系におけるコヒーレント振動励起

キャリア-フォノン相互作用を積極的に利用した量子状態制御を実現するために、強いキャリア-フォノン相互作用を潜在的に有している物質系として低次元導体を取り上げる。とくにキャリアとフォノンの結合振動である電荷密度波(CDW)の集団励起に着目し、時空間制御光を用いてそのコヒーレントダイナミクスを明らかにした。低次元導体である遷移金属物質の多くは電子系がフェルミ面でギャップを開いて安定化すると共に格子変形を伴った CDW を形成することが知られている。近年、フェムト秒光パルス励起が CDW の集団運動を実時間領域で観測可能であることが示され、定常分光や電気伝導測定で培われてきた CDW 物性に対して新しい展開が期待されている。また CDW は巨視的量子秩序状態であり、コヒーレンス長は μm オーダーに達する。したがってナノ構造においては位相ゆらぎの顕在化やコヒーレント伝導など新しい物性の発現が期待される。

初めに CDW の典型物質である擬二次元導体 $1T\text{-TaS}_2$ を対象とし、超格子のコヒーレント振動が観測できることを示す。この物質の大きな特徴は格子周期と整合した整合 CDW を形成する点にある。図 7(a)は $T=3\text{K}$ における反射率変化過渡応答の結果であり、過渡応

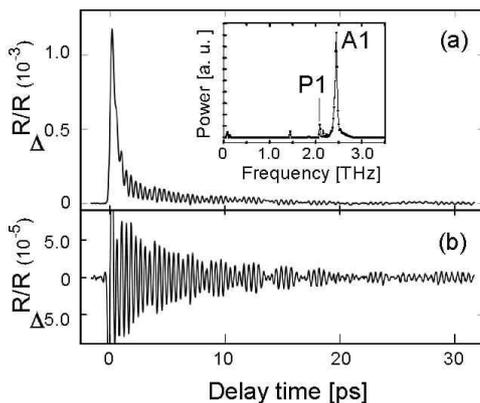


図7フェムト秒光パルス励起による $1T\text{-TaS}_2$ の過渡反射率応答。

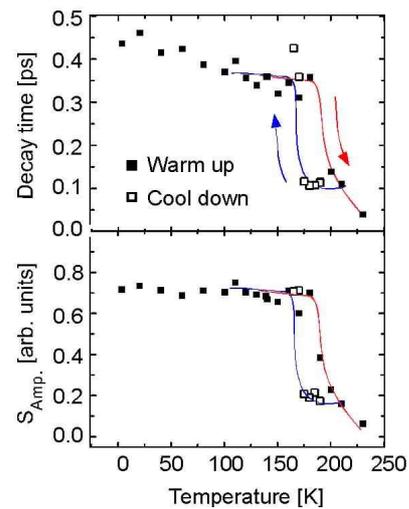


図8 キャリア応答における緩和時間(上)と振幅(下)の温度依存性。

答は 0 点付近に観測される鋭い反射率変化と指数関数的な減衰、及び減衰振動から成っている。励起および検出光は CDW ギャップよりも十分大きいので、観測された指数関数的応答はギャップ端を含めた基底準位付近のキャリア状態を反映している。図 8 に示すのはキャリア応答の振幅と緩和時間の温度依存性であり、整合-不整合 CDW 相転移温度 $T_c=190\text{K}$ において一次相転移を反映した不連続変化とヒステリシスが観測される。したがって過渡反射率応答は CDW 相転移を明確に反映している。相転移温度以下のキャリア応答は 1ps 以下の速い緩和時間を示し、その温度依存性は小さい。このキャリア緩和の特徴は振幅モード(AM)の振幅強度の温度依存性が相転移温度以下でほぼ一定であることから確認される。 TaS_2 ではギャップを一部閉じたまま CDW を形成することが光電子分光で観測されており、小さな温度依存性は擬ギャップを経由したキャリア緩和が支配的であることを示唆している。

過渡反射率応答から指数関数的減衰成分を取り除き、振動成分のみを抜き出した結果を図 7(b)に示す。キャリア緩和に重畳して観測されるコヒーレントな振動は、キャリアの瞬時励起に伴って発生する集団励起に対応する。図 7(a)内挿図にフーリエパワースペクトル(FFT)を示す。主要な振動モードは 2.4THz 付近に存在し、周波数の温度依存性から明らかとなるように顕著な周波数ソフトニングを示す(図 9)。CDW は利得を得るために温度の低下に伴ってフォノンとの整合性を高める。そのため温度に依存した相互作用の変化が生じ、温度依存性には周波数ソフトニングが観測される。したがって 2.4THz 付近に現れるコヒーレント振動は CDW 集団励起である振幅モード(AM)に相当することが結論できる。整合 CDW 相における集団励起の特徴は、多数の微細な振動モードが存在する点にある。整合 CDW はフォノンと完全に整合し、13個のTa原子からなる二次元超格子を形成することが知られている。FFTに見られるモードの多くは相転移温度を超えると消失するため、二次元超格子に起因する折り返しフォノンモードと同定される。

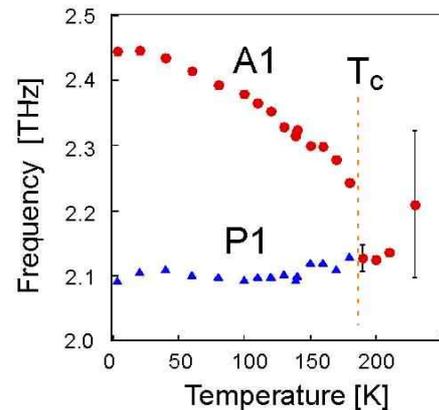


図9 コヒーレント振動周波数の温度依存性.

次に明瞭なパイエルズ転移を示す物質として擬1次元導体 NbSe₃を対象とし、CDW 集団励起の生成メカニズムを明らかにした。過渡反射率応答には TaS₂と同様のキャリア緩和とコヒーレント振動から成る信号が得られる。顕著な特徴はキャリア緩和の温度依存性に現れる。擬ギャップを有する TaS₂では、温度に依存しない速い応答を示した。他方、NbSe₃ではギャップエネルギーに依存した緩和時間の発散が観測された。図 10は2次の指数関数近似から見積られたキャリアのバンド間緩和時間の温度依存性である。

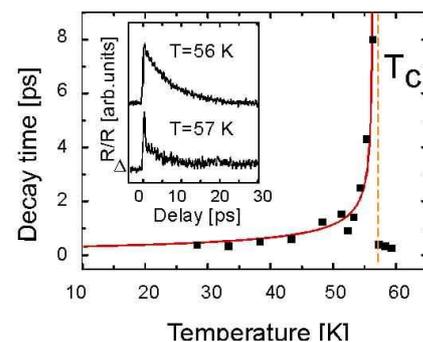


図10 NbSe₃のキャリア応答における緩和時間の温度依存性.

相転移温度に近づくにつれ、緩和時間は大きな温度依存性を示す。また相転移後はギャップの消失に伴い、再び速い緩和を示すようになる(内挿図)。相転移温度付近の緩和時間の発散はギャップの温度依存性から説明できる。すなわち相転移温度付近ではギャップが小さくなり、フォノンを介した再励起が支配的となる。そのため平衡状態に達するまで、長い時間を要する。他方、ギャップ消失後は速いバンド内緩和により励起後すぐに平衡状態に戻る。このキャリア緩和の大きな変化は、コヒーレント振動にも著しい違いを与える。図 11

(a)は FFT から見積られた振動周波数の温度依存性であり、振動モードのひとつは著しいソフトニングを示すことが分かる。前述の通り CDW の電子秩序は相転移温度付近で大きな温度依存性を有する。したがって観測されたソフトモードは CDW の AM と同定される。NbSe₃における AM の重要な特徴のひとつは、相転移温度に達する以前に消失する点である。この温度はキャリアのバンド間緩和時間の逆数が AM 周波数を超える点に対応してお

り、CDW コヒーレント振動がキャリア緩和による瞬時的なイオンポテンシャル変位により励起されていることを示唆している。別の振動モード(P1)に着目すると、周波数の温度

依存性は小さく、さらに相転移やキャリア緩和時間に依存すること無く観測される。この結果は P1 がフォノンモードに対応することを示唆している。しかしながら振幅および緩和時間の温度依存性は AM と強い相関を有しており、例えば緩和時間に着目すると、その大きさは AM と共存すると

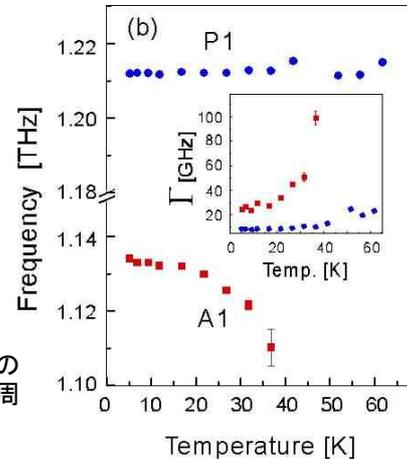
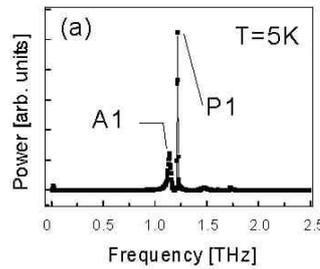


図 1 1 コヒーレント振動の FFT スペクトル(a)と中心周波数の温度依存性(b).

きと比較して著しく低下する。また時間分解スペクトルから P1 モードが AM モードと反相関的なソフトニングを示すことを見出した。キャリア励起によるソフトニングはバルク物質においても観測されているが、低次元物質では著しく弱い励起エネルギーで観測される。この結果はキャリア-フォノン相互作用を通じた量子状態制御につながると考えている。

5 自己評価 :

さきがけ研究の目標は、半導体単一量子ドットにおけるキャリア-フォノン相互作用の解明と、相互作用を通じた時空間制御光による量子状態制御にあった。前者に関しては、4.1に示した通り、位相緩和を決定する要因としてフォノンとの相互作用の果たす役割を定量的に調査した。当初の考えでは制御に適した離散的エネルギーを有する光学フォノンとの相互作用を重視していたが、研究を進めていく段階で、むしろ音響フォノンとの相互作用が散乱要因として大きな役割を果たすことが明らかとなった。光学フォノンとの相互作用増強に関しては、励起準位とフォノン準位のマッチングが難しく、意図的に増強させることは実現できていない。そのためキャリア-フォノン相互作用の強い物質系として CDW 物質を対象とし、コヒーレント集団励起を実現した(4.2)。この物質系では複数の集団励起モードが観測され、キャリア-フォノン相互作用の深く関係したコヒーレント振動の相関を見出した。また多パルス励起を用いた振動の選択励起にも成功しており、キャリア-フォノン相互作用を通じた量子状態制御の実現に向けて今後さらに研究を遂行していく。

6 研究総括の見解：

光と格子振動のダイナミックな相互作用を中心テーマとして一連の研究を行った。当初の予想では半導体の中で離散量子準位を形成する量子ドットに強いレーザーパルス照射し、電子格子相互作用を利用して光学フォノンのコヒーレントな発生を目指していたが、励起電子準位からのエネルギー散逸は主として音響フォノンとの相互作用によることが明らかになったため、研究の方針を変更した。得られた主要な成果の第 1 は半導体量子ドットの励起子発光における音響フォノンサイドバンドの詳細な観測と解析、第 2 はマクロな格子変位を生ずる電荷波を生ずる物質である遷移金属カルコヘナイドへのフェムト秒パルス照射によるコヒーレントフォノン発生の成功、第 3 は長波長フェムト秒パルス光源を用いた 2 光子吸収分光による GaN 結晶の不均一性評価である。研究内容は多岐に亘っているが、フェムト秒パルスをプローブとして半導体のミクロスコピックな構造を解明する方法論は一貫しており、いくつかの興味ある成果を得ている。成果は Phys.Rev. APL, JJAP を含む 9 篇の原著論文にまとめられ、計測法に関する特許 2 件を出願している。新しい分光研究のフロンティア拡大への功績が高く評価できるが、新しい物性の発見、制御の観点からはやや時間不足の感がある。全体としてほぼ予想の程度の成果が達成されたと判断します。

7 主な論文等：

論文

- 1) "Anomalous coherent phonon oscillations in the commensurate phase of the quasi-two-dimensional 1T-TaS₂ compound", Y. Toda, K. Tateishi, and S. Tanda, Physical Review B 70, 033106 (2004).
- 2) "Coherent optical control of molecular motion using polarized sequential pulses", K. Itoh, Y. Toda, R. Morita, and M. Yamashita, Japanese Journal of Applied Physics, 43, 6448 (2004).
- 3) "Selective excitation of self-assembled quantum dots by using shaped pulse", Y. Toda, R. Morita, T. Nakaoka, M. Yamashita, T. Inoue, and Y. Arakawa, Physica E 21, 180 (2004).
- 4) "Optical diffraction spectroscopy of excitons in uniaxially-strained GaN films", Y. Toda, S. Adachi, Y. Abe, K. Hoshino, Y. Arakawa, Physical Review B 71, (2005) in press.
- 5) "Two-photon absorption and multiphoton-induced photoluminescence of bulk GaN excited below the middle of the bandgap", Y. Toda, T. Matsubara, R. Morita, M. Yamashita, K. Hoshino, T. Someya and Y. Arakawa, Applied Physics Letters, 42, 2458 (2003).

特許出願

- 1) 発明者： 戸田泰則

発明の名称： 光入力方法、光出力方法及び光入出力装置

出願人： 科学技術振興機構

公開番号（公開日）： 特開 2004-258303（平成 16 年 9 月 16 日）

出願番号（出願日）： 特願 2003-048811（平成 15 年 2 月 26 日）

- 2) 出願中 1 件

招待講演

- 1) "Multiple-pulse excitation spectroscopy of individual self-assembled quantum dots", Y. Toda, T. Inoue, R. Morita, M. Yamashita, T. Nakaoka, and Y. Arakawa, International Workshop on Quantum Nonplanar Nanostructures & Nanoelectronics, Awaji-shima, Japan (2003)
- 2) "Optical characterization of strong carrier-phonon interactions in single quantum dots", Y. Toda, T. Inoue, T. Nakaoka, S. Ishida and Y. Arakawa, Fifth Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/PR 2003), Taipei, Taiwan (2003)

その他著書

- 1) "Optical Characterization of In(Ga)As/GaAs Self-assembled Quantum Dots Using Near-Field Spectroscopy", Y. Toda and Y. Arakawa, Progress in Nano-Electro-Optics I, M. Ohtsu Eds., Springer (2002).
- 2) "ナノオプティクス：ナノスケールの光物性", 齋木敏治、戸田泰則, ISBN4-274-19738-7 オーム社 (2004)