

独立行政法人**科学技術振興機構**
創造科学技術推進事業
追跡調査報告書

舩本単一量子点プロジェクト(1995～2000)
総括責任者 舩本 泰章

「舛本単一量子点プロジェクト」追跡調査報告書要旨

ナノメートルサイズの超微粒子の中に電子、正孔や励起子が閉じ込められると、運動エネルギーが量子化され、特有の多体効果や表面に起因する効果が現れる。2次元半導体超格子を延長して、電子の2次元閉じこめ(量子細線)と3次元閉じこめ(量子点)の概念が榊らによって提唱されたのは1976年である。80年代に入って、ガラス中の超微粒子やコロイドを舞台にした光学的研究が盛んにおこなわれるようになり、また量子効果を積極的に利用する電子素子や量子点半導体レーザー素子が注目されるようになってきている。中でも、1982年に荒川と榊によって提唱された量子点レーザー素子では、現行の半導体レーザーから飛躍的に性能が向上することが理論的に予測されている。しかし、量子点での発光波長は量子点のサイズに依存するのに対し、均一なサイズの量子点を多数作ることが難しかった。その後 Stranski-Krastanov モードという結晶成長法によって効率的に量子点が形成される事がわかり、量子点の研究は一挙に盛んになった。さらに、ドイツによって1985年に提唱された量子コンピュータは90年代半ば以降現実的なものとして研究されるようになり、これを実現する素子として量子点が注目された。

本プロジェクトが発足した1995年は、このような応用に直結した - 族量子点の成長が普及し始め、世界的に量子点の研究が盛んになりだした時期に当たる。この当時、量子点サイズの不均一が量子点本来の特性を隠していることや、量子点とホストマトリクスを一体として理解されていないこと等、量子点の詳細については不明な点が多く、これらの追求により新しい現象への期待や未知の研究分野が開ける期待があった。本プロジェクトでは、上記のような問題点を技術的に乗り越えるために、 - 族の半導体について、均一なサイズの結晶成長技術を開発するとともに、単一の量子点を対象にした解析をおこなうこと、化合物半導体、シリコン半導体、イオン結晶など様々な物質で量子点そのものの量子状態やホスト結晶との相互作用を超高速の分光技術を使って明らかにすることなどを目標に研究をおこなった。さらに分光解析から得られた結果を理論的に裏付けることも行った。本プロジェクトの主な成果としては、

1. InGaAs 量子点のサイズと形状制御法の開発、および一次元配列の実現
2. MOVPE 量子点形成の、エリプソメトリ法による‘その場’観察手法の開発
3. 量子点の多励起子状態の解明
4. 量子点中のフォノンやフォノン緩和の解明(フォノンボトルネックの解消)
5. 量子点と量子点が埋め込まれているホストとの相互作用の理解
6. ポーラス Si、 - 族半導体ナノ結晶の光学的特性の解明

等多岐にわたり、量子点の物理を掘り下げる質の高い論文を多数生みだした。確実に信頼性のある研究として評価は高い。

結晶成長技術やポーラスシリコン発光素子等は成果を直接引き継ぎ、展開することはできなかったが、分光解析グループの成果は、舛本教授らによってさらに展開された。量子コンピュータや量子通信のための基礎として重要な、量子点における電子スピンや励起子の緩和について超高速分光によって解析し、スピン緩和時間が長いチャージチューナブル量子点の発見や、量子ビートの観測などの研究に進んでいる。舛本教授の超高速の分光測定技術と技術を駆使した量子点の解析は国内、国外で高く評価されている。

以上

目次

1. はじめに.....	1
2. プロジェクトの研究成果とその後の展開.....	2
2.1. プロジェクトの研究成果.....	3
2.2. 研究の継続とその後の展開	5
3. 科学技術へのインパクト	9
3.1. プロジェクトからの新しい潮流.....	9
3.2. 統計的に見た科学技術への影響	10
4. 研究成果の実用化例.....	11
5. 参加研究者の活動状況	11
5.1. プロジェクトから育った人材の状況.....	11
5.2. 学位取得.....	12
6. プロジェクトに関する内外からの意見.....	12
7. 創造科学技術推進事業に関する意見.....	12
7.1. 事業の意義.....	12
7.2. 仕組み、運営面に関する提言	13
8. アンケート調査結果	13
8.1. 当該分野の研究水準・技術水準への寄与	13
8.2. 新たな科学・技術分野の開拓	14
8.3. ERATOプロジェクトを経ての、総括責任者に対する評価の変化	15
9. 出典.....	16
9.1. 参考資料(論文リスト、公開特許リストなど)	16

1. はじめに

半導体結晶の中では電子の波動関数は3次元的に広がっており、電子は結晶の中を自由に動ける状態にある。半導体を利用するいろいろな素子においては、微細化と電子の閉じこめが技術の重要な流れになっている。シリコン半導体素子(MOS トランジスタ)は2次元平面上の電気伝導を制御して、増幅機能を実現し、その結果として超 LSI、コンピュータへと発展した。また、半導体レーザは通信用光源として、あるいはCDやDVDの読み取りに広く使われているが、その開発の歴史において、量子井戸構造の実現は発光効率向上に本質的な役割を果たした。量子井戸構造は1次元の閉じこめ層として働き、閉じこめられた電子と正孔は効率的に再結合し発光する。

さらに、電子が3次元的に閉じこめられる微結晶は孤立原子のように振る舞い、量子点と呼ばれる(最近では量子ドットの名称が一般的であるが、ここではプロジェクトでの呼び方に従う)。ナノサイズの量子点は $10^3 \sim 10^6$ の原子から成り、バルク結晶と異なるバンド構造を持ち、その結果、電氣的、光学的な特性に新しい性質が現れる。例えば、発光波長は量子点のサイズに強く依存する(量子サイズ効果)。量子点をレーザに応用すると、通常の半導体レーザに比べ、温度依存性が殆どなくなり、変調帯が増加し、閾値電流が減少するなどの優れた効果が期待できる。

一方、1980年代中頃に量子効果を用いた量子情報処理(量子暗号通信や量子コンピュータ)の提案が行われた。量子暗号通信は通信が途中で読みとられると、それを察知できるという原理に基づく通信である。また、量子コンピュータは量子状態の多重性を利用し、超並列計算を行うコンピュータである。1994年、「素因数分解を基にした暗号を短時間で解読する量子コンピュータのアルゴリズム」が発見され、以後これら量子情報処理の研究が活発になった。量子点では励起子とフォノンとの相互作用が制限されて位相緩和時間が長くなることが予想されるため、量子情報処理を可能にする固体素子技術の有力な候補として期待が大きく、現在も研究が続いている。

量子点に対する上のような期待にもかかわらず、現実には製法上の制約からサイズの不均一があり、本来示すべき量子サイズ効果の精密な観測や表面現象を含む新現象の発見が妨げられていた。本プロジェクトでは単一の量子点が本来持つ光学的性質を、主にレーザ分光分析によって追求し、量子サイズ効果に留まらない新しい量子効果の発見を目指した。このために、ナノメートルサイズの半導体量子点を制御性よく形成し、量子点の構造や表面を詳しく調べることで、量子点の集合の平均的特性を測定するのではなく、集合の中から特定の量子点を選択し、光学的な性質を測定し、解析し、電子あるいは励起子の状態を明らかにする、単一量子点の持つ特性をシミュレーションによって、測定結果を理論解析するとともに、新現象を予測すること、などを目標にした。

さらに、本プロジェクトでは量子点とホストマトリクスを一体として捉える視点から、結晶、ガラス、ポリマー中の半導体微結晶量子点、ポーラス半導体中の量子点、あるいは半導体基板上にヘテロエピタキシー形成された量子点など様々な量子点を取り上げた。

本研究によって、単一量子点が本来持つ新しい現象が明らかになり、量子点が形成されているホスト結晶との関係でどのようにエネルギーが変化するかを考察、理解することによって、未知の研究分野が開ける可能性があった。また、本研究では前述の実用的な応用素子を開発するための基盤として、様々な量子点に閉じこめられた電子、正孔、励起子、及びフォノンのサイズ量子効果(量子点のサイズに依存して発現する量子効果)や外場下での振る舞いを明らかにする高い意義

があると考えた。

2. プロジェクトの研究成果とその後の展開

1995 年、本プロジェクトが開始した時点は、具体的な目標として量子点レーザや量子情報処理などの素子としての可能性が見えてきたため、研究者も増え、研究が盛んになってきた時代であった。図1に Quantum Dot をキーワードにした論文数の推移(年別)を示す。

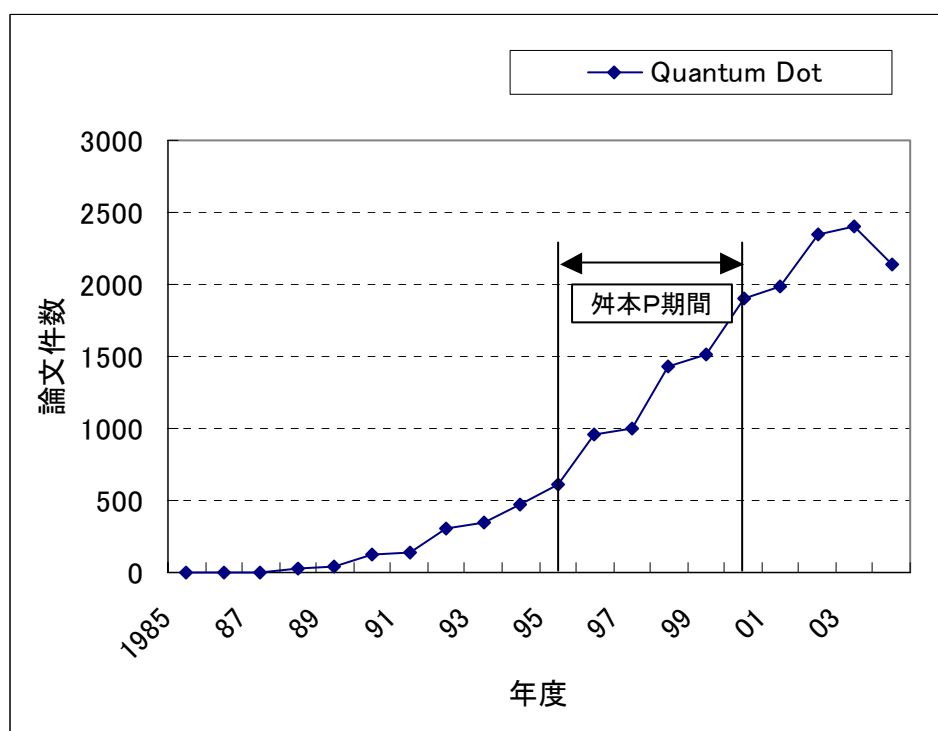


図1 「Quantum Dot」をキーワードにした論文数の推移(DIALOG INSPEC 調べ)

本プロジェクト発足時の 1995 年において、論文数が 600 件程度であったが、本プロジェクト終了時には約 1900 件と急増している。研究のタイミングとしては絶好の時であった。

1995 年当時、既に量子点についていくつかの性質が明らかにされており、例えば量子点のサイズによって発光波長が決まるサイズ効果や半導体量子点の自己組織化による作製手法、Stranski-Krastanov モード(基板上にエピタキシャル成長させた結晶が基板との格子定数の不一致によって歪みを生じ、ある程度の厚さになると三次元的に凝集して、ナノサイズの結晶が生成する結晶成長法: 以後 S-K モード)の結晶成長が知られていた。しかし、実用的な意味で、量子点を制御性良く作製することはできていなかっただけでなく、量子点そのものについても、物理的な理解は不十分であった。

素子への応用では量子点レーザが既に提案・研究されていた。しかし量子点レーザの実現には

量子点サイズを均一にすること、量子点の密度を増やすことが課題であった。また、サイズが不揃いのため量子点の発光機構を含めた物理現象の解明が不十分であった。さらに、量子点を量子情報処理のための素子として応用するにはその量子状態の解明が鍵であった。

本プロジェクトはこれらの課題に対して、 II-VI 族半導体や III-V 族半導体、シリコン、イオン結晶 (CuCl) 等の量子点のすべてを研究対象として、量子点の作製法開発から分光解析、そして理論解析までを総合的に行うことによって、量子点の全体的な理解を得る研究方法を取った。これは本プロジェクトの大きな特徴であった。

2.1. プロジェクトの研究成果

本プロジェクトは 結晶成長による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グループに分かれて運営された。理論解析グループは分光解析の結果を理論的にシミュレートし、また予想を行うという役割の関係上、以下では分光解析の成果と一体で記述した。

2.1.1. 量子点形成グループ

(1) 制御性の良い量子点作製技術の開発

本プロジェクトが発足した 1995 年において、結晶格子不整合による歪みの存在下でナノメートルサイズの島状結晶が自己組織的に形成される S-K モードと呼ばれる結晶成長法が知られていた。プロジェクトではこの結晶成長法を、MOVPE(有機金属気相エピタキシー)と、ガスソース MBE(分子線エピタキシー)に適用して量子点の自己形成の研究を行った。成長条件、成長後の熱処理の適正化によりサイズ、密度、形状について制御性の良い量子点作製技術を開発した。量子点サイズの均一度の向上のために、キャップ層による選択的埋め込み、アニールによる過大ドットの除去を実現したが、この技術は現在ではインジウムフラッシング法として知られている。また、歪み緩和層で量子点を覆うと、発光波長がシフトするとともに発光半値全幅も小さくできることを見いだした。さらに、GaAs の高指数面 ($n11$) ($n=2 \sim 4$) 基板上に InGaAs 量子点 / GaAs 層の繰り返し多重構造を作製し、InGaAs 量子点の一次元配列を実現した。この配列の発光には量子点間のカップリングを示唆する強い偏光特性があることが分かった。高指数面上の成長は、均一形状制御やサイズ均一化にも有利であることを見いだした。

(2) 量子点形成の‘その場’観察手法の開発

MOVPE 法においては、従来、成長の‘その場’観察法は実用レベルに達していなかった。MBE 法では高エネルギー電子線回折法によって原子層オーダーの分解能で成長制御を行うことができていたが、MOVPE ではこの方法は使えず大きな不利になっていた。この目的のために、高速消光型のエリプソメトリ法を採用し、プローブとなるレーザー光の波長を材料に合わせ選択する等の方法によって、一分子層成長に伴うエリプソメトリ信号の振動を非常に明瞭に観測し、高 S/N 比での量子点成長を‘その場’観察することに成功した。すなわち、エリプソメトリ信号が振動するモードから急激に立ち上がる屈曲点は、結晶成長が2次元から3次元(量子点)へと変わる瞬間である。こ

ことから量子点形成の臨界組成や臨界膜厚について直接知ることができるようになり、MOVPE法による量子点成長は手探りでなく直接制御できる技術になった。

2.1.2. 分光解析グループ・理論解析グループ

(1) 多励起子状態の解明

励起子については水素原子モデルで、励起子分子(2つの励起子が相互作用する状態)については水素分子モデルで近似的に表せるが、定量的には理論的にも実験的にもほとんど解明されていない。その解明のために、バンド構造が単純で、かつ励起子の束縛エネルギーが大きいCuClを選んだ。バルクCuClにおける励起子分子の研究から、励起子分子から高次(2s、3s、4s)励起子への極微弱な光学遷移を観測することに初めて成功した。この結果励起子分子輻射緩和過程の理論を実証し、励起子分子の波動関数を正確に決定することができた。この成果は事後評価において、「20年来の課題に答えるもの」として高く評価された。

励起子閉じこめの弱い量子点の代表であるCuCl量子点について、励起子分子(2励起子状態)の基底状態、励起状態、3励起子状態の計算を行い、吸収スペクトルの実験結果を理論的に説明づけた。

逆に励起子閉じこめの強い量子点の例として、InP量子点における2励起子状態、3励起子状態、多励起子状態の単一量子点分光による観測を行い、理論計算と相まって、量子点中の多励起子状態を総合的に理解することができた。

この研究の過程で、単一量子点に対する、単一光子レベルの弱励起極限での、極微弱な非線形信号を測定するために、世界で初めてのマルチチャンネルダブルロックインアンプとそれを用いた分光システムを開発した。

(2) 量子点中のフォノンやフォノン緩和の解明

InP量子点に負のバイアスをかけると、量子点中の光励起された正孔がバリア層へのトンネリングにより抜き取られ、非輻射緩和速度が増大し、ルミネッセンススペクトルの強度が全体的に低下するが、スペクトル中、励起光のエネルギーからちょうど縦波光学型(LO)フォノンのエネルギー分だけ隔たったところでは、明瞭な発光ラインが見られる。この現象を利用してルミネッセンススペクトル上にフォノン構造を明確に観測することができた。スペクトル中の各部の発光の時間変化から、LOフォノン、音響型フォノンの緩和時間を決定した。音響型フォノンの緩和時間は数十ピコ秒で、フォノンボトルネックの理論的予想より桁違いに速いことを明らかにした。量子点における理論的予想では、励起レベルからフォノン緩和により発光レベルへ遷移するとき、フォノン緩和時間が遅いため発光準位への十分な電子が供給されず、非発光準位への遷移が優位になる(発光効率が高くない)というフォノンボトルネックがあるとされていた。発光レベルのフォノンボトルネックが否定されることによって、量子点レーザの発光効率の限界の一つが解消され、量子点レーザの開発による性能向上が可能であることを示した。

(3) 量子点と量子点が埋め込まれているホストとの相互作用の理解

- 族半導体の量子点の発光明滅現象を解明した。すなわち、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、それに引き続く励起電子状態と宿主内に存在するトラップ(例えば不純物や格子欠陥による)との相互作用であることを明らかにした。

(4) ポーラス Si、 - 族半導体ナノ結晶の光学的特性の解明

Si 単結晶基板上に Eu ドープの珪素酸化物微結晶層を積層して薄膜電界発光素子を作製し、白色の高輝度電界発光を得ることに成功した。ナノサイズの ZnS:Cu、Al 超微粒子において、ドナー・アクセプタ対による発光が強く起こることを見いだした。また、Mn ドープの CdS や ZnS ナノ結晶では、Mn 発光の温度消光がバルク結晶と比べて著しく弱いことを見いだした。この違いは、ナノ結晶では、励起子の熱解離が起きないことによる。さらに、井戸層に希土類イオンをドープした ZnSSe:Sm / ZnS 多重量子井戸では、Sm³⁺の蛍光量子効率、バルク中にドープした試料と比べ、およそ 40 倍にも達することを見いだした。

シリコンによる発光は、1990、イギリスの Canham らによって、ポーラスシリコンの可視発光が報告されて以来、活発に研究されるようになった。ナノサイズの Si 微結晶が発光現象に関与していることが知られていたがその発光メカニズムについては不明であった。本プロジェクトにおける、水素終端ポーラス Si と重水素終端のポーラス Si の系統的研究により、光吸収はポーラス Si の中心部、発光は表面付近で起こっていることを実証し、表面のトラップと Si との相互作用が発光の原因であることを突き止めた。また、重水素終端のポーラス Si では発光の劣化寿命が 100 倍延びることも発見した。

以上、グループ毎に多くの成果が生み出され、事後評価報告書に記載されているように、本プロジェクトから高水準の学術論文が多数発信された。ヒアリングした外部有識者の方からは共通して、「本プロジェクトの成果は、量子点の物理現象を分光解析によって明らかにするという基礎的な研究である。研究の水準は高く、科学的に精密であり、信頼できる結果を得ている。量子点デバイスの開発等の基礎として重要な仕事であった。」という趣旨のコメントを頂いた。

2.2. 研究の継続とその後の展開

2.2.1 量子点形成

本プロジェクトの量子点形成技術は本プロジェクト終了後、プロジェクトの研究者によって日本電気(株)で3年間に渡って継続研究されたが、日本電気(株)の方針で中断した。これ以後、本プロジェクトの成果を直接継続している研究グループはない。通常の半導体レーザの効率向上、波長の多様化が著しく、短期的な観点から量子点レーザ市場への期待が薄れたのが理由と思われる。しかし一般には量子点レーザの研究は盛んに行われている。研究を継続したグループに対して、本プロ

ジェットの成果、例えばMOVPE法におけるその場観察法の実用化やインジウムフラッシング法の開発、が参考になったことはあったと考えられる。東京大学の荒川泰彦教授と(株)富士通研究所が2004年に波長1.3 μm、70 nmまで安定に動作し、10ギガビット/秒の変調速度を達成した量子点レーザの発表を行い、2007年までには実用化技術を確立するとしている。

2.2.2. 分光解析・理論解析

(1) 量子点に関する多励起子・フォノン・ホストとの相互作用の分光解析研究

現在、量子点の励起子、電子スピン、核スピンは量子情報処理を実現する素子の候補として有望視されており、多数の研究者が競争して、研究を進展させている。その中で舩本教授は、量子点における分光解析研究を継続発展させ、分光解析の専門家として、フェムト秒(1fs = 10⁻¹⁵s)レーザ、ピコ秒(1ps = 10⁻¹²s)レーザ、極めて単色性に優れたレーザを駆使して、量子情報処理実現に大切な電子スピンのエネルギー緩和やコヒーレンスの緩和(位相緩和)の研究を行っている。このような研究手法は電気伝導等の手法とは異なった見方の解析法として、量子点を理解する上でなくてはならない手法になっている。

具体的には次のような研究を展開した。

CuCl 量子点はホストマトリクスによって形状が異なり、量子状態が変わってくる。また、量子点のサイズによるフォノンモードが変化を受ける。これらパラメーターに関して永続的ホールバーニング法で調べ励起子-フォノンの結合状態を調べた。

半導体量子点に閉じ込められた音響型フォノンは、特に低温で量子点のデコヒーレンスに重大な影響があることが分かっているが、従来研究が十分に行われていなかった。燐酸ガラス中に析出させた **PbSe** 量子点をサンプルとして、閉じ込められた音響フォノンを観測し、フォノンの振動数が粒径に逆比例することを明らかにした。バンド内遷移が近赤外領域の光スイッチデバイスとして応用可能であることを明らかにした(2000年)。同じ手法を可視領域に共鳴エネルギーを持つ他の量子点系(**CuCl**、**CuBr**、**CdS**)に研究の範囲を広げた。

ZnTe 上に形成した **CdTe** 量子点の時間分解分光測定により、電子のエネルギー緩和過程を調べ、18次にも及ぶLOフォノン構造を見出した。これから、**ZnTe** バリアー層に光生成されたキャリアーは**ZnTe**のLOフォノンを放出しながらエネルギーを失い、さらに**CdTe**のLOフォンを放出しながら緩和し、発光に至る過程を明らかにした(2000年)。

基底状態を共有するエネルギーの近い2つの光学遷移が時間の短い光パルスで励起されると、光励起された2つの分極はわずかに異なるそれぞれ振動数で振動することとなる。これらの光励起された2つの分極は互いに干渉し、うなり(量子ビート)を生ずる。量子点では不均一広がり(原因で分光スペクトルにはサブレベルの微細構造が隠されることが多いが、微細構造間で量子干渉すると発光強度の振動(量子ビート)として観測されるので、光学遷移エネルギー間の微細なエネルギー差を決めることができる。この現象を**InP**や歪み誘起**GaAs**の量子点の励起子で観測した成果は先駆的な仕事として評価されている。2002年には**InP**と歪み誘起の**GaAs**量子点について4種類の量子ビートを実験的に調べ上げ、特徴をまとめた。

量子点に局在する電子スピンはバルク結晶中の電子と異なり軌道運動との相互作用による緩和機構が働かないので、長い緩和時間を示すことが期待されている。量子情報処理の素子に

期待される理由はここにあるが、実際には未解明の分野であった。この問題の解明のために CdTe 量子点のスピンの緩和機構を、磁場の存在下の偏光フォトルミネッセンスおよび時間分解フォトルミネッセンスを用いて調べた。CdTe 量子点のスピンの緩和機構は電子スピンと揺らぎを持つ核スピン間の超微細相互作用であると結論した。

フォノンボトルネックが InP 量子点では殆ど無視できることを指摘したが、量子点レーザとして有望視されている InAs 量子点において、基板中の電子プラズマと量子点中の光学フォノンが結合してプラズモン - 光学フォノン結合モードをつくりエネルギー幅が広がるために、量子点中の電子のエネルギー緩和が高速化するという新しい機構を提唱した。実験と理論の両面からプラズモン - 光学フォノン結合モードが電子のエネルギーの緩和に大きな影響を及ぼすことを示した。(2003年)

本プロジェクトの成果である、電場による制御の技術を進展させ、量子点への電子注入を電場で行い、励起子の個数を制御しながら光スペクトルやその時間特性を観測して解析する手法(チャージ・チューナブル・ドット)を開発した。この手法は量子点のスペクトル解析に有効な手段となっている。また、超高速のスペクトル解析により量子点における電子スピンや励起子の緩和現象やコヒーレンスの研究等を行い、例えば2004年には、1つの電子をドープされた InP 量子点において電子のスピン偏極時間がサブピコ秒と従来に比べて 2~4桁も長い最長の偏極時間を得る等の成果を得た。また、電場による正孔が量子点からトンネル過程で障壁層に抜けていく過程を超高感度フォトンエコー法で計測し、ノンマルコフ的振舞を観測した。

これら舩本教授の研究室の成果には国内(奈良先端科学技術大学院大学、山梨大学等)、国外(研究員受け入れ: St. Petersburg State University, St. Petersburg Technical University, Swiss Federal Institute of Technology-Lausanne 等)との共同研究の成果が含まれている。

(2) 不純物イオンをドープした Si、 - 族半導体ナノ結晶の光学的特性の解明

ポーラス Si の研究は研究者の異動とともに、本研究の継続という意味では途絶えた。しかし、研究推進委員であった東京農工大の越田信義教授が現在も活発に行っている。その他東海大学和泉富雄教授はポーラス Si やナノ Si による EL 素子を、東京工業大学小田俊理教授は Si のナノサイズのボールを作製、量子点の動作を確認した。その他京都大学、岩手大学、兵庫教育大学などでも研究中である。本プロジェクトの成果による展開ではないが、現在もポーラス Si、ナノサイズ結晶 Si の研究は盛んであり、海外では"Group IV Semiconductor"と言うカナダの企業がシリコンの発光パネルを製品化している。

- 族(ZnS, CdS 等)に Mn ドープした系は蛍光体物質として知られている。現在、同じ材料でナノサイズの量子点による EL 素子の研究(大阪大学)やナノ蛍光体材料の研究(京都大学、慶應大学)等が行われている。

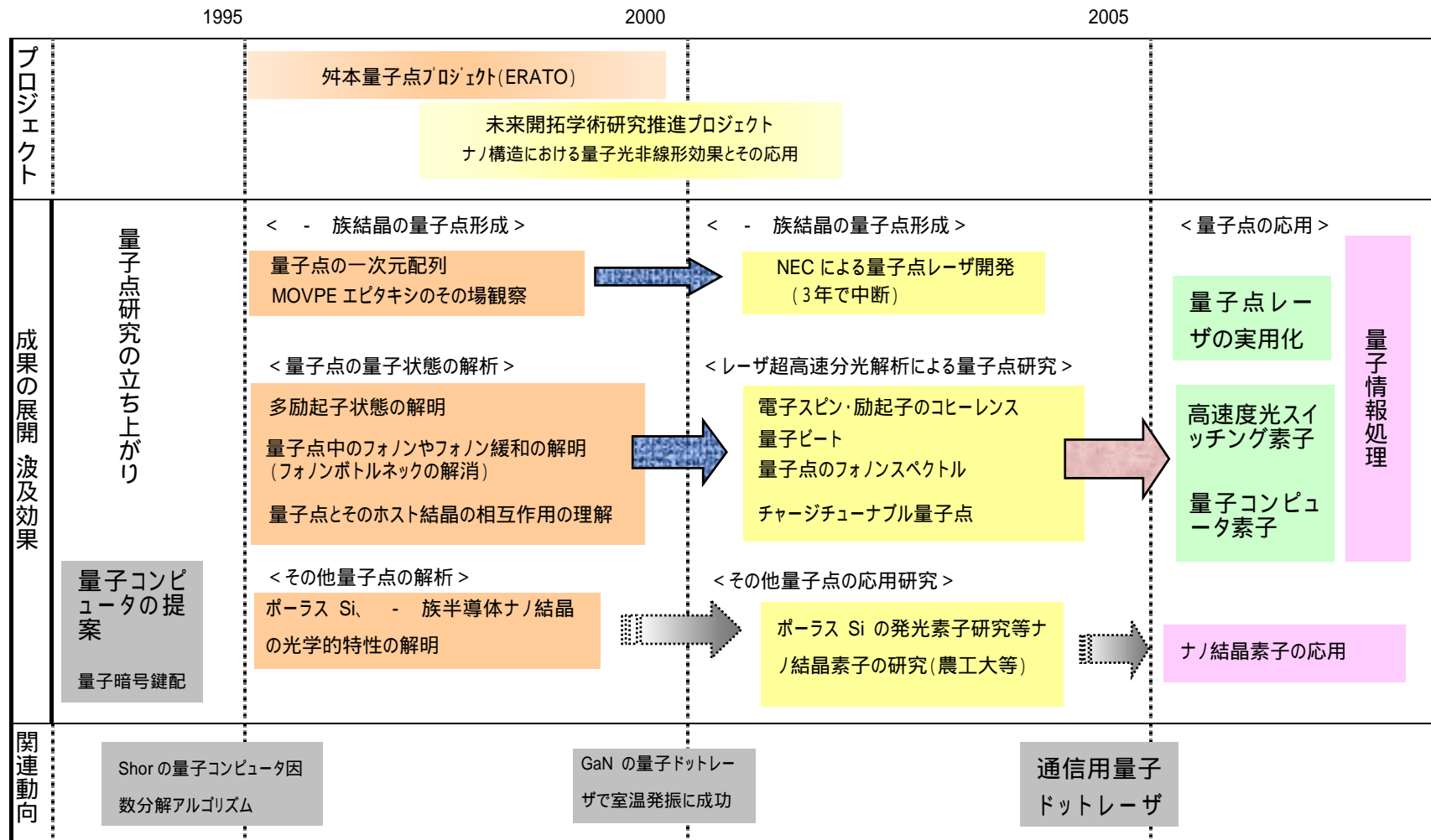


図2 舛本量子点プロジェクトの展開状況

3. 科学技術へのインパクト

3.1. プロジェクトからの新しい潮流

もともと本プロジェクトが量子点研究の流れの立ち上がり期に始まったので本研究の成果として研究の新しい潮流ができたというよりはむしろ、本研究が量子点の物理を掘り下げることによって基礎的な理解に貢献し、その流れを確かなものにしたと位置づけることができる。即ち、超高速時間分解を含む分光技術を駆使した高水準の研究によって、基礎的で堅実な研究を積み上げ、科学的に信頼できる結果を得たこと、種々の材料の量子点や量子点とホストとの相互作用など広い視点で量子点の物理への理解を深めたことである。これら成果と研究手法は、量子点利用の素子開発の基礎的な情報として、研究者に影響を与えていると思われる。

本プロジェクトの成果である量子点における多励起子の量子状態の理解は、その後量子ビートや電子スピンや励起子の緩和現象、これらのコヒーレンスの研究等に進展し、世界的な量子通信や量子コンピュータを目指した研究の流れにつながっている。

図3は「Quantum Dot」と「Spin」をキーワードにした研究論文数の推移(年別)を、「Quantum Dot」全体の研究と比較したものである。この図から、量子点のスピンへの関心が最近急激に高まっていることが分かる。

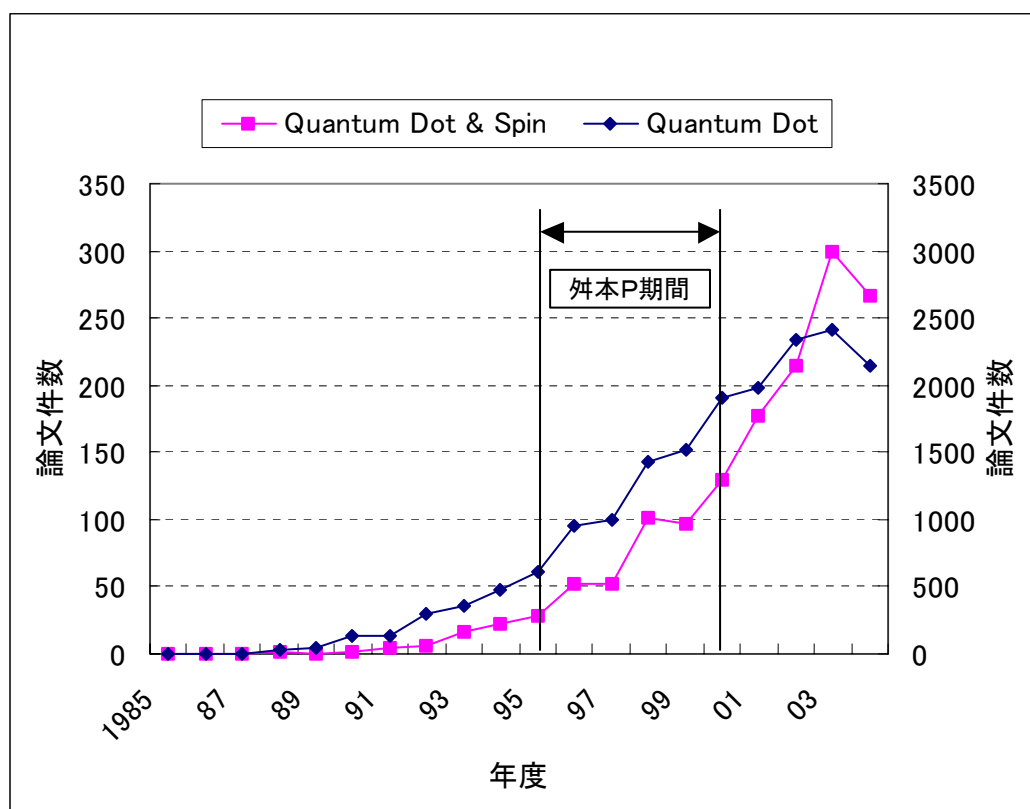


図3 「Quantum Dot」と「Spin」と「Quantum Dot」全体の研究論文数の推移(DIALOG INSPEC 調べ)

3.2. 統計的に見た科学技術への影響

3.2.1. 主要論文の引用件数

主要論文7件の年次推移(累計)を図4に示した。1997 発表の論文は頭打ちの傾向が見えるが、その他の論文は引用が確実に続いていることを示している。

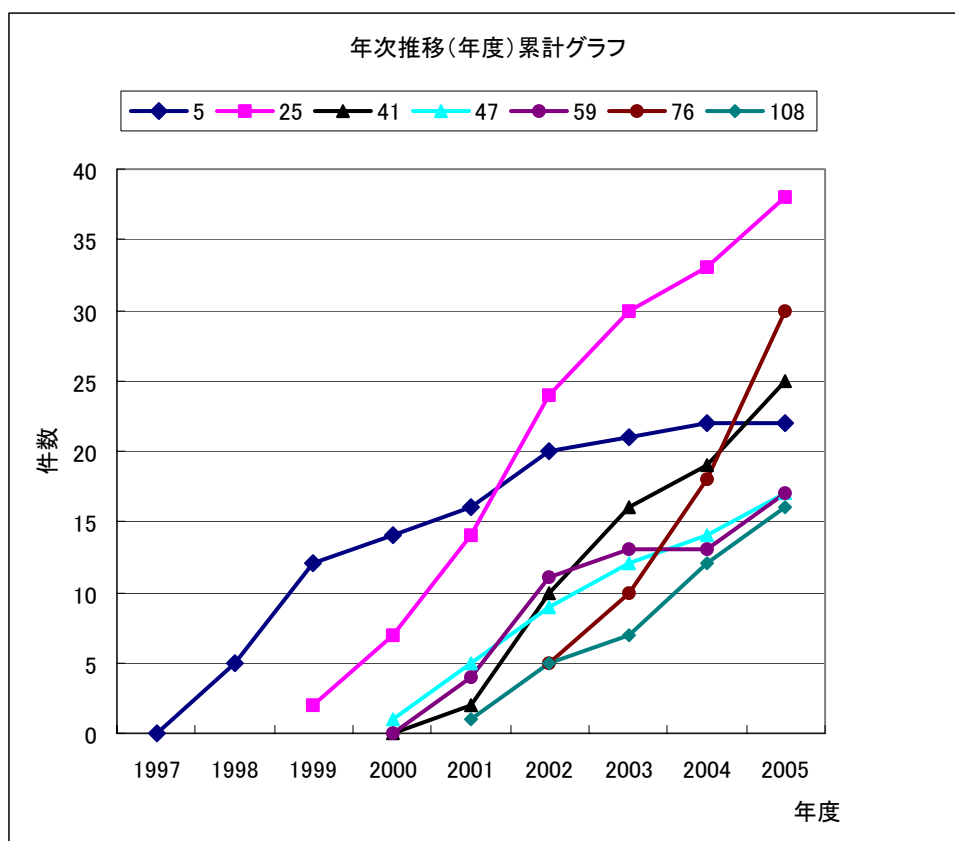


図4 主要論文の年次推移(累計)

3.2.2. 招待講演件数及びマスコミなどでの講演回数

国際学会での招待講演件数は9件(うち3件がプロジェクト期間)と多くの国際学会に招待論文を
発表している。

3.2.3. 学会、分科会、研究会などの創設

本プロジェクトがきっかけになって創設された学会、分科会、研究会などはない。

3.2.4. 受賞など

李 定植 第 45 回(1998 年春季)応用物理学会講演奨励賞受賞

「エリブソメトリ法による InGaAs/GaAs 量子ドット成長のその場観察」

4. 研究成果の実用化例

本プロジェクトで開発された 128 チャンネルのダブルロックインアンプはメーカー(英国: Signal Recovery 社)が製品化し、その後、東京大学へ2台納入され、フェムト秒分光に威力を発揮している(参考:2004年4月20日、日刊工業新聞記事)。

その他には、本プロジェクトから直接、あるいは派生して製品化や新ビジネスに結びついたと言える実用化例はない。本プロジェクトは量子点の作製から光学的な解析・理論的な裏付けまでを行い、総合的に量子点の本質を理解することに注力したプロジェクトであった。量子点の作製については、実用的なデバイスを作ると言うよりは、量子点作製のための結晶成長技術を開発することに注力した。しかし、量子点のサイズを揃えること(レーザー光の半値幅の減少)、量子点の密度を自由に制御すること(発光効率の向上)などの技術はそのままレーザー実用化の基礎になっていると思われる。プロジェクトの研究課題の中では応用的な側面が強いポーラス Si、 α -Si 族半導体ナノ結晶の研究についても事情は同じである。

近い将来見込まれる量子点レーザーや、高速度光スイッチング素子、さらに究極の応用例としての量子暗号通信素子や量子コンピュータ用素子などが実用化される可能性はある。本プロジェクトが量子点の量子状態について分光学的手法を駆使して明らかにした事柄は、将来、様々な量子点の応用が現実のものになったとき、その基礎になっている可能性がある。

5. 参加研究者の活動状況

5.1. プロジェクトから育った人材の状況

主な研究者の活動状況(客員研究員を除く)は以下のとおりである。

杉崎満研究員はトロント大学で研究を行った後、大阪市立大学助教授として活躍中である。徳永英司研究員は本プロジェクト終了後、東京大学での研究生生活後、東京理科大学講師として研究を展開している。

西研一研究員は出向元の日本電気(株)で研究者として活躍中である。松本貴裕研究員はスタンレー電気(株)で研究に従事している。また、田中正規研究員はベンチャー企業、ネオゲノム(株)の研究開発部長として、量子点蛍光体の応用製品を開発中である。

Selvakumar V.Nair 研究員はトロント大学へ移り、京都工芸繊維大学等との共同研究を行っている。

5.2. 学位取得

このプロジェクト中の学位の取得者は2名である。

6. プロジェクトに関する内外からの意見

- ・このプロジェクトにより日本における量子点の分光研究は相当進んだと思う。このプロジェクトがなければ、日本での量子点の分光研究は相当遅れたはず。(内部)
- ・変革をもたらす程の成果は挙げられなかったが、一流の論文投稿誌へ数多くの論文が掲載され、一応の成果を挙げたと思う。(内部¹)
- ・日本では従来、材料研究グループと解析グループの協力が必ずしも充分でなかった。ERATOがなかったら、材料、分光解析、理論が一同に集まった研究はできなかったと思う。一同に集まった効果として、効率的な研究ができたし、様々な材料を対象に研究ができた。(総括責任者)
- ・一流雑誌へ数多く論文投稿ができ、一応満足だが、できれば Nature へ投稿できる成果を挙げたかった。(内部)
- ・本プロジェクトは、量子点の基礎を追求したプロジェクトであった。目玉的な成果はなかったが、研究の水準は高く、量子点の研究に十分貢献している。このような基礎研究は大事で、20年、30年後に評価されるのはこのような研究である。(外部²)
- ・本プロジェクトを含めた、基礎的な仕事は欧米での評価が高い。本プロジェクトの総括責任者への評価も高い。(外部)
- ・ERATO はもっとハイリスクなテーマを選んで、運営すべきである。本プロジェクトはその点不満がある。ただ、これは総括責任者や研究者の責任ではなく、選んだ側の責任であろう。(外部)

7. 創造科学技術推進事業に関する意見

7.1. 事業の意義

- ・ポストクや研究をしたい人にとってERATOは5年間、研究に専念できる、大きなチャンスである。(内部)
- ・総括責任者をトップダウン的に選び、総括責任者の責任と裁量の下で新たな場所で研究者を集め、基礎研究に腕を振るって貰うのがERATOの特徴だと思う。通常の公募型の研究は沢山あるので、ERATOのやり方は貴重である。このような研究事業があっても良い。(複数の内部)
- ・科学技術が日本の国を支えていると思う。ERATOのような基礎研究を重視したプロジェクトは日本に必要と思う。ただ、総括の選び方が難しい。成否は総括にかかっている。(外部)
- ・この規模の研究は海外ではできない。この制度の評価は高い。(外部)

¹ プロジェクト内部研究者

² 外部有識者

7.2. 仕組み、運営面に関する提言

- ・ 総括の選び方にトップダウンと公募があると思うが、公募型のプロジェクトが多い中、トップダウンによる選び方で良いと思う。(外部)
- ・ 総括は研究業績だけでなく、リーダーとしての資質も見たい。(外部)
- ・ 5年の研究期間は適当である。(外部)
- ・ 場所を決めて、集める運営方式は良い。(多数の外部)
- ・ 立ち上げ時、場所を決めたり、研究設備を導入したりと大変であった。それぞれの場所と装置で参加すると言う形で良いのではないか。(内部)

8. アンケート調査結果

8.1. 当該分野の研究水準・技術水準への寄与

設問1: 本プロジェクトは当該分野の研究水準・技術水準の変化に大きく寄与したと思われるか？

表1 設問1に対するアンケート結果

回答	外部(外部有識者)	内部(プロジェクト関係者)	合計
1. 大いに寄与した	1	1	2
2. 寄与した	3	3	6
3. あまり寄与していない	0	1	1
4. 寄与していない	0	0	0
評価(回答1を3として)	2.25	2.00	2.11

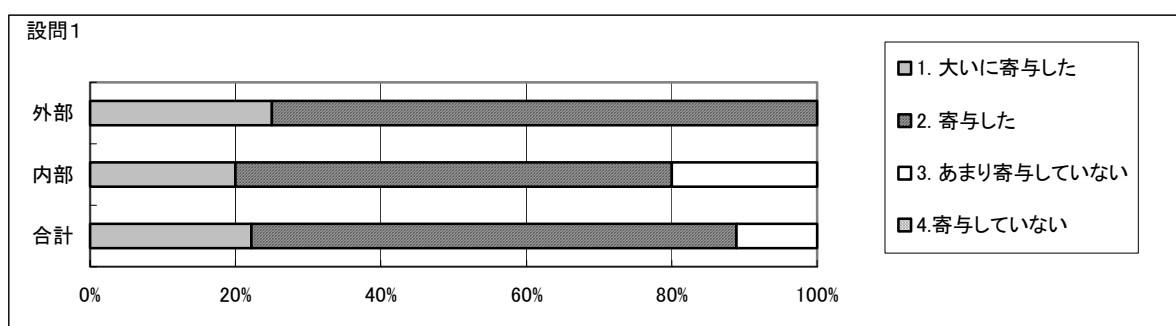


図5 設問1に対するアンケート結果

内部関係者には厳しい見方をした方もいたが、外部有識者は概ね大きく寄与したとの評価であっ

た。

8.2. 新たな科学・技術分野の開拓

設問2：本プロジェクトによって新たな科学・技術分野を切り開いたと考えられますか？

表2 設問2に対するアンケート結果

回答	外部(外部有識者)	内部(プロジェクト関係者)	合計
1. 切り開いた	0	0	0
2. 切り開きつつある	4	1	5
3. きっかけにはなった	0	3	3
4. 切り開いていない	0	1	1
評価(回答1を3として)	2.00	1.00	1.44

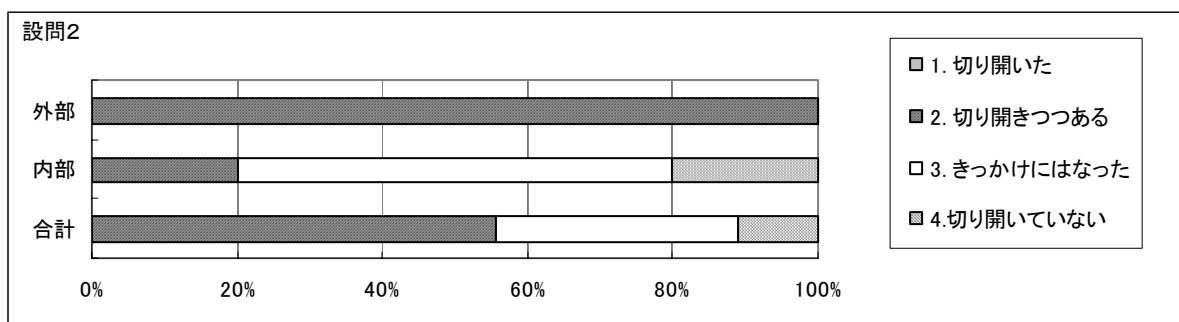


図6 設問2に対するアンケート結果

プロジェクトは新たな科学・技術分野を切り開いたと考えられるか。

内部関係者は「切り開きつつある」または「きっかけにはなった」との見方をしており、外部有識者は「切り開きつつある」との見方が多かった。

8.3. ERATOプロジェクトを経ての、総括責任者に対する評価の変化

設問3： プロジェクトを経て総括責任者に対する評価に変化はありましたか？

表3 設問3に対するアンケート結果

回答	外部(外部有識者)	内部(プロジェクト関係者)	合計
1. 評価は著しく高くなった	1	0	1
2. 評価はかなり高くなった	3	4	7
3. 大きな評価の向上は認められない	0	1	1
4. 評価が下がった	0	0	0
評価(回答1を3として)	2.25	1.80	2.00

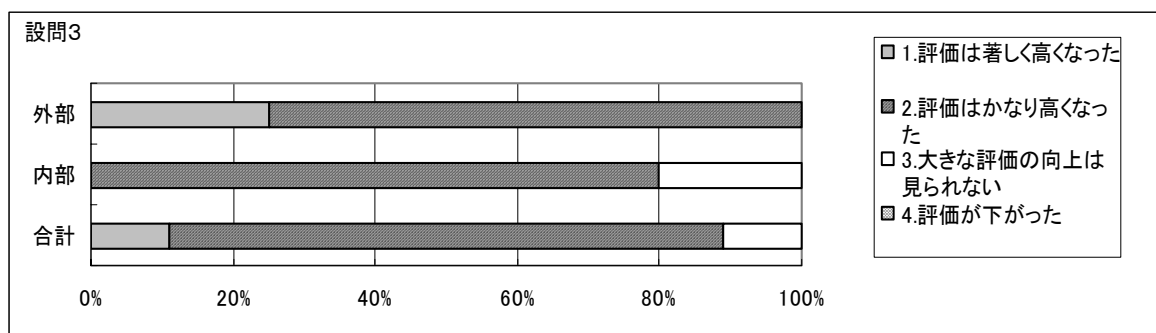


図7 設問3に対するアンケート結果

プロジェクトの経験を経たことによって、総括責任者に対する内部・外部の評価は変化したか。内部関係者、外部評価者ともに「評価はかなり高くなった」あるいは「評価は著しく高くなった」が多かった。面談においても、外部有識者の方の総括責任者への評価は高かった。

9. 出典

9.1. 参考資料(論文リスト、公開特許リストなど)

[論文リスト]

No	書誌事項	被引用件数
1	MASUMOTO Y , Persistent hole burning in semiconductor nanocrystals. , J Lumin Vol.70, No.1/6, Page386-399 (1996.10)	40
2	SUGISAKI M, REN H-W, NAIR S V, MASUMOTO Y, NISHI K, SUGOU S, OKUNO T , Optical anisotropy in self-assembled InP quantum dots., Phys Rev B Vol.59, No.8, PageR5300-5303 (1999.02.15)	38
3	KOZIN I E, DAVYDOV V G, IGNATIEV I V, REN H-W, SUGISAKI M, MASUMOTO Y, KAVOKIN A V, MALPUECH G , KAVOKIN K V, Zero-field spin quantum beats in charged quantum dots., Phys Rev B Vol.65, No.24, Page241312.1-241312.4 (2002.06.15)	30
4	MORISHIMA S, MARUYAMA T, AKIMOTO K, TANAKA M, MASUMOTO Y, Growth of Eu Doped GaN and Electroluminescence from MIS Structure., Phys Status Solidi A Vol.176, No.1, Page113-117 (1999.11.16)	28
5	TANAKA M, MASUMOTO Y, Very weak temperature quenching in orange luminescence of ZnS:Mn ²⁺ nanocrystals in polymer., Chem Phys Lett Vol.324, No.4, Page249-254 (2000.07.07)	25
6	IKEZAWA M, MASUMOTO Y, TAKAGAHARA T, NAIR S V, Biexciton and Triexciton States in Quantum Dots in the Weak Confinement Regime., Phys Rev Lett Vol.79, No.18, Page3522-3525 (1997.11.0)	22
7	SATAKE A, MASUMOTO Y, MIYAJIMA T, ASATSUMA T, IKEDA M , Two-dimensional exciton dynamics and gain formation processes in In _x Ga _{1-x} N multiple quantum wells., Phys Rev B Vol.60, No.24, Page16660-16666 (1999.12.15)	20
8	TANAKA M, QI J, MASUMOTO Y, Comparison of energy levels of Mn ²⁺ in nanosized- and bulk-ZnS crystals., J Lumin Vol.87/89, Page472-474 (2000.05)	17
9	IGNATIEV I V, KOZIN I E, NAIR S V, REN H-W, SUGOU S, MASUMOTO Y, Carrier relaxation dynamics in InP quantum dots studied by artificial control of nonradiative losses., Phys Rev B Vol.61, No.23, Page15633-15636 (2000.06.15)	17
10	SUGISAKI M, REN H-W, NISHI K, MASUMOTO Y, Fluorescence Intermittency in Self-Assembled InP Quantum Dots., Phys Rev Lett Vol.86, No.21, Page4883-4886 (2001.05.21)	16
11	MASUMOTO Y, KAWAZOE T, MATSUURA N, Exciton-confined-phonon interaction in quantum dots., J Lumin Vol.76/77, Page189-192 (1998.02)	15
12	REN H-W, SUGOU S, SUGISAKI M, MASUMOTO Y , NISHI K, Control of InAs Self-Assembled Islands on GaAs Vicinal Surfaces by Annealing in Gas-Source Molecular Beam Epitaxy., Jpn J Appl Phys Part 1 Vol.36, No.6B, Page4118-4122 (1997.06)	14

13	REN H-W, SUGISAKI M, SUGOU S, MASUMOTO Y, NISHI K, GOMYO A , Lateral Composition Modulation Induced Optical Anisotropy in InP/GaInP Quantum Dot System., Jpn J Appl Phys Part 1 Vol.38, No.4B, Page2438-2441 (1999.04.30)	14
14	TANAKA M, MASUMOTO Y, SAWAI S, SENGOKU M, KATO M, Luminescence properties of ZnS phosphor nanocrystals prepared by the laser-induced gas-evaporation method., J Appl Phys Vol.87, No.12, Page8535-8540 (2000.06.15)	14
15	ZIMIN L, NAIR S V, MASUMOTO Y, LO Phonon Renormalization in Optically Excited CuCl Nanocrystals., Phys Rev Lett Vol.80, No.14, Page3105-3108 (1998.04.06)	13
16	NAIR S V, MASUMOTO Y, Coulomb effects in the optical spectra of highly excited semiconductor quantum dots., J Lumin Vol.87/89, Page438-440 (2000.05)	13
17	SUGISAKI M, REN H-W, NAIR S V, LEE J-S, SUGOU S, MASUMOTO Y, OKUNO T , Imaging and single dot spectroscopy of InP self-assembled quantum dots., J Lumin Vol.87/89, Page40-45 (2000.05)	12
18	MATSUMOTO T, MASUMOTO Y, NAKASHIMA S, KOSHIDA N, Luminescence from deuterium-terminated porous silicon., Thin Solid Films Vol.297, No.1/2, Page31-34 (1997.04.01)	12
19	YUGOVA I A, GERLOVIN I YA, DAVYDOV V G, IGNATIEV I V, KOZIN I E, REN H W, SUGISAKI M, SUGOU S, MASUMOTO Y, Fine structure and spin quantum beats in InP quantum dots in a magnetic field. , Phys Rev B Vol.66, No.23, Page235312.1-235312.9 (2002.12.15)	12
20	OKUNO T, MASUMOTO Y, REN H-W, SUGISAKI M, SUGOU S, NISHI K, Time-resolved luminescence of InP quantum dots in a Ga _{0.5} In _{0.5} P matrix: Carrier injection from the matrix., Phys Rev B Vol.57, No.3, Page1386-1389 (1998.01.1)	11
21	Masanori Tanaka, , Jifa Qi and Yasuaki Masumoto, Optical properties of undoped and Mn ²⁺ -doped CdS nanocrystals in polymer, JOURNAL OF CRYSTAL GROWTH 214-215(2):410-414	11
22	MULJAROV E A, ZHUKOV E A, DNEPROVSKII V S, MASUMOTO Y , Dielectrically enhanced excitons in semiconductor-insulator quantum wires: Theory and experiment., Phys Rev B Vol.62, No.11, Page7420-7432 (2000.09.15)	11

[特許リスト]

公開番号	発明の名称	発明者氏名	出願人	出願日	特許番号
H10-256225	薄膜基板の陽極化成処理方法及びフォトルミネッセンス特性をもつ半導体薄膜	松本 貴裕 越田 信義	科学技術振興事業団	97/03/07	patent family 1 件
H11-017216	発光素子材料の製造方法	松本 貴裕 田中 正規 李 定植	科学技術振興事業団	97/06/27	patent family 1 件
H11-017216	発光素子材料の製造方法	松本 貴裕 田中 正規 李 定植	科学技術振興事業団	97/06/27	patent family 1 件
H11-297624	薄膜素子及びその製造方法	松本 貴裕 セルバクマール ナリア	科学技術振興事業団	98/04/08	patent family 1 件
2000-133876	面発光レーザ装置	菅生繁男 杉崎満 任紅文	科学技術振興事業団	98/10/28	JP3415043 patent family 1 件
2000-219877	輝尽性発光素子及びその製造方法	舛本 泰章	科学技術振興事業団	99/02/02	JP3529654 patent family 1 件
2000-306674	発光薄膜及びその光デバイス	松本 貴裕 戚 継発	科学技術振興事業団	99/04/22	JP3637236 patent family 1 件
2001-074871	薄膜及びそれを用いた装置	松本 貴裕	科学技術振興事業団	99/08/31	JP3073741 patent family 1 件
2001-147160	マルチチャンネル2次元分光方法	徳永 英司	科学技術振興事業団	99/11/19	JP3568847 patent family 1 件
2001-196627	アップ・コンバージョン素子	舛本 泰章	科学技術振興事業団	00/01/17	patent family 1 件
2002-154819	酸化珪素のナノワイヤの製造方法	戚 継発 舛本 泰章	科学技術振興事業団	00/11/09	JP3571287 patent family 2 件
2002-208568	半導体への不純物ドーピング方法及びそれによって製造される半導体基板	松本 貴裕	科学技術振興事業団	01/01/11	

以上