

6-3 光デバイスにおける超高速電子制御

6-3 *Ultrafast electron control of optical device*

長谷川敦司 三森康義
Atsushi HASEGAWA and Yasuyoshi MITSUMORI

要旨

半導体量子ドット中の励起子の多体効果、及び時間応答の評価を顕微分光法とフォトンエコー法を用いて測定し、エネルギー領域から単一量子ドットの発光特性、時間領域からは励起子のラビ振動を観測する事に成功した。これらの結果は新しい量子演算デバイスを実現するために非常に大きな一歩であると予想される。

The many-body effect of the excitons in the semiconductor quantum dots is investigated in the frequency and time regions. The Rabi oscillation of the exciton in the semiconductor quantum dots is observed by the stimulated photon echo method. This is the first direct observation of the Rabi oscillation of the excitons. The signal intensity changes periodically with the excitation intensity. The sharp spectrum from the single quantum dot is also observed by the micro-photoluminescence. The existence of phonon bottleneck is clarified from the temporal shape of the photoluminescence signal. These results show that the quantum dots is one of the good candidates for the device of the quantum computation.

[キーワード]

ラビ振動, 量子ドット, フォトンエコー, フォノンボトルネック, マイクロフォトルミネッセンス
Rabi oscillation, Quantum dots, Photon echo, Phonon bottleneck, Micro-photoluminescence

1 はじめに

量子情報通信を実現するために、現在、非常に多くの理論的提案、基礎的実験などが盛んに行われている。特に新規の量子演算デバイス、qビットを実現するためには第一段階として、長いコヒーレンス時間を持ち、かつ、波動関数の重ね合わせの状態及び位相状態を制御可能な物質の探索が必要である。今回、我々のグループでは、固体でのqビットの実現性を評価するために、特に半導体量子ドットの励起子状態に着目し、その波動関数を超短パルスにより制御を行う試みを行った。半導体単一量子ドットは非常に鋭い励起子発光スペクトルが観測され、その発光特性は、原子分子の発光特性に似通ったものである事が知られている。しかし、時間領域の光学応答について依然不明の点が多い。時間

領域での光学特性が原子分子と類似性を示すか、長いコヒーレンス時間を持つか、また超短光パルスにより制御可能かと言った基本的な問題について今回我々が世界に先駆けて行った研究成果を、フォトンエコー法で得られた実験結果を元に報告する。

2 背景

まず、半導体中の励起子とその緩和過程及び背景について簡単にここで触れておく。光励起の場合、化合物半導体中の価電子帯の電子は伝導帯に遷移し、価電子帯に生成された正孔とクーロン相互作用によりお互い引き合いエネルギー的に安定した状態を形成する。このとき、正孔が陽子の役割をした水素原子に相当する状態を形成する。この状態を励起子状態と呼ぶ。励

起子は電子と正孔の重なり積分が非常に多いため、半導体中での非常に良い発光中心であり、時間領域、非線型光学効果等、多くの研究がなされてきた経緯がある。励起子状態の緩和には一般的に二種類の物がある。一つは励起子自体が消滅するエネルギー緩和若しくは分布数緩和と呼ばれるものであり、これは通常数ナノ秒程度からもう少し長い緩和時間のものである。もう一つは位相緩和と呼ばれるものである。これは励起光によって刻まれた励起子の位相が、フォノンとの衝突や励起子同士の衝突により緩和するものである。この励起子の位相緩和時間は数ピコ秒から長くても10ピコ秒程度のもので一般的であった。この緩和時間が早いという事を積極的に利用しようとした場合、例えば、フォトンエコーを用いた超高速スイッチへの利用などが考えられる。フォトンエコーについての簡単な説明は、本稿の後半部分で行う。

半導体中の励起子の位相緩和を議論する時に系の次元が非常に重要となってくる。バルクの結晶では励起子が光と結合したポラリトン状態になってしまうため、通常のフォトンエコー法などでは測定ができない。また、1次元閉じ込め系である半導体量子井戸は、層方向にはポテンシャル障壁があるため、運動が制限されるので、この方向は量子化され、位相緩和がフォトンエコーで測定が可能となる。[1][2]この半導体量子井戸構造の試料、又はこれに良く構造の似た層状化合物半導体などではこれまでに位相緩和時間が測定されているが、数ピコ秒程度の早い緩和の物が多い。この位相緩和の原因としては、励起子とフォノンの衝突による緩和、[2][3]励起子同士の衝突による緩和[1][4]などが主に決めていると考えられている。1次元閉じ込め系は層方向への自由度が残っているため、フォノンとの相互作用は比較的強くなってしまふ。これに対して、後述する量子ドットなどの3次元閉じ込め系はこのフォノンとの相互作用が制限されるため、位相緩和時間が長くなる事が予想される。2次元閉じ込め系であるが、これは量子細線と呼ばれるものなどが挙げられるが、現在までは、試料作成などの関係もあり、半導体中の励起子の位相緩和に関する研究は、主に1次元閉じ込め系について行われてきていた。

これに対して、3次元閉じ込め系である半導体量子ドット中に電子を閉じ込めた場合電子のエネルギーは完全に離散的になる。したがって、結晶中を自由に電子が動けるバルクの場合とは電子とフォノンの相互作用は大きく異なり、電子とフォノンとの衝突確率は著しく減少する(フォノン・ボトルネック)ことが予想される[5][6]。その結果、励起状態の非輻射過程は無視できる程になり、励起状態の寿命は輻射過程によって決められると考えられる[7][8]。このことは半導体量子ドット中では励起状態が長時間持続することを意味し、レーザー発振に必要な反転分布が実現しやすいと考えられる。したがって、半導体量子ドットは低閾値、高効率のレーザー材として非常に有望視されている。また、レーザー光により半導体量子ドット中にコヒーレントに作成された電子分極の位相情報はフォノンとの衝突による過程が凍結されているために長時間保持されるはずである[9][10]。このように励起子の位相を制御することは、量子コンピューティングを行う画期的な材料になるのではないかと多くの研究者が期待している。

3 単一量子ドットの発光特性

半導体量子ドットであるGaAs量子ドットにおいて電子準位、特に励起子準位の線幅が十分に狭いこと、フォノンボトルネックがあることを示すことにする。

まず、液滴エピタキシー法で作成したGaAs/Al_{0.4}Ga_{0.6}As量子ドット(ドット径~15nm、密度~10⁹cm⁻²)からの微小領域(1μm以下)からの発光(μPL)を調べることから始める。図1にこの試料からの発光スペクトルを示す。横軸は光のエネルギーであり、縦軸はその波長での放出光の明るさを示している。左図は広い空間領域からの発光を集めた通常のPLスペクトルである。1.9eVより高エネルギー側はAlGaAs障壁層からの発光であり、1.7eV付近にある幅広い発光バンドが量子ドット中の励起子からの発光である。作成された量子ドットのサイズが均一でないため、閉じ込めエネルギーが少しずつ異なる励起子からの発光をすべて観測しているので、量子ドットからの発光スペクトル幅は単一量子

ドットからの発光線の幅に比べるとかなり広くなっていると思われる(不均一広がり)。

を増すにつれ、0.8meV 低エネルギー側に新たなピークが現れ、高エネルギー側の発光線をしの

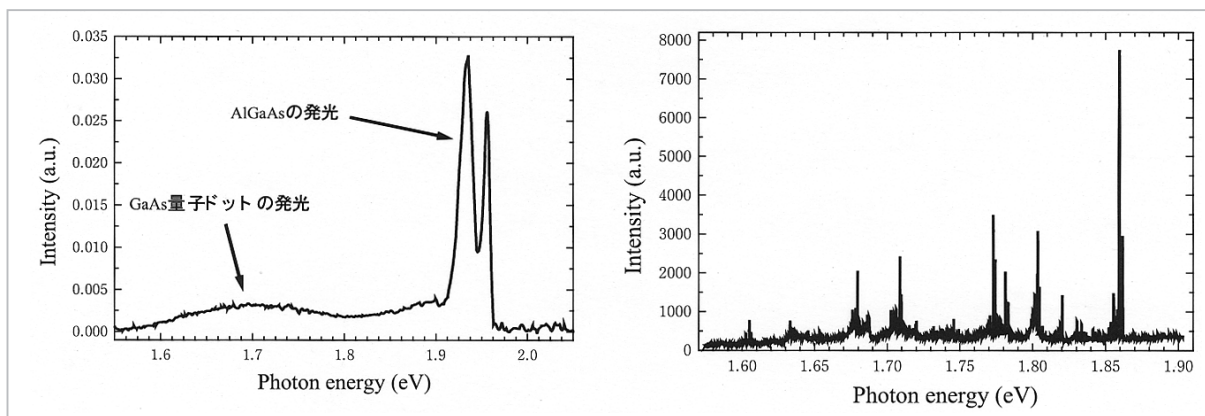


図1 GaAs/Al_{0.4}Ga_{0.6}As 量子ドットの発光スペクトル(右)、顕微鏡発光スペクトル(左)

たくさんの量子ドットからの発光の重ねあわせによってスペクトル幅が広がっている系(不均一広がり系)において単一の量子ドットからの発光を観測する方法としては観測する領域を狭めることである。すると、その領域にある量子ドットの数が減り、発光の重ねあわせがなくなり個々の量子ドットの発光が観測できるようになる。この測定に使用している試料の量子ドットの密度は $\sim 10^6 \text{cm}^{-2}$ であるから、 $1 \mu\text{m}^2$ の領域には10個程度の量子ドットしか含まれないので、この程度の領域からの発光を観測すれば単一量子ドットからの発光を観測できることになる。ここでは、微小領域からの発光のみを見るために、顕微鏡を用いて $1 \mu\text{m}$ 程度の領域からの発光を集めた。その結果が右図に示してある。 $1 \mu\text{m}$ 程度の領域からの発光を集めた場合には個々の量子ドットからの発光を反映してスペクトルは鋭い発光ピークの集合に変化している。GaAsバルク結晶中の励起子のエネルギー(1.515eV)よりはるかに高エネルギー側に鋭い発光線の集合が観測されるこのデータはこの試料でGaAsドットが実際に存在していることを示している。個々の発光線のスペクトル幅は測定系の分解能(0.2meV)以下であり、GaAs量子ドット中の励起子単位の幅は予想通り十分狭いことが判明した。

励起に使用しているレーザー光の強度を増していくと量子ドットからの発光スペクトルは大きく変化する。一例を図2に示す。弱励起では1.8112eV付近に発光線が観測されるが、励起強度

ぐよようになる。さらに励起強度を増していくと $\sim 25 \text{meV}$ 高エネルギー側に新たな発光線群が出現する。この振る舞いは量子ドットの電子構造がシェル構造を取っていること及び一つのドット内に生成した複数の励起子間に多体的な相互作用があることを考慮すると解釈できる[11]。図2の例では、最低エネルギーのシェルであるSシェルに電子、正孔ともいる励起子が1個存在し、電子・正孔が再結合する際に放出する発光が1.8112eV付近の発光ピークである。励起光の強度が十分に弱い状況では、量子ドット内に注入される電子・正孔は平均として1個以下であり、1.8112eVの発光線のみが現れることとなる。徐々に励起光を強くすると、ドット内部のキャリアの数が2個存在する状況が許されることになる。この時の最低エネルギー状態はSシェルに励起子が2個占有する状態であり、多体効果によりエネルギー的に安定化した2励起子状態が形成される。この状態からの光放出は、安定化した2励起子状態から1励起子状態への光遷移とみなされるため、発光線は1励起子発光線から、安定化エネルギーの分だけ低エネルギー側へシフトすることとなる。0.8meV低エネルギー側の発光ピークは、このような2励起子状態からの光遷移を反映している。励起強度を更に増し、量子ドット内のキャリアの数を増加していくと、 $\sim 25 \text{meV}$ 高エネルギー側に新たな発光線が出現する。このことから、次のシェルである(正孔の)PシェルはSシェルより $\sim 25 \text{meV}$ エネルギーの高

いところにあることが分かる。さらに励起強度を増した実験より、電子のPシェルはSシェルより $\sim 80\text{meV}$ エネルギーの高いところにあることが判明した。

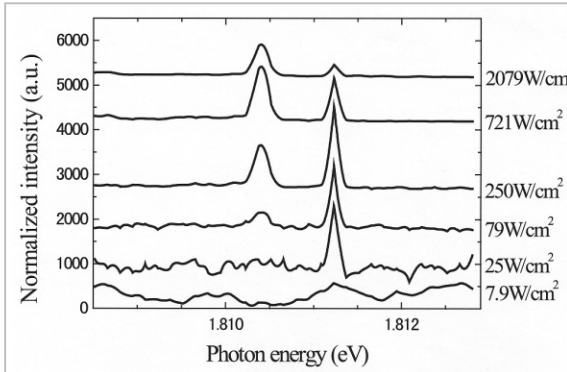


図2 GaAs/Al_{0.4}Ga_{0.6}As量子ドットの顕微発光スペクトルの強度依存性

GaAs量子ドット系にフォノン・ボトルネックがあることは単一量子ドットの発光スペクトル線が非常に狭いことから予想できるが、発光の時間的な発展を測定することにより直接観測することができる。図3にGaAs/AlGaAs量子ドット(ドット径15nm、密度 $\sim 10^{10}\text{cm}^{-2}$)からの発光の時間発展を示す。上の図は励起に用いたパルスレーザーのエネルギーと発光の時間発展を測定するエネルギーの位置関係を示している。励起エネルギーは $\sim 1.75\text{eV}$ であり、正孔のS/Pシェルのエネルギー差(a)、LOフォノンのエネルギー(b)、電子のS/Pシェルのエネルギー差(c)分だけ下のエネルギーの発光に対して時間発展を測定している。下図にそれぞれのエネルギー位置における発光の時間発展を示してある。共鳴ラマン過程に相当する(b)は時間分解能($\sim 10\text{ps}$)程度で立ち上がり、その後減衰しているが、PシェルからSシェルへ遷移する過程である(a)、(c)は明らかに立ち上がりが遅くなっている(数10ps)。このことは、Pシェル励起子を励起しても、Sシェル励起子にエネルギー緩和するのにちょうどよいエネルギーのフォノンがないため緩和できず、他の複雑な過程でエネルギー緩和をしなければならなので時間がかかることを示している。したがって、この結果はこの系にフォノン・ボトルネックが存在することの直接的な証拠となっている。

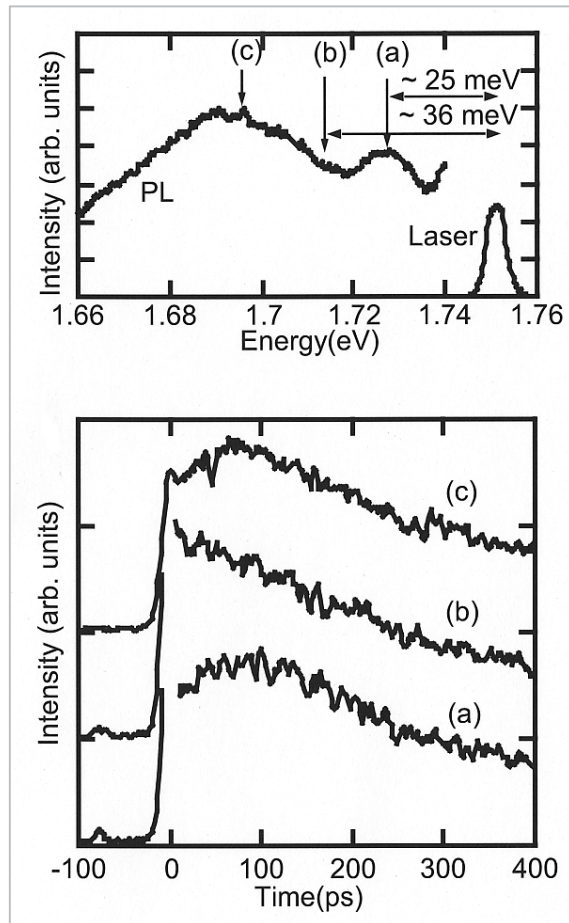


図3 GaAs/AlGaAs量子ドットの発光スペクトル(上)と発光の時間発展(下)

4 量子ドット中の励起子のコヒーレンス時間とその光学応答

GaAs量子ドット系ではフォノン・ボトルネック効果により、励起子線のスペクトル幅は非常に狭いことが確認できたが、このことは励起子分極の位相が長時間壊されないことを意味している。時間領域から直接このことを確かめるためにはパルスレーザーを用いたコヒーレント分光法であるフォトンエコー法を使うのが最も有効である[12]。この方法では図4に示すようにパルスレーザー光を三つに分け、 k_1 、 k_2 、 k_3 の方向から試料に入射させる。1番目のパルスと2番目のパルスで作られた励起子分極が干渉して物質上に干渉縞が作られ、それにより3番目のパルスが回折される。この際に、1番目のパルスと2番目のパルスを時間 τ だけずらして入射させて、 τ だけ時間が経っても励起子分極は干渉できるのかを3番目のパルスがどの程度回折されるかで調べ

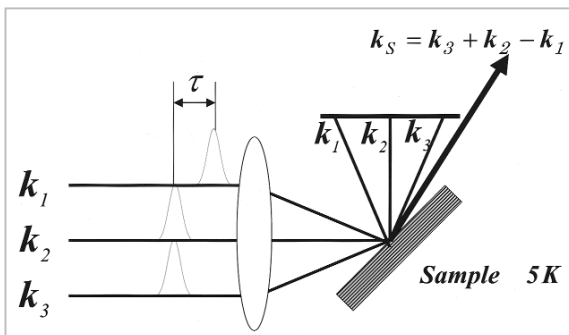


図4 フォトンエコー法の概念図

る方法である。励起子分極の位相が壊れない間は干渉縞ができるのでこの方法で励起子分極の位相緩和情報が取得できるのである。

量子ドット中の励起子に対するフォトンエコー法の結果を図5に示す。ここではGaAs (11nm) / AlGaAs量子井戸の界面揺動によって作られたアイランド構造をGaAs量子ドットとして使った。この試料のアイランド構造が量子ドットとして機能していることはμ PLの測定で離散スペクトルが観測できることによって確かめた。時間のゼロ点付近に早い減衰が観測されるが、その後は減衰時間～1nsで非常にゆっくりと減衰している。したがって、この系の位相緩和時間は1ns程度であることと結論できる。通常の量子井戸の励起子の位相緩和時間は1ps程度であるのでそれから比べると量子ドット内の励起子の位相緩和は極端に長いことが分かる。この減衰時間から単一量子ドット中の励起子準位のスペクトル幅は～1μeVと見積もれ、非常に狭いことが判明した。時間のゼロ点付近の早い減衰に関しては幾つかの機構が考えられるが現段階で

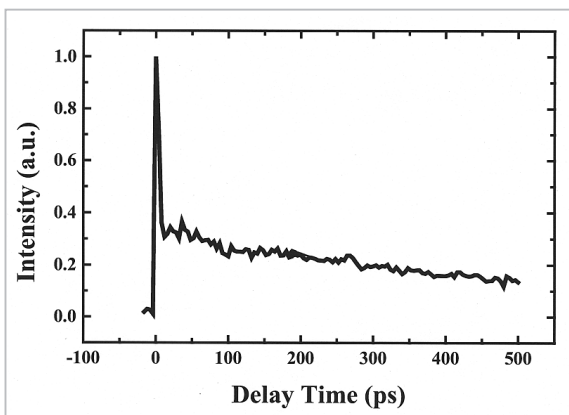


図5 GaAs/AlGaAs量子ドット中の励起子に対するフォトンエコー法の測定結果

はまだ確定していない。同様な結果はGaAs (9nm) / AlGaAs量子井戸中のアイランド構造に捕まった励起子に対しても得られた。

図5に示したフォトンエコーの測定の際に、1番目のパルスと2番目のパルスの時間差τをフォトンエコーの遅い減衰が観測される適当な時間に固定して、1、2、3番目のパルスの強度を変化させて見るとフォトンエコーの信号強度が大きく変化することが判明した。その結果を示したのが図6である。励起強度の増加に伴いエコー強度は振動的に大きくなったり、小さくなったりしている。この振る舞いはレーザー光との相互作用により量子系の二つの準位間を励起が行ったり来たりする現象であるラビ振動を考えると理解できる[13]。図6の結果は結晶の基底状態と励起子状態の二つの準位間のラビ振動である励起子のラビ振動を観測していると考えられる。通常、位相緩和時間が非常に短いためと強励起においてはk空間のΓ点以外のkからも電子遷移が始まるため[14]、固体中でラビ振動を明瞭に観測するのは難しいが、励起子の位相緩和時間～1nsと極端に長い我々の量子ドット中では比較的弱い励起強度でもラビ振動が観測できている。ラビ振動は量子コンピューティングの基本操作であるqビットの位相シフトを行うための必須の現象であるので、図5,6は量子ドットが量子コンピューティングの論理回路構成材料として有望であることを示すデータとなっている。

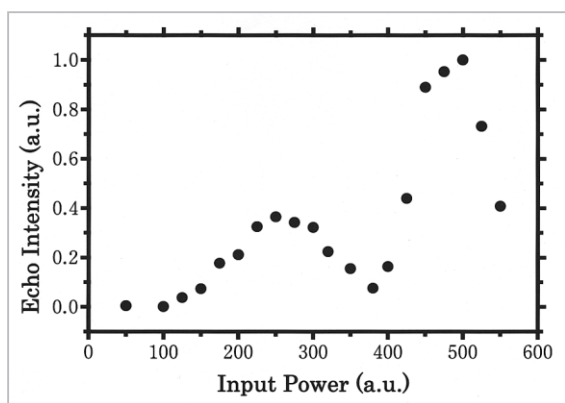


図6 GaAs/AlGaAs量子ドット中の励起子フォトンエコー強度の入射強度依存性

5 まとめ

GaAs量子ドットにおいて電子準位、特に励起子準位の線幅が十分に狭いこと、レーザー光で作成された励起子分極の位相が1ns以上も保持すること及び励起子のラビ振動が観測できることを示した。GaAs量子ドットにおいては、フォノン・ボトルネック効果により励起子とフォノン

との衝突過程が凍結されて、励起子の位相が長時間保持されることがこれらの結果が観測できる原因であることを示した。今回の結果から、GaAs量子ドットが低閾値、高効率のレーザー材として有望であるだけでなく、量子コンピューティングを行う材料としても有望であることも判明した。

参考文献

- 1 L.Schultheis, J.Kuhl, A.Honold, and C.W. Tu, Phys. Rev. Lett. 57 (1986) 1797.
- 2 F. Minami, A. Hasegawa, S. Asaka, and K. Inoue, J. Lumin, 45 (1990) 409.
- 3 T. Takagawara, Phys. Rev. B32 (1985) 7013.
- 4 A.Honold, L. Schultheis, J. Kuhl, and C.W. Tu, Phys. Rev. B40 (1989) 6442.
- 5 U.Bocklmann and G.Bastard, Phys. Rev. B42 (1990) 8947.
- 6 H.Benisty, C.M.Sotomayor-Torres and C.Weisbuch, Phys. Rev.B44 (1991) 10945.
- 7 D.Gammon, Science 273 (1996) 87.
- 8 Xudong Fan, T.Takagawara, J.E.Cunningham and Hailin Wang, Solid State Commun.108 (1998) 857.
- 9 E.Biolatti, R.C.Iotti, P.Zanardi and F.Rossi, Phys. Rev. Lett. 85 (2000) 5647.
- 10 P.Chen, C.Piermarocchi and L.J.Sham, Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 67401.
- 11 M.Bayer, O.Stern, P.Hawrylak, S.Fafard and A.Forchel, Nature 405 (200) 923.
- 12 J.Shah, Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures (Springer, Berlin, 1996).
- 13 L.Allen and J.H.Eberly, Optical Resonance and Two-Level Atoms (Dover, New York, 1975).
- 14 I. Abram, Phys. Rev.B40 (1989) 5460.



はせがわなつし
長谷川敦司

基礎先端部門量子情報技術グループ主任研究員 博士(理学)
レーザー非線形分光学



みそりやすよし
三森康義

基礎先端部門量子情報技術グループ専攻研究員 博士(理学)
レーザー非線形分光学