

## 単一自己形成量子ドットのコヒーレント制御

### Coherent optical control of excitons in single self-assembled quantum dots

研究代表者 北海道大学 大学院工学研究科 助教授 戸田泰則

Department of Applied Physics, Hokkaido University  
Yasunori TODA

Using single dot spectroscopy, we have performed coherent excitation of excitons in self-assembled quantum dots (QDs). A pair of coherent pulses allows measurement of the temporal coherence of the carrier wavefunction in single QDs. The observed decoherence time is about 15 ps, and is well explained by resonant Raman scattering of phonons. Furthermore, quantum beats originating from the superposition of two closely spaced coherent states have been observed. This opens up possibilities of quantum mechanical control of the carrier wavefunction in self-assembled QDs.

## 1 研究目的

物質中の電子の位相は系の時間発展を決定する重要な量の一つである。半導体中の励起子遷移の位相緩和は数百フェムト秒のオーダーであるが、離散化した電子状態を持つ0次元系量子ドット (QD) 構造においては電子の散乱確率が減少するので増大する。このことは電子の位相が長時間にわたって記憶されることを意味し、コヒーレンスが保持されている状態、すなわちコヒーレント状態と見なすことができる。このようなQDの長いコヒーレント状態を利用して、超短パルス光を用いた量子力学的位相制御が可能となる。QDにおけるコヒーレント制御は全光スイッチングや量子コンピューティング等、新しい量子相関デバイスに直結する可能性がもたれる。

他方、結晶性がよく、閉じ込めの大きさが数ナノメートルのオーダーをもつQDの作成は、自発的な成長過程を利用した自己形成QDにおいて実現されるようになった。しかしながら自己形成QDにおけるコヒーレンスを正確に見積るためには、寸法や組成のばらつきを排除する必要がある。これは近年の光プローブ技術を用いた近接場分光 (SNOM) により達成される。この単一QD分光を時間領域に発展させることにより、ドット内電子のキャリアダイナミクスに関する知見を得ると

ともに、これを発展させてコヒーレント制御デバイスへと発展させるのが本研究の目標である。

## 2 研究経過

### 2.1 フォノンイメージング

QDの閉じ込めに由来する光物性を調べるためには、QDの寸法に即した観測技術が必要である。この理由は、閉じ込め構造の体積が小さくなるほど、閉じ込めの大きさや周囲の環境の変化による振動が大きくなるためである。従来の巨視的な光学測定では、この振動による不均一広がりのため、QD本来の光学的性質が隠されてしまう。これに対して本研究で用いているSNOMは個々のQDにアクセス可能であり、閉じ込めを反映した狭い線幅をもつ発光が観測される。したがって発光スペクトルを利用することで、より精密な測定が可能となる。さらにSNOMイメージングでは、QDを通して周囲の局所的な光物性を検出することが可能となる。これは局所的なセンサー、いわばナノセンサーというべき役割をもつ。

QDの0次元性を利用することで、QDの周囲に熱浴として存在する格子場のイメージングが可能となる。QDのキャリアと光学フォノンの相互作用

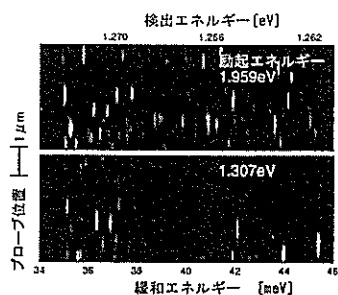


図 1: 異なる励起エネルギーにおける同一場所の発光スペクトル像. 緩和エネルギー (励起エネルギーと検出エネルギーの差) が 36meV に位置する QD は発光に寄与している様子が観測される.

は、光学フォノンのエネルギー分散が小さいため、キャリアの緩和に大きな寄与は無いと考えられていた。しかしながら自己形成 QD では、その良質なヘテロ界面の存在と、非常に大きな閉じ込めの存在のために、周囲にあるフォノンとの結合が強まる。この様子は SNOM 像によって明らかとなる。図 1 に励起エネルギーの異なる二つの SNOM スペクトル像を示す。緩和エネルギー 36meV 付近に存在するすべての QD が共鳴的に発光している様子が確認される。これは GaAs の縦光学フォノンのエネルギーに相当し、この領域に存在するすべての QD に対して共鳴していることからフォノンとキャリアの強い結合が示唆される。

## 2.2 コヒーレント励起分光

前述の結果にもとづき、フォノンを選択的に励起することでキャリア状態を変化させることが可能であることが理解された。我々はさらに時空間に制御された近接場光の発生を試み、フォノン共鳴を利用した単一 QD の位相観測を試みた。実験系を図 2(a) に示す。光源にはモードロックチタンサファイアレーザーを用いる。パルス幅、エネルギーはグレーティングペアを用いた 4f 光学系において決定される。マイケルソン干渉計によりパルス列にされた後、ファイバに集光される。ファイバの分散による光パルスの広がりの影響を考慮し、今回の測定では時間分解能を 1ps 程度に設定している。パルス列の間隔はキャリアの励起時間差に対応しており、ひとつめのパルスで励起されたキャリアがその位相を保持していれば、二つめ

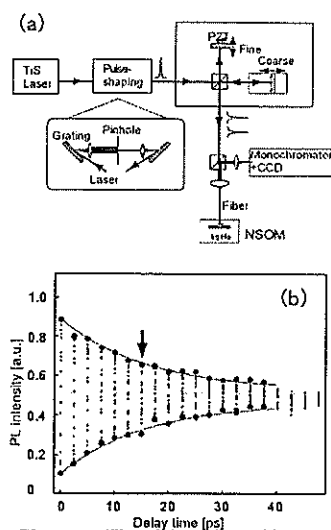


図 2: (a) 実験系 (b) コヒーレント励起スペクトル. PL 干渉 (○) の振幅 (●) を遅延時間に対してプロットした.

のパルスで励起されたキャリアとの間に干渉を生じる。図 2(b) に示すのは緩和エネルギー 50meV あたりに位置する共鳴ピークに対して得られた干渉信号である。パルスの位相緩和 ( $\sim 1ps$ ) に比べ、共鳴における位相は長い時間保持されている様子が確認できる。その振幅の減衰から位相緩和が見積もられ、およそ 15ps であることがわかった。この位相緩和時間は光学フォノンの緩和時間にはほぼ対応していると考えられる。すなわち QD キャリアの効率的な緩和は、光学フォノン緩和が支配的であることに起因すると考えられる。

次に異なる二つの共鳴を同時に励起することにより、QD の励起緩和過程における量子干渉を観測した。結果を図 3 に示す。二つの独立した量子状態を一つのパルスで励起することにより、ヤングのスリット実験に類似的な量子干渉を観測することが可能となる。その結果、前述の位相緩和に重畳して、共鳴のエネルギー差に相当する干渉信号が得られる。この結果から QD におけるコヒーレント制御の可能性が強く示唆される。

## 2.3 励起共鳴の均一幅評価

共鳴の位相緩和の起源をより詳細に調べるため、これら単一 QD 発光の励起共鳴の励起強度依存性について測定を行った。位相緩和の起源を同

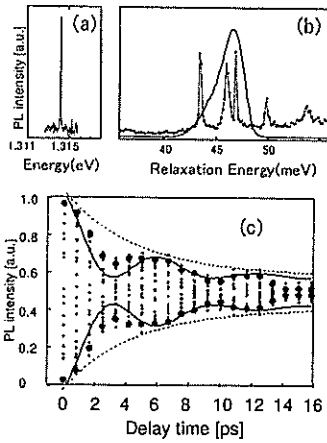


図 3: 単一 QD の PL(a)PLE(b) スペクトル. (b) の太線は励起パルスのスペクトルを示している. (c) はそのときのコヒーレント励起スペクトル.

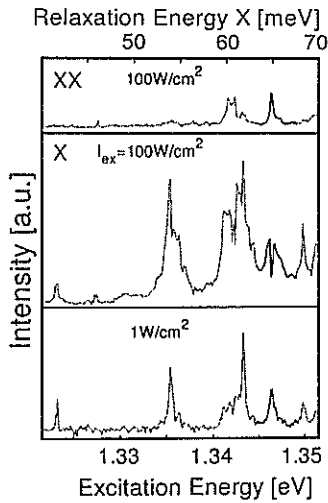


図 4: 異なる励起強度に対する単一 QD の PLE スペクトル. X は励起子基底準位発光に対応し、XX は励起子分子の発光で検出している

定し、制御することが可能になれば、より長い時間に渡って位相を保持する状態を生成することが可能になると考えられる。図 4 は励起強度を変化させたときの励起発光 (PLE) スペクトルに見られる共鳴ピークの変化を示している。共鳴の線幅が ( $\Delta\nu < \sim 1\text{meV}$ ) でばらついており、細かな構造が重畳している様子が確認できる。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ディップへと変化する。図ではディップへと変化するピークを強調した形で示している。また

対応する励起子分子 PL ピークの PLE スペクトル (XX) では、同じ励起エネルギーにおいて共鳴ピークを持つ。強励起におけるディップの線幅は約  $300\mu\text{eV}$  でありこれは励起子分子の PLE 共鳴の線幅とよい一致を示す。したがって、この特異な形状変化は単一 QD の PLE 共鳴が不均一広がりを含むことが理解される。共鳴における実準位では、励起子分子を効率的に生成し、その結果基底準位発光 (X) では一種の透明化が発生する。その結果 PLE スペクトルの共鳴ピークにディップが生成されると考えられる。

さらに我々は、二色励起の PLE スペクトル観測を行い、不均一広がりの除去された共鳴ピークを評価することに成功した。図 5(a) は He-Ne レーザーを重畳して得た PLE スペクトルである。He-Ne レーザーによってフォノンとの相互作用と連続状態の寄与が低減され、実準位のみが PLE 信号に寄与することになる。これから見積もられる線幅は、ほぼレーザーの線幅で決定されており、より長い位相緩和を保持できる状態が作り出されていると予想される。

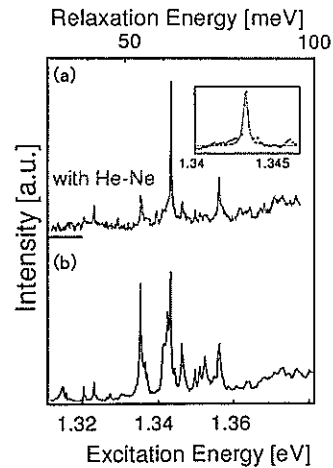


図 5: (b) 単一 QD の PLE スペクトル. (a) は He-Ne レーザーを重畳して検出しており、(b) と比較して不均一広がりや細かい共鳴構造が抑圧されている様子がわかる。内挿図は共鳴の一つを拡大したもの。

### 3 研究成果

SNOM とフェムト秒パルスレーザを組み合わせることにより時空間的にコヒーレンスの制御され

た近接場光を作り出すことに成功した。この測定系を用いることにより SK モードで作成された単一自己形成 QD の励起共鳴の位相緩和を観測し、その緩和時間について解釈を与えることができた。また二重共鳴線を同時に励起することによって、量子干渉が観測され、QD における量子状態制御の可能性を示した。

dots. Y. Toda, T. Sugimoto, M. Nishioka,  
and Y. Arakawa (投稿準備中)

## 4 今後の課題と発展

本研究では励起キャリアの位相を近接場パルス光を使うことで時間的、空間的に制御することを試みた。結果は本提案の妥当性を示すものであったが、実際のデバイス応用へと発展させるためには、より長い時間に渡って位相を保持する状態を作り出すことが必要である。2.3 項に示す様に、ひとつの方法として、多体相互作用による緩和経路を低減した二色励起の励起共鳴を試み、共鳴線幅として良好な結果を得ることができた。また別の可能性として、キャリアのみでなく励起キャリアと強く結合したフォノンを制御することで、新しい量子状態制御を実現することを現在試行中である。

## 5 発表論文リスト

1. Near-field coherent excitation spectroscopy of InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots. Y. Toda, T. Sugimoto, M. Nishioka, Y. Arakawa *Applied Physics Letters*, 2000, 76, 3887
2. Near-field spectroscopy of a single InGaAs self-assembled quantum dots. Y. Toda, and Y. Arakawa *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum electronics*, 2000, 6, 528
3. Many body effects in single self-assembled quantum dots observed by near-field photoluminescence excitation spectroscopy. Y. Toda, T. Sugimoto, S. Ishida, M. Nishioka, and Y. Arakawa (投稿準備中)
4. Quantum interference due to continuum states in single self-assembled quantum