

平成22年 5月21日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20740168

研究課題名（和文） 半導体量子ドットにおける多光波混合による位相緩和抑制制御

研究課題名（英文） Suppression of dephasing effect in semiconductor quantum dots using a multi-wave mixing technique

研究代表者

三森 康義 (MITSUMORI YASUYOSHI)

東北大学・電気通信研究所・助教

研究者番号：70375153

研究成果の概要（和文）：半導体量子ドット中の励起子の人為的な位相緩和抑制制御の実現に向けて、多光波混合の手法を用いて実験的研究を行った。位相緩和抑制制御パルスを量子ドットに照射すると大幅な位相緩和時間の伸長を観測した。この位相緩和時間の変化を特定するために光学応答を詳細に調べた結果、量子ドット内に局所電場が発生していることが判明した。この局所電場効果を考慮することで、制御パルスによる位相緩和時間の変化を定性的に理解できる結果を得た。

研究成果の概要（英文）：Possibility of suppression of the dephasing effect in the semiconductor quantum dots was studied by a multi-wave mixing technique. The suppression effect of the coherence relaxation was observed under the irradiation of the control optical pulse to inhibit the dephasing effect. To study the origin of the suppression effect, we carefully investigated the optical response of the quantum dots and found the presence of the local field inside the quantum dots. The observed suppression effect can be qualitatively explained by the local field effect.

交付額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|---------|-----------|
| 2008年度 | 1,600,000 | 480,000 | 2,080,000 |
| 2009年度 | 1,700,000 | 510,000 | 2,210,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,300,000 | 990,000 | 4,290,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：光物性、量子ドット

1. 研究開始当初の背景

半導体量子ドットはエネルギーギャップの大きな半導体中にギャップの小さいナノメートルサイズの半導体を結晶成長させた場合に形成される。このようなナノ空間中に電

子を生成または注入すると、電子の波動関数の空間的広がりが閉じ込めのサイズと同程度になり、電子は3次元的な閉じ込めポテンシャルを感じ、エネルギー状態が離散的状態を示すようになる。この離散的エネルギー状

態により、量子ドットの電子-フォノン相互作用、光学応答はバルク、量子井戸のものとは異なった振る舞いを示す。特に電子-フォノン相互作用は電子状態が離散化されたことにより著しく制限される(フォノンボトルネック効果)。これは電子状態の離散化により、エネルギーが小さい音響フォノンによる電子散乱の散乱先の状態数が極端に減少することにより生じる。このため半導体量子ドット中の量子状態(励起子状態)の発光・吸収スペクトルは固体にも関わらず非常に細く、また非常に長い位相緩和時間(T_2)を示す。また、量子ドット中の励起子状態は光と強く結合し、離散化したエネルギー状態が理想的な2準位系として機能すると期待され、今現在盛んに研究が進んでいる量子情報処理、量子計算機等を実現する新規の量子論的固体デバイス(固体量子ビット)の候補として提案されている。しかし半導体量子ドット中の励起子状態の位相緩和時間は長いとは言え約2ns程度であり、量子ビットとして提案されている他の物理系(例えば半導体中の核スピン:数百 μ s~数百ms)に比べ非常に短い。また極低温下(4K)においても、位相緩和時間で決まる均一幅がエネルギー緩和時間(T_1)で決まる自然幅まで細くなっておらず($T_2 < 2T_1$)、依然として音響フォノンとの相互作用が生じている可能性がある。このため、半導体量子ドット中の励起子状態を量子ビットとして機能させるためには何らかの方法によって、より長い位相緩和時間の確保することが望まれており、研究開始当時においては人為的に位相緩和を抑制し、少なくとも $T_2 = 2T_1$ を実現することが短期的な大きな目標の1つであった。

2. 研究の目的

本研究ではこの短期的な目標を達成するために量子情報理論で提唱されている人為的位相緩和抑制法であるバンバンコントロール法とその拡張版である多光波混合による位相緩和抑制法に着目し、通常四光波混合分光法に更に位相緩和抑制制御パルスを導入して、量子ドット中の励起子の位相緩和過程の変化を直接時間軸から観測を行い、半導体量子ドット中の励起子において、 $T_2 = 2T_1$ の実現の可能性を探ることを目的とした。

3. 研究の方法

多光波混合を用いた量子ドットにおける位相緩和抑制実験は、図1に示す四光波混合の実験系に第1パルスと同軸入射の位相緩和抑制制御パルスを導入し、制御パルスの強度を変化させ、四光波混合の減衰形状(減衰時間)に与える影響を調べることで行った。本研究では図1の実験系を基本に、制御パルスの励起強度依存性を測定し、 $T_2 = 2T_1$ の実現

の可能性を探った。試料となる量子ドットは、III-V族歪誘起型量子ドット(SKドット)であるInAlGaAs/AlGaAs量子ドットを温度4.2Kに冷却し、実験を行った。また、励起光源はピコ秒チタンサファイアレーザーを用いた。

4. 研究成果

半導体量子ドット中の励起子の位相緩和抑制制御を多光波混合の手法で実現するために、まず研究の初期段階で試料の量子ドットの基礎特性の測定を行った。具体的には以下の2項目について行った。

(1) ポンプ-プローブ法による位相緩和時間の上限となるエネルギー緩和時間(T_1)の測定とパルス面積の算出の基となるダイポールモーメントの評価。

(2) 2パルス四光波混合による位相緩和時間(T_2)の励起強度依存性の測定とラビ振動の観測によるダイポールモーメントの評価。

試料として用いた量子ドットの4.2K下における位相緩和時間は2パルス四光波混合により評価を行い、 $T_2 = 2.6$ ns と評価された。一方、ポンプ-プローブ法で評価したエネルギー緩和時間は $T_1 = 2.2$ ns であり、 $T_2 < 2T_1$ であることを確認し、位相緩和抑制制御実験に適した試料であることを確認した。位相緩和時間は励起強度に依存せず、一定であったため、位相緩和過程の中に励起子-励起子散乱の過程が含まれていないことを確認した。四光波混合で観測したラビ振動から算出されるダイポールモーメントの大きさは(1)のエネルギー緩和時間から評価した値と良く一致する結果を得、パルス面積の評価が正しく行われていることを確認した。

基礎特性評価を行った試料について多光波混合による位相緩和抑制制御の実験を行った結果を図2に示す。制御パルスは図1の実験系と同じ配置で試料に入射している。また、第1パルスと制御パルス間の遅延時間は600 psに設定している。四光波混合信号の減衰時間は、制御パルスが入射していな

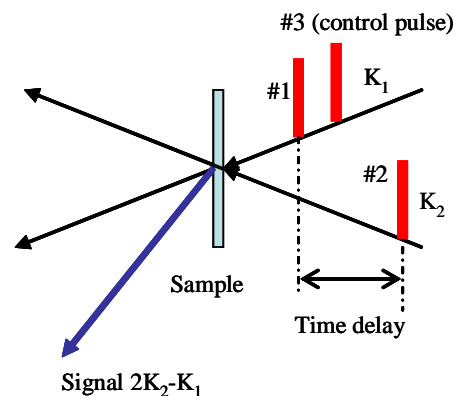


図1：多光波混合の実験系の概念図

い場合 ($\theta_c = 0$)、指数関数的減衰を示すが、制御パルスが入射されると、その後の減衰時間は大きく変化することが判明し、制御パルスによる顕著な減衰時間の変化が観測された。制御パルスのパルス面積が $\theta_c < \pi/2$ の領域では位相緩和時間が早まり、 $\pi/2 < \theta_c < \pi$ の領域では極端に遅くなる傾向が観測された。また、 $\pi/2 < \theta_c < \pi$ の領域では、位相緩和時間がエネルギー緩和時間で決まる上限 ($2T_1$) 近くまで伸長する結果を得た。

バンバンコントロール法の理論によると1回の制御パルスの照射で位相緩和が抑制される継続時間はおよそフォノン系と電子系との相関時間に相当すると予測されている。一方、今回の実験結果では1回の照射でエネルギー緩和時間に達するほどの位相緩和の抑制効果が観測されている。この位相緩和抑制効果の継続時間の違いは、量子ドット中の励起子の位相緩和過程には音響フォノンによる散乱過程以外に、他の物理的な要因が内在している事を強く示唆する結果である。

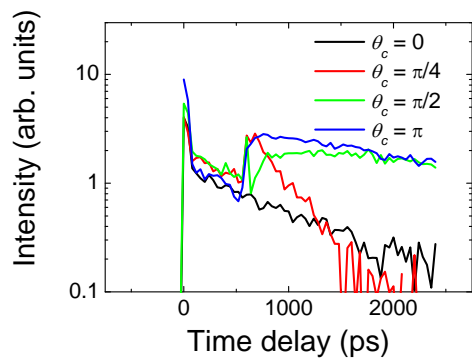


図2：四光波混合信号の減衰形状の制御パルスのパルス面積依存性

観測された位相緩和時間の伸長効果の物理的要因を特定するために、四光波混合法によるラビ振動の形状の励起パルス時間幅依存性の測定を詳細に行った。ラビ振動の形状はパルス時間幅に敏感であり、特に長い時間幅のパルスによる励起を行うと、ラビ振動の形状が一般的に観測されている減衰振動とは異なり、パルス面積の増加に伴い振幅が大きくなる結果を得た[図3]。この振動構造は、2準位系の離調効果に類似した形状であり、個々の量子ドット中の励起子遷移エネルギーが励起光の強度によって変化していることを示唆する結果であった。このため励起子の遷移エネルギーが励起子分布数差により変調する量子ドット内の局所電場効果を考慮に入れ、数値解析を行った結果、観測したラビ振動の形状と良く一致する結果を得た[図3]。局所電場の大きさは量子ドットの体積とダイポール

モーメントの大きさに依存することが理論的に指摘されており、数値解析内では基礎特性で評価されたダイポールモーメントの値と量子ドットのAFM像から求めた平均的な量子ドットの体積を使用した。このため数値計算で得られたラビ振動は、定性的だけでなく定量的にも実験結果を良く再現していると考えられる。この数値解析の結果により、量子ドット内では局所電場が発生し、その影響が光学応答に寄与していることが判明した。

この量子ドット内の局所電場効果は、先述の様に励起子の励起密度(分布数差)に依存する励起子遷移エネルギーシフトを生むことから位相緩和過程にも影響を及ぼしていると考えられる。量子ドットの局所電場効果を考慮すると、励起レーザー光の空間的強度分布の影響を排除できない巨視的測定法においては励起光の中心部分で強励起された励起子分極と周辺部分で弱励起された励起子分極間でエネルギー緩和に伴う位相差が生じ、これが原因となる位相緩和が新たに緩和過程に加わると考えられる。つまり、半導体量子ドットにおける巨視的測定法である四光波混合信号の減衰時間は音響フォノンによる散乱過程のほかに、局所電場効果による励起子遷移エネルギーシフトに起因する位相緩和過程が含まれていると考えられる。このことにより、多光波混合の実験における制御パルスは励起密度によって局所電場効果による励起子遷移エネルギーシフトの大きさ、つまり励起光の空間的強度分布に起因する励起子分極間の位相差を補正することにより、位相緩和時間の抑制を実現していると理解することができる。

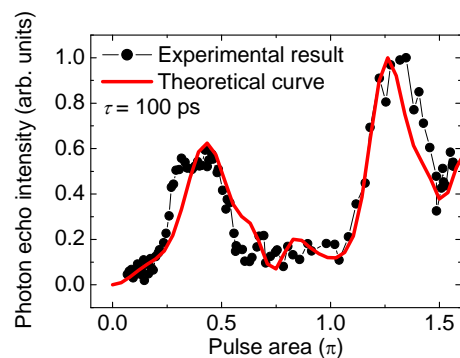


図3：四光波混合法で測定したラビ振動の形状と局所電場効果を取り入れた数値解析結果

本研究課題においては、量子ドットの位相緩和時間の抑制制御を目的に多光波混合の実験を行い、四光波混合信号の減衰時間の大幅な伸長を観測した。量子ドットの位相緩和過程がフォノン散乱による効果だけでなく、量

量子ドット内の局所電場による効果も寄与しているという重要な知見を得た。また、量子ドット内の局所電場効果に関する実験的研究での定量的考察は、本研究課題が初めてであり、非常に学術的に意味のある結果であると考えられる。今後は、図2の実験結果の数値解析による考察を行い、フォノン散乱の寄与も含めたより深い量子ドットの位相緩和過程の解明を行う必要があると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

① Y. Mitsumori, N. Kato, H. Kosaka, K. Edamatsu, N. Yamamoto, K. Akahane, "Time-resolved photoinduced Kerr rotation in semiconductor microcavity" *physica status solidi (c)* **6**, 292-295 (2009) (査読有)

[学会発表] (計14件)

① 朝倉健太, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克, 佐々木雅英, 大谷直毅「III-V族半導体量子ドットにおける励起子ラビ振動のパルス幅依存性」日本物理学会第65回年次大会 22pPSB-28 岡山大学 2010年3月22日

② 上平健太郎, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一「ヘテロダイナミクス顕微分光法による単一量子ドットのカー効果」日本物理学会第65回年次大会 22pPSB-27 岡山大学 2010年3月22日

③ 上平健太郎, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一「顕微ヘテロダイナミクス光誘起カー回転分光法の開発」第20回光物性研究会(2009) IB-36 2009年12月11日 大阪市立大学

④ 朝倉健太, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克, 佐々木雅英, 大谷直毅「半導体量子ドットにおける励起子ラビ振動の励起パルス時間幅による効果」第20回光物性研究会(2009) III B-94 2009年12月12日 大阪市立大学

⑤ 宮原優喜, 三森康義, 上平健太郎, 小坂英男, 枝松圭一「ヘテロダイナミクス顕微分光法による単一量子ドットのラビ振動III」日本物理学会 2009年秋季大会 27aPS-72 熊本大学 2009年9月27日

⑥ 朝倉健太, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克, 佐々木雅英, 大谷直毅「III-V族半導体量子ドットの励起子フォトンエコー II」日本物理学会 2009年秋季大会 27aPS-35 熊本大学 2009年9月27日

⑦ 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 山本直克, 赤羽浩一「III-V族半導体キャビティポ

ラリトンのポンププローブ分光」日本物理学会 2009年秋季大会 27aPS-18 熊本大学 2009年9月27日

⑧ Yasuyoshi Mitsumori, Yuki Miyahara, Hideo Kosaka, Keiichi Edamatsu, "Coherent manipulation of an exciton in a single quantum dot using a heterodyne pump-probe technique", *Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-18)*, Tu-eP15, 2009年7月21日, 神戸

⑨ 三森康義, 加藤範泰, 小坂英男, 枝松圭一, 山本直克, 赤羽浩一「III-V族半導体キャビティポラリトンにおける光誘起カー効果II」日本物理学会第64回年次大会 28pVA-11 立教大学 2009年3月28日

⑩ 三森康義, 加藤範泰, 小坂英男, 枝松圭一, 山本直克, 赤羽浩一「III-V族半導体キャビティポラリトンにおける光誘起カー効果」日本物理学会 2008年秋季大会 23aYH-7 岩手大学 2008年9月23日

⑪ 宮原優喜, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一「ヘテロダイナミクス顕微分光法による単一量子ドットのラビ振動の観測II」日本物理学会 2008年秋季大会 22aPS-59 岩手大学 2008年9月22日

⑫ 朝倉健太, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克, 佐々木雅英, 大谷直毅「III-V族半導体量子ドットの励起子フォトンエコー」日本物理学会 2008年秋季大会 22aPS-58 岩手大学 2008年9月22日

⑬ Y. Mitsumori, N. Kato, H. Kosaka, K. Edamatsu, N. Yamamoto, K. Akahane "Time-resolved photoinduced Kerr rotation in semiconductor microcavity", 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter (EXCON'08), P-47, 2008年6月26日, 京都

⑭ Y. Miyahara, Y. Mitsumori, H. Kosaka, K. Edamatsu "Observation of excitonic Rabi oscillations in a single quantum dot using a heterodyne pump-probe technique", 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter (EXCON'08), P-16, 2008年6月26日, 京都

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三森 康義 (MITSUMORI YASUYOSHI)

東北大学・電気通信研究所・助教

研究者番号：70375153