

半導体量子ドットにおけるコヒーレンスの超高感度光検出－光ヘテロダイン検出法を利用したフォトンエコー

池沢道男、舛本泰章 <筑波大学数理物質科学研究科物質創成先端科学専攻> 〒305-8571 茨城県つくば市天王台1-1-1

要旨：量子ビットとしての応用が期待される半導体量子ドット中の励起子のコヒーレンス時間と、これを高感度に測定できる光ヘテロダイン検出を用いた高感度フォトンエコー法について紹介する。実際に、2種類の単層の自己形成量子ドットに対して用いた結果についても報告する。

キーワード：半導体量子ドット、フォトンエコー、ヘテロダイン法、位相緩和時間

1. はじめに

近年盛んに研究されている量子情報処理では量子状態の重ね合わせの利用が基礎になっている。0と1に対応する固有状態を持つ2準位系として何を用いるかは様々なアイデアがあり、現在も各分野の研究者が盛んに研究している。それらの中で、半導体中の2準位系は従来のエレクトロニクスとの整合性も良く、また集積化にも向くと考えられ、高い期待が寄せられている。量子情報の保持時間はその間に所望の演算操作ができるように十分長い事が望まれるが、それは2準位系の重ね合わせ状態の保持時間に対応し、コヒーレンス時間と呼ばれる。半導体中で重要なコヒーレンス時間には、励起子のコヒーレンス時間や、スピンコヒーレンス時間がある。コヒーレンス時間の研究は、単にそれが長い物質系を探索するだけでなく、コヒーレンス時間を短くしている物理的なメカニズムを解明する事で、2準位系とそれを取り巻く環境系との相互作用－例えば電子格子相互作用など－に関する

る知見が得られることから、学術的な重要性をも併せ持つ。ここでは励起子コヒーレンス（位相緩和時間）を高感度に測定する方法について述べる。

量子ドットと呼ばれる半導体ナノ構造の中では、励起子のコヒーレンス時間がバルクに対して長くなる事が予想され、デコヒーレンスメカニズムの詳細な理解が望まれてきた。測定法としては大きく分けて、時間領域で直接観測を行うものと、周波数領域でスペクトル線形状からフーリエ変換で求める方法が取られる。時間的にコヒーレンス時間が長いということは波（ここでは電気分極に対応）が長く続くことを意味し、周波数空間で言えばより狭いスペクトルに対応するが、その幅は均一幅と呼ばれる。通常の半導体量子ドット試料は、近年成長技術が大きく発達しているとはいえ、個々のドットのサイズには分布を持つのが普通であるから、吸収・発光スペクトルは量子ドット集団全体としては均一幅でなく、不均一幅と呼ばれる広がりを持つ（図 1 (b)）。ドットの周りの環境も全く同一というわけではないので、その違いもこのような不均一な広がりにも寄与する。そのためコヒーレンスを知るために必要な情報が覆い隠されているのが普通である。そこから均一幅に関する情報を抜き出すためには、スペクトル領域の測定では例えば量子ドット一つを微細加工と顕微分光の手法を駆使して選び出し、その発光線の幅を高分解能の分光器で測定して均一幅を求めるという方法がとられてきた。この方法では、均一幅の下限が分光器の分解能で制限されること、および、積算時間の間に起こるスペクトル拡散のような遅い過程によって線幅が広がって見えてしまう可能性があるという問題がある。

他方、時間領域での方法としては、短パルス光を用いた縮退四光波混合法がよく知られている。特に不均一広がりを有する系ではフォトンエコーという現象として知られている。フォトンエコー法では、図 1 (c) のように 2 つのパルスを試料

に照射し、試料から放射されるエコーパルスの強度をパルスの遅延時間 τ に対して測定する。フォトンエコーは図 1 (a) のようなブロッホベクトルを用いて説明されるが、定性的に説明すると、以下のようなになる。仮想的に不均一拡がりのない、全く同一の 2 準位系集団に共鳴する光パルスが入射すると、図 1(c) の点線のような分極が誘起されるとする。この分極は共鳴周波数で振動するが、フォノンによる散乱をはじめとする様々な擾乱、及び再結合寿命によってその振幅が減衰し、その減衰時間がコヒーレンス時間 (T_2) に相当する。しかし、現実の不均一拡がりを持つ試料を、それと共鳴する光パルスで励起すると、誘起される分極は不均一拡がりのために様々な周波数を含むので、それらが足しあわされる結果、見かけ上、不均一幅の逆数程度の時間で速やかに消失する (図 1(c) の実線)。そこに遅延時間 τ だけ遅れて 2 番目のパルスが入射すると、第 2 パルスによって各ドットに分極は各々の共鳴エネルギーに応じた位相シフトを受けて、そこから τ 遅れた時刻で再びすべてのドットからの寄与が強めあって分極がピークを持つ。初めの τ と後半の τ で減衰があるから、放射されるエコーパルスの振幅は遅延時間 τ に対して $\exp(-\tau/(2T_2))$ に従って減衰し、その時定数からコヒーレンス時間を評価する事が出来る。

この方法はしかし、発光スペクトル測定に比べて難しく、特に数が少ない量子ドットではフォトンエコー強度が弱いので感度が足りない事が多い。厳密な縮退四光波混合では同じ光周波数の 2 パルスを用いるので元と同じ周波数の光が放射されるが、わずかに異なる周波数の光パルスを用いると、それに伴ってわずかに異なる周波数の分極に伴うフォトンエコーが放射される。これを別の光と干渉させて高感度に検出するのが本稿で述べる方法の要旨である。

2. 原理

ヘテロダイン検出とは、検出すべき信号波に一般には周波

数の異なる参照波を重ね合わせて、差周波成分を高感度に検出する方法である。雑音の除去や、信号の高精度検出に大変有用である。ここでは特に光波によるヘテロダイン検出を扱う。光ヘテロダイン検出は、信号光の周波数、振幅、位相情報を光強度のうなりから得るもので、精密測長をはじめとして様々な応用がある。分光法にも、この原理を応用する事が出来る。半導体に対して用いられたもので本稿で述べる方法に近いものとしては、1992年に K.L.Hallらが導波路構造の半導体光増幅器の非線形性を測るために pump-probe 法に適用する事を始めたのが最初であろう¹⁾。その4年後の1996年には M.Hofmannらによって同様の半導体増幅器で、四光波混合に対して用いられた^{2,3)}。量子ドットについては、ドイツのグループによって、導波路状に加工した多層 InGaAs 量子ドットについてこの方法を用いた研究が行われ⁴⁾、この方法の有用性が知られるようになった。これは導波路構造をもつ量子ドット試料に関する研究であったが、我々は自己組織的に成長された単層の量子ドット試料に試料加工無しでも用いることが出来るような、簡単で適用範囲の広いフォトンエコー測定を目指した。多層量子ドットは、後述するように量子ドットの一様性が無くなったり、励起光強度の一様性が損なわれたりするので、より単純な構造の単層ドットで研究できることが望ましい。

信号光電場 $E_s e^{i(2\pi\nu_s t + \phi_s)}$ に参照光電場 $E_r e^{i(2\pi\nu_r t + \phi_r)}$ を重ねあわせて光検出器に入射すると、観測される光強度 $I(t)$ は合成波の電場 $E(t)$ を用いて以下のように求められる。

$$I(t) \propto E(t) E^*(t) = (E_s e^{i(2\pi\nu_s t + \phi_s)} + E_r e^{i(2\pi\nu_r t + \phi_r)}) (E_s e^{-i(2\pi\nu_s t + \phi_s)} + E_r e^{-i(2\pi\nu_r t + \phi_r)}) \\ = E_s^2 + E_r^2 + 2E_s E_r \cos [2\pi(\nu_s - \nu_r)t + (\phi_s - \phi_r)]$$

第一項は、信号光強度に対応し、極めて小さい。第二項は参照光の強度である。第三項が信号光と参照光の差周波数 $(\nu_s - \nu_r)$ に対応する干渉項であり、光ヘテロダイン法ではこれを検出する。この式から分かるように、信号光の振幅 E_s が小さ

くても、強度の強い参照光振幅 E_r との積の形になっているため、大きな信号として検出する事が出来るので、微弱な信号光を捉える事が出来る。感度が向上すれば試料への入射光パワーを下げる事が出来るので、強励起効果が避けられ、より純粋な測定が出来る。

フォトンエコーは、コヒーレントな光パルス照射によって 2 準位系の集団に形成される 3 次の非線形分極を用いた測定法である。通常よく行われる 2 パルス四光波混合の条件では、周波数 ν_1 と ν_2 の光パルスを使って、 $2\nu_2 - \nu_1$ に相当する周波数のエコーパルスが、波数保存則を満たすように $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ 方向に放射される。図 2 は透過配置を想定したものであるが、このように、入射ビームに角度を持たせておき、エコーパルスを放射される方向で選別して検出するのが普通である。ヘテロダイン検出を用いるには、試料に照射される 2 つの光パルスに加えて第三の参照パルスを用いる。参照パルスは元のレーザー光 (ν_0) の一部を用いればよいが、その周波数をわずかに $+f_r$ だけずらしておけば、弱い信号光との干渉の結果、光強度に電氣的に測定可能な周波数のうなりを生じるので、その周波数を検出すればよい。しかし、それだけでは強い励起光に信号光が埋もれてしまうので、例えば第 2 パルス光を別の周波数 $+f_2$ だけシフトさせておく。すると、四光波混合過程で作られる分極の周波数は、

$\nu_s = 2(\nu_0 + f_2) - \nu_0 = \nu_0 + 2f_2$ になる。試料内での非線形な光混合のためにこの新たな周波数が発生したので、励起パルスや外部の光にはこの周波数に対応するものはなく、都合がよい。これを参照光と干渉させると、 $\nu_s - \nu_r = \nu_0 + 2f_2 - (\nu_0 + f_r) = 2f_2 - f_r$ という差周波数が発生する。これを十分狭い周波数フィルターで選び出せば、周波数軸上で信号光とそれ以外の励起光・散乱光を分離できるので、すべての光を同軸にすることが出来る。

3. 計測系

実際の光学系を図 3 に示した。透過配置での測定には基板

の除去などの試料への加工が必要になる場合が多いので、試料への加工無しで簡単に測定が可能になるように、反射配置を採用した。光源は、フェムト秒チタンサファイアレーザーで、約 100fs のパルス幅のパルスを 80MHz の繰り返し周波数で出力する。先程の議論では光源が高繰り返しパルスレーザーである事は考えてこなかったが、実際には光源のスペクトルは繰り返し周波数分だけ離れた多数の縦モードから構成されているので、各々の縦モードが周波数シフトを受けることになる。結果として、フォトンエコーが検出される周波数は $2f_2 - f_1$ だけではなくて、繰り返し周波数の整数倍付近にもサイドバンドとしても現れる。再生増幅器のような低繰り返しレーザーを用いる場合には、繰り返し周波数の高調波を積極的に利用したヘテロダイン法も行われている^{5,6)}。

周波数シフターとして用いる音響光学素子 (Acousto-Optic Modulator, AOM) は、進行波型のもので、超音波による回折を利用して、元の光とわずかに異なる方向に超音波の周波数分だけ光の周波数がシフトした光ビームを作り出す。一台は超音波の周波数を $f_2 = +110\text{MHz}$ として駆動し、もう一台は $f_1 = +111\text{MHz}$ として用いた。 v_1 と v_2 のパルスがクライオスタット中の量子ドット試料に入射し、フォトンエコーは反射方向に v_1, v_2 パルスと同軸で遅延時間 τ だけ v_2 パルスから遅れて放射される。前述のように、通常のフォトンエコーでは波数の違いを利用して強い励起ビームと弱い信号光とを分離するが、弱い信号光は散乱光に埋もれてしまう事があり、エコー信号を捉えるまでのアライメントが困難である場合が多い。他方、ヘテロダイン法では励起光と同軸にできるので、目で見ながら光を検出器まで導けば良く、アライメントが極めて容易であるという利点がある。

入射角度はブリュースター条件で行い、邪魔になる v_1 と v_2 の反射光をなるべく減らすようにした。ただし、偏光依存性など特に必要な場合は垂直入射でも実験を行ったが、時間原

点付近の飽和以外の点では問題なく信号が得られている。四光波混合過程で作られる分極は $\nu_0 + 220\text{MHz}$ になり、これと参照光 $\nu_0 + 111\text{MHz}$ をビームスプリッターで重ね合わせる。干渉の結果生じる差周波数は、 109MHz となる。我々はこの周波数を検出したが、先に述べたように光源に 80MHz の繰り返しパルス列を用いているために、発生する差周波数はこれ以外にも 29MHz や 51MHz を初めとして高周波数領域まで多くのピークが現れる。これは、 E_s や E_r の時間波形として定数ではなくパルス列のエンベロープ関数（具体的には 80MHz の多数の高調波の和）を考えて、前述の干渉項（差周波 109MHz の正弦波との積）のフーリエ変換を計算してみれば、結果として $80\text{MHz} \times (\text{整数})$ の多数の縦モードを $\pm 109\text{MHz}$ だけシフトしたものになる事から理解されるだろう。AOM による周波数シフト量を適切に選べば、これらのうち一つの周波数を大きく下げる事も可能であるので、例えば応答の遅い検出器を用いる場合などに有効利用できるかも知れない。

信号光を参照光と重ね合わせる部分では、図3のように直交する方向の光も用いてそれらを高速のフォトダイオードとアンプを内蔵するバランス光検出器に接続した。2つの方向のビームは、一方がエコー信号と参照光が干渉で強め合う条件になっているときにもう一方は弱め合う条件になっており、そのためにバランス検出器に入力する事で非干渉成分はレーザーのノイズを含めて差し引かれ、干渉信号だけが2倍になるという利点がある。また、ビームスプリッターからバランス検出器の間には、信号に寄与しない成分を減らし、また同時に簡単に光をバランス検出器に導くためにシングルモードファイバーを取り入れている。バランス光検出器からの信号はスペクトラムアナライザーに接続され、エコー信号に対応する周波数だけのパワーを外部に電圧として出力する事が出来るゼロスパンモードに設定し、出力をロックインアンプに入力した。 ν_1 パルスはチョッパーで低周波数で強

度変調させ、ロックイン検出した。

時間積分エコーの測定では、参照光パルスはエコーのピークに一致させるように自動並進ステージを用いて調節する。しかし、ステージの送りネジのピッチの僅かな誤差のために、 τ と τ_r にそれぞれズレを生じ、エコーパルスと参照パルスの重なりが不十分となって、一見するとビートのような偽の信号を発生することがある。この問題を本質的に解消するため、図3のように一つのステージ上で第一パルスと参照パルスを逆向きに反射させて互いに補償させることでこの問題を解消した。このステージ1を動かすだけで、時間積算エコーが得られる。

ヘテロダイン検出法の利点の一つとして、 τ_r の自由度により、エコーの時間分解測定が容易であるという点が挙げられる(→図4(b))。通常の方法では、エコーパルスの時間波形を観測するためには、別のゲートパルス光を用意した上で、例えば非線形結晶を用いて第二高調波発生を使った強度相関測定を行う必要があった。フォトンエコーのように元々の信号光が弱い場合には、アライメントを含めてかなり難しい測定になり、特に少数の量子ドットでは極めて困難である。

4. 単層量子ドット試料での実験結果

この手法を量子ドット層を一層だけ含む単層量子ドット試料に適用した結果を示す。図4は歪み誘起GaAs量子ドットに関する結果である。ドットはキャリアの運動が2次元的に閉じ込められるGaAs量子井戸中に局所的な歪みを加えることで横方向にもナノメートルサイズの閉じ込めを付加して形成されるものである。(a)のような構造を持ち、表面に形成される直径90nm程度のInP量子ドットがストレッサーとしての役割を持つ。ストレッサーの密度は、 $10^9/cm^2$ 程度である。GaAs量子井戸内で歪みの加わっている部分ではそうでない部分に比べてエネルギーが低くなり、電子正孔に対するパラボリックな閉じ込めポテンシャルが形成される。この

種の量子ドットでは、異種半導体材料間の格子定数ミスマッチを利用して自己組織成長する通常の量子ドットと比較して、界面に起因する問題が避けられるという点と、同一試料内で量子井戸領域と量子ドット領域を比較することによって2次元系と0次元系の直接の比較が出来るという特長を持つ。表面のストレッサーからの歪みで形成されるので、信号を増やすためにドットの多層化をすると、奥行き方向で試料の一様性が損なわれる可能性がある。ヘテロダイン検出で測定感度が向上したことにより、単層のドットで、よりピュアな条件で研究ができるようになった。

図4(b)は、量子ドットの基底状態に共鳴する波長で測定した時間分解フォトンエコー信号である。横軸は参照パルスの遅延時間 τ_r に対応する。太線が実験データである。点線で擬似的に示した2つの励起パルスタイミングから期待されるフォトンエコーの位置に明瞭に信号が現われている様子が分かる。時間積分エコー信号は、 τ_r をエコーパルスのピークに固定して、 τ を変化させることで(c)のように得られる。一層しか含まない量子ドット試料でも十分なS/N比でフォトンエコー信号が得られていることが分かる。時間積分信号の減衰レートから得られた位相緩和時間 $T_2 \sim 24 \text{ ps}$ は、量子ドットとしては短いものであったが、これはドットが表面に近いことから、表面状態へのキャリアのトラップに起因する電場の揺らぎのためではないかと解釈された。時間の早い領域では、励起子-励起子分子遷移によるビート構造が明瞭に見られ、それは同じ向きの円偏光ではビートが消えるという偏光依存性からも確認された(図4(c)上段)。このビート周期から励起子分子の束縛エネルギーが求められ、それを同試料での量子井戸領域からの信号と比較することによって、横方向の閉じ込めを加えた事による励起子分子束縛エネルギーの増大(この試料では1.5倍)が直接的な形で示され、0次元系の励起子分子束縛エネルギーの磁場依存性なども議論さ

れた⁷⁾。

もう一つの例は、チャージチューナブル InP 量子ドットについての結果である。図 5(a) のような試料構造を持つ。表面電極にバイアス電圧を印加する事によって、量子ドット内部の残留電子数を変化させる事ができ、荷電励起子や、残留電子などの研究に大変有用な試料である⁸⁾。試料内の電場の一様性のためには、単層のシンプルな試料構造が望ましく、この試料でのフォトンエコー測定にもヘテロダイン検出の測定感度が不可欠であった。時間積算エコーの結果は図 5(b) のように十分な S/N 比で 2 桁程度のダイナミックレンジで取る事が出来た。そのカーブはよく知られたような単一指数関数や、多成分の指数関数の和では説明が出来ない事が判明した。これは電場により傾いたドットの閉じ込めポテンシャルにおいて、バリアの連続状態との間のトンネル過程を考えたノンマルコフ的理論で説明する事が出来た⁹⁾。

5. おわりに

量子ドットにおける、光ヘテロダイン法を利用したフォトンエコーによる高感度測定について、実験手法に主眼を置いて紹介した。この結果、これまで難しかった単層レベルの自己形成量子ドットのコヒーレンスが時間領域で求められるようになり、歪み誘起量子ドットやチャージチューナブル量子ドットで初めてフォトンエコー測定を行った。特に後者では、正負の荷電励起子のコヒーレンス時間の解明などが興味深い問題と考えられ、今後の課題である。

この方法は、これまでに述べたように、高い感度や容易なアライメントを初めとして多くの利点があり、他の様々な量子ドットや、通常のフォトンエコー測定が行いにくいような散乱の強い試料や光導波路内の試料などに幅広く用いる事が出来るのではないかと期待される。発展としては、原理的には周波数を選ぶだけでより高次の非線形コヒーレント効果も高感度に検出できる可能性がある事、また 3 パルス励起

の四光波混合で縦緩和時間を測定することや、スペクトル分解などへの拡張も有用かも知れない。

参考文献

- 1) K. L. Hall, G. Lenz, E. P. Ippen, G. Raybon: *Opt. Lett.* **17** (1992) 874.
- 2) M. Hofmann, S. D. Brorson, J. Mørk and A. Mecozzi: *Appl. Phys. Lett.* **68** (1996) 3236.
- 3) A. Mecozzi, J. Mørk and M. Hofmann: *Opt. Lett.* **21** (1996) 1017.
- 4) P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang and D. Bimberg: *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 157401.
- 5) P. Borri, W. Langbein, J. Mørk and J. M. Hvam: *Opt. Commun.* **169** (1999) 317.
- 6) P. Borri, W. Langbein, J. Mørk, J. M. Hvam, F. Heinrichsdorff, M. H. Mao and D. Bimberg: *Phys. Rev. B* **60** (1999) 7784
- 7) M. Ikezawa, S. V. Nair, H.-W. Ren, Y. Masumoto and H. Ruda: *Phys. Rev. B* **73** (2006) 125321.
- 8) M. Ikezawa, B. Pal, Y. Masumoto, I. V. Ignatiev, S. Yu. Verbin and Il'ya Ya. Gerlovin: *Phys. Rev. B* **72** (2005) 153302.
- 9) Y. Masumoto, F. Suto, M. Ikezawa, C. Uchiyama and M. Aihara: *J. Phys. Soc. Jpn.* **74** (2005) 2933.

Highly sensitive detection of excitonic coherence in semiconductor quantum dots --- heterodyne detected photon echo method

Michio Ikezawa and Yasuaki Masumoto

A highly sensitive detection method of the excitonic coherence in semiconductor quantum dots is presented. Although ordinary two pulse degenerate photon echo is difficult to apply to the samples containing only a single-layer of quantum dots in terms of sensitivity, the heterodyne detection technique adopted in this work made photon echo applicable to them. Experimental results on two kinds of single-layer quantum dots, strain-induced GaAs quantum dots and charge-tunable InP quantum dots, will be discussed.

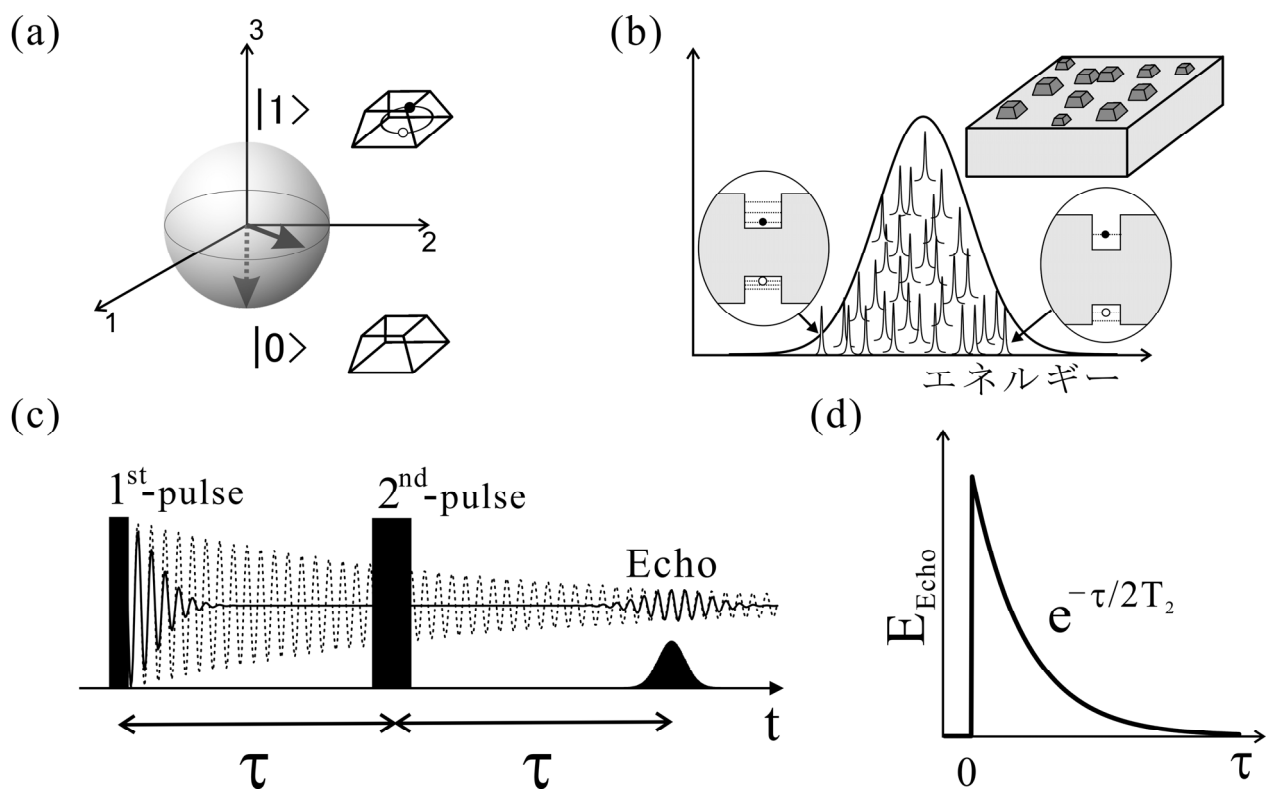


図 1 (a) 量子ドットの励起子を用いた量子ビット。(b) 量子ドットのサイズ分布と不均一拡がり。(c) 励起パルスと光子エコーの時間関係。(d) 遅延時間に対するエコー電場振幅の減衰。ここでは電場に比例した信号を得るので、減衰の時定数から $2T_2$ が得られる。

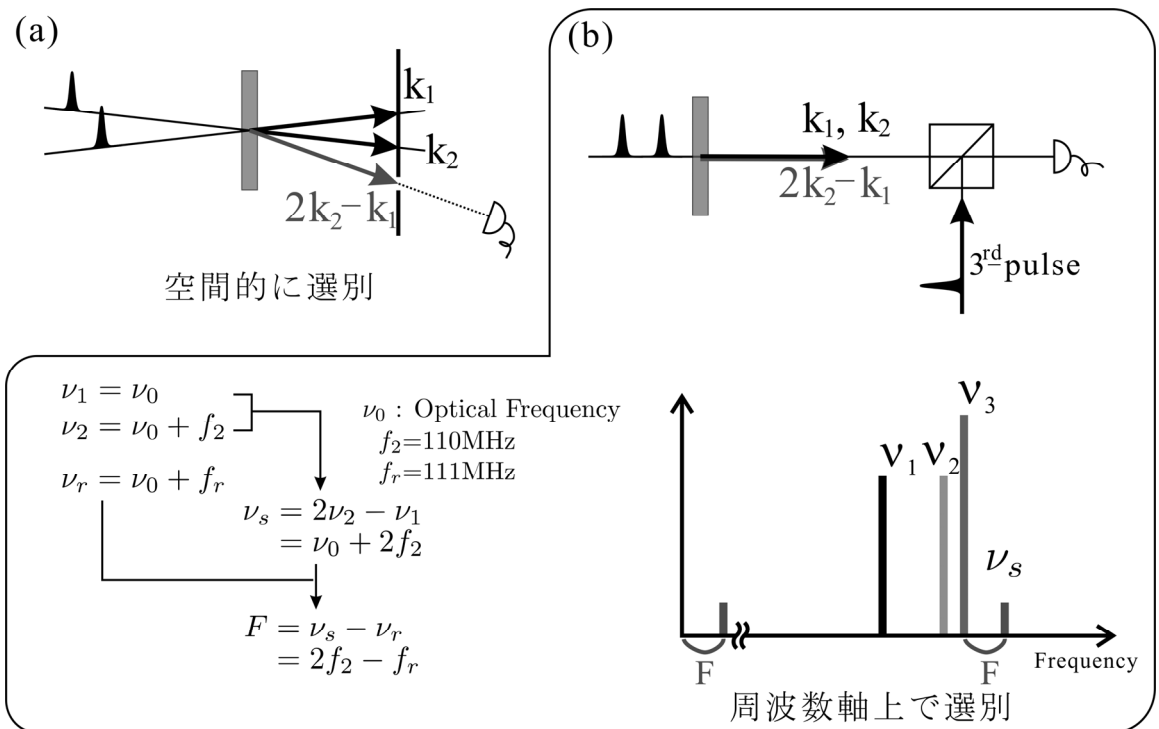


図 2 (a) 通常の 2 パルスフォトンエコー (b) へテロダイン検出フォトンエコー。わずかに異なる 2 つの周波数の光でフォトンエコーを発生させ、参照光との差周波数 F の成分のみを検出する。

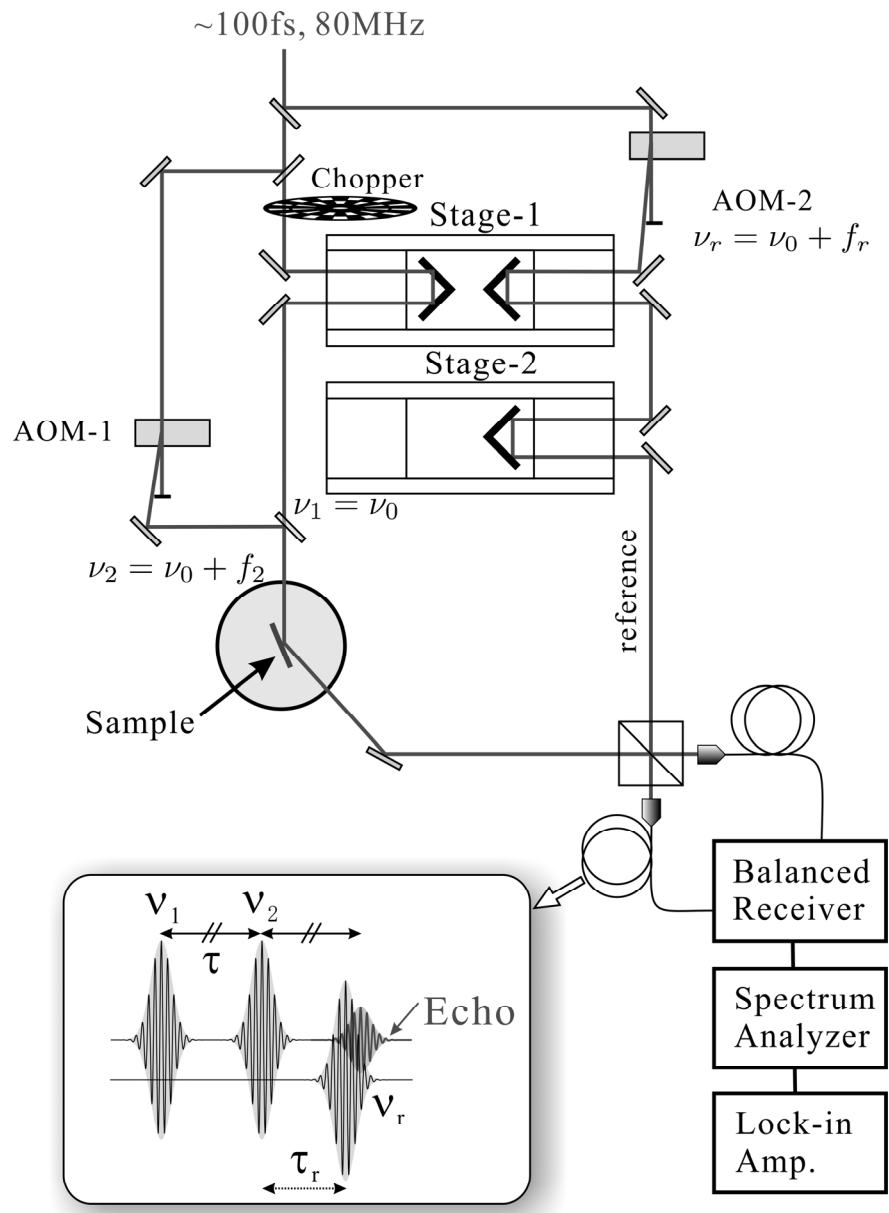


图 3 实验配置图

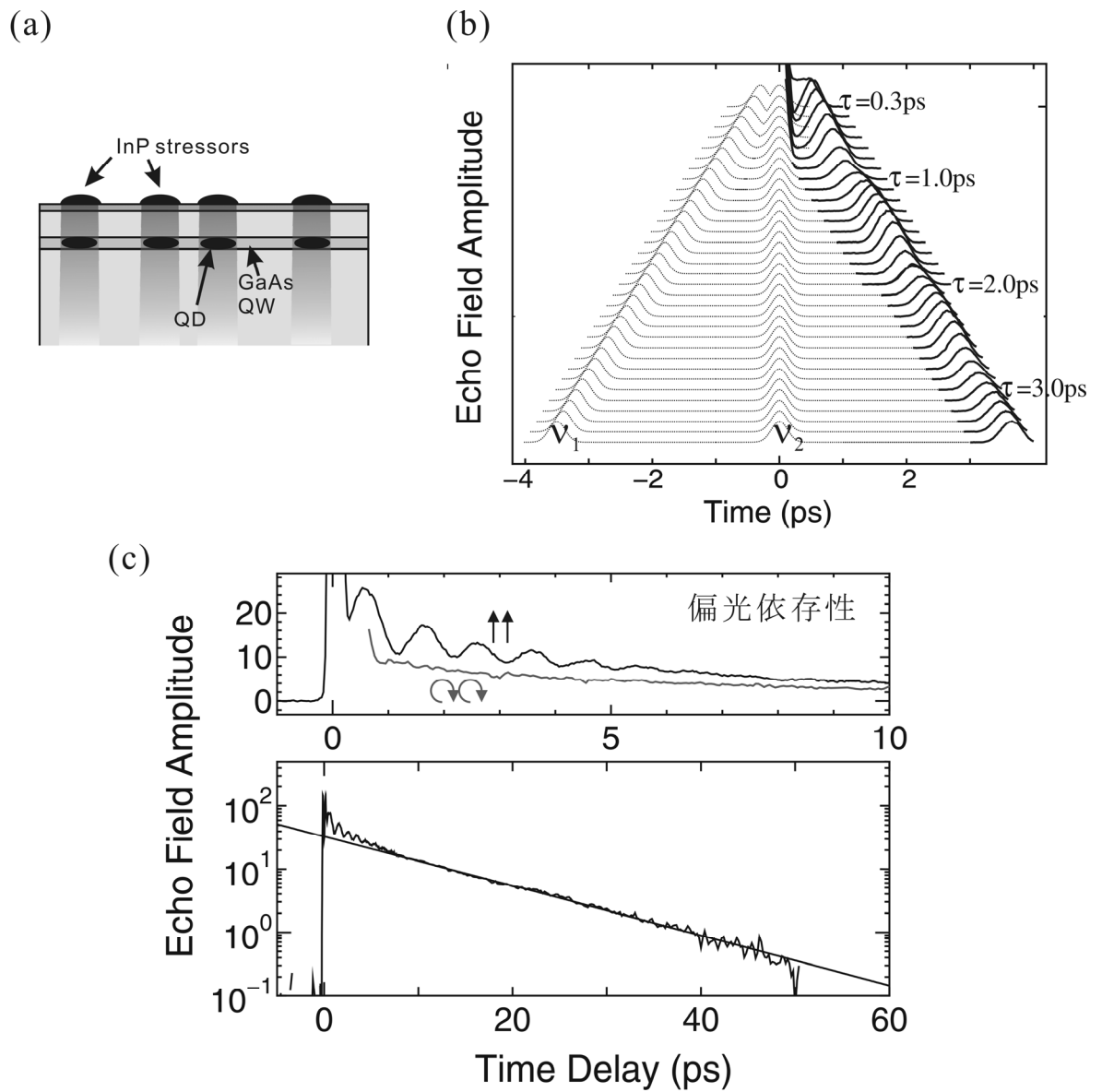


図 4 歪み誘起 GaAs 量子ドット (a)における時間分解
 フォトンエコー信号 (b)と時間積分フォトンエコー信号
 およびその偏光依存性 (c)。(b)図中で太線は実測さ
 れたエコーパルス波形、点線はその際の励起パルス
 タイミングを擬似的に再現したものである。試料温度は
 2 K。

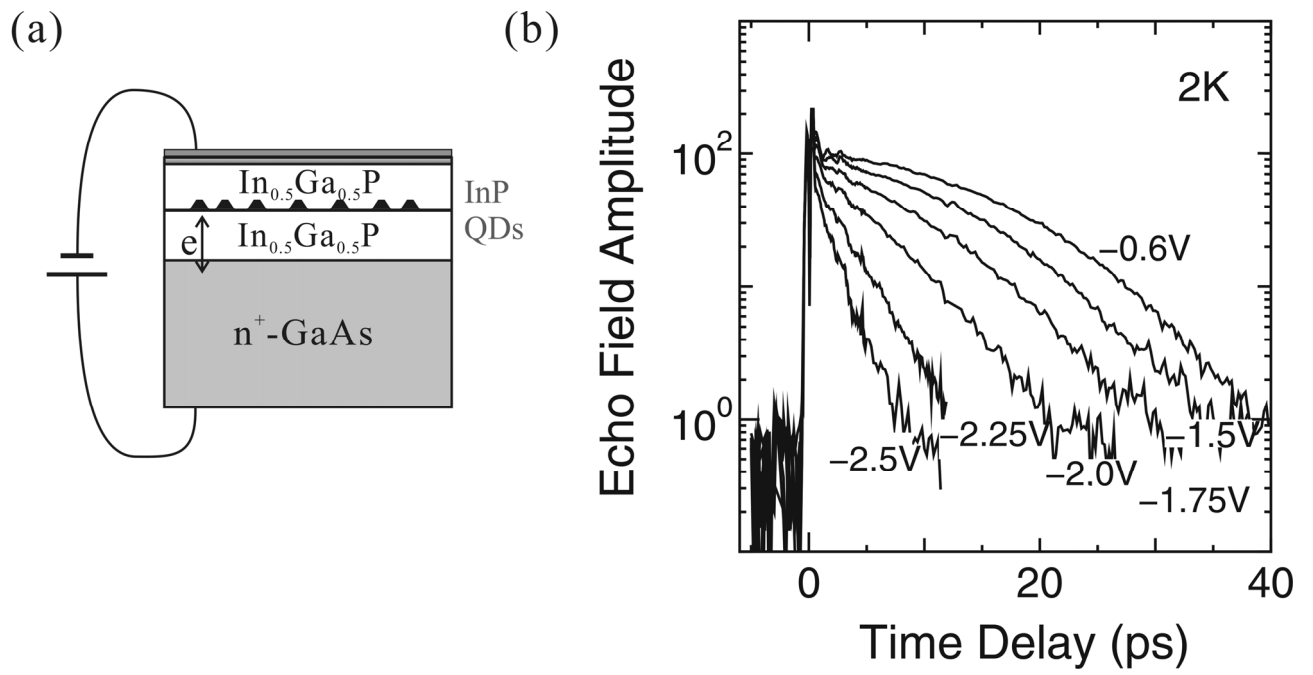


図 5 チャージチューナブル InP 量子ドット (a) における時間積分フォトンエコー信号の印加バイアス依存性 (b)。