

半導体量子ドットの光学応答における局所電場効果

電気通信研究所 三森康義 (mitumori@riec.tohoku.ac.jp)

1. はじめに

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数十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生成または注入された電子は、3次元閉じ込めポテンシャルを感じ、離散的エネルギー構造を示すようになる。この離散的エネルギー構造は電子-フォノン相互作用を著しく制限するため(フォノンボトルネック効果)[1]、半導体量子ドット中の量子状態(励起子分極)は長い位相緩和時間を示すようになる[2]。この離散的エネルギー構造と長い位相緩和時間を持つという特徴により、量子ドット中の励起子は原子系と同様に理想的2準位系として機能すると期待されており、量子情報通信を実現する固体量子ビットの有力な候補の一つとして活発に研究が進められている[3, 4]。その一方で、半導体量子ドット中の励起子は基本的な光学特性の一つに原子系とは異なる量子ドット特有の性質を示すことが報告されている。その性質は単一量子ドットの発光スペクトルにおける偏光に依存する微細構造である[5]。この偏光微細構造は、量子ドット内で励起子分極が閉じ込めサイズに応じた空間的広がりを持つため、純粋な横電場成分 ($\nabla \cdot P(r) = 0$) だけでなく縦電場成分 ($\nabla \cdot P(r) \neq 0$) も光学的に誘起されることに起因する [6]。この縦電場成分は電荷と

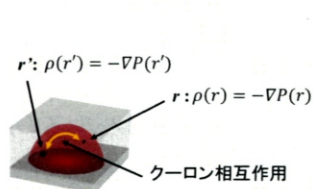


図1: 量子ドット中の光誘起電荷間のクーロン相互作用の模式図

$\rho(r) = -\nabla \cdot P(r)$ で結ばれているため、量子ドット内に励起された励起子分極は必ず光誘起電荷を伴って励起

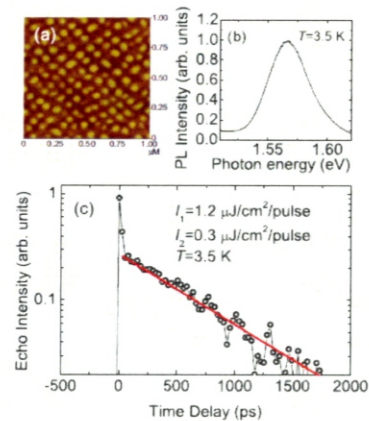


図2: 量子ドットのAFM像($1 \times 1 \mu\text{m}^2$) (a)、量子ドットの発光スペクトル (b)、フォトンエコー信号の減衰曲線 (c)

される。このため、量子ドット内の異なる位置 r と r' の電荷 $\rho(r)$ と $\rho(r')$ がクーロン相互作用し [図 1]、励起子共鳴エネルギーを変調する (電子-正孔交換相互作用)。特に量子ドットの形状に異方性がある場合、光誘起電荷間のクーロンエネルギーは光の偏光方向によって異なる値を示すため、発光スペクトルにおいて偏光微細構造が出現する[7]。さらに、光励起分極 $P(r)$ の大きさは共鳴励起を行うと、励起光の強度に直接依存するため、内部の光誘起電荷間のクーロン相互作用の強さも励起光強度に依存すると期待される。このことは量子ドット中の励起子の共鳴エネルギーが励起光強度によって人為的に制御可能になることを強く示唆する。このような、量子ドット内の微視的分極間のクーロン相互作用による共鳴エネルギー変化を特に量子ドットにおける局所電場効果と呼ぶ[8, 9]。この局所電場効果を利用する光による量子系の共鳴エネルギーの制御は、量子ドットのような共鳴波長よりも小さいナノ空間中に局在する電子分極が示す新しい物性機能であると考えられ、その物性機能の解明は興味ある研究対象となりつつある。

本研究ノートでは、半導体量子ドットの新しい光学効果である局所電場効果をフォトンエコー法により観測した結果[10]について紹介を行う。

2. 実験方法

本研究で用いた試料は、*rr*GaAs[311]B 基板上に Stranski-Krastanov 成長モードによって結晶成長させた単層の自己形成型 $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.5}\text{Al}_{0.1}\text{As}$ 量子ドットであり、障壁層として $\text{Al}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$ を成長させた。原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて撮影された像[図 2(a)]より、量子ドットの粒径は約 50~70nm、高さが 4~7nm、密度は約 $1.1 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ と見積もられる。試料温度 3.5K において測定した励起子発光スペクトルを図 2(b)に示す。発光スペクトルは約 1.565eV にピークを持ち、半値全幅は約 40meV である。

光学実験は繰り返し周波数 76MHz のモード同期 Ti:Sapphire レーザーを用いて行った。パルスの中心周波数は発光スペクトルのピークエネルギー 1.565eV に設定し、時間幅は約 1.4ps の励起パルスを用いて測定を行った。分光法には反射型配置の 2 パルスフォトンエコー法を用いた。

3. 結果と考察

実験結果の詳細の前に量子ドットの局所電場効果の簡単な紹介とフォトンエコー法の定性的な説明を行う。量子ドットの局所電場効果の理論の定式化によると、励起子分極が量子ドット内において一様に分布している極限において、励起子の共鳴周波数は $\omega = \omega_0 - \delta\omega\rho_D$ と記述される[8, 9]。ここで ω_0 は局所電場効果がない場合の励起子共鳴周波数、 $\delta\omega$ は反電場シフト、 ρ_D は励起状態と基底状態の分布数差を表し、励起状態と基底状態の分布数をそれぞれ ρ_{ex} 、 ρ_{gs} と表すと $\rho_D = \rho_{ex} - \rho_{gs}$ と与えられる。反電場シフトは励起子分極のダイポールモーメント、量子ドットの形状と体積に依存する量である[8, 9]。局所電場効果においては励起子分極の共鳴周波数が励起子の分布数差に応じて変化し、多彩な光学効果を出現すると期待されている。

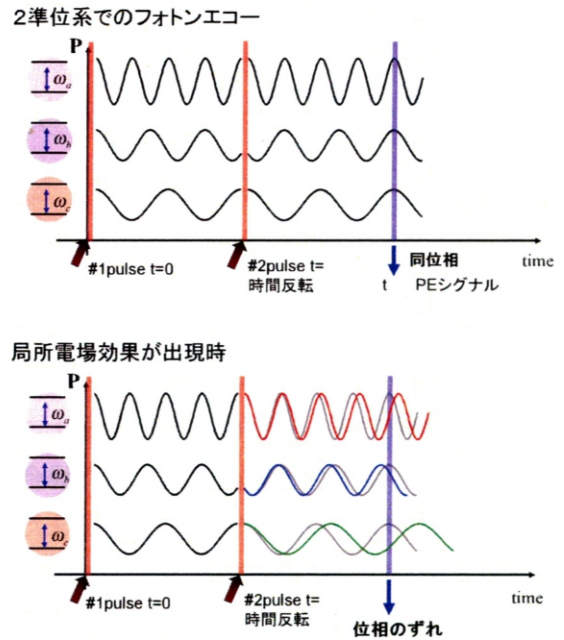


図 3: 2 準位系のフォトンエコー過程(上)、局所電場効果が出現した場合のフォトンエコー過程(下)の模式図

フォトンエコーは核磁気共鳴におけるスピンエコーに類似の効果である。図3に示すように、不均一幅を持つ試料を第1パルスで時刻 $t=0$ に励起すると、それぞれの分極はそれぞれの共鳴周波数で振動し始める。巨視的分極は各々の分極の共鳴周波数の不均一性による位相差により直ちに消失してしまう(自由誘導減衰)。ここに第2パルスを $t=\tau$ で入射し、時間反転操作を行うと、第1パルスで励起された全ての分極は時刻 $t=2\tau$ で同位相になり、巨視的分極を回復してフォトンエコー信号を放出する。このような光学過程において局所電場効果が出現した場合、第2パルスによる時間反転操作は必ず励起による分布数差の変化 $\Delta\rho_D = \rho_D(t > \tau) - \rho_D(t < \tau)$ を伴うため、励起子分極の共鳴周波数は時刻 $0 < t < \tau$ 間 (ω_1) と時刻 $\tau < t < 2\tau$ 間 (ω_2) では異なる値を示すようになる[図 3]。結果として、この共鳴周波数の変化は時刻 $t=2\tau$ で各分極の位相の揃い具合に影響するため、フォトンエコー信号は第2パルスの強度に非常に敏感になることが予測される。本研究においてはこの局所電場効果による第2パルスの影響を第1パルスの関数で測定したラビ振動の形状変化として観測を行った。

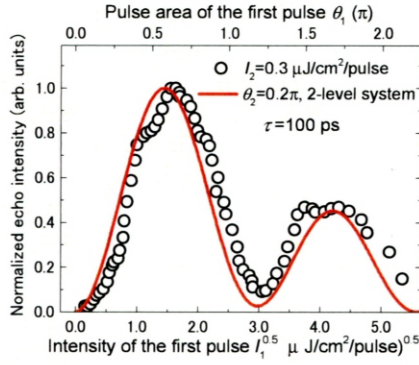


図4: 遅延時間 $\tau = 100$ psにおけるフォトンエコー信号強度の第1パルス励起強度依存性

図2(c)に本実験で使用した量子ドットのフォトンエコー信号強度の第1、第2パルス間の遅延時間依存性を示す。観測された信号の減衰形状は遅延時間 $\tau = 0$ psにおいて鋭いピークが現れた後、指数関数的減衰を示している。 $\tau = 0$ psにおける鋭いピークは、位相緩和時間が非常に短いGaAs基板由来の信号と考えられる。長い緩和成分は量子ドット中の励起子に由来し、減衰曲線に対しフィッティングを行った結果、減衰定数は約630 psと評価された。フォトンエコー法での信号強度の減衰時間と位相緩和時間の関係は $I_{PE}(\tau) \propto \exp(-4\tau/T_2)$ で与えられるため[11]、本実験の量子ドット中の励起子の位相緩和時間 T_2 は $T_2 \sim 2.5$ nsと評価され、均一幅は約 $0.5 \mu\text{eV}$ であり、一般的なIII-V族系量子ドットの均一幅の報告値に比べ細く、良質な量子ドットと考えられる。図4は遅延時間 $\tau = 100$ psにおいて信号強度を第1パルスの強度 I_1 の関数として測定を行った結果である。第2パルスの強度は $I_2 = 0.3 \mu\text{J}/\text{cm}^2/\text{pulse}$ に設定した。図4の横軸は $I_1^{0.5}$ でプロットしており、次元としてはパルス面積の次元と等価である。測定結果より、第1パルスの強度の増加に対して、2周期分の振動形状を示す信号が得られた。理想2準位系におけるラビ振動は正弦曲線で表されるが、フォトンエコー法で観測されるラビ振動の形状は巨視的測定のため、励起光の空間強度分布の影響を受けることが知られている[12]。図中の赤線は実験で用いたビーム形状(ガウシアンビーム)を考慮に入れた2準位系

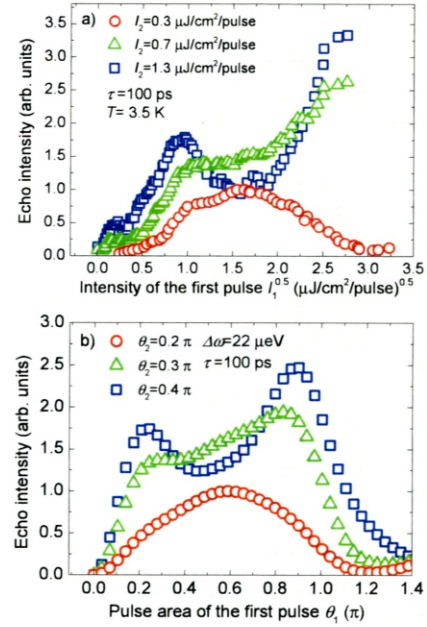


図5: ラビ振動の形状の第2パルス強度依存性(a)、数値計算結果(b)

のフォトンエコー法で観測されるラビ振動の理論曲線をあらわしている。測定結果は2準位系の理論曲線によって良く再現されている。

次にラビ振動の第1周期の形状の第2パルスの励起強度依存性を図5(a)に示す。ラビ振動は第2パルスの強度が増加するに従い、弱励起下($I_2 = 0.3 \mu\text{J}/\text{cm}^2/\text{pulse}$)では、ピーク位置だった第1パルスの励起強度の両脇に新しいピークが出現し始め、 $I_2 = 1.3 \mu\text{J}/\text{cm}^2/\text{pulse}$ においては、弱励起時のラビ振動のピーク位置でくぼみ構造が観測された。観測されたラビ振動の形状変化が局所電場効果によるものか確認するために、局電場効果を考慮したブロッホ方程式[9]を用いて数値計算を行った。結果を図5(b)に示す。数値計算内の反電場シフトは $\delta\omega = 22 \mu\text{eV}$ とした。数値計算のラビ振動の第2パルス依存性は実験で観測された形状変化を非常に良く再現できることを確認できた。また、用いた反電場シフトの大きさは本研究で用いた量子ドットのサイズ、ダイポールモーメントから推定される値 $\delta\omega \sim 20 \mu\text{eV}$ とも良い一致を示し、定量的な側面からも確認ができた。

最後に、観測されたラビ振動の形状変化について定性的な説明を行う。第2パルスが弱励起の場合は分布数差変化 $\Delta\rho_D$ が小さいため、 $0 < t < \tau$

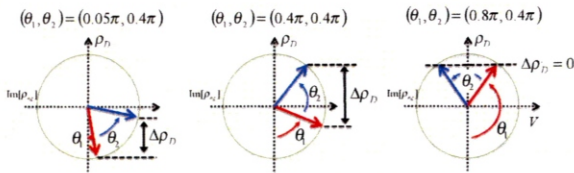


図6: ブロハベクトルによる第1パルスのパルス面積と第2パルスによる分布数変化 $\Delta\rho_D$ の様式図

間の共鳴周波数 ω_1 と $\tau < t < 2\tau$ 間の共鳴周波数 ω_2 は殆ど変化せず($\omega_1 \sim \omega_2$)、ラビ振動の形状は図4に示すように2準位系に近い振る舞いを示すと考えられる。一方、第2パルスが強励起の場合は、分布数差変化 $\Delta\rho_D$ が大きくなり、 ω_2 は ω_1 と異なる値を示す。結果、時刻 $t = 2\tau$ で各分極の位相の揃い具合も $\Delta\rho_D$ により変化し、それに伴いフォトンエコー信号強度が変調されると考えられる。特に図6に示すように、第2パルスによる分布数差変化 $\Delta\rho_D$ が最大となる第1パルスのパルス面積 $\theta_1 = \pi/2$ の周辺では、周波数変化(ω_1 と ω_2 の差)も最大となる。その結果、 $t = 2\tau$ で各分極の位相が最も揃い難くなり、フォトンエコー信号強度が低下すると考えられる。さらに第1パルスのパルス面積が増加すると、分布数差変化 $\Delta\rho_D$ が減少に転じ、 $\Delta\rho_D = 0$ (つまり $\omega_1 = \omega_2$)となる第1パルスのパルス面積でフォトンエコー信号強度が最大になると考えられる。また、2準位系でのフォトンエコー信号は第1パルスが $\theta_1 = \pi/2$ 付近で最大信号強度を示す[図4]。そのため、第2パルスが強励起の場合、弱励起時のラビ振動のシグナルピーク位置に窪み構造が現れると定性的に理解できる。

4. まとめ

今回、我々はラビ振動をフォトンエコー法で測定することにより、量子ドット中の局所電場効果に関与する光学効果を観測した結果について紹介した。量子ドット中の局所電場効果は励起光の強度により励起子分極の共鳴周波数を変調するため、従来にない物性機能を示すと考えられる。また、この共鳴周波数の変調効果は量子系のコヒーレント制御法の新手法の提供や、新動作原理の光デバイス開発への応用が可能となるため、今後、

重要な研究課題となると期待される。

謝辞

本研究は電気通信研究所 枝松圭一教授、朝倉健太氏、NICT 赤羽浩一氏、山本直克氏、佐々木雅英氏、同支社大学 大谷直毅教授との共同研究によるものである。

参考文献

- [1] U. Bockelman and G. Bastard, Phys. Rev. B **42**, 8947 (1990).
- [2] P. Borri *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 157401 (2001).
- [3] T. H. Stievater *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 133603 (2001).
- [4] A. J. Ramsay, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 017402 (2010).
- [5] D. Gammon, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996).
- [6] H. Ajiki and K. Cho, Phys. Rev. B **62**, 7402 (2000).
- [7] T. Takagahara, Phys. Rev. B **62**, 16840 (2000).
- [8] G. Y. Slepyan, S. A. Maksimenko, A. Hoffmann, and D. Bimberg, Phys. Rev. A **66**, 063804 (2002).
- [9] G. Y. Slepyan, A. Magyarov, S. A. Maksimenko, A. Hoffmann, and D. Bimberg, Phys. Rev. B **70**, 045320 (2004).
- [10] Kenta Asakura, Yasuyoshi Mitsumori, Hideo Kosaka, Keiichi Edamatsu, Kouichi Akahane, Naokatsu Yamamoto, Masahide Sasaki, and Naoki Ohtani, Phys. Rev. B **87**, 241301(R) (2013).
- [11] T. Yajima and Y. Taira, J. Phys. Soc. Jpn. **47**, 1620 (1979).
- [12] M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, Phys. Status Solidi A **206**, 952 (2009).