

研究報告書

「量子ドットによる光・量子メモリの創出と高光非線形性の探求」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：早瀬 潤子

1. 研究のねらい

光は最も安定に量子コヒーレンスを保持するため、量子情報通信・処理における情報伝達媒質として最も適している。その一方で光は止めておくこと(保存)ができない、互いに相互作用しにくい(量子ゲート操作が困難)といった欠点がある。従ってこれらの操作が可能な他の2準位系に、光のもつ量子情報(量子力学的重ね合わせ状態)を一旦転写・保存し、任意の時間に再生するといった量子メモリを実現することが必要不可欠な課題となっている。

本研究では、集積化・小型化に有利かつ光との結合効率のよい半導体量子ドット集合体を対象として、不均一性の影響を除去できるフォトンエコー法を用いた量子メモリの原理実証を行なうことを目的とする。具体的には、2つのコヒーレント光パルス間の相対位相・相対振幅として符号化された情報(量子コヒーレンス)を量子ドット集合体へ書きこみ・保存し、任意の時間にフォトンエコー信号として再生・読みだすことを試みる。また本研究では、量子メモリ動作において重要な役割を果たす、半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明を行なっていく。

2. 研究成果

本研究は、2007年10月から2008年7月まで独立行政法人情報通信研究機構、2008年8月から2010年3月まで電気通信大学、2010年4月以降慶應義塾大学で行なった。また本研究で用いた量子ドットサンプルは、情報通信研究機構フォトニックデバイスラボで作製していただいた。

歪補償量子ドット集合体における位相制御フォトンエコー測定

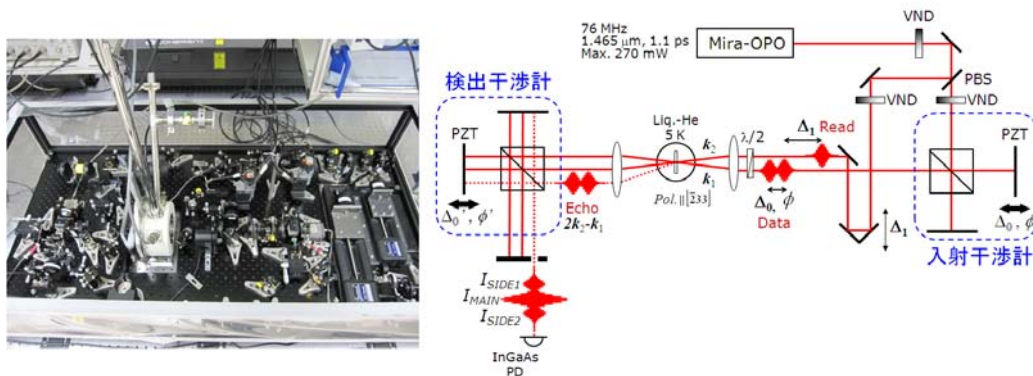


図1: 位相制御フォトンエコー測定系(左:写真、右:模式図)

図1に本研究で構築した位相制御フォトンエコー測定系を示す。光源は本研究費で購入したチタンサファイアレーザー励起OPO(パルス幅約1 ps)である。入射パルスの波長・偏光方向を制御することで、量子ドット中の励起子基底状態の内1つのみを共鳴励起する条件となっている。これにより量子ドット集合体を2準位系の集団とみなすことができる。レーザーをビームスプリッターで2つに分け、それぞれDataパルス、Readパルスとして用いる。Dataパルスはさらにマイケルソン干渉計(入射干渉計)を用いてパルス対にし、2つのパルス間の遅延時間(Δ_0)と相対位相(ϕ)を制御できるようになっている。クライオスタット内で極低温(5 K)に冷却された量子ドット集合体へDataパルス対を k_1 方向から入射した後、一定の遅延時間(Δ_1)をつけて k_2 方向からReadパルスを入射することで、 $2\Delta_1$ 後に $2k_2-k_1$ 方向へフォトンエコー信号を

発生させる。発生したフォトンエコー信号は入射干渉計と同じ遅延時間($\Delta_0' = \Delta_0$)をつけたマイケルソン干渉計(検出干渉計)に入射する。この時入射もしくは検出干渉計の片方のアームの光路長を波長オーダーで掃引する(位相 ϕ' を掃引することに相当)ことで明瞭な干渉信号が得られれば、Dataパルス対の相対位相・相対振幅が半導体量子ドット集合体へ書き込み・保存・再生・読み取りできたことを意味する。本実験では、比較的实验の容易な高強度コヒーレント光を用いた実験を行なうことで、フォトンエコー量子メモリの原理実証を行なう。ここでDataパルス間の遅延時間はピコ秒オーダーであり検出器で時間分解できないため、同時に検出されてしまうバックグラウンド(I_{SIDE})を差し引いた後、干渉信号(I_{MAIN})の干渉明瞭度を評価する。量子ドットサンプルには、歪補償法により作製したInP(311)B基板上InAs量子ドット集合体を用いた(図4(a)参照)。歪補償量子ドットを用いることで、応用上重要な通信波長帯での実験が可能となっている。また150層超積層構造を用いることで、フォトンエコー信号が増強され高S/Nで測定できる。

図2に実験結果の一例を示す。Dataパルス、Readパルスの平均パルス面積はそれぞれ $\pi/2$ 、 π となるよう入射光強度を調整している。入射Dataパルスの相対位相 ϕ を固定したまま、検出干渉計における位相 ϕ' を掃引すると、明瞭な干渉信号を得ることができた。干渉明瞭度は95%を超える高いものであり、Dataパルス対の相対位相・相対振幅が高い忠実度で再生され読み出し可能であることが示された。この結果は、従来の報告よりも数桁広い帯域の光パルス位相の書き込み・保存・再生・読み出しに成功したことを意味する。また Δ_1 を500 ps、 Δ_0 を100 ps程度まで大きくしても干渉明瞭度は高い値を保っていることがわかった。これにより、我々の量子ドットは比較的長い時間に渡って量子コヒーレンスを保持することが可能であり、適用可能な光パルスの時間帯域幅積が 10^3 に迫ること、 10^2 個のマルチモードパルス列の適用が可能であることを示唆された。

今回得られた結果は、高強度コヒーレント光(古典光)による結果であり、単一光子やもつれ合い光子対といった非古典光に対する真の意味の量子メモリ実現への道のりはまだ遠い。しかしながら、量子メモリの原理実証となる光位相の書き込み・保存・再生・読み出しに成功したことは、量子メモリ実現に向けた大きな一歩である。本研究で提案した手法は、通信波長帯・広帯域・長時間帯域幅積・マルチモードパルスの適用を可能にする、今までにない性能をもつ量子メモリ実現の可能性を示唆するものであり、大きな成果であると言える。

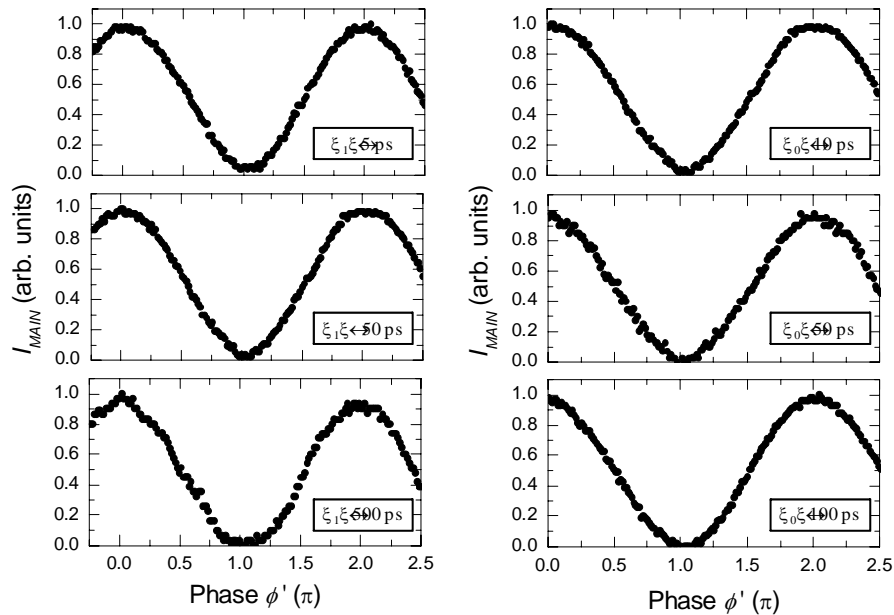


図2: 検出干渉計の位相 ϕ' 掃引時のフォトンエコー信号の干渉波形 ($\Theta_0 = \Theta_1 = \pi/2$, $\Theta_2 = \pi$)。左: Δ_1 依存性($\Delta_0 = 10$ ps)、右: Δ_0 依存性($\Delta_1 = 100$ ps)。

半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用—励起子ラビ振動制御—

光と2準位系との基本的な非線形コヒーレント相互作用であるラビ振動に関して研究を進めた。フォトンエコー信号の強度 I_{PE} は、理想2準位系の場合 $I_{PE} \propto \sin^2 \Theta_1 \sin^4(\Theta_2/2) \exp(-4\tau/T_2)$ と表すことができる。したがって、パルス面積 $\Theta_i = \int dt(\mu E_i(t)/\hbar)(i=1,2)$ を変化させることにより I_{PE} に振動構造が現れる。これは励起子分極のラビ振動を制御していることに相当する。図3左図に、 k_1 パルスの平均面積 Θ_1 依存性におけるフォトンエコー信号強度 $I_{PE}(\tau = 20\text{ps})$ を測定した結果を示す。 Θ_1 は k_1 パルスの強度を変化させることにより制御している。図3左図より I_{PE} に明瞭な振動構造が見られることがわかる。平均パルス面積を別の実験における結果を基にラビ振動実験とは独立に見積もってみると、観測された振動構造の周期はほぼ π となっており、ラビ振動特有の振る舞いを示すことがわかる。しかしパルス面積の大きな領域においてはラビ振動が大きく減衰しており、理想2準位系における結果と大きく異なる。

本研究では、パルス面積の不均一性を取り入れたラビ振動の解析を行ない、計算結果(図3右図)が実験結果を良く再現することを見出した。計算ではパルス面積の不均一性により生じるフォトンエコー信号の空間分布と、フォトンエコー信号が検出器に到達するまでの伝搬効果を取り入れた詳細な解析を行ない、入射光電場の空間分布と伝搬効果が、量子ドット集合体における巨視的ラビ振動の減衰に大きく影響することを初めて見出した。フォトンエコー信号の伝搬効果まで取り入れて解析をした報告は他になく、2準位系集団におけるラビ振動の基本的な振る舞いを理解する上で、重要な結果であると言える。このような詳細なラビ振動解析が可能となったのは、遷移双極子モーメントなど解析に必要な物理量がラビ振動実験とは独立に高い精度で求まっており、フィッティングパラメタを用いずにラビ振動の理論解析が行なえること、高い精度のフォトンエコー測定が可能であることによるものであり、本研究の独創的な点であると言える。一方でラビ振動に見られる3番目のピークや、時間領域にみられる振動構造など未だ説明できない興味深い現象も数多く観測されている。それら未解決の問題には、半導体量子ドット集合体の非線形コヒーレント相互作用に関する重要な物理が眠っているのではないかと考えており、今後も研究を継続していきたい。

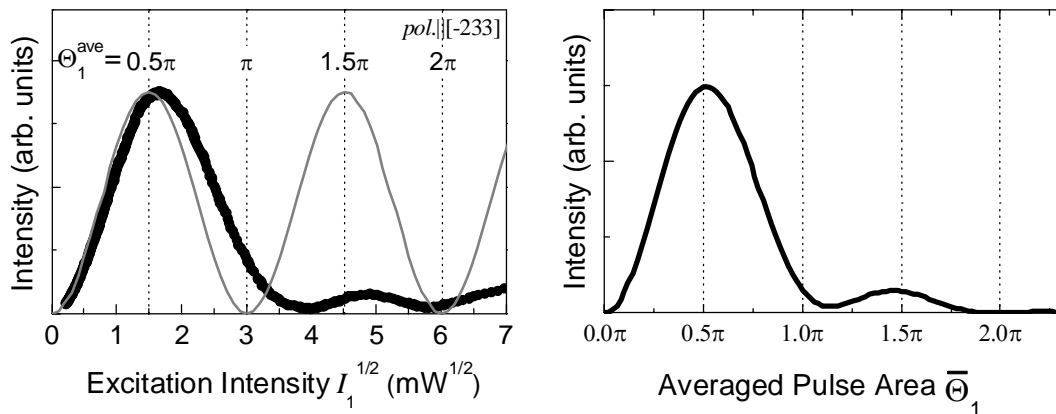


図3: フォトンエコー信号強度のパルス面積(入射光強度)依存性(温度 3 K)。左: 黒点は実験結果、実線は理想2準位系における計算結果。右: パルス面積の不均一性を取り入れた計算結果。入射光電場の空間分布により生じたフォトンエコー信号の空間分布およびフォトンエコー信号が検出器に至るまでの伝搬効果を考慮している。

歪補償量子ドットの位相緩和メカニズムの解明

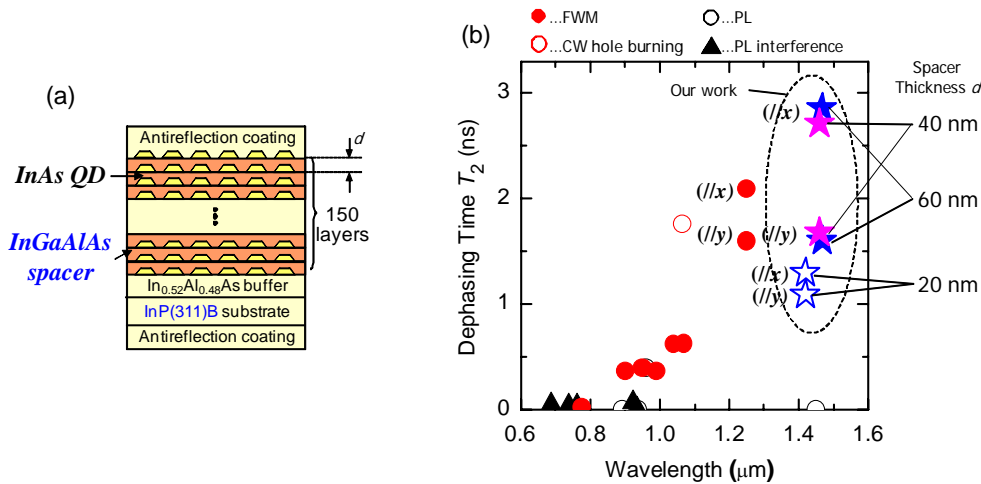


図4: (a)歪補償超積層 InAs 量子ドットサンプル構造の模式図。(b) In(Ga)As 自己形成量子ドットにおける位相緩和時間(温度3~10 K)。横軸は励起子基底状態の共鳴波長。

量子メモリの性能を決定する上で、半導体量子ドットの位相緩和やフォトンエコー変換効率などが重要な役割を果たす。本研究では、スペーサ層の厚さ d を変えた数種の歪補償量子ドットサンプル(図4(a))について、位相緩和メカニズムの比較を行なった。スペーサ層厚 d を変えることで積層方向の量子ドット間距離を変えることができるため、量子ドット間相互作用と位相緩和メカニズムとの関係を解明する情報を得ることができる。また d のより小さなサンプルにおいてはサンプル作製時間を短縮することができるため、作製条件最適化の点でも重要な情報を与える。

図4(b)に $d = 20, 40, 60$ nm の量子ドットサンプルにおける位相緩和時間を測定した結果を示す(温度 3 K)。比較のため、他のグループにより得られた位相緩和時間もプロットする。その結果、 $d = 40, 60$ nm のサンプルについては、位相緩和時間に大きな偏光依存性が見られ位相緩和時間が輻射寿命で決まる上限にほぼ達していること、位相緩和時間が非常に長いことが明らかとなった。また $d > 40$ nm のサンプルでは、全ての実験結果が孤立2準位モデルを用いて良く説明でき、量子ドット集合体が孤立した2準位系の集団として取り扱えることがわかった。一方 $d = 20$ nm のサンプルでは純位相緩和の寄与が大きく、他のサンプルと比較して位相緩和時間が短いことが明らかとなった。この結果は、何らかの量子ドット間相互作用が働いている可能性を示唆するものであり、興味深い結果である。

3. 今後の展開

さきがけ期間中に行なった実験は高強度コヒーレント光を用いたフォトンエコー量子メモリの原理実証実験であり、真の意味の量子メモリを実現するためには、単一光子レベルの微弱光領域において光位相の書き込み・保存・再生・読み出し実験を行なう必要がある。そのためには、通信波長帯における高時間分解能・高量子効率・低ノイズの単一光子検出技術を開発すること、高光非線形性を実現する新たな量子ドットサンプルを開拓することなどが必要となる。今後はこれらの研究を進展させ、微弱光領域での実験を行なっていきたいと考えている。歪補償量子ドット集合体におけるラビ振動制御や位相緩和メカニズムに関しては、一定の理解が得られたものの、未だ説明できていない現象も多々発見されている。これら未解決の問題には興味深い物理が眠っている可能性が高く、今後も研究を続けて未解決問題を解明していきたいと考えている。歪補償量子ドットは、従来にない高い精度の光物性測定を可能にする稀にみる良質な量子ドットサンプルであり、半導体量子ドットにおける物理を解明する上で大きな武器になると考えている。

4. 自己評価

本研究の目的は、(1)半導体量子ドットを用いたフォトンエコー量子メモリの原理実証、(2)半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明であった。(1)については、位相制御フォトンエコー測定系を新たに構築し、光パルス間の相対位相・相対振幅に符号化された情報を、歪補償半導体量子ドット集合体へ高い忠実度で書き込み・読み出しすることに成功した。この結果は、通信波長帯・広帯域・長時間帯域幅積・マルチモードパルスの適用を可能とする、今までにない性能をもつ固体量子メモリの実現可能性を示したものであり、十分評価できる。しかしながら、さきがけ期間中に行なうことが出来たのは高強度コヒーレント光を用いた原理実証実験であり、単一光子レベルの微弱光を用いた実験には至らなかった。その理由は、さきがけ期間中に2回研究場所を異動し、ほぼ1人で研究室を0から立ち上げなければならなかったことによるものであるが、一方でさきがけ期間中に自身の研究室をもち研究環境・基盤を整備することができたことは、さきがけ研究における大きな成果であったと言える。

(2)については、歪補償量子ドットにおける精度の高いフォトンエコー測定を進めることによって、励起子ラビ振動における新たな減衰メカニズムを解明したこと、位相緩和メカニズムのスペーサ厚依存性を明らかにしたことなどの成果を上げた。半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用に関して理解を深められたことは、意義のある成果であると言える。一方で、高光非線形をもつ量子ドットサンプルの探求まで至れなかったのは残念であり、今後研究を発展させていきたいと考えている。

5. 研究総括の見解

フォトンエコー法を用いた量子メモリの原理実証と、半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明に取り組み、従来の報告よりも数桁広い帯域の光パルス位相の書き込み・保存・再生・読み出しに成功した。また、励起子ラビ振動制御においても計算結果が実験結果を良く再現することを見出した。高い精度のフォトンエコー測定を可能とし、遷移双極子モーメントなど解析に必要な物理量をラビ振動実験とは独立に高い精度で求め、フィッティングパラメータを用いずにラビ振動の理論解析を行なったことが、本研究の独創的な点である。

主たる成果は次の3点である。

- (1)位相制御フォトンエコー系にて、歪補償半導体量子ドット集合体への高忠実度書き込み・読み出しに成功し、適用可能な光パルスの時間帯域幅積が 10^3 に迫ること、 10^2 個のマルチモードパルス列の適用可能性を確認した。
- (2)半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用解明において、励起子ラビ振動における新たな減衰メカニズムを解明し、入射光電場の空間分布と伝搬効果が、量子ドット集合体における巨視的ラビ振動の減衰に大きく影響することを初めて見出した。

研究成果は主に 5 編の原著論文に纏められているが、その高い評価は、「文部科学大臣表彰 若手科学者賞」受賞など多数の受賞、招待講演に結びついている。

今後、原理実証実験から単一光子レベルの微弱光を用いた実験へと発展させ、本研究で提案した手法が、通信波長帯・広帯域・長時間帯域幅積・マルチモードパルスの適用を可能にする今までにない性能をもつ量子メモリ実現の可能性開拓へと発展することを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

- ・ M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, "Optical Rabi oscillations in a quantum dot ensemble", *Applied Physics Express* **3**, 092801 (2010).
- ・ J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, M. Kujiraoka, K. Ema, and M. Sasaki, "Exciton coherence in semiconductor quantum dots", *physica status solidi (c)* **6**, 162 (2009).

Invited Paper

- M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Ensemble effect on Rabi oscillations of excitons in quantum dots”, *physica status solidi (a)* **206**, 952 (2009).
- J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, M. Kujiraoka, K. Ema, and M. Sasaki, “Correlation effect of Rabi oscillations of excitons in quantum dots”, *Journal of Luminescence* **128**, 1016 (2008).
- M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Radiative and non-radiative relaxation of excitons in strain-compensated quantum dots”, *Journal of Luminescence* **128**, 972 (2008).

(2)受賞

- 2008年7月 ICOOPMA08 Poster Prize
受賞者: M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki
表彰業績名: 「Ensemble effect on Rabi oscillations of exciton in quantum dots」
表彰主催団体: Third International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA08)
- 2009年4月 平成21年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞,
表彰業績名: 「通信波長帯における半導体量子ドット量子コヒーレンスの研究」
表彰主催団体: 文部科学省
- 2010年3月 第4回 日本物理学会若手奨励賞(領域5)
表彰業績名: 「歪補償半導体量子ドットにおける励起子量子コヒーレンスの研究」
表彰団体名: (社)日本物理学会

(3)著書・解説論文

- 早瀬潤子, “「量子ドットエレクトロニクスの最前線」第2編第3章第4節「通信波長帯における歪補償量子ドットの励起子コヒーレンス」”(分担執筆), 株式会社エヌ・ティー・エス (2011).
- 早瀬潤子, “松岡正浩・平野琢也・岩本敏監修「基礎からの量子光学」第3部第14章「量子ドットの基礎と量子情報分野への応用」”(分担執筆), オプトロニクス社(2009).
- 早瀬潤子, “光-量子ドット相互量子制御-量子メモリの実現に向けて-”, *レーザー研究* **37**, 38 (2009).
- 早瀬潤子, “量子ドットの基礎と量子情報分野への応用展開”, *オプトロニクス* 2008年6月号 (2008).

(4)招待講演

- 早瀬(伊師)潤子, “歪補償半導体量子ドットにおける励起子量子コヒーレンスの研究”, 日本物理学会 第65回年次大会, 岡山大学津島キャンパス (2010. 3.).
- 早瀬(伊師)潤子, “量子ドット集合体における励起子コヒーレンスの物理と制御”, 第7回先端光量子科学アライアンスセミナー, 慶應義塾大学日吉キャンパス (2010. 3.).
- J. Ishi-Hayase, “Exciton coherence in semiconductor quantum dots”, EXCON'08, Kyoto University, Kyoto, Japan (2008. 6. 25). *Plenary Talk*
- J. Ishi-Hayase, “Coherent dynamics of exciton qubits in strain-compensated quantum dots”, First International Symposium on Interdisciplinary Materials Science (ISIMS-2008), Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan (2008. 3.).
- 早瀬(伊師)潤子, “歪補償量子ドットにおける励起子コヒーレンスと光波・量子通信への応用”, 特定領域研究「新世代光通信へのイノベーション」第2回量子情報ミニ研究会, 地方職員共済組合有馬保養所瑞宝園 (2008. 7.).

(5) 学会発表(国際会議)

- J. Ishi-Hayase, M. Kujiraoka, S. Mitsutake, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Excitonic Rabi oscillations in a strain-compensated quantum dot ensemble”, 30th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2010), COEX, Seoul, Korea (2010. 7.).
- J. Ishi-Hayase, M. Kujiraoka, S. Mitsutake, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Effect of Inhomogeneity on excitonic Rabi oscillations in a quantum dot ensemble”, The 9th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials (EXCON’10), Novotel Hotel, Brisbane, QLD, Australia (2010. 7.).
- J. Ishi-Hayase, S. Mitsutake, M. Kujiraoka, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Multi-Wave-Mixing Photon-Echo in Strain-Compensated Quantum Dots”, International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics (ISQNN2009), Kamaba Research Campus, The University of Tokyo, Japan (2009. 11.).
- J. Ishi-Hayase, M. Kujiraoka, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Multi-wave mixing in strain-compensated quantum dots”, The 16th international conference on Electron Dynamics In Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON 16), Le Corum de Montpellier, Montpellier, France (2009. 8.).