

半導体量子ドットの励起子を用いた
光制御型量子情報素子の開発
に関する研究

目次

第1章	序論	3
1.1	ナノテクノロジーと半導体量子ドット	4
1.2	レーザ分光分析法	7
1.3	半導体量子ドットを用いた量子コンピュータ	8
1.4	本研究の目的と構成	16
第2章	量子コンピュータ基本素子	24
2.1	1qubit の回転ゲート	24
2.2	量子ドット間の相関	25
2.3	2qubit 制御否定 (2qubitC-NOT) ゲート	26
2.4	1qubit の回転ゲート実現方法 (ラビ振動)	27
2.5	2qubitC-NOT ゲート実現方法	30
2.6	量子ドット中における電子の状態密度と特徴	32
2.7	励起子 (エキシトン)	33
2.8	量子ドット中での励起子	34
第3章	半導体量子ドットの作成と観測装置	36
3.1	半導体量子ドット作成	36
3.2	結合量子ドットの作成	39
3.3	量子ドットの観測用加工プロセス	32
3.4	測定装置 (レーザ分光分析法)	43
第4章	単一量子ドットの発光特性及び制御	50
4.1	PL及びPLE測定	50
4.2	量子ドットの励起強度依存性	51
4.3	単一ドットの電子構造 (PLE 法)	54
4.4	量子ドットの荷電励起子	57
4.5	単一量子ドットのラビ振動	63
第5章	単一結合量子ドットの発光特性及び制御	70
5.1	結合量子ドットに生じる相互作用	70
5.2	結合量子ドットの結合状態、反結合状態の観測	72
5.3	単一結合ドットの電子状態	78
5.4	結合量子ドットのラビ振動	83

5.5	結合ドットにおける励起子分子の観測	89
5.6	励起子分子の詳細な発光特性及びカスケードプロセス	96
5.7	2量子ビットのゲート操作に向けた初期実験	107
第6章	総括	112

第 1 章 序論

近年、ナノメートルスケールの固体構造が技術的に作成可能なり、それに伴い量子力学を用いたデバイス応用が視野に入ってきた。特に近い将来、大きな壁に直面すると予想されている従来型のデバイスに対して量子力学が古典的な物理学と決定的に異なる点を積極的に利用した量子情報処理の研究も盛んに行われるようになってきている。その中でも代表的なものに量子コンピュータがある。量子コンピュータは、従来のコンピュータと動作原理が根本的に異なり、量子力学の特徴である状態の重ね合わせ、及び2つ以上の量子の別々の状態を重ね合わせることによって生じる量子力学的相関（エンタングルメント）という概念を導入した全く新しい方式である。計算の種類によっては、既存のスーパーコンピュータを遥かに凌ぐ能力があることが理論的に示されており、究極のコンピュータとして実用化が期待されている。しかしながら、この量子計算を実現する各種提案・方法が考えられているが、未だ実用化には至っておらず量子コンピュータの基本素子が実証され始めた段階にある。小型、高集積化という観点から、半導体技術を使った方式が最も有力視されている。半導体を用いた技術が注目されているのは、既存の半導体の製造・物性のノウハウが活用できることと、半導体量子ドットが比較的簡便に製作できる技術が確立され、それが量子力学的に優れた物性を持つ事が明らかとなった為である。本研究では、その半導体を用いた量子コンピュータ実現へのいくつかの手法の中でも、拡張性と観測・制御の容易性に優れ、比較的長寿命のコヒーレンスを持つ量子ドット中の励起子を用いた光制御型の方法に着目し、量子コンピュータの基本素子である、1量子ビット（1qubit）の回転ゲートと2量子ビット（2qubit）の制御 NOT ゲートの実現を目指した。本研究は、次の3つのコア技術を融合させる事によって初めて成立するものである。

- ① 半導体量子ドットと物性
- ② 量子ドットの量子状態を観測するレーザ分光分析法技術
- ③ 量子計算アルゴリズムとその実現方法

要素技術の研究の歴史に関してそれぞれ記述を行い、その後半導体量子ド

ットを用いた量子計算の利点について述べる。

1.1 ナノテクノロジーと半導体量子ドット

近年、ナノスケール（原子、分子レベル）での構造設計を用いたナノデバイス、量子デバイスといった研究が盛んに行われ、一般の社会生活においてもナノテクノロジーという言葉が良く聞かれるようになってきた。この背景には、微細化技術の進化により原子レベルでの設計が可能になった事と、ナノオーダー（ 10^{-9} m）領域においては、量子力学という新しい物理現象を利用できる事から、数々のデバイスの発展に大きなブレークスルーを与えてきた、また今後もこのような技術革新が期待されている。このナノテクノロジーの研究は特に半導体分野では顕著である。

半導体分野において、初めてナノ領域における量子力学の効果を用いた新しい物性の考案を行ったのは、1970年、江崎玲於奈、R.Tsu氏らによる量子井戸構造及び半導体超格子である[1,2]。層ごとに半導体物質が変わるヘテロ構造を多層に積み重ねた半導体超格子は、膜厚方向に周期的ポテンシャルを設けて自由電子の運動に摂動を与え、負性抵抗効果を実現する。この半導体超格子材料誕生以来、分子線エピタキシー（MBE）[3,4]や有機金属気相成長（MOCVD）[5]などの薄膜結晶成長技術は急速な発展をもたらした。そしてこの物質は従来予想もしなかった興味ある現象を数多く示した。整数及び分子量子ホール効果や室温でも現れる2次元励起子などは物性物理学の分野に新しい基本問題を提起し、工学的には高電子移動度トランジスタなどの電子デバイスや、階段状になる電子の状態密度を利用した量子井戸レーザなどが研究開発されている。

量子井戸構造は、膜厚方向に制限をかけて電子の運動を1次元方向に閉じ込めたものである。この電子の運動を2次元方向に閉じ込めたものが量子細線構造である。量子細線構造は、1980年に榊が超高速トランジスタの応用として提案し[6]、低温領域において電子の移動度が格段に上昇する事を予測した。

そして究極の3次元方向に電子の閉じ込めを行う量子ドット構造の概念は、1982年に荒川、榊らによってレーザの応用として初めて提案された[7]。量子ドットは、半導体原子が数個から数千個集まった数10nmの小さな塊である。この構造を可能にしたのは、結晶基板と量子ドットの材料間

の格子定数のミスマッチによるひずみを利用した Stranski-Krastanow(S-K)成長モード[8,9]という自己形成法がブレークスルーをもたらしたのである。この技術により、10 から 20nm 程度の横寸法を有する量子ドット形成が可能となった。1980 年代、分子線エピタキシー (MBE) や有機金属気相成長法 (MOCVD) を用いた InAs/GaAs ひずみ量子井戸構造の格子定数差を乗り越えた良質なヘテロエピタキシャル構造の研究が盛んに行われていた。その過程で、ある条件下で InAs を供給すると 3 次元島構造になる事が知られていた[10]。この S-K 成長モードの 3 次元立体構造を詳細に報告したのが 1985 年、Goldstain である[11]。彼らは、電子顕微鏡、フォトルミネッセンス (PL)、積層構造評価などを行い、0 次元、1 次元電子の実現が可能である事を示唆した。その後、1988 年に Berger[12]、1990 年に Guha[13]も InGaAs 自己形成ドットについて報告している。1992 年には田淵[14]、1993 年に Leonard[15]らにより、供給量の違う量子ドットからの PL 測定結果が統計的に示された。このようにして InAs 系半導体量子ドットの成長技術が確立した。

量子ドットの特徴を次に示す[16]

- ① 電子が 3 次元的に閉じ込めを受ける為に、エネルギー準位は完全に離散化される (量子サイズ効果)。
- ② この離散化されたエネルギー準位によって、原子に良く似た特徴を得る。すなわち、フォノン散乱等の散乱要因が大幅に減り、コヒーレンス時間の増大や長いライフタイムなどが得られる。
- ③ バンドエンジニアリングという量子ドットの大きさを変える技術により、空間的な閉じ込め度合いを変化させ、キャリアのエネルギー準位を自在に制御できる。
- ④ 3 次元閉じ込めにおいて、運動の自由度が空間的に制限される為、電子-正孔間のクーロン引力が実効的に強められ、励起子効果が顕著に現れる。

量子ドットにおいては、その構造から量子力学的な特性が予想され、様々な研究成果が報告された。その中でも特に重要な現象は

- ① 量子準位と多体効果
- ② 準位間の遷移と緩和

③ 量子コヒーレンス効果 などである。

量子ドットにおける多励起子効果は、Kuther らが InGaAs 量子ドットにおける磁気光学分光による励起子分子のゼーマン分裂を観測した[17]。鎌田らは単一 InGaAs 量子ドットの励起子から励起子分子を生成する 2 段階吸収プロセスを観測した[18]。Rodt らは自己形成 InAs 量子ドットにおいて、3 次元閉じ込め効果による励起子分子の束縛エネルギーがサイズ・形状に依存し、サイズが小さくなると励起子分子の束縛エネルギーが負になる事を実験と理論によって示した[19]。

1.1.1 量子ドット中のコヒーレント相互作用、位相緩和

単一量子ドットに特定の電磁場（光）を印加することによって、2つの励起子エネルギー準位をコヒーレントに操作できる。鎌田らは時間領域干渉法により、量子準位と光との強結合が量子ドットにおけるコヒーレントな操作が十分可能であることを示した[20]。Zrenner らはフォトダイオードの中に InGaAs 量子ドットを埋め込み、量子ドット 2 準位系の光励起によりフォトカレントを生成できることを示した[21]。また、量子ドット中の電子とフォノンとの相互作用についても研究が行われた。李と荒川は量子ドットにおける電子と音響フォノンとの相互作用を理論計算し、ドットサイズ依存性、温度依存性を示した[22]。戸田らは走査型近接場光顕微鏡（SNOM）を用いて、InGaAs 量子ドットの位相緩和時間を測定し、2つの量子状態間の量子ビートも観測した[23]。また、単一ドットの励起測定（PLE）法により擬似連続状態密度を観測した[24]。Verzelen らは、単一ドットの PLE、その温度特性、電場依存性を測定することで擬似連続状態密度の起源を示した[25]。Borri らは、InGaAs 量子ドットにおいて数百 ps という長い位相緩和時間を測定した[26]。同様に Birkedal らは、InAlGaAs 量子ドットにて励起子の位相緩和時間が 1ns を超えることを示唆した[27]。

以上のように量子ドットの物性が次第に明らかにされ、その利点を生かした応用研究も盛んに行われるようになった。その一例として、エネルギー効率や温度安定性に優れた量子ドットレーザ、量子力学的効果であるトンネル効果などの現象を利用し、電子 1 つ 1 つを制御する単電子トランジスタや、単一光子発生素子、量子ドットを用いた量子情報素子の基本素子

等などである。量子情報素子については、次節の項で詳しく述べるので、ここではそれ以外の応用例について概説する。

1.1.2 量子ドットレーザ

世界初の量子ドットレーザは、ベルリン工科大とヨッフエ研の共同研究で達成されている。これは MBE 法により閾値電流 $950\text{A}/\text{cm}^2$ 、発振波長約 $1\mu\text{m}$ で達成されている[28]。その後、富士通研[29]、ミシガン大学[30]、USCB[31]で報告された。現在は、通信波長帯レーザの実用化に向けた長波長化と閾値電流の低減及び室温動作を目標に研究が進められている。富士通研が室温で $1.3\mu\text{m}$ 、閾値電流密度は $160\text{A}/\text{cm}^2$ を達成した[32,33]。ニューメキシコ大は $1.3\mu\text{m}$ で最小閾値電流密度である $16\text{A}/\text{cm}^2$ を報告している[34]。最近では、 $1.5\mu\text{m}$ のレーザも報告されている[35]。

1.1.3 単一光子発生素子

単一光子発生素子は、量子暗号通信への応用として期待されている。量子ドットの励起子を用いた単一光子発生素子の実験は、Michler と Santori によって行われた[36]、[37]。量子ドットは単一光子発生にきわめて有用である事が示された。量子暗号通信を実現させる為には、光ファイバーを用いる事が必要とされ、量子ドットレーザと同じく通信波長帯での動作が必須である。竹本らは、InAs/InP 量子ドットを用いて $1.3\mu\text{m}$ 帯による単一光子発生を確認した[38]。また高温動作については、スタンフォード大の Engled によって GaN 量子ドットより 100K 以上での単一光子発生動作を確認した[39]。

1.2 レーザ分光分析法

半導体量子ドットは、数 nm～数 10nm のオーダーであるため、観測する側も高精度、高感度、高分解能な技術が求められる。最も良く使われているのは発光分光法（フォトルミネセンス）である。ルミネセンスというのは、何らかの形のエネルギー放出を光放出の形で行う現象であり、フォトルミネセンスはその 1 形態である。物質へのエネルギーの与え方によって（すなわち励起方法）によってカソードルミネセンス、エレクトロルミネセンス、放射線ルミネセンスなどが上げられる。その中でもフォトルミネセンスは励起光源が光であるものを指す。このフォトルミネセンスの

測定は古くから基本的な光物性の研究手段としてだけでなく、基礎・応用両面にかかわる強力なツールとして今日でもその重要性を増している。半導体分野では発光材料に要求される特性そのものの評価や、その根底にある基礎物性(不純物や欠陥の状態、材料の電子状態)を知ることが出来る。磁場効果、偏光特性などのさまざまなフォトルミネセンス測定が行われてきた。

励起光源にレーザを用いる場合の測定法をレーザ分析分光法と呼ばれる。レーザ分光分析法の利点を述べる。[40]

- ① 輝度、発光分光において励起光としてよく使われるのがキセノンランプである。レーザ出力が数W程度に対してキセノンは100W程度であり値だけ比較するとランプのほうが遥かに大きい、しかしレーザの場合は光を効率よく利用できるので単位面積あたりのエネルギー強度はレーザの方が大きい。
- ② レーザ光は単色、平行光線なのでレンズで絞ると波長程度の小さなスポットに集光することが出来る。
- ③ レーザ光は平行だけでなく光軸方向の安定性にも優れている。通常のランプ光では発光部分がちらつく為に光の進む方向に変動を生じるがレーザ光源は単色であるのでその影響がほとんど無い。
- ④ キセノンランプを使った分光法では、スペクトル幅は10nm程度であるに対してレーザは極めて単色で0.01nm程度のスペクトル幅である。このため単色が必要な本実験ではレーザが極めて有利である。特に、原子、イオン、量子ドットにレーザ光源を用いることは古くから報告されて1~3桁高感度な分析が行われた。

本研究では、レーザ分光分析法の一つである顕微発光分光法を用いた。これは高空間分解能を有し、微細な量子ドットの発光を観測可能にする。

1.3 半導体量子ドットを用いた量子コンピュータ

CPUを初めとする半導体大規模集積回路は毎年目覚ましい勢いで高集積高性能化している。高性能化の流れは、半導体の微細化技術の進歩によるところが非常に大きく、デバイスサイズと集積度の経年変化を示すムーアの法則として知られている。現在、CPUの微細加工技術は、配線間隔60nm

に達し、動作周波数においては 3GHz を超えるものが製品化されている。しかし、微細化によって消費電力に対するリーク電流の比率が大きく消費電力の増加を招いたり、またクロック周波数が高くなるにつれて素子発熱が大きくなり熱暴走を起こすなどの欠点が表面化してきているので、今後 CPU の性能向上には閉塞感も見受けられる。仮にこの 2 つの問題が解決されても、このまま微細化を進めていけば 2020 年頃にはデバイスサイズが原子サイズになる計算になる。その場合、電磁気学的な法則を用いた原理よりも量子力学的な効果が大きく現れてしまい、現在主流である CMOS トランジスタを初めとする主要なデバイスの動作原理は根本から破綻してしまう事が明らかである。この状況を打開する為に、逆に量子力学の動作原理を積極的に利用した量子コンピュータ[41]の研究が最近大きな注目を集めるようになってきている。量子コンピュータは量子効果を用いてデジタル計算を高速化するのではなく、現在のデジタルコンピュータでは不可能な全く新しい量子アルゴリズムを使う。量子コンピュータの最も重要な利点は、異なる 2 つの状態を量子力学により量子状態の重ね合わせが可能となる点である。重ね合わせ状態を利用すると、同時に多くの異なる数を表す状態を使うことができる。これを量子並列化[41]と呼ばれる。この量子計算の利点を証明する最も代表的な問題が因数分解問題である。たとえば、200 桁の整数因数分解をしようと思えば、現在世界最高のスーパーコンピュータでも数十億年という時間を要するが、量子コンピュータが実現されればわずか数分程度で解けてしまう事が理論的に証明されている。

[42]

量子計算の歴史は 1 つの計算ステップで生成される最小の熱量に関する学問から始まる。1961 年に Landauer はエネルギーの損失を必要とする論理処理だけが不可逆処理であることを示した[43]。その後、制御ビットが 1 の値をとるときに標的ビットの値を変えるという可逆制御 NOT ゲートを Toffoli が提案した[44]。Toffoli はまた可逆の 3 ビットゲート (CONTROL-CONTROL-NOT) はデジタル計算に対して万能である事、これらのゲートの組み合わせによってどのようなデジタル計算も作れる事を示した。

1980 年代に量子コンピュータの着想が Benioff [45]と Feynman[46]に

より紹介された。量子力学の状態によって表されるビットは可逆計算を与える量子力学の演算子を作用する事により時間発展させる事を示した。1989年に Deutsch は 3qubit の万能量子論理ゲートを示した[47]。彼は量子計算の重ね合わせ状態を利用する事によって、デジタル計算よりも量子計算の方が非常に強力になり得る場合がある事を示した。1993年に Lioyd は弱く相互作用している 2つの原子に電磁パルスを使って共鳴遷移を誘発させる方法を用いた量子計算の実装について示した[48]。1994年に整数の因数分解が出来る最初の量子アルゴリズムを Shor[49]が発見した事によって急激に量子計算が注目を浴びるようになった。因数分解を行う場合、既存のデジタル計算アルゴリズムでは対象となる数の桁数が1桁多くなるにつれて計算時間が指数関数的に増加するのに対して、量子計算アルゴリズムでは比例的にしか増加しない。速い因数分解のアルゴリズムは存在しないという観点から現代の暗号技術（例えば RSA などの公開鍵暗号系）が発達しているが、量子コンピュータの出現によって根本から破綻してしまう事が予想され潜在的脅威を意味する。1995年に Barenco 等[50]は、1 qubit の回転ゲートの組み合わせによる 2qubit の制御否定 (C-NOT) ゲートが量子計算において万能である事を示した。この発見により 2qubitC-NOT ゲートが量子計算にとって基本的で重要である事が示された。同年に、Cirac [51]は冷却により捕獲されたイオンにレーザ操作を行った量子計算の現実的な実装について提示した。最初の 2qubitC-NOT ゲートは、イオントラップの中の単一 Be⁺イオンに対してシラク・ゾラー法を使って Monroe[52]が実証した。そして 1997年、Chuang らは核磁気共鳴 (MNR) を用いた量子コンピュータの実現に関する実験を小規模 (5qubit 程度)で行い量子アルゴリズムが正しい事を実験によって証明した[52,53]。そのため、この量子計算を物理的に実現し量子コンピュータを構築しようという研究が盛んに行われるようになった。

では実際に量子コンピュータを実現させる条件は、どのようなものだろうか？ DiVincenzo は物理系に必要な 5つの条件を提示している[55]。その中でも特に重要な4つの条件を示す。

- ① 性質の良く分かった量子ビット (2準位系) を必要な数だけ用意できる事。

- ② 初期化が可能である事。
- ③ コヒーレンス時間がゲート操作時間に対して十分長い時間保たれる系である事。
- ④ 基本量子論理ゲート (1qubit の回転ゲートと 2qubit C-NOT ゲート) が実行可能である事。

①の条件は、量子ビットにとって必要な条件は、「0 または 1」の重ね合わせ状態を保持できることである。この重ね合わせ状態は量子力学に特有の現象である。この状態を取る事ができればどんなものでも量子ビットの候補になりえる。

②の条件は、量子ビットをある決まった状態 (0 または 1) にできる事を意味する。これは現在のコンピュータと同じである。

表 1 量子コンピュータの候補と現状

候補	コヒーレンス時間 (s)	最大計算 ステップ数	現状
NMR	10^2	10^5	12qubit のアルゴリズム
線形光学素子	10^{-4}	10^6	3qubit のアルゴリズム
電気力学キャビティ	10^{-2}	10^4	2qubit のゲート操作
イオントラップ	10^8	10^{13}	2qubit のゲート操作
量子ドット	10^{-8}	10^4	2qubit のゲート操作
超伝導(クーパ対)	10^{-6}	10^4	2qubit のゲート操作
量子ドットスピン	10^6	10^{12}	1qubit

③の条件は、重ね合わせ状態の破壊に関するものである、量子コンピュータは重ね合わせ状態を使った並列計算機であるので、計算は重ね合わせ状態が壊れてしまわないうちに終了しなければならない。

④の条件は、この2つの論理ゲートができれば任意の量子回路を構成する事ができる。

現在、上記の条件を満たす幾つかの物理系が量子コンピュータの候補として研究が進められている材料系と現状を示した物を表1に示す[56,57]。

1.3.1 NMR 量子コンピュータ

スタンフォード大学の Gershenteld[58]とマサチューセツ大学の Cory[59]が分子中の原子の核スピンを qubit として用いる核磁気共鳴 (NMR) 量子計算を提案した、これは分子中の核スピンの向き (上向きと下向き) の方向の違いを qubit としてスピンの向きを磁界で制御する方法である。2001年には 7qubit[60]、2006年には 12qubit[61]のアルゴリズムの検証実験を行った。量子コンピュータの候補としては現在では最も進んでいる分野であるが、装置が非常に大掛かりになるということ、また qubit の数を増やそうとすると、1つの分子に含まれる原子の数を増やさなくてはならず複雑になってしまうことなどの本質的な欠点があるため現状技術のままでは 10 数 qubit 程度が限界と見られている。

1.3.2 線形光学素子量子コンピュータ

1996年、北海道大学の竹内らは qubit の数を N 個とした場合に、 $2N$ 個の光路を用意する方法を提案[62]し、1998年 3qubit のアルゴリズム検証実験を行った[63]。1個の光子を放出し、ハーフミラーを通したときにその光子がミラーで反射した場合と透過した場合を、qubit として扱う、すなわち光の粒で量子計算を行う方法である。この方法の欠点は qubit の数を増やした場合、必要となる光路の数は指数関数的に増える為、多ビット化が困難である事である。

1.3.3 超伝導素子を用いた量子コンピュータ

超伝導素子を用いた量子コンピュータとして、微小な超伝導内部の電荷は必ず2つが対になって行動するという現象が知られている(クーパー対)この量を qubit として用いる方法が提案されている[64]。Vionによって重ね合わせ状態とその 1 qubit 回転ゲート[65]。山本らによって 2qubit が実証された[66]。その他、超伝導トンネル接合(SQUID)によって制御された磁束 qubit を用いる方法が考えられている[67]。この方法でも、やはり 2qubit 以上の多ビット化が難しいことと、デコヒーレンス時間が短いとい

う事、超伝導状態を用いる為、動作温度が極低温領域（数 mK）であり扱い難いという欠点を持つ。

1.3.4 半導体量子ドットを用いた量子コンピュータ

今まで述べてきた方法は、比較的研究が進んでいるのだが、集積化が困難であり実用向きではない。

半導体量子ドットを用いた方法は、序論最初の項目でも述べたように、今までの半導体微細化技術と材料系が利用できる。そのため今までのノウハウの蓄積もあり集積化が容易である。このような背景から、半導体固体デバイスは実用的な量子コンピュータの有力候補として注目を集めている。半導体量子ドットを用いた量子コンピュータの候補は、量子ドット中の電子準位を qubit として用いる方法、また励起子を qubit として用いる方法、そして量子ドットスピンを用いる方法の 3 つが考えられている。

1.3.5 量子ドットスピン量子コンピュータ

量子ドット中のスピンを用いる方法は、MNR での原子中の核スピンを 1qubit にしているのに対して、量子ドット中の電子スピンの上向き、下向きの状態を qubit として作用させる。1998 年に Loss らによって提案されている[68]。この方法の利点は、他の物理系候補よりも非常に長いコヒーレンス時間を持つ事である。実際、半導体中の電子スピンのコヒーレンス時間は μs オーダーである事が報告されている[69]。そして NTT 基礎研究所の藤沢らによって、電子スピンに関わる選択則が、自然界にある原子の場合と同様であることを実証し、人工原子中の電子スピンの量子コンピュータの演算の基礎となる 0 か 1 を表すメモリとして、十分な時間その記録を保持できる可能性を示した[70]。電子スピンは、長いコヒーレンス時間を持つ反面、近接するスピンとの相互作用が難しい点や、量子ドット一個だけに磁場を掛けるような技術が困難である問題点を持っている。

1.3.6 量子ドット中の電子準位、励起子を用いた量子コンピュータ

量子ドットの電子軌道準位を qubit として用いる方法は、1995 年 Barenco らによる提案から始まる[71]。この提案では、電子軌道準位の方法は、量子演算にレーザーパルスを用いる事ができ、1 個の量子ドットにアクセスできるなどの演算操作が比較的容易である利点を持つがサブバンド間電子軌道準位を用いるために、位相緩和時間が fs から数 ps と非常

に短い為、実用としては不適切と考えられた。しかし、この考え方を量子ドットの励起子に発展させた方式が 1998 年高知大学の枝松ら[72]や NTT の鎌田[73]らによって提案され実験が進められた。励起子とは、半導体中の伝導帯の中の電子と荷電子帯の中の正孔との間に強いクーロン相互作用が働いて束縛状態を作るものである。励起子がゼロまたはひとつ存在する状態を qubit とし、状態の任意の重ね合わせを制御する事で量子コンピュータの基本回路を構築する事ができる。特に量子ドットの場合は双極子能率の増大効果、状態の完全な離散化によるフォノン散乱の抑制による長い位相緩和時間を持つなどの特徴が上げられる。特に位相緩和時間においては、数百 ps の時間を持つことが報告されている[26]。ここで、半導体量子ドットの励起子を量子コンピュータに用いた場合の利点をまとめる。

- ① 量子ドット中の励起子 1 個のみを制御する技術が比較的容易である。また、qubit の集積化も原理的に可能である。
- ② 励起子の位相緩和時間は、比較的長い数 100ps である。量子ドットスピンよりも短い、フェムト秒超高速光技術等を用いる事で、演算時間を十分確保できる。
- ③ 初期化が簡単である。

いずれにしても、どの方法も量子コンピュータ実現に向けて模索している段階である。逆に言えば、多ビット化可能な技術のブレイクスルーがあれば量子コンピュータ実現に向けて大きなインパクトがある。以上のようにどの方式でも一長一短があり量子コンピュータの実現に向けて模索している段階である。しかし、半導体量子ドットを用いた量子コンピュータを実現するにあたり、励起子が最も適した方法であると考えられる。

量子コンピュータの基本量子ゲートは、1qubit の回転制御ゲートと 2qubitC-NOT ゲートである。このうち、励起子を用いた 1 qubit 回転ゲートの最初の報告は、2001 年 Stievater らによって GaAs/AlGaAs で作成した量子ドットを用いて励起子中のラビ振動を観測した[74]。同年、NTT の鎌田らのグループでは、InGaAs/GaAs 量子ドットを用いて、励起子のラビ分裂現象を報告した[75]。2002 年には、Htoon らが InGaAs/GaAs 量子ドットにて、パルス光源を用いたフォトルミネッセンス法でラビ振動の観測報告がなされた[76]。その後、Muller[77]、Besombes[78]、

Villas-Boas[79]、などからラビ振動の報告がされている。量子計算では、コヒーレント操作が必要である。この操作技術においては、Bonadeo[80]らが単一量子ドットで行った。その後戸田ら[23],や岡田ら[81]がマイクロソーン干渉計を用いて成功し、技術的に確立されている。

2qubit で必要不可欠となるエンタングルの観測には、まず単一量子ドット中の 2 つの励起子間においてエンタングルが観測された[82]。

一方、量子ドットを 2 つ並べた結合量子ドットにおいては、2001 年に Bayer らが近接した 2 つの量子ドットの量子力学的な結合を観測した[83]、その後、結合ドット中の量子力学的結合中の励起分子について報告された[84]、結合ドット中の相互作用について、Stinaffra と Krenner らは励起子間の電磁気学的結合をアンチクロスの観察によって明らかにしている[85,86]。2qubit C-NOT ゲートについては、2003 年 X.Li らによって単一量子ドット中の 2 つの励起子を用いた条件付回転ゲート (C-ROT ゲート) の報告が行われた[87]。彼らの用いた方法を図 1-1 に示す。

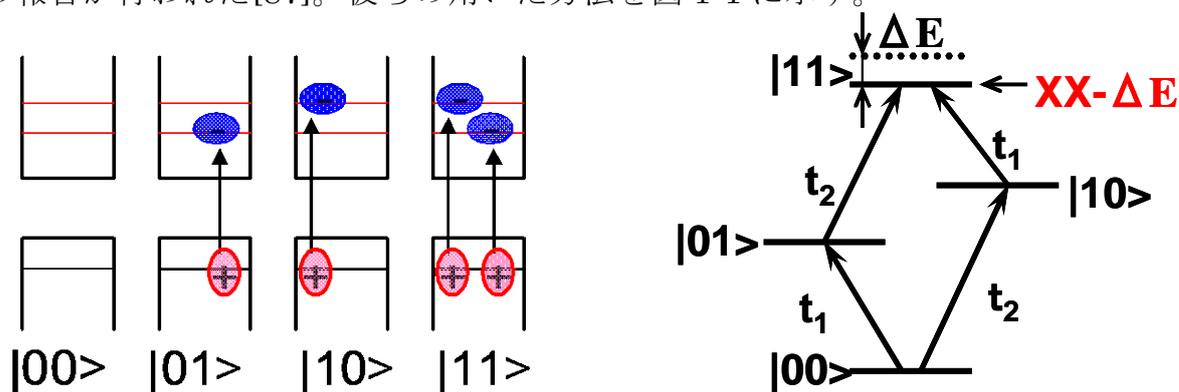


図 1-1. 単一量子ドット中の励起子・励起子分子状態を利用した 4 状態とそのエネルギーバンド図

単一ドット中の励起子と励起子分子を用いて 4 つの状態を表している。単一ドットの中には、スピンの異なった励起子が 2 つ存在する事ができる、すなわち、励起子が存在しない場合を $|00\rangle$ 、上向きスピンの励起子のみ生成された場合を $|10\rangle$ 、下向きスピンの励起子が生成した場合を $|01\rangle$ とすると、2 つの励起子が生成した場合には、お互いの励起子は結合してより安定 (低エネルギー) な励起子分子へと変化する。このときお互いのクーロン相互作用により、励起子のエネルギーより ΔE だけ低エネルギー側

にシフトする。この状態を $|11\rangle$ 状態として利用することができる。彼らは、 $|01\rangle$ と $|11\rangle$ 間の励起子遷移確率をラビ振動で確認し、制御 ROT ゲートを実現した事を報告した。しかしながら、この方法では、1 個の量子ドットの中に 2 つ以上の励起子を作る事が不可能である為、物理的に 2qubit 以上のゲートを作る事が不可能である。2qubit 以上の拡張性を持たせる方法は、近接した量子ドットを作り、その間の相互作用を利用する方法が考えられている[88]が、まだ実現はされていないのが現状である。

1.4 本研究の目的と構成

本研究は、量子コンピュータの基本素子である 1 qubit の回転ゲートと 2 qubit C-NOT ゲートを半導体量子ドットの励起子を用いて実現する事を目的としている。特に 2 qubit C-NOT ゲートについては、半導体量子ドットの励起子を用いた多ビット化可能な量子ドットの構造を提案し開発を行うことである。この目的を実現する為には、下記のステップが必要となるため、本研究でもこのステップに準じた構成としている。

第 2 章では、量子コンピュータの動作に必要な状態の重ね合わせ、量子もつれ合い（エンタングルメント）、1qubit 回転ゲートの動作原理、2qubit C-NOT ゲートの動作原理、半導体量子ドットの状態密度、励起子についての原理について解説する。

第 3 章では、量子ドットの作成方法及び観測装置について述べる。MBE 装置を使い S-K モードを用いた自己組織化 InAs/GaAs 半導体量子ドットの作成方法について述べる、そして 2qubit として半導体量子ドットを 2 つ上下に近接して配置し、さらに Indium-Flash (I-F) 法を用いて 2 つのドット間のバリア障壁厚みを精密に制御した結合量子ドットの作成について記述する。

第 4 章では、単一量子ドットの研究成果について述べる。量子コンピュータの基本素子である量子ドット 1 個を用いた 1 qubit の回転ゲートを制御できなければならない。この問題を克服する為には大きく 2 つのステップが必要である。

- ① 量子ドット 1 個（単一量子ドット）の励起子を観測し、電子構造を解明する。

② 単一量子ドットの励起子の制御（ラビ振動）

発光分光（PL）法と励起発光分光法（PLE）を用いて電子構造を解明し、そこから得られた電子状態を利用して励起子の制御を行い、回転ゲート操作であるラビ振動の観測を行った。

第 5 章では、2 qubit である結合ドットの研究成果について述べる。2 qubit C- NOT ゲートの実現に向けて次のような手順で実験を行った。

- ③ 1 対の結合量子ドットの励起子を分離・観測、そして結合ドット間に働く 2 つ励起子間相関を観測。
- ④ 結合ドット間に 4 つの状態（励起子が無い状態 $|00\rangle$ 、励起子が 1 個ある状態 $|01\rangle$ 、 $|10\rangle$ 、励起子分子状態 $|11\rangle$ ）が存在する事を確認する
- ⑤ 結合量子ドット中の 4 状態の制御（ラビ振動、励起子分子のカスケード）

単一結合量子ドットの励起子を分離・観測。そして、発光特性から結合量子ドットの電子構造を明らかにし、結合ドット間の励起子間相関を観測する。結合ドットの励起子—励起子間相互作用を利用して、2 qubit に必ず必要な 4 つの状態が存在する事を確かめる。次に、結合量子ドットの励起子の制御を行った。結合ドットにおけるラビ振動の観測、そして結合ドットの励起子分子のカスケード過程の観測、最終目標である 2 qubit の制御回転ゲート（2qubit C-ROT）初期実験を行った。

最後に第 6 章では論文全体を総括し、今後の課題、展望を示す。

本研究の位置付け

本研究は、科学技術振興機構が行っている「戦略的基礎研究推進事業（CREST）」の平成 13 年度採択されたプロジェクトの一環として行われた。産業技術総合研究所 光技術研究部門 光電子制御デバイスグループ 小森和弘グループリーダーを中心とするチームで構成された。研究課題名「光量子位相制御・量子演算に関する研究」プロジェクトの一翼を担うものである。

このプロジェクトは、高品質量子ナノ構造の開発とコヒーレント量子制御技術の開発の双方を通じて、半導体量子ナノ構造中で現れる物理現象（コヒーレント効果等）を利用する全く新しい光・電子デバイスの実現を

目指している。研究体制は以下である

量子ナノ構造・量子制御グループ

半導体量子ナノ構造の作成と超高速光物性、量子論理素子研究の応用

(1) 高品質量子ナノ構造の開発

菅谷武芳 : 高品質量子井戸、細線、ドットの作成と物性

山内掌吾 : 高品質量子ドットの作成と光物性

張起連 : 量子細線の作成と物性

(2) 微小空間計測・制御 & 励起子・スピン状態の制御

岡田工 : 顕微分光法による光物性とコヒーレント制御

五島敬史郎 : 顕微分光法による量子ドットの光物性&量子演算素子の

1~2 qubit 制御技術の開発

諸橋功 : 電界印加型量子ドット素子の光物性&制御

鹿内周 : 縦方向電界印加型素子の開発

本研究の位置付けは、「光量子位相制御・量子演算に関する研究」プロジェクトの中の「顕微分光法による量子ドットの光物性&量子演算素子の1~2 qubit 制御技術の開発」の研究テーマに沿うものである。

参照文献

- [1] L. Esaki and R. Tsu : IBM J. Res.& Dev. 14, 61 (1970)
- [2] L. Esaki and L.L. Chang and R. Tsu : Appl. Phys. Lett. 24, 593, (1974)
- [3] A. Y. Cho and J. R. Arthur : Prog. Solid State Chem. 10, 157, (1975)
- [4] L. Esaki and L.L. Chang : Thin Solid Films 36, 285, (1976).
- [5] N. Holonyac, R. M. Kolbas, W. D. Laiding, B. A. Vojac, R. P. Dupuis, and P. D. Dapkus: Appl. Phys. Lett . 38, 63, (1981)
- [6] H. Sakaki et al : Jpn. J. Appl. Phys. 19, L735 (1980)
- [7] Y.Arakawa and H. Sasaki : Appl. Phys. Lett. 40, 939 (1982)
- [8] I. N. Stranski and L. Von Krastanow : Wiss. Math-Nat.K12b,Debut. 146, 797 (1983)
- [9] D. J. Eaglesham and M.Cerullo : Phys. Rev. Lett. 64, 1943 (1990)
- [10] W.J. Schaffer, M.D. Lind et, al : J. Vac.Sci. & Technol. B1, 688 (1983)
- [11] L. Goldstain, F. Glas, J. Y. Martin, M. N. N. Charasse and G. Leroux : Appl. Phys. Lett. 47, 1099 (1985)
- [12] P. R. Berger, K. Chang, P. K. Bhattacharya, J. Singh and K. K. Bajaj : Appl. Phys. Lett. 53, 684 (1988)
- [13] S. Guha, A. Madhunkar, and K. C. Rajkumar : Appl. Phys. Lett. 57, 2110 (1990)
- [14] M. Tabuchi, S. Takahashi and A. Sasaki : Sci.&Technol. Mesosc. Struct., 379 (1992)
- [15] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars and P. M. Petroff : Appl. Phys. Lett. 63, 3203 (1993)
- [16] 荒川 泰彦 : 電気情報通信学会誌 Vol . 85 No. 11 pp.826-833 (2002)
- [17] A. Kuther, M. Bayer and A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schafer and J. P. Reithmaier : Phys. Rev. B. 58, R7580 (1998)
- [18] H. Kamada, H. Ando, . emmyo and T. Takagahara : Phys. Rev. B 58, 16243 (1998)
- [19] S. Rodt, R. Heitz, A. Schliwa, R. Sellin, F. Guffarth and D. Bimberg : Phys. Rev. B 68. 035331 (2003)
- [20] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara and H. Ando : Phys.

- Rev. Lett. 87, 246401 (2001)
- [21] A. Zrenner, E. Beham, S. Stufler, F. Findeis, M. Bichler and G. Abstreiter : Nature 418, 612 (2002)
- [22] X. Q. Li and Y. Arakawa : Phys. Rev. B. 60, 1915 (1999)
- [23] Y. Toda, T. Sugimoto, M. Nishioka, and Y. Arakawa : Appl. Phys. Lett. 76, 3887 (2000)
- [24] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa : Phys. Rev. Lett. 82, 4114 (1999)
- [25] O. Verzele, R. Ferreira and G. Bastard : Phys. Rev. Lett. 88, 146803 (2002)
- [26] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. sellin, D. Ouyang and D. Bimberg : Phys. Rev. Lett. 87, 157401 (2001).
- [27] D. Birkedal, K. Leosson and J. M. Hvam : Phys. Rev. Lett. 87, 227401 (2001)
- [28] N. Kirstaedter, M. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S.S. Ruvmov and J. Heydenreich : Electron. Lett. 30, 1416 (1994)
- [29] H. Shoji, K. Mukai, N. Ohtsuka, M. Sugawara, T. Uchida and H. Ishihara : IEEE. Photon. Technol. Lett. 7, 1385 (1995)
- [30] K. Kamachi, P. Bhattacharya, T. Sosnowski, T. Norris and J. Phillips : Electron. Lett. 32, 1374 (1996)
- [31] R. Mirin, A. Gossard and J. Bowers : Electron. Lett. 32, 1732 (1996)
- [32] K. Mukai, Y. Nakata, H. Shoji, M. Sugawara, K. Ohtsubo, N. Yokoyama and H. Ishihara : Electron. Lett. 34, 1588 (1998)
- [33] K. Mukai, Y. Nakata, H. Shoji, M. Sugawara, K. Ohtsubo, N. Yokoyama and H. Ishihara : IEEE. Photon. Technol. Lett. 11, 1205 (1998)
- [34] P. G. Eliseev, H. Li, A. Stintz, G. T. Leu, T. C. Newell, K. J. Malloy and L. F. Lester : Appl. Phys. Lett. 77, 262 (2000)
- [35] N. N. Ledentsov, A. P. Kovsh, A. E. Zhukov, N. A. Maleev, S. S. Mikhrin, A. P. Vasili'ev and D. Bimberg : Electron. Lett. 39, 1126 (2003)
- [36] P. Micher, A. Kiarz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang,

- E. Hu and A. Imamogulu : Science 290, 2282 (2000)
- [37] C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. Solomon and Y. Yamamoto : Phys. Rev. Lett. 86, 1502 (2001)
- [38] K. Takemoto, Y. Sakuma, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama and Y. Arakawa : Jpn. J. Appl. Phys. 43, L993 (2004)
- [39] D. Engled, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto and J. Vuckovic : Pys.Rev.Lett. 95,013904, (2005)
- [40] 国府田隆夫, 杉元宏 : 光物性測定技術 東京大学出版会
- [41] M. A. Nielsen and L. L. Chuang, quantum computation and Quantum Information (Cambridge Univ. Press, 2000)
- [42] P. W. Shor, Proc. of the 35th Annual Symposium on the Foundations of Computer Science, IEEE, Computer Society Press, pp 124, (1994)
- [43] R. Launder, et al , IBM J. Res. Devwlop., 5, 183 (1961)
- [44] T. Toffoli. In : Automata, Languages and Proqraming, Eds J. W. de Bakker, J. van Leeuwen, Springer-Yew York pp632 (1980)
- [45] P. Benioff, et al : J. Stat. Phys. 22, 563 (1980)
- [46] R.P. Feynman, et al : Opt. News, 11, (1985)
- [47] D. Deutsch : Phys. Rev. D, 44, 3197 (1991)
- [48] S. Liloyd, Science, 261, 1569.(1993)
- [49] P.W. Shor: Phys. Rev. A, 52, R2493 (1995)
- [50] A. Barenco, C. H. Bennett, R. Cleve, D. P. DiVincenzo, N. Margolus, P. Shor, T. Sleator, J. Smolim, H. Weifurter, : Phys. Rev. A. 52, 3457 (1995)
- [51] J. I. Cirac, P. Zoller : Phys. Rev. Lett. 74, 4091 (1995)
- [52] C. Monroe, P. Zoller : Phys. Rev. Lett. 75, 4714 (1995)
- [53] L. K. Grover, et al, Proceedigth : STOC, pp.212- 219,(1996)
- [54] I. L. Chuang, L. M. K. Vandersypen, X. Zhou, D. W. Leung and S. Liloyd : Nature 393, 143, (1998)
- [55] D. P. Divincenzo, G. Burkard, D. Loss and E. V. Sukhorukov : in Quantum Mezoscopic Phenomenoa and Mezoscopic Devices in Microerelectronics, (Kiuwer Academic, 2000) pp.399

- [56] 竹内繁樹, 井須俊郎, 応用物理学会誌 68, 1038. (1999)
- [57] 松本啓史, 富田章久, 今井浩 : Computer Today No.111 ,11. (2002)
- [58] N. A. Gershenfeld, I. L. Chuang, et al : Science, 275, 350,(1997)
- [59] D. G. Cory, A. F. Fahmy, T. F. Havel : Proc Natl. Acad. Sci. USA, 94, 1634, (1997)
- [60] L. V. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C.S. Yannori, M. H. Sherwood and I. L. Chuang : Nature 414, 883.(2001)
- [61] C. Negrevergne, T.S. Mahesh, C.A. Ryan, M.Ditty, F.C. Racine, W. Power and R. Laflamme : Phys. Rev. Lett. 96 170501, (2006)
- [62] S. Takeuchi : Proceedings of FOURTH WORKSHOP ON PHYSICS AND COMPUTATION, PhysComp 96 (1996)
- [63] S. Takeuchi : Phys. Rev. A, 62, 032301 (2000)
- [64] Y. Nakamura, Yu. A. Pashikin and J. S. Tsaki : Nature 398. 786.(1999)
- [65] D. Vion, A. Aassime, A. Cottet, P. Joyez, H. Pothie, C. Urbina, and H. Ando : Phys. Rev. Lett. 87, 246401, (2001)
- [66] T. Yamamoto, Yu.A. Pashkin, O. Astafiev, Y. Nakamura and J. S. Tsai : Nature 425, 941, (2003)
- [67] C. H. van der Wal, A. C. J. ter Haa, F. K. Wilhem, R. N. Schouten, C.J.P.M.HArmans, T. P. Orlando, S. Liloyd and J. E. Mooij : Science, 292, 773. (2000)
- [68] D. Loss, and D. P. DiVincenzo : Phys. Rev. A. 57, 120 (1998)
- [69] J. M. Kikkawa, I. P. Smorchkova, N. Samarth and D.D. Awschalom, Science 277, 1284.(1997)
- [70] T. Fujisawa, D. Austing, Y. Tokura, Y. Hirayama and S, Tarucha : Nature 419,278, (2002)
- [71] A. Barenco, D. Deutsch and A.Ekert : Phys. Rev. Lett. 74, 4083 (1995)
- [72] 松枝秀明 : 電気情報通信学会誌 A J81-A, 1678 (1998)
- [73] H. Kamada and H. Gotoh : Phys. Rev. B. 58 , 16243 (1998)
- [74] T. H. Stievater, Xiaoqin. Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi and L. J. Sham: Phy. Rev. Lett. 87, 1336 (2001)
- [75] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara and H. Ando: Phys. Rev.

- Lett. 87, 2464. (2001)
- [76] H. Htoon, T. Takagahara, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, Jr. and C. K. Shih; Phys. Rev. Lett. 88, 087401.(2002)
- [77] A. Muller, Q. Q. Wang, P. Bianucci and C. K. Shin; Appl. Phys. Lett. 84, 981. (2004)
- [78] L. Besombes, J. J. Baumberg and J. Motohisa; Phys. Rev. Lett. 90, 257402.(2003)
- [79] J. M. Villas-Boas, S. Ulloa and A. O. Govorov; Phys. Rev. Lett. 94, 057404.(2005)
- [80] N.H. Bonadeo, J. Erland, D. G. Gammon, D. Park, D. S. Katzer, D.G. Steel : SCIENCE 282, 1473 (1998)
- [81] T. Okada, K. Komori, K. Goshima, S. Yamauchi, I. Morohashi, T. Sugaya, M. Ogura and T. Hattori : Jpn.J. Appl. Phys. 43, 6093, (2004)
- [82] C. Chen, N. H. Bonadeo, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, L. J. Sham : SCIENCE 289, 1906, (2000)
- [83] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z. R. Wasilewski, O. Stean, A. Forchel : SCIENCE 291, 451,(2001)
- [84] X. Xu, D. A. Williams, J. R. A. Cleaver : Appl. Phys. Lett. 86, 012103, (2005)
- [85] E. A. Stinaff, M. Scheibner, A. S. Bracker, I. V. Ponomarev, V. L. Korenev, M. E. Ware, M. F. Doty, T. L. Reinecke, D. Gammon : SCIENCE 311, 636, (2006)
- [86] H. J. Krenner, M. Sabathil, E.C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter and J. J. Finley : Phys. Rev. Lett. 94, 057402, (2005)
- [87] X. Li, Y. Wu, D. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi and L. J. Sham, Science 301, 809 (2003).
- [88] E. Biolatti, R. C. Iotti, P. Zanardi, and F. Rossi : Phys. Rev. Lett. 85, 5647 (2000)

第2章 量子コンピュータ基本素子

量子コンピュータの基本論理ゲートは、1量子ビット（1 qubit）の回転ゲートと呼ばれる素子と、2量子ビット（2 qubit）の制御否定ゲート（C-NOT）の2種類があれば量子コンピュータに必要なすべての論理ゲートが用意できる。この2つのゲートの開発が非常に重要である。これらのゲートの基本動作について述べる。

2.1 1qubit の回転ゲート

現在（古典）のコンピュータにおいては、情報の基本単位（ビット）として0あるいは1のどちらかをとるが、量子コンピュータにおいては、0と1の重ね合わせをとることが出来る。これを量子ビット（qubit）と呼び、状態0を $|0\rangle$ 状態1を $|1\rangle$ と表す

$$|\Psi\rangle = a|0\rangle + b|1\rangle \quad (2.1)$$

$$|a|^2 + |b|^2 = 1 \quad (2.2)$$

で表される。ブラケットで書かれた2つの状態は、物理的には2準位系の2つの量子状態を表している。従って、qubitの実態は2準位系であれば何でも良く、1個の電子スピン、核スピン、超伝導ドットの電子状態、などさまざまな物が考えられているのはそのためである。

1qubitの演算で最も基本なのはNOT演算（回転ゲート）である。これは、

$$|0\rangle \Rightarrow |1\rangle$$

$$|1\rangle \Rightarrow |0\rangle$$

のように変換するものである。

ブラケットベクトル表記で表すと次式になる

$$|0\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad |1\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

この変換行列は

$$X = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

である。

量子計算ではこの事を次のように解釈する

1qubit 系において $|1\rangle$ と $|0\rangle$ の 2 つの基底で張られる 2 次元空間を
考えて入力状態から出力状態へ状態が変化したと考える。入力状態と出力
状態の確率は保存される（計算した後でのそれぞれのビットの確率は減少
しない）という事からこの変換はユニタリー変換と呼ばれる。

1qubit ではたいした演算が出来ないが、qubit 数が増えてくるといろい
ろな演算が可能である。2qubit になると、 $|00\rangle$ 、 $|01\rangle$ 、 $|10\rangle$ 、 $|11\rangle$
のように取り得る状態が増える。このときの入力状態から出力状態へ
の遷移は 4×4 のユニタリー行列で書く事ができる。ビット数が n 個ある
と、扱える状態数は 2^n となり qubit 数が増えるごとに扱える状態が指数
関数的に増加する事を意味する。しかも量子計算ではそれら多数の状態を
重ね合わせて 1 つの波動関数として取り扱う事ができる、これが超並列性
といわれ量子コンピュータの最大の特色である。

2.2 量子ドット間の相関

2 つの 2 準位系が相互作用する場合、2 つの状態は、4 つの基底 $|00\rangle$ 、 $|01\rangle$ 、 $|10\rangle$ 、 $|11\rangle$ の重ね合わせ

$$|\Psi\rangle = \alpha|00\rangle + \beta|01\rangle + \gamma|10\rangle + \delta|11\rangle \quad (2.5)$$

$$|\alpha|^2 + |\beta|^2 + |\gamma|^2 + |\delta|^2 = 1 \quad (2.6)$$

で表すことが出来る。

ここで特に

$$|\Psi\rangle = \frac{(|01\rangle + |10\rangle)}{\sqrt{2}} \quad (2.7)$$

である場合には、各々のビットの値は、0 であるか 1 であるか不明ではあ
るが、第 1 ビットが 0(1)であるならば第 2 ビットは必ず 1(0)という関係(相
関)がある。このような状態をエンタングルメント（量子もつれ状態）と
呼ばれ、2qubit C-NOT ゲートで用いられる

2.3 2 qubit 制御否定 (2qubitC-NOT) ゲート

量子回路の基本素子として、1qubit の回転に加えて 2qubitC-NOT ゲートがある。この式の変換は下記のようになる

$$|0\rangle_c |0\rangle_t \Rightarrow |0\rangle_c |0\rangle_t \quad (2.7)$$

$$|0\rangle_c |1\rangle_t \Rightarrow |0\rangle_c |1\rangle_t \quad (2.8)$$

$$|1\rangle_c |0\rangle_t \Rightarrow |1\rangle_c |1\rangle_t \quad (2.9)$$

$$|1\rangle_c |1\rangle_t \Rightarrow |1\rangle_c |0\rangle_t \quad (2.10)$$

ここで c は制御ビット、 t は標的ビットを意味している。このゲートの働きは、制御ビットが $|0\rangle$ のときは標的ビットに変化は無いが、制御ビットが $|1\rangle$ のときには標的ビットを反転させる。標的ビットだけ見れば古典ゲートにおける XOR になっているが大きく異なる点は、制御 NOT ゲートは 2 入力 2 出力である。古典ゲートの XOR や AND や OR の 2 入力 1 出力とは異なる。量子ゲートは量子力学のユニタリー変換であるため可逆でなくてはならない事実から来ている。量子ゲートは入力に重ね合わせ状態を入れる事ができる。例えば制御ビットに $|0\rangle + |1\rangle$ 、標的ビットに $|0\rangle$ を入力すると

$$(|0\rangle + |1\rangle)_c |0\rangle_t \Rightarrow |0\rangle_c |0\rangle_t + |1\rangle_c |1\rangle_t \quad (2.9)$$

のようにエンタングル状態を作る事ができる。エンタングル状態ではないときは、第 2 ビットの値は第 1 ビットの値では決まらない。これに対してエンタングル状態では、第 1 ビット (制御ビット) を読み出せば、第 2 ビット (標的ビット) の値はそれに従って決まる事を指す。

2 ビットの状態は

$$|\Psi\rangle = \alpha |00\rangle + \beta |01\rangle + \gamma |10\rangle + \delta |11\rangle \quad (2.11)$$

で示される

4 つの状態を行列で表せば

$$|00\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |01\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |10\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |11\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

で表されると変換行列は

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

と表す事ができる。

2 qubit C-NOT ゲートと同じ動作を行うものとして、制御回転ゲート (2qubit C-ROT) がある。動作を行列式で表すと

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

であり、制御 NOT ゲートとの違いは、4 行 3 列目が 1 か -1 であるかの違いである。これは、変換後のビット値の位相が 180° 反転することを意味しているが動作自体の違いが無いことが示されている [1]。

2.4 1 qubit の回転ゲート実現方法 (ラビ振動)

量子コンピュータを構成するための基本素子の動作に 1qubit の回転ゲートと 2qubit C-NOT ゲートについては述べたが、この動作で実際に量子ドットを用いて物理的にどのように実現させればよいのだろうか？それは、量子ドット中に現れる励起子の量子状態の時間発展そのものを利用する。

1qubit 回転ゲートに必要なラビ振動について述べる。ラビ振動は、理想的な二準位系を考えてこの二準位間のエネルギーに等しいコヒーレントな光を照射すると二準位間の存在確率が周期的に変化する現象である。

ここでは光を照射する事によって物質中の電子波動関数がどのように時間発展するかを考える。光との相互作用を摂動として電子状態をシュレディンガー方程式で表すと

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(r,t) = (H_0 + H') \psi(r,t) \quad (2.14)$$

となる。ここで H_0 は時間に依存しない定常状態のハミルトニアンである。光との相互作用項 H' として単色で正弦波的に振動する電磁波に対する相互作用ハミルトニアンは

$$H'(r,t) = \frac{H_0'}{2} (e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t}) \quad (2.15)$$

で表される。

一方、物質中の電子の波動関数は

$$\varphi(r,t) = \sum_n C_n(t) \phi_n(r) \exp\left(\frac{-i\mathcal{E}_n t}{\hbar}\right) \quad (2.16)$$

で与えられる。

ここで空間分布関数 $\phi_n(\mathbf{r})$ は正規直交関係を満たしている

$$\int \phi_n^*(r) \phi_m(r) dr = \delta_{m,n} = \begin{cases} 1 & n = m \\ 0 & n \neq m \end{cases} \quad (2.17)$$

式) (2.16) を (2.14) に代入して整理して時間成分 $C_n(t)$ の方程式で表すと

$$C_n(t) = -\frac{i}{\hbar} \sum_m \langle n | H' | m \rangle e^{i(\omega_n - \omega_m)t} C_m(t) \quad (2.18)$$

である。ここで

$$\langle n | H' | m \rangle = \int \phi_n^* H' \phi_m dr \quad (2.19)$$

この式を基にして二準位系のエネルギーに共鳴した条件下で光と強く相互作用する電子系の時間発展を考える。

上式を準位 $|a\rangle$ と準位 $|b\rangle$ の二準位で閉じた系を考えると

$$C_a(t) = -\frac{i}{\hbar} (C_a(t) \langle a | H' | a \rangle + C_b(t) \langle a | H' | b \rangle e^{i\omega_a t}) \quad (2.20)$$

$$C_b(t) = -\frac{i}{\hbar}(C_b(t)\langle b|H'|b\rangle + C_a(t)\langle b|H'|a\rangle e^{-i\omega_a t}) \quad (2.21)$$

これを回転波近似と双極子近似を用いて整理すると

$$C_a(t) = \frac{i}{2}R_{ab}e^{-i\Delta\omega t}C_b(t) \quad (2.22)$$

$$C_b(t) = \frac{i}{2}R_{ab}^*e^{i\Delta\omega t}C_a(t) \quad (2.23)$$

$$R_{ab} = R_{ab}^* = -\frac{H'}{\hbar} \int \phi_a^* r \phi_b dr = \frac{\mu_{ab}E_0}{\hbar} \quad (2.24)$$

が得られる。

ここで $\Delta\omega = \omega_{ba} - \omega$ であり、 μ_{ab} は遷移双極子モーメント、 E_0 は光電場、 $\omega_{ba} = (\epsilon_b - \epsilon_a)/\hbar$ である。

系の始状態が $C_a(0)=0, C_b(0)=1$ であるときでさらに光の周波数が準位間のエネルギーと完全に共鳴するときは、次式の関係がある

$$|C_a(t)|^2 = \sin^2 \frac{R_{ab}t}{2} \quad (2.25)$$

$$|C_b(t)|^2 = \cos^2 \frac{R_{ab}t}{2} \quad (2.26)$$

この式より、各準位の確率は光電場と一定の位相関係ながら振動数 R で交互に振動する事を表している。すなわち、電子は上下の準位間を光の吸収・放出を繰り返しながら往復している。

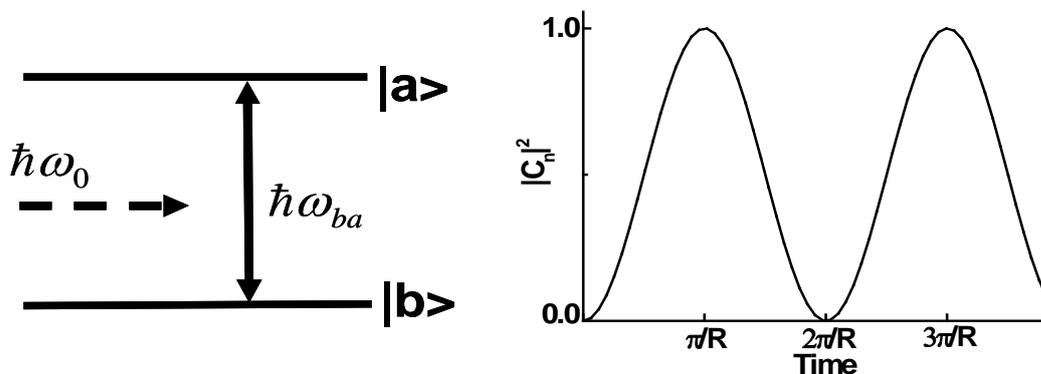


図 2-1 (a) 2 準位系電子状態の光との相互作用

(b) 共鳴条件下におけるラビ振動の模式図

$T = \pi/R$ を満たすような時間周期 T を与えるとちょうど下の準位から上の準位（又は上の準位から下の準位）に電子が移動する。この光電場を π パルスと呼び、量子コンピュータの 1qubit 回転ゲートの基礎動作として利用される。

2.5 2 qubit C-NOT ゲート実現方法

量子コンピュータのもう一つの基本素子である 2 qubit C-NOT ゲートの作り方について述べる。その基本動作については、上記にも示した通り 4 つ状態を満足させれば良い。具体的に励起子(電子-正孔対、詳細は後述する)を用いた 2qubit C-NOT ゲートの実現方法について述べる。

まず量子ドット励起子を qubit として利用するには、標的ドット(t-dot)と制御ドット(c-dot)の 2 つ必要になる。この 2 つの量子ドット間に量子力学的な相関が無くてはならないので、2 つの量子ドット間は、量子力学的な結合が現れるような十分近接して配置する必要がある。今、十分近接したサイズの異なった 2 つの量子ドットでは、励起子間に相関があるため、各ドット励起子の遷移エネルギーは、片側ドットの励起子の有無によって異なった値をとる。図 2-2 に 2 つの量子ドットのエネルギーバンド図を示す。ここで、 X_c は、c-dot 励起子のエネルギーを示す。 X_t は、t-dot 励起子のエネルギーを示す。近接した 2 つの量子ドット中の励起子間相互作用により、各々の励起子間遷移は他方の励起子が在る無しで異なった遷移エネルギーを取る。

今、制御ドット (c-dot) に励起子が無い場合の標的ドット(t-dot)の遷移エネルギーを X_t とする。また逆の場合で (t-dot) ドットの励起子が無い場合の (c-dot) ドットの遷移エネルギーは X_c と書く事ができる。そして、c-dot と t-dot の両方に励起子が存在する場合は、2 つのドットの励起子は相関によって結合し、より安定な状態（低エネルギー）の励起子分子が形成される。このときの t-dot ドットの遷移エネルギーは、この相関分だけ小さいエネルギー ($X_t - \Delta E$) に変化する。この変化したエネルギー ($X_t - \Delta E$) に相当するエネルギーで t-dot ドットの励起子がフリップすると 2 qubit C-NOT ゲートが完成する。

すなわち、c-dot、t-dot ドット共に励起子が無い場合が

$|0\rangle_c |0\rangle_t \Rightarrow |0\rangle_c |0\rangle_t$ に相当する。
 また、c-dot ドットに励起子が無く、t-dot ドットに励起子がある場合、
 $|0\rangle_c |1\rangle_t \Rightarrow |0\rangle_c |1\rangle_t$ である。

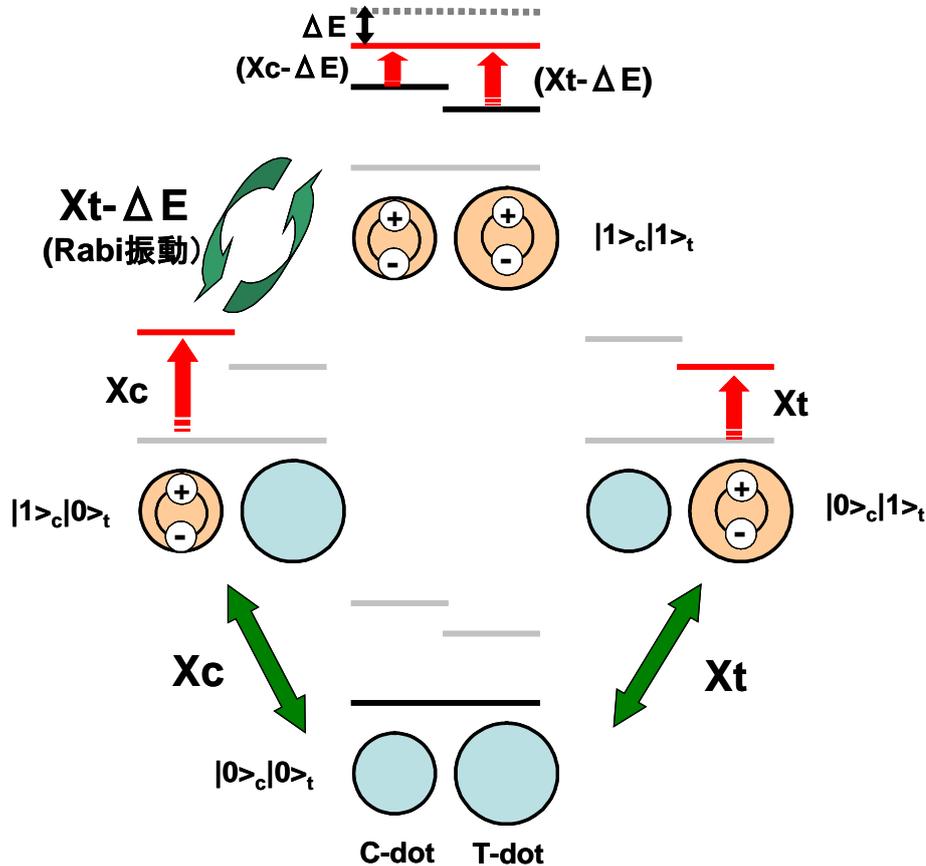


図 2-2 2つの量子ドットの励起子を用いた 2 qubit C-NOT ゲートのエネルギーバンド図。

c dot, t dot 両方の励起子が存在する場合は、結合して励起子分子となり X_c 、 X_t より ΔE だけ低エネルギーの共通した $(X_t - \Delta E, X_c - \Delta E)$ エネルギーを持つ。

次に c-dot ドットに励起子が有り、t-dot ドットが空の場合、図 2-2 に示すように変化分のエネルギー $(X_t - \Delta E)$ を与えれば t-dot ドットに励起子を生成させた事と同じになる。つまり、c-dot ドットに励起子がある状態で $|1\rangle_c |0\rangle_t$ と $|1\rangle_c |1\rangle_t$ の間に相当するエネルギー $(X_t - \Delta E)$ を与えれば、 X_t のエネルギーを与えなくても t-dot に励起子を作る事が出来る。そして励起子分子状態を作り出す事が出来る。

$$|1\rangle_c |0\rangle_t \Rightarrow |1\rangle_c |1\rangle_t \quad (2.27)$$

次に、c-dot 及び t-dot に励起子が有る励起子分子状態の場合は、 $Xt - \Delta E$ のエネルギーを失う事により c-dot のみ励起子がある状態に移行する。

$$|1\rangle_c |1\rangle_t \Rightarrow |1\rangle_c |0\rangle_t \quad (2.28)$$

になる。

よって、2 qubitC-NOT ゲートを実現する為には、(2.27) と(2.28)をコヒーレントな状態で行えば良い。すなわち、 $|1\rangle_c |0\rangle_t$ と $|1\rangle_c |1\rangle_t$ の間で 1 qubit 回転ゲートでも行ったラビ振動を行えば良い。この操作によって、2つの量子ドットの励起子を用いた 2 qubitC-NOT ゲート動作全てを行うことができる。

2.6 量子ドット中における電子の状態密度と特徴

バルク半導体中での電子の状態密度は、連続的なエネルギーとなる。言い換えれば、バルク半導体中において伝導帯に励起された電子は 3次元中を自由に動き回る事ができるため状態密度も連続的な値を持つと考えられる。

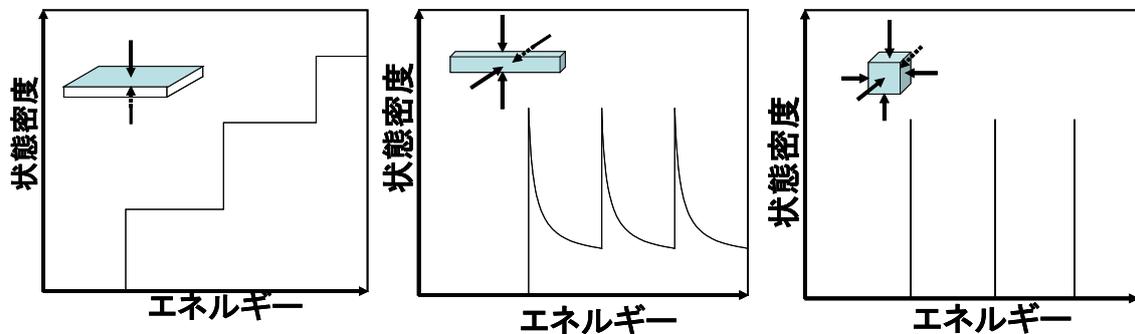


図 2-3 閉じ込めの次元に対する状態密度の変化

(a)量子井戸構造（電子の自由度：2次元） (b) 量子細線構造（電子の自由度1次元） (c) 量子ドット構造（電子の自由度：0次元）。図中の矢印は閉じ込め方向を示す

次に、1次元方向が閉じ込められた状態（量子井戸構造）での電子の状態密度を考える。閉じ込め方向の電子状態は連続的なエネルギーは取れず閉じ込め方向の電子状態が離散的になる事を意味する。従って、バルク半導体から 1次元方向の閉じ込めは量子井戸構造になり、2次元方向に閉じ

込められた場合は量子細線構造と呼ばれる。さらに究極は 3 次元方向を閉じ込めた場合でありこの状態を量子箱又は量子ドット構造と呼ばれる。量子ドット構造では全ての方向で波数の値が特定されてしまうので電子エネルギーも離散準位を形成する。閉じ込めの大きさが格子間隔に近づくと波数の離散化が著しくなり、エネルギーの状態密度は鋭い δ 関数の形状を示す。閉じ込めの次元に対する状態密度の変化を図 2-3 に示す。量子ドット内の電子はエネルギー、運動量とも離散化し、他の量子井戸や量子細線構造とは大きく異なる特性を示す。例えば、電子は局在して動きが制圧される為電子状態の散乱の原因ともなるフォノン状態は非常に少なくなる。これにより高コヒーレンスな電子状態を容易に作り出す事につながり、コヒーレンス制御を応用したデバイスなどが実現可能となる。

2.7 励起子 (エキシトン)

量子コンピュータの開発を目指すにあたり、本研究では、この qubit の担い手を半導体中の励起子を用いた方法を用いる。励起子を用いる利点は離散的な状態密度や比較的長い位相緩和時間などがある。この励起子について詳しく述べる。

励起子とは、半導体中の伝導帯の中の電子と荷電子帯の中の正孔との間に強いクーロン相互作用が働いて励起子と呼ばれる束縛状態を作ること以前から知られている。このため、バンド間エネルギーギャップよりもクーロン相互作用によって結合したエネルギー分だけ低エネルギー側に発光が現れる。励起子は結晶中を運動し、エネルギーを運ぶが電気的には中性になるので電気伝導には寄与しないが光学的性質には大きく寄与する。

励起子は 2 つの種類が有る。“強く束縛された励起子”であるフレンケル励起子と、“弱く束縛された”モット・ワニエ励起子である。前者は、イオン結晶や分子性結晶などで見られ、電子と正孔がごく近くに局在するものである。半導体においては電子と正孔が弱く束縛されるので励起子波動関数の広がり格子間隔よりもずっと大きいものになる。本研究で取り扱う励起子はモット・ワニエ励起子に相当する。また、励起子は 1 個の電子と 1 個の正孔により構成される。これは水素原子中の電子-陽子と同じ構成でありエネルギー準位の性質も良く似た形となる。そのため励起子の

光学スペクトルは離散的なスペクトルが観測される。

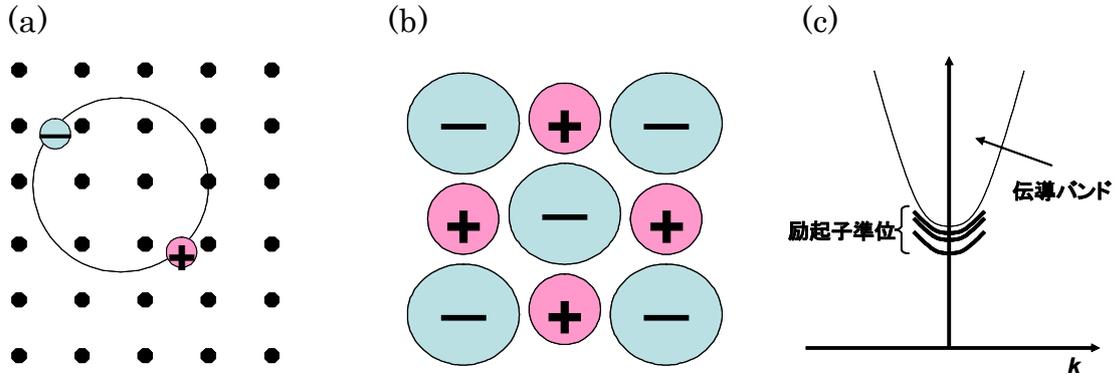


図 2-4 (a) モット・ワニエ励起子の模式図 電子とホールは平均距離は格子定数に比べ大きく自由に動く事ができる。(b) フレンケル励起子の模式図 電子とホールは局在している。(c)励起子描像によるエネルギー準位の模式図

2.8 量子ドット中での励起子

励起子は空間的な閉じ込めにより離散化した電子—正孔状態が形成される為、量子ドット中の励起子の空間的な閉じ込め半径 R_{QD} と励起子のボーア半径 a_{ex}^* (電子—正孔間の平均距離) の大小によって性質が大きく異なってくる。

$R_{QD}/a_{ex}^* > 4$ を弱い閉じ込め

$R_{QD}/a_{ex}^* < 2$ を強い閉じ込め

$2 > R_{QD}/a_{ex}^* > 4$ を中間の閉じ込めとしてそのときの励起子の状態について述べる

1) 弱い閉じ込め ($R_{QD}/a_{ex}^* > 4$)

クーロン相互作用が強く、量子ドットの寸法 (閉じ込め半径) が励起子ボーア半径よりも大きい場合に相当する。その結果、励起子の重心運動のみが量子化されるが相対運動(電子と正孔が一緒になって運動する事)はほとんど影響されない。そのため無限障壁を仮定できる場合には最低準位の励起子エネルギー状態は比較的簡単に扱う事ができる。

2) 中間の閉じ込め ($2 > R_{QD}/a_{ex}^* > 4$)

弱い閉じ込めと強い閉じ込めの中間にあるとき、励起子のクーロン相互作用

用の大きさがちょうど同じ大きさ寄与する為、取り扱いが難しい領域であり、正確な理論計算が出来ない。

例えば、量子ドットの寸法が励起子の重心に対する電子軌道半径と正孔軌道半径の間にあるとする場合に相当する。この場合、電子は量子化されるが正孔は量子ドットの閉じ込めと電子の空間電荷の作るポテンシャルの中をある程度動き回る事ができる。本研究の半導体Ⅲ - V属量子ドットではこの領域に当たる。

3) 強い閉じ込め($R_{QP}/a_{ex}^* < 2$)

弱い閉じ込めの反対に当たる。この領域では、励起子のクーロン相互作用よりも量子ドットの閉じ込めが強く、電子、正孔の相対運動が無い場合を意味する。この場合の無限障壁における励起子エネルギー状態は比較的簡単に扱う事ができる。

参考文献

[1] P. Chen, R.C. Lotti, P. Zanardi, F. Rossi : Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 167402

第3章 半導体量子ドットの作成と観測装置

この章では、半導体量子ドットの作成方法について述べる。半導体量子ドットの構成物質は数多くの材料系で報告があるが、本研究の作成した半導体量子ドット材料は、インジウムヒ素 (InAs) / ガリウムヒ素 (GaAs) を用いた。その作成方法や半導体量子ドットの出来る仕組みについて述べる。また、観測しやすいように作成した半導体量子ドットの表面にメタルマスクを施した。このプロセスについても記述する。作成及びプロセスについては本研究の主眼ではないので概略のみ説明する。

3.1 半導体量子ドット作成

半導体量子ドットは、一辺が nm オーダーレベルの極微細な島状の構造を持った塊の事を指す。この作成技術については、現在様々な方法が考えられており、その中でも大きく 2 つに分類すると、バルク半導体からプロセス技術を用いて nm オーダーの量子ドット構造を削り出す方法 (トップダウン式) とその逆の基盤上に作り出してゆく方法 (ボトムアップ式) に分けられる。トップダウン式での方法は、加工技術が向上しナノレベルの加工が出来るようになってきたとはいえ、まだまだ数十ナノレベルの加工が限界であり、作成時間が非常に掛かる上にプロセスにより試料がダメージを受けてしまうという欠点がある。対してボトムアップ的な方法は、エピタキシャル結晶中に量子ドットが自己形成的に自然形成されるので数多くの量子ドットを一度に作成する事ができる。しかしながら、各ドットの位置や大きさの制御が難しいという欠点を持つ。

本研究は、量子ドット作成技術では一番良く使われているボトムアップ方式を用い自己形成法を用いて量子ドットの作成を行った。

自己形成法を用いた量子ドットは異種材料間のヘテロ・エピタキシー成長によって作成される。基板の界面エネルギーと成長材料の料格子定数の差から 3 つの成長モード (Frank-van der Merwe: FvdM)、(Volmer-Waver: V-W)、(Stranski-Krastanow: S-K) が存在する。FvdM の成長モードでは、基板と成長材料がほぼ同一の格子定数を持つことが必要である。一般に V-W モード成長は、基板と成長材料間の格子定数差が大きい場合によく見

られる。基板と成長材料の間に格子定数差を持つ別の場合の成長モードが S-K 成長モードである。本研究での量子ドット作成はこの S-K 成長モードで作成された。図 3-1 に量子ドット形成過程を示す。初期成長過程では、歪を伴った FvdM モードとして層状成長層を形成する。成長が進むにつれて格子定数のミスマッチによる歪が蓄積され、ある臨界膜厚を超えると結晶の歪みに耐え切れなくなり 3次元の島状構造に移行する。初めに起こる層状成長層は 1 原子単位 (ML 単位) の非常に薄い量子井戸で Wetting Layer (濡れ層) と呼ぶ。このようにして量子ドットは作られる。

この量子ドットの製作技術は分子線エピタキシー (Molecular Beam Epitaxy、MBE) 法と呼ばれる半導体結晶成長技術を用いる。この成長技術の特色は 1 原子層程度の厚さの半導体結晶膜厚を制御する事ができ、界面急峻性、大面積一様性を備えており、半導体超格子や量子井戸はこの技術を用いて作られる。図 3-2 に MBE のプロセスと MBE 装置の原理図を示す。MBE は 成長チャンバー内を超高真空 (10^{-8}Pa 程度) にて行う。これは不純物混入の少ない高品質な結晶を得る為である。そして結晶成長の基となる基板結晶 (本研究では GaAs) を加熱し、セルと呼ばれる結晶成長させる為の原子 (本研究では In と As) を加熱する事によって発生する分子線が基板と相互作用する事によって単結晶薄膜が形

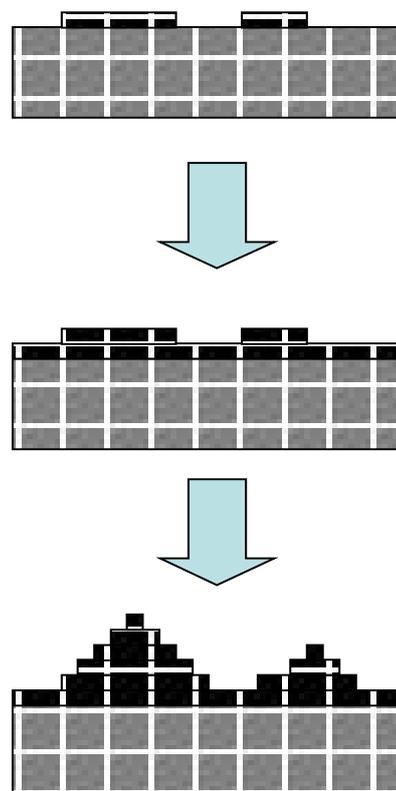


図 3-1
Stranski-Krastanow
成長モードの概略図

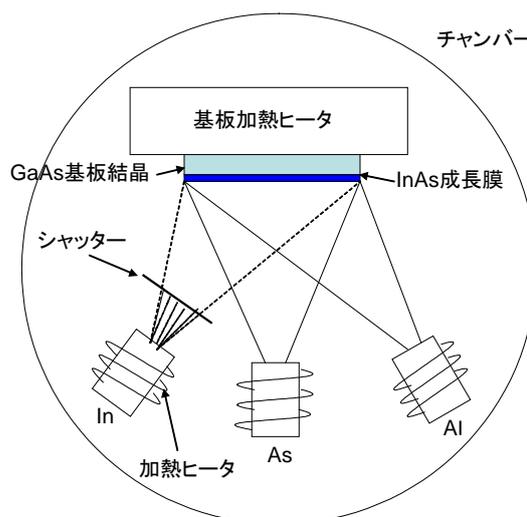


図 3-2 MBE 装置の原理図

成される。幾つかの蒸発源セルが用意され、それぞれに成長させる薄膜の構成元素が充たされている。蒸発源セルを一定温度で加熱し蒸発した分子線は基板方向に向かって噴出する。個々の蒸発源セルと基板の間には機械的に動くシャッターがあり必要な分だけの分子線を発生させる。セルより照射された分子線は基板に向かって流れて行き基板上に成長膜を形成する。この分子線の流れは一方向性を持っているのでシャッターの開閉時間を制御する事により薄膜の厚さを決める事ができる。また、成長表面を解析する表面解析装置（反射高速解析法）によって成長表面の結晶構造をリアルタイムで観測する事ができる。

実際の量子ドット成長において、InAs 量子ドットの大きさや面内密度は In 供給膜厚圧と基板の成長温度、成長レートの 3 つの条件によって決定される。この 3 つの成長条件は相互に複雑に絡み合っており、量子ドット成長時にはこの 3 つの条件パラメータを細かく変化させ最適な値を決めていく事になる。大筋の流れとしては、基板の成長温度を高くすると

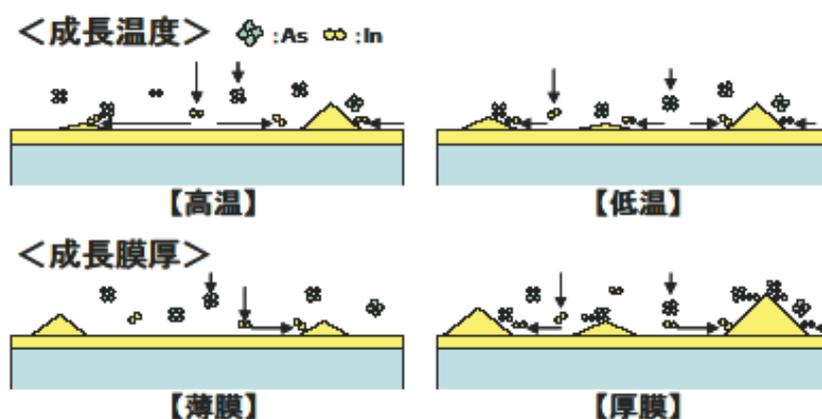


図 3-3 成長温度、膜厚の違いによる量子ドットの成長過程の概念図

低面内密度傾向になり、低 In 供給膜厚では低面内密度とドットサイズの縮小傾向、低成長レートで低面内密度とドットサイズの増大の傾向が得られる。その概念図を図 3-3 に示す。

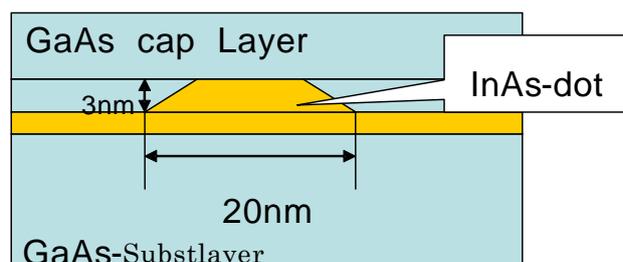


図 3-4 単一量子ドットの構成図

上記の方法によって作成した単一量子ドットの概略図を図 3-4 示す。GaAs 基板上に 1 層目の 1.65ML の InAs 濡れ層が形成されその上に InAs 量子ドットが形成されている。底面の幅は約 20nm、高さは 3nm である。量子ドットの形状は本来ピラミッド形状をしているがドットの高さを一定にそろえる為に Indium-Flush 法（後述）を用いている為ピラミッドの先端を切り落とした形（Trunketed）をしている。そして、その後量子ドットを保護する為にキャップ層として GaAs 層を 150 μ m 成長させている。

3.2 結合量子ドットの作成

次に量子ドットを 2 つ並べた結合量子ドットの作成方法について述べる。

結合量子ドットの作成法では、Q.Xie[1]らによって積層方向に整列した量子ドットの成長に関する研究が行われている。彼らの報告によると、積層方向に幾つかの量子ドットを成長させていくと一層目に成長した量子ドットの真上に 2 層目以降の量子ドットが整列する事が示されている。（図 3-5 参照）この理由は 1 層目の量子ドットによって 2 層目の GaAs 結晶に歪みが生じ、その歪みを In 分子が感じ取って量子ドットが成長するため、積層方向では量子ドットが整列して成長するという仕組みである。1 層目と 2 層目の GaAs 結晶の厚さは 10nm 程度でも歪みが残っているため 90% 以上は積層方向に整列する報告がされている。

このように 2 つ以上のドットを作成する方法は積層方向に成長すればよい。しかしながら、2 つのドットを単に積層して成長するだけでは不十分

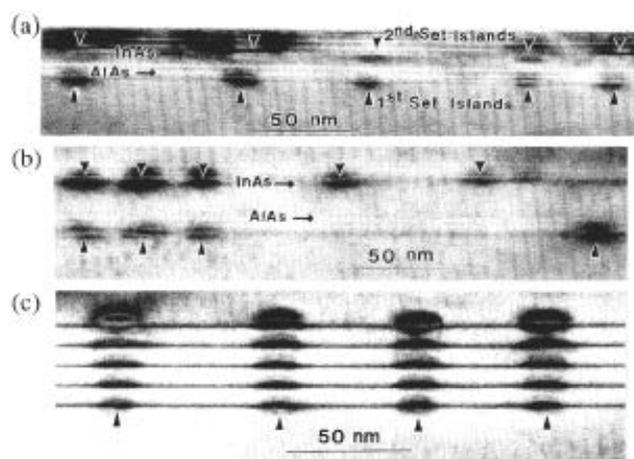


図 3-5 成長方向に積層した量子ドット。

(a) 障壁層厚 46ML (20nm 程度)

(b) 障壁層厚 92ML(50nm 程度)

(c) 障壁層厚 36ML(10nm 程度)

障壁層厚が 10nm では 90%の確率で上下の量子ドット位置は揃っている。

である。その理由は、本研究の目指している結合量子ドットは量子力学的な結合を目指しているので、第一に1層目と2層目の間のGaAs層厚（障壁層）を3~7nmの高い精度で一定の間隔にする必要がある、なぜなら1nmオーダーの障壁層の違いによって量子力学的な結合の強さが大きく変化するためである。また、ドットサイズも1層目と2層目でバラツキを極力減らす事が必要である。

2-3 Indium Flush (I-F) 成長法

上記のような条件を充たす為に、本研究では、Z.R Wasilewski[2]が提案したIndium Flush法を用いてドット間障壁層の均一化を行い、合わせて2つの量子ドットサイズの均一化も改善を行った。以下に、I-F法による成長方法を説明する。

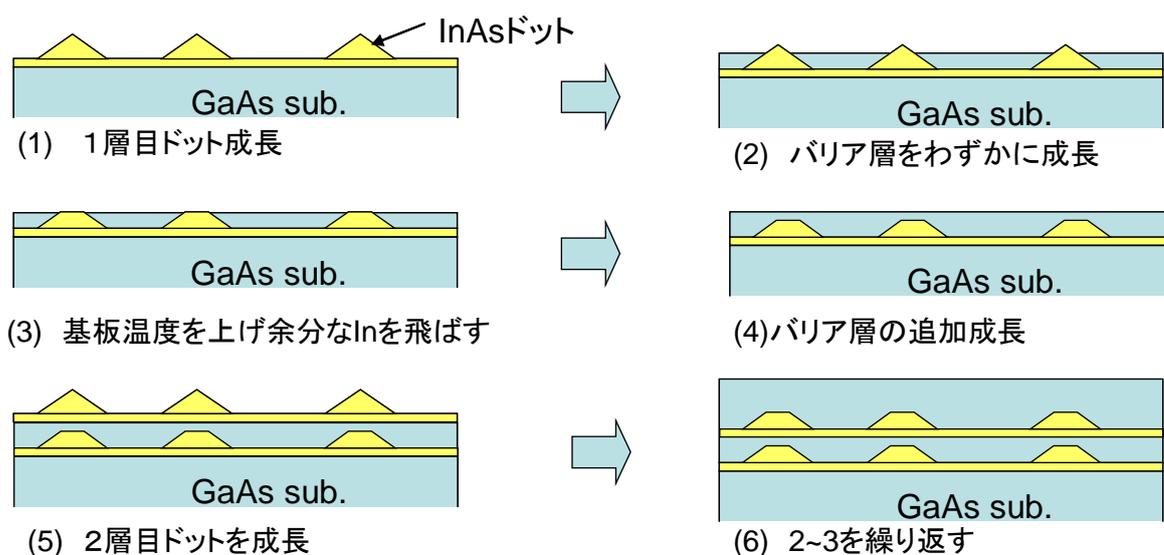


図 3-6 I-F法を用いた結合ドットの作成方法

- (1) 初めに、通常のS-Kモード自己形成法方法で量子ドットを成長させる。
- (2) 次に Partial-Cap 層と呼ばれる量子ドットの高さ以下の薄いGaAs層を成長させる。
- (3) 基板の温度を350℃ほど上げ、ただちに元に戻す。これにより Partial-Cap 層より飛び出しているIn分子を飛ばす。この時、同時にAsも飛ぶ。この理由としては、Asは再蒸発しやすく、普通

の成長条件では単独で表面に存在しにくい為である。この行程により、量子ドットの高さは **Partial-Cap** 層と同じになる。(I-F 行程)

- (4) 1層目と2層目の障壁層となる **GaAs** 層を成長させる。
- (5) 2層目の量子ドットを成長させる。このとき、1層目の歪みを感じるために2層目の量子ドットは成長が早いため成長時間を1層目より短く設定する。
- (6) 2層目にも I-F 行程を施す。
- (7) 最後に **GaAs Cap** 層で量子ドットを埋め込む。

このように、I-F 法を用いれば、均一な障壁層と歪みの少ない均一な結合量子ドット対を作成する事ができる。

本研究で用いた結合量子ドット試料の断面走査型透過電子顕微鏡 (STEM) 像を図 3-8 に示す。1層目 InAs 層厚=1.65ML 2層目 InAs 層厚=1.45ML、partial cap 層厚=3.5nm バリア層厚=7nm である。STEM 像で分かるように、2層目のドットが1層目の直上に成長しており、バリア層の歪みも出ていないことが分かる。

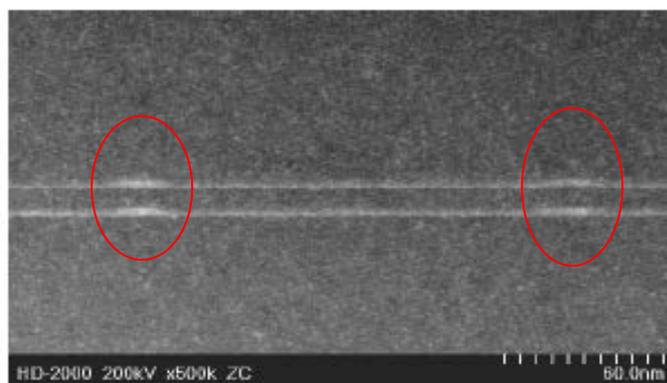


図 3-8 成長させた結合量子ドット。1層目のドットと2層目のドット位置は一致している

3.3 量子ドットの観測用加工プロセス

上記のように作成した量子ドット試料は、そのままでは観測には不向きである。その理由として、

- (1) 自己形成したドットの密度は約 $100\text{pcs}/\mu\text{m}^2$ の密度を持っている。

測定装置については次の節で説明を行うが顕微分光法では対物レンズを用いて対象範囲直径約 $2\mu\text{m}$ の中の量子ドットを観測する事が可能であるがそれでもざっと数百の量子ドットを一度に観測してしまう計算になり、ドット1個を観測するのは困難である。

- (2) 作成したドット試料には位置に対する目印が無く、同じドットを何度も観測する事が困難である。位置に対する再現性が悪い。

そのため、我々は試料表面に金属アパーチャマ

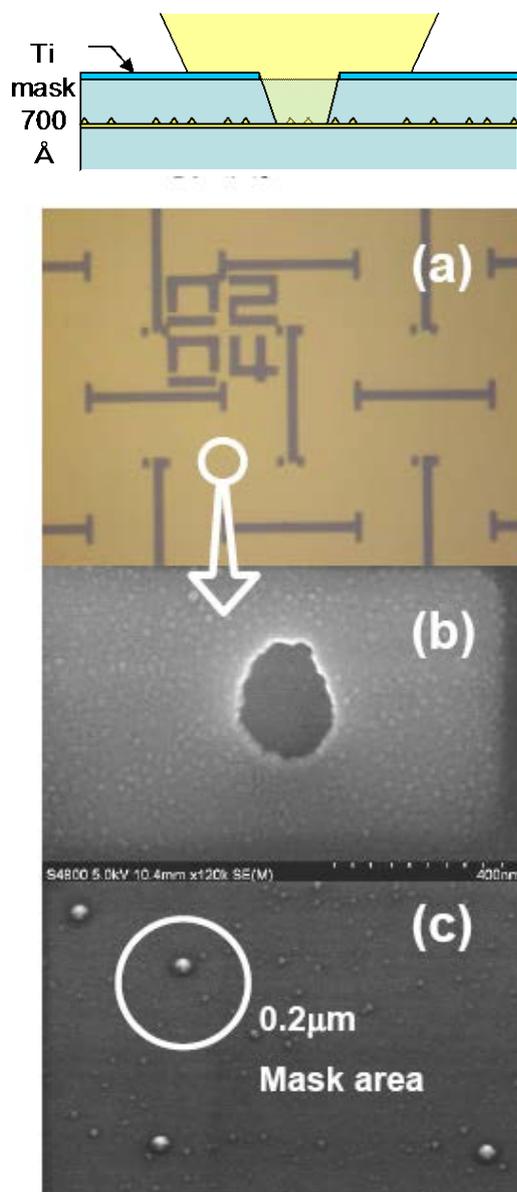


図 3-9 (a) 作成したメタルマスクのアドレス図
(b) 中心の拡大図 穴の直径は $0.2\mu\text{m}$
(c) 量子ドット密度に対するアパーチャーマスクエリアの関係。(アパーチャ $0.2\mu\text{m}$ 中に量子ドット1個が存在する程度)

スク加工を施した。この概略図を図 3-9 に示す。

マスク金属には Ti を用いてその厚みは 700 Å である。スポット径は最終的には $0.2\ \mu\text{m}$ で行った。対物レンズの集光径 ($2\ \mu\text{m}$) に対して十分小さいスポットであり、これにより観測個数が 1~数個程度に低減する事が可能になった、またマスクに位置アドレスを付ける事によってドットの位置再現性が向上し、観測効率が大幅に向上した。メタルマスクによる量子ドット観測の性能向上を発光分光法にて観測した例を図 3-10 に示す。メタルマスク 1 個の観測性が向上している事が分かる。径を適切に選ぶ事により、観測するドットの数には大幅に減少し量子ドット 1 個の観測効率が向上している事が分かる。

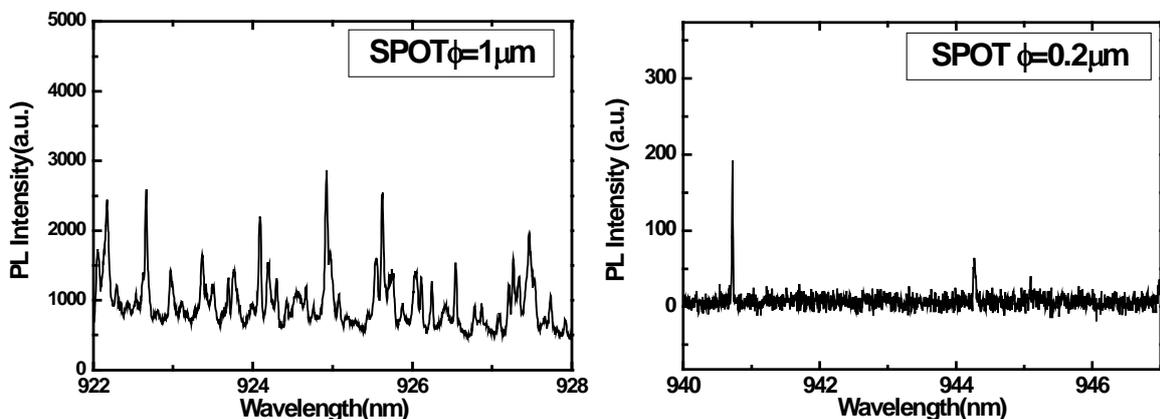


図 3-10 アパーチャスポット径における観測される量子ドット数の変化
スポット径 $0.2\ \mu\text{m}$ にする事で観測性は大幅に向上した。

3.4 測定装置（レーザ分光分析法）

半導体量子ドットに限らず、物質の物性を調べる方法としてはルミネセンスを利用した手法が最も良く用いられる。良く知られているように、ルミネセンスというのは何らか形でエネルギーを吸収した物質が、その逆の過程としてエネルギーの放出を光という形で行う現象であり、フォトルミネセンスはエネルギーの吸収を光によって行う方法である。光は物質中の電荷と相互作用し、その結果各々の物質に特有の応答を示す。このような光に対する物質固有の応答は、電子のエネルギー準位構造が光吸収や反射スペクトルを決定する。そのため物質の光吸収や反射スペクトルを観測す

る事で、その物質中の電子のエネルギー準位構造を詳しく調べる事ができる。フォトルミネセンスを利用したの測定方法は数多く存在するが、その中でも本研究では、顕微分光法という方式を採用した。この方法の利点は高い空間分解能が得られる為である。半導体量子ドットは自己形成法で作成されている為、サイズや環境のばらつきに起因する何らかの光学特性の不均一性を必ず伴う。本研究のように個々の量子ドットがそのような性質を持つのか、あるいは何か隠れた興味深い特性は無いか、ということ明らかにしたい場合には1つ1つを空間的に選択して観察しなければならない。図 3-11 に顕微分光法の測定系を示す。励起光源の発生には2段階で行う。初段に高出力グリーンレーザ (VerdiV10) により 532nm、出

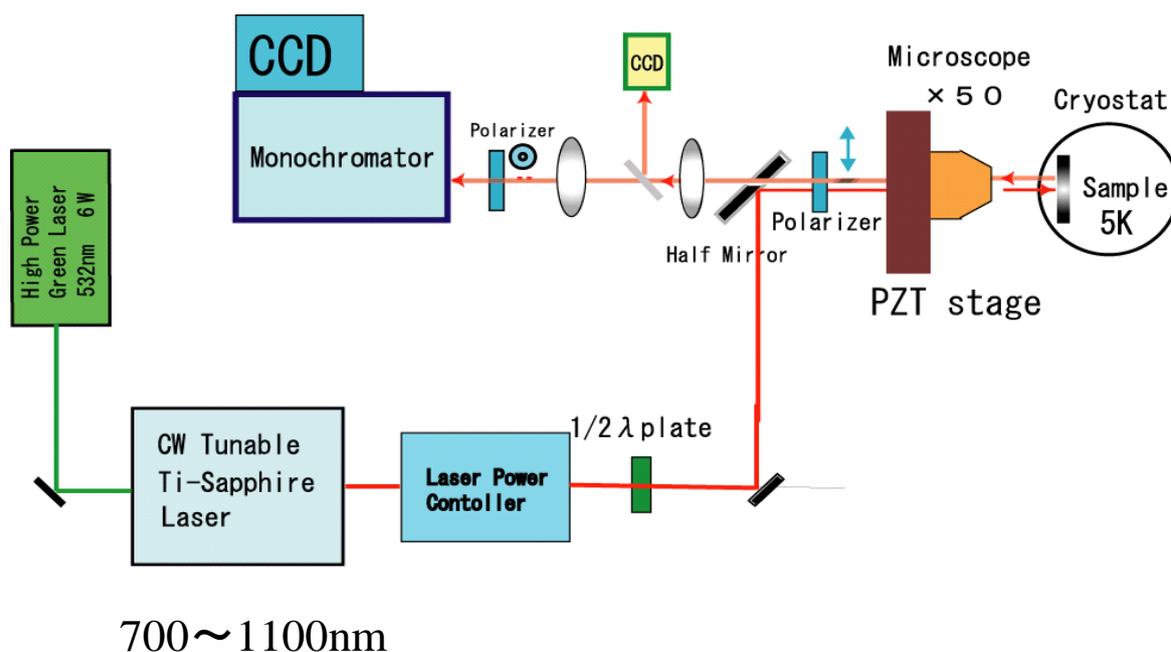


図 3-11. 顕微分光法の測定装置外略図

力 6W を発振させる。このレーザは電源内に配置したレーザダイオード出力 (波長 808nm) を用いて Nd:YVO4 結晶を励起、さらに非線形光学結晶 LBO を用いて内部 SHG 変換により効率よく発振させる。また、単一周波数は、共振器内のエタロンと光ダイオードにより単一進行波を維持させている。初段のレーザ光を励起光源として CW 可変波長チタンサファイヤレ

ーザ (899 Ring Cavity Ti:s) を駆動させる。CW レーザは 700nm ~ 1100nm、波長分解能は 0.02nm、出力は波長域によっても異なるが 200mW ~ 最大 1W である。波長可変は、内部の (Bi Refractive Filter) BRF をステッピングモータで回転させる事により任意の波長を取り出すことができる。CW レーザから得られたレーザーパワーは、選択した波長および時間的にも変化するため、そのままでは光源として使う事はできない。励起光源のレーザーパワーの安定化を図る為にレーザーパワーコントローラを設置した。この仕組みは、内部に核となる液晶フィルターが内蔵されており、それを挟んだ前後にフォトダイオード設置されている。レーザーパワーの変化を補正するように液晶フィルターの濃度を電氣的に変化させるものである。これによりレーザーパワーの時間的な揺らぎを 100ms の時間内で 0.01W 以下にまで低減させている。このように整えられた励起光はハーフミラーで反射し、50 倍の対物レンズ (ミットヨ製 NIR-50t) を通してスポット径が 2 μm に集光してサンプルに照射させる。サンプルが置かれているクライオスタッド内は真空である。ガラス製の窓を通して励起光がサンプル面上で焦点を結ぶ為には、ガラス厚み分 (3.5mm) の屈折率補正と焦点距離が 10mm 以上必要である。この条件を充たす特注の対物レンズを使用した。サンプルは、超低温である 5 K に保たれたクライオスタッドの中に設置されている。このクライオスタッドもフランス、パリ大学の研究所で特注に製作されたものである。クライオスタッドに要求される性能は高安定性と液体ヘリウム温度の持続時間である。サンプル面の位置安定性は 1 $\mu\text{m}/\text{h}$ であり、持続時間は 12 時間以上である。この仕様を充たす為に液体ヘリウム溜め込み式を採用している。量子ドットからの発光は励起光と同じ経路を通過してハーフミラーを透過する。通過した発光は 2 枚の凸レンズで平行ビームに整形され分光器に入る。分光器は焦点距離 1 m のダブルモノクロメータ (堀場製作所 U1000) を用いた。この分光器によってスペクトル分解能は 20 μeV (0.018nm) が可能および高速光除去性能を持つ。ドットからの鋭い発光スペクトルを捕らえる検出器は液体窒素冷却による高感度バックイルミネーションタイプの CCD (堀場製作所 CCD-3000) を用いる事によって微弱な信号を検出している。フォトルミネッセンス測定には、これらの実験装置 (CW Ti:s レーザ、パワーコン

トローラ、ピエゾステージ、分光器、CCD、自動ND) GPIBを通してパソコンにて統合的に制御している。実験目的に合わせて実験機器を自在に制御するソフトも独自に開発し自動測定を可能とした。

この実験系での一番重要な点は、サンプル面に照射する励起光の位置制御及び長時間安定性である。位置安定性の高いクライオスタッドや光学機器を用いてはいるが、量子ドットの発光分光では、わずかな数 nm の励起光軸のずれによって発光強度が大きく変化する。発光分光法では、発光強度の変化は重要なパラメータであるので、実験誤差による強度変化を極力低減する技術が必須である。対物レンズの位置決めには、当初高精度な XYZ ステージを用いていたが性能が足りず、より高精度な位置決めが可能なピエゾ素子を用いた XYZ ステージ (分解能 1.5nm) を採用し PC 側のプログラムによって最適な光軸を調整する事が可能になった。しかしこれだけでは不十分で時間安定性が 30 分程度と短い。この原因は、実験室の温度ゆらぎによるものである事が分かった。本研究で使用する測定装置の光路長は、10 数個のミラーで折り曲げながら 10m 近くの長さである。実験室は、エアコンにより $\pm 2^{\circ}\text{C}$ 程度に安定されているが、このわずかな温度変化とエアコン噴出し風の影響により光学ミラー類の収縮、膨張が原因と考えられる光路のズレが生じ、最終的なサンプル面での光軸のズレが無視できない。これを解決する為に定盤上に配置している実験装置全てをカーテンで覆って、温度変動の低減を行った。

次に重要な点は、CCD に入る量子ドットからの信号と迷光除去技術である。ハーフミラーとサンプル間では励起光ラインと発光ラインが同じ経路を通っている為、迷光除去が高い分光器を用いても励起光であるレーザー光の迷光が本来の発光を隠してしまう。そのため、励起光は 1/2 波長板と偏光板を通してサンプル直前で励起光の偏光を水平偏光になるように整え、分光器直前に 2 つ目の偏光板で垂直方向のみを入射させた。これにより、レーザー光の迷光をカットし量子ドットからの発光のみを検出することに成功した。これらの技術によって長時間安定した測定と、量子ドットからの微弱な信号を検出できる顕微分光系を構築した。

本研究では、以上のような高品質な量子ドットと高感度・高精度な顕微分光法によって、量子ドットの光物性評価を行った。

3.4.1 1 量子ドットのパルス励起測定装置

顕微分光法では、量子ドットの光物性を観測するのが主な役割である。量子コンピュータに応用させるには顕微分光法によって得られた量子ドット電子構造等の情報を基に実際に電子状態を制御する事が必要である。そのための実験装置について説明する。まず量子ドット1個の基礎論理素子である回転ゲート（ラビ振動）を光で制御するためにパルス励起光源を用いて、光強度と照射時間を制御する。図 3-12 に装置構成図を示す。

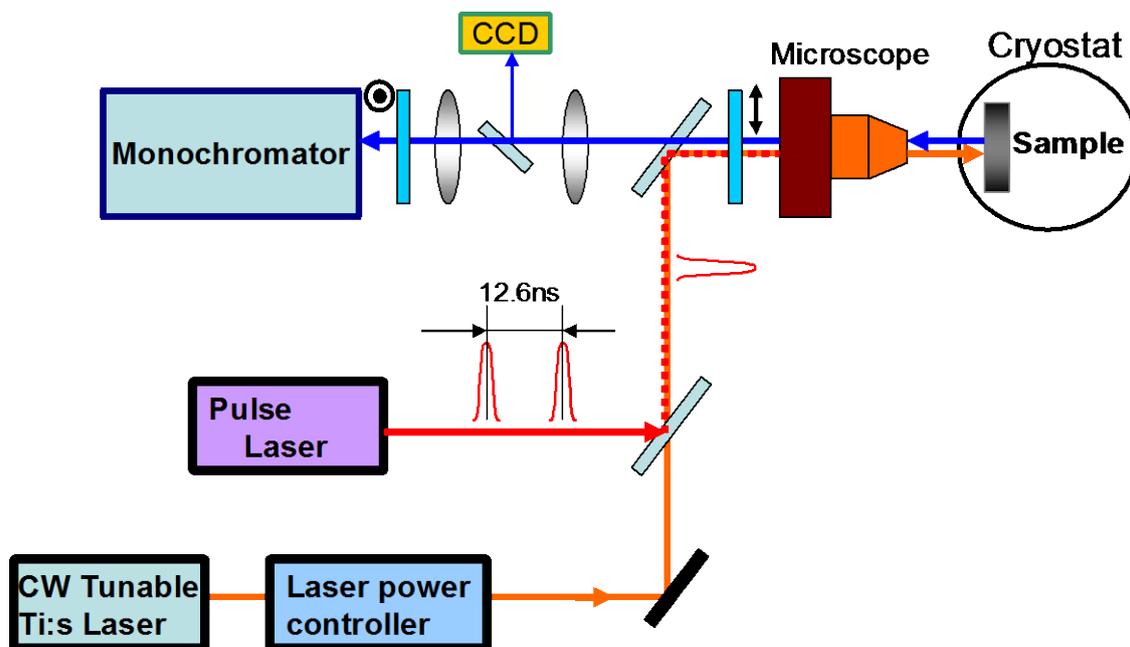


図 3-12 1 波長パルス励起装置構成を示す。顕微分光系にパルスレーザを追加し、同軸光路で入射させる。

本研究で用いたパルスレーザは、コヒレント社（Mira900P）である。このレーザはチタンサファイヤ Kerr レンズモードロックングを用いて超短パルスを発生させる波長可変レーザである。発生するパルスのパルス幅は 5ps、繰り返し周波数は 76MHz（12,6ns）、発振波長は 700～980nm、出力は、最大 2W である。また、パルス動作を行わなければ、手動の CW 波

長可変レーザとしても使用できる。パルスレーザ出力の光路は顕微分光とハーフミラーで同軸に入射させている。このように 2 つのレーザ光源を同一光路に配置する事により、顕微分光法によって量子ドットの電子準位を観測し、そのままパルス光源を制御に用いる事ができるため、観測効率が向上した。

3.4.2 結合ドットの観測と制御装置

結合ドットの観測においては、量子ドット 2 個をそれぞれ別々に励起する必要があるため、励起光源も 2 個必要になる。そのため図 3-13 に示す。実験装置の構築を行った。励起光源は 2 台のパルスレーザである。2 台のパルスレーザは、コヒレント社 Mira900P であり、上記のパルスレーザと仕様は同じである。これらの 2 台のレーザを CW 励起モードで使用する事により、結合ドットの観測を行った。2 つのレーザでそれぞれの量子ドットの励起子を生成させて、2 波長 PL 観測を行った。また、片方のドットに励起子を生成させておき、もう一方の量子ドットの電子状態を調べる PLE 方法（2 波長 PLE 法）により、結合ドット特有の物性を観測する事ができた。

3.4.3 結合ドットの制御方法

2 量子ドットの制御方法は、1 量子ドットと同じようにパルス光源を用いて制御する。ここで重要なのは、2 つのパルス光源のパルス時間差を高精度に制御する技術である。励起子のコヒーレンスが残っている時間内（数 ps）以内に制御する必要がある。これを可能にする為に、2 台のパルスレーザには、シンクロロックシステム（コヒレント社 Synchro-Lock AP）を設置した。シンクロロックシステムは、2 台のパルスレーザ発振器の共振器長を電氣的にコントロールして発振クロックの同期を取るシステムである。このシステムには、連続可変モードと高精度モードの 2 種類の設定ができる。連続可変モードでは、2 つのパルスタイミングを $\pm 12\text{ns}$ の間で任意に設定できるモードであるが、ジッターは 50ps と大きいため、パルスタイミングが 200ps 以下の微小な設定をする事ができない。高精度モードは、パルスのタイミングジッターを 250fs 以下にできるモードであるが、任意のパルスタイミングを作る事はできない。そこで片側の光路に電動ステージによる遅延線を設けて、 250fs の時間分解能で $\pm 1.2\text{ns}$

のパルスタイミングを作り出せるようにした。パルスタイミングは、2つの励起光を1つに合わせるハーフミラーで切り出してオートコリレーター（APE社 pulse check）で常に監視した。

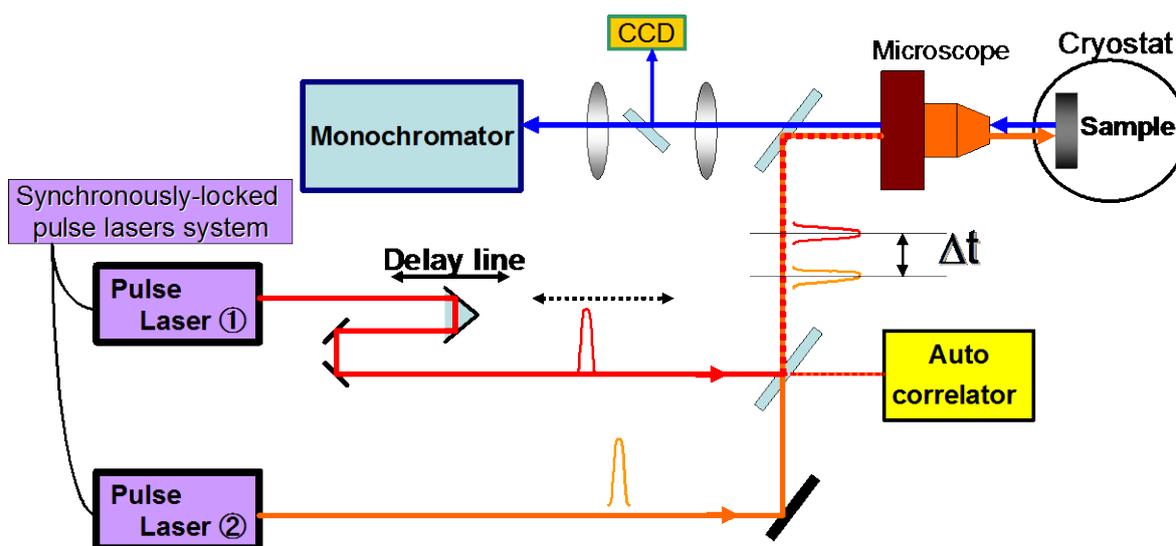


図 3-13. 2 波長パルス励起実験装置。2 つの励起パルスの時間タイミングはシンクロロックシステムと遅延光路（delay-line）によって構成されている。

単一ドット観測・制御、結合ドット観測・制御系の実験装置は、全て 1 つのシステムとして構築し、制御プログラム及び折りたたみミラーにて光路切り替えを行うだけで目的に応じた実験が行えるよう構成した。

参考文献

[1] Q.Xie, A. Madhuker, P. Chen, and N. Kobayashi : Phys. Rev. Lett. 75. 2542 (1995).

[2] Z. R. Wasilewski, S. Fafard and J. P. McCaffrey, J. Crystal Growth 201/202, 1131 (1999).

第4章 単一量子ドットの発光特性&制御

量子ドットを用いた量子コンピュータの開発を目指すにあたって、1 qubit 回転ゲートと 2 qubit C-NOT ゲートの開発が重要である事は、序論でも述べた。本節では、半導体量子ドット 1 個（単一量子ドット）の光物性特性、及び、単一量子ドットの制御を行い、量子計算の基本素子の 1 つである 1 qubit 回転ゲート動作を確認した。

サンプル試料及測定装置

本章で用いた単一量子ドットのドットサイズは、底面、高さが 20nm、3nm でありピラミッド型の試料である。測定には図 3-11 図に示す観測装置を用いた。

励起強度と量子ドット発光強度の関係について

励起レーザの励起強度と量子ドットからの発光強度の関係は一定ではなく個々の量子ドットによってバラツキが必ず生じる。この一番大きな理由として、メタルマスクに対するドットの位置が考えられる。すなわち、メタルマスクの中心では単位面積あたりの励起強度が最も強いので中心に量子ドットが存在すれば弱い励起強度でも発光強度は強くなるが、メタルマスクの端ではその逆になるので強い励起強度でも発光強度が弱くなる。そのため、本研究では、励起子分子の発光を基準としてそれ以下の励起子のみが発光する励起強度領域を弱励起、励起子分子の発光も観測される領域を強励起と表記して相対的に区別する。又、本研究での励起強度は実際に入射した励起強度の値を表示する。弱励起領域ではおおよそ $\sim 2\text{mW}$ ($\sim 1\text{kW}/\text{cm}^2$) 程度、強励起領域は 2mW 以上である。

4.1 PL 及び PLE 測定

単一量子ドットの電子状態を調べる為に PL 及び PLE 測定を行った。

図 4-1 にサンプル番号 1 の単一量子ドットの PL スペクトルを示す。このときの実験条件は、励起エネルギーは、 1.41eV でウェットティングレイヤー（濡れ層）のエネルギーに相当する。

実験結果より弱励起時において、1 本の鋭い発光線を観測した。これは、まさに 1 個の量子ドットの励起子からの発光を観測している。この発光状

態は、量子ドットの電子—正孔対の再結合を示している。この鋭い発光線から、量子ドットの電子状態は3次元閉じ込めによる電子状態の離散化を示しており、量子化された状態である事を示している。また、発光線幅は約 $20 \mu\text{eV}$ であり分光器の空間分解能以下である事が分かった。発光線幅 $\Delta\omega$ と寿命 τ の関係は、

$$\Delta\omega = \frac{2\pi}{\tau} \quad (4.1)$$

で表される[1]。光スペクトルの線幅は遷移の始状態と終状態の緩和時間(寿命)によって支配される。つまり電子がある準位に留まる時間が長くなると共に状態のエネルギーは幅を持たないようになるので、その状態に関する遷移のスペクトル幅も狭くなる。観測した発光線幅から得られた量子ドットの発光寿命は、数 ns 以上であり、半導体量子井戸や細線構造からの発光寿命(数 100ps) [2]と比べても桁違いに長い事が分かる。寿命が長い原因としては、主たるものが3次元閉じ込めによるフォノンに

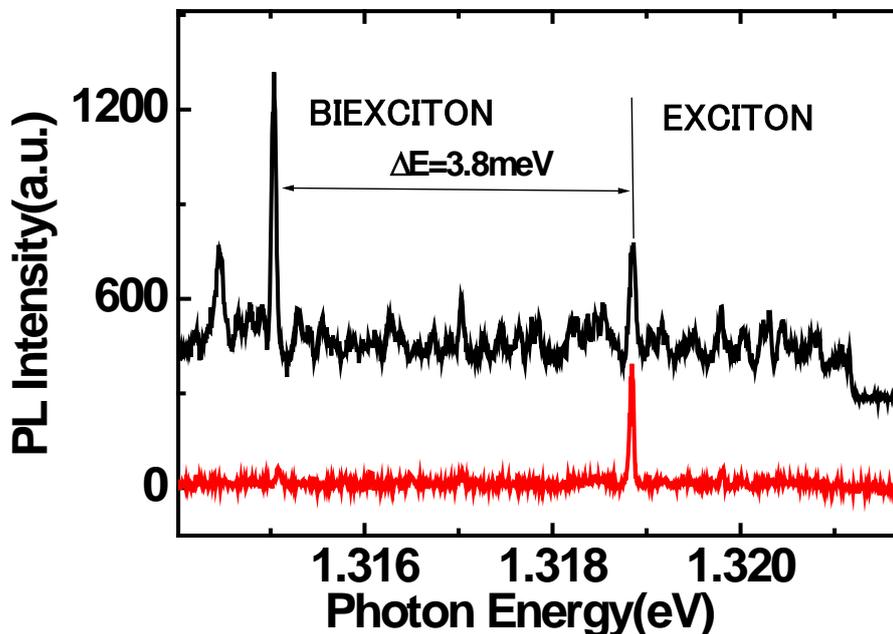


図 4-1 単一量子ドットの PL スペクトル

(下) 弱励起 $500 \mu\text{W}$ ($500\text{W}/\text{cm}^2$) での発光特性。

(上) 強励起 6mW ($5\text{kW}/\text{cm}^2$) での発光特性。強励起の場合は、レーザー迷光が取りきれずバックグラウンドノイズが増加して観測される。

よる散乱の大幅な減少である。その他の散乱としては励起準位への熱的散乱や近接ドットへのトンネリングなどが考えられるがその影響は小さい。いずれにせよ観測された発光線が非常に鋭い事から1個の量子ドットからの励起子の再結合による発光であることが分かる。

4.2 量子ドットの励起強度依存性

次に、量子ドットの発光ピークは、その励起する励起強度によってその様子が大きく変化する事が知られている。図4-1の下のPLは励起強度が弱励起 ($500\text{W}/\text{cm}^2$) での条件である。このときは、 1.3188eV に励起子による発光が観測されているが、図4-1の上での強励起 ($5\text{kW}/\text{cm}^2$) において、励起子による発光に加えて 3.8meV 低エネルギー側の 1.315eV 付近にも発光が現れる。励起強度と 1.3188eV 及び 1.315eV との PL 発光強度の関係を図4-2に示す。

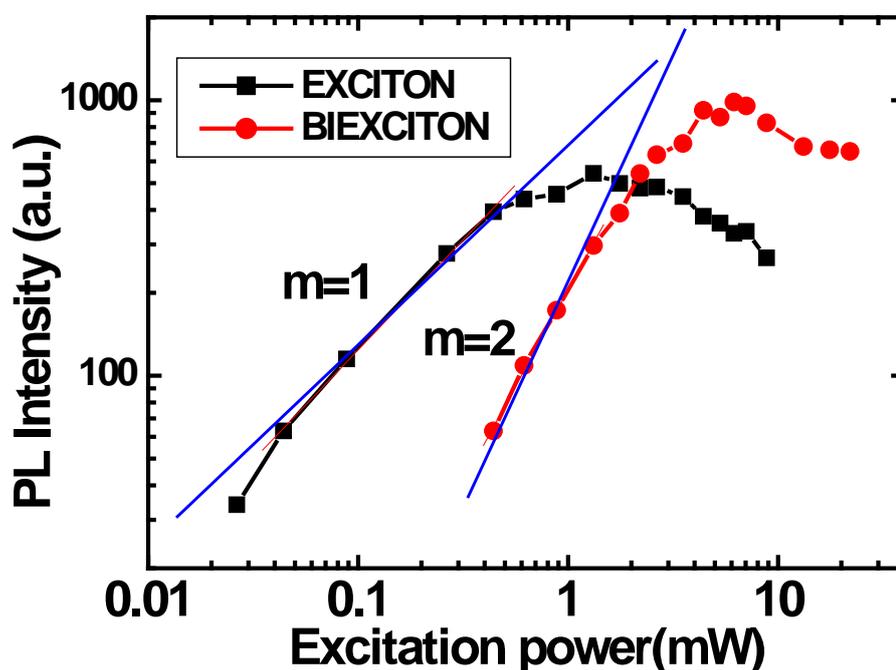


図4-2. 励起子 及び 励起子分子の励起強度依存性

m=1 は励起強度に対して線形に比例して増加している事を示す

m=2 は励起強度に対して2乗に比例して増加している事を示す

量子ドットの励起子発光強度は、近似的に励起子基底準位の占有率と再

結合速度の積で与えられる。占有率は再結合速度 $1/\tau_{re}$ とキャリア注入速度 $1/\tau_{in}$ で決まる事を考慮すると、 $\tau_{in}/(\tau_{in}+\tau_{re})$ で表される。注入されるキャリアが少なく $\tau_{in} \ll \tau_{re}$ の場合には、占有率は τ_{in}/τ_{re} に比例し小さい値をとる。この時発光強度は τ_{in} に比例する。一方、 τ_{in} が大きくなると占有率がほぼ 1 となり発光強度は τ_{in} に依存しなくなる。発光強度が τ_{in} に比例する事を考慮すると、図 4-2 では励起子発光強度が約 1mW までの領域では発光強度は励起強度に比例しており、それ以上の励起強度においては飽和傾向を示している事から、この辺りで占有率が 1 になったと考えられる。

これまで考えてきた発光は、励起子基底状態からの発光再結合である事を前提としてきた。量子ドットにおける離散準位ではパウリの排他律に従って光励起された励起子が準位を占有していく。励起子の占有率が 1 になり発光が飽和し始めると、低エネルギー側に発光ピークが出現する。この発光強度は異なる励起強度依存性を持つ事が分かる。この場合は励起強度

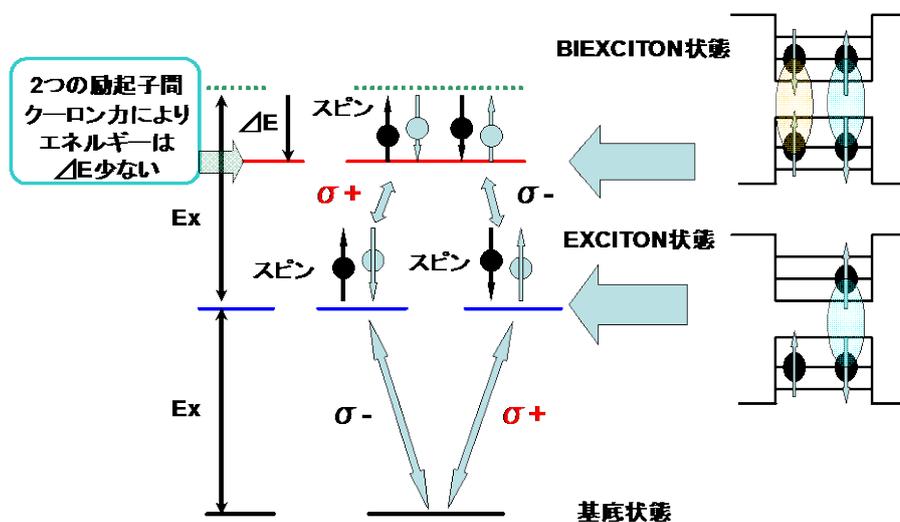


図 4-3. 単一ドット中の励起子と励起子分子の生成過程およびエネルギーバンド。 E_x は励起子 1 個が生成するエネルギーを示す。 $\uparrow \downarrow$ は励起子中の電子、正孔のスピンの向きを示す。励起子 2 個が結合した励起子分子の生成エネルギーは、 ΔE 少ないエネルギーを示す。 σ^+, σ^- は、円偏光の向きを示し励起子のスピンを制御する。

の 2 乗に比例した変化を示しており、励起子分子から励起子への光学遷移に対応し、異なるスピンを持つ 2 つの励起子が励起子分子として安定に存

在している事を意味している。

励起子分子の形成について図 4-3 を用いて詳しく説明する。励起子からの発光は、電子の基底状態と正孔の基底状態の再結合である基底状態は s 軌道であり、パウリの排他律法則に従うと、それぞれの軌道には、電子、正孔ともスピンの異なった 2 つの状態が存在する事が出来る。弱励起の場合を励起子はこの 2 つの状態の内どちらか片方の電子-正孔対が形成されている。しかし強励起下では、残されたもう一方のspin組み合わせによる励起子が形成される。このように、量子ドットの基底準位 (s 軌道) 中に 2 つの励起子が形成された場合を励起子分子と呼ぶ。

励起子分子からの発光ピークが励起子とは異なるエネルギーを持つ理由については、強励起の状態下で量子ドット中に生成される励起子分子は、局在した空間に存在する為、励起子同士はお互いクーロン相互作用を及ぼしあう。励起子分子のエネルギーは、励起子のエネルギーの 2 倍よりも相互作用だけ低いエネルギーのところで安定化される。量子ドット中の励起子間クーロン相互作用は非局在の場合に比べて増大するのでその束縛エネルギーの大きさは励起子と励起子分子の発光エネルギーの差として現れる。図 4-1 では束縛エネルギーは 3.8meV であるが半導体バルクの励起子分子束縛エネルギーが 0.2meV[4.5]に比べて閉じ込め効果が強く反映された結果である。

4.3 単一ドットの電子構造 (PLE 法)

今までは、量子ドットの電子と正孔の基底状態 (最低エネルギー) からの再結合発光について議論してきた。しかし、量子ドットには、基底状態の上準位 (励起準位) についても調べる事が重要である。この量子ドットの励起状態を調べる為には PLE(Photoluminescence

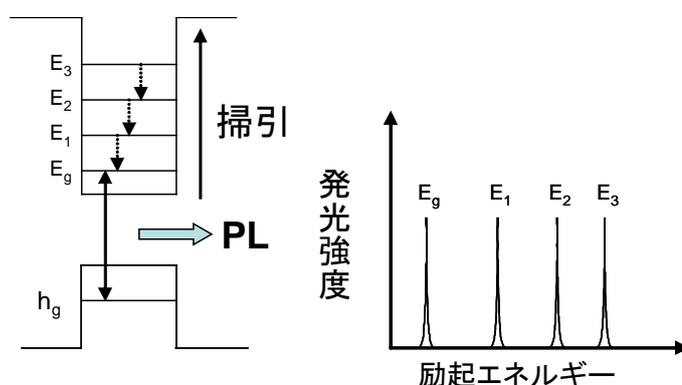


図 4-4. PLE 法の概略図 及び 得られる電子状態の実験結果。

excitation) という実験方法を用いて行う。PLE 法は、観測する量子ドットの発光に固定してその発光強度をモニターしながら波長可変レーザを用いて励起エネルギーを掃引すると、量子ドットの励起準位に相当するエネルギーでは発光強度が強くなる。このようにして、量子ドットにおける電子励起が関係した励起過程についての知見が得られる。概略図を図 4-4 に示す。

4.3.1 PLE 実験結果

図 4-5 には、サンプル番号 2 の単一量子ドットにおける PLE スペクトルを示したものである。

観測した波長のピークは 1.319eV の励起子発光ピークであり、PLE 図の縦軸は発行強度を示しており、横軸は発光ピークのエネルギー E_{DET} (1.319eV) と励起エネルギー E_{EX} との差を示している。また、PLE の赤の実線は弱励起でのスペクトル、黒の実線は強励起でのスペクトルである。

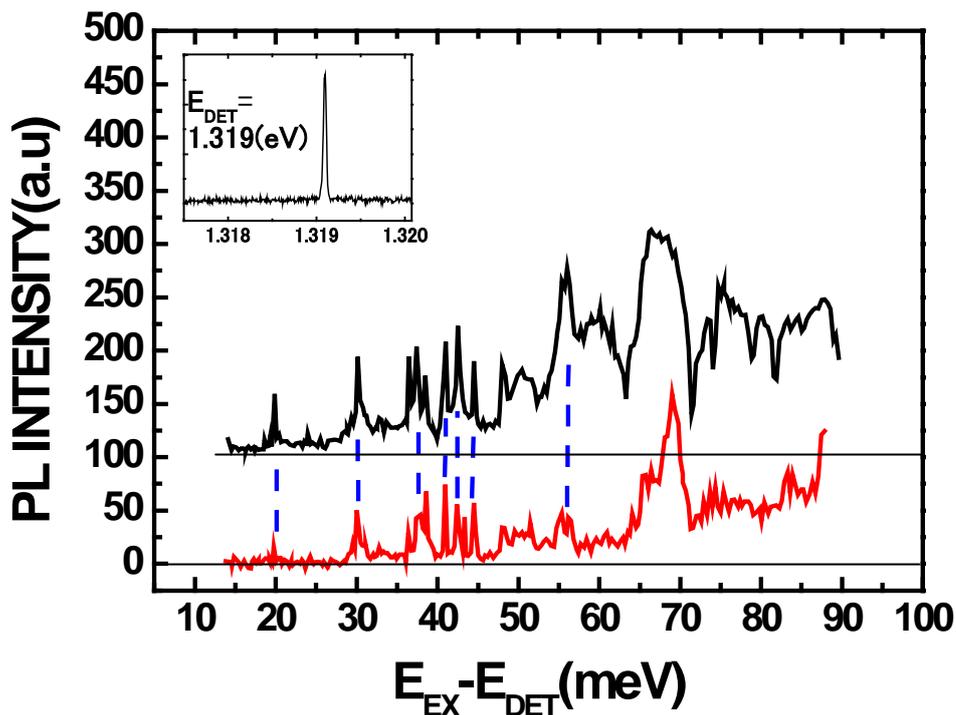


図 4-5. 単一量子ドットの PLE スペクトル。横軸は、基底準位エネルギー (1.319eV) と励起エネルギーの差を表す。

Inset : 観測した量子ドットの基底状態の発光 (上) : 強励起時での PLE スペクトル (下) : 弱励起時での PLE スペクトル

量子ドットの PLE スペクトルは、バルク半導体に見られる緩やかな変化とは異なり、原子スペクトルに近い鋭い共鳴励起が観測されることが分かる。

特に $E_{EX}-E_{DET}$ の値が $15\sim 45\text{meV}$ 付近までの領域では、鋭い励起共鳴が 8 個ほど観測される。また、共鳴以外のエネルギー帯では発光強度はほとんど 0（ゼロ吸収領域と呼ばれている。この領域は強励起時においても存在する）となるのが量子ドットの電子構造の特徴である、量子ドット特有の離散的な状態密度を反映している[3]。この励起共鳴ピークについては、ある程度同定する事ができる。

$E_{EX}-E_{DET}=20\text{meV}$ の共鳴ピークは正孔の励起準位であると考えられる[4]。 $E_{EX}-E_{DET}=30\text{meV}$ の比較的幅広い共鳴ピークは、量子ドットの材料である InAs の光学フォノンに対応したピーク[5]。 $E_{EX}-E_{DET}=36\text{meV}$ 付近の比較的幅広い共鳴ピークは、バリア層の材料であるバルク GaAs の光学フォノンに対応[6]、 $E_{EX}-E_{DET}=40\sim 45\text{meV}$ までの幾つかの鋭い共鳴ピークは、量子ドットの電子の励起準位に起因するピークである事が、他の研究[7,8,9]によってある程度は明らかになっている。このうち、光学フォノンに対応するピークについては、ほとんどの量子ドットに共通の発光であるが、その他の電子や正孔の励起準位に関するピークは、ドットによって個体差が生じる。この理由は、個々の量子ドットの形は、全て同じではないことから、波動関数もドットによって個性が生じてしまうと考えられる。

$E_{EX}-E_{DET}$ が 50meV 以上の領域では、鋭い共鳴励起は無くなり、幅広いピークを持つ、また共鳴以外でも発光強度は 0 にはならず $E_{EX}-E_{DET}$ が大きくなるにつれて発光強度も大きくなる傾向を示す。このような特徴を示すのは、濡れ層（Wetting Layer）と呼ばれる 2 次元構造が量子ド

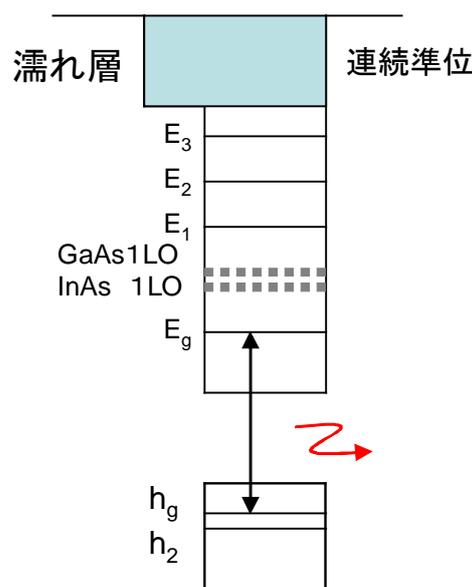


図 5-6. 単一量子ドットの電子状態のエネルギーバンド。

ットと連続的につながっており、同様に連続準位として量子ドットの離散準位に付随していると考えられる[8,10]。また、強励起にした場合でも、離散的な準位によるピークにはほとんど変化が無いが高次準位における発光強度が大きくなっており、この点が弱励起の場合と違うところである。高次準位での強励起は複雑な緩和過程になる。

PLE 測定より明らかになった、量子ドットの電子状態のバンド図を図 5-6 に示す。このように、量子ドット中の電子状態は、大きな閉じ込め効果により電子あるいは正孔の励起準位が離散化し、原子スペクトルのような構造を持っている事が明らかになった。

4.4 量子ドットの荷電励起子

量子ドットの励起子には、励起子分子のほかにもう一つ、荷電励起子と呼ばれる励起子の存在が報告[11-13]されている。これは、電子—正孔各 1 個の対ではなく、電子 1 個—正孔 2 個、または電子 2 個—正孔 1 個という組み合わせの励起子である。前者を正の荷電励起子（ポジティブチャージドエキシトン）、後者を負の荷電励起子（ネガティブチャージドエキシトン）と呼ばれている。

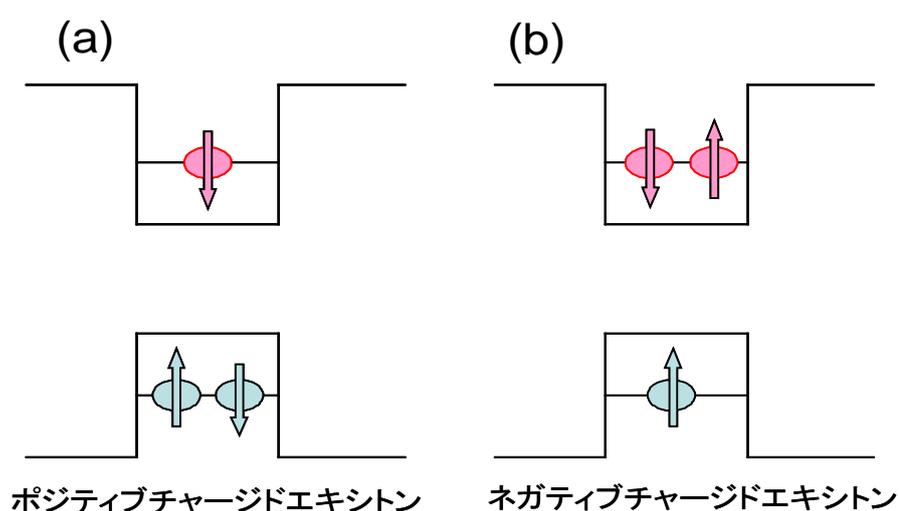


図 4-7 荷電励起子のエネルギーバンド図

(a) 負の荷電励起子（正孔 2 個—電子 1 個）

(b) 正の荷電励起子（正孔 1 個—電子 2 個）

本研究で行った量子ドットの中にもサンプル番号3の量子ドットからは荷電励起子の発光の存在が明らかになった。このドットは後に記述するラビ振動にも用いたものであるので、その例を詳しく説明する。

まず初めに、サンプル番号3の単一量子ドット PL、PLE スペクトルを図 4-8 に示す。

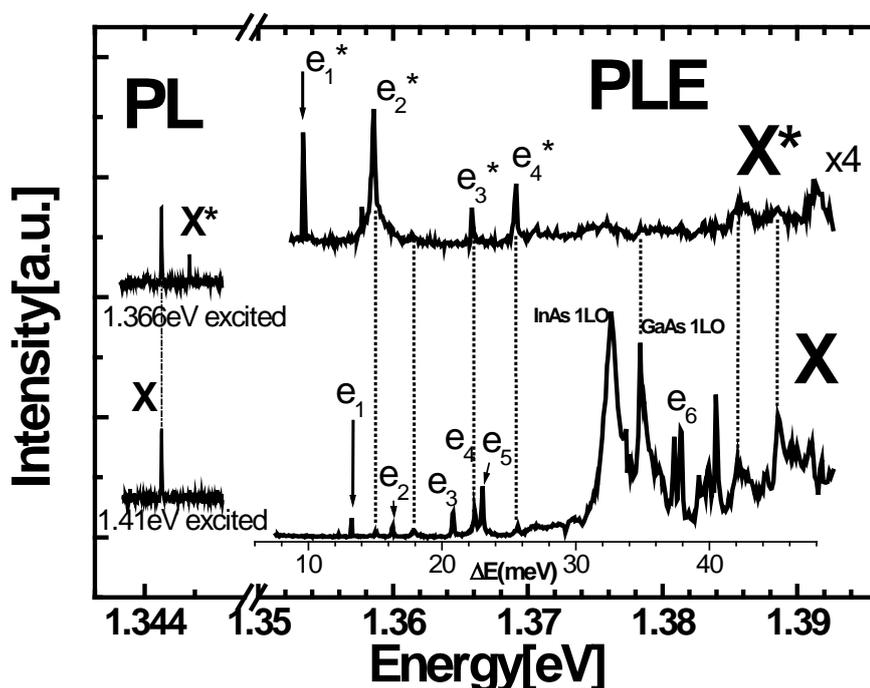


図 4-8. 励起子 (X) 及び荷電励起子 (X*) の PL&PLE スペクトル。

図 4-8 左は PL 発光スペクトルである。X は励起子からの発光、X* は荷電励起子の発光を示している。また励起強度は弱励起 (0.5 mW) の場合で行っている。励起波長を量子ドットの濡れ層に相当する高いエネルギー (1.41 eV) で励起した場合は、X のみの鋭い発光が見られた。そして濡れ層エネルギー以下の有る低エネルギー領域において、励起子 X の 0.5 meV 高エネルギー側に新たに X* の発光線が観測された。

量子構造の電子構造を PLE 法によって行った結果が図 4-8 右のグラフである。X、X* とともに鋭い励起準位が存在している事が分かる。励起子 X の

電子構造は、 ΔE が 15 から 30meV までの領域に 5 つの共鳴ピーク ($e_1 \sim e_5$) 正孔の励起準位に起因するピークが存在し、 $\Delta E=32, 36\text{meV}$ 付近のブロードな共鳴ピークは InAs 及び GaAs の光学フォノン (1LO) に起因するピーク [5,7]、 $\Delta E=40\text{meV}$ の共鳴ピークは電子の励起準位に起因するピーク [7,9] である。それ以上の領域では、連続準位による広がりを見せている。X の PL、PLE による微細構造を調べる事によって X は励起子の発光である事が分かる。

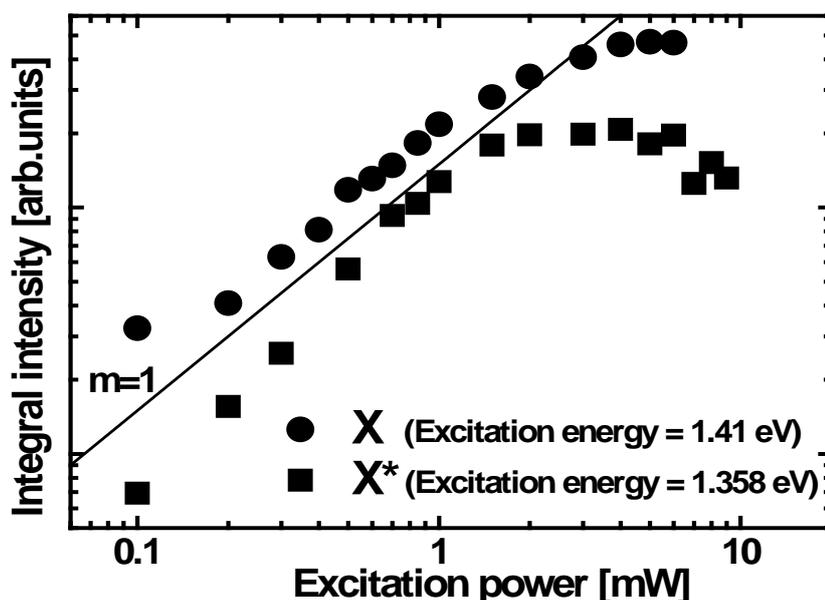


図 4-9. 励起子 (X) と荷電励起子 (X*) の励起強度依存性
 $m=1$ は発光強度に対して線形に比例した増加を示す

一方、荷電励起子 X* の PLE から得られた電子構造は、 ΔE 0 ~ 30meV までの領域で数個の共鳴ピーク ($e^*_1 \sim e^*_4$) が確認できる。これらのピークは正孔の励起準位に起因するピークと考えられるがそれ以外の領域では共鳴ピークは観測できない。このように、励起子と荷電励起子では電子構造に大きな違いが現れることが明らかになった。また、励起子と荷電励起子では、共鳴ピークの幾つかが一致している所が確認できる (PLE 図中の点線部)、この事からこの 2 つは同系列の構造も反映している事がわかる、そのため同じ単一ドットからの発光であることが確認される。

量子ドットからの発光には、大きく励起子と励起子分子と荷電励起子の 3 つに分けられる。X* のピークが励起子ではないとすると、後者の 2 つの

可能性が考えられる。そこで、励起光強度依存性の実験を行った。X*が励起子分子に起因する発光であるならば、発光強度は励起強度の2乗に比例して増加するはずである。図4-9にXとX*の励起強度依存性を示す。図中の $m=1$ の直線は励起強度の1乗を示している。図4-9より、X及びX*の発光強度は励起強度に比例している事が明らかとなった。よって、Xは励起子からの発光であり、またX*は励起子分子ではない事から荷電励起子からの発光であることが明らかとなった。

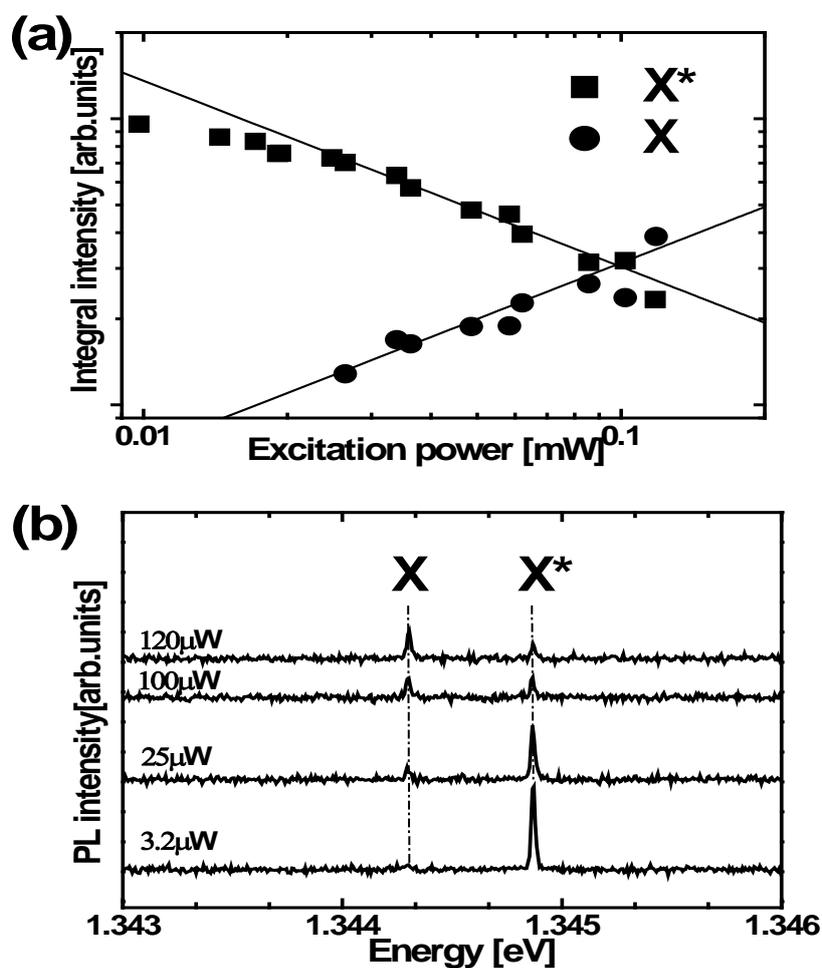


図4-10. (a): 2波長励起による励起子(X)と荷電励起子(X*)の励起強度依存性

(b): 励起子と荷電励起子の発光変化 PL 図

次に荷電励起子 X*は、どのようなメカニズムで発光しているのかを同定しなくてはならない。そのため2つの励起光源を用いた2波長励起強度

依存性を行った。この方法は、まず 1 つ目の励起光源を X^* の共鳴ピーク (1.366eV) に固定して $500\ \mu\text{W}$ の一定の励起強度 (励起強度 = $36.7\text{W}/\text{cm}^2$) で励起する。もう一方の励起光源は、量子ドットの濡れ層 (1.41eV) に相当するエネルギーに固定して、こちらの励起強度を変化させるという方法を用いた。図 4-10 に 2 つの発光の強度変化と PL スペクトルを示す。

濡れ層 (1.41eV) 励起が無い場合では、 X^* の発光が支配的であるが、濡れ層 (1.41eV) の励起強度を増加させると、荷電励起子の発光強度は徐々に減少し、その発光に反比例して励起子 X の発光強度が増加し、ついには X^* の発光は無くなり、 X のみが発光するようになった。この実験結果は L. Besombes らの報告[12]と同じであり、 X^* は正の荷電励起子に起因するピークであると考えられる。以下に荷電励起子の生成過程について説明する。

正の荷電励起子が生成する原因は、量子ドットの成長過程に発生した不純物ドーパにあると考えられる。MBE 法を用いた方式では、結晶成

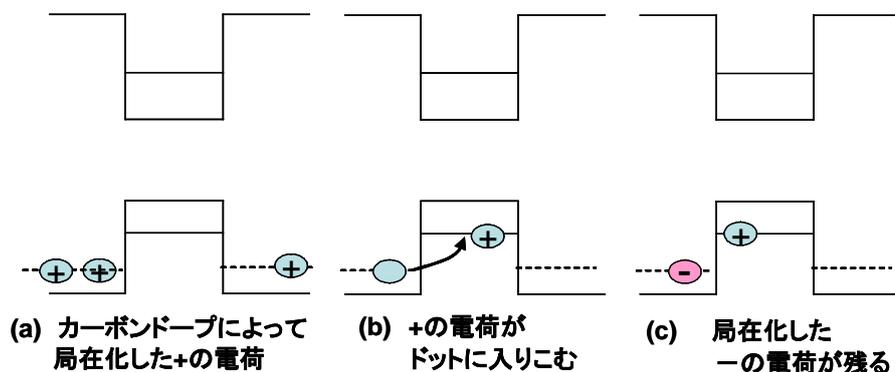


図 4-11. 正の荷電励起子の生成過程

長ささせる際に、成長容器内は超真空で不純物が全く無い事が理想的であるが、実際にはわずかに炭素が残留している事が知られている。量子ドットを結晶成長させる過程でこの炭素が不純物として GaAs 内にドーピングされて、それがアクセプタの働きを持つと考えられる。今回観測したドットもこのような過程にて不純物がドーピングされた量子ドットであると考えられる[12,14]。

荷電励起子の生成過程を、図 4-11 図を用いて説明する。炭素がドーピングされた量子ドットでは、正の電荷が量子ドット近傍に局在化する (図

4-11(a))。量子ドットの基底準位に正の電荷は落ち込んで正孔の基底状態に入り込む (図 4-11(b))。それによって、もともと局在化していた電荷には電子が残る (図 4-11(c))。

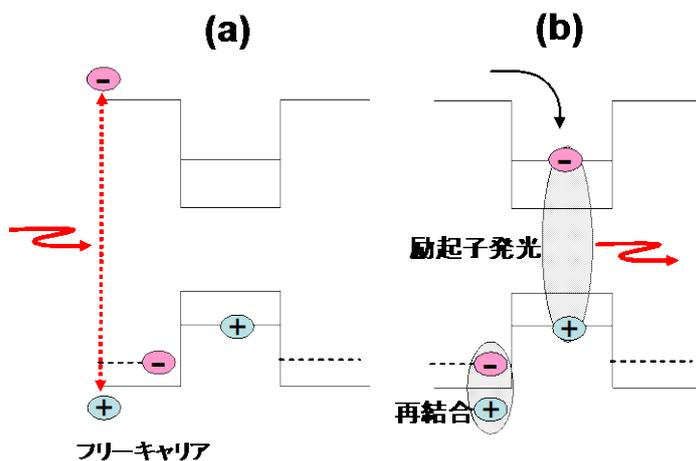


図 4-12. 正の荷電励起子の濡れ層 (WL) 励起時での発光過程

次に、このようなドーパされている量子ドットに濡れ層 (1.41eV) に相当するエネルギーが励起された場合について図 4-12 を用いて説明する。

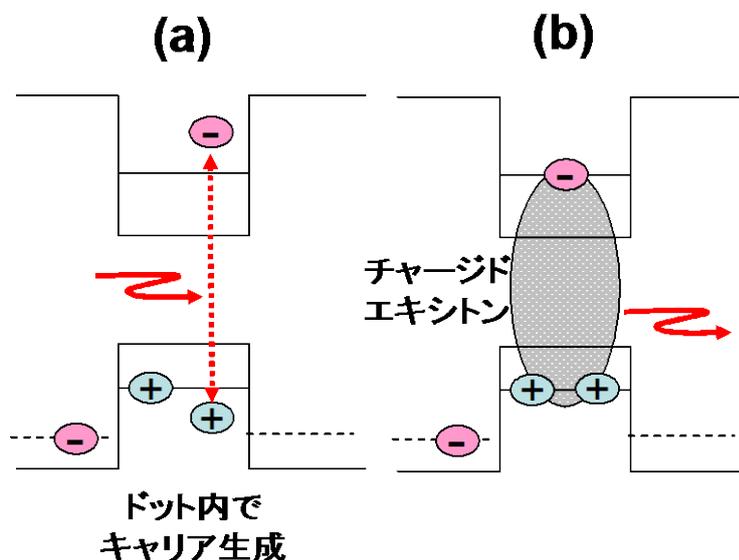


図 4-13. 正の荷電励起子の励起準位励起時での発光過程

濡れ層で励起されて生成した電子—正孔は、フリーキャリアとなって自

由に移動することが出来る (図 4-12(a))。そして、正孔は局在化している電子と結びついて再結合する。一方、電子の方は、低エネルギーである量子ドットに落ち込んで、量子ドット内にもともと存在する正孔とフリーキャリアから落ち込んできた電子が再結合して、励起子として発光する (図 4-12(b))。そのため、濡れ層での励起強度を増加させたときに荷電励起子の発光が減少したのはこのような理由からである。

次に、濡れ層以下の量子ドットの励起準位に相当するエネルギーで励起した場合、生成した電子-正孔は、そのまま量子ドット内に局在する (図 4-13(a))。そして基底状態にて、正孔はもともと局在している余剰正孔と結びついて、電子 1 個と正孔 2 個の組み合わせで正の荷電励起子として発光する (図 4-13(b))。

4.5 単一量子ドットのラビ振動

前節では、単一量子ドットの発光特性及び電子構造について議論を行った。この結果、量子ドットの励起子は、原子的な特性を持つことが明らかとなった。

この節では、この特性を応用して励起子の状態を量子計算に積極的に制御する方法について述べる。量子計算に必要な制御はラビ振動が一般的である。ラビ振動が実際に確認できれば 1 qubit 回転ゲート実現する事ができる。本研究では、単一量子ドットのラビ振動を確認した。

実験装置及び試料

本節で用いたサンプル前節でも使用したサンプル番号 3 の単一量子ドットである。実験装置は、図 3-12 に示す顕微分光法の実験装置にパルスレーザを追加した実験装置を用いた。

4.5.1 ラビ振動とパルス励起との関係及び実験方法

ラビ振動は、図 4-14(a)に示す様に理想的な 2 準位系とコヒーレントな励起光を用意して、2 準位間のエネルギーと同じ CW な励起エネルギーを照射すると、2 準位間の遷移確率が時間と共に増減を繰り返す現象である。このラビ振動における遷移確率 n_1 は、式 4.2

$$|n_1|^2 = \sin^2 \frac{R_{ab}t}{2} \quad (4.2)$$

ここで R_{ab} はラビ周波数を表す。しかしながら、励起光源がパルスの場合には、このラビ振動は式 4.3 で書く事ができる。

$$n_1 = \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (4.3)$$

ここで θ はパルスエリアを表している。遷移確率は、パルスエリアの正弦関数の 2 乗に比例して振動する。パルスエリアは、式 4.4

$$\theta = \frac{\mu}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) dt \quad (4.4)$$

で書き表す事ができる。ここで、 μ は遷移ダイポールモーメント、 E は電界強度を示す。ここで全電界と入力パルス強度 (I_{pulse}) は式 4.5 の関係が成り立つので

$$\sqrt{I_{pulse}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} E(t) dt \quad (4.5)$$

入力パルス強度とパルスエリアの関係は式 4.4 と 4.5 より

$$\theta = \frac{\sqrt{I_{pulse}} \mu}{\hbar} \quad (4.6)$$

結果的に、パルス励起した場合は、ラビ振動の遷移確率は入力パルス強度の 2 乗に比例した正弦波の振動する事が分かる。

$$n_1 = \sin^2 \frac{\mu \sqrt{I_{pulse}}}{2\hbar} \quad (4.7)$$

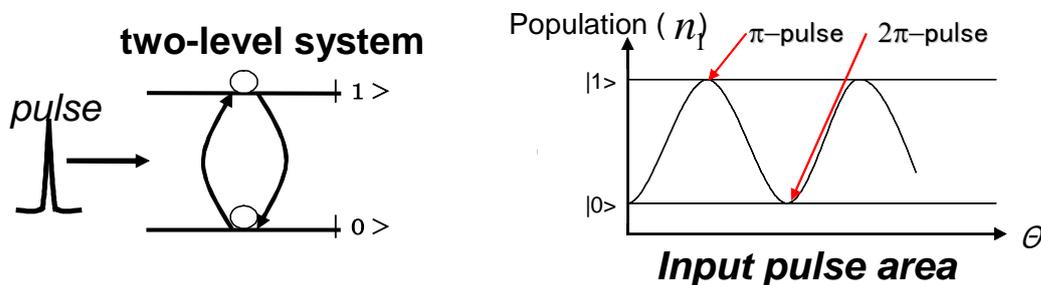


図 4-14 (a) 2 準位系におけるパルス励起におけるラビ振動

(b) 励起パルス面積に対して存在確率は振動する (ラビ振動する)。

実際に単一ドットのラビ振動を確認する為の方法について述べる。量子

ドットの2準位系を直接観測する事は不可能である。何故なら、本研究が行っている観測方法は間接的測定法だからである。この方法は、励起する準位と観測する準位が異なる特徴を持っている。そのため、図4-15に示すように、量子ドットの3準位系を利用した。すなわち、励起エネルギーを第一励起準位 ($|e_1\rangle$) に相当するエネルギーに共鳴させる。そして結晶基底準位 ($|g\rangle$) - 第一励起準位間 ($|e_1\rangle$) で行われた遷移確率のラビ振動変化を緩和過程を通してコピーされた基底準位 ($|e_0\rangle$) と ($|g\rangle$) での励起子の再結合を観測するという方法で行った。

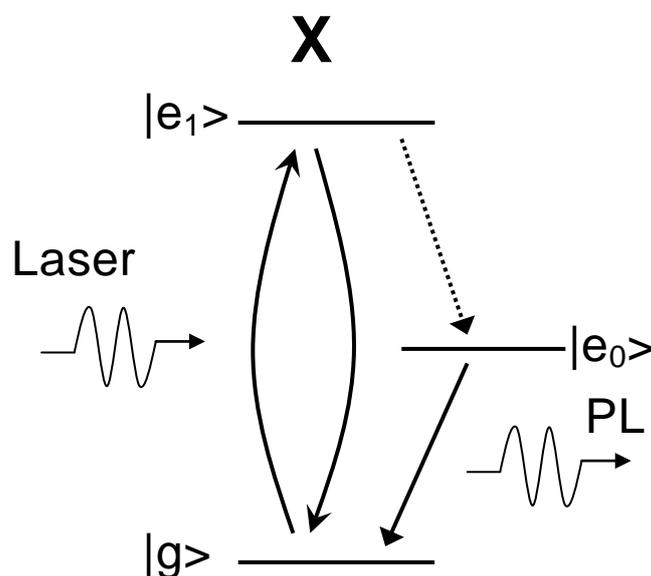


図4-15 単一ドットのラビ振動準位と観測準位のエネルギーバンド。

4.5.2 単一量子ドットのラビ振動観測

図4-16に前節で観測した、荷電励起子と励起子からのラビ振動を示す。荷電励起子と励起子の励起エネルギーは、それぞれ図4-8.PLE スペクトル中の e^* と e の第一励起準位に共鳴させた。励起強度を増加させてゆくと、ドットの発光は正弦波的に振動してゆく様子が観測された。発光強度の正弦波の頂点の部分が、励起状態の状態密度が最大になった事を意味しており。これは、基底状態の存在確率が0%で励起状態の存在確率が100%になった事を意味している。この状態を π パルスと呼ぶ。また、正弦波の谷

の部分は、系の存在確率が一回りしてまた基底状態に戻ってきた事を意味している。この場合を 2π パルスと呼ぶ。また、 2π パルス時の励起強度が π パルスの励起強度のほぼ2倍である事からもラビ振動である強い証拠の一つである。しかしながら、 2π パルスでは完全にゼロにならず、パルス強度を上げるほど減衰した振動を示す。この理由については、Villas-Boas らが理論的、実験的に検討した[15,20]。原因としては、2つある。まず第一に強励起状態になると、同じドット内で励起子分子が形成されて、励起子と励起子分子との相関によって理想的な2準位系が崩れてしまうことと、もう一つは同じく強励起によって、濡れ層に形成されるフリーキャリアとの相互作用によって同じく2準位系が崩れてしまうということが報告されている。

π パルス時の励起パルス強度から、光と物質の相互作用のし易さを示す物理量である遷移ダイポールモーメントを求める事ができる。本研究で計算した単一量子ドットの遷移ダイポールモーメントは、荷電励起子で 32 Debye、励起子の場合で 40Debye ($1\text{Debye}=0.303\times 10^{-30}\text{C}\cdot\text{m}$) であった。一般に、原子系のこのモーメントは数 Debye であり、これと比べると量子ドット中の励起子は光との相互作用が強いかがわかる。また、本研究で用いた InAs/GaAs 系量子ドット以外の材料において幾つか報告されており、InGaAs/GaAs 系量子ドットでは、数 Debye から 40Debye[16-20] であり、本研究のドットも遷移ダイポールモーメントは、それらの値と比べてほぼ同じ程度である事が分かった。

本節まとめ

本節では、単一量子ドットの物性を調べて電子状態を明らかにした。

次に、励起準位を利用しその電子状態を制御する事によって、量子計算の基本動作であるラビ振動の観測に成功した。さらに、算出した遷移双極子モーメントの値は、他の報告例とほぼ同じ程度であり、本研究で用いる

InAs/GaAs 材料の量子ドットが量子計算に適している事を明らかにした。

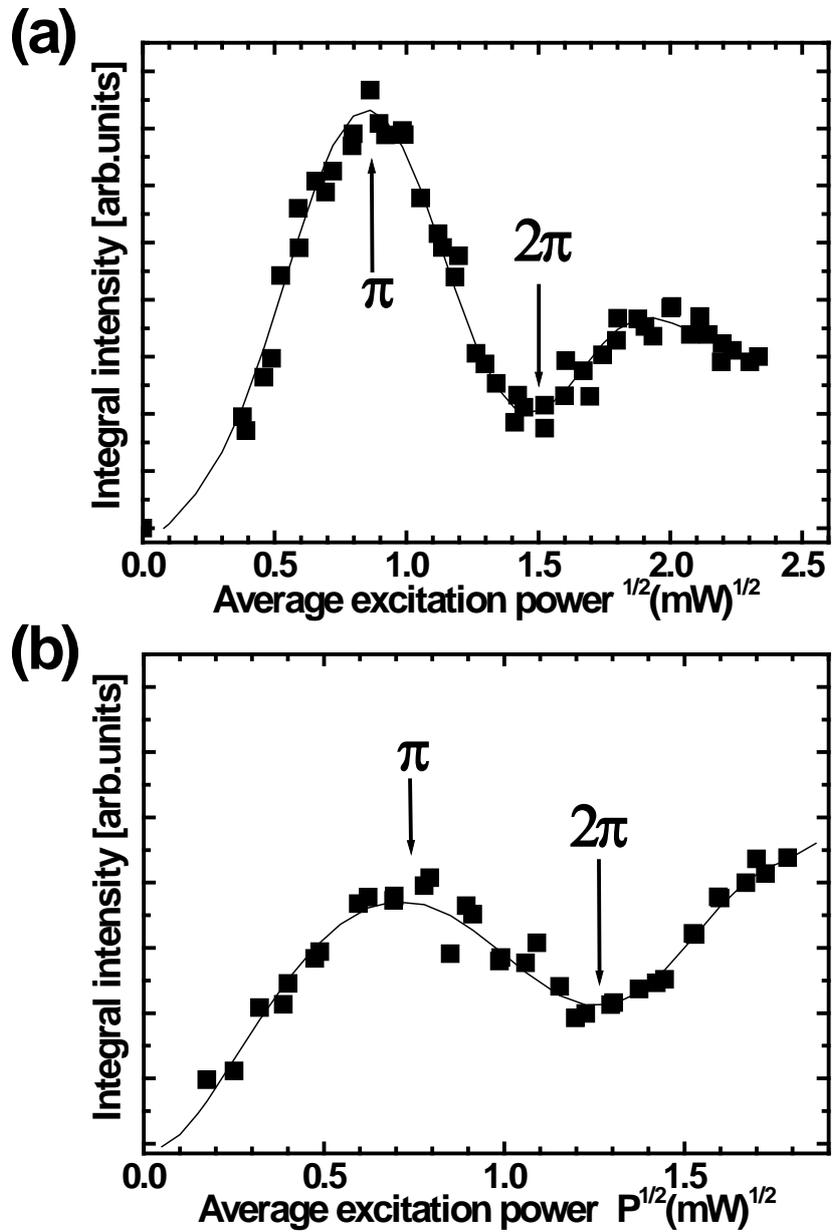


図 4-16. 単一量子ドットのラビ振動

(a) 荷電励起子のラビ振動

(b) 励起子によるラビ振動

参考文献

- [1] 中澤叡一郎, 鎌田紀彦 光物性・デバイス光学の基礎 pp
110 培風館
- [2] G.W. Hooft, W. A. J. v. d. Poel, L. W. Molenkamp and C. T. Foxon :
Phys. Rev. B, 25 (1987) 8281
- [3] R. C. Miller, D.A. Kleinman, A. C Gossard and O. Munteanu :
Phys. Rev. B, 25 (1982) 6545
- [4] G. W. Hooft, W. A. J. v. d. Pole, L. W. Morenkamp and C. T.
Foxon : Phys. Rev. B 35 (1987) 8281
- [5] 鎌田英彦 : 光学 (2001) pp98
- [6] S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, K. Goshima and T. Sugaya;
Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) 2467.
- [7] R. Heitz, M. Veit, N. N. Leventsov, A. Hoffmann and D. Bimberg:
Phys. Rev. B 52 (1997) 10435.
- [8] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa : Phys. Rev.
Lett. 82 (1999) 4114
- [9] H. Htoon, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, Jr., T. Takagahara
and C.K. Shih: Phys. Rev. B. 63 (2001) 241303.
- [10] H. Kamada, and H. Ando : Phy. Rev. B, 58 (1998) 16243
- [11] J. J. Finly, A. D. Ashmore, A. Lemaitre, D .J. Mowbray, M. S.
Skolnic, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, and T. F.
Krauss : Phys. Rev. B, 63 (2001) 073307
- [12] L. Besombes, J. J. Baumberg and J. Motohisa; Phys. Rev. Lett.
90 (2003) 257402.
- [13] A. Hartmann, Y. Ducommum, E. Kapon, U. Hohenester and E.
Molinari; Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 5648.
- [14] 小長井 誠著 半導体超格子入門 培風館 P83
- [15] J. M. Villas-Boas, S. Ulloa and A. O. Govorov; Phys. Rev. Lett. 94
(2005) 057404.
- [16] H. Htoon, T. Takagahara, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes,
Jr. and C. K. Shih; Phy. Rev. Lett. 88 (2002) 087401.

- [17] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara and H. Ando:
Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 2464.
- [18] T. H. Stievater, Xiaoqin. Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S.
Katzner, D. Park, C. Piermarocchi and L. J. Sham; Phy. Rev. Lett.
87 (2001) 1336.
- [19] A. Muller, Q. Q. Wang, P. Bianucci and C. K. Shin; Appl. Phys.
Lett. 84 (2004) 981.
- [20] Q. Q. Wang, A. Muller, P. Bianucci, E. Rossi, Q. K. Xue, T.
Takagahara, C. Pirermarocchi, A. H. MacDonald, and C. K.
Shih : Phys. Rev. B, 72 (2005) 035306

第5章 単一結合量子ドットの 発光特性及び制御

第4章では、量子コンピュータの基本素子の1つである1 qubit の回転ゲートを単一量子ドットの励起子を用いて実現する事を示してきた。この章では、もう一つの基本素子である2 qubit C-NOT ゲート動作を上下に近接して配置した量子ドット（結合量子ドット）の励起子を用いて実現させるものである。これを実現させる為のアプローチとして序論で簡単に述べたが、大きく分けて3つのステップが必要である。

- ① 単一結合量子ドットの分離・観測・光学物性の解析
- ② 結合ドットにおける2つのドット間に生じる相互作用の観測及び4状態 ($|00\rangle$ 、 $|01\rangle$ 、 $|10\rangle$ 、 $|11\rangle$) の形成
- ③ 単一結合量子ドットの励起子状態制御

である。

このステップに沿ってまず初めに、①の単一結合ドットの光学特性を調べる。そのためには、単一量子ドットと単一結合量子ドットの発光特性の違いを示して結合量子ドットの電子構造を明らかにする方法を取った。そして、ステップ②の2 qubit で最も重要な要素技術である、結合量子ドットの2つのドット間に生じる相互作用について調べる。最後に③の初期実験を行った。

5.1 結合量子ドットに生じる相互作用

まず初めに、1個の量子ドットと2個の結合した量子ドットの一番大きな違いについて考察する。

結合量子ドットでは、2つのドット間に相互作用が生じる事が単一ドットには無い最も大きな違いである。この相互作用でも、ドット間の距離によって異なる相互作用を考えなくてはならない。

1) ドット間距離が大きい場合の相互作用（ドット間距離 7nm~）

結合ドットの2つの量子ドット間距離が大きい場合には2つのドットに作用する相互作用は、電磁気学的な相互作用をすると考えられる図

5-1(b)。これはお互いの量子ドットが持つ電気双極子が引き合ったり反発したりする力である。この双極子—双極子相互作用は、量子ドットに閉じ込められた励起子のボーア半径より離れている場合に作用すると考えられる。

2) ドット間距離が小さい場合の相互作用 (ドット間距離 $\sim 5\text{nm}$)

2つのドット間距離が近接している場合は、どのような相互作用が考えられるだろうか？ドット間距離が短いと、1つのドットの中に閉じ込められている励起子の波動関数が隣のドットに染み出すようになる(トンネル効果) 図 5-1(a)。このようにトンネル結合という量子力学的な結合をされると考えられる。この量子力学的な相互作用によって、2つのドット間では、共通した準位として、結合準位 (bonding state) と反結合状態 (anti-bonding state) に分裂した準位を形成する。すなわち、ドット間

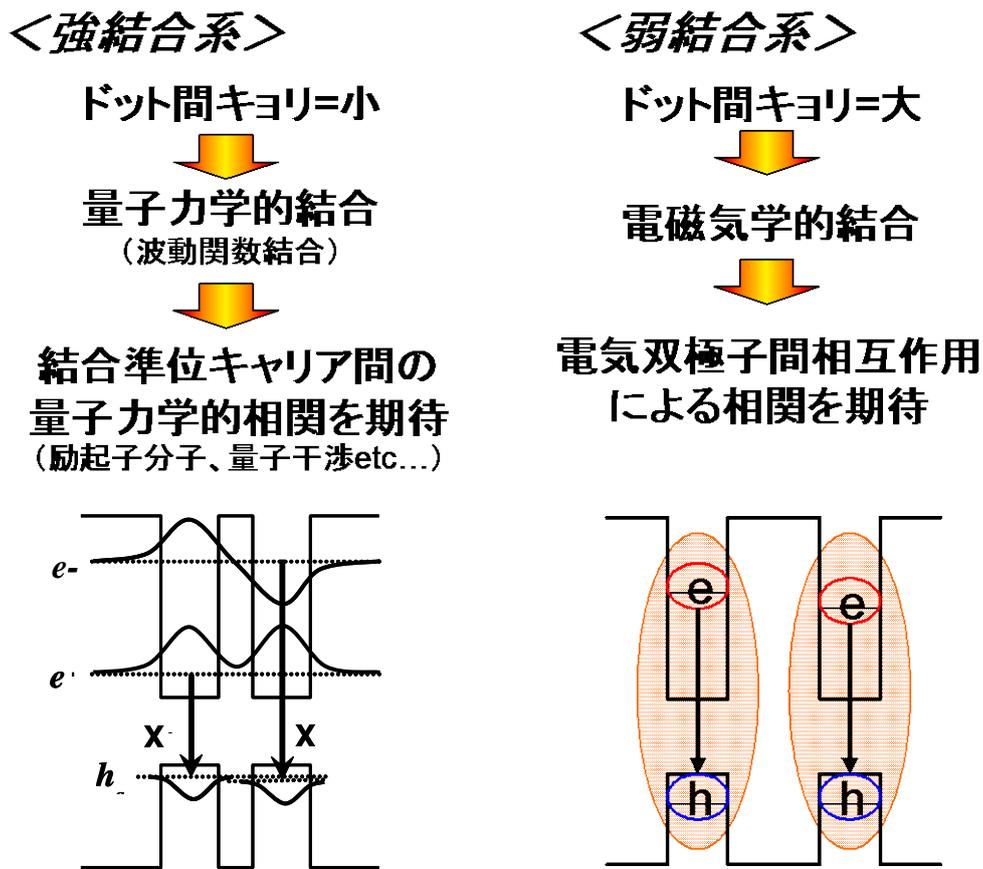


図 5-1 2つのドット間距離の違いによって異なる相互作用・エネルギーバンド図

距離を小さくしてゆくに従って2つに分裂する発光ピークが存在すると考えられる。

5.2 結合量子ドットの結合状態、反結合状態の観測

まず初めに、結合ドットの PL と PLE スペクトルを今まで測定した単一量子ドットの PL、PLE と比較する事によってその違いを明らかにする。

サンプル試料及び実験装置

本節で用いた単一量子ドットはサンプル番号4を用いた。4章で用いた単一量子ドット（サンプル番号1～3）とは違い、単一量子ドットにおいても I-F 法を適用した。この理由は、結合量子ドットの作成には I-F 法を必ず用いなければならないため、比較対象として同条件での試料作成を行った。量子ドットの幅、高さ、形状はそれぞれ、20nm、3nm、ピラミッドの頂点部分を切り落とした形（Truncated）である。また、面内ドット密度は $100 \text{ 個}/\mu\text{m}^2$ である。

本節で使用したサンプル番号5の結合量子ドットについて述べる。上下に積層した2つの量子ドットの幅、高さ、形状は、20nm、3nm、Truncated 形状で単一量子ドットと同じである。まだ上下のドット間のバリア厚は3nm である。しかしながら、結合ドットにおいては、ドットの面内密度の高い試料（面内ドット密度は $100 \text{ 個}/\mu\text{m}^2$ ）を用いた。これは、結合ドットの低密度化の作成条件がまだ確立していなかったからである。又、実験装置は図 3-11 に示す顕微分光法の実験装置を用いた。

実験結果及び考察

図 5-2、5-3 は、それぞれ単一量子ドットと結合ドットの PL 及び PLE の結果を示す。まず図 5-2 で両者の PL の違いについて述べる。サンプルへの励起エネルギーは、濡れ層に相当する 1.41eV である。観測エネルギーを 1.27 から 1.37eV までを掃引すると、数個から数十個の発光ピークが観測された。ドット密度が $100\text{psc}/\mu\text{m}^2$ と比較的密度が高い為、メタルマスクのアパーチャー径 $0.2\mu\text{m}$ でも $5\sim 6$ 個ほどのドットからの発光が同時に観測されていると考えられる。これらの発光ピークは、弱励起状態の発光あり、励起子分子による発光ではない。次に単一量子ドットの PLE について調べてみた、幾つかの発光ピークの内、DOT 1 の 1 個の PLE に

注目した。この PLE は図 5-2 の上部に示す。前章の単一ドットの発光特性でも述べたように、 $\Delta E=29, 35\text{meV}$ のところには InAs 及び GaAs の 1 LO による幅広い発光ピーク [1,2] があり、 $\Delta E=40, 43\text{meV}$ に存在するピークは電子の励起準位に関連するピークであると考えられ [3]、典型的な単一量子ドットの電子構造をしている。ただし、1 LO 以下の領域 ($\Delta E < 29\text{meV}$) では、共鳴ピークは存在しなかった。これは、ドット形状が前章のものとは違う (4 章ではピラミッド型、今回は Truncated 型) ので、

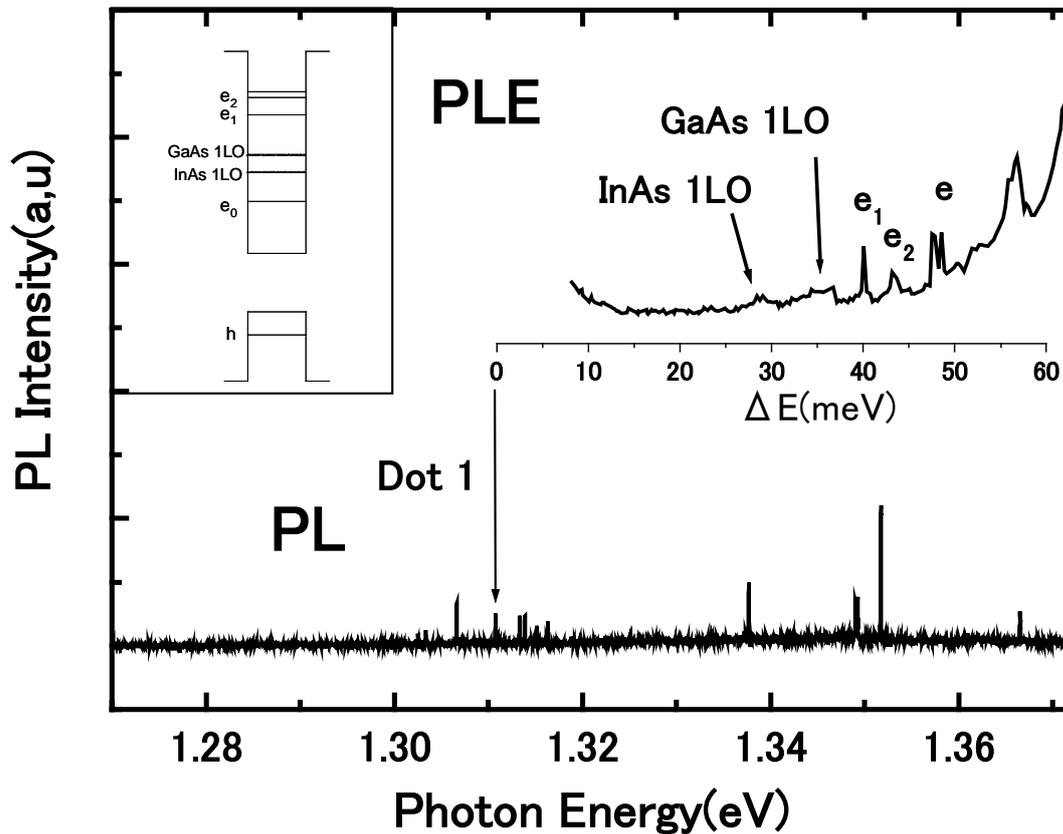


図 5-2 単一量子ドットの PL 及び PLE スペクトル。

量子ドットの高さ方向が抑制されている。そのため励起子の閉じ込め効果が大きく作用している為と考えられる。

次に図 5-3 の結合ドットの PL 及び PLE の発光特性について述べる。

まず PL 発光ピークの数について比較すると、単一ドットの発光ピークの数約 2 倍であることが分かった。単一ドットの PL において発光ピークに規則性は無く発光エネルギーはランダムであるのに対して、結合ドットの PL では、低エネルギー側の 1.29eV と高エネルギー側の 1.32eV に発光ピークが集中している事が見て取れる。今回使っている結合ドットは、ドット間距離（バリア層厚）が 3nm と非常に狭い為、量子力学的な結合が支配的な系であると考えられる。よって、結合ドットが量子力学的に結合しており、結合状態の発光と反結合状態の発光ではないかとまず推測できる。

しかし、PL スペクトルだけでは、どのピークが結合・反結合の組を形成しているのかを特定する事は難しい。そこで、PL スペクトル中の発光ピークから 1 対の結合ドット発光ピークを探す事にする。図 5-3 の挿入図に結合量子ドットのエネルギーバンド図を示す。2 つのドットが量子力学的に結合しているのであれば、結合状態と反結合状態の波動関数は、2 つのドットに広がっている為、それぞれのピークが 2 つのドットの間で共通すると考えられる。図 5-3 の PL 全てにおいて PLE を測定した結果、2 つのドットに共通した電子準位が存在することが確認できたので以下に詳細に説明する。まず、図 5-3 のピーク A に注目し PLE を測定すると、ゼロ吸収領域である $\Delta E=23\text{meV}$ のところに共鳴ピーク (e_0^-) を確認する事ができた。図 5-2 での単一ドットでは、この領域にピークを持たない為、結合ドットに特有なピークであると推測される。このピーク (e_0^-) にエネルギー的にほぼ一致する PL 発光ピークに着目しその発光をピーク B とする。このピーク B の PLE を測定するとピーク A の PLE と共通した共鳴ピークが存在する事がわかった。単一ドットの PLE では、1 LO 以下のゼロ吸収領域 ($\Delta E < 29\text{meV}$) には共鳴ピークが存在しないことから、結合ドットの PLE においてゼロ吸収領域内に共鳴ピーク (e_0^+ , e_1^-) が存在する事からも結合ドットに特有のピークであることが分かった。

結合ドットの PL、PLE より図 5-3 の挿入図の結合ドットバンド図を用いて今までの結果を説明する。

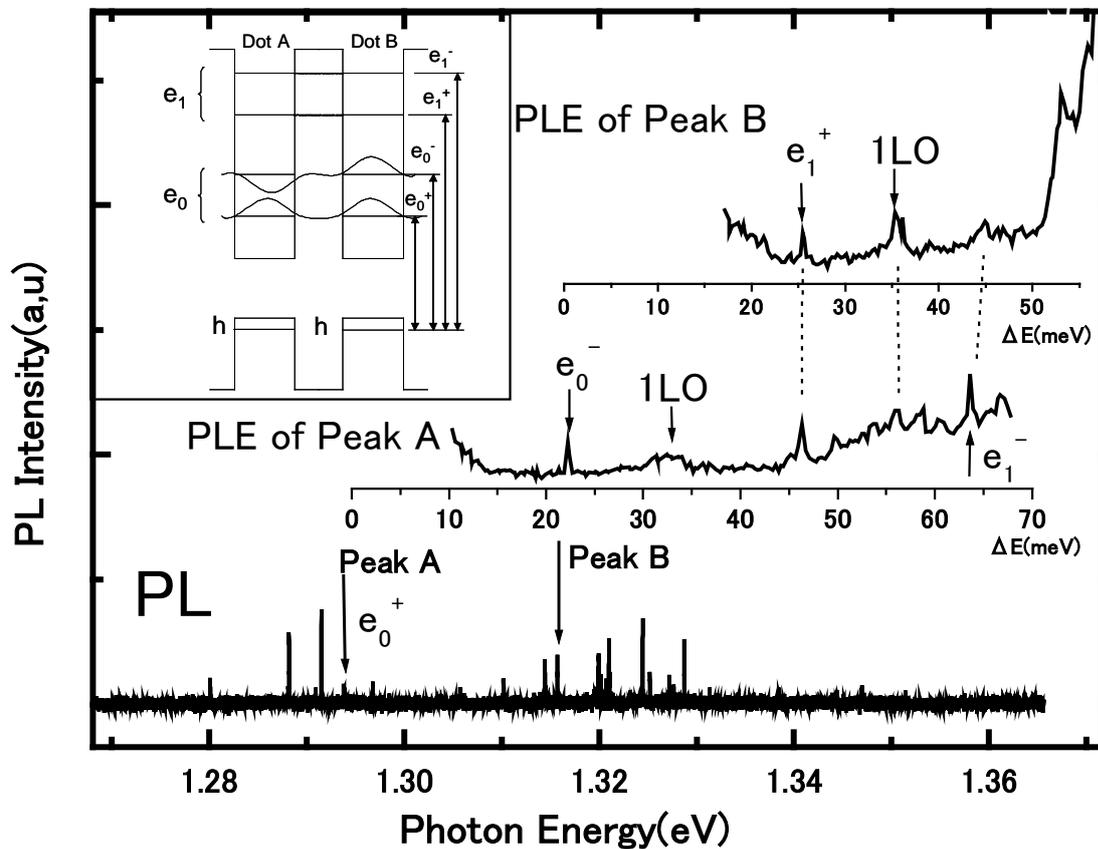


図 5-3 結合量子ドットの PL 及び PL 中のピーク A 及びピーク B の PLE。
(挿入図：結合量子ドットのエネルギーバンド)

まず、結合ドット中に存在する正孔は、それぞれ Dot A と Dot B に局在化しており結合準位、反結合準位は形成していないと考えられる。その理由は、正孔は大きな有効質量を持っている為である。一方、電子は、正孔に比べて有効質量が小さいので結合状態と反結合状態を形成していると考えられる[4,5]。よって、本研究での結合量子ドットは、電子のみが量子力学的結合をしていて、正孔は量子力学的な結合をしていない系であると考えられる。

電子の第一結合準位と正孔の基底準位の再結合による発光ピークは e_0^+

であり、ピーク A の PL 発光ピークに相当する。同様にピーク B の PL 発光ピークは電子の第一反結合準位と正孔の基底準位間の再結合による発光ピーク e_0^- に相当し、このピークとピーク A の PLE での共鳴ピークがほとんどエネルギー的一致している事から電子の反結合準位であることが分かる。基底準位以外でも 2 つのドットに共通する e_1^+ のピークは存在している。これは、電子の高次準位に相当すると考えられる。

以上より、結合ドットの PL、PLE を観測する事により、2 つのドットに共通した準位が存在する事から量子力学的な結合をしている証拠であるといえる。また、結合準位と反結合準位 (Peak A と Peak B) のエネルギー差は約 30meV である。M.Bayer[6]らでも、同じ材料を用いた結合ドットを作成し、ドット間距離における発光特性について報告しており、その中でドット間隔が 3nm の場合には、結合準位と反結合準位のエネルギー差は約 30meV であると報告されている。この結果は本研究の測定値とも近い値を示す事からも量子力学的結合を示す強い証拠となっている。

次に、結合ドットの応用上、結合状態の量子ドットサイズ依存性を調べる事は重要である。そこで、上で述べた PLE スペクトル内の反結合準位の e_0^- ピークに着目して、結合状態のドットサイズ依存性を調べた。ドットの大きさは量子閉じ込めの強さを決定し、基底状態の発光エネルギーを決定する。すなわち、高い発光エネルギーは小さい量子ドットに対応し、低い発光エネルギーは大きいドットに対応する。自己組織化結合量子ドットのサイズ不均一性は、幾つかのアパーチャーマスクエリアを測定することで、異なる大きさのドットからの発光 (異なる発光ピークエネルギー) を観測する事が可能となる。図 5-4(a)に異なるエネルギーのそれぞれの発光ピーク (異なる大きさのドット) と PLE スペクトル中における e_0^- ピークのエネルギーを発光ピークエネルギーの関数として示す。図 5-4(a)には参照として、LO フォノンに共鳴するピークもプロットされている。横軸は PLE を測定された発光ピークのエネルギー (ドットサイズ) を示し、縦軸はそれぞれの発光ピークに対応した PLE ピークの発光エネルギーに対するエネルギー差を示している。図 5-4(a)に示されるように、LO フォノンがドットサイズに依存しないのとは対照的に e_0^- ピークはドットサイ

ズが小さくなると分離エネルギーが増加している。観測される結合・反結合状態間のエネルギー差は結合する前の個別のドットサイズの違いに応じたエネルギー差を含んではいるが、ドット間の距離の短さのせいによる比較的強い結合強度の結果から、結合によるエネルギー分離が観測されるエネルギー差の大部分を占めていると予想される。すなわち、図中 e_0^- ピークの ΔE は結合効果によるエネルギー分離から成っていると考えて差し支えない。

ここで、ドットの形状と波動関数の形について考察する。一般的に自己

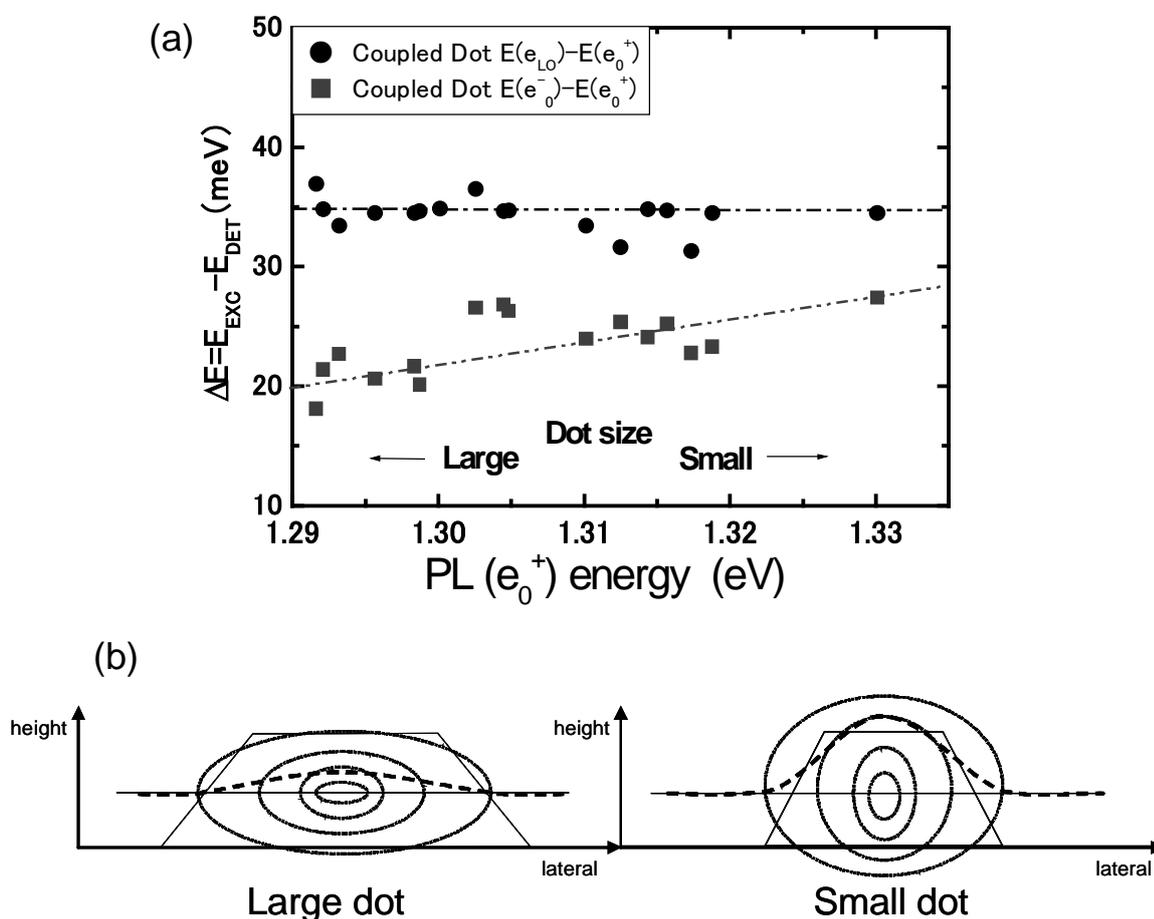


図 5-4 (a) (e_0^+) 結合準位の基底エネルギーに対する (e_0^-) 反結合準位エネルギー差、LO フォノンエネルギー差を示す。 (b) 量子ドットの大きさの違いによる波動関数の染み出し変化の図 (点線、破線は電子の存在確率の等高線を示す)

組織化量子ドットの形状は縦横の高いアスペクト比を持っており、縦方向の量子閉じ込めが横方向のそれよりも強いと考えられている。しかし I-F 法を用いているので、それぞれのドットは同じような高さを持っており、閉じ込め状態の差は横方向の閉じ込め強度に現れる(図 5-4 (b))。たとえドットのアスペクト比が高くても、横方向の閉じ込めが強くなれば波動関数は縦方向(結合方向)により強く染み出すと考えられる。すなわち、図 5-4 (a) のドットサイズによる e_0^- ピークの増加は、ドットの横方向サイズが小さくなることによって波動関数染み出しが増加し、結合強度が強くなっている事を示している。仮に成長時において、上ドットと下ドットのサイズにバラツキが生じるならば、上下ドット個別のエネルギー差が大きく結合強度に強弱が発生する為、図 5-4(a) 中の e_0^- ピークのエネルギー差にも同様にバラツキが生じるはずである。しかし e_0^- ピークの変化は、ほぼ直線的に単調に変化している。この特徴は上ドットの成長は下ドットのサイズに協調して変化している事を示している。これらの実験結果から結合準位のドットサイズ依存性を観測する事で結合ドット構造の形状推定が出来る事を示した。

5.3 単一結合ドットの電子状態

前節で用いた結合量子ドットは、面内密度が $100 \text{ 個}/\mu\text{m}^2$ と多く、メタルマスク $\phi 0.2 \mu\text{m}$ の穴を通して観測ドットの個数を制限しても、5 個程度のドットが同時に観測されてしまい純粋な 1 個の結合ドットについての発光特性についての正確性には疑問が残っていた。そこで、量子ドットの作成条件の最適化を行い、より低密度なドットを作成する事に成功した [5]。この結果、量子ドットの密度は $10 \text{ 個}/\mu\text{m}^2$ になり、メタルマスクの穴を通して 1~2 個程度の量子ドットと飛躍的に観測精度が向上した。1 個の単一量子ドット、結合量子ドットを詳細に観察する事で、今まで観測できなかった新たな現象を観測することが可能になった。これらの実験結果及び基礎物性は[5]の論文で考察している。本研究において、この実験結果を基礎としているので単一量子ドットと結合量子ドットの光学特性について概略を述べる。

サンプル試料及び実験装置

試料は前節と同じ I-F 法を用いた InAs/GaAs 結合量子ドットである。成長条件を最適化して $10 \text{ 個}/\mu\text{m}^2$ の低いドット密度である。さらに、結合ドット電子状態のバリア厚依存性を評価する為に GaAs バリア層厚さ “d” を 7, 5, 3nm と変化させた 3 つの試料を用意した。実験装置は、図 3-11 と 3-12 の装置を用いた。特に図 3-12 の実験系において、パルスレーザを CW レーザとして使い、2 つの CW 励起光源実験系として使用した。

5.3.1 基底準位の電子状態

図 5-5 に典型的な結合ドットの PL スペクトルを示す。励起エネルギーは、濡れ層のエネルギーである 1.41eV であり、多励起子状態を避ける為に十分低い励起強度で行っている。また、一番上部には比較の為、単一量子ドットの PL スペクトルを示す。まず、結合ドットの大きな特徴として、高エネルギー側と低エネルギー側に 2 つの発光グループを持つ事である。これらの発光グループのエネルギー差は、ドット間のバリア厚が小さくなるほど広がっている傾向を示す。このため、前節でも議論した量子力学的な波動関数結合によって、結合量子ドット系が結合準位と反結合準位を形

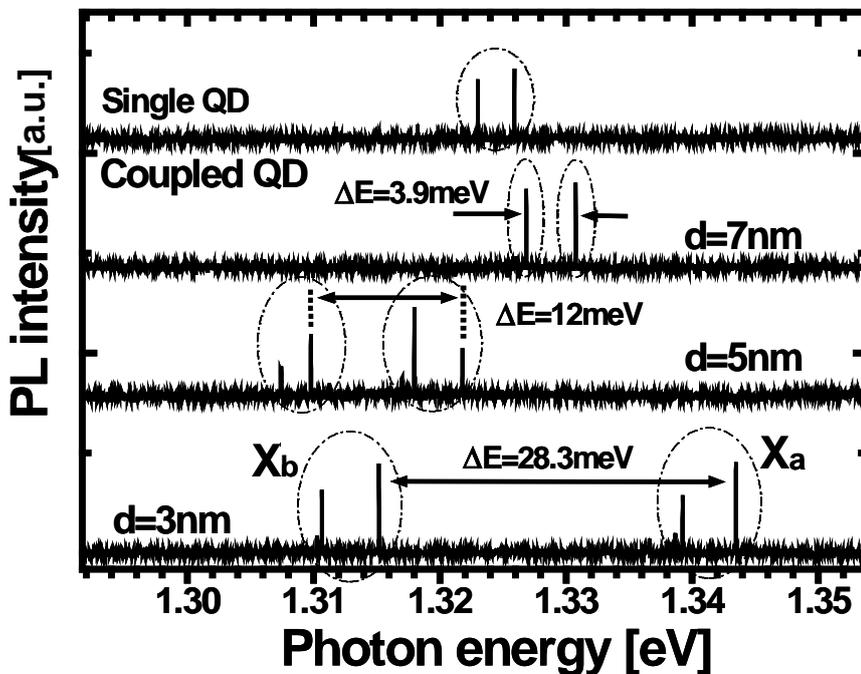


図 5-5. : 量子ドット間距離を変化させた時の一対の結合量子ドットにおける PL スペクトル。

成しているものと理解できる。また、バリア厚を変化させる事でドット間の量子力学的結合を制御できる事が分かる[6,7]。

結合ドットの PL スペクトラムのその他の特徴として、Xa 準位の発光線幅と Xb の発光線幅は同じである。これは Xa 準位から Xb 準位へのキャリア緩和が抑制されている事を示すものである。

キャリアのエネルギー緩和はフォノンの放出によって起こるが音響フォノンによる緩和レートは光学フォノンのそれに比べて1桁以上小さい事が知られている[8]。今回観測しているドットのエネルギー差 ΔE は InAs ドットの LO フォノンエネルギー ($\Delta E=35\text{meV}$) より小さい為、Xa から Xb へのエネルギー緩和過程は、音響フォノンが支配的であるがその影響は非常に少ないと考えられる。よって、Xa が強い発光強度を保っている[9]。

2つの発光グループに関して検討を進めたが、この発光グループにはそれぞれ Xb・X2b と Xa・X2a の2つの発光ピークの組になっている。この起源について調べる。まず、これらのピークに対して励起強度依存性を調べたところ、励起強度に対して発光強度は線形な依存を示した。すなわちこれは、多励起子状態ではなく励起子に起因していることが推測される。よって次の4つの可能性が考えられる。

(1)荷電励起子

(2)量子ドットの異方性に起因する、異なる励起子の状態

(3)一方のドット中に存在する電子ともう一方のドット中に存在する正孔との結合

(4)励起子の励起状態。

それぞれについて以下に考察する。

(1) 荷電励起子

単一量子ドットの章でも述べたように、電子、あるいは正孔が余剰に添加された荷電励起子の場合、荷電励起子は2種類存在する。

1つ目は、余剰キャリアがドットの外で生成され、ドット内に供給される場合である。J.J.Finley[10]らによってこの現象が報告されている。この場合の発光特性として、濡れ層 (1.41eV) より高い励起エネルギーの場合のみに荷電励起子が存在し、濡れ層以下のエネルギーでは生成されない、

よって荷電励起子の PLE スペクトル中にピークを持たないという特徴を持っている。

2 つ目は、単一量子ドットの章でも述べた、荷電励起子に起因するようなドーピング構造でドット内に予め正孔が供給されている場合である。これは L. Besombes によって報告されている[11]。この場合の発光特性としては、濡れ層以下の励起エネルギーでは PLE スペクトルにピークを持つが、濡れ層より高エネルギーで励起された場合には、荷電励起子は発光しないという特徴を持つ。

この特徴を踏まえて、今回の X2a 及び X2b の PL、PLE ピークを観察すると、両方のピークとも、濡れ層に相当する励起エネルギーでも発光し、さらにそれ以下の励起エネルギー領域での PLE スペクトラムでもピークを持つ事がわかる。この事から、X2a、X2b のピークは、荷電励起子で説明は出来ない。

(2) 量子ドットの異方性に起因する異なる励起状態

単一量子ドットにおいて、分離した 2 つの励起子が理論的に予測され、その実験結果が報告されている[12-14]。この場合ドット形状の異方性に起因する為、2 つの励起子の発光は直線偏光に依存性があると報告されている。しかしながら本実験では偏光依存性が見られなかった。この事は Xa、Xb と X2a、X2b ピークがドット形状に無関係である事を示しており、この効果ではないことが分かる。

(3) 2 つのドットの非対称性遷移

結合量子ドットでは、有効質量の大きい正孔はそれぞれのドット中に局在し、電子は結合準位・反結合準位を形成する。よって、結合準位中の 1 つの電子状態が各ドットに局在している正孔と再結合発光する可能性がある。この場合では、それぞれのドットに存在する正孔間でのエネルギーは一定なので、Xb・X2b ピークのエネルギー差は、Xa・X2b のエネルギー差と一致するはずである。しかし、我々の観測ではそれらのピークのエネルギー差はバラバラであった。よってこの仮説も説明ができない。

(4) 励起子の励起状態

Xa、Xb が中性励起子の励起状態の可能性が考えられる。量子ドット中において電子は数十 meV 以上の大きな閉じ込め励起準位を持つことが知ら

れているが、正孔の場合は数 meV 程度と近い励起準位を持っている事が理論的、実験的に証明されている[4,16]。従って、X2a,X2b は励起子における正孔の励起準位に起因するものと考えられる。

5.3.2 結合ドットの電子状態 (PLE 特性)

PLE 測定結果から単一の結合ドットにおける電子状態について議論する。図 5-6 に PLE を示す。結合量子ドットの PLE スペクトラムは大きく分けて 2 つの特徴が見られる。

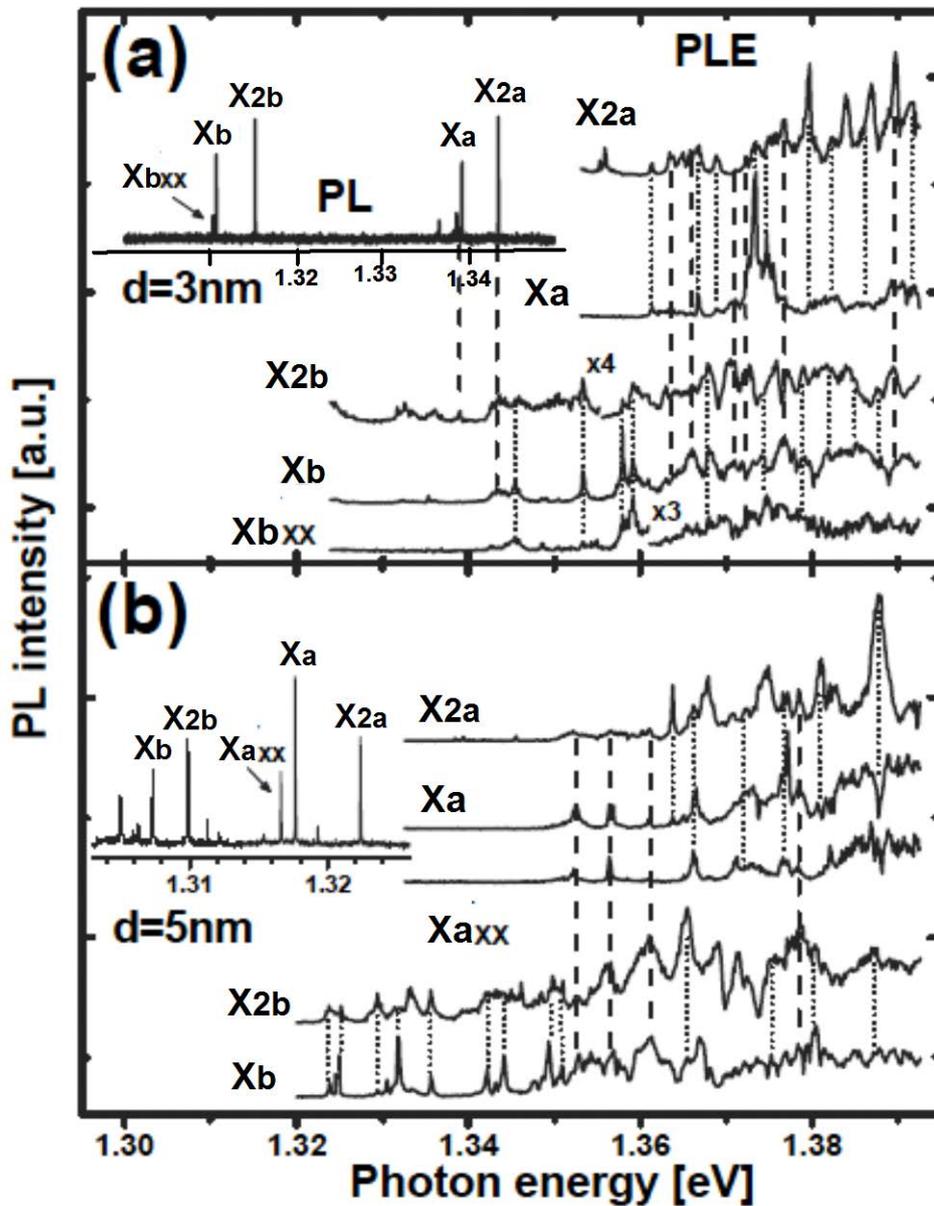


図 5-6 : (a)ドット間距離 3nm での 5 つのピークの PL、PLE スペクトル
(b)ドット間距離 5nm での 5 つのピークの PL、PLE スペクトル。

1 つは、同じ発光グループ内にある 2 つの Xa と X2a、 Xb と X2b ピークは多くの共通する PLE ピークを持つ事である。もう一つは、異なる 2 つの発光グループ間 (Xa と Xb) で比較した場合、幾つかのピークに共通するピークも存在するが、共通しない固有のピークも存在する事である。

前者の特徴は、Xa と X2a、 Xb と X2b が同じ励起準位系列に属している事を示している。これは、X2a や X2b 状態が Xa、 Xb 状態の励起準位であることの強い証拠でもある。

一方、後者の場合は、発光グループ間で共通しない固有のピークが存在する事から、結合量子ドットにおける電子状態が 2 つの異なる励起準位系列を持つ事を示している。すなわち、発光グループ間に共通する励起準位系列と、それぞれの発光グループに固有な励起準位系列が結合ドットに同時に存在する。発光グループ間に共通する励起準位系列は、電子の波動関数結合に起因する励起準位系列であると推測され、固有な励起準位系列は、結合ドット中においても結合していない局在化した正孔の励起準位系列であると推測される。

5.4 結合ドットのラビ振動

量子コンピュータの基本素子として 2qubitC-NOT ゲートが必要である事は序論でも述べたとおりである、そのためには結合ドット間に相互作用が働いている事と状態間のラビ振動が基礎技術になる。前節までに結合ドットの発光特性について解明し、またドット間の量子力学的相互作用も確認した。そこで次のステップとして結合ドットにおけるラビ振動の観測を行った。ラビ振動より計算された遷移ダイポールモーメントは単一量子ドットよりも大きいことが分かった。この理由についてコヒーレントボリュームの観点から考察する。

サンプル試料及び実験装置

試料は前節と同じ I-F 法を用いた InAs/GaAs 結合量子ドットである。4 ~ 30 個/ μm^2 の低面内ドット密度である。結合ドットのバリア厚さは 5nm を用いた。本節で使用したラビ振動観測に使用したバリア厚 5nm 試料はサンプル番号 71 である。実験装置は、図 3-11 に示す発光分光法の装置とラビ振動観測では図 3-12 に示すパルス光源を追加した装置を使用した。

5.4.1 PL と PLE 実験結果

PL 及び PLE を図 5-7 に示す。PL 観測データより高エネルギー側 (1.33eV) のグループと低エネルギー側 (1.30eV) に発光ピークが得られ、その中に 2 本のピークが存在している事が分かる。これらの特性は、前節で述べた結合量子ドットの発光特性と同じ傾向を示している。そのため、それぞれのピークは、高エネルギー側より

- X2a は反結合準位における正孔の励起準位の発光ピーク
- Xa は反結合準位の励起子の基底準位の発光ピーク
- X2b は結合準位における正孔の励起準位の発光ピーク
- Xb は結合準位の励起子の基底準位の発光ピーク

であると推定できる。また量子力学的な結合による分裂エネルギー幅は 19.2meV であり、バリア厚さ 5nm である事を示している。4 つの発光ピークの中で本質的なピークである励起子の基底準位からの発光ピーク Xa と Xb に着目する。

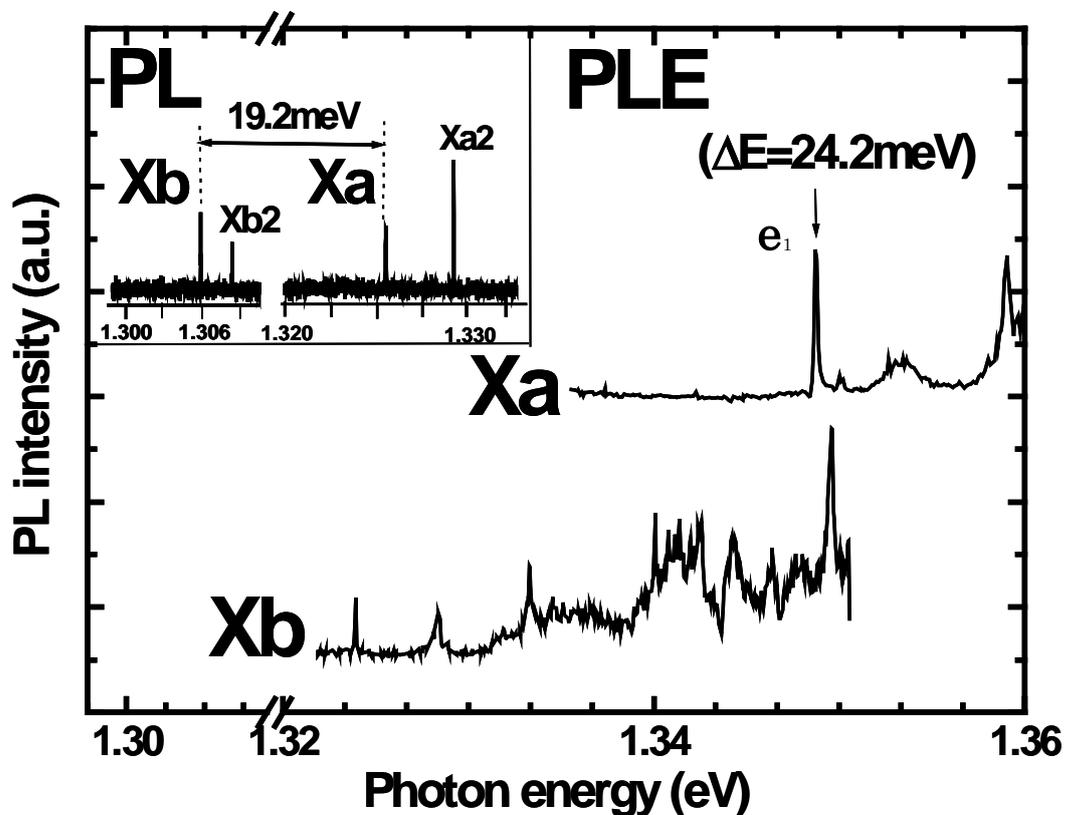


図 5-7. ドット間距離 5nm における PL 及び Xa と Xb の PLE. ラビ振動用の励起準位は Xa 中の $\Delta E = 24.2\text{meV}$ を使用

次に Xa と Xb の電子状態の特徴について PLE 測定結果を示す。Xa と Xb では幾つかの共鳴ピークが観測できた。これらのピークは、GaAs 1 LO 以下のゼロ吸収領域に存在する事と、Xa と Xb に共通したピークではないことから結合ドット内のそれぞれのドットに局在している正孔の励起準位であると考えられる。

本研究で用いている発光分光法でラビ振動を観測する為には、4 章でも述べたように、2 準位系ではなく図 5-8(a)に示すように 3 準位系を利用しなければならない。すなわち、結晶基底準位 ($|0\rangle$) と励起子の励起準位 ($|1\rangle$) 間の存在確率をラビ振動させて、励起子の励起準位から緩和して基底準位 ($|2\rangle$) から結晶基底準位 ($|0\rangle$) に発光再結合する光を観測する必要がある。

結合量子ドット中でこれらの条件に合致する準位について説明する。反結合準位の Xa とその正孔の励起準位である e_1 ピーク ($\Delta E = 24.2 \text{ meV}$) に着目した。すなわち、 e_1 の励起準位は、図 5-8(b)で示す $|0\rangle$ と $|1\rangle$ の状態間に相当する。また、Xa の発光ピークは $|2\rangle$ と $|0\rangle$ 間の発光再結合に相当する。ラビ振動測定を行うに当たり、励起光は e_1 ピークのエネルギーに一致させ、パルスレーザーを用いた。

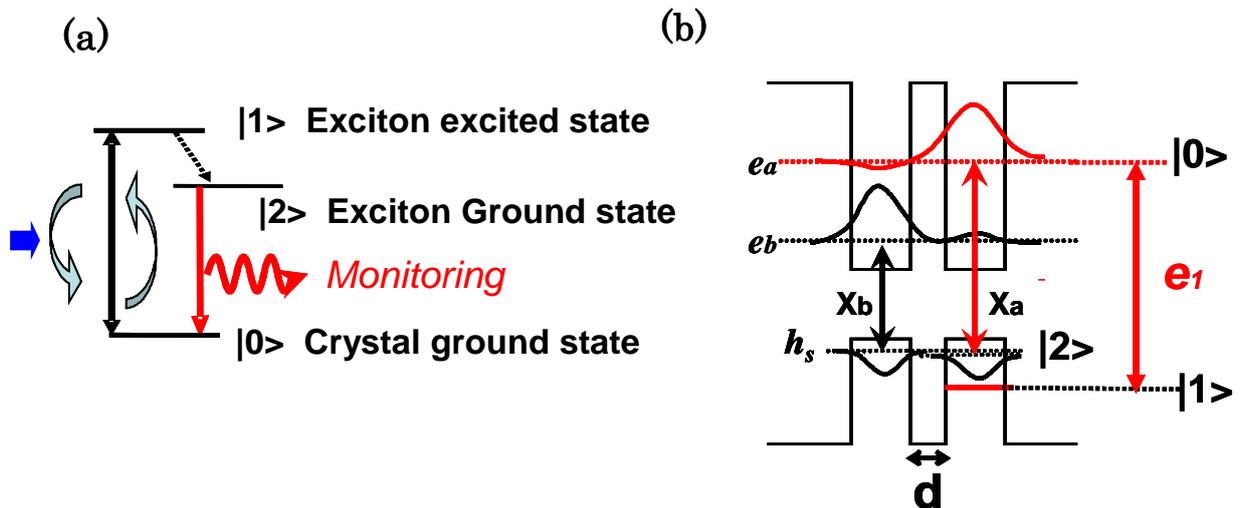


図 5-8. (a) 3 準位系を用いたラビ振動モデル

(b) ホールの励起準位を利用した結合量子ドット系の 3 準位系エネルギーバンド図

結合ドットのラビ振動を図 5-9 に示す。励起パルス強度を増加していくに従って、発光強度が正弦波で振動する様子が観測された。発光強度のピ

一つの励起強度は π パルス、発光強度の谷の部分には2 π パルスに相当し、結合ドットにおいてもラビ振動の観測に成功した。

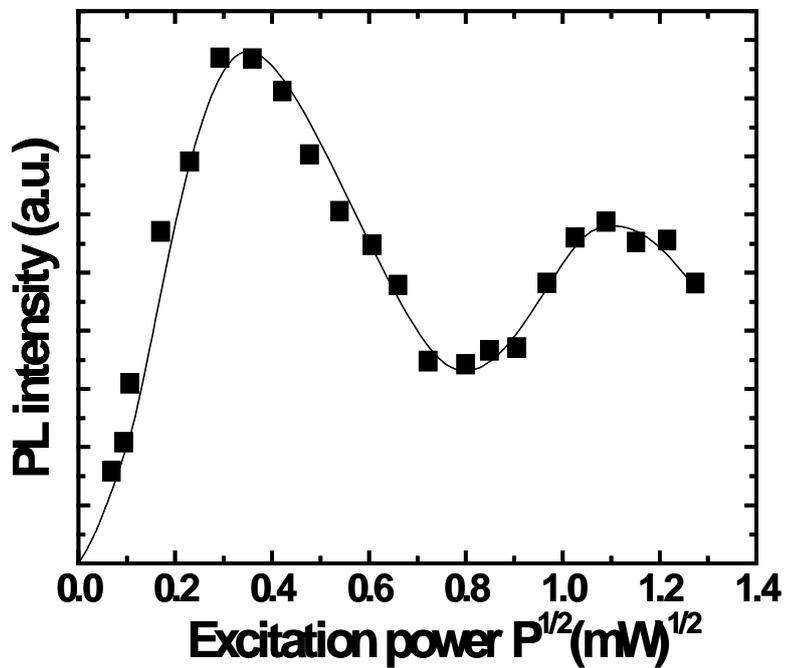


図 5-9. 結合量子ドットで観測したラビ振動波形

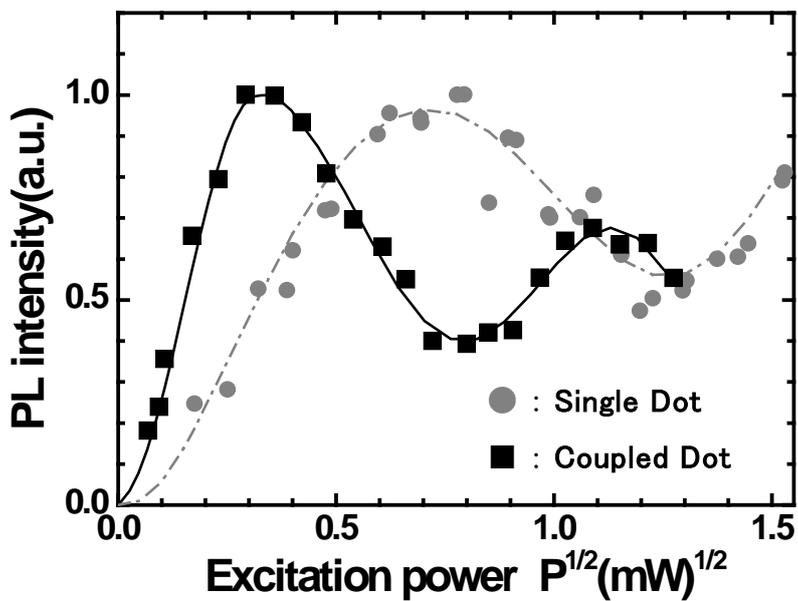


図 5-10. 結合ドットと単一ドットのラビ振動の比較. 発光強度は規格化してある。

この実験結果は、2qubit の量子演算において最も基礎的な操作であるラビ振動が実際に半導体結合量子ドットにおいて励起子を用いて可能である事を示している。次にラビ振動より計算できる遷移ダイポールモーメントについて考察する。図 5-10 は単一ドットと結合ドットのラビ振動を比較したものである。ここで、それぞれの発光強度は規格化してある。図からも明らかなように結合ドットのラビ振動の方が低い励起強度で振動している事が分かる。実験結果より算出された遷移ダイポールモーメントは、単一ドットで 40Debye、結合ドットで 72Debye であり、結合ドットの方が単一ドットに比べて 1.8 倍大きいダイポールモーメントを持つ事が分かった。これは、結合ドットの励起子の方が光との相互作用が強い事を意味している。

結合ドットが単一量子ドットより大きい遷移ダイポールモーメントを持つ理由について考察する。

遷移ダイポールモーメントは、振動子強度と非常に密接な関係を持っている。振動子強度は以下の式で定義される。

$$f = \frac{2m\omega}{3e^2\hbar} |\mu|^2 \quad (5.1)$$

ここで f は振動子強度、 m は励起子の有効質量、 μ は遷移ダイポールモーメントである。また、 $2m\omega/3e^2\hbar$ は定数であるので

$$f \propto \mu^2 \quad (5.2)$$

という関係式が導き出される。

結合ドットと単一ドットの振動子強度の比較については、C.Bardot や G.ortner らによって報告されている[16,17]。その報告によると、結合ドットの振動子強度が単一ドットのそれよりも約 2 倍ほど大きい事が示されている。その理由として、量子ドットの弱い閉じ込めを仮定すると、結合ドットの場合は、コヒーレンスボリュームが大きくなるのではないかという結論がされている。

コヒーレンスボリュームとは、電子と正孔の双極子がコヒーレントに存在する事のできる領域で定義されている。これは次式で定義される。

$$V_c = \pi a_B^{*3} |\mu|^2 \quad (5.3)$$

ここで、 V_c はコヒーレンスボリューム、 a_B^* は励起子のボーア半径である。励起子の閉じ込め領域が弱い場合には、コヒーレンスボリューム V_c は、ドットの体積にほぼ比例する事が知られている[18]。InAs/GaAs 半導体量子ドットの励起子は、一般にはワニエ励起子と呼ばれる弱い閉じ込め領域に分類される。

単一ドットと結合ドットのコヒーレンスボリュームについて考察する。概念図を図 5-11 に示す。

単一量子ドットの場合は、励起子はドット内に閉じ込められている為、コヒーレンスボリュームはドットの体積に比例する。

他方、結合ドットの場合は、励起子の波動関数が2つのドットにまたがって広がっている。そのためコヒーレンスボリュームは結果的に大きくなると考えられる。このことから、単一量子ドットのコヒーレンスボリュームに比べて結合ドットのコヒーレンスボリュームは、理論的には概ね2倍になると予想される。コヒーレンスボリュームと振動子強度、関係は

$$f \propto V_c \quad (5.4)$$

であるので、C.Bardot や G.ortner らの結合ドットの振動子強度が単一ドットより2から2.2倍であることが実験的に示されている事からも良く理論と一致している。

また、コヒーレンスボリュームと遷移ダイポールモーメントの関係は

$$\mu \propto \sqrt{V_c} \quad (5.5)$$

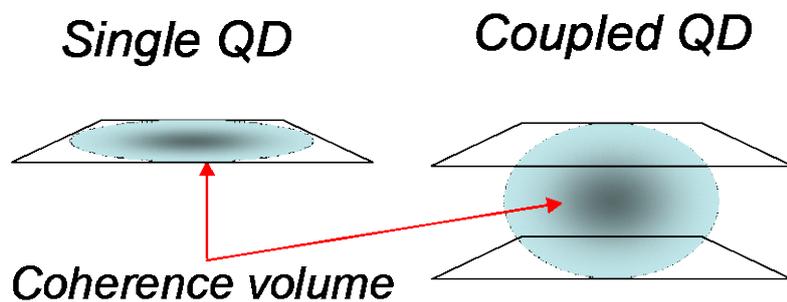


図 5-11. 単一ドットと結合ドットのコヒーレントボリュームのモデル図

である。これらの結果より、本研究における実験結果も C.Bardot や G.ortner の結合ドットにおける振動子強度の増大と同じ傾向を示しており、結合ドット中ではコヒーレンスボリュームが増大する考え方を支持するものである。

また、C.Bardot や G.ortner[16,17]らの実験に用いた結合ドットの底面の長さ、高さ、バリア厚幅はそれぞれ、15~20nm、2nm、2~4nm であり、本研究で用いた結合ドットとほとんど同じ形状であった。

結合ドットのラビ振動における考察においては、弱い励起子の閉じ込め領域を仮定した。しかしながら、実際の量子ドットの大きさを考慮すると、励起子の閉じ込め領域は、弱い閉じ込めよりも中間の閉じ込め状態に近いと考えられる。コヒーレンスボリューム増大効果は、励起子の閉じ込め領域が強い閉じ込めになるほどその効果は減少してゆくので励起子中間閉じ込め領域における詳細な理論計算が必要になると考えられるが、この領域においては、取り扱いが難しく理論的に計算する事は非常に困難である。定性的な見解ではあるが励起子中間の閉じ込め領域では、コヒーレンスボリューム増大効果は減少するもののその効果はゼロではないため、少なからずこの影響が残っているともの考えられる。

量子力学的に結合した結合量子ドットのラビ振動を観測した事は、この系において 2qubit 量子ゲートを実際に出来る可能性を示唆する。また、結合ドットは振動子強度及び遷移ダイポールモーメントが単一量子ドットに比べて大きい事が明らかにした。

5.5 結合ドットにおける励起子分子の観測

前節までの討論では、結合ドットの電子構造と 2つのドット間に働く相互作用について光学物性から明らかにしてきた。その結果、本研究で用いている結合ドットの相互作用は、電磁気学的相互作用よりも、量子力学的な相互作用が支配的な系であることが明らかとなった。

この節では、この量子力学的な相互作用を利用して 2qubit 素子に必要な 4つの状態 ($|00\rangle, |01\rangle, |10\rangle, |11\rangle$) を調べた。

5.5.1 結合ドットを用いた 2qubit C-NOT ゲートの構造

2qubit の量子ゲートの実現方法は、序論にも述べたとおりであるのでこ

ここでは割愛するが、重要な事は、まず 4 つの状態($|00\rangle$ 、 $|10\rangle$ 、 $|01\rangle$ 、 $|11\rangle$)が形成できる系である事と、その 4 つの状態のうち $|10\rangle \leftrightarrow |11\rangle$ がラビ振動によって状態を任意に変化させる事の 2 つである。

単一ドットを用いた 2qubit C-ROT ゲートは序論でも述べたように X, Li et.al[19]によってすでに報告されている。

しかし、単一ドットでの 2qubit 構造の欠点は、2qubit 以上拡張する事ができないということである。これは、単一ドット内に励起子を 2 つ以上

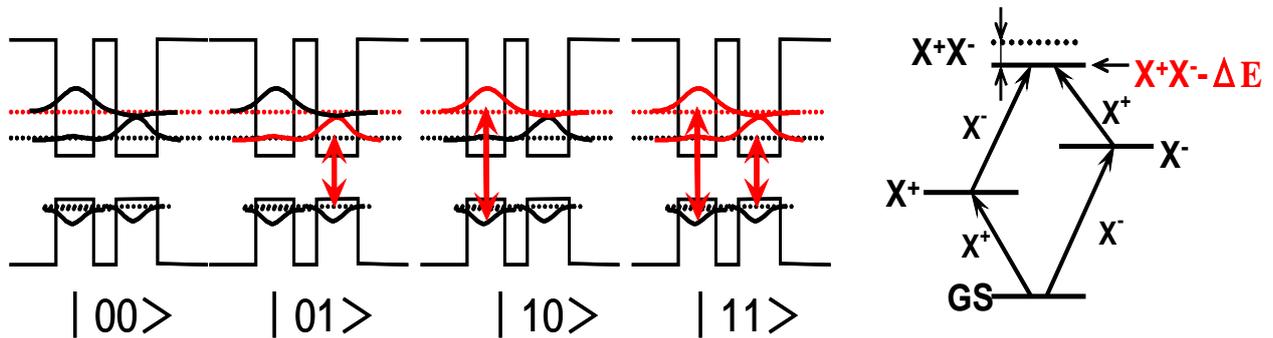


図 5-12. 結合ドットの結合・反結合準位を利用した 4 状態とそのエネルギーバンド図。結合準位のみ励起子が存在する場合は $|01\rangle$ 、反結合状態のみ励起子が存在する場合は $|10\rangle$ 、両方に励起子が存在する場合は $|11\rangle$ に相当する。
 $|11\rangle$ は励起子分子状態でエネルギーが ΔE だけ変化する。

生成する事ができないためである。

結合ドット構造を用いた 4 つの状態を形成する為に図 5-12 のような状態構造を提案した。

結合ドットにおいては、2 つのドット間の相互作用は量子力学的結合が支配的な系であることが今までの実験結果より分かっている。量子力学的結合の場合、結合準位と反結合準位に分裂する。それぞれの準位の状態を 4 つの状態として利用するものである。

すなわち、

- ・ 結合ドットに励起子が無い場合を $|00\rangle$ 、
- ・ 結合準位のみ励起子が存在する状態を $|01\rangle$
- ・ 反結合準位のみ励起子が存在する場合を $|10\rangle$
- ・ 両方の準位に励起子が存在する場合を $|11\rangle$ の 4 つの状態である。

両方の準位に励起子が存在すると、2つの励起子が励起子分子へと変化して、 ΔE だけ低エネルギーになることが予想される。

サンプル試料及び実験装置

試料は前節と同じI-F法を用いたInAs/GaAs結合量子ドットである。4~30個/ μm^2 の低面内ドット密度である。結合ドットのバリア厚さは5nmを用いた。本節で使用したバリア厚5nm試料はサンプル番号42である。実験装置は、図3-11に示す発光分光法の装置と図3-12に示すパルス光源を追加した装置を使用し、パルス光源をCW光源として使い、2波長CW励起光源実験系とした。

5.5.2 実験結果及び考察

図5-13はサンプル番号42の結合ドットのPL・PLEを示したものである。

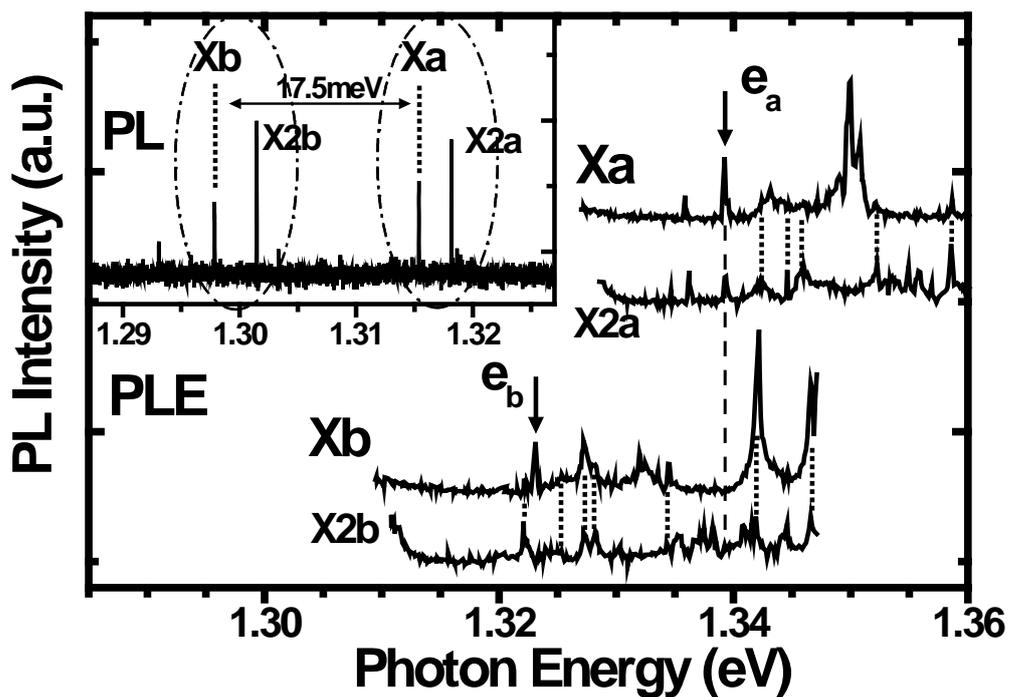


図5-13. ドット間距離5nmの結合ドットのPL、PLEスペクトル。PLEスペクトル中の e_a と e_b の励起準位は、結合状態・反結合状態のみに励起子を生成できる固有なピークである

まずPLに着目する。実験条件は、励起エネルギーは濡れ層(1.41eV)を励起し、励起強度は弱励起である。バリア厚さ5nmで量子力学的結合

が支配的な系であるので PL スペクトラムから結合準位によるピーク **Xb** と反結合準位 **Xa** の 2 つのグループからの発光が確認された。PLE に着目すると、**Xa**、**X2a** 及び **Xb**、**X2b** の間に注目すると PLE は共通するピークが多数存在 (短い破線) し、同一系列の電子状態である事が確認できる。また、**Xb** と **Xa** 間に注目すると共通するピークは 1 個 (長い破線) であり、一致していないピークが存在する事が確認できる。以上のような PLE の特徴は、5.2 節で述べた結合ドットの発光特性と同じ特性を示すものであるので、

- **Xa** は励起子の反結合準位の発光。
- **X2a** は反結合準位における励起子の正孔の励起準位からの発光。
- **Xb** は励起子の結合準位の発光。
- **X2b** は結合準位における励起子の正孔の励起準位からの発光。

であると考えられる。また PLE スペクトル上で **Xa** 系列と **Xb** 系列に一致しないピークは、それぞれの正孔の励起準位によるものであると考えられる。ここで、励起子の基底準位である **Xa** と **Xb** の電子状態に注目すると、それぞれの準位に独立に励起できる準位 (e_a と e_b) がある事が確認できる。すなわち、**Xa** の励起準位である e_a ピークのエネルギーは、**Xb** 系列にはピークが存在していない。また逆に、**Xb** 系列の e_b ピークのエネルギーでは、**Xa** 系列にはピークは存在していない。このようなピークに注目する理由は、量子力学的な結合準位における 4 状態を作る事ができるためである。この e_a と e_b の励起準位を利用して、 e_a ピークを選べば、反結合準位 **Xa** 系列のみにキャリアを作る事ができ、状態 $|10\rangle$ を作る事ができる。また e_b ピークを選べば結合準位 **Xb** 系列のみにキャリアを作る事で状態 $|01\rangle$ を作る事ができる。

2 つの励起光源を用いて、結合状態 **Xb** と反結合状態 **Xa** にキャリアを作ったときの変化を調べた。その結果を図 5-14 に示す。図 5-14 の一番下の PL は、反結合準位にキャリアを作った (e_a を励起) 場合である。この時は **Xa** 系列のみの発光が確認されるが、**Xb** 系列の発光は無い事が分かる。中央の PL は、結合準位にキャリアを作った (e_b を励起) もので、**Xb** 系列は発光しているが **Xa** 系列は発光していないことが確認できる (実験上、 e_b を励起すると励起光の迷光スペクトラムが取りきれずに観測されてし

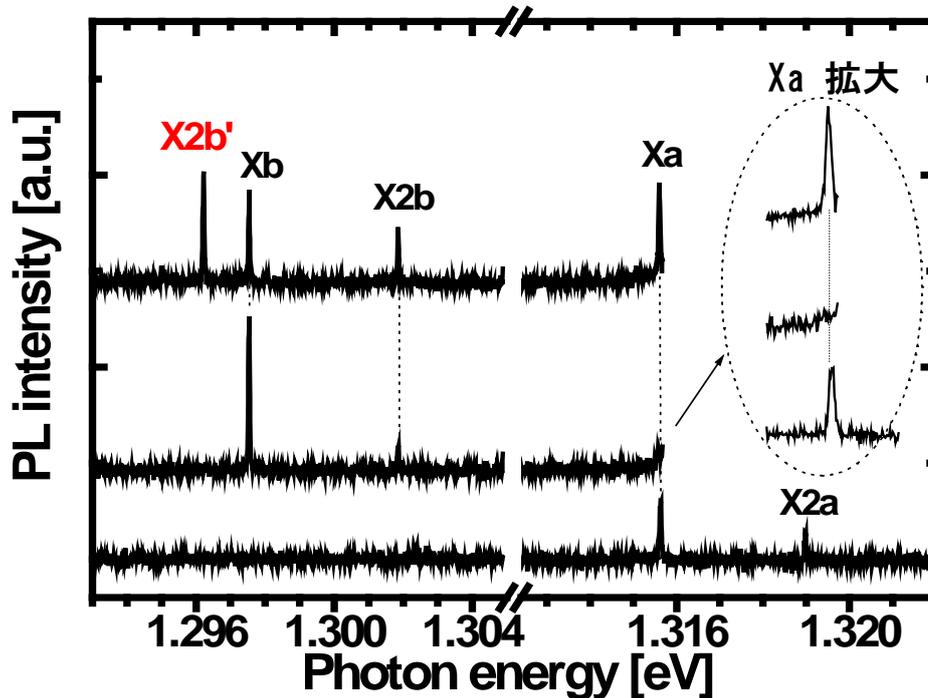


図 5-14. 2 波長励起した場合の PL スペクトル。

(下) Xa, X2a を励起した場合の PL、(中) Xb, X2b を励起した場合の PL、
 (上) 両方励起した場合の PL、新しいピーク X2b' が現れる

まう為 X2a の発光を観測する事は不可能である。円内は Xa のピークは拡大図を示す)。最後に、一番上の PL は結合準位と反結合準位の両方にキャリアを作った場合である。この場合は、Xa と Xb の発光が確認される事はもちろんであるがその他に、Xb ピークの 1.3meV 低エネルギー側に新しいピーク (X2b') が現れた。これは、結合準位と反結合準位の 2 つの励起子が結合した事による励起子分子である可能性であると考えられる。そのため、このピークの起源について調べた。

まず初めに、新しく出現したピーク (X2b') が励起子なのか励起子分子による発光なのかを同定する事が必要である。そこで、全ての発光ピークについて励起強度依存性を調べた。図 5-15 にその結果を示す。このときの励起条件は濡れ層(1.41eV)のエネルギーを励起した。励起強度依存性においては、励起子の場合には励起強度の増加に比例して発光強度が増加するが、励起子分子の場合には発光強度は励起強度の 2 乗に比例する事から区

別する事ができる。弱励起時 ($P_0=300 \mu\text{W}$) では、4つの発光ピーク (X_b, X_{2b}, X_a, X_{2a}) が見られるが、強励起状態では、さらに4つの発光ピーク ($X_{2b'}, XX_b, X_{2a'}, XX_a$) が確認された。図 5-15 の上部に 8つのピークの励起強度依存性を示す。(X_b, X_{2b}, X_a, X_{2a}) の4つのピークについて発光強度は1乗に比例し、励起子からの発光である事が分かる。そして残りの4つのピーク ($X_{2b'}, XX_b, X_{2a'}, XX_a$) の発光強度は、励起強度の2乗に比例しており、励起子分子からの発光であることが分かった。よって、 X_{2b}' の発光ピークは励起子分子である事が明らかとなった。

しかしながら、励起子分子であっても、結合ドットの場合は2つの成り立ちが考えられる。一つは、 X_a と X_b の2つの励起子による励起子分子、もう一つは、 X_{2b}' の発光ピークが X_b の低エネルギー側に存在している事から X_b 自身の励起子分子の可能性である。

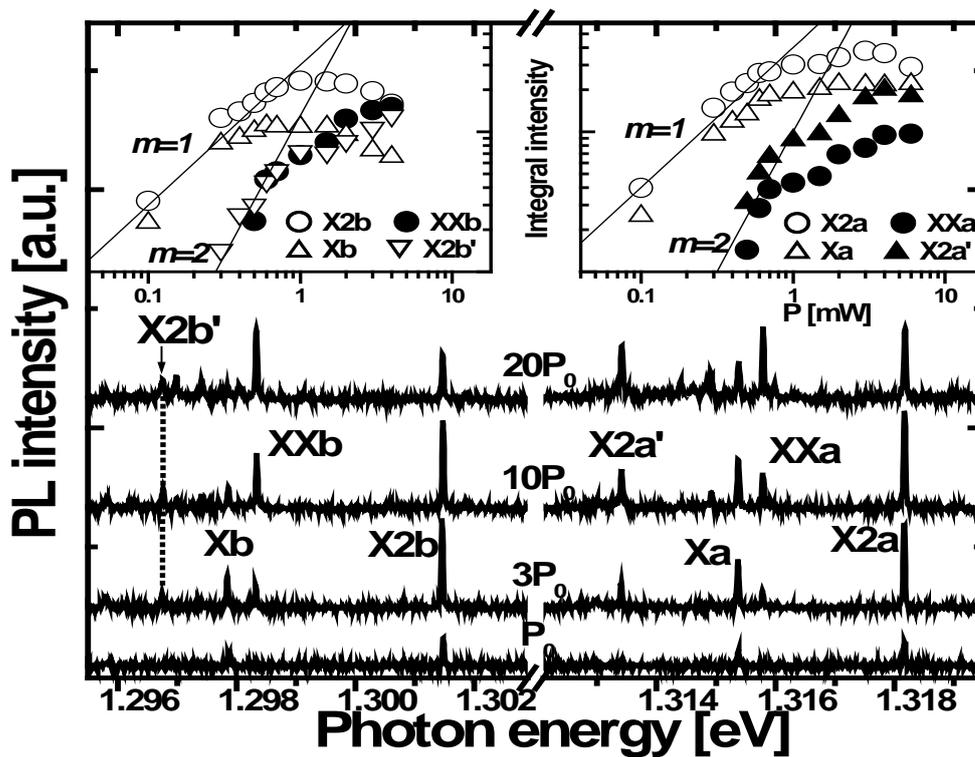


図 5-15. 励起子・励起子分子の励起強度依存性. 励起子による4つの発光ピーク (X_a, X_{2a}, X_b, X_{2b}) の他にさらに励起子分子の特徴を持つ4つの発光ピーク ($XX_a, X_{2a}', XX_b, X_{2b}'$) が存在する。

これを明らかにする為に、2波長励起強度依存を測定した。この実験方法は、2つの励起光源を e_a と e_b の励起準位に合わせて、 e_a と e_b の励起強度を変化させた時の X2b' の発光強度を観測する。その実験結果を図 5-16 に示す。ここで X 軸は e_a の励起強度、Y 軸は e_b の励起強度、そして Z 軸は X2b' の発光強度を 3次元図で示したものである。

もし、励起子分子 X2b' が Xb 自身の励起子分子であるならば、 e_b の励起強度のみに依存すると予想される。また、Xa と Xb の励起子による励起子分子であるならば、 e_a と e_b の両方の励起強度に依存すると予想される。図 5-15 から明らかな様に、X2b' の発光強度は、 e_a と e_b の励起強度が同じときに最も発光強度が強い事が分かる。この事実から、X2b' の起源は、Xa と Xb の励起子が結合する事によって生成した励起子分子である事が証明された。従って、X2b' のピークは本研究で提案している結合ドットにおける 4 状態のうち $|11\rangle$ 状態である可能性の一つの証拠を実験的に示す事ができた。

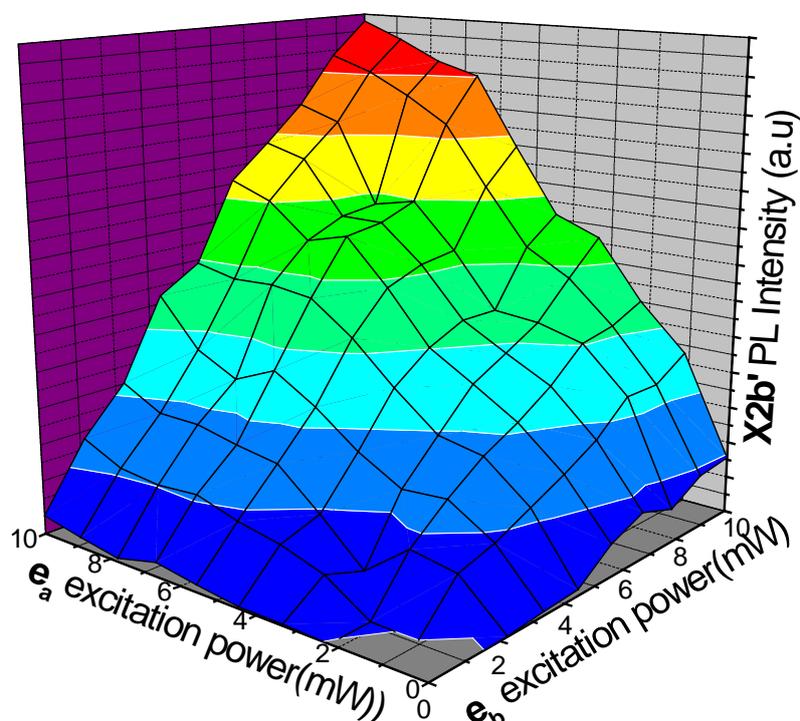


図 5-16. 2波長励起強度依存性. X 軸、Y 軸はそれぞれ e_a 及び e_b の励起強度を示す。Z 軸は励起子分子 X2b' の発光強度

5.1~5.4 節のまとめ

- (1) 量子ゲートに必要な 4 状態 ($|00\rangle$ 、 $|01\rangle$ 、 $|10\rangle$ 、 $|11\rangle$) を結合量子ドットの結合・反結合状態を利用してできる事を提案した。
- (2) バリア厚 5nm の結合ドットにおいて、結合準位と反結合準位を独立に励起できる準位を利用する事で、 $|01\rangle$ と $|10\rangle$ の状態が可能になる事を示した。
- (3) 結合準位と反結合準位に励起子を作ると新しいピーク (X2b') が出現し、そのピークは 2 つの励起子が結合する事によって出来た励起子分子である可能性を示した。

5.6 励起子分子の詳細な発光特性及びカスケードプロセス

前節では、結合ドットの PL では、発光が 4 つ存在し (Xa, X2a, Xb, X2b) 結合ドット中の反結合準位 (Xa, X2a) と結合準位 (Xb, X2b) の両方に励起子を生成すると、励起子分子に起因する発光 (X2b') が現れる事を示した。しかしながら、この発光が相互の励起子分子 ($|11\rangle$) 状態によるものか確実に証明できていない。

下記に、不明点を上げる。

① 励起子分子に起因するの発光ピークの同定。

結合ドット中の励起子分子の本数は 4 本確認できた。

このうち、X2b' を除く 3 本の発光ピークは何に起因するか？

② 励起子分子の 2 つのパスが確認できていない

量子力学的結合による相互の励起子分子は、2 つの過程が存在すると思われる。すなわち、エネルギー差 ΔE が一致する 2 つのピークが観測されなければならないが、実際には片方 (X2b') の過程しか確認していない。もう 1 方の過程が観測されないのはなぜか？

これらの不明点を解決する為に下記の実験を行った。

- (A) 励起子分子の同定 (相互の励起子分子である X2b' は、Xa、Xb 系列か、X2a、X2b 系列によるものか)

- (B) 励起光の偏光特性によって励起子分子の同定を行う
- (C) 相互の励起子分子であれば、2段階の過程（カスケード）を経て生成する（励起子無し→励起子1個→励起子分子）このカスケードな過程を明らかにする。

サンプル試料及び実験装置

試料は前節と同じI-F法を用いたInAs/GaAs結合量子ドットである。4～30個/ μm^2 の低面内ドット密度である。結合ドットのバリア厚さは5nmを用いた。本節で使用したバリア厚5nm試料はサンプル番号42、及び100である。実験装置は、図3-11に示す発光分光法の装置と図3-12に示すパルス光源を追加した装置を使用し、パルス光源をCW光源として用い、2波長CW励起光源実験系とした。

結合ドットのPLの再測定{(A)の励起子分子の同定}

図5-18,および5-19は、濡れ層を強励起した場合のPLである。前節でも述べたように、励起強度を増加させると、4つの励起子に起因する発光ピーク(X2a,Xa,X2b,Xb)と、励起子分子に起因する4つ発光ピーク(XXa、X2a'、XXb、X2b')が観測できた。それ以外の多励起子の発光過程は同定する事は困難である。

図5-18は4つある発光ピークのうち、それぞれXa,Xbの発光ピークを基準とした発光エネルギー差を示したものである。

一致しているピークについて注目すると、Xa,Xbの約0.5meV低エネルギー側の発光ピークがほぼ一致している事が分かる。この傾向は、観測したドットの約半数に見られた。またXa,Xbより高エネルギー側の0.4meVの所でXXa,XXbの励起子分子の発光エネルギー差はほとんど一致しているがこれは、このドットのみに見られた傾向であった。以上よ、Xa,Xb系列では、0.5meV低エネルギー側の一致したピークが相互に関係するピークである可能性を示している。次に、図5-19は高エネルギー側のX2aとX2bの発光ピークエネルギーを基準としたエネルギー差を示したものである。図5-18のXa,Xbを基準とすると一致していなかった励起子分子の発光ピークX2a'とX2b'の発光ピークが発光ピークの線幅以内で一致している事が分かった。この傾向は他のサンプルでも確認されその確率は80%と高いものであった。

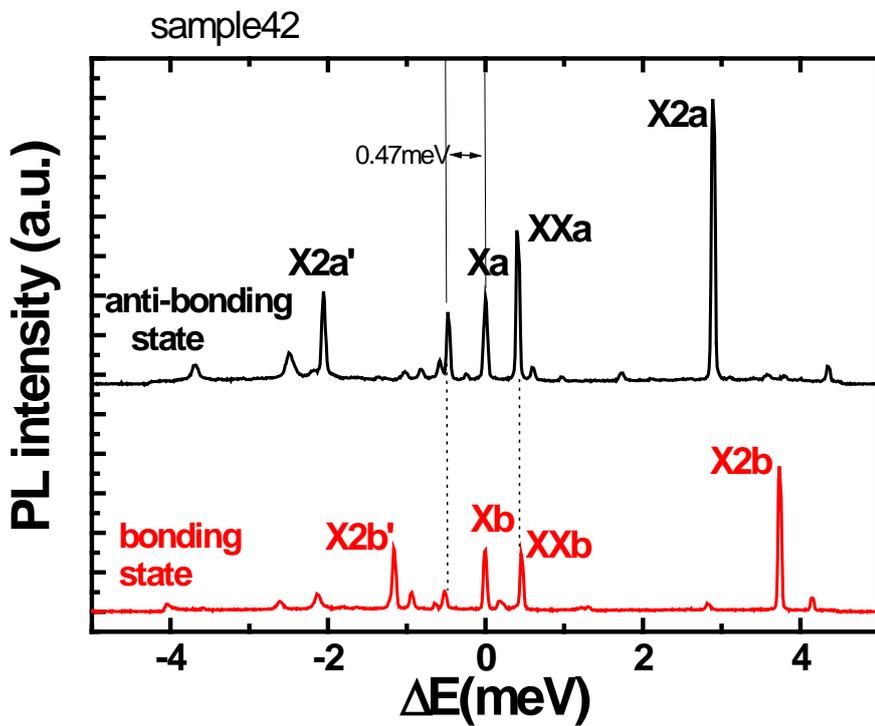


図 5-18 Xa、Xb を基準とした強励起時の PL

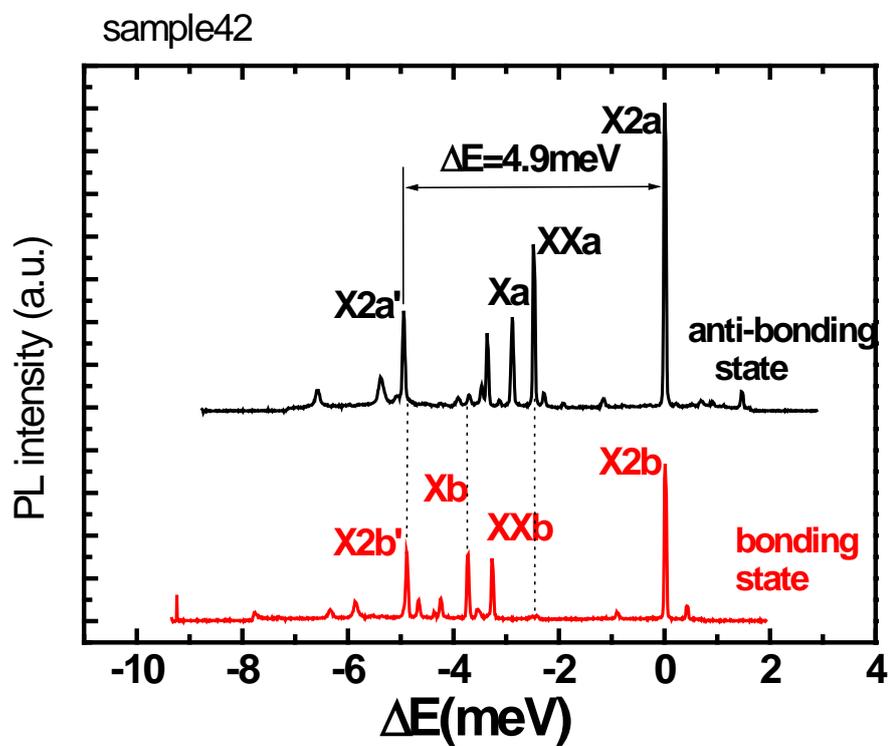


図 5-19 X2a,X2b を基準とした強励起時の PL

以上より、 $X2a'$, $X2b'$ は、 $X2a$, $X2b$ の相互作用による励起子分子の発光ではないかと考えられる。

図 5-20 にエネルギーバンド図を示す。強結合の結合ドットでは励起子分子 $X2a$ と $X2b$ による 4 準位系が成立しており、相互作用による励起子分子の結合エネルギーは 4.9meV であると考えられる。 $|11\rangle \Leftrightarrow |10\rangle$ に相当するエネルギーが $X2a'$ であり、 $|11\rangle \Leftrightarrow |01\rangle$ に相当するエネルギー $X2b'$ であるため、 $X2a'$ ($X2a - 4.9\text{meV}$) と $X2b'$ ($X2b - 4.9\text{meV}$) のエネルギー差が一致していると考えられる。他のドットにおいても 80% 以上でこの傾向が見られる事から高エネルギー側の発光ピーク ($X2a$, $X2b$) 系列でこのエネルギーバンドのモデルが成立していると考えられる。

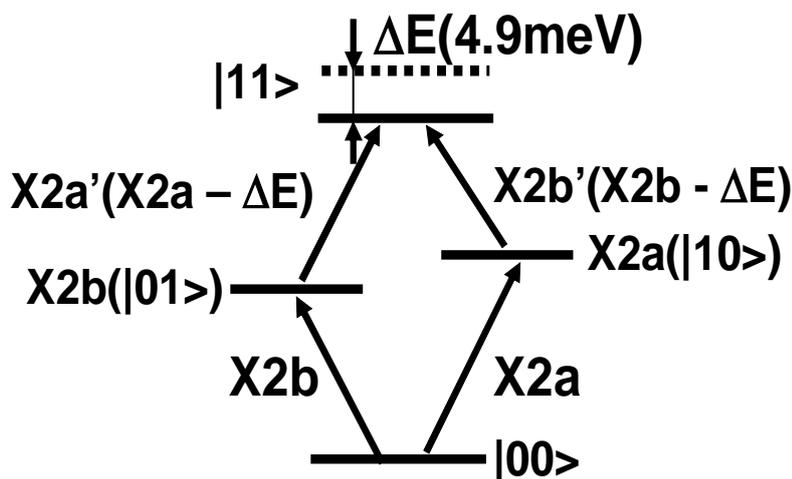


図 5-20 結合量子ドットの 4 準位系エネルギーバンド

この仮定に基づくと、残りの励起子分子 XXa , XXb は、 $X2a$ と $X2b$ の自分自身の励起子分子と推測される。なぜなら、 XXa , XXb は、 Xa と Xb の発光ピークより高エネルギー側に存在するため、 Xa , Xb に起因する励起子分子とは考えにくい為である。

5.6.2. 励起子分子の偏光特性 {(B) の確認}

そこで本研究では 4 つの励起子分子 (XXa , $X2a'$, XXb , $X2b'$) の起源を明らかにするために円偏光励起による発光の偏光依存性を行った。

サンプル試料及び実験装置

試料は前節と同じ I-F 法を用いた InAs/GaAs 結合量子ドットである。4 ~ 10 個/ μm^2 の低面内ドット密度である。結合ドットのバリア厚さは 5nm を用いた。本節で使用したバリア厚 5nm 試料はサンプル番号 100 である。実験装置は、図 3-13 に示す 2 波長パルス励起実験装置系を利用した。2 つの励起パルスエネルギーは、Xa、X2a と Xb、X2b の固有の励起準位である e_a と e_b に共鳴させた。2 つの励起パルスの時間タイミングは、時間差ゼロ、すなわち 2 つの励起パルスは同時刻にサンプルに照射するように設定した。また 2 つの励起光源に $\lambda/4$ 波長板を設置し、円偏光励起とした。

励起子分子の偏光特性結果

励起子分子は 2 つの励起子のスピンのアンチパラレルになっていないと生成されないことに注目し励起子分子の起源を区別する事が出来る。例えば、X2a (X2b) 自分自身の励起子分子に起因するピークであるならば、Xa (Xb) のスピン選択励起すると励起子分子が生成されない。しかし相互の励起子分子ならば図 5-21(a)に示すように、X2a と X2b のスピンの向きを反平行になるような選択励起を行えば相互の励起子分子は生成することができる。円偏光選択励起と励起子分子の有無のチャートは図 5-21(b)に示す。

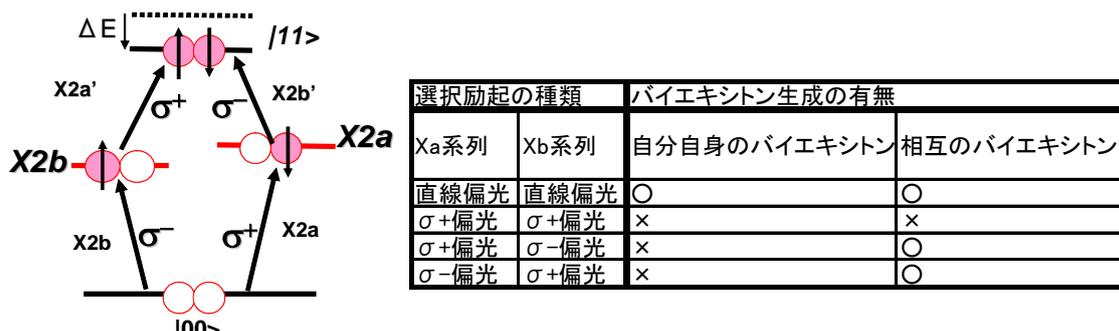


図 5-21 (a) スピンを考慮した結合ドット 4 準位ダイヤグラム

(b) 円偏光選択励起による励起子分子生成過程のチャート図

円偏光選択励起による実験結果を図 5-22 に示す。実験装置の都合上、Xb 系列しか観測できない。

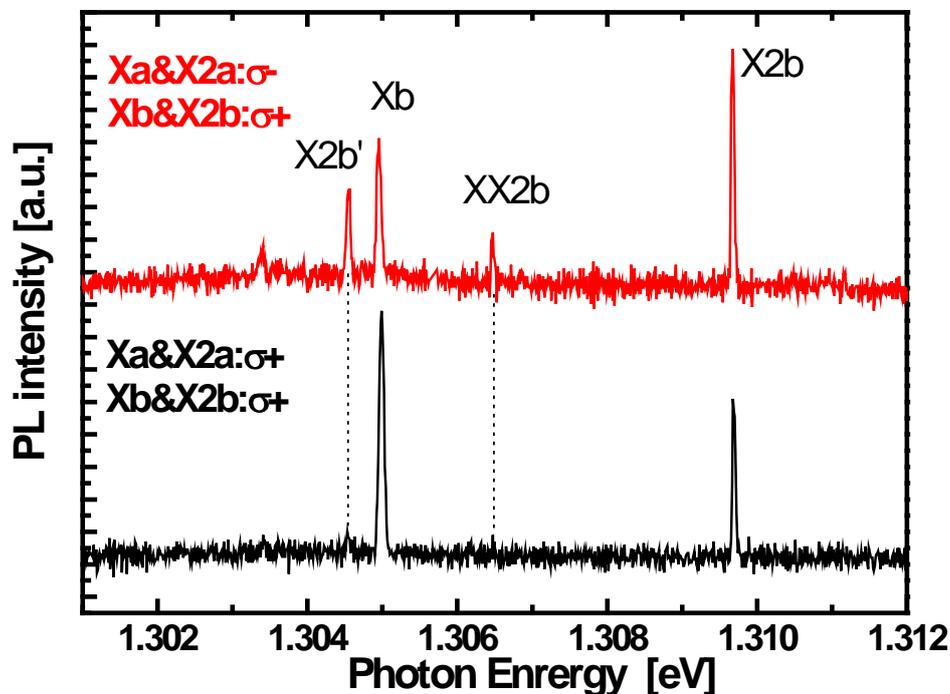


図 5-22 円偏光特性

(上) $Xa \sigma^-$ 、 $Xb \sigma^+$ 偏光励起した時の PL スペクトル

(下) Xa 、 Xb 共 σ^+ 偏光励起した時の PL スペクトル

励起子分子 $X2b'$ の偏光特性は、 e_a と e_b の両方とも同じ向きの円偏光励起ではほとんど発光していないが、 $e_a \sigma^+$ 、 $e_b \sigma^-$ の円偏光励起の場合には、発光している事が確認できるので相互の励起子分子であることが明らかとなった。さらに $X2b$ 自分自身の励起子分子と推測した XXb の発光も相互の励起子分子と同じ傾向を示した。これらの実験事実より、 $X2b'$ は $X2a$ と $X2b$ の相互の励起子分子であり基底準位であると予想される。 XXb においては、自分自身の励起子分子ではなく相互の励起子分子の励起状態からの発光であると考えられる。

5.6.3 2 波長励起実験による励起子分子カスケード過程

{(C)の確認} 2 波長励起 PL 測定

前節では、相互の励起子分子 $X2b'$ が、 $X2a$ と $X2b$ から生成されていることを示す実験を行った。相互の励起子分子は図 5-20 のように、励起子

無し ($|00\rangle$) \rightarrow 励起子 1 個 ($|01\rangle$ 又は $|10\rangle$) \rightarrow 励起子分子 ($|11\rangle$) という生成過程であり、必ず 2 段階の過程を経て生成される (カスケード過程)。この過程が実際に行われているかを確かめるために 2 波長励起光源を用いた PL 実験を行った。

実験方法のバンド図 5-23 に示す。

2 つの励起光源を用いて $|00\rangle \rightarrow |11\rangle$ 状態にカスケードな励起を行う。この時、2 段目の励起 ($|10\rangle \rightarrow |11\rangle$) は基底状態の直接励起を行った。そして観測は、 $|11\rangle \rightarrow |10\rangle$ の緩和の発光を観測する。

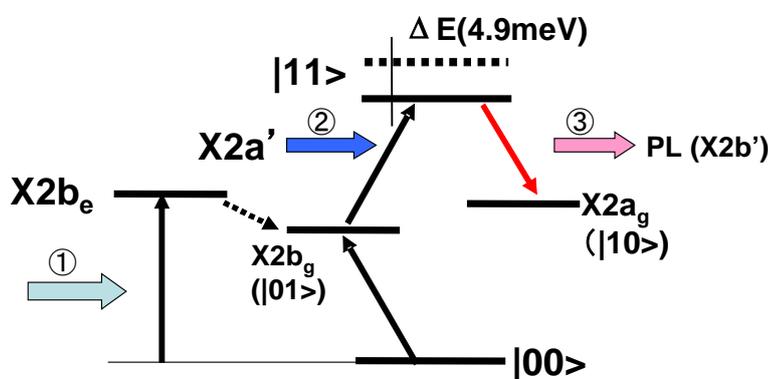


図 5-23 2 波長励起 PL 実験におけるエネルギーバンド。

この実験の利点は、励起準位を極力使用しない方式であり、緩和過程を考慮しなくても良いので生成過程が理解しやすい。

サンプル試料及び測定装置

試料は前節と同じ I-F 法を用いた InAs/GaAs 結合量子ドットである。4 \sim 30 個/ μm^2 の低面内ドット密度である。結合ドットのバリア厚さは 5nm を用いた。本節で使用したバリア厚 5nm 試料はサンプル番号 42 である。実験装置は、図 3-12 に示すパルス励起実験装置系を利用した。2 つの励起光源に $\lambda/2$ 波長板を設置し、直線偏光励起とした。

今回行った 2 波長励起実験の手順を示す。

- ① 1 波長目は、X2b 系列の励起準位 (X2be) に励起エネルギーを合わせて CW 励起する。

このときの条件は、X2b だけを励起する準位を選ぶ。(Xa、X2a を励起せず、かつ Xb 系列を極力励起しない準位)。X2be で生成したキャ

- リアが X2bg (基底状態) に緩和する。 $(|00\rangle \rightarrow |01\rangle$ キャリア生成)
- ② 2波長目は X2a' のエネルギー (基底準位) を直接励起する。この時はパルス励起を行う ($|01\rangle \rightarrow |11\rangle$ キャリア生成)、Xa、X2a、Xb、X2b は励起されない。
- ③ X2b' の発光を観測 ($|11\rangle \rightarrow |10\rangle$) する。

励起子分子カスケード過程実験結果

この実験の PL スペクトルを図 5-24 に示す。

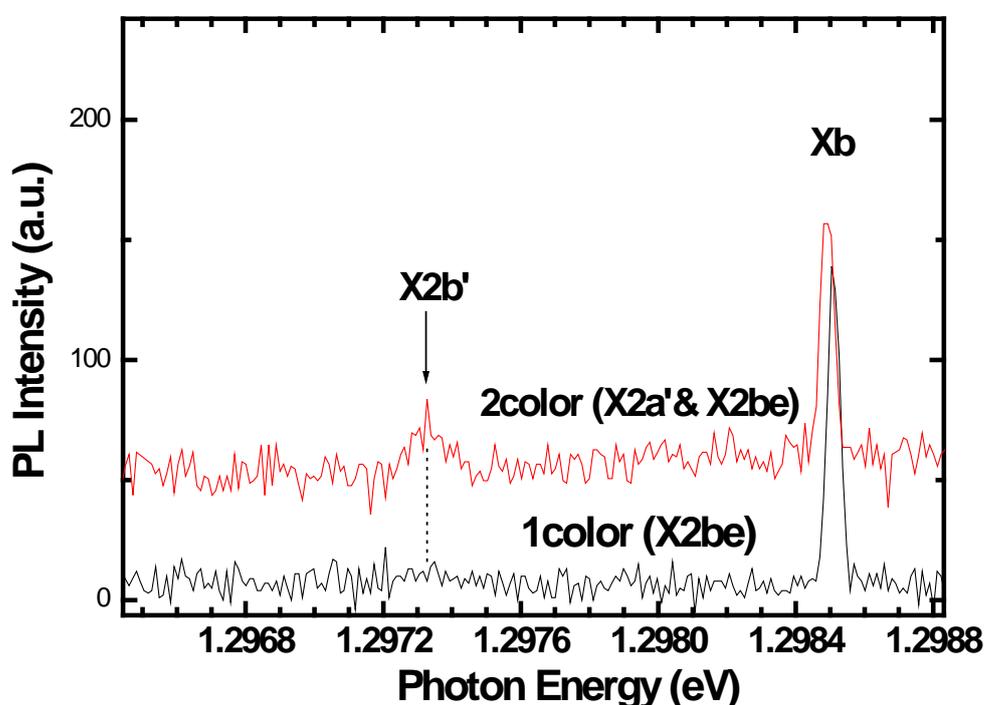


図 5-24 2波長励起測定結果

- (上) 2波長励起時 (X2a' & X2be) の PL スペクトル
- (下) 1波長励起時 (X2be) の PL スペクトル

1波長励起 (X2be) は、X2b の励起準位のみ励起した場合 (実験手順①のみ)、2波長励起は、X2b の励起準位と X2a' の基底準位を励起した場合 (実験手順①+②) である。2波長励起した時は、X2b' の発光が増加している事が分かる。この事から、励起子分子からの発光 X2b' はカスケードな過程を経て生成されている可能性を示している。

5.6.4 2波長励起 PLE 測定

2波長励起 PL における X2b' の発光増加だけでは、他の効果（強励起による多体効果、2光子吸収過程）等も考えられるので、カスケード過程のより確実な証拠とするために X2a' のパルス励起の PLE も同時に測定した。

バンド図 5-25 を用いて 2波長 PLE の実験方法を示す。

- ① 1波長目は、X2b 系列の励起準位 (X2be) を CW で励起する。
このときの条件は、X2b だけを励起する準位を選ぶ。(Xa、X2a を励起せず、かつ Xb 系列を極力励起しない準位)。X2be で生成したキャリアが X2bg (基底状態) に緩和する。(|00> → |01> キャリア生成)
- ② 2波長目は X2a' の基底準位に相当するエネルギー付近で励起エネルギーを変化させる。
- ③ X2b' の発光を観測 (|11> → |10>) し、2波長目の励起エネルギーをパラメータとして PL 発光強度の変化を測定する。

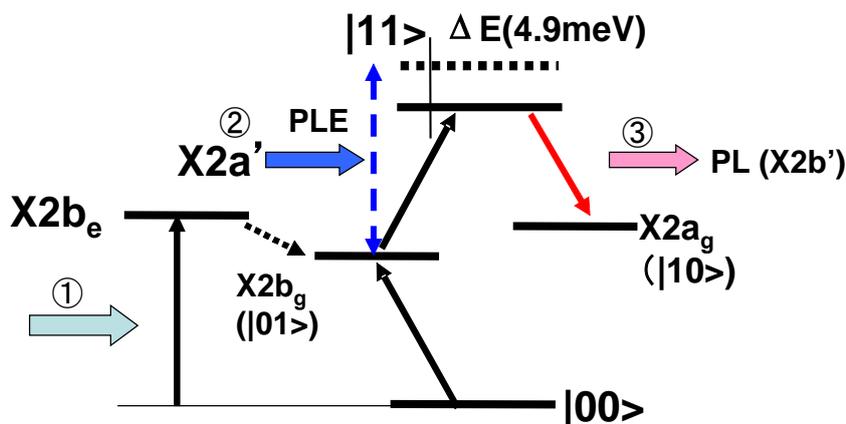


図 5-25 2波長 PLE 測定方法

②の X2a' の励起エネルギーをパラメータとして③の PL 発光強度の変化を観測する。

その結果を図 5-26 に示す。ここで最も注目する事実は、X2b' の PLE 発光強度ピークが、ちょうど X2a' の基底準位のエネルギーと一致している時に最も発光が強くなっている事である。

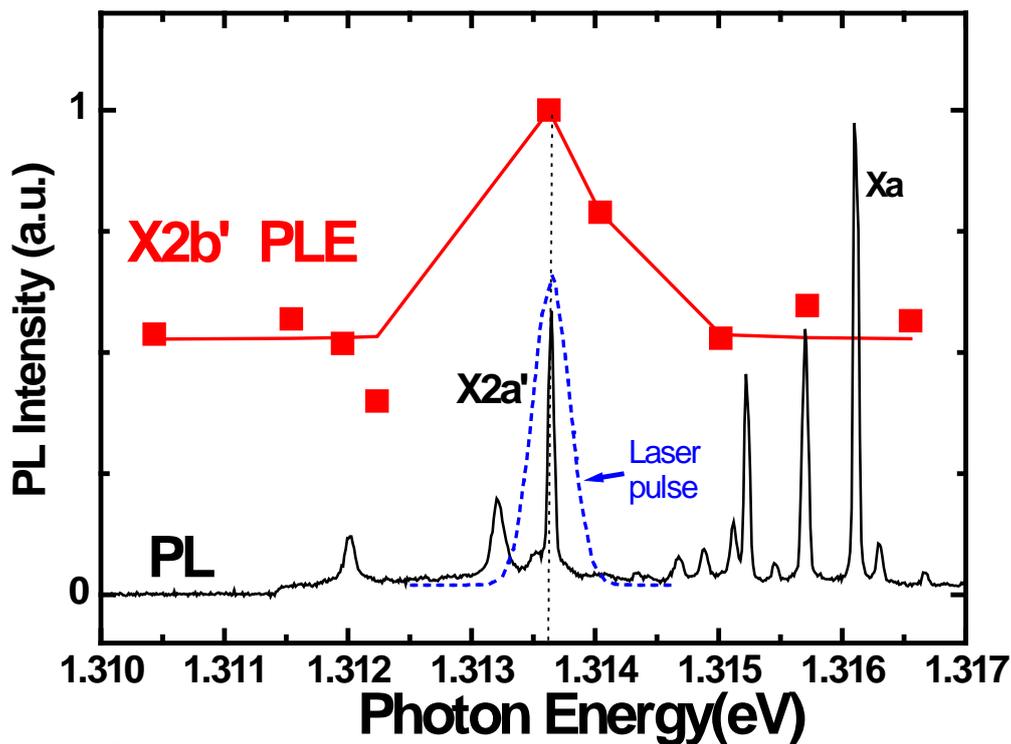


図 5-26

(上) 2 波長 PLE スペクトル、(下) Xa 系列の PL スペクトル
 PLE スペクトルのピークは、PL スペクトルでの X2a' 発光エネルギー
 と一致する。青点線はパルス励起レーザーのスペクトル幅を示す。

これは、2 番目の励起光源のエネルギーが X2a' の基底準位のエネルギーと共鳴した時に、励起子分子 ($|11\rangle$) の存在確率が多くなっている事を意味しており、カスケード ($|00\rangle \rightarrow |01\rangle \rightarrow |11\rangle$) の過程が存在している強い証拠である。また、X2a' の発光線幅に比べて X2b' の線幅が広いのは、パルス PLE の分解能が低い事とパルス励起レーザーのスペクトル幅が 0.3nm の広いのが原因であり、本質的な問題ではない。

以上の結果より、相互の励起子分子 (X2b') は、X2b 系列のカスケードな過程で生成されている事が分かった。

5.6.5 励起強度依存性

次に、X2a'の励起強度依存性を行った。
実験条件は2波長励起 PL 実験系と同じ条件であるが、手順①の X2be の励起強度は一定にして、手順②の X2a'の励起強度を変化させた。

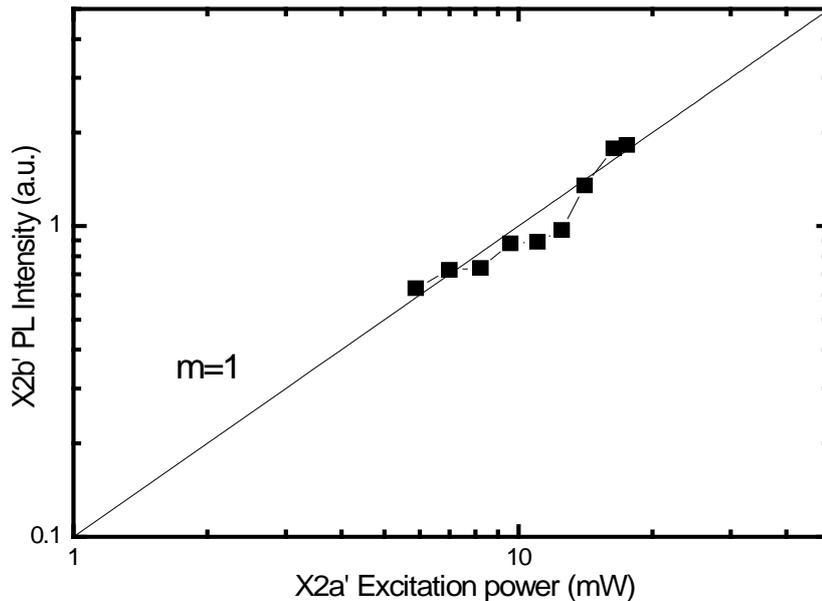


図 5-27 X2b'の励起強度依存性

X2be の発光強度は固定、X2a'の励起強度を変化させる。

この場合、X2a'の励起強度に比例して X2b'の発光強度が増加している事が分かった。

この理由として

P : 励起強度

PL : 発光強度

N : density

とすると、励起子の発光強度は、励起強度と density の積によって書く事が出来るので X2a,X2b の励起子はそれぞれ P_{NX2a} 、 P_{NX2b} で表される。

励起子分子の発光強度 PL (X2b') は、2つの励起子

P_{NX2a} 、 P_{NX2b} から生成されるので

$$PL_{(X2b')} \propto k \cdot (P_{NX2a} \cdot P_{NX2b}) \quad (5.1)$$

となる。この励起強度実験では、X2b は固定、X2a は可変なので変化分 $\Delta P \propto k \cdot P_{NX2a}$ となり、X2b' は励起強度の比例していると考えられる。

5.6 節のまとめ

結合量子ドットの励起子分子の起源について詳細に調べた。初めに強励起時において現われる 4 つの発光ピーク (XXa, X2a', XXb, X2b') は、発光強度の 2 乗に比例して増加する傾向を示すので励起子分子に起因する発光である事を明らかにした。

次に、Xa 系列と Xb 系列の PL を比較する事により、X2a \leftrightarrow X2a' と X2b \leftrightarrow X2b' のエネルギー差が等しいことが明らかとなった。この様子は他のサンプル試料でも見られており、エネルギー差が一致する事から相互の励起子分子を起源とすると考えられた。

次に、結合ドット中のスピン選択を考慮した 2 波長スピン選択励起実験を行った。その結果、X2b' ピークは、結合ドット中のスピンを半平行のスピンで形成したときのみ現われる事を確認した。これは、X2b' の発光が結合ドット中の相互の励起子によって形成されている事を示す。よって X2b' ピークは分子の基底状態を示している。また、XXb も X2b' と同じ偏光特性を示すので、相互の励起子分子の励起状態であると考えられる。

最後に X2b' の形成に関して、相互の励起子分子が X2b \rightarrow X2a' のカスケードな過程で生成している様子を 2 波長 PL、及び 2 波長 PLE 実験によって明らかにした。

以上の結果より、結合ドット中では、|00> (励起子無し)、|01> (X2a)、|10> (X2b)、|11> (X2b' 及び X2a') の 4 準位系が形成されている事を明らかにした。

5.7 2 qubit C-NOT に向けた初期実験

今まで述べてきた個々の要素技術

- ① 結合ドットの量子力学的結合の観測 (結合準位 X2b、反結合準位 X2a)
- ② 結合準位と反結合準位の励起子による相互の励起子分子 (X2b', X2a') の観測と 4 状態形成の観測

③ 相互の励起子分子のカスケードな生成過程の観測

④ 結合ドットにおけるラビ振動の観測

を確認した。この節ではこれらの要素技術を用いて 2qubitCROT ゲートの動作実証の初期実験を行った。2 qubitC-ROT の操作では、図 5-34 に示すように、4 つの状態のうち、 $|01\rangle$ にあらかじめ励起子を作っておき、 $|01\rangle \Leftrightarrow |11\rangle$ 状態間をラビ振動させる事ができれば C-ROT ゲート動作であることが理論的に証明されている。

サンプル試料及び測定装置

試料は前節と同じ I-F 法を用いた InAs/GaAs 結合量子ドットである。4 ~ 30 個/ μm^2 の低面内ドット密度である。結合ドットのバリア厚さは 5nm を用いた。本節で使用したバリア厚 5nm 試料はサンプル番号 100 である。実験装置は、図 3-13 に示す 2 波長シンクロロックパルス励起実験装置系を利用した。2 つの励起光源に $\lambda/2$ 波長板を設置し、直線偏光励起とした。

今回行った 2 波長励起実験の手順を示す。

カスケードな過程を作り出す為に、2 つの光源はパルス光源を用いる。

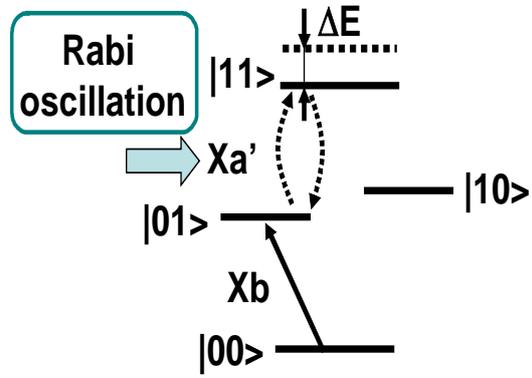
- ① 1 段目の過程として $|00\rangle \rightarrow |01\rangle$ を行う。そのため、1 波長の励起エネルギーは X_b の励起準位 X_{2b} に合わせる。
- ② 2 段目の過程として $|01\rangle \rightarrow |11\rangle$ を行う。2 波長目の励起エネルギーは、 $|01\rangle \Leftrightarrow |11\rangle$ ($X_{2a'}$) に相当するパルス光源を与えた。そして、2 波長目のパルス励起強度を変化させた。

制御され 2 つのパルス時間差は 0 に設定、すなわち、2 波長同時刻に照射した。

初期実験測定結果

測定結果を図 5-34 に示す。励起子分子($X_{2b'}$)の発光強度はパルス励起強度に対して飽和傾向を示した。この傾向がラビ振動の山の部分に相当 (π パルス) しているのか、励起子分子の飽和現象によるものなのかは、判別できていない。2 段目の励起強度をさらに強くすることで、励起子分子の発光強度が振動しているのか、単に飽和現象であるのか区別できると思われるが、実験装置の都合上これ以上励起光を強くする事ができないので判別はできない。

(a)



(b)

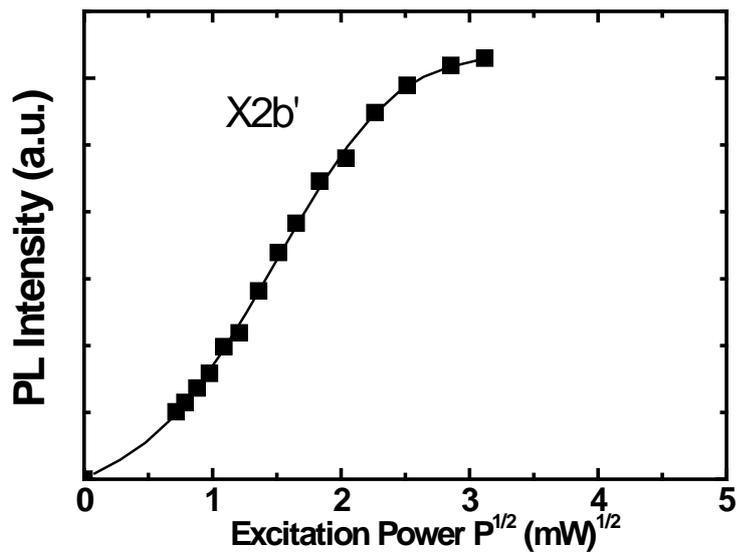


図 5-34. (a) 結合ドットの CROT ゲートのエネルギーバンド図
(b) $|01\rangle \leftrightarrow |11\rangle$ 間の PL 発光強度変化

参考文献

- [1] R. Heitz, M. Veit, N. N. Leventsov, A. Hoffmann and D. Bimberg: Phys. Rev. B 52 (1997) 10435.
- [2] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa : Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 4114
- [3] H. Htoon, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, Jr., T. Takagahara and C.K. Shih: Phys. Rev. B. 63 (2001) 241303.
- [4] A. J. Williamson, L. W. Wang and A. Zunger: Phys. Rev. B 62 (2000) 12963.
- [5] S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, K. Goshima and T. Sugaya; Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) 2467.
- [6] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z. R. Wasilewski, O. Sterm, A. Forchel: Science 291 (2001) 451.
- [7] G. Ortner et al ., Phys. Rev. B, 71, 125335 (2005)
- [8] Y. Masumoto and T. Takagahara : *Semiconductor Quantum Dots* (Springer,Berlin, 2002)
- [9] S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, K. Goshima and T. Sugaya : J. Appl. Phys. 99 (2006) 033522
- [10] J. J. Finly, A. D. Ashmore, A. Lemaitre, D .J. Mowbray, M. S. Skolnic, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, and T. F. Krauss : Phys. Rev. B, 63 (2001) 073307
- [11] L. Besombes, J. J. Baumberg and J. Motohisa; Phys. Rev. Lett. 90 (2003) 257402.
- [12] A. S. Bracker et al : Phy. Rev. Lett. 94 (2001) 073307
- [13] T. Takagahara et al : Phys. Rev. B, 62, (2000) 16840
- [14] C. E. Pryor and M. E. Fiate : Phys. Rev. Lett. 91(2003) 257901
- [15] H. Htoon, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, Jr., T. Takagahara and C.K. Shih: Phys. Rev. B. 63 (2001) 241303.
- [16] G. Ortner, M. Schwab, P. Borri, W.Langbein, U. Woggon, M. Bayer, S. Fafard, A. Wasilewski, P. Hawrylak, Y. B. Lyanda, T. L. Reinecke, and A. Forchel ; Physica E 25 (2004) 256

- [17] C. Bardot, M. Schwab, and M. Bayer ; PRB. 72 (2005) 035314.
- [18] 長澤信方:レーザ光学物性. pp72
- [19] X. Li, Y. Wu, D. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi and L. J. Sham, Science 301, 809 (2003).

6章 総括

6.1 本論文のまとめ

本研究では、半導体量子ドットの励起子を用いた量子情報素子の開発について論じた。

小型化、高集積化が有望とされる半導体量子ドットを用いた量子コンピュータへの応用は、超伝導クーパー対、量子ドットスピン、励起子など幾つかの方法で提案されているが、いずれの方式でも基本量子演算素子となる 1qubit の回転ゲートと拡張性を持った 2qubit C-NOT ゲートが達成されていない。しかしながら、拡張性と制御・観測のし易さから励起子を用いた方法が最も有利であるとの考えから本研究では、半導体量子ドットの励起子を用いた基本量子演算素子の開発を行った。

分子線エピタキシー (MBE) 法により作成された InAs/GaAs 量子ドットをレーザ分析法の一つである顕微分光法を用いる事により、量子ドットの光物性、電子状態を詳細に調べ、量子ドット特有の 3次元閉じ込めによる離散的な電子準位を確認し、同時に極微細な発光線幅から量子ドット中の励起子が長い位相緩和時間を持つ事を明らかにした。そして、量子演算の基本素子である 1qubit の回転ゲートを単一量子ドットのラビ振動を確認する事によって、実際に量子ドットの励起子を用いた系で実現する事を示した。また、ラビ振動により算出できる励起子と光との相互作用の強さを示す遷移双極子ダイポールモーメントは 40Debye であり、他の原子・分子系と比べて非常に大きな値を持つ事を示し、量子演算素子として InAs/GaAs 量子ドットが有望であることを示した。

量子演算の基本素子として 2qubit C-NOT ゲートが必要である。半導体量子ドットでこれを実現する為に、半導体量子ドットを 2つ上下に近接して配置し、さらに Indium-Flush 法を用いて 2つのドット間のバリア障壁厚みを精密に制御した結合量子ドットを作成した。2つの量子ドットの間には相互作用が働かなければいけない。これについては、結合量子ドットの発光は 4つの発光ピーク (Xa,X2a,Xb,X2b) を確認した。この結合ドットは、量子力学的に結合した系であることを確認し、それぞれの発光ピークは、反結合状態に起因するピーク (Xa,X2a)、と結合状態に起因するピ

ーク (Xb,X2b) である事を確かめた。そして、結合ドットにおいてもラビ振動を確認した。遷移双極子ダイポールモーメントの値は 72Debye であり、単一量子ドットより大きな値である事が分かった。これは、量子力学的結合による波動関数の染み出しが影響してコヒーレントボリュームが結合系では大きくなる事を示唆する結果を示した。

また、2つの量子ドットの励起子の間には相互作用について結合ドット中の2つの励起子を作る事によって相互の励起子分子 (X2a'、X2b') が存在する事を世界で初めて確認した。さらに相互作用について詳細に調べ、相互の励起子分子の円偏光依存性を調べた。円偏光励起を用いてスピン選択励起を行い、反平行のスピンの励起した場合のみ、相互の励起子分子 (X2b') は生成されている事を確認した。また相互の励起子分子は、励起子無し→励起子1個→励起子2個 (励起子分子) という2段階の過程 (カスケードな過程) を経て生成している事実を2つの励起光を用いて確認した。さらに結合ドット系の4つ存在していた発光ピーク (Xa,X2a,Xb,X2b) のうち、X2a,及び X2b が結合系の本質的なピークである事を確認した。加えて、2波長パルス励起の実験方法により、X2a の励起子と X2b の励起子の過渡特性を調べて、2波長同時励起の場合には、相互の励起子分子の発光が増加すると反比例して励起子の発光が減少していく現象を確認し、カスケードな過程を時間過渡応答においても確認する事ができた。

結合ドット中のこれらの実験結果より 2qubit 量子演算に必要な要素技術、

- ① 結合ドットの量子力学的な結合状態
- ② 結合ドットにおけるラビ振動の確認
- ③ 結合ドット中に働く相互作用の確認 (励起子分子)
- ④ 励起子分子のカスケードな過程の確認

を明らかにすることが出来たので、要素技術を組み合わせて半導体量子ドットの 2qubitC-ROT ゲート実証の初期実験を行った。その結果、励起子分子の飽和傾向は確認されたが明確なラビ振動による発光増減は確認できなかった。

6.2 将来の展望

本研究では、半導体量子ドットの励起子用いた **2qubitC-NOT** の開発に関する研究を行った。その結果、**1qubit** の回転ゲートに関しては、単一量子ドットのラビ振動を確認する事で目的は達成された。残るもう1つの基本素子である **2qubitC-NOT** について、結合ドットを用いて **2qubitC-NOT** ゲート実現の為の個々の要素技術は、確認する事ができた。これらの結果は、結合ドット系の励起子と励起子分子の物理的知見という観点から非常に有意義である。しかしながら、最終目標である制御 **NOT** ゲート操作の観点からは、明確な動作実証までには至らなかった。その原因として、要素技術を組み合わせたときに生じる準位間の別過程への緩和、励起強度の増加に伴う別準位への過程（**2**光子吸収過程・他のドットへの励起子分子生成過程及びそれらとの相互作用）等が働いてしまい、純粋な結合ドットの4準位系が崩れてしまうことが予想される。よって、今後はこれら結合ドット中の励起子の複雑な緩和過程を理論解析等によって明らかにしていく必要があると考えられる。

しかし理論解析等で、**2qubitC-NOT** 動作実証が明らかになっても、複雑な緩和過程が含まれた系での **2qubit** 以上の取り扱いは、困難であると予想される。本研究で行った発光分光法は間接的測定法である。制御する準位（励起準位）と観測する準位（基底準位）は必ず異なる準位を使用する。この為、励起準位→基底準位の緩和過程を考慮しなければならない。この原因を取り除く為には、緩和過程が生じない基底準位で制御を行う直接的観測法が望ましい。直接的観測法であるポンプ&プローブ法を用いるのが最適と考えられる。この方法の最大の利点は、励起子の制御と観測が同じ準位で行う事ができる点である。制御と観測を共に基底準位を利用する事が出来るので、量子ドット特有のキャリアの複雑な緩和過程が無くなり、再現性の向上、位相緩和時間の向上が見込まれる。よって、現実的に量子コンピュータで **2qubitC-NOT** 動作を行う為の目標として、直接的測定法は今後必要であると考えられる。

謝辞

本研究は、産業技術研究所光技術研究部門電子デバイス光制御グループにて実施されました。小森和弘博士（グループ長）には、この分野で全く初心者でありました著者に本研究を行う機会を与えていただいたと同時に、研究推進において多大なるご指導を頂き深く感謝いたします。さらに、本論文の主査を快く引き受けてくださり、またご指導くださった愛知工業大学工学部電子工学専攻の山田諄教授には心より感謝いたします。本論文の副査を引き受けてくださいました愛知工業大学工学部電子工学専攻の徳田豊教授、情報通信工学専攻の内田悦行教授、電気工学専攻の落合鎮康教授に感謝いたします。

また、本研究は CREST 研究員の協力無しでは成し遂げられませんでした。諸橋功博士には試料加工を始め研究内容や論文執筆、研究発表資料に関して多大なる助言していただきました。鹿内周博士、山内章吾博士には、試料作成及び実験装置構築、研究内容や論文執筆などで非常に有益な助言を頂きました。また古江重徳博士にも公私に渡りお世話になりました。

さらには、香川大学工学部材料創造工学科の鶴町徳昭准教授、東海大学短期大学部の岡田工准教授、光電子制御デバイスグループの主任研究員の皆様（菅谷武芳博士、山本宗継博士、天野健博士、古屋克己博士、岡野誠博士）にも研究内容の議論や、公私共大変お世話になりました。深く感謝いたします。

最後に、著者を陰ながら支えてくれた家族に感謝の意を表したいと思います。

五島 敬史郎

外部発表リスト

I. 学位請求に関する論文等

1 学術論文

- [1] K. Goshima S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, A. Shikanai and T. Sugaya
“Observation of bonding states in single pair of coupled quantum dots using micro-spectroscopy.”
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 44, No. 4B, pp. 2684-2687 (2005)
- [2] K. Goshima S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi and T. Sugaya
“Observation of Exciton Molecule Consisting of Two Different Excitons in Coupled Quantum Dots.”
Applied Physics Letters, Vol.87, pp. 253110-1 – 253110-3, (2005)
- [3] K. Goshima S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, A. Shikanai and T. Sugaya
“Pulse Area Control of Exciton Rabi Oscillation in InAs/GaAs Single Quantum Dot.”
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 45, No. 4B, pp. 3265-3268 (2006)
- [4] K. Goshima S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi and T. Sugaya
“Exciton Rabi Oscillation in Single Pair of InAs/GaAs Coupled Quantum Dots.”
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 46, No. 4B, pp. 2626-2628 (2007)

2. 国際会議

- [1] K. Goshima, K. Komori, T. Okada and S. Yamauchi
“Excitation Density Dependence on Photoluminescence Properties of Single InAs Quantum Dot”
CREST&QNN’03 Joint International Workshop, MP-5, pp 33-34, (2003)
- [2] K. Goshima, K. Komori, S. Yamauchi, I. Morohashi, A. Shikanai and T. Sugaya
“Observation of bonding states in single pair of coupled quantum dots using micro-spectroscopy”
Solid State Devices and Materials, P9-2, pp 614-615, (2004)

- [3] K. Goshima, K. Komori, S. Yamauchi, I. Morohashi, A. Shikanai and T. Sugaya
“Measurement of Two-Qubit States Consisting of Two Different Excitons in
Coupled Quantum Dots”
IQEC and CLEO-PR 2005, JTuH4-7, pp 401-403, (2005)
- [4] K. Goshima, K. Komori, S. Yamauchi, I. Morohashi, A. Shikanai and T. Sugaya
“Pulse Area Control of the Exciton Rabi Oscillation in InAs/GaAs Single Quantum
Dot”
SOLID STATE DEVICES AND MATERIALS, G-3-2, pp 401-402, (2005)
- [5] K. Goshima, K. Komori, S. Yamauchi, I. Morohashi, A. Shikanai, T. Sugaya
“Two exciton correlation in a coupled quantum dots”
Quantum Electronics and laser science conference, QThH5, (2006)
- [6] K. Goshima, K. Komori, S. Yamauchi, I. Morohashi, A. Shikanai and T. Sugaya
“Exciton Rabi Oscillation in InAs/GaAs Coupled Quantum Dots”
SOLID STATE DEVICES AND MATERIALS, A-2-4, pp 26-27, (2006)

2 その他

国内学会

口頭発表 8件

新聞プレス発表 3件

II. その他の論文等

1. 学術論文

- [1] S. Yamauchi, K. Komori, T. Sugaya and K. Goshima
“Optical characteristics of InAs/GaAs double quantum dots grown by MBE with the Indium-flush method”
Jpn. J. of Appl. Phys, Vol. 43, No.4B, pp. 2083-2087, (2004)
- [2] T. Okada, K. Komori, K. Goshima, S.Yamauchi, I. Morohashi, T. Sugaya
O.Yamazaki, M.Ogura and T. Hattori
“Coherent control of exciton in a single quantum dot using high-resolution Michelson interferometer”
Jpn. J. of Appl. Phys, Vol.43, No.9A, pp. 6093-6096, (2004)
- [3] S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, K. Goshima, T. Sugaya and T. Takagahara
“Observation of Interdot Correlation in Single Pair of Electromagnetically Coupled Quantum Dots”
Applied Physics Letters Vol. 87, pp. 182103-1–182103-3, (2005)
- [4] S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, K. Goshima and T. Sugaya
“Electronic structures and carrier correlation in single pair of coupled quantum dots”
Jpn. J. Appl. Phys.. Vol.44 , No. 4B, pp. 2647-2651, (2005)
- [5] S. Yamauchi, K. Komori, I. Morohashi, K. Goshima, T. Sugaya
“Electronic structures in single pair of InAs/GaAs coupled quantum dots with various interdot spacings”
Journal of Applied Physics Vol.99, pp 033522, (2006)

2. 国際会議

- [1] K. Komori, T. Sugaya, K. Furuya, M. Mori, M. Ogura, T. Yasuhira, N. Tsurumachi, I. Morohashi, K. Goshima, S. Yamauchi and T. Okada
“Ultrafast coherent quantum control technology for novel nano devices”
CREST&QNN’03 Joint International Workshop, M2-3, pp. 21-23, (2003)
- [2] K. Komori, T. Sugaya, K. Furuya, M. Mori, M. Ogura, T. Yasuhira, N. Tsurumachi, I. Morohashi, K. Goshima, S. Yamauchi and T. Okada
“Quantum logic gates using excitons in coupled quantum dots”
National Institute for Materials Science photonic processes in semiconductor nanostructures, 2006/3/9(招待講演)
- [3] I. Morohashi, S. Yamauchi, A. Shikanai, K. Goshima, T. Sugaya, K. Komori
“Electric field Dependence of Photo-luminescence in Coupled Quantum Dots”
International Symposium on Quantum Dots and Photonic Crystals P-32,
pp. 53, (2005)
- [4] T. Okada, K. Komori, K. Goshima, X. L.Wang, M. Ogura
“Micro-spectroscopy of crescent-shaped quantum wire”
International Workshop on Quantum Nonlinear Nanostructures & Nanoelectronics (QNN02) TuP-17, pp. 161-162, (2002)
- [5] T. Okada, K. Komori, K. Goshima, S.Yamauchi, T.Sugaya, O. Yamazaki and T. Hattori
“Coherent control of exciton in a single quantum dot using a high-resolution Michelson interferometer”
2003 International Conference On Solid State Devices and Materials, E-2-2,
pp. 106-107, (2003)
- [6] T. Okada, K. Komori, K. Goshima, S.Yamauchi, T.Sugaya
“Micro-spectroscopy of a single quantum dot using a high-resolution Michelson interferometer”
CREST&QNN’03 Joint International Workshop, MP-6, pp. 35-36, (2003)

- [7] S. Yamauchi, K. Komori, T. Sugaya and K. Goshima
“Photoluminescence of InAs/GaAs double quantum dots grown by MBE with Indium-Flush method”
CREST&QNN’03Joint International Workshop, MP-2, pp. 27-28,(2003)
- [8] S. Yamauchi, K. Komori, T. Sugaya and K. Goshima
“Optical characteristics of InAs/GaAs double quantum dots grown by MBE with Indium-Flush method”
Solid State Devices and Materials, E-3-1,pp. 296-297, (2003)
- [9] S. Yamauchi, K. Komori, T. Sugaya, I. Morohashi, K. Goshima
“Carrier correlations in single pair of coupled quantum dots”
Solid State Devices and Materials, G-9-4, pp. 900-901, (2004)
- [10] S. Yamauchi, K. Komori, T. Sugaya, I. Morohashi and K. Goshima
“Interdot Correlation in Single Pair of Coupled Quantum Dots”
(IQEC and CLEO-PR 2005)JTUH4-4, pp. 396 (2005)