

単一量子ドットにおける多光子量子操作 Multi-photon quantum operation in a single quantum dot

黒田隆

Takashi Kuroda

物質・材料研究機構量子ドットセンター

National Institute for Materials Science

概要: 固体ベースの量子計算機を実現する方法として、量子ドットの内部に形成する励起子状態を量子ビットに用いる提案がある。半導体素子のため集積化が比較的容易であり、また量子ゲートに超短パルスレーザー光を用いるため、ピコ秒スケールの高速演算が期待できる。本研究では、量子ドット励起子を用いた量子計算機の実現に向けて、量子ビットの最重要な評価指数であるデコヒーレンス時間の観測を行い、その緩和機構を明らかにした。また、高精度かつ高効率な励起子量子ビット読み出し手法を開発し、単量子ビット・ゲート操作の検証に成功した。さらに多量子ビットを構成する量子ドット複合構造を創出し、分子軌道的な結合電子状態を確認した。これらの成果について報告する。

【研究のねらい】 近年の結晶成長技術の進展により、10ナノメートル程度の微小な半導体結晶を作製することが可能となってきた。微結晶の大きさは、原子数にして 10^3 個程度に相当する。このような微結晶を、異種の半導体中に、エピタキシャルに（結晶格子切れ目なしに）埋め込むことにより、結晶の表面やその内部に格子欠陥が存在しない、高品質のナノ結晶（量子ドット）が実現できる。

量子ドット内部の伝導電子は、ナノメートル・スケールの微小空間に閉じ込められる結果、顕著な量子性を示す。例えば、バルク結晶で見られていたバンド的な電子構造は、量子ドットにおいては、原子の量子準位と似た離散的な線スペクトルになる。また、固体中の電子は、一般に、価電子や原子核など他自由度からのランダムな擾乱を受け、純粋な量子状態は極めて短時間に消失するが、量子ドットにおいては、システムのサイズダウンの結果、電子状態と相互作用する自由度が劇的

に少なくなり、結果として量子状態が乱れることなく長時間に渡って保たれる。半導体量子ドットは、固体でありながら、真空中に孤立して置かれた原子に類した系であり、人工原子とも呼称する。顕著な量子性が長く保たれる特性は、固体の量子計算を実現するために理想的な対象といえる。

量子ドットを用いて量子ビットを構成する方法には、量子ドット内の伝導電子の有無を量子ビット準位に用いるもの、伝導電子のスピン準位を用いるもの、および、光学遷移である励起子を用いるものなどが知られている。それぞれ長所と短所があるが、本研究で着目する励起子を用いる方法は、光学手法を用いるため非接触的に量子ビットにアクセスでき、実験の構成が比較的簡単になること、超短パルスレーザーを用いるために高速のゲート処理が実現できること、量子通信など光ネットワークとの相性がいいこと、などの優位点がある。他方、欠点としては、量子ビットの寿

命が、励起子の自然放出寿命で制限されることがある。広く用いられている III-V 族の半導体では、励起子寿命は100ピコ秒〜1ナノ秒であり、全ての量子演算はこの時間内に終わらねばならない。この欠点は、しかしながら、先述のように毎ステップ1ピコ秒程度の高速処理が可能であることを考慮すれば、幾分緩和できる。これらの特徴から、励起子量子ビットは、大規模かつ長大な演算処理には不向きであるが、量子中継器など高速かつ小規模な量子情報処理ユニットに活用できると考えられる。

量子ドットの励起子を量子ビットに適用する試みは、プロジェクトの開始時点において既に、ラビ振動の観測(2001年、ミシガン大、NTT、2002年ミュンヘン大など)、制御付量子ゲートの実験(2002年、ミシガン大)など報告があった。これらの先行実験では、励起子の量子ビット的な性質を、非線形光学手法や変調分光など、量子情報処理としては、やや冗長な手段を駆使して、ようやく検証に至っている。実験の困難さのために、残念ながら後続する研究例は多くはない。

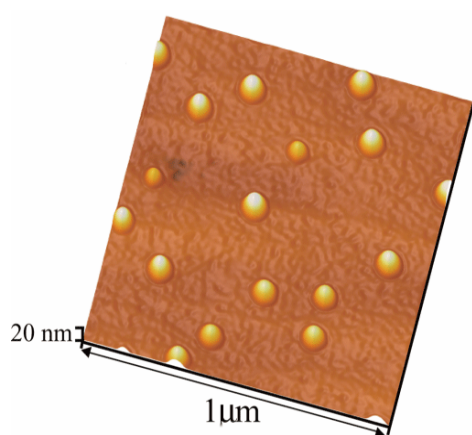


図1 GaAs 量子ドットの原子間力顕微鏡写真

本研究では、優れた性質を持つ励起子量子

ビットを、実用に使える程度のレベルまでに展開することを目的とした。鍵となるのは、将来的にはシングル・ショット検知も可能な、高効率の読み出し手法を開発することである。そのため、自然放出をベースとした新しい読み出し手法を提案した。また、条件付き量子ゲートを構成する空間的に近接した量子ドット複合体を作製し、その結合した電子準位を確証することに成功した。

【研究方法】 実験には、液滴エピタキシーと呼ぶ独自手法で作製した GaAs 量子ドットを用いた。この作製方法では、最初に、超高真空中に置かれた基板に対し、化合物半導体のカチオン種 (Ga) のみを照射する。Ga は室温で液体であり、表面張力のため、基板上にナノメートルサイズの Ga 液滴を生成する。引き続き、アニオン種 (As) を照射すると、Ga 液滴は GaAs に結晶化し、量子ドットを形成する (図1)。その後、障壁層となる (Al,Ga)As を成膜することにより、ヘテロ・エピタキシャルに埋め込まれた GaAs 量子ドットが出来る。この方法は、量子ドットを自己形成的に生み出すものである。成長条件を制御することで、量子ドットの大きさや密度、形状などを変えられることができる¹⁾。

自己形成的に作製した量子ドットは、必然的に大きさや形状の分散を持つ。そのため、個々の量子ドットで、量子遷移のエネルギーは千差万別であり、詳細な物理探査のためには、単一の量子ドットからの光学応答に着目せねばならない。また、量子計算の枠組みでは、個々の量子ビットに対しアドレッシングすることが不可欠である。励起子を用いた量子計算は、個別の量子ドットに光を用いて多段的・多光子的に状態遷移を促し、その後の終状態を読み出す作業を行う。そのため、単

一の量子ドットからの微弱な光信号を、高い効率で検知することが重要となる。

このため、実験では、開口比が大きく、空間分解能が優れた顕微鏡用対物レンズを用いた。量子ドットが表面上に分布している試料に対し、試料上の一点からの信号を分離して観測することにより、単一の量子ドットから発生する微弱な信号を観測する。²⁾

図2に、我々が組み立てた顕微分光装置の写真を示す。量子ドットを成長した試料片は、真空断熱容器の内部に置かれ、液体ヘリウムを用いて4 Kまで冷却する。冷却容器の窓越しに、対物レンズを設置し、試料表面に焦点を合わせる。レンズ後方の結像位置にピンホールを置くことで、試料の一点からの光信号のみを取り出すことができる。対物レンズは、ピエゾ素子を用いた移動ステージに固定しており、実験環境のゆらぎなどによる試料変位を、対物レンズの微調整で補うようにした。これにより、同じ単一の量子ドットが発する信号を数時間にわたって詳細に計測することが可能になった。

量子ドットに励起子を生成するために、レーザー光を試料に照射する。各種実験に応じ、連続発振のレーザー (He-Ne レーザー、波長 544 nm) や、ピコ秒パルスレーザー (モードロック・チタンサファイア・レーザー、波長



図2 低温顕微分光装置

可変域 700-900 nm、時間幅 3 ps) を用いた。光学信号の検知には、主に準位スペクトルの精査のために、冷却 CCD 検出器付きの分光器を使用し、過渡的応答の観測には、高速掃引のストリークカメラ検出器を用いた。詳細は後述する。

【研究成果】

1. 励起子量子ビットの読み出し手法の開発

量子計算では、アルゴリズムに則って量子ゲートを施し、その後、個々の量子ビットの状態を演算結果として読み出す。励起子量子ビットの場合、量子ビットを担う2準位は、量子ドット内に励起子が「ある」状態と「ない」状態である。個々の量子ドットに対して、適切な波長、強度、位相に定めた光パルスの列で、多段的に量子遷移を引き起こし、最終的に励起子が存在するか、消えているかを、個々の量子ドットにおいて観測する。一般に、一個の量子ビットからの応答は極微なものであり、終状態の読み出しには、ごく高感度な計測が要求される。

励起子の有無を決める、最も直接的な方法は、自然放出光を検知することである。励起子が存在する場合に限り、再結合に伴って光子が放出される。従って、その光子を検知で

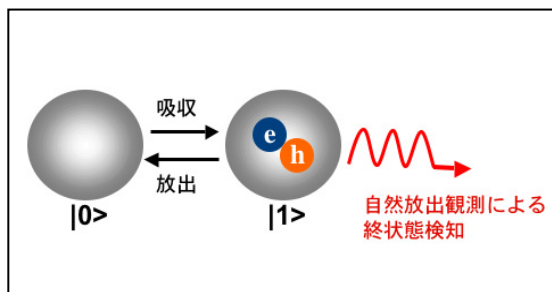


図3 量子ドット・励起子量子ビットの光操作と光検知。励起子が「ない」状態と「ある」状態をゲート光でスイッチする。終状態は自然放出の有無で確認する。

できれば、状態操作後の励起子の存在を確定できることになる(図3)。現在、光子用の検出器には、100%に近い効率のものが手に入る。そのため、この手法は、原理的にはシングル・ショットの状態検知も可能な、理想的な読み出し手法とみなすことができる。

しかし、実際に量子ドットからの自然放出を検出しようとする、微弱な発光信号は、ゲート操作に用いた入射光に埋もれてしまい、判別できない場合が多い。1個の量子ドットの吸収断面積はごく小さく、量子遷移の操作には莫大な数の光子の照射が必要となる。対する発光信号は、1対の電子・正孔の再結合で生み出される1個の光子に過ぎず、波長が等しいこともあって、両者を分別することは不可能だと信じられていた。

我々は、このような一般認識を逆手にとり、入射ゲート光のもれ成分を丁寧に取り除くことで、単一の量子ドットからの自然放出光を観測することを試みた^{3, 4)}。基本的なアイデアは、広く用いられている共焦点的な顕微鏡配置を崩し、平面波的なゲート光を照射後、励起光とは異なるモード(伝搬方向)の自然放出を観測することである。そのため、量子ドット試料には、斜め方向から平面波に近い励起パルスを照射した。単一の量子ドットを

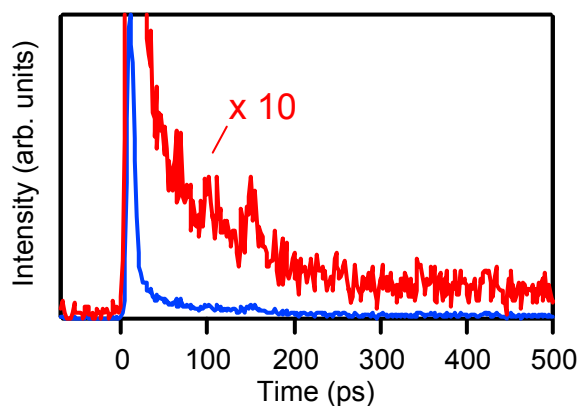


図4 単一量子ドットにおける共鳴パルス励起後の発光の時間発展。

共鳴的に励起し、その後の発光を対物レンズで捕集する。さらに、試料表面からの弾性散乱と共鳴的な信号を分別するため、時間分解計測を行った。

図4は、単一の量子ドットを共鳴的にパルス励起し、その後の光放出信号を時間分解計測したものである。時刻0に現れるスパイク的な信号は、励起光の弾性散乱信号である。これに引き続き、単一量子ドットの自然放出に由来する減衰信号を、初めて観測することに成功した。

この実験では、 10^9 回もの試行を繰り返し、その結果を足し合わせて、自然放出の減衰曲線を見出した。実際の量子計算では、放出寿命内に光子が検知できるかのみを確認すればよい。高効率の光子検出器と、光子の取り出し効率を高めた試料デザインを採用すれば、シングルショットに近い状況での状態読み出しが、今後可能になると考えている。

この読み出し手法を用いて、1量子ビットの回転ゲート操作であるラビ振動を見た結果が、図5である。光パルスを用いてラビ振動

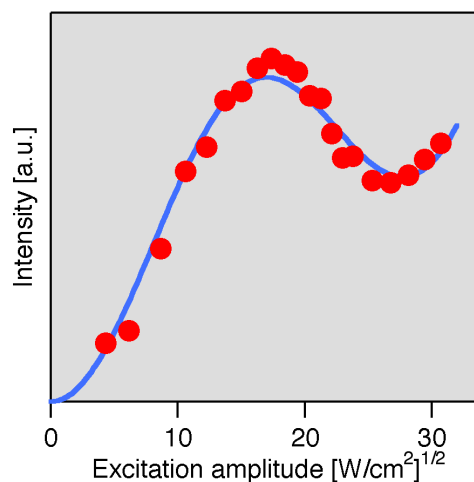


図5 共鳴励起後の発光信号の励起強度依存性。振動的な依存性は励起子のラビ振動を反映している。

見出す場合、コヒーレントな相互作用の大きさ（パルス面積）を変えるために、励起パルスの入射強度を変化する。図5は、自然放出の信号強度を、励起強度の関数として図示したものである。振動的な依存性は、パルス励起後の量子状態が、基底状態と励起状態の間を往来していることを示しており、確かに回転ゲートが実現したことを確認づけた。

2. 励起子デコヒーレンス時間の評価

固体凝縮系の電子状態のデコヒーレンスは、原子分光で知られたスペクトル衝突広がりとの類推で、他自由度や擬粒子との衝突過程として考えることが多い。しかしながら量子ドット内部に閉じ込められた電子は、空間的に局在した状態であり、衝突によるコヒーレンス破壊といった素朴な描像が立ちにくく、デコヒーレンス機構については未解明な部分が多い。この背景には、デコヒーレンス時間を決定する有力な方法がなく、実験研究が捗っていないことがある。

量子準位のデコヒーレンス時間は遷移スペクトルの線幅の逆数で与えられる。従って、1個の量子ドット発光線のスペクトル線幅が決定できれば、本来十分であるが、多くの場

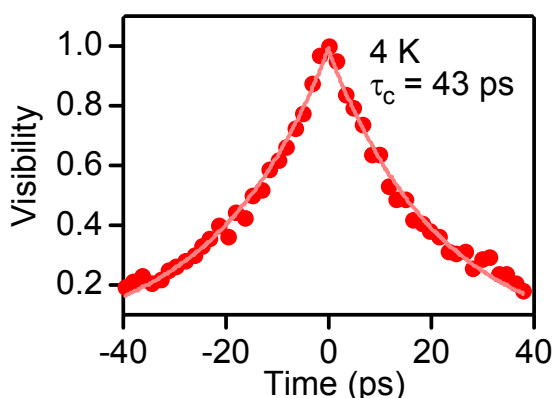


図 6. 単一量子ドット発光信号の自己相関関数。

合、発光線幅は通常の分光装置の分解能以下であり、その決定には困難を極めていた。

そこで我々は、量子ドット発光の自己相関を観測することにより、分光器を用いることなく高分解に線幅を決めることを試みた。実験では、単一の量子ドットからの発光信号を、マイケルソン型の干渉計に導入し、可干渉度を測定する。一般のフーリエ分光とは異なり、毎秒数フォトン程度の微弱な信号を長時間積算するため、干渉計の内部には位相関係を保持するフィードバック機構を組み込んだ。

光学遅延を関数とした可干渉度が自己相関関数であり、そのフーリエ変換がスペクトル（線幅）を与える。結果を図6に示す。代表的な量子ドットにおいて、デコヒーレンス時間は **40 ps**、線幅にして **30 meV** と決定できた。相関関数は温度によらず、単一指数関数的な減衰を示す。またデコヒーレンス時間は検出する量子ドットによって著しく異なっており、統計的には6割程度の分散を持つことがわかった。この結果は、量子ドットのデコヒーレンスが、局所的な環境に強く依存することを示している。

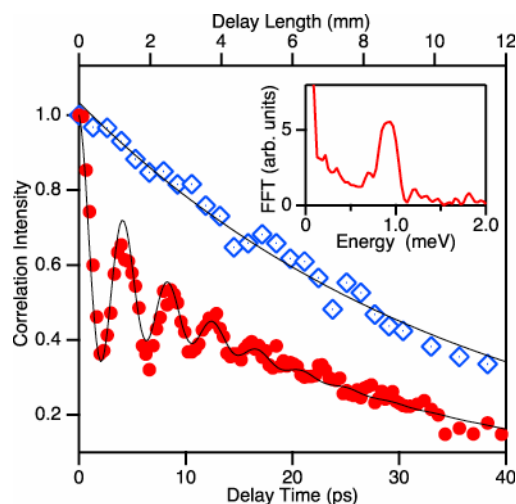


図 7. 励起強度が 4 W/cm^2 (青) と 40 W/cm^2 (赤) での自己相関関数。

図7は、異なる励起強度における自己相関関数の変化の様子を示す。弱励起時（青）には指数関数的な単調減少だったものが、強励起時（赤）には振動成分が重畳していることがわかる。この時、量子ドットの内部には2個の励起子の複合体である励起子分子が形成される。励起子分子と1励起子は、電子間相関の分、遷移エネルギーが異なる。両者の発光波長の違いを反映して、自己相関関数にうなりが生じる。うなりのフーリエ解析から、励起子分子の結合エネルギーやデコヒーレンス時間を評価することができる。⁶⁾

3. 量子ドット複合体の創生と光学評価

1つの量子ビットは、1つの量子ドットで実現できる。多量子ビットを構成するには、複数の量子ドットを準備し、量子ビット間に相互作用を持つようにすればよい。例えば、量子ドットのペアを、波動関数の浸みだし程度の、ごく近傍に置くことが出来れば、制御ゲート（条件付ゲート）が実現できる。図8には、近接した量子ドット対における制御ゲートの概念図を示した。2つの量子ドットは、励起光の波長や偏光の違いを用いて、個別のアクセスが可能である。各々の量子ドットの遷移エネルギーは、電子相関の結果、相手方の量子ドットの状態（励起子の有無）に応じて

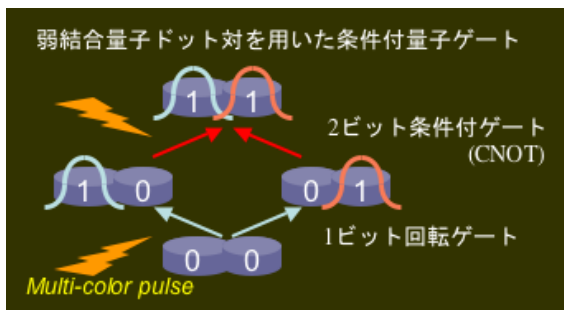


図8. 近接しておかれた量子ドット対を用いる2量子ビット条件付きゲート。

て僅かに異なる。そのため、励起光の波長を適切に設定することで、相手方の状態に応じて、もう片方の状態のみを制御すること（条件付きゲート）が可能となる。

自己形成的に作製する半導体量子ドットは、結晶学的には極めて高品質であるが、形状制御や配置制御は困難である。特に量子ドットの配列化は、ナノテク分野のフロンティア領域の一つであるが、現状では、分光探査に要求される高品質の試料は実現していない。

我々は、液滴エピタキシー手法に特有な、自己形成的に作製できる複合的な量子ドット構造に着目し、これらの成長過程の観測および光学評価を進めた⁷⁻⁹⁾。

図9には、試料面内方向に分割して形成した量子ドットの例を示す。面内の[011]方向と[0-11]方向では、結晶成長時における吸着原子の拡散速度がわずかに異なる。この異方

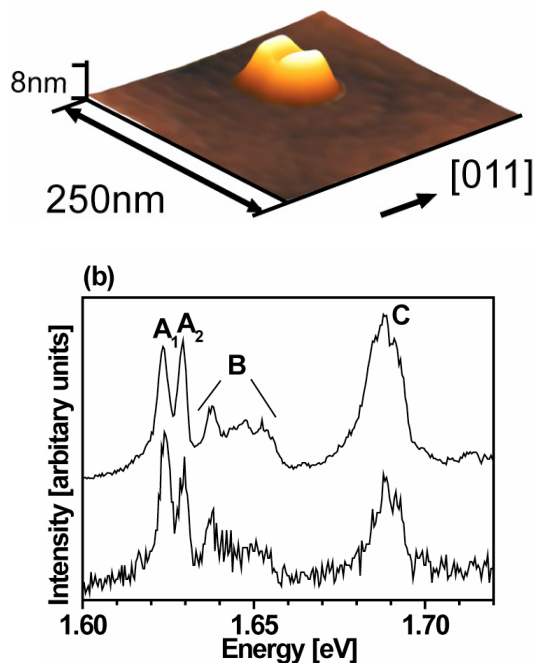


図9. 自己形成的に作製した量子ドット分子の原子間力顕微鏡写真（上）と光学遷移スペクトル（下）。

性が大きくなるような条件に設定することにより、面内に分割した量子ドット対を作製することができた。下段には、分割量子ドットからの発光スペクトルを示している。比較的再現性よく、発光線 (図の A_1, A_2) の対が見出され、これは、分子軌道的な結合状態、反結合状態からの発光と考えられる。スペクトル分裂の大きさは数値シミュレーションの結果ともよく合致していた。⁹⁾

【今後の展開】 高効率の読み出し手法が完成し、2量子ビット系の準備も整った状況なので、今後は、多波長・多パルスの励起レーザー光を用いた、条件付き量子ゲートの実証実験に着手する。また、同時測定計測により、量子もつれの大きさを定量評価したいと考えている。

【結言】 量子ドットの励起子を用いた量子ビット処理について、過去3年の進展を報告した。励起子量子ビットは、再結合寿命が短いという致命的な制限のために、大規模の量子計算処理には適用し難いと信じられている。しかしながら、量子通信との親和性や、実験のしやすさ、試料の作製やナノ加工技術の進展を考慮すれば、今後、ブレークスルーを経て、量子情報処理ネットワークの基幹になる可能性もあるだろう。

さきがけ研究の3年間は、励起子量子計算のための要素技術を、単純明快に探求してき

た。固体量子情報のトレンドを見てみると、それぞれの分野・それぞれの量子ビットで、量子性をフルに取り扱う洗練した方策が探求されてきたと思う。極限技術の開発は、それ自身で面白い研究対象であるが、他方、今後のブレークスルーのためには、近未来、複雑にもつれ合う量子情報ネットワークの中で、個々の技術に望まれる要求仕様を、確かに見定めることが不可欠だと思う。

その意味で、さきがけの分野横断的な構成員の中、もまれる (=意味を問われる) 経験ができたのは幸運だった。このような環境とチャンスを与えていただいた、領域関係者の皆様に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 小口信行他, 応用物理, 2006年7月号.
- 2) T. Kuroda et al., Phys. Rev. B **66**, 121302 (2002).
- 3) T. Kuroda, Proc. SPIE, 61151L (2006).
- 4) K. Kuroda et al. submitted.
- 5) K. Kuroda et al., J. Lumin. in press.
- 6) K. Kuroda et al., Appl. Phys. Lett. **88**, 121401 (2006).
- 7) T. Mano et al., Nano Lett. **5**, 425 (2005).
- 8) T. Kuroda et al., Phys. Rev. B **72**, 205301 (2005).
- 9) M. Yamagiwa et al., Appl. Phys. Lett. **89**, 113115 (2006).