



Title	Single photon and entangled photon-pair generation from semiconductor quantum dots
Author(s)	中島, 秀朗
Citation	北海道大学. 博士(情報科学) 甲第11296号
Issue Date	2014-03-25
DOI	10.14943/doctoral.k11296
Doc URL	<a href="http://hdl.handle.net/2115/55474">http://hdl.handle.net/2115/55474</a>
Type	theses (doctoral)
File Information	Hideaki_Nakajima.pdf



[Instructions for use](#)

平成 25 年度 博士論文

Single photon and entangled photon-pair generation from  
semiconductor quantum dots

半導体量子ドットを用いた  
単一光子・量子もつれ光子対生成に関する研究



中島 秀朗

北海道大学大学院 情報科学研究科  
情報エレクトロニクス専攻 量子情報講座 ナノ光機能材料研究分野

# 目次

<b>1</b>	<b>序論</b>	<b>2</b>
1.1	はじめに	2
1.2	量子鍵配送	2
1.2.1	単一光子を用いた量子鍵配送	3
1.2.2	量子もつれ光子対を用いた量子鍵配送	4
1.2.3	量子テレポーテーション・量子中継器	5
1.3	量子鍵配送の現状と課題	8
1.3.1	QKDにおける効率および安全性	8
1.3.2	単一光子検出技術の進歩	11
1.3.3	量子光源の性能向上の必要性	12
1.4	On-demand型量子光源	14
1.5	半導体量子ドットにおける課題	17
1.5.1	単一光子生成	17
1.5.2	量子もつれ光子対生成	18
1.6	本研究の目的	20
1.7	論文構成	21
<b>2</b>	<b>理論的背景</b>	<b>34</b>
2.1	量子ドットの発光特性	34
2.1.1	励起子種	34
2.1.2	交換相互作用	35
<b>3</b>	<b>試料作製および量子ドット発光の効率評価</b>	<b>38</b>
3.1	試料作製	38
3.1.1	自己形成量子ドットの創製	38
3.1.2	金属埋め込み微細加工	39
3.2	光学測定系の概略	41
3.3	量子ドット発光の効率評価	45
3.3.1	金属埋め込みによる発光増強	45
3.3.2	光子取り出し効率の評価	46
<b>4</b>	<b>単一量子ドットの励起ダイナミクス</b>	<b>54</b>
4.1	励起子発光起源の同定	55
4.1.1	励起強度依存性	55
4.1.2	直線偏光依存性	55
4.1.3	時間分解PL測定	57
4.1.4	発光起源同定	58
4.2	単一キャリア励起の計測	60
4.2.1	光子相互相関関数	60
4.2.2	光子自己相関関数	61
4.2.3	相関関数のシミュレーション	62
4.3	励起ダイナミクスの評価	64

4.3.1	励起強度依存性 . . . . .	64
4.3.2	励起エネルギー依存性 . . . . .	65
<b>5</b>	<b>高純度単一光子発生と光子統計評価法の修正</b>	<b>72</b>
5.1	準共鳴励起下での光子統計評価 . . . . .	72
5.2	光子統計評価法の一般化 . . . . .	75
5.2.1	非物理的な同時計数 . . . . .	75
5.2.2	単一二準位系における分布ダイナミクス . . . . .	76
5.3	高純度単一光子発生 . . . . .	78
5.4	高速駆動・高温駆動化についての考察 . . . . .	80
<b>6</b>	<b>(111)A 面量子ドットからの量子もつれ光子対生成</b>	<b>86</b>
6.1	(111)A 面での量子ドットの創製 . . . . .	86
6.2	FSS の抑制 . . . . .	88
6.3	量子もつれ光子対の評価 . . . . .	90
6.3.1	偏光相関測定 . . . . .	90
6.3.2	忠実度の評価 . . . . .	91
6.4	量子トモグラフィ . . . . .	92
6.4.1	密度行列の算出 . . . . .	92
6.4.2	もつれのメジャー . . . . .	95
6.5	ベル不等式の破れの観測 . . . . .	99
6.6	ポストセレクションによる忠実度の向上 . . . . .	101
<b>7</b>	<b>総括および今後の展望</b>	<b>110</b>



# 1 序論

## 1.1 はじめに

情報技術の発展は現代社会において必須のものとなった。ブロードバンド普及によるインターネットの急激な拡大にはじまりタブレット型端末やスマートフォン、クラウドコンピューティングの普及に至るまで、処理能力や利便性は飛躍的に向上し続けており、今や我々の生活を支える社会インフラとして機能している。しかしながら近年ますます急増する利用者・通信トラフィックに伴い、ネットワークキャパシティの限界やセキュリティインシデントといった課題が浮かび上がっているのも事実である<sup>1)</sup>。

現在の情報を担っているのは光子や電子の集団である。“0”もしくは“1”の情報(ビット)に変調されたこれらの媒体は、コンピュータやネットワーク上を大量に駆け巡り、通信・演算・記憶を担っている。対して単一の光子や電子に現れる「重ね合わせの原理」「量子複製不可能定理」「不確定性原理」「波動性と粒子性」といった量子力学的な性質を利用すると、従来の技術では実現し得ない全く新しい情報技術が可能となる。基本単位である“0”、“1”は、単一量子系ではそれらの重ね合わせ状態  $\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$  (但し  $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ ) で記述され、 $|0\rangle$  と  $|1\rangle$  の2つの状態を確率的に併せ持つ量子ビットと呼ばれる。この量子ビットを用いると従来2ビットで行う演算が1量子ビットで処理可能であり、これを  $n$  量子ビットに拡張することで  $2^n$  の情報を並列処理する超高速計算機が実現される。また状態の複製が原理的に不可能である量子状態は情報の秘匿性の観点から極めて有用であり、高い秘匿性を有する暗号通信を可能にする。

このように量子の世界では古典的には起こり得ない性質が現れ、現在の技術よりも格段に高度な情報技術を齎す。単一量子状態を用いるこれらの情報技術は量子情報技術と呼ばれ、次世代情報化社会を支える基盤技術として期待が高まっている。

## 1.2 量子鍵配送

RSA 暗号に代表される現在の暗号通信ではその安全性が膨大な計算量に基づいているのに対し、単一量子状態を用いた通信では物理的安全性が保障される。そのため電子認証や電子決済、軍事機密といった盗聴の許されない秘匿情報のやりとりが可能であり、この通信網を取り込んだ量子ネットワークの実現は量子情報技術の目指すゴールの1つである<sup>2)</sup>。図 1.1(a) にその体系を模式的に図示した。最下層部(量子物理層)では光子を媒体した単一量子が通信網を伝送し、各々の光ノードで状態の観測および乱数の生成が行われる。生成した乱数は安全鍵として抽出され、中層部(鍵管理層)は鍵の量や各ノード間リンクの状況を管理する。上層部(IP層)はユーザの要求に応じて鍵管理ノードに指示を出し、適切なノード間に鍵を配布する。直接リンクのないノード間においても中継ノードを経由することで鍵共有が可能であり、共有された鍵は1回毎に使い捨てるワンタイムパッド方式で平文の暗号化・復号化に使用される。ここで重要な事は光子はそれ以上分割できない粒子ということである。つまり盗聴者の存在を仮定した場合、量子ビットの盗み取りは信号の消失を意味し、ノードでの観測により盗聴は検知される。また量子ビットの剥奪後に得られた情報と同じものを再送信する“なりすまし盗聴”についても量子複製不可能定理により回避される。すなわち盗聴者の攻撃手法に関わらず情報の安全性が保証されており、このような無条件安全性を有する暗号鍵の配布システムを量子鍵配送(Quantum Key Distribution: QKD)と呼ぶ。

量子鍵配送には様々な手法があるが、典型的な鍵生成のフェーズとしてはシフト鍵の生成・誤り訂正・秘匿性増強の3段階で形成される。図 1.1(b) を用いてその流れを説明する。(1) 送信者(A

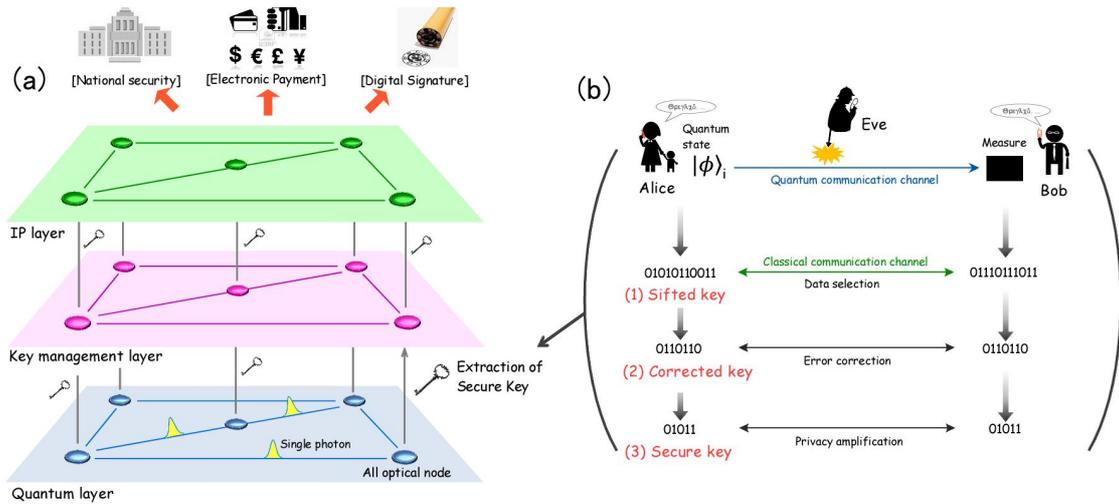


図 1.1: (a) 次世代セキュア光ネットワーク構築アーキテクチャ. 量子通信網 (下層部) にて送受信された単一量子状態は鍵管理網 (中層部) で安全鍵として抽出され、使い捨ての鍵として使用される (上層部). (b) 量子鍵配送における安全鍵共有までの流れ.

リス) はいくつかの量子状態  $|\phi >_i$  の中からランダムに 1 つ選び、量子通信路で受信者 (ボブ) に送る。ボブは届いた光子を測定し、結果を記録する。これを何度も繰り返しビット列を得る。その後、ボブはアリスに公開通信路 (古典通信) で測定法を伝え、 $n$  ビットの未処理の鍵 (シフト鍵) を生成する。(2) 装置が理想的であり盗聴者 (イヴ) の介入がなければこの時点で安全鍵として使用できるが、実際にはシフト鍵には誤りが含まれる。そこで  $n$  ビットのシフト鍵の中から  $s$  ビット取り出し、公開通信路で誤り率を見積もる。使用した  $s$  ビットはイヴにも知られるのでこの時点で捨て、残った  $n - s$  ビットを訂正済鍵とする。この際はじめの送受信時において光子列の中に多光子が含まれていたとすると、イヴによる情報の部分的傍受が可能であり、かつアリス・ボブは検知できないため、誤り訂正でイヴの情報を減らすことはできない。(3) そこで鍵の中からランダムにパリティチェックし、秘匿性の増強を行う。最終的に得られたビット列を安全鍵として共有する。

QKD では、フェーズ (1) の量子状態の配送において 1 量子ビットで行う『第一世代』と 2 量子ビット以上で行う『第二世代』で大別される。第一世代では単一の光子を用いるのに対し、第二世代では量子もつれ状態と呼ばれる複数粒子間に現れる量子力学的な相関を用いる。以降ではそれぞれ背景となる物理や特徴について述べ、さらにより高度な応用である量子中継器について説明する。

### 1.2.1 単一光子を用いた量子鍵配送

1984 年に Bennett と Brassard は単一の光子を用いて行う暗号方式を考案した<sup>3)</sup>。これは BB84 と呼ばれ、最初に考案された QKD プロトコルである。また 1992 年には BB84 方式を拡張させた B92 方式が発表された<sup>4)</sup>。これらは別々のプロトコルであるが、双方とも量子状態の複製不可能性が安全の基本原則である。

例として 2 つの純粋状態  $|\phi_0 >_A, |\phi_1 >_A$  の光子を考える。2 つの状態は非直交であり、内積  $S$  は  $A < \phi_0 | \phi_1 >_A \neq 0$  である。送信者 (アリス) はビット値  $a$  をランダムに選択し、 $a=0$  なら  $|\phi_0 >_A$  を、

$a=1$  なら  $|\phi_1\rangle_A$  を受信者 (ボブ) に送る。ボブも同様にランダムビット 0, 1 で状態の観測を行う。前節で説明したように通信終了後に公開通信路を用いてビット値の一致した測定のみ抽出すれば確率 1 で結果は一致する。ここで盗聴者 (イヴ) によるなりすまし傍受を考える。イヴは通信路上で  $|\phi_a\rangle_A$  に擾乱を与えることなく情報を読み取り、状態  $|\phi_a\rangle_A$  は無事ボブに届いたとする。イヴの行為は、純粋状態  $|v\rangle_E$  の補助系 E を用意し、 $|\phi_a\rangle_A$  にユニタリ変換  $U_{AE}$  で表される相互作用を与え、そのあとの系 E の状態  $|v_a\rangle_E$  に何らかの測定を行う形で表される。イヴの行為は状態  $|\phi_a\rangle_A$  を変化させないので、

$$\begin{aligned} U_{AE} |\phi_0\rangle_A |v\rangle_E &= |\phi_0\rangle_A |v_0\rangle_E \\ U_{AE} |\phi_1\rangle_A |v\rangle_E &= |\phi_1\rangle_A |v_1\rangle_E \end{aligned} \quad (1.1)$$

と記述される。上式において各辺の内積をとると  $S=S \cdot_E \langle v_0|v_1\rangle_E$  であり、これは  $|v_0\rangle_E=|v_1\rangle_E$  ということである。つまり系 E はビット値 a の情報を持っていない。このように 2 つの非直交な状態を用いた場合、量子状態を変化させることなく情報を読み出すのは不可能である。

BB84, B92 方式は量子力学的な安全性が保証された暗号方式であるが、最大の懸念点は伝送距離の限界である。単一光子レベルの微弱な光は光ファイバなど伝送路中の損失によって消失してしまうため、node to node の長距離通信は困難を極める。理論的見解では、安全鍵が生成可能な伝送距離の限界は高々 50 km 程度である<sup>5)</sup>。また前節の QKD フェーズ (3) でも述べたように、実際のシステムでは複数光子の混在を考慮する必要があり、一層鍵生成の効率が制限される。一方で量子もつれ状態を用いた第二世代では秘匿性・伝送距離の両者において飛躍的な向上が可能である。以降ではその基本原理と安全性、さらに長距離化への展開について記述する。

### 1.2.2 量子もつれ光子対を用いた量子鍵配送

量子もつれ (あるいはエンタングルメントや EPR) とは、複数の粒子がお互いに量子力学的な相関を持つことを指す。非局所性と呼ばれるこの量子相関は量子力学特有の性質であり、量子情報技術の実現に向けた最重要リソースの 1 つである。ここでは簡単な例として 2 量子ビットのもつれた状態について説明し、その応用例 (第二世代 QKD) の概要について記述する。

遠く離れた 2 つの光子 A, B があり、それぞれの純粋状態が  $|\phi\rangle_A, |\phi\rangle_B$  で表されるとする。2 光子の全系の状態  $|\psi\rangle$  がそれらの直積  $|\psi\rangle = |\phi\rangle_A \otimes |\phi\rangle_B$  で表されないとき、2 つの光子はもつれ合っているという。例えば系 A(B) の直交した 2 つの基底  $|0\rangle_{A(B)}, |1\rangle_{A(B)}$  を用いて、次式で与えられる  $|\psi\rangle$  を考える。

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle_A |0\rangle_B + |1\rangle_A |1\rangle_B) \quad (1.2)$$

これは系 A, B の直積状態では記述できない、もつれた状態である。光子 A にのみに着目してみると状態  $|0\rangle_A, |1\rangle_A$  は確率 1/2 で観測されるランダムな状態である。B においても同様であり  $|0\rangle_B, |1\rangle_B$  の観測は確率 1/2 である。しかし 2 つの光子間には強い相関があり、光子 A が  $|0\rangle_A$  であれば光子 B の状態は  $|0\rangle_B$ 、光子 A が  $|1\rangle_A$  であれば光子 B の状態は  $|1\rangle_B$  と一意に決まる。更にこの相関は基底を変えても同様である。偏光で考えると分かりやすい。 $|0\rangle$  を水平偏光の状態とし、 $|1\rangle$  を垂直偏光状態とする。そのとき  $\pm 45$  度ずれた斜め偏光は  $|\pm\rangle \equiv 1/\sqrt{2}(|0\rangle \pm |1\rangle)$  で表される。これを式 (1.2) に代入すると次式のように書き換えられる。

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle_A |0\rangle_B + |1\rangle_A |1\rangle_B) = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+\rangle_A |+\rangle_B + |-\rangle_A |-\rangle_B) \quad (1.3)$$

$|0, 1\rangle$  基底のときと同様、 $|+, -\rangle$  基底でも光子 A, B の状態は常に一致する。観測の例として、光子 A, B それぞれの観測者アリス・ボブはそれぞれ  $|0, 1\rangle$  と  $|+, -\rangle$  基底をランダムに選択し測定を行ったとする。光子 A についてアリスが  $|0, 1\rangle$  基底を選択した場合  $|+\rangle_A, |-\rangle_A$  はランダムであり、同様に  $|+, -\rangle$  基底の場合には  $|0\rangle_A, |1\rangle_A$  はランダムである。すなわちアリスにとって測定結果はただの乱数であり、何の意味も持たない。しかし 2 人の観測結果を照らし合わせ、同じ基底のみを抽出すると結果は必ず一致する。2 つの光子間には相互作用が無いにも関わらず一方の観測結果がもう一方の状態に作用している様な相関を持っており、この奇妙な相関を非局所性と呼ぶ。非局所性の存在はアインシュタイン、ポドルフスキー、ローゼン (EPR) によって認知されるようになり<sup>6)</sup>、1964 年に提出されたベルの不等式<sup>7)</sup> によって実験的な検証へと押し上げられた。2 つの光子をそれぞれ独立な物理事象ととらえると不等式を満たすが、観測基底に依らない強い相関を持つ場合には不等式は破られる。「ベル不等式の破れ」は安全鍵生成の重要な要素であり、盗聴者イヴの介入を許容しない。例えばイヴも光子を所有し全系が 3 光子である場合を考える。イヴの持つ任意の量子状態  $|\phi\rangle_E = \alpha|0\rangle_E + \beta|1\rangle_E$  (但し  $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ ) を考慮すると全系の状態  $|\psi\rangle_{ABE}$  は、

$$|\psi\rangle_{ABE} = |\psi\rangle_{AB} \cdot (\alpha|0\rangle_E + \beta|1\rangle_E) \quad (1.4)$$

となる。すなわち非局所性は A, B 間にのみ現れ、イヴは情報を一切持たない。言い換えると観測基底に依らず結果が常に一致する唯一の状態であり、ベル不等式の破れが成立した時点で安全鍵が直接生成される。この性質を用いて Ekert は E91 方式<sup>8)</sup> を、Bennett らは BBM92 方式<sup>9)</sup> をそれぞれ提案した。これらの方式は第一世代とは異なりイヴの操作を考慮する必要がないため、安全鍵生成の強い武器となる。

また量子もつれ状態の 1 つの例として式 (1.2) を取り上げたが、互いに直交する以下の 4 つの状態、

$$\begin{aligned} |\Phi^\pm\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle_A |0\rangle_B \pm |1\rangle_A |1\rangle_B) \\ |\Psi^\pm\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle_A |1\rangle_B \pm |1\rangle_A |0\rangle_B) \end{aligned} \quad (1.5)$$

をあわせてベル状態と呼ぶ。 $|\Psi^-\rangle$  は A, B の交換に対して反対称であることから 1 重項状態、その他の  $|\Phi^\pm\rangle$  と  $|\Psi^+\rangle$  は対称的であり 3 重項状態と呼ばれる。

### 1.2.3 量子テレポーテーション・量子中継器

量子もつれ状態を応用すると node to node の QKD のみでなく量子中継器システムが構築可能である<sup>10)</sup>。この量子中継器は任意の単一量子状態を他地点へ転送することが可能であり、長距離伝送に不可欠な要素技術として期待される。ここではその基本原理である量子テレポーテーションについて記述する。

量子テレポーテーション<sup>11)</sup> は Bennett らによって提案されたプロトコルであり、未知の量子状態の伝送を直接送ることなく量子もつれ状態と古典通信のみで行う。図 1.2 に模式図を示した。アリスとボブはお互いに光子を共有しており、その光子対はベル状態の 1 つ、

$$|\Psi^-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle_A |1\rangle_B - |1\rangle_A |0\rangle_B) \quad (1.6)$$

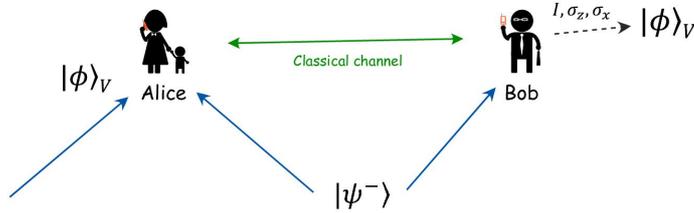


図 1.2: 量子テレポーテーション概略図. アリスの持つ単一量子状態  $|\phi\rangle_V$  は媒体の直接送信を行うことなく  $|\Psi^-\rangle$  を介してボブへ転送される.

とする。またアリスが伝送する情報は任意の量子状態、

$$|\phi\rangle_V = \alpha|0\rangle_V + \beta|1\rangle_V \quad (1.7)$$

とする。アリスは状態  $|\phi\rangle_V$  と  $|\Psi^-\rangle$  の一方 A を持ち、ボブはもう一方の B を持つ。そのとき 3 光子の全系の状態は、

$$\begin{aligned} |\Psi^-\rangle_{VAB} &= \frac{\alpha}{\sqrt{2}} (|0\rangle_V |0\rangle_A |1\rangle_B - |0\rangle_V |1\rangle_A |0\rangle_B) \\ &+ \frac{\beta}{\sqrt{2}} (|1\rangle_V |0\rangle_A |1\rangle_B - |1\rangle_V |1\rangle_A |0\rangle_B) \end{aligned} \quad (1.8)$$

と記述される。これは式変形するとベル状態  $|\Psi^\pm\rangle, |\Phi^\pm\rangle$  を用いて以下で書き換えられる。

$$\begin{aligned} |\Psi^-\rangle_{VAB} &= 1/2 |\Psi^-\rangle_{VA} (-\alpha|0\rangle_B - \beta|1\rangle_B) \\ &+ 1/2 |\Psi^+\rangle_{VA} (-\alpha|0\rangle_B + \beta|1\rangle_B) \\ &+ 1/2 |\Phi^-\rangle_{VA} (+\alpha|1\rangle_B + \beta|0\rangle_B) \\ &+ 1/2 |\Phi^+\rangle_{VA} (+\alpha|1\rangle_B - \beta|0\rangle_B) \end{aligned} \quad (1.9)$$

上式においてアリスがベル状態への射影測定 (ベル測定) を行うと、 $|\Phi^+\rangle, |\Phi^-\rangle, |\Psi^+\rangle, |\Psi^-\rangle$  が得られる結果は完全にランダムで確率 1/4 である。そのときボブの状態は、

$$\begin{aligned} -\alpha|0\rangle_B - \beta|1\rangle_B &= -I|\phi\rangle_B \\ -\alpha|0\rangle_B + \beta|1\rangle_B &= -\sigma_z|\phi\rangle_B \\ +\alpha|1\rangle_B + \beta|0\rangle_B &= \sigma_x|\phi\rangle_B \\ +\alpha|1\rangle_B - \beta|0\rangle_B &= \sigma_x\sigma_z|\phi\rangle_B \end{aligned} \quad (1.10)$$

但し、

$$I = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix},$$

$$|\phi\rangle_B = \alpha|0\rangle_B + \beta|1\rangle_B$$

であり、元の状態  $|\phi\rangle_V$  のユニタリ変換で表される。公開通信路にてアリスから測定結果  $|\Phi^+\rangle$ ,  $|\Phi^-\rangle$ ,  $|\Phi^+\rangle$ ,  $|\Phi^-\rangle$  を聞き、式 (1.10) に対応するユニタリ逆変換を施すことで  $|\phi\rangle_B$  が抽出される。アリスがベル測定を行った時点で系 B は式 (1.10) のいずれかに収縮しており、完全に確率 1/4 の乱数で何の情報も持たない。しかしベル測定の結果を用いると任意の未知の量子状態が他地点へ転送され、またその伝送中は量子状態の情報が一旦失われるため傍受が原理的に不可能である。更にこの量子テレポーテーションを多段に使用すると、壊れやすい量子状態が理論的には無限遠まで転送可能であり、状態の増幅が不可能な量子情報の中継器技術として重要な要素である。

### 1.3 量子鍵配送の現状と課題

ここまで QKD における第一世代・第二世代の基本原則について解説してきたが、現在では BB84 を始めとする各種プロトコルの原理検証は全て実証されており<sup>12-17</sup>、実際の光ファイバを用いた実験/開発が精力的に進められている。特に近年では検出器の性能向上およびプロトコル改良の技術発展が著しく、100 km を超える長距離伝送<sup>18-22</sup> や 1 GHz 以上の高速駆動<sup>23-27</sup>、1 Mbps 以上での安全鍵生成<sup>25-27</sup> といった成果が次々と報告されており、更にはフィールド試験運用にまで至っている<sup>28-32</sup>。本節ではシステム効率化に向けた指針や研究開発の現状について記述し、QKD 実現に向けた重要な課題である光源開発の必要性について述べる。

#### 1.3.1 QKD における効率および安全性

図 1.3 は BB84 プロトコルにおける鍵生成の効率および安全性についての指標を示したものであり<sup>33</sup>、単一光パルスから生成する安全鍵レートのシミュレーションを伝送路の損失を関数としてプロットしたものである。(a) は光パルスに含まれる平均光子数  $\langle n \rangle$  (但し  $0 \leq \langle n \rangle \leq 1$ ) についての依存性を示したものであり、 $\langle n \rangle$  の増加に伴うレートの向上が見られる。これはよりオンデマンドに近い光源ほど高効率な鍵生成が可能であることを示しており、 $\langle n \rangle$  がその効率を決める重要なパラメータであることが分かる。一方 (b) では単一光パルスに含まれる多光子の寄与  $g^{(2)}(0)$  依存性を示したものであり、 $g^{(2)}(0) = 0$  に近づくにつれ理想的な単一光子であることを指す。 $g^{(2)}(0) = 0$  における鍵生成レートは伝送路の損失や検出器の暗計数のみによって決定し、即ち量子光源としての性能が最大限に活用されるが、 $g^{(2)}(0)$  値が増加していくにつれてレートは大きく低減していく。これは  $g^{(2)}(0)$  の大きな光源では多光子を狙った光子の略奪 (光子数分岐攻撃 / Photon Number Splitting : PNS 攻撃) に貧弱となり、秘匿性増強フェーズにて大量のビット消費が必要となるためである。そのため光源の  $g^{(2)}(0)$  は安全鍵生成の許容限界 (伝送距離限界) を決める重要な指標となる。

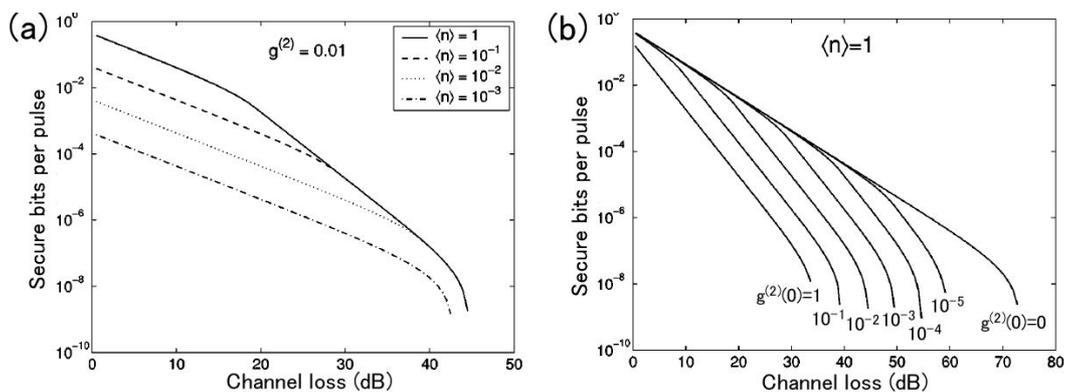


図 1.3: BB84 における安全鍵生成レートのシミュレーション例<sup>33</sup>。(a) 単一光子源における平均光子数  $\langle n \rangle$  は鍵生成レートの効率化に、(b) 多光子生成の寄与  $g^{(2)}(0)$  は伝送距離限界にそれぞれ大きく影響する。

近年では PNS 攻撃への対応法として BB84 方式の改良プロトコルが主に用いられている。図 1.4 に示すシミュレーション結果<sup>22</sup> はその一例であり、差動位相シフト (Differential Phase Shifted : DPS)-QKD<sup>34</sup> 方式とデコイ (decoy) プロトコル<sup>35</sup> による鍵生成レート向上の様子を図示したも

のである。黒破線の微弱コヒーレント光 (Weak Coherent Pulse: WCP) を用いた場合と比べると、DPS(緑実線) やデコイ方式 (黄破線) による効率化が良く分かる。以下 2 つの手法の特徴について述べる。DPS-QKD では伝送する光パルスを干渉系に通して“0”, “ $\pi$ ”に変調させ、検出側の干渉系にて連続する光パルス間の位相差を読み出すことでビット値の共有を行う。この場合、基底不一致により破棄するビットがなく、また個々の光パルスには位相差情報を含まないため PNS 攻撃に耐性を持つという利点を持ち、そのため鍵生成効率は大きく向上する。またデコイ方式では、伝送する光パルス列中に平均光子数の異なるパルスをおとり (デコイパルス) として挿入し、検出側にて平均光子数を測定することで盗聴の有無を調べる手法である。イヴは信号パルスとデコイパルスとの区別ができなく 2 つのパルススロットに対して同様な処理を行うため、盗聴時におけるボブが受信する光パルス列は常に一定振幅の信号となる。従って 2 つのパルススロットに含まれる平均光子数は正常時・盗聴時で異なり、安全性の向上すなわち鍵生成レート向上を可能とする。

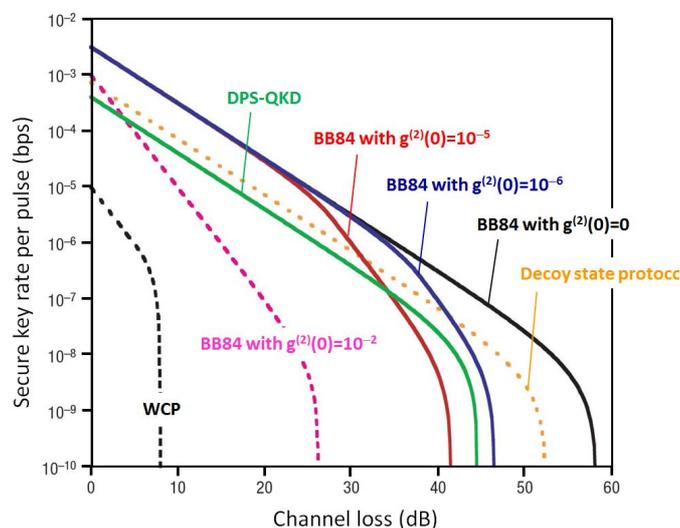


図 1.4: DPS 方式とデコイ方式の導入による安全鍵生成レートの向上<sup>22)</sup>。

一方、量子もつれ状態を用いる第二世代では上記のような多光子を標的とした盗聴に対して強い耐性を持つ。1.2.2 節で述べたようにベル不等式の破れは盗聴者の介入を許さず、高い秘匿性が確保される。実際の光源や検出器では雑音が存在するため理想的な量子状態の形成は困難であるものの、理論的には 11% 程度までの雑音比は誤り訂正のみで対応可能である<sup>36)</sup>。この観点から近年では、安全性確保とビットの共有を同時に行う Device-independent QKD (DIQKD)<sup>37-39)</sup> が精力的に進められている。従来 QKD における安全性はユーザが所有する装置に詭謀がない (イヴによる仕掛けがない) という仮説の上に成り立っているのに対し、DIQKD では通信路・送受信機等全ての構成装置の安全性保障を可能とする。図 1.5 に原理図を示す。もつれ合った 2 光子  $x, y$  をアリス、ボブの計測装置で測定し、結果  $a, b$  を得る。その後、公開通信路を用いて確率分布  $P(a, b|x, y)$  を算出する。得られた  $P(a, b|x, y)$  がベル不等式の破れを十分満たす場合、これはアリス・ボブの計測装置を含んだ全通信路上にはイヴによる操作がないことの証明であり、すなわち共有ビットの安全性が保障される。しかしながら実際の通信では光源が未だ開発途上であることや、光子の利用効率が 2 個分 (2 乗) となり低効率化してしまうこと等が大きな課題となっている。現在の試行実験例<sup>40)</sup> における安全鍵生成レートは 25 kbps@ 50 km 程度であり、第一世代と比べると十分とは

言い難い。

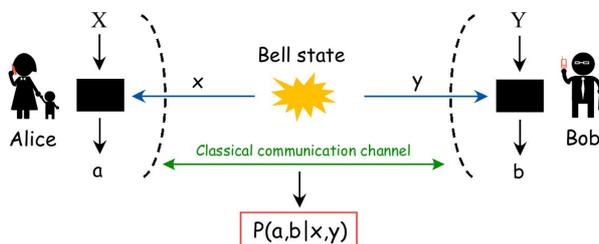


図 1.5: Device-independent QKD. ベル不等式を満たす確率分布  $P(a,b|x,y)$  は全構成装置の安全性を保障する。

これまでの議論を踏まえ、図 1.6 に次世代量子ネットワークを念頭にした安全性向上の様子を示す。現在の光ネットワーク技術から第一世代、第二世代 QKD を秘匿性・利便性で比較した。大量の光子を用いる現行の通信技術と比べて、単一量子は伝送路での損失に敏感であり利便性は低下するが、その秘匿性は量子力学に基づいた強固なものである。特に第一世代ではプロトコルの改良によるシステム効率化が進んでおり、高速化・長距離化が実現されてきている。また第二世代では構成装置の性能に制約され、現段階ではアクセシビリティは限定されるものの、その高い安全性はシステム実装の観点から非常に有用である。さらに応用技術である量子中継器の実現では飛躍的な長距離化への発展が大いに期待されるため、ネットワーク拡張の重要な要素である。

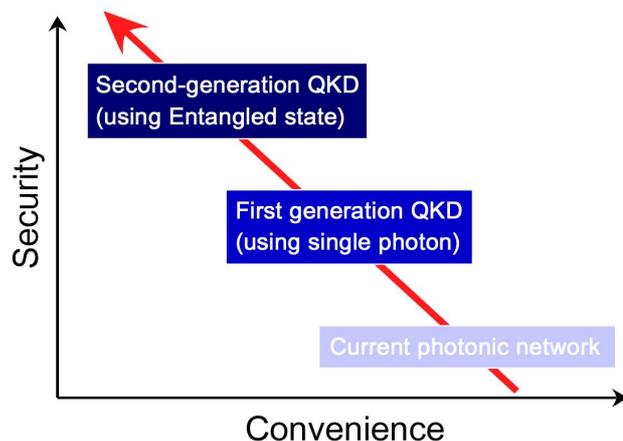


図 1.6: 次世代光ネットワークを見据えた暗号技術の利便性と安全性。

### 1.3.2 単一光子検出技術の進歩

続いて検出技術の現状について説明する。単一光子検出器の中で最も広く使用されているのはシリコン (Si) 系なだれ増幅型フォトダイオード (Avalanche PhotoDiode: APD) であり、単結晶のため低雑音かつ高い量子効率を有する。しかしながらバンドギャップが大きく光ファイバでの伝送に適した  $1.5 \mu\text{m}$  波長帯では不感である。近年では通信波長帯の単一光子検出器の開発が積極的に進められており、主に用いられているものとして InGaAs APD、超伝導ナノワイヤ単一光子検出器 (Superconducting nanowire Single Photon Detector : SSPD もしくは SNSPD)<sup>41)</sup>、超伝導転移端センサ (superconducting Transition-Edge Sensor : TES)<sup>42)</sup> 等が挙げられる。SSPD は超伝導ナノワイヤに入射する光子によって生じる局所的な常伝導転移を利用した単一光子検出器であり、常伝導となった領域では抵抗が生じるためその抵抗を電圧信号として読み出すことで光子を検出する。このとき常伝導領域ではエネルギーの高い状態 (ホットエレクトロン) から電子系・フォノン系を経由してエネルギー拡散し元の平衡状態へ戻るが、この緩和時間は超伝導転移温度  $T_c$  が高く電子-フォノン相互作用の強い材料ほど速い。主に使用される  $T_c = 12 \text{ K}$  の窒化ニオブ (NbN) では緩和時間は約数十 ps であり、従って SSPD の駆動は原理的に高速である。一方 TES は超伝導転移端センサでの光子入射による温度上昇を抵抗として読み出す。この温度変化は常伝導への転移領域内である限り光子のエネルギーに比例するため、単一光子レベルの微弱光では光子数の計測が可能である。しかしながら熱を利用した光子検出であるため遅い応答時間が短点である。以下にそれぞれ検出器についての性能を纏めた表を示す。

Detector type	Temp. (K)	$\eta_{det}$ (%) @ $\lambda_{det}$ ( $\mu\text{m}$ )	$\delta t$ (ns)	$D$ ( $\text{s}^{-1}$ )	PNR capability
Si-SPCM <sup>43)</sup>	RT	70 @ 0.65	1	50	None
InGaAs APD <sup>44)</sup>	200	10 @ 1.55	0.37	<100	None
InGaAs APD <sup>45)</sup>	240	10 @ 1.55	0.055	16000	None
TES(W) <sup>46)</sup>	0.1	50 @ 1.55	100	3	Full
TES(W) <sup>47)</sup>	0.1	95 @ 1.55	100	–	Full
TES(Ha) <sup>48)</sup>	0.1	85 @ 0.85	100	–	Full
TES(Ti) <sup>49)</sup>	0.1	81-98 @ 0.85	100	–	Full
SSPD(NbN) <sup>50)</sup>	1.5	57 @ 1.55	0.03	–	None
SSPD(NbN) <sup>51)</sup>	2.1	61-80 @ 1.55	0.068	50	None
SSPD(NbN) <sup>52)</sup>	2	91 @ 1.55	<0.050	<5886	None
SSPD(WSi) <sup>53)</sup>	2	90 @ 1.55	<0.025	<10	None

ここで  $\eta_{det}$ ,  $\delta t$ ,  $D$ , PNR はそれぞれ検出器の検出波長 ( $\lambda_{det}$ ) に対する量子効率、時間応答 (半値全幅:FWHM)、暗計数、光子数分解性能を指す。InGaAs APD は  $-100 \sim -60$  程度のペルチェ冷却で動作可能であり、ゲート駆動での光子検出によって暗計数の低減が実現されてきた。しかしこの場合、前のゲートで生成したなだれキャリアが次のゲート時に解放され、誤計数 (アフターパルス) が生じる。対して TES や SSPD では低ノイズかつ高効率化が実現されている。従来、金属表面での光反射による低い検出効率が懸念されていたが、近年では光吸収キャビティで埋め込むことで高効率化が実現しており<sup>54)</sup>、その効率は InGaAs APD と比較して非常に高く、微弱光の計測に適した性能と言える。近年の研究では高速かつ効率の高い SSPD が主に使用されており、応答時間の極限に近い 10 GHz 駆動が報告されている<sup>24)</sup>。また光子数の計測が必要なデコイプロトコル (前節参照) では TES を用いた検出が本質的であり、高速動作には応答時間の改善が要求される。

### 1.3.3 量子光源の性能向上の必要性

これまでプロトコルの改良や検出器の技術進歩について説明してきた。DPS-QKD、デコイプロトコル、DIQKD といった様々なプロトコル改良により QKD における安全性および効率化が急速に進められてきており、更には超伝導検出器の飛躍的な性能向上によって実用化が目前まで近づいてきている。しかしながら一方で、単一光子・量子的もつれ光子対生成源の研究開発は未だ発展途上の段階であり、それゆえそれら光源の性能向上は急務を要している。量子光源は大きく分けて heralded 型、on-demand 型の 2 つのタイプに分類され、現在主に使用されるのは heralded 型タイプであるが、この場合光源自体の性能によってシステム効率化が大きく制限されてしまう。ここでは heralded 型量子光源の基本原則とその課題について記述する。

Heralded 型はパラメトリック下方変換 (PDC) を用いた量子光生成手法である。PDC では 2 次の非線形感受率  $\chi^{(2)}$  を持つ非線形光学結晶にレーザで励起することで 1 つの光子が 2 つに変換され、かつその光子対はエネルギー保存則および位相整合条件により波長・時間・空間・偏光に関するもつれ合い状態となる<sup>55)</sup>。励起光が極めて微弱で光子対生成の頻度が十分低い状況では各光パルスに含まれる光子数は単一と見なされるが、その生成時間はランダムであるためそのままでは利用できない。そこで heralded 信号を用いて、時間伝令付きの 1 光子/2 光子を生成する。図 1.7(a) に単一光子としての生成手法を図示した。PDC によって生成した光子対の一方を検出し、その信号 (heralded 信号) をトリガーとしてもう一方の測定と共に用いる。光子の利用効率は検出器の効率等により低下するが、時間的に制御された単一光子が抽出可能である。また (b) はもつれ光子対の抽出手法であるが、単一光子の場合と同様に heralded 信号を用いる。2 つの PDC を用いて光子対を 2 組発生させ、それぞれの光子対の片方ずつをビームスプリッタを介して 2 つの検出器で測定する。このとき一方の検出器における光子対検出のみ取り出し、その検出信号をトリガーとすると、残りの 2 光子は時間伝令付きのもつれ光子対として抽出される。

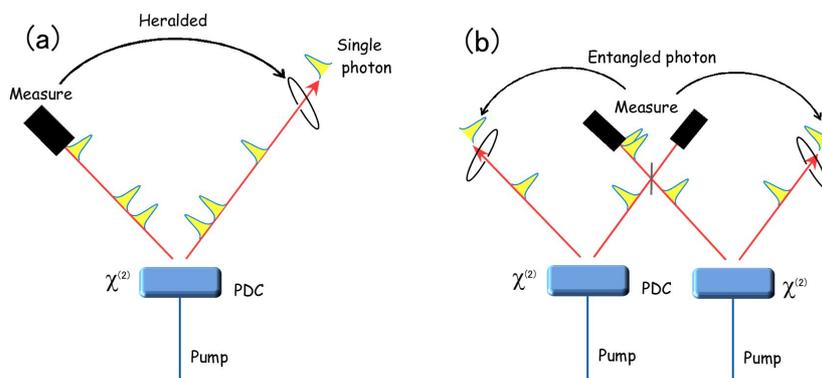


図 1.7: Heralded 型における (a) 単一光子, (b) もつれ光子対生成生成手法.

これらの生成手法は半導体レーザ等の簡易な装置で構成されるため安定した動作が得られ、また使用するレーザを選択により通信波長帯での動作も可能である。しかしながら利用可能な光子は heralded 信号のタイミングのみであり、原理的にクロック同期した光子/光子対は得られない。更にはその光子数はレーザの光子数 (ポアソン統計) を直接反映するため、純粋な 1 光子状態 (光子が時間的・空間的に十分分離した状態) ではない。つまり高速駆動のために出力を上げると多光子の寄与が増大し、逆に多光子生成を抑えようとして出力を下げると高速駆動が困難となる。現在主

に使用される条件は平均光子数 0.1・多光子発生確率 5% 程度であるが、システム効率化はこれによって制限されており大きな障害となっている<sup>56)</sup>。加えてもつれ光子対の場合では平均光子対数は約 0.03 程度であり<sup>57,58)</sup>、使用制限が大きく課せられている現状である。従ってこれらの解決には on-demand に光子生成する量子光源の開発が極めて重要な意義を持つ。

## 1.4 On-demand 型量子光源

例えば単一原子内で形成される離散化したエネルギー準位間の光学遷移を用いると、単一の光子が生成される。また3準位系の階段状の遷移(カスケード遷移)を用いると偏光に関する量子もつれ光子対が得られる。加えてそれら光子/光子対のタイミングは励起によって簡単に制御可能であり、原理的にクロック同期した光パルスが得られる。これらの特徴は heralded 型に対する最大の長所であり、QKD 研究開発の鍵となる on-demand 量子光源の実現が大いに期待される。また離散準位を有する物質は基本的にナノスケールサイズの構造で装置の小型化や集積化に適しており、実装化に向けた光源開発が積極的に進められている。本節では on-demand 型単一光子/もつれ光子対生成の基本原理解や具体的な光源種について紹介し、各光源の性能についての検討を行う。

図 1.8 に二準位系における光学遷移の様子を示す。レーザ入射や電流注入によって電子は高次の準位に励起され、その緩和(発光再結合)過程ではパウリの排他律に基づき単一光子が放出される。

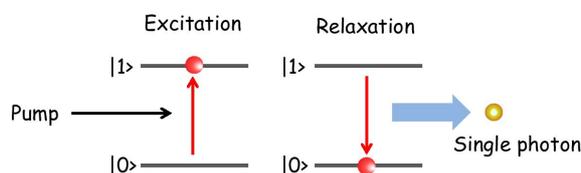


図 1.8: 単一の二準位系による単一光子生成.

具体的な材料系では単一原子、単一イオン、単一分子、ダイヤモンドの窒素欠陥 (Nitrogen-Vacancy : NV)、半導体量子ドット (Quantum Dot ; QD) が挙げられ、これら全ての材料系で単一光子発生が確認されている。以下の表では各材料毎の特徴を纏めた。

Source	Temp. (K)	$\lambda$ ( $\mu\text{m}$ )	$\eta_{ext}$ (%)	$g^{(2)}(0)$	$\tau_X$ (ns)	PL/EL
Single atom <sup>59, 60)</sup>	$\sim 0$	Atomic line	9	0.04	0.1 ( <sup>85</sup> Rb)	PL
Single ion <sup>61, 62)</sup>	$\sim 0$	Atomic line	8	0.02	3.5 ( <sup>24</sup> Mg)	PL
Single molecule <sup>63)</sup>	2	0.50-0.70	6	0.27	3.8	PL
Single molecule <sup>64, 65)</sup>	RT	0.50-0.75	4	–	$\sim 50$	PL
NV <sup>66, 67)</sup>	RT	0.60-0.75	1	0.07	23	PL
NV with SIL <sup>68)</sup>	RT	0.60-0.80	4	0.16	18	PL
NV in NW <sup>69)</sup>	RT	0.60-0.75	$\leq 30$	0.10	15	PL
NV in p-i-n <sup>70)</sup>	RT	0.55-0.80	–	0.45	13	EL
GaN QDs <sup>71-73)</sup>	200	0.35-0.50	–	0.43	0.7	PL
GaN QDs in p-i-n <sup>74, 75)</sup>	150	0.35-0.50	–	0.35	1.1	EL
CdSe QDs <sup>76-78)</sup>	220	0.50-0.65	–	0.11	0.5	PL
InAs QDs <sup>79-84)</sup>	10	0.80-1.30	3-40	0.02	1.0	PL
InAs/InP QDs <sup>85, 86)</sup>	10	1.55	11	0.03	1.0	PL
InAs QD in NW <sup>87, 88)</sup>	10	0.90-1.10	72	0.12	1.0	PL
InAs QD in PC <sup>89, 90)</sup>	10	0.90-1.10	25	0.19	0.1	PL
InAs QD in p-i-n <sup>91-93)</sup>	10	0.90-1.00	–	0.09	0.7	EL

ここで  $\lambda, g^{(2)}(0), \eta_{ext}, \tau_X, PL/EL$  はそれぞれ発光波長、多光子発生の寄与、光子取り出し効率、励起子の自然放出時定数 (光源の発光寿命)、光励起/電流励起 (photoluminescence/electroluminescence) を指す。分子や NV では室温駆動が可能であるが、波長が可視-近赤外でありかつ寿命が長い。そのため光ファイバでの伝送や高速駆動には不向きである。また原子やイオンは材料種の選別によって波長選択が可能であるが、数十 mK の極低温での駆動であることと実際の使用では真空中でのトラップが必要であり光源としては扱づらい。一方で量子ドットはヘリウム温度で駆動し、波長選択が可能であることや寿命が比較的短い等の特徴を持つ。特に InAs 系では近赤外 ~ 通信波長帯への拡張が容易であり実用化に有利な点と言える。また近年では微細加工技術の向上に伴い様々な光学構造が作製可能となっており、光子取り出し効率の著しい向上が実現されている。それに伴い 2010 年には伝送距離 50 km にて QKD 試行実験を行い<sup>86)</sup>、on-demand 型光源における QKD 実験<sup>94-98)</sup> の最長距離伝送に成功している。さらに微小光共振器構造による短寿命化<sup>99)</sup> も精力的で 2 GHz 駆動での単一光子生成<sup>92)</sup> が実現されており、加えて電流駆動・位置制御<sup>100)</sup> 等の観点からモデバイス実装に適した光源種と考えられる。

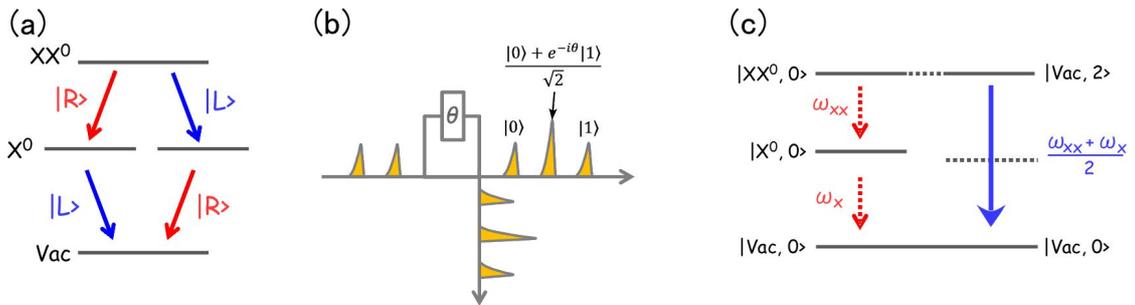


図 1.9: 量子ドットを用いたもつれ光子対生成法の例. (a)  $XX^0$ - $X^0$  カスケード遷移型, (b) ダブル励起パルスによる時間位置もつれ, (c) 励起子分子ポラリトンからの 2 光子同時放出.

図 1.9 では量子ドットを用いた量子もつれ光子対生成についてのいくつかの手法を図示した。(a) は励起子分子 ( $XX^0$ )-励起子 ( $X^0$ )-真空状態 (Vac) のカスケード遷移過程を利用する手法である。この場合  $XX^0$  の全角運動量  $J$  はパウリの排他律によって  $J = 0$ 、 $X^0$  で  $J = 1$ 、Vac で  $J = 0$  となり、従って生成する  $XX^0$ - $X^0$  光子対の偏光状態は次式で表されるベル状態の 1 つ、

$$|\Psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|R\rangle_{XX} |L\rangle_X + |L\rangle_{XX} |R\rangle_X) \quad (1.11)$$

となる。ここで  $R, L$  はそれぞれ右回りと左回りの偏光状態を指す。この偏光もつれの状態は単純な 3 準位系の光学遷移によって得られることから、現在最も主流な手法であり報告例も多い<sup>101-108)</sup>。(b) は時間・位置もつれと呼ばれ、2 つの励起子発光を干渉させる手法である<sup>109, 110)</sup>。量子ドットを時間差をつけた 2 つの励起パルスで励起し、2 つの光子を生成させる。その後、干渉系で時間差を戻すと光子の状態は時間・位置に関する重ね合わせ状態で記述される (図参照)。従って干渉系通過後の 2 光子を時間的および空間的に選別して抽出すると、もつれ合った状態となる。この時間・位置に関するもつれは偏光保持が困難な長距離光ファイバ通信への応用に向けて有用なアプローチであるが、時間的選別を要するため光子対の利用効率は最大でも 1/4 に制限されてしまい、システム実装に関しては大きな欠点となる。(c) では微小光共振器構造を用いた生成法であり、微細加工

技術の進歩により実現された例である<sup>111,112)</sup>。量子ドット中に形成される励起子と共振器中に閉じ込められた光子とがコヒーレントに結合した状態(強結合)では、電子系と光子系の混成状態と見なされる励起子ポラリトンが形成されるが、これを発展させ励起子分子 $|XX^0, 0\rangle$ と励起子分子ポラリトン $|Vac, 2\rangle$ との結合状態を形成させると、周波数の等しい2光子が同時に放出する。これはPDCと同様の2次の非線形光学効果であり、光子対は波長・時間・空間・偏光に関するもつれ合い状態となる。この手法での2光子は同時生成であるため原理的にはコヒーレンスの高い量子状態であり非常に実用的であるものの、光子の強い閉じ込め(高Q値)を有する共振器の作製や、 $\chi^{(2)}$ 増幅のための厳格な光学制御が必要であり現在の研究段階では量子状態に関する実証例はない。以上紹介した3つの手法はいずれも研究開発が盛んであるが、中でも(a)のカスケード遷移型ではベル不等式の破れ<sup>102,105)</sup>や量子テレポーテーション<sup>113)</sup>といった原理検証が最も進んでいるのに加え、電流駆動<sup>105)</sup>や光子対効率向上<sup>106)</sup>(約12%)も精力的であることから実用化に最も近い手法と言える。

## 1.5 半導体量子ドットにおける課題

これまで量子光源としての観点から半導体量子ドットにおける有用性やその実証例について検討してきた。しかしながら現状ではその潜在性が十分に発揮された光子/光子対生成が実現されているとは言い難い。本節では単一光子・量子もつれ光子対に分けてそれら現状および課題を述べる。

### 1.5.1 単一光子生成

1.3.1 節で述べたように単一光子源としての最重要性能指標は光子の単一性および取り出し効率であり、高純度かつ高効率な単一光子は安全鍵の効率的な生成を可能にする。光子の純度についてはこれまで光学制御による検討が進められており、Malko らは励起波長の調整によって  $g^{(2)}(0)$  が抑制可能であることを見出した<sup>81)</sup>。バリア層や濡れ層で形成される連続エネルギー準位を励起する非共鳴励起では、連続準位層内で捕獲される余剰キャリアの影響によって無相関光が発生し、単一性の高い光子は得られない。一方で、量子ドット内部で形成される離散的エネルギー準位を励起する準共鳴励起では励起のダイナミクスが大きく変化し、無相関光の強い抑制および孤立した二準位系の形成を可能にする。その結果  $g^{(2)}(0)$  は大幅に改善し、高純度な単一光子が生成される。

光子の取り出し効率  $\eta_{ext}$  について、一般にバルク半導体中に量子ドットが埋め込まれた as-grown な構造では、半導体と空気との大きな屈折率差によって発生光子の放射臨界角が大きく制限されてしまう。その場合の効率は大きく見積もっても 1% 程度であり、従って単一量子ドット分光の初期の頃からメサ構造への加工<sup>114)</sup> や、試料とソリッドイマ ジョンレンズ (Solid Immersion Lens: SIL) とを密接させる<sup>115)</sup>、といった工夫が施されてきた。前節でも述べたが、近年では微細加工技術の向上によって様々な光学構造が作製可能となり、それに伴い単一光子の高効率化が実現されてきている。

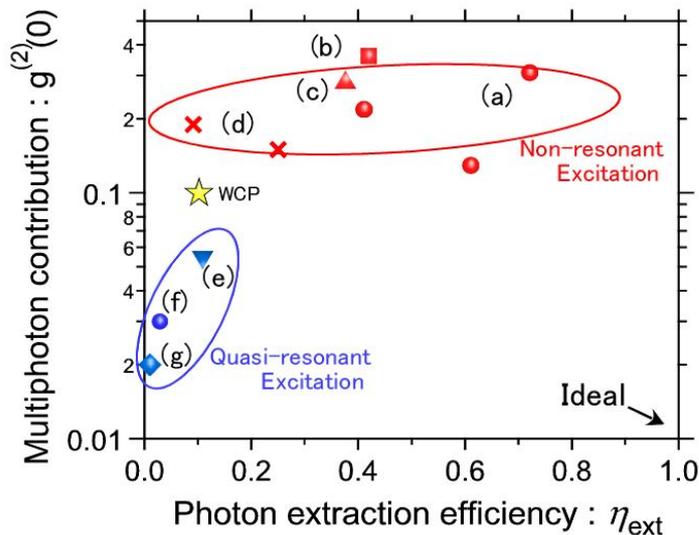


図 1.10: 量子ドットにおける単一光子発生の性能報告例<sup>116)</sup>。

図 1.10 は単一光子源におけるこれまでの報告例<sup>116)</sup> を纏めたものである。非共鳴励起 (赤)、準共鳴励起 (青) における  $g^{(2)}(0)$  を様々な光学構造 (a) ~ (g) の  $\eta_{ext}$  を関数としてプロットした。また

比較対象として典型的な WCP の性能を で示した。(a)(b) はどちらも量子ドットを含んだナノワイヤを金属 (Au) 反射鏡上に配置した光学構造であり、(a) では先端を太くしたトランペット状のナノワイヤ、(b) は逆に先端を極めて鋭利にしたナノワイヤを用いている。また (c) は GaAs 膜+AlAs 膜とを多重積層させた分布ブラッグ反射鏡 (Distributed Bragg Reflector: DBR) 型ピラー、(d) は L3 型 2 次元フォトニック結晶の微小光共振器構造である。(e) は傾斜を持つピラー構造において発生光子を試料裏側 (成長基板面) から取り出す光学ホーン構造、(f)(g) は通常のピラー形状であり、これらは準共鳴励起により量子ドット内部で孤立二準位系を形成させ  $g^{(2)}(0)$  抑制改善を実証した例である。図より光学構造の改良による  $\eta_{ext}$  の大幅な向上、励起波長制御による  $g^{(2)}(0)$  の 1 桁程度もの低減が実現していることが分かる。更にそれらの値は WCP と比較して大きく凌駕するものであり、on-demand 型光源の優位性が良く表れている。しかしながらこれらの報告は理想極限 ( $\eta_{ext} = 1$  かつ  $g^{(2)}(0) = 0$ ) に向けての検証という意味では十分とは言い難い。高い  $\eta_{ext}$  を持つ構造での光子の高純度化は未だ実現されていなく、より一層の改善に向けた検討が必要とされる。特に伝送距離限界を決定する因子  $g^{(2)}(0)$  は桁数での抑制が不可欠であり、 $10^{-3} \sim 10^{-4}$  オーダーでの改善が鍵となっている。加えて準共鳴励起による孤立二準位系の形成メカニズムについては未だ解明されていなく、励起波長制御による  $g^{(2)}(0)$  抑制を司る背景物理は不明瞭なままである。従ってそれらメカニズムの解明や発生光子の更なる高純度化への検討が不可欠な要素となっている。

### 1.5.2 量子もつれ光子対生成

$XX^0-X^0$  カスケード型の光学遷移では偏光に関する量子もつれ光子対が生成され、かつ量子ドットのもつれ生成法の中でも最も簡便な手法である。しかしながらその実現は極めて困難である。これは量子ドットの有する僅かな形状異方性に起因しており、それによって量子状態が崩壊してしまうためである。図 1.11 は等方的、異方的な形状におけるカスケード緩和過程のエネルギー準位を模式図に示したものである。完全に等形状のドットでは基板面で直交した  $x, y$  方向における周波数  $\omega_x$  と  $\omega_y$  が等しく 2 つのカスケード経路に which-path 情報は無い。しかしながら異方的な場合は  $\omega_x$  と  $\omega_y$  が等価ではなく、結果として重ね合わせ状態が消失してしまう。この  $X^0$  準位で生じるエネルギー差を励起子微細構造分裂 (fine structure splitting : FSS) と呼び、量子もつれ光子対生成に関する最大の課題である。

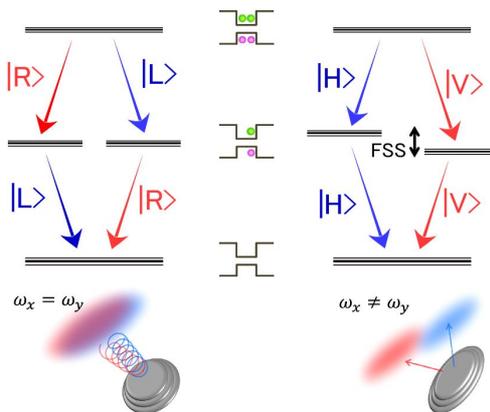


図 1.11: 量子ドットの形状異方性と微細構造分裂 (FSS).

これまで量子状態の回復に向けた数多くのアプローチが報告されてきた<sup>101, 107, 117-128</sup>。それらは FSS をスペクトル自然幅  $\sim 1 \mu\text{eV}$  まで抑制し、which-path 情報の消去を目指したものである。主な消去法としては量子ドットに横磁場を印加する手法<sup>101, 117</sup>、電場を印加する手法<sup>107, 118-122</sup>、圧電効果による手法<sup>123, 124</sup>が挙げられる。しかしこれらの手法はどれも異方的なポテンシャルを外部制御によって強制的に補正するやや冗長的な方法である。加えて単一量子ドットにのみ着目した回復法であるため、個々のドットに応じた厳密なパラメータの決定が不可欠であり、汎用性に乏しい。特に応用への発展に最も重要となるベル不等式の破れの観測例はエネルギー的<sup>102</sup>・時間的<sup>105</sup>な制御を施し光子対の強度を大幅に制限した上で達成されたものであり、有用なアプローチとは言い難い。

量子ドットの形状異方性は成長基板に (100) 面を用いることに遠因する。GaAs や InAs が形成する閃亜鉛鉱結晶の (100) 面では、面内で直交する [110] 方向と  $[\bar{1}10]$  方向とで原子配列が等価ではない。そのためドット成長時における原子の拡散が異方的であり、結果として量子ドットの対称性は  $C_{2v}$  まで落ちる。また Stranski-Krastanov (S-K) モードで成長したドットでは歪による内部ピエゾ電界のため、光学異方性が更に増幅してしまう。これまで成長時における制御法としてドット形成後の急速熱処理 (Rapid Thermal Annealing: RTA) が主に用いられてきた<sup>125-127</sup>。これにより原子の異方的な拡散が改善し、回転対称性は向上を見せる。しかしながら残される FSS は数  $10 \mu\text{eV}$  程度と依然大きく、which-path の消去は困難である。これに対し Singh らは、成長基板を  $C_{3v}$  対称性を持つ (111) 面に変えることでドットの対称性を上げ、FSS が低減されることを予測した<sup>129</sup>。ところが S-K 法を用いた結晶成長では、転移を通じた歪緩和機構のため量子ドットは形成されない。Mohan らは (111)B 面 GaAs 基板表面上のピラミッド型パターンングを用いて位置制御型 InGaAs 量子ドットを作製した<sup>128</sup>。この場合ドットは (111) 面の  $C_{3v}$  を直接反映した形となり、結果として FSS は  $\sim 3 \mu\text{eV}$  まで低減される<sup>128</sup>。しかしこの手法でも which-path 消去までは至っていない<sup>130</sup>。これは  $C_{3v}$  量子ドットの形成が which-path 消去の決定的な打開策ではなく、より等方的な真円形状が要求されることを示している。従って等方的な量子ドット形成技法の確立が不可欠であり、またそれに伴う量子状態回復の実証が重要な課題とされる。

## 1.6 本研究の目的

本研究は QKD 量子光源の実用化に向けた課題解決を念頭に、半導体量子ドットを用いた高性能単一光子・量子もつれ光子対生成の実証およびそれら背景物理の解明を目的とし研究を行ったものである。

単一光子生成に関して、理想光源の実現には高効率・高純度な光子生成が不可欠である。本研究では量子ドットを含む半導体ピラー構造を金属反射鏡で埋め込んだ光学構造を導入することにより高効率かつ高純度な単一光子生成の実証を目指す。この光学構造では量子ドット発生光子の金属面反射および取り出し口の制限によって光子取り出し効率の大幅な改善が期待される<sup>131)</sup>。加えて無相関光の要因であるバリア層はピラー構造部のみに制限されるため実効的な半導体体積は極小化し、それに伴う光子純度の向上が大いに期待される。実際にこれまでこの金属埋め込みピラー構造を用いることで1桁以上もの発光増強や $10^{-2}$  オーダーの  $g^{(2)}(0)$  が実証されてきた<sup>132)</sup>。本研究では取り出し効率の定量的評価を行うことで、オンデマンドな光子生成の実証を狙う。また励起波長制御による孤立二準位系の形成およびそのメカニズム解明、更にはそれに伴う  $g^{(2)}(0) < 10^{-2}$  を有する高純度な単一光子生成の実証を目指す。

量子もつれ光子対生成に関しては、等形状量子ドットからの量子状態の生成およびベル不等式の破れの実証を目指す。FSS 抑制に向けた等方的な量子ドットの創製には (111) 面基板の選択が有用であるものの、原子配列を直接反映した  $C_{3v}$  形状では which-path 消去は十分ではない。本研究では基板面原子配列の影響を原理的に受けない液滴エピタキシー法<sup>133)</sup>を導入し、FSS 抑制改善および量子状態の形成を狙う。液滴エピタキシー成長法では、III-V 族化合物半導体を構成する III 族元素のみを基板表面に供給した際に形成される液滴を、V 族元素の照射により結晶化して量子ドットを自己形成する。したがってドットは供給する液滴を反映した形状を持ち、基板面の原子配列の影響を受けにくい。加えて成長方位の選択自由度が高いのも特徴であり、[111] 方向での量子ドット作製も容易である。従って等方性の高いドットの形成やそれに伴う、FSS 抑制改善が大いに期待される。本研究では、(111) 面上液滴エピタキシー量子ドットからの量子もつれ光子対生成を狙い、ベル不等式の破れの実証を目指す。

## 1.7 論文構成

本論文の構成は下記の通りである。

第一章では、本研究の背景である次世代量子光ネットワークの基本概念や研究開発の現状、高性能量子光源の重要性について説明する。また研究目的および各章の構成について記述する。

第二章では、本研究における理論的な背景と関連物理について説明する。

第三章では、量子ドット成長や金属埋め込み微細加工・光学測定系について説明し、単一量子ドット発光の光学特性を評価する。また金属埋め込み構造による発光増強について検討し、光子取り出し効率の定量的評価を行う。

第四章では、量子ドット励起ダイナミクスの評価およびその制御機構についての考察を行う。単一量子ドット内部で起こる数ナノ秒オーダーのキャリアダイナミクスを評価し、更に励起強度/励起波長に関する調査を行うことで、孤立二準位系の形成メカニズムについて考察する。

第五章では、励起波長制御により形成された孤立二準位系を用いて光子統計評価を行い、高純度単一光子発生についての実証を行う。光子統計における評価技法について考察し、準共鳴励起条件下における生成光子の純度を高精度に評価する。非共鳴励起時と比べた  $g^{(2)}(0)$  抑制を検討し、また従来光源性能との比較から量子光源としての優位性について議論する。

第六章では、(111) 面上液滴エピタキシー量子ドットを用い、もつれ光子対生成およびベル不等式の破れの実証を行う。高い形状対称性を有する量子ドット形成や FSS の抑制改善についての検討を行い、零磁場/零電場下での 2 光子状態を評価する。また観測基底に依らない偏光相関について調査し、ベル不等式の破れの観測を行う。

第七章では、本研究で得られた成果を総括し今後の展望について述べる。

## 参考文献

- 1) ・総務省, 2006, 『電気通信サービスの現状』(2013年11月取得, [http://www.soumu.go.jp/johotsusintokei/linkdata/other019\\_200603\\_hokoku.pdf](http://www.soumu.go.jp/johotsusintokei/linkdata/other019_200603_hokoku.pdf))  
・総務省, 2013, 『通信量からみた我が国の通信利用状況』(2013年11月取得, [http://www.soumu.go.jp/menu\\_news/s-news/01kiban03\\_02000174.html](http://www.soumu.go.jp/menu_news/s-news/01kiban03_02000174.html))  
・日本ネットワークセキュリティ協会, 2013, 『2012年情報セキュリティインシデントに関する調査報告書』(2013年11月取得, <http://www.jnsa.org/result/incident/2012.html>).
- 2) H. J. Kimble, "The Quantum internet", *Nature* **453**, 1023 (2008).
- 3) C. H. Bennett, and G. Brassard, "Quantum Cryptography: Public Key Distribution and Coin Tossing", *Proceeding of IEEE International Conference on Computers, Systems, and Signal Proceeding, Bangalore, India IEEE, New York*, pp.175 (1984).

- 4) C. H. Bennett, "Quantum cryptography using any two nonorthogonal states", *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3121 (1992).
- 5) N. Lütkenhaus, "Security against individual for realistic quantum key distribution", *Phys. Rev. A* **61**, 052304 (2000).
- 6) A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen, "Can Quantum-Mechanical Description of Physical Reality Be Considered Complete?", *Phys. Rev.* **47**, 777 (1935).
- 7) J. S. Bell, "On the Einstein Podolsky Rosen paradox", *Physics* **1**, 195 (1964).
- 8) A. K. Ekert, "Quantum cryptography based on Bell's theorem", *Phys. Rev. Lett.* **67**, 661 (1991).
- 9) C. H. Bennett, G. Brassard, and N. D. Mermin, "Quantum cryptography without Bell's theorem", *Phys. Rev. Lett.* **68**, 557 (1992).
- 10) H.-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac, and P. Zoller, "Quantum Repeaters: The Role of Imperfect Local Operations in Quantum Communication", *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5932 (1998).
- 11) C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres, and W. K. Wootters, "Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels", *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1895 (1993).
- 12) H. Zbinden, H. Bechmann-Pasquinucci, N. Gisin, and G. Ribordy, "Quantum cryptography", *Appl. Phys. B* **67**, 743 (1998).
- 13) D. Bethune, and W. Risk, "An autocompensating fiber-optic quantum cryptography system based on polarization splitting of light", *IEEE J. Quantum Electron* **36**, 340 (2000).
- 14) P. A. Hiskett, G. Bonfrate, G. S. Buller, and P. D. Townsend, "Eighty kilometer transmission experiment using an InGaAs/InP SPAD-based quantum cryptography receiver operating 1.55  $\mu\text{m}$ ", *J. Mod. Opt.* **48**, 1957 (2001).
- 15) A. K. Ekert, J. G. Rarity, P. R. Tapster, G. M. Palma, "Practical quantum cryptography based on two-photon interferometry", *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1293 (1992).
- 16) D. Gottesman, and I. L. Chuang, "Demonstrating the viability of universal quantum computation using teleportation and single-qubit operations", *Nature* **402**, 390 (1999).
- 17) A. Poppe, A. Fedrizzi, R. Ursin, H. R. Böhm, T. Lorünser, O. Maurhardt, M. Peev, M. Suda, C. Kurtsiefer, H. Weinfurter, T. Jennewein, and A. Zeilinger, "Practical quantum key distribution with polarization entangled photons", *Opt. Express* **12**, 3865 (2004).
- 18) C. Gobby, Z. L. Yuan, and A. J. Shields, "Quantum key distribution over 122 km of standard telecom fiber", *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3762 (2004).
- 19) X.-F. Mo, B. Zhu, Z.-F. Han, Y.-Z. Gui, and G.-C. Guo "Faraday-Michelson system for quantum cryptography", *Opt. Lett.* **30**, 2632 (2005).

- 20) A. Tanaka, M. Fujiwara, S. W. Nam, Y. Nambu, S. Takahashi, W. Maeda, K. Yoshino, S. Miki, B. Baek, Z. Wang, A. Tajima, M. Sasaki, and A. Tomita, "Ultra fast quantum key distribution over a 97 km installed telecom fiber with wavelength division multiplexing clock synchronization", *Opt. Express* **16**, 11354 (2008).
- 21) H. Takesue, E. Diamanti, T. Honjo, C. Langrock, M. M. Fejer, K. Inoue and Y. Yamamoto, "Differential phase shift quantum key distribution experiment over 105 km fibre", *New J. Phys.* **7**, 232 (2005).
- 22) H. Takesue, S. W. Nam, Q. Zhang, R. H. Hadfield, T. Honjo, K. Taaki, and Y. Yamamoto, "Quantum key distribution over a 40-dB channel loss using superconducting single-photon detectors", *Nature Photon.* **1**, 343 (2007).
- 23) H. Takesue, E. Diamanti, C. Langrock, M. M. Fejer, and Y. Yamamoto, "10-GHz clock differential phase shift quantum key distribution experiment", *Opt. Express* **14**, 9522 (2006).
- 24) Q. Zhang, X. Xie, H. Takesue, S. W. Nam, C. Langrock, M. M. Fejer, and Y. Yamamoto, "Correlated photon-pair generation in reverse-proton-exchange PPLN waveguides with integrated mode demultiplexer at 10 GHz clock", *Opt. Express* **15**, 10288 (2007).
- 25) A. R. Dixon, Z. L. Yuan, J. F. Dynes, A. W. Sharpe, and A. J. Shields, "Gigahertz decoy quantum key distribution with 1 Mbit/s secure key rate", *Opt. Express* **16**, 18790 (2008).
- 26) Q. Zhang, H. Takesue, T. Honjo, K. Wen, T. Hirohata, M. Suyama, Y. Takiguchi, H. Kamada, Y. Tokura, O. Tadanaga, Y. Nishida, M. Asobe, and Y. Yamamoto, "Megabits secure key rate quantum key distribution", *New J. Phys.* **11**, 045010 (2009).
- 27) S. Wang, W. Chen, J.-F. Guo, Z.-Q. Yin, H.-W. Li, Z. Zhou, G.-C. Guo, and Z.-F. Han, "2 GHz clock quantum key distribution over 260 km of standard telecom fiber", *Opt. Lett.* **37**, 1008 (2012).
- 28) T. Honjo, S. Yamamoto, T. Yamamoto, H. Kamada, Y. Nishida, O. Tadanaga, M. Asobe, and K. Inoue, "Field trial of differential-phase-shift quantum key distribution using polarization independent frequency up-conversion detectors", *Opt. Express* **15**, 15920 (2007).
- 29) M. Peev, C. Pacher, R. Alléaume, C. Barreiro, J. Bouda, W. Boxleitner, T. Debuisschert, E. Diamanti, M. Dianati, J. F. Dynes, S. Fasel, S. Fossier, M. Fürst, J.-D. Gautier, O. Gay, N. Gisin, P. Grangier, A. Happe, Y. Hasani, M. Hentschel, H. Hubel, G. Humer, T. Länger, M. Legré, R. Lieger, J. Lodewyck, T. Lorünser, N. Lütkenhaus, A. Marhold, T. Matyus, O. Maurhart, L. Monat, S. Nauerth, J.-B. Page, A. Poppe, E. Querasser, G. Ribordy, S. Robyr, L. Salvail, A. W. Sharpe, A. J. Shields, D. Stucki, M. Suda, C. Tamas, T. Themel, R. T. Thew, Y. Thoma, A. Treiber, P. Trinkler, R. Tualle-Brouri, F. Vannel, N. Walenta, H. Weier, H. Weinfurter, I. Wimberger, Z. L. Yuan, H. Zbinden, and A. Zeilinger, "The SECOQC quantum key distribution network in Vienna", *New J. Phys.* **11**, 075001 (2009).
- 30) SWISS QUANTUM (2013 年 12 月取得, <http://www.swissquantum.com/>)

- 31) S. Wang, W. Chen, Z.-Q. Yin, Y. Zhang, T. Zhang, H.-W. Li, F.-X. Xu, Z. Zhou, Y. Yang, D.-J. Huang, L.-J. Zhang, F.-Y. Li, D. Liu, Y.-G. Wang, G.-C. Guo, and Z.-F. Han, "Field test of wavelength-saving quantum key distribution network", *Opt. Lett.* **35**, 2454 (2010).
- 32) M. Sasaki, M. Fujiwara, H. Ishizuka, W. Klaus, K. Wakui, M. Takeoka, S. Miki, T. Yamashita, Z. Wang, A. Tanaka, K. Yoshino, Y. Nambu, S. Takahashi, A. Tajima, A. Tomita, T. Domeki, T. Hasegawa, Y. Sakai, H. Kobayashi, T. Asai, K. Shimizu, T. Tokura, T. Tsurumaru, M. Matsui, T. Honjo, K. Tamaki, H. Takesue, Y. Tokura, J. F. Dynes, A. R. Dixon, A. W. Sharpe, Z. L. Yuan, A. J. Shields, S. Uchikoga, M. Legré, S. Robyr, P. Trinkler, L. Monat, J.-B. Page, G. Ribordy, A. Poppe, A. Allacher, O. Maurhart, T. Länger, M. Peev, and A. Zeilinger, "Field test of quantum key distribution in the Tokyo QKD Network", *Opt. Express* **19**, 10387 (2011).
- 33) E. Waks, C. Santori, and Y. Yamamoto, "Security aspects of quantum key distribution with sub-Poisson light" *Phys. Rev. A* **66**, 042315 (2002).
- 34) K. Inoue, E. Waks, and Y. Yamamoto, "Differential Phase Shift Quantum Key Distribution", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 037902 (2002).
- 35) W.-Y. Hwang, "Quantum Key Distribution with High Loss: Toward Global Secure Communication", *Phys. Rev. Lett.* **91**, 057901 (2003).
- 36) N. Lütkenhaus, "Security against individual attacks for realistic quantum key distribution", *Phys. Rev. A* **61**, 052304 (2000).
- 37) S. Pironio, A. Acín, N. Brunner, N. Gisin, S. Massar, and V. Scarani, "Device-independent quantum key distribution secure against collective attacks", *New J. Phys.* **11**, 045021 (2009).
- 38) M. McKague, "Device independent quantum key distribution secure against coherent attacks with memoryless measurement devices", *New J. Phys.* **11**, 103037 (2009).
- 39) J. A. Slater, C. Branciard, N. Brunner, and W. Tittel, "Device-dependent and device-independent quantum key distribution without a shared reference frame", *arXiv:1311.3343* (2013).
- 40) Y. Liu, T.-Y. Chen, L.-J. Wang, H. Liang, G.-L. Shentu, J. Wang, K. Cui, H.-L. Yin, N.-L. Liu, L. Li, X. Ma, J. S. Pelc, M. M. Fejer, C.-Z. Peng, Q. Zhang, and J.-W. Pan, "Experimental Measurement-Device-Independent Quantum Key Distribution", *Phys. Rev. Lett.* **111**, 130502 (2013).
- 41) G. N. Gol'tsman, O. Okunev, G. Chulkova, A. Lipatov, A. Semenov, K. Smirnov, B. Voronov, A. Dzardanov, C. Williams, and R. Sobolewski, "Picosecond superconducting single-photon optical detector", *Appl. Phys. Lett.* **79**, 705 (2001).
- 42) A. J. Miller, S. W. Nam, J. M. Martinis, and A. V. Sergienko, "Demonstration of a low-noise near-infrared photon counter with multiphoton discrimination", *Appl. Phys. Lett.* **83**, 791 (2003).

- 43) Perkin Elmer 社製 SPCM-AQR シリーズ SPEC シート (2013 年 12 月取得, [http://www.optics.rochester.edu/workgroups/lukishova/QuantumOpticsLab/homepage/apd\\_spcm\\_aqr.PDF](http://www.optics.rochester.edu/workgroups/lukishova/QuantumOpticsLab/homepage/apd_spcm_aqr.PDF))
- 44) C. Gobby, Z. L. Yuan, and A. J. Shields, "Quantum key distribution over 122 km of standard telecom fiber", *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3762 (2004).
- 45) A. R. Dixon, Z. L. Yuan, J. F. Dynes, A. W. Sharpe, and A. J. Shields, "Gigahertz decoy quantum key distribution with 1 Mbit/s secure key rate", *Opt. Express* **16**, 18790 (2008).
- 46) D. Rosenberg, J. W. Harrington, P. R. Rice, P. A. Hiskett, C. G. Peterson, R. J. Hughes, A. E. Lita, S. W. Nam, and J. E. Nordholt, "Long-Distance Decoy-State Quantum Key Distribution in Optical Fiber", *Phys. Rev. Lett.* **98**, 010503 (2007).
- 47) A. E. Lita, A. J. Miller, and S. W. Nam, "Counting near-infrared single-photons with 95% efficiency", *Opt. Express* **16**, 3032 (2008).
- 48) A. E. Lita, B. Calkins, L. A. Pellochoud, A. J. Miller, and S. Nam, "High-efficiency photon-number-resolving detectors based on hafnium transition-edge sensors", *AIP Conf. Proc.* **1185**, 351 (2009).
- 49) D. Fukuda, G. Fujii, T. Numata, K. Amemiya, A. Yoshizawa, H. Tsuchida, H. Fujino, H. Ishii, T. Itatani, S. Inoue, and T. Zama, "Titanium-based transition-edge photon number resolving detector with 98 % detection efficiency with index-matched small-gap fiber coupling", *Opt. Express* **19**, 870 (2011).
- 50) K. M. Rosfjord, J. K. W. Yang, E. A. Dauler, A. J. Kerman, V. Anant, B. M. Voronov, G. N. Gol'tsman, and K. K. Berggren, "Nanowire single-photon detector with an integrated optical cavity and anti-reflection coating", *Opt. Express* **14**, 527 (2006).
- 51) T. Yamashita, S. Miki, H. Terai, and Zhen Wang, "Low-filling-factor superconducting single photon detector with high system detection efficiency", *Opt. Express* **21**, 27177 (2013).
- 52) W. H. P. Pernice, C. Schuck, O. Minaeva, M. Li, G.N. Goltsman, A.V. Sergienko, and H.X. Tang, "High-speed and high-efficiency travelling wave single-photon detectors embedded in nanophotonic circuits", *Nature Commun.* **3**, 1325 (2012).
- 53) F. Marsili, V. B. Verma, J. A. Stern, S. Harrington, A. E. Lita, T. Gerrits, I. Vayshenker, B. Baek, M. D. Shaw, R. P. Mirin and S. W. Nam, "Detecting single infrared photons with 93 % system efficiency", *Nature photon.* **7**, 210 (2013).
- 54) D. Rosenberg, A. E. Lita, A. J. Miller, S. Nam, and R. E. Schwall, "Performance of photon-number resolving transition-edge sensors with integrated 1550 nm resonant cavities", *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **15**, 575 (2005).
- 55) P. G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, "New High-intensity Source of Polarization-Entangled Photon Pairs", *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4337 (1995).
- 56) A Christ and C. Silberhorn, "Limits on the deterministic creation of pure single-photon states using parametric down-conversion", *Phys. Rev. A* **85**, 023829 (2012).

- 57) I. Marcikic, H. de Riedmatten, W. Tittel, V. Scarani, H. Zbinden, and N. Gisin, "Time-bin entangled qubits for quantum communication created by femtosecond pulses", *Phys. Rev. A* **66**, 062308 (2002).
- 58) J. F. Dynes, H. Takesue, Z. L. Yuan, A. W. Sharpe, K. Harada, T. Honjo, H. Kamada, O. Tadanaga, Y. Nishida, M. Asobe, and A. J. Shields, "Efficient entanglement distribution over 200 kilometers", *Opt. Express* **17**, 11440 (2009).
- 59) M. Hijlkema, B. Weber, H. P. Specht, S. C. Webster, A. Kuhn, and G. Rempe, "A single-photon server with just one atom", *Nature Phys.* **3**, 253 (2007).
- 60) J. McKeever, A. Boca, A. D. Boozer, R. Miller, J. R. Buck, A. Kuzmich, and H. J. Kimble, "Deterministic generation of single photons from one atom trapped in a cavity", *Science* **303**, 1992 (2004).
- 61) F. Diedrich and H. Walther, "Nonclassical radiation of a single stored ion", *Phys. Rev. Lett.* **58**, 203 (1987).
- 62) M. Keller, B. Lange, K. Hayasaka, W. Lange, and H. Walther, "Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system". *Nature* **431**, 1075 (2004).
- 63) B. Lounis and W. E. Moerner, "Single photons on demand from a single molecule at room temperature", *Nature* **407**, 491 (2000).
- 64) L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, and U. P. Wild, "Nonclassical Photon Statistics in Single-Molecule Fluorescence at Room Temperature", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1148 (2000).
- 65) R. Alléaume, F. Treussart, J.-M. Courty, and J.-F. Roch, "Photon statistics characterization of a single-photon source", *New J. Phys.* **6**, 85 (2004).
- 66) A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, and P. Grangier, "Nonclassical radiation from diamond nanocrystals", *Phys. Rev. A* **64**, 061802(R) (2001).
- 67) A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat, and P. Grangier, "Single Photon Quantum Cryptography" *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187901 (2002).
- 68) T. Schröder, F. Gädeke, M. J. Banholzer, and O. Benson, "Ultrabright and efficient single-photon generation based on nitrogen-vacancy centres in nanodiamonds on a solid immersion lens", *New J. Phys.* **13**, 055017 (2011).
- 69) T. M. Babinec, B. J. M. Hausmann, M. Khan, Y. Zhang, J. R. Maze, P. R. Hemmer, and M. Lončar, "A diamond nanowire single-photon source", *Nature Nanotech.* **5**, 195 (2010).
- 70) N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and S. Yamasaki, "Electrically driven single-photon source at room temperature in diamond", *Nature Photon.* **6**, 299 (2012).

- 71) S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Götzinger, Y. Yamamoto, and Y. Arakawa, "A gallium-nitride single-photon source operating at 200K", *Nature Mater.* **5**, 887 (2006).
- 72) S. Deshpande, A. Das, and P. Bhattacharya, "Blue single photon emission up to 200K from an InGaN quantum dot in AlGaIn nanowire", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 161114 (2013).
- 73) L. Zhang, C.-H. Teng, T. A. Hill, L.-K. Lee, P.-C. Ku, and H. Deng, "Single photon emission from site-controlled InGaIn/GaN quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 192114 (2013).
- 74) S. Deshpande, J. Heo, A. Das, and P. Bhattacharya, "Electrically driven polarized single-photon emission from an InGaIn quantum dot in a GaIn nanowire", *Nature Commun.* **4**, 1675 (2013).
- 75) S. Deshpande, and P. Bhattacharya, "An electrically driven quantum dot-in-nanowire visible single photon source operating up to 150 K", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 241117 (2013).
- 76) B. Lounis, H.A. Bechtel, D. Gerion, P. Alivisatos, W.E. Moerner, "Photon antibunching in single CdSe/ZnS quantum dot fluorescence", *Chem. Phys. Lett.* **329**, 399 (2000).
- 77) P. Michler, A. Imamoglu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, and S. K. Buratto, "Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature", *Nature* **406**, 968 (2000).
- 78) A. Tribu, G. Sallen, T. Aichele, Régis André, J.-P. Poizat, C. Bougerol, S. Tatarsenko, and K. Kheng, "A high-temperature single-photon source from nanowire quantum dots", *Opt. Lett.* **8**, 4326 (2008).
- 79) B. Alloing, C. Zinoni, V. Zwiller, L. H. Li, C. Monat, M. Gobet, G. Buchs, A. Fiore, E. Pelucchi, and E. Kapon, "Growth and characterization of single quantum dots emitting at 1300 nm", *Appl. Phys. Lett.* **86**, 101908 (2005).
- 80) C. Zinoni, B. Alloing, C. Monat, V. Zwiller, L. H. Li, A. Fiore, L. Lunghi, A. Gerardino, H. de Riedmatten, H. Zbinden, and N. Gisin, "Time-resolved and antibunching experiments on single quantum dots at 1300 nm", *Appl. Phys. Lett.* **88**, 131102 (2006).
- 81) A. Malko, M. H. Baier, K. F. Karlsson, E. Pelucchi, D. Y. Oberli, and E. Kapon, "Optimization of the efficiency of single-photon sources based on quantum dots under optical excitation" *Appl. Phys. Lett.* **88**, 081905 (2006).
- 82) P. Ester, L. Lackmann, S. Michaelis de Vasconcellos, M. C. Hübnér, A. Zrenner, and U. Bichler, "Single photon emission based on coherent state preparation" *Appl. Phys. Lett.* **91**, 111110 (2007).
- 83) M. Pelton, C. Santori, J. Vučković, B. Zhang, G. S. Solomon, J. Plant, and Y. Yamamoto, "Efficient source of single photons: A single quantum dot in a micropost microcavity", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 233602 (2002).
- 84) D. Ruülke, D. M. Schaadt, H. Kalt, and M. Hetterich, "Efficient single-photon extraction from quantum-dots embedded in GaAs micro-pyramids", *Appl. Phys. Lett.* **100**, 251101 (2012).

- 85) K. Takemoto, M. Takatsu, S. Hirose, N. Yokoyama, Y. Sakuma, T. Usuki, T. Miyazawa, and Y. Arakawa, "An optical horn structure for single-photon source using quantum dots at telecommunication wavelength", *J. Appl. Phys.* **101**, 081820 (2007).
- 86) K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, K. Wakui, S. Hirose, T. Usuki, M Takatsu, N. Yokoyama, K. Yoshino, A. Tomita, S. Yorozu, Y. Sakuma, and Y. Arakawa, "Transmission Experiment of Quantum Keys over 50 km Using High-Performance Quantum-Dot Single-Photon Source at 1.5  $\mu\text{m}$  Wavelength", *Appl. Phys. Express* **3**, 092802 (2010).
- 87) J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne and J.-M. Gérard "A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire" *Nature photon.* **4**, 174 (2010).
- 88) M. E. Reimer, G. Bulgarini, N. Akopian, M. Hocevar, M. B. Bavinck, M. A. Verheijen, E. P.A.M. Bakkers, L. P. Kouwenhoven, and V. Zwiller, "Bright single-photon sources in bottom-up tailored nanowires", *Nature Commun.* **3**, 737 (2012).
- 89) M. Kaniber, A. Laucht, T. Hürlimann, M. Bichler, R. Meyer, M.-C. Amann, and J. J. Finley, "Highly efficient single-photon emission from single quantum dots within a two-dimensional photonic band-gap", *Phys. Rev. B*, **77**, 073312 (2008).
- 90) A Laucht, F Hofbauer, N Hauke, J Angele, S Stobbe, M Kaniber, G Böhm, P Lodahl, M.-C. Amann, and J J Finley, "Electrical control of spontaneous emission and strong coupling for a single quantum dot", *New J. Phys.* **11**, 023034 (2009).
- 91) Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie, M. Pepper, "Electrically driven single-photon source", *Science* **295**, 102 (2002).
- 92) F. Hargart, C. A. Kessler, T. Schwarzbäck, E. Koroknay, S. Weidenfeld, M. Jetter, and P. Michler, "Electrically driven quantum dot single-photon source at 2 GHz excitation repetition rate with ultra-low emission time jitter", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 011126 (2013).
- 93) M. J. Conterio, N. Sköld, D. J. P. Ellis, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "A quantum dot single photon source driven by resonant electrical injection", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 162108 (2013).
- 94) A Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat, and P. Grangier, "Single Photon Quantum Cryptography", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187901 (2002).
- 95) E. Waks, K. Inoue, C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto, "Quantum cryptography with a photon turnstile" *Nature* **420** 762 (2002).
- 96) R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, Y Dumeige, J.-F. Roch, A. Beveratos, R. B. Tualle, J.-P. Poizat, and P. Grangier, "Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source", *New J. Phys.* **6**, 92 (2004).
- 97) R. J. Collins et al., "Quantum key distribution system in standard telecommunications fiber using a short wavelength single photon source" *J. Appl. Phys.* **107** 073102 (2010).

- 98) P. M. Intallura, M. B. Ward, O. Z. Karimov, Z. L. Yuan, P. See, A. J. Shields, P. Atkinson, and D. A. Ritchie, "Quantum key distribution using a triggered quantum dot source emitting near 1.3  $\mu\text{m}$ ", *Appl. Phys. Lett.* **91**, 161103 (2007).
- 99) K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Fält, E. L. Hu, and A. Imamoglu, "Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system", *Nature* **445**, 896 (2007).
- 100) J. C.-Ferrer, G. M.-Matutano, J. Herranz, D. Rivas, B. Alen, Y. Gonzalez, D. Fuster, L. Gonzalez, and J. M.-Pastor, "Exciton and multiexciton optical properties of single InAs/GaAs site-controlled quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 183112 (2013).
- 101) R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "A semiconductor source of triggered entangled photon pairs", *Nature* **439**, 178 (2006).
- 102) N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, and D. Gershoni, "Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots", *Phys. Rev. Lett.* **96**, 130501 (2006).
- 103) R. Hafenbrak, S. M. Ulrich, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30 K", *New J. Phys.* **9**, 315 (2007).
- 104) A. Muller, W. Fang, J. Lawall, and G. S. Solomon, "Creating polarization-entangled photon pairs from a semiconductor quantum dot using the optical stark effect", *Phys. Rev. Lett.* **103**, 217402 (2009).
- 105) C. L. Salter, R. M. Stevenson, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "An entangled-light-emitting diode", *Nature* **465**, 594 (2010).
- 106) A. Dousse, J. Suffczyński, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaître, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart, "Ultrabright source of entangled photon pairs", *Nature* **466**, 217 (2010).
- 107) M. Ghali, K. Ohtani, Y. Ohno, and H. Ohno, "Generation and control of polarization-entangled photons from GaAs island quantum dots by an electric field", *Nature Commun.* **3**, 661, (2012).
- 108) G. Juska, V. Dimastrodonato, L. O. Mereni, A. Gocalinska, and E. Pelucchi, "Towards quantum-dot arrays of entangled photon emitters", *Nature photon.* **7**, 527 (2013).
- 109) D. Fattal, K. Inoue, J. Vučković, C. Santori, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto, "Entanglement Formation and Violation of Bell's Inequality with a Semiconductor Single Photon Source", *Phys. Rev. Lett.* **92**, 037903 (2004).
- 110) H. Jayakumar, A. Predojević, T. Kauten, T. Huber, G. S. Solomon, and G. Weihs, "Time-bin entangled photons from a quantum dot", arXiv:1305.2081 (2013).
- 111) Y. Ota, S. Iwamoto, Naoto Kumagai, and Y. Arakawa, "Spontaneous Two-Photon Emission from a Single Quantum Dot", *Phys. Rrv. Lett.* **107**, 233602 (2011).

- 112) A. Reinhard, T. Volz, M. Winger, A. Badolato, K. J. Hennessy, E. L. Hu, and A. Imamoglu, "Strongly correlated photons on a chip", *Nature photon.* **6**, 93 (2012).
- 113) J. Nilsson, R. M. Stevenson, K. H. A. Chan, J. S. Szymanska, M. Lucamarini, M. B. Ward, A. J. Bennett, C. L. Salter, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "Quantum teleportation using a light-emitting diode", *Nature photon.* **7**, 311 (2013).
- 114) C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto, "Triggered single photons from a quantum dot", *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1501 (2001).
- 115) V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.-E. Pistol, L. Samuelson, and G. Björk, "Single quantum dots emit single photons at a time: Antibunching experiments", *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2476 (2001).
- 116) (a) M. E. Reimer, G. Bulgarini, N. Akopian, Moïra Hocevar, M. B. Bavinck, M. A. Verheijen, E. P.A.M. Bakkers, L. P. Kouwenhoven, and V. Zwiller, "Bright single-photon sources in bottom-up tailored nanowires", *Nature commun.* **3**, 737 (2012).
- (b) M. Munsch, N. S. Malik, J. Bleuse, E. Dupuy, A. Delga, J.-M. Gérard, and J. Claudon, "The photonic trumpet: An efficient, broadband interface between a solid-state quantum emitter and a Gaussian beam", arXiv:1209.5269 (2012).
- (c) M. Pelton, C. Santori, J. Vučković, B. Zhang, G. S. Solomon, J. Plant, and Y. Yamamoto, "Efficient source of single photons: A single quantum dot in a micropost microcavity", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 233602 (2002).
- (d) M. Kaniber, A. Laucht, T. Hurlimann, M. Bichler, R. Meyer, M.-C. Amann, and J. J. Finley, "Highly efficient single-photon emission from single quantum dots within a two-dimensional photonic band-gap", *Phys. Rev. B* **77**, 073312 (2008).
- (e) K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, K. Wakui, S. Hirose, T. Usuki, M Takatsu, N. Yokoyama, K. Yoshino, A. Tomita, S. Yorozu, Y. Sakuma, and Y. Arakawa, "Transmission Experiment of Quantum Keys over 50 km Using High-Performance Quantum-Dot Single-Photon Source at 1.5  $\mu\text{m}$  Wavelength", *Appl. Phys. Express* **3**, 092802 (2010).
- (f) P. Ester, L. Lackmann, S. M. de Vasconcelos, M. C. Hübner, A. Zrenner, and U. Bichler, "Single photon emission based on coherent state preparation" *Appl. Phys. Lett.* **91**, 111110 (2007).
- (g) A. Malko, M. H. Baier, K. F. Karlsson, E. Pelucchi, D. Y. Oberli, and E. Kapon, "Optimization of the efficiency of single-photon sources based on quantum dots under optical excitation" *Appl. Phys. Lett.* **88**, 081905 (2006).
- 117) R. M. Stevenson, R. J. Young, P. D. See. G. Gevaux, K. Cooper, P. Atkinson, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "Magnetic-field-induced reduction of the exciton polarization splitting in InAs quantum dots", *Phys. Rev. B* **73** 033306 (2006).
- 118) K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaître, S. Laurent, P. Senellart, P. Voisin, and J. A. Gaj, "Influence of an in-plane electric field on exciton fine structure in InAs-GaAs self-assembled quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **86**, 041907 (2005).

- 119) M. M. Vogel, S. M. Ulrich, R. Hafenbrak, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Influence of lateral electric fields on multiexcitonic transitions and fine structure of single quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **91**, 051904 (2007).
- 120) J. D. Mar, X. L. Xu, J. S. Sandhu, A. C. Irvine, M. Hopkinson, and D. A. Williams, "Electrical control of fine-structure splitting in self-assembled quantum dots for entangled photon pair creation", *Appl. Phys. Lett.* **97**, 221108 (2008).
- 121) M. A. Pooley, J. Bennett, I. Farrer, A. Ritchie, and A. J. Shields, "Engineering quantum dots for electrical control of the fine structure splitting", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 031105 (2013).
- 122) L. Sapienza, R. N. E. Malein, C. E. Kuklewicz, P. E. Kremer, K. Srinivasan, A. Griffiths, E. Clarke, M. Gong, R. J. Warburton, and B. D. Gerardot, "Exciton fine-structure splitting of telecom-wavelength single quantum dots: Statistics and external strain tuning", *Phys. Rev. B* **88**, 155330 (2013).
- 123) R. Trotta, E. Zallo, C. Ortix, P. Atkinson, J. D. Plumhof, J. van den Brink, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Universal Recovery of the Energy-Level Degeneracy of Bright Excitons in InGaAs Quantum Dots without a Structure Symmetry", *Phys. Rev. Lett.* **109**, 147401, (2012).
- 124) S. Germanis, A. Beveratos, G. E. Dialynas, G. Deligeorgis, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos, and N. T. Pelekanos, "Piezoelectric InAs/GaAs quantum dots with reduced fine-structure splitting for the generation of entangled photons", *Phys. Rev. B* **86**, 035323 (2012).
- 125) W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and V. D. Wieck, "Control of fine-structure splitting and biexciton binding in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  quantum dots by annealing", *Phys. Rev. B* **69**, 161301(R)(2004).
- 126) A. I. Tartakovskii, M. N. Makhonin, I. R. Sellers, J. Cahill, A. D. Andreev, D. M. Whittaker, J.-P. R. Wells, A. M. Fox, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, K. M. Groom, M. J. Steer, H. Y. Liu, and M. Hopkinson, "Effect of thermal annealing and strain engineering on the fine structure of quantum dot excitons", *Phys. Rev. B* **70**, 193303 (2004).
- 127) D. J. P. Ellis, R. M. Stevenson, R. J. Young, and A. J. Shields, P. Atkinson, and D. A. Ritchie, "Control of fine-structure splitting of individual InAs quantum dots by rapid thermal annealing", *Appl. Phys. Lett.* **90**, 011907 (2007).
- 128) A. Mohan, M. Felici, P. Gallo, B. Dwir, A. Rudra, J. Faist, and E. Kapon, "Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots", *Nature Photon.* **4**, 302 (2010).
- 129) R. Singh and G. Bester, "Nanowire quantum dots as an ideal source of entangled photon pairs," *Phys. Rev. Lett.* **103**, 063601 (2009).
- 130) A. Mohan, M. Felici, P. Gallo, B. Dwir, A. Rudra, J. Faist, and E. Kapon, "Retraction: Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots", *Nature Photon.* **6**, 793 (2012).

- 131) D. Kato, Y. Idutsu, M. Takada, S. Ito, H. Sato, J.-H. Huh, S. Ida, H. Sasakura, H. Kumano, and Ikuo Suemune, "High photon extraction efficiency from GaAs pillar with InAs quantum dots embedded in Niobium", *proc. SPIE Nanophotonic Materials VI* **7393**, 8 (2009).
- 132) H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, Y. Idutsu, H. Sasakura, and I. Suemune, "Quantum-dot-based photon emission and media conversion for quantum information applications", *Adv. Math. Phys.* **2010**, 391607 (2010).
- 133) N. Koguchi, S. Takahashi, and T. Chikyow, "New MBE growth method for InSb quantum well boxes", *J. Cryst. Growth* **111**, 688 (1991).
- 134) 1章を通して参考にした以下の著書を挙げておく。
- D. Bouwmeester, A. K. Ekert, and A. Zeilinger, *The physics of quantum information : quantum cryptography, quantum teleportation, quantum computation* (Springer-Verlag, Berlin, 2000).
  - N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, "Quantum cryptography", *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145 (2002).
  - V. Scarani, H. B. Pasquinucci, N. J. Cerf, M. Dušek, N. Lütkenhaus, M. Peev, "The security of practical quantum key distribution", *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1301 (2009).
  - M. D. Eisaman, J. Fan, A. Migdall, and S. V. Polyakov, "Invited Review Article: Single-photon sources and detectors", *Rev. of Scientific Instruments* **82**, 071101 (2011).
  - 佐々木雅英, 松岡正浩, 『量子情報通信』 (オプトロニクス社, 2006).



## 2 理論的背景

### 2.1 量子ドットの発光特性

QDs からの発光は主に基底準位での電子・正孔対の再結合によるものであるが、それらは中性の励起子や励起子分子のみでなく荷電励起子といった励起子複合体による光子生成も多く含まれる。III-V 族半導体 QDs における励起子発光寿命は約 1 ns 程度と、数秒程度の観測時間内に対して  $10^9$  オーダーの発光イベントが発生していることになり、それら励起子複合体からの発光は全て同時に観測される。本節ではこれら励起子複合体の種類について紹介し、発光起源の同定に重要となる光学特性について説明する。

#### 2.1.1 励起子種

励起により電子は伝導帯に励起され、価電子帯に正孔が生成する。この電子・正孔対がクーロン相互作用によって結合した準粒子を一般に中性励起子 (neutral exciton;  $X^0$ ) と呼び、電的に中性な束縛状態である。 $X^0$  が 2 つ、つまり電子・正孔対が 2 対結合した状態を中性励起子分子 (neutral biexciton;  $XX^0$ )、 $X^0$  にさらに余剰キャリアが 1 つまたは複数結合した状態を荷電励起子 (charged exciton) と呼ぶ。荷電励起子の中でも一般に観測されるのは単一電子  $e^-$  (単一正孔  $h^+$ ) が結合した負 (正) の荷電励起子  $X^-$  ( $X^+$ ) である。図 2.1(a) に各励起子種における励起・緩和過程の様子を示す。真空状態 ( $|Vac^0\rangle$ ) からの  $X^0$  による励起過程では中性状態の  $X^0$ ,  $XX^0$  が形成され、 $XX^0$  から  $Vac^0$  へは  $|X^0\rangle$  を経由してカスケード過程で緩和する。しかし QDs の励起は  $X^0$  のみでなく単一キャリアが優先的に QDs に占有する過程も存在し、その場合形成される励起子状態は  $X^\pm$  となる。ここで重要な点は複数の励起子状態からの発光イベントは同時には発生せず、常に何れかの励起子状態からの 1 光子生成のみが発生している事である。4 章ではこれら単一 QD の励起ダイナミクスに関する評価法や制御技法について詳細に議論する。

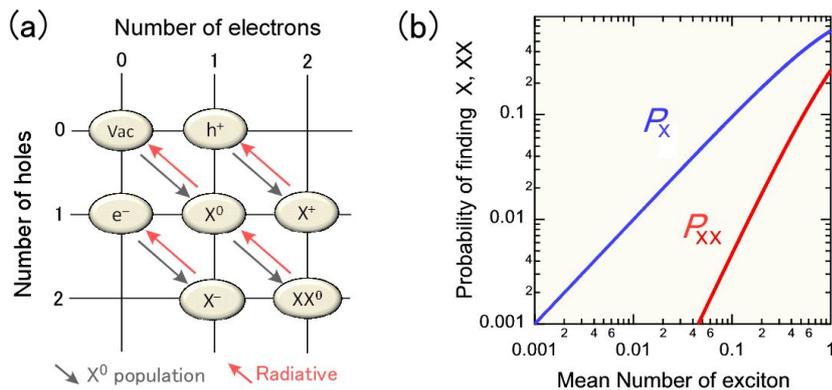


図 2.1: (a) 単一量子ドット内で形成される励起子種. (b) ポアソン統計を仮定した励起子・励起子分子の分布確率.

また励起子・励起子分子はその荷電状態に関わらず、励起強度に対して 1 乗・2 乗比例の発光強度を示すことが知られる。図 2.1(b) は単一 QD 内の  $X$ ,  $XX$  存在確率を励起強度の依存性として

ロットしたものである。励起によって生成した電子・正孔対は、以下で記述されるポアソン統計に従って QD へ供給される<sup>1)</sup>。

$$P_{\bar{N}}(n) = \exp(-\bar{N}) \frac{\bar{N}^n}{n!} \quad (2.1)$$

ここで  $N$  は平均励起子数である。したがって QDs 内で X、XX が形成される確率は次式で記述される。

$$\begin{aligned} P_X &= \sum_{n \geq 1} P_{\bar{N}}(n) = 1 - \exp(-\bar{N}) \\ P_{XX} &= \sum_{n \geq 2} P_{\bar{N}}(n) = 1 - \exp(-\bar{N})(1 + \bar{N}) \end{aligned} \quad (2.2)$$

上式は X が形成された後の X の供給は無視しており、弱励起やパルス励起時に適用されることを補足しておく。図より  $P_X$ ,  $P_{XX}$  は励起強度に対して 1 乗, 2 乗比例して増加していくことが分かり、この調査は発光起源同定の最もポピュラーな手法としてよく使用される。 $N$  の増加に伴って確率は飽和傾向を示すが、これは励起子分布が高次の準位 (励起準位) で起こるためである。

また各励起子複合体はクローン相互作用分だけ安定な束縛状態であるが、その結合エネルギーは構成キャリアによって異なる。よって観測される発光は全て異なったエネルギーを持ち、この観点からも発光起源の同定が可能である。結合エネルギーは  $X^0$  のエネルギー  $E_{X^0}$  を基準として次式で表される。

$$\begin{aligned} B_{X^{+(-)}} &= E_X + E_{h^{+(e^-)}} - E_{X^{+(-)}} \\ B_{XX^0} &= 2E_X - E_{XX^0} \end{aligned} \quad (2.3)$$

ここで  $E_{h^{+(e^-)}}$ ,  $E_{X^{+(-)}}$ ,  $E_{XX^0}$  はそれぞれ  $h^{+(e^-)}$ ,  $X^{+(-)}$ ,  $XX^0$  状態のエネルギーを指す。この中でも  $X^-$  では有効質量の小さい電子は QD 内に局在しにくいいため電子・電子の反発よりも電子・正孔間のクーロン引力の方が強く、 $B_{X^-} > 0$  の安定な状態になる。対して  $X^+$ ,  $XX^0$  では QD サイズや材料系により大きさや正負が変化するが、一般的な観測例としては  $B_{X^+} < 0$ ,  $B_{XX^0} > 0$  である。

### 2.1.2 交換相互作用

ここでは  $X^0$  の電子・正孔間に起こる交換相互作用とそれによって引き起こされる FSS について説明し、各励起子種の偏光状態について記述する。

$X^0$  を構成する電子のスピンの状態はヘテロ構造の成長方向 ( $z$  方向) に電子  $|\pm 1/2\rangle$  であり、正孔 (重い正孔 heavy hole: HH の場合) は  $|\pm 3/2\rangle$  を取る。正孔には軽い正孔 (light hole: LH) も存在するが、LH と HH とは通常数十 meV 程度のエネルギー差を持っており、後述の微細構造分裂に比べて非常に大きいので LH は無視でき、以降においても正孔は HH を指すこととする。電子スピンを  $|\uparrow\downarrow\rangle$ 、正孔スピンを  $|\uparrow\downarrow\rangle$  で表すと、 $X^0$  状態は  $|\uparrow\uparrow\rangle, |\downarrow\downarrow\rangle, |\uparrow\downarrow\rangle, |\downarrow\uparrow\rangle$  の 4 つを取り得る。全スピンは  $|\pm 2\rangle, |\pm 1\rangle$  であり、前者は暗い励起子 (dark exciton)、後者は明るい励起子 (bright exciton) である。零磁場中にて通常観測されるのは光学的に活性な  $|\pm 1\rangle$  である。4 つの励起子状態より電子・正孔間に交換相互作用が生じるが、電子のスピン演算子を  $S_e$ 、正孔のスピン演算子を  $J_h$ 、スピン間結合定数を  $a$ ,  $b$  としたとき交換相互作用のハミルトニアンは、

$$\hat{H}_{exchange} = - \sum_{i=x,y,z} (a_i J_{h,i} S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 S_{e,i}) \quad (2.4)$$

と表せる。また4つのスピン固有値を用いて、励起子状態を  $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$  基底とした場合、ハミルトニアンを行列表記で書き直すと、

$$\hat{H}_{exchange} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

と表せる。但し  $\delta_0 = \frac{3}{2}(a_z + \frac{9}{4}b_z)$ ,  $\delta = \frac{3}{4}(b_x - b_y)$ ,  $\delta = \frac{3}{4}(b_x + b_y)$  である。上式より  $|\pm 2\rangle$  と  $|\pm 1\rangle$  は混ざらず、 $\delta_0$  のエネルギー差があることが分かる。明るい励起子の基底  $|\pm 1\rangle$  を考えると、非対角成分  $\delta_1 \neq 0$  によって  $|\pm 2\rangle$  と  $|\pm 1\rangle$  は混ざり、固有値は  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle \pm |-1\rangle)$  となる。エネルギー固有状態の2つの分裂が FSS であり、放出される光子は右回り円偏光  $|R\rangle$  と左回り円偏光  $|L\rangle$  の重ね合わせ、垂直偏光  $|V\rangle$  もしくは水平偏光  $|H\rangle$  となる。V、H 成分の光子のエネルギーは FSS に相当するエネルギー差を持ち、(100) 成長基板上で形成される  $C_{2v}$  対称性 ( $b_x \neq b_y$ ) の QDs では一般に数十  $\mu\text{eV}$  程度の FSS が観測される。また  $XX^0$  のスピン状態はパウリの排他律により  $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle$  となり、全電子スピン、全正孔スピンは共に 0 で交換相互作用は生じないが、終状態が  $X^0$  準位であるため発光エネルギーは分裂する。一方、式 (2.5) における  $\delta_1 = 0$  すなわち  $b_x = b_y$  では、固有値はそれぞれ  $|+1\rangle, |-1\rangle$  と独立になり放出される光子は  $|R\rangle$  と  $|L\rangle$  である。

正の荷電励起子  $X^+$  の場合、正孔のスピン  $|\pm 3/2\rangle$  は全正孔スピンの 0 となり交換相互作用は生じない。  $X^-$  も同様であり、  $X^\pm$  光子はエネルギー分裂を持たず、その偏光状態は (理想的には) 円偏光である。

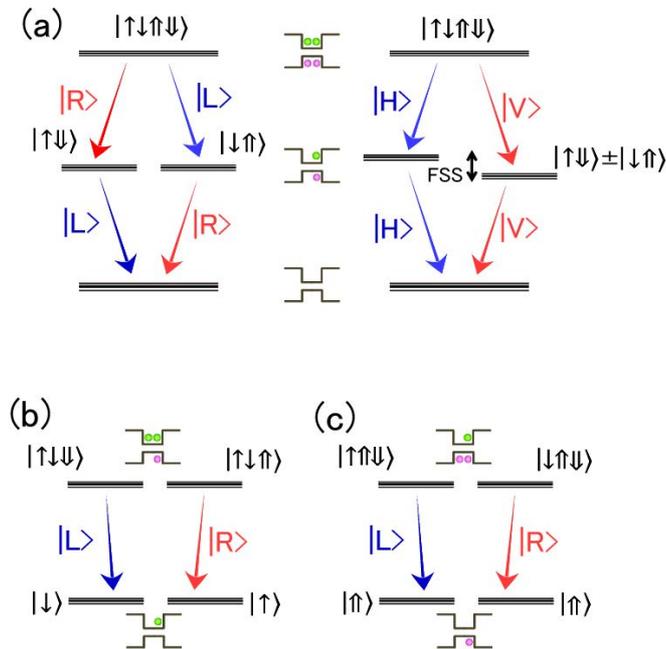


図 2.2: 各励起子種における遷移の様子.

## 参考文献

- 1) T. Kuroda, T. Belhadj, M. Abbarchi, Mastrandrea, M. Gurioli, T. Mano, N. Ikeda, Y. Sugimoto, K. Asakawa, N. Koguchi, K. Sakoda, B. Urbaszek, Amand, and X. Marie, "Bunching visibility for correlated photons from single GaAs quantum dots", Phys. Rev. B **79**, 025330 (2009).

### 3 試料作製および量子ドット発光の効率評価

本章では試料を作製し、量子ドット発光効率について評価する。本研究で使用する試料は S-K モードで成長した InAs/GaAs 量子ドットと、液滴エピタキシー法で成長した GaAs/AlGaAs 量子ドットであるが、後者は 6 章で説明することとし、ここでは前者についてのみ記載する。作製した量子ドットはピラー形成・埋め込み工程といったプロセスを経て金属反射鏡光学構造へと加工しており、その手順や作製精度について述べる。次に光学評価で用いた測定系の概略について紹介し、分光の基本原理を説明する。最後に実際の作製試料を用いて量子ドット発光を測定し、単一量子ドットの選別および発光効率の評価を行う。

#### 3.1 試料作製

##### 3.1.1 自己形成量子ドットの創製

一般に自己形成量子ドットは固体表面上に薄膜を成長させるエピタキシー法によって作製される。結晶成長には超高真空 ( $<10^{-7}$  Pa) 中に成長基板を置き、堆積させる物質を別々の容器に入れて加熱し、蒸発昇華により分子線として基板上に供給する分子線エピタキシー (Molecular Beam Epitaxy: MBE) 手法を用いた。MBE 法は成長速度が比較的遅く、また原料供給のシャッター制御による流量調整が容易であるため、数 Å オーダーの 1 分子層レベルでの成長制御が可能である。また成長時には反射高速電子回折 (Reflection High Energy Electron Diffraction: RHEED) を用いて表面その場観察を行い、成長速度の目安とした<sup>1)</sup>。

S-K モードではヘテロ構造の格子不整合によるエネルギー歪を利用し、量子ドットを形成させる。成長初期段階で成長膜が薄い場合は歪エネルギーは小さく層状成長であるが、ある臨界膜を超えた途端、歪緩和が生じ三次元島状成長に移行する。従って結果として初期段階で形成される二次元成長層 (濡れ層 Wetting Layer: WL) と歪緩和による三次元島状成長層 (QDs) とが形成される。以下、成長手順について説明する。

560 °C で表面クリーニング (酸化膜除去) を行った (100)GaAs 基板の上に GaAs バッファ層を 100 nm 形成させた後、560 °C で In と As を照射し、S-K 量子ドットを自己形成させた。最後に GaAs キャップ層を 50 nm 堆積させ、表面観察用に量子ドットを再形成させた。図 3.1 は作製した量子ドットの原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscopy: AFM) 像である。面密度約  $3.5 \times 10^9$  cm<sup>-2</sup>、ドットサイズは面内半径平均 50 nm、高さ 4.5 nm 程度であった。

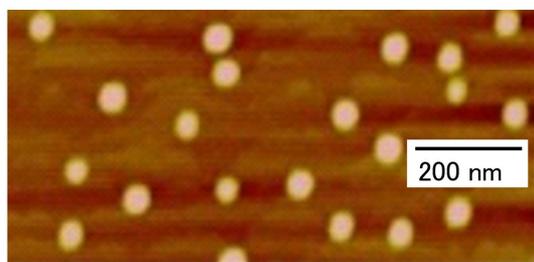


図 3.1: Stranski-Krastanov 成長モードで自己形成した InAs 量子ドット。

### 3.1.2 金属埋め込み微細加工

量子ドットの面密度  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  オーダーに対して励起光のスポットサイズは  $\sim 2 \mu\text{m}$  であり、as-grown 試料において観測にかかる QDs は  $10^2 \sim 10^3$  個程度である (詳細は次節参照)。そのため単一 QD 分光には一般に数百 nm 程度のマスク開口部形成<sup>2-4)</sup> や SIL の使用<sup>5-7)</sup>、ピラー状の構造作製<sup>8-10)</sup> といった空間的選別が必要である。本研究ではピラー構造によって QD 数を制限し、更に構造を金属で埋め込むことで取り出し効率向上を図った。またプロセス時における試料の表面像は走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) を用いて観察・評価した。

図 3.2 にピラー構造作製から金属埋め込みまでの加工手順を示す。(a) 電子ビーム (Electron Beam; EB) 描画およびドライエッチングによってピラー構造を作製後、 $\text{SiO}_2$  を蒸着し (5 nm)、シランカップリング剤を塗布する。この堆積は工程 (d) の GaAs 基板剥離を円滑に行うためのものであり、 $\text{SiO}_2$  層とシランカップリング剤 ( $\text{CH}_3$ ) とは共有結合で強く結合する。(b) ピラーを全て覆うように金属を真空蒸着により堆積させる。金属は InAs 量子ドットの発光波長 ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ) で反射率の高い Ag を使用した。(c) 金属表面にガラス基板を貼り付けた後、(d) GaAs 基板を回転応力によって剥離させる。この際、金属とシランカップリング剤とは疎水性の炭化水素基による比較的弱い密着であり、結果としてピラーは根元で劈開を起こす。従って金属膜内部にピラーが埋め込まれた構造となる (この工程を転写と呼ぶ)。

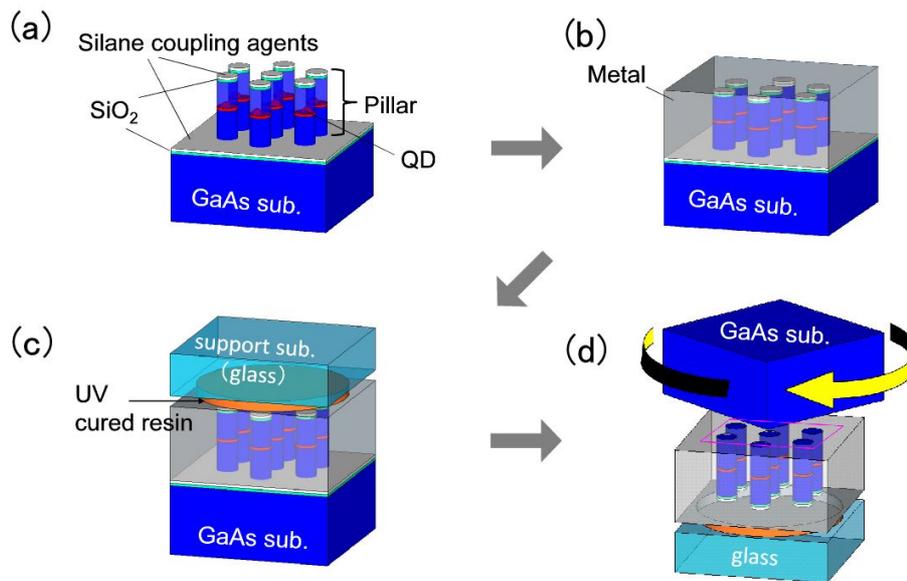


図 3.2: 金属埋め込みピラー加工の手順.

図 3.3 に (a) ピラー構造と (b) 金属埋め込みピラー構造それぞれの表面 SEM 像を示す。直径 500 nm、高さ 700 nm のピラーがピッチ  $2 \mu\text{m}$  毎に整列しており、それぞれ 5 度程度の傾斜を持つ。また (b) では各ピラーが金属表面上で見られ、金属膜へ転写されていることが分かる。埋め込み工程における転写成功率 (作製歩留) は 70% 程度であり、同試料内では多くの領域で良好な表面が観測された。残り 30% の領域は特に試料の端部であり、GaAs 基板除去時における不均一な回転応力によって金属表面荒れやピラーの転写失敗が見受けられた。しかしこれらは GaAs 除去の工程をエッチングに変えることで改善可能である。特に  $\text{Cl}_2$  ガスを用いた誘導結合型反応性イオンエッチング

(Inductive Coupled Plasma-Reactive Ion Etching : ICP-RIE) ではエッチングが GaAs/SiO<sub>2</sub> 界面で停止するため、より良質な埋め込み表面および作製歩留が期待される。これら改善やその他微細加工の詳細については文献<sup>7, 11-13)</sup>を参照いただきたい。なお示した SEM 像は表面観察用に作製した試料を用いており各ピラーのピッチは 2 μm であるが、実際の光学評価には 10 μm ピッチのものを使用した。

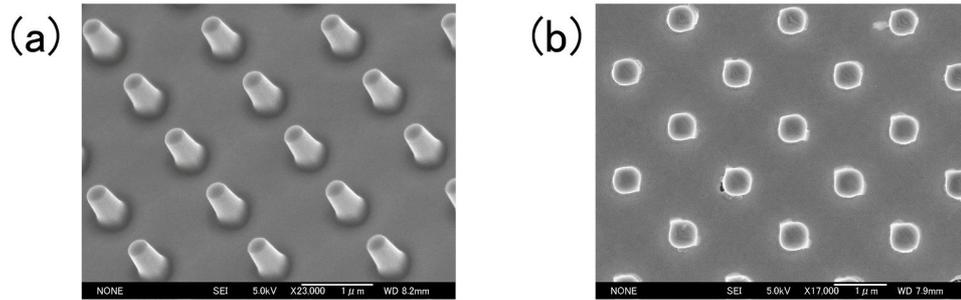


図 3.3: (a) ピラー構造, (b) 金属埋め込みピラー構造の表面 SEM 像.

### 3.2 光学測定系の概略

ここでは本研究の光学評価に用いた測定系について説明する。図 3.4 に測定系の概略図を示す。2つの測定系を使用しており、一部を除き全て自由空間中の計測である。双方ともに  $\mu$ -PL と 2次光子相関関数の測定に使用しているが、用途が少し異なる。(a) は単一 QD のダイナミクスや発光効率、光子純度を評価するための系で 3 章・4 章・5 章にて使用した。対して (b) は微小な FSS の調査や偏光相関の評価に使用しており、6 章で使用したものである。以下それぞれに分けて説明する。

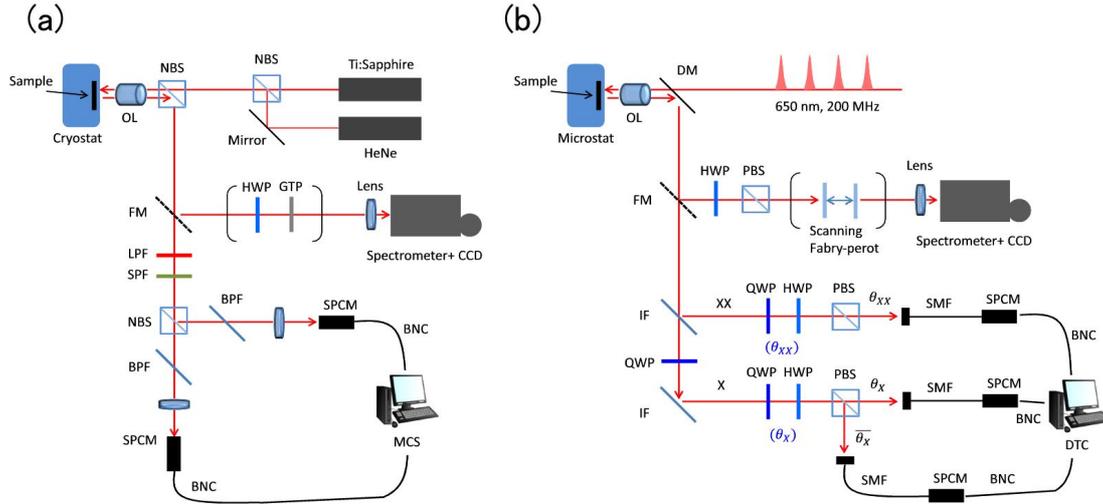


図 3.4: 光学測定系の概略図.

(a)

励起光源は HeNe レーザ (波長 633 nm, SIGMAKOKI 社製) もしくは波長可変チタンサファイア (Ti:Sapphire) レーザ (波長 700 ~ 960 nm, COHERENT 社製) であり、前者は主に単一 QD の選別作業用に、後者はより詳細な発光特性評価に使用した。Ti:Sa レーザは連続波 (CW) とモードロックパルス (パルス幅 ~ 5 ps, 周波数 76 MHz) を用いており、それぞれ用途に応じて使い分けた。励起光は開口数 (Numerical Aperture : NA)=0.42 の対物レンズ (Objective Lens : OL 焦点距離 10 mm, 有効瞳径 ~5 mm) で集光させ、電子冷凍機で 20 K に冷却した試料を光励起した。励起の集光サイズ (直径  $d$ ) は次式の Reyleigh の分解能から求められる。

$$d = \frac{1.22\lambda f}{D} \quad (3.1)$$

ここで  $\lambda$ ,  $f$ ,  $D$  はそれぞれ入射波長, 焦点距離, 有効直径である。使用するレーザ波長を考慮すると  $2 \mu\text{m}$  程度と、前節で作製したピラーのピッチ  $10 \mu\text{m}$  より十分小さいため、単一ピラーを狙った励起が可能である。試料からの発光は OL 透過、50/50 の無偏光ビームスプリッタ (NBS) 反射によって、入射励起光と光軸を変えて検出器へと導いた。フリップミラー (FM) で反射配置では焦点距離 0.64 m, 回折格子 1800 grooves/mm のトリプル分光器 (HORIBA 社製 T64000) で分散し、シリコン液体窒素冷却電荷結合素子 (Charge Coupled Device : CCD) 検出器でスペクトル計測を行った。分光器前の集光レンズにより発光を  $30 \mu\text{m}$  程度まで集光し、スリット  $20 \mu\text{m}$  を経由して分光器内へと導いた。エネルギー分解能は差分モードで  $15 \mu\text{eV}$ 、加分散モードで  $5 \mu\text{eV}$  程度で

ある。また偏光の調査では 1/2 波長板 (HWP) と直線偏光子 (LP) を光軸上に挿入し、検出偏光角を選択した。1/2 波長板における結晶光学弾性軸の回転角  $\theta$  に対する操作  $H(\theta)$  は Jones-Matrix を用いて以下で表される。

$$H(\theta) = \begin{pmatrix} \cos 2\theta & \sin 2\theta \\ \sin 2\theta & -\cos 2\theta \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

但し  $|V\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ ,  $|H\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$  である。また垂直偏光  $|V\rangle$  を通す直線偏光子の作用は、

$$|V\rangle\langle V| = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

で表される。これらを用いると V 偏光成分  $\alpha$  と H 偏光成分  $\beta$  に対する 1/2 波長板と直線偏光子の操作は次式で記述される。

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos 2\theta & \sin 2\theta \\ \sin 2\theta & -\cos 2\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha \\ \beta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha \cos 2\theta + \beta \sin 2\theta \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

上式から任意の直線偏光成分の選択検出が可能であることが分かる。

また FM の透過配置の系は 2 次の光子相関関数の計測に使用した Hanbury-Brown and Twiss (HBT) 測定系<sup>15)</sup> である。長波長透過フィルタ (LPF, 朝日分光社製/Thorlabs 社製) と短波長透過フィルタ (SPF, Thorlabs 社製) を併用して励起レーザの反射光や他 QDs 発光を抑制した後、50/50 NBS で発光を 2 つの方向に分けた。その後、透過線幅 0.5 nm の波長可変狭帯域バンドパスフィルタ (BPF, Optoquest 社製) を用いて各経路で波長選別を行い、2 つのシリコン単一光子検出器 (SPCM, EXCELITAS (旧 PerkinElmer) 社製) で受光した。自由空間での結合効率は 90 % 以上、検出効率  $\sim 25\%$  (@ 950 nm)<sup>16)</sup> であり、暗計数は  $\sim 100$  cps である。受光した光は SPCM (start, stop) で TTL パルスに変換され、Multi-channel Scaler (MCS) にて同時計数として計測される。stop 検出の遅延時間  $\tau$  における同時計数  $C(\tau)$  はそれぞれの検出時間  $t_{start}$ ,  $t_{stop}$  に対して以下で与えられる。

$$C(\tau) = C(\tau_{stop} - t_{start}) \quad (3.5)$$

またここで 2 次光子相関関数  $g^{(2)}(\tau)$  は同時計数  $C(\tau)$  を用いて次式で記述される<sup>17)</sup>。

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{C(\tau)}{C(\tau = \infty)} \quad (3.6)$$

本研究では  $\tau \sim 200$  ns での同時計数値を用いて規格化し、 $g^{(2)}(\tau)$  を表す。同時計数の計測時間は 1 ~ 10 時間程度であり、時間ビンングは 0.1 ns/pixel である。また本研究における相関関数の評価および解析は全て測定系の時間応答  $\sim 1$  ns を考慮したものである。

(b)

励起光としてピコ秒半導体パルスレーザ (波長 640 nm, パルス幅  $\sim 80$  ps, 周波数 200 MHz, INDECO 社製) を用い、液体ヘリウム循環式マイクロスタットで 10 K に冷却された試料を光励起した。単一 QD 分光は NA=0.75 の対物レンズを用いており、励起スポット径  $\sim 0.8$   $\mu\text{m}$  である。発光を HWP と偏光ビームスプリッタ (PBS) で偏光選択後、焦点距離 0.75 m  $\cdot$  回折格子 1000 grooves/mm のダブル分光器 (ACTON 社製 SP2750) と Si-CCD でスペクトルを取得した。分光器のエネルギー分解能は 30  $\mu\text{eV}$  程度であるが、掃引型ファブリペロー干渉系 (scanning Fabry-Pérot interferometer)

を挿入して分解能向上を図った。ファブリペローでは図の様に2枚の平面反射鏡を挿入し、透過する共振周波数成分のみを計測する。共振器内の媒質の屈折率を  $n$ 、入射光の屈折角を  $\theta$ 、共振器長を  $l$ 、真空中の光速を  $c_0$  とすると共振周波数  $f_m$  は、

$$f_m = \frac{mc_0}{2nl \cos \theta} \quad (3.7)$$

で表される。ここで  $m$  は任意の整数 (次数) である。従って共振モードはローレンツ形状の周波数特性が羅列した形状となる。上式より共振周波数の間隔  $f_{m+1} - f_m$  は

$$\Delta f_m = \frac{c_0}{2nl \cos \theta} \quad (3.8)$$

となる。空気の屈折率および入射光の屈折角はほぼ  $n = 1, \theta = 0$  であることから  $\Delta f_m$  は共振器長  $l$  によって一意に決まる因子であり、Free Spectral Range (FSR) と呼ばれる。また共振周波数特性の線幅 (FWHM) は、

$$\Delta f_{cav} = \frac{c_0}{\pi nl \cos \theta \sqrt{C}} \quad (3.9)$$

但し、

$$C = \frac{4R}{(1-R)^2} \quad (3.10)$$

で与えられる<sup>18)</sup>。ここで  $R$  はミラーの反射率である。従って共振モードの線幅は使用する反射鏡の特性によって決まり、 $\Delta f_{cav}$  と  $\Delta f_m$  との比

$$F = \frac{\Delta f_m}{\Delta f_{cav}} = \frac{\pi \sqrt{C}}{2} \quad (3.11)$$

をフィネス (Finesse) と呼ぶ。使用した干渉系のフィネスは  $F = 10$  であり、また反射鏡の間隔  $l$  を掃引することで FSR を可変にして測定を行った。 $l$  は最大 6 mm であり、その場合のエネルギー分解能 (共振線幅) は約  $4 \mu\text{eV}$  である。

FM 透過配置では偏光相関測定系であり  $XX^0$ - $X^0$  光子対もつれ評価にて使用した。 $XX^0$  輝線と  $X^0$  輝線は反射型体積ブラッググレーティング (OptiGrate 社製) を用いてフィルタリング幅  $\sim 0.2$  nm で波長選別した。その後、 $1/2$  波長板・ $1/4$  波長板 (QWP) および偏光ビームスプリッタ (PBS) で偏光選択 ( $\theta_{XX}, \theta_X$ ) を行った後、シングルモードファイバ (SMF) に結合させた。ここで  $\theta_X$  側の1つ目の QWP はグレーティング透過後に生じる偏光崩れの補正用として使用したものである。また  $X^0$  輝線の PBS 経由後では  $\theta_X$  と直交する偏光  $\overline{\theta_X}$  を使用し、測定の効率化を図った。それぞれの SMF を SPCM に接続し、変換された TTL パルスを時間デジタル変換器 (TDC) を用いて偏光相関関数を測定した。start 信号  $\theta_{XX}$  に対して、stop 信号は  $\theta_X$  と  $\overline{\theta_X}$  であり、2つの同時計数が計測される。測定における主な積算時間は 10 ~ 40 分、時間ビンングは  $0.128 \text{ ns/pixel}$  であり、測定系の応答時間は  $\sim 0.7 \text{ ns}$  である。

またここで HWP、QWP を用いた検出偏光の選択について考える。 $1/4$  波長板の作用  $Q(\theta)$  は結晶軸の回転角  $\theta$  を用いて以下で表される。

$$Q(\theta) = \begin{pmatrix} e^{i\frac{\pi}{4}} \cos^2 \theta + e^{-i\frac{\pi}{4}} \sin^2 \theta & \frac{1}{\sqrt{2}} i \sin 2\theta \\ \frac{1}{\sqrt{2}} i \sin 2\theta & e^{i\frac{\pi}{4}} \sin^2 \theta + e^{-i\frac{\pi}{4}} \cos^2 \theta \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

特に  $\theta = \pm\pi/4$  では、

$$Q(\pm\pi/4) = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & \pm \frac{1}{\sqrt{2}} i \\ \pm \frac{1}{\sqrt{2}} i & \frac{1}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

となる。例えばの QWP の回転角  $\theta = +\pi/4$  として H 偏光成分を透過する PBS を介した場合には R 偏光成分のみが抽出され、逆に  $\theta = -\pi/4$  では L 偏光成分のみが抽出される。図 3.5 に HWP と QWP を用いた偏光選択スキャンの様子を示す。任意の偏光状態  $\alpha|V\rangle + e^{i\phi}\beta|H\rangle$  は V, H, D, A, R, L を極点とするポアンカレ球上で表現されるが、(a) QWP 作用なし ( $\theta_{\text{QWP}}=0$ ) での HWP 回転によるスキャンでは直線偏光面上の全ての偏光状態が選択可能である。また (b) は HWP 作用なし ( $\theta_{\text{HWP}}=0$ ) における QWP 回転による偏光スキャンであり、R, L, V, H 面上で表される偏光状態の選択が可能である。HWP 回転角と QWP 回転角との組み合わせで全球面上の掃引が可能であるが、本研究で用いた偏光スキャンは (a) と (b) である。

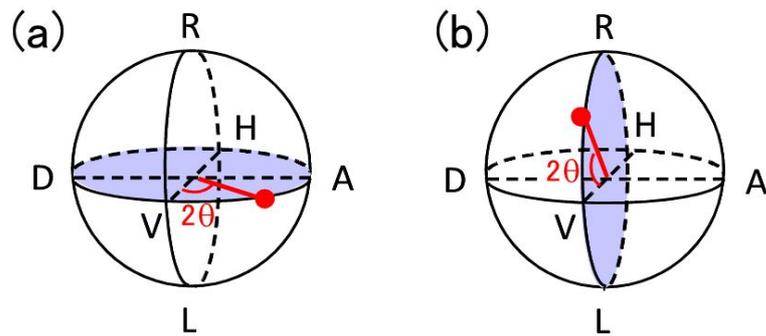


図 3.5: HWP と QWP を用いたポアンカレ球面上の偏光選択. (a) は  $\theta_{\text{QWP}}=0$  における HWP の光軸回転, (b) は  $\theta_{\text{HWP}}=0$  における QWP の光軸回転に相当.

### 3.3 量子ドット発光の効率評価

#### 3.3.1 金属埋め込みによる発光増強

次に作製した試料を用いて光学評価を行い、量子ドットの発光特性やその効率について検討する。図 3.6 は単一ピラー構造からの典型的な発光スペクトルである。励起光は HeNe レーザであり、ピラー直径は  $\phi=500$  nm である。QDs 密度  $\sim 3.5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  を考慮すると 1 つのピラー内に存在する QDs は 7~8 個程度と考えられる。また高次の準位 (励起準位) からの影響を避けるため比較的弱励起 ( $\sim 200$  nW) 条件下での測定結果である。基底準位からの  $\delta$  関数状の離散的輝線が見受けられ、特に高エネルギー側  $\sim 1.30$  eV の領域ではエネルギー的に良く分離した単一 QD 発光が観測される。単一 QD 発光の励起子起源同定は 4 章で述べることとし、ここでは発光強度に着目して評価する。

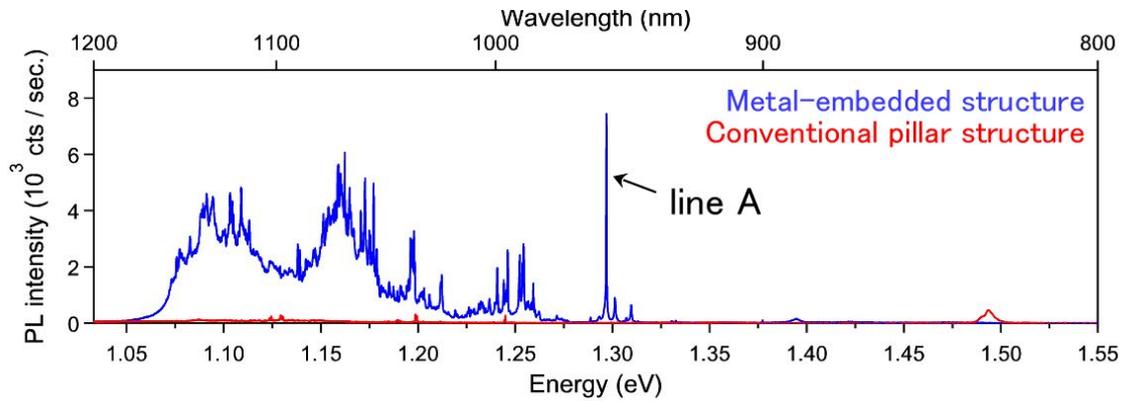


図 3.6: 単一金属埋め込みピラー構造 (青線), 通常ピラー構造 (赤線) からの発光スペクトル. ピラー構造と比べて金属埋め込み構造では発光強度の大幅な増大が観測された. また line A は光子取り出し効率評価で用いた輝線である (次節参照).

図の赤線と青線はそれぞれ通常ピラー構造、金属埋め込みピラー構造からの発光スペクトルであるが、それらスペクトル強度を比較すると大きく異なっており、金属埋め込み構造では大幅な強度増大が見られる。補足として 2 つの試料は同一の成長膜を用いて作製したものであり、作成時における差異は埋め込み加工プロセスのみである。ここで、観測されるスペクトル強度は内部量子効率 (励起効率)、外部量子効率 (光子取り出し効率)、測定系の透過効率、検出器の量子効率をそれぞれ  $\eta_{int}$ ,  $\eta_{ext}$ ,  $\eta_{trans}$ ,  $\eta_{det}$  として次式で表される。

$$I_{QD} = \frac{1}{\tau_X} \cdot \eta_{int} \cdot \eta_{ext} \cdot \eta_{trans} \cdot \eta_{det} \quad (3.14)$$

励起子発光レートは通常  $1/\tau_X \sim 1$  GHz であり、パーセル効果による光学遷移レートの増大がないものとする同一測定系で生じる強度差は励起効率と取り出し効率によるものである。また図 3.7(a) は 2 つの構造における単一発光輝線に着目し、励起光の強度を変えて測定したものであり (使用したピラーは図 3.6 とは異なる)、(b) は輝線 B, C の積分強度をプロットしたものである。なお積分強度は発光線幅に相当する CCD pixel 内で計測されるカウント/秒 (cps) に相当する。図から分かる様に励起子発光は励起強度に比例して強度増大していくが、ある励起強度を超えるとその発光強度は飽和傾向を示す。これは単一 QD で生成される平均励起子数が 1 を超え、励起子分子や

励起準位の分布確率が増大していくためである。従って強度飽和領域での比較は実効的な励起強度 ( $= \eta_{int}$ ) が等価であることに相当し、取り出し効率のみで議論できる。測定結果における双方の飽和強度を比べてみると金属埋め込み構造による強度増大は約 20 倍と、明瞭な効率向上が伺える。これはピラー構造における半導体/空気界面での全反射によって生じる光子損失が、金属反射鏡の導入によって大幅に改善されたことを示唆している。

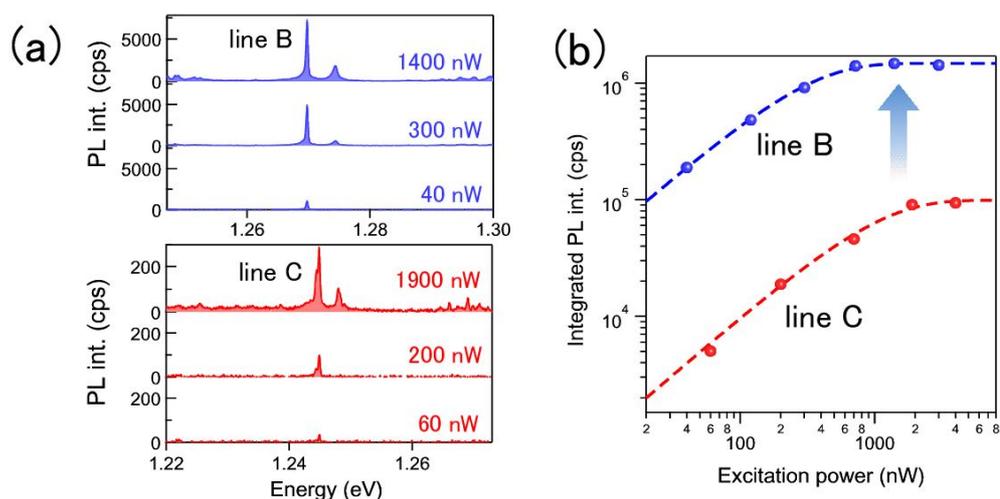


図 3.7: 金属埋め込み構造 (青) と通常ピラー構造 (赤) における単一 QD 発光の励起強度依存性. (b) では輝線 B, C に着目し積分強度をプロットした. 金属埋め込みによる 1 桁以上の強度増大が明らかである. なお励起強度は対物レンズ入射前での計測値である.

### 3.3.2 光子取り出し効率の評価

前節では金属埋め込み構造導入による大幅な発光増強が確認され、光子取り出し効率の改善について検討した。本節ではその効率の定量的評価を行う。一般に光子取り出し効率はパルス励起下での単一 QD 発光および 2 次の光子自己相関関数を用いて見積もられる<sup>19-21)</sup>。ここではまず初めにパルス励起下における  $g^{(2)}(\tau)$  について考え、実際の計測結果を評価する。そしてそれら結果を用いて光子取り出し効率の定量値を算出する。

パルス励起時における  $g^{(2)}(\tau)$  の簡単な例として古典的な光源を考え、1 つの励起パルスで生成した複数の  $X^0$  光子を仮定する。図 3.8 に模式図を示した。

(a) は start で検出される  $X^0$  光子から見た  $g^{(2)}(\tau)$  であり、正の遅延時間  $\tau \geq 0$  に相当する。検出時間  $t$  から  $\tau$  だけずれた時刻における stop 光子の光子統計は  $\exp(-\frac{\tau-t}{\tau_X})$  であるため、 $\langle I(t)I(t+\tau) \rangle = \exp(-\frac{\tau}{\tau_X})$  である。反対に (b) では stop で検出される  $X^0$  光子から見た  $g^{(2)}(\tau)$  であり、 $\langle I(t)I(t-\tau) \rangle = \exp(-\frac{\tau}{\tau_X})$  となる。従って  $g^{(2)}(\tau)$  は次式で表される。

$$g^{(2)}(\tau) = \exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_X}\right) \quad (3.15)$$

これは 1 回のパルス励起のものであり、励起パルスの周波数  $1/T_{rep}$  を考慮すると、

$$g^{(2)}(\tau) = N^{-1} \sum_n \exp\left(-\frac{|\tau - n \cdot T_{rep}|}{\tau_X}\right) \quad (3.16)$$

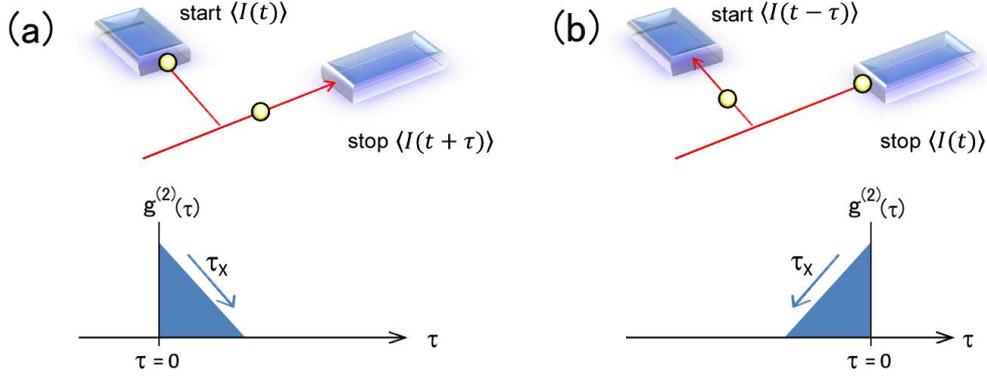


図 3.8: パルス励起時における (a)  $\tau \geq 0$ , (b)  $\tau \leq 0$  での相関関数. 光源は古典光源を仮定した.

となる。ここで  $N$  は規格化定数である。しかし理想的な単一光源では  $n = 0$  における同時計数は計測されない。従って上式における  $n = 0$  の同時計数を除いた  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  を定義する。

$$\tilde{g}^{(2)}(\tau) \equiv N^{-1} \left\{ \alpha_0 \exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_X}\right) + \sum_{n \neq 0} \alpha_n \exp\left(-\frac{|\tau - n \cdot T_{rep}|}{\tau_X}\right) \right\} \quad (3.17)$$

ここで  $\alpha_{n \neq 0} = 1$  であり、 $\alpha_0$  は多光子発生による寄与 ( $0 \leq \alpha_0 \leq 1$ ) である。上式は単一光子源の光子統計評価法として広く使用されており<sup>22-24)</sup>、 $g^{(2)}(0)$  算出の重要な要素である。この光子統計の評価については5章でより詳しく議論する。

図 3.9(a) に測定によって得られた 2 次自己相関関数を示す。励起光は波長 800 nm の 76 MHz パルスレーザであり、発光は前節で示した図 3.6 の輝線 A を用いた。また励起パルスの幅  $\sim 5$  ps と比べて励起子寿命は十分長いため、励起子発光後に再度励起子分布が生じる再励起の寄与は無視できる条件である。加えて各パルスの間隔  $T_{rep} \sim 13.2$  ns は励起子発光寿命  $\tau \sim 1$  ns と比べて十分長く、各励起および発光イベントは独立なものと思なされる。結果から分かる様にそれぞれの計数ピークは  $\tau_X$  の減衰スローブを持ち、 $T_{rep}$  毎に羅列した形状を取る。また  $\tau = 0$  に着目してみると同時計数の強い抑制 (光子アンチバンチング) が見られ、単一光子源としての駆動が確認される。赤線は式 (3.17) を用い、励起周波数  $1/T_{rep} = 76$  MHz を考慮したシミュレーション結果であり、使用パラメータは  $\tau_X = 0.9$  ns,  $\alpha_0 = 0.07$  である。実験結果はシミュレーションによって良く再現されていることが分かる。なお測定には SPCM 暗計数によって生じる偶発的的同时計数が含まれておりシミュレーションでその影響を考慮する必要があるが、シグナルのカウント約 34 kHz と比べて暗計数は  $\sim 100$  Hz と十分小さいため無視できるものとした。

図 3.9(b) の赤い三角は一方の SPCM で検出される光子カウントレートの励起強度依存性である。また青丸では各励起強度時において評価された  $g^{(2)}(0)$  値をプロットしたものであり、強励起時ほど光子の単一性が悪化していく様子が分かる。これは励起強度に上昇に伴い他 QDs やバリア層等からの無相関背景光子の影響が増加するためである。ここで、SPCM カウントレート  $I_{SPCM}$  のうち単一光子のみを含むカウントレート  $I_{SP}$  は多光子の寄与  $g^{(2)}(0)$  を用いて次式で記述される<sup>19)</sup>。

$$I_{SP} = I_{SPCM} \times \sqrt{1 - g^{(2)}(0)} \quad (3.18)$$

図 3.9(b) の黒丸は上式を用いて得られた単一光子カウントであり、背景光子の影響が  $g^{(2)}(0)$  によって良く補正され、強励起時において光子カウントが飽和していく様子が分かる。また黒破線は励起子分布確率  $P_X$  と飽和カウントレート  $I_{SPsat}$  を用いた次式によるフィットである。

$$I_{SP} = I_{SPsat} \times P_X = I_{SPsat} \times \{1 - \exp(-\bar{N})\} \quad (3.19)$$

ここで平均励起子数  $\bar{N}$  は励起強度に比例する因子として用いた。得られた  $I_{SPsat}$  は 69.8 kHz であり、これは 1 回のパルス励起イベントで生成される励起子発光が確率 1、即ち励起効率  $\eta_{int} = 1$  と十分見なされる条件下での単一光子カウントレートである<sup>25)</sup>

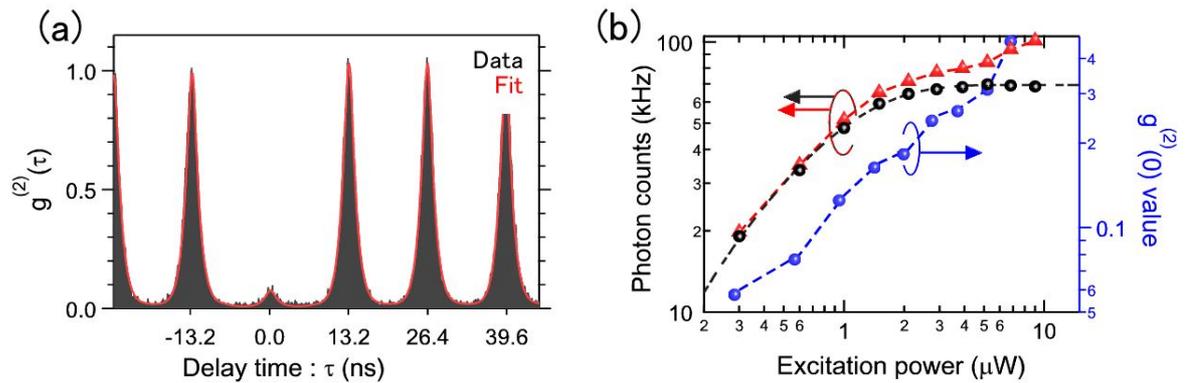


図 3.9: (a) 輝線 A に関する自己光子相関測定結果.  $\tau \sim 0$  における同時計数の強い抑制 (光子アンチバンチング) が明瞭に観測された. 赤線は式 (3.17) における  $\alpha_0 = 0.07$  を仮定したシミュレーション結果. (b) SPCM で検出される光子カウントレート (赤三角) と  $g^{(2)}(0)$  値を用いて見積もられた単一光子カウントレート (黒丸) を励起強度を関数としてプロットした. 励起強度  $4 \mu\text{W}$  以上における強度飽和が確認できる.

以上の考察を用いるとパルス励起下での単一光子飽和カウントレート  $I_{SPsat}$  は以下で記述される。

$$I_{SPsat} = \frac{1}{T_{rep}} \cdot \eta_{ext} \cdot \eta_{tras} \cdot \eta_{det} \quad (3.20)$$

上式より  $\eta_{trans}$  および  $\eta_{det}$  を用いると光子取り出し効率  $\eta_{ext}$  が評価されることが分かる。

ここで測定系の効率について評価する。使用した光学素子は BPF 2 枚 (透過率 0.19) と HPF および LPF×2 (透過率 0.72) であり、それら透過率は素子の挿入時と非挿入時でのスペクトル比較により見積もった。またその他の光学損失は対物レンズ + BS×2 + ミラー反射 + SPCM 集光レンズであり、950 nm のレーザを用いて強度透過率を計測したところ透過効率は 0.15 であった。よって測定系全体の透過効率は約 0.02 となる。また SPCM の量子効率は SPEC シート値<sup>16)</sup> より  $\sim 0.25$  (@950 nm) である。従って単一 QD の光子取り出し効率は、

$$\eta_{ext} = \frac{69.8 \times 10^3}{76 \times 10^6 \times 0.02 \times 0.25} \sim 0.18 \quad (3.21)$$

となる。

図 3.10 に幾つかの QDs を用いた  $\eta_{ext}$  評価結果を示す。赤印が金属埋め込み構造での効率であり、Ag と Ti を使用した場合についてプロットした。また青印では比較用としてバルク構造<sup>26)</sup>、ピラー構造<sup>27)</sup>での評価報告値を示した。評価結果より金属反射鏡の導入によって効率は大幅に改

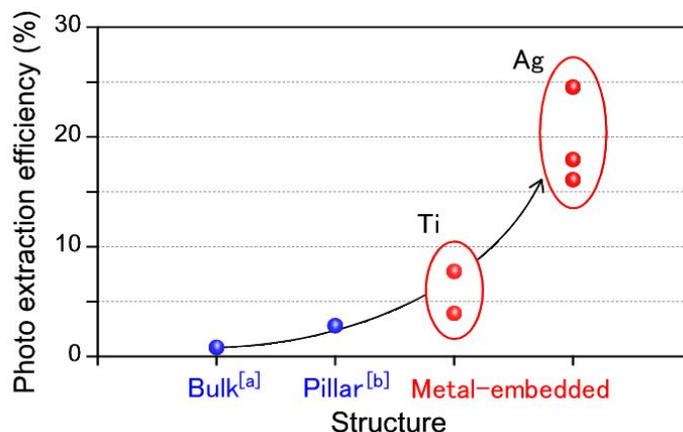


図 3.10: 金属埋め込み構造における光子取り出し効率の評価結果。金属は Ag の他, Ti も使用した。Ag の高い反射率により  $\eta_{ext}$  最大 25% が可能となった。また比較用としてバルク構造 [a]<sup>26)</sup>, ピラー構造 [b]<sup>27)</sup> の報告例も図示した。

善され、かつその向上は反射率の高い金属選択によってより一層明瞭になることが分かる。また Ag 使用時では、効率最大 25 % までの向上が確認された。これは金属埋め込みの転写工程における GaAs 基板除去をエッチングプロセスに変え、更にピラー構造を 24 度程度の傾斜を付けたコーン構造に変えることで得られた結果であり、サンプル表面平滑化による光子損失の低減や、空気中への光放射の指向性向上による効率改善であると考えられる<sup>28)</sup>。

## まとめ

本章では試料作製を行い、量子ドット発光効率についての評価を行った。

・ S-K モードで自己形成した InAs/GaAs 量子ドットを用いて金属埋め込みピラー構造へと微細加工を施した。単一量子ドットからの発光は通常ピラー構造を用いた場合と比較して、金属埋め込み加工により 20 倍程度もの大幅な強度増強を見せた。これは励起効率によるものではなく光子取り出し効率改善による増強であることを示した。

・ パルス励起下の 2 次光子自己相関測定では  $g^{(2)}(0)=0.07$  と古典限界 0.5 を大きく下回るアンチバンチングが観測された。また得られた  $g^{(2)}(0)$  を用いて補正された単一光子カウントレートはポアソン統計に従う励起子分布確率と良い一致を示し、内部量子効率  $\sim 1$  に相当する飽和カウントレートの算出を可能にした。

・ 上記で得られた結果を用いて光子取り出し効率  $\eta_{ext}$  を算出し、効率  $\sim 0.18$  を評価した。これは対物レンズに結合する光子の効率であり、バルク構造やピラー構造と比較すると大幅な効率向上である。また Ti を使用した場合との比較検討により反射率の高い Ag では数倍もの効率改善であることが明らかとなった。更にコーン構造を用いることで効率最大  $\eta_{ext} \sim 0.25$  までの改善が確認された。

以上得られた結果は金属反射鏡を導入することで量子ドットの光子取り出し効率が大幅に改善されることを示している。また今回使用した対物レンズの NA は 0.42 であり、計測にかかる光子はそれによる制限が大きいと考えられるが、構造の最適化による光放射指向性の改善や対物レンズ開口数の拡大といった工夫によってより一層の効率向上が期待される。

## 参考文献

- 1) B. A. Joyce and T. B. Joyce, "Basic studies of molecular beam epitaxy - past, present, and some future direction", J. Crystal Growth **264**, 605, (2004).
- 2) O. Moriwaki, Ta. Someya, K. Tachibana, S. Ishida, and Y. Arakawa, "Narrow photoluminescence peaks from localized states in InGaN quantum dot structures", Appl. Phys. Lett. **76**, 2361 (2000).
- 3) G. Bacher, H. Schömig, M. K. Welsch, S. Zaitsev, V. D. Kulakovskii, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, J. K. Furdyna, B. König, and W. Ossau, "Optical spectroscopy on individual CdSeOZnMnSe quantum dots", Appl. Phys. Lett. **79**, 524 (2001).
- 4) J. R. Guest, T. H. Stievater, X. Li, J. Cheng, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Ell, A. Thränhardt, G. Khitrova, and H. M. Gibbs, "Measurement of optical absorption by a single quantum dot exciton", Phys. Rev. B **65**, 241310(R) (2002).
- 5) V. Zwiller and G. Bjoörk, "Improved light extraction from emitters in high refractive index materials using solid immersion lenses", J. Appl. Phys. **92**, 660 (2002).

- 6) S. Moehl, H. Zhao, B. D. Don, S. Wachter, and H. Kalt, "Solid immersion lens-enhanced nano-photoluminescence: Principle and applications", *J. Appl. Phys.* **93**, 6265 (2003).
- 7) K. P. Hewaparakrama, A. Wilson, S. Mackowski, H. E. Jackson, L. M. Smith, G. Karczewski, and J. Kossut, "Subwavelength multichannel imaging using a solid immersion lens: Spectroscopy of excitons in single quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **85**, 5463 (2004).
- 8) T. Schmidt, R. J. Haug, K. v. Klitzing, A. Förster, and H. Lüth, "Spectroscopy of the Single-Particle States of a Quantum-Dot Molecule", *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1544 (1997).
- 9) E. Moreau, I. Robert, J. M. Gérard, I. Abram, L. Manin, and V. T.-Mieg, "Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities", *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2865 (2001).
- 10) R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields, I. Farrer, C. J. Lobo, D. A. Ritchie, M. L. Leadbeater, and M. Pepper, "Single-photon emission from exciton complexes in individual quantum dots", *Phys. Rev. B*, **64**, 201302(R) (2001).
- 11) J.-H. Huh, C. Hermannstädter, K. Akahane, H. Sasakura, N. A. Jahan, M. Sasaki, and I. Suemune, "Fabrication of metal embedded nano-cones for single quantum dot emission", *Jpn. J. Appl. Phys.* **50**, 06GG02 (2011).
- 12) H. Kumano, H. Nakajima, H. Iijima, S. Odashima, Y. Matsuo, K. Ijiro, and I. Suemune, "Enhanced Photon Extraction from a Quantum Dot Induced by a Silver Microcolumnar Photon Reflector", *Appl. Phys. Express* **6**, 062801 (2013).
- 13) I. Suemune, H. Nakajima, X. Liu, S. Odashima, T. Asano, H. Iijima, J. H. Huh, Y. Idutsu, H. Sasakura, and H. Kumano, "Semiconductor nanostructures embedded in metal and simulation of photon extraction and coupling to optical fibers" *Nanotechnology* **24**, 455205 (2013).
- 14) R. Takemoto, N. Ishihara, H. Kurosawa, N. A. Jahan, T. Asano, X. Liu, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune, "High-Q resonance modes observed in a metallic nanocavity", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 191104 (2013).
- 15) R. H. Brown and R. Q. Twiss, "Correlation between photons in two coherent beams of light" *Nature* **177**, 27 (1956).
- 16) Perkin Elmer 社製 SPCM-AQR シリーズ SPEC シート (2013 年 12 月取得, <http://www.optics.rochester.edu/workgroups/lukishova/QuantumOpticsLab/homepage/apd.spcm.aqr.PDF>)
- 17) B. Lounis, H.A. Bechtel, D. Gerion, P. Alivisatos, W.E. Moerner, "Photon antibunching in single CdSe/ZnS quantum dot fuorescence", *Chem, Phys. Lett.* **329**, 399 (2000).
- 18) 桜庭一郎, 『オプトエレクトロニクス入門』 (森北出版社, 1983).
- 19) M. Pelton, C. Santori, J. Vučković, B. Zhang, G. S. Solomon, J. Plant, and Y. Yamamoto, "Efficient source of single photons: A single quantum dot in a micropost microcavity", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 233602 (2002).

- 20) K. Takemoto, M. Takatsu, S. Hirose, N. Yokoyama, Y. Sakuma, T. Usuki, T. Miyazawa, and Y. Arakawa, "An optical horn structure for single-photon source using quantum dots at telecommunication wavelength", *J. Appl. Phys.* **101**, 081820 (2007).
- 21) S. Kremling, C. Tessarek, H. Dartsch, S. Figge, S. Höfling, L. Worschech, C. Kruse, D. Hommel, and A. Forchel, "Single photon emission from InGaN/GaN quantum dots up to 50 K", *Appl. Phys. Lett.* **100**, 061115 (2012).
- 22) A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-Ph. Poizat, and P. Grangier, "Single Photon Quantum Cryptography", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187901 (2002).
- 23) V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.-E. Pistol, L. Samuelson, and G. Bjork, "Single quantum dots emit single photons at a time: Antibunching experiments", *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2476 (2001).
- 24) K. Rivoire, S. Buchley, A. Majumdar, H. Kim, P. Petroff, and J. Vučković, "Fast quantum dot single photon source triggered at telecommunications wavelength", *Appl. Phys. Lett.* **98**, 083105 (2011).
- 25) X. Brokmann, E. Giacobino, M. Dahan, and J. P. Hermier, "Highly efficient triggered emission of single photons by colloidal CdSe/ZnS nanocrystals", *Appl. Phys. Lett.* **85**, 712 (2004).
- 26) J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne, and J.-M. Gérard, "A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire", *Nature photon.* **4**, 174 (2010).
- 27) A. Malko, M. H. Baier, K. F. Karlsson, E. Pelucchi, D. Y. Oberli, and E. Kapon, "Optimization of the efficiency of single-photon sources based on quantum dots under optical excitation" *Appl. Phys. Lett.* **88**, 081905 (2006).
- 28) X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune, "Bright single-photon source based on an InAs quantum dot in a silver-embedded nanocone structure", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 131114 (2013).



## 4 単一量子ドットの励起ダイナミクス

本章では単一量子ドットの励起ダイナミクスについての評価を行う。これまで示してきたように複数の量子ドットを含む光学構造内では、多数の無相関光子が生成し、光子の単一性を低下させる。また同一ドット内においても中性励起子の他、荷電励起子の様な励起子複合体も形成され、それら中性-荷電状態間では常に数ナノ秒オーダーの遷移を繰り返している。従って量子ドットの励起ダイナミクスの調査および制御技法は高効率光子源に向けた重要な要素であり、それゆえ材料系に関わらず広く研究の対象とされる<sup>1-18)</sup>。

量子ドット励起ダイナミクスに関する代表例として、スペクトル計測時における発光の明滅現象がしばしば観測される<sup>1-5)</sup>。これは励起によって生成したキャリアが実効的な電界印加要因(シュタルク効果)として働き、結果として時間的・エネルギー的に不連続な状態遷移を引き起こす現象である。しかしながら一般に CCD 検出器を用いたスペクトル計測時間は数十  $\mu$  秒 ~ 数秒程度であり、ダイナミクス評価における時間分解能はそれによって制限されてしまう<sup>1-5)</sup>。一方、2次の光子相関測定は単一量子ドット内のダイナミクスを理解する上で強力な計測手法であり、数ナノ秒オーダーでの評価が可能である。実際にこれまで、余剰キャリアによるスペクトル拡散<sup>6-8)</sup>をはじめ、荷電励起子状態のスピンの緩和<sup>9-11)</sup>、暗励起子の分布寿命<sup>12-15)</sup>といった様々な遷移機構が高精度に評価されてきた。Suffczyński らは中性-荷電励起子の状態間で起こる単一キャリア励起レートを計測し、量子ドットの励起ダイナミクスを明らかにした<sup>16)</sup>。また近年では、励起エネルギーの調整による単一キャリア励起の抑制が報告された<sup>17,18)</sup>。しかしながらこれらは特定の励起強度<sup>16-18)</sup>、励起波長<sup>16)</sup>における評価・考察に留まっており、統率的な知見ではなかった。従って励起ダイナミクスに関する深い理解のためにはより幅広い測定条件下での検討が必要である。

以上を踏まえて本章では、励起強度・励起エネルギーの2つの観点から単一量子ドット励起ダイナミクスの評価を行う。図 4.1 に本章で使用する単一量子ドットの発光スペクトルを示す。励起光は強度  $65 \mu\text{W}$ 、波長  $830 \text{ nm}$  の連続波 Ti:Sa レーザであり、GaAs バリア層励起(非共鳴励起)に相当する。主だって観測されるのは輝線 A, B, C であり、それぞれ  $52 \mu\text{eV}$ ,  $48 \mu\text{eV}$ ,  $76 \mu\text{eV}$  の鋭い線幅を持つ。まず初めにこれら発光の基本的な光学特性を調査し、励起子発光起源の同定を行う。次に中性-荷電状態間で起こる単一キャリア励起の計測として CW 励起での2次光子相関測定を行い、励起機構について定量的に評価する。更に励起強度および励起波長に関する依存性を調査し、単一量子ドット励起ダイナミクスの解明および制御機構について考察する。

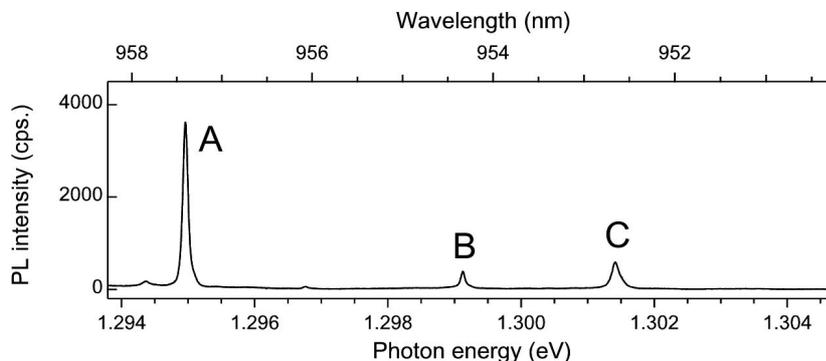


図 4.1: 本章で用いる金属埋め込み単一量子ドットからの発光スペクトル。

## 4.1 励起子発光起源の同定

まず初めに発光の基本的光学特性について調査する。測定は励起強度依存性・直線偏光依存性・時間分解 PL の 3 つの観点から行い、本節の最後で輝線 A, B, C の発光起源について検討する。

### 4.1.1 励起強度依存性

図 4.2(a) に励起強度依存性を示す。励起強度は対物レンズ入射前にて計測したレーザー強度であり、得られたスペクトルはローレンツ関数フィットによる解析を施した (赤線)。3 輝線ともに励起強度の増加に伴う発光強度の増大が伺えるが、その様子は A, C と B とで異なっていることが分かる。A, C は  $3 \mu\text{W}$  の弱励起時から発光が確認され、その強度増加は励起強度にほぼ線形比例である。一方 B では  $95 \mu\text{W}$  の強励起から観測され始め、またその強度は A, C と比べて顕著な増大を見せる。図 4.2(b) のプロットは各輝線に関するスペクトル積分値 (ピーク強度  $\times$  半値全幅) を示したものであるが、A, C の線形比例と B の自乗的な比例増大が良く分かる。これは励起子系の発光と励起子分子系の発光の特徴が明瞭に表れた結果である。図 4.2(b) の実線は  $I_{PL} \propto P_{exc}^x$  によるフィッティング結果であり、比較的弱励起時における数値でフィットさせ、乗数  $x$  を見積もった。ここで  $P_{exc}$  は励起強度、 $I_{PL}$  は発光強度を指す。見積もられた乗数  $x$  は輝線 A, B, C に対してそれぞれ 1.12, 2.10, 0.90 であった。これより A および C : 励起子系、B : 励起子分子系が同定される。なお強励起時での PL スペクトルではその他の輝線も見受けられるが (図 4.2(a))、これらは全て他 QDs からの発光であり、また本章で計測する比較的弱励起条件下 ( $>90 \mu\text{W}$ ) でのこれら輝線の寄与は非常に小さいことから、以降では議論から除外して考える。

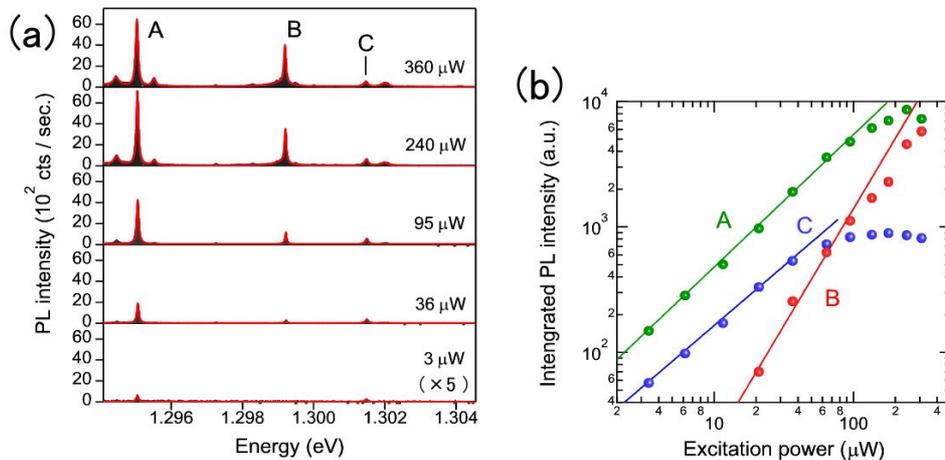


図 4.2: 輝線 A, B, C に関する励起強度依存性。A および C は線形比例であるのに対し、B は自乗比例した依存性を示す。

### 4.1.2 直線偏光依存性

図 4.3(a) は直線偏光依存性についての測定結果である。HWP の回転によって検出偏光角を掃引し、各偏光角で計測されるスペクトルを 2D プロットで示した。また輝線 A に対して B, C の発光

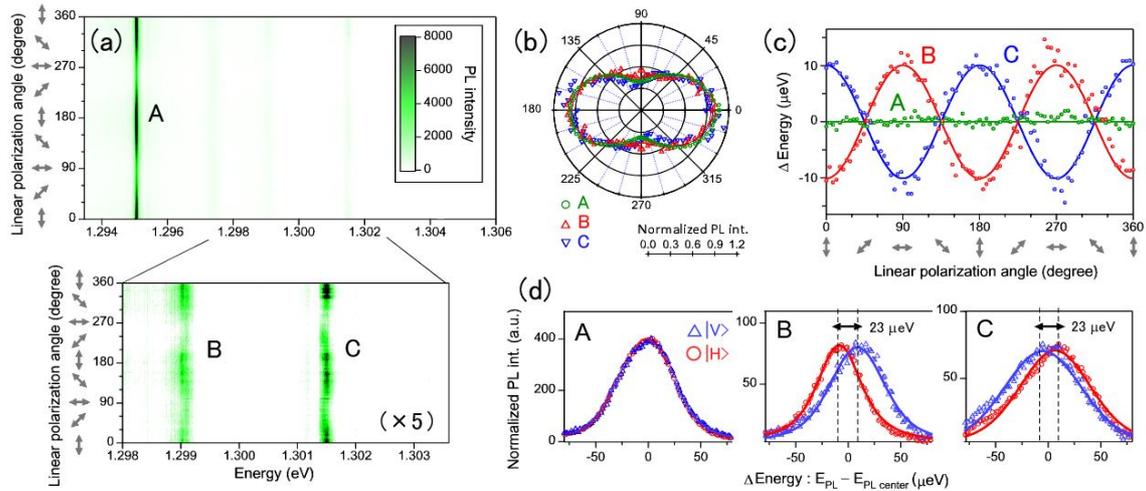


図 4.3: (a) 直線偏光依存性の測定結果. (b) 発光強度, (c) 発光エネルギーに着目した検出偏光角プロット. 実線は  $\sin$  関数で近似したフィットである. (d) 直線偏光分解  $\mu$ -PL スペクトル. 輝線 B, C は  $23 \mu\text{eV}$  程度の FSS が見られる. なお (a)(b) は差分モード, (c)(d) は加分散モードで計測した.

強度は比較的微弱であるため、強度およびエネルギーに関する拡大図を下に示した。3 輝線ともに偏光角の選択によって強度変化し、V 偏光検出時で最大・H 偏光検出時で最小となる。図 4.3(b) はその様子を極座標でプロットしたものであり、約 40 % 程度の強度変調が見られる。これは金属で埋め込まれた QD の配置がピラー構造のセンターではなく、中心よりやや端部に存在するため、V 偏光と H 偏光の電磁場放射パターンに差異が生じているためと考察される。同様な光学異方性の観測は、例えばナノワイヤ構造<sup>19)</sup>でも確認されており、等方的な偏光特性のためにはドット位置制御の様な作製時における工夫が必要と考えられる。なおこの考察は、重い正孔と軽い正孔との準位混合 (歪誘起価電子帯混合, Strain-Induced valence-Band Mixing: SI-VBM) でもしばしば議論されるが、一般にその影響は発光強度の最大・最小をとる偏光角と QD 面内で直交する結晶方位 (光学軸) との角度ずれとともに評価される<sup>20)</sup>。しかし今回得られた結果では偏光角と光学軸とはほぼ良い一致を示しており、SI-VBM の寄与は小さいと考えられる。

図 4.3(c) は発光エネルギーに着目し、スペクトルのローレンツ関数フィットで得られたピークエネルギーの動向を平均値  $\overline{E_{\text{PL}}}$  を 0 としてプロットしたものである。輝線 A では偏光角に対する依存性はなくほぼ一定値であるが、B, C では  $\sin$  関数で近似される反相関のフリンジが見られる。これは  $X^0$  準位の FSS を反映したエネルギーシフトである。例えば  $\text{FSS} \equiv E_{X(V)} - E_{X(H)} = +\delta$  を持つ場合、 $X^0$  発光エネルギーは V(H) 偏光検出時に  $\overline{E_X} + (-)\delta/2$  となり、反対に  $XX^0$  は V(H) 検出時に  $\overline{E_{XX}} - (+)\delta/2$  となる。従って  $X^0$  と  $XX^0$  発光は V, H 検出時に FSS に相当するエネルギーシフトを示し、かつそのシフトは必ず反相関となる。図 4.3(d) に示す V, H 偏光分解スペクトルが分かりやすいが、輝線 B, C ともにピークシフト量は約  $23 \mu\text{eV}$  である。従って輝線 B, C は  $XX^0 \cdot X^0$  発光のペア、輝線 A は FSS の持たない荷電励起子発光と判別される。

### 4.1.3 時間分解 PL 測定

続いて各輝線の発光再結合寿命の見積もりを行う。発光寿命の計測は時間分解 PL 測定による発光減衰時定数から評価される<sup>21,22)</sup>。図 4.4(a) に測定の概略図を示す。励起源をパルスレーザに変え、また励起光の一部を SPCM で start 信号として検出する。stop 信号は 1 つの発光輝線を BPF で抽出し、パルスの入射時間  $t_0$  をトリガーにした発光強度  $I(t)$  を計測する。このとき励起の開始時刻  $t_0$  から QD 内励起子分布までのエネルギー緩和時間は数 ps~数十 ps と発光寿命と比べて十分短く<sup>21)</sup>、また QD に分布する平均励起子数が十分小さい場合<sup>23)</sup>、発光強度  $I(t)$  は単一指数関数減衰で良く近似される。図中のスペクトルで示しているように測定は比較的弱励起条件下で行った。また BPF の線幅 0.5 nm ( $\sim 0.7$  meV) は各輝線間のエネルギー差よりも十分狭いため、単一輝線でのフィルタリングが可能である。

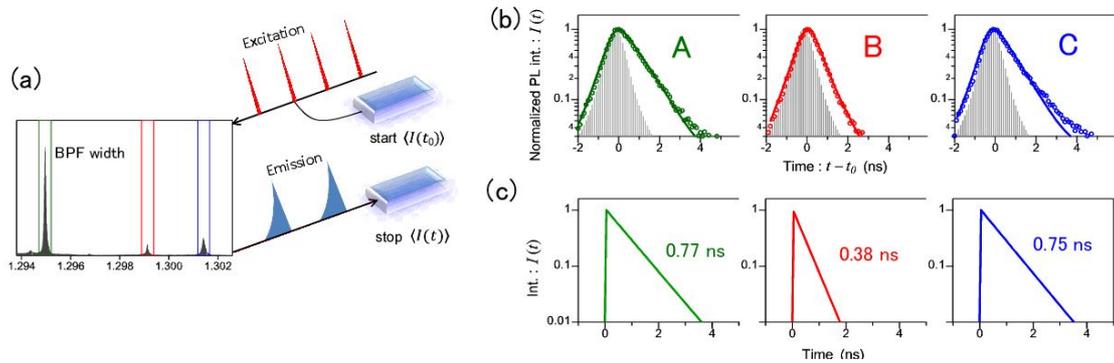


図 4.4: 時間分解 PL 測定における (a) 測定概略図と (b) 測定結果. 実線は単一指数関数減衰 (c) を用い応答時間 (棒線) を考慮したフィッティング結果.

図 4.4(b) は得られた測定結果である。時間原点  $t_0$  は励起パルス同士の相関関数 (棒線) のピークによって見積もり、 $t - t_0$  を関数としてプロットした。ここで励起パルスの線幅  $\sim 5$  ps は時間ビンニング幅 100 ps と比べて十分短いため、 $t - t_0 = 0$  が励起パルス入射に相当する時刻と考えてよい。またその相関関数の時間幅  $\sim 1$  ns は測定系の時間応答によって制限されたものであり、主に SPCM に起因した時間幅である。3 輝線に関する測定結果を見てみると発光減衰の傾向が良く分かる。実線は時間応答を考慮した単一指数関数  $\exp(-1/\tau_{decay} \cdot t)$  によるフィットであり、得られた減衰時定数  $\tau_{decay}$  は (A) 0.75, (B) 0.38, (C) 0.77 ns であった。これらの値は InAs QDs/GaAs 系での報告例<sup>24)</sup> と良く一致する。図 4.4(c) は各フィットで使用した応答関数を考慮しない単一指数関数減衰であるが、輝線 A, C と比べて B の減衰は倍程度速い。これは発光に寄与し得る励起子を 2 つ持つ励起子分子系の特徴である。なお測定結果では時間応答による鈍りが目立つが、速い応答を持つ検出器 (高速 APD や SSPD 等) を用いることでより明瞭な発光減衰が計測可能である<sup>25)</sup>。

#### 4.1.4 発光起源同定

これまでの測定および考察によって A: 荷電励起子, B: 中性励起子分子, C: 中性励起子であることが確認された。なお荷電励起子の正負であるが、 $X^0$  との発光エネルギー差  $E_{X^0} - E_{lineA} = +6.4$  meV が正であることから  $X^-$  であると考えられる。またその値は InAs QDs/GaAs 系の報告例<sup>26)</sup>とも良く一致する。次表ではこれまでの評価で得られた結果を纏めた。

	line A ( $X^-$ )	line B ( $XX^0$ )	line C ( $X^0$ )
Emission energy (eV)	1.2950	1.2991	1.3014
PL ratio @ 65 $\mu$ W; $I_{PL}/\Sigma I_{PL}$	0.75	0.07	0.18
Line width; FWHM ( $\mu$ eV)	52	48	76
Excitation power dependence; $x$	1.12	2.10	0.90
Polarized PL modulation; $\frac{I_{max}-I_{min}}{I_{max}+I_{min}}$	0.44	0.36	0.44
FSS; $E_V - E_H$ ( $\mu$ eV)	$\sim 0$	+23	-23
Decaytime (ns)	0.75	0.38	0.77
Energy difference ; $E_{X^0} - E_{PL}$ (meV)	+ 6.4	+ 2.3	0

PL ratio は 65  $\mu$ W 励起時における 3 輝線の発光強度の和に対する比率を表したものであり、 $X^-$  が 0.75 と非常に支配的であることが分かる。また線幅に関して  $X^0$  は 76  $\mu$ eV と比較的にブロードであるが、これは無偏光検出時の値であり、FSS=23  $\mu$ eV を加味すると本来の線幅は 50  $\mu$ eV 程度である。同様の考察から  $XX^0$  の本来の線幅は約 25  $\mu$ eV であり、比較的に細いことが分かる。

また図 4.5 に同試料上からの様々な単一 QD 発光スペクトルを示す。全て励起波長 830 nm・励起強度 80  $\mu$ W の同一測定条件下で得られたスペクトルであり、本節で紹介した QD は上から 4 つ目に相当する。一般に同試料上での QDs 発光は類似した特性を示し、図から分かるように  $X^-$  発光が顕著でかつ  $X^+$  の生成は確認されない。これは QD 励起機構に深く関係した発光特性であり、全ての QDs において  $X^0$  と  $X^-$  とでは常に数ナノ秒オーダーの状態間遷移を繰り返している。従って単一 QD に着目した励起ダイナミクスの評価およびその制御は特定の QD に特化したアプローチではなく、光子源活用の観点から極めて本質的な要素である。次節以降では単一 QD 発光に関する 2 次の相互/自己相関関数について調査し、励起ダイナミクスについての詳細な議論を行う。

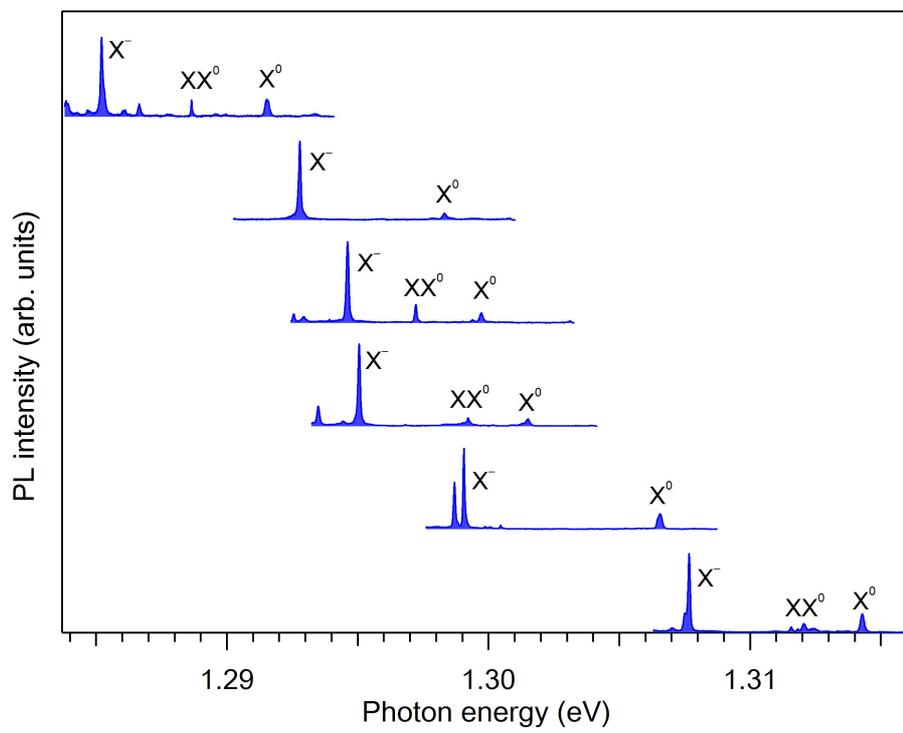


図 4.5: 様々な単一 QD 発光スペクトル.  $X^-$  の支配的な発光が観測される.

## 4.2 単一キャリア励起の計測

ここでは  $X^0$ ,  $XX^0$ ,  $X^-$  発光に関する 2 次光子相関測定を行い、中性-荷電励起子状態間で起こる単一キャリア励起について評価する。測定は励起波長 830 nm、励起強度  $65 \mu\text{W}$ (図 4.1 参照)の同一条件下で行い、また得られた相関関数は偶発的の同時計数 (バックグラウンド) を除去することなく全て生データで示す。

### 4.2.1 光子相互相関関数

図 4.6 は相互相関関数の測定結果である。赤破線は  $g^{(2)}(\tau) = 1$  に相当し、[start, stop] はそれぞれの SPCM で検出した発光を指す。全ての結果において、正の遅延時間  $\tau \geq 0$  と負の遅延時間  $\tau \leq 0$  とで非対称な形状が見られるが、これは正負の遅延時間では start と stop とを入れ替えた相関関数が現れるためである。

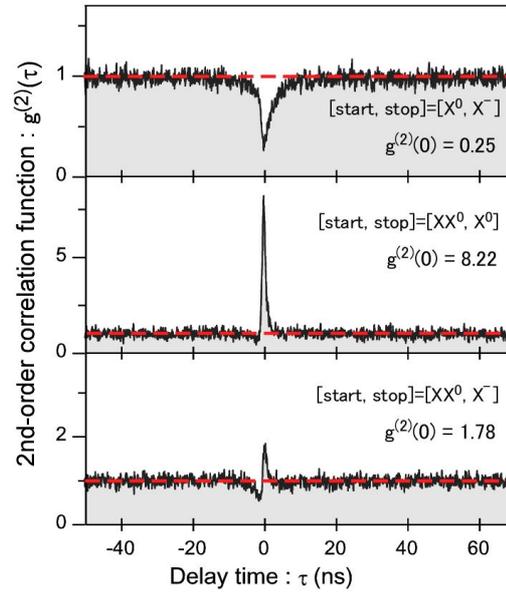


図 4.6:  $X^0$ ,  $XX^0$ ,  $X^-$  発光における相互相関関数の測定結果.

図の上段 [ $X^0$ ,  $X^-$ ] に着目してみると、 $\tau = 0$  で計数ディップ  $g^{(2)}(0) = 0.25$  を持つアンチバンチングであることが分かる。これは  $X^0$ ,  $X^-$  が単一 QD 内で形成され、同時放出のないことを示している。また  $\tau \geq 0$  と  $\tau \leq 0$  とで計数増加の様子が異なるが、これはキャリア分布時間の違いを反映した結果である。例えば  $\tau \geq 0$  では、 $X^0$  光子発生後における  $X^-$  発光の光子統計を示しており、 $\tau = 0$  における QD の状態は真空状態  $|\text{Vac}\rangle$  である。 $|\text{Vac}\rangle$  から 2 つの電子と 1 つの正孔が QD に供給され  $X^-$  を形成した後、光子として放出される。従って計数増加のスロープは 3 つのキャリアの供給レートを反映した結果である。一方  $\tau \leq 0$  では、 $X^-$  発光の終状態である単一電子状態  $|e^-\rangle$  から  $X^0$  形成まで 1 キャリアの供給で行われる。従って  $\tau \geq 0$  と比べて計数増加は速い。

図 4.6 中段では  $XX^0$ - $X^0$  カスケード遷移による  $g^{(2)}(0) = 8.22$  の高い計数ピーク (バンチング) が見られる。これは  $XX^0$  発光の終状態が  $|X^0\rangle$  であるため、 $XX^0$  光子の生成時間近傍における  $X^0$

の光子統計が極めて高いことを示しており、カスケード遷移 2 光子生成の特徴的な形状である。また計数ピークの減衰スロープは、 $X^0$  発光の減衰レートを直接反映したものであり、それゆえ非対称な構造を持つ。このバンチング特性は量子もつれ状態の評価で最も重要な点であり、6 章にて詳しく議論する。

図 4.6 下段は  $[XX^0, X^-]$  の結果であり、 $g^{(2)}(0) = 1.78$  の比較的低い計数ピークを持つ。これは中性-荷電状態間遷移によるものである。 $\tau = 0$  における QD 分布は、 $XX^0$  発光の終状態  $|X^0\rangle$  であり、単一電子の供給によって  $X^-$  の形成および発光が起こる。したがって同時計数ピークの存在は、電子による単一キャリア励起レートが高いことを示している。この考察はスペクトル結果 (図 4.5) から相違ない。また  $\tau \leq 0$  では  $|e^- \rangle$  から  $XX^0$  形成までの 3 キャリア供給が反映され、それゆえ同時計数の回復は緩やかである。

#### 4.2.2 光子自己相関関数

続いて自己相関関数から単一キャリア励起のより詳細な評価を行う。図 4.7 に示すのは測定によって得られた (a)  $X^-$ , (b)  $X^0$  発光についての自己相関関数である。

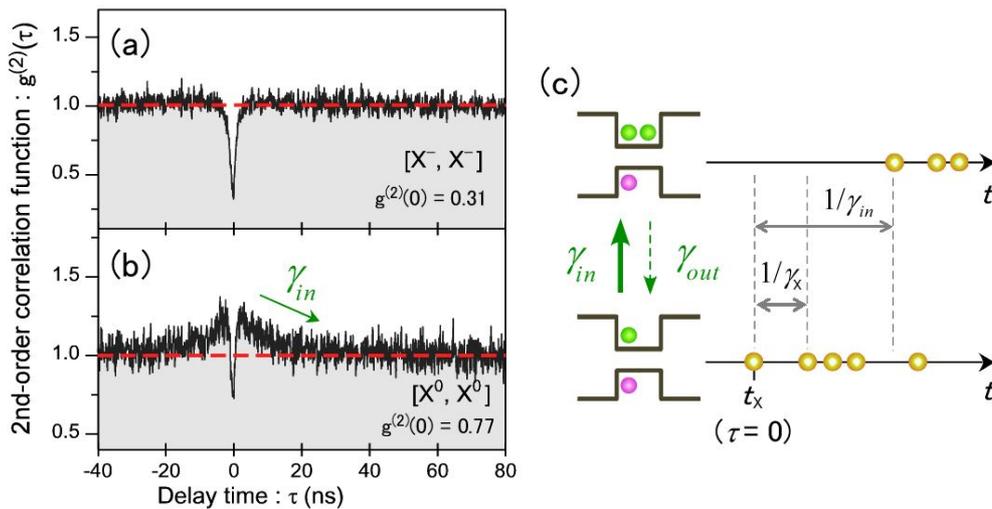


図 4.7: 自己相関関数測定結果. (a)  $X^-$  発光は通常のアンチバンチングを示すが, (b)  $X^0$  発光では  $\tau \sim 0$  においてブロードなバンチングを伴う. (c)  $[X^0, X^0]$  における  $X^0, X^-$  発光の光子統計の模式図.  $X^0$  光子の存在確率は単一電子の供給レート  $\gamma_{in}$  で減少する.

$[X^-, X^-]$ ,  $[X^0, X^0]$  の両者とも  $g^{(2)}(0) = 0.31, 0.77$  の計数ディップを持つアンチバンチングである。しかしながらその形状は大きく異なっており、(a) では同時計数が 1 に回復していく通常のアンチバンチング特性であるのに対し、(b) ではブロードなバンチングを伴う奇異な形状を示す。このバンチングは電子の供給レートを直接反映した結果であり、以降の評価において最も重要な特性である。図 4.7(c) に  $[X^0, X^0]$  における  $X^0$  光子と  $X^-$  光子の光子統計を模式的に図示した。ある時刻  $t = t_X$  にて  $X^0$  光子が生成し、QD は真空状態へ緩和する。その時刻  $t_X$  が  $\tau = 0$  に相当する。その後励起によって電子・正孔対が供給され、再度形成された  $X^0$  は発光再結合レート  $\gamma_X$  で光子を放出し、 $\tau \sim 0$  における同時計数として計測される。これが通常のアンチバンチングを作る同時

計数の計測機構である。しかしながら  $X^0$  形成時において単一電子の供給が起こった場合、QD は  $|X^- \rangle$  に遷移し  $X^0$  光子は生成されない。従って単一電子の供給レートを  $\gamma_{in}$  とすると、 $\tau > 1/\gamma_{in}$  における光子統計は  $X^-$  が支配的となる。結果として  $X^0$  の同時計数は  $\tau \rightarrow 1/\gamma_{in}$  につれて減少していく。これが測定で得られたバンチングの要因であり、この特性は次式にて記述される<sup>6)</sup>。

$$g_{X^0}^{(2)}(\tau) = \left\{ 1 + \left( \frac{\gamma_{in} + \gamma_{out}}{\gamma_{out}} \right) \exp[-(\gamma_{in} + \gamma_{out}) \cdot \tau] \right\} \cdot \{ 1 - \exp[-(G + \gamma_X) \cdot \tau] \} \quad (4.1)$$

ここで  $\gamma_{out}$ ,  $G$  はそれぞれ単一電子の逃避レート、電子・正孔対供給レートである。上式の一項目がバンチングを作る項であるが、その高さは  $\gamma_{in}$  と  $\gamma_{out}$  との比によって決まり、減衰スロープはそれらの和となる。従って今回の場合  $\gamma_{in}$  が  $\gamma_{out}$  よりも十分高く、単一電子供給レートが直接反映されたバンチング特性が観測されたこととなる。一方  $[X^-, X^-]$  の  $g^{(2)}(\tau)$  を考えると、

$$g_{X^-}^{(2)}(\tau) = \left\{ 1 + \left( \frac{\gamma_{in} + \gamma_{out}}{\gamma_{in}} \right) \exp[-(\gamma_{in} + \gamma_{out}) \cdot \tau] \right\} \cdot \{ 1 - \exp[-(G + \gamma_{X^-}) \cdot \tau] \} \quad (4.2)$$

である。ここで  $\gamma_{X^-}$  は  $X^-$  の発光再結合レートである。この場合  $\gamma_{out}/\gamma_{in} \sim 0$  であり、バンチングの寄与は小さく、純粋な2準位系がもたらすアンチバンチング形状となる。

以上の考察から測定によって得られた相関関数を用いることで  $\gamma_{in}$  および  $\gamma_{out}$  の評価が可能である。しかしながら実際の QD 系では電子のみならず正孔の寄与も考慮する必要があり、上式の直接的な適用は難しい。従って次節では電子および正孔の遷移レートを加味した相関関数のシミュレーションを行い、各遷移レートの定量的評価を行う。

#### 4.2.3 相関関数のシミュレーション

図 4.8(a) に相関関数のシミュレーションで使用する単一 QD 内 5 準位系と、各準位間で起こる状態遷移図を示す。ここで  $P_1, P_2, P_3, P_4, P_5$  はそれぞれ  $|\text{Vac}\rangle, |X^0\rangle, |XX^0\rangle, |e^-\rangle, |X^-\rangle$  における分布確率であり、 $\gamma_{XX^0}$  は  $XX^0$  の発光再結合レートを指す。また電子の供給・逃避レート  $\gamma_{in}, \gamma_{out}$  のみでなく、正孔の供給、逃避レート  $\gamma'_{in}, \gamma'_{out}$  も考慮した遷移モデルである。これにより次式で表されるレート方程式が導かれる。

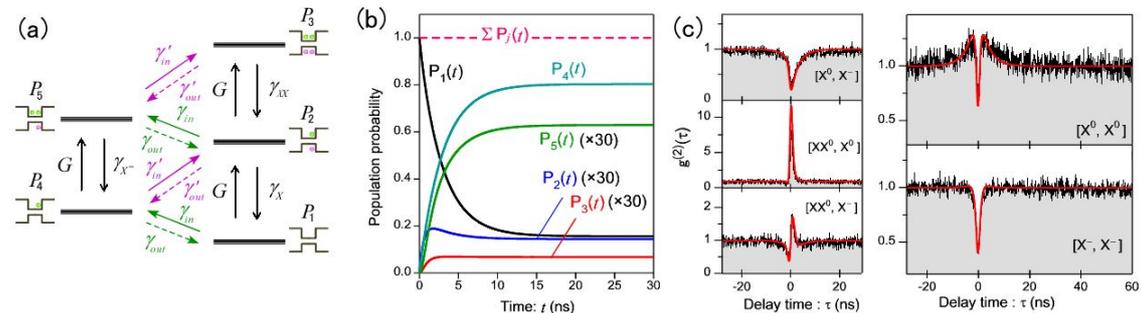


図 4.8: (a) 単一 QD 内で形成される 5 準位系の状態間遷移図. (b)  $P_1(t = 0) = 1$  における 5 準位の分布確率の時間発展. (c)  $g^{(2)}(\tau)$  のシミュレーション結果. 測定によって得られた相関関数 (黒線) は式 (4.3) によって良く再現される.

$$\begin{aligned}
\frac{dP_1(t)}{dt} &= -(G + \gamma_{in}) \cdot P_1(t) + \gamma_X \cdot P_2(t) + \gamma_{out} \cdot P_4(t) \\
\frac{dP_2(t)}{dt} &= G \cdot P_1(t) - (G + \gamma_X + \gamma_{in} + \gamma'_{out}) \cdot P_2(t) + \gamma_{XX} \cdot P_3(t) + \gamma'_{in} \cdot P_4(t) + \gamma_{out} \cdot P_5(t) \\
\frac{dP_3(t)}{dt} &= G \cdot P_2(t) - (\gamma_{XX} + \gamma'_{out}) \cdot P_3(t) + \gamma'_{in} \cdot P_5(t) \\
\frac{dP_4(t)}{dt} &= \gamma_{in} \cdot P_1(t) + \gamma'_{out} \cdot P_2(t) - (G + \gamma'_{in} + \gamma_{out}) \cdot P_4(t) + \gamma_{X-} \cdot P_5(t) \\
\frac{dP_5(t)}{dt} &= \gamma_{in} \cdot P_2(t) + \gamma'_{out} \cdot P_3(t) + G \cdot P_4(t) - (\gamma_{X-} + \gamma'_{in} + \gamma_{out}) \cdot P_5(t)
\end{aligned} \tag{4.3}$$

ここで相関関数  $g^{(2)}(\tau)$  は、ある励起子 ( $X_i$ ) の発光を  $\text{start}(\tau = 0)$  とし、stop 励起子 ( $X_j$ ) の光子統計を  $\tau$  について調べたものである。従って  $\tau = 0$  における QD の分布は  $X_i$  発光の終状態に相当し、その条件下での  $X_j$  の  $\tau$  に関する分布確率が  $g^{(2)}(\tau)$  に比例する<sup>27)</sup>。これを踏まえてシミュレーションは、式 (4.3) に適切な初期条件を与えたときの時間依存解を用いて行った。

解析は Igor 上で 5 連立微分方程式の数値解析を行い、 $X^0$ ,  $XX^0$ ,  $X^-$  の発光再結合レートは時間分解 PL 測定 (図 4.4) で得られた  $1/\gamma_X=0.77$  ns,  $1/\gamma_{XX}=0.38$  ns,  $1/\gamma_{CX}=0.75$  ns を用いた。図 4.8(b) は  $\text{start}$  を  $X^0$  発光、すなわち  $P_1(t=0) = 1$  としたときの各準位の分布確率  $P_j(t)$  のシミュレーション結果例であり、相関関数の特徴を良く再現していることが分かる。例えば青実線の  $X^0$  の分布確率  $P_2(t)$  に着目すると、これは  $[X^0, X^0]$  相関関数に相当し、 $\tau = 0$  近傍の緩やかなバンチング特性が再現されていることが分かる。また緑実線の  $X^-$  の分布確率  $P_5(t)$  に着目すると正遅延時間の  $[X^0, X^-]$  に相当し、アンチバンチング形状の計数回復が見られる。同様に  $P_3(t)$  は負遅延時間の  $[XX^0, X^0]$  アンチバンチングである。また  $t \rightarrow 30$  ns の定常状態における  $P_2(t)$ ,  $P_3(t)$ ,  $P_5(t)$  はそれぞれ  $X^0$ ,  $XX^0$ ,  $X^-$  の発光強度に相当し、 $X^-$  の支配的な生成が良く再現されている (図では 30 倍に拡大して示している)。なお破線で示すように  $P_j(t)$  の総和  $\Sigma P_j(t)$  は常に 1 である。

図 4.8(c) 赤線は各相関関数のシミュレーション結果であり、黒線は比較用に実験結果 (図 4.6 および図 4.7) を再プロットしたものである。使用したパラメータは  $G=0.055$ ,  $\gamma_{in}=0.280$ ,  $\gamma_{out}=0.030$ ,  $\gamma'_{in}=0.030$ ,  $\gamma'_{out}=0.020$  GHz であり、5 つの相関関数の特徴をほぼ完全に再現した。パラメータを比較してみると、 $G$  に比べて  $\gamma_{in}$  の寄与は非常に大きく、一方で  $\gamma'_{in}$  は小さい。正孔による QD 励起の寄与は小さく、正の荷電励起子 ( $X^+$ ) が観測されないのもこのためと考えられる。

なおシミュレーションにおける各パラメータ決定の手順を記載しておく。まず、 $[X^0, X^0]$  におけるバンチングの減衰はパラメータ  $\gamma_{in}$  によってほぼ一意に決まり、またバンチング高さ  $\sim 1.3$  は  $\gamma_{in}/\gamma_{out}$  の比で調整した。更に  $[X^0, X^-]$  の  $\tau \leq 0$  における計数増加のスロープは  $\gamma'_{in}$  によって一意に決まる形状であり、最後に  $G$  と  $\gamma'_{out}$  を用いて 5 つの測定結果の最適フィットを行った。なお今回使用したモデルについて以下を補足しておく。実際の QD 系では、暗励起子準位が形成され  $|X^0\rangle$  との状態間遷移を考慮する必要があるが、通常その影響は 2 成分の  $X^0$  発光減衰時定数にて現れる<sup>12-15)</sup>。しかし今回の場合、 $X^0$  は 1 成分の減衰時定数を示しているため (図 4.4 参照)、暗励起子の寄与は無視できると結論付けた。

### 4.3 励起ダイナミクスの評価

これまでの検証で電子による単一キャリア励起が主な QD 励起機構であることが確認された。本節では励起光強度と励起エネルギーに関する依存性を調査し、励起ダイナミクスの制御について検討する。

#### 4.3.1 励起強度依存性

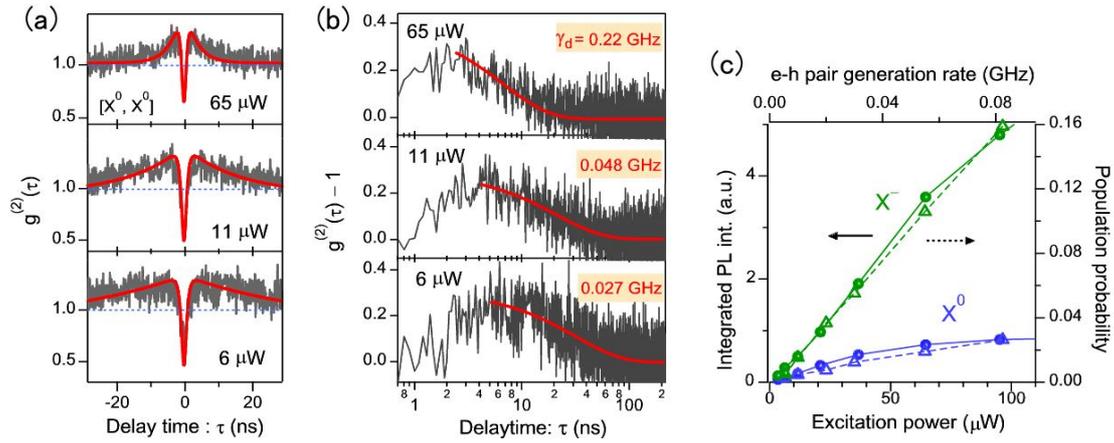


図 4.9:  $[X^0, X^0]$  の励起強度依存性における (a)  $g^{(2)}(\tau)$  プロットと (b)  $g^{(2)}(\tau) - 1$  のプロット。励起光強度にほぼ線形比例するバンチング減衰スローブを示す。 (c) 式 (4.3) の定常解を用いた PL 強度のシミュレーション結果。

図 4.9(a) は励起強度を変化させたときの  $[X^0, X^0]$  測定結果である。全ての励起条件でブロードなバンチング形状が見られ、実効的な  $\gamma_{in}$  の介在が分かる。しかしその減衰スローブは励起強度に依存した兆候を示し、弱励起時ほど緩やかである。一方でバンチング高さに着目してみると励起強度に依存した差異は見られない。以上より、励起強度に対して  $\gamma_{in}$  は敏感な依存性を持つが、 $\gamma_{in}/\gamma_{out}$  比は大きく変化しないことが考察される。また図 4.9(b) は各励起強度における  $g^{(2)}(\tau) - 1$  を片対数プロットで図示し、バンチングの減衰傾向を比較したものである。一般に、多準位系における状態間遷移を伴う場合の  $g^{(2)}(\tau) - 1$  は近似的に次式にて表される<sup>8,18)</sup>。

$$g^{(2)}(\tau) - 1 \propto \exp(-\gamma_d \cdot \tau) \quad (4.4)$$

ここで  $\gamma_d$  は孤立二準位系以外の準位との状態間で起こる分布拡散レートであり、今の場合  $\gamma_d \sim \gamma_{in}$  である。また上式は式 (4.1) における  $\tau > 1/\gamma_X$  で収束する関数である。図 4.9(b) 赤線は上式を用いたフィットであり、得られた  $\gamma_d$  は 65, 11, 6  $\mu\text{W}$  に対してそれぞれ 0.22, 0.048, 0.027 GHz であった。これら数値から分かるようにバンチングの減衰レートは励起強度の変化に対してほぼ線形比例である。また図 4.9(a) における赤線は、前節で得られたパラメータセット  $(G, \gamma_{in}, \gamma_{out}, \gamma'_{in}, \gamma'_{out}) = (0.055, 0.280, 0.030, 0.030, 0.020)$  GHz を励起強度に線形比例させ、シミュレーションを行った結果であるが、測定結果はその仮定によってほぼ忠実に再現されていることが分かる。更に式 (4.3) の定常解から  $X^0$  と  $X^-$  発光強度について検討した結果 (図 4.9(c)) においても、シミュレーションは実験結果と 10% 以内の精度で良い一致を示した。

以上で得られた結果は  $\gamma_{in}$  をはじめとする全ての励起レートが励起光によって生成されたものであり、またそのレートの相互関係は励起強度では変化しないことを示唆している。GaAs バリア層で生成された電子・正孔対は界面の欠陥準位によるキャリア補足の影響でアンバランスに QD に分布し、結果として単一電子の供給が支配的となる。この励起機構は結晶の準位構造によって決定されたものであり、励起光の強度変化では制御されない。従って QDs 励起ダイナミクスの制御には励起エネルギーが本質的な決定要因となる。

#### 4.3.2 励起エネルギー依存性

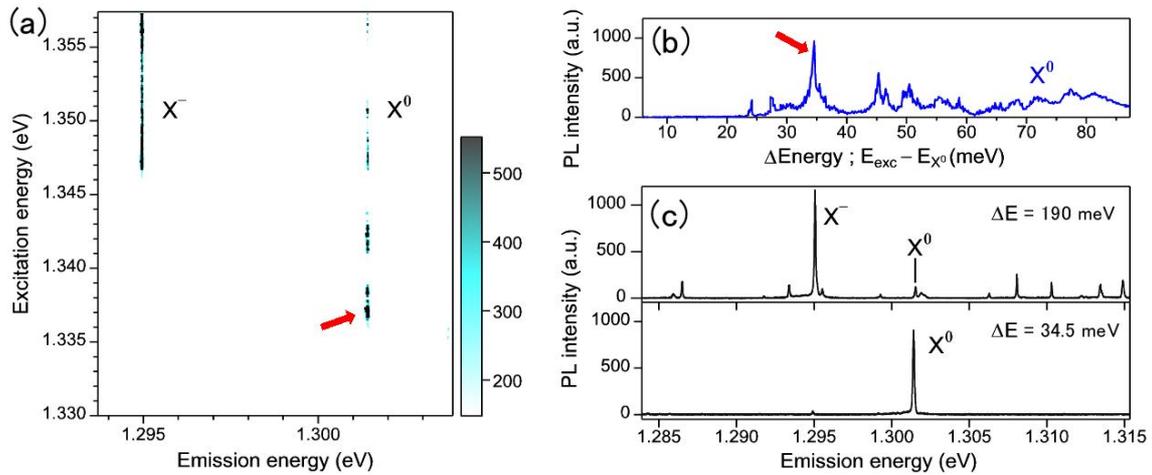


図 4.10: (a) 励起エネルギー掃引による PL スペクトルの 2D プロット. (b)  $X^0$  発光に関する  $\mu$ -PLE スペクトル. GaAs の LO フォノンエネルギー 34.5 meV で強いピークを示す (赤矢印). (c)  $\Delta E = 190$  (非共鳴励起), 34.5 meV (準共鳴励起) における PL スペクトル. 準共鳴励起によって  $X^0$  は孤立的に生成する.

図 4.10(a) に励起レーザーのエネルギー掃引時における PL スペクトル計測結果を示す。測定は励起強度  $150 \mu\text{W}$ 、エネルギーステップ約  $110 \mu\text{eV}$  であり、得られたスペクトルを励起エネルギーに関する 2D プロットで示した。また励起強度  $150 \mu\text{W}$  は比較的弱励起であり、 $XX^0$  の生成が確認されない励起条件に相当する。図上方の高エネルギー励起時では  $X^-$  発光が支配的で、かつ PL の変化は励起エネルギーの掃引に対して連続的である。一方、低エネルギー側 ( $\leq 1.346$  eV) では  $X^-$  発光はほぼ完全に消失し、 $X^0$  の生成が離散的に観測される。これは励起が濡れ層のバンドギャップよりも低エネルギーになり、QD 内部で形成される離散準位構造が直接反映された結果である。

図 4.10(b) はエネルギーステップ  $\sim 24 \mu\text{eV}$  での  $X^0$  に関する  $\mu$ -PL Excitation (PLE) スペクトルを示したものであり、発光と励起光とのエネルギー差  $E_{exc} - E_{X^0}$  でプロットした。複数の離散ピークが観測されるが、特に 34.5 meV で見られるピーク (赤矢印) が顕著である。このエネルギーは GaAs の縦光学フォノン (longitudinal optical : LO) エネルギーに相当し<sup>28-31</sup>、励起光によって生成された電子・正孔対がフォノンを介してエネルギー緩和し  $X^0$  を直接生成する準共鳴励起である。図 4.10(c) では  $\Delta E = 190$  meV の非共鳴励起 (上) と  $\Delta E = 34.5$  meV の準共鳴励起 (下) とで得られた広範囲スペクトルを比較したものであるが、準共鳴励起による発光輝線の強い抑制および  $X^0$  の孤立生成がよく分かる。これは励起ダイナミクスが大きく変化し、他 QDs の励起や単一

キャリア励起による  $X^-$  の形成が強く抑制されたためである。なお PLE スペクトル (図 4.10 b) における他ピークの起源同定は行っていないが、多くは QD 内の電子状態  $|e_i h_j\rangle (i, j = 0, 1, 2, \dots)$  由来であると考えられる。特に  $\Delta E = 28$  meV および  $\Delta E = 45$  meV のピークに関しては同材料系の報告例<sup>29,30)</sup>を参考にすると、それぞれ第一励起準位  $|e_1 h_1\rangle$ 、第二励起準位  $|e_2 h_2\rangle$  起源であることが予想される。

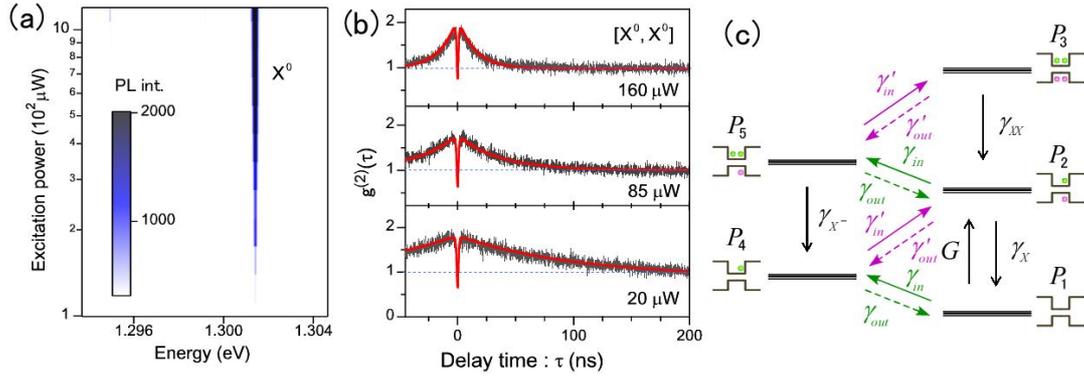


図 4.11: (a) 準共鳴励起下 ( $\Delta E = 34.5$  meV) における励起強度依存性.  $X^0$  の孤立生成は励起強度に依らない. (b)  $X^0$  発光に関する自己相関測定結果.  $\tau = 0$  近傍のバンチングは非常に緩やかな減衰スロープを示す. 赤線は  $|\text{Vac}\rangle \rightarrow |X^0\rangle$  のみの電子・正孔対供給レート  $G$  を考慮した 5 準位系モデル (c) によるフィット.

図 4.11(a) に  $\Delta E = 34.5$  meV における励起強度依存性を示す.  $X^0$  の孤立生成は励起強度に依らないことが良く分かる。また強度飽和時における励起強度は約  $1200 \mu\text{W}$  であり、非共鳴励起時 (図 4.2) と比べると 10 倍程度のレーザー強度が必要であるが、これは励起エネルギーによって励起光の吸収効率が大きく異なるためである。図 4.11(b) には比較的弱励起下 (160, 85, 20  $\mu\text{W}$ ) での  $X^0$  に関する自己相関測定結果を示したが、何れも非共鳴励起時と同様なバンチング特性が見られる。しかしながらその減衰スロープは非常に緩やかであり、 $\gamma_{in}$  の抑制が良く分かる。赤線は相関関数のシミュレーション結果であり、図 4.11(c) で用いたモデルを示した。前節で使用した図 4.9(c) と同様のモデルであるが、 $X^0$  の準共鳴励起下であることを考慮し  $|X^0\rangle \rightarrow |XX^0\rangle$  と  $|e^- \rangle \rightarrow |X^- \rangle$  の遷移レート  $G$  を 0 とした<sup>32)</sup>。励起強度 160  $\mu\text{W}$  時における相関関数のシミュレーションで使用したパラメータセットは  $(G, \gamma_{in}, \gamma_{out}, \gamma'_{in}, \gamma'_{out}) = (0.150, 0.040, 0.008, 0.015, 0.008)$  GHz であり、図 4.11(b) のように実験結果と良い一致を示した。各種パラメータの決定は同一励起条件での相関関数  $[X^0, X^-]$ ,  $[XX^0, X^0]$ ,  $[XX^0, X^-]$ ,  $[X^-, X^-]$  の測定結果 (図示なし) を用いて行っており、また 85, 20  $\mu\text{W}$  励起強度ではパラメータセットを線形比例させ  $[X^0, X^0]$  相関関数にフィットさせた。

下表は 2 つの励起エネルギーでの検証から見積もられた代表的な各励起レートを纏めたものであるが、非共鳴励起時で支配的であった  $\gamma_{in}$  が準共鳴励起時では大きく抑制されていることが分かる。また  $\gamma'_{in}$  の寄与も小さくなり、 $G$  が主な励起機構を司る。一方、補足レートと逃避レートとの比  $\gamma_{in}/\gamma_{out}$ ,  $\gamma'_{in}/\gamma'_{out}$  は大きくは変化していない。これはキャリアの逃避が障壁層へのトンネリングによって行われており、そのレートは補足レートによって制限されているためと考えられる。またこれらは全て弱励起条件下での計測で得られたものであるため、電子電子相互作用 (オージェ過程) の寄与は無視して考えた。

	Non-resonant	Quasi-resonant
$G$ (GHz)	0.055	0.150
$\gamma_{in}$ (GHz)	0.280	0.040
$\gamma_{out}$ (GHz)	0.030	0.008
$\gamma'_{in}$ (GHz)	0.030	0.015
$\gamma'_{out}$ (GHz)	0.020	0.008

図 4.12 に励起強度および励起エネルギー依存性の検証によって見積もられた  $\gamma_{in}$  を示す。先で議論した通り、非共鳴励起時と準共鳴励起時とで必要なレーザ強度は大きく異なるため、励起強度の絶対値では良い比較は行えない。そこで  $X^0$  と  $X^-$  の発光強度の和  $I_{X^0} + I_{X^-}$  を、その飽和値  $I_{sat}$  で規格化した  $I_{exc}/I_{sat}$  を用いて実効的な励起強度の統一化を図った。図から分かるように非共鳴励起時での結果 (●) と比べ、準共鳴励起時 (▲) では 1 桁程度もの強い抑制が見られる。これは  $G$  が主な QD 励起機構となった確保たる実証である。従って単一励起子の孤立生成には励起エネルギーの調整が本質的であり、QD 励起ダイナミクスの制御技法における重要な要素となる。

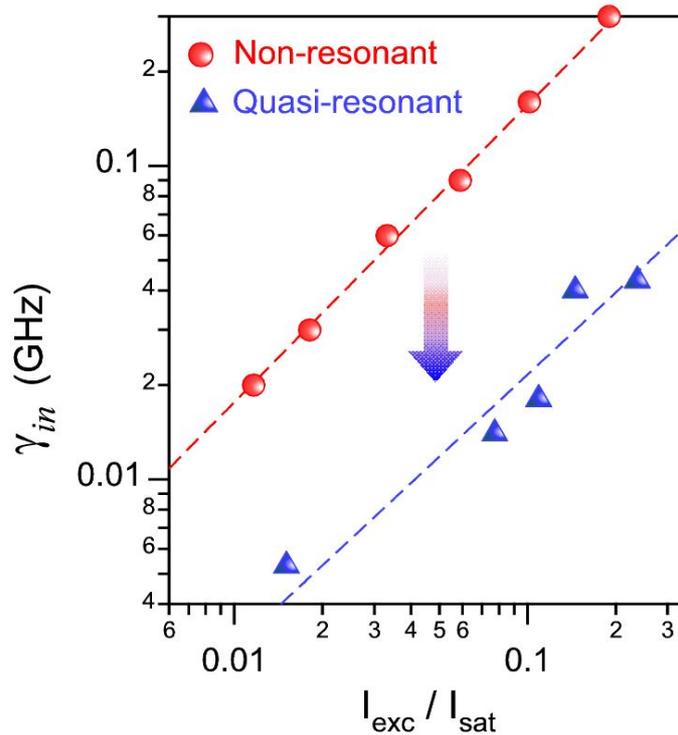


図 4.12:  $\gamma_{in}$  の励起条件依存性. 非共鳴励起時と比べて準共鳴励起では 1 桁程度の抑制が見られる.

## まとめ

本章では単一量子ドットの励起ダイナミクスを評価し、その制御機構について考察した。

・励起強度依存性・直線偏光依存性・時間分解 PL 測定から光学特性を評価し、励起子起源の同定を行った。確認された  $X^0$ ,  $XX^0$ ,  $X^-$  の中でも  $X^-$  発光は非常に明るく、中性-荷電状態間遷移による強度差が示唆された。また同試料上の他 QDs を評価したところ、多くのドットで類似した発光特性を持つことが確認された。

・ $X^-$  発光についての 2 次自己相関測定では通常のアンチバンチング形状が示されたのに対し、 $X^0$  発光ではブロードなバンチングを伴うアンチバンチング特性が確認された。これは支配的な電子の供給レート  $\gamma_{in}$  が反映された結果であり、そのバンチング形状から単一キャリア励起レートが評価可能であることを考察した。

・5 準位系モデルに基づいたレート方程式解析によって相関関数をシミュレーションし、励起レートの定量的評価を行った。見積もられた各種励起レートから  $\gamma_{in}$  が支配的であることが確認され、非共鳴励起時における量子ドット励起機構は単一キャリア励起が中枢的要素であることが分かった。

・励起強度および励起波長に関する調査から励起レートの統率的な比較を行い、励起ダイナミクスの制御機構について考察した。準共鳴励起下における  $[X^0, X^0]$  バンチング特性は非常に緩やかな減衰スローブを示し、結果として  $\gamma_{in}$  の 1 桁程度もの抑圧が観測された。従って電子・正孔対による  $X^0$  直接生成が主な励起機構であることが確認された。

以上の結果は単一励起子の孤立生成を司る励起ダイナミクスの初めての観測例であり、学術的のみならず光子源活用の観点からも重要な意義を持つ。しかしながら準共鳴励起においても微小な  $\gamma_{in}$  は残される結果であり、同様な現象はこれまで準共鳴励起<sup>17, 18, 32, 33</sup>・共鳴励起<sup>34, 35</sup> 双方で報告されている。この観点では結晶欠陥<sup>34</sup> や連続準位層の寄与<sup>28</sup> が拭い去れない量子ドットにおいて、僅かに介在する状態間遷移は重要な課題の 1 つであると考えられる。

## 参考文献

- 1) S. A. Empedocles, D. J. Norris, and M. G. Bawendi, "Photoluminescence spectroscopy of single CdSe nanocrystallite quantum dots", Phys. Rev. Lett. **77**, 3873 (1996).
- 2) S. A. Empedocles and M. G. Bawendi, "Quantum-confined Stark effect in single CdSe nanocrystallite quantum dots", Science **278**, 2114 (1997).
- 3) H. D. Robinson and B. B. Goldberg, "Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots", Phys. Rev. B **61**, 5086(R) (2000).
- 4) V. Türck, et al., "Effect of random field fluctuations on excitonic transitions of individual CdSe quantum dots", Phys. Rev. B **61**, 9944 (2000).
- 5) L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette, "Few-particle effects in single CdTe quantum dots", Phys. Rev. B **65**, 121314 (2002).

- 6) G. Sallen, A. Tribu, T. Aichele, R. André, L. Besombes, C. Bougerol, M. Richard, S. Tatarenko, K. Kheng and J.-Ph. Poizat, "Subnanosecond spectral diffusion measurement using photon correlation", *Nature* **4**, 696 (2010).
- 7) G. Sallen, A. Tribu, T. Aichele, R. André, L. Besombes, C. Bougerol, M. Richard, S. Tatarenko, K. Kheng, and J.-Ph. Poizat, "Subnanosecond spectral diffusion of a single quantum dot in a nanowire", *Phys. Rev. B* **84**, 041405(R) (2011).
- 8) M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, M. Gurioli, and K. Sakoda, "Bunched photon statistics of the spectrally diffusive photoluminescence of single self-assembled GaAs quantum dots", *Phys. Rev. B* **86**, 115330 (2012).
- 9) J. Suffczynski, K. Kowalik, T. Kazimierzuk, A. Trajnerowicz, M. Goryca, P. Kossacki, A. Golnik, M. Nawrocki, and J. A. Gaj, "Single-spin optical read-out in CdTe/ZnTe quantum dot studied by photon correlation spectroscopy", *Phys. Rev. B* **77**, 245306 (2008).
- 10) Y. Igarashi, M. Shirane, Y. Ota, M. Nomura, N. Kumagai, S. Ohkouchi, A. Kiriara, S. Ishida, S. Iwamoto, S. Yoroza, and Y. Arakawa, "Spin dynamics of excited trion states in a single InAs quantum dot", *Phys. Rev. B* **81**, 245304 (2010).
- 11) X. M. Dou, B. Q. Sun, D. S. Jiang, H. Q. Ni, and Z. C. Niu, "Electron spin relaxation in a single InAs quantum dot measured by tunable nuclear spins", *Phys. Rev. B* **84**, 033302 (2011).
- 12) G. Sallen, A. Tribu, T. Aichele, R. André, L. Besombes, C. Bougerol, Tatarenko, K. Kheng, and J.-Ph. Poizat, "Exciton dynamics of a single quantum dot embedded in a nanowire", *Phys. Rev. B* **80**, 085310 (2009).
- 13) T. Kümmell, S. V. Zaitsev, A. Gust, C. Kruse, D. Hommel, and G. Bacher, "Radiative recombination in photoexcited quantum dots up to room temperature: The role of fine-structure effects", *Phys. Rev. B* **81**, 241306 (2010).
- 14) E. Poem, Y. Kodriano, C. Tradonsky, N. H. Lindner, B. D. Gerardot, P. M. Petroff and D. Gershoni, "Accessing the dark exciton with light", *Nature phys.* **6**, 993 (2010).
- 15) T. Smoleński, T. Kazimierzuk, M. Goryca, T. Jakubczyk, L. Kłopotowski, L. Cywiński, P. Wojnar, A. Golnik, and P. Kossacki, "In-plane radiative recombination channel of a dark exciton in self-assembled quantum dots", *Phys. Rev. B* **86**, 241305(R) (2012).
- 16) J. Suffczynski, T. Kazimierzuk, M. Goryca, B. Piechal, A. Trajnerowicz, K. Kowalik, P. Kossacki, A. Golnik, K. P. Korona, M. Nawrocki, J. A. Gaj, and G. Karczewski, "Excitation mechanisms of individual CdTe/ZnTe quantum dots studied by photon correlation spectroscopy", *Phys. Rev. B* **74**, 085319 (2006).
- 17) T. Kazimierzuk, J.A. Gaj, A. Golnik, M. Goryca, M. Nawrocki, M. Koperskia, T. Smoleński, J. Suffczyński, P. Wojnarb and P. Kossackia, "Excitation mechanisms of CdTe/ZnTe quantum dots under non-Resonant and quasi-Resonant regime", *Acta Phys. Polonica A* **119**, 588 (2011).

- 18) B. Pietka, J. Suffczyński, M. Goryca, T. Kazimierzczuk, A. Golnik, P. Kossacki, A. Wyszomolek, J. A. Gaj, R. Stepniowski, and M. Potemski, "Photon correlation studies of charge variation in a single GaAlAs quantum dot", *Phys. Rev. B* **87**, 035310 (2013).
- 19) M. Munsch, J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, E. Dupuy, and J.-M. Gérard, "Linearly Polarized, Single-Mode Spontaneous Emission in a Photonic Nanowire", *Phys. Rev. Lett.* **108**, 077405 (2012).
- 20) S. Ohno, S. Adachi, R. Kaji, S. Muto, and H. Sasakura, "Optical anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **98**, 161912 (2011).
- 21) E. W. Bogaart, J. E. M. Haverkort, T. Mano, T. v. Lippen, R. Nötzel, and J. H. Wolter, "Role of the continuum background for carrier relaxation in InAs quantum dots", *Phys. Rev. B* **72**, 195301 (2005).
- 22) B. M. Weon, J. H. Je, J.-L. Lee, "Lifetime dispersion in a single quantum dot", *Appl. Phys. A* **89**, 1029 (2007).
- 23) H. Kumano, S. Kimura, M. Endo, H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, and I. Suemune, "Deterministic single-photon and polarization-correlated photon pair generations from a single InAlAs quantum dot", *Journal of Nanoelectronics and Optoelectronics* **1**, 39 (2006).
- 24) C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Immamğlu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, and E. Hu, "Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot", *Phys. Rev. B* **63**, 121312 (2001).
- 25) X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune, "Bright single-photon source based on an InAs quantum dot in a silver-embedded nanocone structure", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 131114 (2013).
- 26) R. Seguin, A. Schliwa, T. D. Germann, S. Rodt, K. Pötschke, A. Strittmater, U. W. Pohl, D. Bimberg, M. Winkelkemper, T. Hammerschmidt, and P. Krazer, "Control of fine-structure splitting and excitonic binding energies in selected individual InAs/GaAs quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **89**, 263109 (2006).
- 27) M. H. Baier, A. Malko, E. Pelucchi, D. Y. Oberli, and E. Kapon, "Quantum-dot exciton dynamics probed by photon-correlation spectroscopy", *Phys. Rev. B* **73**, 205321 (2006).
- 28) Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishikawa, and Y. Arakawa, "Efficient Carrier Relaxation Mechanism in InGaAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots Based on the Existence of Continuum States", *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4114 (1999).
- 29) J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaître, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, and T. F. Krauss, "Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In(Ga)As quantum dots", *Phys. Rev. B* **63**, 073307 (2001).
- 30) P. Ester, L. Lackmann, S. M. de Vasconcellos, M. C. Hübner, A. Zrenner, and M. Bicheler, "Single photon emission based on coherent state preparation", *Appl. Phys. Lett.* **91**, 111110 (2007).

- 31) D. Dufaker, L. O. Mereni, K. F. Karlsson, V. Dimastrodonato, G. Juska, P. O. Holtz, and E. Pelucchi, "Exciton-phonon coupling in single quantum dots with different barriers", *Appl. Phys. Lett.* **98**, 251911 (2011).
- 32) C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon, E. Waks, and Y. Yamamoto, "Submicrosecond correlations in photoluminescence from InAs quantum dots", *Phys. Rev. B* **69**, 205324 (2004).
- 33) K. Takemoto, S. Hirose, M. Takatsu, N. Yokoyama, Y. Sakuma, T. Usuki, T. Miyazawa, and Y. Arakawa, "Telecom single-photon source with horn structure", *phys. stat. sol. (c)* **5**, 2699 (2008).
- 34) H. S. Nguyen, G. Sallen, Voisin, Ph. Roussignol, Diederichs, and G. Cassabois, "Optically gated resonant emission of single quantum dots", *Phys. Rev. Lett.* **108**, 057401 (2012).
- 35) M. J. Conterio, N. Sköld, D. J. P. Ellis, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "A quantum dot single photon source driven by resonant electrical injection", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 162108 (2013).

## 5 高純度単一光子発生と光子統計評価法の修正

序論でも述べたように長距離 QKD への応用を念頭にした場合、安全鍵生成効率を最大限に引き出すための最重要性能指標は光子の単一性である<sup>1)</sup>。多光子生成の寄与  $g^{(2)}(0)$  は光子分割攻撃といった秘匿性低減の要素であり、それゆえ伝送距離に制限を定める。例えば Intallura らは波長帯  $1.3 \mu\text{m}$ ・発光効率 4.6% を有する単一量子ドットを用いて伝送距離 35 km での QKD 試行実験に成功しているが<sup>2)</sup>、その伝送距離は  $g^{(2)}(0) \sim 0.166$  によって制限されたものである。また竹本らは  $g^{(2)}(0)$  を 0.055 まで向上させ、伝送距離 50 km への飛躍的改善を達成したが<sup>3)</sup>、この場合も伝送距離は  $g^{(2)}(0)$  によって定められたものである。このように QKD の長距離化には光子の純度向上が鍵であり、それゆえ  $g^{(2)}(0)$  抑制に向けた検出器のゲート駆動<sup>3)</sup> や励起光の短パルス化<sup>4)</sup>・準共鳴励起による孤立二準位系形成<sup>5-8)</sup> といった様々な手法が検討されている。

一般に非共鳴励起された量子ドット発光における  $g^{(2)}(0)$  の主要因は広大なバリア層・濡れ層領域からの無相関光子生成であり<sup>5)</sup>、その観点で半導体部が微小化された光学構造の使用は優位な  $g^{(2)}(0)$  改善策である。特に金属埋め込み構造では、励起に寄与する半導体部が  $0.1 \mu\text{m}^3$  程度に制限されており、複数量子ドット発光の影響を除外するとスペクトル背景光の懸念は極めて小さいと考えられる。加えて 4 章で実証したように準共鳴励起された量子ドット発光は孤立した二準位系として駆動し、高純度単一光子生成が一層期待される。

単一光子純度の評価にはパルス励起下における 2 次自己相関関数が計測され<sup>3-13)</sup>、その関数は近似的に次式で表される  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が広く用いられる。

$$\tilde{g}^{(2)}(\tau) \equiv N^{-1} \left\{ \alpha_0 \exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_X}\right) + \sum_{n \neq 0} \alpha_n \exp\left(-\frac{|\tau - n \cdot T_{rep}|}{\tau_X}\right) \right\} \quad (5.1)$$

ここで  $\alpha_{n \neq 0} = 1$ 、 $\alpha_0$  は多光子生成の寄与 ( $0 \leq \alpha_0 \leq 1$ ) であり、 $\tau_X$ ,  $T_{rep}$  はそれぞれ励起子の寿命、隣接励起パルス間隔を指す。導出については 3 章で述べたが、上式は半経験則に基づいて定義された単純な単一指数関数減衰の和である。しかしながら  $\tau = 0$  を挿入すると分かるように  $\tilde{g}^{(2)}(\tau = 0) \neq \alpha_0$  であり、微小な  $g^{(2)}(0)$  評価には適さない。従って高純度単一光子源の調査には光子統計評価法の検討が必要である。

以上を踏まえ本章では、準共鳴励起下における金属埋め込み単一量子ドットを用いて高純度単一光子発生および光子統計評価法についての検討を行う。まず初めに 2 次自己相関関数を計測し、式 (5.1) を用いた  $g^{(2)}(0)$  評価について議論する。次に単一二準位系における分布ダイナミクスを考慮した光子統計について考え、より一般的な  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  の再定義および光子純度の高精度評価について検討する。また非共鳴/準共鳴励起時における  $g^{(2)}(0)$  について評価し、高純度単一光源としての有用性を実証する。最後に、高速駆動や室温駆動といった実用的なアプローチ上での光子純度評価についての考察を行う。

### 5.1 準共鳴励起下での光子統計評価

図 5.1 に準共鳴励起下における単一 QD 発光の光学特性についての測定結果を示す。(a) は  $T_{rep} = 13.2 \text{ ns}$ 、エネルギー  $1.3929 \text{ eV}$  のモードロック Ti:Sa レーザ励起下での発光スペクトルであり、本章で用いるのは孤立的に生成した  $X^0$  光子である。挿入図には励起光の波長掃引によって計測した  $X^0$  発光に関する  $\mu\text{-PLE}$  スペクトルを示したが、 $\Delta E = 35 \text{ meV}$  および  $70 \text{ meV}$  で明瞭な離散ピークが見られる。これらはそれぞれ GaAs の LO, 2LO フォノンエネルギーに相当し、ここでは赤矢印で示した 2LO を採用した。(b) は励起強度依存性の結果であり、2 次自己相関測定は飽

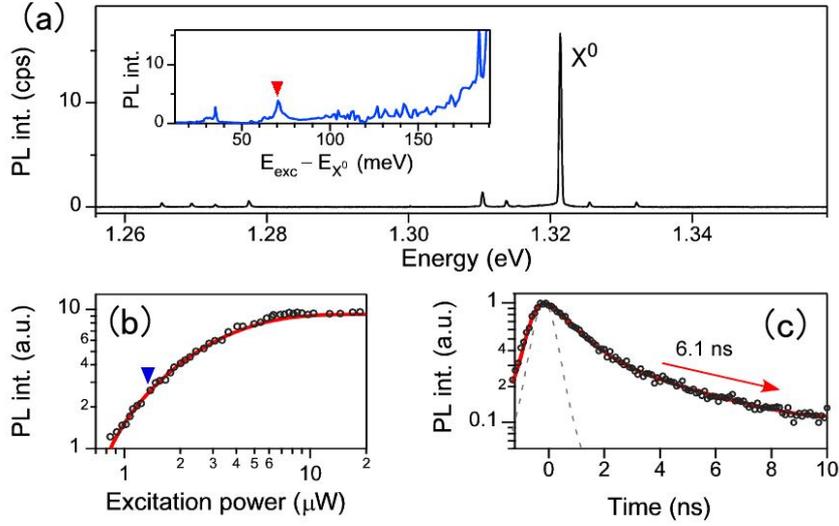


図 5.1: (a) 準共鳴励起によって形成された孤立的  $X^0$  発光スペクトル. 測定は  $\Delta E=70$  meV にて行った (挿入図).  $X^0$  発光における (b) 励起強度依存性と (c) 時間分解 PL 測定結果. 6.1 ns の比較的遅い減衰時定数を示す. なお破線は測定系の応答関数である.

和強度の 30% 程度 ( $I_{exc}/I_{sat} \sim 0.3$ ) に相当する比較的弱励起条件下にて行う。また (c) は時間分解 PL 測定結果であるが、 $X^0$  発光は二成分の減衰時定数を示す。赤実線は次式で展開したダブル指数関数減衰によるフィットである。

$$\tau_{decay} = A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{X1}}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{X2}}\right) \quad (5.2)$$

但し、

$$A_1 + A_2 = 1. \quad (5.3)$$

フィッティングより見積もられた減衰時定数  $\tau_{X1}$ ,  $\tau_{X2}$  はそれぞれ 6.1 ns, 0.9 ns であり、それら強度比は  $A_1: 0.31$ ,  $A_2: 0.69$  であった。速い成分は発光再結合レートに相当し<sup>14)</sup>、遅い成分は暗励起子準位との状態間遷移<sup>15)</sup> による影響と考えられる。

図 5.2 に 2 次の光子自己相関測定によって得られた結果を示す。 $\tau \neq 0$  におけるピーク高さ 1 に対し、 $\tau = 0$  では同時計数ピークの極めて強い抑制が見られ、純度の高い単一光子生成であることが分かる。また各計数ピーク間でオーバーラップが見受けられるが、これは発光の持つ比較的遅い減衰時定数によるものである。ここで、検出器の暗計数による偶発的的同时計数  $B$  についての見積を行う。2 次光子相関関数において、暗計数  $D_1$ ,  $D_2$  を持つ 2 つの検出器によって生じる  $B$  は、

$$B = \frac{S_1 D_2 + S_2 D_1 + D_1 D_2}{(S_1 + D_1)(S_2 + D_2)} \quad (5.4)$$

で表される<sup>14)</sup>。ここで  $S_1$ ,  $S_2$  は 2 つの検出器で計測される光子カウントレートである。実際の計測では  $S_1 = S_2$  および  $D_1 = D_2$  であり、SPCM でのカウントレートは  $S \sim 11,500$  cps /  $D \sim 120$  cps であった。従って上式より  $B = 0.021$  となる。しかしながら一般に検出器の暗計数は時間的に不連続な計数であるため、偶発的的同时計数は遅延時間  $\tau$  に依らない一定値として同時計測される。対してパルス励起下における発光  $S$  は間隔  $T_{rep}$  の同時計数を取るため、 $B$  の寄与の評価には計数

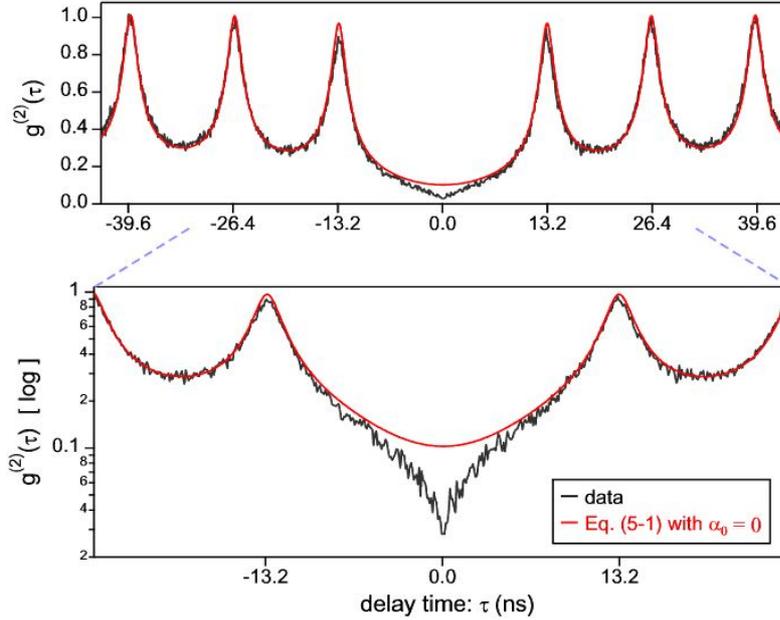


図 5.2: 自己相関関数測定結果. 赤実線は  $\alpha_0=0$  を仮定したシミュレーション結果であり,  $\tau=0$  近傍にて測定結果は式 (5.1) とは本質的に異なる計数ディップを示す.

値の規格化が必要である。測定における MCS のピクセル数は 1848 pixel であり、それら総ピクセル内で計測された同時計数  $C(\tau)/C(\tau \neq 0)$  の積分値は 814.5 カウントである。従って 1 pixel 当たりで計測される偶発的の同時計数は  $\frac{814.5 \times 0.021}{1848} \sim 0.009$  と推測される。これは微小な値であるものの、十分な長時間積算 ( $\sim 10\text{h}$ ) においては一定値として寄与することとし、以降において解析に使用する相関関数は  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  と  $B=0.009$  の足し合わせを再度規格化した、

$$\tilde{g}_{meas}^{(2)}(\tau) = N^{-1} \left\{ B + \tilde{g}^{(2)}(\tau) \right\} \quad (5.5)$$

を使用することとする。

図 5.2 の赤線で示した関数は  $\tilde{g}_{meas}^{(2)}(\tau)$  によるシミュレーション結果であり、 $\alpha_0 = 0$  の理想的な状況を仮定している。また測定系の応答時間  $\sim 1.0$  ns も考慮した結果であり、 $\tau_X$  には測定 (図 5.1c) で得られた二成分の減衰時定数を用いて式 (5.1) を線形に拡張して使用した。図から分かるようにシミュレーションは計数ピークの減衰スロープおよびピーク間のオーバーラップと良い一致を示し、測定結果をおおまかに再現している。しかしながら  $\tau=0$  においては差異が見られ、本質的に異なる形状であることが分かる。下段の log スケールが分かりやすいが、測定結果が  $\alpha_0=0$  での  $\tilde{g}_{meas}^{(2)}(\tau)$  を大きく下回る計数ディップを示している。通常ピーク形状として評価される  $g^{(2)}(0)$  に対して、これは奇異なディップ形状であり、 $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  では評価不能な計数構造である。

## 5.2 光子統計評価法の一般化

前節では孤立二準位系が作り出した強いアンチバンチング特性が  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  では再現不能な計数ディップを持つことを示した。これは  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が  $g^{(2)}(\tau)$  評価関数として適切ではないことを示唆しており、光子統計評価法の再検討が必要である。ここでは測定によって得られた  $g^{(2)}(\tau)$  と  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  とで生じた差異について考察し、実際の二準位系内で起こる分布ダイナミクスを考慮した一般的な  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  定義を検討する。

### 5.2.1 非物理的な同時計数

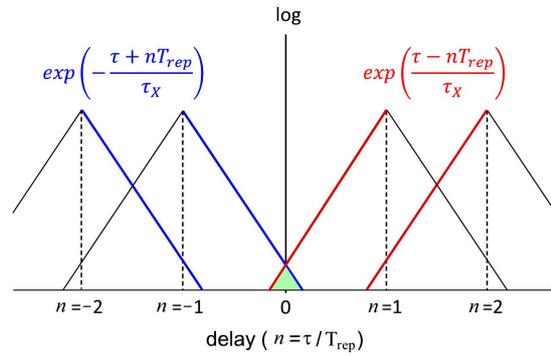


図 5.3:  $\alpha_0=0$  における  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$ .

まず  $\tau = 0$  近傍にて  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が作る同時計数について考える。図 5.3 は  $\alpha_0=0$  下での  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  を模式的に示したものである。単一指数関数減衰を持つ隣接計数ピーク ( $n \pm 1$ ) が、その減衰によって  $\tau = 0$  に与える同時計数を考えるとその寄与は、

$$\exp\left(\pm \frac{\mp T_{rep}}{\tau_X}\right) \quad (5.6)$$

で与えられる。これを各  $n$  個目の計数ピークからの寄与に拡張すると、

$$\exp\left(\pm \frac{\mp n T_{rep}}{\tau_X}\right) \quad (5.7)$$

となり、それらの和は、

$$\Sigma = \frac{2 \exp(-T_{rep}/\tau_X)}{1 - \exp(-T_{rep}/\tau_X)} \quad (5.8)$$

で表される。これは  $\tau=0$  での寄与のみならず、全ての計数ピークが  $\tau = nT_{rep}$  で受ける同時計数の寄与である。従って  $n \neq 0$  の計数ピークの高さを考えると  $1 + \Sigma$  であり、これを用いて規格化を行うと、 $\tilde{g}^{(2)}(0)$  は次式で記述される。

$$\tilde{g}^{(2)}(0) = \frac{\alpha_0 + \Sigma}{1 + \Sigma} = \frac{\alpha_0 + 2 \exp(-T_{rep}/\tau_X)}{1 + \exp(-T_{rep}/\tau_X)} \quad (5.9)$$

上式から分かるように  $\tilde{g}^{(2)}(0)$  は  $\alpha_0$  と  $T_{rep}/\tau_X$  から定まる値である。従って  $\alpha_0 \sim 0$  や、 $T_{rep}/\tau_X$  値の小さい状況においては  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が適用不能である。今回の場合では  $\tau_X$  が 6.1 ns の比較的遅い時定数を持っており、それによって実験との大きな差異が表れたと考察される。

### 5.2.2 単一二準位系における分布ダイナミクス

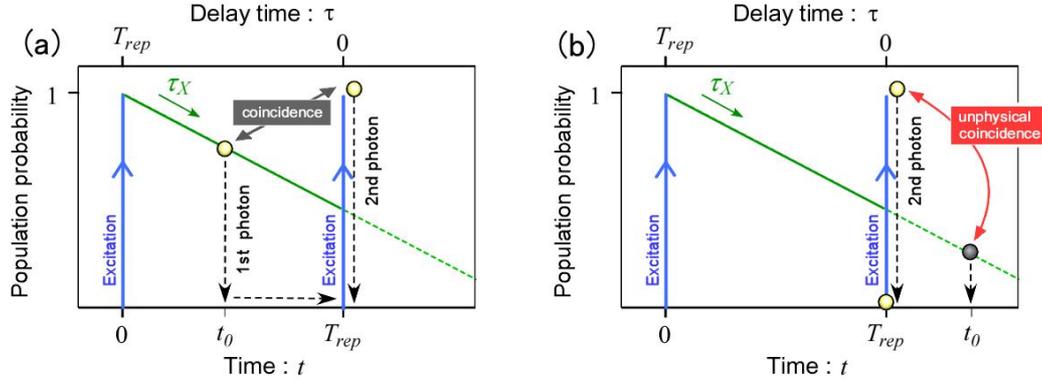


図 5.4: パルス励起時における励起子分布確率の時間発展.

次に  $\tau=0$  近傍において同時計数を作る実際の二準位系内の分布ダイナミクスについて考え、 $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  の一般化について検討する。図 5.4(a) はパルス励起時における  $X^0$  の分布確率の時間発展を模式的に図示したものである。ある時刻  $t=0$  で入射された励起パルスによって生成された  $X^0$  は  $\tau_X$  で減衰し、 $t=t_0$  で光子を放出する (1st photon)。光子生成後の QD は真空状態であり、 $t=T_{rep}$  で 2 つ目の励起パルスが入射したとすると  $X^0$  が再形成される。ここで  $\tau=0$  近傍で作られる  $g^{(2)}(\tau)$  を単純化するため、次の仮定を加える。各励起パルスによって生成する分布確率は 1 とし、2 つ目の励起で分布した  $X^0$  は励起の直後すなわち時刻  $t=T_{rep}$  で光子放出する (2nd photon)。図の上軸はこの状況下における 2 つの  $X^0$  光子が作る同時計数の遅延時間  $\tau$  を示したものであり、 $\tau = T_{rep} - t_0$  で与えられる。同時計数値は  $X^0$  の分布確率  $\exp(-\frac{t}{\tau_X})$  に比例するため、相関関数は  $\exp(-\frac{\tau+T_{rep}}{\tau_X})$  で表される。しかし図 5.4(b) に示すように  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  では  $\tau \leq 0$  においても確率的に同時計数値を持ち、これが測定との差異を生む。この場合の  $\tau=0$  での値  $\exp(\frac{T_{rep}}{\tau_X})$  を非物理的な同時計数確率 1 とすると、その確率に対して  $\tau < 0$  では  $\exp(-\frac{\tau}{\tau_X})$  の確率で非物理的な計数が与えられる。また  $g^{(2)}(\tau)$  は偶関数であるため  $\tau > 0$  においても同様に確率は  $\exp(-\frac{\tau}{\tau_X})$  である<sup>16)</sup>。従って  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が  $\tau \sim 0$  で作る非物理的な同時計数の確率は、

$$\exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_X}\right) \quad (5.10)$$

と表される。上式は真空状態の分布確率  $P_{vac}$  を考えると分かる易い。 $\tau=0$  における  $P_{vac}$  を 1 とすると、 $\tau$  だけずれた時刻における  $P_{vac}(\tau)$  は  $\exp(-\frac{|\tau|}{\tau_X})$  で減衰していき、その確率で励起子分布を許容する。従って  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  において物理的な同時計数を与える確率は、

$$1 - \exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_X}\right) \quad (5.11)$$

で表される。以上を踏まえて一般的な  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  を以下の様に再定義する。

$$\tilde{g}^{(2)}(\tau \geq 0) \equiv N^{-1} \left\{ \alpha_0 \exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_X}\right) + \sum_{n>0} \alpha_n \exp\left(-\frac{|\tau - n \cdot T_{rep}|}{\tau_X}\right) \cdot [1 - \exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_X}\right)] \right\} \quad (5.12)$$

但し、

$$\tilde{g}^{(2)}(\tau \leq 0) = \tilde{g}^{(2)}(\tau \geq 0). \quad (5.13)$$

上式において  $\tilde{g}^{(2)}(0) = \alpha_0$  であり、非物理的な同時計数の影響なく多光子の寄与が評価可能と考えられる。また  $T_{rep}/\tau_X \rightarrow \infty$  では従来の形式 (5.1) に収束し、より一般的な関数形である。一方、 $T_{rep}/\tau_X \rightarrow 0$  極限では  $\tilde{g}^{(2)}(\tau) \rightarrow N^{(-1)}1 - \exp(-\frac{|\tau|}{\tau_X})$  となり CW 励起における  $g^{(2)}(\tau)$  へと収束する。なおここで励起レート  $G$  が含まれないのは  $\delta$  関数で近似される励起パルスを仮定しているためである。

### 5.3 高純度単一光子発生

図 5.5 に再定義された  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  を用いたシミュレーション結果を示す。従来の形式では再現不能であったディップ構造がほぼ完全に説明されており、二準位の分布ダイナミクスを考慮した式 (5.13) の汎用性が良く表れている。下図は  $\tau=0$  近傍での拡大図であり、幾つかの  $\alpha_0$  を仮定した場合のシミュレーションを示した。破線は偶発的同時計数  $B$  および測定系の時間応答によって制限される背景同時計数値であるが、特に  $\tau=0$  での計測点はほぼ背景値に近い値を持つ。これは多光子の寄与が限りなく 0 に近い高純度単一光子生成であることを示唆している。実験とシミュレーション結果とを比較してみると、ディップ構造を作るスロープと良い一致を示すのは  $\alpha_0=0.002\sim 0.004$  である。上図の赤線は  $\alpha_0=0.003$  でのシミュレーション結果を図示したが、各  $\alpha_0$  値において最も  $g^{(2)}(\tau)$  を再現していることが分かる。従って光源本来の  $g^{(2)}(0)$  は 0.003 程度であり、これは従来報告例<sup>3-13)</sup>を 1 桁凌駕する超高純度単一光子生成である。なお  $g^{(2)}(0)$  値の誤差について判別が困難であるものの、 $10^{-3}$  オーダーの  $g^{(2)}(0)$  であることは解析結果から明らかである。より高精度  $g^{(2)}(0)$  評価への検討については次節で議論する。

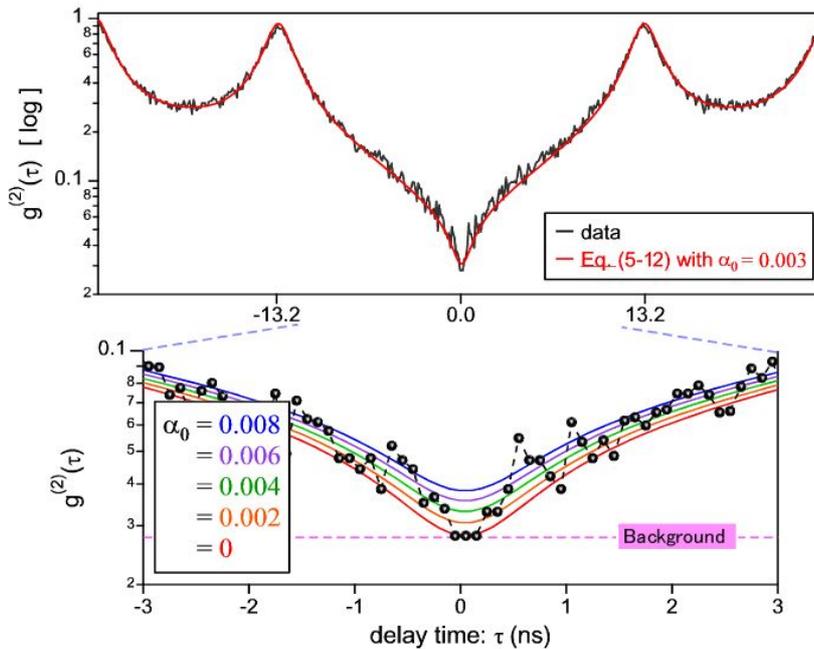


図 5.5: 再定義された  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  によるシミュレーション結果. 上図では  $\alpha_0=0.003$  を仮定している. 従来評価法 (式 5.1) では再現不能であった計数ディップがほぼ完全に再現された.

また図 5.6(a) に強度飽和領域 ( $I_{exc}/I_{sat}=1$ ) 条件下において計測された自己相関関数を示す。図より明らかのように励起強度の増加にも関わらず強いアンチバンチング特性である。赤線は式 (5.13) でのシミュレーション結果であり、実験結果の適格な再現が確認される。しかしこの場合、青線で示したように  $\alpha_0=0$  では  $\tau=0$  近傍での  $g^{(2)}(\tau)$  は再現せず、0.007 程度の多光子生成寄与があると見積もられる。なお  $I_{exc}/I_{sat}=0.3$  での測定結果 (図 5.2) と比較すると隣接計数ピーク間とのオーバーラップの減少が見受けられるが、これは  $X^0$  発光の遅い減衰時定数が励起強度によって変化する

るためであり、6.1 ns 程度であった時定数は  $I_{exc}/I_{sat}=1$  条件下では 3.7 ns まで短寿命化した。この要因について詳細は不明であるが、4 章にて検討した荷電励起子との微小な状態間遷移が関係していると考えられる。

図 5.6(b) には単一光子純度の励起条件依存性として 非共鳴励起下、準共鳴励起下で得られた  $\alpha_0$  値を纏めた。非共鳴励起時に着目すると、弱励起時  $I_{exc}/I_{sat}=0.2$  における  $\alpha_0=0.01$  から強励起時  $I_{exc}/I_{sat}=0.2$  における  $\alpha_0=0.08$  まで増大していく。しかしながらこれらの値は一般的な非共鳴励起下での報告例<sup>17-19</sup> と比べると 1 桁程度低く、金属埋め込み構造による半導体部微小化が大きく寄与した  $g^{(2)}(0)$  抑制改善であると考えられる。また準共鳴励起下での結果においても励起強度増加による  $g^{(2)}(0)$  増大の傾向は同様であるが、その値は励起強度に依らず  $10^{-3}$  オーダーである。これは準共鳴励起による恩恵であり、非共鳴励起と比べると 1 桁以上もの純度向上であることが分かる。

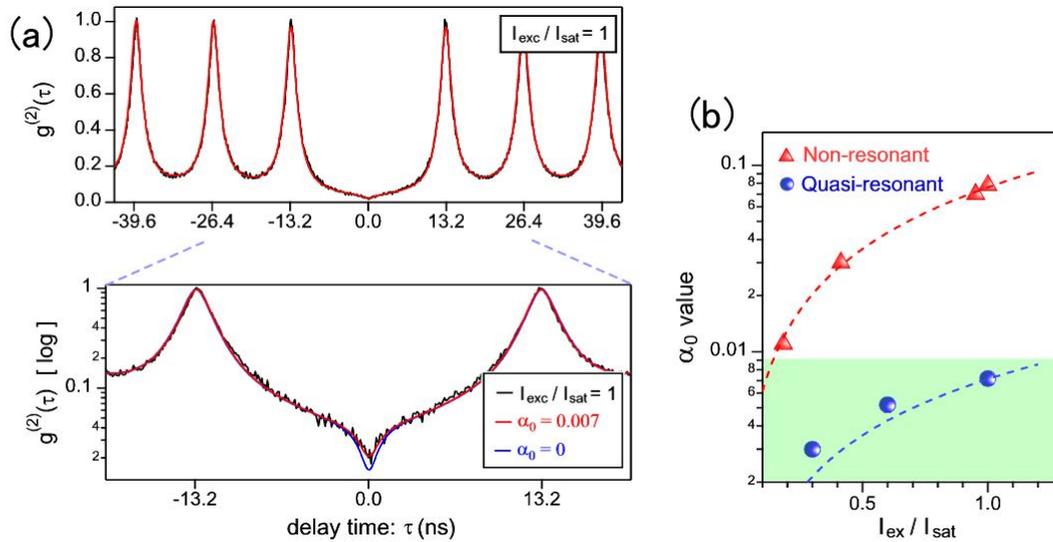


図 5.6: (a)  $I_{exc}/I_{sat}=1$  における  $g^{(2)}(\tau)$  測定結果と式 (5.13) を用いた  $g^{(2)}(0)$  評価。  $\alpha_0=0.007$  を仮定した。 (b) 非共鳴励起 (赤) と準共鳴励起 (青) による検証で見積もられた  $\alpha_0$  の  $I_{exc}/I_{sat}$  依存性。準共鳴励起下における  $\alpha_0$  は励起強度に依らず  $10^{-3}$  オーダーであり (緑枠)、単一光子源としての優位性が伺える。なお破線は補助線である。

## 5.4 高速駆動・高温駆動化についての考察

最後に観測される計数ディップの深さについて考察し、様々な測定条件における  $g^{(2)}(0)$  評価について議論する。これまでの議論を基にすると、観測されるディップ深さは式 (5.1) で表される従来の  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が  $\tau=0$  で残す計数值  $\Sigma/(1+\Sigma)$  と、光源本来の  $g^{(2)}(0)$  値 ( $\alpha_0$ ) との差、

$$\frac{\Sigma}{1+\Sigma} - \alpha_0 = \frac{2 \exp(-T_{rep}/\tau_X)}{1 + \exp(-T_{rep}/\tau_X)} - \alpha_0 \quad (5.14)$$

で与えられる。図 5.7(a) に上式を  $T_{rep}/\tau_X$  を関数とした幾つかの  $\alpha_0$  におけるプロットを示す。 $T_{rep}/\tau_X \rightarrow 0$  に伴うディップの深化が伺える。また  $\alpha_0$  が有限の値を持つときには  $T_{rep}/\tau_X \rightarrow \infty$  において負の値を取るが、これはピーク型の計数となることを指す。図から分かるように  $T_{rep}/\tau_X > 8$  の条件における  $10^{-3}$  以上の  $\alpha_0$  評価では、ピーク型の計数が現れるため、計数高さから多光子寄与が直接評価可能である。この観点で、一般的に光子統計評価には  $T_{rep}/\tau_X > 10$  条件下での計測が行われる<sup>3-9,11,12</sup>。しかしながら一方で、 $T_{rep} \rightarrow 0$  に近づく高速駆動時<sup>13,20</sup> や、比較的長い  $\tau_X$  を示す高温駆動時<sup>21-24</sup> といった実用的なアプローチでは特に微小な  $\alpha_0$  においてディップ型の計数が現れるため、式 (5.13) を用いた評価が本質的となる。

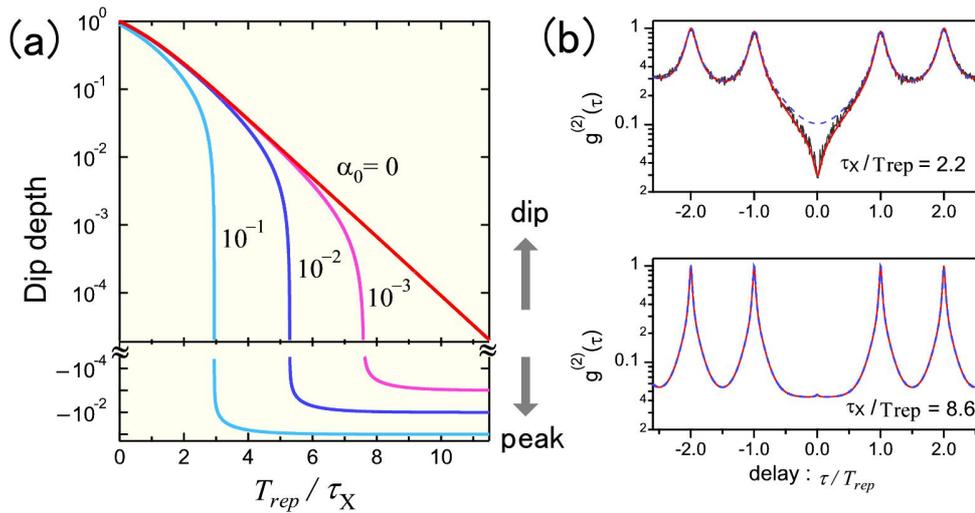


図 5.7: (a)  $\tau=0$  にて観測される計数ディップ深さの  $T_{rep}/\tau_X$  依存性.  $T_{rep}/\tau_X \rightarrow 0$  や  $\alpha_0 \sim 0$  条件下においては一般化された  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が本質的であることが分かる。また負の depth はピーク形状であることを指し、この条件下でのみ式 (5.1) が適用される。 (b) 測定結果 (上図) の  $4T_{rep}$  条件下でのシミュレーション結果.  $T_{rep}/\tau_X$  の増大によって  $\alpha_0$  はピーク形状として評価され、また状況では式 (5.13) (赤線) は式 (5.1) (青破線) へと収束する。

また図 5.7(b) 下図には  $I_{exc}/I_{sat}=0.3$  における測定結果 (上図) を基に、励起パルス間隔を  $4 \times T_{rep}$  に拡張した場合の  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  シミュレーション結果を示した。赤線が再定義した  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$ 、青破線が従来の形式である。双方において  $\alpha_0=0.003$  を仮定しており、また励起パルス周期の低下による光子カウントレート低減を考慮し偶発的同時計数  $B$  の寄与は 4 倍であることを想定した。上図の  $T_{rep}/\tau_X=2.2$  における条件と比較すると、 $T_{rep}/\tau_X$  の増加  $\sim 8.6$  が反映され、各隣接計数ピーク同士のオーバーラップが低減し、更に  $\tau \sim 0$  ではピーク形状の計数が現れる。これは  $T_{rep}/\tau_X$  増大

に伴い  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が従来の形式に収束し、 $\alpha_0$  が直接評価可能となったことを示している。従って検出器の時間応答や暗計数の寄与  $B$  を明確に差別化し、高精度  $g^{(2)}(0)$  評価に向けた理想的測定条件は  $T_{rep}/\tau_X \rightarrow \infty$  である。

## まとめ

本章では準共鳴励起によって形成された孤立的単一励起子発光を用いて高純度単一光子生成の実証および光子統計評価法の一般化についての検討を行った。

・2次自己相関測定から極めて強いアンチバンチングを観測し、従来評価法とは本質的に異なる計数ディップ構造について考察した。この特性は二準位系の分布ダイナミクスに起因した差異であることを示し、より一般的な自己相関関数  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  を定義した。

・再定義された  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  は実験結果をほぼ完全に説明し、多光子生成の寄与  $g^{(2)}(0)=0.003$  の評価に成功した。また様々な励起条件下での検証から強度飽和領域における  $g^{(2)}(0)=0.007$  を実証した。これは準共鳴励起によって齎された結果であり、従来性能を大きく凌駕する高純度単一光子生成である。

・また  $T_{rep}/\tau_X$  低下時における  $g^{(2)}(0)$  評価について考察し、その場合の光子純度評価には再定義された  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  の使用が不可欠であることを示した。

以上の結果は単一光子源を用いた光子統計評価において一般化された  $\tilde{g}^{(2)}(\tau)$  が本質的であり、特に高速動作や高温動作といった実用的な駆動条件において極めて本質的であることを示している。また  $10^{-3}$  オーダーの  $g^{(2)}(0)$  を有する高純度単一光子生成に成功し、長距離 QKD に向けた重要な結果であると考えられる。

## 参考文献

- 1) E. Waks, C. Santori, and Y. Yamamoto, "Security aspects of quantum key distribution with sub-Poisson light" Phys. Rev. A **66**, 042315 (2002).
- 2) P. M. Intallura, M. B. Ward, O. Z. Karimov, Z. L. Yuan, P. See, A. J. Shields, P. Atkinson, and D. A. Ritchie, "Quantum key distribution using a triggered quantum dot source emitting near  $1.3 \mu\text{m}$ ", Appl. Phys. Lett. **91**, 161103 (2007).
- 3) K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, K. Wakui, S. Hirose, T. Usuki, M. Takatsu, N. Yokoyama, K. Yoshino, A. Tomita, S. Yorozu, Y. Sakuma, and Y. Arakawa, "Transmission Experiment of Quantum Keys over 50 km Using High-Performance Quantum-Dot Single-Photon Source at  $1.5 \mu\text{m}$  Wavelength", Appl. Phys. Express **3**, 092802 (2010).
- 4) S. Ates, I. Agha, A. Gulinatti, I. Rech, A. Badolato, and K. Srinivasan, "Improving the performance of bright quantum dot single photon sources using temporal filtering via amplitude modulation", Nature Scientific Reports **3**, 1397 (2013).
- 5) A. Malko, M. H. Baier, K. F. Karlsson, E. Pelucchi, D. Y. Oberli, and E. Kapon, "Optimization of the efficiency of single-photon sources based on quantum dots under optical excitation" Appl. Phys. Lett. **88**, 081905 (2006).

- 6) P. Ester, L. Lackmann, S. Michaelis de Vasconcellos, M. C. Hübner, A. Zrenner, and U. Bichler, "Single photon emission based on coherent state preparation" *Appl. Phys. Lett.* **91**, 111110 (2007).
- 7) K. Takemoto, S. Hirose, M. Takatsu, N. Yokoyama, Y. Sakuma, T. Usuki, T. Miyazawa, and Y. Arakawa, "Telecom single-photon source with horn structure", *phys. stat. sol. (c)* **5**, 2699 (2008).
- 8) V. Giesz, O. Gazzano, A. K. Nowak, S. L. Portalupi, A. Lemaître, I. Sagnes, L. Lanco, and P. Senellart, "Influence of the Purcell effect on the purity of bright single photon sources", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 033113 (2013).
- 9) T. Heindel, C. A. Kessler, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, F. Hargart, W.-M. Schulz, M. Eichfelder, R. Robach, S. Nauwerth, M. Lerner, H. Weier, M. Jetter, M. Kamp, S. Reitzenstein, Sven Höfling, P. Michler, H. Weinfurter, and A. Forchel, "Quantum key distribution using quantum dot single-photon emitting diodes in the red and near infrared spectral range" *N. Journal of Phys.* **14**, 083001 (2012).
- 10) J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne and J.-M. Gérard "A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire" *Nature photon.* **4**, 174 (2010).
- 11) A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-Ph. Poizat, and P. Grangier, "Single Photon Quantum Cryptography", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187901 (2002).
- 12) V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.-E. Pistol, L. Samuelson, and G. Bjork, "Single quantum dots emit single photons at a time: Antibunching experiments", *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2476 (2001).
- 13) K. Rivoire, S. Buchley, A. Majumdar, H. Kim, P. Petroff, and J. Vučković, "Fast quantum dot single photon source triggered at telecommunications wavelength", *Appl. Phys. Lett.* **98**, 083105 (2011).
- 14) C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Immamglu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, and E. Hu, "Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot", *Phys. Rev. B* **63**, 121312 (2001).
- 15) T. Smoleński, T. Kazimierczuk, M. Goryca, T. Jakubczyk, Ł. Kłopotowski, Ł. Cywiński, P. Wojnar, A. Golnik, and P. Kossacki, "In-plane radiative recombination channel of a dark exciton in self-assembled quantum dots", *Phys. Rev. B* **86**, 241305(R) (2012).
- 16) B. Lounis, H.A. Bechtel, D. Gerion, P. Alivisatos, W.E. Moerner, "Photon antibunching in single CdSe/ZnS quantum dot fluorescence", *Chem. Phys. Lett.* **329**, 399 (2000).
- 17) M. Pelton, C. Santori, J. Vučković, B. Zhang, G. S. Solomon, J. Plant, and Y. Yamamoto, "Efficient source of single photons: A single quantum dot in a micropost microcavity", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 233602 (2002).

- 18) M. Munsch, N. S. Malik, J. Bleuse, E. Dupuy, A. Delga, J.-M. Gérard, and J. Claudon, "The photonic trumpet: An efficient, broadband interface between a solid-state quantum emitter and a Gaussian beam", arXiv:1209.5269 (2012).
- 19) M. E. Reimer, G. Bulgarini, N. Akopian, Moïra Hocevar, M. B. Bavinck, M. A. Verheijen, E. P.A.M. Bakkers, L. P. Kouwenhoven, and V. Zwiller, "Bright single-photon sources in bottom-up tailored nanowires", *Nature commun.* **3**, 737 (2012).
- 20) F. Hargart, C. A. Kessler, T. Schwarzbäck, E. Koroknay, S. Weidenfeld, M. Jetter, and P. Michler, "Electrically driven quantum dot single-photon source at 2 GHz excitation repetition rate with ultra-low emission time jitter", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 011126 (2013).
- 21) L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, and U. P. Wild, "Nonclassical Photon Statistics in Single-Molecule Fluorescence at Room Temperature", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1148 (2000).
- 22) R. Alléaume, F. Treussart, J.-M. Courty, and J.-F. Roch, "Photon statistics characterization of a single-photon source", *New J. Phys.* **6**, 85 (2004).
- 23) A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, and P. Grangier, "Nonclassical radiation from diamond nanocrystals", *Phys. Rev. A* **64**, 061802(R) (2001).
- 24) A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat, and P. Grangier, "Single Photon Quantum Cryptography" *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187901 (2002).



## 6 (111)A 面量子ドットからの量子もつれ光子対生成

第二世代 QKD の実現や量子中継技術の構築に向けてはベル状態の共有が極めて本質的な要素であり、それゆえ光源の研究開発が鍵を握る。現在主に用いられる非線形光学結晶を介した光子対生成手法では比較的簡易な装置で良質なもつれ状態が得られるものの、時間的・空間的にランダムな光子統計性が懸念されており、システム実装には大きな制約が課せられている<sup>1)</sup>。対してこれまで実証してきたように、量子ドット光源ではクロック同期した純度の高い光子統計を有し、今後の QKD 研究発展への貢献が大いに期待される。

量子ドット  $XX^0-X^0$  カスケード遷移を用いたもつれ光子対生成の初めての実証は有限磁場下において行われた<sup>2)</sup>。この場合、電子・正孔間に働く異方性交換相互作用は磁場環境  $B$  に強く依存し<sup>3)</sup>、適切な条件下で駆動させることで  $X^0$  準位の FSS はほぼ完全に消去される。従って  $XX^0-X^0$  は偏光もつれ状態として光子対生成し、結果としてベル状態に対する忠実度 0.58 が報告された<sup>2)</sup>。この報告を筆頭に、電場印加<sup>4-6)</sup> や圧電効果<sup>7)</sup>・波長選別<sup>8)</sup>・光照射シュタルク効果<sup>9)</sup>といった様々な手法で FSS 制御が検討され、それらの多くで量子状態形成が確認されてきた。更に近年ではベル不等式の破れ<sup>6,8,10)</sup> や量子テレポーテーション<sup>11)</sup> 等の実用化に向けたアプローチが報告されるに至り、QKD 技術発展に向けた光源開発が精力的に進められている。しかしながら一方で、これらは全て単一の量子ドットに着目した光学異方性の回復法であり、個々のドットに応じた厳密な調整が不可欠である。加えて外場印加による制御技法では格子不整合系における 1 原子レベルの異方性が拭い去れず、FSS 消去には下限値を残す<sup>12)</sup>。実際に上記報告例における忠実度は 0.72<sup>5)</sup>、0.707<sup>6)</sup>、 $\sim 0.66$ <sup>9)</sup> に留まっており、強固な量子状態形成とは言い難い。従って汎用的な FSS 消去法が必要であると同時に、高い忠実度を持つ光子対生成が特に重要な要素とされる。

以上を踏まえ本章では、(111)A 面基板上量子ドットを用いて外部制御を要しない強い偏光相関を有する量子もつれ光子対生成を実証する。まず初めに液滴エピタキシー法を用いて (111) 成長基板上に量子ドットを自己形成し、さらにそれに伴う FSS 抑制改善について調査する。エンタングルメントの計測では  $XX^0-X^0$  光子対についての偏光相関関数を測定し、忠実度の高い量子状態形成を実証する。また密度行列・もつれのメジャーといった光子対状態の評価指標についても測算し、量子光源としての性能について議論する。その後 2 光子干渉波形を計測し、ベル不等式の破れの実証を行う。最後にもつれ状態としての純度低下の物的要因について考察し、その回復法やメカニズムを測定結果およびシミュレーションから検討する。

### 6.1 (111)A 面での量子ドットの創製

1 章でも述べたが液滴エピタキシー法<sup>13)</sup> では、III-V 族化合物半導体を構成する III 族元素のみを基板に供給した際に形成される液滴を V 族元素の照射によって結晶化させる成長法である。例えば Ga や In では融点が低いため基板表面では液体金属微粒子として形成され、As の照射により QDs が自己形成する。したがって原理的に成長基板との格子不整合による品質劣化は受けず、かつ材料系を選ばず QDs が形成可能である。これまで様々な材料<sup>14-16)</sup> で実現されてきたが、今回最も成長技術の蓄積のある GaAs/AlGaAs 格子整合系を採用した。また成長基板面は Ga の豊富な (111)A 面を用いることで高品質 QDs を実現した。

QDs 作製は次の手順で行った。(1) 分子線エピタキシー装置を用い、500 °C の GaAs(111)A 基板に GaAs バッファ層を 50 nm 形成させた後、(2)  $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$  バリア層を 150 nm 成長した。(3) その後 600 °C に上げ 5 分間アニールし、(4) 基板温度 400 °C で 0.043 ML の Ga を照射して Ga 液滴を成長した。(5) 次に基板温度 200 °C で  $As_4$  を照射し、液滴を結晶化した。(6) 500 °C、10 分間の

熱処理を施した後、(7)Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As でキャップした。最後に AFM 観察用のため (3) ~ (6) を繰り返した。

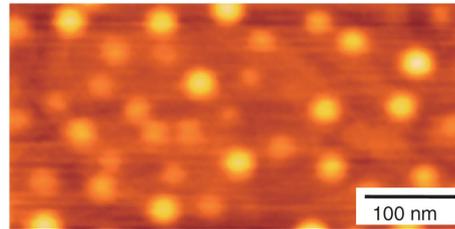


図 6.1: (111)A 面基板に作製した GaAs 量子ドット<sup>17)</sup>.

作製した QDs の AFM 像を図 6.1 に示す。ドット密度は  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  程度であり、サイズは平均半径 16 nm、高さ 1.4 nm である。作製した QDs は面内方向で真円に近い形状を持つ。3 章で示した (100) 面上 Stranski-Krastanov 量子ドットと比較すると分かりやすいが、直交する [211] 方向と [0 $\bar{1}$ 1] 方向での異方性は非常に小さく、形状対称性は明瞭に向上した。

## 6.2 FSSの抑制

典型的な単一 QD 発光スペクトルを図 6.2(a) に示す。高エネルギー側から  $X^0$  ( $E_X=1.83941$  eV),  $X^+$  ( $E_{X^+}=1.83760$  eV),  $XX^0$  ( $E_{XX^0}=1.83403$  eV),  $X^-$  ( $E_{X^-}=1.83293$  eV) の発光が観測される。同試料上では多くの QD で  $XX^0$ ,  $X^0$ ,  $X^\pm$  の 4 本の輝線が見られた。着目するのは  $XX^0$  および  $X^0$  であり、スペクトル線幅 (FWHM) は  $25 \mu\text{eV}$  ( $XX^0$ ),  $35 \mu\text{eV}$  ( $X^0$ ) 程度である。これらは GaAs 系 QDs における報告例と比べると比較的細く<sup>5)</sup>、高品質な QDs が作製できているが分かる。また  $X^0$  発光の時間分解 PL 測定により見積もられた減衰時定数は  $0.56$  ns であった<sup>18)</sup>。

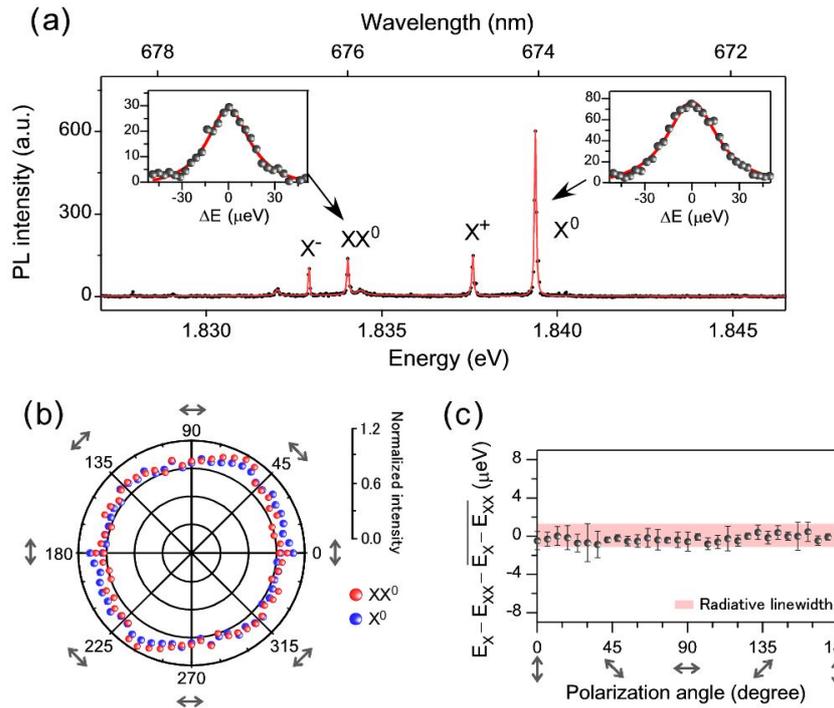


図 6.2: (a) GaAs(111)A 面上に成長した単一 GaAs 量子ドットの発光スペクトル。挿入図はファブリペロー干渉系を用いた  $XX^0$ ,  $X^0$  輝線の高分解 PL 計測結果。(b) 直線偏光分解 PL 測定における  $XX^0$ ,  $X^0$  発光強度の極座標プロット。(c) FSS の測定結果。  $XX^0$  と  $X^0$  とのエネルギー差を検出偏光依存性でプロットした。スペクトル自然幅 ( $1.2 \mu\text{eV}$ ) 以下の微小な FSS を持つ。

$XX^0$ ,  $X^0$  発光についての直線偏光依存性の測定結果を (b)(c) に示した。(b) では発光強度に着目し、発光スペクトルの積分値を検出偏光角で極座標プロットした。偏光角に依存した強度変化はなく、ほぼランダムな結果と言える。これは  $X^0$ ,  $XX^0$  光子をそれぞれ独立に観測すると、得られる偏光状態は確率的であることを示している。また (c) では発光エネルギーの検出偏光角依存性を調べたものである。スペクトルデータの単一ローレンツ関数フィット ((a) の挿入図) によりエネルギー分解能を解析的に上げ、  $XX^0$  と  $X^0$  とのエネルギー差  $E_X - E_{XX}$  を平均値  $\overline{E_X - E_{XX}}=0$  でプロットしている。データは 4 回取得し、標準偏差  $\sigma$  をエラーバーとした。図から分かるように偏光角に依存した周期振動は見られず、かつそのシフト量は  $1 \mu\text{eV}$  以下と非常に小さい。これは発光減衰時定数により決まる発光線幅  $1.2 \mu\text{eV}$  (図中赤枠) よりも十分小さいことから、FSS がスペ

クトル自然幅未満の微小な値であることを示唆している。すなわち  $XX^0-X^0$  カスケード遷移において which-path 情報は付与されず、もつれ合った光子対生成であると考えられる。

以上の直線偏光検出の調査を多数の QDs で繰り返した。図 6.3 は得られた FSS の絶対値を  $X^0$  の発光エネルギーの関数でプロットしたものである。使用したサンプルは上記で使用したのものとは異なるが、特性としては同様な傾向を持っている。比較のため (100) 面で成長した試料の結果も載せており、FSS は平均  $50 \mu\text{eV}$  程度である。またその値は  $X^0$  発光エネルギーに強く依存しており、高エネルギー側の発光ほど FSS は小さくなっていく。サイズの小さい QDs では波動関数の障壁層への浸みだしが大きくなり、形状異方性の影響が小さくなるためである<sup>19)</sup>。対して (111)A 面の試料では FSS は大幅に低減しており、かつ発光エネルギーに依らない。これはサイズに依らず等方的なドットが形成されていることを示唆しており、成長基板の選択による改善を意味する。FSS の平均値は  $17 \mu\text{eV}$  程度であり、大幅な FSS 抑制が確認された。なおこの値は FSS が評価可能な QDs での値であり、分解されない微小な FSS を持つ QDs は同サンプル上で多数観測された。

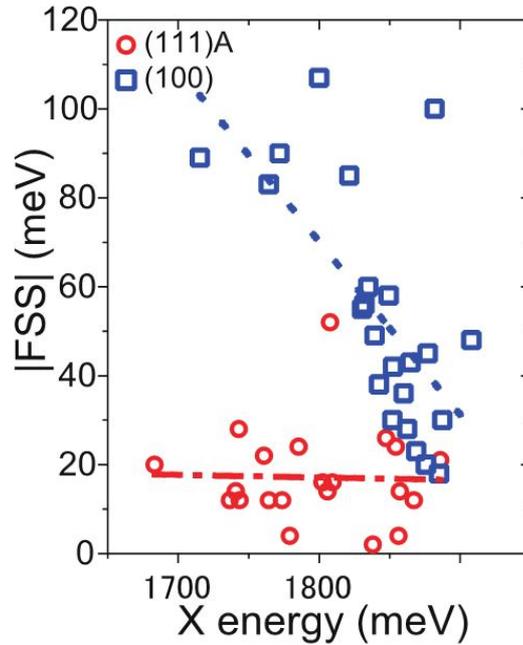


図 6.3: 統計的な FSS 評価結果<sup>17)</sup>. (100) 面と比べて (111) 面では強い抑制改善を示し、かつ発光エネルギーによる分布もない。これはサイズに依らず等方性の高い QDs が形成されたことを示す。

### 6.3 量子もつれ光子対の評価

本節ではスペクトル自然幅以下の微小な FSS を持つ QD を用いて量子もつれの実験的検証を行う。使用する輝線は前節で紹介した  $XX^0$ ,  $X^0$  発光であり、偏光相関測定により 2 光子の偏光状態を調査する。なお記載するデータは、検出器の暗計数による背景ノイズを除去することなく全て測定値で示す。

#### 6.3.1 偏光相関測定

図 6.4 に偏光相関測定の結果の例を示す。図中  $V_{XX(X)}$ ,  $H_{XX(X)}$ ,  $D_{XX(X)}$ ,  $A_{XX(X)}$ ,  $R_{XX(X)}$ ,  $L_{XX(X)}$  は  $XX^0(X^0)$  光子の偏光をそれぞれ垂直偏光 (V), 水平偏光 (H), +45 度偏光 (D), -45 度偏光 (A), 右回り円偏光 (R), 左周り円偏光 (L) に選択していることを指す。5 ns 毎の周期的な同時計数は励起パルスの周波数 200 MHz に対応しており、注目する  $XX^0-X^0$  カスケード光子対による計数は遅延時間 0 ns のピークである。計数ピークは非対称な形状を持っており、これは  $X^0$  の発光寿命が反映された結果である。

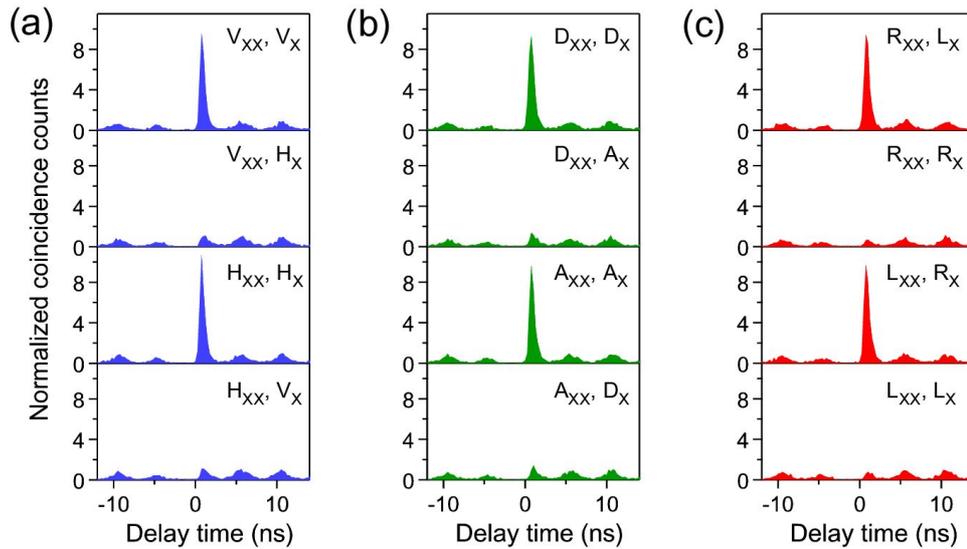


図 6.4:  $XX^0-X^0$  発光における偏光相関測定結果. (a)V/H 偏光検出, (b)D/A 偏光検出, (c)R/L 偏光検出. 3つの観測基底において 2 光子は強い偏光相関を持つ.

(a) の V, H 偏光検出での結果では、 $[V_{XX}, V_X]$  と  $[H_{XX}, H_X]$  とで高い同時計数ピークが見られるのに対し、 $[V_{XX}, H_X]$ 、 $[H_{XX}, V_X]$  では消失する。これは偏光選択を反映した結果であり、量子ドットの場合これは古典的な相関である。しかしながら検出偏光を (b)D/A と (c)R/L に変えたときの測定結果においても同様の相関が見られる。 $[D_{XX}, D_X]$ 、 $[A_{XX}, A_X]$ 、 $[R_{XX}, L_X]$ 、 $[L_{XX}, R_X]$  にて同時計数は増大し、 $[D_{XX}, A_X]$ 、 $[A_{XX}, D_X]$ 、 $[R_{XX}, R_X]$ 、 $[L_{XX}, L_X]$  では消失する。以上の結果は、 $XX^0-X^0$  カスケード光子対の偏光状態が次式で表されるベル状態の 1 つに近いことを示している。

$$|\psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|VV\rangle + |HH\rangle) = \frac{1}{\sqrt{2}} (|DD\rangle + |AA\rangle) = \frac{1}{\sqrt{2}} (|RL\rangle + |LR\rangle) \quad (6.1)$$

### 6.3.2 忠実度の評価

得られた結果からベル状態に対する忠実度の評価を行う。まず、偏光相関の強さ (相関係数) を算出する。V/H, D/A, R/L それぞれの基底での相関係数  $E_{rr}$ ,  $E_{dd}$ ,  $E_{cc}$  は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} E_{rr} &= \frac{I(H, H) + I(V, V) - I(H, V) - I(V, H)}{I(H, H) + I(V, V) + I(H, V) + I(V, H)} \\ E_{dd} &= \frac{I(D, D) + I(A, A) - I(A, D) - I(D, A)}{I(D, D) + I(A, A) + I(A, D) + I(D, A)} \\ E_{cc} &= \frac{I(L, L) + I(R, R) - I(L, R) - I(R, L)}{I(L, L) + I(R, R) + I(L, R) + I(R, L)} \end{aligned} \quad (6.2)$$

ここで  $I(i, j)$  は  $XX^0(X^0)$  光子の偏光選択  $i(j)=V, H, D, A, R, L$  における 2 光子の強度を表し、測定結果の  $\tau \sim 0$  の同時計数値に相当する。式 (7.9) のベル状態を用いると  $E_{rr}=E_{dd}=E_{cc}=1$  である。一方、V と H が完全にランダムに用意された場合では  $I(H, H) = I(V, V) = I(H, V) = I(V, H)$  であり、 $E_{rr}=0$  となる (同様に  $E_{rr}$ ,  $E_{dd}$  においても 0)。また QDs 光源のような V/H 基底にのみ相関を持つ場合では  $E_{rr}=1$ ,  $E_{dd}=E_{cc}=0$  である。

相関係数の算出は同時計数ピークの時間積分値を用いて行った。計数ピークの幅を決める  $X^0$  発光減衰時定数は 0.56 ns であり、この時間と比べて 2 倍以上広い 1.152 ns を積分時間幅として採用した。以降においても特筆のない限り積分時間幅はこの値を用いている。測定結果より見積もられた相関係数は、 $E_{rr} = 0.78 \pm 0.03$ ,  $E_{dd} = 0.77 \pm 0.03$ ,  $E_{cc} = -0.87 \pm 0.03$  であり、3 基底ともに高い値が得られた。誤差はポアソン分布の揺らぎを考慮した  $1\sigma$  である。

ベル状態  $|\psi^+\rangle$  に対する忠実度  $f^+$  は  $E_{rr}$ ,  $E_{dd}$ ,  $E_{cc}$  を用いて

$$f^+ = \frac{1 + E_{rr} + E_{dd} - E_{cc}}{4} \quad (6.3)$$

で表される<sup>10)</sup>。ベル状態 (式 7.9) では  $f^+=1$  であり、古典限界 ( $E_{rr}=1$ ,  $E_{dd}=E_{cc}=0$ ) は  $f^+=0.5$  である。算出した相関係数を用いると、 $f^+=0.86 \pm 0.02$  となり、古典限界 0.5 を大きく超える値が得られた。またこれは同種光源での報告値<sup>2, 5, 6, 20)</sup>を上回る結果であり、忠実度の高いもつれ光子対生成であることが確認された。

## 6.4 量子トモグラフィ

これまでの検証で  $XX^0$ - $X^0$  カスケード光子対は高い忠実度  $f^+=0.86$  を持つ 2 光子であることが分かった。本節では様々な偏光相関を測定し、2 光子状態の密度行列 (量子トモグラフィ) およびもつれメジャーの算出を行う。測定は  $XX^0$  の検出偏光 ( $\theta_{XX}$ ) と  $X^0$  の検出偏光 ( $\theta_X$ ) をそれぞれ V, H, D, A, R, L と変え、全 36 パターンの偏光測定を行った。積算時間はそれぞれ 10 分であり、生の同時計数値で記載する。

### 6.4.1 密度行列の算出

図 6.5 に測定結果の一覧を示す。[ $V_{XX}, V_X$ ], [ $H_{XX}, H_X$ ], [ $D_{XX}, D_X$ ], [ $A_{XX}, A_X$ ], [ $R_{XX}, L_X$ ], [ $L_{XX}, R_X$ ] で計数ピークは約 75 カウント程度の値をとり、[ $V_{XX}, H_X$ ], [ $H_{XX}, V_X$ ], [ $D_{XX}, A_X$ ], [ $A_{XX}, D_X$ ], [ $R_{XX}, R_X$ ], [ $L_{XX}, L_X$ ] で 10 カウント程度の値をとる。これら同時計数の増大・抑制は前節で説明した通りである。その他 24 通りの相関関数においては 40 カウント程度の同時計数ピークを持つ。これは、これら 24 通りの偏光選択時では 2 光子の偏光状態が確率的であることを意味している。例えば [ $V_{XX}, R_X$ ] を考えてみる。 $XX^0$  の偏光を V で検出した場合、 $X^0$  の偏光を R/L で検出すると確率 1/2 である。従って計数は増大時 75 カウントの約半分となる。これらの様子は以下の 6 つの相関係数で表される。

$$\begin{aligned}
 E_{rd} &= \frac{I(H, D) + I(V, A) - I(H, A) - I(V, D)}{I(H, D) + I(V, A) + I(H, A) + I(V, D)} \\
 E_{dr} &= \frac{I(D, H) + I(A, V) - I(D, V) - I(A, H)}{I(D, H) + I(A, V) + I(D, V) + I(A, H)} \\
 E_{rc} &= \frac{I(H, L) + I(V, R) - I(H, R) - I(V, L)}{I(H, L) + I(V, R) + I(H, R) + I(V, L)} \\
 E_{cr} &= \frac{I(L, H) + I(R, V) - I(L, V) - I(R, H)}{I(L, H) + I(R, V) + I(L, V) + I(R, H)} \\
 E_{cd} &= \frac{I(L, D) + I(R, A) - I(L, A) - I(R, D)}{I(L, D) + I(R, A) + I(L, A) + I(R, D)} \\
 E_{dc} &= \frac{I(D, L) + I(A, R) - I(D, R) - I(A, L)}{I(D, L) + I(A, R) + I(D, R) + I(A, L)}
 \end{aligned} \tag{6.4}$$

これらは完全に確率 1/2 に従う偏光検出であるため、理想値は 0 である。測定結果より見積もられたこれらの相関係数は  $E_{rd}=-0.009$ ,  $E_{dr}=-0.084$ ,  $E_{rc}=0.015$ ,  $E_{cr}=-0.043$ ,  $E_{cd}=-0.194$ ,  $E_{dc}=0.068$  となった。 $E_{cd}$  のみ値が大きいものの、その他全ての相関係数は 0.1 未満の結果が得られた。

続いて光子の偏光度について考察する。例えば、[ $V_{XX}, V_X$ ], [ $V_{XX}, H_X$ ], [ $H_{XX}, V_X$ ], [ $H_{XX}, H_X$ ] の 4 つの相関関数を考える。[ $V_{XX}, V_X$ ] + [ $V_{XX}, H_X$ ] で得られる結果と、[ $H_{XX}, H_X$ ] + [ $H_{XX}, V_X$ ] で得られる結果を比べた場合、 $XX^0$  光子のみに着目した偏光度に相当する。また同様に [ $V_{XX}, V_X$ ] + [ $H_{XX}, V_X$ ] で得られる結果と、[ $V_{XX}, H_X$ ] + [ $H_{XX}, H_X$ ] で得られる結果を比べると  $X^0$  光子についての偏光度が分かる。3 つの基底におけるそれぞれの光子の偏光度は以下の 6 つで表される。

$$\begin{aligned}
P_{r1} &= \frac{I(H,H) + I(H,V) - I(V,H) - I(V,V)}{I(H,H) + I(H,V) + I(V,H) + I(V,V)} \\
P_{d1} &= \frac{I(D,D) + I(D,A) - I(A,D) - I(A,A)}{I(D,D) + I(D,A) + I(A,D) + I(A,A)} \\
P_{c1} &= \frac{I(L,L) + I(L,R) - I(R,L) - I(R,R)}{I(L,L) + I(L,R) + I(R,L) + I(R,R)} \\
P_{r2} &= \frac{I(H,H) + I(V,H) - I(H,V) - I(V,V)}{I(H,H) + I(V,H) + I(H,V) + I(V,V)} \\
P_{d2} &= \frac{I(D,D) + I(A,D) - I(D,A) - I(A,A)}{I(D,D) + I(A,D) + I(D,A) + I(A,A)} \\
P_{c2} &= \frac{I(L,L) + I(R,L) - I(L,R) - I(R,R)}{I(L,L) + I(R,L) + I(L,R) + I(R,R)}
\end{aligned} \tag{6.5}$$

ここで  $P_{ij}$  ( $i = c, r, d : j = 1, 2$ ) は V/H, D/A, R/L 基底における 1 番目の光子 ( $j = 1: XX^0$ ) と 2 番目の光子 ( $j = 2: X^0$ ) の偏光度を表す。得られた結果は  $P_{r1}=0.052$ ,  $P_{d1}=0.110$ ,  $P_{c1}=0.022$ ,  $P_{r2}=0.026$ ,  $P_{d2}=0.075$ ,  $P_{c2}=0.005$  であった。それぞれ 10% 程度もしくはそれ以下の偏光度であり、この結果は発光スペクトルからの結果 (図 6.2(b)) と相違ない結果である。

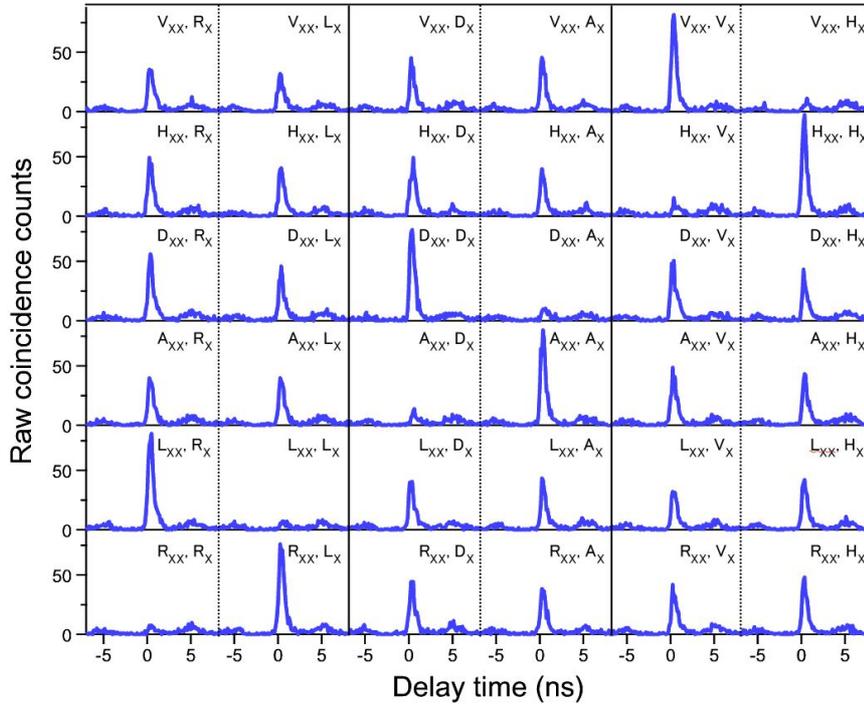


図 6.5: 36 通りの偏光相関測定結果。

算出した相関係数と偏光度を用いて 2 光子の密度行列  $\rho$  が導かれる。 $\rho$  は次式で記述される<sup>21)</sup>。

$$\rho = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} 1 + E_{rr} + P_{r1} + P_{r2} & E_{rd} + P_{d2} & E_{dr} + P_{d1} & E_{dd} - E_{cc} \\ E_{rd} + E_{d2} & 1 - E_{rr} + P_{r1} - P_{r2} & E_{dd} + E_{cc} & -E_{dr} + P_{d1} \\ E_{dr} + P_{d1} & E_{dd} + E_{cc} & 1 - E_{rr} - P_{r1} + P_{r2} & -E_{rd} + P_{d2} \\ E_{dd} - E_{cc} & -E_{dr} + P_{d1} & -E_{rd} + P_{d2} & 1 + E_{rr} - P_{r1} - P_{r2} \end{pmatrix} + \frac{i}{4} \begin{pmatrix} 0 & -E_{rc} - P_{c2} & -E_{cr} - P_{c1} & -E_{cd} - E_{dc} \\ E_{rc} + P_{c2} & 0 & -E_{cd} + E_{dc} & E_{cr} - P_{c1} \\ E_{cr} + P_{c1} & -E_{cd} + E_{dc} & 0 & E_{rc} - P_{c2} \\ E_{cd} + E_{dc} & -E_{cr} + P_{c1} & -E_{rc} + P_{c2} & 0 \end{pmatrix} \quad (6.6)$$

重要な成分は実部の対角要素と非対角成分の  $E_{dd} \pm E_{cc}$  の値である。完全古典相関光の場合、全ての相関係数と偏光度は 0 を取り、密度行列  $\rho$  は単位行列になる。一方で相関係数  $E_{rr}, E_{dd}, E_{cc}$  が最大値  $\pm 1$  を取るベル状態では、対角成分  $1 + E_{rr} \pm P_{r1} \pm P_{r2}$  もしくは  $1 - E_{rr} \pm P_{r1} \mp P_{r2}$  のどちらか2つと、非対角成分の  $E_{dd} + E_{cc}$  もしくは  $E_{dd} - E_{cc}$  のどちらか2つの計 4 成分の値が集中する。虚部では相関係数  $E_{rd}, E_{dr}, E_{rc}, E_{cr}, E_{cd}, E_{dc}$  と偏光度  $P_{r1}, P_{d1}, P_{c1}, P_{r2}, P_{d2}, P_{c2}$  で構成されており、理想的には全ての要素で 0 をとる。例として図 6.6 に (a) 完全古典状態と (b) ベル状態  $|\psi^+\rangle$  とを用いた密度行列を示した。(a) では対角成分にのみ値を持ち、かつそれらの値は全て 0.25 と等しい。一方、(b) では行列の 4 隅に値が集中している。対角成分では (1, 1), (4, 4) 要素が最大値の 0.5 を持ち、(2, 2), (3, 3) 成分が消失する。また非対角成分では (1, 4)、(4, 1) 要素が最大値を持つ。

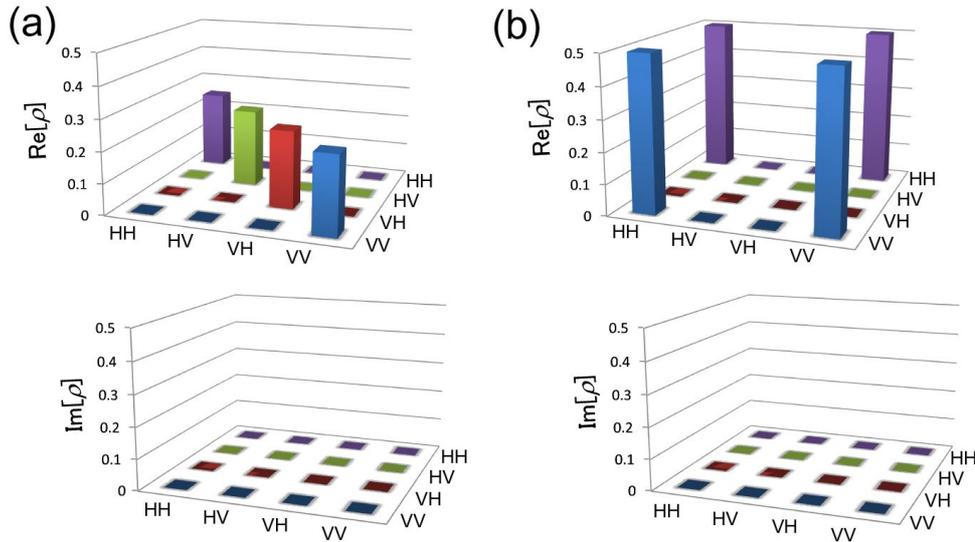


図 6.6: (a) 完全古典状態と (b) ベル状態  $|\psi^+\rangle$  における量子トモグラフィ。

以下は式 (6.7) を用いて最尤推定<sup>22)</sup>を施した後の密度行列  $\rho_{exp}$  である。

$$\rho_{exp} = \begin{pmatrix} 0.4761 & 0.0040 & -0.0056 & 0.4114 \\ 0.0040 & 0.0537 & -0.0163 & 0.0217 \\ -0.0056 & -0.0163 & 0.0435 & -0.0024 \\ 0.4114 & 0.0217 & -0.0024 & 0.4267 \end{pmatrix} + i \begin{pmatrix} 0 & -0.0129 & 0.0017 & -0.0282 \\ 0.0129 & 0 & -0.0392 & 0.0148 \\ -0.0017 & 0.0392 & 0 & -0.0124 \\ 0.0282 & -0.0148 & 0.0124 & 0 \end{pmatrix}$$

また  $\rho_{exp}$  のプロットを図 6.7 にも示した。得られた密度行列は図 6.6 と比較すると量子相関の典型的な特徴を示していることが分かる。これは相関係数  $E_{rr}$ ,  $E_{dd}$ ,  $E_{cc}$  が高い値を持つことを反映した結果である。

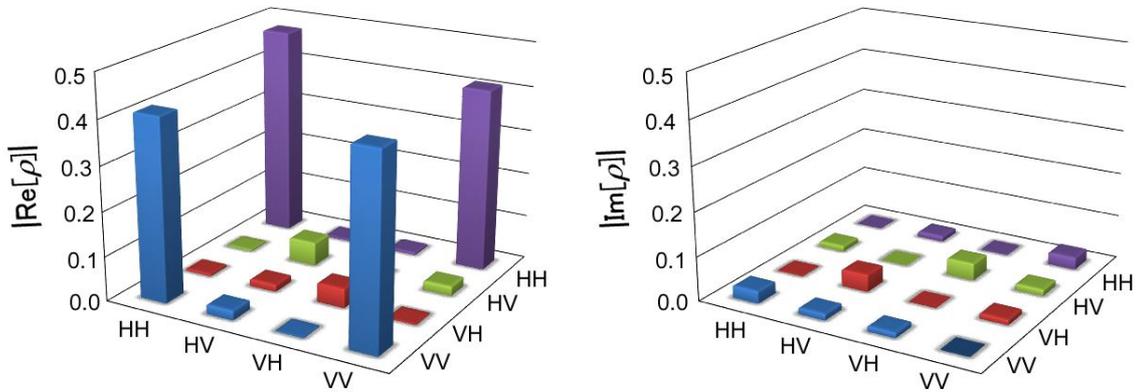


図 6.7: 偏光相関より見積もられた 2 光子の量子トモグラフィ。

#### 6.4.2 もつれのメジャー

これまで偏光相関の結果を用いて相関係数や忠実度を算出してきたが、密度行列を用いると、様々なもつれメジャーが評価される。ここではそれらを見積もりを行い、量子光源としての性能評価を行う。以下にいくつかのもつれメジャーを紹介する。

Tangle, Concurrence

Tangle<sup>23)</sup> および Concurrence は 2 光子のコヒーレンスの評価として用いられる指標である。まず以下で与えられる  $R$  を考える。

$$R \equiv \rho \hat{\Sigma} \rho^T \hat{\Sigma} \quad (6.7)$$

ここで  $\hat{\Sigma}$  はスピントリップ演算子であり、以下で定義される。

$$\hat{\Sigma} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.8)$$

式 (6.7) は、 $\rho$  において V/H 基底で得られる要素 (対角成分) と D/A および R/L 基底で得られる要素 (非対角成分) とを反転 (基底変換) し、元の  $\rho$  との一致を見たものである。そのときの一致を数値として表したものが Concurrence( $C$ ) であり、以下で定義される。

$$C = \text{Max} \{0, r_1 - r_2 - r_3 - r_4\} \quad (6.9)$$

ここで、 $r_1, r_2, r_3, r_4$  は  $R$  の固有値であり、 $r_1 \geq r_2 \geq r_3 \geq r_4$  である。もつれ状態において基底変換は状態を変えないので、固有値は  $r_1=1, r_2 = r_3 = r_4 = 0$  を取り Concurrence は最大値 1 を示す。Concurrence の低下は基底変換による状態の変化、すなわちインコヒーレントな状態であることを示す。Tangle( $T$ ) は Concurrence を用いて以下で定義される。

$$T = C^2 \quad (6.10)$$

#### Linear Entropy

Linear Entropy( $S_L$ )<sup>24</sup> は 2 光子状態の混合度 (エントロピー) の評価をより簡便に記述したものであり、以下で定義される。

$$S_L = \frac{4}{3} (1 - \text{Tr} \{\rho^2\}) \quad (6.11)$$

理想極限は  $S_L = 0$  であり、純粋状態であることを指す。対して  $S_L = 1$  は完全な混合状態であることに相当する。後に議論するが  $S_L$  は Tangle と密接に関係しており、Tangle  $> 0$  を満たす古典限界は  $S_L < 0.89$  である。

#### Peres-criterion

Peres-criterion<sup>25</sup> は 2 光子の片方に転置操作を行い、2 光子の状態の分離性 (もしくは非分離性) を表したものである。具体的な算出法は以下のような部分転置を考え  $\rho$  を  $\tilde{\rho}$  に変換し、 $\tilde{\rho}$  の最小固有値を正負で計る。

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} & \rho_{14} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} & \rho_{24} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} & \rho_{34} \\ \rho_{41} & \rho_{42} & \rho_{43} & \rho_{44} \end{pmatrix}, \tilde{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{24} & \rho_{23} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{14} & \rho_{13} \\ \rho_{42} & \rho_{41} & \rho_{33} & \rho_{34} \\ \rho_{32} & \rho_{31} & \rho_{43} & \rho_{44} \end{pmatrix} \quad (6.12)$$

$\tilde{\rho}$  における固有値  $q_1, q_2, q_3, q_4$  を用いて Peres-criterion は以下で定義される。

$$\text{Peres} \equiv -\text{Max} \{0, -q_1, -q_2, -q_3, -q_4\} \quad (6.13)$$

Peres が負の値を持つとき即ち  $\tilde{\rho}$  が負の固有値を持つときには、2 光子の状態は非分離性を有し量子相関のある偏光状態として判別される。

以上 4 つのもつれのメジャーについて密度行列  $\rho_{exp}$  から得られた結果を以下に示す。

どの値も古典限界を大きく上回る結果が得られており、これは量子もつれ生成の確保たる実証である。

最後に得られた値を用いて光源の性能評価を行う。図 6.8 は Tangle と Linear Entropy とでプロッ

	Experimental result	classical limit
Concurrence	0.73	> 0
Tangle	0.53	> 0
Linear Entropy	0.32	< 0.89
Peres	-0.36	< 0

トした結果である。(a)~(f)は同種光源での報告値<sup>26)</sup>を図示した。また点線は、次式で定義されるベル状態と完全古典状態とが混在した Werner 状態<sup>27,28)</sup>を用いた理論曲線である。

$$\rho_{(w)} \equiv P |\psi^+\rangle \langle \psi^+| + \frac{1-P}{4} I \otimes I \quad (6.14)$$

ここで  $P$  はベル状態 ( $P$ ) と完全古典状態 ( $1-P$ ) との比を表す因子であり、 $P$  を用いて Tangle( $T$ ), Linear Entropy( $S_L$ ) は以下の様に記述される。

$$\begin{aligned} T &= \left( \frac{3P-1}{2} \right)^2 \\ S_L &= 1 - P^2 \end{aligned} \quad (6.15)$$

詳しい導出は文献<sup>29)</sup>を参照して頂きたい。図 6.8 点線は上式をプロットしたものである。今回の結果および報告値 (a)~(f)<sup>26)</sup>は、ほぼ理論曲線上に位置していることが分かる。理想極限は Tangle=1,  $S_L=0$  であり、図の左上に向かうにつれより理想的な量子光源であることを指す。今回得られた結果はこれまで報告されてきた値と比べ、飛躍的な向上を見せた。これは従来の性能を大きく凌ぐ強いもつれ光子対生成であることを示している。

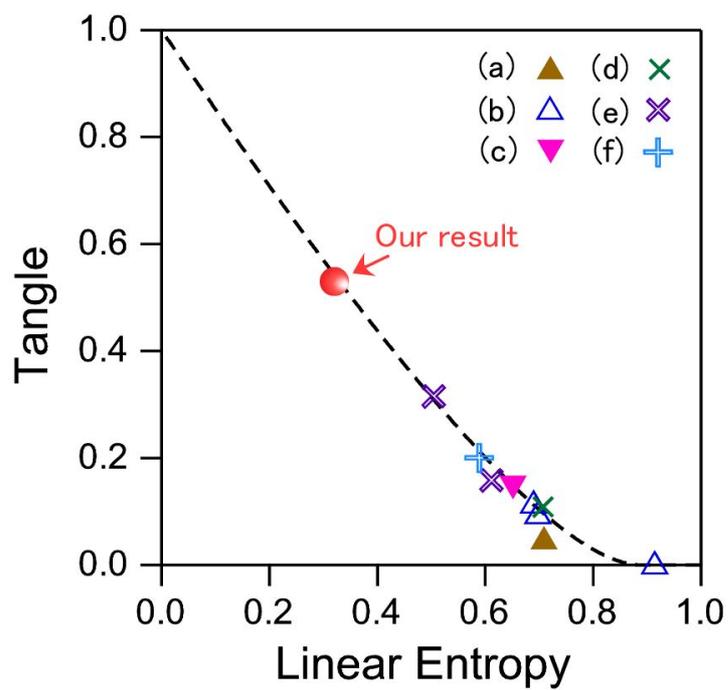


図 6.8: Tangle, Linear Entropy を用いた量子もつれ性能評価. 理想極限は図の左上 (Tangle=1, Linear Entropy=0) に相当する. (a) ~ (f) は QDs カスケード光源におけるこれまでの報告例をプロットした. 点線は Werner 状態による理論曲線.

## 6.5 ベル不等式の破れの観測

本節では非局所性の実証として最も困難であり、それ故に強固な量子性が立証されるベル不等式の破れについて実験的に検証する。

ベルの不等式 (CHSH 形式<sup>30)</sup>) は相関係数を用いて以下で記述される<sup>21)</sup>。

$$S = E_{\alpha\beta} - E_{\alpha'\beta} + E_{\alpha\beta'} + E_{\alpha'\beta'} \leq 2 \quad (6.16)$$

ここで  $\alpha, \alpha'$  は  $XX^0$  の検出偏光角、 $\beta, \beta'$  は  $X^0$  の検出偏光角を指し、図 6.9(a) のように  $\alpha, \beta, \alpha', \beta'$  の順にそれぞれ  $\phi$  ずつずれた角度である。相関係数の定義は式 (6.2) で示しているが、ここでは  $E_{\alpha\beta}$  を例にして記載しておく。

$$E_{\alpha\beta} = \frac{I(\alpha, \beta) + I(\bar{\alpha}, \bar{\beta}) - I(\bar{\alpha}, \beta) - I(\alpha, \bar{\beta})}{I(\alpha, \beta) + I(\bar{\alpha}, \bar{\beta}) + I(\bar{\alpha}, \beta) + I(\alpha, \bar{\beta})} \quad (6.17)$$

上式において  $\bar{\alpha}, \bar{\beta}$  はそれぞれ  $\alpha, \beta$  の直交偏光の状態を指す。

偏光測定において、2つの光子の強度がそれぞれ確率的に検出されると(局所性を仮定すると)、ベルの不等式(式 6.16)が破れることはない。

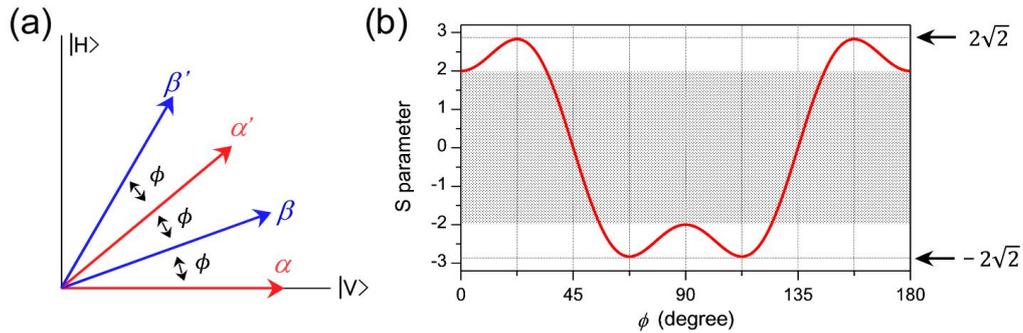


図 6.9: (a) ベル不等式における偏光測定.  $\alpha, \alpha'$  と  $\beta, \beta'$  はそれぞれ  $XX^0$  と  $X^0$  の検出偏光角を指す. (b) ベル状態を用いた S 因子の  $\phi$  依存性. 測定は最も  $S > 2$  を有する  $\phi = 22.5$  度を使用した.

しかし観測基底に依らない強い量子相関を持つ光子対の場合、不等式は破れる。図 6.9(b) にベル状態  $|\psi^+\rangle$  を用いた場合の S 値を  $\phi$  についてプロットした(詳しい導出は文献<sup>31)</sup>を参照して頂きたい)。灰色で囲んだ領域が  $S \leq 2$  に相当し、 $\phi$  の選択によりベル不等式を満たさない  $S > 2$  の領域があるのが分かる。 $\phi = 22.5$  度もしくは  $67.5$  度で S は最大値  $\pm 2\sqrt{2}$  をとり、最もベル不等式の破れが観測しやすい。

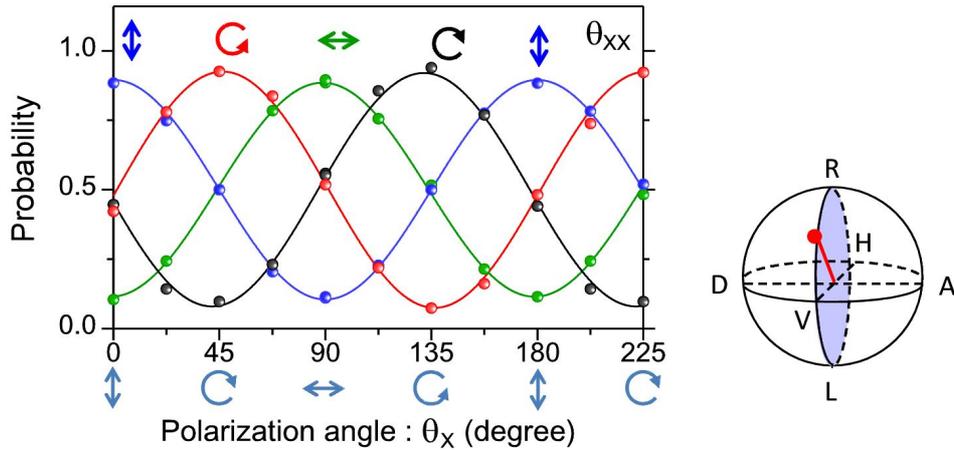


図 6.10: ベル不等式の破れの観測. 検出偏光はポアンカレ球の RL-VH 面上で掃引した (右).

図 6.10 に測定結果を示す。測定に使用した検出偏光状態はポアンカレ球上の RL-VH 面であり (図 6.10 右参照)、 $XX^0$ ,  $X^0$  それぞれの偏光角  $\theta_{XX}$ ,  $\theta_X$  を掃引して得られる 2 光子の干渉波形を調べた。偏光角の掃引は 22.5 度ずつ行い、これは最もベル不等式が破れやすい  $\phi$  である。また測定時における温度揺らぎやサンプル位置揺らぎの影響を考慮し、解析では  $I(\theta_{XX}, \theta_X) + I(\theta_{XX}, \bar{\theta}_X) = 1$  の規格化を用いた。図の各点に対応する  $[\theta_{XX}, \theta_X]$  測定時での同時計数値に相当し、実線は  $\sin$  関数によるフィットである。2 光子の干渉波形が明瞭に見られ、観測基底に依らない強い偏光相関であることが良く分かる。得られた結果より見積もられた相関係数および S 因子を表に示す。

Basis angle ( $\theta_{XX}, \theta_X$ )	Correlation coefficient $ E_{\theta_{XX}, \theta_X} $
0 °, 22.5 °	0.49 ± 0.03
0 °, 67.5 °	0.58 ± 0.03
45 °, 22.5 °	0.64 ± 0.03
45 °, 67.5 °	0.60 ± 0.03
S	2.31 ± 0.06

S 因子は  $2.31 \pm 0.06$  と標準偏差の 5 倍の強さでベル不等式の破れが示された。この実証は零磁場/電場下での結果であり、時間的/エネルギー的な制御も行っていない。つまり光源本来の性能として非局在性を有しており、同種光源としては世界初の観測例である。

## 6.6 ポストセレクションによる忠実度の向上

これまで、 $XX^0$ - $X^0$  光子対における量子もつれの評価を行ってきた。以下に得られた主なもつれパラメータを記載する。これらの値から強くもつれ合った光子対であることが分かり、結果としてベル不等式の破れの観測に成功した。しかし以下で示したパラメータは理想値には届いていない。これらのパラメータを低下させる要因は何であろうか。忠実度  $f^+$  に着目して以下のように考察した。

Parameter	Experimental result	classical limit
$f^+$	0.86	$> 0.5$
Concurrence	0.73	$> 0$
Tangle	0.53	$> 0$
Linear Entropy	0.32	$< 0.89$
Peres	-0.36	$< 0$
S	2.31	$> 2$

図 6.11(a) は 1 つの励起パルスで形成した  $XX^0$  状態からのカスケード緩和過程において、 $X^0$  状態の時間発展の様子を模式的に図示したものである。 $|\uparrow\downarrow\rangle$  と  $|\uparrow\uparrow\rangle$  はそれぞれ電子スピンと正孔スピンのアップ・ダウン状態を指す。ある時間  $t_{XX}$  に  $XX^0$  が  $|R\rangle$  偏光光子を放出し、QD の分布は  $|\uparrow\downarrow\rangle$  に緩和する。 $|\uparrow\downarrow\rangle$  状態の分布確率は発光再結合レート  $\gamma_X$  で減衰し、 $t = t_X$  で L 偏光の  $X^0$  光子を放出する。この緩和過程は純粋なカスケード遷移であり、RL の  $XX^0$ - $X^0$  光子対を生む。一方で、 $|X^0\rangle$  滞在中にスピントリップ ( $|\uparrow\downarrow\rangle \rightarrow |\downarrow\uparrow\rangle$ ) が起こると、 $X^0$  光子の偏光状態は R となり (depolarization)、結果として RR の光子対を生む。この過程は 2 光子の偏光状態の混合度を上げるため、忠実度低下の要因となる。

そこで、2 光子を観測するゲート時間を導入する。図中の  $\square$  で示すように、観測開始時間は  $t = t_{XX}$  に固定し、 $t = t_{XX} + w$  までの  $X^0$  光子を検出する。 $w \rightarrow \infty$  では depolarization の寄与を全て容認するのに対し、 $w \rightarrow 0$  極限では RL カスケード光子対のみの抽出が可能であり、忠実度は向上すると考えられる。本節では、ゲート時間幅  $w$  の導入に伴う忠実度  $f^+$  の回復について理論的な検討を行い、実際の測定結果を用いて  $w$  依存性を評価する。

まず  $|\uparrow\downarrow\rangle$  と  $|\downarrow\uparrow\rangle$  の分布確率をそれぞれ  $P_{X^L}$ ,  $P_{X^R}$  とし、以下のレート方程式を考える。

$$\begin{aligned} \frac{dP_{X^L}(t)}{dt} &= -(\gamma_X + \gamma_f) \cdot P_{X^L}(t) + \gamma_f \cdot P_{X^R}(t) \\ \frac{dP_{X^R}(t)}{dt} &= -(\gamma_X + \gamma_f) \cdot P_{X^R}(t) + \gamma_f \cdot P_{X^L}(t) \end{aligned} \quad (6.18)$$

ここで  $\gamma_f$  はスピントリップのレートである。上式の一般解は

$$\begin{aligned} P_{X^L}(t) &= \frac{1}{2} \cdot \{A_1 \exp(-\gamma_X \cdot t) + A_2 \exp\{-(\gamma_X + 2\gamma_f) \cdot t\}\} \\ P_{X^R}(t) &= \frac{1}{2} \cdot \{A_1 \exp(-\gamma_X \cdot t) - A_2 \exp\{-(\gamma_X + 2\gamma_f) \cdot t\}\} \end{aligned} \quad (6.19)$$

となる。 $A_1, A_2$  は初期条件で決まる定数である。図 6.11(a) の場合、 $t = t_{XX}$  で  $XX^0$  光子が生成するため、 $P_{X^L}(t = t_{XX}) = 1$  が初期条件である。 $t = t_{XX}$  を  $t' = 0$  とし、初期条件  $P_{X^L}(t' = 0) = 1$

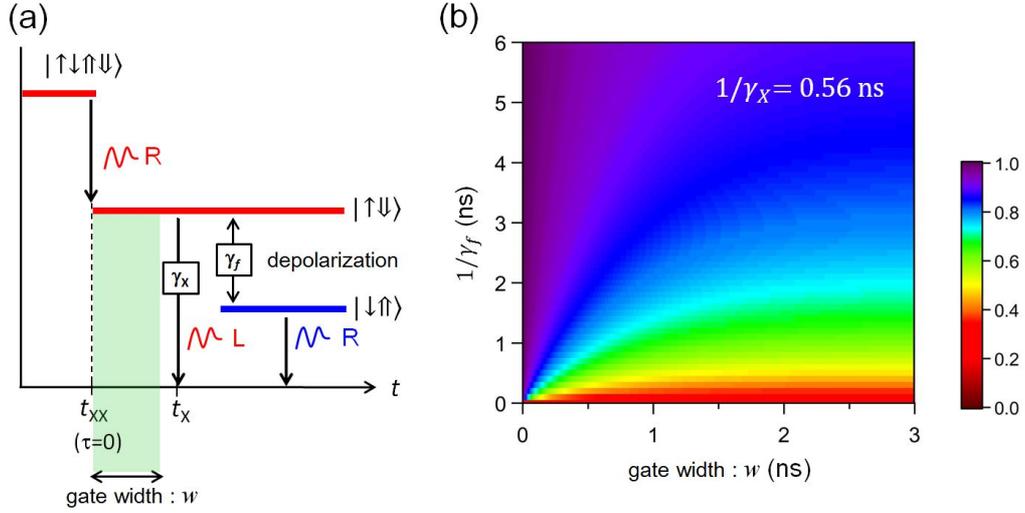


図 6.11: (a) QDs カスケード遷移における  $X^0$  分布の時間発展. 観測時間幅 (ゲート幅  $w$ ) の制御により高い忠実度を持つ 2 光子の抽出が可能. (b) ゲート幅  $w$  に対する忠実度 ( $f^+$ ) のシミュレーション例. ゲート幅 0 ns 極限では  $f^+ \sim 1$  の理想的な状態に近づく.

を与えると以下ようになる。

$$\begin{aligned}
 P_{XL}(t') &= \frac{1}{2} \cdot \{\exp(-\gamma_X \cdot t') + \exp(-(\gamma_X + 2\gamma_f) \cdot t')\} \\
 P_{XR}(t') &= \frac{1}{2} \cdot \{\exp(-\gamma_X \cdot t') - \exp(-(\gamma_X + 2\gamma_f) \cdot t')\}
 \end{aligned} \tag{6.20}$$

これは  $XX^0$  生成時からの  $|\uparrow\downarrow\rangle, |\downarrow\uparrow\rangle$  の分布確率であり、RL と RR の相関関数に相当する。また  $\tau = 0$  は  $XX^0$  光子発生時間  $t = t_{XX}$  で与えられるため、 $\tau = t'$  である。したがって  $[R_{XX}, L_X]$  と  $[R_{XX}, R_X]$  測定時における相関関数  $g_{RL}^{(2)}(\tau), g_{RR}^{(2)}(\tau)$  は、

$$\begin{aligned}
 g_{RL}^{(2)}(\tau) &\propto P_{XL}(\tau) \\
 g_{RR}^{(2)}(\tau) &\propto P_{XR}(\tau)
 \end{aligned} \tag{6.21}$$

となる。ここでゲート時間幅  $w$  を用いた場合の 2 光子の強度  $I(R, L), I(R, R)$  を考える。 $I(R, L), I(R, R)$  はそれぞれ  $g_{RL}^{(2)}(\tau), g_{RR}^{(2)}(\tau)$  における  $\tau = 0$  から  $\tau = w$  までの積分値に相当し、

$$\begin{aligned}
 I(R, L) &= \int_{\tau=0}^w g_{RL}^{(2)}(\tau) \propto \int_{\tau=0}^w P_{XL}(\tau) d\tau \\
 I(R, R) &= \int_{\tau=0}^w g_{RR}^{(2)}(\tau) \propto \int_{\tau=0}^w P_{XR}(\tau) d\tau
 \end{aligned} \tag{6.22}$$

である。したがって R/L 基底での相関計数  $E_{cc}$  はゲート幅  $w$  を用いて以下で記述される。

$$E_{cc} = \frac{\int_{\tau=0}^w P_{XL}(\tau) d\tau - \int_{\tau=0}^w P_{XR}(\tau) d\tau}{\int_{\tau=0}^w P_{XL}(\tau) d\tau + \int_{\tau=0}^w P_{XR}(\tau) d\tau} = \frac{\gamma_X}{\gamma_X + 2\gamma_f} \cdot \frac{\exp\{-(\gamma_X + 2\gamma_f \cdot w)\} - 1}{\exp(-\gamma_X \cdot w) - 1} \tag{6.23}$$

本来  $E_{cc}$  は  $[R_{XX}, L_X], [R_{XX}, R_X], [L_{XX}, R_X], [L_{XX}, L_X]$  の 4 つのセットを用いて表されるが、解析的には  $I(R, L) = I(L, R)$  かつ  $I(R, R) = I(L, L)$  であるため省略して記述した。ベル状態  $|\psi^+\rangle$  に対する忠実度  $f^+$  は式 (6.3) で示したように  $E_{cc}$  のほか、 $E_{rr}$  と  $E_{dd}$  で与えられる。こ

ここでは簡単化のため基底変換におけるコヒーレンスは無限大、すなわち  $E_{cc} = E_{rr} = E_{dd}$  として  $f^+ = \frac{1}{4}(1 + 3E_{cc})$  を仮定する。式 (6.23) を用いた  $f^+$  のシミュレーション結果を図 6.11(b) に示す。 $\gamma_X$  は測定値 0.56 ns を用い、ゲート時間幅  $w$  と  $\gamma_f$  を関数としてプロットした。スピン反転レート  $\gamma_f$  に関わらず、ゲート幅  $w$  を 0 ns 極限にすると  $f^+$  は 1 に近づく。一方で  $w$  を大きくすると  $f^+$  は低減していき、その減衰は  $\gamma_f$  が大きいほど緩やかである。 $w$  無限大の極限では  $f^+$  は一定値に収束していき、その値は  $\frac{2\gamma_X + \gamma_f}{2(\gamma_X + \gamma_f)}$  である。すなわち全ての  $X^0$  を検出した場合の  $f^+$  は発光レート  $\gamma_X$  とスピントリプルレート  $\gamma_f$  によって決定される。

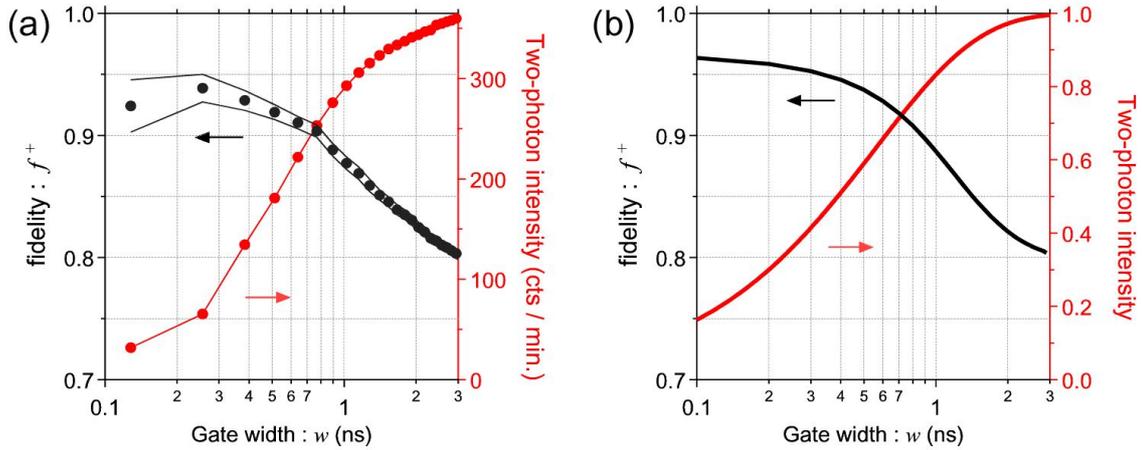


図 6.12: ポストセクションによる忠実度  $f^+$  の改善. (a) 実験結果. ゲート幅の制御により  $f^+ = 0.93$  に向上した. (b) シミュレーション結果.  $1/\gamma_X = 0.56$  ns,  $1/\gamma_f = 3$  ns でのシミュレーションは実験結果を良く再現する.

以上を踏まえ、2光子対の事後選別 (ポストセクション) による検証を行った。偏光相関で得られた測定結果において同時計数の積分に使用した時間枠を  $\tau = 0$  から 0.128 ns (1 pixel) ずつ増加させ、ゲート時間幅  $w$  に対する忠実度  $f^+$  の推移を評価した。使用した測定結果は図 6.4 と同様のものであるが SN 向上のため、より積算したデータを使用した。得られた結果を図 6.12(a) に示す。左軸 (黒丸) が  $f^+$  の値に相当し、赤い丸は使用した同時計数の積分値 (/min.) である。ゲート幅  $w \rightarrow 0$  に伴い、 $f^+$  が明瞭に向上していく様子が分かる。ゲート幅 0.256 ns で  $f^+$  は  $0.93 \pm 0.03$  まで改善された。また  $w \rightarrow 3$  ns では  $f^+$  は 0.8 程度に収束していき。これは  $1/\gamma_f = 3.0$  ns 程度に相当し (図 6.11(b) 参照)、 $1/\gamma_X = 0.56$  ns に比べ遅いスピントリプル時間を持つことが分かる。図 6.12(b) は  $1/\gamma_f = 3.0$  ns でのシミュレーションであり、実際の測定系の応答時間 ( $\sim 0.7$  ns) も考慮した結果である。右軸の 2 光子強度は  $1/\gamma_X = 0.56$  ns の減衰を用い、 $\int_{\tau=0}^w \exp(-\gamma_X \cdot \tau) d\tau$  でプロットした。実験結果と同様、 $w \rightarrow 0$  による  $f^+$  の改善、および  $w \rightarrow \infty$  での  $f^+ \rightarrow 0.8$  を良く再現している。 $w = 0.1$  ns 近傍では実験結果と多少の差異が見られるが、これはサンプルからの背景光や検出器の暗計数によるものと考えられる。補足として、使用した  $1/\gamma_f = 3.0$  ns はエネルギーにすると約 0.14  $\mu\text{eV}$  である。2光子のコヒーレンスがスピン反転のみによって失われていくとすると、この値は FSS に相当する。発光スペクトルの調査からでは FSS 値は評価不能であったが (図 6.2c)、自然幅 1.2  $\mu\text{eV}$  よりも十分小さい値であることから相応な指標と考えられる。

最後にゲート時間幅の導入によるもつれメジャーの改善について評価する。図 6.13 に (a) 事後選別なし、(b) 事後選別ありでの密度行列を示す。(a) は図 6.7 の再プロットである。また (b) は

$w=0.256$  ns での  $\rho_{exp}$  算出結果であり、以下の行列、

$$\begin{pmatrix} 0.4644 & 0.0251 & -0.0111 & 0.4537 \\ 0.0251 & 0.0457 & 0.0057 & 0.0303 \\ -0.0111 & 0.0057 & 0.0302 & -0.0157 \\ 0.4537 & 0.0303 & -0.0157 & 0.4596 \end{pmatrix} + i \begin{pmatrix} 0 & -0.0200 & 0.0019 & 0.0330 \\ 0.0200 & 0 & 0.0350 & 0.0148 \\ -0.0019 & 0.0350 & 0 & -0.0107 \\ 0.0330 & -0.0148 & 0.0107 & 0 \end{pmatrix}$$

である。2つの行列を比較すると大まかな傾向は変わらないものの、(b)では非対角成分  $\langle VV|HH\rangle$  と  $\langle HH|VV\rangle$  とで値が向上しているのが分かる。これは2光子のコヒーレンスが回復していることを示しており、Tangle は 0.71 にまで向上した。また行列の対角成分  $\langle HV|HV\rangle$  と  $\langle VH|VH\rangle$  の抑制も見られ、Linear Entropy においても 0.19 と改善された。(c)のプロットからも Tangle, Linear Entropy の明瞭な向上が伺える。以上の結果はポストセレクションを施すことで、より強固な量子もつれ光子対の抽出が可能であることを示している。最後に以下を補足しておく。ポストセレクションの導入によって、ベル不等式における  $S$  値も改善されるが、ゲート時間  $w \rightarrow 0$  では誤差の増大のため、事後選別無し ( $S = 2.31 \pm 0.06$ ) の  $S - 2 \sim 5 \times \sigma$  と比べた大幅な改善は見られなかった。しかしながらこれは測定の SN によるものであり、より長時間測定での検証によって改善が見込まれる。

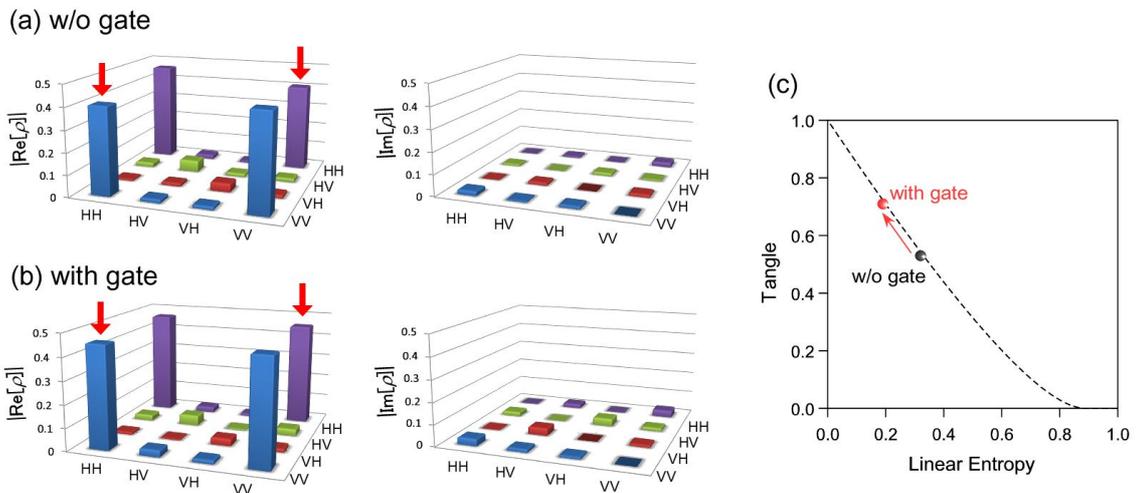


図 6.13: ポストセレクションの導入による2光子状態の変化. ポストセレクション無しでの密度行列 (a) と比べて、ポストセレクションの有り (b) では非対角の2隅 ( $\langle VV|HH\rangle$ ,  $\langle HH|VV\rangle$ ) の値が向上し、2光子のコヒーレンスが回復した. (c) Tangle および Linear Entropy の改善.

## まとめ

本章では (111)A 面上 QD を用いて量子もつれ光子対生成を実証した。

・液滴エピタキシー成長および (111)A 面成長基板の選択により極めて高い等方性を有する QDs を自己形成し、FSS はスペクトル自然幅  $\sim 1.2 \mu\text{eV}$  未満まで低減した。これは成長基板選択による大幅な抑制改善であり、(100) 面上 QDs との比較検討から FSS の統計的改善が確認された。

・FSS の抑制に伴い which-path 情報はほぼ完全に消去され、 $XX^0-X^0$  光子対はもつれ合った偏光状態として生成することを実証した。1 光子それぞれの偏光測定ではランダム観測であったのに対し、2 光子測定では観測基底に依らない強い偏光相関が確認された。これは 2 光子の偏光状態が重ね合わせ状態になった結果であり、測定から見積もられた忠実度  $f^+$  は  $0.86 \pm 0.02$  と古典限界 0.5 を大きく超える値が得られた。

・36 通りの偏光測定では密度行列およびもつれメジャーの測算を行い、Werner 状態を用いた解析により従来の性能を凌駕する高性能な量子光源であることが示された。また RL-VH 偏光掃引にて明瞭な 2 光子干渉波形を確認し、結果として S 因子  $2.31 \pm 0.06$  と、ベルの不等式を標準偏差の 5 倍の強さで破るに至った。

・もつれ状態のコヒーレンス回復法として 2 光子の観測時間を導入し、理論的な解析からそのメカニズムの考察を行った。更に実験結果を用いた検証では忠実度の大幅な改善が見られ、 $f^+ = 0.93 \pm 0.03$  と理想値に近い 2 光子抽出に成功した。

以上の結果は、(111) 面上 QDs から強い偏光相関を有する光子対が生成していることを示唆している。これまで磁場/電場印加や、時間/波長選別といった様々な厳しい制約が課せられてきた中で、外部制御を必要としない量子状態形成およびベル不等式の破れの例証は初めてであり、今後の技術発展に向けて重要な結果である。また今回の実験では発光波長 700 nm 帯域の GaAs/AlGaAs 系を用いた検証であるが、液滴エピタキシー手法では材料系の拡張が比較的容易に行え、InAs/InP QDs への応用が可能である。従って通信波長帯での光子対駆動という実用的な研究展開が大いに期待される。

## 参考文献

- 1) A. Christ and C. Silberhorn, "Limits on the deterministic creation of pure single-photon states using parametric down-conversion", Phys. Rev. A **85**, 023829 (2012).
- 2) R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "A semiconductor source of triggered entangled photon pairs", Nature **439**, 178 (2006).
- 3) M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer, "Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As / (Al)GaAs quantum dots", Phys. Rev. B **65**, 195315 (2002).

- 4) M. M. Vogel, S. M. Ulrich, R. Hafenbrak, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli and O. G. Schmidt "Influence of lateral electric fields on multiexcitonic transitions and fine structure of single quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **91**, 051904 (2007).
- 5) M. Ghali, K. Ohtani, Y. Ohno, and H. Ohno, "Generation and control of polarization-entangled photons from GaAs island quantum dots by an electric field", *Nat. Commun.* **3**, 661, (2012).
- 6) C. L. Salter, R. M. Stevenson, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "An entangled-light-emitting diode", *Nature* **465**, 594 (2010).
- 7) R. Trotta, E. Zallo, C. Ortix, P. Atkinson, J. D. Plumhof, J. van den Brink, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Universal Recovery of the Energy-Level Degeneracy of Bright Excitons in InGaAs Quantum Dots without a Structure Symmetry," *Phys. Rev. Lett.* **109**,147401, (2012).
- 8) N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, and D. Gershoni, "Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots", *Phys. Rev. Lett.* **96**, 130501 (2006).
- 9) A. Muller, W. Fang, J. Lawall, and G. S. Solomon, "Creating polarization-entangled photon pairs from a semiconductor quantum dot using the optical stark effect", *Phys. Rev. Lett.* **103**, 217402 (2009).
- 10) J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Hudson, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "Bell-Inequality Violation with a Triggered Photon-Pair Source", *Phys. Rev. Lett.* **102**, 030406 (2009).
- 11) J. Nilsson, R. M. Stevenson, K. H. A. Chan, J. S. Szymanska, M. Lucamarini, M. B. Ward, A. J. Bennett, C. L. Salter, I. Farrer, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "Quantum teleportation using a light-emitting diode", *Nature photon.* **7**, 311 (2013).
- 12) R. Singh and G. Bester, "Lower bound for the excitonic fine structure splitting in self-assembled quantum dots", *Phys. Rev. Lett.* **104**, 196803 (2010).
- 13) N. Koguchi, S. Takahashi, and T. Chikyow, "New MBE growth method for InSb quantum well boxes", *J. Cryst. Growth* **111**, 688 (1991).
- 14) T. Mano, T. Kuroda, S. Sanguinetti, T. Ochiai, T. Tateno, J. Kim, T. Noda, M. Kawabe, K. Sakoda, G. Kido, and N. Koguchi, "Self-Assembly of Concentric Quantum Double Rings", *Nano Lett.* **5**, 425 (2005).
- 15) B. Liang, Andrew Lin, N. Pavarelli, C. Reyner, J. Tatebayashi, K. Nunna, J. He, T. J. Ochalski, G. Huyet, and D. L. Huffaker, "GaSb/GaAs type-II quantum dots grown by droplet epitaxy", *Nanotechnology* **20**, 455604 (2009)
- 16) E. Cohen, S. Yochelis, O. Westreich, S. Shusterman, D. P. Kumah, R. Clarke, Y. Yacoby and Yossi Paltiel, "Structure of droplet-epitaxy-grown InAs/GaAs quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* **98**, 243115 (2011).

- 17) T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, B. McSkimming, A. Ohtake, K. Mitsuishi, and K. Sakoda, "Self-Assembly of Symmetric GaAs Quantum Dots on (111)A Substrates: Suppression of Fine-Structure Splitting", *Appl. Phys. Express* **3**, 065203, (2010).
- 18) T. Kuroda, T. Mano, N. Ha, H. Nakajima, H. Kumano, B. Urbaszek, M. Jo, M. Abbarchi, Y. Sakuma, K. Sakoda, I. Suemune, X. Marie, and T. Amand "Symmetric quantum dots as efficient sources of highly entangled photons: Violation of Bell's inequality without spectral and temporal filtering", *Phys. Rev. B* **88**, 041306(R) (2013).
- 19) C. Lin, W.-T. You, H.-Y. Chou, S.-J. Cheng, S.-D. Lin, and W.-H. Chang, "Anticorrelation between the splitting and polarization of the exciton fine structure in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots", *Phys. Rev. B* **83**, 075317 (2011).
- 20) A. Mohan, M. Felici, P. Gallo, B. Dwir, A. Rudra, J. Faist, and E. Kapon, "Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots", *Nat. Photonics* **4**, 302 (2010).
- 21) Peter Michler, *Single Semiconductor Quantum Dots*, (Springer-Verlag, Berlin, 2009).
- 22) D. F. V. James, P. G. Kwiat, W. J. Munro, and A. G. White, "Measurement of qubits", *Phys. Rev. A* **64**, 052312 (2001).
- 23) W. K. Wootters, "Entanglement of formation of an arbitrary state of two qubits", *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2245 (1998).
- 24) S. Bose and V. Vedral, "Mixedness and teleportation", *Phys. Rev. A* **61**, 040101(R) (2000).
- 25) A. Peres, "Separability Criterion for Density Matrices", *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1413 (1996).
- 26) [a] G. Juska, V. Dimastrodonato, L. O. Mereni, A. Gocalinska, and E. Pelucchi, "Towards quantum-dot arrays of entangled photon emitters", *Nature photon.* **7**, 527 (2013).  
 [b] A. Mohan, M. Felici, P. Gallo, B. Dwir, A. Rudra, J. Faist, and E. Kapon, "Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots", *Nat. Photonics* **4**, 302 (2010).  
 [c] A. Dousse, J. Suffczyński, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaître, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart, "Ultrabright source of entangled photon pairs", *Nature* **466**, 217 (2010).  
 [d] A. Muller, W. Fang, J. Lawall, and G. S. Solomon, "Creating polarization-entangled photon pairs from a semiconductor quantum dot using the optical stark effect", *Phys. Rev. Lett.* **103**, 217402 (2009).  
 [e] R. Hafenbrak, S. M. Ulrich, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, "Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30K", *New J. Phys.* **9**, 315 (2007).  
 [f] R. J. Young, R. M. Stevenson, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "Improved fidelity of triggered entangled photons from single quantum dots", *New J. Phys.* **8**, 29 (2006).

なお文献 [a] および [c] ~ [f] に関して、Tangle は算出されているが  $S_L$  の記載はない。[a] と [e] は著者から密度行列を頂戴して算出した。[c], [d], [f] に関しては Werner 状態であると仮定し Tangle の値のみでプロットした。

- 27) R. F. Werner, "Quantum states with Einstein-Podolsky-Rosen correlations admitting a hidden-variable model", Phys. Rev. A **40**, 4277 (1989).
- 28) W. J. Munro, D. F. V. James, A. G. White, and P. G. Kwiat, "Maximizing the entanglement of two mixed qubits", Phys. Rev. A **64**, 030302(R) (2001).
- 29) H. Kumano, K. Matsuda, S. Ekuni, H. Sasakura, and I. Suemune, "Characterization of two-photon polarization mixed states generated from entangled-classical hybrid photon source", Opt. Express **19**, 14249 (2011).
- 30) J. F. Clauser, M. A. Horne, A. Shimony, and R. A. Holt, "Proposed Experiment to Test Local Hidden-Variable Theories", Phys. Rev. Lett. **23**, 880 (1969).
- 31) 松岡正浩、江馬一弘、平野琢也、岩本 敏, 『基礎からの量子光学』(オプトロニクス社, 2009).



## 7 総括および今後の展望

本論文では次世代量子情報通信技術の実現を念頭に半導体量子ドットからの単一光子・量子もつれ光子対生成に関する研究を行った。以下得られた成果を纏める。

・第三章では金属埋め込みピラー光学構造を作製し、量子ドット発光特性に関する光学評価を行った。金属埋め込み/通常ピラー構造における発光スペクトル比較により大幅な発光増強が確認され、結果として単一量子ドットからの光子取り出し効率最大 25% を達成した。これは反射率の高い Ag の使用による大幅な効率向上であり、Ti を用いた場合と比べると 3 倍程度もの改善であることが分かった。

・第四章では、単一量子ドット内で形成される中性-荷電励起子状態間で起こるキャリア遷移レートの計測を行った。自己/相互相関測定によって数ナノ秒のキャリアダイナミクスを高精度に評価し、また励起強度/励起波長での依存性から量子ドット励起機構に関する考察を行った。非共鳴な励起では単一キャリアが優先的に量子ドットに分布し、それに伴い励起子状態はナノ秒オーダーの中性-荷電状態間遷移を繰り返す。一方で準共鳴で励起した場合、励起によって生成した励起子は直接量子ドットに分布し、遷移レートは 1 桁程度抑制される。これらは孤立二準位系形成を司る励起制御機構の解明であり、高純度単一光子生成に向けた重要な知見である。

・第五章では、準共鳴励起によって形成された孤立二準位系を用いて発生光子の光子統計を計測・評価した。測定結果は極めて強いアンチバンチングを示し、更に従来評価法では評価不能である奇異なディップ構造の同時計数を示した。これは二準位系のキャリアダイナミクスが直接反映された結果であり、高速駆動や高温駆動、特に高純度単一光子生成時において観測される特性であることを示した。またそのキャリアダイナミクスを考慮して光子統計評価法の再定義を行い、結果として  $g^{(2)}(0) = 0.003$  の従来性能を 1 桁凌駕する高純度単一光子生成に成功した。これは QKD の更なる長距離化に向けて重要な意義を持ち、伝送距離 100 km 以上での安全鍵生成をも可能にする結果である。

・第六章では、(111) 基板上液滴エピタキシー量子ドットの作製を行い、無制御条件下での量子もつれ光子対生成およびベル不等式の破れを実証した。高い等方形状を持つ量子ドットは FSS の統計的な抑制改善を示し、その値はスペクトル自然幅未満の極めて微小なものであった。これにより which-path 情報はほぼ完全に消去され、XX-X カスケード光子対は観測基底に依らない強い偏光相関を示した。測定によって見積もられた忠実度  $f^+$  は 0.86 と従来光源を大きく上回るものであり、更に S 因子 2.33 のベル不等式の破れの観測に成功した。これらは全て磁場/電場の外部制御や時間的/エネルギー的な事後選別を施すことなく得られた初めての結果であり、安全性の高い第二世代 QKD 実現に向けて重要な結果である。またカスケード遷移時における時間的選別を用いると 2 光子状態のコヒーレンス回復が可能であることを考察し、忠実度最大 0.93 までの改善に成功した。

以上は従来の光源性能を凌駕する結果、または高性能量子光源への重要な知見であり、量子ドットを用いた QKD 実現に向けた大きな前進と言える。しかしながらこれらはまだまだ実用化に向けた基盤技術確立の一角に過ぎず、今後は on-demand 光源開発へのより一層のアプローチが必要とされる。以下では実際のデバイス実装を踏まえ今後の研究展開について述べる。

・本研究では高純度単一光子生成および量子もつれ状態の形成に着眼したものであり、量子ドットは成長技法の蓄積された GaAs/GaAs 系や InAs/GaAs 系を選択したが、実際の単一モード光ファイバ通信を念頭にすると通信波長帯域での検証が必要であり、目下の研究展開として挙げられる。しかしながら金属埋め込み微細加工や液滴エピタキシー成長法では材料系の制約は少なく、通信波長帯域での光子生成が可能な InAs/InP 系への拡張が容易に行える。実際に現在の進行状況では InAs/InP を用いた  $1.3 \mu\text{m}$  での単一光子生成<sup>1)</sup>、金属埋め込み加工<sup>2,3)</sup>、(111)A 面上量子ドット形成 (論文未発表) といった基本プロセスはほぼクリアしており、従って通信波長帯での高純度単一光子・量子もつれ光子対生成への道は目前に拓かれている。

・今回作製した金属埋め込み光学構造によって得られた効率率は 25% であり、これはバルク構造での効率  $\sim 1\%$  や微弱コヒーレント光  $\sim 10\%$  と比べると高効率な光子生成と言える。しかしながら理想的なオンデマンド光源へのアプローチとしてはまだ十分とは言い難い。効率低減の主な要因は金属部における光子吸収損失や空気中への放射指向性が挙げられ、これら改善が重要な研究課題とされる。この観点では金属/半導体界面の  $\text{SiO}_2$  層の膜厚制御による吸収損失低減やピラー構造テーパ角の厳密な制御による指向性の向上が可能であることが分かっており、電磁界解析によるシミュレーション結果では最大 97% もの効率改善が期待される<sup>4)</sup>。従ってオンデマンド光源に向けた更なる高効率化への進展は大いに可能であると考えられる。

・単一光子での効率向上のみならず、量子もつれにおける光子対の効率向上は重要な研究課題として挙げられる。光子対の効率は光子 2 個分 (2 乗) となるため、世界的な研究現状においても高効率化は達成されていない。例えば文献<sup>5)</sup> で 3%, 文献<sup>6)</sup> で 12% 程度であり十分な光子対生成とは言い難い。この点に関しては (111) 基板上量子ドットと金属埋め込み構造との併合により光子対効率の向上が大いに期待され、光子対効率の評価およびその効率化についての検討を進めていく。またカスケード型光子対生成の場合、量子ドット内部における励起子分子・励起子状態の分布制御も重要な要素となる。これは励起子  $\rightarrow$  励起子分子といった通常の励起過程では、励起子分子形成前に不必要な励起子発光が生成し、結果として光子対効率の低減要因となるためである。この課題に対してこれまでに 2 レーザ励起を用いた励起子分子の直接形成を見出しており (現在論文未発表)、効率的な光子対生成技法としての重要な知見が得られている。従って今後は光学制御および構造制御の双方から効率向上へ向けた検証を進めていく。

・光子/光子対生成における駆動周波数は QKD ビットレートに関する重要な要素であり、高速駆動化への制御技法が重要な課題である。III-V 族量子ドットにおける発光再結合レートは一般に 1 GHz 程度で、これが駆動周波数の上限を与えるが、微小光共振器を用いた場合にはパーセル効果による光学遷移レート増幅のため 1 GHz 以上の高速駆動を可能にする。この観点ではこれまで金属埋め込み構造を用いた微小光共振器としての駆動は確認されており<sup>7)</sup>、Q 値  $\sim 10000$  の共振モードの観測に成功している (現在論文投稿中)。加えて埋め込み構造では実効的な光閉じ込め体積が微小であるため、量子準位系と共振器系との結合定数は原理的に大きい。従って強いパーセル増強が大いに期待され、高速駆動化への展開が十分可能であると考えられる。

以上の研究展開によって実用化への更なる進展が可能であり、実際の QKD 試験運用の施行も念頭に検証を進めていく。

## 参考文献

- 1) X. Liu, K. Akahane, N. A. Jahan, N. Kobayashi, M. Sasaki, H. Kumano, and I. Suemune, "Single-photon emission in telecommunication band from an InAs quantum dot grown on InP with molecular-beam epitaxy", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 061114 (2013).
- 2) J.-H. Huh, C. Hermannstädter, K. Akahane, H. Sasakura, N. A. Jahan, M. Sasaki, and I. Suemene, "Fabrication of metal embedded nano-cones for single quantum dot emission", *Jpn. J. Appl. Phys.* **50**, 06GG02 (2011).
- 3) J.-H. Huh, C. Hermannstädter, K. Akahane, N. A. Jahan, M. Sasaki, and I. Suemene, "Silver embedded nanomesas as enhanced single quantum dot emitters in the telecommunication C band", *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 06FF12 (2012).
- 4) I. Suemune, H. Nakajima, X. Liu, S. Odashima, T. Asano, H. Iijima, J. H. Huh, Y. Idutsu, H. Sasakura, and H. Kumano, "Semiconductor nanostructures embedded in metal and simulation of photon extraction and coupling to optical fibers" *Nanotechnology* **24**, 455205 (2013).
- 5) C. L. Salter, R. M. Stevenson, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, "An entangled-light-emitting diode", *Nature* **465**, 594 (2010).
- 6) A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaître<sup>1</sup>, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart, "Ultrabright source of entangled photon pairs", *Nature* **466**, 217 (2010).
- 7) R. Takemoto, N. Ishihara, H. Kurosawa, N. A. Jahan, T. Asano, X. Liu, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune, "High-Q resonance modes observed in a metallic nanocavity", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 191104 (2013).



## 研究業績

### 論文 (学位論文関係)

1. S. Ekuni, H. Nakajima, H. Sasakura, I. Suemune, and H. Kumano: "First-order photon interference of a single photon from a single quantum dot", *Physica E*, **42**, 2536-2539 (2010).
2. H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, Y. Idutsu, H. Sasakura, and I. Suemune: "Quantum-dot-based photon emission and media conversion for quantum information applications", *Adv. Math. Phys.* **2010**, 391607-1-14 (2010).
3. H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, Y. Idutsu, S. Miyamura, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, and I. Suemune: "Strongly suppressed multi-photon generation from a single quantum dot in a metal-embedded structure", *phys. stat. sol (c)* **8**, 337-339 (2011).
4. H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, and I. Suemune: "Anomalous dip observed in intensity autocorrelation function as an inherent nature of single-photon emitters", *Appl. Phys. Lett.* **101**, 161107-1-4 (2012).
5. X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Bright single-photon source based on an InAs quantum dot in a silver-embedded nanocone structure", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 131114-1-3 (2013).
6. H. Kumano, H. Nakajima, H. Iijima, S. Odashima, Y. Matsuo, K. Ijira, and I. Suemune: "Enhanced Photon Extraction from a Quantum Dot Induced by a Silver Microcolumnar Photon Reflector", *Appl. Phys. Express* **6**, 062801-1-4 (2013).
7. T. Kuroda, T. Mano, N. Ha, H. Nakajima, H. Kumano, B. Urbaszek, M. Jo, M. Abbarchi, Y. Sakuma, K. Sakoda, I. Suemune, X. Marie, and T. Amand: "Symmetric quantum dots as efficient sources of highly entangled photons: Violation of Bell's inequality without spectral and temporal filtering", *Phys. Rev. B* **88**, 041306-1-5(R) (2013).
8. H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, S. Odashima, and I. Suemune: "Carrier-transfer dynamics between neutral and charged excitonic states in a single quantum dot probed with second-order photon correlation measurements", *Phys. Rev. B* **88**, 045324-1-6 (2013).
9. I. Suemune, H. Nakajima, X. Liu, S. Odashima, T. Asano, H. Iijima, J. H. Huh, Y. Idutsu, H. Sasakura, and H. Kumano: "Semiconductor nanostructures embedded in metal and simulation of photon extraction and coupling to optical fibers", *Nanotechnology* **24**, 455205-1-9 (2013).
10. R. Takemoto, N. Ishihara, H. Kurosawa, N. A. Jahan, T. Asano, X. Liu, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "High-Q resonance modes observed in a metallic nanocavity", *Appl. Phys. Lett.* **103**, 191104-1-4 (2013).

## 社説等

1. H. Kumano, S. Ekuni, H. Nakajima, M. Jo, H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, and I. Suemune: "Single photon interference between two modes originated from a single quantum dot", arXiv: 0908.1829-1-9 (2009).
2. 中島秀朗, 江国晋吾, 熊野英和, 井筒康洋, 飯島仁史, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「金属埋め込み InAs 量子ドットからの高効率単一光子発生」, 信学技報, 110 巻 103 号 pp11-14 (2010).
3. 熊野英和, 中島秀朗, 末宗幾夫: 「単一光子光源評価のための強度自己相関関数の一般化 : 量子 2 準位系における分布相関の効果」, 量子情報技術研究会資料, 27 巻 pp69-72 (2012).
4. 黒田隆, 間野高明, 迫田和彰, 中島秀朗, 熊野英和, 末宗幾夫: 「半導体量子ドットを用いた量子もつれ光子対の発生」, 信学技報, 113 巻 49 号 pp35-40 (2013).
5. X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Metal-embedded Nanocone Structure Incorporating an InAs QD for Efficient Single-photon Emission", 信学技報, 113 巻 49 号 pp41-44 (2013).

## 国際会議

1. H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, H. Sasakura, and I. Suemune: "Two-mode photon interference in a quantum-dot single photon emitter", The 14th International Conference on Modulated Semiconductor structures (MSS14), July 19-24 2009, Kobe, Japan.
2. Y. Idutsu, S. Odashima, H. Nakajima, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Drastic enhancement of luminescence and single photon emission from InAs QDs pillar structures embedded in niobium layer", 22nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2009), November 16-19 2009, Sapporo, Japan.
3. H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, S. Miyamura, J.-H. Huh, H. Sasakura, and I. Suemune: "Quantum-dot single photon emitter of higher photon extraction efficiency and lower multiple-photon emission probability with metal-embedded structure", The 6th International Conference on Quantum Dots (Quantum Dot 2010), April 26-30 2010, Nottingham, UK.
4. H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, S. Miyamura, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, N. Namekata, and I. Suemune: "Strongly suppressed multi-photon generation from a single quantum dot in metal-embedded structure with second-order photon correlation measurements", 37th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2010), May 31-June 4 2010, Kagawa, Japan.
5. H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, Y. Idutsu, S. Ida, H. Sasakura, and I. Suemune: "Metal-embedded semiconductor single quantum dot as a novel highly pure single photon source", 2011 SPIE Photonics West Conference, Opto, Physics and Simulation of Opto-electronic Devices XVIII, January 22-27 2011, San Francisco, CA, USA.

6. H. Iijima, M. Wada, H. Nakajima, S. Odashima, T. Nishio, Y. Matsuo, K. Ijiro, H. Kumano, and I. Suemune: "High extraction efficiency of photons emitted from a single quantum dot in a pillar structure embedded in Silver", The 15th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS15), July 25-29 2011, Tallahassee, Florida, USA.
7. H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, and I. Suemune: "Highly pure single-photon emission from a metal-embedded single quantum dot under quasi-resonant excitation", The 15th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS15), July 25-29 2011, Tallahassee, Florida, USA.
8. H. Iijima, S. Odashima, H. Nakajima, and I. Suemune, "n-ZnO / InAs QDs / p-GaAs pillar structure prepared as a single quantum dot emitter", The 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2011), October 24-27 2011, Kyoto, Japan.
9. H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, S. Odashima, and I. Suemune, "Investigation on pure single-photon emission from a single quantum dot by a metal-embedded structure" The 12th RIES-Hokudai International symposium, November 21-22 2011, Sapporo, Japan.
10. H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, S. Odashima, and I. Suemune, "Investigation of carrier dynamics in a single InAs quantum dot" The 5th International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2012), January 16-18 2012, Hokkaido University, Sapporo, Japan.
11. H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, S. Odashima, and I. Suemune: "Charging and discharging of neutral exciton state in a single quantum dot selectively excited quasi-resonant excitation", 31st International conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2012), July 29-August 3 2012, Zurich, Switzerland.
12. H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "General photon autocorrelation function including carrier repopulation process in single-photon emitters", 39th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2012), Aug 27-30 2012, University of California, Santa Barbara, CA, USA.
13. H. Kumano, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Evaluating charge-transfer rate in a quantum dot based on single photon correlation measurements", 13th RIES-Hokudai international Symposium, December 13-14 2012, Sapporo, Japan.
14. H. Kumano, H. Nakajima, N. Ishihara, and I. Suemune: "Extended second-order intensity autocorrelation function for the precise evaluation of multi-photon contribution in a single photon emitter", The International Conference on Quantum Information and Technology (ICQIT-2013), January 16-18 2013, Tokyo, Japan.
15. I. Suemune, Jae-Hoon Huh, T. Asano, X. Liu, N. A. Jahan, H. Nakajima, K. Akahane, N. Kobayashi, H. Sasakura, H. Kumano, and M. Sasaki: "Photon extraction from semiconductors embedded in metal and coupling to optical fibers", SPIE Photonic West 2013, Special Session on "Highly Efficient Photon Extraction from Semiconductors", February 2-7, 2013, San Francisco, USA.

16. X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Bright Single-photon Source Based on an InAs Quantum Dot in a Metal-embedded Nanocone Structure", The 40th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2013), May 19-23 (2013), Kobe, Japan.
17. N. Ishihara, R. Takemoto, N. A. Jahan, H. Nakajima, M. Jo, T. Mano, H. Kumano, and I. Suemune: "High-Q resonance peak observed from metal-embedded InAs/GaAs quantum dot nano-cavity", The 16th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS16), July 1-5 2013, Wroclaw, Poland.
18. X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Photon extraction enhancement and suppression of multi-photon emission from an InAs quantum dot in a metal-embedded nanocone structure", The 16th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS16), July 1-5 2013, Wroclaw, Poland.
19. T. Takemoto, N. Ishihara, N. A. Jahan, T. Asano, X. Liu, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Observation of Sharp Resonance Peaks from a Metal-embedded GaAs Microcavity", SPIE Optics+Photonics, August 25-29, 2013, San Diego, California, USA.
20. H. Kumano, X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, and I. Suemune: "Improvement of semiconductor-based quantum emitter achieved by a metal embedded nanocone structure", 14th RIES-Hokudai international Symposium, December 11-12 2013, Sapporo, Japan.
21. H. Nakajima, T. Kuroda, H. Kumano, T. Mano, and I. Suemune: "Entangled photon pairs generated from semiconductor quantum dots with high symmetry", 14th RIES-Hokudai international Symposium, December 11-12 2013, Sapporo, Japan.
22. H. Kumano, X. Liu, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Semiconductor Quantum Dots and Their Metal-embedded Nanostructures", 2013 EMN Open Access Week Meeting, October 21-27 2013, Chengdu, China.
23. H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Akahane, M. Sasaki, and I. Suemune: "Semiconductor Photon Sources of Single Photons and Entangled Photon Pairs for Quantum Information and Communication", Quantum Science Symposium Asia-2013, November 25-26 2013, Tokyo, Japan.

## 国内会議

1. 江國晋吾, 中島秀朗, 熊野英和, 笹倉弘理, 足立智, 武藤俊一, 末宗幾夫: 「単一量子ドット発光における Which-Path 情報と干渉効果」, 第 69 回応用物理学学会学術講演会, 中部大学 (2008-09).
2. 中島秀朗, 江國晋吾, 熊野英和, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「単一量子ドット励起子発光における単一光子干渉効果」, 第 44 回応用物理学学会北海道支部 / 第 5 回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 函館 (2009-01).
3. 中島秀朗, 江國晋吾, 熊野英和, 笹倉弘理, 足立智, 武藤俊一, 末宗幾夫: 「単一光子発生における偏光モード識別と干渉効果」, 第 56 回応用物理学関係連合講演会, 筑波大学 (2009-03).

4. 中島秀朗, 熊野英和, 宮村壮太, 井筒康洋, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「金属埋め込み単一 InAs 量子ドットからの単一光子発生」, 第 70 回応用物理学学会学術講演会, 富山大学 (2009-09).
5. 熊野英和, 中島秀朗, 江國晋吾, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「量子ドットの励起子準位を用いた 1 光子 2 モード干渉」, 附置研究所アライアンス G2 分科会シンポジウム, 北海道大学 (2009-10).
6. 江國晋吾, 中島秀朗, 熊野英和, 末宗幾夫: 「多色励起による単一量子ドット中の荷電状態制御」, 第 45 回応用物理学会北海道支部 / 第 6 回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 北海道大学 (2010-01).
7. 井田惣太郎, 加藤大望, 宮村壮太, 中島秀朗, 熊野英和, 末宗幾夫: 「金属埋め込み量子ドット-半導体ピラー構造における光子取り出し効率の埋め込み金属依存性」, 第 57 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学 (2010-03).
8. 江國晋吾, 中島秀朗, 熊野英和, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「単一量子ドット励起子偏光モードを用いた 1 光子 2 モード干渉」, 第 57 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学 (2010-03).
9. 加藤大望, 井田惣太郎, 宮村壮太, 中島秀朗, 熊野英和, 末宗幾夫: 「金属埋め込み量子ドットピラー構造を用いた単一光子源の解析」, 第 57 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学 (2010-03).
10. 中島秀朗, 江國晋吾, 熊野英和, 宮村壮太, 加藤大望, 井田惣太郎, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「金属埋め込み量子ドットによる高効率単一光子源の検討」, 第 57 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学 (2010-03).
11. 宮村壮太, 飯島仁史, 定昌史, 加藤大望, 井田惣太郎, 中島秀朗, 江國晋吾, 熊野英和, 末宗幾夫: 「AlGaAs 犠牲層を用いた金属埋め込み半導体ピラー構造の作製」, 第 57 回応用物理学関係連合講演会, 東海大学 (2010-03).
12. 中島秀朗, 江國晋吾, 熊野英和, 井筒康洋, 飯島仁史, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「金属埋め込み InAs 量子ドットからの高効率単一光子発生」, 電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会 (LQE), 機会振興会館 (2010-06).
13. 中島秀朗, 江國晋吾, 熊野英和, 飯島仁史, 井田惣太郎, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「金属埋め込み量子ドットによる強度飽和領域における高純度単一光子発生」, 第 71 回応用物理学学会学術講演会, 長崎大学 (2010-09).
14. 飯島仁史, 末宗幾夫, 西尾崇, 宮村壮太, 中島秀朗, 井田惣太郎, 小田島聡, 熊野英和, 松尾保孝, 居城邦治: 「剥離層を用いた金属埋め込み半導体ピラー構造の作製」, 第 71 回応用物理学学会学術講演会, 長崎大学 (2010-09).
15. 飯島仁史, 和田雅樹, 中島秀朗, 井田惣太郎, 小田島聡, 熊野英和, 西尾崇, 松尾保孝, 居城邦治, 末宗幾夫: 「剥離層を用いた金属埋め込み半導体ピラーの作製と光学評価」, 第 46 回応用物理学会北海道支部 / 第 7 回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 室蘭工業大学 (2011-01).
16. 飯島仁史, 和田雅樹, 中島秀朗, 井田惣太郎, 小田島聡, 熊野英和, 西尾崇, 松尾保孝, 居城邦治, 末宗幾夫: 「剥離層を用いた Ag 埋め込み半導体ピラー構造の作製と発光特性評価」, 第 58 回応用物理学関係連合講演会, 神奈川工科大学 (2011-03).

17. 中島秀朗, 熊野英和, 飯島仁史, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「量子ドット励起子状態における荷電遷移レートの評価」, 第 58 回応用物理学関係連合講演会, 神奈川工科大学 (2011-03).
18. 飯島仁史, 中島秀朗, 小田島聡, 熊野英和, 西尾崇, 松尾保孝, 居城邦治, 末宗幾夫: 「Ag 埋め込み半導体ピラー構造を用いた高効率光子発生源の作製と発光特性評価」, 第 72 回応用物理学学会学術講演会, 山形大学 (2011-08).
19. 中島秀朗, 熊野英和, 飯島仁史, 笹倉弘理, 末宗幾夫: 「量子ドットにおける中性-荷電状態間遷移の評価」, 第 72 回応用物理学学会学術講演会, 山形大学 (2011-08).
20. 中島秀朗, 飯島仁史, 小田島聡, 熊野英和, 西尾崇, 松尾保孝, 居城邦治, 末宗幾夫: 「高効率キュビット生成に向けた単一光子発生源の作製と評価」若手研究者支援のための産学協同 GCOE 国内シンポジウム 2011, 北海道大学, (2011-10).
21. 中島秀朗, 熊野英和, 石原渚, 飯島仁史, 小田島聡, 末宗幾夫: 「単一 InAs 量子ドット中における状態間遷移に関する考察」, 第 47 回応用物理学学会北海道支部 / 第 8 回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 北海道大学 (2012-01).
22. 中島秀朗, 熊野英和, 飯島仁史, 小田島聡, 末宗幾夫: 「単一量子ドットにおける中性-荷電状態間遷移の評価と考察」, 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 早稲田大学 (2012-03).
23. 小田島聡, 中島秀朗, 末宗幾夫: 「量子ドット横電場印加における角度制御型電極構造の作製と光学評価」, 第 73 回応用物理学学会学術講演会, 愛媛大学/松山大学 (2012-09).
24. 浅野智也, 中島秀朗, 赤羽浩一, 佐々木雅英, 末宗幾夫: 「InP/InGaAlAs 選択エッチングによる半導体コーン構造の金属埋め込み表面平坦性改善」, 第 73 回応用物理学学会学術講演会, 愛媛大学/松山大学 (2012-09).
25. 熊野英和, 中島秀朗, 末宗幾夫: 「光子統計評価における 2 次自己相関関数の一般化」, 第 73 回応用物理学学会学術講演会, 愛媛大学/松山大学 (2012-09).
26. 末宗幾夫, 熊野英和, 笹倉弘理, 中島秀朗: 「Semiconductor Quantum Dots Single-photon Emitters and Coupling to Single-mode Fiber for Quantum Communications」, 量子 ICT フォーラム・第 1 回会合, 情報通信研究機構 (NICT) (小金井市) (2012-10).
27. 熊野英和, 中島秀朗, 末宗幾夫: 「単一光子光源評価のための強度自己相関関数の一般化 ~ 量子 2 準位系における分布相関の効果 ~ 」, 第 27 回量子情報技術研究会 (QIT27) 慶應義塾大学 日吉キャンパス (2012-11).
28. 石原 渚, 中島秀朗, 末宗幾夫, 熊野英和: 「単一光子光源の多光子発生確率の高精度評価」, 第 48 回応用物理学学会北海道支部 / 第 9 回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 釧路市生涯学習センター (2013-01).
29. 浅野智也, 小田島聡, 中島秀朗, 末宗幾夫: 「光子取り出し効率向上に向けた金属埋め込み半導体コーン構造の作製とその評価」, 第 48 回応用物理学学会北海道支部 / 第 9 回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 釧路市生涯学習センター (2013-01).
30. X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: 「単一モード光ファイバー直接結合型非古典光源の開発」, 第 60 回応用物理学関係連合講演会, 神奈川工科大学 (2013-03).

31. 熊野英和, 中島秀朗, 末宗幾夫: 「Strongly suppressed multi-photon emission from a quantum dot evaluated by generalized second-order autocorrelation function」, 附置研究所間ライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創成戦略プロジェクト 平成24年度成果報告会, 北海道大学 (2013-04).
32. 中島秀朗: 「単一光子発生源における光子統計評価に関する考察」, 第3回フォトニクスシンポジウム, 日本学会議講堂 (2013-04).
33. 黒田 隆, 間野高明, 迫田和彰, 中島秀朗, 熊野英和, 末宗幾夫: 「半導体量子ドットを用いた量子もつれ光子対の発生」, 電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会 (LQE), 金沢大学角間キャンパス (2013-05).
34. X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: 「Metal-embedded Nanocone Structure Incorporating an InAs QD for Efficient Single-photon Emission」, 電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会 (LQE), 金沢大学角間キャンパス (2013-05).
35. 中島秀朗, 黒田隆, 熊野英和, 間野高明, 迫田和彰, 末宗幾夫: 「(111)A 面上量子ドットからの量子もつれ光子対生成」, 第74回応用物理学会学術講演会, 同志社大学(京田辺市) (2013-09).
36. 長谷川知輝, 劉祥明, 中島秀朗, 末宗幾夫, 熊野英和: 「ダブルパルス励起された単一半導体量子ドットによる非古典光子対発生」, 第49回応用物理学会北海道支部/第10回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 北海道大学 (2013-12).
37. 原田拓弥, 中島秀朗, 浅野智也, 小田島聡, 熊野英和, 末宗幾夫: 「単一量子ドット励起子分子励起子カスケード光子対の効率的な生成」, 第49回応用物理学会北海道支部/第10回日本光学会北海道地区合同学術講演会, 北海道大学 (2013-12).

## 受賞等

1. 第15回応用物理学会北海道支部発表奨励賞受賞: 中島秀朗, 熊野英和, 石原渚, 飯島仁史, 小田島聡, 末宗幾夫: 「単一 InAs 量子ドット中における状態間遷移に関する考察」
2. 第35回応用物理学会講演奨励賞受賞: 中島秀朗, 黒田隆, 熊野英和, 間野高明, 迫田和彰, 末宗幾夫: 「(111)A 面上量子ドットからの量子もつれ光子対生成」



## 付録 A ~ 荷電遷移レート $\gamma_{in}$ のサンプル依存性 ~

4章では単一 QD に着目し、 $[X^0, X^0]$  相関関数におけるバンチング特性から  $\gamma_{in}$  の評価を行った。また同試料で観測された単一 QDs 発光は何れも類似した傾向を示し、試料内共通の特性として励起レートの計測を行った。ここでは補足として、幾つかの QDs 発光における類似したキャリアダイナミクス特性を 2 次相関関数測定結果から議論する。

下図は様々な単一 QDs 発光における  $[X^0, X^0]$  測定結果である。なお計測には波長 800 nm/強度 80  $\mu$ W 程度の連続波 Ti:Sa レーザを用いており、PL スペクトル計測時の励起条件とおおよそ一致する。

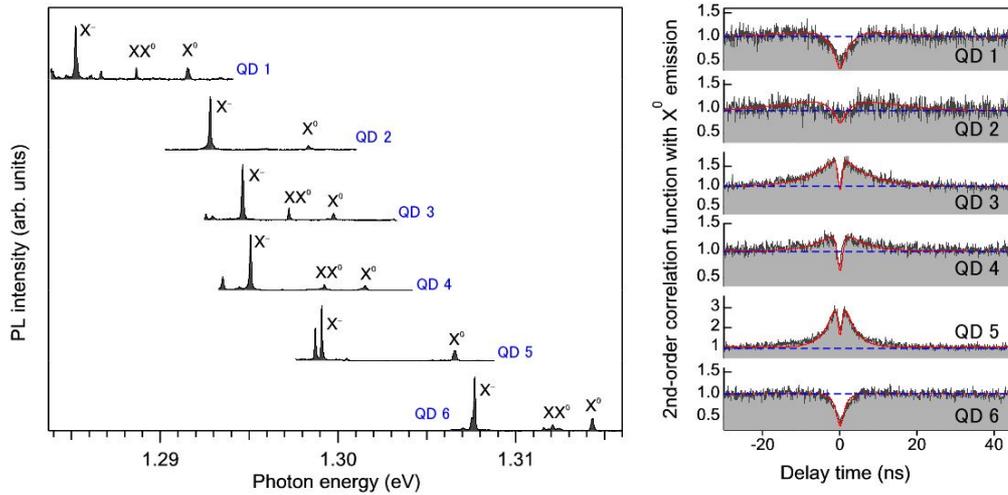


図 7.1: 様々な単一 QD 発光スペクトル (左) と各  $X^0$  輝線に関する自己相関測定結果 (右).

青破線は  $g^{(2)}(\tau)=1$  を示したものであるが、6 つの測定結果全てでバンチング特性が得られており、支配的な  $\gamma_{in}$  は同試料上で共通の特性であることが分かる。これは PL スペクトル上で  $X^-$  が支配的であることとも相違なく、これら QDs は類似した励起ダイナミクスで支配されていることを強く裏付けている。また図中赤線は次式によるフィットである。

$$g_{X^0}^{(2)}(\tau) = \{1 + C \exp(-\gamma_d \cdot \tau)\} \cdot \{1 - \exp[-(G + \gamma_X) \cdot \tau]\} \quad (7.1)$$

ここで  $C$  はバンチングの高さを決める定数、 $\gamma_d$  は多準位系との状態間遷移レートであり今回の場合  $\gamma_d \sim \gamma_{in}$  と見なされる。各測定結果のアンチバンチングの計数スロープに着目してみると、QD3~5 における計数回復レートの逆数は約 1 ns 程度あるのに対し、QD1・QD2 および QD6 とでは 3~5 ns 程度の比較的遅いスロープが見られる。これは発光寿命に差異があるためと考えられ、またこれはバンチングの明瞭さを定めている要素でもある。またバンチングの減衰傾向に着目すると、全ての結果で同様な減衰スロープを持つことが分かる。フィッティングによって得られた  $\gamma_d$  は全ての QDs で 0.1~0.3 GHz 程度であり、大きな差は見られなかった。なお QD3, QD4, QD5 の 3 つに関してバンチングの高さを比べると、それぞれ 1.5, 1.3, 2.9 であり、ランダムな傾向を示した。これは  $\gamma_{in}$  とその他の遷移レート  $G, \gamma_{out}, \gamma'_{in}, \gamma'_{out}$  との関係性がドット毎で多少異なるためと考えられる。



## 付録 B ~ 結晶成長時におけるキャリアの自然ドーピング ~

一般にドット内で形成される離散準位構造を直接励起すると、生成された電子・正孔対は直接 QD に分布し  $X^0$  発光が支配的に観測される。これは 4 章および 5 章で検証したように、 $\mu$ -PLE 計測から明白であり、励起ダイナミクスの制御技法として重要な点である。しかしながら試料によっては  $X^0$  以外の荷電励起子が支配的に形成される場合もしばしば観測される。これは意図的なドーピングを行っていない試料においても、成長時における他元素の混入等によって自然にキャリアドーピングされ、QD の特性として正もしくは負の荷電状態を取り得るためである。

下図はその例であり、ドット内励起による  $X^+$  の支配的的形成が見られる。使用した試料は本論文で使用した InAs QDs と同系統のもので意図的なドーピングは行っていないが異なる作製日時のものであり、そのため成長装置内の真空度や温度に微小な差が生じていると考えられる。また挿入図は  $X^-$ ,  $X^0$ ,  $X^+$  発光に関する  $\mu$ -PLE スペクトルであり、 $X^0$  と比べて  $X^+$  での離散ピークが顕著である。 $X^0$  発光では  $\Delta E=35$  meV 程度のみでピークが確認されるが、 $X^+$  では  $\Delta E=20, 23, 29, 35$  meV と複数の構造を有する。これは QD に正孔が 1 つ残留しており、 $X^+$  と単一正孔の状態  $|h^+ \rangle$  とで二準位系が形成されたためである。なおこの自然ドーピングは結晶の成長条件の微小な差に起因しており、一般的には膜全体もしくは一部分における共通の特性である。

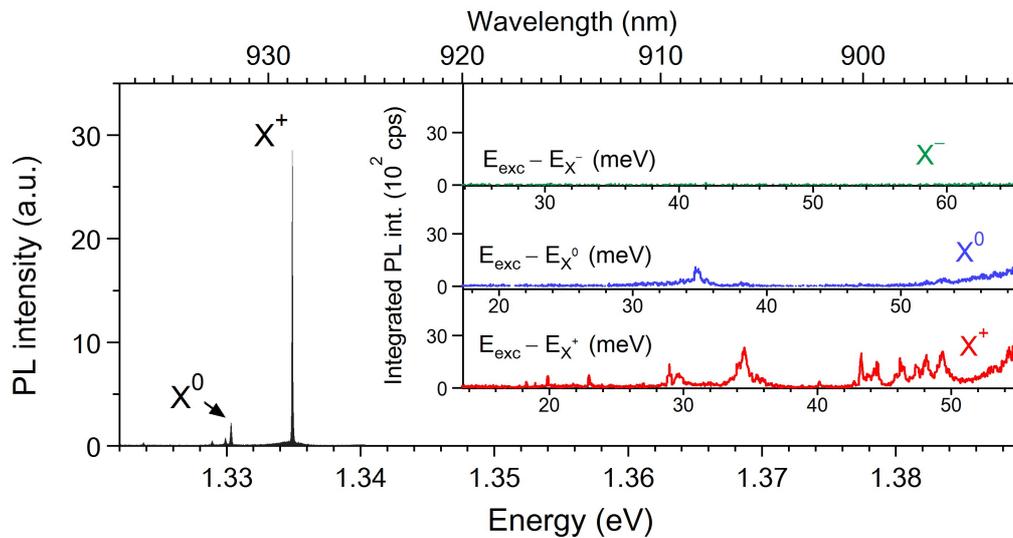


図 7.2: ドット内励起における  $X^+$  の支配的的形成. 挿入図は (上) $X^-$ , (中) $X^0$ , (下) $X^+$  発光に関する  $\mu$ -PLE スペクトル.



しかしながらこのような QD 荷電状態は励起条件によって制御可能である。下図はその一例であり、正荷電した QD 状態を 2 つのレーザーを用いて中性状態にした制御結果である。レーザー I および II のエネルギーはそれぞれ LO フォノン励起・バリア層励起に相当し、それぞれの条件下で  $X^+$  もしくは  $X^-$  が孤立的に生成しているのが分かる。またレーザー I+II では 2 つのレーザーを同時に入射したスペクトルであるが、 $X^+/X^-$  の抑制および  $X^0/XX^0$  の増幅が見られる。これは正負の荷電励起子を作る励起条件を適切に調整することで QD が中性状態に制御されたためと考えられる。

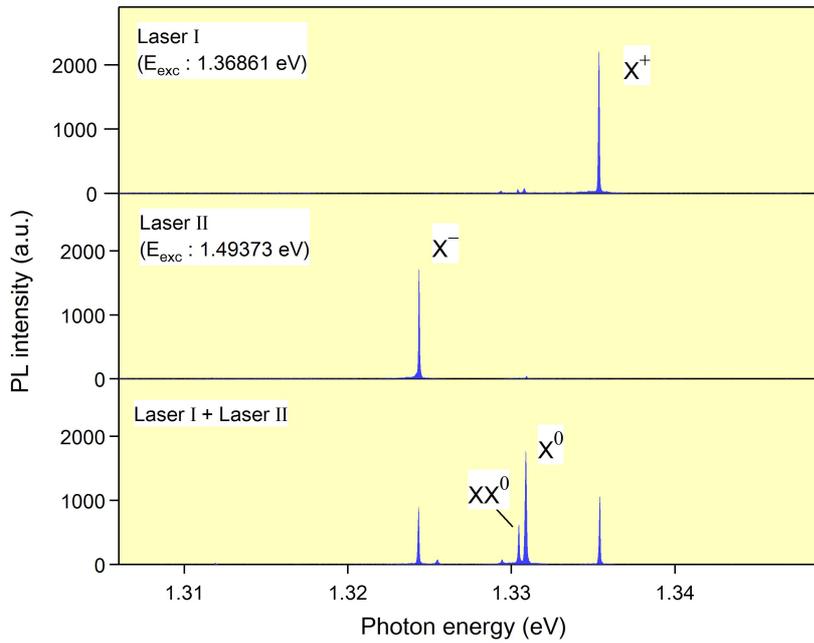


図 7.3: 2 レーザ励起による QD 荷電状態の制御例.

以上のように QDs 試料は成長時における僅かな条件差異に影響され易く、そのため完全に安定した発光特性の確保は難しいが、分光の観点からでもある程度の制御が可能である。従って適切な発光特性は結晶成長や微細加工、光学測定といった全ての観点からの制御技術が重要であると考えている。



## 付録 C ~ 掃引型ファブリペロー干渉系を用いた高分解 PL 計測 ~

本文では割愛したが掃引型ファブリペロー干渉系を用いた PL スペクトルの計測について補足する。下図に GaAs QDs を用いた測定結果を示す。(a) は共振器長  $l=6.0$  mm での測定であり、共振器長の微調整  $\Delta\lambda$  を関数としてプロットしたものである。またダブル分光器と CCD を用いた検出であるため、データは波長分解されて取得される。1つの  $\Delta\lambda$  の点が 1 回の取得で得られる共振モードのスペクトルであり、 $\Delta\lambda$  を掃引することで  $X^0$  および  $XX^0$  発光スペクトルを高分解に計測した。

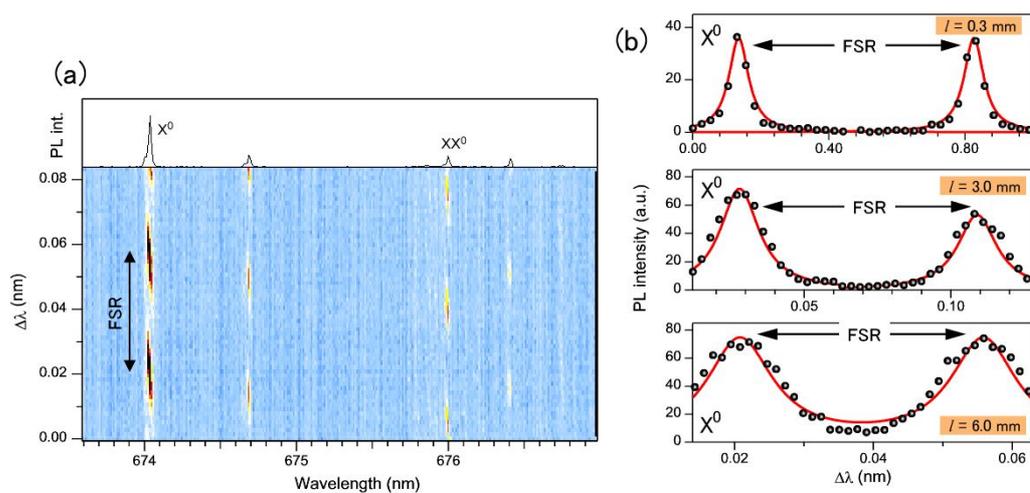


図 7.4: (a)  $l=6.0$  mm における高分解 PL 測定. (b)  $X^0$  輝線における測定結果.  $l$  は (上) 0.3 mm, (中) 3.0 mm, (下) 6.0 mm に設定した.

図 (b) は  $l =$  (上) 0.3 mm, (中) 3.0 mm, (下) 6.0 mm における  $X^0$  輝線の計測結果であり、共振器長を長くすることで FSR の狭化とそれによる分解能の向上が伺える。特に  $l=6.0$  mm では FSR が  $X^0$  の線幅に近くなり 2 つの周期間のオーバーラップが顕著になる様子が分かる。



## 付録 D ~ 偏光相関解析における誤差推定 ~

ここでは6章の偏光相関解析における誤差の評価の手続きを記述する。

本文でも述べたが、2次の相関関数  $g^{(2)}(\tau)$  は遅延時間  $\tau$  における同時計数値  $C(\tau)$  を用いて、

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{C(\tau)}{C(\infty)} \quad (7.2)$$

で表される。これより偏光相関測定における2光子の強度は

$$g_{ij}^{(2)}(0) = \frac{C_{ij}(0)}{C_{ij}(\infty)} \quad (7.3)$$

となる。ここで  $i, j$  は2光子の検出偏光を指す。

また相関係数  $E_{rr}, E_{dd}, E_{cc}$  を考えると式 (7.3) を用いて、

$$\begin{aligned} E_{rr} &= \frac{C_{HH}(0)/C_{HH}(\infty) + C_{VV}(0)/C_{VV}(\infty) - C_{HV}(0)/C_{HV}(\infty) - C_{VH}(0)/C_{VH}(\infty)}{C_{HH}(0)/C_{HH}(\infty) + C_{VV}(0)/C_{VV}(\infty) + C_{HV}(0)/C_{HV}(\infty) + C_{VH}(0)/C_{VH}(\infty)} \\ E_{dd} &= \frac{C_{DD}(0)/C_{DD}(\infty) + C_{AA}(0)/C_{AA}(\infty) - C_{AD}(0)/C_{AD}(\infty) - C_{DA}(0)/C_{DA}(\infty)}{C_{DD}(0)/C_{DD}(\infty) + C_{AA}(0)/C_{AA}(\infty) + C_{AD}(0)/C_{AD}(\infty) + C_{DA}(0)/C_{DA}(\infty)} \\ E_{cc} &= \frac{C_{LL}(0)/C_{LL}(\infty) + C_{RR}(0)/C_{RR}(\infty) - C_{LR}(0)/C_{LR}(\infty) - C_{RL}(0)/C_{RL}(\infty)}{C_{LL}(0)/C_{LL}(\infty) + C_{RR}(0)/C_{RR}(\infty) + C_{LR}(0)/C_{LR}(\infty) + C_{RL}(0)/C_{RL}(\infty)} \end{aligned} \quad (7.4)$$

となる。従って相関係数の誤差  $\sigma_{E_{rr}}, \sigma_{E_{dd}}, \sigma_{E_{cc}}$  は、

$$\begin{aligned} \sigma_{E_{rr}}^2 &= \sum_{ij} \left( \sigma_{C_{ij}(0)} \cdot \frac{dE_{rr}}{dC_{ij}(0)} \right)^2 + \sum_{ij} \left( \sigma_{C_{ij}(\infty)} \cdot \frac{dE_{rr}}{dC_{ij}(\infty)} \right)^2 \\ \sigma_{E_{dd}}^2 &= \sum_{ij} \left( \sigma_{C_{ij}(0)} \cdot \frac{dE_{dd}}{dC_{ij}(0)} \right)^2 + \sum_{ij} \left( \sigma_{C_{ij}(\infty)} \cdot \frac{dE_{dd}}{dC_{ij}(\infty)} \right)^2 \\ \sigma_{E_{cc}}^2 &= \sum_{ij} \left( \sigma_{C_{ij}(0)} \cdot \frac{dE_{cc}}{dC_{ij}(0)} \right)^2 + \sum_{ij} \left( \sigma_{C_{ij}(\infty)} \cdot \frac{dE_{cc}}{dC_{ij}(\infty)} \right)^2 \end{aligned} \quad (7.5)$$

但し、

$$\begin{aligned} \sigma_{C_{ij}(0)}^2 &= C_{ij}(0) \\ \sigma_{C_{ij}(\infty)}^2 &= C_{ij}(\infty) \end{aligned} \quad (7.6)$$

と与えられる。以上より忠実度の誤差  $\sigma_f$ 、

$$\sigma_f^2 = \frac{1}{4} (\sigma_{E_{rr}}^2 + \sigma_{E_{dd}}^2 + \sigma_{E_{cc}}^2) \quad (7.7)$$

を得る。

また同様に、S因子の誤差  $\sigma_S$  は  $\alpha=0$  度、 $\alpha'=45$  度、 $\beta=22.5$  度、 $\beta'=67.5$  度として、

$$\sigma_S^2 = \sigma_{E_{\alpha\beta}}^2 + \sigma_{E_{\alpha\beta'}}^2 + \sigma_{E_{\alpha'\beta}}^2 + \sigma_{E_{\alpha'\beta'}}^2 \quad (7.8)$$

となる。



## 付録 E ~ VH/DA 面偏光掃引での S 因子 ~

6章にて量子もつれ光子対の計測を行ったが、測定で得られた相関係数は  $E_{rr}=0.78 \pm 0.03$ ,  $E_{dd}=0.77 \pm 0.03$ ,  $E_{cc}=-0.87 \pm 0.03$  であった。これらの値から分かるように円偏光基底での相関が最も強く、対して直線偏光基底では量子相関が低下する。これは2光子の偏光状態において基底変換がコヒーレントに作用せず、次式で表記される位相項  $\phi$  が関与しているためである。

$$|\psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|RL\rangle + e^{i\phi} |LR\rangle) \quad (7.9)$$

このような事情のためベル不等式の破れ (S 因子) の計測には円偏光基底を取り入れた RL/VH 面を採用した。ここでは補足情報として VH/DA 面上での S 因子について記載する。

下図は直線偏光面掃引時における  $X^0, XX^0$  光子対の干渉波形である。

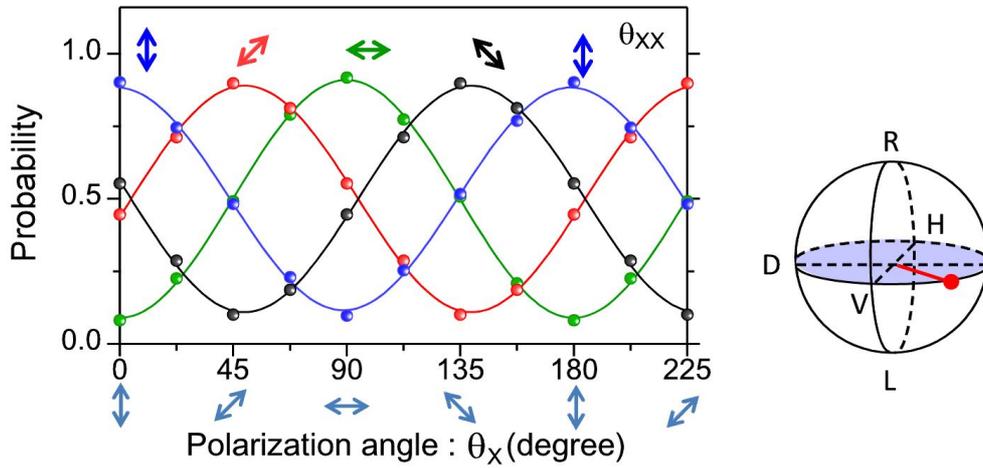


図 7.5: VH/DA 面上での偏光掃引を用いた 2 光子の干渉波形.

明瞭な干渉波形が見られるが、得られた S 因子は  $2.03 \pm 0.08$  であり、RL/VH 面掃引と比べると低い値であった。S 因子回復の鍵は  $\phi$  であり、位相の補正を行うことで S 因子のみでなく、各種もつれメジャーについても改善されるものと考えられる。