

量子ドット単一光子源とは

国立研究開発法人物質・材料研究機構 黒田 隆、間野高明

原子や分子などの単一の量子系を孤立させ、そこから放出される光を観測すると、2個以上の光子を同時に含むことのない、単一光子の集団となる。しかし、気体や溶液など凝縮系から、単一の原子や分子を空間的に孤立させることは容易ではない。一方、量子ドットであれば、固体でありながら比較的容易に単一光子源を実現でき、素子応用も可能である。本稿では、量子ドットを用いた単一光子源の開発状況を概観する。

1. はじめに

ランプやレーザーなど古典的な光源から発する光を、幾重もの減衰フィルターに通して減光すると、元は莫大な数の光子束であったものから、まばらにしか光子が見つからない状況にすることができる。この場合、単位時間あたりに検出される光子の数は、ポワソン分布と呼ぶ確率分布に従う。ポワソン分布はランダムな少数の粒子を見出す確率分布である。そのため、残念ながら、いくら減光しても、2個以上の光子が一緒になる確率はゼロにはならない。言い換えると、普通の巨視的な光源を微弱にするだけでは、単一光子源にならない。単一光子を発生するには量子性を活用することが不可欠である。

単一光子を発生させる方策のひとつは、パラメトリック下方変換（PDC）と呼ぶ非線形光学現象を用いる方法である。PDCでは、入射する光子1個に対して、エネルギー保存側を満たすように2個の光子が同時に放出される。そのうち片方の光子を検知できたタイミングを選ぶと、同じタイミングでもう片方の光子が（ほぼ）確実に1個だけ存在することになり、伝令付きの（heraldedな）光子源になる。伝令付き単一光子源は、非線形結晶を用いて比較的簡単に実現することができ、量子鍵配送の実証試験などに使われてきた。しかしながら、光子の発生は確率的であり、応用には必ずしも相応しくない。

確率的ではなく、確定的に光子を発生させるには、単一の量子系を孤立させて、そこからの発光信号を捕捉すればよい。その原理はナトリウム原子を使って最初に実証された。ここでは真空容器の中にナトリウムのガスを希薄に導入し、対物レンズの視野内にある原子の数を1個以下に制限する。標的となる原子を共鳴的に励起し、蛍光信号を計測すると、単一光子状態の特徴であるアンチバンチング相関を持つことが見出された¹⁾。このような単一の量子系からの光子の発生は、原子以外にも、真空中にトラップされた単一イオン²⁾、基板上に固定した単一の蛍光分子³⁾、固体中の不純物発光中心⁴⁾、および半導体の量子ドット⁵⁾⁻⁷⁾など様々な量子系で検証されている。

これらの光源から、単一の光子が発生していることを確認づけるには Hanbury Brown Twiss 干渉計を使って光子相関を計測すればよい (図 1)。この実験では、光源から発生した光束をビームスプリッターで 2 つの光路に分離し、おのおの光路に検出器を置いて、光子が到着するタイミングを計測する。なお、現在、光検出器は 100%に近い効率で光子を検知できる性能がある。個々の検出器が光子を検出する確率は光の強度に比例する。そのため 2 つの検出器が偶然同時に光子を検出する確率は、光の強度の 2 乗に比例することになる。しかし、単一の光子が入射すると、光子が分かれることがないため、同時に検出できる確率はゼロである。したがって、時間遅延を変えながら、2 つの検出器で同時検出できた事象を計数すると、強度の 2 乗に比例する (時間遅延に依存しない) 背景信号の中に、遅延がゼロのときに事象数がゼロとなる信号 (アンチバンチング相関) が現れることになる。

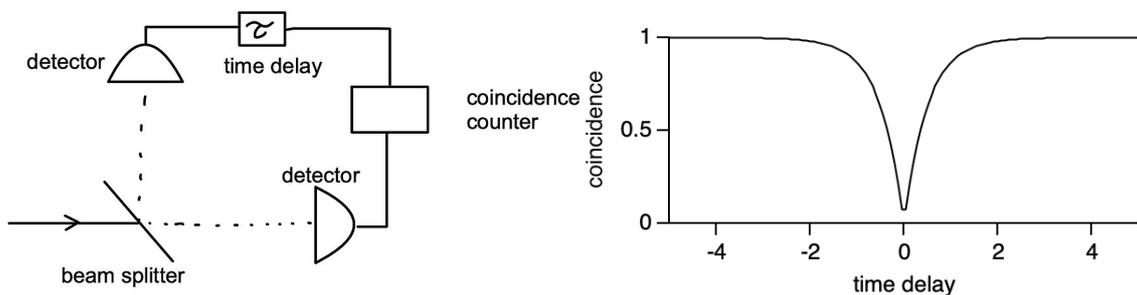


図 1. Hanbury Brown Twiss 干渉計 (右図) を使うと、光子のアンチバンチング相関 (左図) を実測することができる。

2. 量子ドットからの単一光子発生

量子ドットが光る理由は、伝導電子と正孔が量子ドットに注入されて再結合するからである。伝導電子と正孔が 1 対なら、そこから発する光子も 1 個になる。しかし、元が半導体である量子ドットには、複数の伝導電子と正孔が注入されることは稀ではない。そのため、標的とする量子ドットが 1 個でも、そこから発する光は、ポワソン分布に支配されるランダムな光子集団であり、単一光子にならないのではないか? という問題意識について考察してみよう。

エピタキシャル成長で作製した量子ドットの場合、伝導帯および価電子帯に形成される量子化準位の数は、たかだか数個である。それらの 1 電子準位は、原子の殻構造に倣って、エネルギーの低い方から s, p, d, \dots と名づけられており、その分裂は数 10~100 meV のエネルギースケールである。おのおの殻には、スピンの向きが直交する電子や正孔が 2 個ずつ収容できる。したがって 1 個の量子ドットには最大 10 個弱の電子・正孔が収容されると考えてよい。ここで、最低準位である s 殻にいる電子と、同じ最低準位の s 殻にいる正孔を考える。それらが再結合するとき、注目する電子と正孔の他に、余剰となるキャリアが「存在するとき」と「存在しないとき」とで遷移エネルギーが異なる。とくに、余剰キャリアが存在せず電子・正孔が 1 対だけの状態をエキシトン (X) と呼び、電子もしくは正孔が 1 個多いときの状態をチャージドエキシトン (X^-, X^+)、電子と正孔の両方が 1 個ずつ多いときの状態をバイエキシトン (XX) と呼ぶ。バイエキシトンは、電子・正孔が 2 対ある状態

と言い換えてもよい。それらの状態の遷移エネルギーは、数 meV のエネルギースケールで分裂しており、一般に、電子・正孔の数が多いほど、クーロン相関の影響でエネルギーが下がる。さらに多くの電子や正孔が p 殻や d 殻を占有していくと、より低エネルギー側にマルチエキシトンの準位が作られることになる。

ここで、量子ドットからの発光を、様々のマルチエキシトンの遷移を区別することなく、まとめて計測すれば、その光子数はポワソン分布に従うと予想できる。それでは単一光子源にならない。しかし、ひとつの準位、とくにエキシトン状態からの発光を分別できれば、それは単一光子源になる。そのためには、対物レンズで集光した量子ドットからの発光を、分光器などの狭帯域フィルターに通せばよい。

図2は孤立した量子ドットの発光信号を時間分解した実験結果である。左図はストリークカメラ検出器を用いた発光スペクトルの時間発展で、時刻ゼロにパルス励起した直後から発光が始まり、減衰していく様子がわかる。ここで、低エネルギー側のスペクトル成分は、非常に早く減衰し、時間を追って、高エネルギー側のスペクトル成分に移行する様子が分かる(右図)。この観測結果は、励起直後、多数の電子正孔が存在するマルチエキシトン状態だったものが、再結合を繰り返しながら、電子正孔の数が減少していき、最終的に(シングル)エキシトンの状態に緩和することを示している。右図の発光スペクトルにおける高エネルギー端の1,829 meVを中心とするピークが、エキシトンの発光線と予想できる。そのためこのピークを分光器で選別すれば、単一光子源として動作することになる。

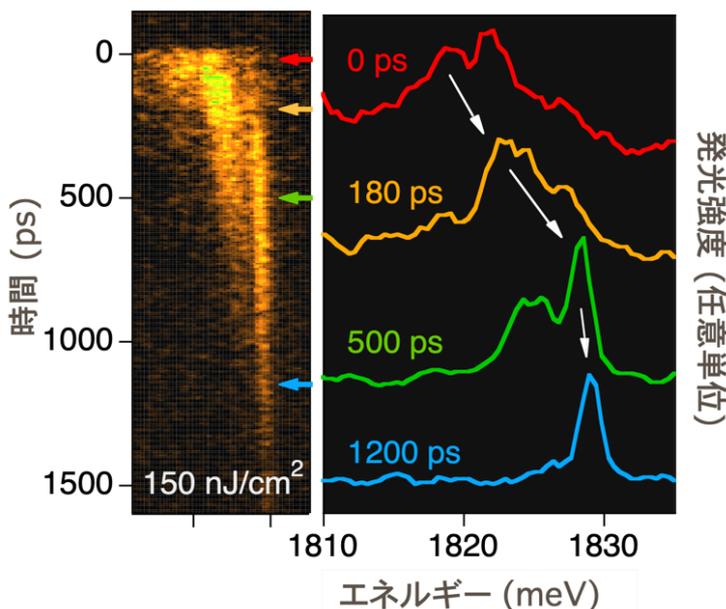


図2. 単一 GaAs 量子ドットの時間分解発光スペクトル。量子ドット試料は液滴エピタキシー法で作製した8)。

図3は、同種の量子ドット試料について、Hanbury Brown Twiss 干渉計を用いて光子相関を観測した結果である。励起には繰り返し 76 MHz (周期~13 ns) のパルスレーザーを用いた。そのため 76 MHz に同期してパルスの単一光子が発生すると期待できる。左図は、同時計数の事象の数を時間遅延の関数として表示したものである。(a)は、エキシトン準位と予想される高エネルギー端のピーク(右図の X)を選別して計測した結果であり、時刻ゼロでの同時計数ピークが消失するアンチバンチング的な相関を示している。したがって2個以上の光子を含むことのない、単一光子パルスが発生していることが結論づけられる。

左図の(b), (c)は、エキシトン遷移の発光と、それより低エネルギー側にあるマルチエキシトン由来の遷移(右図の A,B) との間の光子相関である。X と A の相関は同時計数ピークが消失し、ここから A はチャージドエキシトンの遷移と判断できる(エキシトンとチャージドエキシトンは一緒に存在できない)。一方、X と B の相関には優位な同時計数ピークを確認でき、この結果から B はバイエキシトンの遷移と予想できる。その理由は、量子ドットにバイエキシトンが形成されると、光子が発生後、エキシトン状態に緩和し、引き続き、そこから光子が発生するからである。すなわち2つの光子が「連れ立って」発生するため、同時計数ピークが現れることになる。

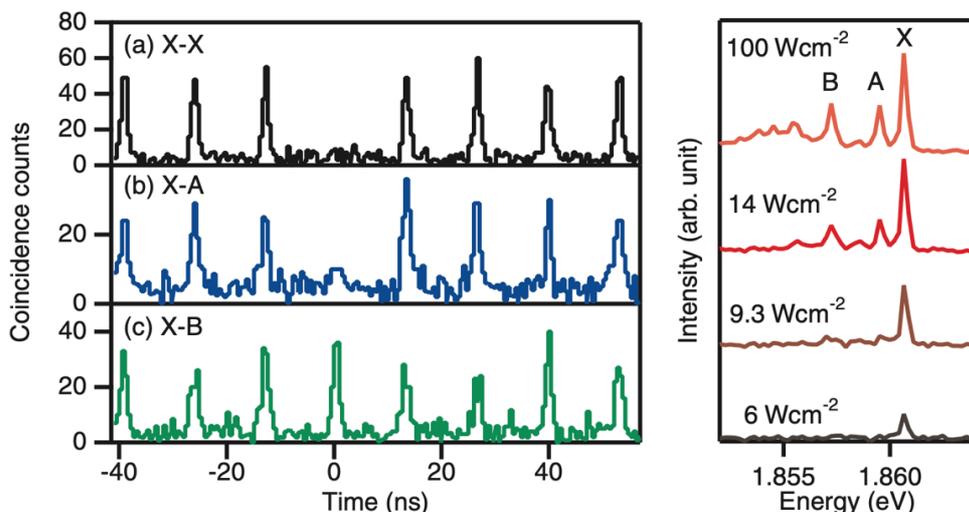


図3. 単一 GaAs 量子ドットの発光信号における光子統計 9)。

3. 実用を目指した取り組み

エピタキシャル成長で作製する量子ドットは、通常、屈折率の大きな媒質に埋め込まれており、外部に光が出にくい状況となっている。実際、典型的な屈折率である $n = 3$ の媒質中に光源があるとき、標準の対物レンズ ($NA = 0.5$) で集光できるのは、全立体角に放射するうちの 0.8% に過ぎない。そのため単一光子のパルスを発生しても、実際に検出できるのは、光子を 1 個も含まない空打ちパルスばかりとなる。

取り出し効率を向上するための光学設計と加工が課題となっている。初期の試みとして、DBR 共振器に挟まれた量子ドットを微小ピラーの形に加工することで、8%の取り出し効率を観測した(10)。その後、DBR の共振器長をピエゾ制御し、共振条件に合わせることで、シングルモード・ファイバーに結合できる end-to-end の効率が 57%に到達している(11)。

一方で、効率向上を目的とすると、共振器は必ずしも必要ではなく、マクロな構造体でも十分とも考えられる。東大と富士通のグループは、量子ドットを成長した基板にウェットエッチングを施してホーン形状に作り込むことで 11%の取り出し効率に成功した(12)。また近年は、フレネルレンズやメタ構造を素子表面に作り込む試みも多数報告されている。実用に耐えうる安定性やスケラビリティに優れた方策が求められている。

種々のアプリケーションに応じた波長の光源開発も重要である。これまで広く研究されてきた GaAs 基板上の InAs 量子ドットの場合、波長は 900nm 台となる。しかし、この波長域は高感度なシリコン光子検出器の特性がよくない。格子整合系である GaAs/AlGaAs 量子ドットの場合、波長は 600-700nm であり、効率のよい光子検出が可能である(8),(9)。次に、通信応用を目指した長波長化には、基板を InP に置き換えるのが有効である。東大と富士通のグループは、ダブルキャップ法を適用した InAs/InP 量子ドットで通信波長 1.3, 1.55 μm の光子源を実現した。さらに上述のホーン構造と組み合わせることで、120km の単一光子量子鍵配送に成功している(13)。一方で、短波長化の試みとしては GaN を用いると波長 350 nm 程度の紫外域の量子光源を実現できる。一般にワイドギャップ材料は、光学遷移の振動子強度が大きく、熱緩和の影響が相対的に小さい。そのため室温環境での単一光子発生も観測されている(14)。

4. 量子もつれ光子源

つぎに、次世代の単一光子源である量子もつれ光源への応用について、我々が取り組んでいる研究も含めて紹介する。これまで述べたように、量子ドットに電子と正孔を 1 対作り、光子を 1 個発生させるのが単一光子源の動作である。ここで、量子ドットに電子と正孔が 2 対あるバイエキシトンの状態を作ると、そこから再結合が 2 回起こり、2 個の光子が発生する。この 2 個の光子は、理想条件下で、量子的にもつれあう（エンタングルした）光子対となることが、次の考察から分かる。

バイエキシトンを形成する伝導電子 2 個は、パウリの排他律から、スピンの向きが逆向きであり、正孔 2 個も同様である。（したがってバイエキシトンの合成スピンはゼロである）電子・正孔のスピンの状態は、再結合後の発光の偏光を定める。そのため、バイエキシトンから発生する 2 個の光子は、お互いの偏光が逆向きになると予想できる。ここで、最初に発生した光子だけを抜き出すと、その偏光は完全にランダムであり、続いて発生する光子も、そこだけを見ると偏光はランダムである。しかし、

お互いの相関を見ると必ず逆向きになっており、個々の光子は量子的に不確定でありながら、お互いの間に相関がある量子的にもつれあった状態になっている。

量子ドットに電子と正孔を2対注入すると、量子もつれ対を発生させることができる。しかし現実の量子ドットには、格子歪や形状の歪みのため、わずかながら光学的な異方性があり、その結果、本来期待していた偏光状態の不確定性が消失し、量子相関も消失する。量子もつれ対を発生するには、異方性を根絶することが求められる。そのため、これまでは成長後の量子ドットに外部から電場や磁場、歪みなどを印加し、対称性を改善する試みが多数行われてきた。

一方、光学的な異方性の由来に注目すると、量子ドットの下地である正方格子の[100]面において原子が異方的に配列していることがその一因である。そのため、液滴エピタキシー法を使って、[111]面上に量子ドットを作製すれば、対称性に秀でた理想量子ドットを実現でき、量子もつれ対を発生できると期待できる。

図4は、[111]面上に作製した量子ドットの発光スペクトルである。上下2枚のスペクトルを例示しているが、いずれも4本に別れた発光線が似た位置に確認できる。このうち、一番短波長側（高エネルギー側）の発光線（#1）が、エキシトンが再結合するときの遷移であり、3本目の発光線（#3）が、バイエキシトンが再結合して、エキシトンに遷移するものである。その他の2本は、正負のチャージドエキシトンの再結合である。これらのスペクトル同定は、励起強度依存性や偏光依存性から確定した。

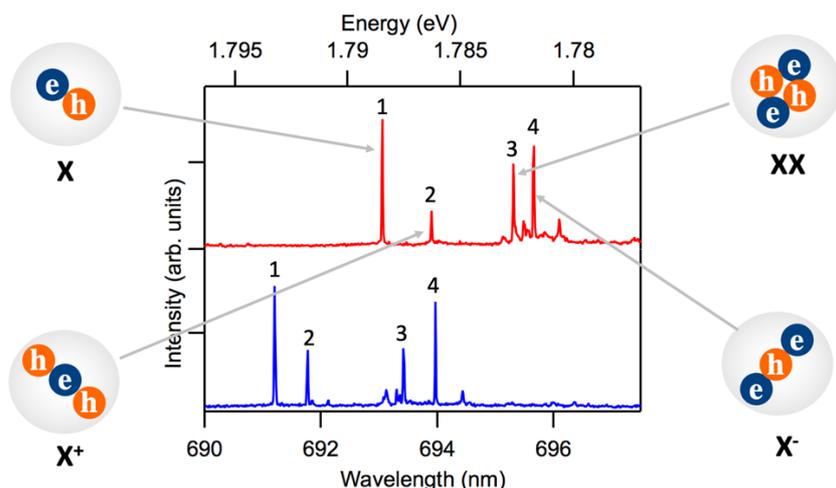


図4. [111]A面上 GaAs 量子ドットの発光スペクトル。

図5は、バイエキシトンの発光線とエキシトンの発光線を分光器でフィルタリングし、さらに偏光を区別して光子相関を観測した結果である。左端のパネルaは、左回り(L)と右回り(R)の円偏光を区別したときの結果であり、1番上の図から、片方の光子がLのときは、もう片方がRとなる事象

が多いことが分かる。さらに2番目の図から、両方の光子ともLと検出される事象がほとんどないと、3番目の図から、同じく両方の光子ともRとは検出できないこと、4番目の図から、R/Lの組み合わせだと、その事象が多くなることが分かる。以上をまとめると、2つの光子は必ず逆向きの円偏光になる。この観測事実は、バイエキシトンを構成する2電子・2正孔が、おのこの逆向きのスピンを持つことと整合する。

さて、このようなRとLの円偏光を持つ（個々はランダムだがお互いに逆向きな）2光子の集団を、今度は直線偏光で区別して観測することを考える。この場合、横向きHの直線偏光になるか、縦向きVの直線偏光になるかは、元の光子がRにせよLにせよ、確率50%で不確定であり、偏光の相関は、当然なくなるはずである。パネルbが、その実験結果であり、素朴な予想を裏切って、HH/VVの組み合わせの事象が大部分であることが観測でき、つまり片方の光子が、縦横どちらかの直線偏光であれば、もう片方の偏光も、必ず同じ向きの直線偏光となる。パネルcでは、直線偏光の向きを45°傾けて測定したものであり、この場合も（不確定になることはなく）必ず同じ偏光の光子対となる。つまり、どの偏光で区別しても相関があるという、常識的には考えがたい（非局所的な）相関を示しており、これが量子もつれの本質的な特徴である。実験結果の解析から、この量子ドットは忠実度87%の量子もつれ状態を発生していることを見出している。

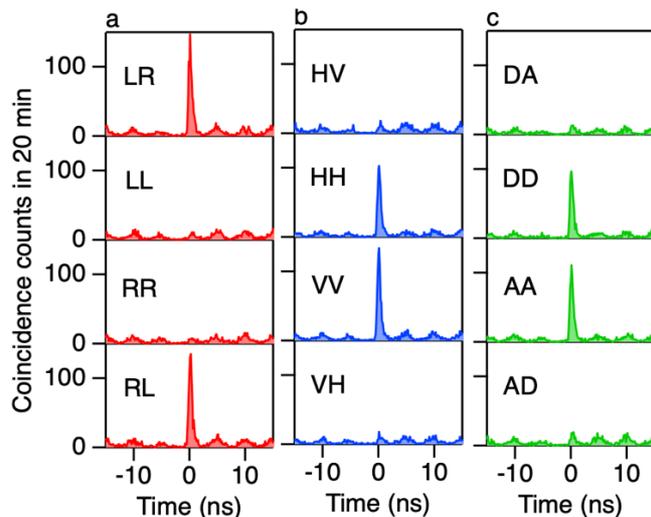


図5. [111]A面上GaAs量子ドットの偏光相関と量子もつれの検証(15)。

5. まとめと今後の展望

量子ドットを用いると、単一光子や量子もつれ光子対を確定的に発生させることができ、高忠実な量子光源を実現できる。実用へ向けた課題としては、光子発生レートの向上が第一に挙げられるが、研究レベルでは十分な状況に達しており、あとは安定性とスケーラビリティに富む簡便な方策が求められている。高輝度特性に優れた量子ドット光子源を使うことで20光子の量子計算（ボゾンサンプリング）に成功した報告もある(16)。本稿では述べなかったが、このような多段的な量子操作や、将来

の大規模な量子インターネットの構築には、量子干渉を生み出す識別できない光子の発生が不可欠であり、そのためには量子ドットの一層の高純度化（狭線幅化）と波長制御技術が重要である。現在、光量子技術の潮流としてスクイーズド光を用いた連続量量子計算が大きな注目を浴びているが、単一光子を用いた既存のアプローチは構成が簡単で理解しやすく、拡張性も高い。高輝度かつ高忠実な単一光子源を実現できる材料は量子ドット以外になく、今後一層の技術進展が期待される。

謝辞

本解説で紹介した成果の一部は防衛装備庁安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 の支援を受けました。

- 1) M. Dagenais and L. Mandel: *Phys. Rev. A* **18**, 2217 (1978).
- 2) F. Diedrich and H. Walther: *Phys. Rev. Lett.* **58**, 203 (1987).
- 3) B. Lounis and W. E. Moerner: *Nature* **407**, 491 (2000).
- 4) R. Brouri et al.: *Opt. Lett.* **25**, 1294 (2000).
- 5) A. Imamoglu et al.: *Nature* **406**, 968 (2000).
- 6) P. Michler et al.: *Science* **290**, 2282 (2000).
- 7) C. Santori et al.: *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1502 (2001).
- 8) T. Kuroda et al.: *Phys. Rev. B* **66**, 121302(R) (2002).
- 9) T. Kuroda et al.: *Appl. Phys. Express* **1**, 042001 (2008).
- 10) M. Pelton et al.: *Phys. Rev. Lett.* **89**, 233602 (2002).
- 11) N. Tomm et al.: *Nature Mater.* **16**, 399 (2021).
- 12) K. Takemoto et al.: *J. Appl. Phys.* **101**, 081702 (2007).
- 13) K. Takemoto et al.: *Sci. Rep.* **5**, 114383 (2015).
- 14) M. J. Holms et al.: *Nano Lett.* **14**, 982 (2014).
- 15) T. Kuroda et al.: *Phys. Rev. B* **88**, 041306(R) (2013).
- 16) H. Wang et al.: *Phys. Rev. Lett.* **123**, 250503 (2019).