

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 14 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24310084

研究課題名(和文)半導体ナノ構造中2準位系の共鳴エネルギー変動の研究

研究課題名(英文) Study on energy-level fluctuation of two-level system in semiconductor nanostructures

研究代表者

熊野 英和 (KUMANO, HIDEKAZU)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：70292042

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,600,000円

研究成果の概要(和文)：単一のInAs量子ドット構造を用いて強固な秘匿通信を可能とする単一光子光源構造を作製し、生成光子状態の動的変動を理解するためドット構造内部の荷電状態変動の検討を行った。独自開発した金属微小鏡筒構造により、通常の平面構造では1%程度の光子取り出し効率について18%迄の向上に成功、詳細な状態解析を可能とした。

光子相関法に基づき高い時間分解能で観測した状態揺動を、単一量子ドット内に形成される荷電状態を5準位系でモデル化し、ある初期条件の下での分布の時間変動シミュレーションにより解析した結果、高い精度で実測結果を再現することに成功、量子光源を特徴付ける動的荷電状態変動の制御に向けて重要な知見を得た。

研究成果の概要(英文)：I have fabricated single photon sources with a single InAs quantum dot (QD), and its carrier dynamics were investigated. Originally introduced metal microcolumnar structure have enhanced the photon extraction efficiency up to 18% from conventionally obtained 1% with planar structure. Charge states formed in the QD were modeled with 5-level system, and by comparing simulated time-evolution of the population with experimentally obtained correlation functions, I have successfully reproduced the carrier dynamics. This finding is crucial for controlling the carrier dynamics characterizing quantum photon sources.

研究分野：半導体ナノ構造

キーワード：量子ドット 量子情報 量子光源 荷電状態制御 光子相関測定

1. 研究開始当初の背景

ナノテクノロジーの進展と共に、様々な分野で電子や光の量子性が観測され、更に能動的な状態操作が実現しつつある。特に量子暗号通信や量子計算においては量子力学の基本的かつ古典的世界観とは相容れない性質が陽に利用され、基礎/応用両面から非常に興味深い学術分野を構成している。

これまで種々の物理系における基礎的・先導的研究や、応用を指向した実験/理論研究が盛んに展開されているが、中でも零次元半導体ナノ構造である量子ドット構造は、光-電子相互変換性、省電力動作や集積可能性、蓄積された高度な半導体技術が利用できる等、他の系にはない多くの利点をもつ。一方、コヒーレントな量子操作が可能であることも不可欠である。 π パルスによる状態反転や $\pi/2$ パルスによる重ね合わせ生成等の基幹的技術が実現され、またドレド状態に基づく多重項状態 (Autler-Townes, Mollow) も観測されている。しかしながら、時に人工原子と称される零次元半導体ナノ構造と天然原子の間には決定的な差異も存在する。天然原子の周囲環境 = 「真空」に対し、半導体ナノ構造の周囲環境 = 「(不完全性を含む) 半導体結晶」であり、また後者はキャリアの出入りを許す開放系である。このため、半導体ナノ構造の共鳴エネルギーはこれら環境の時間変動による揺動を受け、励起状態のコヒーレンス時間はこの環境変動の時定数で制限される。申請者は半導体ナノ構造の蛍光スペクトルを繰り返し計測中、共鳴エネルギーに飛び (プリンキング) が生じること、また1次の電場相関 (=コヒーレンス) から線幅がほぼスペクトル拡散で与えられることを確認した。これらはナノ構造の内外で荷電状態変動が生じ共鳴エネルギーが揺動していることを強く示唆している (図1)。天然原子にはない共鳴エネルギー変動メカニズムを明らかにし、更に抑制することが出来れば半導体ナノ構造のデバイスとしての機能性と天然原子の理想的な量子二準位系としての機能を兼ね備えた、全く新しい量子情報デバイスの可能性が拓けるとの認識から本研究提案を着想した。「量子もつれ合い状態」は、量子力学的な2つの粒子間に古典的には奇異な非局所的相関を持つ状態で、量子情報ネットワークにおける資源として本質的役割を担う。従来、2次の光学過程である非線形光学結晶によるパラメトリック下方変換 (PDC) が量子もつれ合い光子対発生に利用されているが、この場合発生のタイミングが励起パルスのポアソン分布を継承するため光子対は確率的発生となり、大規模化に適した動作、例えばクロックパルスに同期したオン・デマンド光子対発生のようなことは原理的に不可能である。これに対し、半導体ナノ

構造の離散準位を用いるアプローチも精神的に研究が進められており、離散準位間のカスケード (時系列) 的遷移によりもつれ合い光子対が生成する。この場合、パウリ排他原理により確定的なもつれ合い光子対発生が可能となる。

2. 研究の目的

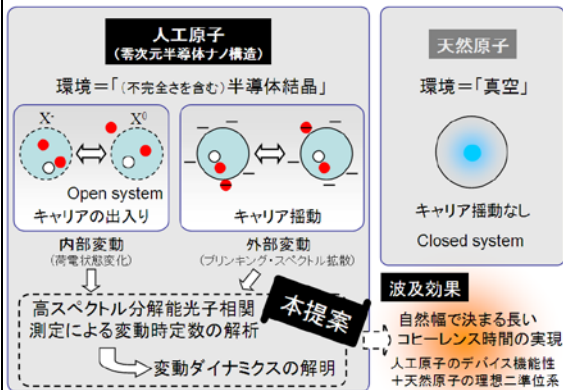


図1 背景と目的：人工原子と天然原子の比較と本研究提案の位置づけ及び波及効果

零次元ナノ構造中に形成される二準位系は天然の原子と同様の離散準位を成し、状態の重ね合わせにより量子情報科学の基本単位である量子ビットを構成する。多数回の量子演算を行ったり、メモリとして情報を保持するには、この重ね合わせが持続する時間 (=コヒーレンス時間) を可能な限り長くできることが望ましい。しかしながらナノ構造中の離散準位は、天然の原子と異なり周囲の環境ゆらぎによって共鳴エネルギーが時間的に変動し、これが励起状態のコヒーレンスを制限する一因となっている。本研究では、スペクトル積算が必要な従来法に代わり、格段に時間分解能の高い光子相関関数の計測により共鳴エネルギー変動を解析し、変動メカニズムを明らかにすることを目的とする。結果共鳴エネルギー変動が抑制されれば、コヒーレンス時間の飛躍的向上が実現される。

3. 研究の方法

まず、対象が光子1つのレベルの超微弱光であり解析に十分な信号強度 (=光子数) を確保するため、高い光子取り出し効率を実現する微小鏡筒構造を作製した。微小金属鏡筒構造の導入により、通常構造では1%程度しかない光子取り出し効率を18%まで増大させることに成功した。また、金属鏡筒構造を半導体基板から剥離する際の工程も改善し、構造作製の歩留まりも大きく向上させることに成功した。対象となる半導体量子ドット系は天然原子と異なり、キャリアの出入りを許す開放系である。このため、構造へのキャリアの出入りによって各荷電状態の分布が時間変動し、コヒーレンス消失を引き起こす。量子ドット内の真空準位、電子準位、中性励

起子、中性励起子分子、および負の荷電励起子の5状態に対する分布のフローを仮定し、各荷電状態発光間の相互相関測定を行い、これをV. Regelmanらの手法に準じたレート方程式解析を行って従来あまり考慮されていないキャリア放出を含むキャリアの出入りに特徴的な時定数を算出して単一のインジウムひ素量子ドットを用いた零次元半導体ナノ構造内部の荷電状態変化を検討した。

4. 研究成果

(1) 中性励起子自己相関関数の評価と荷電状態変動の時定数

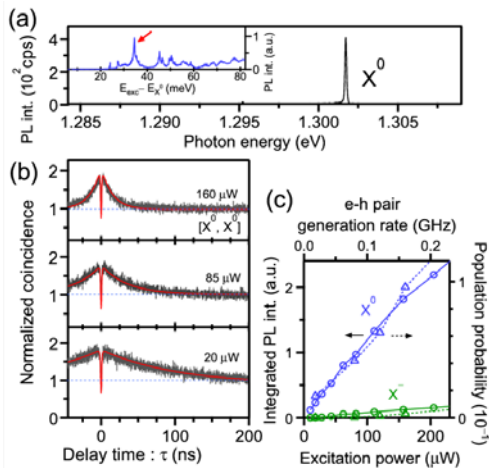


図2 (a) InAs量子ドット内に束縛された中性励起子(X^0)のPLスペクトルと励起スペクトル(挿入図)。(b) X^0 線の自己相関関数の励起光強度依存性。(c) レート方程式解析により抽出された荷電状態変動時定数。

解放系であることに由来する荷電状態の揺動を検討するため、インジウムひ素量子ドットナノ構造内を準共鳴励起し、中性励起子状態(X^0)を選択的に励起した(図2(a))。高い時間分解能が得られる自己相関関数を、 X^0 発光線に対して取得した結果、零遅延時間を起点とし、定常状態へと凸型構造(バンチング)が減衰する様子が見られた。これはナノ構造内の荷電状態が変化し、閉鎖系としての単純な二準位系ではモデル化できないことを示している。また、励起光強度を変えると、荷電状態変動のレートを反映してスロープが変化する様子が明瞭に観察された(図2(b))。この実験的に観測された相関関数の構造を、理論的なレート方程式により詳細に解析した結果(赤実線)、生成レートに対する各荷電状態励起子の分布確率を定量的に求めることができた(図2(c))。なお、この荷電状態間の遷移レートは励起条件で大きく異なり、準共鳴励起を用いることによってナノ構造内に安定な荷電状態の生成が可能である

ことが判明した。これは安定な半導体ナノ構造に基づく単一光子光源や量子もつれ光源の実現に向けて重要な知見である。

(2) InAs 量子ドットの中性励起子分布状態制御と単一光子発生純度の検討

上項目で得られた成果の1つの重要な応用として、キャリア変動の影響を排して安定的

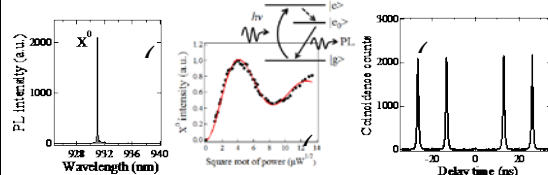


図3 (左) InAs量子ドット内に安定的に生成した中性励起子のPLスペクトル。(中央) 励起子の p 殻を共鳴励起した場合の結晶基底状態との間で生じる分布振動(Rabi振動)。(右) 分布振動領域での単一光子発生。

に生成した X^0 状態(図3左図)について、量子情報デバイスの基本単位である量子ビットのコヒーレントな状態操作を試行した。二準位系の状態反転を引き起こす光パルス(π パルス)を照射することにより、二準位系の上準位と下準位間のコヒーレントな分布操作が可能であることが明らかになった(図3中央図)。

更に、このような分布制御が可能な励起条件の場合、光パルスの面積が指定されるために比較的強い励起光を照射する必要があるが、量子ビット操作と単一量子性を両立させるためには強励起条件下でも光量子の単一性が保たれていることが重要である。図3右に、 π パルス条件下での自己相関関数を示す。零遅延時間での同時計数は十分低く抑えられており($g^{(2)}(0)=0.008$ と、簡易的にレーザー光を減衰して用いられる、擬似的単一光子光源の場合の1/125の多光子生成確率)、強励起条件下でも半導体ナノ構造中の単一量子性は十分に保たれることが示された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計9件)

1. H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and I. Suemune: "Nonlocal biphoton generation in Werner state from a single semiconductor quantum dot", Phys. Rev. B (掲載決定). 査読有
2. N. Ishihara, H. Kurosawa, T. Takemoto, N. A. Jahan, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Subwavelength metallic cavities with high-Q resonance modes",

- Nanotechnology **26**, 085201-1-8 (2015). 査読有, DOI:10.1088/0957-4484/26/8/085201
3. S. S. Mou, H. Irie, Y. Asano, K. Akahane, H. Kurosawa, H. Nakajima, H. Kumano, M. Sasaki, and I. Suemune: "Superconducting Light-Emitting Diodes", IEEE JOURNAL OF SELECTED TOPICS IN QUANTUM ELECTRONICS **21**, 7900111-1-11 (2015) (Invited). 査読有, DOI: 10.1109/JSTQE.2014.2346617
 4. X. Liu, N. Ha, H. Nakajima, T. Mano, T. Kuroda, B. Urbaszek, H. Kumano, I. Suemune, Y. Sakuma, and K. Sakoda: "Vanishing fine structure splittings in telecom wavelength quantum dots grown on (111)A surfaces by droplet epitaxy", Phys. Rev. B **90**, 081301-1-6(R) (2014). 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.90.081301
 5. X. Liu, H. Kumano, H. Nakajima, S. Odashima, T. Asano, T. Kuroda, and I. Suemune: "Two-photon interference and coherent control of single InAs quantum dot emissions in an Ag-embedded structure", J. Appl. Phys. **116**, 043103-1-6 (2014). 査読有, DOI: 10.1063/1.4891224
 6. 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). 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.88.045324
 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). 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.88.041306
 8. H. Kumano, H. Nakajima, H. Iijima, S. Odashima, Y. Matsuo, K. Ijro, 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). 査読有, DOI: 10.7567/APEX.6.062801
 9. 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). 査読有, DOI:

10.1063/1.4801334

[学会発表] (計 27 件)

1. H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and I. Suemune: "Entangled and nonlocal biphoton generation from a semiconductor quantum dot", Energy Materials Nanotechnology (EMN Phuket Meeting 2015), May 4-7, 2015 Phuket, Thailand. [Invited]
2. 熊野英和、中島秀朗、末宗幾夫:「半導体量子ドットによる単一光子および量子もつれ光源」, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 2015 年 3 月 11-14 日, 東海大学湘南キャンパス (神奈川県平塚市) [招待講演].
3. H. Kumano, X. Liu, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Second-order and bosonic interference properties of a quantum dot with silver microcolumnar photon reflector", 32nd International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2014), August 10-15, 2014, Austin, USA.
4. H. Nakajima, H. Kumano, T. Kuroda, T. Mano, B. Urbaszek, Y. Sakuma, K. Sakoda, and I. Suemune: "Filtering-free violation of Bell's inequality using photon pairs generated from a quantum dot grown by droplet epitaxy", 8th International Conference on Quantum Dots (QD 2014), May 11-16, 2014, Pisa, Italy.
5. H. Kumano, H. Kurosawa, X. Liu, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Metallic Semiconductor Nanostructures for Photonic Applications", International Conference on Metamaterials and Nanophysics, 22 April-1 May 2014, Varadero, Cuba. [Invited]
6. H. Kumano, X. Liu, T. Kuroda, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Photon-state preparation with quantum-dot-based photon sources for secure quantum key distribution", Energy Materials Nanotechnology (EMN Spring meeting 2014), February 27-March 2, Las Vegas, USA. [Invited]
7. 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, 東京大学山上会館 (東京都文京区). [Invited]

8. 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, Zürich, Switzerland.

[その他]

ホームページ等

<http://nanophoto.es.hokudai.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

熊野 英和 (KUMANO HIDEKAZU)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：70292042

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：