

## 科学研究費補助金研究成果報告書

平成 21 年 4 月 30 日現在

研究種目：若手研究（A）  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18681025  
 研究課題名（和文）  
 高効率量子ドット量子光源の作製と空間伝送量子暗号通信への応用に関する研究  
 研究課題名（英文）Study on quantum dot photon emitter and its application to free-space quantum key distribution  
 研究代表者  
 熊野 英和 (HIDEKAZU KUMANO)  
 北海道大学・電子科学研究所・准教授  
 研究者番号：70292042

## 研究成果の概要：

将来の量子鍵配送システム全体として考えた場合、ファイバー系と相補的な役割が期待される空間伝送量子鍵配送に向け、大気の透過率が高くかつ Si 単一光子検出器の検出感度とマッチングの良いナノ構造として単一  $\text{In}_{0.75}\text{Al}_{0.25}\text{As}$  量子ドットを形成し、励起エネルギー選択による純度の高い単一光子発生を実現した。さらに、後段での暗号化の際の偏光変調のため高い円偏光度を持つ単一光子の発生を実現した。すなわち、発光エネルギーに対して光学フォノンのエネルギー分高い準位を共鳴的に励起した場合、零磁場中にもかかわらず 0.85 と著しい円偏光度の上昇が観測され、電子スピンと光子偏光の間での高効率での状態変換が可能であることが示された。レート方程式解析の結果、InAs L0 フォノン共鳴励起下ではスピン反転確率が 7.5% 以下に抑制され、また荷電励起子基底状態におけるスピン緩和時間は発光再結合寿命の 11 倍程度であることが判った。この値は中性励起子のスピン反転時間の約 3 倍であり、交換相互作用の無い荷電励起子におけるスピン状態の安定化という、応用に向けて重要な特徴が顕在化された結果と考えられる。これらの成果は、波長短波化した量子ドットによる空間伝送量子暗号通信への展開を展望する上で、非常に大きな意義を持つ。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	5,700,000	1,710,000	7,410,000
2007年度	8,200,000	2,460,000	10,660,000
2008年度	8,300,000	2,490,000	10,790,000
年度			
年度			
総計	22,200,000	6,660,000	28,860,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学／マイクロ・ナノデバイス

キーワード：単量子デバイス

## 1. 研究開始当初の背景

量子力学の原理によって保証される究極的に安全な通信の実現を目指し、量子暗号通信の研究は1984年のBennettとBastardによる最初の完全なプロトコル(BB84)の提案以降、活発に進められている。現在、量子暗号通信の研究は減衰コヒーレント光を光源として用いて行われているが、光の統計性についての原理的性質から平均光子数をいくら小さくしても複数光子を分割して抜き取る、いわゆるビームスプリッターアタックと呼ばれる盗聴リスクを完全には排除できない。そこでこれに代わる絶対的に安全な量子光源開発の研究が精力的に行われており、主にファイバー通信向けにInAs量子ドットを用いた通信波長帯の研究が主流となっている。一方、ファイバー敷設が困難な二点間の中・短距離暗号通信、更には地表-衛星間暗号通信等の目的のためには自由空間伝送が必須であるが、必要な光源開発にはほとんど手が付けられていないのが現状である。この場合、大気の透過率が高く、かつSi単一光子検出器の検出感度の高い波長領域(〜780 nm)に属する個数状態光子の生成が不可欠である。

こうした状況の下、当該研究者は拡張性・柔軟性に富む量子情報ネットワークの構築を意図し、従来のInAs量子ドットにAlを25%添加することで発光波長を短波長化したInAlAs量子ドットを作製し、光子相関測定により780 nm付近に光子波長を持つ単一光子生成の実証に成功した。しかしながら量子ドットを用いた量子暗号通信用光源としては、単なる量子ドットによる単一光子発生の実証にとどまらず、利用可能な光子発生の高効率化、また後段での暗号化の際の偏光変調のために励起光の偏光状態をよく保存し、高い円偏光度を持つ単一光子の発生が求められる。

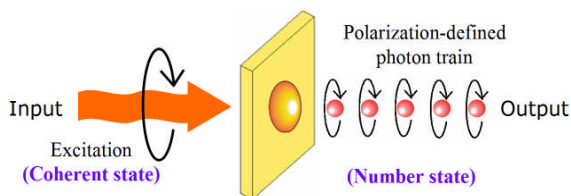


図1 量子ドットを用いた偏光状態を保存するコヒーレント状態→個数状態変換の概念図。

## 2. 研究の目的

量子ドットでは、一般にドット中に捕獲されるキャリアの数に応じて互いに排他的な複数の発光線が生じるため、特定の発光エネルギーで見ると単一格子発生効率は低下する。当該研究では、ドットを共鳴励起することによりドット内の荷電状態を制御し、単一の発光線を得ることで高効率化を検討

する。また、入射光の偏光状態に応じて偏光状態の確定した光子発生、即ち高い円偏光度を持つ単一光子発生を実現するためには、単一の量子系として振る舞う単一励起子状態の励起過程、エネルギー緩和過程、および発光準位での滞在時間それぞれの過程で、環境との相互作用に抗してスピン状態がよく保存されなければならない。概念図を図1に示す。そこで当該研究では、微細構造分裂がないため選択則により入射光の円偏光がよく保存されると期待される荷電励起子を単一量子ドット内に選択的に分布させることにより、零磁場下でも高い円偏光度を付与し、高効率な電子スピン-光子偏光相互変換を実現することを目的とした。

## 3. 研究の方法

当該研究では空間伝送量子鍵配送に向け、大気の透過率が高くかつSi単一光子検出器の検出感度とマッチングの良いナノ構造としてGaAs(100)基板上に分子線エピタキシー法により作製した $\text{In}_{0.75}\text{Al}_{0.25}\text{As}$ 量子ドットを選択した。これは $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 障壁層上にStranski-Krastanowモードで形成され、ドット密度は約 $5 \times 10^{10}$  (1/cm<sup>2</sup>)である。成長後メサ構造を形成して単一の量子ドットを空間的に分離した。単一量子ドット分光は、連続波長可変チタンサファイアレーザ、64cmのトリプル分光器と液体窒素冷却のCCD検出器を用いて20Kで行った。また、偏光特性の測定は波長板の回転と分光器前の固定偏光子により、測定系の偏光特性が影響しないよう配慮して行った。

## 4. 研究成果

図2に単一の量子ドット発光の励起エネルギー依存性を示す。このドットの場合、初期状態で正孔が1つドット内に存在し、励起

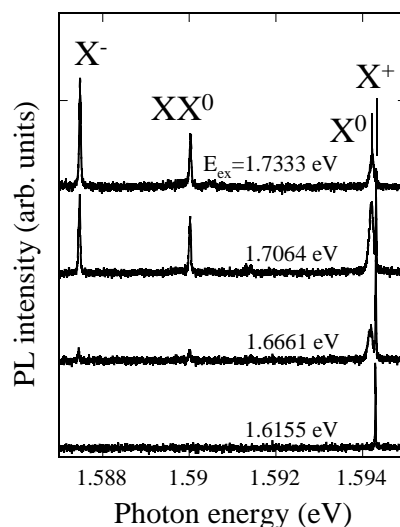


図2 単一量子ドット発光の励起波長依存性。正の荷電励起子( $X^+$ )、中性励起子( $X^0$ )、中性励起子分子( $XX^0$ )、負の荷電励起子( $X^-$ )による各発光線が観測される。

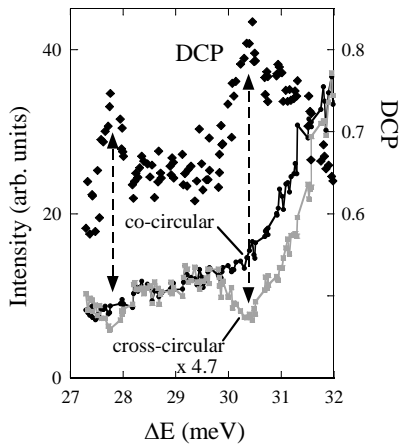


図3  $\sigma^+$ 励起下での偏光選択励起スペクトル。横軸は励起エネルギーで、 $X^+$  エネルギーを基準にした値。励起に対し反円偏光検出した信号については比較のため 4.7 倍して表示してある。円偏光度のピークと反円偏光検出信号のディップが対応しており、InAs の LO (30.5 meV) および TO (27.4 meV) フォノンエネルギーに対応している。

エネルギーが濡れ層 (WL) の吸収端 1.67 eV より高い場合には中性励起子 ( $X^0$ )、負の荷電励起子 ( $X^-$ )、正の荷電励起子 ( $X^+$ ) 等複数の荷電状態の励起子が観測されるが、WL 端以下の励起では主に  $X^+$  が支配的となることが判る。これにより、励起サイクル毎に異なる励起子種が生成し、複数の発光線がランダムに生じることによる効率低下を抑制することが可能である。図3は選択分布させた  $X^+$  に対し、右回り円偏光励起 ( $\sigma^+$ ) 下で右 (左) 回り円偏光検出による偏光選択励起スペクトル (PLE) の測定結果であり、cross-circular での検出信号は比較のため 4.7 倍してある。

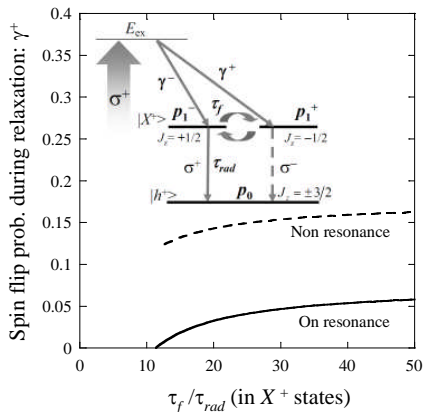


図4 エネルギー緩和過程および正の荷電励起子状態間におけるスピン反転を特徴付けるパラメータの関係図。破線は非共鳴励起の場合、実線は LO フォノン共鳴励起の場合を示す。円偏光度の値は、フォノン共鳴時 0.85、非共鳴時 0.65 を用いて計算した。(挿入図) 単一の正孔がドットに捉えられている場合のレート方程式モデル図。エネルギー緩和過程および緩和後に生じるスピン反転プロセスを考慮した。

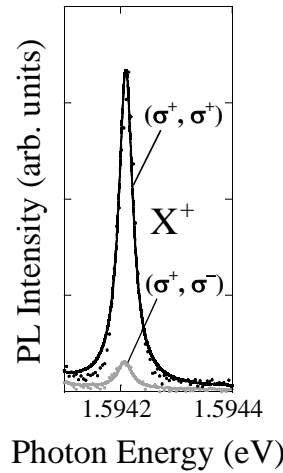


図5 LO フォノン共鳴励起下での正の荷電励起子発光スペクトルの検出円偏光依存性。外部磁場なしで円偏光度は 0.85 に達する。

また、横軸は  $X^+$  の発光エネルギーから測った励起エネルギーである。図には  $I^+$  ( $I^-$ ) を  $\sigma^+$  ( $\sigma^-$ ) 検出時の強度として  $(I^+ - I^-) / (I^+ + I^-)$  で定義される円偏光度 (Degree of circular polarization: DCP) も合わせて示した。DCP に見られる 2 つの明瞭なピークは、InAs の LO フォノン (30.5 meV) および TO フォノン (27.4 meV) のエネルギーによく合致している。更に、観測された DCP ピークは、主に  $\sigma^-$  検出励起スペクトル強度の減少と対応していることが判る。

一般に、ここで実施した偏光選択励起スペクトルには、エネルギー緩和の過程でのスピン反転と、 $X^+$  の基底準位 (全スピン  $J = \pm 1/2$ ) でのスピン反転を含む。後者はエネルギー縮退した  $J = \pm 1/2$  準位間で生じるものであり、本質的に励起エネルギーに依存しない。従って、本稿で得られた励起エネルギー依存性は、エネルギー緩和過程でのスピン反転を反映しているものと考えられる。よって、InAs の光学フォノン共鳴時に見られる  $\sigma^-$  成分の減少は、エネルギー緩和過程でのスピン反転が、光学フォノンによって大きく抑制されていることを直接的に示す結果であると考えられる。図5に DCP が最も高い InAs LO フォノン共鳴時の  $X^+$  の偏光依存発光スペクトルを示す。励起・検出の基底が同一の場合と直交している場合で大きな強度比が得られ、結果として外部磁場のない条件で極めて大きな円偏光度 85% が得られた。

エネルギー緩和中及び  $X^+$  基底状態間で生じるスピン反転を定量的に評価するため、レート方程式による解析を行った。このモデルでは、図4挿入図に示すように、角運動量の  $z$  成分  $J_z = \pm 3/2$  の正孔が一つ光励起前にドット中に存在しているとし、 $\sigma^+$  励起により下向きスピンの電子と上向きスピンの正孔が  $X^+$  準位より InAs の LO フォノンだけ高いエ

エネルギーに仮想的に励起されたとする。計算の結果、(i) X<sup>+</sup>基底状態でのスピン反転時間  $\tau_f$  は発光再結合寿命  $\tau_{rad}$  の11倍程度長く、荷電励起子基底状態におけるスピン状態の安定化が示された。この値は中性励起子の場合に比べて3倍程度大きく、荷電励起子においては電子-正孔間で交換相互作用が働かないためスピン状態がより安定に存在できることを反映していると考えられる。

(ii) 光学フォノン共鳴によるエネルギー緩和過程におけるスピン反転確率について、光非共鳴時の0.12-0.175から0-0.075へ大きく低減する。以上2点のことが明らかとなった。

以上の研究成果は、拡張性・柔軟性に富む量子情報ネットワーク構築を目指す上でファイバー通信による量子鍵配送と相補的な役割を果たすべき空間伝送に適合するよう、発光波長を短波化した量子ドットによる高効率量子光源を可能にしたもので、今後の一層の高効率化・安全性の高度化を展望する上で、非常に大きな意義を持つものである。

#### 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6件)

1. H. Kumano, H. Kobayashi, S. Ekuni, Y. Hayashi, M. Jo, H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, and I. Suemune: "Excitonic spin-state preservation mediated by optical-phonon resonant excitation in a single quantum dot", Phys. Rev. B 78, 081306-1-4 (R) (2008). (査読有)
2. H. Kobayashi, H. Kumano, M. Endo, M. Jo, I. Suemune, H. Sasakura, S. Adachi, and S. Muto: "Highly circular-polarized single photon generation from a single quantum dot at zero magnetic field", Microelectron. Journal 39, 327-330 (2008). (査読有)
3. H. Kumano, H. Kobayashi, Y. Hayashi, M. Jo, I. Suemune, H. Sasakura, S. Adachi, and S. Muto: "Single photon emission with high degree of circular polarization from a single quantum dot under zero magnetic field", Physica E 40 1824-1827 (2008). (査読有)
4. 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", J. Nanoelectron. Optoelectron. 1, 39-51 (2006). (査読有)
5. H. Kumano, S. Kimura, M. Endo, I. Suemune, H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, H. Z. Song,

S. Hirose, and T. Usuki: "Triggered single-photon emission and cross-correlation properties in InAlAs quantum dot", Physica E 32, 144-147 (2006). (査読有)

6. I. Suemune, H. Kumano, S. Kimura, H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, H. Z. Song, S. Hirose, and T. Usui: "Origin of asymmetric splitting of a neutral exciton in a single semiconductor quantum dot", phys. stat. sol. (c) 3, 3908-3911 (2006). (査読有)

[学会発表] (計7件)

1. I. Suemune, H. Kumano, Y. Hayashi, M. Jo, and Y. Idutsu: "Photon Generations from Semiconductor Quantum Dots and Their Applications to Next-Generation Information Technology" 2008 International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2008; January 22-23, 2008, Sapporo, Japan).
2. H. Kumano, S. Ekuni, H. Kobayashi, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi and S. Muto: "Optical-phonon Mediated Efficient Spin-state Transfer between Electron-spin and Photon-polarization with a Single Quantum Dot without External Field" 8th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN8; April 7-11, 2008, Tokyo, Japan).
3. H. Kumano, H. Kobayashi, S. Ekuni, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi and S. Muto: "Spin-flip quenching during energy relaxation processes mediated by optical-phonons in a single quantum dot" The 5th International Conference on Semiconductor Quantum Dots (QD2008; May 11-16, 2008, Gyeongju, Korea).
4. H. Kumano, S. Ekuni, H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, and I. Suemune: "Photon-state conversion with well-defined spin states in a single quantum dot without magnetic field" 29th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2008; July 27- August 1, 2008, Rio de Janeiro, Brazil).
5. H. Kobayashi, H. Kumano, M. Endo, M. Jo, I. Suemune, H. Sasakura, S. Adachi, and S. Muto: "Highly circular-polarized photon generation from a single quantum dot at zero magnetic field" The Sixth international Conference on Low Dimensional Structures and Devices (LDS)

2007; April 15-20, 2007, The Archipelago of San Andres, COLOMBIA).

6. H. Kumano, H. Kobayashi, Y. Hayashi, M. Endo, I. Suemune, H. Sasakura, S. Adachi, and S. Muto: "High degree of circular polarization single photon emission from a single quantum dot under non-resonant excitation and zero magnetic field" International conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS13; July 15-20 2007, Genova, Italy).

7. H. Kumano, S. Kimura, M. Endo, S. Adachi, H. Sasakura, S. Muto, and I. Suemune: "Polarization preservation between a photon pair from biexciton-exciton cascaded decay process in a single InAlAs quantum dot" 28th International conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2006; July 24-28, 2006, Vienna, Austria).

[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 (HIDEKAZU KUMANO)

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

なし

### (3) 連携研究者

なし