

令和 3 年 6 月 17 日現在

機関番号：82636

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04902

研究課題名（和文）タイムゲート強度相関法の開発と単一ドット光学特性の絶対計測への応用

研究課題名（英文）Development of photon correlation method using temporal filter and its application to absolute measurements of single-dot optical properties

研究代表者

井原 章之（Ihara, Toshiyuki）

国立研究開発法人情報通信研究機構・未来ICT研究所フロンティア創造総合研究室・研究員

研究者番号：10619860

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：ナノ発光材料などの光源から放出される光子の強度相関を計測する手法は、光子が単一光子状態になっていることを示すために活用されてきた。しかし、一般的に使われてきた従来の強度相関法で得られる情報は少なく、計測した単一光子光源の性能が低い場合に、その原因を強度相関のデータだけから特定することは困難であった。本研究では、従来の強度相関法よりも多くの情報の抽出が可能になる測定法（タイムゲート強度相関法）の開発を進めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本提案で開発した計測手法を基盤として、優れた特性をもつ単一光子を発生させる技術を開発することにより、多光子状態の高効率生成などに代表される、量子テクノロジー分野の極めて重要な技術課題の解決に向けた突破口が開ける可能性がある。また、計測技術を発展させることにより、ナノ発光材料の特性診断を革新し、材料開発を飛躍的に効率化することもできる。材料開発が進み、優れた特性をもつ材料を量産できるようになれば、ディスプレイ、LED、レーザー、太陽電池、セキュリティタグ、生体イメージング、人工光合成など、既存の用途での利用を目的とした社会実装を加速させることにも貢献できる。

研究成果の概要（英文）：The intensity correlation measurement is used to characterize the quantum properties of photons generated from light emitters such as nano-sized luminescent material. However, this method does not allow us to improve the performance of the quantum light emitter, since the origin of the limitation cannot be determined from the data obtained by the standard measurement. In this work, we developed a new experimental technique based on the use of temporal filter that allows us to characterize the performance of the quantum light emitter in detail.

研究分野：量子光学、半導体光物性

キーワード：強度相関 単一光子 純度 タイムゲート 時間フィルタ 顕微光量子計測 コロイド量子ドット 吸収断面積

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、世界的に多くの研究グループが、室温で動作する単一光子光源の開発を進めている。単一光子は、量子暗号通信、量子シミュレーションなどに利用される。材料は多岐に渡り、コロイド量子ドット (Colloidal quantum dots; CQD)、欠陥準位をもつワイドギャップ半導体、ナノチューブ、原子膜などのナノ材料・発光材料が研究されている。研究代表者のグループも近年、CQDを材料として、室温で動作する単一光子光源の開発とその高性能化を進めている。CQDは、サイズに応じて発光波長が大きく変化することや光吸収断面積が大きい(単一CQDあたりの光吸収量が大きい)ことなど、多くの優れた特性をもつ魅力ある発光材料である。

単一光子光源の性能を評価する際に使用される計測手法のひとつに「強度相関法」がある。強度相関法は、光源から放出される光子が単一光子状態になっていることを示すために欠かすことのできない重要な計測手法である。しかし、一般的に使われてきた従来の強度相関法には「得られる情報が極めて少ない」という問題がある。そのため、計測した単一光子光源の性能が低い場合に、その原因を強度相関のデータだけから特定することは困難であった。

2. 研究の目的

従来の強度相関法よりも飛躍的に多くの情報の抽出が可能になる「タイムゲート強度相関法」を開発する。さらに開発した手法を基盤として「単一CQD光学特性の絶対計測」に応用展開し、光吸収断面積と発光量子収率を精度よく決定できるか明らかにする。

3. 研究の方法

本研究において実施した3つの研究項目に関して、研究の方法を下記に示した。

(1) タイムゲート強度相関法の開発。

単一光子光源は、材料に応じて発光寿命が異なる。発光寿命の長い材料において、強度相関信号のセンター・サイドピークが近接する場合、カスケード発光(2つの電子正孔対から2つの光子が連続的に放出される過程)の成分を決定することは困難であった。本研究項目では、カスケード発光成分の大きさを、センター・サイドピークが近接する条件下で決定するための技術の開発を進めた。長い発光寿命をもつCdSe/ZnS CQD等を用いて、時間原点におけるカスケード発光成分の大きさやサイドピークのテール・背景光の影響の大きさを定量的に決定できるか調べた。

(2) カスケード発光に関する情報を抽出する技術の開発。

単一光子光源の性能を分析する上で、カスケード発光に関する情報を得ることは重要である。しかし、強度相関信号だけで抽出できる情報は限定的であった。本研究項目では、強度相関信号を発光減衰曲線と合わせて分析する技術を導入し、カスケード発光に関する多くの情報を抽出できるか調べた。材質・サイズの異なる単一CQDのほか、金属製の電極膜や金属ナノ粒子に隣接した単一CQDも作成し、カスケード発光成分の大きさやカスケード発光の輻射レートの特徴を調べた。

(3) 単一CQDの光学特性を絶対計測する技術の開発。

発光量子収率は発光材料の性能を決定する極めて重要な物理量であるが、その値を絶対計測することは困難であった。本研究項目では、単一CQDの光吸収断面積に加えて、そのCQDの発光量子収率を絶対計測する技術を創出することに挑戦した。光吸収断面積はタイムゲート強度相関法を用いて計測した。タイムゲート強度相関法を基盤として、単一CQDの光吸収断面積と発光量子収率を絶対計測することが可能か調べた。

4. 研究成果

本研究を実施することにより下記の3点に代表される研究成果を得ることができた。

(1) CQDを利用した室温単一光子光源の低雑音タイムゲート強度相関計測。

タイムゲート強度相関法の開発を進めた。従来の実験で使用してきた光検出器よりも雑音の少ない「超伝導ナノワイヤ単一光子検出器(SSPD)」を導入し、CQDの室温発光を利用した単一光子光源の純度を計測した。実験装置を一部改良し、ガラス基板が放出する光の混入を減らした。雑音の少ない光検出器を用いてタイムゲート強度相関計測を行う手法が、CQDを利用した単一光子光源の純度を決定する上で効果的であることを明らかにした。

(2) 単一CQDのエキシトン発光による高純度単一光子発生。

以前の実験で活用した装置の一部を変更し励起条件などを変えながら、時間的に抽出したエキシトン発光の単一光子純度特性を調べた。試料としては、高い発光量子効率をもつことで知られるコアシェル型の CdSe/ZnS CQD を用いた。比較的大きなサイズの CQD 試料において、 $g^{(2)}(0) \sim 0.001$ となるデータを得ることができた。

(3) 単一 CQD 発光の顕微光量子計測とシステム効率の特性診断.

システム効率(= 検出された光子レート ÷ 照射する励起レーザーの繰り返しレート) の値を低下させている要因を分析するための技術の開発を進めた。試料には、顕微光量子計測による単一 CQD の励起レートと発光量子効率を決定できる、比較的大きなサイズの CdSe/ZnS CQD 試料を用いた。また、システム効率を向上させるために、開口数が 1.49 の油浸対物レンズを使用するなど、計測システムにも改良を加えた。システム効率を低下させる要因を診断した。1%を超えるシステム効率を実現できることと、その詳細を分析できることが分かった。

(4) TEM グリッドに塗布した CQD の単一光子特性評価.

カバーガラスの上に CQD を塗布する従来手法ではなく、透過型電子顕微鏡 (TEM) 用の支持膜付きグリッドの上に CQD を塗布する新たな手法を開発し、作製した試料の単一光子特性を評価した。発光波長が 620 nm の試料において、カバーガラスを用いた従来の実験と同程度の極めて高い単一光子純度 ($g^{(2)}(0) \sim 0.003$) を観測することができた。TEM グリッドの上に塗布した CQD においても、高純度な単一光子を効率よく発生できることを明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Seki Takakazu, Ihara Toshiyuki, Kanemitsu Yoshihiko, Hayamizu Yuhei | 4. 巻 7 |
| 2. 論文標題 Photoluminescence of CVD-grown MoS ₂ modified by pH under aqueous solutions toward potential biological sensing | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 2D Materials | 6. 最初と最後の頁 034001(1-9) |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/2053-1583/ab712d | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|--------------------------|
| 1. 著者名 Ihara Toshiyuki, Miki Shigehito, Yamada Toshiki, Kaji Takahiro, Otomo Akira, Hosako Iwao, Terai Hirotaka | 4. 巻 9 |
| 2. 論文標題 Superior properties in room-temperature colloidal-dot quantum emitters revealed by ultralow-dark-count detections of temporally-purified single photons | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Scientific Reports | 6. 最初と最後の頁 15941(1-7) |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-019-52377-1 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |

| | |
|--|----------------------------|
| 1. 著者名 Ihara Toshiyuki, Miki Shigehito, Yamada Toshiki, Terai Hirotaka | 4. 巻 10929 |
| 2. 論文標題 Impact of a time gate to the purity of single photons emitted from colloidal quantum dots | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Proceedings of SPIE | 6. 最初と最後の頁 109290X(1-6) |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1117/12.2507334 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

| |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名 井原 章之, 三木 茂人, 山田 俊樹, 寺井 弘高 |
| 2. 発表標題 単一ドット室温発光における超高純度単一光子特性の観測 |
| 3. 学会等名 応用物理学会 秋春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 井原 章之, 三木 茂人, 山田 俊樹, 寺井 弘高 |
| 2. 発表標題 単一ドット室温発光の空間イメージと低ダーク強度相関の同時計測 |
| 3. 学会等名 応用物理学会 秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 井原 章之, 三木 茂人, 山田 俊樹, 寺井 弘高 |
| 2. 発表標題 コロイドドット室温単一光子光源の低雑音タイムゲート強度相関計測 |
| 3. 学会等名 応用物理学会 秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 井原 章之, 松田 厚志 |
| 2. 発表標題 リアルタイム画像解析を利用した単一コロイドドット発光の選択的自動計測 |
| 3. 学会等名 第79回 応用物理学会 秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Ihara Toshiyuki, Miki Shigehito, Yamada Toshiki, and Terai Hiroataka |
| 2. 発表標題 Impact of time gate to purity of single photons emitted from colloidal quantum dots |
| 3. 学会等名 SPIE photonics west (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Ihara Toshiyuki, Miki Shigehito, Yamada Toshiki, and Terai Hirota |
| 2. 発表標題 High-quality quantum emission from colloidal quantum dots revealed by ultralow-dark-count detections of temporally-filtered single photons |
| 3. 学会等名 Quantum Dot 2020 (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 井原 章之, 三木 茂人, 山田 俊樹, 寺井 弘高 |
| 2. 発表標題 単一CdSe/ZnS CQDのエキシトン発光による高純度単一光子発生 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 井原 章之, 三木 茂人, 知名 史博, 山田 俊樹, 寺井 弘高 |
| 2. 発表標題 単一CQD発光の顕微光量子計測とシステム効率の特性診断 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 井原 章之, 榎本 航之, 夫 勇進, 富成 征弘, 三木 茂人, 寺井 弘高 |
| 2. 発表標題 TEMグリッド上に塗布したコロイド量子ドットの単一光子特性評価 |
| 3. 学会等名 第68回 応用物理学会 春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Ihara Toshiyuki, Miki Shigehito, China Fumihito, Yamada Toshiki, and Terai Hirota |
| 2. 発表標題 Colloidal quantum dots as high-performance single-photon sources: Improvements in purity and system efficiency |
| 3. 学会等名 10th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2021) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|