

200K にて動作する量子ドット単一光子源

加古 敏*・荒川 泰彦*,**

Single-Photon Source Operating at 200K

Satoshi KAKO* and Yasuhiko ARAKAWA*,**

Recent progress of quantum information technology offers an ultimate secure communication called by “quantum cryptography,” where the key to encode is distributed with absolute security. Single-photon emitter has been considered to play a crucial role for realizing practical quantum cryptography. However, a significant obstacle of commonly used III/V quantum dot such as InAs quantum dots for this application is the requirement of liquid-helium cryogenic temperatures. Epitaxially grown GaN quantum dots have the potential for operation at much higher temperatures. In this contribution, we report triggered single-photon emission from GaN quantum dots at 200 K, a temperature easily reachable with thermo-electric cooling.

Key words: nitride semiconductor, quantum dot, single-photon generation, high-temperature operation

決まった時間に光子1個を放出する単一光子発生器は、量子暗号における量子鍵配信の効率化等の応用において重要な役割を果たすと考えられている。これまでさまざまな系、原子や分子、有機材料、ダイヤモンドのカラーセンター、そして量子ドットを用いた実施例が報告されてきた。量子ドットの中でもエピタキシャル法によって作製された量子ドットは、大きな系、例えば光共振器内などに埋め込むことが容易であると考えられ、とりわけデバイスを作製する観点から重要である。現在のところ、エピタキシャル法によって作製された量子ドットを用いた単一光子源は低温に限定されている。

六方晶自己形成 GaN 量子ドットは閉じ込めの大きさと材料系の特徴から高温での動作に有利と考えられ、大きな系、例えばフォトニック結晶との融合も可能な系である¹⁾。試料のマクロ発光スペクトルは、波長 260 nm 付近の濡れ層 (WL) からの発光とともに、波長 300 nm から 450 nm の広い範囲で量子ドットからの発光がみられる。また、六方晶窒化物半導体ヘテロ構造に特有の自発分極差やピエゾ電界による強い内部電界によって、外部電界がない状態においても量子閉じ込めシュタルク効果が顕著となり、ドットサイズに依存した発光エネルギーと発光再結合寿命を示す²⁾。

本稿では、このような特徴を有する六方晶自己形成 GaN 量子ドットを用いた近紫外光領域における単一光子発生の試みを紹介する。

1. 単一量子ドット分光と光子相関測定^{3,4)}

六方晶自己形成 GaN 量子ドットの単一量子ドット分光は、顕微発光分光法と作製した試料表面上のメサ構造によって行う。得られた局所的な数個の量子ドットからの発光は、液体窒素冷却 CCD カメラ付き分光器によるスペクトル解析、または Hanbury-Brown and Twiss (HBT) 型の相関測定系によって二次コヒーレンス関数の測定を行えるようになっている。

図 1 (a) に、典型的な発光スペクトルと各発光ピークに対する積分強度の励起光強度依存性を示す。ピーク 1 は線形依存性を示し、励起子状態からの発光と考えられる。また、ピーク 2 は二次依存性を示し励起子分子からの発光と考えられる。励起子分子の発光エネルギー位置も励起子の発光エネルギーの高エネルギー側に現れており、励起子分子の結合エネルギーは負で、およそ 35 meV であった。ピーク 3 はエネルギー位置が励起子発光よりもおよそ 100 meV と低エネルギー側に現れており、GaN 量子ドットを取り巻く AlN の LO フォノンエネルギーと同程度であることを考えると、AlN の LO フォノンを介在した励起子

* 東京大学ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構 (〒153-8505 東京都目黒区駒場 4-6-1)

** 東京大学生産技術研究所 (〒153-8505 東京都目黒区駒場 4-6-1) E-mail: arakawa@iis.u-tokyo.ac.jp

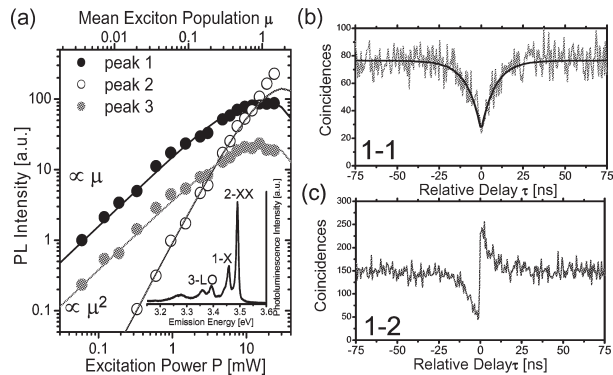


図1 (a) GaN 量子ドットの発光スペクトル (挿入図) と各発光ピークに対する積分強度の励起光強度依存性。実線はポアソン分布モデルを使ったフィッティングで μ はドット内の平均励起子数。(b) ピーク1 (励起子) の自己相関ヒストグラム。実線はフィッティング曲線。(c) ピーク1 (励起子) とピーク2 (励起子分子) 間の相互相関ヒストグラム。

の発光であると考えられる。励起光強度が強い場合には、励起子と同様に励起子分子の LO フォノン支援再結合ピークが 100 meV 程度低エネルギー側で観測され、さらに 2 LO ピークも 180~200 meV 程度低エネルギー側で観測できる (図1 (a) の挿入図参照)。

これらのピークに対して、HBT 型の相関測定系によって光子相関測定を行った。ピーク1の自己相関ヒストグラム $G^{(2)}(\tau)$ を図1 (b) に示す。発光スペクトルは、スペクトル拡散を反映し非常に広い線幅を示すが、光子相関ヒストグラムは明確なアンチバンチングを示しており、単一の量子発光体からの発光であることを示している。簡単なモデル $G^{(2)}(\tau) = A[1 - (1 - g^{(2)}(0))\exp(-|\tau|/t_0)]$ を用いて見積もられる $g^{(2)}(0)$ の値は 0.32 であった。理想的な 2 準位では $g^{(2)}(0) = 0$ となる。 $g^{(2)}(0) = 0.32$ と理想値からずれているのは背景光の影響であると考えられる。さらに、図1 (c) はピーク1と2間の相互相関ヒストグラムを示しており、励起子 (ピーク1) と励起子分子 (ピーク2) と同定された発光ピーク間の相互相関である。明確な非対称相関ヒストグラムが得られた。これは、励起子分子の励起子のひとつが発光再結合した後に励起子の発光が起こる量子カスケード過程に起因している。また、励起子 (ピーク1) と励起子のフォノン支援再結合 (ピーク3) 間の相互相関では明確なアンチバンチングを観測できる。

2. 低温における単一光子発生と多光子抑制効率^{4,5)}

理想的には、励起子発光だけを観測でき、発光再結合時間よりも十分早い時間の間だけ量子ドット中にキャリアを生成できれば、ある決まった時間に発光再結合時間程度のジッターをもって単一光子を発生できる。単一光子の発生は HBT 相関測定系を用いて確認することができる。パ

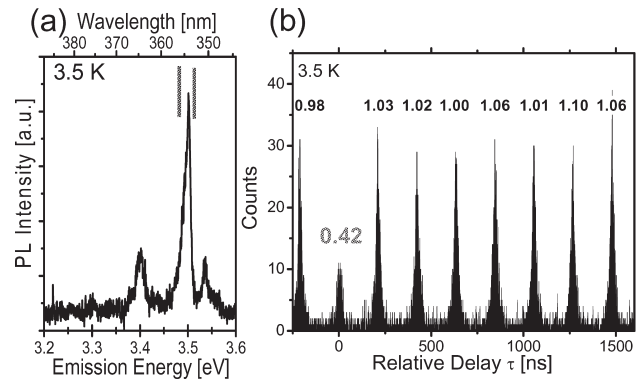


図2 温度 3.5 K, パルス光励起下における発光スペクトル (a) と光子相関ヒストグラム (b)。ヒストグラムの各パルス上にある数字は規格化されたパルス面積。スペクトル上の 2 本の線はフィルターによって選択された領域を示す。

ルスレーザー光を十分に減衰させた古典光源の光子相関ヒストグラムは、規格化されたパルス面積 $g^{(2)}[i]$ が HBT の 2 つの検出器間の相対的な遅延時間に依存せず 1 となる。

単一光子の発生には、800 nm 付近の中心波長をもつ Ti サファイアフェムト秒レーザーをパルスピッカーによって適切なパルス繰り返し周波数にした後に、非線形光学結晶を用いて第三高調波を発生させ、波長 266 nm のパルス列を生成したものを励起光源に用いて行った。図2に、3.5 K における光子相関ヒストグラムを示す。遅延時間がゼロのときに明確なアンチバンチングを確認できる。各パルス上にある数字は規格化されたパルス面積 $g^{(2)}[i]$ で、 $g^{(2)}[0]$ の値は 3.5 K において 0.42 となっている。 $g^{(2)}[0]$ の値が理想的な値であるゼロよりも大きい理由としては、背景光の影響と再励起の効果が考えられる。これらの影響を定量的に評価するために、理想に近い単一光子発生器とポアソン分布を示すランダム背景光を考える。このとき、 $g^{(2)}[0]$ として $g^{(2)}[0] = 2\mu / \langle \hat{n} \rangle + [\mu / \langle \hat{n} \rangle]^2$ を得る。ここで μ は背景光の平均光子数、 $\langle \hat{n} \rangle$ は検出された全平均光子数である。実験から、 $\mu / \langle \hat{n} \rangle$ は 0.164 と見積もることができ、そのときに $g^{(2)}[0] = 0.3$ を得る。この値は連続光での実験のときに得られる $g^{(2)}[0] = 0.32$ と同程度である。背景光はフィルター帯域を狭めることで相対的に小さくできる。発光線幅を狭めることができれば信号光子を失うことなく背景光の効果を除くことができる。さらに、実験値 0.42 は背景光の効果だけでは説明がつかない。他の発光ピークの紛れ込みが 3.5 K では小さいと考えられるので、再励起の効果ではないかと考えられる。

3. 発光の温度依存性と 200 K における単一光子発生⁵⁾

GaN 量子ドットは、高温でも十分な効率をもって発光することが期待され、この特性が高温動作する単一光子発

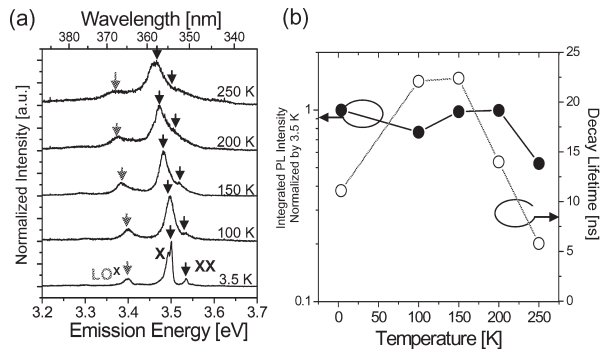


図3 (a) 発光スペクトルの温度依存性. (b) 励起子発光 X の積分強度と発光再結合時間の温度依存性. 励起光強度は一定で、スペクトルの発光強度は各温度において最大値で規格化してある.

生器実現のひとつの鍵となる. 図3 (b) に、励起子の積分強度と発光再結合時間の温度依存性を示す. これから、少なくとも 200 K までは顕著な発光強度の変化はみられないことがわかる. 250 K 以上の温度においては発光再結合時間が短くなることを考えると、非発光再結合過程が影響しはじめると考えられる. しかしながら、この積分強度と発光再結合時間の温度依存性は、用いた波長 266 nm の光源が非共鳴励起に相当し WL を直接励起しているために、WL のキャリアダイナミクスと量子効率を反映していると考えられる. WL 中のキャリアは、温度の上昇とともに、通常の量子井戸と同様に非発光過程の影響を強く受ける. 今後、共鳴励起下での実験を行えば、この WL の影響を取り除けると考えられる.

次に、発光強度の変化がみられない最高温度である 200 K における光子相関ヒストグラムを図4に示す. 遅延時間がゼロのときに明確なアンチバンチングを確認できる. 各パルス上にある数字は規格化されたパルス面積 $g^{(2)}[i]$ で、 $g^{(2)}[0]$ の値は 200 K において 0.53 となっている. $g^{(2)}[0]$ の値がそれほどよくない理由として、低温においても背景光の影響と再励起の効果によってすでに $g^{(2)}[0]$ が 0.42 となっていること、量子ドットの励起子と励起子分子の発光線が重なってしまい分離できなくなることの2つの点が考えられる. 2つの発光ピークが線幅の増大によって分離できないことが温度上昇に伴う $g^{(2)}[0]$ の値の増大の主要原因である. 線幅の起源は、現在のところ明らかではないが、スペクトル拡散が主要な起源であると考えている. したがって、位相緩和時間で決定されるようなスペクトル線幅は観測される線幅よりもかなり狭く、もしそれが励起子分子の結合エネルギーと同程度かそれ以下であれば、今後スペクトル拡散を抑えられれば高温においても明確に分離している状態を得ることができ、温度上昇に伴う $g^{(2)}[0]$ の悪化は避けることができるだろう.

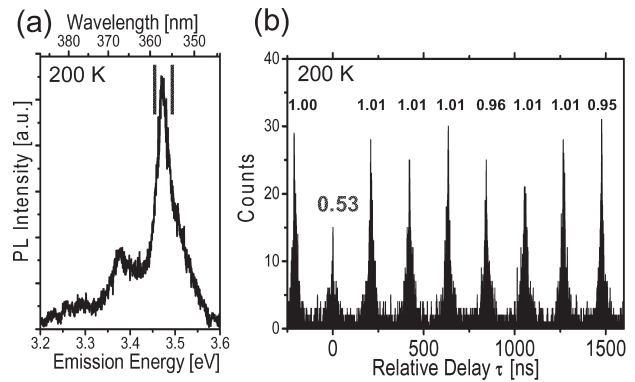


図4 温度 200 K, パルス光励起下における発光スペクトル (a) と光子相関ヒストグラム (b). ヒストグラムの各パルス上にある数字は規格化されたパルス面積. スペクトル上の2本の線はフィルターによって選択された領域を示す.

これまでみてきたように、GaN 量子ドットを用いた単一光子発生は、エピタキシャル成長で得られたものとしては、少なくとも温度 200 K までは最高の $g^{(2)}[0]$ と発光効率をもつことが明らかとなった. この温度は、ペルティエ素子などの電子冷却装置によって十分達成できる温度である. 今後はさらなる諸特性の改善と室温での動作を目指し、結晶の品質やプロセス等の最適化によるスペクトル拡散過程の抑制が課題である. また、背景光の影響と再励起の効果を抑制するために、共鳴励起による単一光子発生も有効であると考えられる.

本稿で紹介した研究は、Charles Santori 博士 (米国ヒューレット・パッカード研究所), 山本喜久教授 (スタンフォード大学, 国立情報学研究所) との共同研究であり、ここに深謝の意を表す.

文 献

- 1) M. Arita, S. Ishida, S. Kako, S. Iwamoto and Y. Arakawa: "AlN air-bridge photonic crystal nanocavities demonstrating high quality factor," *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 051106.
- 2) S. Kako, M. Miyamura, K. Tachibana, K. Hoshino and Y. Arakawa: "Size-dependent radiative decay time of excitons in GaN/AlN self-assembled quantum dots," *Appl. Phys. Lett.*, **83** (2006) 984-986.
- 3) S. Kako, K. Hoshino, S. Iwamoto, S. Ishida and Y. Arakawa: "Exciton and biexciton luminescence from single GaN/AlN self-assembled quantum dots," *Appl. Phys. Lett.*, **85** (2004) 64-66.
- 4) C. Santori, S. Gotzinger, Y. Yamamoto, S. Kako, K. Hoshino and Y. Arakawa: "Photon correlation studies of single GaN quantum dots," *Appl. Phys. Lett.*, **87** (2005) 051916.
- 5) S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Gotzinger, Y. Yamamoto and Y. Arakawa: "A gallium nitride single-photon source operating at 200 K," *Nature Mat.*, **5** (2006) 887-892.

(2008年5月12日受理)