

単一光子検出を利用した凝縮系コヒーレント分光

黒 田 隆

Solid-State Coherent Spectroscopy with Single Photon Detection

Takashi KURODA

Decoherence of single photons emitted from isolated semiconductor quantum dots were characterized by Michelson-type interferometry equipped with a micro-objective photoluminescence setup. The first-order correlation function of light was evaluated by measuring interference amplitude, enabling us to determine the spectral shape of single photons with very high precision. In this review we report on the experimental study in GaAs/AlGaAs quantum dots which produced single photons at visible wavelength (~ 690 nm), and InAs/InP quantum dots which emitted photons at telecommunication wavelength (~ 1.3 μ m).

Key words: coherent spectroscopy, single photon, micro photoluminescence, semiconductor quantum dot

半導体量子ドットは、大きさが数ナノメートルの半導体の微結晶であり、異種の半導体の中にヘテロ・エピタキシャルに微結晶が埋め込まれた構造をもっている。量子ドットの伝導電子や正孔は、ナノメートルの極微空間に閉じ込められており、そのため電気伝導や光学応答は、バルクの半導体とは質的に異なるものとなる。例えば、発光スペクトルを観測すると、一般にバルク半導体は、電子のエネルギーバンド構造を反映して、幅広いスペクトルを示すが、量子ドットの光学スペクトルは、電子構造が離散的になるため、原子の輝線に似たごく狭線幅の線スペクトルとなる。このような特徴のために、従来原子分光で行われてきた精密かつ高スペクトル分解能の光学実験が、量子ドットを舞台に行われるようになり、現在、盛んに研究が繰り広げられている。

表1に、量子ドットにおける、分光スペクトルの典型的なエネルギースケールをまとめてみた。よく扱われるIII-V属半導体のバンドギャップ・エネルギーは1 eV程度であり、材料種に応じて、可視域から通信波波長帯を含む近赤外域までの光を放出する。伝導電子の量子閉じ込めエネ

ルギーは、0.1 eVのオーダーであり、そのため、切れ味のいい分光探索には低温環境が必要となる。量子ドットは、おのおの、大きさや形状にばらつきがあるため、試料全体からの発光スペクトルは、数十 meV のスペクトル広がりを示す。しかし、1990年代半ばに、顕微鏡対物レンズや近接場顕微鏡を駆使して、単一の量子ドットからの発光を観測され、それをきっかけとして、単一量子ドットを対象とした精密分光が一気に花開いた。その後現在に至るまで、実験の精緻さと理論計算の精度が上がるに従い、さまざまな相互作用に起因するスペクトル微細構造が見いだされている。例えば、最近、伝導電子と核スピンとの超微細相互作用によるエネルギー・シフト（オーバーハウザー効果）が、わずか10 μ eV程度の大きさとして観測されているが、この実験は、従来ラマン分光用の多段グレーティング分光器を駆使してはじめて観測できたものであった。ラマン分光用の大型分光器は、以前実験室ではよく見かけて、その後、スペースの制限からあまり見かけなくなった（捨てられてしまった）装置であるが、量子ドット分光の世界では、見る対象が小さいにもかかわらず、このような

表1 III-V属半導体量子ドットの特徴的なエネルギースケール.

~1 eV	バンドギャップ
10~100 meV	閉じ込めエネルギー, 歪みエネルギー 1 電子殻構造, 不均一広がり
~1 meV	多励起子構造
10~100 μ eV	ゼーマン効果, シュタルク効果 交換相互作用分裂
~1 μ eV	超微細構造 (オーバーハウザー効果) 自然幅

巨大分光器がリバイバルしている。(より洗練された方法として, 最近, 高フィネスのファブリー・ペロー共振器や, 高安定レーザーの波長走査を用いた一まに原子分光の分野で培われた一手法が流行している.)

単一の量子ドットからの発光線幅は, 分解能が上がる, どこまで狭くなるだろうか. 電子および正孔の発光再結合は, 可視・近赤外域の直接遷移型半導体では, 数百 ps~1 ns 程度の寿命であり, 電子寿命の自然幅が線幅を決めるのであれば, 1 μ eV 程度の線幅と期待できる. 一方, バルクや量子井戸構造の半導体では, 発光線幅は, 自然幅ではなく, 電子・格子相互作用による位相緩和によって決まることが知られている. その大きさは, 液体ヘリウム温度においても数十 μ eV に相当する. 量子ドットの場合, しかしながら, 電子状態の離散化に伴って, 電子・格子相互作用が抑制されることが, レーザーの低閾値化に絡めて以前から議論されている. この場合, 結果として狭線幅になることが期待できるが, 詳細は明らかではない.

スペクトル分解能が 1 μ eV の分光を, 回折格子型分光器を用いて行うのは, 原理的にも, また経済的・空間的な点からも簡単なことではない. 一方, 線幅のみに注目するのであれば, 量子ドットから発する光ビームのコヒーレンス長を観測すれば, その逆数としてスペクトル線幅を決めることができる. そこで筆者らは, 単一量子ドットの分光系にマイケルソン干渉計を組み込み, インターフェログラムの計測から発光線のスペクトル形状を確定することを試みた. いわば, フーリエ変換分光を光子計数レベルの微弱光計測に適用したわけであるが, 通常フーリエ分光器を用いる代わりに, 長時間露光が可能になる仕掛けを組み込んだ. 以下に, やや詳細に実験装置の説明をしたのち, GaAs/AlGaAs 量子ドット¹⁻³⁾ および InAs/InP 量子ドットを用いた実験例^{4,5)}を紹介する.

1. 単一光子フーリエ分光の仕組み

図1に, 筆者らが組み立てたフーリエ分光光学系の配置図を示す. この装置は, 図の左側, 前段部分の共焦点の顕

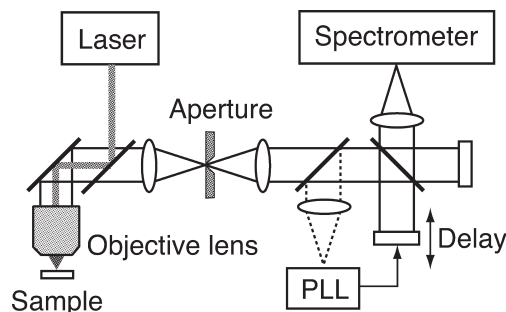


図1 単一量子ドット・フーリエ分光の仕組み.

微分光系と, 図の右側, 後段部分の位相安定化したマイケルソン干渉計で構成されている.

1.1 低温顕微分光系

単一の量子ドットからの光信号を捕捉するひとつの鍵は, 集光レンズとして顕微鏡用の高倍率対物レンズを用いることである. 対物レンズを用いることで, 信号の検出領域を狭くすることができ, 領域内にある少数個数の量子ドットの光のみを取り出すことができる. 試料として量子ドットの面密度が比較的小さい $\sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$ のものを用い, 回折限界の空間フィルタリングをすれば, 1 個の量子ドットを選別することが可能となる. 対物レンズのもうひとつの有用性は, 大きな開口比をもつために, 全方位に放出される量子ドットからの発光を, 効率よく集光できることである. 単一の量子ドットからの光信号はごく微弱なため, 高開口比の集光レンズを用いることが必須である.

量子ドットの試料は, クライオスタット内で液体ヘリウム温度まで冷却する. このとき, 対物レンズをクライオスタットの中に置くと, 組み合わせレンズの熱膨張率の違いのために, 見事にレンズが破壊されてしまう. このためおもに2つの方法が流布している. 1つは, 顕微鏡対物レンズではなく, CD プレーヤーのピックアップなどに使われる, 非球面・高開口比の単レンズを用い, これを冷却室に入れる方法である. 単レンズであるために冷却時にも変性は起こらず, 結像特性もすぐれている. しかしこの場合, レンズの駆動機構を冷却空間に作り込まねばならないこと, および単レンズのために色収差の影響を受けることが問題となる. もう1つの方法は, 試料室を室温空間の近くに設置した, 特殊仕様のクライオスタットを用い, 光学窓の外側に対物レンズを設置する方法である. 現在, クライオスタット製造各社から低振動・顕微分光用と銘打った製品が売り出されている. 特殊仕様のため, 従来品に比較して冷却効率は劣るが, レンズおよび試料の駆動を比較的自由に設計できるのがこの方法の長所である. 筆者らは後者を採用している.

対物レンズの選別にはいくつかのポイントがある。まず、適用波長に応じた仕様のもを用いること：通常の対物レンズは可視波長の 500~650 nm での使用が前提であり、この範囲から外れると、一気に色収差による焦点移動が激しくなる。近紫外・近赤外域の分光には、カセグレン鏡の使用を含め、それ専用のレンズを用いたほうがよい。次に、試料位置がレンズから離れているために、作動距離の長いものが望ましい。また、クライオスタットの光学窓を介して試料を観察するため、光学窓による収差が問題になる。特に、大きな開口比 ($NA > 0.5$) のレンズを用いての、空間分解能が必要な測定の場合、この収差は深刻となる。窓の厚みや屈折率を考慮してレンズ設計を最初から行うのは、コスト的に非現実的である。すぐれた代用品として、筆者らの用途と同じようにガラス板越しの観察を想定した、液晶ディスプレイ評価用の対物レンズを推奨する。細かな要求をすべて満足するレンズはなかなか見当たらないのだが、現在筆者らは、ニコンの CFIC LCD Plan 50× ($NA = 0.55$) を可視域の実験に、ミットヨの LCD Plan Apo NIR 50× ($NA = 0.42$) を近赤外域の実験にと、使い分けて用いている。後者のレンズは、結像特性はよいが、開口比が小さく、信号強度が不足する場合がある。必要に応じて、ソリッド・イマージョン・レンズを併用したり、空間分解能を無視して、高 NA だがガラス厚補正が施されていないレンズを用いたりする。

図 1 に戻って配置の説明を続けよう。励起レーザーには、赤色半導体レーザーや、緑色発振の HeNe レーザー (波長 544 nm) を使い分けている。レーザー光は、ビームスプリッターで光路に入り、対物レンズを通して試料の 1 点を照射する。ビームスプリッターとして、やや厚め ($t = 7$ mm) の平行ガラス基板を用いた。この場合、励起光の偏光状態が崩れてしまうため、偏光が重要な実験の際には、同種のビームスプリッターを 2 個、直角に配置して、偏光状態を補正する配置をとる。発光信号は、対物レンズで集光され、ビームスプリッターを透過したのちに、長焦点の結像レンズで結像する。焦点面にピンホールを置くことで、試料上 1 点からの光信号を取り出すことができる。ピンホールの開口径は、回折限界スポット像のおおむね 2 倍まで大きければ十分である。ピンホールの代わりに適当なモード径の光ファイバーを置き、分光器の入射スリットに結像することで、通常の発光スペクトルが取得できる。ここでは、ピンホールを通過した光を、レンズで再び平行光束に戻し、後段のマイケルソン干渉計に入れる。

1.2 マイケルソン干渉計

通常のフーリエ変換分光では、十分に長い光路差にわた

って干渉縞の位相と振幅を計測し、インターフェログラム (自己相関関数) を得ている。しかしながら、単一の量子ドットからの光は微弱なため、1 点あたり数秒から数十秒の積算が必要である。そのため干渉計の全変位にわたって、位相も含めたインターフェログラムをとることは容易ではない。そこで筆者らは、干渉縞の振幅のみに着目し、離散的な光路差での干渉強度を計測することで、自己相関関数の包らう線を抽出した。ダウン・サンプリングの結果として、信号光の絶対波長や非対称なスペクトル形状は判断できない。しかしながら、これらの情報はときに重要ではなく、また分散型分光器を併用してスペクトルを測定すれば、失われた情報が補償できることが多い。サンプリングの数を激減することで、長時間積算が必要な微弱光ビームが対象でも、高分解能のフーリエ分光を実現することができる。

マイケルソン干渉計を構成するのは、50/50 の金属膜ビームスプリッターと 2 枚の反射鏡であり、片方の反射鏡を移動して光路差を変化する。移動機構には、干渉縞の振幅を測定するためのピエゾ素子ステージと、光路差を (大きく) 変えるための機械的な移動ステージを共に用いる。干渉縞の振幅の決定には、光路差として、光波長の数倍あれば十分なので、大きな変位量のピエゾ・ステージは必要としない。しかし、ピエゾ素子でできたアクチュエーターを直接、反射鏡に付けて動かすと、移動平行度が悪いために、きれいな干渉縞が得にくい。そのため多少、値が張るが、ピエゾ素子が入った直道ステージを用いている。また、クローズド・ループのステージを用いると、入力に対する移動量のリニアリティーが保たれ、かつドリフトの影響も抑えられるので、その後の解析が容易になる。

信号積算の間は、干渉計の光路差を一定に保つ必要がある。そのため、状況に応じて、位相安定化のフィードバックをかけている (図 1 の PLL; phase lock loop に対応)。高コヒーレンスのレーザー光を同軸で干渉計に入れ、ビームスプリッターで取り分けた出力を参照しながらピエゾ素子ステージを制御する。時定数の選択や帰還強度の設定を簡単にするために、実際には、光路差に変調をかけながら、出力の変調成分をロックイン増幅し、その出力値が一定となるようにステージを動かしている。もっとも、周辺からの擾乱が少なく、干渉計が十分安定しているときは、フィードバックを開いたほうが、きれいなインターフェログラムを取得できる。

干渉計の出力を、光検出器に入れ、直接強度を計れば、原理的にはインターフェログラムを計測できる。しかし、量子ドットの発光は、しばしば複数のスペクトル成分をも

表2 光路長と特徴的なエネルギー幅の関係。

光路長	時間遅延	エネルギー差	$g^{(1)}(t) = e^{-t/\Delta\tau}$ の場合	$g^{(1)}(t) = e^{-t^2/\Delta\tau^2}$ の場合
L	$\Delta\tau = c/L$	$\hbar/\Delta\tau$	$\text{FWHM} = 2\hbar/\Delta\tau$ (ローレンツ型)	$\text{FWHM} = 4\hbar\sqrt{\ln 2}/\Delta\tau$ (ガウス型)
0.3 mm	1 ps	4.135 meV	1.3164 meV	2.192 meV
3 mm	10 ps	0.4135 meV	0.1316 meV	0.2192 meV
30 mm	100 ps	41.35 μeV	13.16 μeV	21.92 μeV
300 mm	1 ns	4.135 μeV	1.316 μeV	2.192 μeV

ち、その場合、インターフェログラムは込みいったビート構造になるため、サンプリングの数を多くする必要が生じる。これを防ぐために、干渉計の出力を、一度、回折格子分光器に入射し、特定のスペクトル成分を切り分けたのちに、強度を積算する。ポリクロメーターを用いれば、個々のスペクトル成分に対して、同時にインターフェログラムが計測でき、サンプリングの数も少なくすむ。ポリクロメーターの検出器には、シリコンのCCD検出器と、InGaAsのダイオードアレイ検出器を検出波長域に応じて使い分けしている。表2に、干渉計の光路差と、それに対応する特徴的なエネルギー幅の関係を載せた。なお、単一の量子ドットからの発光をフーリエ分光する試みは、筆者らの研究が最初だったわけではない。先駆的な実験として、文献6, 7の報告があることを付け加えておく。

2. 単一量子ドット発光のインターフェログラム計測

実験に用いた試料を簡単に説明する。GaAs量子ドットは、分子線エピタキシー装置を用い、液滴エピタキシー成長とよぶ独自手法で作製したものである。量子ドットの形は、直径が40 nm、高さが5 nmの平たいドーム状であり、障壁層となる $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ の中に、シート状に埋め込まれている。面密度は $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ であり、顕微鏡対物レンズを用いて、数個の量子ドットを分離することができる。試料の詳細は、文献8を参照願いたい。

InAs/InP (001) 量子ドットは、有機金属CVD装置を用い、ダブルキャップ法とよぶ独自手法で作製した⁹⁾。量子ドットの形状は、直径が30 nm、厚さが2 nmの極薄のディスク型をしている。薄板形状による量子閉じ込めと歪みエネルギーをバランスすることで、発光波長がちょうど石英ファイバーの透過バンド (1.3 μm , 1.55 μm) に合致するように作っている。量子ドットの密度は $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ であり、成長試料をそのまま対物レンズの下に置くだけでは、単一の量子ドットを選び出すことができない。そのため、光リソグラフィとウエット・エッチングで、微小なメサ構造を作製し、空間選別を行うことで、単一の量子ドットからの発光を観測した。

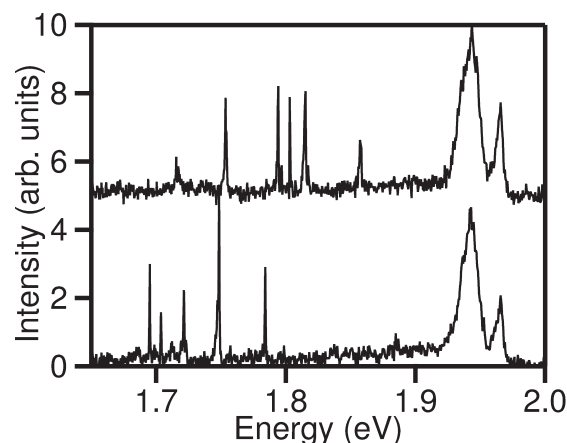


図2 GaAs/AlGaAs量子ドットの顕微発光スペクトル。測定温度は5 K。上図・下図は、検出位置が異なる場所でのスペクトルである。

図2に、GaAs量子ドットの試料における顕微発光スペクトルを示す。回折格子分光器を用いたものであり、上下2つのスペクトルは、同じ試料の異なる場所を見ている。高エネルギー側の1.94 eV, 1.96 eVの発光帯は、障壁層のAlGaAsでの再結合発光である。低エネルギー側の1.65~1.85 eVにかけて、量子ドット由来の先鋭なスペクトル線が観測できる。この試料では、焦点スポットの中におおむね5個程度の量子ドットがあることが予想でき、スペクトル線の本数とよく一致している。見る場所が変わっても、障壁層由来の発光スペクトルは変わらないが、量子ドットのスペクトル位置は大きく変わっている。

スペクトル上の1本の発光線を切り出し、それに対してインターフェログラムを計測したのが図3である。左図では、干渉計の光路差をおおむね2 mmに設定し、その近傍で、光路長をわずかに変化しながら強度を測った。1ステップあたりの変位量は約60 nmである。信号強度は、constructive/destructiveな光干渉を反映して、正弦関数的に変化する様子がわかる。干渉計の光路差が5 mm (中図)、さらに11 mm (右図)へと増えるに従い、光干渉の振幅が減少する。これから、信号光ビームのコヒーレンス長が有限であることがわかる。

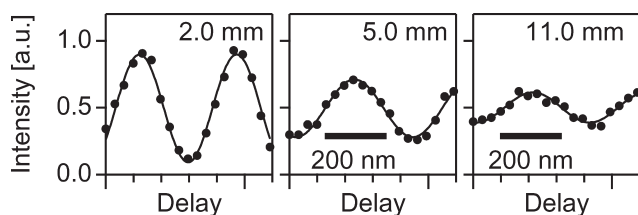


図3 単一 GaAs 量子ドットの発光に対するインターフェログラム。干渉計の出力強度を光路差の関数としてプロットした。実線は正弦関数の近似である。

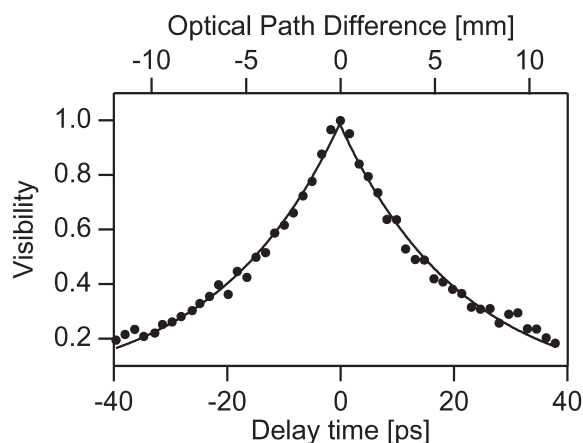


図4 単一 GaAs 量子ドットの発光の自己相関関数。実線は指数関数の近似曲線である。

干渉の強度として $\text{visibility} = \{(\text{最大強度}) - (\text{最小強度})\} / \{(\text{最大強度}) + (\text{最小強度})\}$ を定義し、その値を光路差の関数として表したものが自己相関関数、 $g^{(1)}(\tau)$ となる。図4に、上で観測した量子ドット発光の自己相関関数を示した。光路差ゼロを中心として、正負対称に干渉強度が減衰する様子がわかる。減衰形状は、単一指数関数でよく近似でき、その減衰時間（デコヒーレンス時間）は、22 ps と求められた。自己相関関数のフーリエ変換がパワースペクトルとなる。相関関数が指数減衰およびガウス関数となる場合の、デコヒーレンス時間とスペクトル線幅の関係を、それぞれ表2の4列目、5列目にまとめたので、目安にしていきたい。これより、筆者らの GaAs 単一量子ドットの発光は、半値全幅が $60 \mu\text{eV}$ のローレンツ型のスペクトル形状をもつことがわかった。

一方、この量子ドットの発光寿命は 500 ps 程度であり、対応する自然幅は $7 \mu\text{eV}$ となる。つまり、インターフェログラムから得た発光線幅は、この自然幅に比べて1桁大きい。これは試料に存在する不純物キャリアの影響と考えている。今回用いた GaAs 量子ドットは、液滴エピタキシー手法で作製している。この手法は、低温成長の過程が含まれるため、炭素等の不純物混入が比較的起こりやす

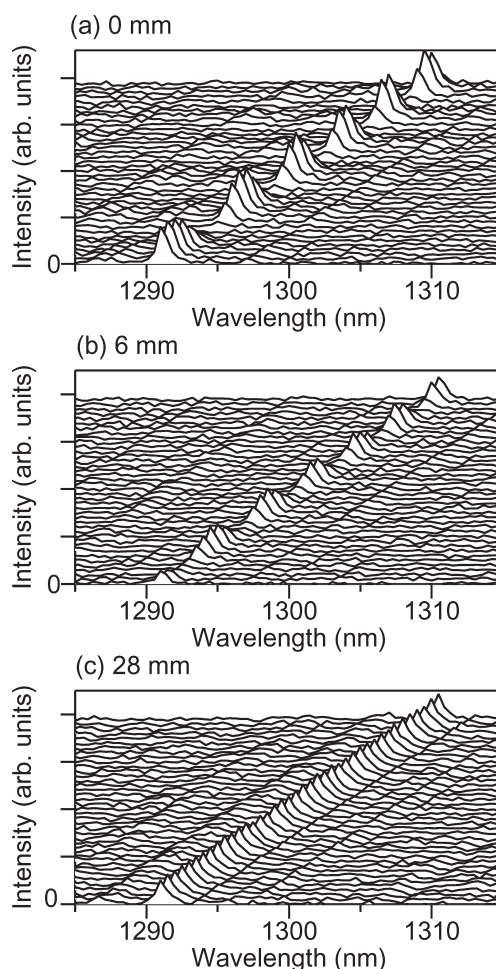


図5 単一 InAs/InP 量子ドットの発光のインターフェログラム。測定温度は 8 K。

く、結果として不純物由来のキャリアの密度が高い。ここで観測した高速の位相緩和は、このような外部キャリアによる散乱に起因するものと考えている。なお、成長条件を最適化することで、寿命幅に匹敵する狭発光線幅の試料が、最近実現していることを付記しておく。

InAs/InP 量子ドットにおける発光インターフェログラムを図5に示した。発光波長は、1291 nm (959.8 meV) である。図5 (a) では、光路差を、0 mm を中心として、1 ステップ 150 nm で動かした。信号強度が、正負の干渉の間を連続的に変わる様子がわかる。このときの visibility は、 >0.975 である。図5 (b) は、中心の光路差を 6 mm にして同じステップで動かしたもので、このとき、visibility は $0.64 (\pm 0.08)$ と評価できる。さらに光路差を 28 mm まで大きくすると、もはや干渉は確認できなくなる (図5 (c))。

このときの自己相関関数を図6に示した。縦軸は対数でスケールしてあり、このとき、単一指数減衰は直線になる。実験データは、わずかながら有意な差で、指数減衰（破

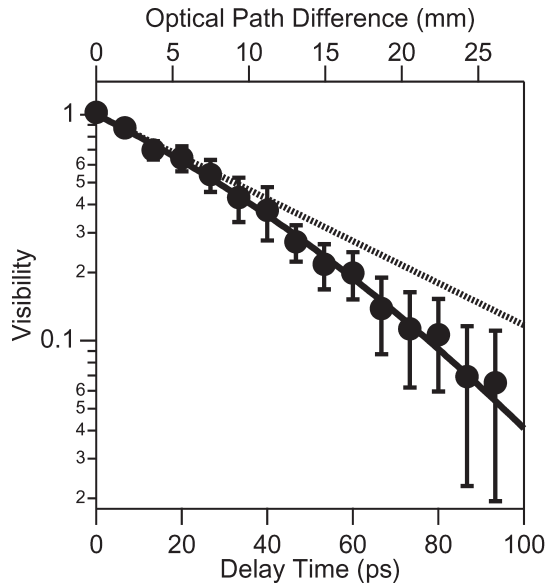


図6 単一 InAs/InP 量子ドットの自己相関関数。

線)から外れていることがわかる。代わりに近似できるのが、指数関数とガウス関数との積(実線)であり、このことから、発光スペクトルは、ローレンツ関数とガウス関数の畳み込みで表されることがわかる。指数減衰およびガウス減衰の定数値は、それぞれ $T_2 = 47(\pm 7)$ ps, $T_2^* = 100(\pm 15)$ ps であり、これに対応してスペクトルは、半値幅が 28 ± 4 μ eV のローレンツ関数と、半値幅が 22 ± 6 μ eV のガウス関数の重なりと評価できる。このようなスペクトル形状は、均一幅と不均一幅が共存する系として古くから知られている。単一の量子ドットの発光が不均一幅がりをもつというのは、一見矛盾であるが、量子ドット周辺に存在するキャリアの配置がランダムにゆらぐことで、遷移エネルギーが変動し、平均としてガウスのスペクトル広がりをもつと解釈している。

量子ドットの周辺環境が線幅に寄与する場合、その相関時間が短くなると、いわゆる運動による先鋭化が起こる。最近フランスのグループから、特殊な条件において、このような非マルコフ的緩和過程が表出したとの報告があり¹⁰⁾、筆者らの結果と比較してみた。この場合、自己相関関数はマスター方程式をキュムラント展開することで、次のような形になる：

$$g^{(1)}(\tau) = \exp\{(-\tau/T_2)(e^{-\tau/\tau_c} + \tau/\tau_c - 1)\} \quad (1)$$

ただし、この表式で、 T_2 と τ_c は独立ではなく、実際は $T_2 \propto \tau_c^{-1}$ (運動による先鋭化を示す) を示す。この非マルコフ・モデルを筆者らのモデルと比較したのが図7である。式(1)の振る舞いを1点鎖線で図示している。これ

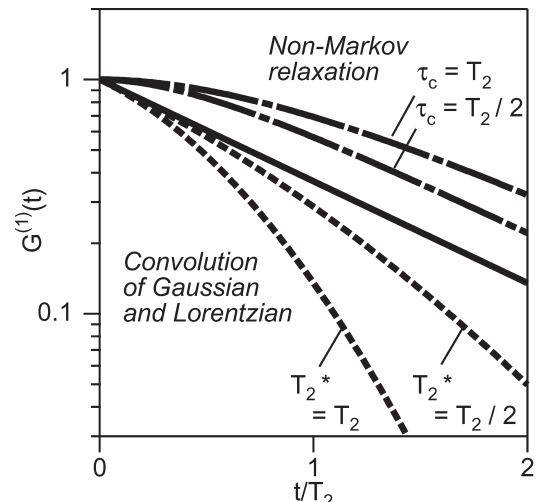


図7 各種の緩和モデルにおける自己相関関数。実線は、緩和時間を T_2 としたときの単一指数減衰であり、横軸は T_2 で規格化している。破線は、指数関数とガウス関数の積： $g^{(1)}(\tau) = e^{\tau/T_2} e^{-(\tau/T_2^*)^2}$ 。1点鎖線は、非マルコフ緩和モデル(本文参照)。

からわかるように、非マルコフ緩和においては、短時間領域 ($t < \tau_c$) でガウスの緩和となり、長時間領域 ($t > \tau_c$) では指数緩和を示す。一方、筆者らのモデルは、逆であり、短時間領域 ($t < T_2^*$) では T_2 の指数減衰、長時間領域 ($t > T_2^*$) ではガウス減衰する。実験データは、明らかに非マルコフ・モデルでは近似できず、筆者らのモデルが妥当であることがわかる。このことは、環境ゆらぎの時間スケールは T_2 に比較して十分長く、また、ローレンツ広がりとは異なる緩和に起因することを示唆している。

環境ゆらぎによる発光線のガウス広がり、障壁層および濡れ層にキャリアが存在することに起因している。したがって、共鳴的に量子ドットを励起し、直接、量子ドットにキャリアを生成する条件では、ガウス広がり抑制できるものと思われる。最近、四光波混合法など共鳴励起を前提とした分光実験において、自然寿命に匹敵する位相緩和を観測した報告が相次いでいる。このことは、量子ドット外部のキャリアを少なくし、環境ゆらぎを抑制することで、長いデコヒーレンスを実現することを示している。

単一の量子ドットから発する光は、単一光子状態であり、ここで紹介した量子ドットにおいても、アンチバンチング的な光子統計の観測に成功している^{11,12)}。単一光子の光干渉を見ることは、まさにディラックが書いていた「光子はそれ自身とのみ干渉し、異なる光子間の干渉は決して生じない」ことを実現しているといえる。フーリエ分光

は、通常、スペクトル分解能は高いが、微弱な光には適用できないと信じられてきた。筆者らは、分散型分光器とフーリエ分光を組み合わせることで、微弱な単一光子状態にも、フーリエ分光を容易に実現し、高い分解能で量子ドットの微細スペクトル形状を決めることに成功した。

一連の実験を開始した当初、装置系を組み上げたのは博士研究員の黒田圭司氏であり、したがって本研究は彼との共同研究である。高品質の半導体量子ドットの作製は、同機構の間野高明 (GaAs)、佐久間芳樹 (InAs/InP) 両氏によるものである。富士通研究所の竹本一矢、臼杵達也両氏には、InAs/InP 量子ドットの光学物性に関し有益なご助言をいただいた。迫田和彰、小口信行、木戸義勇、南不二雄各氏には有益な議論をしていただいた。本研究は、その他、多くの方々の協力によってはじめて実現したものであり、ここに深く感謝したい。本研究の一部は、文部科学省科学研究費補助金および科学技術振興機構さがけ研究の援助を受けている。重ねて感謝いたします。

文 献

- 1) K. Kuroda, T. Kuroda, K. Sakoda, K. Watanabe, N. Koguchi and G. Kido: "Excitonic and biexcitonic decoherence in self-assembled GaAs quantum dots as observed by phase-locked interferography," *Appl. Phys. Lett.*, **88** (2006) 124101.
- 2) K. Kuroda, T. Kuroda, K. Sakoda, G. Kido and N. Koguchi: "Interferometric measurement in GaAs single quantum dots: Temperature dependence of exciton decoherence," *J. Lumin.*, **122-123** (2007) 789-791.
- 3) 黒田圭司, 黒田 隆, 迫田和彰, 小口信行, 木戸義勇: "GaAs 量子ドット励起子の単一光子フーリエ分光", *固体物理*, **41** (2006) 919.
- 4) T. Kuroda, Y. Sakuma, K. Sakoda, K. Takemoto and T. Usuki: "Single-photon interferography in InAs/InP quantum dots emitting at 1300 nm wavelength," *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 223113.
- 5) T. Kuroda, Y. Sakuma, K. Sakoda, K. Takemoto and T. Usuki: "Decoherence of single photons from an InAs/InP quantum dot emitting at 1.3 μm wavelength," *Physica E*, in press.
- 6) C. Kammerer, G. Cassabo, C. Voisin, M. Perrin, C. Delalande, P. Roussignol and J. M. Gérard: "Interferometric correlation spectroscopy in single quantum dots," *Appl. Phys. Lett.*, **81** (2002) 2737.
- 7) V. Zwiller, T. Aichele and O. Benson: "Single-photon Fourier spectroscopy of excitons and biexcitons in single quantum dots," *Phys. Rev. B*, **69** (2004) 165307.
- 8) 小口信行, 渡邊克之, 間野高明, 黒田 隆, 迫田和彰: "格子整合系 GaAs/AlGaAs 量子ドットの液滴エピタキシーによる作製と光学特性評価", *応用物理*, **74** (2005) 343-348.
- 9) Y. Sakuma, M. Takeguchi, K. Takemoto, S. Hirose, T. Usuki and N. Yokoyama: "Role of thin InP cap layer and anion exchange reaction on structural and optical properties of InAs quantum dots on InP (001)," *J. Vac. Sci. Technol. B*, **23** (2005) 1741-1746.
- 10) A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabo, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, R. Ferreira and J. M. Gérard: "Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot," *Nat. Phys.*, **2** (2006) 759.
- 11) K. Takemoto, Y. Sakuma, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama, T. Miyazawa, M. Takatsu and Y. Arakawa: "Non-classical photon emission from a single InAs/InP quantum dot in the 1.3 μm optical-fiber band," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43** (2004) L993-L995.
- 12) T. Kuroda, M. Abbarchi, T. Mano, K. Watanabe, M. Yamagiwa, K. Kuroda, K. Sakoda, G. Kido, N. Koguchi, C. Mastrandrea, L. Cavigli, M. Gurioli, Y. Ogawa and F. Minami: "Photon correlation in GaAs self-assembled quantum dots," *Appl. Phys. Express*, **1** (2008) 042001.

(2008 年 6 月 2 日受理)