

修士論文

近接場光顕微鏡による  
量子ドット間の  
単一光子励起移動の観測

2008 年 2 月 4 日 提出

指導教員：大津 元一 教授

東京大学大学院工学系研究科電子工学専攻

66479 田中 俊輔

## 目次

第 1 章. 序論	1
1-1. 研究背景	1
1-2. 研究目的	2
1-3. 本論文の構成	3
第 2 章. 原理	4
2-1. 近接場光	4
2-1-1. 近接場光の古典的描像	4
2-1-2. 量子力学的観点における近接場光	5
2-1-3. 光学禁制遷移	7
2-1-4. AND ゲート	8
2-1-5. 走査型近接場光学顕微鏡	9
2-2. CuCl 量子ドット	11
2-2-1. CuCl 量子薄膜の (2, 1, 1) 準位が光学禁制であること	11
2-2-2. NaCl 中の CuCl 量子ドットの形状	13
2-2-3. ガラス中の CuCl 量子ドットとの比較	14
2-2-4. 実験で利用した CuCl 量子ドットの試料	15
2-3. 単一光子	16
2-3-1. 単一光子源の用途、目的	16
2-3-2. サブポアソン分布とアンチバンチング	16
第 3 章. 研究方針	20
3-1. 実験の概要	20
3-2. 実験系	20
3-2-1. マイクロチャネルプレート (MCP)	22
3-2-2. 時間電圧変換器 (TAC)	23
第 4 章. 実験結果	24
4-1. CuCl 量子ドットのスキャン図	24
4-2. 量子ドットの発光確率の測定	25
4-3. 量子ドットの発光の同時計測	28
第 5 章. 結論と考察	32
5-1. 結論	32
5-1-1. 近接場光学顕微鏡による単一光子の観測	32
5-1-2. エネルギー移動、サブレベル緩和後の量子状態	32
5-2. 考察	33

5-2-1. NaCl 中の CuCl 量子ドットの利点	33
5-2-2. 近接場光相互作用を利用したことの利点	33
第 6 章. 今後行うべき研究	36
6-1. 同一実験によるデータの蓄積	36
6-2. 照明モード (Illumination Mode) による単一光子測定	36
6-3. InAlAs 量子ドットなどによる単一光子測定	37
参考文献	38
本研究に関する発表	39
謝辞	40

# 第 1 章. 序論

## 1-1. 研究背景

将来の情報通信の高速化・大容量化に伴い、光ファイバ通信に用いられる交換機内の光集積回路は、更なる微小化・高集積化を求められている。財団法人光産業技術振興協会の光産業技術ロードマップ(2004 年度改訂版)<sup>[1]</sup>によると、2015 年における海底光ファイバケーブル網の通信速度は 400Tb/s に達すると見込まれている。この高速通信を実現するためには、光機能素子には 10000×10000 の集積化が必要であり、それを満たす光素子 1 つのサイズは 100nm となる(図 1)。

しかし、光には波動性による回折のために波長より小さい寸法ではデバイスを動作させることは不可能と言う理論的限界が知られている。これは回折限界と呼ばれている。よって従来の光デバイスは微細化の限界を持ち、従来の光機能素子を微小化するだけではこの要求に応えることは出来ない。

そこで我々の研究室ではより高度化される社会の要求を満足させるため、従来の光の回折限界に囚われない近接場光と言う局在した光を用いたデバイスの開発を提案している。さらにこの新しい光は既存の光技術にはなかった新しい展開への可能性をも与えている。

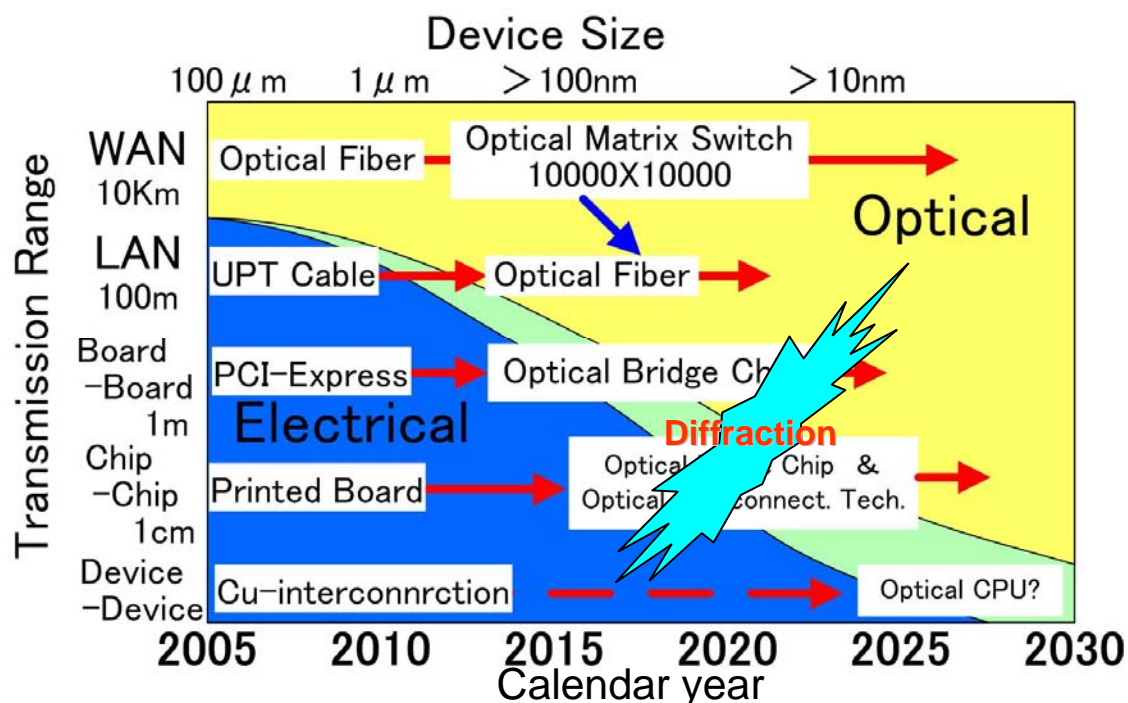


図 1.MIT *Microphotonics Center* : Communications Technology Roadmap 2005

この光機能素子の超高集積化を実現するものとして、ナノフォトニック集積回路(図2)を提案・開発している。これは、量子ドットにより構成され、近接場光によって動作するナノフォトニックデバイスを集積化したものであり、1つの機能素子は近接して配置された2個から数個の量子ドットからなるため、前述の要求に十分応えられるものである。

このようなナノフォトニックデバイスは、信号のキャリアとして量子ドット内に生じた励起子を利用する。励起子が近接場光相互作用によりエネルギー移動、サブレベル間緩和を経た後の励起子の量子状態は未だ確認されていない。

そこで本研究の目的は、励起子が近接場光相互作用を経て量子ドット間を移動した後、どのような量子状態にあるのかを検証することである。

さらに、このような近接場光相互作用を用いた新しいナノフォトニックデバイスの提案を行なっている。

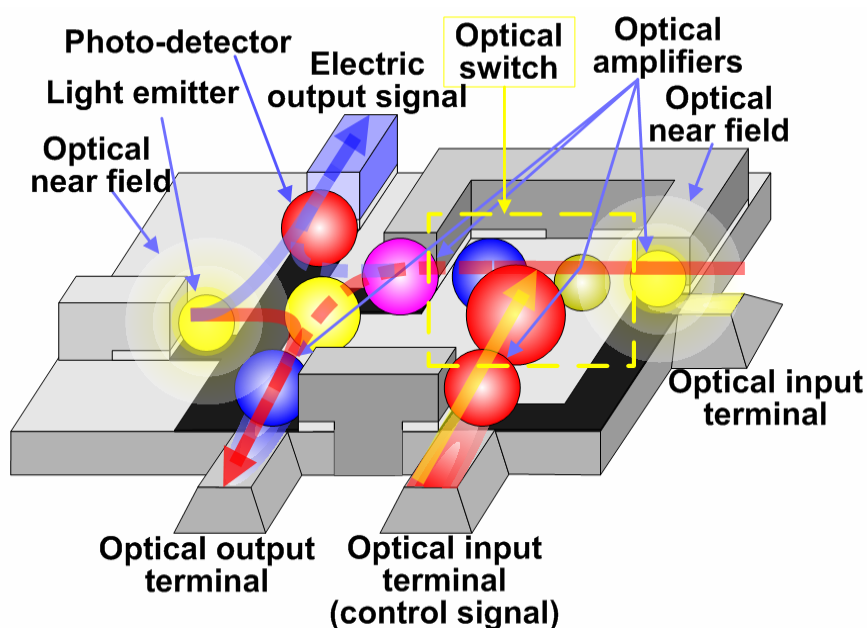


図 2. Nanophotonic Integrated Circuit

## 1-2. 研究目的

ナノフォトニックデバイスは、キャリアとして励起子を利用する。この励起子が信号伝搬過程でどのような量子状態にあるのか、検証した実験は未だない。本論文は、信号伝搬過程にあって励起子が単一光子状態にあることを実証したものである。

一般に、単一光子は分割不可能であるため、同時刻に2つの場所で観測できないとい

う公知事実に基づき、ナノフォトニックスイッチからの出力光が単一光子であるかどうかを検証する。

そのために、Hanbury-Brown and Twiss の干渉計という、出力光を同時に 2 地点で観測する観測法を用いた。そして、ナノフォトニックデバイスの出力エネルギーの強度相関を調べ、ナノフォトニックデバイスの出力光が同時に 2 地点では観測されないこと、すなわち、出力光が単一光子であることを実証した。

そのために測定試料として図 3 のようにサイズ比  $1:\sqrt{2}$  の立方体の CuCl 量子ドットを並べたものをナノフォトニックデバイスと見立て、パルスレーザーで小さい量子ドットを励起し、大きい量子ドットからの発光が単一光子であるかどうかを検証した。

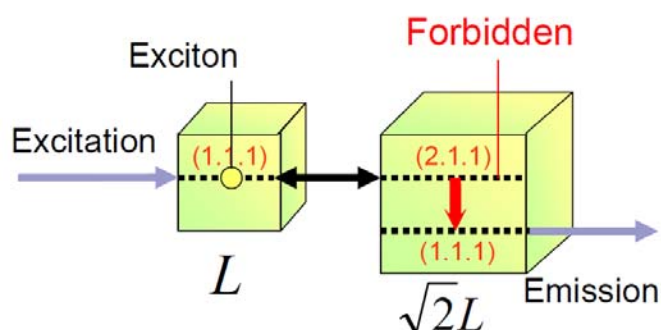


図 3.測定するナノフォトニックスイッチ

### 1-3. 本論文の構成

本論文は全 6 章からなり、第 1 章はこの序論、第 2 章は近接場光、CuCl 量子ドット、単一光子に関する原理、第 3 章は研究方針、第 4 章は実験結果、第 5 章は結論と考察、第 6 章で今後行なうべき研究について述べる。

第 5 章では結論として、近接場光学顕微鏡でも単一光子測定が行なえること、ナノフォトニックデバイスのキャリアが単一光子であることを述べる。

第 5 章の考察では、実験結果に対して CuCl という材料を使ったこと、そして近接場光相互作用を利用したことの利点について仮説を立て、これから他のどのような条件で実験していくべきかに関して第 6 章でまとめている。

## 第 2 章. 原理

この章では近接場光、CuCl 量子ドット、単一光子に関する背景を説明する。

### 2-1. 近接場光

#### ・ 2-1-1. 近接場光の古典的描像

物質に光を照射したときに物質内部に発生する電気双極子から発生する電気力線の一部は表面近くを通り再び物質に戻る(図 4)。これは、伝搬しない光であり近接場光と呼ばれる。近接場光は物質表面の極近傍(物質のサイズ以下)のみに膜のように局在する。もちろん、電気力線の一部は、物質に戻らずに閉じたループを作り、外へ飛んでいく。これが一般に言われる伝搬光である。

近接場光の電磁場としての特徴は、

- ① 非伝搬光で物質表面に局在し、その厚さは物質の寸法程度であること
  - ② その光強度は表面からの距離に従って指数関数的に減衰すること
- である。

従って、ナノ寸法の物質に伝搬光を照射すれば、ナノ寸法の近接場光が発生し、その近接場光を用いることで、光の回折限界を超えた微細な加工や計測が可能となる。そして、上記①②より導かれる近接場光の本質的特長は、局所的に色々な物理保存則が満たされる必要がない(系全体では保存則は保たれる)ことや、その電磁作用が光ではなく、光と物質の素励起の連成波であるポラリトンを介して行われることで起きる新しい物理現象に現れる。代表的なものとして、近接場光による非断熱過程を介したリソグラフィがある。<sup>[2][3]</sup>

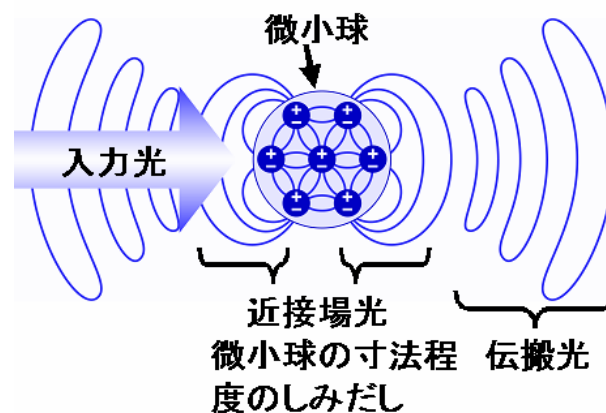


図 4. 近接場光の発生イメージ図<sup>[4]</sup>

## ・ 2-1-2. 量子力学的観点における近接場光<sup>[5]</sup>

近接場光は微小な物体の表面に発生するものであるが、この微小系は実際には、ファイバークローブや基板などの巨視系の中に含まれている。

近接場光は、古典的には微小物体内の双極子として電磁気学を用いて扱われる。

しかし、これを量子力学で扱うことによって近接場光によって媒介される微小物体間の共鳴的な相互作用、プローブと原子との相互作用を扱うことが可能となる。

量子論的な議論については、概念的には以下のようなものである。

まず、量子ドットなどからなる微小系を（n）とし、その周りに存在するファイバークローブや基板などの巨視系を（M）とする。

ここでわれわれが扱いたいのは量子ドットと量子ドットの間のエネルギーのやり取りなど、系（n）と系（n）間の相互作用である。

しかし、現実には微小系（n）と巨視系（M）間での相互作用も存在するのである。この（n）と（M）の相互作用を考える代わりに、微小系（n）が単独で存在し、その要素間に巨視系（M）の影響を取り込んだ有効相互作用を考えるのである。

この理論を用いると、例えば、始状態においてプローブpは基底状態、試料sは励起状態にあるような場合のプローブと試料の間の有効相互作用は

$$V_{eff}(ps) \propto \frac{\exp(-\frac{\pi\mu_s r}{a_s})}{r} + \frac{\exp(\frac{i\pi\mu_p r}{a_p})}{r} \dots (1)$$

$a_p$  : プローブの寸法,       $a_s$  : 試料の寸法

$\mu_p$  : プローブの透磁率       $\mu_s$  : 試料の透磁率

と表現される。

第一項は湯川関数と呼ばれるもので、プローブの大きさに応じて電磁場が減衰する。

これは光の電磁場がプローブの近傍にプローブの大きさに応じて存在することを意味する。これが近接場光に対応し、プローブを核にした「雲」のように局在した光の場が存在しているとも言える。

また第1項は基底状態のプローブがエネルギー固有値  $\hbar\Omega(k)$  を持つ励起子ポラリトンの量子を1個放出し、励起状態の試料に吸収される過程に対応している。

これは非共鳴過程に対応する。エネルギーの授受が保存則を満たしていないことためである(図5)。

また、第2項は分子に虚数単位  $i$  があるので、これは伝搬光に対応し、励起状態の試料が励起子ポラリトンを放出し基底状態のプローブに吸収される共鳴過程を表している。なぜなら、相互作用によるエネルギーの授受が保存則を満たさうからである。



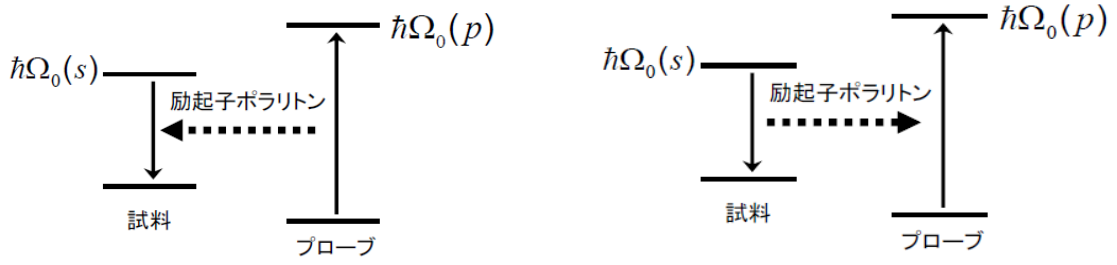


図 5. 励起子ポラリトンを介した非共鳴準位間の遷移

しかし、いずれの場合もエネルギー保存則を満たさない粒子、つまり仮想粒子を媒介とする仮想遷移の過程であることに注意する必要がある。なぜなら、このような仮想遷移の過程は古典論にない量子力学特有の現象であり、不確定性原理  $\Delta E \Delta t > \hbar/2$  を満たすような短い時間においてのみ可能となるからである。

ところで、式(1)では

- ① 始状態においてプローブpは基底状態、試料sは励起状態にあるような場合のみ考えているが
- ② 始状態においてプローブpは励起状態、試料sは基底状態にあるような場合も含めて考えると、有効相互作用は

$$V_{eff}(ps) \propto \frac{\exp(-\frac{\pi\mu_s r}{a_s})}{r} + \frac{\exp(\frac{i\pi\mu_p r}{a_p})}{r} + \frac{\exp(-\frac{\pi\mu_p r}{a_p})}{r} + \frac{\exp(\frac{i\pi\mu_s r}{a_s})}{r} \dots (2)$$

となる。

第1項と第3項はともに湯川関数であらわされるので、**湯川ポテンシャル**と呼ばれている。これらは  $r$  の増加と共に急激に減少するので近接場光に対応している。

一方、第2項と第4項は虚数単位  $i$  があるので、これは伝搬光に対応する。

つまり、2つの微粒子の周囲には伝搬光（散乱光）と共に近接場光が発生していることを意味している。

ここでは、ナノメートル寸法のプローブ、試料を想定して、それぞれが孤立している場合のハミルトニアンを用いて、試料とプローブの間の有効相互作用の大きさを表現したが、試料として原子(気体)、分子、あるいは人工原子としての量子ドットに対しても、同様に有効相互作用は湯川関数の和として表現できる。すなわち、この湯川ポテンシャルによるモデルで原子からナノメートル寸法の試料を同一の枠組みで統一的に扱うことができる。

### ・ 2-1-3. 光学禁制遷移

ここでは量子力学における準位間の遷移について述べる。

後に記すCuCl量子ドットは、立方体形状の量子ドットを形成するが、この立方体量子ドット中のいくつかのエネルギー準位は伝搬光では励起できないと考えられている

しかし、近接場光を利用すると、伝搬光では通常遷移不可能と考えられている双極子禁制遷移が可能となる。

例として1次元に束縛されている電子を考える。その電子がある光を吸収し、基底状態から励起状態に遷移する確率  $A$  は、電磁場のハミルトニアンを  $P$  として

$$A \propto \left| \int_{-l/2}^{l/2} \langle \psi_n | P | \psi_g \rangle dx \right|^2 \dots\dots(3)$$

$\psi_n$  : 励起状態       $\psi_g$  : 基底状態

である。(微小物質の大きさ  $L$ )  $\ll$  (波長  $\lambda$ ) であることから伝搬光における  $P$  は一定とみなせる。まず基底状態が境界内で、偶関数型の形状をしていたとする。(2) 式に代入すると  $P$  と  $\psi_g$  が偶関数であるため、

$$\begin{aligned} \psi_e = \text{奇関数} &\rightarrow A = 0 \\ \psi_e = \text{偶関数} &\rightarrow A \neq 0 \end{aligned} \quad \text{である。}$$

これがいわゆる光学禁制である。しかし、近接場光においては  $P$  が湯川関数型のポテンシャルをしており、光学禁制とはならない。古典的に考えると、図6の(2,1,1)準位は、電場の勾配がほぼ0に等しい伝搬光では禁制遷移だが、物質サイズで電場が減衰するため近接場光では励起可能である。[6]

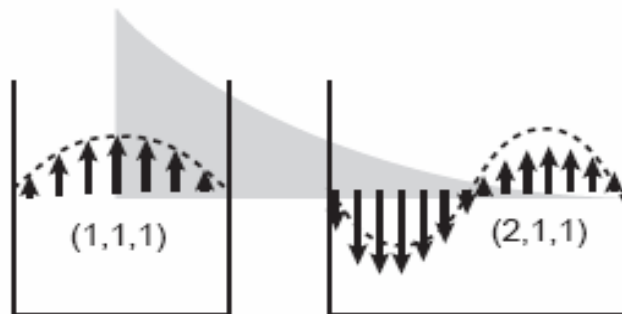


図6. 近接場光による禁制遷移の励起

## ・ 2-1-4. ANDゲート<sup>[7]</sup>

近接場光を利用した代表的なナノフォトニックデバイスとしてANDゲートがある。

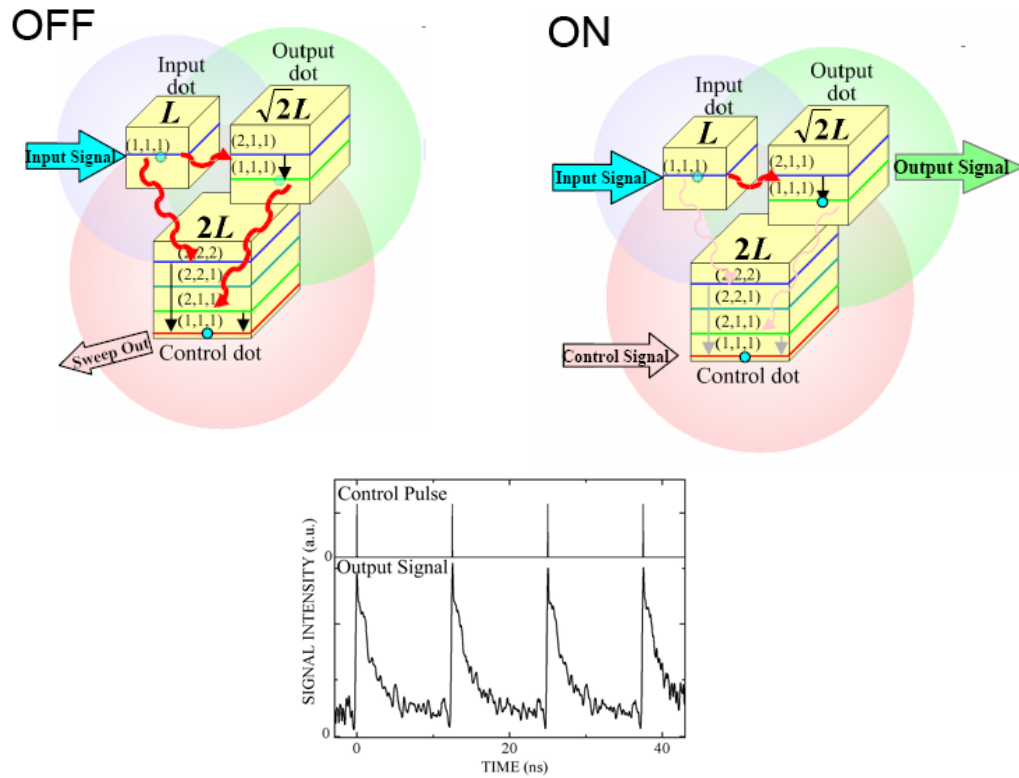


図7. ANDゲートの概念図と実験結果

サイズ比 $1:\sqrt{2}:2$ の量子ドットを図7のように数 nm 間隔で並べる。以下、大きさ $L$ のドットを「入力ドット」、大きさ $\sqrt{2}L$ のドットを「出力ドット」、大きさ $2L$ のドットを「制御ドット」と呼ぶ。

入力ドットの $(1, 1, 1)$ 準位と、出力ドットの $(2, 1, 1)$ 準位と、制御ドットの $(2, 2, 2)$ 準位は共鳴しているため、励起子が3つの量子ドット間をエネルギー移動することができる。また、出力ドットの $(1, 1, 1)$ 準位と、制御ドットの $(2, 1, 1)$ 準位は共鳴している。

### (1) エネルギーの進行方向の確定

共鳴している準位間を近接場光相互作用により励起子が移動し信号を伝送することが可能であるが、このままでは共鳴準位間に章動が生じ逆方向に励起子が移動し信号の一方性が保証されない。そのために同一ドット内の励起子と格子の相互作用による緩和過程を利用している。この過程は図7の同一ドット内の高準位から低準位へ励起子がフォノンによって遷移する過程である。

## (2) 出力エネルギーの制御

スイッチの ON 状態と OFF 状態を決定するために、大きさ  $2L$  の制御ドットに制御光を加える。

制御光を入れない場合、励起子は 3 つの量子ドットのいずれに対してもエネルギー移動が可能であるが、時間とともに低エネルギー側へ緩和し、最終的には最も低い大きさ  $2L$  の量子ドットの  $(1, 1, 1)$  準位から発光する。これが OFF 状態である。

これに対して、制御光を大きさ  $2L$  の量子ドットの  $(1, 1, 1)$  準位に入力することで、大きさ  $2L$  の量子ドットの準位が入力された励起子のクーロン反発力によりシフトする。そのため大きさ  $2L$  の量子ドットに対しては、入力光により生成された励起子はエネルギー移動できなくなる。結果、入力光により生成された励起子は緩和後  $\sqrt{2}L$  のドットの  $(1, 1, 1)$  準位から発光する。これが ON 状態である。

結果として、OFF 状態と ON 状態で放出される光のエネルギーが異なり、信号を制御可能である。

### ・ 2-1-5. 走査型近接場光学顕微鏡<sup>[8]</sup>

古典光学に基づく光学顕微鏡の空間分解能は、光の波長の  $1/2$  程度までに制限されている（回折限界）。つまり従来の顕微鏡では  $300\text{ nm}$  以下の分解能は得られないことになる。この回折限界を超えるべく開発されたのが走査型近接場光学顕微鏡（SNOM、しばしば NSOM とも呼ばれる）である。SNOM は先端を尖鋭化した光ファイバーをプローブとして用いる走査プローブ顕微鏡の一種である。プローブの先端には直径にして  $100\text{ nm}$  以下のピンホールが設けられている。波長以下の開口から近接場光が発生する。この場合、近接場光は遠方へは伝播せず開口近傍にのみ存在している。このプローブを試料に接近させることで、波長以下の微小な領域のみを照明し、試料からの散乱光や蛍光を検出する。これを逐次位置を変えながら行うことで、高分解能で顕微鏡画像を得ることができる。

SNOM 最大の特徴は、“光”をプローブとして使用しているため、ナノスケールでの光学観測が可能な点である。近接場光を用いた高い分解能での種々の分光分析（蛍光分光やラマン分光、あるいは時間分解測定）を行うことで、「そこに何があるのか」を直接知ることができる。さらに、その測定は大気中で非破壊的に行うことが可能である。この特長は、特に有機材料や生体材料の構造観察に大きな利点となる。本論文で扱う  $\text{NaCl/CuCl}$  は塩の結晶であるために、その中の単一量子ドットを観測するためには近接場光学顕微鏡を利用することが適している。

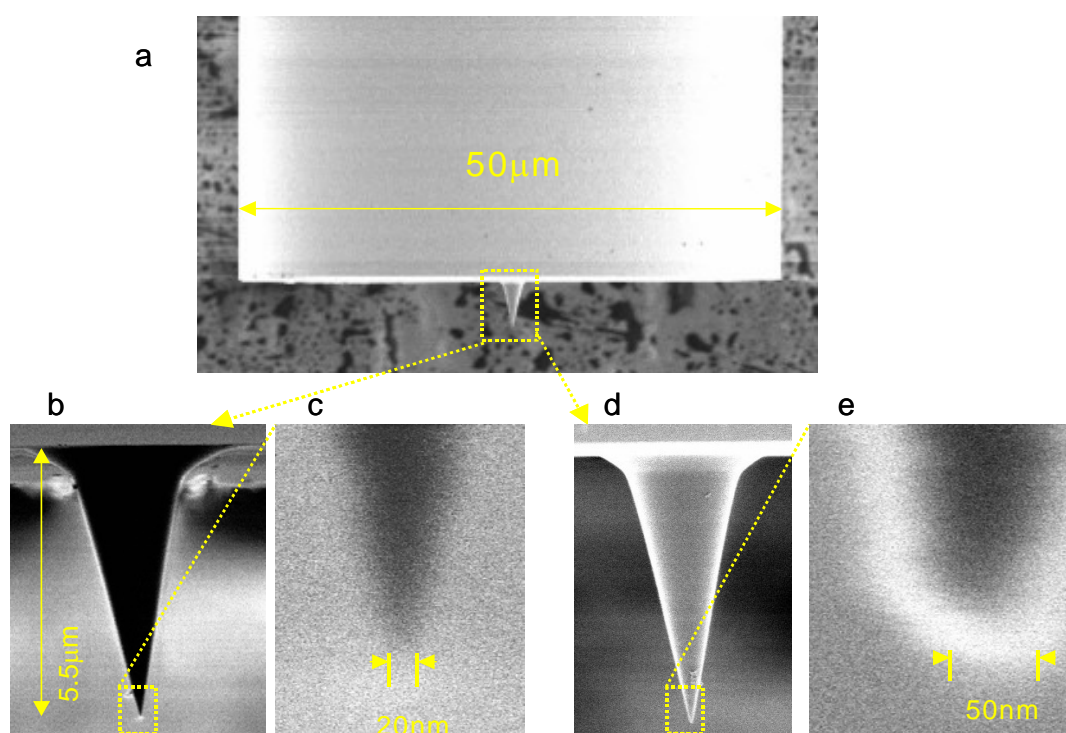


図 8．S N O M の先端の形状

図 8 は近接場光ファイバプローブの先端の S E M 像である。エッチングによって先端が尖っており、先端と測定試料とが近接場光相互作用を起こす。先端のアパーチャーのサイズにより分解能が異なり、本論文では 30～40nm のものを利用した。

また、通常は先端を金やアルミでコートすることにより伝搬光の影響を排除する。

## ・ 2-2. CuCl 量子ドット

本論文では測定サンプルとして NaCl 中の CuCl を利用しているため、その性質について述べる。

近年量子ドットの物性の研究において、NaCl 結晶中に CuCl を成長させた量子ドットが利用されている。NaCl 中の CuCl 量子ドットは結晶の成長方法は NaCl と平行であり、CuCl 量子ドットは CuCl の格子定数を  $a$  ( $\approx 0.54\text{nm}$ ) とすると、長さ  $a/2$  ずつ成長することが知られている。このため、CuCl 量子ドットは欠陥準位などの少ない、非常にきれいな立方体量子ドットとなることが知られている。

そして、立方体の量子ドットの (2, 1, 1) 準位が光学禁制であることは量子力学的な計算から求めることが可能である。

実際に CuCl 薄膜に関しては (2, 1, 1) 準位は光学禁制であり、伝搬光により励起不可能であることが実験により証明されている。以下でその実験結果をグラフと共に引用し、実験に用いた試料が条件を満たしていることを示す。

### ・ 2-2-1. CuCl 量子薄膜の (2, 1, 1) 準位が光学禁制であること<sup>[9]</sup>

図 9 は CuCl 薄膜の透過スペクトルである。この CuCl 薄膜は MBE (molecular beam epitaxy) で MgO(001) 基板の上で (111) 方向に成長している。吸収スペクトルを計測したときの光源は 150W のキセノンランプを使用している。図はそれぞれ異なったサイズの薄膜の透過スペクトルであって、(a)  $157 \pm 15 \text{ \AA}$  (b)  $124 \pm 15 \text{ \AA}$  (c)  $97 \pm 15 \text{ \AA}$  のサイズを表している。点線は横方向励起子、細い実線はポラリトンの分散曲線を表している。

また、白い丸は量子化された励起子準位  $K_n = n\pi/L$  ( $n=1, 2, 3, \dots$ ) に対応しており、(a) (b) (c) いずれも  $n = 1, 3, 5$  に対応する部分に吸収スペクトルに窪みがあることがわかる。

このことは  $n$  が奇数となっているエネルギー準位に対しては吸収があり、量子薄膜中に励起子が生成されることを示している。これに対して、 $n = 2, 4, 6$  のエネルギー準位に対しては吸収がない。つまり励起子が生成されていない。

この結果は、薄膜のサイズが光の波長程度では観測されず<sup>[10]</sup>、薄膜のサイズが波長よりもはるかに小さい領域で観測される。

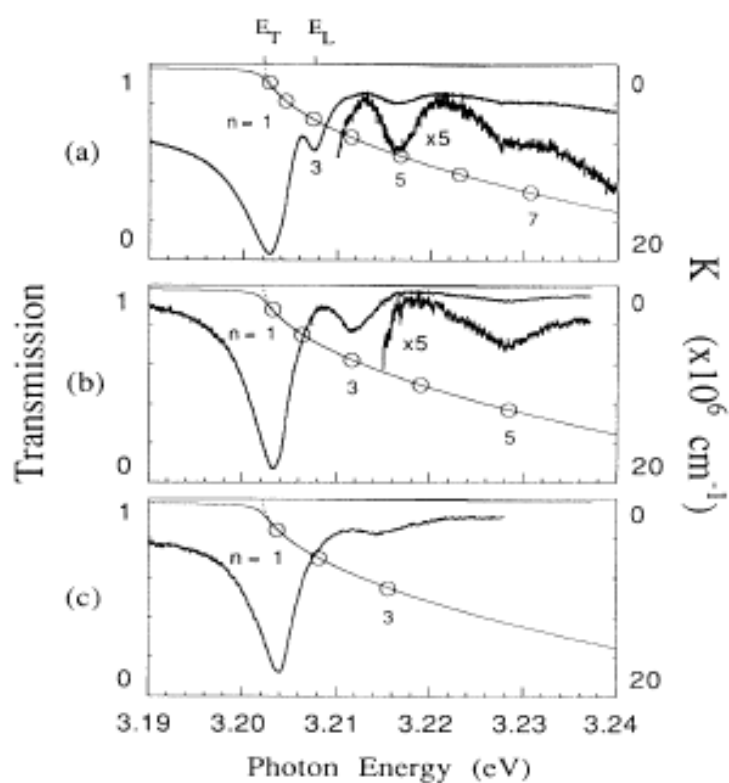


図 9. 薄膜の透過スペクトル

CuCl のエネルギー準位のうち、 $n$  が偶数である準位を励起できないことは、理論的にも研究されており<sup>[11]</sup>、このようなことから CuCl の光学禁制は議論されている。

また、同じサンプルの発光スペクトルは図 10 のようになる。点線が理論値であり、実線が実験値である。透過スペクトルと同様に  $n$  が奇数である準位からの励起子発光は観測されるが、偶数である準位からの発光は観測されない。

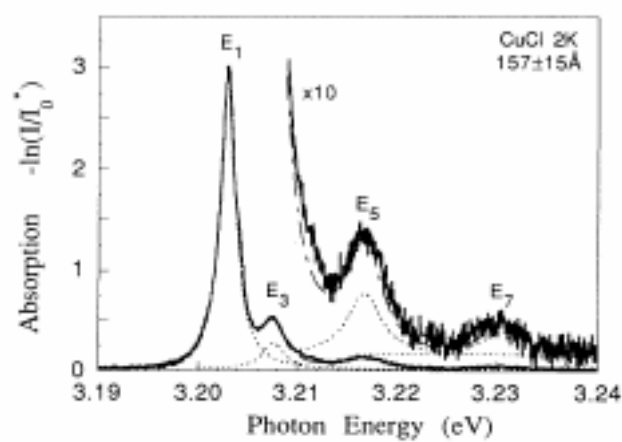


図 10. 薄膜の発光スペクトル

このように吸収、発光共に  $n$  が偶数である準位が関与しないことは、量子ドットでも同様であると考えられ、前述のナノフォトニクススイッチの (1, 1, 1) 準位には励起子が生成されるが、(2, 1, 1) 準位を通常の光で励起することは不可能であると考えられている。

## ・ 2-2-2. NaCl 中の CuCl 量子ドットの形状<sup>[12]</sup>

NaCl 中の CuCl 量子ドットは  $a/2$  ごとに成長するといわれている。加えて NaCl 中の CuCl 量子ドットが立方体形状をしているといわれている。

図 11 では NaCl 中の CuCl 量子ドットの吸収スペクトルを示している。どちらの図も同じ吸収スペクトルを表している。どちらも NaCl のバリア層の高さを無限大と仮定してエネルギー準位を計算している。図 11 左の縦線は量子ドットの形状が立方体であると仮定して

$$E_{n_x, n_y, n_z} = E_B + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2M(L - a_B)^2} (n_x^2 + n_y^2 + n_z^2) \cdots \cdots (4)$$

と計算したときの (1, 1, 1) 準位をプロットしたものであり、図 11 右の縦線は量子ドットの形状が球状であると仮定して、

$$E_{n,l} = E_B + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2M(R - a_B/2)^2} \xi_{n,l}^2 \cdots \cdots (5)$$

と計算したときの (1, 1, 1) 準位をプロットしている。

$E_B$  : バルクの  $Z_3$  励起子のエネルギー (3. 2022eV)       $M$  : 励起子の並進運動質量

$a_B$  : ボーア半径 (0. 68nm)       $n_x, n_y, n_z$  : 1, 2, 3...

$L$  : 量子ドットの一辺の長さ       $R$  : 量子ドットの半径

3. 25eV 以下の領域においては図 11 左の縦線は吸収スペクトルのピークが一致しているが、3. 25eV 以上の領域においては左、右両方ともに縦線と吸収スペクトルのピークが一致していない。3. 25eV 以上の領域では (2, 1, 1) 準位が吸収スペクトルのピークと一致しているのではないかと考えられている。

図 11 の 3. 25eV 以下の領域のピークに対して □、△、◆、■、▲ はそれぞれサイズの異なる量子ドットの発光であると仮定し、それぞれの (2, 1, 1) 準位に対応するエネルギーを計算し、図 11 にプロットすると、3. 25eV 以上の領域で (2, 1, 1) 準位が吸収スペクトルのピークとほぼ一致する。



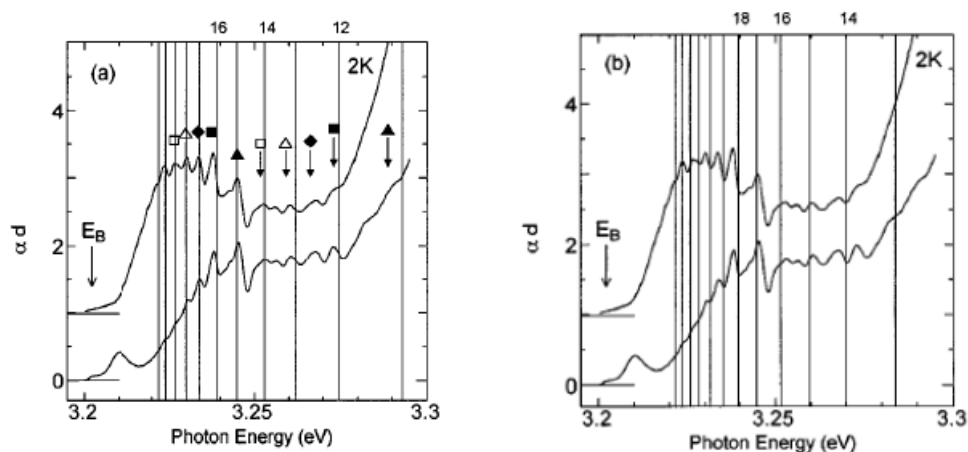
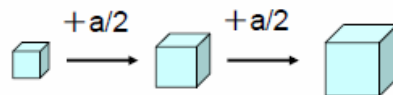


図 11. 吸収スペクトルとエネルギー準位の一致

したがって、スペクトルの結果から量子ドットが立方体形状をしており、その成長が図 12 のように  $a/2$  ごとであると考えればスペクトルと一致する結果が得られる。

また、音響フォノンのエネルギーから立方体形状をしていることを支持する実験結果があり<sup>[13]</sup>、CuCl の結晶成長の方向性が NaCl 結晶の格子と平行であることも確かめられている<sup>[14]</sup>。



### ・ 2-2-3. ガラス中の CuCl 量子ドットとの比較<sup>[15]</sup>

NaCl 中の CuCl 量子ドットと比べ、ガラス中で成長された CuCl 量子ドットは吸収スペクトルに細かいピークが見られない。図 13 はガラス中の CuCl 量子ドットと NaCl 中の CuCl 量子ドットの吸収スペクトルを示している。ここで示されているのは、同じ CuCl の吸収スペクトルであったとしても、NaCl 中の CuCl は吸収曲線の中に小さなピークがいくつも見られ、これは CuCl 量子ドットが格子定数の半分ごとに成長することを示している。これに対してガラス中の CuCl 量子ドットはこのような微細ピークは見られない。

これはバリアの高さが異なるため、励起子の閉じ込めがガラスよりも NaCl のほうが強いことに起因している。つまり、バルクの CuCl の  $Z_3$  励起子の最低準位が 3.2eV であ

るのに対し、NaCl のバリアの高さは 8eV ほどあり、ほとんど励起子の閉じ込めが非常に強いことに対し、ガラスではこれほどバリアが高くないことが考えられている。

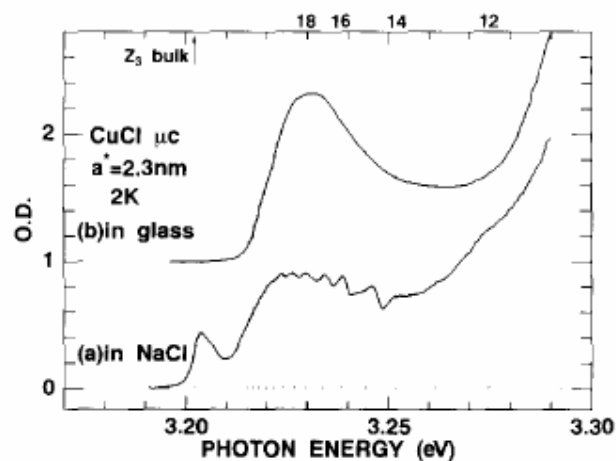


図 13. NaCl 中とガラス中の吸収スペクトル

#### ・ 2-2-4. 実験で利用した CuCl 量子ドットの試料

前述のように段階的に成長した CuCl 量子ドットは吸収スペクトルに細かいピークが見られるが、本論文で実験に用いた試料の吸収スペクトルと発光スペクトルは図 14 のようにあった。したがって、立方体の量子ドットで  $a/2$  ( $a$ : 格子定数) ごとに成長した試料が使われていることがわかる。また (2, 1, 1) 準位が光学禁制であることも予想される。

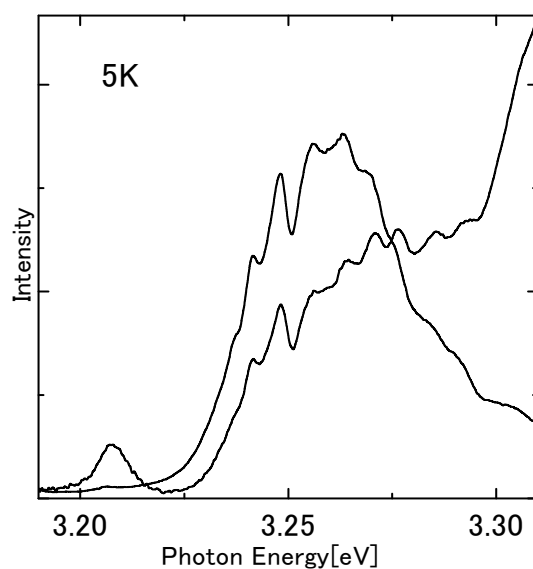


図 14 実験に使用した CuCl 量子ドットの発光と吸収

## ・ 2-3. 単一光子

本論文は、ナノフォトニックデバイスの出力が単一光子であることを確認するものであるため、単一光子の性質について述べ、併せて単一光子の測定法について述べる。

### ・ 2-3-1. 単一光子源の用途、目的

近年、単一光子源が主に量子コンピュータ、量子情報通信の分野にて研究されている。

近年研究されている量子情報通信では、計算能力に依存せず、物理法則によって盗聴自体を検知できる量子暗号が注目されている。量子暗号は一つの光子、または少数の光子にデータを暗号化する鍵を乗せる。単一光子をコピーするために観測を行えば必ずその量子状態に痕跡が残り、量子暗号によって安全に暗号鍵を配布することが可能になる。そして、量子暗号により決定された通信経路を利用して、古典的な通信を行うことにより、秘密裏に通信網の決定が行える。

そこでは単一光子を通常のレーザーでは、出力光に真空場揺らぎが増幅された成分が含まれているために、光子数を1に厳密に制限した状態を作ることが難しく光子数はポアソン分布の状態にある。それに対して単一光子源からは光子数が1に制限された光が出力される。これに対して不確定性原理より位相は完全にランダムになっている<sup>[16]</sup>。

### ・ 2-3-2. サブポアソン分布とアンチバンチング<sup>[17]</sup>

単一光子状態であるかどうかを確かめるためには、光を統計的に処理し解析する。

光の統計性を調べるもっとも標準的な方法は、光子数分布の測定である。実際には光電効果を利用した光電検出器を用いて光電子数分布を測定する。

したがって、測定結果には光子の統計性に加えて、光電子放出の統計性も現われる。光を古典的粒子像によって考えると、光の入射強度が一定のときは、光電子数分布はポアソン分布となり、揺らぎがあると、ポアソン分布より広い幅の分布（スーパーポアソン分布）となる。ところが量子論を用いて交換関係を取り入れると、ポアソン分布より狭い幅の分布（サブポアソン分布）も現われる。これは古典的粒子像では許されない分布であるので非古典的といわれる。

#### (1) ポアソン分布とサブポアソン分布

現実には、十分閾値より高いポンピングの元で発振するレーザー光（コヒーレント光）がポアソン分布の状態にあり、光子数揺らぎの分散 $(\Delta n)^2$ が平均光子数 $\bar{n}$ に等しい。

この光を光子列によって表すと図 15 のように表すことができる。アテネーターを用いて光強度を弱めたとしても、光の分布の状態は変わらないため、光子数が 1 のときもあれば、光子数が 0 や 2 のような場合が生じ、ばらつきがある。

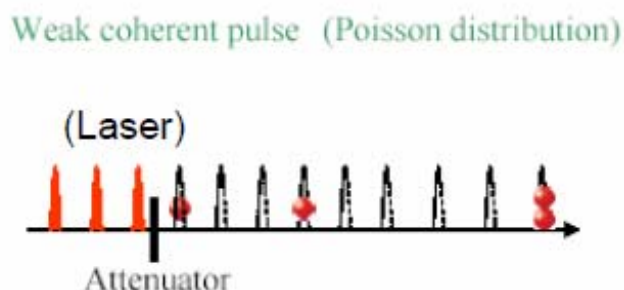


図 15. コヒーレントパルス (ポアソン分布)

これに対して、光子数揺らぎをポアソン分布の状態よりも小さくしたものをサブポアソン分布という。単一光子状態は、サブポアソン分布の中の一つであるといえる。

現実には、量子ドットや単一原子、単一分子、クーロンブロックードを利用したターンスタイルデバイスなどを用いてサブポアソン分布の光は生成される。

また、非線形効果を用いて光ビームを自己制御する方法や、光ビームを検出して、外部回路からの負帰還により光源を制御する方法などを用いて、完全な単一光子状態ではないものの、サブポアソン分布にある光を生成することもできる。

これを光子列で表すと図 16 のようになり、いつこの光を検出しても必ず 1 つの光子が検出される<sup>[18]</sup>。

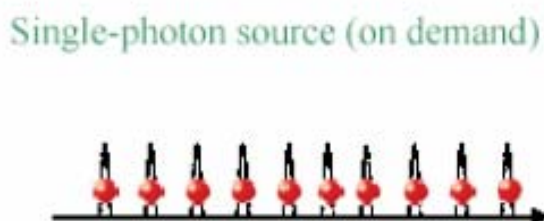


図 16. 単一光子 (サブポアソン分布)

## (2) 光の同時計測とアンチバンチング

光のエネルギーの揺らぎを計測するためには、2 つの検出器で光を検出した後電流に変換し、その後で電流の間で干渉を取ればよい。こうすることで光自体の干渉を取るこ

との困難さを回避することができる。

光を検出することにより位相情報が失われてしまうので、干渉計として機能しないようにも思われるが、信号がゆらいでいる場合には、ゆらぎ(強度)が波動として伝わってくるので、一定の情報を引き出すことができる。この実験は光を統計的に扱ったり、さらには量子的なゆらぎを定式化する点で重要なものである。

同時計測実験を行う際に検出する光は、コヒーレント光、インコヒーレント光、単一光子のいずれでも良いが、それぞれの光強度の揺らぎの大きさにより、統計結果が異なる。ここで、強度相関について説明する。強度相関は、時刻 $t$ における電場強度 $I(t)$ と時刻 $t+\tau$ における $I(t+\tau)$ の積を測定するものである。電磁場を波動として扱う場合には、 $0 \leq [I(t) - I(t+\tau)]^2$ という関係式より、 $\langle I^2(t) \rangle \geq \langle I(t)I(t+\tau) \rangle$ が要求される。光を波として考えると、ある光子の周りには多くの光子が存在するからである。ただし、古典論の場合 $\langle \dots \rangle$ は、統計的な平均を意味する。

光のアンチバンチング現象は、 $\langle I^2(t) \rangle < \langle I(t)I(t+\tau) \rangle$ となる現象である。これは、光の古典論では説明のできない現象で、光を波動と考えるのではなく、光を粒と考えると良く理解できる。輻射場が光子から成り立っていると考えると、 $\langle I(t)I(t+\tau) \rangle$ の測定は、時刻 $t$ に1個の光子を、時刻 $t+\tau$ にもう1個別の光子を検出する結合確率密度の測定である。1個の光子を検出したとき、その近くにもう1個別の光子を検出する確率が小さくなっている場合には、 $\tau$ が小さいほど強度相関の値も小さくなり、アンチバンチング(光の側に他の光がない状態)が観測される。

量子ドットからの発光では、励起準位から遷移し光子を1個放出した後、原子は基底準位に戻ってしまうので、再び励起準位に戻るまではもう1個別の光子を放出することができない、つまり時間的に近接した2つの光子の存在する確率が小さくなり、アンチバンチングが観測される<sup>[19]</sup>。

図17上のように周期的なコヒーレントパルス光(実験では80MHzのレーザー)をハーフミラー、もしくは3dBカップラーで2分割し、検出器(ここではMCP)で光を検出する。図17では80MHz(パルス間隔12.5ns)で光を検出するため、 $\tau=0$ では同じパルスとの強度相関を測定することになり、 $\tau \neq 0$ では別のパルスとの強度相関を測定することになる。

コヒーレント光は非常にたくさんの光子が波を形成している状態と考えることができるので、2つの検出器で光を検出した時間差 $\tau=0$ のときであってもMCP\_\_AとMCP\_\_Bで光子を同時に計測することができる。

しかし、単一光子は波よりもむしろ粒子として振る舞い、同時刻に2箇所では観測されない。そのため理想的には $\tau=0$ のときに強度相関が0となる。

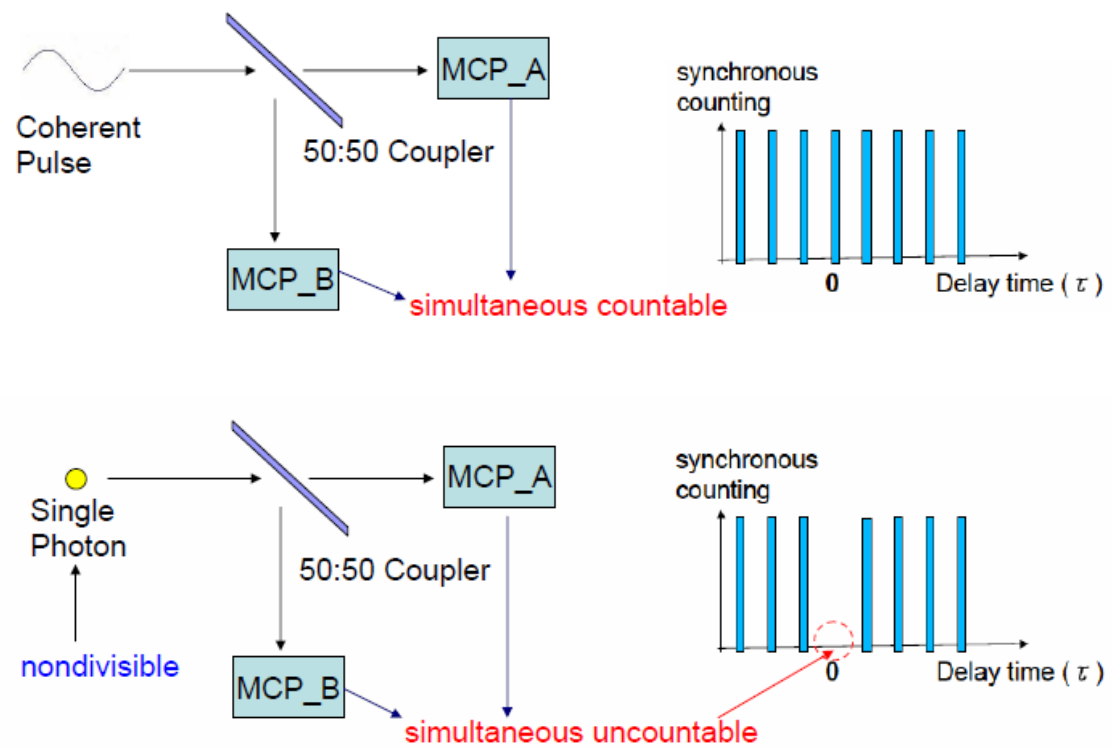


図 17. 同時計測実験の結果  
 上：コヒーレント光 下：単一光子

## 第 3 章. 研究方針

### ・ 3-1. 実験の概要

本研究の目的は、CuCl 量子ドットの発光を走査型近接場光学顕微鏡で集光し(図 18)、集光した光の状態が、単一光子状態にあるかどうか検証することにある。SNOM を単一光子測定に用いる実験は初めての試みである。

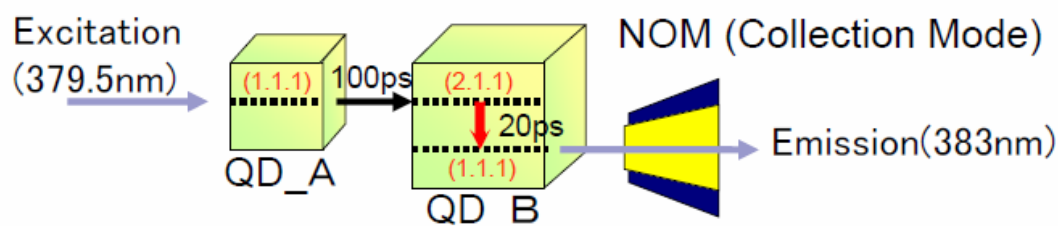


図 18. 実験の概念図

測定試料は NaCl 中の CuCl 量子ドットを利用し近接場光学顕微鏡により量子ドットの分布を測定した後、大きい量子ドットの(1,1,1)準位からの発光(383nm)が強く見える領域にファイバースコープを固定し、Hanbury Brown と Twiss の強度干渉計<sup>[20]</sup>を構成して量子状態を調べる。これは AND ゲート、NOT ゲートなどの励起子のエネルギー移動を利用したデバイスの出力の量子状態を調べることにほぼ等価である。

### ・ 3-2. 実験系

本実験では図 19 のような実験系を構成した。励起光として Ti:Sa レーザーの二次高調波を用いた。波長 379.5nm、繰り返し周波数 80MHz、パルス幅 10ps 程度のピコ秒レーザーである。この励起光を 15K に冷却した NaCl 中の CuCl 量子ドットに照射し、集光モードで近接場光学顕微鏡により光を集光する。

ファイバースコープの先端のアパーチャーは 30nm~40nm 程度のものを使い、先端はアルミコートされており、伝搬光の影響は除去されている。図 20 は実験で用いたファイバースコープであり、プリズムの上ののっている NaCl 試料に近づけて発光を取る。集光された光は 383nm のバンドパスフィルターを通すことで、励起光などの影響をカットし、エネルギー移動を経た後の大きい量子ドットの(1, 1, 1)準位からの発光のみを通す。その後 50:50 カップラーに接続し 2 分割する。2 つの MCP (マイクロチャンネルプレート) で検出し、2 つの出力の時間差を TAC (時間電圧変換器) を用いて、時間相関を測定する。片方の MCP

Pには電気配線にて 65ns の遅延を与えている。図 21 が実験における電気配線による遅延である。

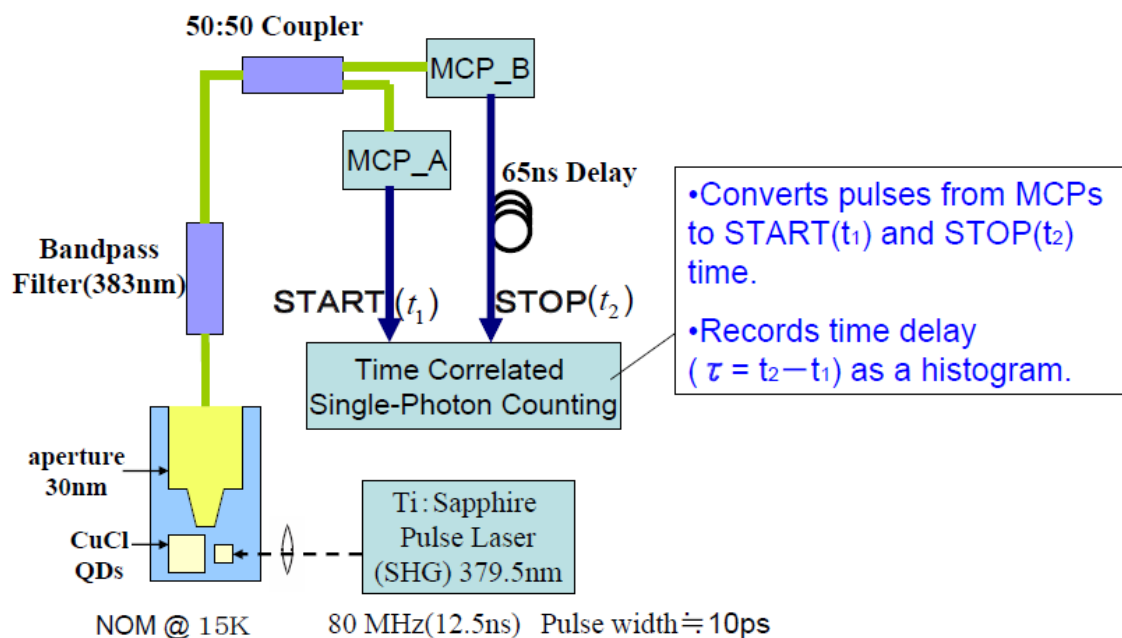


図 19. Hanbury Brown と Twiss の強度干渉計

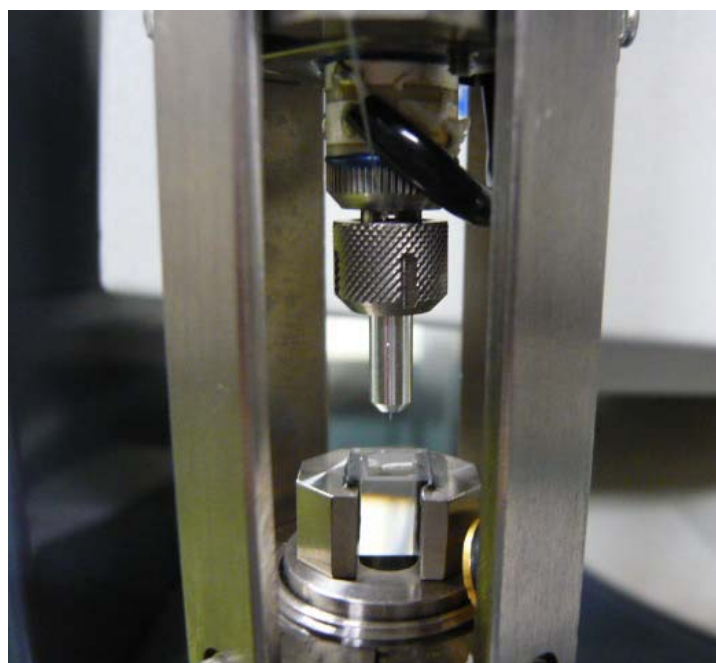


図 20. ファイバープローブと試料



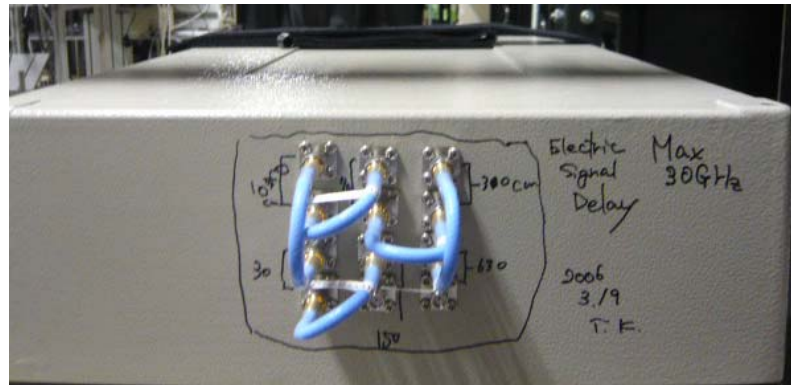


図 21. 電気配線による遅延

### 3-2-1. マイクロチャネルプレート(MCP)

ミクロンサイズの円筒形の電子増倍素子を、隣接して配置したプレートをいう。プレートの表面から見ると、厚さ約 0.5mm の円形のガラス板（直径～10mm）に、内径約 10 ミクロンの穴状のチャンネルが蜂の巣状に設けられている。プレートの表面と裏面は金属でコーティングされ、それぞれ入力側電極（陰極）、出力側電極（陽極）となっている。電極間に電圧を印加すると、入力側電極に入射した電子はチャンネル内壁に衝突し、複数の二次電子を放出する。

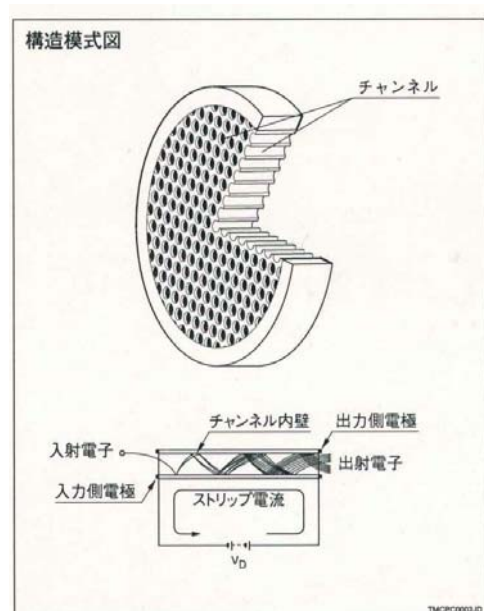
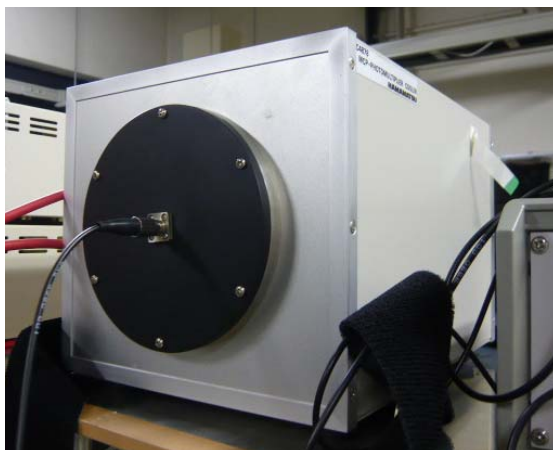


図 22. マイクロチャネルプレート

これらの二次電子はチャンネル内の電界により加速され、チャンネルの（トッタ）内壁への衝突を繰り返して、増倍された電子流が出力側電極で取り出され、増幅された電気信号となる。電子だけでなく、イオン、X 線などにも感度があることから、これらの検出素子としても利用されている。立ち上がり、立下り時間共に数百 ps 程度である<sup>[21]</sup>。

図 22 左が実験に使用したマイクロチャンネルプレートであり、図 22 右がマイクロチャンネルプレートの模式図と、検出において電子が増幅されていく様子の模式図である。

### 3-2-2. 時間電圧変換器（TAC）

スタート信号を受けてから、ある一定の時間の後、定電流源によってタイミングコンデンサーが時間に比例して充電される。充電はストップパルスを受けることによって停止され(ストップ1)、コンデンサーの最終電荷に対応した振幅の出力パルスが発生する。それゆえ、出力パルス波高はスタートとストップパルス間の時間差に比例する。TAC 範囲と呼ばれる時間が経過してもストップパルスを受けなければ、充電は自動的に停止される(ストップ2)。コンデンサーがリセットされるまでには再びある一定時間が必要で、その時間が経過して初めて装置は次のスタートパルスの受け入れが可能となる。

そして、時間相関単一光子測定(TCSPC)とはTACによって測定した時間差をアナログ-デジタルコンバータ(ADC)で変換し、これを反復測定してヒストグラム化することである。1 回の励起/発光サイクルにおけるフォトン検出率を低く抑えられれば、多数のサイクルを終了した後で単一光子の強度相関を再現できる。TCSPC装置の中核機能は、デジタル読出し機能付きのいわば超高速ストップウォッチとみなすことができ、このストップウォッチは1パルスでスタートし、別の1パルスでストップする。

## 第 4 章. 実験結果

### 4-1. CuCl 量子ドットのスキャン図

S N O M（走査型近接場光学顕微鏡）により試料表面をスキャンした結果が以下の図 23 である。波長 325nm の He: Cd レーザーで励起した際の量子ドットの分布を示したものである。S N O M で試料表面の発光スペクトルから 379.5nm と 383nm の励起子発光がそれぞれ強い点を分析した。図 23 において白い点が発光が強い点であり、黒い点は発光の弱い点である。実験に用いたファイバースコープの先端はおよそ 30~40nm である。

ここで非常に困難なことは、量子ドットの発光から時間相関を測定するためには、ある程度の発光強度が必要であるが、一般に近接場光学顕微鏡を用いると、対物レンズを用いた通常の遠隔場による測定に比べて効率が 1/10 以下になる。

そのため、この段階で 383nm の発光が強く観測される領域を選ぶ必要がある。

加えて、近接場光学顕微鏡は温度変化に伴いファイバースコープの先端が上下に動き、CuCl 試料との距離が変化する。そのために温度制御を行って実験することが望ましい。

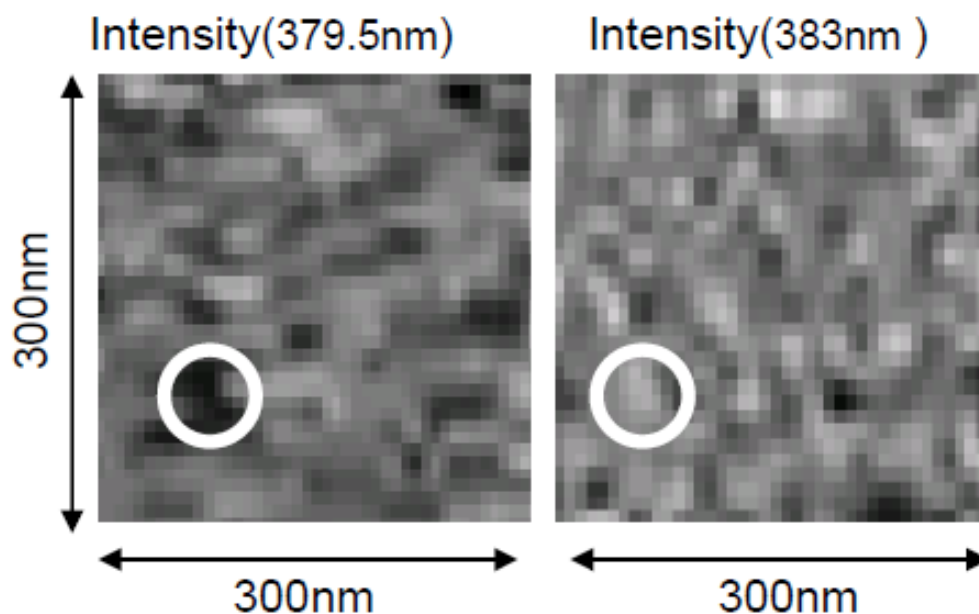


図 23. CuCl 量子ドットの分布

左：小さい量子ドットの分布      右：大きい量子ドットの分布

## 4-2. 量子ドットの発光確率の測定

実験の簡略図を図 24 に示した。まず励起パルスに対する量子ドットからの発光確率を測定したものが図 25、26 である。

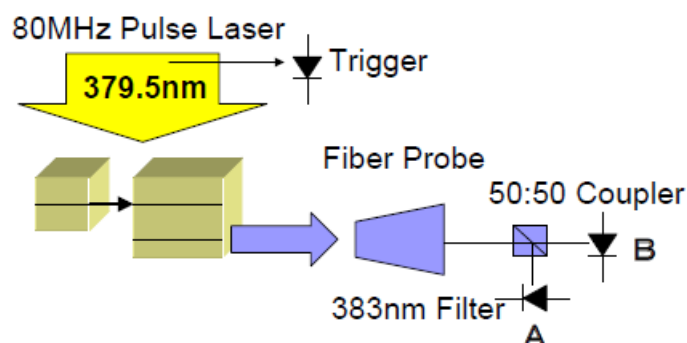


図 24. 実験の簡略図

図 24 においてパルスレーザーをトリガーとしたときに、トリガーとマイクロチャンネルプレート A、トリガーとマイクロチャンネルプレート B について同時計測をグラフにしたものが図 25、26 である。ちなみにパルスごとに積分している。

この実験において、TAC では 1 秒間におよそ 50000 回の相関が取れていたため、1 パルスに対する量子ドットの発光確率はどちらも  $5 \times 10^4 / 8 \times 10^7 = 0.6 \times 10^{-4}$  程度であった。

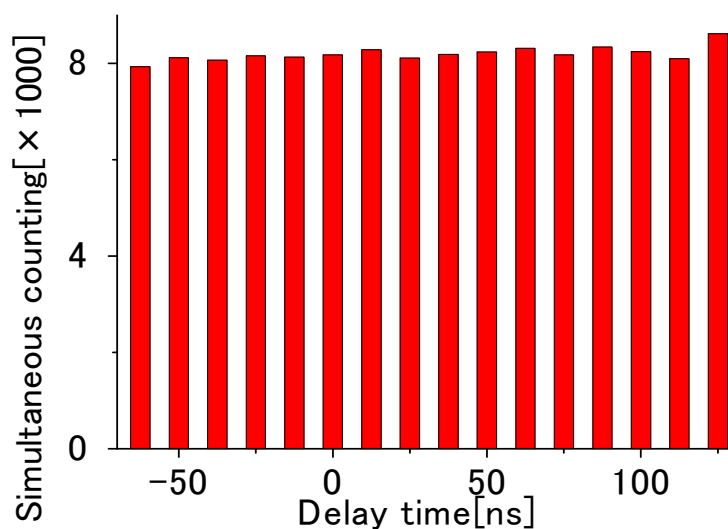


図 25. トリガーと検出器 A の相関

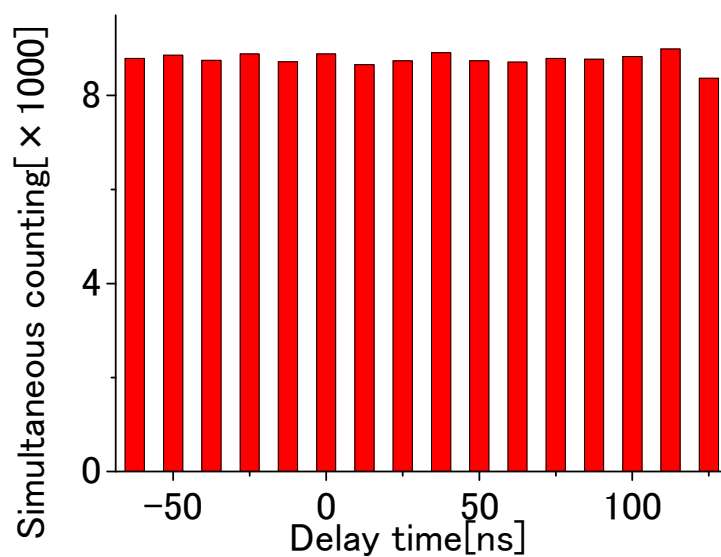


図 26. トリガーと検出器Bの相関

また、図 27 は対象となる量子ドットの発光の緩和時間を測定したものである。ノイズが比較的多いが、緩和時間は長くとも 3 ns 程度である。パルス間隔は 12.5 ns であるため、同時計測を行なって、1 つ前のパルスと時間原点において同時計測されるようなケースはないと考えてよい。

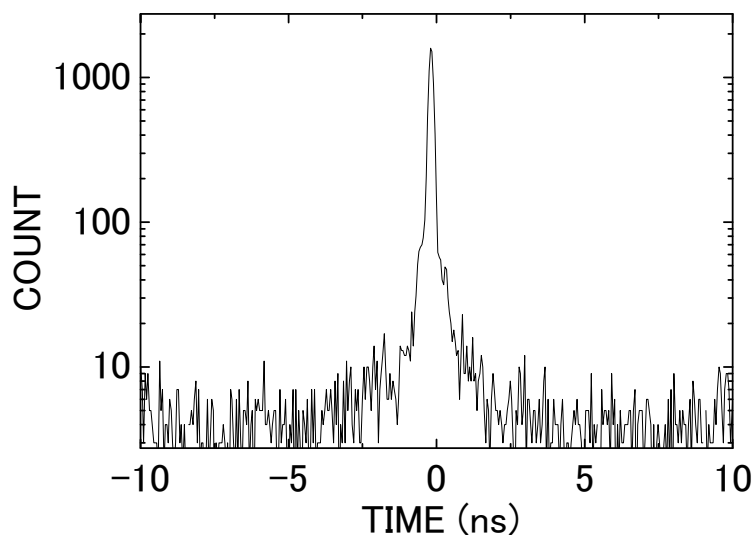


図 27.量子ドットの緩和時間

さらに、コヒーレントなレーザー光を同時計測しても、時間差 0 の領域で同時計測回数が 0 にならないことを示したのが図 28 である。このとき、レーザーは極限まで強度を弱くしているが、単にレーザー光を弱くしただけでは強度の揺らぎが残ってしまうために、時間差 0 においても同時計測が行なわれてしまうことがわかる。

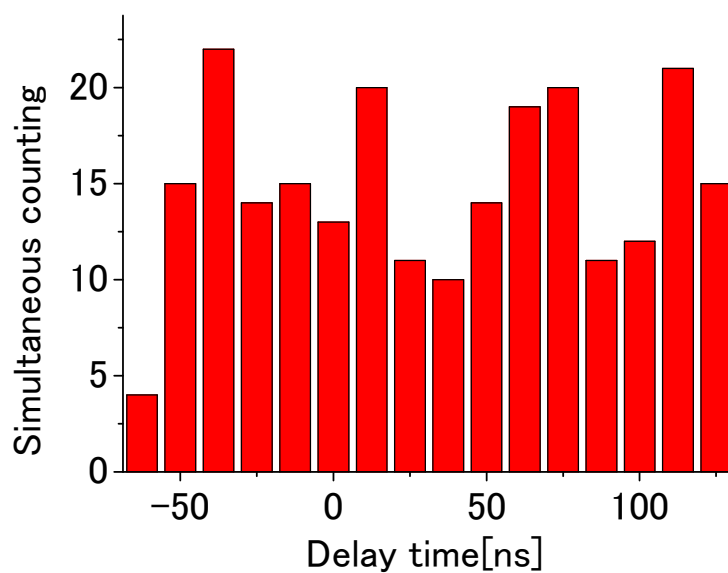


図 28. レーザー光に対して同時計測を行なった結果

### ・ 4-3.量子ドットの発光の同時計測

65ns 程度の電気配線遅延を与えた際の同時計測を示したデータである。実験条件は 15K 程度でアパーチャ 30nm、アルミコートの紫外線用ファイバーを用いて、12 時間程度計測した。図 29 が 12.5ns 毎に積分したグラフである。ここで 12.5ns は励起レーザーのパルスが 80MHz (12.5ns) であるためである。

積分していないデータにおいて同時計測が全く生じていない領域が 65ns 付近にあるため、それが積分したグラフにおいても現れている。グラフの左端が T A C のスタートに相当するため、左端から 65ns の部分を時間差 0 としている。

なお、M C P がほぼノイズフリーであったため、雑音を見積もって差し引くなどの行為は行っていない。

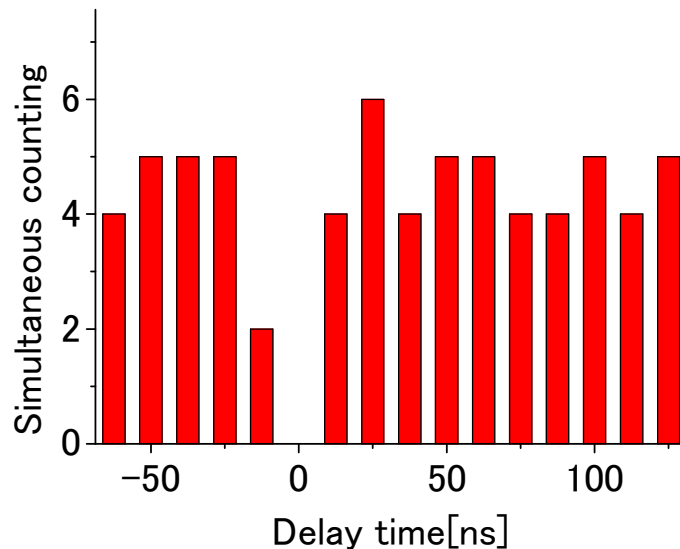


図 29. 検出器 A と B の同時計測 1

このグラフから時間差 0 の領域において同時計測が全く行われていないために、本実験の出力光が単一光子である可能性が非常に高いことがわかる。

また、後日アパーチャ 40nm 程度の紫外用ファイバーを用いて 15K、同一の配線遅延を挿入し、同様の実験を行ったときの結果が図 30、31 である。

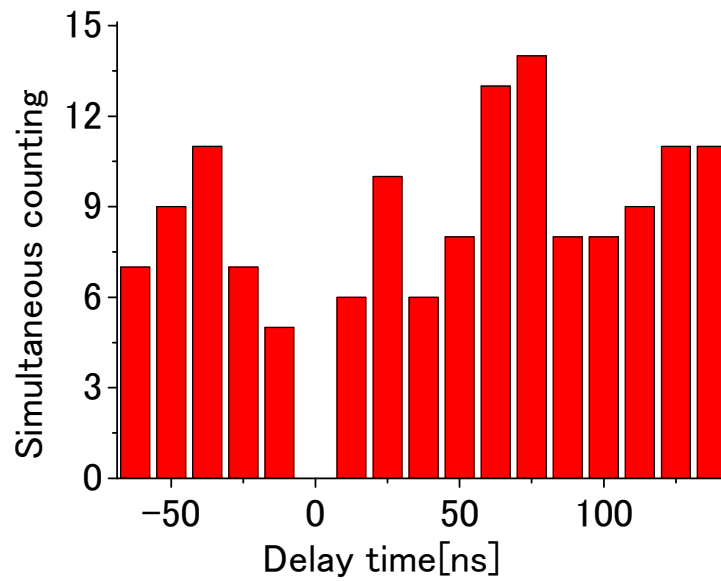


図 30. 検出器 A と B の同時計測 2

図 30 は先ほどのグラフと同様にデータを 12.5ns 毎に積分した。これは量子ドットが励起されてから発光までに緩和時間のばらつきがあるために、それらが同じ励起光による発光であると考えて積分したのである。12.5ns 毎に区切っていくと、一箇所同時計測が全くされない領域がある。ちなみに積分前のデータは図 31 のようにばらついている。しかし、時間原点のあたりでは一度も同時計測が起こっていない。



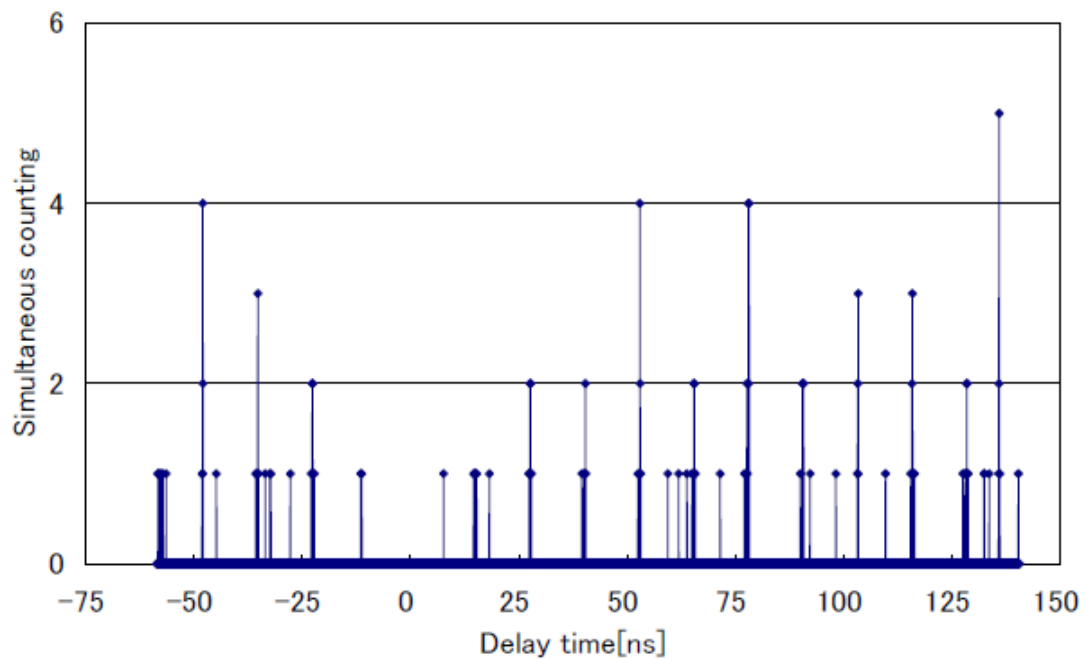


図 31. 検出器 A と B の同時計測(積分前)

2 回目の実験では 24 時間程度積算したために計測数は増えているが、同様の実験結果が得られた。

これらの 2 つは同一の実験条件で行なった実験なので、実験データを足したのが図 32 である。まだ時間差 0 以外のところでの同時計測回数に関してばらつきがあるものの、時間差 0 付近において同時計測が一回もなされなかったことがわかる。

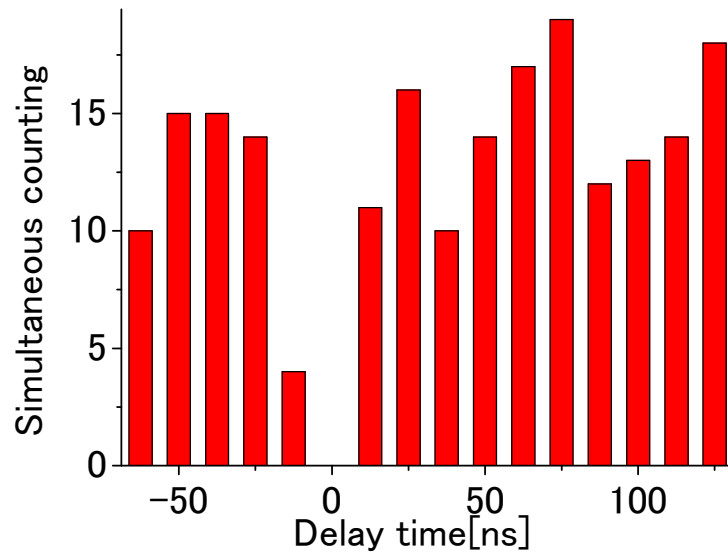


図 32. 2 回の実験の合計

また、電気配線による遅延を変化させ、65ns→25ns としたときの実験結果が図 33 である。計測数は少ないながらも、時間差 0 の付近で同時計測が行われなかったため、電気配線によって同時計測が 0 となる領域が変わり、単一光子を発生していることが確認された。

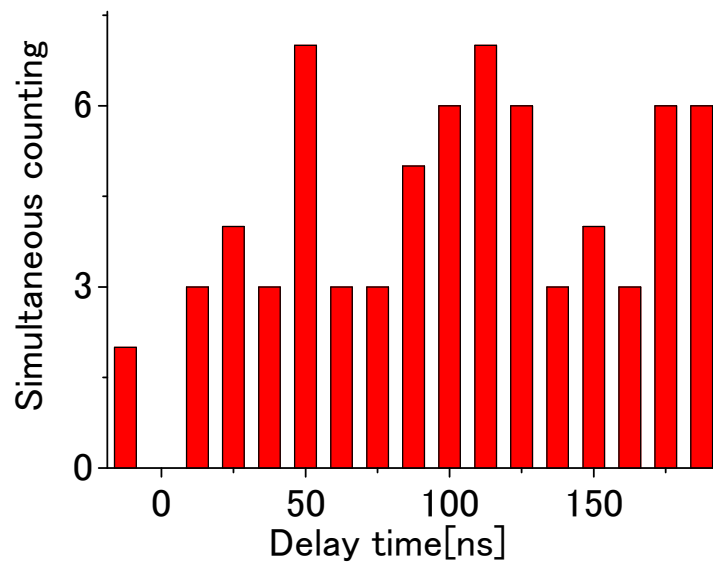


図 33. 遅延時間を 25ns に変化させた後の同時計測

## 第5章. 結論と考察

### ・ 5-1. 結論

#### ・ 5-1-1. 走査型近接場光学顕微鏡による単一光子の観測

通常の単一光子の観測においては、対物レンズにより量子ドットからの出力光を集光するが、本論文では走査型近接場光学顕微鏡を用いて初めて単一光子測定を行い成功した。

このことは以下のことを示唆する。

古典的な観測は検出器が十分遠方にあり、検出を行うことが測定対象(今回は量子ドット)に与える影響を通常考慮することはない。しかし、近接光学顕微鏡のように測定対象(今回は量子ドット)と非常に近い領域で相互作用をして、測定対象を観測するような場合に観測対象に影響を与えているかどうかは未だわかっていなかった。しかし今回の実験により、少なくともエネルギーに関しては測定対象に影響を与えずに観測できていることがわかった。

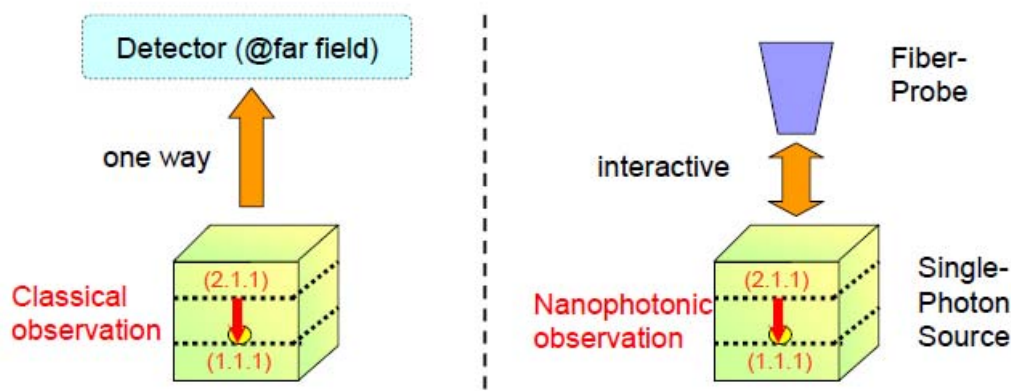


図 34. 古典的観測とNOMによる観察の差異

#### ・ 5-1-2. エネルギー移動、サブレベル緩和後の量子状態

本実験から量子ドット間でエネルギー移動を経た後、そのエネルギーの状態は単一光子状態にあるという結果が得られた。単一量子ドットからの発光が強いアンチバンチングを示すこととあわせて考えると、励起子はエネルギー移動、サブレベル間緩和を経過してもその状態を変えないといえる。つまり、単一光子状態のまま励起子準位を遷移していると考えられる。

## ・ 5-2. 考察

### ・ 5-2-1. NaCl 中の CuCl 量子ドットの利点

今回の量子ドットからの発光は非常に強いアンチバンチングを示したが、これに対しては、次のように仮説を立てることで説明ができる。

まず、通常の半導体量子ドットからの発光は、まれに時間原点においても同時計測されることがある。これは通常の量子ドットが NaCl 中の CuCl のように立方体の形状を取らず、格子定数の半分ごとに成長するといった性質がないことが原因のひとつであると予測できる。

InAs などの単一量子ドットを S K モードで量子ドットを形成するときなどは、立方体のようなきれいな形を作らない。そのために CuCl に比べて欠陥準位などの影響が生じることが考えられる。

この仮説が正しければ、将来 InAs などの半導体の単一量子ドットを立方体に加工する技術が確立されたときに、欠陥準位などの影響を排除でき、単一光子を生成する確率を向上させることができるといえる。

### ・ 5-2-2. 近接場光相互作用を利用したことの利点

もうひとつ、強いアンチバンチングを示した理由として、2つの量子ドット間のエネルギー移動を利用したために、一種のクーロンブロックードの作用が起きたことが考えられる。

通常の単一量子ドットは光学禁制ではない励起準位に励起光を加え、準位間で緩和した後の発光を単一光子として利用しているが、ごくまれに図 35 のように励起光が強い場合に2つ以上励起子が発生することが考えられる。この2つの励起子が緩和した場合、2光子が同時に放出される。そのため2光子が観測され、時間差  $\tau = 0$  においても同時計数が生じると考えられる。

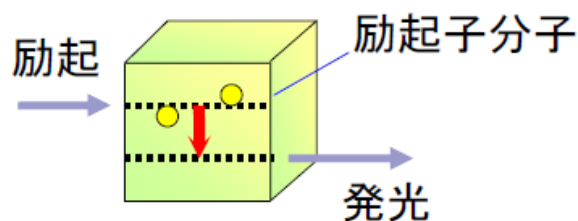


図 35. 単一量子ドット内での 2 光子生成

しかし、本論文で利用した2つの量子ドットの対においては以下のように考えられる。今回の大きい量子ドットの(2,1,1)準位は光学禁制であるために励起子を生成できない。従って 379.5nm の励起光で励起子を生成できるのは小さい量子ドットの(1,1,1)準位のみである。

(1,1,1)準位にはパウリの排他律によって、電子は最大 2 個まで入ることができるが、量子サイズ効果が生じるような領域になると、1 つめの励起子と 2 つめの励起子の間のクーロン力により、準位が(1,1,1)準位から下にシフトする。

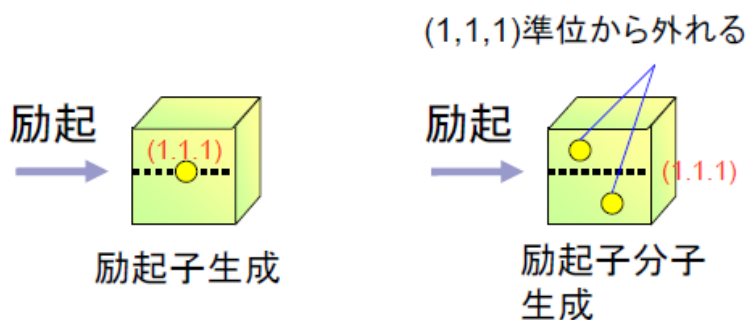


図 36. (1,1,1)準位からのエネルギーシフト

このシフトの幅は本実験で利用した CuCl の(1,1,1)準位の場合 25meV 程度であり、2 つ励起子が生成された場合、大きい量子ドットへのエネルギー移動ができないと考えられる。

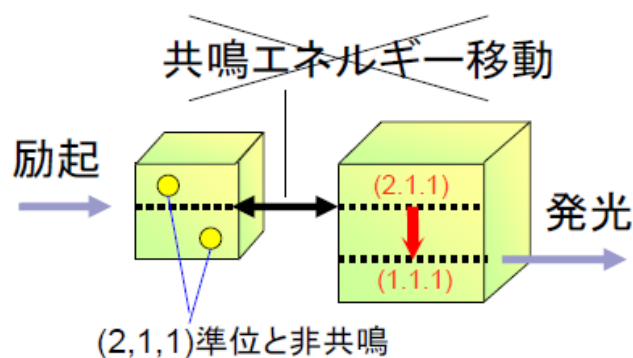


図 37. エネルギー移動不可

このように考えると大きい量子ドットにエネルギー移動できる励起子は1パルスにつき1個である。

そのために単一光子が計測される確率が非常に高くなったのだと推測できる。

なお、本論文とは利用の仕方が異なるが、クーロンブロッケードを利用した単一光子

源として、単一光子ターンスタイルデバイスがあげられる。単一光子ターンスタイルデバイスは、量子サイズ効果が生じるようなスケールで  $p-i-n$  ヘテロ構造を作り、中心の  $i$  領域を自由電子、正孔から隔離し、交流電圧を加えることで  $i$  層に自由電子と正孔をトンネリングさせ、再結合により単一光子を発生させるデバイスである。こちらでも非常に高い確率で単一光子が発生している<sup>[22][23]</sup>。以上をまとめると表 1 のようになる。

表 1. 従来の単一光子源との比較

	従来の 単一光子源	本論文における単一光子源
CuCl の結晶性に関する 利点	欠陥準位の影響	段階的な結晶( $a/2$ 毎に成長) 立方体形状→欠陥少ない
近接場光相互作用を利用 したことによる利点		クーロンブロッキングにより 1 個 の励起子のみが遷移可能

## 第6章. 今後行うべき研究

### ・6-1. 同一実験によるデータの蓄積

今回は集光モード(Collection Mode)で CuCl 量子ドットからの発光を分析し、その結果、エネルギー移動を経た後の CuCl からの発光が単一光子である確率が非常に高く、強いアンチバンチングを示すことがわかった。

しかし、走査型近接場光学顕微鏡の効率の悪さ、液体 He により冷却できる時間がせいぜい 24~48 時間程度であるなどの理由により、未だ十分な量のデータが得られていない。

そのため、より感度の高い検出器を用いる、より出力強度の強いレーザーを利用するなどして実験データの量を増やすことが最も優先度の高い課題といえる。

このことは、以下の別の実験の結果を行った際に参考となるため重要である。

### ・6-2. 照明モード(Illumination Mode)による単一光子測定

本論文において集光モードでは単一光子が観測されているが、照明モードにおいては必ずしも単一光子が観測されるかどうか定かではない。

それは以下の理由による。

集光モードにおいては主に伝搬光成分により量子ドットを励起するため、小さい量子ドットの(1,1,1)準位のみを励起するが、このとき大きい量子ドットの(2,1,1)準位は光学禁制であるために励起されない。そのため、1回のパルスによって生成される励起子は1つであると仮説を立てることができる。

しかし、照明モードでは近接場光ファイバースコープによって量子ドットを励起するため、本来光学禁制である、大きい量子ドットの(2,1,1)準位が励起される可能性がある。そのため、集光モードに比べて単一光子が発生する確率が減少する可能性がある。そのため、集光モードと照明モードの両方で実験を行い、同一の結果が出るかどうか検証することも必要であると考えられる。

仮に照明モードで単一光子が観測されなかった場合は、近接光学顕微鏡、もしくは双極子が測定対象の近辺に存在することによって、測定対象の出力エネルギーが変動することを意味する。

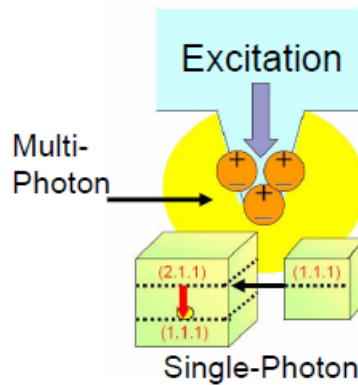


図 38. 照明モードによる多光子生成の可能性

### ・6-3. InAlAs 量子ドットなどによる単一光子測定

この論文で述べているように、CuCl は立方体の非常にきれいな量子ドットとなっている。だが通常の量子ドットはきれいな立方体形状を取らないことも多い。図 39 のように、InAlAs 量子ドットなどでは立方体よりは球状に成長する。

立方体形状でない場合、本実験における大きいほうの量子ドットの(2,1,1)準位は光学禁制とならない。そのために、単一光子が発生する確率が低くなることも考えられる。そのため、別の材料で対比する意味がある。

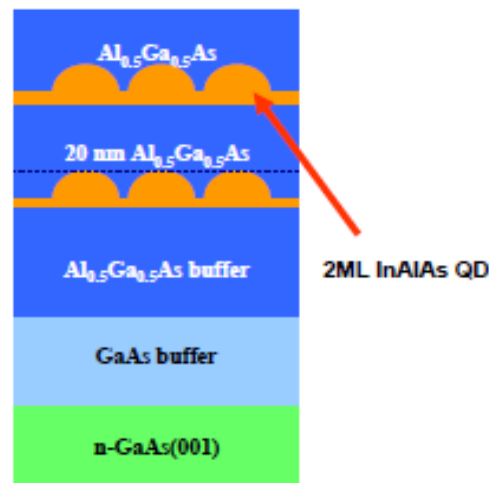


図 39. InAlAs 量子ドットによる実験



## 参考文献

- [1] M. Ohtsu, K. Kobayashi, T. Kawazoe, S. Sangu and T. Yatsui: IEEE J. Selected Topics in Quantum Electronics 8 (2002) 839.
- [2] 小林一智、川添忠、大津元一：第 51 回応用物理学関係連合講演会予稿集、第 3 分冊、講演番号 29p-D-5、p.1137(2004)
- [3] 米満広樹、“非断熱過程を利用した近接場光リソグラフィとその応用”、東京大学工学系研究科電子工学専攻、修士論文、2007
- [4]大津元一、「光の小さな粒」，裳華房，2001
- [5]大津元一,小林潔 「近接場光の基礎」，オーム社，2003
- [6]T. Kawazoe, K. Kobayashi, J. Lim, Y. Narita, and M. Ohtsu, Phys. Rev.Lett. 88, 067404 (2002)
- [7]T. Kawazoe, K. Kobayashi, S. Sangu, and M. Ohtsu, Appl. Phys. Lett,82, 2957(2003)
- [8] <http://photo.polym.kyoto-u.ac.jp/research/snom/snom.html>
- [9] Z.K.Tang,A.Yanase,and Y.Segawa,Phys.Rev.Let.71,1431(1993)
- [10] T.Mita and N.Nagasawa,Solid State Commun.44,1003(1982)
- [11] K.Cho,J.Phys.Soc.Jpn.55,4113(1986)
- [12] N. Sakakura and Y. Masumoto,Phys.Rev.B.56,4051(1997)
- [13] J. Zhao and Y. Masumoto, Phys.Rev.B,60,4481(1999)
- [14] D. FrGhlich, hf. Haselhoff, and K. Reimann, Solid State Communications, 94,189(1995)
- [15] T. Itoh, S. Yano, N. Katagiri, Y. Iwabuchi, C. Gourdon and A.I. Ekirnov Jour of Lum 60&61,396(1994)
- [16] G.スウィックス,「量子暗号」. 日経サイエンス, 2005 年 4 月号, p.20-27
- [17] 松岡正浩,「量子光学」, 東京大学出版会, 1996
- [18]<http://www.qis-jst.on.arena.ne.jp/kochi/poster/text/51.pdf>

- [19] <http://hirano1.phys.gakushuin.ac.jp/~hirano/summer/node6.html>
- [20] R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss, Nature 177 ,27 (1956)
- [21] [http://jp.hamamatsu.com/resources/products/etd/pdf/MCPassy\\_TMCP0001J06.pdf](http://jp.hamamatsu.com/resources/products/etd/pdf/MCPassy_TMCP0001J06.pdf)
- [22] J. Kim, O. Benson, H. Kan & Y. Yamamoto, Nature, **397**, 500 (1999)
- [23] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, A. Imamogulu, Science, **290**, 2282 (2000)

## 本研究に関する発表

- [1] 田中俊輔、川添忠、大津元一、「近接場光相互作用による量子ドット間の単一光子励起移動の検証」、第 54 回春季応用物理学会、29a-ZX-7、青山学院大学、2007
- [2] 川添忠、田中俊輔、大津元一、「近接場光顕微鏡による量子ドット間の単一光子励起移動の観測(II)」、第 55 回春季応用物理学会 発表予定
- [3] T.Kawazoe, S.Tanaka, M.Ohtsu, “Single-Photon Excitation Energy Transfer between Quantum Dots” , The 6th Asia-Apacific Conference on Near-Field Optics, China (2007)

## 謝辞

2年間、研究内容、方針などあらゆる面において御指導、御助言下さいました指導教員の大津元一教授に心から感謝いたします。

研究を進めるにあたって大きな指針を示してくださり、研究の進め方、実験手法の提案、実験結果の考察、グラフの作り方などで日頃から数多くの御指導、御助言を下さいました川添忠特任准教授に深く感謝いたします。

実験手順や内容、研究者としての生活、モラルについて御指導、御助言下さいました独立行政法人・科学技術振興機構ナノフォトンクスチームの八井崇博士に深く感謝いたします。

研究者としての姿勢・考え方について御指導、御助言をいただき、独立行政法人・情報通信研究機構の成瀬誠特任准教授に深く感謝いたします。

本研究室の野村航特任助教、山崎俊輔氏、北村心氏、濱口達史氏および東京工業大学伊藤研究室の山本和広氏、佐藤知広氏、大井川誠氏らの諸先輩方には、基礎的な実験の手ほどきから日頃の生活まで、多くの助言をいただき感謝しています。そしてともに歩んだ同期の山本巧氏、丁亨洙氏、東京工業大学伊藤研究室、佐藤峰斗氏、棗田昌尚氏、後輩の高橋永遠氏、杉山博紀氏、王曉星氏、金子昌賢氏、大政純氏、東京工業大学伊藤研究室、永井宏宜氏に深く感謝いたします。

本研究室秘書の小島幸代氏、独立行政法人・科学技術振興機構の折出秋儀氏、寺田俊子氏、ナノフォトンクス総合的展開プロジェクトチームの西林一彦特任助教、堅直也特任助教、田巻一彦氏、野沢久美子氏、低損失オプティカル新機能部材技術開発プロジェクトチームの西田雅子氏、伊藤久代氏、高橋勝人氏らのおかげで研究を円滑に進めることができました。深く感謝いたします。

最後に、ここには書ききれない家族、友人、私を支え・見守り・励ましてくださった全ての人に感謝いたします。

2008. 2. 4  
田中 俊輔