

令和 6 年度 防衛装備庁
安全保障技術研究推進制度

研究成果報告書

ワイアレスな量子鍵配送のための ポータブル固体量子光源の開発

令和 7 年 5 月

国立研究開発法人物質・材料研究機構

本報告書は、防衛装備庁の安全保障技術研究推進制度による委託業務として、国立研究開発法人物質・材料研究機構が令和4年度から令和6年度にかけて実施した「ワイアレスな量子鍵配送のためのポータブル固体量子光源の開発」の成果を取りまとめたものです。

1. 委託業務の目的

本研究では、従来の量子ドット光源が持つボトルネックを解決し、かつてなく小型で汎用性のある量子光源を創出することを目指す。そのため次の目標を設定する。

まず、光源素子の動作温度が、現状10 K程度のところ、液体窒素温度 77 Kでも動作可能なように、80 Kでの量子もつれ発生を目指す。これにより、大型の冷凍機が要らずに、小型の液体窒素容器やミニチュア冷凍機を用いたポータブル量子デバイスを実現することができる。

次に、本来量子ドット光源は、きわめて高輝度（高い光子発生レート）になる潜在性があるが、実際には、競合する（非量子ドット型の）光源の輝度に至っていない。その背景には、高屈折率媒質からの光子の取り出しが難しいことがある。そこで、フォトニック構造を導入することで、現状の光取り出し効率が1 %弱のところ、既存の量子光源の実効的効率である10 %を目指す。

目標性能：

- ・ 素子温度80 K での量子もつれ発生
- ・ 現状より10倍の光子発生レート（光子取り出し効率 10 %以上）

目標達成のための要素課題を以下に示す。

- （1）高温動作の達成については、物理機構としては、量子ドットに束縛された伝導電子のスピン・コヒーレンスを高温でも安定化させることであり、これは、閉じ込めの強いヘテロ材料の組み合わせで、量子ドットを実現することに他ならない。我々が用いる液滴エピタキシー法は、他の量子ドット作製手法に比べ、材料や基板選択の自由度が大きく、この目的には好都合である。一方で、大きなバンドオフセットを持つ材料の組み合わせは、一般に、格子不整合も大きく、欠陥のない高品質のエピタキシャル成長は容易ではない。そのため強く歪んだ界面においても、品質のよい量子ドットを形成できる最適の成長条件を見出し、温度特性のよい量子ドットを実現する必要がある。
- （2）高輝度化の達成については、従来、光の取り出し効率を向上する一般的な処方箋であった微細加工を用いたピラー構造の作り込みや、金属ナノ構造の活用は、後述する量子もつれの発生を妨げる要因になるため、我々の光源には使えない。量子相関を保持したまま光子対を取り出すには、対称性が高く、光学異方性のないフォトニック構造を用いた光取り出し手法を設計する必要がある。

以上2つの課題を検討し克服することで、量子ドット光子源の飛躍的な高性能化を達成する。なお、本研究では、量子光源として、1光子を発生する「単一光子源」ではなく、量子論的にもつれあう光子対を同時に発生する「量子もつれ光源」の開発を行う。量子もつれ（エンタングルメント）は、幅広い量子情報技術における、最も本質的なリソースであり、例えば量子コンピュータの高速性の源泉は多量子ビットのエンタングルメントに他ならない。量子通信のキャリアとして、量子もつれ対を用いると、たとえば、計測器に依存せず秘密鍵を共有でき（Device-independent QKD）より強固な秘匿性を確保することが可能となる。また、秘密鍵の伝送距離を延伸するための量子中継プロトコルには量子もつれの活用が必須となる。以上のように単純な単一光子源より、量子もつれ光源の方が実行できる量子タスクの幅が広がるため、本研究の開発対象とする。

2. 研究開始時に設定した研究目標の達成度

高温動作の達成については、①量子閉じ込めが強い格子不整合系の液滴エピタキシー成長について、その成長様態を解明した。②この知見を元に、高品位な歪み系量子ドットの作製手法を確立した。③その結果、従来10K以下の冷却条件が必要だった単一光子の発生や量子もつれの

発生を、前者については100K超、後者については60Kで検証することに成功した。④当初目標とした80Kでの量子光源動作は一部未達となった。しかし近年技術開発が進展する小型冷凍機（到達温度45K）と組み合わせれば、本課題で掲げるポータブル量子光源の実現を阻む本質的な問題はないことが分かった。（また実際に組み立て始めている。4.2を参照）

つぎに、高輝度化の達成については、①金属および誘電体を用いた2次元的な共振器構造を設計・作製し、固体発光素子の発光レートが2桁増大することを見出した。これを量子ドットと組み合わせれば、繰り返し100GHz超の超高輝度単一光子源が実現可能と結論づけた。②量子もつれ状態を、忠実度を損なうことなく外部に取り出す方法として、素子の表面に固体液浸レンズを装着する方法を提案した。高屈折材料を使えば取り出し効率が従来値の12倍（7%）まで到達することを理論的に示した。③その実証として、既存のシリカ硝材のレンズを用いて従来値の4倍の効率を実測できた。④より高屈折の硝材（未発表のため別冊に記載）を使ったレンズの試作を進めているが、現時点で有意な効率向上を確認できなかった。その原因として、フレネル損失や位置合わせの影響等が想定された。⑤そのため当初目標とした従来値の10倍の輝度は一部未達となった。しかし上述の改善で容易に目標達成が可能と見込んでいる。

3. 委託業務における研究の方法及び成果

目標の達成のため以下にあげる実施項目を定め、研究を行なった。

1. 高温で動作可能な量子ドット光源の創生（量子ドット作製技術の高度化）
 - （1.A）歪みが大きな条件での量子ドット形成機構の解明
 - （1.B）高品位InAs/InP量子ドットの作製と量子もつれ発生の観測
2. 量子ドット光源の高輝度化（ナノフォトニクスとの融合）
 - （2.A）高ビットレート化の実現
 - （2.B）フォトニック構造体を用いた高効率光取り出し

おのおの実施項目について、その方法及び成果を以下に記載する。

（1.A）歪みが大きな条件での量子ドット形成機構の解明

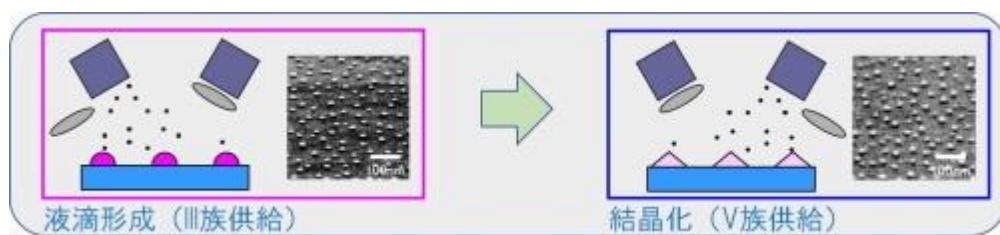
本研究では、量子閉じ込めが大きく、格子定数が不整合となるヘテロ材料の組み合わせで量子ドットの作製を行う。そこで最初に、結晶歪みが大きな条件での量子ドット形成機構を解明するために、分子線エピタキシー装置と走査型トンネル顕微鏡（STM）装置を複合した結晶成長装置を用いて、結晶成長時の観察を行なった。

図(1.A)-1に、本研究で用いる複合型結晶成長装置の全体写真を示す。この装置は同一の超高真空環境で、超高真空環境を破ることなく、エピタキシャル結晶成長と、原子分解能の表面観察を実施できる装置である。真空容器に高純度インジウム原料を導入後、ベーキングを経て、良好な超高真空環境を整えた。その後、InAsの成長と、その場表面観察を試行した。



図(1.A)-1. 複合型分子線エピタキシー成長・表面構造評価装置

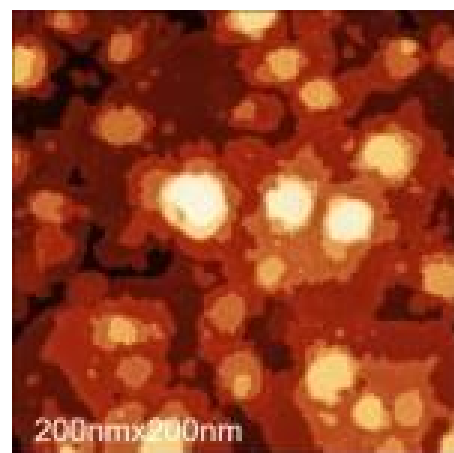
図(1.A)-2は、液滴エピタキシーを用いた量子ドットの作製過程である。GaAsやInAsなどIII-V族半導体の結晶成長では、通常、III族元素（GaおよびIn）と、V族元素（As）を同時



図(1.A)-2. 液滴エピタキシー成長法による量子ドットの作製

供給し、基板表面の原子配列を保ったまま積層させる。我々が用いる液滴エピタキシーでは、III族元素とV族元素を同時に供給するのではなく、図に示すように、最初に、III族元素のみを供給する。そうすると、III族供給元素は、表面エネルギーを下げるように、ナノメートルサイズの液滴を形成する。その後、V族元素を供給し、III族液滴をIII-V化合物に結晶化することで、量子ドットが形成されることになる。これまでに液滴エピタキシーを用いて、高品質なGaAs量子ドットが作製できることを見出してきた。しかし、今回作製するInAsは、基板との格子不整合が大きく、複雑な成長となることが予想される。結晶歪みが大きな条件での量子ドット形成機構を解明するために、その場形状観察を行なった。

図(1.A)-3は、InAs量子ドット形成後の表面像である。基板は(111) A面方位のInPを用いた。図は、200nm×200nmの領域の表面を原子分解能で観察したものである。その結果、大きさ10-20nmの微結晶が量子ドットとしてランダムに形成されていることが分かる。また、個々の微結晶の周縁部には、大きさが数10nmに広がった島状の2次元層が形成されていることが分かる。2次元層は、明暗のコントラストから原子層のステップを持っていることが分かり、原子層で平坦な層であることが分かる。以上から、量子ドットの周辺に、原子層厚さの2次元層が（局所的に）存在していることを見出した。この現象は、格子整合系であるGaAsの量子ドットでは観測できない。したがって、格子不整合系のInAs量子ドットに固有の成長形態である。格子不整合の組み合わせで量子ドットを作ると、格子歪みのエネルギーを解放するために（量子ドットではなく）2次元成長が優先となる。十分に格子緩和が進んだ後に、量子ドットが自己形成すると理解できる。



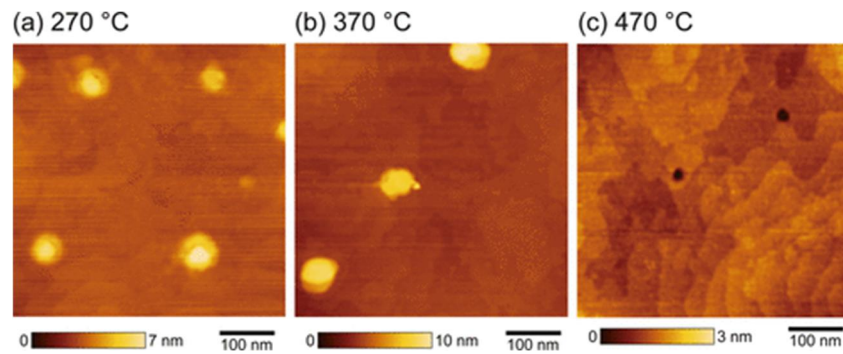
図(1.A)-3. 液滴エピタキシー成長 InAs 量子ドットのその場STM像

図(1.A)-4は、結晶成長後の表面像と、熱アニーリング処理に伴う形状変化を示す。ここでは、0.4原子層（ML）のInを(111) A面方位のInP基板上に供給し、InAs量子ドットを自己形成した。

(a)は、基板温度を270℃で量子ドットを成長した直後の表面上であり、直径50nm程度の量子ドットがランダムに自己形成されていることが分かる。このときの量子ドットの表面密度は $2.1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ であった。

(b)は、量子ドットを成長後、370℃でアニール処理をした後の表面像である。(a)と比べると、アニール前に存在していた量子ドットの内、比較的小さなサイズのものが消失し、大きなサイズのものだけが安定に残っていることが分かる。また、量子ドットの消失に伴い、表面密度がアニール前の密度の3割程度（ $6.5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ）まで減っていることも分かった。(c)は、さらにアニール温度を470℃に上昇したときに表面像であり、この場合、量子ドットは完全に消失することが分かる。

アニール処理によって量子ドットが消失する現象は、格子整合系であるGaAs/AlAsの量子ドットでは観測できない。したがって、格子不整合系のInAs/InP量子ドットに固有の成長形態である。格子不整合の材料の組み合わせで量子ドットを作ると、格子歪みのエネルギーを解放するために、量子ドットの中身が周辺に流れ出し、その結果、量子ドットが消えると理解できる。

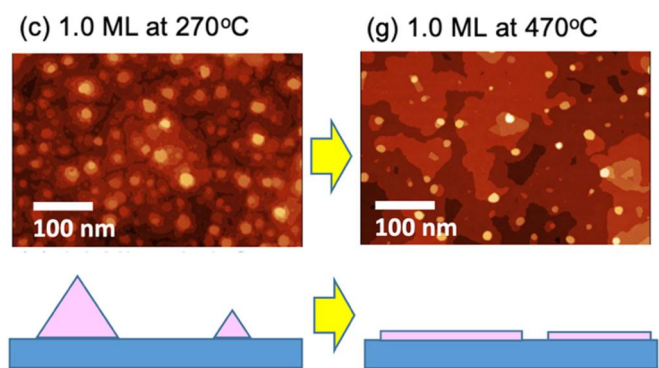


図(1.A)-4. InAs 量子ドットの表面像とアニール処理の影響。In 供給量を 0.4ML とした。アニール処理に伴って量子ドットが消失することが判明した。

図(1.A)-5 は、In の供給量を 1.0ML に増やしたときの量子ドットの表面像である。左図は、成長直後である基板温度 270°Cでの表面像であり、In 供給量を増やした結果、 10^{11}cm^{-2} 台の高い密度で量子ドットが作られたことが分かる。

右図は、470°Cでアニールしたときの表面像であり、量子ドットの周縁部には、大きさが数100nmに広がった島状の2次元層が形成されていることが判別できる。2次元層は、明暗のコントラストから原子層のステップを持っていることが分かり、原子層で平坦となっている。

格子不整合でエピ成長をすると、格子歪みのエネルギーを解放するために（量子ドットではなく）2次元成長が優先となる。十分に格子緩和が進んだ後に、量子ドットが安定存在すると理解できる。以上、歪みがある条件での量子ドット形成のメカニズムを解明し、最適な条件探索の指針を定めることに成功した。



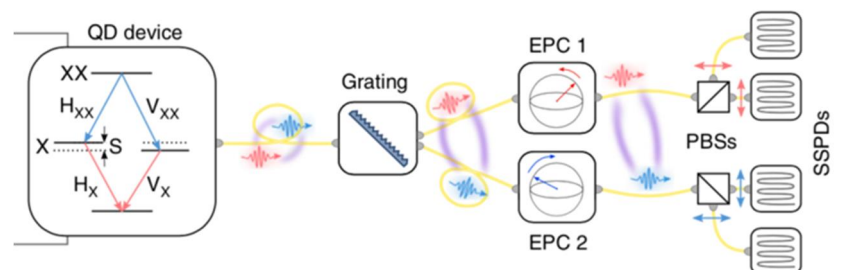
図(1.A)-5. InAs 量子ドットの表面像とアニール温度依存性。In 供給量を 1.0ML にすることで、アニール後も量子ドットが安定に存在する

(1.B) 高品位InAs/InP量子ドットの作製と量子もつれ発生の観測

1.B. ①赤外域量子もつれ観測装置の構築

我々は可視波長で光る量子ドットの作製と量子もつれの発生について実績がある。しかし、本課題で新たに開発する量子ドット光源は、波長1.3~1.55 μm の近赤外域の動作を目指しており、既存の光学系や検出器では量子特性が観測できない。そのため赤外波長域に対応する量子光学系を構築した。

図(1.B)-1に、量子もつれ評価実験の概念図を示す。孤立した量子ドットは、条件を満たすと、2個の光子を発生し、それら光子の偏光は、どのような偏光基底を選んで反平行になる。これは、量子的にもつれた状態である。量子相関の強さを定量評価するには、2光子の偏光度を測ればよい。



図(1.B)-1. 量子もつれ評価測定装置の概念図。4 台の超伝導光子検出器（SSPD）を用いて、偏光相関を計測する。

そこでまず2個の光子を分離する必要があるが、これらの光子は波長が異なるため、回折格子などの分散素子を使って効率よく分離することができる。次に、各々の光子の偏光を定めるために、偏光ビームスプリッター (PBS) に光ビームを導入し、透過するビームと反射するビームの各々に対し、光子検出の同時計数 (コインシデンス) を計測する。

図 (1. B)-2は、新たに立ち上げた赤外域量子もつれ観測装置の写真である。無振動型のクライオスタットに量子ドット試料を置き、レーザー光を照射する。光励起された量子ドットから発する発光信号を対物レンズで集光し、コリメートしたビームに整える。その後、透過グレーティングと偏光子を用いて波長と偏光が異なる4本の出力ビームに分解し、各々をシングルモード光ファイバーに結合させる。不可視な赤外ビームに対する光軸調整は容易ではないが、本予算で購入した冷却型赤外カメラを用いることで、効率よく作業ができた。光ファイバーを、赤外域で感度を持つ超伝導光子検出器に結合し、光子検出と同時計数を行った。

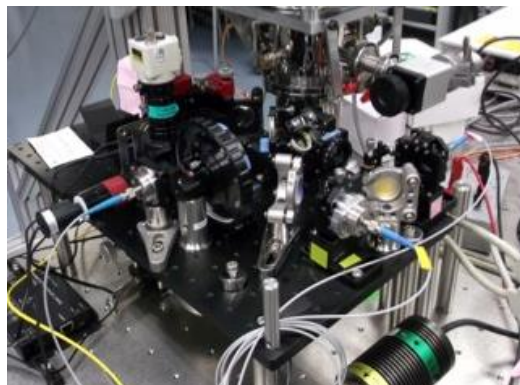


図 (1. B)-2. 量子もつれ評価装置の写真

図 (1. B)-3は、新しい赤外測定系を用いた実験の試行結果である。試料として以前作製したInAs量子ドットがInAlAs障壁に埋め込まれた試料を用いた。左図は発光スペクトルであり、通信規格に適合する波長1.3 μ mで発光することが分かる。4本の発光線は量子ドットの電荷数の違いによる分裂で、電荷中性なX, XXの光子について量子もつれが期待される。右図は、X, XXの2光子の、偏光を定めた同時計数である。いずれの偏光でも、時刻ゼロ近傍で、強いコントラストの相関があり、量子もつれの特徴を持つことが分かった。

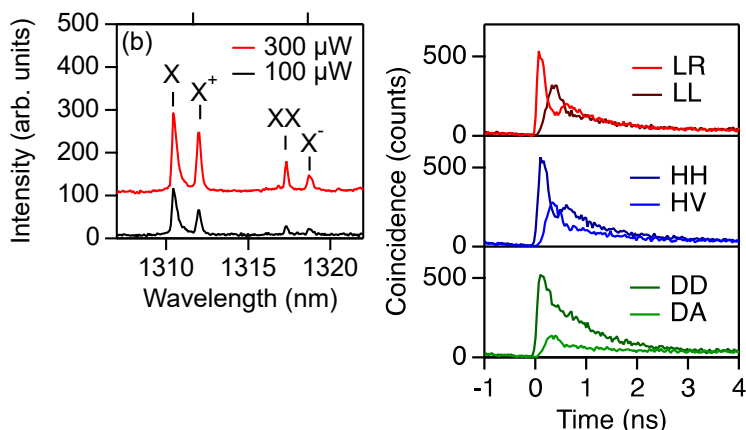


図 (1. B)-3. 波長 1.3 μ m 帯 InAs/InAlAs 量子ドットの発光スペクトル (左図) と偏光相関の測定結果 (右図)

1. B. ②波長1.55 μ m帯量子ドットの作製

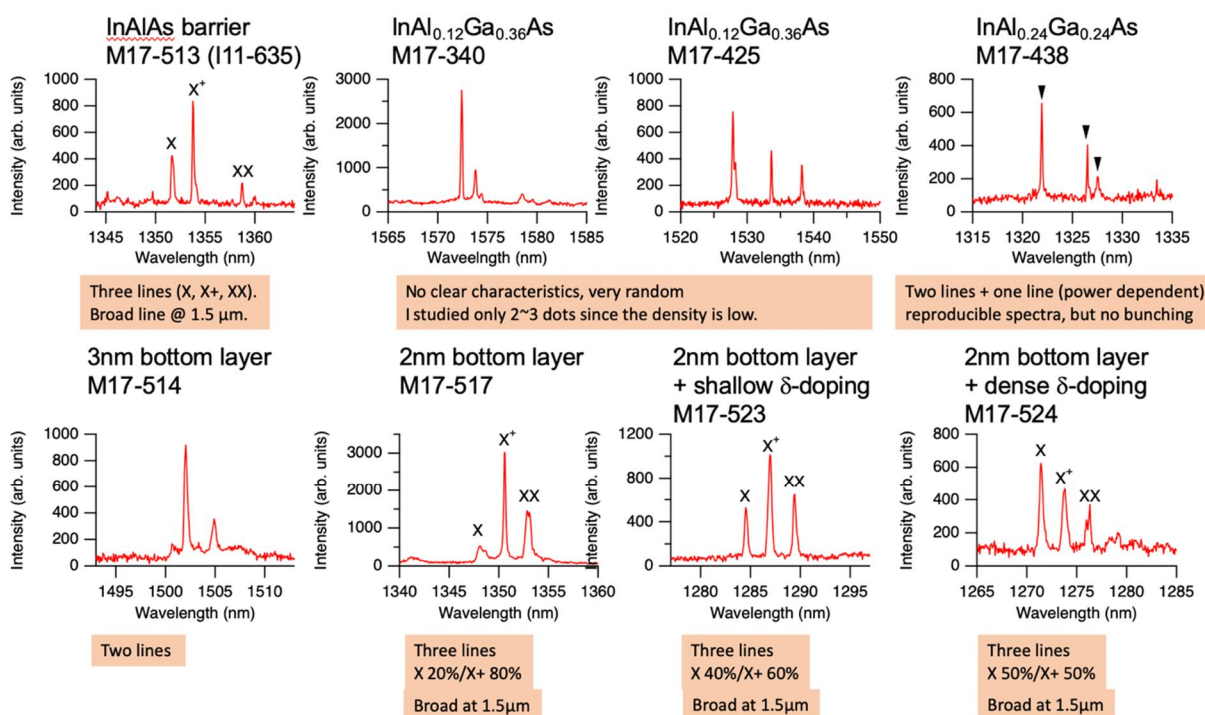
波長1.55 μ m帯は、大気窓を透過する自由空間伝送や、石英光ファイバーを用いた長距離伝送に適した波長帯であり、量子光源の開発が強く求められている。そのため、波長1.55 μ mで再結合発光を示す量子ドットの作製を進めた。

図 (1. B)-4は、これまでに試作した試料のリストである。成長条件を探索する出発点になるのは、すでに品質のよい量子ドットが出来ている1.3 μ m帯InAs/InAlAs量子ドットの成長条件である。ここから長波長化 (1.3 μ mから1.55 μ mへの波長シフト) するにあたり、①量子ドットのサイズを拡大する、②量子ドットの下部に2次元量子井戸層を挿入し、量子閉じ込めの強さを下げる、③障壁層の材料を4元素であるIn(Al, Ga)Asに変える等の方策を試みた。

図 (1. B)-5は、①、②の方針で試作した試料の発光スペクトルである。しかし過去に1.3 μ m帯の量子ドットで観測された多励起子のスペクトル構造が再現できず、したがって量子もつれ対の観測はできない。結論として、①、②の方策では、十分な結晶品質を得られないことが判明した。

	Barrier	Bottom InGaAs layer	Bottom InAs layer	delta-Si doping	Amount of In	Crystallization	Emission-wavelength (μm)	spectral width		spectra Intensity ratio X+/X0	PL efficiency (exc. pwr. @ saturation)
								1.3 μm	1.5 μm		
I11-635 M17-513	InAlAs	-	-	-	0.5ML @320	As-3x10 ⁻⁵ @300	1.3 - 1.5	sharp	broad	70% X+ /30% neutral	~ 500 μW
M17-340	In _{0.52} Al _{0.12} Ga _{0.36} As	-	0.5 ML	-	0.25ML @400	As-9x10 ⁻⁵ @400	main-1.5	-	sharp	Three lines, indistinct	~ 0.1 μW
M17-425	In _{0.52} Al _{0.12} Ga _{0.36} As	-	0.5 ML	-	0.25ML @490	As-9x10 ⁻⁵ @400	1.4 - 1.5	-	sharp	Three lines, indistinct	~ 0.1 μW
M17-438	In _{0.52} Al _{0.24} Ga _{0.24} As	-	0.5 ML	-	0.4ML @350	As-5x10 ⁻⁵ @270	main-1.5	-	sharp	Three lines, indistinct	~ 3 μW
M17-514	InAlAs	3 nm	-	-	0.3ML @350	As-3x10 ⁻⁵ @300	main-1.5	-	broad	Two lines, no power dependence	~ 3 μW
M17-517	InAlAs	2 nm	-	-	0.3ML @350	As-3x10 ⁻⁵ @300	1.3 - 1.5	sharp	broad	80% /20% @1300nm >95% X+ @1500nm	~ 5 μW
M17-523	InAlAs	2 nm	-	Si-2E+9/cm ²	0.3ML @350	As-3x10 ⁻⁵ @300	1.3 - 1.5	sharp	-	60% X+ /40% neutral	~ 3 μW
M17-524	InAlAs	2 nm	-	Si-1E+10/cm ²	0.3ML @350	As-3x10 ⁻⁵ @300	1.3 - 1.5	sharp	-	50% X+ /50% neutral	~ 15 μW
M17-520	InAlAs	-	-	-	0.5ML @320	As-3x10 ⁻⁵ @320	1.3 - 1.5	sharp	broad	70% X+ /30% neutral	~ 500 μW
Note	For tuning emission			For tuning charges	density & size	size		sharp: small dots broad: large dots			Due to barrier E

図(1.B)-4. 波長 1.5μm 帯 InAs 量子ドットの試作リスト



図(1.B)-5. 試作した InAs 量子ドットの発光スペクトル

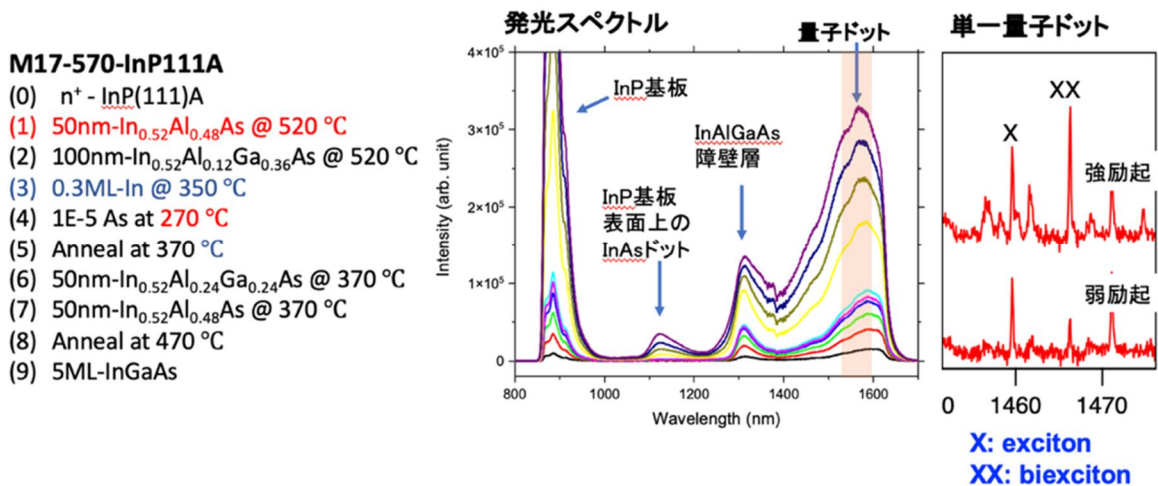
1. B. ③ 4 元系混晶In (Al, Ga)Asに埋め込まれたInAs量子ドットの作製

通信応用に要求される波長1.55 μ m帯の量子ドットを実現するために、In (Al, Ga)Asに埋め込まれたInAs量子ドットの作製を試みた。この試料は、障壁層として、これまで3元系の混晶InAlAsを用いていたところ、より狭いバンドギャップを持つ4元系の混晶In (Al, Ga)Asに置き換えることにより、量子ドット発光波長の長波長化を狙ったものである。

図(1. B)-6の左図に、液滴エピタキシー成長のシーケンスを示す。成長の工夫として、①障壁層として、成長基板であるInPに格子整合した4元系混晶In (Al, Ga)Asを用いたことがある。また②基板表面に付着しやすい不純物の影響を排除するために、基板の直上にInAlGaAs障壁層を成膜せず、InAlAsをバッファ層として成膜したこと等がある。

中央の図は、試料全体の発光スペクトルである。InP基板や障壁層由来の発光帯に加えて、波長1.5-1.6 μ mの領域に量子ドット由来の強い発光帯が現れることが分かる。したがって、InAs量子ドットを4元系混晶In (Al, Ga)Asに埋め込むことで、波長1.55 μ m近傍で強く発光する量子ドットが出来ることを確認した。

右図は、試料を顕微鏡下に置いて、単一の量子ドットからの発光を観測したものである。励起強度を変化すると非線形に強度変化する発光線を初めて観測することができた。このため、励起分子遷移を用いた量子もつれ対の発生を示唆する結果を得た。



図(1. B)-6. 波長 1550nm で発光する高品位 InAs 量子ドットの実現。

波長1.55 μ m帯量子ドットについては、その後、我々が独自開発した原子層歪み制御技術を応用することにより、より高品質の試料作製に成功した。また、それらの量子ドットを対象に量子光学評価を実施し、光子対発生の実測にも成功した。これらの結果は未発表のため、別冊（項目1）に記載する。

1. B. ④耐温度特性の観測

3 元系混晶 InAlAs に埋め込まれた InAs 量子ドットにおいて、動作特性の温度依存性を観測した。図 (1. B)-7 にその結果を示す。

左図は単一の量子ドットからの発光信号であり、そのスペクトルの温度依存性を図示した。最低温度である 10K において、励起子線 (X) と励起子分子線 (XX) が、スペクトル上で明瞭に区別できることが分かる。過去の研究で、これら X, XX の準位からカスケード的に遷移発光する 2 光子が、量的にもつれあうことを見出している。温度を上げると、熱緩和の影響でスペクトルの線幅が広がり、80K 程度で、X 線と XX 線が区別できなくなる。したがって量子もつれ光源としての動作限界は、80K と見積もることができる。一方、発光信号自体は 100K でも有意に観測でき単一光子源としての動作は 100K 超まで可能であることが分かる。

右図は、同じ量子ドットにおいて、X, XX の 2 光子の偏光相関を観測したものである。ここでは、ピコ秒パルスで励起した後の発光信号を、偏光状態を区別して時間分解計測した。最低温度の 10K の信号に見られる周期的な信号は、スペクトルの微細分裂を反映した量子ビート信号であり、量子コヒーレンスの安定度 (量子もつれの強度) の目安を示している。ビート信号は、温度を上げると不明瞭になり、60K を超えると、おおむね消失する。したがって、量子もつれが発生可能な温度は、この素子では 60K 以下と結論できる。

これらの温度特性は、量子ドットに伝導電子が閉じ込められるときの閉じ込めの強さ (閉じ込めポテンシャルの深さ) に依存する。そのため、1. B. ②、③ で述べた、新規に開発する波長 1.55 μ m 帯の量子ドットを用いれば、より耐温度特性が向上すると予想できる。

そこで、波長 1.55 μ m 量子ドット素子の動作試験を実施するにあたり、当該波長の波長可変フィルターを組み込んだ量子光学実験系を新たに構築した (図 (1-B)-8 左)。また、我々が新たに開発する量子ドット光源と、既存技術による非線形光学型量子もつれ光源との性能比較のために、市販量子もつれ光源を導入し、装置の組み立て行ない (図 (1-B)-3 右) その装置評価を進めた。

新たに作製した波長 1.55 μ m 帯量子ドットを対象に、量子光学評価及び温度特性評価を実施し、たいへん優れた性能を持つことが確認できた。それらの結果については、未発表なため、別冊にまとめた (別冊・項目 1)。

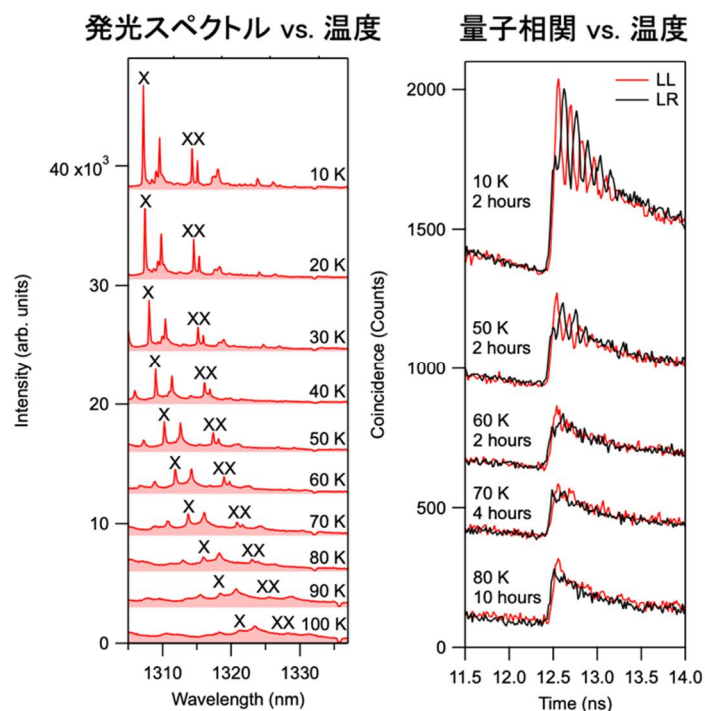


図 (1. B)-7. 1.3 μ m 量子ドットの耐温度特性

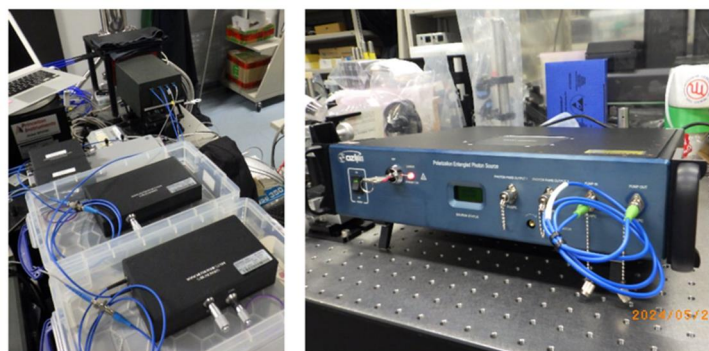
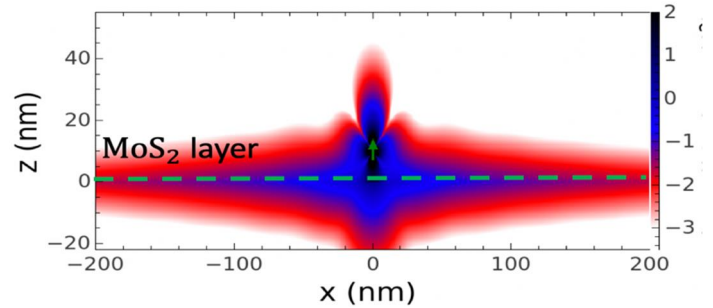


図 (1. B)-8. (左) 1.55 μ m 帯波長可変フィルターを用いた量子光学実験系の構築。(右) 市販の非決定論的 1.55 μ m 量子もつれ光源。

(2. A) 高ビットレート化の実現

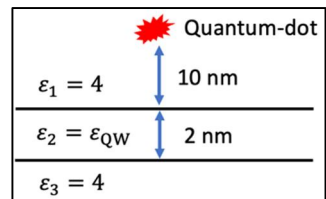
2. A. ① 2次元励起子分極波の近接場増強

我々が開発する量子光源は、単一の量子ドットから発する蛍光信号を発光源に用いる。そのため光子の発生レートは、母体となる半導体材料の遷移確率で定まり、III-V族半導体の量子ドットの場合、1GHz程度が理論的な上限である。発光レートを加速するために、光源近傍の局所的な電磁波分布を変調する試みが知られている。たとえば金属ナノ構造を量子ドットの近傍に置くと、金属プラズモン表面波と量子ドットの振動分極が共鳴し、発光レートが増加する。しかしこの場合、金属の誘電損失のために発光効率は著しく低下する。そこで我々は、金属ではなく、半導体の2次元構造を量子ドットに近接することで、損失なく発光レートを増加することを検討した。図(2. A)-1は、原子層厚2次元材料である単層MoS₂を、量子ドットに近接させたときの電場分布である。MoS₂層と量子ドットは5nm離れた。すると量子ドットが作る電磁波は、点光源ではなく、2次元層に広がった、巨大な分極を形成することが分かる。本計画では2次元半導体として、量子ドットと同じヘテロ材料の量子井戸を用いる。

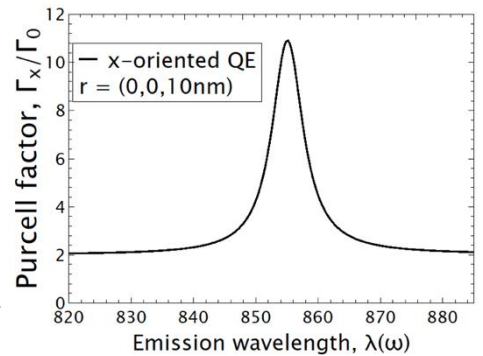


図(2. A)-1. MoS₂ 単原子膜の近接場増強効果

図(2. A)-2はGaAs量子井戸のパラメーターを用いた計算結果である。左図にモデル構造を示す。厚さ2nmの量子井戸(QW)はローレンツ型の誘電分散を持ち、上下が $\epsilon=4$ (屈折率2) の材料に埋め込まれている。また、量子ドットは、量子井戸から10nm離れていると仮定した。右図は、この条件においての、量子ドットの発光レートの増加率 (Purcell factor) であり、量子井戸の共鳴波長である855nmの近傍で、おおむね10倍の発光増大を見出した。以上からGaAs/AlAs系量子ドット・量子井戸を用いることで、発光レートの増大を実証可能である。



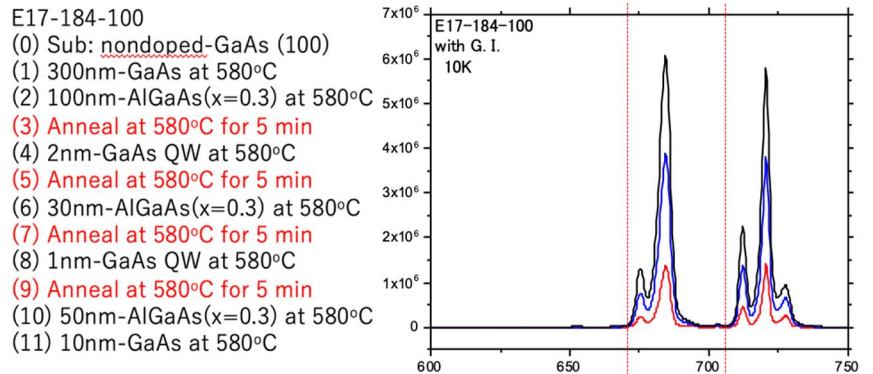
$$\epsilon_{QW}(\omega) = \epsilon_{bulk} + S \frac{\omega_{ex}^2}{\omega_{ex}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_{ex}}$$



図(2. A)-2. GaAs/AlAs 量子井戸を用いた近接場増強

次に、GaAs/AlGaAs量子井戸の試作と成長条件の最適化を行った。図(2. A)-3の左側は、最適条件での成長シーケンスである。基板には(100)方位のGaAsを用いた。障壁層はAl_xGa_{1-x}As (x=0.3)であり、その中に、厚さ2nmおよび1nmのGaAs量子井戸 (成長シーケンスの(4)と(8)) が埋め込んだ。特に、平坦な量子井戸界面を実現するために、井戸層の成長後、580°C、5分間のアニーリングを施した (赤字部分)。

右図は、この試料の発光スペクトルである。670nmおよび720nmを中心とする発光帯は、それぞれ膜厚1nmおよび2nmの井戸からの発光である。各々の発光は、原子層ステップに由来する、分裂したピークを示し、平坦な2次元層が実現していることが分かった。以上、実証実験に求められる高品質試料の作製に成功した。



図(2. A)-3. GaAs/AlGaAs 量子井戸の作製と発光スペクトル

つぎに、2次元励起子の近接場増強を実証するにあたり、GaAs/AlGaAs複合量子構造の発光信号を計測した。その結果、残念ながら、量子ドットの発光信号と、近接する井戸層の背景信号が重なり、光子信号を取り出せないことが分かった。そこで実験対象を見直し、以下に記載するように、原子層2次元材料であるh-BNを用いた近接場増強効果の検証を行なった。

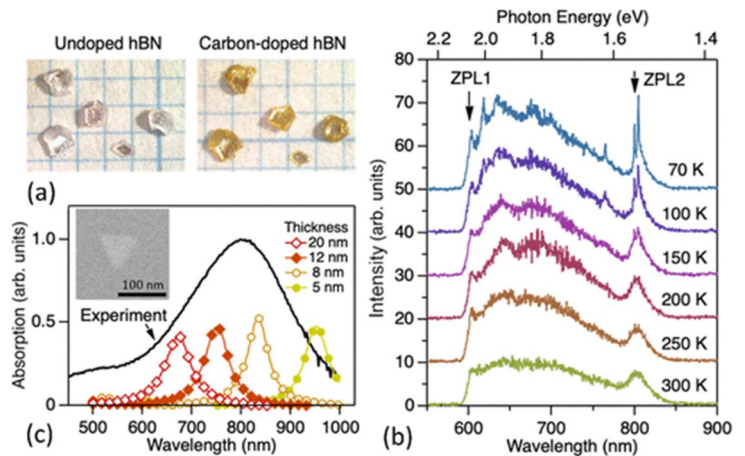
2. A. ②金属ナノプラズモン共振器による発光増強

図(2. A)-1に、実験に用いるhBN色中心(カラーセンター)の発光特性を示す。色中心とは、透明材料に不純物が混入するとき、その不純物原子の近傍に電子が束縛された状態である。色中心は天然の量子ドットであり、近年、単一光子源等の量子応用が期待されている。

(a)は試料の写真である。高压合成で作製した高純度hBNは、透明な色合いを持つ。しかし、2000℃で熱処理すると、炭素不純物が混入することで黄色味を帯び、色中心が形成されることが分かる。

(b)は、hBN:C色中心の発光スペクトルである。広い波長帯で発光すると同時に、線幅の狭い発光線を見出した。ここでは室温300Kでも確認できる、波長800nmの強い発光線に着目する。

(c)は、近接場増強を担う金属ナノ構造の光学特性である。溶液中で自己形成した銀ナノシートは、写真に示すように、1辺が100nm程度の正3角形の形状を持つ。黒実線のスペクトルは、ナノシート分散溶液の吸光度スペクトルである。hBN:Cの発光波長に一致する800nmを中心に、金属表面プラズモンの共鳴を観測できた。このスペクトルは3角ナノシートを仮定した数値計算の結果と一致する。したがって、hBN:Cに銀ナノシートを近接させると、色中心発光と金属表面プラズモンが空間的・周波数的に共鳴し、発光信号が増大することが予想できる。

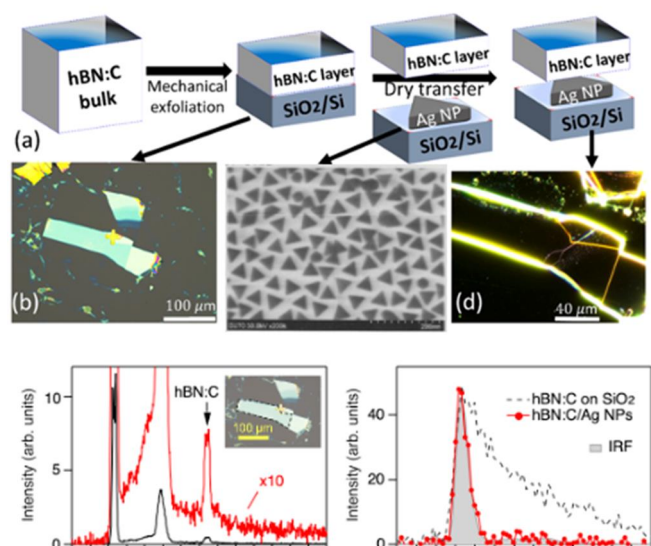


図(2. A)-1. hBN 色中心試料の作製と光学特性。
(a)不純物混入前の hBN と炭素混入後の hBN:C の試料写真。(b)色中心発光スペクトルと温度変化。
(c)金ナノシートの吸光度スペクトルと SEM 写真

図(2. A)-2は、金属ナノシートとhBN:Cとの複合体の作製方法を示す。熱処理したhBNを機械的に剥離すると、厚さ10nmオーダーの原子層厚薄膜を、容易に実現することができる。次に、SiO₂基板の上に、銀ナノシートを希薄に分散し「光アンテナ」基板を準備する。その後、剥離したhBN:C膜を転写する。

剥離したhBN:Cの干渉色から、その厚さは26nmと推測できる。したがって、薄膜中に存在するすべてに発光中心は、金属ナノシートから、わずか数ナノメートルの距離に置かれることになり、強い近接場効果の発現が期待できる。

図(2. A)-2の下側に、複合構造の発光特性を示す。左図は、発光スペクトルである。超薄膜化によって試料体積が制限されるものの、有意な発光ピークを波長800nm近傍に観測できた。



図(2. A)-2. hBN:C-金ナノシート複合体の作製と近接場増強の検証

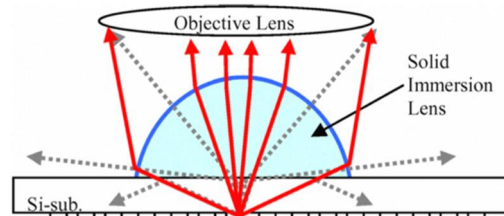
右図は、パルス励起後の発光信号の時間減衰である。波線は、金属ナノシートと結合していないhBN:Cでの発光信号を示す。この場合、発光信号は、350psの時定数で減衰する。赤線は、金属ナノシートに近接した場合の信号であり、46psの時定数で超高速に発光することが分かった。以上、金属表面プラズモンとの近接場共鳴効果により、光子発生レートを大幅に増加できることを実証した。

2. A. ③誘電体メタ表面共振器による発光増強

吸収損失が無視できる誘電体のメタ表面構造を用いた2次元共振器を設計し、作製した。これを固体の発光素子に接着することで、300倍もの共鳴増大（パーセル効果）を見出すことに成功した。今後、量子ドットを用いた実証試験を進め、超高輝度な単一光子源の実現を目指す。この結果は未発表のため別冊（項目2）に記載した。

（2. B）フォトニック構造体を用いた高効率光取り出し

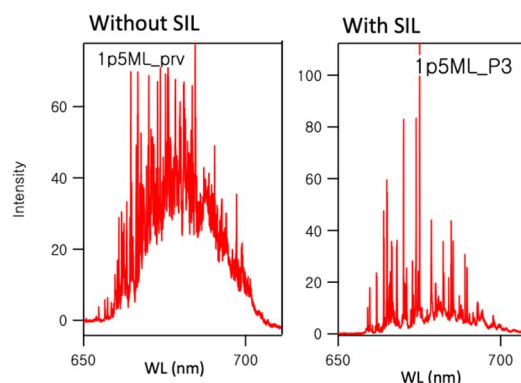
一般に固体の発光素子は、屈折率の大きな媒質に発光体が埋め込まれている。そのため、効率よく外部に光を取り出すことが難しい。高い効率で光を取り出すために、素子の表面に細かい散乱体や、周期的なレンズアレー（モスアイ構造）を作り込む方が知られている。しかし、これら既存の方法は、点光源の配置によって出射後の偏光状態が変わるため、量子もつれ光の取り出しには適用できない。そこで本研究では、固体液浸レンズ（Solid immersion lens; SIL）を高屈折率の材料で作製し、成長後の量子ドット試料の表面に装着することを検討した。



図(2.B)-1. 固体液浸レンズの装着による取り出し効率の向上

液浸レンズは、顕微鏡の空間分解能を向上する方策として、生物顕微鏡の分野でよく知られている。対物レンズと試料の間を屈折率 n の液体で浸すことにより、開口（ $NA = n \sin \theta$ ）を実効的に増加させることができ、空間分解能が向上する。このとき、集光角（立体角）は n の2乗に比例するため、取り出し効率も飛躍的に増加すると予測できる。もっとも我々の光源は冷却が必要であり、液浸レンズは使えない。しかし液浸の代わりに、固体のレンズを素子の表面に設置すれば同様の効果が得られることが知られており、固体液浸レンズと呼ばれている。とくにレンズの形状を半球とすれば、色収差と球面収差の影響が消えて、理想的な条件となる（図(2.B)-1）。

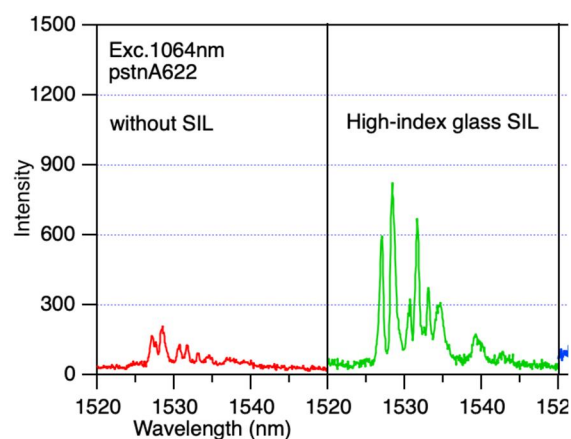
そこで最初に、市販のシリカ材料で作られた半球レンズを使い、効率向上の実証実験を行なった。図(2.B)-2は、高密度に作製したGaAs量子ドット試料（表面密度 10^{10}cm^{-2} 台）の顕微発光スペクトルである。左図は、半球レンズを装着していないときの発光スペクトルであり、量子ドットの大きさに依存して波長が異なる発光線が、多数集積していることが分かる。励起レーザーのスポット径は $1 \mu\text{m}$ 程度であり、100個程度の量子ドットからの信号を観測していることになる。右図は、半球レンズを装着したときの発光スペクトルであり、発光線の数が劇的に少なくなった。この結果から、半球レンズを装着することで、焦点のスポット径が小さくなり、観測している量子ドットの数が小さくなったことが分かる。



図(2.B)-2. シリカ半球レンズの装着による焦点スポット径の圧縮

つぎに、図(2.B)-3は発光強度の変化を比較した結果である。ここでは、同一の量子ドットの発光スペクトルを、半球レンズ装着の有無で比較した。試料は本研究で作製した波長1.5 μ m量子ドットである。左が半球レンズ未装着時の信号で、右が装着時の信号である。レンズを付けると、4倍程度、信号が増大することが分かる。すなわち、取り出し効率が、飛躍的に増大することを確認できた。ここで用いた半球レンズ、所謂、高屈折率ガラスで作られているもので、その屈折率は約2である。したがって、ほぼ理論予測通りの取り出し効率になっていることが分かった。

本研究では、さらに屈折率の大きい材料を用いて半球レンズを作製し、それを装着することで、一層の効率向上を目指した。その進捗については、知財確保のため、別冊に記載した。結果は現時点で、市販のシリカ系半球レンズの性能を有意に上回る効率は観測できていない。しかし問題となる要因は分かっており、比較的容易に改善可能と見込んでいる。今後も研究を継続する。



図(2.B)-3. シリカ半球レンズの装着による発光強度の増大

4. 委託業務全体の成果

4. 1 計画時に想定していなかった成果（副次的成果）や、目標を超える成果

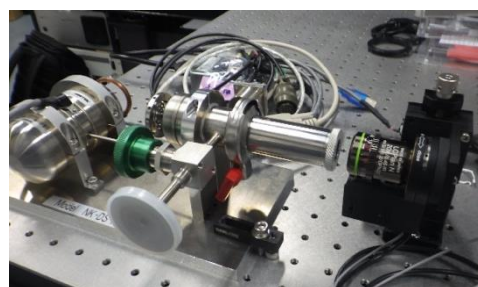
量子もつれ対の発生には光学的な異方性のない理想量子ドットを使うことが不可欠である。一般に、このような理想量子ドットを見出す確率は、試料全体の量子ドットの1%以下であり、量子光源の汎用化を阻む最大の要因となっていた。本研究では、格子不整合のある歪み条件の量子ドット発現機構を明らかにできたが、その基礎知見を基に、量子ドットの形状最適化を進めた結果、理想量子ドットを見出す確率（歩留まり）を50%以上に向上させることに成功した。また異方性が残る量子ドットに対しても、非線形光学手法を用いて、プロセス不要で、外部から対称性を回復する画期的な方法を提案し、その実証に成功した。

以上の結果から、成功確率100%で量子もつれを発生できる革新的な方法論を確立できた。結果の一部について別冊（項目4）に記載する。

4. 2 研究課題の発展性（間接的成果を含む）

本研究は量子ドットの耐温度特性を向上することにより、液体ヘリウム寒剤や大型冷凍機要らずの、持ち運びのできるポータブル量子光源の実現を目指すものである。そこで、将来、産業界への波及を見据え、小型のスターリング冷凍機に、我々の液滴エピ成長量子ドットを実装した量子光源装置の組み立てを目下進めている。写真を右に示す。

光源装置の試作に使っているスターリング冷凍機は、赤外受光素子の冷却や人工衛星搭載を目的に、近年、急速に技術開発が進められているものであり、設置面積は15cm x 20cm、消費電力は100W以下の仕様を持つ。さらに冷却時の到達温度が45Kであり、本研究で開発した量子ドットであれば、量子もつれ対の発生が十分可能である。これにより、持ち運びのできるポータブル量子光源を実現し、今後、移動体量子通信等への実装を目指していく。無線通信の安全性を究極的に保証する革新技术に繋げたい。



量子ドットを実装したポータブル量子光源の組み立て

4. 3 研究成果の発表・発信に関する活動

論文発表についてはNanophotonicsなど著名な学術誌にこれまで7報が掲載され、現在も複数の論文原稿を執筆中である。また、本研究の成果を含む量子ドット光源の開発状況について、国際学会の招待講演を6件行ない、一般向けの解説記事を2件執筆した。

人材育成として、九州大学の大学院博士課程の学生1人（中国籍）を研究指導し、本研究の課題を専任で担当してもらった。現在、本研究で得た成果を主とする博士論文を執筆中である。また令和6年には、沼津高専の4年生（学部1年に相当）1名を4週間、インターンとして受け入れ、本研究予算で購入した量子もつれ発生器の評価試験を一緒に行った。たいへん意欲的な学生であり、今後の我が国の量子技術を支える人材、所謂、量子ネイティブ（量子論的な世界観を常識とする若手人材）の創出につなげた。また国内国外の学生や、民間会社の技術者に向けて、特別講義やオンラインで複数セミナーを行い、材料科学の視点からの量子技術の開発状況を紹介し、人材発掘と研究者養成につなげた。

5. プロジェクトの総合的推進

5. 1 研究実施体制とマネジメント

おおむね計画通り2ヶ月1度の頻度でミーティングを行い、進捗の報告・確認と研究者間の調整にあたった。なお、当初参画していた外国籍のポスドク研究員2名が、所外に新しい職を得たため離任したが、その後も研究補助者として参画を継続した。そのためオンライン会議で、成果の取りまとめや論文作成の指導を実施した。

5. 2 経費の効率的執行

近年の国際情勢の影響で、化合物半導体の結晶基板など、希少金属を含む材料の供給が滞り、たとえ入手できても、たいへん納期が長くなっている。また、輸入製品の価格上昇が激しい。そのため、物品購入に際しては、できるだけ早期に契約することや、可能なかぎり国内製造の製品を選択することを心がけた。

6. まとめ、今後の予定

本研究では、小型汎用の量子光源実現に求められる量子ドットの高品位化に取り組んだ。量子ドットは単一光子や量子もつれ状態を確定的に発生できる唯一の光源媒体だが、従来、極低温環境が必要であり応用を阻んでいた。そこで結晶成長技術の高度化、及びナノフォトニクス構造との融合により高温・高輝度の動作実現を目指した。

その結果、閉じ込めの強い格子不整合系での液滴エピタキシー成長手法を確立し、光子発生における耐温度特性の飛躍的な向上に成功した。またフォトニクス構造の共振器効果による効率改善に成功した。この結果、既存の小型冷凍機と組み合わせることで汎用量子光源が実現可能であることを確認づけた。

今後の取り組みとしては、引き続き量子ドットの高品位化による高輝度化・高安定化を進めると同時に、開発した光源を用いた自由空間伝送の実証、量子中継動作の検証など、社会実装に向けた取り組みも進めていく。

未来の情報ネットワークは、量子コンピューターや量子メモリー及び様々な量子IoT素子が有線・無線で並列につながった量子インターネット構成すると予想される。そこでは、個々の通信ノードに置かれたデバイスは、量子もつれ状態でネットワークに結び付けられている。我々が開発する量子光源はこのような大規模量子インターネットを支える基本要素そのものであり、今後の社会変革に備え引き続き研究開発を進めていきたい。

7. 研究発表、知的財産権等の状況

(1) 研究発表等の状況

種別	件数
雑誌論文	7件
学会発表	11件
展示	該当なし
図書	2件
プレス	該当なし
その他	2件

(2) 知的財産権等の状況

該当なし

(3) その他特記事項

該当なし