

ダイヤモンド中の NV 中心を用いた単一光子発生と量子情報素子への応用

水 落 憲 和

Single Photon Emission and Quantum Information Device by Using NV Center in Diamond

Norikazu MIZUOCHI

Due to their outstanding photostability and excellent spin properties, nitrogen vacancy (NV) center in diamond have been interested as resource for single photon source and quantum register. The development of such a promising solid-state sources of single photons is a major challenge in the context of quantum communication, optical quantum information processing, and metrology. Recently, significant progresses in the realizations of highly efficient nonclassical light sources have been shown in semiconductor quantum-dots. However, a major obstacle with semiconductor structures so far is the requirement of cryogenic temperatures due to necessity to confine carriers within the dots. Here we report the realization of a stable room temperature electrically driven single-photon source based on a single NV center in diamond. Our results suggest that defects in diamond semiconductor can be used as a stable room temperature electrically driven single-photon source which is crucial for the large-scale applications in quantum information technology.

Key words: single photon source, NV center, diamond LED, quantum information science

1. 単一光子源と量子情報

単一光子源は量子暗号通信や量子コンピューティングにおいて必要とされる。量子暗号通信では、盗聴者がいると必ず検知できる究極の安全な通信技術として期待されている。この実現には、情報を載せる光子の1個1個を必要ときに簡易かつ確実に発生させる単一光子源が求められている¹⁾。非古典光である単一光子を操ることにより、不確定性原理、ノークローニング定理、量子もつれ等の量子力学の原理を利用できるのである。

単一光子源の開発研究は、おもに量子ドットを中心に行われてきた¹⁻³⁾。近年では、LED素子による量子もつれ光発生の実現もなされている⁴⁾。また単一光子源としては、単一分子を用いたものも研究されている。量子ドット^{2,3)}や有機分子⁵⁾を用いた既存のほとんどの単一光子源は、極低温での冷却が必要である。また、室温で単一光子を発生できても、光励起のためのレーザーが必要なものしか実現されていない。よい単一光子源がないため、現在企業等

で研究開発されている量子暗号システムでは、微弱なレーザー光を擬単一光子源として用いている場合が多い。

近年、われわれはダイヤモンド中の窒素-空孔複合体欠陥中心 (NV 中心, 図 1a) がもつ優れたスピンの特性および光学特性に注目し、研究を行ってきた⁶⁻⁹⁾。図 1b に、室温で測定した NV 中心の共焦点レーザー蛍光顕微鏡像を示す。このように、手に取るように1つ1つの NV 中心を室温で観測できる。近年、NV 中心以外の発光中心も研究が活発になされている。室温での単一光子発生は、これまでダイヤモンドにおいてシリコンと空孔の複合欠陥 (SiV 中心), Cr 欠陥関連, ニッケルと空孔の複合関連欠陥 (NiV) において実現されていた¹⁰⁾。一方で、NV 中心は基底状態が電子スピン三重項状態であるため、電子スピンをもつ。単一 NV からの発光のみを観測することにより、その単一のスピンを観測することができる。現在、ダイヤモンドのみならず量子ドット等の固体系において、単一スピンを室温で観測および操作できるのは、NV 中心のみである。

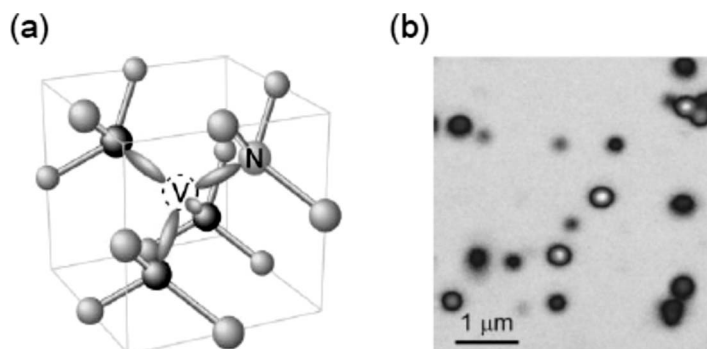


図1 (a) ダイヤモンド中の窒素-空孔複合欠陥 (NV 中心) の構造. (b) ダイヤモンド試料における共焦点レーザー蛍光顕微鏡像. 測定温度は室温. 蛍光波長が 650~750 nm 付近の発光を表示している. 丸い輝点が単一 NV 中心で, ピエゾステージ等で位置を制御することにより単一 NV 中心のスピンの情報を選択的に光検出できる. 単一であることはアンチバンチングの測定から決定される.

最近われわれは, スピン, 光子, 電荷の間の量子インターフェースとしての役割を NV 中心が担えるのではないかという観点から, スピン, 単一光子発生, 電荷状態の電氣的制御にも注目して研究を行っている. 最近では単一 NV⁻の電荷状態を初めて電氣的に制御することができた¹¹⁾. スピンと光子間の量子インターフェースという観点では, NV 中心のスピンの光子との量子もつれ生成¹²⁾や, 3メートル離れた NV 中心間の量子もつれ生成¹³⁾がそれぞれハーバート大やデルフト大で実証され, 非常に注目されている.

われわれはダイヤモンドを材料とし, そこに埋め込まれている NV 中心が室温でも安定に発光することに着目し¹⁴⁾, 電氣的に動作させることに成功したので, 本稿では, おもにその研究結果について紹介させていただく^{15,16)}. また, 光励起の場合と電流注入による単一光子発生の場合でダイナミクスが大きく異なるという, われわれが知る限りこれまで量子ドット等では観測されない現象が観測された. この点は, 発光機構解明という観点から興味もたれる.

量子暗号通信のさらなる長距離化と高速化には, 単一光子源に加え, 量子中継器の実現も必要であり, 量子中継器では量子演算処理と量子メモリーが要求される^{17,18)}. 今回の成功は, そのような素子への応用が期待される NV 中心において成功した点でも重要である. 具体的には, 単一光子源としてのみならず, 電氣的なスピンの制御や量子メモリー時間の長時間化につながる可能性を秘めており^{11,12)} 今後の電氣的に動作するスピントロニクス素子としての応用へも道を拓く大きな一歩と考えられる.

2. 実験結果と議論

1つの NV 中心のみを観測するためには, 不純物のないきわめて高品質なダイヤモンドに NV 中心が埋め込まれて

いることが必要である. それは光による観測では回折限界による分解能の限界のため, おおよそ光の半波長レベル以上に 1 個 1 個の NV 中心が離れている必要があるためである. 例えば通常の共焦点レーザー顕微鏡を用いた場合, 単一の NV 中心を観測するには, 同じ波長域に発光を有する発光中心の濃度は, おおよそ 0.1 ppb ($10^{13}/\text{cm}^3$) 未満にする必要がある. 近年, ダイヤモンド半導体材料開発研究の発展は目覚ましく, 日本から初の n 型膜合成の成功¹⁹⁾, p-n 接合による自由励起子の観測²⁰⁾, およびその LED の高効率化²¹⁾ が CVD 合成法によりなされてきた. しかし, p 型膜, n 型膜において, 発光中心をその濃度レベルまで抑えることは難しい. そこで今回, 産業技術総合研究所エネルギー部門 (山崎聡主幹研究員) のグループに依頼し, 高品質ダイヤモンド (i 層) を, リンをドーブした n 層とホウ素をドーブした p 層で挟んで p-i-n 構造の素子を作製してもらい, 研究を行った. 高温高圧法により作製したホウ素ドーブ p 型基板に i 層および n 層を CVD 法により作製した. i 層の単一 NV 中心からの発光を直接捉えるため, 図2のようにメサ構造を作製した. リンおよびボロンのドーブ量はそれぞれ $\sim 1 \times 10^{18}/\text{cm}^3$, $\sim 1 \times 10^{19}/\text{cm}^3$ である. それぞれのホール移動度は室温で $150 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$, $10 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ である. i 層は NV 中心が観測できないほど高品質で, イオン注入をしない場合の NV 中心の濃度は $10^7/\text{cm}^3$ より低い. NV 中心は試料作製後にイオン注入とその後のアニールによって作った. 30 V で 9 桁ほどのよい整流特性が得られた.

自作の共焦点顕微鏡装置を用いることにより, 1つ1つの NV 中心を光学検出し, NV 中心からの発光 (エレクトロルミネセンス: EL) を観測することができた¹⁵⁾. 図3 (a) は光励起による単一 NV 中心からの発光 (フォトルミネセンス: PL) スペクトルで, 図3 (b) は同じ位置での電流注

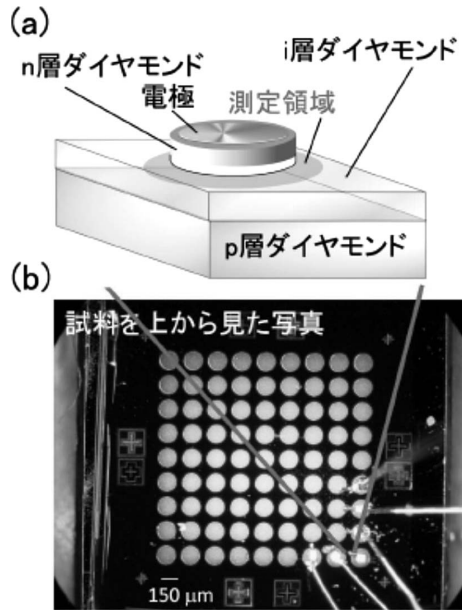


図2 (a) 電流注入型単一光子発生素子の概略図。高品質ダイヤモンド (i層) を、リンをドーパしたn層とホウ素をドーパしたp層で挟んだp-i-n型ダイオード構造を用いた。i層の単一NV中心からの発光を共焦点顕微鏡により観測している。(b) 実際の素子を上から見た写真。丸い電極は直径約200 μm。n層面とp層面に電極 (Au/Pt/Ti) を作製し、ワイヤーボンディング等で接続している。

入による単一NV中心からのELスペクトルである。ELスペクトルにおいてゼロフォノンライン (ZPL) が575 nmで観測されたこと、およびフォノンバンドによるブロードな発光スペクトルの形状から、電荷状態が中性のNV (NV⁰) であることがわかる¹⁵⁾。ちなみに、-1 価の電荷状態 (NV⁻) の場合のZPLの波長は、図3 (a) にも示されてい

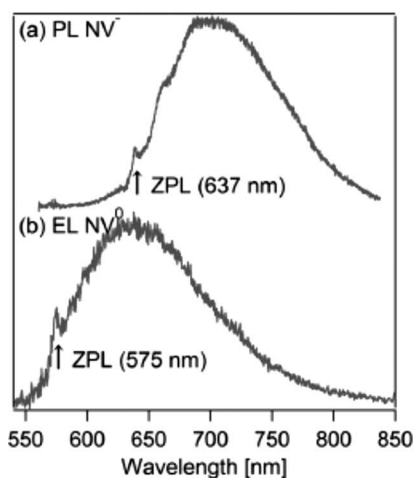
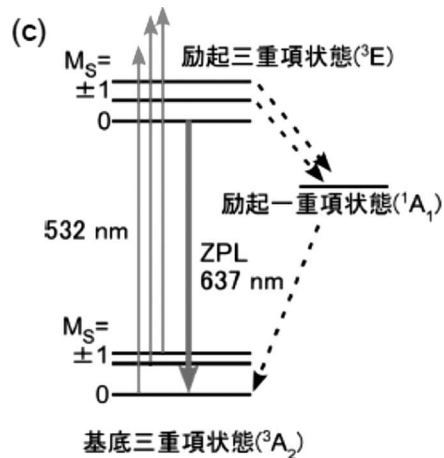


図3 (a) NV⁻のフォトルミネセンススペクトルと (b) NV⁰のエレクトロルミネセンススペクトル。それぞれの電荷状態のスペクトルにおけるゼロフォノン線 (ZPL) を矢印で示している。(c) 三重項副準位を含めたNV中心の電子状態の模式図。



るように637 nmである。

われわれは単一NV中心からの単一光子の発光であることを決定するため、ハンブリー・ブラウンとトウイスの実験による二次相関関数 $g^2(\tau)$ の測定を行った。詳細は省略するが、

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{a}^+ \hat{a}^+ \hat{a}^- \hat{a}^- \rangle}{\langle \hat{a}^+ \hat{a}^- \rangle^2}$$

であることから、光子数状態 $|n\rangle$ について、 $g^{(2)}(0)$ を求めると以下のように表される²²⁾。ここで \hat{a}^+ , \hat{a}^- は光子数状態に対する昇降演算子である。

$$g^{(2)}(0) = \begin{cases} 0 & (n=0, 1) \\ 1 - \frac{1}{n} & (n \geq 2) \end{cases}$$

ここで $n=1$ のとき、つまり単一発光中心から光が放出され、バックグラウンドノイズが全くない場合は、 $g^{(2)}(0)=0$ となる。一方、 $n=2$ のとき、つまり2つの単一発光中心から光が放出され、バックグラウンドノイズが全くない場合は、 $g^{(2)}(0)=1/2$ となる。実際の実験ではバックグラウンドノイズが存在するため、単一発光中心からの光を観測していても $g^{(2)}(0) > 0$ となる。一方、上記の関係式より、 $0.5 > g^{(2)}(0) > 0$ の場合は、 $n=1$ のときしかありえないので、単一発光中心からの光を観測していることが判明する。これが単一かどうかを決める決定的な証拠となるわけである。ちなみに、 $g^{(2)}(0) < 1$ となる光の状態は、アンチバンチングとよばれる。アンチバンチングは光を波として古典的に考えることでは説明できない。このことから、アンチバンチングを示す光を非古典光とよぶ。アンチバンチングの現象は光を粒と考えると説明できる。 $g^{(2)}(0)$

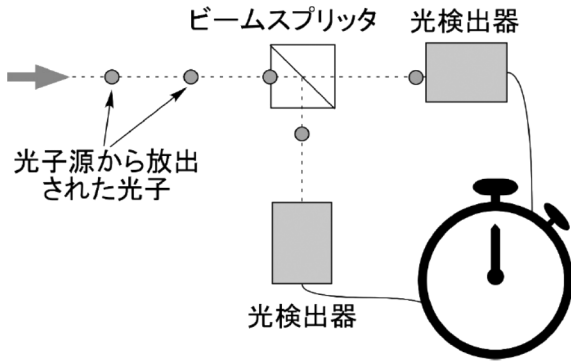


図4 ハンブリー・ブラウンとトゥイスの実験の模式図. 2つの光検出器(シングルフォトンカウンティングモジュール)で検出した単一光子間の時間を計測する. 計測された時間をヒストグラム表示することにより, 相関関数が得られる.

の値は, 単一光子源の性能指数としても重要である. $g^{(2)}(0)$ が1のとき, 1より小さいとき, 0のとき, その光子源をそれぞれ, ポアソン光源, サブポアソン光源, 理想単一光子源とよぶ¹⁾.

図4にハンブリー・ブラウンとトゥイスの実験の模式図を示した. 2つの光検出器(シングルフォトンカウンティングモジュール)で検出した単一光子間の時間を計測する. 計測された時間をヒストグラム表示することにより, $g^{(2)}(\tau)$ が得られる. 図5に強度相関関数 $g^{(2)}(\tau)$ と光子検出の時系列を示した. $\tau=0$ 付近で相関が強くなる, つまり光子が束のように密集する場合をバンチングといい, 図5(a), (b)に示した. 一方, $\tau=0$ 付近で相関が弱まる, つ

まり光子がある一定の間隔以上にまばらになることが多くなる場合をアンチバンチングといい, 図5(c), (d)に示した. 単一発光体からの発光の場合, 励起状態から基底状態までに有限な寿命をもつので, 図5(d)に示したように, 放出される光子は寿命程度の間隔以上にまばらになって放出され, アンチバンチングが観測されるわけである. つまり重要な点として, このときのアンチバンチングの $\tau=0$ からの立ち上がりの時定数は, 寿命や励起速度などの時定数(ダイナミクス)による. したがって, この解析からダイナミクスに関する情報が得られる.

図5(e)に, 光励起による単一NV中心のアンチバンチング, 図5(f)に, (e)と同じNV中心において観測された電流注入によるアンチバンチングを示した. $\tau=0$ における値がそれぞれ0.5未満であることから, 単一のNV中心からのELであることが証明された. 図に示されているように, アンチバンチングの観測では, $\tau=0$ から $g^{(2)}(\tau)=1$ に向かう減衰時間が, PLとELの場合で大きく異なることがみてとれる. これは, PLとELの場合で単一光子発生ダイナミクスが大きく異なることを意味する. NV中心の光励起状態の寿命は13 nsと求められ¹⁵⁾, 光励起状態と基底状態の二準位間のみでの遷移を考えただけではELのアンチバンチングの遅い減衰は決して説明できない. このようなPLとELでの大きな違いは量子ドットや分子では観測されておらず, 当初は皆目見当がつかず理解に頭を悩ませた. 思案の末, これを図6(a)で3とラベルした第3の状

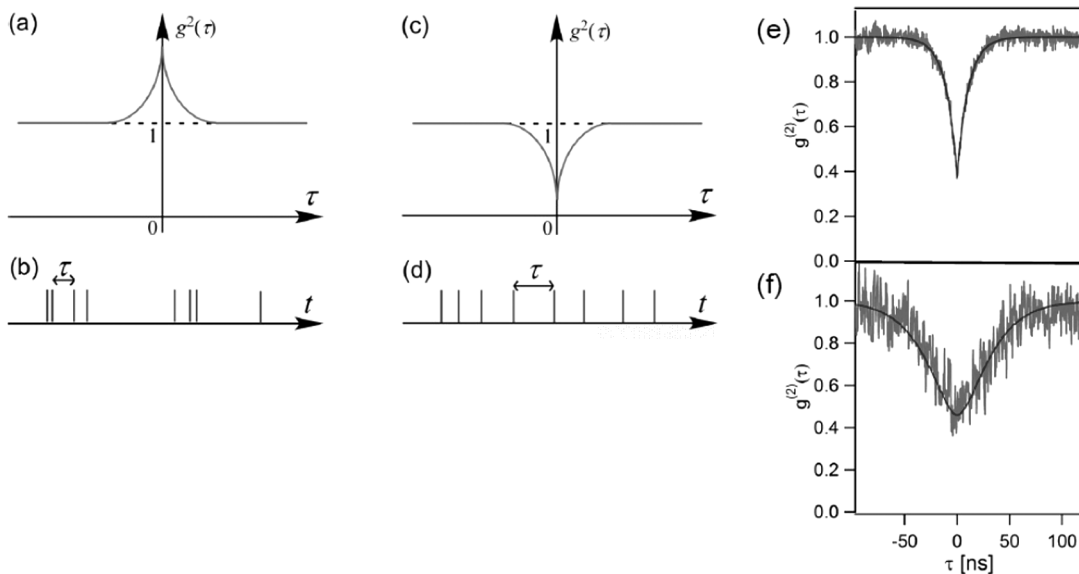


図5 強度相関関数 $g^{(2)}(\tau)$ と光子検出の時系列. (a), (b) バンチング, (c), (d) アンチバンチング, (e) 光励起による単一NV中心のアンチバンチングで (f), (e) と同じNV中心において電流注入による単一NV中心のアンチバンチングである. $\tau=0$ における値がそれぞれ0.5未満であることから, 単一のNV中心からのELであることが証明された.

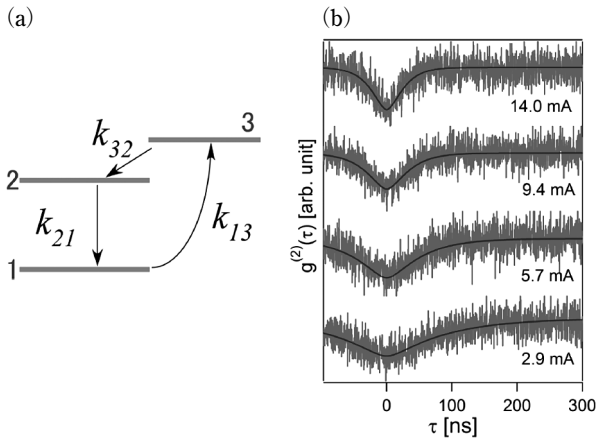


図6 エレクトロルミネセンス (EL) のアンチバンチングの電流依存性と発光機構. (a) 解析で用いた三準位の概略図, (b) EL のアンチバンチングの電流依存性.

態が関与しているのではないかと考え、速度方程式を解析的に解いて強度相関関数 $g^2(\tau)$ を求めた¹⁶⁾。結果として、図6 (b) において実線で示したように実験結果を再現することができた。ここで速度方程式のパラメーターとしては、励起状態2から基底状態1への遷移速度 k_{21} は実験から求められた 13 ns を用いて固定し、励起状態3から基底状態2への遷移速度 k_{32} は実験から求めたアンチバンチングの解析から求めた値 (266 ns) を固定値として用い、 k_{13} のみをフィッティングパラメーターとして用いた。 k_{13} の値は電流値に対して比例することが解析から示された¹⁶⁾。次に、 k_{13} がどのような機構で決まるのかを知るため、Shockley-Read-Hall統計 (SRH) による再結合の見積もりを行った。実験結果の解析から 4 mA の場合 k_{13}^{-1} は 80 ns と求められたが、文献値を用いた SRH による再結合速度の見積もりでは 20 ns と求められた¹⁶⁾。再結合速度の見積もりに用いた各パラメーターの報告値は不確かさや誤差が非常に大きいため、もっと違いが大きく異なることも予想したが、予想以上に近い値であった。この比較から機構が SRH による再結合と結論付けられるわけではないが、比較として重要と考えている。また第3の状態については、われわれは群論と *ab initio* 法による理論計算により議論を行った¹⁶⁾。計算結果からはスピン量子数 S が $S = 3/2$ の励起状態で電子が強く、またホールが弱く結合した状態が存在することが示された。この結果は自由励起子が捕獲され、この状態を介して NV^0 が発光するため、PLとELではダイナミクスが違っている可能性があることを示している。また、寿命が長くなる理由は、 NV^0 の基底状態が $S = 1/2$ のためスピン禁制になることにより、遷移が遅くなるためと解釈できる。

4. まとめと展望—スピンを用いた量子情報素子との融合

今回の、室温での電流注入による単一光子発生の実証成功は、固体において初めてである。電流注入素子ではおおがかりな装置が必要なく、チップ上での集積化にとって重要で、これまでの半導体技術による素子により、量子的な光を生成できることは画期的なことである。また、光励起による動作では原理的に実現できない操作を、将来、電気的な動作により実現することが期待される。例えば、光の回折限界領域内の複数の NV 中心に対し、同時かつ並行にそれらのスピンおよび光子の操作および検出をすることがあげられる。これは将来の多量子ビット化や素子の集積化に繋がる点でも重要である。発光強度および効率に関しても、ソリッドイマージョンレンズ、ナノピラー、共振器を作成することにより、桁違いの発光検出効率が向上することがフォトルミネセンスの試料において報告されている^{23,24)}。われわれの素子と組み合わせ、エレクトロルミネセンスでも桁違いの発光検出効率の向上も期待できる。NV 中心は優れたスピンの特性をもち、現状では固体で単一スピンを操作および検出できる唯一の発光中心である。量子暗号通信や量子コンピューティングのみならず、磁気センサーやバイオマーカーとしても幅広い分野での応用が期待されている。今回の成功は、単一光子源のみならず、電氣的に動作するスピントロニクス素子としての応用へも道を拓く大きな一歩になると考えられる。

われわれの電流注入型単一光子源実現の論文投稿後に、室温動作する単一光子源という観点に関連する論文が他誌に投稿された^{25,26)}。一つは分子を用いた室温動作する電流注入型単一光子発生素子である²⁵⁾。もう一つはダイヤモンドを用い、横型の p-i-n 構造を用いた単一光子発生素子であるが、p 型、n 型をそれぞれイオン注入および高温アニールにより作製したと主張している²⁶⁾。イオン注入での n 型薄膜作製は画期的な結果であるが、ホール測定による n 型判定およびホール移動度の記載はない。ご興味のある方はそちらもご覧いただければと思う。

本研究で用いたダイヤモンド LED は産業技術総合研究所エネルギー部門の設備で、牧野俊晴博士、加藤宙光博士、小倉政彦博士、竹内大輔博士、大串秀世博士、山崎聡博士らの支援のもと作製された。また、研究結果についてシュトゥットガルト大学の M. Nothaft 博士、P. Neumann 博士、J. Wrachtrup 教授、ウルム大学 F. Jelezko 教授、ブタペスト経済工科大学の A. Gali 博士らと有益な議論を行うことができた。関係各位に深く感謝する。本研究

は科学研究費，総務省戦略的情報通信研究開発推進事業 (SCOPE)，情報通信研究機構 (NICT)，科学技術振興機構 (JST) さきがけ，CREST から支援をいただいた。

文 献

- 1) C. Santori, D. Fattal and Y. Yamamoto: *Single-Photon Devices and Applications* (Wiley, 2010).
- 2) Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S., Beattie, D. A. Ritchie and M. Pepper: "Electrically driven single-photon source," *Science*, **295** (2002) 102-105.
- 3) S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Götzinger, Y. Yamamoto and Y. Arakawa: "A gallium nitride single-photon source operating at 200K," *Nature Mater.*, **5** (2006) 887-892.
- 4) C. L. Salter, R. M. Stevenson, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie and A. J. Shields: "An entangled-light-emitting diode," *Nature*, **465** (2010) 594-597.
- 5) B. Lounis and W. E. Moerner: "Single photons on demand from a single molecule at room temperature," *Nature*, **407** (2000) 491-493.
- 6) X. Zhu, S. Saito, A. Kemp, K. Kakuyanagi, S. Karimoto, H. Nakano, W. J. Munro, Y. Tokura, M. S. Everitt, K. Nemoto, M. Kasu, N. Mizuochi and K. Semba: "Coherent coupling of a superconducting flux qubit to an electron spin ensemble in diamond," *Nature*, **478** (2011) 221-224.
- 7) P. Neumann, N. Mizuochi, F. Rempp, P. Hemmer, H. Watanabe, S. Yamasaki, V. Jacques, T. Gaebel, F. Jelezko and J. Wrachtrup: "Multipartite entanglement among single spins in diamond," *Science*, **320** (2008) 1326-1329.
- 8) N. Mizuochi, P. Neumann, F. Rempp, J. Beck, V. Jacques, P. Siyushev, K. Nakamura, D. Twitchen, H. Watanabe, S. Yamasaki, F. Jelezko and J. Wrachtrup: "Coherence of single spins coupled to a nuclear spin bath of varying density," *Phys. Rev. B*, **80** (2009) 041201(R).
- 9) G. Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuochi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tissler, V. Jacques, F. Jelezko and J. Wrachtrup: "Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond," *Nat. Mater.*, **8** (2009) 383-387.
- 10) I. Aharonovich, S. Castelletto, D. A. Simpson, C-H. Su, A. D. Greentree and S. Praver: "Diamond-based single-photon emitters," *Rep. Prog. Phys.*, **74** (2011) 076501.
- 11) Y. Doi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, H. Morishita, T. Tashima, S. Miwa, S. Yamasaki, J. Wrachtrup, Y. Suzuki and N. Mizuochi: "Deterministic electrical charge-state initialization of single nitrogen-vacancy center in diamond," *Phys. Rev. X*, **4** (2014) 01107.
- 12) P. C. Maurer, G. Kucsko, C. Latta, L. Jiang, N. Y. Yao, S. D. Bennett, F. Pastawski, D. Hunger, N. Chisholm, M. Markham, D. J. Twitchen, J. I. Cirac and M. D. Lukin: "Room-temperature quantum bit memory exceeding one second," *Science*, **336** (2012) 1283-1286.
- 13) H. Bernien, B. Hensen, W. Pfaff, G. Koolstra, M. S. Blok, L. Robledo, T. H. Taminiau, M. Markham, D. J. Twitchen, L. Childress and R. Hanson: "Heralded entanglement between solid-state qubits separated by three metres," *Nature*, **497** (2013) 86-90.
- 14) C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda and H. Weinfurter: "Stable solid-state source of single photons," *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2000) 290-293.
- 15) N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup and S. Yamasaki: "Electrically driven single-photon source at room temperature in diamond," *Nat. Photonics*, **6** (2012) 299-303.
- 16) N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup and S. Yamasaki: "Supplementary information for "Electrically driven single photon source at room temperature in diamond,"" *Nat. Photonics*, **6** (2012) Supplementary information.
- 17) 山本喜久: "量子情報技術の現状と展望", *応用物理*, **75** (2006) 1307-1316.
- 18) 小坂英男: "光子と電子スピンを用いた量子中継器・量子メモリへ向けた取り組み", *応用物理*, **75** (2006) 1335-1339.
- 19) S. Koizumi, M. Kamo, Y. Sato, H. Ozaki and T. Inuzuka: "Growth and characterization of phosphorous doped {111} homoepitaxial diamond thin films," *Appl. Phys. Lett.*, **71** (1997) 1065-1067.
- 20) S. Koizumi, K. Watanabe, M. Hasegawa and H. Kanda: "Ultraviolet emission from a diamond pn junction," *Science*, **292** (2001) 1899-1901.
- 21) T. Makino, K. Yoshino, N. Sakai, K. Uchida, S. Koizumi, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, K. Oyama, T. Matsumoto, H. Okushi and S. Yamasaki: "Enhancement in emission efficiency of diamond deep-ultraviolet light emitting diode," *Appl. Phys. Lett.*, **99** (2011) 061110.
- 22) 久我隆弘: 量子光学 (朝倉書店, 2003).
- 23) T. M. Babinec, B. J. M. Hausmann, M. Khan, Y. Zhang, J. R. Maze, P. R. Hemmer and M. Lončar: "A diamond nanowire single-photon source," *Nat. Nanotechnol.*, **5** (2010) 195-199.
- 24) H. Bernien, L. Childress, L. Robledo, M. Markham, D. Twitchen and R. Hanson: "Two-photon quantum interference from separate nitrogen vacancy centers in diamond," *Phys. Rev. Lett.*, **108** (2012) 043604.
- 25) M. Nothaft, S. Höhla, F. Jelezko, N. Frühauf, J. Pflaum and J. Wrachtrup: "Electrically driven photon antibunching from a single molecule at room temperature," *Nat. Commun.*, **3** (2012) 628.
- 26) A. Lohrmann, S. Pezzagna, I. Dobrinets, P. Spinicelli, V. Jacques, J.-F. Roch, J. Meijer and A. M. Zaitsev: "Diamond based light-emitting diode for visible single-photon emission at room temperature," *Appl. Phys. Lett.*, **99** (2011) 251106.

(2014年4月23日受理)