

令和 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02909

研究課題名(和文) 0次元および2次的に閉じ込められた励起子の共鳴励起による区別のつかない光子発生

研究課題名(英文) Indistinguishable photon generation by resonant excitation of excitons confined in zero and two dimensions

研究代表者

池沢 道男 (IKEZAWA, MICHIO)

筑波大学・数理物質系・准教授

研究者番号：30312797

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,700,000円

研究成果の概要(和文)：GaAs中の窒素発光中心について、窒素をデルタドーブしたフォトニック結晶共振器を作製し、L3欠陥に閉じ込められた電磁波モードとの結合によって、発光レートを6.3倍増大させることができた。これによって区別のつかない光子の条件により近づけることができる。2光子干渉の明瞭度を悪化させる位相緩和のメカニズムを理解するために重要なフォトンエコー信号をデルタドーブしたGaAs:Nについて初めて得ることができた。単一半導体ナノプレート低温下で観測し、高速の単一光子発生を観測したほか、単層の遷移金属ダイカルコゲナイド微小結晶について低温下で量子ドットのような振る舞いを観測した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

区別のつかない光子を固体素子から大量に得ることは、量子暗号通信や量子コンピュータをはじめとする今後の量子情報技術の発展のためには不可欠である。半導体量子ドットが有望な光源として研究されているが、量子ドットの個性に起因する困難に直面している。本研究はその問題に対して、半導体中の単一欠陥や、単一の微小な薄い半導体結晶のような新しい材料に、共鳴光励起という励起法を用いてアプローチしようとしている。研究期間内にはそのために必要な基礎的な知見が得られ、いくつかの実験的課題を解決できた。

研究成果の概要(英文)：Photonic crystal resonators with delta-doped nitrogen were fabricated for a nitrogen luminescence center in GaAs, and the emission rate was increased by 6.3 times by coupling with a resonance mode confined in the L3 defect. This makes it easier to meet the conditions for indistinguishable photon generation.

We obtained photon echo signals for delta-doped GaAs: N, which are important for understanding the mechanism of phase relaxation that deteriorates the visibility of two-photon interference, for the first time.

We observed single semiconductor nanoplates at low temperatures, and observed fast single photon generation. We also observed quantum dot like behavior in single layer transition metal dichalcogenide microcrystals at low temperatures.

研究分野：固体光物性

キーワード：単一光子源 発光中心 半導体ナノプレートレット 遷移金属ダイカルコゲナイド

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 量子情報技術の多くの場面で、量子情報のキャリアである光子は、完全に同一であり、明瞭な干渉効果を示すことが望まれている。そのような「区別のつかない光子」を固体素子から発生させる事は、集積化・多ビット化のためにも非常に重要である。

(2) 固体材料による単一光子源の最有力候補として、これまで半導体量子ドットが盛んに研究されてきたが、半導体量子ドットは数百個以上の原子から成るため、サイズ分布・形状分布に起因する不均一性が避けがたく、例えば個々のドットから放射される光子のエネルギーや微細分裂が量子ドットごとに異なるなどの問題がある。そのため、光子はエネルギーで区別できてしまうので、別々のドットから発生した2光子の間の干渉を高い明瞭度で起こすのは大変難しい。

### 2. 研究の目的

もつれ合い光子対などの、光子を用いた量子情報技術にとって不可欠な「区別のつかない光子」を、半導体中に0次元および2次元に閉じ込められた励起子の共鳴光励起によって発生させるための研究を行う。

光子源としては、エネルギーが揃った多数の光源が得られる可能性がある III-V 族化合物半導体中の窒素等電子不純物による発光中心、および、低温で超高速の光応答が期待される原子層レベルでフラットな構造を持つ半導体ナノプレートレットを考える。また、単層の遷移金属ダイカルコゲナイド微結晶の単一光子源としての可能性を検討する。これらの特徴ある光源を共鳴光励起することによって、区別のつかない光子源の集積化、および通信波長帯での超高速光子発生につながる原理的な実証を行う。

### 3. 研究の方法

(1) GaAs 中の窒素不純物による発光中心の共鳴励起について、デコヒーレンスメカニズムを理解する。パーセル効果を利用して発光寿命を短縮し、フーリエ変換限界の条件に近づける。

(2) 単一のセレン化カドミウムナノプレートレットを低温で単一観測し、超高速応答を示す単一光子源として用いる。

(3) 単層の遷移金属ダイカルコゲナイド微小単結晶の光学特性を明らかにし、単一光子源としての応用の可能性を検討する。

### 4. 研究成果

#### (1) GaAs 中の窒素不純物による発光中心

窒素不純物に束縛された励起子を共鳴励起した時のデコヒーレンス時間や、デコヒーレンス過程を把握することが重要である。区別のつかない光子を得るためには、コヒーレンス時間  $T_2$  が発光寿命  $T_1$  の2倍で与えられるフーリエ変換限界値に達している必要がある。コヒーレンス時間の有力な測定法である FWM(Four-wave mixing)法は信号強度が弱いため、単一光子源として利用可能なような、低密度で存在する発光中心について信号を取得する事はこれまで難しかった。我々は、ヘテロダイン検出法を用いることによって、図1に示すように、光学顕微鏡で個別の発光中心を区別できる程度に低濃度のデルタドーピング(1原子層のみの窒素ドーピング)試料について初めて2パルスフォトンエコー信号を検出することができた。中段に示すように、観測された位相緩和時間は60ps程度であり、より長波長側の発光中心について期待された数百ピコ秒に比べてずっと短かった。この結果は、 $T_2$  が発光中心の種類(あるいは束縛エネルギー)に強く依存していることを示していると解釈される。さらに、3パルスフォトンエコー法による観測にも成功し、縦緩和時間  $T_1$  は、 $\tau_{12}$  を大きくすると短くなることが分かった。これは第一パルスと第二パルスで形成されるポピュレーショングレーティングがスペクトル拡散によって弱められる効果に対応す

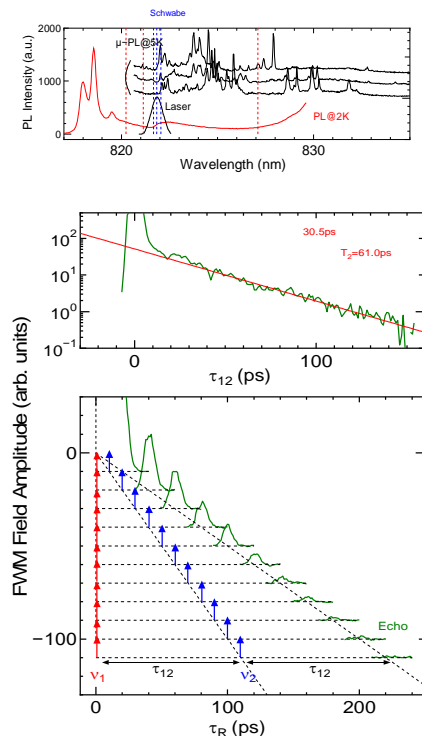


図1:(上)窒素をデルタドーピングした GaAs 試料の発光スペクトルと顕微発光スペクトル。(中)波長 822nm のピコ秒光パルスで励起した場合の時間積分 FWM 信号。 $T_2$  が 60ps 程度と分かる。(下)時間分解 FWM 信号。で示した2つの励起パルスから同じ時間だけ遅れたフォトンエコーが観測されている事が分かる。

ると考えられる。

同材料に関して、スピン緩和時間を発光の円偏光度の時間分解測定により明らかにした。試料は有機金属化学気相成長法により作製され、厚さ 5nm の GaAs/AlGaAs 量子井戸の中央部分に窒素がデルタドープされている。励起には繰り返し周波数 82MHz のピコ秒 Ti:S レーザーを用い、時間分解にはストリークカメラを用いた。右回り円偏光で試料を励起し、発光の左右円偏光成分をウォラストンプリズムと回転波長板を用いた光学系を利用して同時測定した。デルタドープ層を含まない参照用量子井戸(QW)試料では、発光ピークが 1.62eV 付近に観測される一方、デルタドープした試料では約 70meV 低い 1.55eV 付近に発光ピークが見られる。この発光帯が多数の輝線状スペクトルから成っていることが顕微 PL から確認されている。この発光帯についての励起スペクトルは、参照用 QW の発光エネルギー付近でピークを示したことから、量子井戸準位で光生成されたキャリアが等電子トラップに効率よく捕獲されていることが分かる。発光の左右円偏光成分の差の減衰時間から、スピン寿命が約 100ps と求められた。また、円偏光度の初期値は励起エネルギーの減少と共に増加し、30%超に達した。スピン寿命は温度上昇とともに減少し、一様ドープ GaAsN 井戸についての過去の報告とは異なった振る舞いが見られた。

## (2) フォトニック結晶共振器の利用

GaAs:N 中の  $NN_A$  窒素発光中心はエネルギーが揃った発光を示すため有望であるが、寿命が数 ns 程度と長い場合、フーリエ変換限界の条件に達することが難しい。そこで、フォトニック結晶共振器との結合によるパーセル効果を用いて発光寿命を短縮することが有力な方法である。我々は、図 2 の挿入図に示すような L3 欠陥を持つフォトニック結晶共振器を、窒素を中央にデルタドープした厚さ 140 nm の GaAs 薄膜に形成した。一つの共振器構造からは鋭いスペクトルを持った発光がいくつか観測され、それらの各々が単一の発光中心に起因することが光子相関測定から確かめられた。発光寿命が 400 ps 程度まで短縮できていることも分かった。高濃度ドープのため発光エネルギーにばらつきが生じたため、 $NN_A$  発光中心との単純な比較はできないが、共振器加工を施していない試料との比較や、窒素ガスを共振器に吸着させることによるキャビティモードのシフトなどによって、寿命の短縮が加工による欠陥密度の増大で非発光過程が増加したことを反映しているわけではないという事が確認でき、パーセル効果であることが結論された。

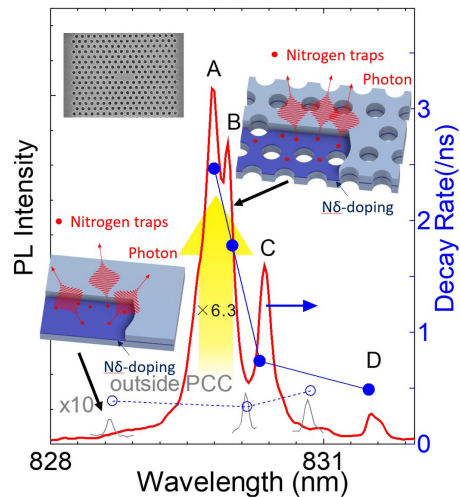


図 2：フォトニック結晶共振器のモードと結合した窒素発光中心の発光スペクトルの例。各々のピークは一つの発光中心に起因すると考えられる。平坦部と比較して、発光レートは 6.3 倍の増大を示した。

フォトニック結晶共振器によるパーセル効果は、区別つかない光子を実現するために非常に有望であるが、さらに共鳴励起によってフーリエ変換限界に近づけようとする、散乱光の問題がある。平らな表面を持つバルク半導体試料や平面的なファブリーペロー共振器と比べて、多数の穴を持つフォトニック結晶共振器については散乱光の除去が難しいと考えられる。量子ドットとフォトニック結晶共振器の結合では最近、導波路構造を有する H1 cavity 構造で共鳴励起が行われて良い結果が得られており、このように励起と検出の位置を変える方法が有望であると考えられる。そこで、GaAs 中の  $NN_A$  窒素発光中心に適する導波路とアウトプットカプラー付きのフォトニック結晶共振器構造を FDTD シミュレーションを行って検討した。膜厚と格子定数が 200 nm 程度の時に  $NN_A$  と共鳴するモードが存在し、Q 値として数千あることが分かった。

## (3) CdSe ナノプレートレット

原子層レベルでフラットな構造を持ち、原子層厚さに対応した離散的な吸収・発光スペクトルを示す半導体ナノプレートレット(nanoplatelet, NPL)は、低温で非常に短い発光寿命を示し、高速応答する単一光子源として有望である。従って均一幅が広がることから、横方向サイズのばらつきに対して寛容であるという特徴も有する。我々は、セレン化カドミウム(CdSe) NPL を化学的に合成し、5 モノレイヤー厚さの NPL について 5 K の低温で顕微分光を行い、単一 NPL の発光をとらえた。光子相関測定では明瞭なアンチバンチングが観測され、室温時と異なり 100MHz の高繰り返しレートでも十分に対応可能な短い発光寿命も確かめられた。

CdSe NPL で問題となったのは、裸の量子ドットと同様に、光照射中に発光強度が減少していく光劣化現象であった。この現象を緩和するために、CdSe NPL を上下からバンドギャップの大きな別の材料で挟んだコアシェル構造を用いる事が有望である。我々は、CdS をシェルとした CdSe/CdS コアシェル NPL を合成し、カバーガラス上に分散させて顕微分光を行った。その結果、室温で裸の NPL に比べて光劣化が緩やかになり、数十分以上に渡って発光することが

分かった。また、発光の明滅現象も抑制され、On 状態の割合が増大している事が分かった。低温でさらにこれらの特性の向上が見られるか、また、単一光子の純度が裸の NPL と比較して低下しないかどうかを明らかにすることが今後の課題である。

#### (4) 遷移金属ダイカルコゲナイド単層微小結晶

単層遷移金属ダイカルコゲナイドを単一光子源として利用する可能性を検討するために、全ガス原料 CVD 法によって成長した二硫化タングステンの微小単結晶の顕微発光スペクトルを調べた。ディスク状に微細加工された二硫化モリブデン単層膜については、サイズに依存した発光のブルーシフトが報告されていたが、CVD 成長初期に観測される微小正三角形の単層膜の量子閉じ込め効果についてはよく分かっていなかった。我々は  $\text{SiO}_2$  基板上に分散した一辺の長さの平均値が 100 nm と 300 nm の二硫化タングステン微結晶試料について、発光スペクトルの位置依存性を詳細に調べ、10 meV 程度のブルーシフトを観測した。正三角形の無限ポテンシャル井戸のモデルから算出されるシフト量に比べて大きな値が得られたが、これは二硫化モリブデンに関してすでに報告されている傾向と一致している。また、微小結晶が  $\text{SiO}_2$  基板上に希薄に分布した試料において、5 K の低温で、発光スペクトルのレッドシフトを伴う発光強度のブリッキング的な振る舞いが観測された。これらの結果から単一の微小正三角形単結晶を量子ドットと見做せる可能性が示されたが、これらが微小単結晶中に存在する単一欠陥に起因する可能性もあり、慎重に検討する必要がある。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kim Minju, Park Seongho, Yamashita Yuma, Kyhm Kwangseuk, Ikezawa Michio, Bietti Sergio, Sanguinetti Stefano	4. 巻 12
2. 論文標題 Decoherence Dynamics of Localized States in a Single GaAs/AlGaAs Quantum Ring	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 physica status solidi (RRL) - Rapid Research Letters	6. 最初と最後の頁 1800176 ~ 1800176
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssr.201800176	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Fei Liling, Yuan Xi, Hua Jie, Ikezawa Michio, Zeng Ruosheng, Li Haibo, Masumoto Yasuaki, Zhao Jialong	4. 巻 10
2. 論文標題 Enhanced luminescence and energy transfer in Mn <sup>2+</sup> doped CsPbCl <sub>3</sub> xBr <sub>x</sub> perovskite nanocrystals	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 19435 ~ 19442
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8nr05492d	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Xing Yanbo, Yuan Xi, Ji Sihang, Ikezawa Michio, Zeng Ruosheng, Li Haibo, Masumoto Yasuaki, Zhao Jialong	4. 巻 204
2. 論文標題 Temperature-dependent photoluminescence of Mn doped CsPbCl <sub>3</sub> perovskite nanocrystals in mesoporous silica	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Luminescence	6. 最初と最後の頁 10 ~ 15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jlumin.2018.07.029	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Wang Ruoxi, Ikezawa Michio, Sakuma Yoshiki, Takeda Hiroyuki, Ikeda Naoki, Sugimoto Yoshimasa, Sakoda Kazuaki, Yamada Yuuta, Masumoto Yasuaki	4. 巻 7
2. 論文標題 Enhanced Spontaneous Emission Rates for Single Isoelectronic Luminescence Centers in Photonic Crystal Cavities	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Photonics	6. 最初と最後の頁 321 ~ 326
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsp Photonics.9b00616	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 田久保悠一, 石澤輝, 佐久間芳樹, 池沢道男
2. 発表標題 窒素をデルタドープしたGaAsの3パルスフォトンエコー測定
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片平博夫, 久保直人, 寺平成希, 佐久間芳樹, 池沢道男
2. 発表標題 チューナブルなファブリー・ペロー型光共振器中の二次元半導体の光スペクトル
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺平成希, 安藤玄樹, 木村大希, 舩本泰章, 池沢道男
2. 発表標題 単一CdSeナノプレートレットの顕微分光測定
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Michio Ikezawa
2. 発表標題 Coherence and indistinguishability of single photons emitted from nitrogen impurity centers in GaAs
3. 学会等名 The 19th International Symposium on the Physics of Semiconductors and Applications (ISPSA-2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 福島峻太、田久保悠一、佐久間芳樹、池沢道男
2. 発表標題 窒素をデルタドープした GaAs の四光波混合測定
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Michio Ikezawa
2. 発表標題 Single Photon emission from nitrogen isoelectronic traps in GaAs
3. 学会等名 International Symposium on Functional Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山下勇真、池沢道男、Seongho Park, Kwangseuk Kyhm, Jindong Kyhm
2. 発表標題 GaAs量子リングの位相緩和時間測定
3. 学会等名 第78回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 王 若曦、松山亨平、佐久間芳樹、池沢道男、舛本泰章
2. 発表標題 窒素をデルタドープしたGaAs(111)A 面上の発光中心の偏光異方性
3. 学会等名 第78回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	佐久間 芳樹  (SAKUMA YOSHIKI)  (60354346)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・グループリーダー    (82108)	