

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2010～2013

課題番号：22681012

研究課題名(和文)半導体ナノ粒子上の精密電荷制御による単一光子パルス発生器の作製

研究課題名(英文)Development of on-demand single photon emitter by precise charge number controlling on semiconductor nanoparticles

研究代表者

安武 裕輔 (Yasutake, Yuhsuke)

東京大学・総合文化研究科・助教

研究者番号：10526726

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,400,000円、(間接経費) 4,620,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、通信波長域における単一光子源として半導体ナノ粒子、シリコン結晶欠陥、ゲルマニウム直接遷移端に着目し、外部電極による電荷数・屈折率制御による任意の単一光子発生器の創製とスピン能付与を指向して、(1) ナノ粒子とナノギャップ電極による単一電子トランジスタの動作実証(2) シリコン中結晶欠陥の電流励起発光の実証(3) 固浸レンズを用いた高NA共焦点顕微鏡の構築(4) 半導体中への光学的スピン注入と検出の実証を行った。

研究成果の概要(英文)：Aim of this study was verification of on-demand single photon emitting devices by controlling the number of electrons and refractive index of single photon emitter. We have been headed for on-demand single photon emitter with electrical spins by using colloidal semiconductor, crystalline defects in Si, and direct transition of Ge as single photon source with nanogap electrodes structure. We have demonstrated (1) single electron transistor with nanogap electrodes and colloidal nanoparticles, (2) electroluminescence and optical amplification by silicon defect engineering, (3) construction of confocal microscope with high numerical aperture by using solid immersion lens, (4) optical spin injection into direct transition of Ge-based structure.

研究分野：半導体物性

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学, ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：単一光子 ナノ粒子 単一電子 単一電子トランジスタ 結晶欠陥

1. 研究開始当初の背景

量子暗号通信応用や量子コンピュータの量子ビットの候補のみならず、量子力学の根源を探るプローブとして、オンデマンド単一光子発生器の実現が要請されている。単一光子発生源候補として、非線形結晶を用いたパラメトリック下方変換、自己形成半導体量子ドット、ワイドギャップ半導体中の結晶欠陥、有機色素など多数報告されているが、汎用性のある電流駆動オンデマンド単一光子発生器の報告は少ない。特に数 nm スケールの単一光子源への安定した電氣的コンタクトの形成は未だ大きな課題である。

また単一光子と並び量子力学を具現化する電子スピンの制御は従来の電荷自由度を利用した電子デバイスの低消費電力化、高 S/N 比が期待され、スピンと単一光子との融合は量子メモリへの応用と併せて重要な技術であり、半導体中へのスピン注入・操作・検出技術の確立が期待されている。

2. 研究の目的

本研究では、通信波長域における単一光子源候補としてコアシェル構造を有する半導体ナノ粒子・シリコン中埋め込み III-V 族量子ドット・結晶欠陥に着目し、ゲート電極による単一光子源上における電荷数・屈折率制御による任意の光子発生器・検出器の創製を目指した。併せてスピン検出能の付加を目指して半導体中における光スピン注入・検出に関する研究も行った。

3. 研究の方法

(1) ナノ粒子とナノギャップ電極による単一電子トランジスタの動作実証

オンデマンド単一光子源の実現にはナノスケールの単一光子発生源への電極形成、ナノギャップ電極構造の作製が重要である。そこで無電解メッキと自己組織化単分子膜によるボトムアッププロセスを融合した高精度ナノデバイス作製プロセスの構築を行い、単一光子源上の精密電荷制御の実証として単一電子トランジスタの作製を行った。

(2) シリコン中結晶欠陥の電流励起発光の実証

実空間上で局在する結晶欠陥は単一光子源として期待できるが、電流駆動は pn 接合形成の困難さから、いまだ発展途上である。本研究ではシリコン中結晶欠陥に着目し、インパクトイオンによる電子-正孔励起を行い、結晶欠陥由来エレクトロルミネッセンスの室温動作を行った

(3) 可視-近赤外領域における高 NA 共焦点顕微鏡の構築

単一光子発生能の向上には高い光取り出し効率の実現が重要である。そこで可視から $2 \mu\text{m}$ の範囲において透明かつ高い屈折率を有する結晶を固浸レンズとして組み込むことで高 NA を実現し、広波長領域において微弱光観察が可能な共焦点顕微鏡の構築を

行い、動作実証として高伸張歪ゲルマニウム細線からの直接遷移由来近赤外光検出とイメージングを実証した。

(4) 半導体中への光学的スピン注入と検出

単一光子へのスピン機能の付加を目的として角運動量保存に基づいたゲルマニウムへの円偏光フォトルミネッセンスを行い、通信波長域と合致した領域における特徴的なスピントラッキング効果の実証を行った。

4. 研究成果

(1) ナノ粒子とナノギャップ電極による単一電子トランジスタの動作実証

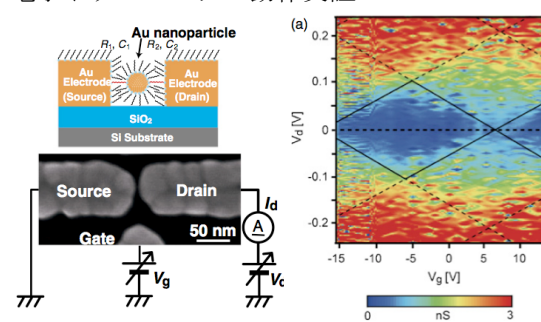


図1 (左)無電解メッキにより作製した単一電子トランジスタの模式図と電子顕微鏡像 (右)単一電子トランジスタ動作を示すクーロンダイヤモンド特性

電子線リソグラフィにより作製した $20 \sim 100\text{nm}$ 程度の幅を有する金電極対をヨウ化金とビタミン C の水溶液に浸漬することで、金電極上だけに選択的自己触媒型無電解メッキを施し、 5nm 以下のナノギャップ電極を安定性して作製することに成功した(図 1 左)。ナノギャップ間へのコロイドナノ粒子導入方法として、アルカンチオール/アルカンジチオール混合溶液に金電極を浸し、自己組織化単分子膜を形成する。次にコロイドナノ粒子溶液に電極を浸すと、アルカンジチオールに選択的にナノ粒子を吸着することができる。つまりジチオール濃度を制御するだけで、吸着ナノ粒子数を簡単に制御することが可能となる。上述の条件を最適化し、ナノギャップ形成+ナノ粒子導入を簡便なボトムアップ溶液プロセスだけで実現し、単一電子トランジスタ動作を示すクーロンダイヤモンド特性の実証を行った(図 1 右)。クーロンダイヤモンドはナノ粒子上に単一電子が逐次転送されるクーロンブロッケード現象がゲート電極で制御できていることを示しており、単一光子発生に重要な単一光子源上の精密電荷制御に成功した。

(2) シリコン中結晶欠陥の電流励起発光の実証

実空間上に局在し、非ブロッホ状態を示す結晶欠陥はバンドエンジニアリングから脱却した、新規光機能発生として注目されている。ダイヤモンド窒素空孔ペアは単一光子発生のみならず、零磁場スピン分裂を利用した

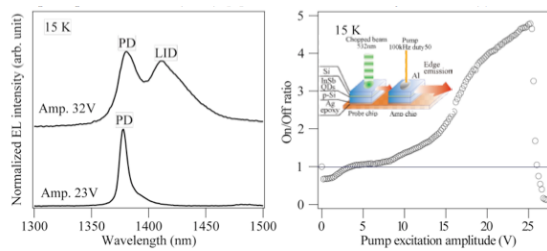


図 2 (左)Si 結晶欠陥利用 LED の EL スペクトル (右)SOA 配置における Si 結晶欠陥の光利得

超高感度磁場検出として期待されている。しかしながらダイヤモンド結晶欠陥へ光学・電氣的にアクセス可能な pn 接合の形成は未だ課題である。そこで微細加工技術・ドーピング技術の洗練されているシリコン中結晶欠陥に着目し、量子ドット埋め込み Si におけるプログラブル熱処理を施すことで安定した{113}線状欠陥の導入を行い、通信波長域に合致した結晶欠陥由来蛍光の観察と光利得の電流駆動下での発現に成功した(図 2)。電流励起密度変化による特徴的な 900meV と 880meV の 2 つの発光中心のスイッチングに成功は電場による単一光子の発光波長制御の可能性を示唆するものである。近赤外領域における単一光子候補として有用と考えられる。

(3) 可視・近赤外領域における高 NA 共焦点顕微鏡の構築

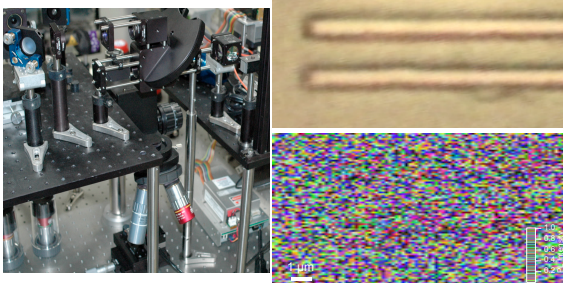


図 3 (左)構築した共焦点顕微鏡。アレイ検出器とフーリエ分光器に接続可能で 0.3~2.5 μ m の広波長領域で測定可能 (右)ゲルマニウム細線の光学顕微鏡像と同領域の 1620nm 波長の発光イメージング

ナノ粒子や結晶欠陥、微細構造への光励起・単一光子検出を行う上で顕微セットアップは必須である。KT 結晶は可視から近赤外領域まで屈折率 2 以上の安定な透明酸化物結晶であり、固浸レンズとして用いることで高開口数(NA)を実現できる。また KT 結晶にニオブを添加した KTN 結晶は酸化物として最大の電気光学効果を発現するため、電極をつけた KTN 結晶を固浸レンズとして単一光子源と融合することで、電界による高速変調・波長制御能を有するオンデマンド単一光子源が可能となる。紫外から近赤外領域まで測定可能な顕微フォトルミネッセンスイメ

ージング測定系(図 3 左)と固浸レンズと対物レンズを組み合わせた高 NA 測定系を用いて、半導体ナノ粒子(CdSe/ZnS ナノ粒子、ダイヤモンドナノクリスタル中窒素空孔欠陥など)からの単一光子発生を二次の強度相関測定から実証した。しかしながら CdSe/ZnS コアシェル型ナノ粒子では発光明滅現象(ブリンキング)や大気安定性の観点から、安定した単一光子源として適用することが困難であった。今後ワイドバンドギャップ半導体であるダイヤモンドを基本材料として、格子欠陥を有するダイヤモンドナノクリスタルと電界制御可能な KTN 固浸レンズを組み合わせたオンデマンド単一光子源の創製を進めたい。また半導体ナノ構造からの近赤外単一光子発生を目的として、シリコン酸化膜内に形成した歪ゲルマニウムナノワイヤからのフォトルミネッセンスイメージングを行い、0.4% 程度の伸張歪ゲルマニウムワイヤからの直接遷移由来蛍光の観察に初めて成功した(図 3(右))。

(4) 半導体中への光学的スピン注入と検出

単一光子源にスピン能を付与した円偏光単一光子源への足がかりとして、波長選択によるゲルマニウム直接遷移の活性化を行い、ゲルマニウムへの光スピン注入と検出、さらに強磁場中における円偏光フォトルミネッセンス測定から、ゲルマニウム直接遷移における明瞭な Zeeman 分裂と Landau 量子化を観察した。この結果はゲルマニウム量子ドットを用いた円偏光単一光子発生器や量子メモリ、スピンフィルタを指向するうえで非常に有用であると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① Y. Miyake, Y. Yasutake, and S. Fukatsu, “Morphology-driven Stark shift switching in Ge/Si type-II heterointerfaces”, *Advanced Materials Research* **893**, 39-44 (2014). DOI: 10.4028/www.scientific.net/AMR.893.39
- ② M. Matsue, Y. Yasutake, S. Fukatsu, T. Hosoi, T. Shimura, and H. Watanabe, “Strain-induced direct band gap shrinkage in local Ge-on-insulator structures fabricated by lateral liquid-phase epitaxy”, *Appl. Phys. Lett.* **104**, 031106-1-4 (2014). DOI:10.1063/1.4862890
- ③ Y. Yasutake, S. Hayashi, H. Yaguchi, and S. Fukatsu, “Observation of optical spin injection into Ge-based structure at room temperature” *Appl. Phys. Lett.* **102**, 242104-1-4 (2013). DOI:10.1063/1.4811495
- ④ Y. Terada, Y. Yasutake, and S. Fukatsu, “Time-resolved electroluminescence of bulk Ge at room temperature”, *Appl. Phys. Lett.*

- 102, 041102-1-3 (2013). DOI: 10.1063/1.4789511
- ⑤ K. Murata, P. L. Neumann, T. Koyano, Y. Yasutake, K. Nittoh, K. Sakamoto, S. Fukatsu, and K. Miki, "Characterization of Highly Concentrated Bi Donors Wire- δ -Doped in Si", *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 11PE05-1-4 (2012). DOI: 10.1143/JJAP.51.11PE05
- ⑥ Y. Terada, Y. Yasutake, S. Fukatsu, "An artificial nonradiative recombination center model created by use of a Si $_{1-x}$ Ge $_x$ /Si quantum-well-inserted pseudomorphic superlattice", *Thin Solid Films* **520**, 3365-3368 (2012). DOI: 10.1016/j.tsf.2011.08.033.
- ⑦ K. Murata, Y. Yasutake, K. Nittoh, S. Fukatsu, and K. Miki, "High-density G-centers, light-emitting point defects in silicon crystal", *AIP Advances* **1**, 032125-1-5 (2011). DOI: 10.1063/1.3624905
- ⑧ K. Murata, Y. Yasutake, K. Nittoh, K. Sakamoto, S. Fukatsu, and K. Miki, "Hybrid Laser Activation of Highly Concentrated Bi Donors in Wire- δ -Doped Silicon", *Applied Physics Express* **3**, 061302-1-3 (2010). DOI: 10.1143/APEX.3.061302
- ⑨ M. Iwamoto, D. Ogawa, Y. Yasutake, Y. Azuma, H. Umemoto, K. Ohashi, N. Izumi, H. Shinohara, and Y. Majima, "Molecular orientation of individual Lu@C $_{82}$ molecules demonstrated by scanning tunneling microscopy", *J. Phys. Chem. C* **114**, 14704-14709 (2010).
- ⑩ Y. Azuma, Y. Yasutake, K. Kono, M. Kanehara, T. Teranishi, and Y. Majima, "Single-electron transistor fabricated by two bottom-up processes of electroless Au plating and chemisorption of Au nanoparticle", *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 090206-1-3 (2010).
- ⑪ S. Suzuki, Y. Yasutake, and Y. Majima, "Interface trap level in top-contact pentacene thin-film transistors evaluated by displacement current measurement", *Organic Electronics* **11**, 594-598 (2010).
- [学会発表] (計 34 件)
国際 12 件、国内 22 件 以下抜粋
- ① S. Fukatsu, Y. Terada, S. Hayashi and Y. Yasutake, "Bulk Ge Revisited: Toward Group-IV Interband Laser", The 3rd International Symposium on Photonics and Electronics Convergence, 2013.11.20, The University of Tokyo, Tokyo, Japan.
- ② Y. Miyaka, Y. Yasutake, and S. Fukatsu, "Morphology-driven Stark shift switching in Ge/Si type-II heterointerfaces", 2013 3rd International Conference on Advanced Materials and Engineering Materials, 2013.12.15 The Peninsula Excelsior Hotel Singapore, Singapore.
- ③ Y. Yasutake, S. Hayashi, and S. Fukatsu, "Optical spin injection into Ge at room temperature", C18.00001, APS March Meeting 2013 Baltimore, Maryland, USA
- ④ Y. Yasutake and S. Fukatsu, "Quantum oscillation due to Landau subbands in bulk Ge at room temperature", APS March Meeting 2013, V1.00140, Baltimore, Maryland, USA.
- ⑤ 安武裕輔, 深津 晋, "伸張歪 Ge-on-Si への室温光スピン注入", 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 28a-A8-11 2013.3.28 神奈川工大(神奈川).
- ⑥ 林 周平, 安武裕輔, 深津 晋, "Ge の直接遷移蛍光の円偏光度の温度・励起エネルギー依存性", 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 28a-A8-10 2013.3.28 神奈川工大 (神奈川).
- ⑦ Y. Yasutake, S. Hayashi, and S. Fukatsu, "Observation of Oscillatory Magneto-photoluminescence of Direct Transition in Ge at Room Temperature", 2012 Materials Research Society Fall Meeting, DD8.02 2012.11.27 Boston, USA.
- ⑧ Y. Terada, Y. Yasutake, and S. Fukatsu, "Electroluminescence Transient of Bulk-Ge Light Emitting Device", 2012 Materials Research Society Fall Meeting, DD8.03 2012.11.27 Boston, USA.
- ⑨ F. Ohmura, Y. Yasutake, and S. Fukatsu, "Spectral Modulation of Photoluminescence in a Nonspecular Fabry-Perot Silicon Cavity", 2012 Materials Research Society Fall Meeting, DD15.03 2012.11.27 Boston, USA.
- ⑩ 安武裕輔, 深津 晋, "磁場円偏光 PL による Ge 直接遷移端の Landau 準位観察", 第 73 回応用物理学会学術講演会 11p-PA4-8, 2012.9.11 愛媛大学・松山大学(愛媛).
- ⑪ 安武裕輔, 深津 晋, "Ge への光スピン注入の温度依存性", 第 59 回応用物理学関係連合講演会 16p-B11-2, 2012.3.16 早稲田大学(東京).
- ⑫ 安武裕輔, 林 周平, 高野雅也, 深津 晋, "発光欠陥を有する InSb QDs 埋め込み Si 構造における光利得のポストアニール依存性", 第 72 回応用物理学会学術講演会 31p-P6-8 2011.8.31. 山形大学.
- ⑬ Y. Yasutake, T. Asaba, Y. Terada, N. Tana-ami and S. Fukatsu, "Optical gain on {311} rod-like defects in silicon", Material Research Society 2010 Fall Meeting, Symposium AA 5.2 2010.11.30 Boston, USA.
- ⑭ 安武裕輔, 浅場智也, 寺田陽祐, 田名網宣成, 深津 晋, "シリコン結晶欠陥の光利得", 第 71 回応用物理学会学術講演会

17a-H-6 2010.9.17 長崎大(長崎)
〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://maildbs.c.u-tokyo.ac.jp/~fukatsu>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

安武 裕輔 (Yuhsuke Yasutake)
東京大学・総合文化研究科・助教
研究者番号：10526726

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：