

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 18 日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2014～2016

課題番号：26420320

研究課題名（和文）電流注入型量子もつれダイオードの研究

研究課題名（英文）Study of electrically driven quantum entanglement diode

研究代表者

中岡 俊裕（Nakaoka, Toshihiro）

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号：20345143

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、まず、研究蓄積の深いInAs自己量子ドットを用いて、コンパクトな実装に不可欠であるだけでなく、光の回折限界を超えた集積化、量子もつれを用いる集積化に重要な電流注入型サイドゲート素子の開発を行った。素子の作製プロセスおよびゲート制御に必要なフリップチップ型の実装及び測定手法の確立に成功した。達成したエネルギー変化量0.3meVは、これまでに量子もつれ状態作製に用いられている光励起型と同等であり、コンパクトな実装に適した電流注入型において集積化への道筋が開けたと考えている。さらに、集積化への次ステップとして、高密度集積化可能なナノコラムからの単一光子発生を実証し、その有望性を示した。

研究成果の概要（英文）：We have developed electrically driven quantum dot (QD) light-emitting diode (LED) with a side gate toward practical implementation of multi-quantum bit system and single photon source integration exceeding the diffraction limit of light. We have established the fabrication processes and the required measurement techniques, including flip-chip type implementation and reflectivity mapping. The side gate LED achieved an exciton energy shift of 0.3 meV, which is comparable with the shift for conventional optical excitation system which allows for quantum entanglement toward integration. Our result adds electrically driven QD-LED as a potential system for realizing quantum entanglement and integration. In addition, we suggest a nanocolumn as the system for higher integration. As a demonstration of the potential of the nanocolumn as the integrated quantum information devices, we have demonstrated single photon emission from a single nanocolumn.

研究分野：半導体デバイス、量子ナノ構造

キーワード：量子ドット 発光ダイオード サイドゲート ナノコラム 単一光子

### 1. 研究開始当初の背景

量子情報処理技術は、次世代 IT の基盤技術として活発に研究され、1 素子としての演算、通信は、量子ビットとしてのスピン制御、量子通信のための単一光子光源をはじめ、様々な形で実証されていた。しかしながら、量子計算などが、エラー処理などを含めた、真に魅力的な情報処理を行うためには、数千以上の量子ビット/情報を、集積化する必要がある。当時、理論的な検討は行われていたが、実験的には萌芽期にあった。代表的な取り組みは単一トラップイオンを用いたものであり、固体素子、特に、現実的な実装に不可欠と思われる電流注入型への取り組み、および高度な集積化を可能とするプラットフォームの探索は、ほとんど未開拓であった。

### 2. 研究の目的

本研究では、まず、コンパクトな実装に不可欠であるだけでなく、光の回折限界を超えた集積化のため重要な電流注入型において、量子集積化に必要な制御性の獲得をサイドゲート構造により行う。この研究の材料系は単一光子、量子ビットを始めとする研究蓄積の深い InAs 自己量子ドットを用いた。次に、自己形成量子ドットは基本的に配置がランダムであり、集積化には限界があるため、将来のステップとして「単一光子素子の集積化」に適した新しい材料系の開拓を目指した。具体的な達成目標は、(I) 自己形成量子ドットを用いたサイドゲート型素子の作製およびゲート制御に必要なフリップチップ型の実装及び測定手法の確立、(II) 電流注入発光のおよびゲート制御達成、(III) 集積化に適した単一光子素子材料系の開拓および、その有望性の実証、である。

### 3. 研究の方法

#### (1) 電流注入型サイドゲート素子の作製と測定方法

電流注入型素子においてゲート制御を実現するためには、電流注入のための p、n 電極に加え、電子状態制御のためのサイドゲートを作成する必要がある。このため、表面が金属でほぼ覆われ、従来の方法では、効率的な光取り出しは難しい。そこでこれまでに開発した裏面からの光子取り出し手法 [図 2(a)] を本研究向けにリファインした。

図 2(b) に示すようなフリップチップ型のパッケージ実装を行い、開口部から測定を行う。単一光子発生する縦型ピラー構造へは、基板を透過するレーザーを用いた反射光強度マッピングによる。図 2(c-f) に示すように、数百 nm の発光領域にアクセスすることができる。図 3(a) に示すような素子を作製し、顕微発光分光により電流注入による発光およびサイドゲートへの電圧印加時の発光制御を観測した。図 3(b) に示すように、p-i-n ダイオードに加えて、サイドゲートによる電場印加が予想され、この電場により発光制御、

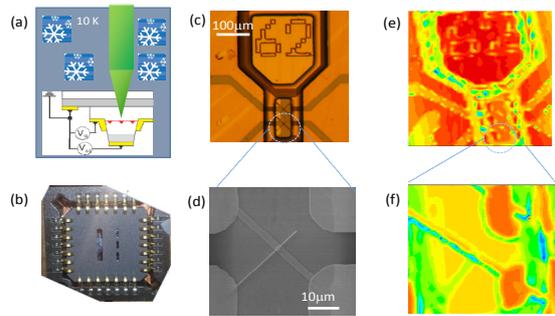


図 1: (a) 裏面からの素子測定手法の模式図。(b) パッケージにマウントした様子。(c) 光学顕微鏡写真 (d) ピラー構造部の SEM 写真。(e) (c) に示した場所の反射光強度マッピング。(f) (d) に示した場所の反射光強度マッピング

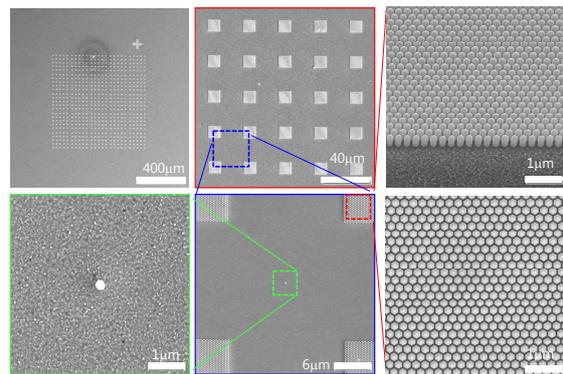


図 2: 同一基板上に成長させた集積ナノコラムと単一ナノコラムの SEM 写真

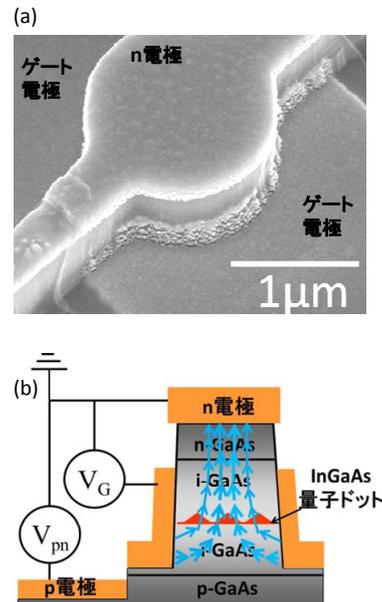


図 3: (a) 素子の SEM 写真 (b) 素子とサイドゲートへの正電圧印加時の電場分布の模式図。

量子状態制御が期待できる。

#### (2) 集積化に向けた材料系探索

集積化に適した材料系として、ディスプレイ等の応用に向け極めて活発に研究が進展し、 $10^{10}/\text{cm}^2$  以上の高集積、ナノスケールの位置

制御性に優れた窒化物ナノワイヤ（ナノコラム）に着目した。同一基板上において、様々な直径のナノ構造を集積でき、このため、広い励起エネルギー、可視光領域のほぼ全域の波長制御が可能であることが特徴である。ワイドギャップ半導体であるので高温動作も期待できる。集積に関する有望性を実証するため、図2に示すように、同一基板上に単一ナノコラムと集積ナノコラムを同一成長条件により成膜し、評価を行った。まず、単一光子発生の必要条件である量子ドットの2準位系であることを調べるため、顕微発光分光により、線幅の評価、温度特性を評価した。マッピングを行い、発光強度が強く線幅の狭い素子に対して、Hanbury Brown and Twiss (HBT) の自己光強度相関測定により、単一光子発生の判定、実証を行った。

#### 4. 研究成果

(1) 自己形成量子ドットを用いたサイドゲート制御

##### ① 素子作製および基礎特性評価

作成した素子のダイオード特性を図4(a)に示す。これまでの研究でもダイオード特性そのものは得ていたが、今回素子構造の最適化により、リーク電流が少ないものができた。サイドゲート印加に耐えるものと期待できる。次に、裏面からの測定手法を用いて、サイドゲート型素子中の単一ドットからの電流注入による発光 (EL) 観測を行った結果を図4(b)に示す。p-n 電極間のバイアス電圧 ( $V_{pin}$ ) を増大していくと、注入電流の1乗あるいは2乗に比例する発光増大が観測された [図4(c)]。単一量子ドットからの中性励起子または荷電励起子、励起子分子であると考えられ、達成目標 (I) 「自己形成量子ドットを用いたサイドゲート型素子の作製およびゲート制御に必要なフリップチップ型の実装及び測定手法の確立」に対応するサイドゲート型における良好な単一自己形成量子ドットの EL の測定、手法の確立を達成したと言える。

##### ② 電流注入型におけるサイドゲート制御達成

次に、バイアス電圧 ( $V_{pin}$ ) を2Vで固定し、サイドゲート電圧 ( $V_G$ ) を変化させた。 $V_G$  増加に伴い、EL スペクトルの強度の増大し、ピークがブルーシフトすることがわかった。 $V_G$  を負側に印加するとピーク強度が減少し、約  $V_G = -2V$  で消失する。ブルーシフトであるので熱の影響ではないことがわかる。 $V_G$  を正側に印加すると量子ドット内の分極を減少させる方向の電場 [図3(b)] が誘起され、このため、発光強度の増大とともにブルーシフトする。

これまでのサイドゲート型では電流注入のための p 電極、n 電極による影響、リーク電流の存在により、EL 強度・エネルギーの変化量が非常に小さかったが、今回の素子改良

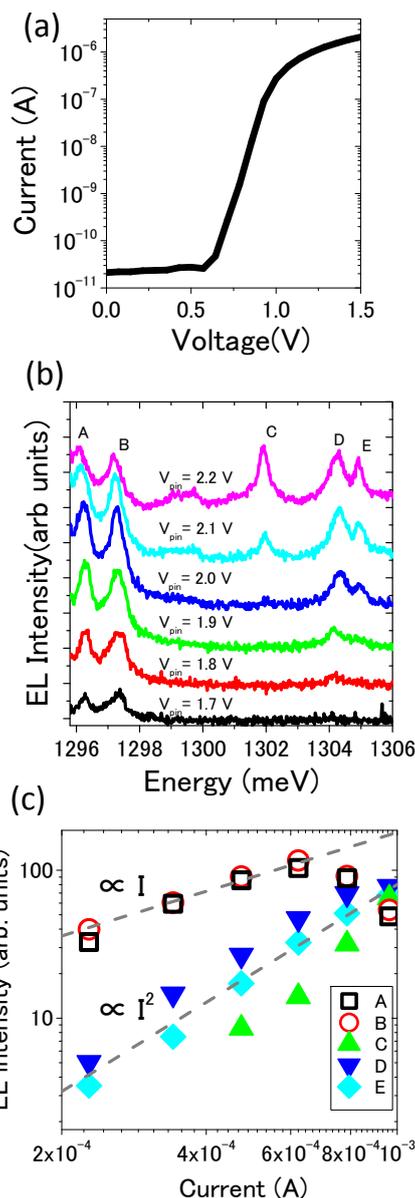


図4: (a) 10KにおけるI-V測定結果。(b) EL発光スペクトルのバイアス電圧依存性。(c) 各EL発光ピークの電流依存性

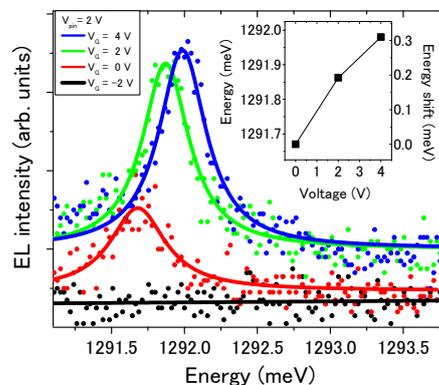


図5: 電流注入による発光スペクトルのサイドゲート電圧依存性。バイアス電圧は2Vで固定している。挿入図がピークエネルギーとシフト量の電圧依存性をプロットしたもの

により、変化量が 0.3meV 程度とこれまでに光励起下の量子ドット制御に用いられているエネルギー変化量（シュタルクシフト）と同程度のエネルギー変化、すなわち波動関数の変化を得ることが出来た。目標 (II) 「電流注入発光のおよびゲート制御達成」を達成したと考えている。光励起型では電場制御による集積化に向けた取り組み（量子もつれ）が急速にすすんでおり、本研究によって、コンパクトな実装に適した電流注入型において集積化への道筋が開けたと考えている。

### (3) 集積化に適した単一光子素子材料系

#### ① 単一ナノコラムからの挟線発光と温度特性

集積化に適した単一光子素子材料系としてナノコラムの特性を調べるため、単一ナノコラムの顕微発光分光を行った。図 6(a)に 20 Kにおけるスペクトルを示す。図 6(b)に示すように励起スポット内に単一のナノコラムが当たるようにすると、線幅 300  $\mu$ eV 程度の狭線発光が得られた。これらの発光強度は図 6(c)に示すように励起強度に対し、線形、2 乗に比例し、励起子、励起子分子あるいは荷電励起子の発光と考えられる。直線偏光度は約 90%であった。これらの結果はナノコラムが量子ドット的な電子状態を持っていることの証左であり、単一光子素子として有望であることがわかった。量子ドット的な電子状態の担い手は図 6(b)挿入図に示すような InGaN 活性層の In 組成揺らぎと考えられる。

電子状態の理解と単一光子素子としての動作温度範囲を調べるため、温度依存性の測定をおこなった。単一ナノコラム発光スペクトルの温度変化を図 7(a)に示す。90K でも発光が観測でき、主に音響フォノンの影響と思われるブロードニングは生じているが発光面積強度は極低温下と同等であった。20K 以上では温度に対しほぼ単調に減少する InAs 量子ドット系に比べ、ナノコラムが単一光子素子の高温動作に向けた材料系であることがわかった。温度上昇に伴う低エネルギー側シフトも見られたが、これは、Varshni の式により良くフィッティングできた[図 7(b)]。フィッティングパラメータは peak 1 が  $\alpha=7 \times 10^{-4}$  eV/K、 $\beta=8 \times 10^2$  K peak2 が  $\alpha=1 \times 10^{-4}$  eV/K、 $\beta=2 \times 10^2$  K であり、自己形成型の InGaN ナノワイヤでの報告[S. Deshpande, Nature Comm. (2013).]とほぼ同様である。つまり母体半導体のバンドギャップ変化によるものであることがわかった。

#### ② ナノコラム特有のバックグラウンド光問題の解決

ナノコラムは上記①に示したような量子ドット的な発光を示す一方で、図 6(a)のスペクトルにも見られるように狭線発光以外にブロードなバックグラウンド発光が重畳するという欠点を持つ。このバックグラウンド発光はナノコラム外の堆積物からの発光であ

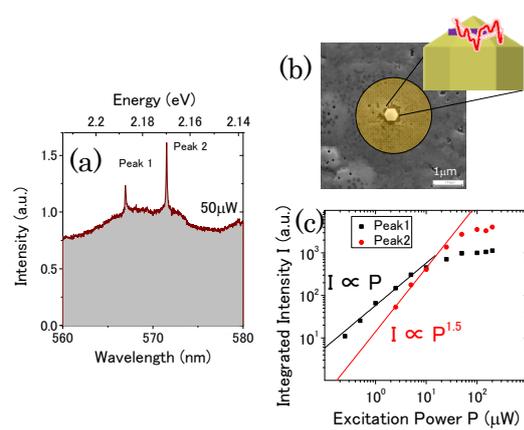


図 6 : (a)単一ナノコラムの顕微発光スペクトル。(b)測定したナノコラムの SEM 写真と In 組成揺らぎに伴う局在状態の模式図

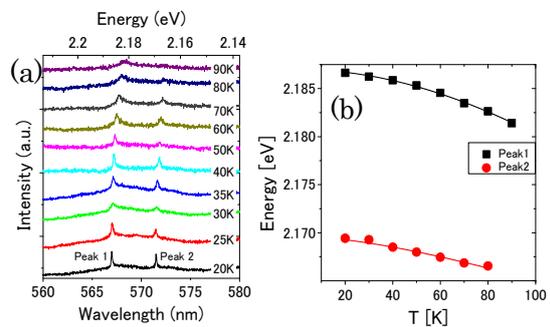


図 7 : (a)単一ナノコラムの顕微発光スペクトルの温度依存性(励起強度 10  $\mu$ W). (b)発光ピークエネルギーのシフト

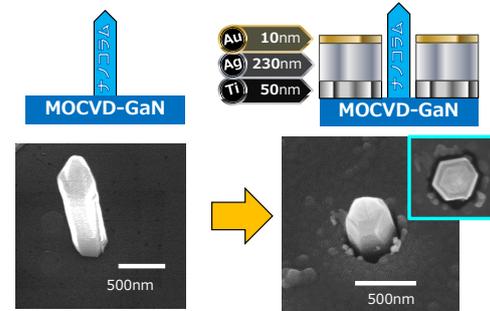


図 8 : 堆積物除去、金属被膜付与の模式図と SEM 写真

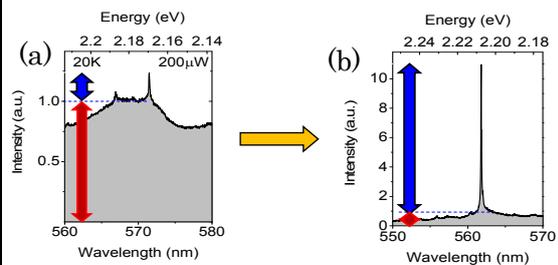


図 9 : (a)金属被膜前の顕微発光スペクトル。比較のためバックグラウンド光強度を 1 として規格化。(b) 金属被膜後の顕微発光スペクトル。

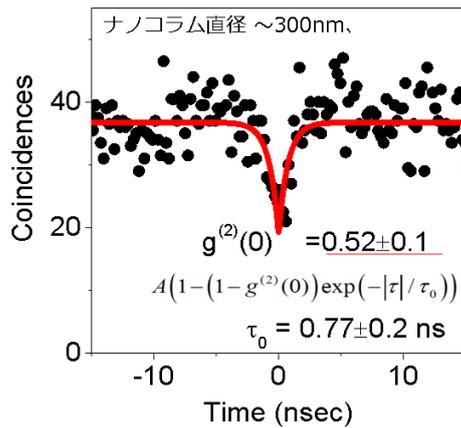


図 10：HBT 測定による自己相関光強度信号。赤線は図に示した式によるフィッティング曲線

り、この課題解決のために図 8 に示すように堆積物除去を行い、さらに基板からの発光も抑えるため金属 (Ti/Ag/Au) 被膜によるシャドーマスクを作成した。このシャドーマスクにより、図 9 に示すように挟線発光強度：バックグラウンド光強度を 10：1 以上に改善することができた。

### ③ ナノコラムからの単一光子発生

②の技術を用いて HBT 自己相関強度測定を実施した。単一ナノコラムからの単一光子発生判定を行う。図 10 が自己相関強度信号であり、明瞭なアンチバンチングが観測できた。単一光子発生の指標となる  $g^{(2)}(0)$  は生データで 0.52 であった。本データでは、図 9 (b) に示すようにシャドーマスク作成後も単一光子発生を担う挟線発光”以外”のバックグラウンドが残存しており、これらは他の局在状態あるいは連続状態からの成分である。これを除去すると、 $g^{(2)}_{\text{corr}}(0) = 0.39$  となり指標となる 0.5 以下であるのでナノコラム中の局在状態から単一光子が得られることを実証できた。残存バックグラウンド除去が今後の課題となるが、これらは他の局在状態、連続状態からなるものであるのでナノコラム直径縮小により体積比として更に小さくできる。つまり、ナノコラムにおける  $g^{(2)}(0)$  は直径縮小により更に改善できると期待できる。これらの結果は高温動作可能、集積化可能な単一光子通信素子としてのナノコラムの有望性を強く示すものであり、目標 (III) 「集積化に適した単一光子素子材料系の開拓および、その有望性の実証」を達成したと考えている。

### 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 4 件)

(全て査読有)

- ① T. Yamamoto, M. Maekawa, Y. Imanishi, S. Ishizawa, T. Nakaoka, K.

Kishino, "Photon correlation study of background suppressed single InGaN nanocolumns", Japanese Journal of Applied Physics, 55, 04EK03/1-5 (2016) DOI: 10.7567/JJAP.55.04EK03.

- ② N. Shimosako, Y. Inose, H. Sato, K. Kinjo, T. Nakaoka, T. Oto, K. Kishino, and K. Ema, "Carrier-density dependence of photoluminescence from localized states in InGaN/GaN quantum wells in nanocolumns", Journal of Applied Physics, 118, 175702/1-5 (2015) DOI: 10.1063/1.4935025.

- ③ T. Saito, T. Nakaoka, and Y. Arakawa, "Effect of lateral electric field on the transition energies of neutral and charged excitons in In 0.5 Ga 0.5 As/GaAs quantum dots", Phys. Rev. B 91, 115306/1-12 (2015) DOI: 10.1103/PhysRevB.91.115306..

- ④ K. Sekine, Y. Onoue, T. Yoshiike, K. Asami, S. Ishizawa, T. Nakaoka, K. Kishino, "Single InGaN nanocolumn spectroscopy", Japanese Journal of Applied Physics 54, 04DJ03/1-5 (2015) DOI: 10.7567/JJAP.54.04DJ03.

[学会発表] (計 6 件)

- ① 金城 一哉, 猪瀬 裕太, 江馬 一弘, 中岡 俊裕, 大音 隆男, 岸野 克巳, 「InGaN/GaN 多重量子井戸構造における局在状態からの発光特性」, 第 77 回応用物理学会秋季学術大会 [14a-A21-5] 2016/9/14 朱鷺メッセ (新潟県・新潟市) .

- ② T. Yamamoto, M. Maekawa, Y. Imanishi, S. Ishizawa, T. Nakaoka, and K. Kishino, "Photon correlation study of background suppressed single InGaN nanocolumns", 47th Solid State Devices and Materials (SSDM 2015), H-6-3, 2015/9/30, Sapporo Convention Center, Sapporo, Hokkaido, Japan.

- ③ 山本貴利, 前川未知瑠, 今西佑典, 関根清登, 石沢峻介, 中岡俊裕, 岸野克巳, 「InGaN/GaN ナノコラム局在状態からの直線偏光発光」, 第 76 回応用物理学会学術講演会, [14a-4D-4], 2015/9/14, 名古屋国際会議場 (愛知県・名古屋市) .

- ④ 山本 貴利, 前川 未知瑠, 今西 佑典, 関根 清登, 澄川 雄樹, 石沢 峻介, 中岡 俊

裕, 岸野 克巳, 「InGaN/GaN 堆積物除去と単一ナノコラム発光」, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, [11a-A10-11] 2015/3/11, 東海大学(神奈川県・平塚市).

- ⑤ K. Sekine, Y. Onoue, T. Yoshiike, K. Asami, S. Ishizawa, T. Nakaoka, and K. Kishino, "Single InGaN nanocolumn spectroscopy", 46th Solid State Devices and Materials (SSDM 2014), PS-9, 2014/9/10, Tsukuba International Congress Center, Ibarakai, Tsukuba, Japan.
- ⑥ 関根清登, 尾上洋平, 吉池徹, 浅見康太, 石沢俊介, 中岡俊裕, 岸野克巳, 「単一 InGaN ナノコラムにおける狭線発光と温度依存性」 第 75 回応用物理学会学術講演会, [19a-A27-9], 2014/9/19, 北海道大学 (北海道・札幌市) .

[その他]

ホームページ等

<http://pweb.sophia.ac.jp/nakaoka/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

中岡 俊裕 (NAKAOKA, Toshihiro)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号 : 20345143

### (2) 連携研究者

荒川 泰彦 (ARAKAWA, Yasuhiko)

東京大学・工学部・教授

研究者番号 : 30134638