

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年5月31日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22360133

研究課題名（和文）高度な量子情報通信機能に向けた半導体中の単一不純物準位の制御と利用に関する研究

研究課題名（英文）A study of control and use of single impurity energy levels in semiconductors toward advanced functions for quantum information communication technology.

研究代表者

佐久間 芳樹（SAKUMA YOSHIKI）

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・グループリーダー

研究者番号：60354346

研究成果の概要（和文）：発光波長や強度などの特性が揃った単一光子源への応用を目指し、III-V 族半導体中の等電子不純物による局在準位の制御と利用に関する研究を行った。具体的には、ガリウム砒素中の窒素不純物の最適なドーピング手法を調べ、エネルギーの揃った単一光子発生を世界で初めて実証するとともに、発光寿命や偏光などの特性について明らかにした。本研究によって多くの基礎データが取得でき、今後の技術開発に不可欠な有益な知見が得られた。

研究成果の概要（英文）：To make the single-photon sources with identical emission wavelength and intensity, a research on control and use of the localized energy levels of isoelectronic impurities in III-V compound semiconductors has been done. In particular, we clarified an appropriate nitrogen doping method into GaAs and demonstrated a single-photon emission with identical energy for the first time. The emission lifetime and polarization property were also revealed. Many basic data and useful knowledge, which are essential to the relevant research and development in near future, were obtained through this research.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	6,100,000	1,830,000	7,930,000
2011年度	3,700,000	1,110,000	4,810,000
2012年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
年度			
総計	11,700,000	3,510,000	15,210,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：量子閉じ込め、量子ドット、励起子、単一光子、等電子準位、不純物、MOCVD

1. 研究開始当初の背景

近年、量子暗号や量子計算といった新たな情報通信技術の重要性が認知され、その基本要素である単一光子源の研究開発が活発化

している。これまで、単一光子を効率的に発生させる手法として、S-K 成長モードによる半導体量子ドットを利用する多くの研究が行われてきた。しかし、ドットのサイズ揺ら

ぎに起因する発光エネルギーのばらつきが未解決の問題として残されており、単一光子源を実用的化するうえで大きな技術的障害になっている。

この状況に鑑み、我々は半導体中の個々の不純物準位に束縛された励起子（電子・正孔対）の発光過程を単一光子発生に用いる独創的な着想に至った。元来、半導体中の不純物は離散的なエネルギー準位を形成し、サイズ揺らぎのない理想的な2準位系として振舞う。特に、等電子トラップと呼ばれる電気的に中性な不純物を利用すれば、キャリアに対する短距離ポテンシャル中心として働き、ドナやアクセプタのような電離型不純物とは異なりクーロン相互作用によるエネルギーのボケがないため、鋭い輝線発光スペクトルを示す。つまり、等電子トラップはエネルギー純度の高い単一光子源を再現性良く作製するうえで極めて有益である。我々はこの着想の実証のためガリウムリン（GaP）中の窒素（N）不純物に着目し、MOCVD法を用いてGaPエピタキシャル層へのN不純物の極希薄な δ ドーピング法を開発し、1個の局在不純物準位からの顕微フォトルミネッセンス（PL）光の観測を行なった。その結果、明瞭な光子のアンチバンチングを観測し、III-V族の等電子トラップからの単一光子発生に世界で初めて成功した。

これまでの研究で等電子トラップの優れた単一光子の発生機能が明確になったものの、本技術を量子情報通信デバイスの作製に適用するにはまだ多くの解決すべき課題があることも事実である。例えば、光通信帯の量子暗号技術を想定すると波長1.3-1.55 μ mの単一光子が必要になるが、GaP中のN準位のみで実現することは難しい。また、GaPのバンド構造は間接遷移型であるため励起子発光寿命が長く、単一光子の発生頻度と効率に限界がある。さらに、現在の単一光子の発生温度は最大30-40Kであり、改善の必要がある。これらはいずれも等電子不純物の選択やそれを適用できる半導体材料に対する自由度の不足、および量子井戸やヘテロ構造を使った等電子トラップ準位の制御技術の未熟さに起因する問題であり、これらに関して研究を進める必要がある。

2. 研究の目的

上記の技術課題の解決を目的に、以下の項目について研究を行った。

- (1) 新たな等電子トラップの探索： 準位深さや励起子結合力の異なる新たな等電子トラップを探索し、その性質を明らかにする。
- (2) 等電子トラップ適用材料の拡張： 等電子トラップの適用範囲をGaP以外の2元系や混晶系材料に拡張し、等電子トラップに関する知見の整理と体系化を行う。具体的には、

直接遷移型バンド構造のGaAs系に拡張し、単一光子発生の実証を目指すとともに、顕微分光を使って発光寿命や励起子微細分裂の様子について調べる。

(3) 量子井戸を利用した等電子トラップの波動関数制御： 量子井戸内に置いた等電子トラップ準位のエネルギー位置や励起子結合力の変化、井戸に閉じ込められた正孔との波動関数の重なり増加などを利用して、単一光子発生効率の増大と高温動作を図る。

3. 研究の方法

等電子不純物準位からの単一光子発生とその特性制御に向けて、様々なIII-V族半導体材料のヘテロ構造を作製でき、各種不純物のドーピングにも柔軟に対応できるMOCVD法を用いて研究を進めた。また、本研究で扱う対象物は局在化した不純物準位であるため、顕微PLや近接場光学顕微鏡（NSOM）を使った光物性評価が必須である。そのため、半導体の光学測定を専門とする筑波大学の池沢道男准教授と密接に連携しながら研究を進めた。研究代表者はMOCVD法による各種半導体材料の結晶成長技術と δ ドーピング手法の開発を担当し、半導体材料開発に必要なマクロPLやSIMS分析を行いながら、結晶成長条件とサンプルの最適化を図った。連携研究者の池沢博士には顕微PL法による等電子トラップの発光波長、発光強度、単一光子発生の確認を担当して頂き、成長条件との関連性を議論しながら研究を進めた。

4. 研究成果

以下に、本研究で得られた主要な成果を記す。

(1) GaAs中の窒素（N）等電子トラップによる単一光子発生の実証と単一発光センターの性質

本研究の開始当時に実現していたGaP中のNNペアからの単一光子発生技術をGaAs系に展開する研究を進めた。まず、TEGaとAsH₃を原料ガスに使ったMOCVD法によりGaAs(001)基板上にGaAs膜を連続的に成長しながら、窒素の原料ガスであるジメチルヒドラジン（DMHy）を1ML相当のGaAs成長時間(2s)だけ添加したサンプルを作製した（一様ドーブモードによる1MLのGaAs:N）。

図1は上記ガスシーケンスでDMHy流量を変化させた場合のマクロPLである。DMHyの増加に伴いX₁ピーク強度が増大し、長波長化するが、GaPのような輝線発光は見られない。

このサンプルの顕微分光を行ったところ、図1の網掛けをした波長域に図2(c)のような輝線スペクトルが観測された。同図(a)や(b)からわかるように、いずれもN不純物に関与した局在化準位に束縛された励起子発光である。そして1個の局在化準位について

光子相関測定を行ったところ、図3のような明瞭なアンチバンチング特性の観測に成功し、GaAs:N系において世界初となる単一光子発生を実証した。

GaAs buffer → [TEGa+AsH₃+DMHy]: 2s → GaAs cap

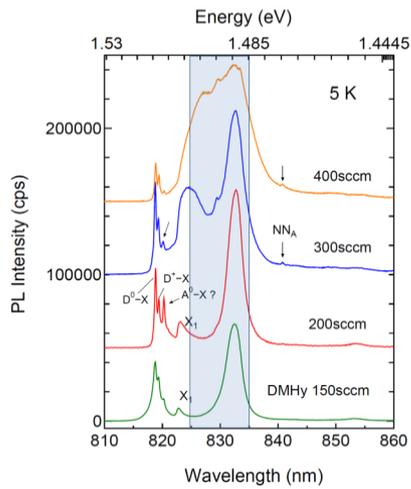


図1 一様ドーパモードによる GaAs:N の PL スペクトルの DMHy 流量依存性。N 不純物は 1 原子面にのみドーパされており、GaAs バッファ層とキャップ層で挟んである。

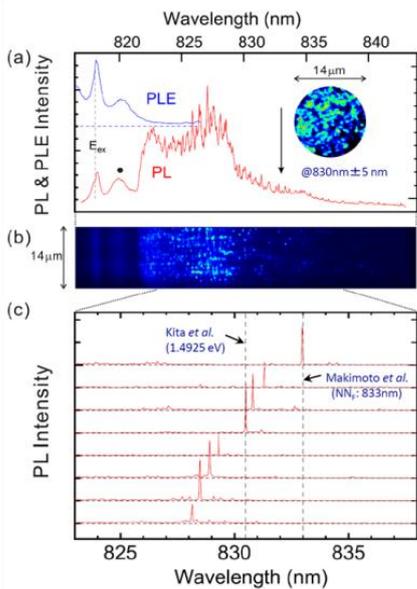


図2 (a)マクロ PL と PLE(励起スペクトル)。挿入図は 830nm 付近での PL 像。(b)CCD 検出器の像。(c)顕微 PL スペクトル

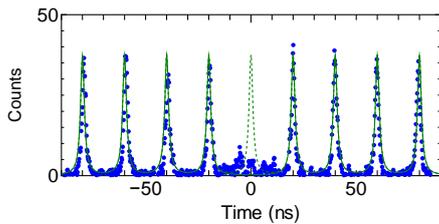


図3 50MHz の光パルス励起による GaAs:N の単一発光中心の光子相関

次に、発光波長の異なる発光中心について 5 K 付近での再結合寿命を測定したところ、いずれも 1ns 以下と短いことがわかり、発光強度と寿命の逆数(再結合レート)には図4のような理論どおりの関係があることも明らかになった。この結果は N 等電子トラップが GaAs の直接遷移型バンド構造が反映されていると考えられる。また、単一発光中心の偏光成分は 1 個であり、図5のような直線偏光を示した。

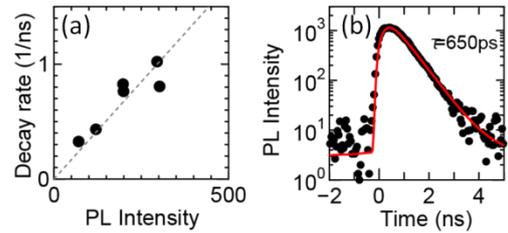


図4 (a)GaAs:N 中の単一発光中心の再結合レートと PL 強度の関係。(b)最も時定数の短い発光中心の PL 強度減衰特性

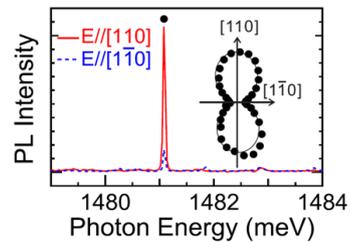


図5 GaAs:N の単一発光中心の偏光スペクトルと強度の偏光角度依存性

(2) GaAs 中のエネルギーの揃った N 等電子準位の形成と単一光子発生

前述のガスシーケンスで形成した GaAs:N の等電子準位では、発光エネルギーがばらつき揃わないという問題が明らかになった。そこで GaAs:N でも GaP:N と同様にエネルギーの揃った輝線発光を得るために、N の δ ドーピング手法の開発を進めた。この結果、DMHy を 1 原子層の Ga で終端した GaAs(001) 面上に供給するか、または DMHy と TEGa を一緒に GaAs(001) 上に供給することにより、図6のようにマクロ PL スペクトル中にエネルギーの揃った輝線発光が観測されることを見出した。観測された輝線は NN_A (発光波長 840nm @25K)、 NN_B (868nm)、 NN_C (833nm) の 3 種である。

このサンプルの顕微 PL 分光を行ったところ、図7に示すように NN_A 、 NN_B 共に空間局在したエネルギー準位であることが明らかになった。また、単一の NN_A について光学測定を進め、図8のような再結合寿命とアンチバンチング特性を明らかにした。GaAs 中のエネ

ルギーの揃った N 等電子準位からの単一光子発生の実証は世界初の成果である。

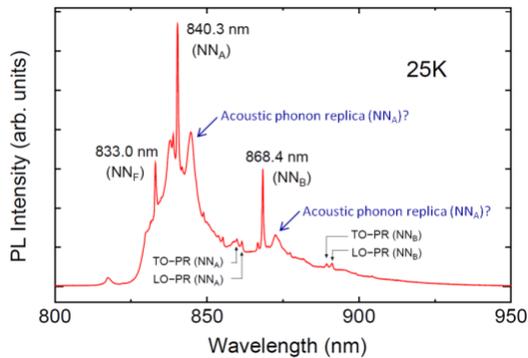


図 6 最適なガス導入シーケンスで N ドープを行ったサンプルのマクロ PL スペクトル

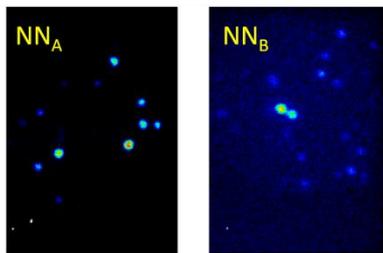


図 7 ϕ 14 μ m 領域での NN_A と NN_B の顕微 PL 像 (温度 5K)

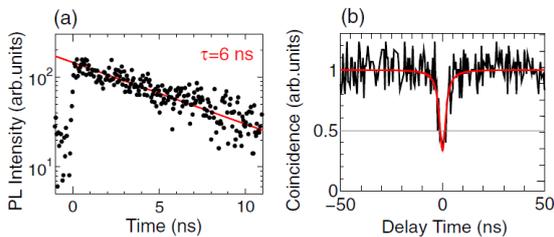


図 8 (a) 単一 NN_A の PL 強度減衰特性。(b) NN_A のアンチバンチング。いずれも 5K で測定

(3) 新たな等電子不純物の探索と量子井戸構造による等電子準位の制御

不純物準位を使った単一光子発生の高温化の実現、および波長制御性を高めることを目的に、量子井戸による N 等電子準位の制御と N 以外の等電子不純物の探索を進めた。まず、後者に関してはビスマス (Bi) や亜鉛酸素 (Zn-O) 複合体に着目し、MOCVD 法による GaP にドープを試みたが、これらの準位に起因した PL 発光を得るに至らなかった。ドープの難易度が高い可能性がある。

量子井戸を利用した N 等電子準位の制御に関しては、GaP/GaAsP:N/GaP に着目して研究を行った。図 9 は GaAsP 量子井戸を GaP 障壁層で挟んだ構造について、井戸中央への N の δ ドープの有無の違いをマクロ PL で比較したものである。本構造では GaAsP 層の As 組

成や井戸幅によって発光波長制御が可能であるが、N の δ ドープ層を挿入することで発光スペクトルの中心位置はさらに長波長化し、発光強度も増大することを見出した。N ドープにより発光半値幅の増加が見られるが、N の等電子準位が GaAsP 混晶のミクロスコピックな組成揺らぎや歪みの影響を受けるためと考えられ大変興味深い。今後、顕微 PL による評価を進める必要がある。

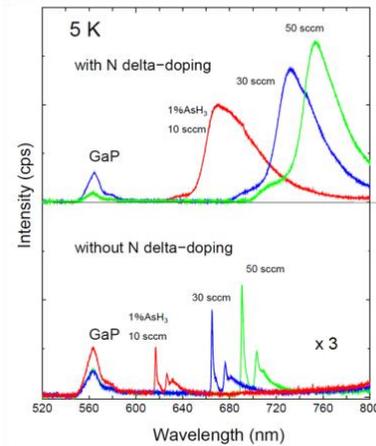


図 9 GaP/GaAsP:N/GaP 量子井戸(上)と GaP/GaAsP/GaP 量子井戸(下)のマクロ PL スペクトル

図 10 は GaAsP 井戸層中央への N ドープの有無による PL 発光強度の温度依存性の違いを調べた結果である。N ドープなしのサンプルでは PL 強度が 50K 付近で消失するのに対して、N の δ ドーピングを行うことで 90-100K においても発光が確認されている。この結果は、本構造が等電子準位による単一光子発生の高温化に寄与する可能性を示唆している。

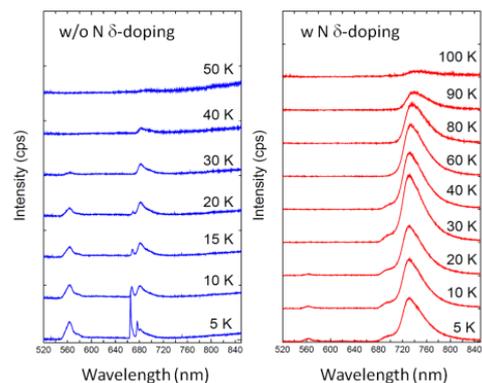


図 10 GaP/GaAsP/GaP 量子井戸(左)と GaP/GaAsP:N/GaP 量子井戸(右)のマクロ PL の温度依存性

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 14 件)

- ① L. Zhang, M. Ikezawa, T. Mori, S. Umehara, Y. Sakuma, K. Sakoda, and Y. Masumoto, "Single Photon Generation from an Impurity Center with Well-Defined Emission Energy in GaAs", Jpn. J. Appl. Phys., Vol.52, pp. 04CG11-1~04CG11-3 (2013). (査読有)
DOI: [10.7567/JJAP.52.04CG11](https://doi.org/10.7567/JJAP.52.04CG11)
- ② M. Jo, T. Mano, T. Kuroda, Y. Sakuma, and K. Sakoda, "Visible Single-Photon Emission from a Nitrogen Impurity Center in AlAs", Appl. Phys. Lett., Vol.102, pp. 062107-1~062107-3 (2013). (査読有)
DOI: [10.1063/1.4792315](https://doi.org/10.1063/1.4792315)
- ③ M. Ikezawa, Y. Sakuma, L. Zhang, Y. Sone, T. Mori, T. Hamano, M. Watanabe, K. Sakoda, and Y. Masumoto, "Single-Photon Generation from a Nitrogen Impurity Center in GaAs", Appl. Phys. Lett., Vol.100, pp. 042106-1~042106-3 (2012). (査読有)
DOI: [10.1063/1.3679181](https://doi.org/10.1063/1.3679181)
- [学会発表] (計 45 件)
- ① Y. Sakuma et al., "Formation of Isoelectronic Localized States with Well-Defined Emission Energy in δ -Doped GaAs:N", EWMOVPE 2013, 2013 年 6 月 5 日, アーヘン (ドイツ).
- ② 張遼ほか、「GaAs:N 中の単一不純物発光中心のフーリエ分光測定」、第 68 回日本物理学会年次大会、2013 年 3 月 26 日、広島大学 (広島県).
- ③ 森達哉ほか、「超コヒーレントな単一光子発生のための単一発光中心の共鳴励起」、第 68 回日本物理学会年次大会、2013 年 3 月 26 日、広島大学 (広島県).
- ④ L. Zhang et al., "Single Photon Generation from an Impurity Center with Well-Defined Emission Energy in GaAs", 2012 SSDM, 2012 年 9 月 25 日, 京都国際会館 (京都府).
- ⑤ M. Jo et al., "Evolution from Isoelectronic Impurities to an Impurity Band in N δ -Doped AlAs Grown by Molecular Beam Epitaxy", 17th ICMBE, 2012 年 9 月 23 日, 奈良新公会堂 (奈良県).
- ⑥ L. Zhang et al., "Homogeneous Linewidth of the Nitrogen Impurity Single Photon Source in GaAs", IUMRS-ICEM 2012, 2012 年 9 月 23 日, パシフィコ横浜 (神奈川県).
- ⑦ 張遼ほか、「GaAs:N 中のエネルギーが揃った発光中心からの単一光子の発生」、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 11 日、愛媛大学 (愛媛県).
- ⑧ 定昌史ほか、「AlAs 中の N 等電子中心」、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 11 日、愛媛大学 (愛媛県).
- ⑨ M. Jo et al., "Nitrogen Isoelectronic Impurity Centers in AlAs", 31st ICPS, 2012 年 7 月 29 日, チューリッヒ (スイス).
- ⑩ M. Ikezawa et al., "Fourier Spectroscopy of Individual Nitrogen Impurity Centers in GaAs", 31st ICPS, 2012 年 7 月 29 日, チューリッヒ (スイス).
- ⑪ M. Ikezawa et al., "Optical Spectroscopy of Individual Nitrogen Impurity Centers in GaAs and Single Photon Emission from a Bright Center", QD 2012, 2012 年 5 月 13 日, サンタフェ (アメリカ).
- ⑫ 張遼ほか、「GaAs:N 中の単一発光中心のフーリエ分光による発光均一幅の測定」、第 67 回日本物理学会年次大会、2012 年 3 月 27 日、関西学院大学 (兵庫県).
- ⑬ 張遼ほか、「GaAs 中の窒素不純物中心に束縛された励起子の位相緩和時間」、第 59 回応用物理学関係連合講演会、2012 年 3 月 17 日、早稲田大学 (東京都).
- ⑭ 佐久間芳樹ほか、「MOCVD 法により窒素をドーピングした GaAs からのエネルギーの揃った PL 輝線発光」、第 59 回応用物理学関係連合講演会、2012 年 3 月 17 日、早稲田大学 (東京都).
- ⑮ 張遼ほか、「GaP:N 中の二軸異方性単一窒素ペアの磁気光学」、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 23 日、富山大学 (富山県).
- ⑯ 館林潤ほか、「窒素を導入した GaP ナノワイヤの結晶成長及び光学特性」、第 58 回応用物理学関係連合講演会、2011 年 3 月 24 日、神奈川工科大学 (神奈川県).
- ⑰ 池沢道男ほか、「GaAs 中の窒素等電子中心からの単一光子発生」、第 73 回応用物理学会学術講演会、2010 年 9 月 14 日、長崎大学 (長崎県).
- ⑱ M. Ikezawa et al., "Reexamination of the Atomic Configurations of NN Centers and Observation of New Infrared Luminescence Centers in GaP:N", 30th ICPS, 2010 年 7 月 27 日, ソウル (韓国).
- ⑲ M. Ikezawa et al., "Atomic Configurations of NN Centers and New Infrared Luminescence Centers in GaP:N", 30th ICNP 2010, 2010 年 6 月 1 日, つくば国際会議場 (茨城県).
- ⑳ Y. Sakuma et al., "Isoelectronic Nitrogen δ -Doping in GaP and Single-Photon Emission From Individual Nitrogen Pairs", 30th ICNP 2010, 2010 年 6 月 1 日, つくば国際会議場 (茨城県).

[図書] (計 1 件)

佐久間芳樹、(株)シーエムシー出版、「バンドギャップエンジニアリング-次世代高効率デバイスへの挑戦-」監修:大橋直樹、第 I 編第 8 章「量子ナノ構造とエネルギーバンド」、2011 年、pp. 67~88.

[その他]

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/units/apm/qns/>

http://www.nims.go.jp/group/g_quantum-nanostructures/index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐久間 芳樹 (SAKUMA YOSHIKI)
独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・グループリーダー
研究者番号: 60354346

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

池沢 道男 (IKEZAWA MICHIO)
筑波大学・数理物質科学研究科・准教授
研究者番号: 30312797
齋木 敏治 (SAIKI TOSHIHARU)
慶応大学・理工学部・教授
研究者番号: 70261196