

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19360013
 研究課題名（和文） 光通信波長帯でもつれ合い光子対発生に向けた量子ドットの励起子微細構造制御の研究
 研究課題名（英文） Studies on exciton fine structures of quantum dots for generating entangled photon pairs at telecommunication wavelength
 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・半導体材料センター・主幹研究員
 研究者番号：60354346

研究成果の概要：量子暗号など将来の量子情報通信の要素として重要な波長 1.3～1.55 μm の光通信波長帯でもつれ合い光子対発生技術への展開を目指し、ダブルキャップ法による InAs/InP 系量子ドットの形成技術を開発するとともに、ドットの構造評価、および励起子微細構造、多励起子状態、励起子再結合寿命、位相緩和時間に関する観測と評価を行った。本研究によって多くの基礎データが取得でき、今後の技術開発に重要となる新たな知見が得られた。

交付額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|---------|------------|-----------|------------|
| 2007 年度 | 8,600,000 | 2,580,000 | 11,180,000 |
| 2008 年度 | 5,900,000 | 1,770,000 | 7,670,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 14,500,000 | 4,350,000 | 18,850,000 |

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：量子ドット、励起子、単一光子、励起子微細構造、光通信波長帯、MOCVD

1. 研究開始当初の背景

光通信による情報ネットワーク網が高度化・複雑化するに伴って、通信の秘匿技術の重要性がますます高まっている。特に、「不確定原理」という量子力学の基本原則に基づき、盗聴に対する絶対安全性が確保できる量子暗号技術に大きな関心が寄せられている。最も一般的な量子暗号の手法として、単一光子のパルス列を発生させ、各々の光子の偏光状態を使って暗号鍵配布を行なう BB84 プロトコルが提案されている。単一光子列の発生には、当初はレーザー光の強度を極度に減衰させる手法が使われたが、光パルス内に含まれる光子数を 1 個程度ま

で低下させると、通信速度も同時に低下して暗号システムの性能に限界が生じてしまう。そのため、半導体量子ドットを使って、単一光子をオンデマンドに自由に発生させる単一光子源の研究開発が活発化している。

研究代表者は、2004 年～2005 年にかけて MOCVD 法を用いてダブルキャップ法と呼ぶ極めて光学特性に優れた InAs/InP 系量子ドット形成技術の開発に成功し、東大荒川教授グループおよび富士通研究所と共同で、1.3 μm と 1.55 μm の光通信波長帯で単一光子発生を実証した。これらは世界初の成果であり、この研究分野の大きなトピックスとな

った。特に $1.55 \mu\text{m}$ 帯での単一光子発生の成功は、光ファイバー吸収損失が最小となる波長領域のため、その技術的価値は非常に高く評価されている。

ところで、実用的な量子暗号システムを構築するための次のステップとして、偏光という単一光子の量子状態を遠方まで伝える新たな技術が必要になる。単一光子の伝送距離は石英ガラスによる吸収損失で決まり、高々 100 km 程度に制限されてしまうからである。しかし、単一光子の偏光状態を観測して複製することは量子力学的に不可能なため、従来の古典的な中継器のように光検出増幅光再送信という手順が使えない。このため、光子の偏光情報を遠方まで中継しながら通信するには何らかの量子的な操作が必要になる。これがいわゆる量子中継器であるが、その原理の有力な候補として、量子もつれの状態になった光子対を使って偏光状態を別の光子に移し変える量子テレポーテーション（量子状態の遠隔地における再生）と呼ばれる技術が提案されている。近年、量子もつれ合い光子対の生成は非線形光学結晶によるパラメトリック下方変換技術で比較的簡単に実現できるようになったが、もつれ合い光子対の生成効率が極端に低いことや、励起レーザと光学系を含めると装置が大規模になり実用的な光通信システムとして使いにくい。量子暗号のような通信システムへの適用を考えると、光子対の生成効率が高く他の光デバイスとの集積化も可能な半導体量子ドットでの実現が強く望まれる。

2. 研究の目的

本研究では、我々が世界で初めて光通信波長帯での単一光子発生に成功したダブルキャップ法による InAs/InP 系量子ドット形成技術を発展させ、「量子もつれ合い光子対」（entangled photon pair）の発生を実現するための高度な量子ドット制御法へと新たな展開を図ることを目的とする。前記したように、もつれ合い光子対の発生は単一光子の石英ファイバー内伝送距離を格段に延ばすうえで必要な「量子中継器」（quantum repeater）に繋がる重要な技術であり、実用的な量子暗号システム構築のため、その実現が強く求められている。

半導体量子ドットを用いてもつれ合い光子対を発生させるには、スピン状態の異なる 2 種類の励起子準位を縮退させることが必須である。そうすることで、ドット内で 2 個の励起子が相互作用した励起子分子状態が、励起子状態を経て

真空状態に至る一連のカスケード的な再結合過程において、偏光状態がもつれ合った光子対を発生させることができる。そのため、ダブルキャップ法による InAs/InP 系量子ドット内の励起子準位を精密に観測し、エネルギー微細構造や励起子の再結合寿命やコヒーレンス時間に関する知見を明らかにすることを目的にして研究を進めた。

3. 研究の方法

減圧 MOCVD 法を使って InP(001) 基板上に Stranski-Krastanov (S-K) モードによる InAs の量子ドットを形成した後、ダブルキャップ法を施して平均高さが $1 \sim 2 \text{ nm}$ のディスク形状の量子ドットを形成した。ダブルキャップ法による量子ドットでは、InAs ドット上への InP のキャップ層の形成過程において、ドット最表面で砒素 (As) 原子とリン (P) 原子の置換反応が進み、ドットの周辺部に積層させた InP の第 1 キャップ層の高さと一致するまで S-K ドットの高さが低下する。しかも、As/P 置換反応が layer-by-layer で進行し、InAs ドットの高さが InAs の分子層厚（約 0.303 nm ）の整数倍の厚さで自己停止するという特徴的なメカニズムが働く。本研究では、このような量子ドット集団や個々の単一ドットの光学的性質を、後述するさまざまな光学測定手法を使って評価し、励起子再結合寿命や位相緩和時間、偏光特性、励起子微細分裂など、光通信波長帯におけるもつれ合い光子対発生の実現に必要な基礎データを取得した。

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) ダブルキャップ法による InAs/InP 量子ドットの構造評価と PL スペクトル

半導体量子ドット内の励起子エネルギーの微細構造には、量子ドットの形状異方性や歪み（ピエゾ効果）が大きく影響することが報告されている。このうちドットの形状異方性を評価するため、透過電子顕微鏡（TEM）観察を行った。図 1 にダブルキャップ法で成長した InAs/InP ドットの断面 TEM 像（図 1 (a)）と平面 TEM 像を示す。

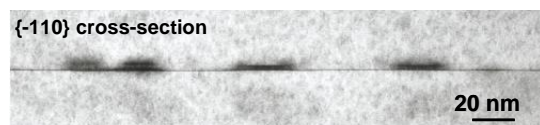


図 1 (a) ダブルキャップ法による InP(001)基板上の InAs 量子ドットの断面 TEM 像

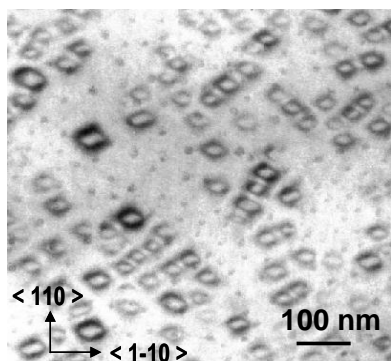


図 1 (b) ダブルキャップ法による InP(001) 基板上の InAs 量子ドットの平面 TEM 像

ダブルキャップ法による InAs ドットは、図 1 (a) に示すように高さが非常に薄い扁平なディスク形状になっている。また、図 1 (b) から明らかなように、 $\langle 1-10 \rangle$ 方向に長軸を持つ菱形に似た平面形状を持つことがわかった。

これらの量子ドット集団のマクロ PL と顕微 PL の対応を図 2 に示す。ここに示すように、本手法による量子ドットは、 $1.3 \sim 1.55 \mu\text{m}$ の通信波長帯をカバーする波長域で極めて良好な発光特性を示す。なお、マクロ PL に見られる幾つかのピークは、ダブルキャップ法で薄膜化された各々の InAs ドットの高さが 1 分子層ごとの厚さで離散化し、揺らいでいることに起因する。つまり、前述したように As/P 置換反応が layer-by-layer で進行し、かつ、自己停止する性質を持つことと密接に関係している。

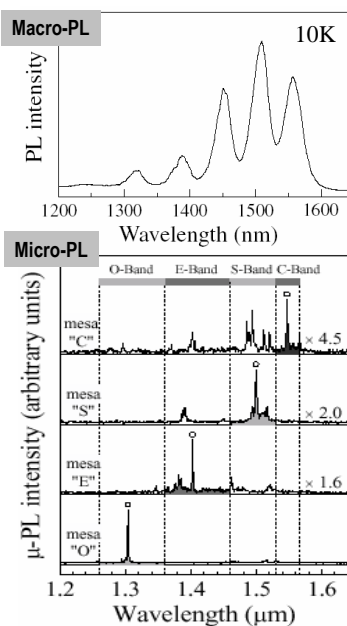


図 2 ダブルキャップ法による InAs ドットのマクロ PL と顕微 PL の対応

(2) 断面 STM による InAs/InP ドットのヘテロ界面の観察

名古屋大学・中村新男教授の研究協力を得て、ダブルキャップ法で作製した量子ドットを真空中でへき開し、その断面を走査型トンネル顕微鏡 (STM) を用いて観察した。この結果、図 3 に示すように InAs ドットと InP 基板 (バッファ層) および InP キャップ層のヘテロ界面は原子層レベルで極めて急峻であることがわかった。

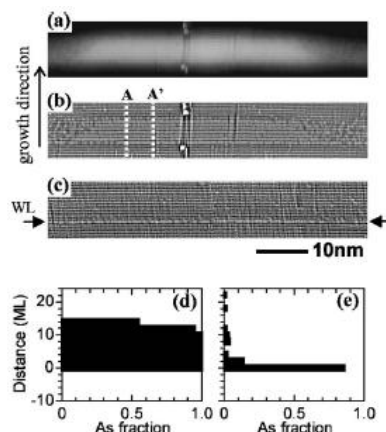


図 3 InAs ドットの断面 STM 像。(a) と (b) はドット部で、(b) は (a) をフィルタリング処理したもの。(c) は濡れ層部。(d) は (b) の成長方向の As 組成を A-A' 間で平均化したプロファイル。(e) は (c) に示す濡れ層部における成長方向の As 組成プロファイル

(3) NSOM による InAs/InP ドットのイメージングと多励起子状態の観測

量子もつれ合い光子対の生成には、励起子分子のようなドット内での多励起子状態の形成が不可欠である。顕微 PL による単一メサ構造内のドットの観測で複数の輝線が観測されるが、その起源が同一ドットによるものか判別が困難である。そのため、慶応大学・齋木准教授との連携により近接場顕微鏡 (NSOM) によるドットの評価を行った。図 4 は全てサンプルの同一箇所での PL 発光像で、上段 (a) ~ (c) は He-Ne ($\lambda = 633\text{nm}$) による InP バリア励起の像で、下段 (d) ~ (f) は LD ($\lambda = 980\text{nm}$) による InAs の直接励起の像である。

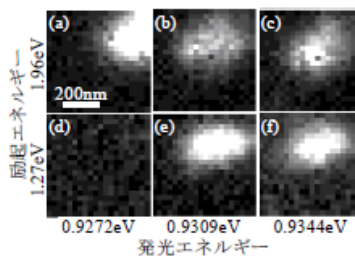


図 4 NSOM による単一量子ドットの発光像

図中(a)に見られる発光像が(d)では観測されないことから、0.9272eVは荷電励起子状態と推察される。また、0.9309eVと0.9344eVの発光は励起波長によらず観測されるので、いずれも中性の励起子状態と考えられるが、発光強度の励起強度依存性が前者は非線形に増加し、後者は線形に増加することから、それぞれ励起子分子と単一励起子の状態に対応すると考えられる。

(4)顕微PLによる単一ドット内励起子のエネルギー微細分裂

協力関係にある富士通研究所および東大のグループの研究において、典型的な単一ドットのPL発光スペクトルの高分解能測定を行った。この結果、単一励起子のエネルギー状態は[110]と[1-10]方向に直線偏光した2つの励起子の状態からなり、そのエネルギー微細分裂幅は70-80 μ eVの程度であることがわかった。[1-10]方向のエネルギー準位のほうが相対的に低い位置にあり、図1(b)に示したドットの長軸方向の偏光に対応していることも明らかになった。InAs/InP系ドットによる光通信波長帯での量子もつれ合い光子対を実現するには、このエネルギー微細分裂幅の制御技術の開発が重要である。

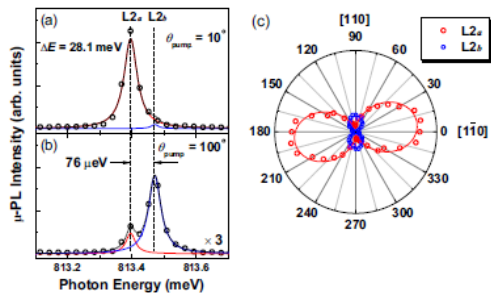


図5 単一ドットの偏光PLスペクトル。(a)[1-10]偏光でドット励起を行った場合、(b)[110]方向での励起(c)PL発光強度の励起方向依存性の曲座標表示

(5)InAs/InP量子ドットの発光再結合寿命の評価

上記のように、ダブルキャップ法によるInAs/InPドットにおいても比較的大きな励起子微細分裂幅の存在が明らかになった。このエネルギー分裂幅を克服し、もつれ合い光子対を生成する方法の一つとして、微小共振器を使って再結合寿命の短縮を図り、上記のエネルギー微細分裂幅を発光エネルギーの均一幅内に覆い隠してしまう手法が考えられる。このため、ダブルキャップ法によるInAs/InPドットの発光再結合寿命の評価を筑波大学・舛本泰章教授のグループと共同で進めた。

InAs/InP系には約3.2%の格子定数差が存在するが、我々のMOCVDによる成長条件下ではS-K量子ドットが形成されるInAsの臨界

膜厚は約2.4MLである。図6は2MLのInAsを堆積したInAs量子井戸構造のサンプル、および2.8MLのInAsを堆積してS-Kモードの量子ドットを形成した後にダブルキャッププロセスを施したドットサンプルの両者について、マクロPLの温度依存性を示したものである。いずれの場合も4.2Kから100Kまでの温度上昇に伴いPL積分強度は減衰するが、ドットのほうが温度に対する発光強度の低下は小さいことがわかった。

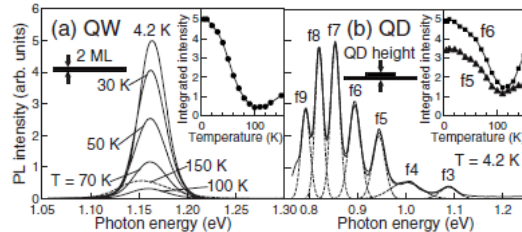


図6 2ML-InAs量子井戸とダブルキャップInAsドットのPL強度の温度依存性の比較

光通信波長帯では高感度の光検出器の入手が困難であるため、上記のサンプルについてアップコンバージョン法による時間分解PL法を使うことで励起子再結合寿命(T_1)の温度依存性を評価した。この結果、図7のような結果を得た。

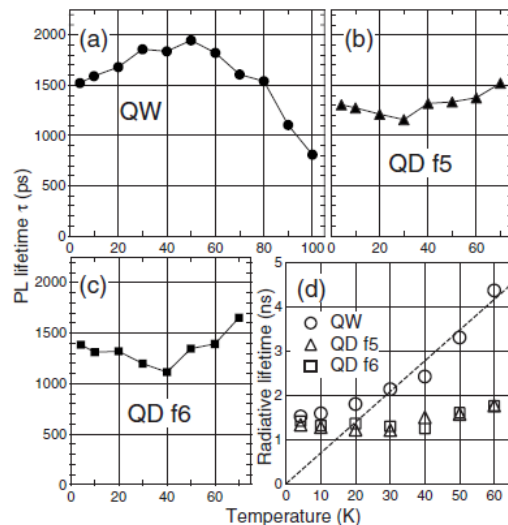


図7 井戸(QW)とドット(QD)の発光再結合寿命の温度依存性。QDは図6のf5(高さ5MLのドット)とf6(同じく高さ6MLのドット)についての測定結果

(d)に示すように、量子井戸の場合には4.2Kから20Kまでは T_1 は約1.5nsの一定値を示すが、20Kを超えると温度に比例して大きくなることがわかった。20K以下の特性は、平均値として2MLの厚みを持つ極薄井戸内にも膜厚揺らぎが存在し、そのポテンシャル極小領域に励起子が空間局在することで擬似的な量子ドットのように振舞っているものと解釈できる。一方、量子ドットの場合には、

T_1 の温度依存性は極めて小さくなっている。このような井戸とドットの T_1 の温度依存性の振る舞いは、H. Gotohらによりよって理論予測されている傾向と非常に良く一致することが確認できた。

(6) InAs/InP 量子ドットの位相緩和時間の評価

光通信波長帯における量子もつれ合い光子対を発生する方法として、空間的に異なるドットから発せられたエネルギーの一致する2つの単一光子を干渉させたり、あるいは同一のドットから時系列的に発せられた2個の単一光子の一個に時間遅延をかけて干渉させる手法が考えられる。このようにエネルギーの揃った2個の光子を干渉させる際、光子の位相が乱れていないことが重要になる。そのため、連携研究者の物質・材料研究機構・黒田隆氏と共同で、ダブルキャップ法による InAs/InP 単一量子ドットからの単一光子の位相緩和時間の評価をマイケルソン干渉計と顕微 PL を組み合わせた装置を用いて行った。

図8に実験結果を纏めた。図に示すように低温における単一ドットの発光線幅は約 $10 \mu\text{eV}$ と極めて狭く、130ps という通信波長帯の量子ドットでは極めて長い位相緩和時間 (T_2) を持つことが明らかになった。また、温度上昇に伴う T_2 の短縮メカニズムは、従来から提案されている単純な LO フォノン散乱によるものではなく、InP バリア内に生成される自由キャリアの運動に関係していることが示唆された。

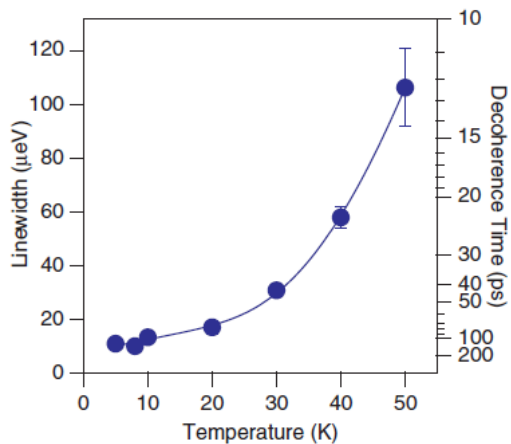


図8 InAs/InP 系の単一量子ドットの PL 発光線幅および位相緩和時間の温度依存性

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 10 件)

- ① T. Kuroda, Y. Sakuma, K. Sakoda, K. Takemoto, T. Usuki, “Decoherence of single photons from an InAs/InP quantum dot emitting at a 1.3 μm wavelength”, Physica Status Solidi (c), Vol.6, pp.944~947 (2009). (査読有)
- ② M. Ikezawa, Y. Sakuma, M. Watanabe, Y. Masumoto, “Observation of a new isoelectronic trap luminescence in nitrogen δ -doped GaP”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.48, pp.04C158-1~04C158-3 (2009). (査読有)
- ③ M. Ikezawa, Y. Sakuma, M. Watanabe, Y. Masumoto, “Single NN pair luminescence and single photon generation in nitrogen δ -doped GaP”, Phys. Stat. Sol. (c), Vol.6, pp.362~365 (2009). (査読有)
- ④ Y. Sakuma, M. Ikezawa, M. Watanabe, Y. Masumoto, “Isoelectronic nitrogen δ -doping and single-photon emission from individual nitrogen pairs”, J. Crystal Growth, Vol.310, pp. 4790~4794 (2008). (査読有)
- ⑤ K. Takemoto, S. Hirose, M. Takatsu, N. Yokoyama, Y. Sakuma, T. Usuki, T. Miyazawa, Y. Arakawa, “Telecom single-photon source with horn structure”, Physica Status Solidi (c), Vol.5, pp. 2699~2703 (2008). (査読有)
- ⑥ M. Ikezawa, Y. Sakuma, and Y. Masumoto, “Single photon emission from individual nitrogen pairs in GaP”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.46, pp. L871~L873 (2007). (査読有)
- ⑦ S. Tomimoto, A. Kurokawa, Y. Sakuma, T. Usuki, and Y. Masumoto, “Radiative recombination of excitons in disk-shaped InAs/InP quantum dots”, Phys. Rev. B, Vol.76, pp. 205317-1~205317-5 (2007). (査読有)
- ⑧ T. Kuroda, Y. Sakuma, K. Sakoda, K. Takemoto, and T. Usuki, “Single-photon interferography in InAs/InP quantum dots emitting at 1300nm wavelength”, Appl. Phys. Lett., Vol.91, pp. 223113-1~223113-3 (2007). (査読有)
- ⑨ K. Takemoto, M. Takatsu, S. Hirose, N. Yokoyama, Y. Sakuma, T. Usuki, T. Miyazawa, and Y. Arakawa, “An optical horn structure for single-photon source using quantum dots at telecommunication wavelength”, J. Appl. Phys. Vol.101, 081720-1~081720-4 (2007). (査読有)
- ⑩ Y. Akanuma, I. Yamakawa, Y. Sakuma, T. Usuki, and A. Nakamura, “Scanning tunneling microscope study of interfacial structure of InAs quantum dots on InP(001) grown by a double-cap method”, Appl. Phys. Lett., Vol.90, pp.093112-1~093112-3 (2007). (査読有)

〔学会発表〕(計 16 件)

- ① M. Ikezawa et. al., “Observation of a new isoelectronic trap luminescence in nitrogen δ -doped GaP”, 2008 International Conference on SSDM, 2008 年 9 月 24 日, つくば国際会議場 (つくば市).
- ② 池沢道男ほか、「窒素を δ ドープした GaP の単一等電子トラップ分光(II)」, 日本物理学会 2008 秋季大会, 2008 年 9 月 20 日, 岩手大学, (盛岡市).
- ③ 佐久間芳樹ほか、「GaP 中への Nドープ技術と等電子トラップによる単一光子発生」, 第 69 回応用物理学会学術講演会, 2008 年 9 月 2 日, 中部大学 (春日井市).
- ④ 水野大ほか、「InAs/InP 量子ドットの光学特性における濡れ層局在電子の与える影響」, 第 69 回応用物理学会学術講演会, 2008 年 9 月 2 日, 中部大学 (春日井市).
- ⑤ 臼杵達哉ほか、「単一量子ドットの励起子微細構造」, 第 69 回応用物理学会学術講演会, 2008 年 9 月 2 日, 中部大学 (春日井市).
- ⑥ 黒田隆ほか、「InAs/InP 量子ドットの発光スペクトル形状」, 第 69 回応用物理学会学術講演会, 2008 年 9 月 2 日, 中部大学 (春日井市).
- ⑦ M. Ikezawa et. al., “Single NN pair luminescence and single photon generation in nitrogen δ -doped GaP”, International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, 2008 年 6 月 22 日, 京都大学 (京都市).
- ⑧ Y. Sakuma et. al., “Isoelectronic nitrogen δ -doping in GaP and single-photon emission from individual nitrogen pairs”, 14th International Conference on MOVPE 2008, 2008 年 6 月 1 日, Metz (France).
- ⑨ T. Kuroda et. al., “Decoherence of single photons from an InAs/InP quantum dot emitting at a 1.3 μ m wavelength”, The 5th International Conference on Semiconductor Quantum Dots, 2008 年 5 月 11 日, Hotel Hyundai Gyeongju (Korea).
- ⑩ 久保田良輔ら、「InAs 直接励起における InAs/InP 単一量子ドットの近接場イメージング分光」, 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 2008 年 3 月 27 日, 日本大学理工学部船橋キャンパス (船橋市).
- ⑪ 佐久間芳樹, 「単一光子源にむけた量子ナノ構造の形成技術」, 第 11 回名古屋大学 VBL シンポジウム, 2007 年 11 月 5 日, 名古屋大学 (名古屋市).
- ⑫ K. Takemoto et. al., “Telecom single-photon source with horn

structure”, The 34th International Symposium on Compound Semiconductors, 2007 年 10 月 15 日, 京都大学 (京都市).

- ⑬ 富本慎一ら、「InAs/InP 量子井戸及びディスク状量子ドットにおける励起子輻射再結合寿命」, 日本物理学会第 62 回年次大会, 2007 年 9 月 21 日, 北海道大学 (札幌市).
- ⑭ 竹本一矢ら、「ホーン型 1.5 μ m 単一光子発生器の PLE 選択励起」, 第 68 回応用物理学会学術講演会, 2007 年 9 月 4 日, 北海道工業大学 (札幌市).
- ⑮ 久保田良輔ら、「InAs/InP 量子ドットにおける InAs 濡れ層の近接場イメージング分光」, 第 68 回応用物理学会学術講演会, 2007 年 9 月 4 日, 北海道工業大学 (札幌市).
- ⑯ 中島幸次ら、「1.55 μ m 帯発光 InAs/InP 単一量子ドットの近接場分光」, 第 68 回応用物理学会学術講演会, 2007 年 9 月 4 日, 北海道工業大学 (札幌市).

〔図書〕(計 1 件)

佐久間芳樹, オーム社, 薄膜ハンドブック (第 2 版), 2008 年, pp. 254~255.

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・半
導体材料センター・主幹研究員
研究者番号: 60354346

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

齋木 敏治 (SAIKI TOSHIHARU)
慶応大学・理工学部・准教授
研究者番号: 70261196
池沢 道男 (IKEZAWA MICHIO)
筑波大学・数理物質科学研究科・講師
研究者番号: 30312797
黒田 隆 (KURODA TAKASHI)
独立行政法人物質・材料研究機構・量子
ドットセンター・主幹研究員
研究者番号: 00272659