

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：32607

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H01831

研究課題名（和文）半導体中の局在電子分極の局所電場効果を利用する不可識別光子発生

研究課題名（英文）Indistinguishable photon generation by localized polarization in semiconductors using a local field effect

研究代表者

三森 康義 (Mitsumori, Yasuyoshi)

北里大学・理学部・教授

研究者番号：70375153

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,100,000円

研究成果の概要（和文）：光子を利用する量子計算・量子情報通信では量子干渉を利用するため、見分けのつかない高い不可識別性をもつ単一光子が多数、必要である。現在、半導体による不可識別光子発生は個々の量子ドットや不純物中心からの発光光子の波長・波束を一致させるために、結晶成長後に煩雑な微細加工・高度な分光法などが必要である。本研究では、半導体結晶中の不純物中心や量子ドットに局在する電子分極の共鳴エネルギーを励起光強度の変化により制御を行う新方式の提案し、フォトンエコースペクトルの励起光強度依存性を測定することで共鳴エネルギーのシフトを実際に測定した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した半導体量子ドットや不純物中心に局在する励起子などの局在電子分極の共鳴エネルギーの精密制御法は、励起光強度を操作するだけで制御が可能のため、微細加工や高度な分光技術が必要な先行研究の共鳴エネルギー制御法と比較し、はるかに簡便な方法である。このため、本研究で開発した方法は将来的に光子で量子計算、量子情報処理を行う際に必要となる不可識別光子の物理的性質の同一性を高める上で非常に重要な要素技術になると期待される。

研究成果の概要（英文）：Recently, indistinguishable photon generation using a semiconductor exciton localized to an impurity center and a quantum dot has required microfabrications and difficult spectroscopy techniques to tune the generated photon to the same wavelength. In this research project, we proposed a simple way to tune the resonant energy of each localized exciton by controlling the excitation laser light intensity through a local field effect. We also observed the resonant energy shift by measuring the dependence of the photon echo spectrum on the excitation intensity in exciton systems localized to impurity centers in a GaAs film.

研究分野：半導体光物性

キーワード：半導体量子ドット 光子 局在電子分極

1. 研究開始当初の背景

光子を利用する量子計算機、量子情報通信を実現するには、単一光子、量子もつれ光子対の発生が不可欠である。量子計算・量子情報通信では情報処理において量子干渉を多用するため、実用上単一光子発生はスケラブルでかつ見分けのつかない高い不可識別性が求められる。現在、単一光子発生はパラメトリック下方変換による伝令付き単一光子発生、半導体量子ドットや不純物束縛励起子を光学励起・電流注入励起することによりなされている。一方、不可識別光子発生の観点では、波長・波束等の物理パラメータが一致する光子を多数発生する必要があり、現段階では多くの試みがなされている。特に半導体デバイスによる不可識別光子発生においては、発光波長が一致する電子分極をデバイス作製後に多数個の中から“探す”方法、微細加工を伴う AC・DC シュタルク効果による発光波長の制御で行っている。また発光光子を非線形光学結晶で制御レーザー光と和周波混合し、同一波長にする試みや、同じ電子分極を時間差で 2 回励起し、その発光光子対を光学距離が非対称な干渉計に入力して不可識別光子を発生する方法などが実験的に検証されている。しかし、先行研究の発生法は非常に高度な分光技術や煩雑な微細加工を利用するため、2 光子の発生も困難を極めていた。一方、将来的に量子計算機で素因数分解を行う場合、誤り訂正用の量子ビットの準備等で実用上少なくとも数万個以上の不可識別光子が必要である。このため、より簡便で平易な方式で正確に物理的性質が一致する光子を半導体で多数発生する方法の開発が急務である。

2. 研究の目的

上述の背景より、半導体デバイスによる不可識別光子発生は、現在のところ非常に高度な微細加工、分光技術を基に研究が進められている。本研究課題においては、局在電子分極が内在している光学効果を利用することによって、簡便でかつ平易な方法で半導体局在電子分極から発生する発光光子の共鳴エネルギー制御法の開発を行うことを目的として研究を実施した。本研究では特に単一局在電子分極内の異なる位置の光誘起電荷間のクーロン相互作用(局所電場効果)に着目し、局在電子分極の共鳴エネルギーの精密制御法の開発を行った。局所電場効果では、共鳴エネルギーが局在電子分極の分布数差に応じて変化する。また、局在電子分極の分布数差は励起光強度の操作により制御可能なため、結果的に励起光強度の操作のみで局在電子分極の共鳴エネルギーの制御が可能となる。また、本研究では発光光子の不可識別性をより高めることを目的に、局在電子分極の輻射線幅を広げる半導体デバイス構造に関する研究を行った。

3. 研究の方法

本研究では、以下の方法で研究を行った。

(1) GaAs 薄膜に不純物原子として Be、Si を希薄ドーピングしたサンプルの作製と不純物中心に束縛されている局在励起子の共鳴エネルギーシフトの測定

半導体不純物中心に束縛されている励起子の局所電場効果を研究するために、分子線エピタキシャル成長法(MBE)によって希薄不純物ドーピングのサンプル作製を行った。不純物原子として Be、Si を希薄ドーピングした。一般に GaAs 薄膜は GaAs 基板の上に結晶成長させる。このため、MBE で結晶成長させた高品質な GaAs 薄膜のみの光学応答を抽出するために、基板と薄膜の間に分布ブラッグ反射(DBR)ミラーを結晶成長させた特殊なサンプルを作製した。共鳴エネルギーのシフトは巨視的コヒーレント分光法であるフォトンエコー法を用い、フォトンエコースペクトルの励起光強度依存性の測定を行い、共鳴エネルギーシフトの観測を行った。

(2) 半導体微小共振器中の量子ドットの共鳴励起スペクトルの測定

局所電場効果による局在励起子からの単一発光光子の波長制御を行うために、DBR ミラーで微小共振器を作製し、その活性層の中央に量子ドットを結晶成長した半導体デバイスを作製した。単一量子ドット分光の側面から局所電場効果による共鳴エネルギーシフトの実証を目的に研究を行った。

(3) 輻射線幅の増大による量子ドットからの発光光子の不可識別性の向上

光子の不可識別性を向上させるには局在電子分極の共鳴エネルギーを一致させる方法だけでなく、輻射線幅を広げ、スペクトル上で個々の発光光子のスペクトルの重なり多くする方法も存在する。局在電子分極の輻射線幅を広げるためにナノファイバー上で量子ドットと金属ナノ粒子中の局在表面プラズモンを結合させ、輻射線幅を広げる試みを行った。輻射線幅が広がると発光寿命が高速化(パーセル効果)が生じる。このため、本研究では発光寿命の変化を測定し、輻射線幅の広がりによる不可識別性の向上に関する可能性に関して研究を行った。

4. 研究成果

本研究では高品質の GaAs 薄膜に Be を希薄ドーブし、非常に細い発光線を示す中性アクセプター束縛励起子に対して、共鳴エネルギーシフトの観測を行った。MBE で作製したサンプルの温度 5K での発光スペクトルを図 1 に示す。発光スペクトルは自由励起子 (FX) とアクセプターの役割をする Be 不純物中心に束縛されている中性アクセプター励起子 (A^0X) が観測された。GaAs 薄膜の中性アクセプター励起子は結晶場と電子とホールの変調関数の対称性により 3 つの準位に分裂することが知られている。作成したサンプルにおいても中性アクセプター励起子発光の 3 つの分裂が明瞭に観測された。このことにより、作製したサンプルは非常に高品質であると考えられる。3 つの中性アクセプター励起子は、それぞれ低エネルギー側より、 Γ_3 、 Γ_5 、 Γ_1 励起子と呼ばれている。このサンプル中の比較的大きな発光ピークを示す Γ_3 、 Γ_5 励起子について、2 パルス-フォトンエコースペクトルの励起光強度依存性を測定した。2 つの励起光パルスの遅延時間を 100ps に設定し、サンプル温度 5K 下で測定した。図 2 に測定結果を示す。 Γ_3 、 Γ_5 励起子の共鳴エネルギーは励起光強度の増加とともに低エネルギー側にシフトしていく様子が観測された。共鳴エネルギーのシフト量は Γ_3 励起子で 50 μeV 程度であり、 Γ_5 励起子は 20 μeV 程度であった。励起光強度の増加とともに共鳴エネルギーのピークが低エネルギー側にシフトしていく傾向は局所電場効果の理論が予測する傾向と一致している。また、この結果は局在電子分極の共鳴エネルギーが励起光の強度を操作することで精密制御可能であることを実験的に示している。一方、フォトンエコーシグナルの減衰形状は、図 3 に示す通り、 Γ_3 、 Γ_5 励起子ともに単一指数関数的減衰であった。不均一幅の非常に広い半導体量子ドットにおける我々の先行研究では、局所電場効果存在下でのフォトンエコーシグナルの減衰形状は非常に強い励起光強度依存性を示すことが実験と理論計算の両方で解明されている。このため、図 2 の共鳴エネルギーシフトの物理的起因に関しては、局所電場効果由来なのか他の光学効果によるものなのか、現段階では正確に同定することが難しく、今後さらに四光波混合などの光学過程によって慎重に実験結果を解析する必要がある。本研究では中性アクセプター励起子以外に GaAs 薄膜中のイオン化ドナー束縛励起子においてもフォトンエコーシグナルのスペクトル形状、減衰形状の励起光強度依存性の測定を行った。イオン化ドナー束縛励起子は不均一幅が広く共鳴エネルギーのシフトは観測できなかったが、減衰形状においては局所電場効果特有の変化の観測に成功した。

本研究では単一光子発生側面からも研究を行った。サンプルは比較的低密度に局在電子分極を作製できる半導体量子ドットを用いた。半導体量子ドットのサンプルのデバイス構造は基板側から GaAs と AlAs を共鳴波長の 1/4 の膜厚で交互に積層することで分布反射型 (DBR) ミラーを作製し、その上に活性層として共鳴波長の膜厚の GaAs を成長した。活性層の中央に InAs 量子ドットを低密度で作製し、さらに活性層の上部に DBR ミラーを結晶成長することで、半導体微小共振器構造のサンプルを作製した。共振器の性能を表す Q 値がおおよそ 500~2000 の複数の半導体微小共振器を作製した。図 4 に温度 6K 下で測定した顕微発光スペクトルを示す。図 4 の顕微発光スペクトルには 2 つのピークが観測されているが、これは励起光のスポット径 (直径約 2 μm) 中に量子ドットが 2 つ存在していることに起因する。共振器中の量子ドットの発光効率には共振器なしの量子ドットと比較すると非常に向上していることを確認した。また、図 4 の発光スペクトルの量子ドットに対して強度相関法 (コインシデンス測定) を用いて発光光子の単一性に関しても確認を行った。局所電場効果による共鳴波長制御では、量子ドットの発光スペクトルのピークに対して共鳴励起発光測定を行う必要がある。一般に共鳴励起発光測定では、励起レーザー光と発光

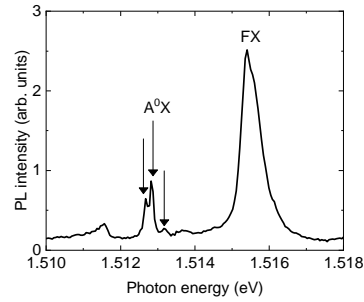


図 1: Be 希薄ドーブ GaAs 薄膜の発光スペクトル

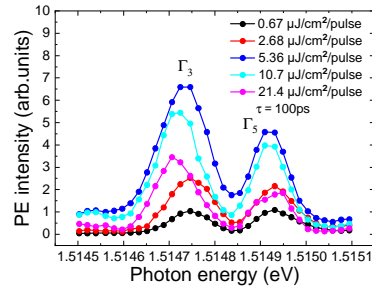


図 2: フォトンエコースペクトルの励起光強度依存性

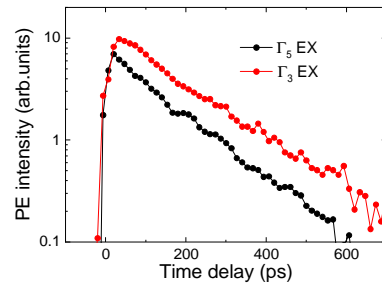


図 3: フォトンエコーシグナルの減衰形状

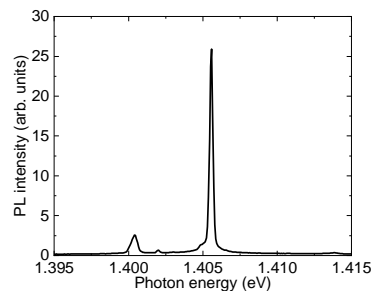


図 4: 半導体微小共振器中の量子ドットの顕微発光スペクトル

光子の波長が同一になるため、何らかの方法で励起レーザー光を除去する必要がある。本研究では、量子ドットの発光ピークの波長に対して直線偏光のレーザー光で共鳴励起を行い、その偏光と直交する偏光方向の発光光子を測定することで共鳴励起発光測定を試みた。研究期間内に、ほぼ励起レーザー光の除去を達成したが、安定的に実験を進めるところまでは至らなかった。そこで、励起分子 2 光子共鳴励起を用いることで、偏光ではなくスペクトル領域から励起レーザー光を除去する方法を採用した。励起分子 2 光子共鳴励起では、励起分子から励起子に遷移するとき放出される発光光子の波長と励起子から基底状態に遷移するときの発光光子の波長が異なるため、励起レーザー光と励起分子発光、励起子発光の波長がすべて異なる実験条件で実験が可能となる。本研究では研究期間終盤に 2 光子共鳴励起による励起子発光、励起分子発光の安定的測定を実現した。今後は 2 光子干渉実験を行い、正確に物理的性質が一致する光子の生成が局所電場効果により制御可能か実証する予定である。また、さらに発光効率を上げるために共振器構造をピラー型微小共振器に加工する予定である。

単一光子発生における不可識別性の向上は、局所電場効果だけでなく、輻射線幅を増大させる方法も存在する。輻射線幅が増大するとスペクトル領域で発光スペクトルの重なり多くなり、結果的に不可識別性の向上につながる。一般に輻射線幅が増大すると発光寿命の高速化（パーセル効果）が生じる。この発光寿命の高速化を観測することで輻射線幅の増大に関する研究を行った。用いたデバイス構造は直径約 500nm のナノファイバー上に II-VI 族系の量子ドットと金属ナノ粒子を付着させ、量子ドットと金属ナノ粒子の距離が数十 nm になっている結合系をナノファイバー上で探し出し、室温で強度相関法を用いて測定を行った。量子ドットの発光光子はナノファイバーの近接場を介してナノファイバー内に直接生成が可能となっている。量子ドットと金属ナノ粒子の結合系では、量子ドットの発光電場が金属ナノ粒子中の局在表面プラズモンと共鳴することで発光寿命の高速化（パーセル効果）が誘発される。ナノファイバー上で金属ナノ粒子と結合していない場合の量子ドットの発光寿命は ~ 300ns だったものが、結合すると発光寿命が ~ 4.5ns まで高速化されることを実験的に見出した。この発光寿命の変化より、パーセル因子が ~ 60 と計算でき、輻射線幅もおおよそ 60 倍増大することが確認された。また、併せて発光光子の単一性についても確認を行った。これらにより、量子ドットを金属ナノ粒子に結合することによって生じる輻射線幅の増大効果も不可識別光子発生において有効な方法であることが判明した。

以上まとめると、本研究期間内に半導体中の不純物中心に束縛されている励起子の共鳴エネルギーは励起光強度で制御可能であることを実験的に検証し、この制御法が半導体局在電子分極による不可識別光子発生の実現に向けて有効な発光波長制御法であることを示した。一方、共鳴エネルギーシフト自体の物理的過程は今後、慎重に同定する必要があると考えられる。また、単一光子の発光波長制御を検証するための半導体微小共振器を作製し、励起分子 2 光子共鳴励起により、共鳴励起発光の観測に成功した。さらに量子ドット-金ナノ粒子結合系において非常に大きな輻射線幅の増大を観測し、量子ドットから発光する光子の不可識別性のさらなる向上に関する知見を得た。今後は 2 光子干渉実験を行い、定量的な側面から半導体局在電子分極からの発光光子の不可識別性の評価を行う必要がある。最後に本研究で得られたこれらの成果は、量子情報通信技術、物性物理の実験的研究の発展に大きく寄与するものであると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Akahane Kouichi, Matsumoto Atsushi, Umezawa Toshimasa, Yamamoto Naokatsu, Yata Yuki, Sotobayashi Hideyuki, Naruse Makoto, Kanno Atsushi	4. 巻 61
2. 論文標題 Multichannel random signal generation in optical fiber-based ring laser with quantum-dot semiconductor optical amplifier	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SC1055 ~ SC1055
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac4a02	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 -
1. 著者名 Akahane Kouichi, Matsumoto Atsushi, Umezawa Toshimasa, Tominaga Yoriko, Yamamoto Naokatsu	4. 巻 219
2. 論文標題 Growth of InPBi on InP(311)B Substrate by Molecular Beam Epitaxy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 physica status solidi (a)	6. 最初と最後の頁 2100411 ~ 2100411
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.202100411	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 -
1. 著者名 Sugawara Masakazu, Xuan Yining, Mitsumori Yasuyoshi, Edamatsu Keiichi, Sadgrove Mark	4. 巻 4
2. 論文標題 Plasmon-enhanced single photon source directly coupled to an optical fiber	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 043146/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.4.043146	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Sadgrove Mark, Yoshino Takaaki, Sugawara Masakazu, Mitsumori Yasuyoshi, Edamatsu Keiichi	4. 巻 16
2. 論文標題 Optically Induced Sieve Effect for Nanoparticles near a Nanofiber Taper	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 044034 044034/9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevapplied.16.044034	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Mitsumori Yasuyoshi、Uedaira Kentaro、Shimomura Satoshi、Edamatsu Keiichi	4. 巻 29
2. 論文標題 Photoinduced Kerr rotation spectroscopy for microscopic spin systems using heterodyne detection	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 10386 ~ 10386
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.417193	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 -

1. 著者名 Kaneda Fumihito、Oikawa Jo、Yabuno Masahiro、China Fumihito、Miki Shigehito、Terai Hirotaka、Mitsumori Yasuyoshi、Edamatsu Keiichi	4. 巻 28
2. 論文標題 Spectral characterization of photon-pair sources via classical sum-frequency generation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 38993 ~ 38993
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.412448	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 -

1. 著者名 Yoshino Takaaki、Yamaura Daichi、Komiya Maki、Sugawara Masakazu、Mitsumori Yasuyoshi、Niwano Michio、Hirano-Iwata Ayumi、Edamatsu Keiichi、Sadgrove Mark	4. 巻 28
2. 論文標題 Optical transport of sub-micron lipid vesicles along a nanofiber	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 38527 ~ 38527
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.411124	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 -

1. 著者名 Akahane Kouichi、Matsumoto Atsushi、Umezawa Toshimasa、Yamamoto Naokatsu	4. 巻 10
2. 論文標題 Fabrication of In(P)As Quantum Dots by Interdiffusion of P and As on InP(311)B Substrate	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 90 ~ 90
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst10020090	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9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Masakazu Sugawara, Mark Sadgrove, Yasuyoshi Mitsumori, and Keiichi Edamatsu
2. 発表標題 Plasmon-Enhanced Polarized Single Photon Source Coupled to an Optical Nanofiber at Room Temperature
3. 学会等名 The 3rd International Forum on Quantum Metrology and Sensing (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Fumihiro Kaneda, Jo Oikawa, Yasuyoshi Mitsumori, and Keiichi Edamatsu
2. 発表標題 High-Precision Spectral Measurements of Photon-Pair Sources via Frequency-Resolved Sum-Frequency generation
3. 学会等名 CLEO: Applications and Technology 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kaneda, F., Oikawa, J., Yabuno, M., China, F., Miki, S., Terai, H., Mitsumori, Y., Edamatsu, K.
2. 発表標題 Multi-Order Quasi-Phase Matching for Generation of Pure Heralded Single Photons
3. 学会等名 Quantum 2.0, QUANTUM 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yining Xuan, Masakazu Sugawara, Yasuyoshi Mitsumori, Keiichi Edamatsu, Mark Sadgrove
2. 発表標題 Plasmon-enhanced single photon source on an optical nanofiber
3. 学会等名 CLEO-PR2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M. Sadgrove, A. Suda, R. Matsuyama, M. Komiya, T. Yoshino, D. Yamaura, M. Sugawara, M. Niwano, Y. Mitsumori, K. Edamatsu, and A. Hirano-Iwata
2. 発表標題 Liposome manipulation using the evanescent field of an optical nanofiber
3. 学会等名 Optical Manipulation and Its Applications 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 及川 暲, 三森康義, 枝松圭一, 金田文寛
2. 発表標題 変調された周期分極反転結晶による周波数不可識別伝令付き単一光子対源の開発
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金井天馬, 三森康義, 枝松圭一, 金田文博
2. 発表標題 光ファイバーを用いた長周期リング型量子メモリの開発
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 地主将規, 三森康義, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克
2. 発表標題 GaAs中の不純物中心に局在する励起子のフォトンエコー
3. 学会等名 第31回 光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 三森康義, 持山英, 枝松圭一, 小川佳宏
2. 発表標題 ヘテロダイン時間分解顕微力一回転測定法の開発
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020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	赤羽 浩一 (Akahane Kouichi) (50359072)	国立研究開発法人情報通信研究機構・フォトニックICT研究センター 光アクセス研究室・室長 (82636)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------