

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24年 6月 4日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360004

研究課題名（和文） 局所ドーピング構造半導体による単一光子発生に関する研究

研究課題名（英文） Single Photon Generation from locally doped semiconductors

研究代表者

矢口 裕之（YAGUCHI HIROYUKI）

埼玉大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：50239737

研究成果の概要（和文）：原子層ドーピング技術を用いて局所ドーピング構造半導体を作製し、量子暗号通信などの量子情報技術において重要となる、優れた波長再現性・完全なランダム偏光などの特徴を有する単一光子発生の実現を目指した。窒素原子局所ドーピング構造半導体の作製に用いる基板面方位の選択によって量子暗号通信への応用にとって望ましい完全なランダム偏光を実現した。また、量子もつれ光子対生成につながる励起子分子発光の観測に成功した。

研究成果の概要（英文）：We have fabricated locally doped semiconductors using atomic layer doping to realize the generation of unpolarized single photons with highly reproducible wavelengths, which is essential in the field of quantum information technology, such as quantum cryptography. We have obtained unpolarized single photons by selecting a proper face of the substrate to grow nitrogen atomic layer doped semiconductors. In addition, we have successfully observed biexcitation emission from nitrogen atomic layer doped semiconductors, which leads to the generation of entangled photon pairs.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	9,000,000	2,700,000	11,700,000
2010年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
2011年度	1,700,000	510,000	2,210,000
総計	14,200,000	4,260,000	18,460,000

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：半導体物性 光物性 応用光学・量子光工学 MBE、エピタキシャル 単一光子

1. 研究開始当初の背景

量子暗号[1]や量子コンピュータなどの量子情報技術の実現に向けて様々な方面から研究が進められている。単一光子発生源の実現もそのための重要な研究対象であり、ダイヤモンド中の窒素-空孔による発光中心の利用[2]や半導体量子ドットの利用[3]などのアプローチによる研究が行われている。このような背景の下、半導体中に局所的に窒素原子をドーピングした構造を作製し、それを単一光子発生に利用しようとする研究が、最近、

我々[4, 5]を含めたいくつかの研究グループ[6]で行われるようになってきた。

これまでに、本研究代表者は、窒素原子局所ドーピング構造半導体中の孤立した窒素原子対からの発光を観測することに成功し、波長再現性に優れている点などから単一光子発生への応用に対する高いポテンシャルを示してきた。さらに、孤立した窒素原子対からの発光を詳細に検討した結果、200 μeV 程度のエネルギー差で、2つの鋭い発光線に分裂していることを明らかにした。また、こ

の2つの発光線は互いに直交した直線偏光を示すことを明らかにした。ランダム偏光を必要とする量子暗号通信への応用を考えた場合、このような分裂および偏光特性は解決すべき課題であった。

2. 研究の目的

以上のような背景から、本研究では、原子層ドーピング技術などを利用して、窒素原子による局所ドーピング構造半導体を作製し、量子暗号通信や量子コンピュータなどの量子情報技術において重要な役割を果たす、優れた波長再現性・完全なランダム偏光・高い光子発生効率などの特徴を有する単一光子発生の実現を目指した。

3. 研究の方法

(1) 試料の作製

本研究では、原子層ドーピング技術を用いることによって、窒素(N)原子を局所ドーピングしたヒ化ガリウム(GaAs)を主に作製し、窒素原子対によって形成される等電子トラップからの単一光子発生を研究の対象とした。

作製した試料の構造を図1に示す。GaAs (001), GaAs (111)あるいはGaAs (110)基板上に200 nmから300 nm厚のGaAsバッファ層を成長した後、窒素原子層ドーピングを行い、その上にキャップ層として40 nm厚のGaAsを成長した。

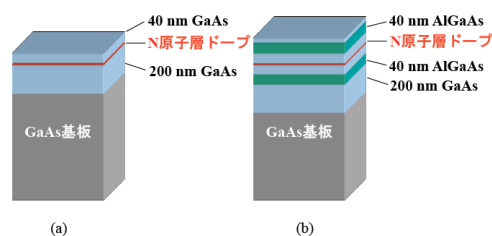


図1 (a)窒素原子層ドーピング構造 (b)窒素原子層ドーピング構造をAlGaAs層で挟んだヘテロ構造

また、ランダム偏光と高い光子発生効率を得ることを目的として、図1 (b)に示すような窒素原子層ドーピング構造をAlGaAs層で挟んだヘテロ構造を作製した。

(2) 顕微フォトルミネッセンス測定

このように作製した局所ドーピング構造半導体中の窒素原子対によって形成された個々の等電子トラップから発生する単一光子の特性を調べるために、半導体励起固体レ

ザー(波長532 nm)を励起光源として用いて、温度4 Kで顕微フォトルミネッセンス測定を行なった。焦点距離75 cmの分光器を用いて、発光を分光し、CCDによって検出した。顕微フォトルミネッセンス測定システムの空間分解能は1 μm 以下、波長分解能は0.02 nm以下であった。また、単一光子の偏光特性についても同じ測定システムを用いて調べた。

4. 研究成果

(1) 基板面方位選択による偏光特性の制御

結晶成長に用いるGaAs基板の面方位を従来の(001)面から(111)面あるいは(110)面へと変更することによって、(001)面上に作製した場合に生じていた発光線の分裂を解消し、偏光特性を制御することをねらって研究を行なった。

図2にはGaAs (111)基板上に作製した窒素原子層ドーピング構造から得られた顕微フォトルミネッセンスマップを示す。横軸は発光の波長、縦軸は試料の測定位置に対応している。この図からわかるように狭い線幅の発光が特定の位置で観測されている。このように特定の位置で観測されるということは孤立した単一の等電子トラップからの発光をとらえていることを意味している。波長856.7 nmに観測されたことから $\text{NN}_D[7]$ という窒素原子対からの発光であると同定される。

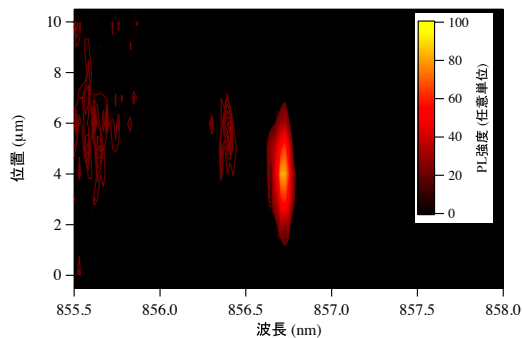


図2 GaAs (111)基板上に作製した窒素原子層ドーピング構造から得られた顕微フォトルミネッセンスマップ

図3 (a)には NN_D による発光強度が最大となる位置で測定したフォトルミネッセンススペクトルを示す。この発光は、GaAs (001)基板上に作製した窒素原子層ドーピング構造からの場合とは異なり、ピーク分裂していないことが確認できる。この NN_D による発光に限らずGaAs (111)基板を用いて局所ドーピング構造半導体を作製した場合には、等

電子トラップからの発光は常にシングルピークとなった。NN_Dによる発光強度の偏光角度依存性を図3(b)に示す。どの偏光角度に対してもほぼ一定の発光強度となっており、この発光がランダム偏光あるいは円偏光であることがわかる。さらに偏光素子と1/4波長板とを組み合わせると偏光特性について検討した結果、この発光はランダム偏光であると結論づけられた。ランダム偏光が得られた理由としては、(111)面の対称性から歪みの面内異方性が生じないためであると考えられる。このように、基板面方位として(111)面を選択することによって量子暗号通信への応用にとって望ましいランダム偏光性を有する単一光子発生を実現することができた。

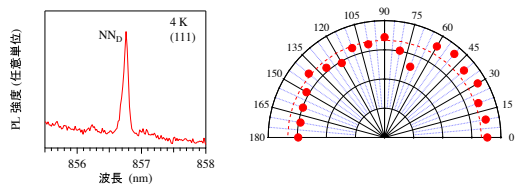


図3 (a) GaAs (111)基板上に作製した窒素原子層ドーピング構造からの顕微フォトルミネッセンススペクトル (b) NN_Dによる発光強度の偏光角度依存性

(110)面上に局所ドーピング構造半導体を作製した場合には、窒素原子対の配列の違いによって様々な偏光特性や発光線の分裂を示すことがわかった。また、同じ配列の窒素原子対からの発光線であっても、個々の窒素原子対によって偏光特性が異なることがわかった。これらのことは(001)面や(111)面上に作製した場合とは異なり、窒素原子対の配列方向が偏光特性を生じさせる原因となっていることを示すと考えられる。(110)面上に作製した窒素局所ドーピング構造半導体においては窒素原子対の配列の違いによって偏光特性が異なるということを利用して、特定の種類の窒素原子対を選択することによってランダム偏光を実現することができた。また、(110)面上に作製した場合には、高品質の窒素原子層ドーピング GaAs 層が得られたことから、単一光子を得るために妨げとなるバックグラウンド発光を大幅に減らすことができた。

以上に述べた研究成果に加えて、半導体基板面方位を選択することによって、配列の異なる窒素原子対による発光が観測される頻度の違いが生じる様子を統計的に明らかにした。さらに、(001)面上に作製した窒素局所ドーピング構造半導体において、単一の等電子トラップからの発光に対する一軸応力の

影響を明らかにした。この結果は、GaAs (001)基板上に局所ドーピング構造半導体を作製した場合には、発光ピークが分裂し、互いに直交関係にある直線偏光となる原因が歪みの面内異方性によるものであることを示すものである。

(2) ヘテロ構造導入による発光特性制御

窒素原子層ドーピング GaAs を AlGaAs 層で挟んだヘテロ構造を作製し、試料構造中の歪みの面内異方性を解消することによる偏光特性の制御およびキャリアの閉じ込めによる光子発生効率の向上について検討を行なった。

図4(a)に AlGaAs 層で挟まれた窒素原子層ドーピング構造から得られた顕微フォトルミネッセンススペクトルを示す。波長 846.2 nm にシングルピークの鋭い発光が観測されている。この発光は、波長から Z₁[7] という窒素原子対によるものであると同定される。このスペクトルに示されているように、AlGaAs 層で挟むことによってピーク分裂が解消したことがわかる。

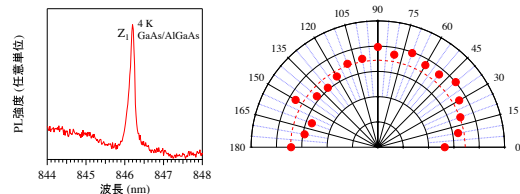


図4 (a) 窒素原子層ドーピング構造を AlGaAs 層で挟んだヘテロ構造からの顕微フォトルミネッセンススペクトル (b) Z₁による発光強度の偏光角度依存性

図4(b)には Z₁による発光強度の偏光角度依存性を示す。GaAs(111)基板上に作製した局所ドーピング構造半導体から得られた結果と同様に、この場合も偏光角度によらず発光強度はほぼ一定となっており、窒素原子対によって形成された等電子トラップからの発光がランダム偏光となったことがわかる。この実験結果は、GaAs よりもわずかに大きな格子定数を持つ AlGaAs 層を挿入することによって歪みの面内異方性が解消されたために、発光がシングルピークかつランダム偏光となったものと解釈される。

窒素原子層ドーピング構造を AlGaAs 層で挟むことによって、試料表面での非発光再結合や基板へのキャリア拡散が抑制され、光子発生効率が向上されることも期待される。このことを確かめるために発光強度のレーザーパワー依存性を調べた。図5に GaAs(001)基

板上に作製した窒素原子層ドーピング構造および窒素原子層ドーピング構造をAlGaAs層で挟んだヘテロ構造中の孤立した等電子トラップ NN_E から観測される発光強度のレーザーパワーに対する依存性を示す。レーザーパワー増加にともない、レーザーパワーが低い場合は発光強度が急速に増加していき、それ以降は次第に一定値に近づいていく様子がわかる。単純な窒素原子層ドーピング構造の場合と比べるとAlGaAs層で挟んだ構造では発光強度のレーザーパワーに対する増加率が約8倍となっている。言い換えれば、窒素原子層ドーピング構造をAlGaAs層で挟まない場合と比べて、AlGaAs層で挟んだ場合には、一桁程度少ないレーザーパワーで単一光子が得られることが明らかとなった。

このことは、当初予想したようにAlGaAs層が障壁として働いてキャリアを閉じ込める効果によるものと考えられる。このようにAlGaAs層の挿入はランダム偏光の単一光子を得るのに有効だけでなく、光子発生効率の向上にも有効であることがわかった。

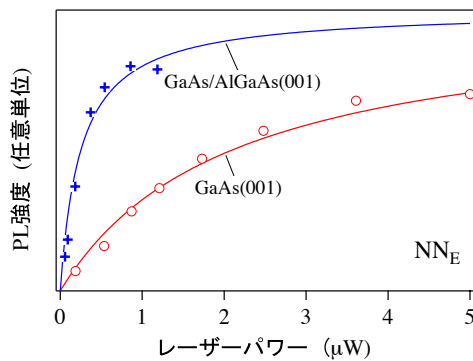


図5 GaAs(001)基板上に作製した窒素原子層ドーピング構造およびAlGaAs層で挟んだヘテロ構造中の孤立した等電子トラップ NN_E の発光強度のレーザーパワー依存性

(3) 励起子分子発光の観測

前述したように、局所ドーピング構造半導体を(110)面上に作製した場合には、高品質の窒素原子層ドーピング構造が得られたことから、単一光子を得るために妨げとなるバックグラウンド発光を大幅に減らすことができた。このような試料に対して発光スペクトルを注意深く調べると、これまでに報告されてきた発光以外に新たな発光が観測されることがわかった。図6にそのような一例を示す。レ

ザーパワーが低い場合には、エネルギー1.444 eVに鋭い発光線Xが観測される。この発光はそのエネルギー値から $Z_2[7]$ という窒素原子対によるものと同定される。レーザーパワーを増加していくとこの発光に加えて1.436 eVにもう一つ鋭い発光線XXが現れる。レーザーパワーの増加にともない、この発光XXの強度のレーザーパワーに対する依存性を調べてみると、発光強度がレーザーパワーの2乗に比例していた。一方、発光Xの強度はレーザーパワーが低いときには、レーザーパワーに比例し、やがて飽和していく傾向が見られた。これらのことから、発光XXは励起子分子状態から励起子状態へ遷移する際に生じる、励起子分子発光であることがわかった。励起子分子の束縛エネルギーは発光Xと発光XXのエネルギー差から8 meVと求められる。この値は、InAs量子ドットに対して報告されている値に比べると大きく、窒素局所ドーピング構造においては励起子分子が比較的安定に存在できることを意味している。また偏光特性については、励起子発光Xと励起子分子発光XXともにランダム偏光であることがわかった。この特性は偏光もつれ光子対へ応用するのに適したものであり、今後、これを利用した量子暗号通信への研究の展開が期待できる重要な結果が得られた。

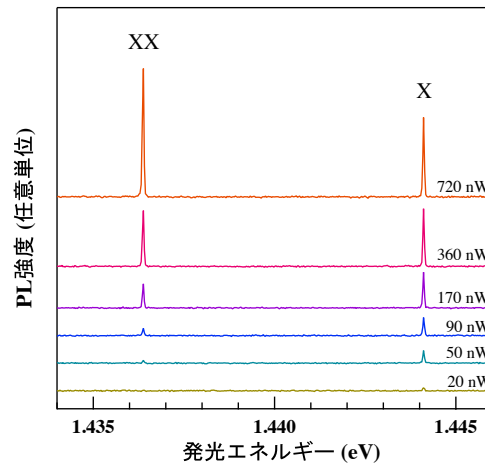


図6 GaAs(110)基板上に作製した窒素原子局所ドーピング構造半導体から観測されたフォトルミネッセンススペクトルのレーザーパワー依存性

参考文献

- [1] C. H. Bennett and G. Brassard, Proc. IEEE Int. Conf. Comput. Syst. Signal Process 175 (1984).
- [2] C. Kurtsiefer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 290 (2000).
- [3] C. Santori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 1502 (2001).
- [4] Y. Endo *et al.*, J. Crystal Growth **298**, 73 (2007).
- [5] Y. Endo *et al.*, Physica E **40**, 2110 (2008).
- [6] M. Ikezawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L871 (2007).
- [7] T. Makimoto *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 1694 (1997).

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3件)

- (1) K. Takamiya, Y. Endo, T. Fukushima, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama and H. Yaguchi, “Single Photon Generation from Nitrogen Atomic-Layer Doped Gallium Arsenide”, Materials Science Forum 査読有 Vol. 706-709, pp. 2916-2921 (2012)
DOI:10.4028/www.scientific.net/M SF.706-7-9.2916
- (2) H. Yaguchi, “Single photon emission from nitrogen delta-doped semiconductors”, SPIE 査読有 Vol. 7945, pp. 79452F-1-8 (2011)
DOI: 10.1117/12.865770
- (3) T. Fukushima, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Okano, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, R. Katayama, K. Onabe, “Photoluminescence from single isoelectronic traps in nitrogen delta-doped GaAs grown on GaAs(111)A”, Physica E 査読有 Vol. 42, No 10, pp. 2529-2531 (2010)
DOI:10.1016/j.physe.2009.12.011

[学会発表] (計20件)

- (1) 高宮健吾, 福島俊之, 星野真也, 八木修平, 土方泰斗, 望月敏光, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 片山竜二, 尾鍋研太郎, 矢口裕之 「窒素 δ ドーピングGaAsにお

ける単一等電子トラップからの励起子分子発光」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)

- (2) 新井佑也, 星野真也, 高宮健吾, 八木修平, 土方泰斗, 望月敏光, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 矢口裕之 「窒素 δ ドーピングGaAs中の窒素原子対が形成する単一の等電子トラップからの発光に対する一軸応力の影響」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)
- (3) K. Takamiya, T. Fukushima, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama and H. Yaguchi, “Biexciton Emission from Single Isoelectronic Traps in Nitrogen Atomic-Layer-Doped GaAs”, The 3rd International Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures 2011年9月12日 International Academy Traunkirchen (Traunkirchen, Austria)
- (4) 高宮健吾, 福島俊之, 星野真也, 八木修平, 土方泰斗, 望月敏光, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 片山竜二, 尾鍋研太郎, 矢口裕之 「窒素 δ ドーピングGaAs(110)中の単一等電子トラップからの発光の偏光特性」第72回応用物理学学会学術講演会 2011年8月30日 山形大学(山形県)
- (5) K. Takamiya, Y. Endo, T. Fukushima, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama, and H. Yaguchi, “Single Photon Generation from Nitrogen Atomic-Layer Doped Gallium Arsenide”, (招待講演) The 7th International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials 2011年8月3日 Quebec City Convention Centre (Quebec, Canada)
- (6) H. Yaguchi, “Single photon emission from nitrogen delta-doped semiconductors”, (招待講演) SPIE Photonics West OPTO 2011年1月27日 Moscone Center (San Francisco, USA)

- (7) 新井佑也, 遠藤雄太, 八木修平, 土方泰斗, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二, 矢口裕之「極低窒素濃度 GaAsN 中の等電子トラップからの発光に対する一軸応力の影響」第 71 回応用物理学学会学術講演会 2010 年 9 月 14 日 長崎大学 (長崎)
- (8) 石川 輝, 八木修平, 土方泰斗, 吉田貞史, 岡野真人, 望月敏光, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二, 矢口裕之「極低窒素濃度 GaAsN における窒素ペアからの発光の窒素濃度依存性」第 71 回応用物理学学会学術講演会 2010 年 9 月 14 日 長崎大学 (長崎県)
- (9) 星野真也, 遠藤雄太, 福島俊之, 高宮健吾, 八木修平, 土方泰斗, 望月敏光, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二, 矢口裕之「窒素 δ ドープ GaAs 中の等電子トラップを形成する窒素原子対配列に関する研究」第 71 回応用物理学学会学術講演会 2010 年 9 月 14 日 長崎大学 (長崎県)
- (10) 高宮健吾, 遠藤雄太, 福島俊之, 星野真也, 八木修平, 土方泰斗, 望月敏光, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二, サノーピン サクンタム, 矢口裕之「窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs ヘテロ構造における等電子トラップからの発光特性評価」第 71 回応用物理学学会学術講演会 2010 年 9 月 14 日 長崎大学 (長崎)
- (11) 福島俊之, 高宮健吾, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 岡野真人, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二「様々な面方位基板上に作製した窒素 δ ドープ GaAs 中の等電子トラップからの発光(III)」第 57 回応用物理学関係連合講演会 2010 年 3 月 18 日 東海大学 (神奈川県)
- (12) 石川 輝, 土方泰斗, 矢口裕之, 吉田貞史, 岡野真人, 吉田正裕, 秋山英文, 窪谷茂幸, 尾鍋研太郎, 片山竜二「極低窒素濃度 GaAsN のフォトルミネッセンス励起分光測定」第 70 回応用物理学学会学術講演会 2009 年 9 月 9 日 富山大学 (富山県)
- (13) H. Yaguchi, “Polarization properties of photoluminescence from individual isoelectronic traps in nitrogen delta-doped semiconductors: effect of

host crystals”, (招待講演) The Second International Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures of Semiconductor Nanostructures 2009 年 8 月 11 日 阿南工業高等専門学校 (徳島県)

- (14) T. Fukushima, M. Ito, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Okano, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, R. Katayama, K. Onabe, “Photoluminescence from single isoelectronic traps in nitrogen delta-doped GaAs grown on GaAs(111)A”, The 14th International Conference on Modulated Semiconductor Structures 2009 年 7 月 21 日 神戸国際会議場 (兵庫県)

など

[その他]
ホームページ
<http://www.opt.ees.saitama-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

矢口 裕之 (YAGUCHI HIROYUKI)
埼玉大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号：50239737

(2) 研究分担者

土方 泰斗 (HIJIKATA YASUTO)
埼玉大学・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号：70322021
尾鍋 研太郎 (ONABE KENTARO)
東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授
研究者番号：50204227
片山 竜二 (KATAYAMA RYUJI)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：40343115
八木 修平 (YAGI SHUHEI)
埼玉大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：30421415
窪谷 茂幸 (KUBOYA SHIGEYUKI)
東京大学・大学院新領域創成科学研究科・助教
研究者番号：70583615

(3) 連携研究者

秋山 英文 (AKIYAMA HIDEFUMI)
東京大学・物性研究所・准教授
研究者番号：40251491