

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 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2009 ～ 2011

課題番号：21681020

研究課題名（和文） 形状揺らぎ許容度の高いもつれ合い光子対発生源の作製に関する研究

研究課題名（英文） Study on fabricating entangled photon sources which are highly tolerant to the structural fluctuation

研究代表者

熊野 英和（KUMANO HIDEKAZU）

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：70292042

研究成果の概要（和文）：

ガリウムひ素部分埋め込みによる異方性の抑制とインジウムフラッシュ法による量子ディスク形状化による形状制御を用いて微細構造分裂 (FSS) の低減を行った。低温・低速条件によって異方性を抑制、更にインジウムフラッシュ条件を最適化して作製した量子ディスク構造により、大幅な FSS 低減が可能となった。典型値として、100 μeV 程度の FSS を持つ量子ドットに対して最適な部分埋め込み・インジウムフラッシュを実施することにより、30 μeV 程度以下までの低減が見られた。更に量子リング構造とすることで、5 μeV 程度まで FSS を抑えられる可能性が示された。

研究成果の概要（英文）：

Suppression of the fine structure splitting (FSS) was carried out by controlling anisotropy of nanostructures with GaAs embedding and forming disk-like nanostructure by Indium-flash method. It is found that after optimizing conditions for each process and fabricating quantum disk structure, the FSS has successfully reduced from 100 μeV down to 30 μeV . Furthermore, the FSS has reduced as low as 5 μeV by introducing quantum ring structure.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	6,500,000	1,950,000	8,450,000
2010 年度	6,200,000	1,860,000	8,060,000
2011 年度	6,500,000	1,950,000	8,450,000
年度			
年度			
総計	1,920,000	5,760,000	24,960,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学 ・ マイクロ・ナノデバイス

キーワード：量子ディスク、量子リング、もつれ合い光子源、形状揺らぎ、微細構造分裂

1. 研究開始当初の背景

「量子もつれ合い状態」は、量子力学的な 2 つの粒子間に古典的には奇異な非局所的相関を持つ状態で、量子情報ネットワークにおける資源として本質的役割を担う。従来、2 次の光学過程である非線形光学結晶によるパラメトリック下方変換(PDC)が量子もつれ

合い光子対発生に利用されているが、この場合発生のタイミングが励起パルスのポアソン分布を継承するため光子対は確率的発生となり、大規模化に適した動作、例えばクロックパルスに同期したオン・デマンド光子対発生のようなことは原理的に不可能である。これに対し、半導体ナノ構造の離散準位を用

いるアプローチも精力的に研究が進められており、離散準位間のカスケード（時系列）的遷移によりもつれ合い光子対が生成する。この場合、パウリ排他原理により確定的なもつれ合い光子対発生が可能となる。また、離散化準位を利用するため単一電子・光子レベルの動作が可能であり、究極の省電力動作が可能である点も特筆すべきである。これまで離散準位を利用するものとして、半導体量子構造としては専ら量子ドットが研究対象となっている。しかしながら量子ドットの場合、一般に構造成長時に不可避な形状の非対称性に起因する励起子準位のエネルギー分裂が発光線幅を上回ることにより光子対の生成経路が識別可能となるため、もつれ合い手前の古典的な偏光相関光子対にとどまってしまう問題に申請者を含めて直面している。この問題に対し、ドットサイズを選択して分裂が小さな構造を探し、また後述のように各単一量子構造に対し個別操作を行う方法が採られている。申請者は、量子ドットに代わり双極子モーメントの分布、及びその間の相互作用の形態から形状異方性に起因する励起子準位のエネルギー分裂が量子ドットに比べて本質的に大きく低減し、形状に依存せず再現性高くもつれ合い光子対発生が可能と期待される量子リング構造を利用することを着想した。これは自己形成構造で不可避な量子構造ごとの形状揺らぎをカバーする、これまででない全く新規なアプローチであり、オン・デマンドなもつれ合い光子対源の実用化に繋がる大きな意義を持つと考えている。

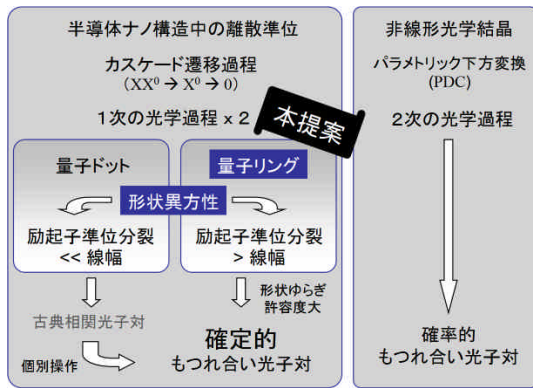


図1 本研究提案の位置づけ

2. 研究の目的

次世代暗号通信である量子暗号通信の実現に向けてもつれ合い光子対の生成とそのオンデマンド操作は非常に重要な技術である。しかし、応用上重要な役割を果たす量子ドット系では、形状異方性や歪みの異方性による電子-正孔交換相互作用のため励起子時状態の縮退が解け、微細構造分裂を引き起こす。この場合、2つに分裂した励起子準位のどち

らを経由して緩和したかという経路情報が付与されるため、もつれ合いの起源である2項間の重ね合わせが消失し古典的な偏光相関のみを持つ2光子対として観測される。本研究は、インジウムヒ素(100)量子ドットの形状制御、および新規なナノ量子構造である量子リングの利用により微細構造分裂の低減を目的とし、構造間再現性の高いオン・デマンドな「もつれ合い光子対」生成源の実現に寄与することを目的とする。現在主流の量子ドットでは、一般に面内の形状異方性による励起子準位分裂がもつれ合いの消失を引き起こすが、量子リングでは構造に固有の性質として、異方性による励起子準位分裂が大きく低減すると期待される。これはもつれ合い光子対実現に向けた新しい視点からのアプローチである(図1)。自己形成構造で不可避な1つ1つの量子構造ごとの形状揺らぎに対して高いトレランスが期待され、将来の量産化を見据える上で大きなブレークスルーとなり得ると考えている。

3. 研究の方法

試料はMOMBE法を用いて成長を行った。ガリウムヒ素(100)基板上に基板温度510°Cでガリウムヒ素バッファ層100nmを成長、その後基板温度480°Cでインジウムヒ素を成長させS-K成長モードによるインジウムヒ素量子ドットを作製した。結晶成長中のその場観察としてRHEED法を用いた。また結晶成長後の試料の評価としてAFMによる表面観察、PLによる発光特性評価を行った。また、個々のナノ構造に対して顕微PLによる光学評価を行った。

(1) 低温・低速成長によるガリウムヒ素部分埋め込み異方性出現の抑制

インジウムヒ素量子ドット上へのガリウムヒ素埋め込みによる異方性を抑制するために、基板温度を480°Cから420°Cに、ガリウムヒ素成長速度を0.0583nm/sから0.0416nm/sに

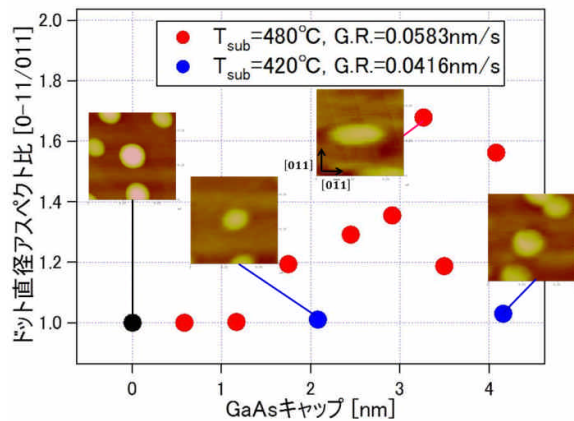


図2 GaAs部分埋め込みによる異方性の出現と抑制

変化させガリウムひ素部分埋め込み成長を行う。ガリウムひ素キャップ高さを2.1、4.2 nmとした。図2にAFMによる解析結果からガリウムひ素キャップとドット形状の直径のアスペクト比を示す。基板温度 480°C・ガリウムひ素成長速度 0.0583 nm/s 条件下で出現していた[0-11]方向への異方性が抑制されている事が分かる。低基板温度(420°C)下では、[011]方向へのインジウムとガリウム相互拡散が抑制される。また低速成長(0.0416 nm/s)においてガリウム原子マイグレーション時の表面衝突確率が減少するためガリウムのマイグレーションが向上し等方的な埋め込みが可能になったと考えられる。

(2) InAs 量子ドットのディスク形状化に向けたインジウムフラッシュ条件の最適化

インジウムフラッシュ法とは、インジウムひ素量子ドット上に量子ドットの頭が出る程度の薄いキャップ層を成長させ、ひ素供給下で基板温度を上昇させ量子ドットの頭部分のインジウムを飛ばすことでより対称性の高いディスク形状へ変化させる手法である(図3)。

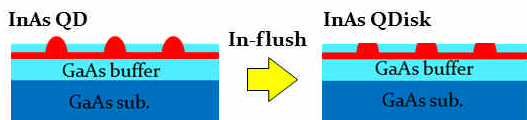


図3 In-flush法によるInAs量子ディスク形状化

まず、インジウムひ素量子ドット上への厚さ2.1 nmのガリウムひ素部分キャップを低温・低速成長条件で異方性を抑制しながら行った。次に図4に示す3×3の9パターンのインジウムフラッシュ条件で試料を作製し、AFM表面状態・マクロPL発光特性からディスク形状に向けた最適化を行う。また、量子ドット形状による微細構造分裂の

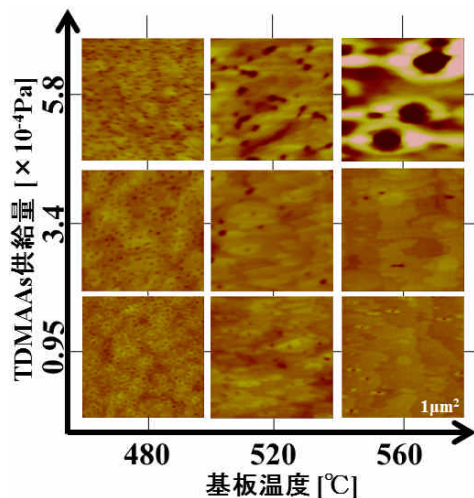


図4 各インジウムフラッシュ条件でのAFM表面像

シミュレーション結果より、レンズ形状 C_{2v} に比べてディスク形状 D_{2d} の方が微細構造分裂が低減されるという報告がなされており、量子ドット上へのガリウムひ素部分埋め込みによる異方性の抑制、またインジウムフラッシュ法を用いた量子ドットのディスク形状化による微細構造分裂の低減について検討を進める。

(3) より微細構造分裂の低減が期待される量子リング構造についての検討

量子ドット、量子ディスクに比べて一層の微細構造分裂抑制が期待される量子リング構造を作製し、その光学評価を行った。

4. 研究成果

まず、インジウムひ素量子ドット上へのガリウムひ素部分埋め込みプロセスによる異方性の出現を確認した。このガリウムひ素埋め込みの異方性は、インジウムひ素量子ドットが受ける歪みの異方性、インジウムひ素量子ドットとガリウムひ素部分埋め込み層の相互拡散の異方性を生じる原因となる。そこで成長条件の再検討を実施し、低温・低速条件でのプロセスを適用することによって異方性を抑制し、更にディスク形状に最適化したインジウムフラッシュ条件を適用して量子ディスク構造を作製した。ピラー構造と呼ばれる直径100~1000 nmの円柱状のナノ構造に加工して単一のナノ構造に光学的にアクセスし(図5右図)、発光信号を直線偏光成分毎に検出することで発光ピークエネルギーの変化量から微細構造分裂を評価した。(図5左図)

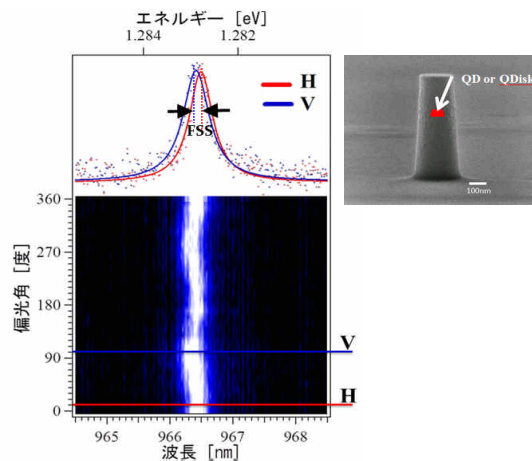


図5 発光の直線偏光依存性によるFSSの測定(左)と単一ナノ構造のSEM像(右)

結果、図6に示すように、従来ドット形状の倍に見られた100 μeV程度の微細構造分裂を、より対称性の高いディスク型構造とすることで30 μeV程度以下まで低減させることに成功した。

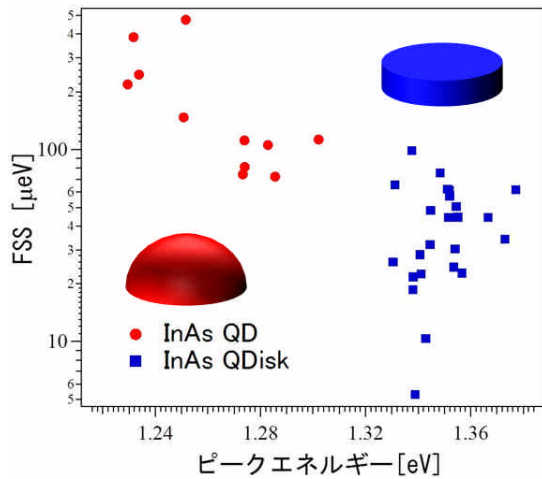


図6 InAs 量子ドット InAs 量子ディスクの微細構造分裂

更に、より微細構造分裂が抑制可能と期待される量子リング構造を作製し (図7挿入図)、その光学評価を行った (図7、図8)。コヒーレンス時間の測定から量子リング構造の移送緩和時間を測定した結果、35-60 ps と与えられ、これはスペクトルから直接得られる発光線幅 25-35 μeV とよく一致する。さらに、現時点で荷電状態の制御が不完全なため結論には至っていないが、いずれのナノ構造においても量子ドットや量子ディスク構造に比べて極めて小さな微細構造分裂 ($\sim 5 \mu\text{eV}$ 程度) が観測されている。これは、自己形成構造で不可避な1つ1つの量子構造ごとの形状揺らぎに対して高いトレランスを持つことを示唆する結果であり、将来の量産化を見据える上で大きなブレークスルーとなり得る結果であると考えている。更に、当該研究課題から生じた発展的課題と

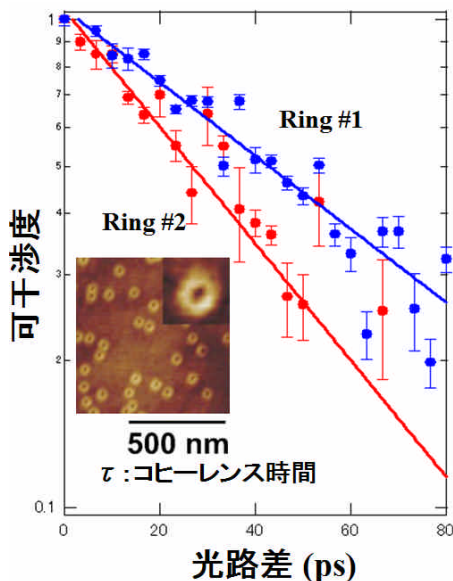


図7 量子リング構造発光のコヒーレンス時間。挿入図は量子リング構造の AFM 像。

して、2つの量子リング構造が近接した構造において図8に類似の測定を実施したところ、量子エネルギー準位の反交差現象が観測された。これは近接した2構造が量子力学的に結合していることを示唆しており、「光の分子」としての振る舞いの確認へ向け、現在検討を進めている。

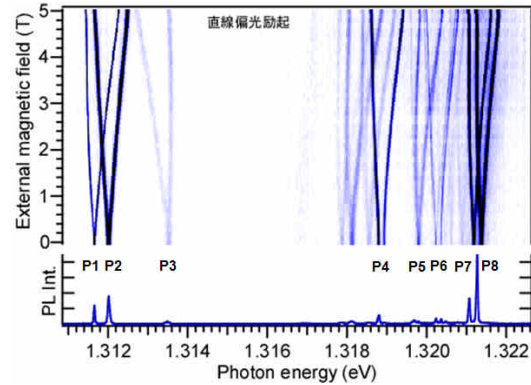


図8 量子リング構造のゼーマン分裂エネルギーと反磁性シフト。2つのリング構造が隣接する領域を観測する場合、量子的結合を示唆する反交差が明瞭に観測された。

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. H. Kumano, K. Matsuda, S. Ekuni, H. Sasakura, and I. Suemune: "Characterization of two-photon polarization mixed states generated from entangled-classical hybrid photon source", *Opt. Express* **19**, 14249-14259 (2011). 査読有
2. H. Sasakura, S. Kuramitsu, Y. Hayashi, K. Tanaka, T. Akazaki, E. Hanamura, R. Inoue, H. Takayanagi, Y. Asano, C. Hermannstadter, H. Kumano, and I. Suemune: "Enhanced photon generation in a Nb/n-InGaAs/p-InP superconductor/semiconductor-diode light emitting device", *Phys. Rev. Lett.* **107**, 157403-1-5 (2011). 査読有
3. H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, Y. Idutsu, S. Miyamura, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, and I. Suemune: "Strongly suppressed multi-photon generation from a single quantum dot in a metal-embedded structure", *phys. stat. sol (c)* **8**, 337-339 (2011). 査読有
4. H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, Y. Idutsu, H. Sasakura, and I. Suemune:

"Quantum-dot-based photon emission and media conversion for quantum information applications", Adv. Math. Phys. **2010**, 391607-1-14 (2010). 【Review paper】 査読有

5. S. Ekuni, H. Nakajima, H. Sasakura, I. Suemune, and H. Kumano: "First-order photon interference of a single photon from a single quantum dot", Physica E **42**, 2536-2539 (2010). 査読有
6. I. Suemune, Y. Hayashi, S. Kuramitsu, K. Tanaka, T. Akazaki, H. Sasakura, R. Inoue, H. Takayanagi, Y. Asano, E. Hanamura, S. Odashima, and H. Kumano: "A Cooper-Pair Light-Emitting Diode: Temperature Dependence of Both Quantum Efficiency and Radiative Recombination Lifetime", Appl. Phys. Express **3**, 054001-1-4 (2010). 査読有
7. 末宗幾夫、熊野英和、笹倉弘理 量子情報通信のための単一光子・量子もつれ光子対光源、(招待) 光学40巻9号、472-477、2011、査読有
8. H. Kumano, S. Ekuni, H. Kobayashi, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi, and S. Muto: "Spin-flip quenching in trion state mediated by optical phonons in a single quantum dot", phys. stat. sol (b) **246**, 775-778 (2009). 査読有

[学会発表] (計 30 件)

1. K. Matsuda, H. Kumano, S. Ekuni, H. Sasakura, and I. Suemune: "Characterization of two-photon mixed states employed with polarization entangled-classical hybrid photon source", Quantum Information Processing and Communication (QIPC 2011, September 5-9 2011, Zurich, Switzerland)
2. H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, Y. Idutsu, S. Ida, H. Sasakura, and I. Suemune: "Metal-embedded semiconductor single quantum dot as a novel highly pure single-photon source", SPIE photonics west 2011 (Jan 23-28, Moscone Convention Center, San Francisco, USA)
3. H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, D. Kato, S. Miyamura, J. H. Huh, H. Sasakura, and I. Suemune: "Quantum-dot single photon emitter of higher photon extraction efficiency and lower multiple-photon emission probability with metal-embedded

structure", International Conference on Semiconductor Quantum Dots (QD2010, April 26-30 2010, Nottingham, UK)

4. 和田雅樹、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫、量子リング構造における核磁場の双安定特性、秋季第 70 回応用物理学会学術講演会、2009 年 9 月 8-11 日、富山大学
5. H. Kumano: "Conversion of Photon polarization and exciton spins in Semiconductor Quantum Dots", International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures (IWPSN2009; July 27-28, 2009, Hokkaido University, Sapporo, Japan).
6. H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, H. Sasakura, and I. Suemune: "Two-mode photon interference in a quantum-dot single photon emitter", International conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS14; July 19-24 2009, Kobe Convention Center, Kobe, Japan)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○ 出願状況 (計 0 件)

○ 取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://nanophoto.es.hokudai.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

熊野 英和 (KUMANO HIDEKAZU)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：70292042

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし