

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360004

研究課題名(和文)局所ドーピング構造半導体による量子相関光子の生成および制御

研究課題名(英文) Generation and control of quantum correlated photons from atomic-layer doped semiconductors

研究代表者

矢口 裕之 (YAGUCHI, Hiroyuki)

埼玉大学・理工学研究科・教授

研究者番号：50239737

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,800,000円

研究成果の概要(和文)：原子層ドーピングを利用して、窒素原子およびエルビウム原子局所ドーピング構造半導体を作製し、量子情報通信において重要な役割を担う完全ランダム偏光かつ優れた波長再現性を有する単一光子および量子もつれ光子対の高効率生成を目指した。窒素原子局所ドーピング構造半導体を用いて、量子もつれ光子対生成に応用できるランダム偏光の励起子分子および励起子発光の観測に成功した。エピタキシャル成長中のエルビウム原子の表面偏析の温度依存性を定量的に調べることによって、原子層ドーピング構造半導体を作製するための条件として低温成長が必須であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have grown nitrogen and erbium atomic-layer doped semiconductors to obtain unpolarized single photons and quantum-entangled photon pairs with highly reproducible wavelengths, which play a key role in the quantum information science. We have successfully observed completely unpolarized biexciton and exciton emission lines, which are suitable for the application to polarization-entangled photon pairs. We have quantitatively studied the temperature dependence of the surface segregation of Er atoms in GaAs during molecular beam epitaxy, and found that overlayer growth at low temperatures is effective in suppressing the surface segregation and obtaining atomic-layer doped structures.

研究分野：応用物理学 結晶工学 応用物性

キーワード：半導体 光物性 エピタキシャル成長 量子光学 単一光子 量子もつれ光子対

### 1. 研究開始当初の背景

量子暗号通信や量子計算などの量子情報技術への応用に向けて、単一光子あるいは量子もつれ光子対の生成についての研究開発が盛んに進められている。単一光子の生成に関しては、例えば、ダイヤモンド中の窒素-空孔によって形成される発光中心の利用[1]や、半導体量子ドットの利用[2]などについて研究が行われている。一方、半導体中に不純物原子を局所的にドーピング構造を作製し、それを単一光子の生成に利用するというアプローチ[3]が、我々を含むいくつかの研究グループで行われるようになってきた。局所ドーピング構造半導体を利用した単一光子の生成に関する研究の結果、他のアプローチと比べて、素子設計で重要となる波長再現性に優れることや、量子暗号通信への応用で重要となる完全ランダム偏光が得られることなどの長を有することが明らかにされてきた。

### 2. 研究の目的

以上のような背景を踏まえて、本研究ではエピタキシャル成長、原子層ドーピングおよび微細加工技術を利用して、窒素原子あるいはエルビウム原子局所ドーピング構造半導体を作製し、量子情報通信において重要な役割を担う、高純度、完全ランダム偏光、かつ優れた波長再現性を有する単一光子および量子もつれ光子対の高効率生成を目指して研究を進めた。

### 3. 研究の方法

局所ドーピング構造半導体を用いた単一光子および量子もつれ光子対の生成に関して、以下の内容の研究を行った。

(1) エピタキシャル成長および原子層ドーピングによって、窒素原子層ドーピング構造半導体を作製し、その発光特性を評価した。エピタキシャル成長および原子層ドーピングの条件を検討するために、フーリエ変換赤外分光を用いて評価し、その結果を作製条件にフィードバックさせた。

(2) エピタキシャル成長および原子層ドーピングによって、エルビウム原子層ドーピング構造半導体を作製するために、作製条件の検討を行った。

(3) GaAs/AlAs 多層膜からなる分布ブラッグ反射構造を窒素原子層ドーピング半導体およびエルビウム原子層ドーピング半導体に対して導入し、光子発生効率向上の効果について検討した。

(4) 第一原理計算を用いて、単一光子生成に利用可能な局所ドーピング構造半導体材料を探索するために、極低窒素濃度希釈窒化物半導体の電子構造の検討を行った。

### 4. 研究成果

(1) 窒素原子層ドーピング構造半導体の作

### 製および発光特性評価

窒素原子局所ドーピング構造半導体の作製に関しては、研究分担者グループがフーリエ変換赤外分光を用いて試料中の残留キャリア濃度を非破壊的に評価した結果をエピタキシャル成長条件にフィードバックさせることによって、バックグラウンド発光がほとんど存在しない試料を得ることができた。

図1には、バックグラウンド発光がほとんど存在しない窒素原子局所ドーピング構造半導体を用いて、顕微フォトルミネッセンス測定を行った結果を示す。

半値全幅が  $30 \mu\text{eV}$  の鋭い発光線がエネルギー  $1.444 \text{ eV}$  (X) と  $1.436 \text{ eV}$  (XX) に観測された。X とラベル付けした発光は、そのエネルギー位置から  $Z_2$  と呼ばれる窒素原子対による発光[4]であると同定できる。一方、XX とラベル付けした発光はこれまでに報告されたことのないものである。励起パワーを増加させていくと、この発光の強度は急激に増加していく様子がわかる。

図2には X および XX 発光の強度のレーザ

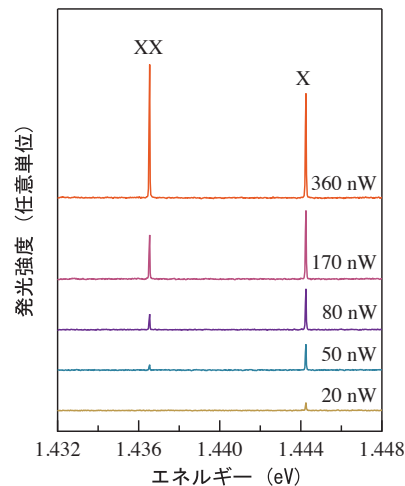


図1 窒素原子層ドーパ GaAs 中の孤立した等電子トラップから得られた顕微フォトルミネッセンススペクトルの励起パワー依存性

ーパワー依存性を示す。X 発光の強度がレーザーパワーに比例して増加していくのに対して、XX 発光の強度はレーザーパワーの二乗に比例して増加していくことがわかる。挿入図には XX 発光の強度と X 発光の強度の関係を示している。XX 発光の強度は X 発光の強度のほぼ二乗に比例している。これらの結果は、XX 発光が励起子分子準位から励起子準位への光学遷移によるものであることを示している。また、レーザーパワーが  $0.2 \mu\text{W}$  を超えると発光強度が飽和する傾向にあることは、観測された発光が単一の等電子トラップによるものであることを示している。

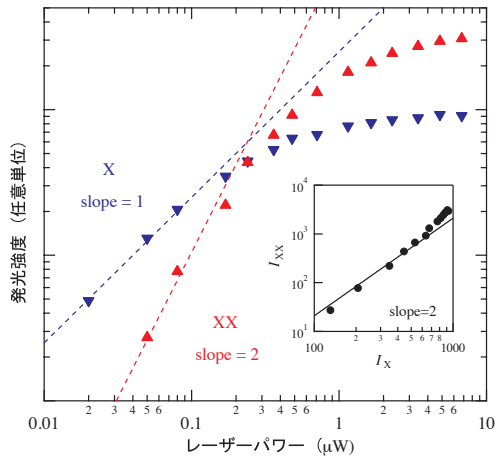


図2 X および XX 発光の強度とレーザーパワーの関係。挿入図は X 発光の強度と XX 発光の強度の関係を示す。

このようにバックグラウンド発光がほとんど存在しない窒素原子局所ドーピング構造半導体を用いることによって、空間的に孤立した単一の窒素原子対からの励起子分子発光を明瞭に観測することができた。また、励起子発光、励起子分子発光ともにランダム偏光であり、量子もつれ光子対を用いる量子暗号通信への応用に適していることが明らかとなった。

また、窒素原子層ドーピング構造半導体に関しては、光子発生効率を向上させることを目的として、配列の異なる様々な窒素原子対からの発光の励起強度依存性を測定することによって、窒素原子対の種類による光子発生効率の違いについて検討を行った。

さらに、極低温窒素濃度の GaAsN 混晶についてフォトリフレクタンス分光による研究から、単一光子発生に用いる窒素原子対による局在準位発光とバンド端発光の共存状態について明らかにすることができた。

## (2) エルビウム原子層ドーピング構造半導体の作製および評価

エルビウム原子層ドーピング構造半導体の作製に際しては、エルビウムのドーピング条件について検討するために、まず、局所ドーピングではなく一様ドーピングを行った。作製した試料に対しては X 線回折および二次イオン質量分析によって評価した。

図3にはエルビウムセル温度を変えて作製した試料から得られた X 線回折  $2\theta-\omega$  スキャンプロファイルを示す。エルビウムセル温度の上昇にともなって、試料からの X 線回折ピークが GaAs (004) ピークから低角側にシフトしていくことがわかる。このような系統的な X 線回折ピークのシフトはこれまでに報告例がなく、本研究で初めて得られたもので

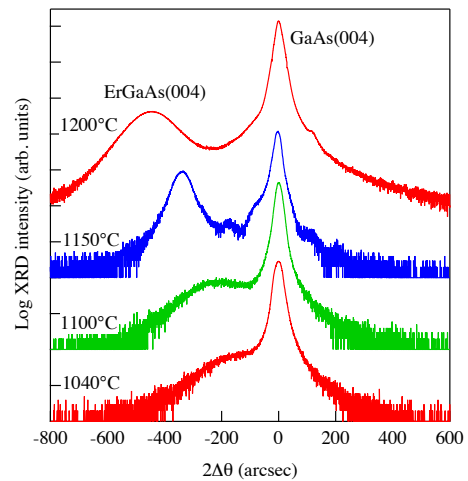


図3 エルビウムセル温度 1040°C、1100°C、1150°C、1200°C で GaAs(001) 基板上に作製した ErGaAs 層から得られた X 線回折  $2\theta-\omega$  スキャンプロファイル

ある。エルビウムセル温度 1150°C で作製した試料を二次イオン質量分析で調べた結果、エルビウムは一様に分布しており、その濃度は  $5.8 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ 、すなわち組成  $x=2.7\%$  の ErGaAs 混晶が作製できていることが明らかになった。

ErGaAs の格子定数がエルビウム濃度に対して線形に依存していると仮定すると、セル温度 1200°C で作製した場合、エルビウム組成 3.7% の ErGaAs 混晶が得られたことになる。このエルビウム組成はこれまでに報告された中でもっとも高い値である。

さらに、エルビウム組成 2.7% の ErGaAs 混

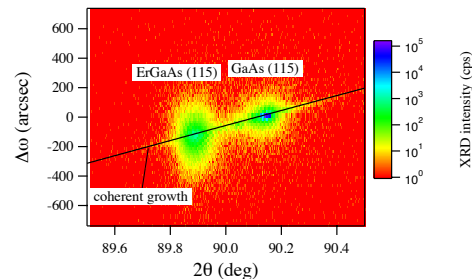


図4 エルビウム組成 2.7% の ErGaAs 混晶の X 線回折(115)逆格子マップ

晶に対して X 線回折(115)逆格子マッピング測定を行った結果を図4に示す。図中の黒い実線は GaAs 基板に対してエピタキシャル層がコヒーレント成長していることを示している。ErGaAs (115) 回折のピークがこの線上にあるということは、得られた ErGaAs 層がコヒーレント成長していることを意味している。また、(111)面および(222)面の回折強度を測定した結果、得られた ErGaAs の結晶構造は岩塩構造ではなく閃亜鉛鉱構造であ

ることがわかった。

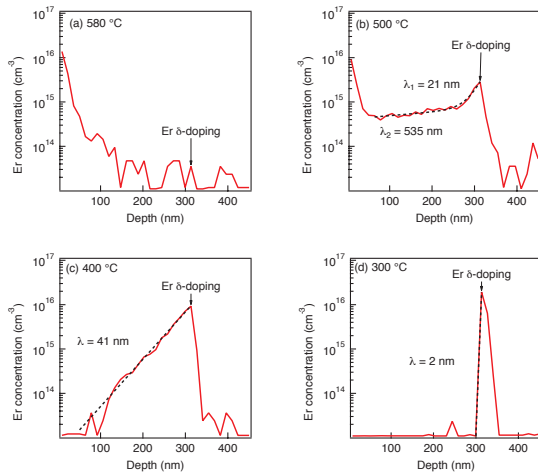


図5 様々な温度で成長した GaAs 中におけるエルビウム原子の二次イオン質量分析深さプロファイル

次に、局所ドーピング構造半導体の作製を行う上で必要となるエルビウムの原子層ドーピング条件について検討を行った。そのために、分子線エピタキシャル成長中におけるエルビウム原子の表面偏析がどのように成長温度に依存するのかを定量的に調べた。

図5(a)-(d)は、300°Cでエルビウムの原子層ドーピングを行った後に、580°C、500°C、400°C、300°Cで GaAs を成長したときのエルビウム原子の濃度分布を示している。図5(a)からわかるように、580°Cで成長した場合には、原子層ドーピングを行った位置には濃度のピークが見られず、エルビウム原子は表面近くに分布している。つまり、ドーピングしたエルビウム原子のほとんどは580°Cでの GaAs 成長中に表面に偏析していることが明らかである。500°Cで成長した場合は、表面に向かって2段階で偏析している様子がわかる。シミュレーションによる解析から、この現象は表面偏析の自己制限によるものであると考えられる。400°Cで成長した場合にも表面偏析は見られるものの、温度が低くなるにつれて抑制されていくことがわかる。図5(d)に示すように、成長温度 300°Cでは表面偏析はかなり抑制されている。

図3には、二次イオン質量分析の結果から求めた GaAs 中におけるエルビウムの  $1/e$  偏析長の成長温度依存性を示す。実線は偏析長がアレニウスの式にしたがうと仮定することによって得られたもので、実験結果をよく説明している。このことは偏析が表面拡散モデル[5]で説明可能であることを示している。通常、GaAs の成長温度として用いられる580°Cでの偏析長は二次イオン質量分析からは求められなかったため、図5に示すように他の成長温度からの結果を外挿すると偏析長が  $2.6 \times 10^3$  nm と求められる。この値から

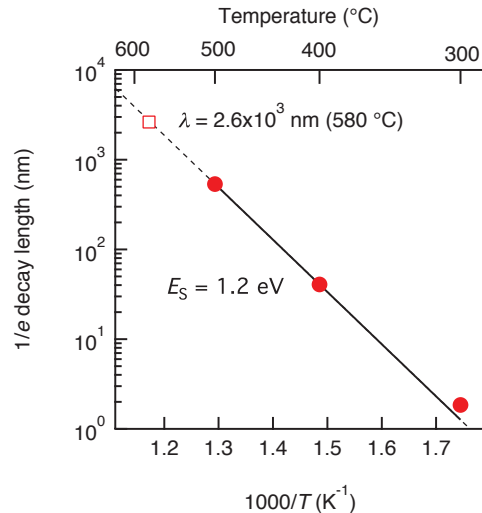


図6 GaAs 中におけるエルビウム原子の  $1/e$  偏析長

1分子層を超えて偏析する確率を計算すると99.99%になる。すなわち、GaAs の典型的な成長温度である580°Cではドーピングしたエルビウムの内0.01%しかGaAs 中に取り込まれないことがわかる。

以上のように、エルビウム原子の表面偏析の温度依存性を定量的に調べることによって、原子層ドーピング構造半導体を作製するための条件として300°C以下の低温でのエピタキシャル成長が必須となることを明らかにした。

### (3) GaAs/AlAs 多層膜からなる分布ブラッグ反射構造の導入による光子発生効率向上の検討

単一光子および量子もつれ光子対の生成効率の向上を図るために、GaAs/AlAs 多層膜からなる分布ブラッグ反射構造を作製し、窒素原子局所ドーピング構造半導体およびエルビウム原子局所ドーピング構造半導体に導入した。いずれの場合においても、分布ブラッグ反射構造を用いることによって、単一光子発生にとって妨げとなる基板からの発光を抑制できるという効果が得られることがわかった。

また、窒素局所ドーピング構造半導体と GaAs/AlAs 多層膜からなる分布ブラッグ反射構造とを組み合わせることによって、窒素原子対からの発光の取り出し効率を向上させることと、発光に必要な励起強度を低減させることが可能となった。

エルビウム原子局所ドーピング構造半導体と GaAs/AlAs 多層膜からなる分布ブラッグ反射構造とを組み合わせただけの場合でも、エルビウム原子からの発光強度を増加させることができた。

### (4) 第一原理計算による極低窒素濃度希釈

#### 窒化物半導体の電子構造の検討

第一原理計算によって極低窒素濃度のGaAsN 混晶の伝導帯の電子状態について研究を行い、窒素原子の配置の電子状態への影響と伝導帯の有効質量の窒素濃度依存性を明らかにすることができた。

また単一光子生成に利用することのできる新たな局所ドーピング構造半導体材料系を探索するために、InAsN 混晶の伝導帯の電子状態について検討を行った。

#### 参考文献

- [1] C. Kurtz et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 290 (2000).
- [2] C. Santori et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 1502 (2001).
- [3] Y. Endo et al., Physica E **49**, 2110 (2008).
- [4] T. Makimoto et al., Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 1694 (1997).
- [5] J. F. Nützel et al., Phys. Rev. B **53**, 13551 (1996).

#### 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19件)

- (1) R. G. Jin, S. Yagi, Y. Hijikata, and H. Yaguchi, “Growth temperature dependence of the surface segregation of Er atoms in GaAs during molecular beam epitaxy”, Japanese Journal of Applied Physics 査読有 Vol. 54, pp. 051201-1-4 (2015)  
DOI:10.7567/JJAP.54.051201
- (2) W. Okubo, S. Yagi, Y. Hijikata, K. Onabe, and H. Yaguchi, “Photoreflectance study of the temperature dependence of excitonic transitions in dilute GaAsN alloys”, Physica Status Solidi A 査読有 Vol. 211, pp. 752-755 (2014)  
DOI:10.1002/pssa.201300462
- (3) K. Sakamoto and H. Yaguchi, “First-principles study on the conduction band electron states of GaAsN alloys”, Physica Status Solidi C 査読有 Vol. 11, pp. 911-913 (2014)  
DOI:10.1002/pssc.201300531
- (4) 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 Formed by Nitrogen-Nitrogen Pairs in GaAs”, AIP Conference Proceedings 査読有 Vol. 1566, pp. 538-539 (2013)  
DOI:10.1063/1.4848523

- (5) R. G. Jin, S. Yagi, Y. Hijikata, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama, H. Yaguchi, “Molecular beam epitaxy of ErGaAs alloys on GaAs (001) substrates”, Journal of Crystal Growth 査読有 Vol. 378, pp. 85-87 (2013)  
DOI:10.1016/j.jcrysgro.2012.12.043

- (6) K. Takamiya, T. Fukushima, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama, and H. Yaguchi, “Biexciton Luminescence from Individual Isoelectronic Traps in Nitrogen  $\delta$ -Doped GaAs”, Applied Physics Express 査読有 Vol. 5, pp. 111201 (2012)  
DOI:10.1143/APEX.5.111201

[学会発表] (計68件)

- (1) 宮崎 貴史, 八木 修平, 土方 泰斗, 矢口 裕之「第一原理計算によるInAsN 混晶のバンド構造に関する研究」第62回応用物理学会春季学術講演会 2015年3月13日 東海大学(神奈川県・平塚市)
- (2) M. Suetsugu, A. Z. M. Touhidul Islam, T. Hanaoka, T. Fukuda, N. Kamata, S. Yagi, and H. Yaguchi, “Luminescence and Quenching Properties in GaPN Revealed by Below-Gap Excitation”, The 14th International Symposium on the Science and Technology of Lighting 2014年6月23日 コモ(イタリア)
- (3) Y. Yamazaki, S. Yagi, Y. Hijikata, K. Onabe, H. Yaguchi, “Anomalous excitation power dependence of the luminescence from GaAsN/GaAs quantum well”, The 41st International Symposium on Compound Semiconductors 2014年5月21日 モンペリエ(フランス)
- (4) K. Takamiya, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, R. Katayama, K. Onabe, and H. Yaguchi, “Excitation power dependence of the emission from various N-N pairs in N  $\delta$ -doped GaAs”, The 4th International Workshop on Epitaxial Growth and Fundamental Properties of Semiconductor Nanostructures 2013年10月3日 レイクアローヘッド(アメリカ合衆国)
- (5) 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, 片山 竜二, 尾鍋 研太郎, 矢口 裕之「窒素 $\delta$ ドーピングGaAs中の単一等電子トラップによる励起子分子発光の時間分解フォトルミネッセンス測定」第74回応用物理学会秋季学術講演会 2013年

9月19日 同志社大学(京都府・京田辺市)

- (6) 坂本 圭, 矢口 裕之「第一原理計算による GaAsN 混晶の伝導帯の解析に関する研究」第 74 回応用物理学会秋季学術講演会 2013 年 9 月 19 日 同志社大学(京都府・京田辺市)
- (7) W. Okubo, S. Yagi, Y. Hijikata, K. Onabe and H. Yaguchi, “Photoreflectance Study of the Temperature Dependence of Excitonic Transitions in Dilute GaAsN Alloys”, The 10th International Conference on Nitride Semiconductors 2013 年 8 月 28 日 ワシントン D. C. (アメリカ合衆国)
- (8) K. Sakamoto and H. Yaguchi, “First Principles Study on the Conduction Band Electron States of GaAsN Alloys”, The 10th International Conference on Nitride Semiconductors 2013 年 8 月 27 日 ワシントン D. C. (アメリカ合衆国)
- (9) R. G. Jin, S. Yagi, Y. Hijikata, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama and H. Yaguchi, “Molecular beam epitaxy of ErGaAs alloys on GaAs (001) substrates”, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy” 2012 年 9 月 24 日 奈良県新公会堂(奈良県・奈良市)
- (10) 坂本 圭, 八木 修平, 土方 泰斗, 矢口 裕之「第一原理計算による GaAsN の電子構造に対する原子配置の影響に関する研究」第 73 回応用物理学会学術講演会 2012 年 9 月 12 日 愛媛大学(愛媛県・松山市)
- (11) 金 日国, 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「MBE 法による GaAs(001)基板上への ErGaAs 混晶の成長」第 73 回応用物理学会学術講演会 2012 年 9 月 12 日 愛媛大学(愛媛県・松山市)
- (12) 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 中の単一等電子トラップからの発光のフォトルミネッセンス励起分光測定」第 73 回応用物理学会学術講演会 2012 年 9 月 12 日 愛媛大学(愛媛県・松山市)
- (13) 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

Formed by Nitrogen-Nitrogen Pairs in GaAs”, The 31st International Conference on the Physics of Semiconductors 2012 年 8 月 2 日 チューリッヒ(スイス)

- (14) K. Sakamoto and H. Yaguchi, “First Principles Study on the Effect of the Position of Nitrogen Atoms on the Electronic Structure of GaAsN”, The 31st International Conference on the Physics of Semiconductors 2012 年 7 月 31 日 チューリッヒ(スイス)

[その他]

ホームページ等

<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

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

窪谷 茂幸 (KUBOYA, Shigeoyuki)  
東北大学・金属材料研究所・助教  
研究者番号：70583615

### (3) 連携研究者

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

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

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