

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 18 日現在

機関番号：92704

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360033

研究課題名(和文)酸化エルビウム結晶におけるポピュレーション操作と量子メモリへの応用

研究課題名(英文)Population manipulation and quantum memory application using erbium-oxide crystals

研究代表者

俵 毅彦(Tawara, Takehiko)

日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員

研究者番号：40393798

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：酸化エルビウム単結晶薄膜を用いた量子光メモリの実現を目指し、結晶内エルビウムイオン中の電子ダイナミクスを明らかにした。特にエルビウムイオン間距離の依存性を元に、エルビウムイオン間相互作用による電子の移動(エネルギー移動)について明らかにした。またこのエネルギー移動はフォトリック結晶構造により制御可能であることを実証した。これらは、通信波長帯で動作する高効率な量子光メモリを実現するために非常に重要な結果である。

研究成果の概要(英文)：Toward realization of the quantum optical memories using erbium-oxides epitaxial thin films, we investigated the electron dynamics of the erbium ions in the crystal. Particularly we clarified the characteristics of the energy transfer induced by erbium-erbium interaction, which depends on the interionic distance. Moreover we demonstrated that this energy transfer can be controlled by using the photonic crystal structures. These are the promising results for the realization of the high-efficient quantum memories operating with telecom-band photons.

研究分野：光物性

キーワード：酸化エルビウム STIRAP エネルギー移動 量子メモリ

1. 研究開始当初の背景

近年精力的に研究が行われている量子情報通信をより現実的なものとするためには、広域量子ネットワークを構築するための要素技術、すなわち光子-物質間における量子メディア変換やそれに基づく量子メモリといった量子中継デバイス開発が急務である。これまで原子やイオンを用いた原理実証実験に始まり、半導体・希土類添加結晶など固体材料への原理応用が数多く試みられてきた。しかしながら光子波長、位相緩和時間、量子準位の不均一幅等の問題から、固体材料による量子中継デバイス実現の決定的な道筋は立っていない。

2. 研究の目的

従来の希土類添加結晶に比べ光学的特性に優れた独自の酸化エルビウム(Er_2O_3)結晶薄膜を用い、 Er^{3+} イオン内の電子ポピュレーションのコヒーレント操作を通信波長帯光子により実現し、量子メモリへの応用へ発展させる。まず(1) Er^{3+} イオン $4f$ 軌道電子準位間における通信波長帯古典光パルス対での断熱的なポピュレーション移動技術を確認する。特にここでは Stimulated Raman Adiabatic Passage (STIRAP)を動作原理とする量子メモリ動作の実現を目指す。次に(2)単一光子での動作を目指し、フォトニック結晶ナノ共振器中の Er_2O_3 でのポピュレーション移動を実現する。さらに(3)磁場印可下でのスピン選択則まで考慮した単一光子ポピュレーション移動を実施する。研究期間を通して希土類結晶の量子光学的物性と量子中継デバイスへの応用の両側面に貢献する。得られた知見から長期的目標である単一光子での量子情報の書き込み・保存・演算・再生の実現へ発展させる。

3. 研究の方法

本研究では(1)古典光パルス対での STIRAP 技術の確認、(2)フォトニック結晶ナノ共振器中による単一光子 STIRAP の実現、(3)磁場印可下でのスピン選択則まで考慮した単一光子 STIRAP の実施に取り組む。(1)では Er_2O_3 結晶の結晶品質改善と物性値評価を行うとともに、通信波長帯古典光パルス対の断熱条件を確認し、STIRAP を実現させる。(2)では単一光子での STIRAP 実現に向け、 Er_2O_3 結晶を内包するフォトニック結晶ナノ共振器構造の作製を可能にする。またこの構造により、STIRAP による単一光子波長変換発生を実現する。(3)では Er_2O_3 結晶のスピン物性を明らかにするとともに、(1)(2)で得られた知見と合わせ量子メモリの動作原理を提唱する。これにより長期的目標である Er_2O_3 結晶中の STIRAP による量子メモリ動作の実現に向けて発展させる。

4. 研究成果

(1) Er_2O_3 結晶薄膜の高品質化

従来の Er_2O_3 結晶薄膜は単結晶ではなく、ドメイン成長した微結晶の集合体(多結晶)である。ドメイン境界はキャリアの非発光トラップとなるため、まず初めに Er_2O_3 結晶ドメインの拡大化を図った。 Er_2O_3 結晶の格子定数は Si(111)の格子定数の2倍と整合するために、良質な結晶が得られる事が期待できる。MBE法を用いて Si(111)上に Er_2O_3 を膜厚約 100nm で成長したところ、成長温度 715°C において完全なエピタキシャル成長薄膜が得られた(図1)。これらは成長中の RHEED および成長後の断面 TEM 像から確認された。これによりドメイン境界の無い良質な Er_2O_3 結晶薄膜を得る事に成功した。

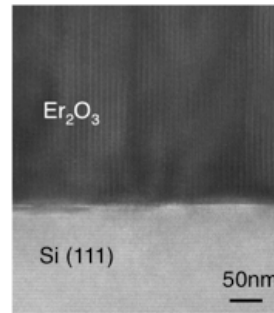


図1 Er_2O_3 単結晶薄膜の断面 TEM 像

(2) Er_2O_3 結晶薄膜の各光学物性評価

得られた Er_2O_3 単結晶薄膜で STIRAP を実現するための基礎的な光学物性、特に準位間エネルギー移動レート、縦緩和時間、不均一幅、 g 因子とスピン選択則破綻の程度について評価を行った。まず 4K における Er_2O_3 単結晶薄膜の PLE 測定の結果、 $^4I_{13/2}$ および $^4I_{15/2}$ の各 Stark 準位を同定した(図2a)。また均一な結晶場が実現されている事により、不均一幅が約 $200 \mu\text{eV}$ と量子ドット程度に狭いことが分かった(図2b)。さらにサイトおよび Stark

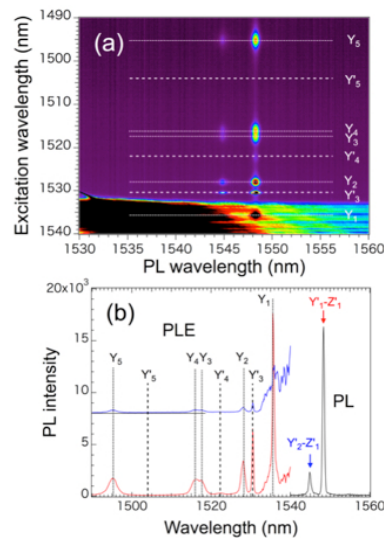


図2 Er_2O_3 の(a) PLE カラープロットおよび (b) PLE スペクトル。

準位選択励起による PL スペクトル強度および寿命測定を励起強度依存性として行った結果 (図 3)、縦緩和時間は約 150 μs 、Er イオン間での共鳴エネルギー移動が数 μs で生じている事が明らかとなった。ただし STIRAP は数 ns で操作を完了できる事が理論解析から分かっており、この共鳴エネルギー移動は STIRAP に影響しない。また磁場中での PL 測定を行った結果、実効的な g 因子は 6.62 と比較的大きな値を示したが、Er 間距離が非常に近い ($\sim 2\text{\AA}$) ことから状態の混同が生じスピン選択則が破綻している。エネルギー移動およびスピン選択則破綻の抑制のために、今後結晶中での Er 間距離を制御する必要があることが分かった。

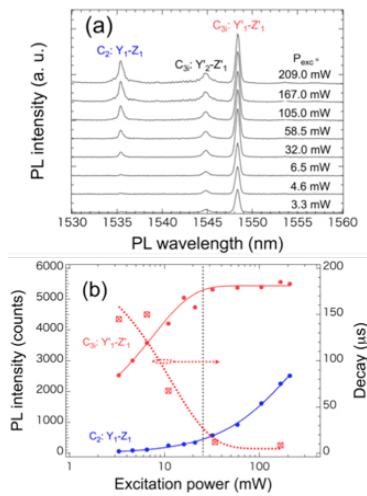


図 3 Er_2O_3 の (a) PL スペクトル強度および (b) 発光寿命の励起強度。

(3) Er イオン間相互作用の制御

Er イオン間相互作用制御のためには、結晶中での Er イオン間距離を制御することが必要である。そのため同じ希土類であるスカンジウム (Sc) で Er_2O_3 を混晶化することを試みた。これまでと同じ MBE 法により成長した

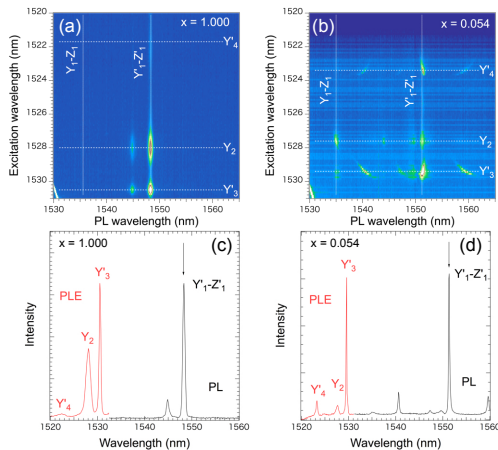


図 4 (a) Er_2O_3 のおよび (b) $(\text{ErSc})_2\text{O}_3$ の PLE カラープロット。(c-d) それぞれの PLE スペクトル。

結果、Er 濃度 100 から 1% の範囲で $(\text{ErSc})_2\text{O}_3$ 単結晶薄膜を得ることに成功した。この時 Er イオン間距離としては 3\AA (100%) から 14\AA (1%) に相当する。Er イオン間距離を広げることにより、サイト間でのエネルギー移動レートを 100% の時に比べ $1/20,000$ 程度に抑制することが可能となった (図 4)。さらに Stark 準位の不均一幅の減少 (1/3 以下) および発光の長寿命化 (10 倍以上) も観測された。

(4) Stark 準位均一幅の評価

STIRAP によるポピュレーションの移動効率を決める要素の一つに、Stark 準位の均一幅がある。 $(\text{ErSc})_2\text{O}_3$ の均一幅を実験的に見積もるため、スペクトルホールバーニング測定を実施した。しかしながら明瞭なホール形成は観測できなかった。この原因としては、①薄膜での測定であるため光と Er イオンの相互作用長が短く十分な信号強度が得られない、②サイト間エネルギー移動以外のポピュレーションの散逸が生じているため吸収飽和が起きていない、などの原因が考えられる。

(5) アップコンバージョンエネルギー移動の定量的評価とその抑制

前項②で想定したサイト間エネルギー移動以外のポピュレーション散逸チャンネルとして、同一サイト内での上位エネルギー準位へのエネルギー移動 (アップコンバージョン) が存在することを実験的に観測した。第一励起準位である $^4I_{13/2}$ の各 Stark 準位 (1.5 μm 近傍) に共鳴した励起レーザー光を入射した時に、それより高エネルギー側 ($^4S_{3/2}$ - $^4I_{11/2}$: 550nm-980nm 付近) からアップコンバージョン発光が見られた (図 5)。これが前項で第一励起準位の吸収飽和が起こらなかった原因と考えられる。これら各エネルギー移動レートを定量的に見積もるために、 $(\text{ErSc})_2\text{O}_3$ における各準位からの発光強度の励起パワー依存性を調べ、レート方程式解析を行った。その結果、サイト間移動レートと同様に、アップコンバージョンレートも Er 濃度の減少

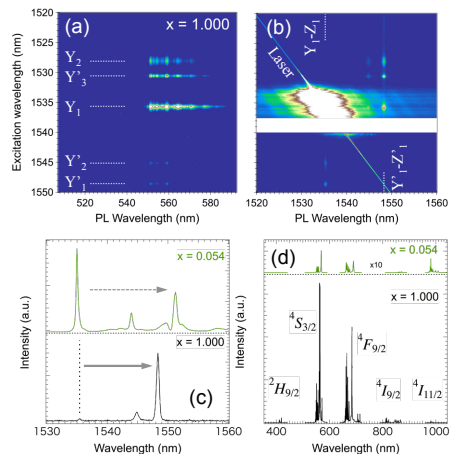


図 5 (a-b) Er_2O_3 アップコンバージョン発光の PLE カラープロット。(c-d) PL スペクトルの Er 濃度依存性。

により強く抑制される (1/1,000,000 程度) ことが分かった。

(6) Er_2O_3 フォトニック結晶構造の作製
微弱光による高効率な STIRAP を実現する手段として、微小共振器構造の採用が期待される。そこでフォトニック結晶をベースとした Er_2O_3 微小共振器の作製プロセスを確立した。 Er_2O_3 はドライおよびウェットエッチングが困難であることがこれまでの研究で分かっている。そこで Si(111)活性層を有する SOI 基板に Si フォトニック結晶スラブをあらかじめ作製し、その上に Er_2O_3 を MBE 成長した (図 6)。アップコンバージョンのエネルギー移動先である $^4I_{9/2}$ 準位のエネルギーに一致するフォトニック結晶構造を作製したところ、 $^4I_{9/2}$ 準位からの発光は強く抑制され (図 7) 設計通りフォトニックバンドギャップが形成されていることが分かった。

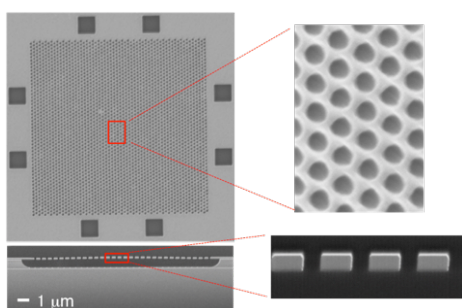


図 6 Er_2O_3 フォトニック結晶構造の SEM 像。

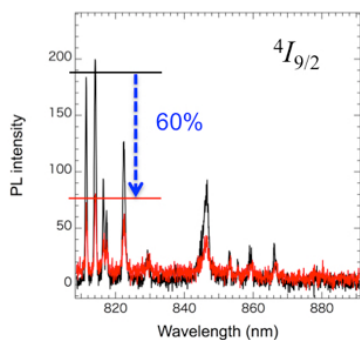


図 7 Er_2O_3 フォトニック結晶構造によるアップコンバージョン発光の抑制 (赤線)。

(7) まとめ

STIRAP の実現に必要な希土類材料特有のエネルギー移動ダイナミクスの詳細を明らかにし、Er 濃度の最適化やフォトニック結晶構造の採用によりエネルギー移動が制御できることを示した。本課題の主目標である STIRAP によるポピュレーションのコヒーレント操作の研究期間内での実現には至らなかったが、得られた知見は今後の STIRAP による量子メモリの実現に対して非常に本質的かつ重要なものである。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6 件)

1. “Effect of structure and composition on optical properties of Er-Sc silicates prepared from multi-nanolayer films”, A. Najar, H. Omi, T. Tawara, *Optics Express* **23** (2015) 7021. (査読有) DOI: 10.1364/OE.23.007021.
2. “Mixture formation of $\text{Er}_x\text{Yb}_{2-x}\text{Si}_2\text{O}_7$ and $\text{Er}_x\text{Yb}_{2-x}\text{O}_3$ on Si for broadening the C-band in an optical amplifier”, H. Omi, Y. Abe, M. Anagnosti, and T. Tawara, *AIP Advances* **3** (2013) 042107. (査読有) DOI: 10.1063/1.4800714.
3. “Population dynamics in epitaxial Er_2O_3 thin films grown on Si(111)”, T. Tawara, H. Omi, T. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, T. Sogawa, *Appl. Phys. Lett.* **102** (2013) 241918. (査読有) DOI: 10.1063/1.4812294.
4. “Light emission from thulium silicates and oxides for optical amplifiers on silicon in the extended optical communication band”, H. Omi, A. Hagiwara, T. Tawara, *AIP Advances* **3** (2013) 072122. (査読有) DOI: 10.1063/1.4816717.
5. “Scandium effect on the luminescence of Er-Sc silicates prepared from multi-nanolayer films”, A. Najar, H. Omi, T. Tawara, *Nanoscale Research Letters* **9** (2014) 356. (査読有) DOI: 10.1186/1556-276X-9-356
6. “Simultaneous light emissions from erbium-thulium silicates and oxides on silicon in the second and third telecommunications bands”, M. Anagnosti, H. Omi, T. Tawara, *Optical Materials Express* **4** (2014) 1747. (査読有) DOI: 10.1364/OME.4.001747.

[学会発表] (計 24 件)

1. “(ErSc) $_2\text{O}_3$ 薄膜におけるアップコンバージョン発光とフォトニックバンドギャップによる抑制” 俵毅彦, T. McManus, 川上欣洋, 尾身博雄, A. Najar, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 春季応物学会, 12a-A10-3 (2015 年 3 月 12 日、東海大)
2. “(Sc,Er) $_2\text{O}_3$ 薄膜におけるサイト選択励起でのエネルギー移動とアップコンバージョン” 川上欣洋, 俵毅彦, 尾身博雄, 鍛冶怜奈, 足立智, 春季応物学会, 12a-A10-2 (2015 年 3 月 12 日、東海大)
3. “硬 X 線光電子分光による Si(111)上に MBE 成長した $(\text{Er}_x\text{Sc}_{1-x})_2\text{O}_3$ 膜のバンド構造の決定” 尾身博雄, B. Logan, 俵毅彦, 春季応物学会, 11p-A25-10 (2015 年 3 月 11 日、東海大)
4. “(ErSc) $_2\text{O}_3$ 混晶薄膜の非発光過程とレート方程式解析” 川上欣洋, 鍛冶怜奈, 足立智, 俵毅彦, 尾身博雄, 応物学会北海道支部会, A-10 (2015 年 1 月 9 日、旭川勤労者福祉会館)
5. (Invited) “Scandium effect on luminescence of Er-Sc silicates prepared from multi-nanolayer

- films”, A. Najar, H. Omi, T. Tawara, 2nd International Conference on Nanostructured Materials and Nanocomposites (19-21 December 2014, Kottayam, India).
6. “酸化エルビウム薄膜における上位準位へのポピュレーション移動” 俵毅彦, 尾身博雄, A. Najar, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 秋季応物学会, 18a-A24-7 (2014年9月18日、北大)
 7. “エルビウム混晶薄膜発光の温度依存性: エネルギー移動と非発光過程の考察” 川上欣洋, 鍛冶怜奈, 足立智, 俵毅彦, 尾身博雄, 秋季応物学会, 18a-A24-8 (2014年9月18日、北大)
 10. “Structural characterization and luminescence properties of $\text{Er}_x\text{Sc}_{2-x}\text{Si}_2\text{O}_7$ prepared by RF sputtering” A. Najar, H. Omi, T. Tawara, 秋季応物学会, 18a-A24-10 (2014年9月18日、北大)
 8. “ $(\text{Er}_{1-x}\text{Sc}_x)_2\text{O}_3$ MBE 成長膜中 Er 置換サイトの Er 濃度依存性” 尾身博雄, 俵毅彦, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 秋季応物学会, 18a-A24-11 (2014年9月18日、北大)
 9. “Optical transition between Stark levels in $(\text{ErSc})_2\text{O}_3$ epitaxial films”, T. Tawara, H. Omi, A. Najar, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, Conference on Lasers and Electro-Optics 2014 (CLEO:2014), JW2A.56 (11 June 2014, San Jose, USA).
 10. “Structural characterization and luminescence properties of $\text{Er}_x\text{Sc}_{2-x}\text{Si}_2\text{O}_7$ prepared by RF sputtering”, A. Najar, H. Omi, T. Tawara, Conference on Lasers and Electro-Optics 2014 (CLEO:2014), JW2A.61 (11 June 2014, San Jose, USA).
 11. (Invited) “Er- and Tm-doped silicates and oxides as light emitting materials for broadband monolithic silicon photonics”, H. Omi, T. Tawara, Energy Materials Nanotechnology (EMN) Summer Meeting, S2-A-4 (9 June 2014, Cancun, Mexico).
 12. “Si(111)上に MBE 成長した $(\text{Sc}_{1-x}\text{Er}_x)_2\text{O}_3$ 膜の EXAFS 解析” 尾身博雄, 俵毅彦, 鍛冶怜奈, 穂積貴人, 足立智, 後藤秀樹, 寒川哲臣, 春季応物学会, 18p-E11-4 (2014年3月18日、青山学院大)
 13. (Invited) “MBE growth and optical properties of rear earth oxides on Si(111)”, H. Omi, T. Tawara, Symposium on Surface and Nano Science 2014 (SSNS'14), 4-3 (16 January 2014, Furano, Japan).
 14. “Molecular beam epitaxy of $(\text{Er}_x\text{Sc}_{1-x})_2\text{O}_3$ on Si(111) for active integrated optical devices”, H. Omi, T. Tawara, T. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, T. Sogawa, 2nd International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology, (Photonics 2014), 64 (8 January 2014, Lisbon, Portugal).
 15. “酸化エルビウム薄膜のサイト間エネルギー移動特性” 佐野将大, 川上欣洋, 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 俵毅彦, 応物学会北海道支部会, A-30 (2013年12月10日、北海道大)
 16. “MBE growth and optical properties of rear earth oxides on Si(111)”, H. Omi, T. Tawara, T. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, T. Sogawa, 19p-M5-9 (19 September 2013, Kyoto, Japan).
 17. “Magneto-optical properties of Er_2O_3 epilayers on Si(111)”, T. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, T. Tawara, H. Omi, 2013 JSPS-MRS Joint Symposia, 18p-PM2-12 (18 September 2013, Kyoto, Japan).
 18. “Si 基板上 $(\text{Er}_{1-x}\text{Sc}_x)_2\text{O}_3$ の MBE 成長” 尾身博雄, 俵毅彦, 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 寒川哲臣, 秋季応物学会, 18a-D7-6 (2013年9月18日、同志社大)
 19. “酸化エルビウムエピタキシャル薄膜のスカンジウム混晶化による光学特性の改善” 俵毅彦, 尾身博雄, 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 寒川哲臣, 秋季応物学会, 18p-D6-11 (2013年9月18日、同志社大)
 20. “ダブル誘導ラマン断熱通過による酸化エルビウム薄膜での量子ビット任意回転操作” 川上欣洋, 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 俵毅彦, 尾身博雄, 秋季応物学会, 18p-D6-12 (2013年9月18日、同志社大)
 21. “Energy transfer in epitaxial Er_2O_3 thin films grown on Si(111) substrates” T. Tawara, T. Hozumi, H. Omi, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, T. Sogawa, IEEE Photonics Conference 2013 (IPC2013), MH2.4 (9 September 2013, Bellevue-Seattle, USA).
 22. “Arbitrary qubit rotation by double STIRAP in Er_2O_3 thin film”, Y. Kawakami, Y. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, T. Tawara, H. Omi, The 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON18), Tu3-7 (23 July 2013, Matsue, Japan).
 23. “酸化エルビウムエピタキシャル薄膜の光学特性” 俵毅彦, 穂積貴人, 尾身博雄, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 寒川哲臣, 応用物理学会(春), 神奈川工科大, 2013年3月28日.
 24. “Si 基板上酸化エルビウムの MBE 成長” 尾身博雄, 俵毅彦, 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 寒川哲臣, 応用物理学会(春), 神奈川工科大, 2013年3月28日.
- [図書] (計3件)
1. “Rare-earth Epitaxial Films as a Platform for Quantum Information Manipulation” T. Tawara, H. Omi, NTT Tech. Rev. **12** (2014).
 2. “シリコンフォトニクスに向けた Si 上への自己組織的なナノ構造・ウエハレベル形成” 尾身博雄, 俵毅彦, 精密工学会誌 Vol. 80, No. 5 (2014) 448.
 3. “量子情報操作プラットフォームとしての希土類単結晶” 俵毅彦, 尾身博雄, NTT 技術ジャーナル Vol. 26, No. 6 (2014) 20.
- [産業財産権]
○出願状況 (計3件)
- 名称: 光素子
発明者: 俵毅彦, 尾身博雄, 足立智
権利者: 同上
種類: 特許

番号：特願 2015-028251
出願年月日：2015. 2. 17
国内外の別： 国内

名称：光素子およびその製造方法
発明者：尾身博雄、俵毅彦、足立智
権利者：同上
種類：特許
番号：特願 2013-162076
出願年月日：2013. 8. 5
国内外の別： 国内

名称：量子ビットの操作方法
発明者：俵毅彦、尾身博雄、足立智
権利者：同上
種類：特許
番号：特願 2013-147283
出願年月日：2013. 7. 16
国内外の別： 国内

○取得状況（計 0 件）

[その他]
ホームページ等
http://www.brl.ntt.co.jp/people/tawara/tawara_E/Welcome.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

俵 毅彦 (TAWARA, Takehiko)
NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員
研究者番号：40393798

(2) 研究分担者

尾身 博雄 (OMI, Hiroo)
NTT 物性科学基礎研究所・機能物質科学研究部・主任研究員
研究者番号：50257218

後藤 秀樹 (GOTOH, Hideki)
NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・部長
研究者番号：10393795

寒川 哲臣 (SOGAWA, Tetsuomi)
NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・所長
研究者番号：70211993

倉持 栄一 (KURAMOCHI, Eiichi)
NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員
研究者番号：10393802

足立 智 (ADACHI, Satoru)
北海道大学・工学研究院・教授
研究者番号：10221722