

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289091

研究課題名(和文)高性能量子光源のための新たな等電子トラップの探索と特性制御に関する研究

研究課題名(英文) Study on novel isoelectronic traps in GaAs and control of their optical properties for the development of advanced quantum light source

研究代表者

佐久間 芳樹 (SAKUMA, Yoshiki)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・グループリーダー

研究者番号：60354346

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,400,000円

研究成果の概要(和文)：発光エネルギーや強度の揃った高性能な単一光子源を実現するため、GaAs中にドーブされた窒素不純物が作る等電子トラップの特性制御に関する研究を行った。AlGaAs/GaAs:N/AlGaAs量子井戸構造を使って等電子トラップからの発光エネルギーを制御できることを明らかにしたほか、フォトニック結晶のL3共振器によって等電子トラップからの自然放出光がパーセル効果によって増強されることを実証した。

研究成果の概要(英文)：To make single-photon sources with identical emission energy and intensity, a research on controlling the optical properties of nitrogen (N) isoelectronic impurities, which were doped in GaAs, has been done. We clarified that the emission energy of N isoelectronic traps can be varied by using AlGaAs/GaAs:N/AlGaAs quantum well structures. In addition, we also demonstrated that the spontaneous emission rate from the N isoelectronic trap embedded in an L3-type microcavity within photonic crystal is enhanced by Purcell effect.

研究分野：結晶工学、応用物理学、

キーワード：量子閉じ込め 単一不純物 励起子 単一光子 等電子トラップ フォトニック結晶 パーセル効果 M
OCVD

1. 研究開始当初の背景

近年、量子暗号や量子計算といった新たな情報通信技術の重要性が認知され、その基本要素である単一光子源の研究開発が活発化している。これまで、単一光子を効率的に発生させる手法として、S-K 成長モードによる半導体量子ドットを利用する多くの研究が行われてきた。しかし、ドットのサイズ揺らぎに起因する発光エネルギーのばらつきの問題が未解決のまま残されており、単一光子源の実用化を阻む技術的障害になっている。

この状況に鑑み、我々は半導体中の個々の不純物準位に束縛された励起子(電子・正孔対)の発光過程を単一光子発生に用いる独創的な着想に至った。元来、半導体中の不純物は離散的なエネルギー準位を形成し、サイズ揺らぎのない理想的な2準位系として振舞う。特に、等電子トラップと呼ばれる電気的に中性な不純物を利用すれば、キャリアに対する短距離ポテンシャル中心として働き、ドナやアクセプタのような電離型不純物とは異なりクーロン相互作用によるエネルギーのボケがないため、鋭い輝線発光スペクトルを示す。つまり、等電子トラップはエネルギー純度の高い単一光子源を再現性良く作製するうえで極めて有益である。我々はこの着想の実証のためガリウムリン(GaP)中の窒素(N)不純物に着目し、MOCVD法を用いてGaPエピタキシャル層へのN不純物の極希薄なドーピング法を開発し、1個の局在不純物準位からの顕微フォトルミネセンス(PL)光の観測を行なった。その結果、明瞭な光子のアンチバンチングを観測し、III-V族の等電子トラップからの単一光子発生に世界で初めて成功した。

以上のように単一光子発生の原理実証に成功したが、間接遷移型のGaPでは励起子再結合寿命が長く、単一光子の発生レートや効率に限界があることが判明した。そこで直接遷移型のGaAsについてもMOCVD法によるNのドーピング技術の開発を進め、NX中心と呼ぶ等電子トラップ形成を見出し、単一光子の発生を実証した。同時に、GaAs中の単一NX準位の再結合寿命がGaPより1-2桁短くなり、期待どおり単一光子発生レートを大幅に改善できることを時間分解PL測定で確認した。しかし、NX中心の場合、GaP中のNNペアとは異なり発光エネルギーがばらつくことが明らかになった。そのため、ドーピング時のN原料ガスの供給シーケンスなど成長条件に検討を加え、 NN_A や NN_B と呼ぶエネルギーの揃った輝線発光を観測するとともに、これらの等電子トラップからの単一光子発生に成功した。ただし、現状ではこれらの放射レートは低く、その起源や原子配置も不明である。このようにGaAs中の等電子準位形成については未解明な点が多く、今後も研究を継続・発展させる必要がある。また、GaP、GaAsのいずれの場合も単一光子の発生温度は低温領域に制限され、実用的な応用に向けて高温

動作化が望まれる。加えて、量子井戸やヘテロ構造、フォトリソ共振器を使った等電子トラップの制御技術を開発することも重要であり、これらに関して体系的な研究を進める必要がある。

2. 研究の目的

量子光源としての等電子トラップの技術的有用性を高めるため、下記の項目について研究を行う。いずれも離散的なエネルギー準位を持つ『等電子トラップのエンジニアリング技術』と呼ぶべきもので、これらの要素技術を組み合わせることで単一光子発生の高性能化と高機能化を達成する。

(1) 窒素等電子トラップの起源の解明: GaAs中のN関連の等電子トラップに関して、N原料ガスの導入シーケンスの影響や基板面方位、ドナやアクセプタとの共存効果を詳細に調べ、エネルギーの揃った NN_A 、 NN_B および NN_C の起源について有用な情報を得る。

(2) 量子井戸を利用した等電子トラップの波動関数制御: 量子井戸内に置いた等電子トラップ準位のエネルギー位置や励起子結合力の变化、井戸に閉じ込められた正孔との波動関数の重なり増加などを利用して、単一光子発生効率の増大と高温動作を図る。

(3) 微小共振器による単一光子発生効率の増大: L3欠陥型のフォトリソ結晶共振器を試作し、Purcell効果による等電子トラップからの光子発生の増大効果の有無を調べる。

(4) 励起子コヒーレンスや電子スピンの保持機能の探索: 等電子トラップに先進的な新機能を付加するため、単一光子の励起子コヒーレンス制御の研究や等電子準位へのスピン偏極電子の保存と読み出しに関する原理実証の研究を行う。

3. 研究の方法

等電子不純物準位からの単一光子発生とその特性制御に向けて、一連の試料作製のために、様々なIII-V族半導体材料のヘテロ構造を作製でき、各種不純物のドーピングにも柔軟に対応できるMOCVD法を用いて研究を行った。また、本研究では半導体中で空間的に局在した不純物準位を測定対象とするため、顕微PLを使った微小領域の光物性評価が必須である。そのため、半導体の光学測定を専門とする筑波大学の池沢道男准教授に分担者として参加して頂き、密接に議論をしながら研究を進めた。また、フォトリソ結晶共振器の作製に関しては、NIMS微細加工プラットフォームに支援を依頼した。

4. 研究成果

以下に、本研究で得られた主要な成果を述べる。

(1) 窒素等電子トラップの起源の解明

MOCVD 法で成長した GaAs 結晶中に窒素 (N) 不純物を ドープを行った際に観測される NN_A , NN_B , NN_F などの等電子発光中心の起源の解明を進めた。図 1 のように N 原料ガスであるジメチルヒドラジン (DMHy) 導入シーケンスと PL の輝線発光ピークの出現の相関を調べた。また、SIMS 分析から NN_A および NN_B が N とカーボン (C) 不純物の複合中心であることを示唆するデータを得た。一方、 NN_F は比較的 N 濃度や C の低い場合に観測され、 NN_A や NN_B とは起源が異なる可能性が高いことがわかった。また、N 濃度がさらに低い領域では、波長 822nm 付近に他機関によって X_1 とラベリングされている発光も観測されることを見出した。

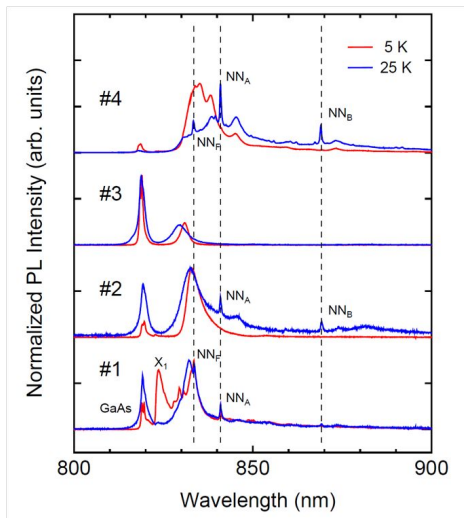


図 1(a) GaAs:N の PL スペクトルの DMHy 導入シーケンス依存性。N 不純物は 1 原子面にのみにドープされており、GaAs バッファ層とキャップ層で挟んである。

- #4: As 終端面上に DMHy を TEGa と混ぜて供給
GaAs buffer → AsH₃: 5s → [TEGa+DMHy]: 2s → AsH₃: 1s → GaAs cap
- #3: Ga と N の順番を逆転
GaAs buffer → AsH₃: 5s → DMHy: 2s → TEGa: 2s → AsH₃: 1s → GaAs cap
- #2: Ga 終端面上に DMHy だけを供給 (TEGa 2s ≈ Ga 1ML)
GaAs buffer → AsH₃: 5s → TEGa: 2s → DMHy: 2s → AsH₃: 1s → GaAs cap
- #1: As 終端面上に DMHy だけを供給
GaAs buffer → AsH₃: 5s → DMHy: 2s → AsH₃: 1s → GaAs cap

図 1(b) 図 1(a) で採用した 4 種の DMHy 導入シーケンスの説明

(2) 量子井戸を利用した等電子トラップの波動関数制御

量子井戸の中央に N 不純物を ドープした AlGaAs/GaAs:N/AlGaAs 構造を作製し、マクロ PL で等電子トラップの NN_A 発光 (841nm) の GaAs 井戸幅依存性を調べた。図 2(a) に示すように、井戸幅が 200 ~ 100nm では NN_A の輝線発光が観測されたが、100nm 以下では消失し、

NN_A の低エネルギー側のブロードな発光が主となることを見出した。このピークは井戸幅の減少に伴い、図 2(b) に示すように量子閉じ込めによってブルーシフトするが、N ドープ無しの場合と比べてシフト量が非常に小さいことも明らかになった。 NN_A が空間局在した等電子トラップの発光であるのに対し、上記のブロードな発光は有効質量の大きい 1 分子層程度の GaAsN 混晶のバンドに関連していると考えられる。

量子井戸を使って等電子トラップ発光の制御が可能であることを明らかにしたが、詳細については今後さらに研究を進める必要がある。

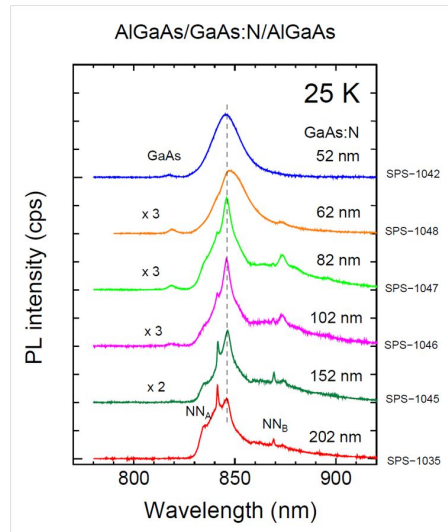


図 2(a) GaAs:N 井戸幅が 50-200nm と比較的厚い AlGaAs/GaAs:N/AlGaAs サンプルからの PL スペクトル

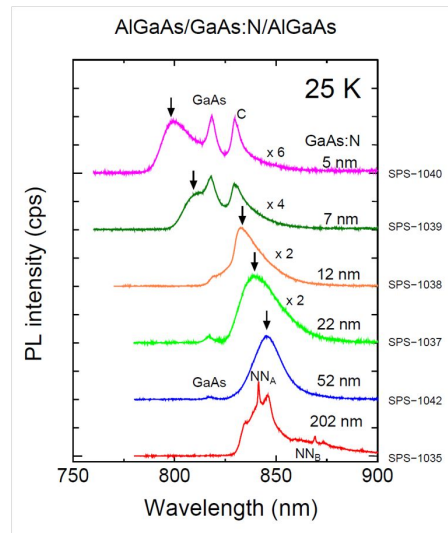


図 2(b) GaAs:N 井戸幅を 5-200nm の広範囲で変えた AlGaAs/GaAs:N/AlGaAs サンプルからの PL スペクトル

(3) 微小共振器による単一光子発生効率の増大

L3 共振器内に最大 1 個の NN_A 発光センターが存在する程度にまで N 濃度を希薄化した GaAs:N サンプルにフォトニック結晶を作製

し、顕微 PL を使って発光増強の有無を調べた。その結果、図 3 のように複数の L3 共振器において、フォトニック結晶未加工部と比べて数十倍強い狭線幅の PL 発光を確認した。スペクトル形状はローレンツ型であり、理論どおり強い直線偏光が観測された。

さらに、PL 発光について 2 次の自己相関関数 $g^2(\tau)$ を調べたところ、図 4 のように $g^2(0) \approx 0$ となる極めて明瞭なアンチバンチング、すなわち単一光子発生が確認された。また、発光増強した NN_A の発光寿命を測定したところ 2ns 付近であることがわかり、未加工部の 6ns より短縮していることが明らかとなった。これらの結果は、いずれも単一 NN_A 発光センターのパーセル効果による自然放出の増強効果を示している。

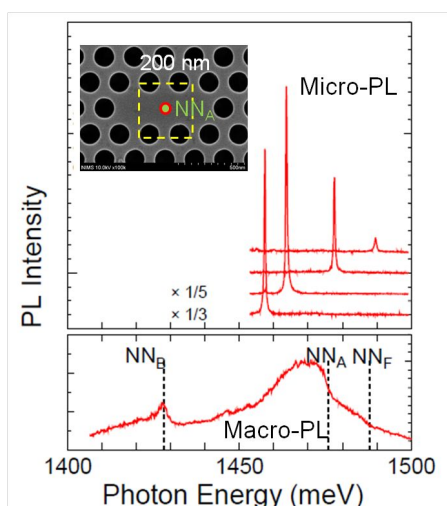


図 3 (上)L3 欠陥部に 1 個程度の NN_A 発光中心が存在する GaAs:N フォトニック結晶共振器からの顕微 PL、(下) フォトニック結晶加工前の GaAs:N サンプルのマクロ PL。いずれも測定温度は 5K

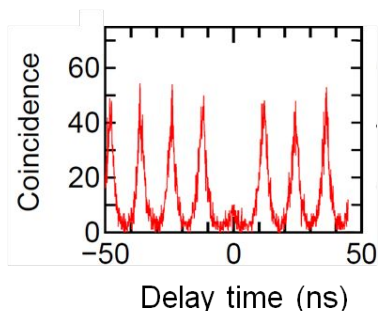


図 4 フォトニック結晶共振器で増強された PL 発光の 2 次の自己相関関数 $g^2(\tau)$ 。5K での測定結果

(4) 励起子コヒーレンスや電子スピンの保持機能の探索

等電子トラップは理想的な 2 準位系と考えられ、共鳴励起を行うことによって励起子のコヒーレントな制御が期待できる。図 5 は、NX センターを含む GaAs:N サンプルの単一発光中心について、共鳴励起と非共鳴励起による PL スペクトルを比較した結果である。波

長 532nm のレーザーで GaAs のバンド間を非共鳴励起した場合は、着目する単一 NX センターの発光以外にもブロードな弱い PL 発光が重畳している。一方、ピコ秒パルスレーザーを使って 833.3 nm 付近で発光する NX センターの共鳴励起を行った場合、NX センターからの増強された PL 発光のみが観測され、かつ線幅が狭くなることを見出した。

さらに、励起用のピコ秒レーザー強度を増加させると、図 6 のように共鳴した PL 発光 (RF:resonant fluorescence) 強度が次第に減少に転じることを見出した。これは、等電子トラップの 2 準位系と共鳴するレーザー光の相互作用に基づくラビ振動と考えられる。

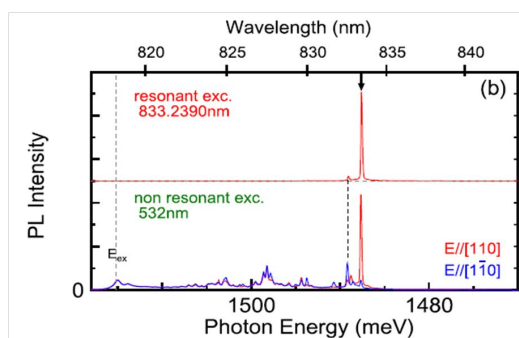


図 5 (上)ピコ秒パルスレーザーで共鳴励起した単一 NX センターの 5K での PL スペクトル、(下) 同じ単一 NX センターを非共鳴レーザーで励起した場合の PL スペクトル

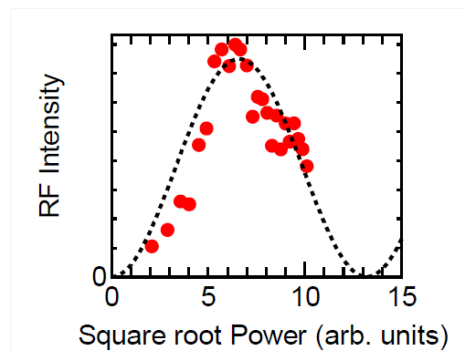


図 6 ピコ秒パルスレーザーで共鳴励起した単一 NX センターの PL 強度のラビ振動

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 21 件)

N. Ishida, M. Jo, T. Mano, Y. Sakuma, T. Noda, and D. Fujita, “Direct visualization of the N impurity state in dilute GaAsN using scanning tunneling microscopy”, *Nanoscale*, Vol. 7, pp. 16773 ~ 16780 (2015). (査読有)
DOI: [10.1039/C5NR04193G](https://doi.org/10.1039/C5NR04193G)

P. St-Jean, G. Ethier-Majcher, Y. Sakuma, and S. Francoeur, “Recombination dynamics of exciton bound to nitrogen

isoelectronic centers in delta-doped GaP”, Phys. Rev. B, Vol. 89, pp. 075308-1 ~ 075308-8 (2014). (査読有)

DOI: [10.1103/PhysRevB.89.075308](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.075308)

M. Jo, T. Mano, Y. Sakuma, and K. Sakoda, “Tight-binding analysis of the electronic states in AlAs with N isoelectronic impurities”, J. Appl. Phys., Vol. 115, pp. 123501-1 ~ 123501-6 (2014). (査読有)

DOI: [10.1063/1.4869261](https://doi.org/10.1063/1.4869261)

L. Zhang, M. Ikezawa, T. Mori, S. Umehara, Y. Sakuma, K. Sakoda, and Y. Masumoto, “Single photon generation from an impurity center with well-defined emission energy in GaAs”, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.52, pp. 04CG11-1 ~ 04CG11-3 (2013). (査読有)

DOI: [10.7567/JJAP.52.04CG11](https://doi.org/10.7567/JJAP.52.04CG11)

〔学会発表〕(計 60 件)

M. Ikezawa et al., “Study on coherent time and indistinguishability of single photons from nitrogen impurity centers in GaAs”, QD 2016, 2016 年 5 月 22 日, Jeju (韓国).
N. Ishida et al., “Direct visualization of the N impurity state in dilute GaNAs using scanning tunneling microscopy”, IVC-20, 2016 年 3 月 6 日, Busan (韓国).

張遼ほか, 「GaAs 中の窒素発光中心から発生した光子の量子干渉」, 第 63 回応用物理学学会春季学術講演会, 2016 年 3 月 19 日, 東工大岡山キャンパス(東京都).
N. Ishida et al., “Direct visualization of the N impurity state in dilute GaNAs using cross-sectional scanning tunneling microscopy”, ISPlasma 2016/IC-PLANTS 2016, 2016 年 3 月 6 日, 名古屋大学(名古屋).

M. Ikezawa et al., “Resonant excitation of single luminescence center in GaAs:N”, SSDM 2015, 2015 年 9 月 27 日, 札幌コンベンションセンター(札幌市).

池沢道男ほか, 「GaAs 中の窒素発光中心を利用した単一光子源」, 光・量子計測シンポジウム, 2015 年 9 月 9 日, つくば国際会議場(つくば市).

M. Ikezawa et al., “Non-classical light generation from isoelectronic traps embedded in photonic crystal microcavities”, EP2DS-21/MSS-17, 2015 年 7 月 26 日, 仙台国際センター(仙台市).

M. Ikezawa et al., “Single photon generation from nitrogen isoelectronic traps in III-V semiconductors”, Korea-Japan Joint Symposium on Semiconductor Physics and Technology, 2015 年 4 月 22 日, Daejeon (韓国).

N. Ishida et al., “Direct visualization of N impurity state in GaAs using STM”, 22nd ICSPM, 2014 年 12 月 11 日, 熱川ハイツ

(東伊東町).

M. Ikezawa et al., “Non-classical light generation from isoelectronic centers embedded in photonic crystal microcavities”, Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014 年 11 月 13 日, 神戸大学(神戸市).

N. Ishida et al., “Direct visualization of N impurity state in GaAs using STM”, The 7th International Symposium on Surface Science, 2014 年 11 月 2 日, くにびきメッセ(松江市).

山田雄太ほか, 「フォトリック結晶共振器に埋め込まれた等電子トラップからの非古典光発生」, 第 75 回応用物理学学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 17 日, 北海道大学(札幌市).

石田暢之ほか, 「STM による GaAs 中 N 不純物準位の直接可視化」, 第 75 回応用物理学学会秋季学術講演会, 2014 年 9 月 17 日, 北海道大学(札幌市).

張遼ほか, 「発光エネルギーの揃った GaAs 中の窒素発光中心の位相緩和」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 7 日, 中部大学(春日井市).

山田雄太ほか, 「等電子トラップを埋め込んだフォトリック結晶共振器の光学特性」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 7 日, 中部大学(春日井市).

M. Jo et al., “Yellow single-photon emission from nitrogen impurity centers in AlAs”, SPIE 2014, 2014 年 8 月 17 日, San Diego (米国).

佐久間芳樹ほか, 「自己形成による量子ドットの作製技術・光学特性とその応用」, 量子ドットの作製技術・構造制御と応用セミナー, 2014 年 7 月 24 日, 技術情報協会(東京都).

池沢道男ほか, 「単一発光中心の共鳴励起による単一光子発生」, 第 61 回応用物理学学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 18 日, 青山学院大学(相模原市).

佐久間芳樹ほか, 「NIMS における量子ナノ構造の進展 - 液滴量子ドットと等電子トラップを中心に - 」, 第 9 回量子ナノ材料セミナー, 2013 年 11 月 6 日, 阿南高専(阿南市).

Y. Sakuma et al., “Formation of isoelectronic localized states with well-defined emission energy in δ -doped GaAs:N”, EWMOVPE, 2013 年 6 月 5 日, Aachen (ドイツ).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐久間 芳樹 (SAKUMA YOSHIKI)
国立研究開発法人 物質・材料研究機
構・先端フォトニクス材料ユニット・グル
ープリーダー
研究者番号： 60354346

(2) 研究分担者

池沢 道男 (IKEZAWA MICHIO)
筑波大学・数理物質科学研究科・准教
授
研究者番号： 30312797

(3) 連携研究者

なし