

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：14501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630126

研究課題名(和文)窒素デルタドーピングGaAsからの波長均一オンデマンドもつれ光子対放出の実現

研究課題名(英文)On-demand entangled photon emission from nitrogen-delta doped GaAs

研究代表者

喜多 隆(Kita, Takashi)

神戸大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10221186

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：大きな遷移双極子モーメントを持つ物質中の局所電子状態は光子と固体との量子インターフェースを構築する上で不可欠である。半導体中不純物に束縛された励起子は究極の量子ドットであり、発光波長は不純物固有なので均一である。本研究ではわれわれが開発したGaAsへの窒素デルタドーピング技術を利用して2次元に配列した窒素束縛励起子を作製し、歪ポテンシャル制御を通じて均一発光波長で0.85 μm 光通信バンドで動作するオンデマンド量子もつれ光子対生成を実現した。また、マイクロキャビティと融合させてもつれ光子輻射性能を連続的に制御する技術を開発した。

研究成果の概要(英文)：Localized electronic states with a substantial dipole moment is essential to build a quantum interface between photon and crystal. In particular, excitons bound with impurities in a semiconductor is equivalent to an ultimate quantum dot showing extremely uniform photoemission. In this work, we produce two-dimensionally ordered nitrogen centers utilizing a nitrogen delta-doping technique we developed. That enables to produce on-demand entangled photon emission at 0.85 micro-m optical communication band. Furthermore, with combining a micro-cavity structure, we develop a technology controlling photon radiation performance.

研究分野：半導体電子工学

キーワード：薄膜・量子構造 不純物

1. 研究開始当初の背景

単一光子や量子もつれ光子対は量子通信のエンジンともいわれるほど重要な資源である。多くの場合、自己形成量子ドットなどの局所空間に励起子を閉じ込めることによって2準位系を作り、光子放出の制御が行われている。しかしこの従来の自己形成量子ドットではサイズや形状の制御が難しく、不均一に広がりを持って分布している。このため量子ドットの個々の電子状態は均一ではなく、複数ドットが関与する多ビットのスケラブルなデバイスに発展させることが難しい。

このような背景のもと、われわれは不純物の固有の電子状態に着目するに至った。半導体中の不純物に束縛された励起子のエネルギー状態は不純物固有であり、振動子強度は励起子の数に比例する。また、励起子-キャビティ結合速度が振動子強度の平方根に比例することから、電子状態が揃った励起子数によってこれまで不可能であった放射性能の制御も可能になる。

2. 研究の目的

大きな遷移双極子モーメントを持つ物質中の局所電子状態は光子と固体との量子インターフェースを構築する上で不可欠であり、これを利用した究極的な光子操作は、量子通信にかかわる未来型デバイスの基礎原理には欠かせない。従来から研究されている自己形成量子ドットとは異なり、半導体中不純物に束縛された励起子は究極の量子ドットであり、発光波長は不純物固有なので均一である。

本研究では、配列した不純物を用いた新しいコンセプトの量子ドットとしてふるまう配列励起子ナノ構造の作製と励起子物性の解明を目的とした。さらに、Q値を制御したキャビティ構造を作製して、窒素ペアの高均一な電子状態とキャビティフォトンの結合

に関わる基礎科学を明らかにすることを目的とした。具体的には、励起子濃度に依存した励起子-キャビティ結合速度の制御による放射性能の制御を目指した。

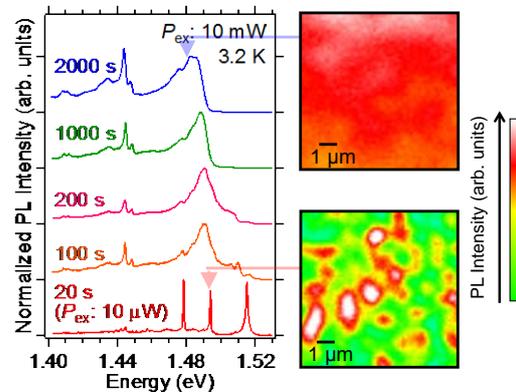


図 1 窒化時間の異なる窒素デルタドーピング GaAs の発光スペクトルと発光強度の空間分布。

3. 研究の方法

発光波長が均一な不純物中心を実現するために、エピタキシャル成長を駆使して GaAs 中に電気陰性度の大きな軽元素である窒素を2次元的に配列させた。窒素の規則的な配列構造を実現するために、われわれが独自に開発した GaAs(001)表面再構成長距離秩序構造を利用したデルタドーピングを実施した。

試料作製には分子線エピタキシー結晶成長技術を駆使して GaAs(001)ウエファ表面に(2×4)再構成構造を作り、その上に原子レベルで制御してプラズマセルで生成した原子状窒素を吸着させた。本研究では、窒化時間を変化させることによって、配列励起子ナノ構造の制御を実現した。窒化後には120秒の成長中断を設けた。励起子物性の解明には、励起光源に発振波長484 nmの半導体レーザを用いてフォトルミネッセンス(PL)測定を実施した。また、窒素ペアの高均一な電子状態とキャビティフォトンの結合に関わる基礎科学の解明に向けて、GaAs/AlAs分布 Bragg反射器(DBR)構造中に、配列励起子ナノ構造を埋め込んだ1次元マイクロキャビティを

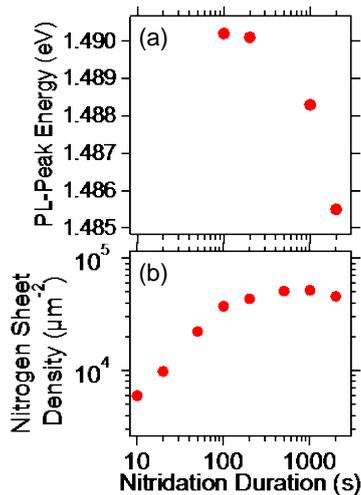


図 2 (a) 1.48–1.49 eV 帯の発光ピークエネルギーと(b) 窒素面密度の窒化時間依存性。

作製した。

4. 研究成果

(1) 窒化時間による配列励起子ナノ構造の制御

図 1 左図に、3.2 K における窒素をデルタドープした GaAs からの PL スペクトルの窒化時間依存性の結果を示す。窒化時間 20 秒の試料は 1.479 eV と 1.494 eV に窒素ペアに束縛された励起子からの狭線幅発光を示した。一方、窒化時間 100 秒以上の試料は 1.48–1.49 eV 帯にブロードな発光を示した。このブロードな発光スペクトルのピークエネルギーが窒化時間の増加に伴って低エネルギーシフトした結果は、1.494 eV 帯の発光線の起源である第 4 近接窒素ペア間の相互作用の増大を示唆している。図 1 右図は、窒化時間 100 秒 (下図) と 2000 秒 (上図) の試料における、1.49 eV 帯の発光強度の空間分布である。窒化時間 20 秒の試料では空間的に局在した電子状態からの発光を観測しているのに対して、窒化時間 2000 秒の試料では非局在化した電子状態からの発光を観測していることが明らかになった。

図 2 に、1.48–1.49 eV 帯の発光ピークエネルギー (図 2(a)) と窒素面密度 (図 2(b)) の

窒化時間依存性を示す。発光ピークエネルギーは窒化時間の増加に伴って単調に低エネルギーシフトしているのに対して、2 次イオン質量分析から得られた窒素面密度は窒化時間 100 秒以上において飽和傾向を示すことが明らかになった。したがって、窒化時間の増加に伴う PL ピークエネルギーの低エネルギーシフトは、窒素面密度の増加ではなく、窒化時間に依存した窒素原子の再配列によって引き起こされることが明らかになった。以上の結果は、長時間窒化領域で局在窒素準位がお互いに結合して 2 次元化することを示している。

さらに、Faraday 配置における磁気 PL 測定によって、窒化時間 2000 秒の試料において $20,000 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ を超える高移動度特性を有する 2 次元 Landau シフトの観測に成功した。この結果は、配列励起子ナノ構造の高移動度トランジスタにおける 2 次元極薄チャンネルへの応用の可能性を示唆している。

(2) 1 次元キャビティの設計と作製

本研究では、窒素を添加した光共振器による光子-励起子相互作用制御を実現するために、光子-励起子相互作用状態を強結合領域にする条件を示した。強結合領域を維持するためには、光共振器の Q 値が高いことや、光子と励起子の結合定数が大きいことが必要であるが、具体的にこれらがどの程度の値になればよいのかを示した。まず、計算によって光共振器の Q 値の DBR ペア層数依存性を明らかにした。共振器構造とその共鳴特性は図 3 のとおりである。

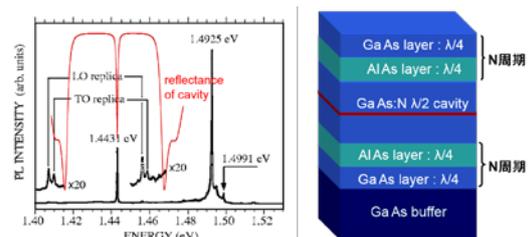


図 3 共振器構造と共鳴特性。

光子-励起子相互作用状態が強結合領域であることを示す真空ラビ分裂幅の、光子と励起子の結合定数との関係を示した。GaAsに添加した窒素原子に束縛された励起子の振動子強度を概算し、その値から結合定数を算出し、光共振器に添加する窒素原子量の条件を検討した。光子-励起子の相互作用状態が強結合領域であることが確認できる真空ラビ分裂を起こすには、光共振器のQ値が少なくとも数1000は必要であり、これを実現するためにはDBRペア層数をtop、bottomともに10数層積層しなければならない。

GaAs/AlAs DBR中に、窒素をデルタドープしたGaAs λ キャビティを作製した。ここで、窒化時間は20秒とし、共振波長は第1近接窒素ペアに束縛された励起子からの発光波長である859 nmとした。また、試料を回転させずに成長を行うことで共振波長に成長面内依存性を持たせた。下部DBRペア数16、上部DBRペア数14の一次元光キャビティにおいて反射スペクトルから見積もったQ値は710であった。

図4に、3.5 Kにおける、窒素をデルタドープしたGaAs λ キャビティからのPLスペクトルの測定位置依存性を示す。励起光源にはTi:sapphireパルスレーザ(発振波長:814 nm、繰り返し周波数:80 MHz、パルス幅:140 fs)を用い、励起光強度120 mWで測定を行った。測定位置の共振波長に応じた発光が得られた結果は、励起子活性層からの発光を選択的に取り出せていることを示している。一方、1次元キャビティにおいて約1000程度のQ値を得るためには約2 μ mの上部GaAs/AlAs DBR層が必要となり、効率的な光励起が困難となり微弱な発光信号しか得られなかった。したがって、励起子濃度に依存した輻射性能の制御の実証に不可欠なPurcell因子の測定には、2次元キャビティの利用が不可欠となる。

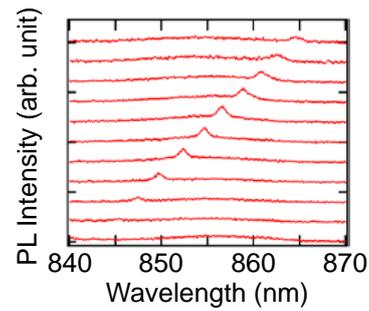


図4 1次元キャビティにおける励起子活性層からの発光の選択的な取り出し。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計7件)

- ① O. Kojima, K. Kojima, T. Kita, and K. Akahane, Rapid Dephasing Related to Intersubband Transitions Induced by Exciton Quantum Beats Observed by a Pump-Probe Technique in a GaAs/AlAs Multiple Quantum Well, *Physical Review B* 91, 125307-1~4 (2015). 査読有.
DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.91.125307>
- ② Y. Harada, M. Yamamoto, T. Baba, and T. Kita, Epitaxial two-dimensional nitrogen atomic sheet in GaAs, *Applied Physics Letters* Vol. 104, 041907-1-4 (2014). 査読有.
DOI: 10.1063/1.4863442
- ③ O. Kojima, S. Okumura, T. Kita, and K. Akahane, Effect of Exciton Oscillator Strength on Upconversion Photoluminescence in GaAs/AlAs Multiple Quantum Wells, *Applied Physics Letters* Vol. 105, 181901-1~3 (2014). 査読有
DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4901080>
- ④ T. Kita, M. Suwa, T. Kaizu, and Y. Harada, Polarization-Insensitive Optical Gain Characteristics of Highly Stacked InAs/GaAs Quantum Dots, *J. Appl. Phys.* Vol. 115, No. 23 233512-1~5 (2014) 査読有.

DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4884228>

- ⑤ T. Kaizu, and T. Kita, Photoluminescence Properties of InAs Quantum Dots on Nitrogen δ -Doped GaAs, Proceedings of Fourteenth International Symposium on Advanced Fluid Information, p148-149, 2014. 査読無
(他2件)
[学会発表] (計 17 件)
- ① 原田幸弘、小川泰弘、馬場健、海津利行、喜多隆、GaAs 中のエピタキシャル二次元窒素膜におけるアニール効果、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015.3.13、東海大学(神奈川県)。
- ② 馬場健、原田幸弘、海津利行、喜多隆、GaAs 中のエピタキシャル 2 次元窒素シート非局在電子状態の発光ダイナミクス、第 24 回光物性研究会、2014.12.12、神戸大学(兵庫県)
- ③ T. Baba, Y. Harada, T. Kaizu, and T. Kita, Photoluminescence decay dynamics in epitaxial two-dimensional nitrogen atomic sheet in GaAs, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014.11.13, 神戸大学(兵庫県)
- ④ Y. Harada, T. Baba, T. Kaizu, and T. Kita, Two-dimensional electronic states of epitaxial nitrogen atomic sheet in GaAs, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014.11.13, 神戸大学(兵庫県)
- ⑤ 馬場健、原田幸弘、海津利行、喜多隆、GaAs 中のエピタキシャル二次元窒素膜における発光ダイナミクス、第 75 回応用物理学会学術講演会、2014.9.18、北海道大学(北海道)
- ⑥ 原田幸弘、馬場健、海津利行、喜多隆、GaAs 中のエピタキシャル二次元窒素膜の電子状態(II)、第 75 回応用物理学会学術講演会、2014.9.18、北海道大学(北海道)

- ⑦ Y. Harada, T. Baba, and T. Kita, Two-dimensional electronic states of epitaxial nitrogen atomic sheet in GaAs grown by nitrogen delta-doping technique, 32nd International Conference on Physics of Semiconductors, 2014.8.11, Austin (USA)
- ⑧ T. Baba, Y. Harada, T. Kaizu, and T. Kita, Enhancement of interaction among nitrogen pair centers in epitaxial two-dimensional nitrogen atomic sheet in GaAs, 33rd Electronic Materials Symposium、2014.7.11、ラフォーレ修善寺(静岡県)
- ⑨ 原田幸弘、馬場健、喜多隆、GaAs 中のエピタキシャル二次元窒素膜の電子状態、第 61 回応用物理学会春季学術講演会、2014.3.17、青山学院大学(東京都)
- ⑩ 馬場健、山本益輝、原田幸弘、喜多隆、GaAs 中におけるエピタキシャル 2 次元窒素膜の磁気発光特性、第 23 回光物性研究会、2013.12.7、大阪市立大学(大阪府)
- ⑪ Y. Harada, M. Yamamoto, T. Baba, and T. Kita, Temperature-dependent electron delocalization in highly nitrogen δ -doped GaAs, The 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, 2013.9.18, 同志社大学(京都府)
(他 6 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-photonics/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

喜多 隆(KITA, Takashi)

神戸大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号:10221186

(2)研究分担者

原田 幸弘(HARADA, Yukihiro)

神戸大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号:10554355