

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：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630131

研究課題名(和文) 半導体に精密添加された希土類イオンに起因する量子情報機能の開拓

研究課題名(英文) Development of quantum informative function using rare-earth ions doped well-controllably in semiconductors

研究代表者

藤原 康文 (FUJIWARA, Yasufumi)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10181421

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、Eu添加GaNにおいて、我々により世界に先駆けて見出されたEuイオン間で生じる双方向のエネルギー輸送現象の量子情報デバイスへの応用可能性を明らかにすることを目的とした。特定のEu発光中心を選択的に励起するCombined excitation-emission spectroscopyを用いてEu発光特性を調べたところ、双方向エネルギー輸送を示す2種類のEu発光中心におけるエネルギー輸送時間がサファイア基板上で100マイクロ秒程度であることを明らかにした。また、基板を従来のサファイアからGaN、Siに変えることにより、エネルギー輸送時間が次第に短くなることを定量的に明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Eu-doped GaN is a solid state material with promising features for quantum manipulation. In this study, we investigated the population dynamics of Eu in ions in this system by resonant excitation. From differences in the emission related to transitions between the 5D0 and 7F2 manifold in the Eu ions, we could distinguish different luminescence sites and observe that a resonant energy transfer takes place between two of these sites which are in proximity of each other. The time constants related to this energy transfer were on the order of 100 microsecond. By using different substrates, the energy transfer efficiency could be strongly altered, and it was demonstrated that the coupling between ions has an out-of-plane character. Based on these results, a microscopic model of this combined center was presented.

研究分野：電子材料学

キーワード：希土類添加半導体 量子情報機能 エピタキシャル

1. 研究開始当初の背景

(1) 現代のエレクトロニクスは、電子の流れを制御するトランジスタの発達によってもたらされている。素子の寸法がナノメートル領域になると、素子に含まれる電子の数が著しく少なくなり、やがて個々の電子の物性が顕著に表れるようになる。その中で、半導体量子ドットに着目し、その量子力学的な物性を利用して、新しい情報処理技術(量子コンピュータ)に応用する研究が世界的に進められている。

(2) 我々は過去数年間に渡り、『原子レベルでの結晶成長・不純物添加技術』と『マイクロ構造の直接的評価技術』を連携して、III-V族半導体中で希土類元素を原子のレベルで操ることにより、新しい物性・機能を効果的に発現させるとともに、それらを有効に活用した新規デバイスを創出することを目指している。この一貫した研究の過程で、究極の量子ドットである希土類イオンを添加した希土類添加半導体において、希土類イオン間で生じる双方向のエネルギー輸送現象を世界に先駆けて見出すことに成功した。

(3) 本研究は、希土類元素の発光機能に焦点を定め、その結果に立脚し、その究極性能を引き出すための指導原理を構築するとともに、これを実証することを最終目標としている。本研究では、人類が手にすることができる最高品質の半導体を添加母体として、希土類元素を原子レベルで操る、当研究室が有する、世界に比類のない独自の添加技術を縦横無尽に活用する。原子レベルで制御して半導体へソフトに添加された希土類元素を科学することにより、希土類イオンの量子情報機能に関する知見を最大限に引き出すことが可能となる等、波及効果が大きい。

(4) これまで希土類元素の発光機能は良く調べられており、蛍光灯、プラズマ・ディスプレイ、ブラウン管等の蛍光体として既に実用化されている。これらの応用では、希土類元素を紫外線照射や電子線照射により励起することが一般的である。我々は既に、「半導体に添加された希土類元素を、電池を繋いで電気を流すことにより光らせる」ことに成功している。これは、従来の希土類蛍光体研究者には想像すら出来なかった革新的・独創的な技術のブレイクスルーであり、発光を介した量子情報機能を、電池を繋いで実現しようとする新しい応用展開が期待される。

2. 研究の目的

(1) 本研究では、究極の量子ドットである希土類イオンに着目し、希土類添加半導体を新しい量子情報機能材料として位置づけ、精密添加された希土類イオンに起因する量子情報機能を明らかにする。希土類添加半導体の成長条件や共添加不純物の最適化を通じて、希土類添加半導体を用いた量子情報デバイ

スの実現可能性を明らかにする。

- (2) 具体的には、Eu 添加 GaN (GaN:Eu) を取り上げ、
- ① Eu 添加条件の最適化、
 - ② Eu イオン間で生じる双方向エネルギー輸送現象の理解、
 - ③ 双方向エネルギー輸送現象のデザイン、
 - ④ 量子情報デバイスへの応用可能性の検証に取り組む。

3. 研究の方法

(1) GaN:Eu は現有の有機金属気相エピタキシャル(OMVPE)成長装置により作製した。試料中の Eu 濃度は有機 Eu 原料シリンダーを通過する水素供給量により制御した。

(2) Eu 発光特性は、励起波長を連続的に変えながら共鳴的に Eu イオンを励起する combined excitation-emission spectroscopy (CEES)法を用いて、特定の Eu 発光中心を選択的に励起することにより調べた。

4. 研究成果

(1) Eu 添加条件の最適化：

双方向エネルギー輸送を示す 2 種類の Eu 発光中心 (OMVPE α と OMVPE β) をマジョリティーとして形成するために、成長条件(成長圧力、成長温度、V/III比)の最適化を行った。CEES 法により評価し、OMVPE α と OMVPE β の明らかな存在を確認した(図 1)。

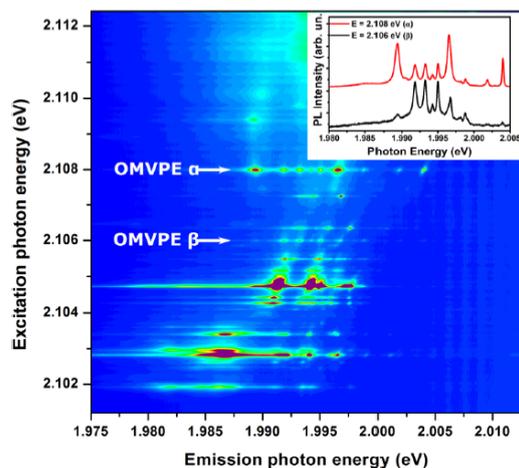


図1 CEES マッピング結果

(2) Eu イオン間で生じる双方向エネルギー輸送現象の理解：

OMVPE α を選択的に励起し、発光スペクトルを観測したところ、励起レーザーパワーの増大にしたがって、OMVPE β に起因する発光が出現することを明らかにした(図 2)。また、時間分解特性を評価し、エネルギー輸送時間がサファイア基板上で 100 マイクロ秒程度であることを明らかにした。

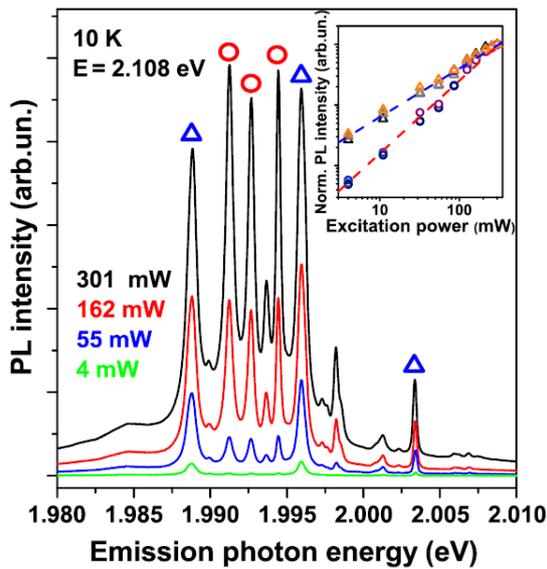


図2 OMVPE α を選択的に励起することにより得られる PL スペクトルの励起パワー依存性。励起パワーの増加に伴い、OMVPE β に起因する発光線 (○) の強度が増大する。

(3) 双方向エネルギー輸送現象のデザイン:

Eu イオン間で生じる双方向エネルギー輸送現象の理解を踏まえて、より効果的なエネルギー輸送現象が生じるように Eu 発光中心の設計を行った。基板を従来のサファイアから GaN、Si に変えるにしたがい、双方向エネルギー輸送を示す 2 種類の Eu 発光中心 (OMVPE α と OMVPE β) 間のエネルギー輸送時間が短くなることを定量的に明らかにした (図3, 4)。この結果は対を形成する 2 種類の Eu 原子は異なる c 面上に位置し、互いにカップルしていることを示唆している。

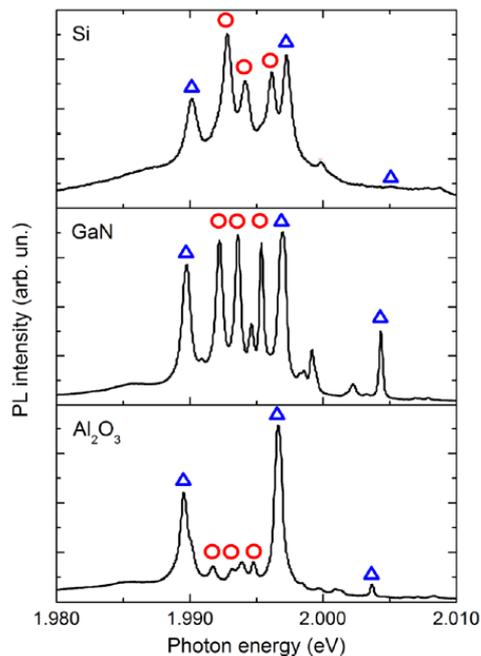


図3 Si、GaN、サファイア基板上での PL スペクトル。△と○はそれぞれ、OMVPE α と OMVPE β に起因する発光線を表す。

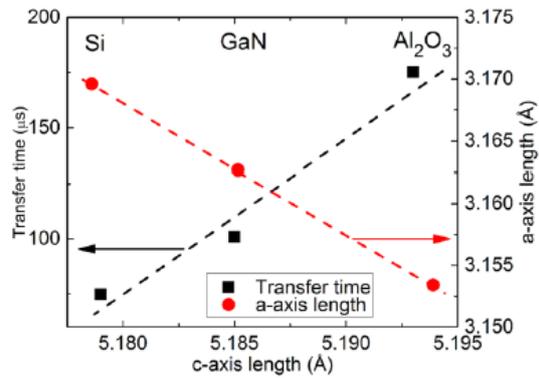


図4 Si、GaN、サファイア基板上でのエネルギー輸送時間。各試料の a 軸長と c 軸長も併せて示す。

(4) 量子情報デバイスへの応用可能性の検証:

これら量子状態での可干渉性を評価するために光子相関測定を行った。現在、得られた測定データについて、定量的な解析を推進している。

Eu 添加 GaN に対する国際共同研究が軌道に乗り、(1) 原子レベルで制御して「ソフト」に Eu を GaN へ添加する技術、(2) Eu 添加 GaN 中に形成される Eu 局所構造を、Eu 発光特性と関連づけて明確に評価する技術、(3) 第一原理計算により GaN 中で形成される Eu 局所構造とその安定性を評価する技術が三位一体となり機能している。その結果として、「Eu イオン間で生じる新奇な双方向エネルギー輸送現象」について、関与する Eu 原子対の微視的配置の解明に加えて、そのカップリング度合いを、歪みというマクロな物理量による人為的制御の可能性を世界に先駆けて明らかにした。

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 1 件)

- ① D. Timmerman, R. Wakamatsu, K. Tanaka, D. Lee, A. Koizumi, and Y. Fujiwara: “Resonant energy transfer between Eu luminescent sites and their local geometry in GaN,” *Applied Physics Letters* **107** (2015) pp. 151107/1-4.

[学会発表] (計 8 件)

- ① 【招待講演】 藤原康文: “希土類元素を極める ～希土類添加半導体を題材として～”、第7回次世代先端光科学研究会、京都大学化学研究所、京都府宇治市、7月28-29日 (2014).
- ② 【招待講演】 藤原康文, 小泉淳, 大淵博宣, 本間徹生: “希土類元素を極める ～Eu添加GaNから何ができてきたか～”、第17回XAFS討論会、2I-01、徳島大学総合科学部、徳島市、9月1-3日 (2014).

- ③ 小泉淳、若松龍太、ドルフ ティーマーマン、田中一輝、児島貴徳、藤原康文：“各種基板上に成長したEu添加GaNにおけるEu発光中心間の相互エネルギー輸送に対する歪みの効果”、第75回応用物理学会秋季学術講演会、**18a-A24-6**、北海道大学札幌キャンパス、札幌市、9月17-20日 (2014).
- ④ 【基調講演】 藤原康文、児島孝徳、Dolf Timmerman、小泉淳：“希土類元素を極める —希土類添加半導体から何がみえてくるのか—”、日本金属学会2014年秋期講演大会公募シンポジウム「S3 エレクトロニクス薄膜材料の科学と技術 II」、**S3-8**、名古屋大学東山キャンパス、名古屋市千種区、9月24-26日 (2014).
- ⑤ 【招待講演】 D. Timmerman and Y. Fujiwara: “Energy transfer processes in Eu-doped GaN,” The second International Conference on Advanced Materials and Nanotechnology, **IN19**, Hanoi, Vietnam, October 29-November 1 (2014).
- ⑥ 【特別講演】 藤原康文、Dolf Timmerman、児島貴徳、小泉淳：“希土類元素の精密ドーピングによる半導体光機能性の制御”、第25回光物性研究会、神戸大学百年記念会館、神戸市、12月12-13日 (2014).
- ⑦ Y. Fujiwara, R. Wakamatsu, D. Timmerman, and A. Koizumi: “Energy migration between Eu luminescent sites in Eu-doped GaN,” 7th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors (APWS 2015), **TUA2-4**, Seoul, Korea, May 17-20 (2015).
- ⑧ 【招待講演】 Y. Fujiwara, R. Wakamatsu, A. Koizumi, and V. Dierolf: “Present understanding of Eu luminescent centers in Eu-doped GaN,” Collaborative Conference on 3D and Materials Research 2015 (CC3DMR2015), BEXCO, Busan, Korea, June 15-19 (2015).

[その他]

ホームページ等

<http://www.mat.eng.osaka-u.ac.jp/mse6/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤原 康文 (FUJIWARA YASUFUMI)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：10181421