

# 研 究 報 告 書

## 「単一不純物を利用した光機能性半導体量子素子の創出」

研究期間：平成20年10月～平成24年3月

研究者：池沢 道男

### 1. 研究のねらい

半導体への不純物添加は半導体エレクトロニクスの極めて重要な技術である。これまでの多くの応用では、不純物はキャリアを供給することによって化学ポテンシャルを制御するという間接的な働きをしているに過ぎなかった。しかし、不純物添加をより精密に制御して、単一の不純物が利用できるようになると、その量子性を表に出した新しい応用が拓けると期待される。光機能性についていえば、単一の不純物発光中心からの単一光子発生やもつれ合い光子対発生、光の偏光情報を記憶・保持するスピンメモリなどの応用が考えられる。これらは量子情報通信や量子計算の基礎になる素子で、集積化や取り扱いの容易さからも固体素子を用いて実現することが望まれている。不純物による発光中心は、1～3個程度の不純物原子からなるために構造が単純であり、周りの局所的な環境の影響を受ける可能性はあるものの、同じ種類の発光中心は本質的に同じ性質を持つことが期待される。この特性により、例えば、特に発光エネルギーの揃った単一光子発生や、離れた2つの発光中心からの2光子干渉のような、現在広く研究されている量子ドットがサイズ分布のために苦手とするような量子情報分野への応用が考えられる。しかし、これまで半導体中の不純物をこのような観点で研究した例は少なく、単一発光中心の研究も少なかった。そこで本研究では、III-V 族化合物半導体中の窒素等電子発光中心を、単一発光中心の分光法によって詳しく研究し、量子光学的な応用の可能性を探ることを目指した。

### 2. 研究成果

#### (1) 発光中心の原子配置の解明

リン化ガリウム (GaP) 結晶に希薄に窒素をドープした GaP:N の発光 (PL) スペクトルには、図1上段に示すように何種類かの NN ペア発光中心による鋭いピークがアンサンブル測定においても見られる。これは、リン原子を置換した窒素原子が2つ近接したときに形成される発光中心で、この結果から NN ペアのエネルギーがよく揃っている事がわかる。この NN ペアをモデルとして、発光中心の原子配置を特定するための研究手法を検討した。

試料は有機金属気相成長法によって作製し、特に、窒素デルタドープとその原子層レベルでの厚さ制御、および濃度制御、異なる結晶面((001)面、(111)面など)へのドーピングを単一発光中心の偏光 PL と組み合わせる方法が有効であることが分かった。これは、NN ペアは N-N の向きを反映した

異方的な結晶場によって、孤立した N には見られない偏光分裂を示すことによる(図1中段)。これらの新しい手法によって、NN ペアの並んだ方向だけでなく、その間隔も決定することが出来た(図1下段)。それらのほとんどはこれまで考えられてきた原子配置とは異なっており、単一不純物の分光によって正しい原子配置が初めて明らかになったものである。正しい原子

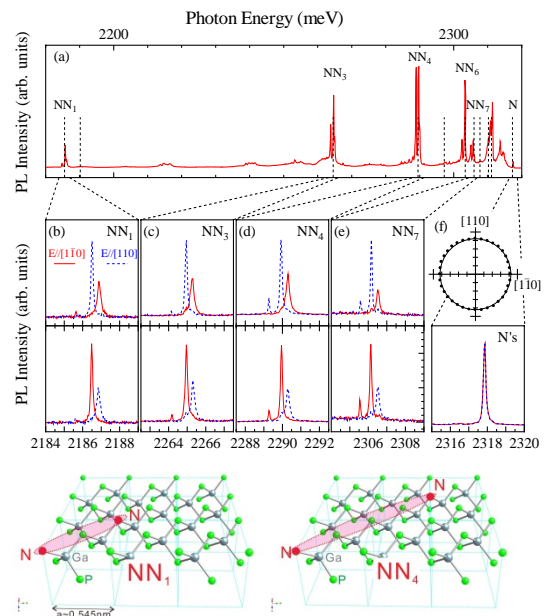


図1 GaP:N 中の NN ペアと原子配置の例

配置を知ることは、その発光中心の光学特性を理解するためだけでなく、特定の発光中心を優先的に形成したり、新しい発光中心を創出したりするためにも重要である。

### (2) NN ペア発光中心の励起子微細分裂

NN ペアに束縛された励起子は、電子正孔交換相互作用と異方的な結晶場の影響により、原子配置に依存して最大8つの準位に微細分裂する。このような微細分裂の理解と制御は基礎・応用の両方の観点から重要である。例えば励起子分子から励起子状態を介したカスケード過程によるもつれ合い光子対生成には、中間状態となる励起子の微細分裂が発光線幅に比べて無視出来る程度に小さいことが条件である。したがって微細分裂のない発光中心の作製、または微細分裂を補償する技術の開発が必要になる。

(1)の研究成果によって、個々の NN ペアの向きを光学測定によってその場で判別することができるようになったため、図2のように NN ペアの軸に対する磁場の方向を指定して磁場を印加することが出来る。従来のアンサンブル的な測定では色々な向きを持った NN ペアを区別せずに観測することになるので、それらの平均値しか得られないが、単一 NN ペアに対して様々な方向から磁場を印加し、理論モデルと比較することが初めて可能になった。これによって、微細分裂を詳しく理解することが出来、NN ペアに束縛された励起子波動関数の異方性についても議論できるようになった。また、NN ペアの中には、このような微細分裂の無い発光を示すものも実際に見つかっており、それは高い対称性を持ち、N-N 軸が観測方向と一致している発光中心である事が分かった。

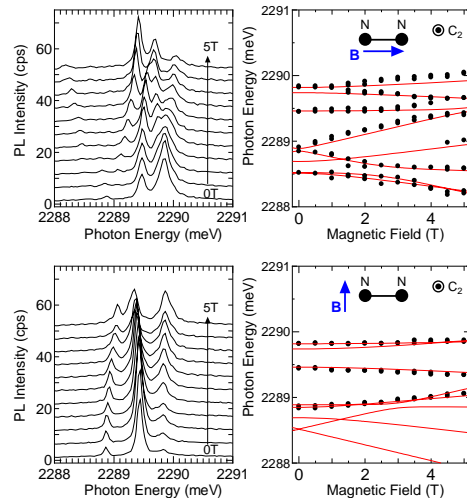


図2 単一NN<sub>4</sub>発光中心の磁場に対する異方性。右はピークのエネルギーと計算値の比較。

### (3) より高いレートでの単一光子発生

GaP中のNNペアは均一性が高く、エネルギーの揃った光子を得るためには適した発光中心である。一方、GaPが間接遷移型半導体であることを反映して、束縛された励起子の発光寿命は 50ns以上と長い。応用上重要な、高いレートでトリガされた単一光子を得るためには、短い発光寿命を持つ発光中心が望まれる。そこで、直接遷移型半導体ヒ化ガリウム (GaAs) に形成される発光中心を用いて、短い発光寿命を持つ単一光子源の検討を行った。様々な成長条件を変えた窒素デルタドープ試料を作製して、光学特性を評価したところ、 $3 \times 10^{12}/\text{cm}^2$ ほどの窒素面密度を持つ試料で、これまでよりずっと明るい発光中心が見つかった。GaAs中の窒素による発光中心は、研究の歴史の長いGaP:Nに比べてよく分かっていないことが多く、バンドギャップ内に見られるシャープな発光が何によるものかについてはまだ統一した見解が得られていない。図3に示すような比較的 low 密度の発光中心である事から、孤立した窒素原子ではなく、窒素原子2つ以上、または、窒素原子と意図していない不純物のペアによるものと考えられる。この発光中心は 5Kにおいて 650ps程度の短い発光減衰時間を示し(図 4(a))、明るい発光中心ほど短い寿命を示した(図 4(b))ことから、これが速い非輻射過程によ

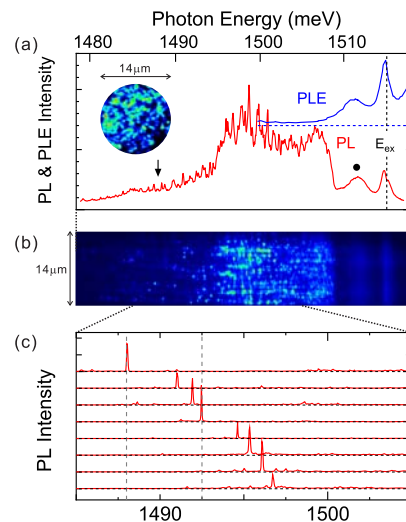


図3 窒素デルタドープ GaAs の発光スペクトルと、単一発光中心のスペクトル。

るものではなく、輻射再結合寿命であることがわかった。これは、これまで報告されてきたNNペアの寿命( $\sim 10\text{ns}$ )に比べて一桁以上短く、GaP中のNNペアと比べると数十倍の発光レートに対応する。明るさの点でも、他のNNペアと呼ばれる発光中心に対して30倍程度明るかった。そのような短い発光寿命を持ち、且つ明るい発光中心を用いて、図4(c)のような明瞭なアンチバンチングをGaAs中の不純物を用いて初めて観測することが出来た。

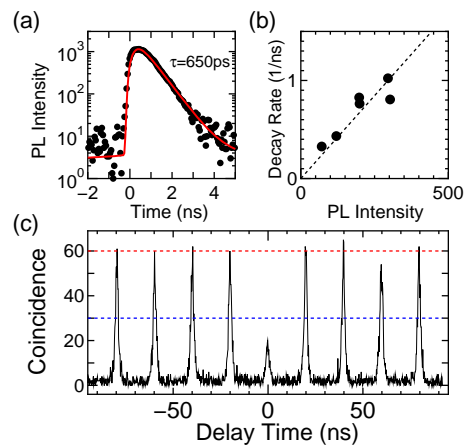


図4 (a)650psの短い発光寿命。(b)明るさと発光レートの正の相関。(c)アンチバンチング

### 3. 今後の展開

研究成果(1)および(2)で述べた、単一不純物の分光技術を用いることによって、明るさやエネルギーの均一性・高い対称性などの優れた特長をもつ新しい不純物発光中心の効率的な探索および、特定発光中心の選択的な成長法の実現に寄与できる事が期待される。本研究で用いた材料は、III-V族化合物半導体中の窒素等電子発光中心であり、電子を引きつけるタイプの中性の発光中心に限定されていた。そこで、例えば正孔を引きつけるタイプの不純物の他、ドナー不純物、アクセプタ不純物などによる発光中心についても、有用な特性を持つものがないか調べる必要がある。また、バルク結晶だけではなく、量子閉じ込めナノ構造の付与による特性向上、外部電場による不純物発光中心の電荷制御、高い対称性を持つ発光中心を利用したスピンメモリの研究なども重要なテーマである。

研究成果(3)に述べたように、高い結晶品質を持つGaAs中の窒素由来発光中心で、発光寿命が650psと短いことが分かった。この事は、もし束縛励起子のコヒーレンス時間が1ns強程度あれば、フーリエ変換限界の条件が満たされ、不純物発光中心からの2光子干渉が起こる可能性を示している。今後、この発光中心のエネルギーの均質性の向上をはかると共に、コヒーレンス時間をフーリエ変換限界に近づけるための研究を行うことによって、独立した固体中の量子光源からの完全な2光子干渉の実現に近づくものと期待される。

### 4. 自己評価

単一の発光中心の分光と、デルタドープ技術の組み合わせによって、発光中心の起源を光学的に特定する方法を見つけることが出来た点は、今後の他の材料系への展開にとっての基礎技術となるものと評価できる。また、単一発光中心に磁場を印加して、異方性を調べるための実験手法・解析手法の確立も、同様に未知の発光中心の探索にとって強力なツールとなるものと期待される。GaAs中の明るい窒素発光中心の発見とそれによる単一光子発生は、単に高いレートの単一光子発生というだけでなく、当初計画していた固体素子からの2光子干渉に向けた重要な意味があった。初めに用いていたGaP:Nでは長い発光寿命のために、コヒーレンス時間もそれだけ長いことが要求され、可干渉性を持った光子の発生は難しかったためである。GaAs:Nでは $T_2$ として1ns程度が達成されればよく、大幅に緩和されたことになる。我々のGaAs:N試料ではまだエネルギーを揃えるという課題が残されているが、今後の成長条件の最適化によってある程度揃えられると期待される。

## 5. 研究総括の見解

半導体への不純物添加の精密制御は半導体エレクトロニクスの極めて重要な技術であるが、これまでは不純物はキャリアを供給することによって化学ポテンシャルを制御するという間接的手法しか利用されていなかった。不純物添加を精密に制御して単一の不純物が利用できるになると、その量子性を表に出した単一光子発生、もつれ合い光子対発生、スピンメモリなどの新しい応用が拓けると期待される。池沢研究者は、III-V 族化合物半導体中の窒素等電子発光中心を、単一発光中心の分光法によって詳しく研究し、量子光学的な応用の可能性を探ることを目指して研究を進めた。具体的にはリン化ガリウム (GaP) 結晶に窒素デルタドープとその原子層レベルでの厚さ制御、および濃度制御、異なる結晶面 ((001) 面、(111) 面など) へのドーピングを行い、単一発光中心の偏光 PL を観測する手法を開拓し、発光中心である N-N ペアの原子配置を精密に決定することに成功し、N-N ペアに束縛された励起子の振る舞いについて詳細な知見を得たことは大きな成果である。また、GaP 系の成果を単一光子源として有用性が高い短い発光寿命を持つ GaAs 系へつなげる挑戦を展開している。

今後は、さきがけの成果を更に発展させ、より精密に単一不純物の位置と配列を制御した系を実現して単一発光中心の分光法を利用した物性研究を深化させると同時に、より実用性の高い単一光子源の創成の研究にも取り組むことを期待する。

## 6. 主要な研究成果リスト

### (1) 論文(原著論文)発表

1. <u>Michio Ikezawa</u> , Yoshiki Sakuma, Liao Zhang, Yosinori Sone, Tatsuya Mori, Takenobu Hamano, Masato Watanabe, Kazuaki Sakoda, and Yasuaki Masumoto, "Single-photon generation from a nitrogen impurity center in GaAs", APL (2012).
2. Yasuaki Masumoto, Seitaro Yoshida, <u>Michio Ikezawa</u> , Shinichi Tomimoto, Yoshiki Sakuma "The enhanced binding energy for biexcitons in InAs quantum dots", Appl. Phys. Lett. <b>98</b> , 061905 (2011).

### (2) その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

#### <学会発表>

[1] Michio Ikezawa, Masato Watanabe, Yoshiki Sakuma, Yasuaki Masumoto, "Reexamination of the atomic configurations of NN centers and observation of new infrared luminescence centers in GaP:N", International Conference on Physics of Semiconductors (Seoul, Korea 25/July/2010).

[2] Michio Ikezawa, Masato Watanabe, Yoshiki Sakuma, Yasuaki Masumoto, "Atomic configurations of NN centers and new infrared luminescence centers in GaP:N", Nanophotonics 2010 (Tsukuba, 1/June/2010).

[3] Michio Ikezawa, Masato Watanabe, Yoshiki Sakuma and Yasuaki Masumoto, "Luminescence Polarization and Atomic Configuration of NN Pair Single-Photon-Emitter", International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics 2009 (Tokyo, 18/November/2009).

[4] 池沢道男、佐久間芳樹、曾根良則、張遼、濱野毅信、舘林潤、舛本 泰章, "GaAs中の窒素等電子発光中心からの単一光子発生", 第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎大学、2010年9月14日).

[5] 池沢道男、渡邊真人、佐久間芳樹、舛本泰章, "単一発光中心の精密分光による GaP 中 NN 発光の起源解明とその利用", 日本物理学会 第 65 回年次大会(岡山大学、2010年3月20日).