



III-V 族半導体中のドーピング原子から エネルギーのそろった単一光子の発生に世界で初めて成功

—III-V 族半導体の等電子トラップからの単一光子発生を実証—

平成19年 9月 3日

独立行政法人物質・材料研究機構

国立大学法人筑波大学

概 要

1. 独立行政法人物質・材料研究機構（理事長：岸 輝雄）、半導体材料センター（センター長：知京豊裕）の佐久間芳樹主幹研究員と、国立大学法人筑波大学（学長：岩崎洋一）大学院数理物質科学研究科の池沢道男講師・舛本泰章教授のグループは共同で、III-V 族化合物半導体であるガリウムリン（GaP）結晶中に形成した等電子トラップ¹⁾と呼ばれる準位に束縛された電子・正孔対（以下、励起子²⁾）を使い、個々の等電子トラップからエネルギーの極めてそろった単一光子を発生させることに世界で初めて成功した。
2. 従来の情報処理や通信技術の限界を超える革新的な技術として、量子力学の基本原理を利用した「量子情報通信技術」が世界的に注目されている。主要技術のひとつとして半導体量子ドット³⁾を使った単一光子源が研究されてきたが、量子ドットの形成過程で各々のドットのサイズが均一にならず、単一光子の発光エネルギーがばらついてしまうという問題があった。これに対して、半導体にドーピングした不純物を単一光子発生に利用するアイデアが注目され始めている。これまで、IV 族結晶であるダイヤモンド中の不純物と空孔による複合欠陥や、II-VI 族の ZnSe 中の不純物を使った研究が報告されているが、III-V 族半導体では成功していなかった。単一光子源を作るには、pn 接合やヘテロ接合などの材料技術も必要であり、これらの要素技術が蓄積されている III-V 族半導体での実現が強く待ち望まれていた。
3. 今回、III-V 族半導体である GaP の結晶中に窒素（N）原子をドーピングしたときに形成される 2 つの近接した N 原子対による等電子トラップに着目し、個々のトラップを光学顕微鏡下で識別できる程度まで密度を希薄にする技術を開発して、ひとつの等電子トラップ準位からの励起子発光の性質を詳しく調べた。その結果、レーザー光によって生成された励起子が等電子トラップで捕獲されて発光する際、いずれのトラップでも同じ発光エネルギーを持つ単一光子（波長 541.5nm の緑色の光子）が発生していることを確認した。
4. 本研究成果は、発光エネルギーのそろった単一光子源の開発を進めるうえで、その基礎となる半導体材料技術を実証したという点で意義が大きい。今後、このような III-V 族半導体中の等電子トラップを用いた単一光子源が、量子情報通信技術の進展に大きく

寄与するものと期待される。

5. 本研究成果は、9月4日から開催の応用物理学会、9月21日から開催の日本物理学会、さらに応用物理学会論文誌 JJAP Express Letters (46 巻、36 号) にて発表予定である。

なお、本研究の一部は、(独) 情報通信研究機構 (NICT) の国際共同研究助成「光・スピンの変換による量子情報通信の研究」の一環として行われた。

研究の背景

現代の社会生活は、コンピュータやインターネットに代表される情報処理技術や通信技術に多大な恩恵を受けている。しかし一方で、情報ネットワーク網の複雑化に伴い、盗聴や改ざんなど情報に対する安全・安心が脅かされるリスクも増大しつつある。また、従来のノイマン型コンピュータ⁴⁾の処理速度の限界も指摘され始め、将来を危惧する声も高まっている。このような従来の情報処理や通信技術の限界を超える革新的技術として、最近「量子情報通信」と呼ばれる新たな技術が注目されている。この技術は、通信や情報処理の担い手として例えば光の粒である光子を用いるものであり、「不確定性原理」や「重ね合わせの原理」といった量子力学的性質を利用することに大きな特徴がある。量子情報通信技術によって、絶対安全な量子暗号や量子計算機による超並列処理が理論的に証明されており、その実現に向けてさまざまな研究開発が国際的に進められている。これらの研究では、一粒一粒の光子を必要とときに自由に発生させる「単一光子源」と呼ばれる発光素子が必要になる。単一光子を発生させるひとつの有効な方法は、原子のような離散的なエネルギー準位に電子と正孔を1個ずつ収容した励起子状態を作り、それを再結合させることである。その代表例として半導体量子ドットを使った単一光子源が研究されてきた。半導体量子ドットは人工原子とも呼ばれ、電子の占めるエネルギー準位が原子と同様に離散的になるためである。しかし、結晶成長により量子ドットを形成する過程で各々のドットのサイズが均一にならず、単一光子の発光エネルギーが量子ドットごとにばらついてしまうという問題があった。

これに対して、半導体にドーピングした不純物を単一光子発生に利用するアイデアが注目され始めている。エピタキシャル成長させた半導体結晶の完全性は高く、その格子点に置かれた不純物は空間的に局在した離散準位を作り、しかもそのエネルギーは原理的にそろっている。従って、個々の不純物に束縛された電子・正孔対（励起子）から単一光子を発生させることができれば、いずれの不純物の場所でも発生する光子のエネルギーは極めて均一になるので非常に有望である。これまでIV族結晶であるダイヤモンド中の不純物と空孔による複合欠陥（色中心とも呼ばれる）や、II-VI族のZnSe中の不純物を使った研究が報告されているが、III-V族半導体ではまだ成功例がなかった。特に、この原理に基づく単一光子発生を電流注入で動作する発光素子に応用するには、pn接合やヘテロ接合などの技術も必要であり、これらの要素技術が蓄積されているIII-V族半導体での実現が強く待ち望まれていた。

研究成果の内容

不純物に束縛された励起子を使って単一光子を発生させるためには、ドーピング原子として強い励起子発光を示すものを選択する必要がある。また、顕微鏡の対物レンズ下で個々の不純物準位による発光を捕らえて単一光子発生を確認し、さらにそれぞれ1つの励起子束縛準位を含んだ素子を作る場合、ドーピング濃度を充分希薄に制御することも必要になる。今回、これらの条件を満たすものとして、III-V族半導体であるガリウムリン（GaP）結晶に窒素（N）原子をドーピングした際に形成されるN原子対（NNペア）の作る等電子トラ

ップに着目し、1つのトラップ準位からの単一光子発生に世界で初めて成功した。単一光子の検証に用いたのは NN_4 と呼ばれる第 4 近接位置を占めるペアで、 N の原子間距離が約 0.771 nm のものである。後述するように、 NN ペアを使うことで、等電子トラップの面密度を孤立した N 原子の場合よりも 1/1,000~1/10,000 まで大幅に低減でき、対物レンズ下で個々のトラップを容易に識別できるようになった。

実験に用いた GaP サンプルは有機金属気相成長 (MOCVD) 法で作製した。GaP のバッファ層を形成後、成長中断した表面にデルタドーピング⁵⁾ と呼ばれる手法で約 10^3 個/ μm^2 の N 原子のドーピングを行い、その後 GaP のキャップ層を成長した。図 1 はサンプル上の異なる場所を顕微フォトルミネッセンス法で測定したときのスペクトルである。ピーク A は孤立した N による等電子トラップからの発光、 NN_i ($i=3\sim 9$) は NN ペアによる等電子トラップからの発光である。観察箇所を変えると NN ペアのピークが出たり消えたりしており、個々の等電子トラップを分離して観察できていることがわかる。また、それぞれの NN_i の発光はいつも同じエネルギー位置に出現しており、同じ種類の等電子トラップからの光子エネルギーは極めてそろっている。挿入図に示すように、1 個の NN_4 ペアの発光強度とサンプル励起用レーザー強度の依存性を調べたところ、低い励起領域では両者は比例関係にあり、等電子トラップは発光効率の高い優れた光学特性を持つことが明らかになった。図 2 は、干渉フィルタを通してサンプル面内の NN_4 発光の分布の様子を観察したものである。一つ一つの NN_4 ペアに束縛された励起子発光が空間分離され、非常に明瞭に観察できた。像から得られる NN_4 の面密度は約 0.23 個/ μm^2 であり、デルタドーピングによって低密度の NN ペアが制御性良く形成できていることもわかった。図 3 は図 2 の NN_4 発光の強度分布を 3 次元プロットしたもので、発光エネルギーの均一性に加えて発光強度もほぼ一様と結論できる。図 2 で観察された NN_4 の一つの発光点をピンホールで切り出し、その発光の性質をハンブリー・ブラウンとトゥイスの強度干渉計⁶⁾ と呼ばれる光学系で計測したところ、図 4 のような明確な光のアンチバンチング⁷⁾ 特性が観測された。この結果は、ひとつの NN_4 等電子トラップに束縛された励起子からの単一光子の発生 (波長 541.5nm の緑色の光子) を明確に示すものである。

波及効果と今後の展開

本研究成果は、発光エネルギーのそろった単一光子源の開発を進めるうえで、その基礎となる半導体材料技術を実証したという点で非常に意義が大きい。今後、このような III-V 族半導体中の等電子トラップを用いた単一光子源が、量子情報通信技術の進展に大きく寄与するものと期待される。

今後は、 NN_4 以外の等電子トラップの性質も調べるほか、等電子トラップに束縛された励起子の発光寿命や温度に対する安定性、位相緩和、スピンなどの基礎物性を明らかにしていく。また、マイクロキャビティ⁸⁾ との結合も考慮しながら、量子中継⁹⁾ や量子計算¹⁰⁾ で必須になる区別できない単一光子¹¹⁾ への展開可能性も探っていく。

謝辞

本研究の一部は、(独) 情報通信研究機構 (NICT) の国際共同研究助成「光・スピン変換による量子情報通信の研究」の一環として行われた。

発表者：

独立行政法人物質・材料研究機構
半導体材料センター
主幹研究員 佐久間芳樹 (さくま よしき)

国立大学法人筑波大学
大学院数理物質科学研究科 物質創成先端科学専攻
講師 池沢 道男 (いけざわ みちお)

大学院数理物質科学研究科 物質創成先端科学専攻
教授 舛本 泰章 (ますもと やすあき)

【用語解説】

1) 等電子トラップ

母体結晶の構成元素を周期率表の同じ族の異種原子で置換した時に形成される電子または正孔の束縛準位のこと。ガリウムリン (GaP) に添加した窒素 (N) 原子が有名であり、緑色の発光ダイオードに利用されている。GaP 結晶に V 族元素の N をドーピングすると、N 原子はリン (P) の格子位置を置換して等電子トラップとして働き、束縛励起子を作る。N の電気陰性度が P と比べて大きいため、電子が N 原子のごく近傍に束縛され、続いてクーロン力で正孔が引き付けられるためである。GaP の場合、N による等電子トラップはエネルギーバンドの伝導帯極小点の X 点付近に準位を作るが、電子が N 原子付近の狭い空間に閉じ込められるため、電子の波動関数が位置と運動量に関する不確定性原理によって Γ 点付近まで広がる。その結果、GaP が間接遷移型のバンド構造であるにも関わらず、等電子トラップに捕らえられた電子は価電子帯の正孔との間で高い効率で発光する。このような等電子トラップは、孤立した N 原子だけでなく比較的近接した 2 つの格子点を占める N 原子対間 (NN ペア) でも形成され、2 つの N 原子間距離に応じて深さの違うエネルギー準位が形成される。

2) 励起子

半導体にレーザー光などを照射して電子と正孔を生成すると、負の電荷を持つ電子と正の電荷を持つ正孔の間にクーロン力が働いて束縛状態が作られる。この束縛状態は電子と正孔が再結合などにより対消滅するまでの間は比較的安定であり、1 つの粒子のように振舞う。このような電子と正孔の束縛状態を励起子と呼ぶ。

3) 量子ドット

おもに半導体のエピタキシャル成長で作られた、大きさが数ナノメートル～数十ナノメートル寸法 (ナノは 10 億分の 1) の 3 次元的な微結晶のこと。このような微細な結晶中では、電子の波動的な性質が顕著になるため、エネルギー準位が原子のように離散化される。そのため人工原子とも呼ばれる。量子ドットを搭載したデバイスは、従来のバルク半導体や量子井戸半導体の限界を越えた性能を持つとして多くの研究が行われている。

4) ノイマン型コンピュータ

プログラムをデータとして記憶装置に格納し、これを順番に読み込んで実行するコンピュータ。現在のコンピュータのほとんどがノイマン型である。現在のコンピュータの演算素子や記憶素子は、シリコン (Si) を使った MOS 型電界効果トランジスタによる 2 値のデジタル回路で構成されている。

5) デルタドーピング

半導体結晶中の 1 原子層面だけに局在した不純物原子層を導入する技術のこと。通常、

分子線エピタキシー (MBE) や有機金属気相成長法 (MOCVD) のような原子層レベルの膜厚制御性を有する成長技術を使って、結晶成長を一時中断させた表面に不純物原子を供給することで実現する。シートドーピングとも呼ばれる。

6) ハンプリー・ブラウンとトゥイスの強度干渉計

1つの光源から発せられる光子が単一光子であるかを判定するために使われる光学系のこと。光を50%の確率で透過あるいは反射するビームスプリッターと2個の光検出器から構成され、2個の検出器間での強度相関、すなわち光子の電場の2次の相関(干渉)を測定する。

7) アンチバンチング

アンチバンチングとは、1つの光子が観測された後で、もう1つ光子が観測される確率が時間の経過とともに増加する現象のこと。すなわち、同一時刻に2個以上の光子が発生しにくいことを示す現象のことである。ハンプリー・ブラウンとトゥイスの強度干渉計で観測している対象が、単一光子を発生していることを証拠づける現象として用いられる。

8) マイクロキャビティ

微小共振器とも呼ばれる。光の波長と同程度かそれ以下の寸法で加工した光共振器のこと。微小な共振器内では輻射モードが量子化され、発光体の自然放出を著しく抑制したり、逆に著しく増強することが可能になる。つまり、マイクロキャビティを使えば、量子ドットや等電子トラップのような2準位系の再結合寿命を人工的に制御できる。

9) 量子中継

遠距離の量子通信を実現するためには、古典通信と同じように中継技術が不可欠であり、量子中継とはその技術を指す。方法としてテレポーテーションあるいは量子もつれ合いスワッピングを多段階に接続することにより実現する方法が提案されている。

10) 量子計算

従来の2値変数(ビット)に基礎を置く計算とは全く異なり、量子力学的な重ね合わせの原理に基づくキュービット(qubit)に基礎を置く計算のこと。量子計算の実現には、量子状態の制御という難しい問題が存在するが、量子計算が実現すれば計算速度が飛躍的に向上した量子コンピュータの構築につながるとされ、精力的な研究が行われている。

11) 区別できない単一光子

単一光子が光源から放出され始めてから放出し終わるまでの時間を光子のパルス幅という。次々と放出される単一光子のパルスにおいて、このパルス幅の間の光電界が全て同じ周波数(同じエネルギー)で、しかも位相の乱れが全くないコヒーレントな振動を

行なっている時、これらを区別できない単一光子と呼ぶ。区別できない単一光子はボース粒子の性質を持ち、例えば2つの区別できない単一光子は2光子干渉を示す。

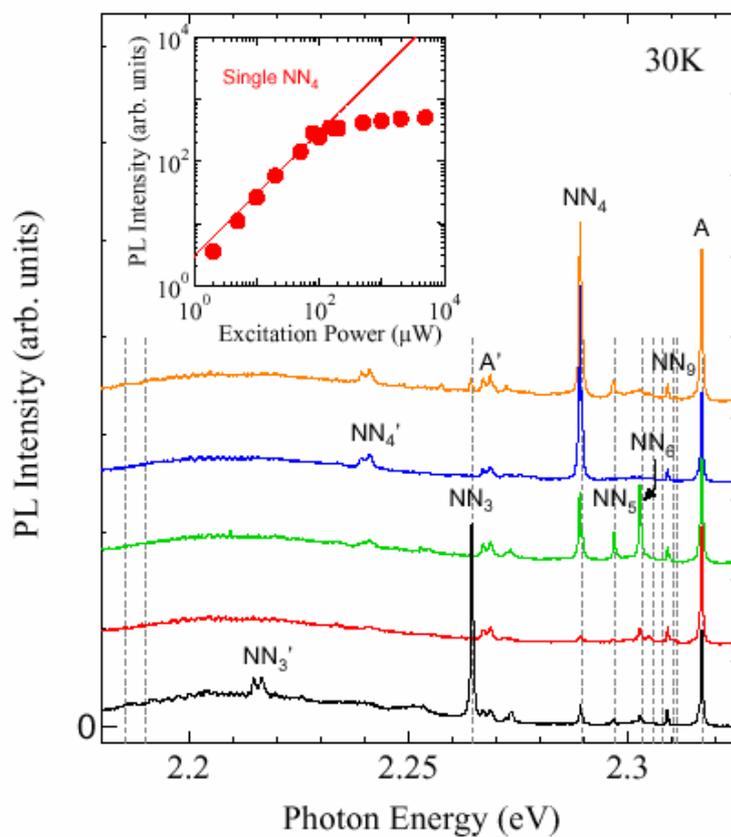


図1 窒素を δ ドープしたGaPサンプルの顕微PLスペクトルの場所依存性. 挿入図は1つの NN_4 ペア発光の励起強度依存性.

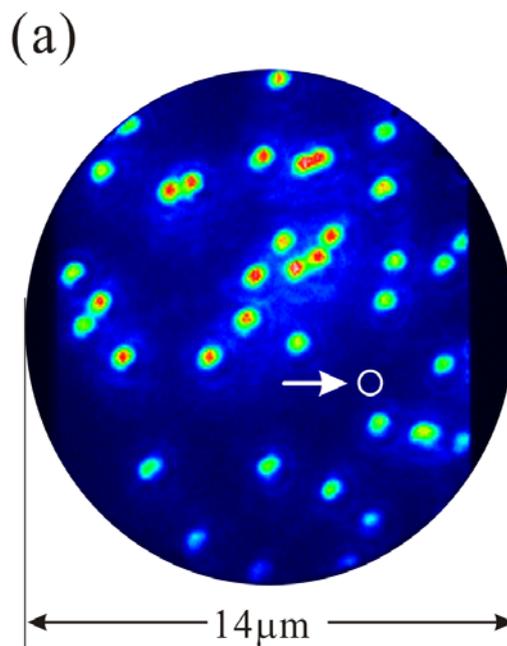


図2 NN_4 ペア発光のサンプル面内の顕微イメージング像.
1つの輝点が0.771nmの距離を持つN原子のペアに対応.
図中の白丸は1つの発光点を切り出すために用いたピンホールサイズ.

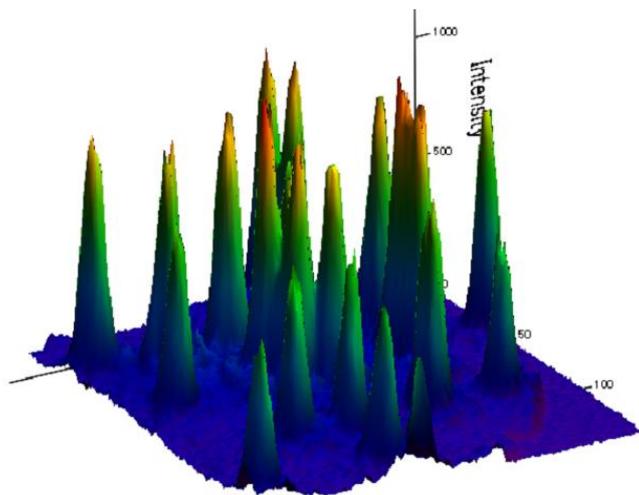


図3 NN₄ペア発光のサンプル面内での発光強度分布.

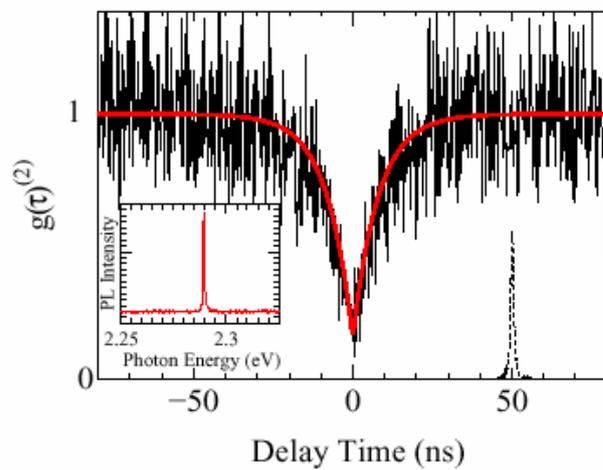


図4 1つのNN₄ペア発光の強度相関関数.
 単一光子の特徴であるアンチバンチング特性を示している.
 挿入図は1つのNN₄のPLスペクトル.