

半導体ナノ構造の共鳴光励起による 区別のつかない光子の発生

所属：筑波大学数理物質系物理学域

助成対象者：池沢道男

所属：物質・材料研究機構

共同研究者：佐久間芳樹

概要

単一の半導体ナノ構造による二準位系を共鳴光励起する事によって、区別のつかない超高レートの単一光子源を実現できる可能性がある。本研究では、「III-V 族化合物半導体に希薄ドーピングした窒素によるエネルギーの揃った発光中心」、および「巨大振動子効果を示す半導体ナノプレート」のような優れた特性を持つ新しい半導体ナノ構造を対象にし、共鳴光励起のための基礎的な知見を得る事を目指した研究を行った。ヒ化ガリウム中の窒素発光中心のコヒーレンス時間をフォトンエコー法によって初めて明らかにした他、セレン化カドミウム単一ナノプレートの発光を観測し、単一光子発生を示す明瞭なアンチバンチング特性を観測した。

abstract

By resonant optical excitation of a two-level system in a single semiconductor nanostructure, it may be possible to realize an indistinguishable photon source with an extremely high rate. In this study, we have studied new semiconductor nanostructures with outstanding properties such as "nitrogen luminescence center in III-V compound semiconductors with well-defined emission energy" and "semiconductor nanoplatelets showing giant oscillator strength".

The coherence time of nitrogen luminescence center in gallium arsenide was clarified for the first time by the photon echo method. Photoluminescence of individual cadmium selenide nanoplatelets was observed, and clear anti-bunching behavior showing single photon generation was confirmed.

研究内容

「背景」

量子情報技術において、光子を一つずつ発生させる単一光子源は欠かせない基本デバイスの一つである。単一光子源には、発生レートの高さや安定性など様々な要求があるが、最近では得られる光子の不可弁別性が重視されるようになってきている。このような「区別のつかない光子」の間に起こる干渉効果を用いて、離れた量子ビット間に量子もつれを生成することが期待されているためである。量子もつれは、量子ネットワークや量子コンピューティングの基礎をなすものであり、今後、量子情報技術を発展させるためには、別々の光子源から「区別のつかない光子」を高い生成レートで発生させる手法の開発は最重要課題の一つである。現在までに最もよく研究されている固体単一光子源は半導体量子ドットであるが、半導体量子ドットは数百個以上の原子から成るため、サイズ・形状分布に起因する不均一性が避けがたい。それによって、個々のドットから放射される光子のエネルギーが不揃いになり、光子は互いに区別ができてしまう。量子ドットに電場や磁場や歪を印加して発光エネルギーをもう一方の量子ドットに一致させることも行われているが、これを多数の量子ドットについて行う事は困難であり、全く別のアプローチが求められている。

「目的」

本研究では、III-V 族化合物半導体に希薄ドーピングした窒素によるエネルギーの揃った発光中心、および巨大振動子効果を示す半導体ナノプレート(Nanoplatelet, NPL)のような新しい半導体ナノ構造を共鳴光励起することによって、超高レートの区別のつかない単一光子発生を実現する事を提案している。これらの材料は、半導体量子ドットでは実現しにくい、極めて小さい発光エネルギー揺らぎと、超高速の光応答がそれぞれ得られているため、単一光子発生源として大変魅力的である。これらを共鳴光励起する事によって、いずれの光源からの光子も互いに区別がつかず、高い確率で2光子干渉(Hong-Ou-

Mandel effect)を起こすようなマクロな数の光子源を実現できる可能性がある。ここでは、そのために必要な技術的課題を解決し、光物性的な知見を得るための研究を行った。「結果」

区別のつかない光子を得るためには、コヒーレンス時間 T_2 が発光寿命 T_1 の 2 倍で与えられるフーリエ変換限界値に達している必要があるが、この条件に近づけるための方法として、光共振器中のパーセル効果を利用して T_1 を短縮する手がある。我々はフォトニック結晶共振器を利用してヒ化ガリウム(GaAs)中の窒素発光中心の発光寿命を 400ps まで短縮することが出来た。また、非共鳴励起下ではあるが、GaAs 中の発光中心からの光子が前述の 2 光子干渉を起こすことも示すことが出来た (論文発表[1])。しかし、干渉の明瞭度は 25%程度にとどまり、その原因として高速の位相緩和メカニズムの存在が考えられた。

また、図 1 に示すように、GaAs 中の窒素発光中心に関して、初めて四光波混合 (Four-wave mixing, FWM) 信号を得ることに成功した。上述のように、コヒーレンス時間及びその減衰メカニズムを知ることが重要であるが、その有力な測定法である FWM 法は信号強度が弱いため、単一光子源として利用可能なような、低密度で存在する発光中心について信号を取得する事は難しかった。我々は、ヘテロダイン検出法を用いることによって、光学顕微鏡で個別の発光中心を区別できる程度に低濃度のデルタドープ (1 原子層のみの窒素ドープ) 試料について初めて信号を検出することができた。しかし、図 1 中段に示すように、位相緩和時間は 60ps 程度であり、より長波長側の発光中心について期待された数百ピコ秒に比べてずっと短い。この結果は、 T_2 が発光中心の種類 (あるいは束縛エネルギー) に強く依存していることを示唆しているのかも知れない。信号が検出でき

る励起波長に制限があったため、研究期間内には長波長領域の発光中心について測定ができていないが、しばしば問題になるスペクトル拡散の影響を排除して T_2 が測れる FWM 法

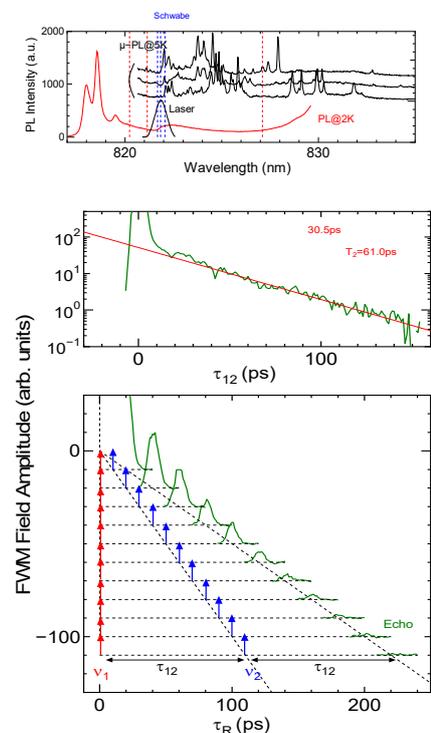


図 1 : (上) 窒素をデルタドープした GaAs 試料の発光スペクトルと顕微発光スペクトル。(中) 波長 822nm のピコ秒光パルスで励起した場合の時間積分 FWM 信号。 T_2 が 60ps 程度と分かる。(下) 時間分解 FWM 信号。↑で示した 2 つの励起パルスから同じ時間だけ遅れた光子エコーが観測されている事が分かる。

が可能になったことは大きな意義がある。

もう一つの材料系である半導体 NPLs に関しては、合成法や測定法の改良を進め、室温での単一 NPL の観測が可能になった。まず、セレン化カドミウム (CdSe) NPL を化学的に合成し、図 2 右上に光学スペクトルを示すように、6 モノレイヤー (ML)、または 5 ML 厚さの CdSe NPLs を得た。透過電子顕微鏡観察 (図 2 左上) では、厚さ 1.8nm 程度、横方向の広がり が 15~20nm 程度の NPLs が積み重なったものが観測されている。適切な化学的処理の後、カバーガラス上に NPLs を分散させ、油浸対物

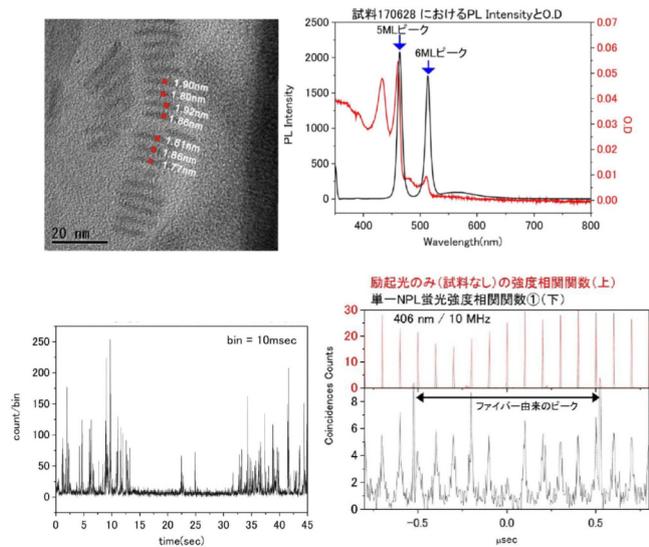


図 2 : (左上) CdSe NPLs の透過電子顕微鏡像。(右上) 光学スペクトルの例。(左下) 単一 CdSe NPL の発光の明滅現象。(右下) 単一 CdSe NPL の光子相関測定結果。下段に示すようにゼロ遅延のピークが消失しており、単一光子発生が確認できる。

レンズと共焦点顕微鏡を用いた顕微分光を行った。単一 NPL の発光は、単一量子ドットにも共通して見られる強い明滅現象を示した (図 2 左下)。さらに、10MHz の 50ps パルス励起の下で Hanbury-Brown and Twiss 測定を行ったところ、明瞭なアンチバンチング特性が観測されたことから、このサイズの CdSe NPL からも単一光子が発生していることが確認された (図 2 右下)。さらに、低温での共鳴励起の実験を進めるために、温度 5K での顕微観測も行い、温度低下に伴うスペクトルの幅の減少、発光の明滅現象の兆候を観測することが出来た。この系では、低温で巨大振動子効果のために発光寿命の大幅な減少が起こることが期待されており、それを観測することが次のステップである。

その他、GaAs:N の共鳴励起のための導波路構造の計算、シングルモードファイバーと単一発光中心を結合させて共鳴励起を行うための構造のシミュレーション等を行った。

「今後」

低温での単一ナノ構造の共鳴励起に向けた準備は進んだが、研究期間内には実際に共鳴励起で光子を発生させるところまでは出来なかった。今後は、実際に、フォトニック結晶と結合した窒素発光中心や、導波路構造中の発光中心について、共鳴光励起条件で励起光の散乱を排除し共鳴蛍光を観察するための光学系の構築と評価を進める。その後、狭線幅

のレーザー光による励起を行い、自然幅よりずっと狭い高いコヒーレンスを持った単一光子の発生を試みる。さらにそれを多数個に拡張できるかどうか検討する。また、フォトンエコー信号の検出が可能になった事によって、スペクトル拡散に影響されないコヒーレンス時間の測定が行えるようになったので、これを用いて、コヒーレンス時間のドープ濃度や結晶面方位や励起波長の違い、温度依存性等を調べ、光子の不可弁別性を低下させる位相緩和メカニズムの詳細を明らかにしたい。

もう一つの光源である半導体 NPLs に関しては、低温下での非共鳴励起の実験を行って、期待されるような発光寿命の短縮が実際に起こるか、単一光子性がどのように NPL サイズに依存するか等を調べる。研究の進展によっては、構造や材料を変え、光通信波長帯に対応するナノプレートの合成を行う。これが実現できれば、量子ネットワーク等、量子もつれ光子を必要とする多くの量子情報分野の応用にとって重要な一歩になる。

本助成に関わる成果物

[論文発表]

[1] M. Ikezawa, L. Zhang, Y. Sakuma, Y. Masumoto, “Quantum interference of two photons emitted from a luminescence center in GaAs:N”, Appl. Phys. Lett., **110**, 152102 (2017).

[口頭発表]

[1] M. Ikezawa, “Single Photon emission from nitrogen isoelectronic traps in GaAs”, International Symposium on Functional Materials, Jilin Normal University, China, 2017/10/21 (招待講演)

[ポスター発表]

[1] 池沢 道男, “GaAs 中の窒素不純物を利用した明るい単一光子源”, 第 2 回 TIA 光・量子計測シンポジウム, つくば国際会議場, 2016/11/10

[2] 王 若曦, 池沢 道男, 山田 雄太, 佐久間 芳樹, 武田 寛之, 池田 直樹, 杉本 喜正, 迫田 和彰, 舛本 泰章, “フォトニック結晶共振器による単一等電子発光中心の発光寿命制御” 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 2017/3/14~17

[3] 王 若曦, 池沢 道男, 山田 雄太, 佐久間 芳樹, 武田 寛之, 池田 直樹, 杉本 喜正, 迫田 和彰, 舛本 泰章, “等電子トラップを埋め込んだフォトニック結晶共振器による単一光子発生と発光寿命制御”, 日本物理学会 第 72 回年次大会, 大阪大学 (豊中キャンパ

ス) , 2017/3/17~20.

[4] 王 若曦, 松山 亨平, 佐久間 芳樹, 池沢 道男, 舛本 泰章, “窒素をデルタドープした GaAs(111)A 面上の発光中心の偏光異方性”, 第 78 回 応用物理学会 秋季学術講演会, 福岡国際会議場, 2017/9/5~8

[5] 福島 峻太, 田久保 悠一, 佐久間 芳樹, 池沢 道男, “窒素をデルタドープした GaAs の四光波混合測定”, 第 65 回 応用物理学会 春季学術講演会, 早稲田大学, 2018/3/17

[その他]

[1] Y. Sakuma, M. Ikezawa, L. Zhang, “Single-Photon Generation from Nitrogen Isoelectronic Traps in III-V semiconductors”, *Micro- and Nanophotonic Technologies* (Wiley-VCH) edited by P. Meyrueis, K. Sakoda, M. Van de Voorde, p.125-138 (2017).