

博士論文

GaAs 中の窒素原子対による
単一等電子トラップからの
非古典光発生に関する研究

指導教員 矢口 裕之 教授

平成 25 年度修了

埼玉大学大学院理工学研究科博士後期課程

数理電子情報コース

11DM003 高宮 健吾

目次

【 要旨 】	3
第1章 序論	
1.1 量子暗号通信	5
1.1.1 BB84 プロトコル	5
1.1.2 BBM92 プロトコル	7
1.2 量子もつれ光子対	8
1.2.1 パラメトリック下方変換	8
1.2.2 励起子分子カスケード遷移	9
1.3 強度相関関数測定	10
1.4 様々な単一光子源	12
1.4.1 単一量子ドット	12
1.4.2 GaP 中の単一等電子トラップ	13
1.4.3 ダイヤモンド中の単一 NV 中心	15
1.5 GaAs 中の窒素原子対による等電子トラップ	16
1.5.1 GaAs 中の単一等電子トラップ	19
1.6 本研究の目的	21
1.7 本論文の構成	22
第2章 実験	
2.1 フォトルミネッセンス測定の原理	24
2.2 顕微フォトルミネッセンス測定	26
2.3 有機金属気相エピタキシー法	29
第3章 GaAs 中の単一等電子トラップによる励起強度依存性	
3.1 序	33
3.2 単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性	34
3.3 窒素原子対の種類依存性	37
3.4 まとめ	40
第4章 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップによる発光	
4.1 序	41
4.2 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップ	42
4.3 まとめ	45
第5章 GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光特性	
5.1 序	46

5.2	単一等電子トラップ Z_2 による発光の偏光特性	46
5.3	様々な等電子トラップによる偏光特性	52
5.4	まとめ	54
第6章	GaAs 中の単一等電子トラップによる励起子分子発光	
6.1	序	55
6.2	PL スペクトルとマッピング	56
6.3	励起強度依存性	59
6.4	偏光角度依存性	61
6.5	窒素原子対の種類依存性	64
6.6	まとめ	68
第7章	単一等電子トラップによる発光の PLE 分光測定	
7.1	序	69
7.2	単一等電子トラップによる発光の PLE 分光測定	74
7.3	窒素原子対の種類依存性	77
7.4	まとめ	78
第8章	GaAs 中の単一等電子トラップによる発光の時間分解 PL 測定	
8.1	序	79
8.2	励起子-励起子分子発光の時間分解 PL 測定	81
8.3	励起子分子発光の励起強度依存性	82
8.4	窒素原子対の種類依存性	83
8.5	まとめ	85
第9章	結論	86
	【 参考文献 】	87
	【 謝辞 】	89
	【 研究業績 】	90

【 要旨 】

量子情報技術分野において重要な役割を担う単一光子発生源への応用のために単一量子ドット、GaP中の等電子トラップやダイヤモンド中のNV中心などに対して様々な研究が行われている。GaAs中の窒素原子対による等電子トラップからの発光は、発光線幅が狭いことや、窒素原子対の配列に対応した発光エネルギー値が再現性良く得られることなどから単一光子源への応用が大いに期待されている。しかし、窒素 δ ドーパGaAs中の単一等電子トラップによる発光は発光強度が弱いことや、発光ピークが二つに分裂しそれぞれが直交する直線偏光であることなど、単一光子源に不向きな特性も報告されている。そこで本論文では単一光子発生源の実現に向けてGaAs中の窒素原子対による単一等電子トラップからの非古典光(単一光子や量子もつれ光子対)の特性の改善を目的として、窒素 δ ドーパGaAs(001)試料、窒素 δ ドーパGaAs(110)試料や窒素 δ ドーパGaAs/AlGaAs試料中の単一等電子トラップからの発光特性評価を行った。

窒素 δ ドーパGaAs、窒素 δ ドーパGaAs/AlGaAsへテロ構造は有機金属気相エピタキシー法を用いて作製した。 δ ドーピングは、Ga源の供給を5秒間止めて成長中断を行っている間にN原子を供給し作製を行った。単一等電子トラップによる発光を観測する為に顕微フオルミネッセンス測定、発光特性評価を行うために顕微フオルミネッセンス励起分光測定、時間分解フオルミネッセンス測定を行った。

窒素 δ ドーパGaAs(001)中の単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性から発光再結合確率を求めた。等電子トラップの種類によって発光再結合確率 $1/\tau$ が異なることがわかった。GaAs中の等電子トラップによる発光では高エネルギー側の発光ほど発光再結合確率が高い傾向にあることがわかった。

窒素 δ ドーパGaAs/AlGaAs中の単一等電子トラップからの発光特性評価を行ったところ、発光ピークが単峰でランダム偏光の発光を得ることができた。また、窒素 δ ドーパGaAs中の単一等電子トラップによる発光と比べると等電子トラップへのキャリアの供給効率が約8倍程度向上した。これらの特性はAlGaAs層を用いることにより、窒素混入によって生じる面内歪の異方性を解消し、さらにバンドギャップの大きいAlGaAs層が障壁層となってキャリアの閉じ込め効果が生じることで供給効率を上げることに成功したために得られたと考えられる。

窒素 δ ドーパGaAs(110)から同時に観測される二つの発光(X発光、X X発光)に対して励起

強度依存性を測定したところ、励起強度の増加に対してX発光は線形に、XX発光は二乗の関係で発光強度が増加した。また二次元マッピングを測定したところX、XX発光それぞれ同じ場所からの局所的な発光で、発光中心が同じであることを確認した。これらの結果からX発光が励起子、XX発光が励起子分子による発光であることがわかった。本論文で初めてGaAs中の単一等電子トラップから励起子分子発光の観測に成功した。さらに、励起子、励起子分子発光に対して偏光特性を調べた結果、量子暗号通信に用いるのに適したランダム偏光であることが観測された。

GaAs中の単一等電子トラップからの発光に対してフォトルミネッセンス励起(PLE)分光測定を行った。励起子分子発光に対するPLEスペクトルではGaAs自由励起子より4meV程度高エネルギー側に2つの鋭い吸収ピークがあることがわかった。また、励起子発光に対するPLEスペクトルでは励起子分子発光で観測された2つの鋭い吸収ピークと同じ位置ではPLEスペクトルが下に凸になることがわかった。これは励起子分子発光が共鳴吸収により増大することでキャリアが励起子分子発光に選択的に寄与してしまい励起子発光が下がったためと考えられる。

窒素δドープGaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光の時間分解測定を行った。 Z_2 とラベルされた等電子トラップの発光減衰時間は $\tau(X) = 11 \text{ ns}$ 、 $\tau(XX) = 5 \text{ ns}$ であった。 $2\tau(XX) \approx \tau(X)$ の関係であったことからこれらの発光が励起子、励起子分子発光であることが確かめられた。励起子分子発光の減衰時間は励起強度を上げると速い減衰時間成分が現れた。これは励起子分子発光がある程度強くなることで誘導放出効果が現れ減衰時間が速まったためと考えられる。また等電子トラップの種類によって減衰時間 τ が異なることを確認した。

以上のように本研究によって、GaAs中の窒素原子対による単一等電子トラップから励起子分子発光を確認し、量子情報技術の分野で用いる単一光子源応用に向けて重要な知見が得られた。

第 1 章

序論

1.1 量子暗号通信

現在広く用いられている暗号方式は膨大な計算量によって安全を保っている暗号方式である。例えば、大きな数の素因数分解が非常に困難であり読解に時間が掛かってしまうことを安全性の根拠とした方法である。しかし、極めて高い計算能力を有する量子コンピュータの実現によりその安全性が失われてしまうと考えられている。そこで量子力学的性質を用いて安全性が保証される量子暗号の研究が行われている。最初に提案された量子暗号通信方式はBB84[1]と呼ばれるプロトコルで、他にもE91[2]、B92[3]やBBM92[4]などのプロトコルが提案されている。

1.1.1 BB84プロトコル

BB84プロトコルは1984年にBennett とBrassardによって考案された量子暗号プロトコルである。量子暗号プロトコルの名前には発表年と考案者の頭文字を取った名前が度々使われている。BB84は量子力学的性質を用いて、盗聴者などに情報が漏れていないことが保証された秘密鍵の共有によって絶対的安全性を保つ鍵共有方式である。つまりBB84は暗号方式そのものではなく、暗号に用いる秘密鍵の量子的な共有プロトコル、すなわち量子鍵配送(QKD:quantum key distribution)のことである。

図1.1にBB84プロトコルの概要図を示す。量子鍵配送手順を以下に示す(図1.2)。

- ①送信者は送る情報に対応した偏光子 ($1 : -$ or \backslash 、 $0 : |$ or $/$) を適当に選択して光子 (偏光方向が情報に対応) を送信する
- ②受信者は二種類の偏光子 ($+$ or \times) のどちらかを選択して光子を検出する。この時に偏光方向と異なる偏光子、例えば送信者が $-$ の偏光子使用時に受信者が \times の偏光子で検出した場合、 \backslash or $/$ のどちらかが50%の確率で選択されて検出される。
- ③公開通信路で二人の偏光子情報を確かめ、偏光子が不一致の情報は破棄し、残っ

た情報を用いて暗号鍵の生成を行う。

この方法では、光子一つに情報を持たせるために、盗聴などによって光子が消滅してしまう。また、新しく生成するとしても受光側の偏光子を正しく選択しない場合には50%の確率で誤りが生じ、この不一致により第三者の存在に気付く。

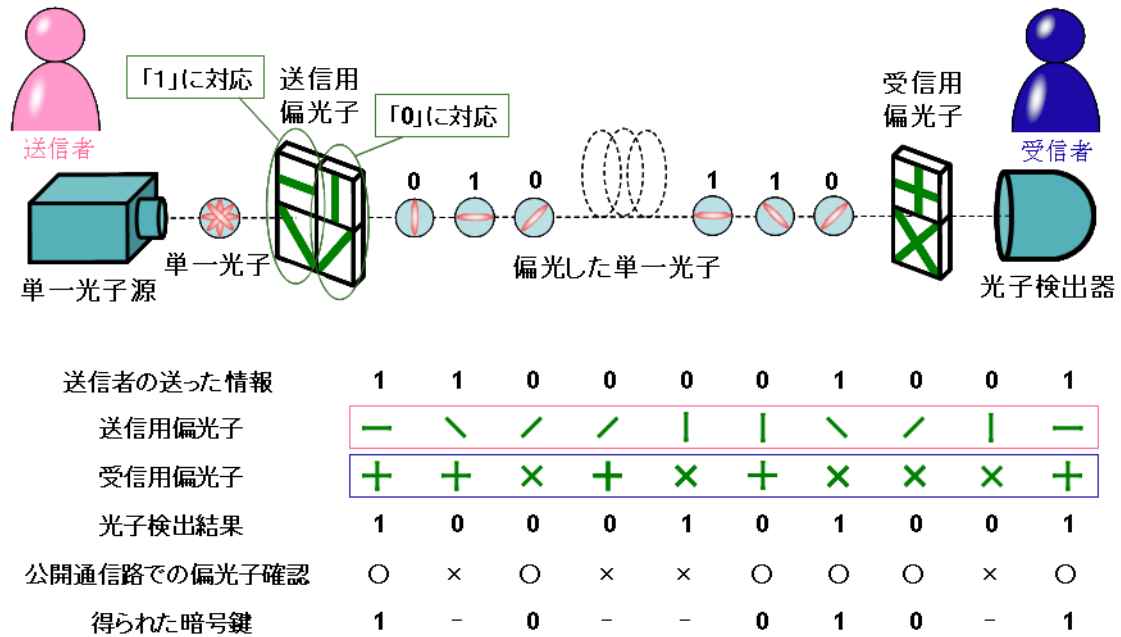


図 1.1 BB84 プロトコルの概要図

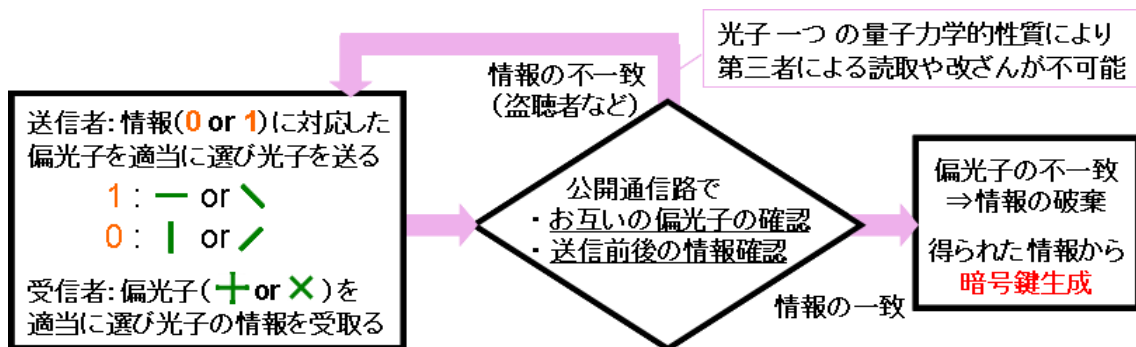
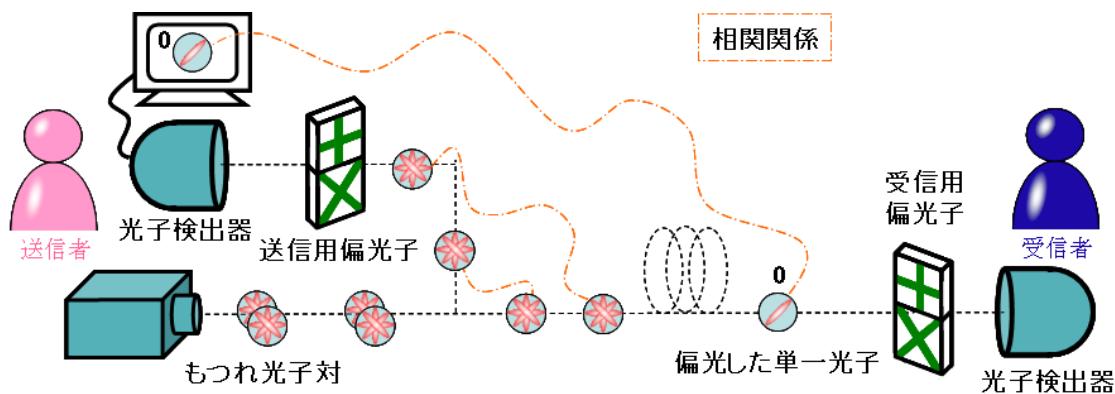


図 1.2 BB84 プロトコルの量子鍵配送手順

1.1.2 BBM92プロトコル

量子暗号プロトコルは大きく分けると前述したBB84プロトコルの様な単一光子を用いる方式と、量子もつれ光子対を用いる方式にわけられ、BBM92プロトコルは後者のタイプの代表例でよく挙げられるプロトコルである。BBM92プロトコルとは1992年にBennettとBrassardとMerminによって考案された量子暗号プロトコルであり、量子鍵配送手順としてはBB84プロトコルと同様の方法でありBB84の拡張版プロトコルであるといえる。図1.3にBBM92プロトコルの概要図を示す。もつれ光子対の一方を送信者が適当に選択した偏光子を通し検出する。検出された瞬間、他方の光子は相関関係(図1.3では同じ偏光特性を示す相関関係)に従いその偏光状態が確定する。

この様に、もつれ光子対を用いた方式では人為的な乱数発生器が不要である。さらに、単一光子を用いた方式では複数の光子が発生した状態がある時、光子の一部を取出した盗聴が可能であり、その対策が必要であるのに対し、もつれ光子対を用いた方式では異なるもつれ光子対の間には相関関係がないためにその対策が不要であるなど安全性が非常に高い。



送信用偏光子	×	+	×	+	+	+	×	+	×	×
送信者の光子検出結果	0	1	1	0	1	0	0	1	0	1
受信用偏光子	+	+	+	×	+	×	×	+	×	+
受信者の光子検出結果	1	1	1	0	1	1	0	1	0	1
公開通信路での偏光子確認	×	○	×	×	○	×	○	○	○	×
得られた暗号鍵	-	1	-	-	1	-	0	1	0	-

図 1.3 BBM92 プロトコルの概要図

1.2 量子もつれ光子対

光の最小単位は「光子」である。通常一つの光子はそれぞれ独立した特性を持っているが、ある条件下で生成された二つの光子は、互いに強い相関関係（一方の光子の特性が観測された瞬間に他方の特性もある関係のもとに決まる）を持つ。このような関係を持った光子対を量子もつれ光子対という。その生成法としては非線形光学効果を用いたパラメトリック下方変換や励起子分子-励起子発光によるカスケード遷移など様々な方法について研究が行われている。量子もつれ光子対を用いる応用技術としては前述した量子暗号プロトコルや、量子リソグラフィ、量子中継器など様々な提案がされており、量子もつれ光子対はこれら次世代技術の実現には必要不可欠である。

1.2.1 パラメトリック下方変換

量子もつれ光子対を得る方法として、1990年代前半から現在までパラメトリック下方変換と呼ばれる非線形光学過程がよく活用されている。その手法とはホウ酸バリウムなどの非線形結晶に高エネルギーの光を当て、そこからエネルギー保存則を満たすような二つの光子が放出されるものである。図1.4にパラメトリック下方変換の模式図とエネルギー図を示す。この過程ではエネルギーや波数ベクトルの保存が要請されることによって相関関係が生じることが知られている。パラメトリック下方変換を用いると比較的簡単に量子もつれ光子対を得られるため、量子情報通信に関連した様々な原理検証実験に広く用いられている。しかし、この方法の問題点は高エネルギーのポンプ光源が必要であり、得られる量子もつれ光子対の各々の光子エネルギーはそれのほぼ半分になってしまうため高エネルギーの光子対を得るのが困難であること。さらに、微細化が困難であることなどが挙げられる。

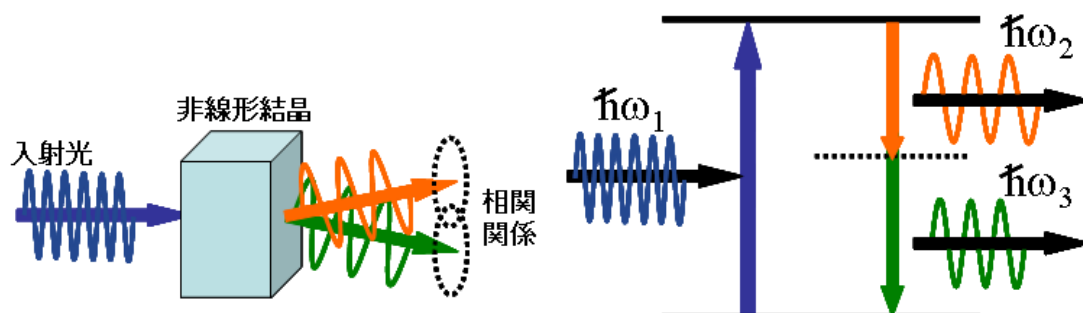


図1.4 パラメトリック下方変換の模式図とエネルギー図

1.2.2 励起子分子カスケード遷移

量子もつれ光子対を得る方法の一つとして励起子分子 - 励起子によるカスケード遷移が用いられている。半導体内の励起子密度の上昇に伴い、励起子間の相互作用が無視できなくなることで、励起子二量体の結合状態である励起子分子が形成される。計算によると励起子分子はどのような半導体においても安定に存在できる[5]とされており、これまでに様々な材料で確認されている[6,7]。また、励起子分子の場合、励起子とは異なり電子-電子間、正孔-正孔間にクーロン斥力が働くため、束縛エネルギーは励起子と比べて小さくなる。

図 1.5 に励起子-励起子分子のエネルギー分散関係の図を示す。ここで、 E_{BM} は励起子分子束縛エネルギー、 E_E は励起子エネルギーを表している。 $2E_E(0) - E_{BM}$ のちょうど半分のエネルギーで励起を行うことで二光子吸収によって直接励起子分子のエネルギー準位に励起が可能である。励起子分子束縛エネルギーがプラスの場合、励起子状態に比べて励起子分子状態がより安定であり励起子分子発光は励起子より低エネルギーで起こる。以下に励起子分子カスケード遷移による特長を示す。

- 二光子吸収で励起を行うことで高エネルギーのポンプ光を必要とせず、非常に高い効率で変換が行える
- 半導体を用いることで電流注入による光源が可能である
- 単一光子源などを用いることで単一の量子もつれ光子対を生成できる

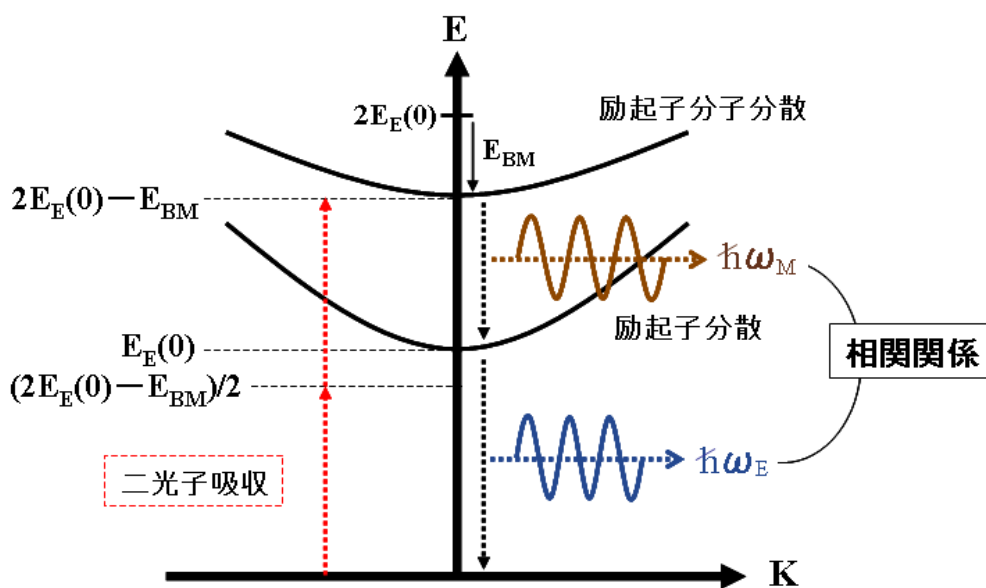


図 1.5 励起子-励起子分子のエネルギー分散関係

1.3 強度相関関数測定

光源が本当に単一光子であることを示すためには Hanbury Brown と Twiss によって考案された強度相関関数測定(HBT 測定)[8]を用いて、光子が同時に 2 個以上発生していないアンチバンチング特性を得る必要がある。

図 1.6 に強度相関関数の測定系を示す。測定は 2 つの光子検出器を用いて行われ、光源から出た光をビームスプリッタ(半透鏡等)によって 50%、50%に分けて、それぞれの検出器に入射する。検出器 1 で検出されるとストップウォッチがスタート、その後検出器 2 で検出されるとストップする様になっている。従って、2 つの検出時刻の差 τ が測定値になる。測定では $\tau < 0$ を測定できるように検出器に一定の時間遅延を挿入することで原点をずらしておく。この時、ストップウォッチとして TAC(Time to Amplitude Converter)がよく用いられる。

強度相関関数 $g^{(2)}$ の時間分布は光の性質を現しており、図 1.7 に示す様にランプ光などのランダムに光を放出する自然放出光ではバンチング特性($g^{(2)}(0) > 1$)が得られ、レーザーなどのコヒーレント光では時間に寄らず一定の値が得られる。また、単一光子源では同時に 2 つの光子が観測されないことからアンチバンチング特性($g^{(2)}(0) < 1$)が得られる。理想的な単一光子では $g^{(2)}(0) = 0$ すなわち完全なアンチバンチング特性を示す。

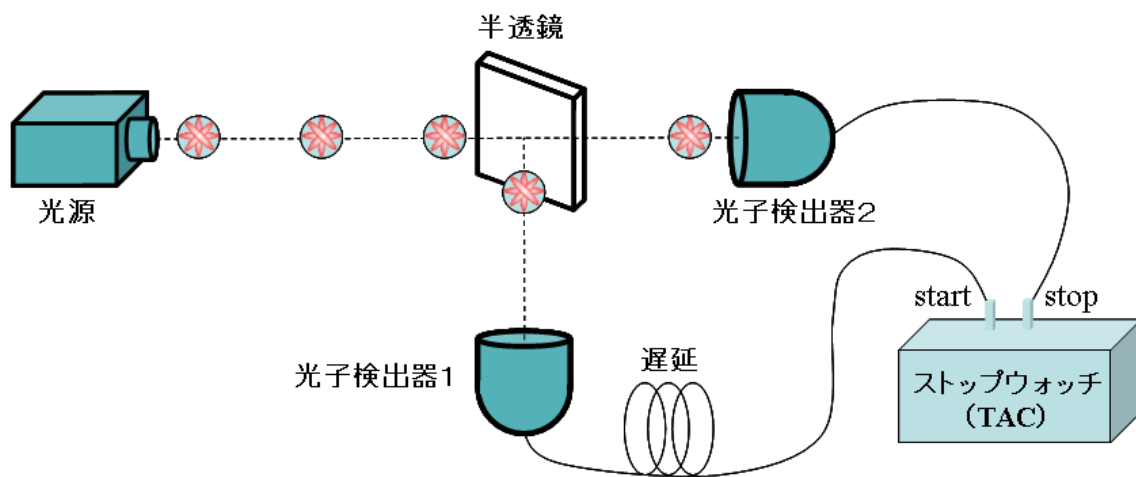


図 1.6 強度相関関数の測定系

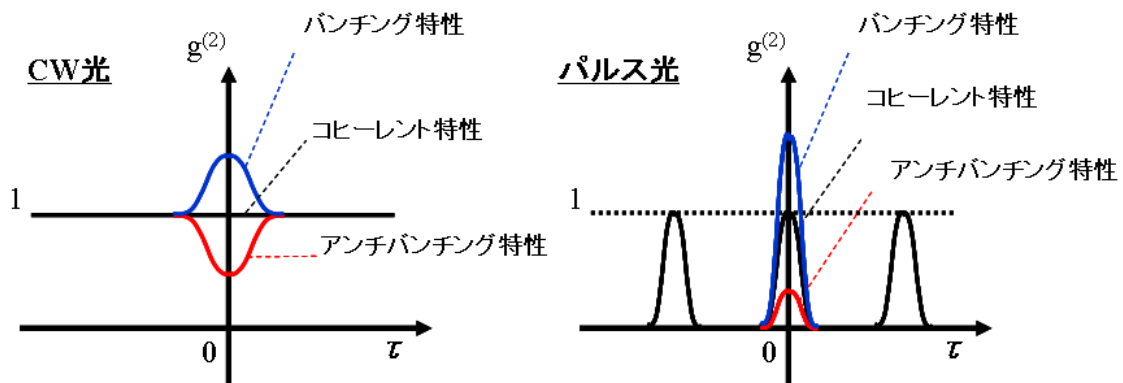


図 1.7 CW とパルスによる強度相関関数 $g^{(2)}(\tau)$ 特性

1.4 様々な単一光子源

単一光子源は量子情報技術の分野で重要な役割を担っている。しかし、実際に利用できる単一光子源が存在しない為に現在の量子暗号システムではコヒーレント光の強度を極端に弱くした擬似単一光子パルスを用いている。量子暗号では光子が二個以上存在する場合、盗聴が可能となるため真の単一光子源が必要とされており、これまでに単一量子ドット[9-13]、GaP中の単一等電子トラップ[14-17]、ダイヤモンド中の単一NV中心[18-21]や単一分子[22]などに関して、様々な研究が盛んに行われてきた。

1.4.1 単一量子ドット

図 1.8 に量子ドットの模式図とバンド図を示す。一般的な半導体量子ドットの大きさは高さ数 nm、横方向数 10nm の半導体の周囲をバンドギャップの大きい半導体で囲んだ構造をしている。閉じ込めサイズがナノメートルスケールのため、電子や正孔のエネルギーは数 10~100meV の間隔で量子化される。近年、量子ドットを用いた例として量子ドットレーザ、量子ドット太陽電池や単一光子源など様々な応用を目的として研究が行われている。

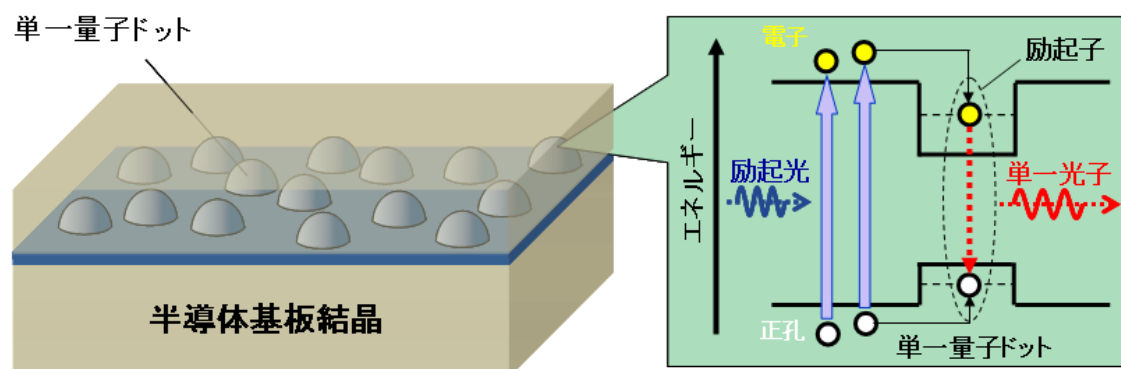


図 1.8 量子ドットの模式図とエネルギーバンド図

単一光子源を目的とした量子ドットでは、量子ドットを一つだけ利用する工夫が必要であり、半導体の微細加工技術を用い単一量子ドット以外を取り除く方法と、基板表面に微細な穴を開けたマスクを施し利用する方法に大別される。前者は共振器構造など光の取出し効率を上げる設計が可能であり、後者は金属膜を電極として用いることができるなどの利点が挙げられる。図 1.9 に InAs 量子ドットと GaAs/AlAs DBR 微小共振器構造を用いた研究例を示す[13]。この構造では単一量子ドットのみを微小共振器構造に閉じ込めることで単

一量子ドットからの発光を促進させながら単一光子を取出すことができる。また、HBT測定において明瞭なアンチバンチング特性が得られていることがわかる。

理論的には単一量子ドットによる単一光子源では、ドットの材料選択及びサイズ制御によって発光波長の制御が可能であるが、実際には量子ドットの密度制御やサイズ制御が非常に困難であり、発光波長は作製、測定するまでわからない。光励起や電流注入では、励起子の数を制御することは難しく、単一量子ドットに二つ以上の励起子が取り込まれることもあるが、量子ドットのサイズが小さいために、複数の励起子が存在するとクーロン相互作用が働き、発光波長に変化が生じる。従って、バンドパスフィルタなどで波長を選択することで、単一光子のみを抽出することが出来る。

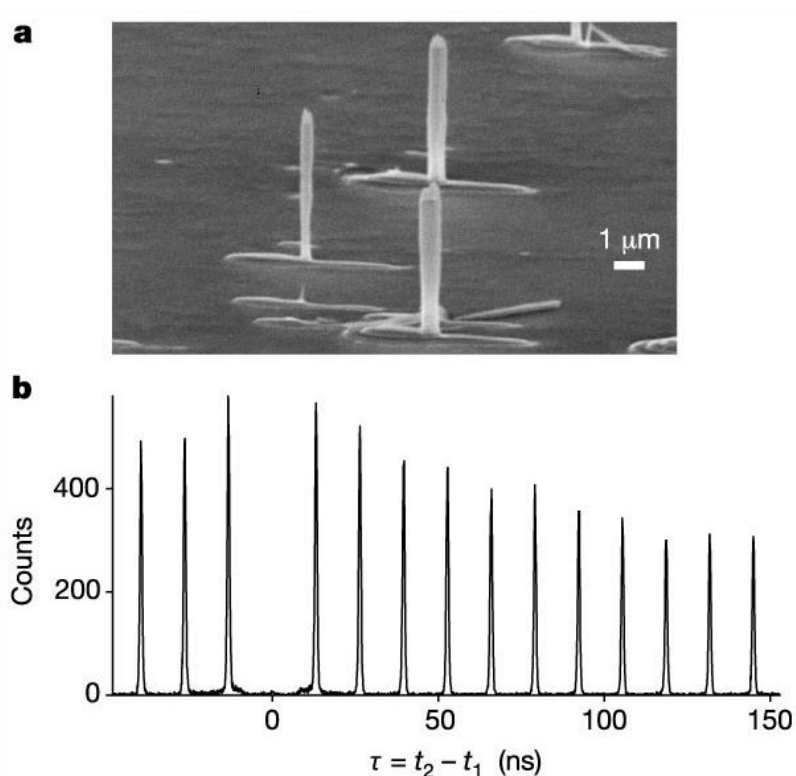


図 1.9 単一量子ドットを含むポスト型微小共振器と HBT 測定[13]

1.4.2 GaP中の単一等電子トラップ

等電子トラップとは半導体を形成する原子と等価の価電子を有する他の原子によって置換された不純物状態のことで、等電子トラップによる光学遷移は 1965 年に初めて明らかにされた[14]。図 1.10 に GaP 結晶に N 原子を希薄ドーピングした場合(GaP:N)に形成される等電子トラップによるエネルギーバンドの模式図を示す。GaP 結晶に N 原子をドーピングした場合、同じ V 族であるため P 原子が N 原子に置き換わるが、価電子の数が同じであるために、アクセプタやドナーのようなクーロンポテンシャルは発生

しない。ただし、N原子はP原子に比べて電子を引き付ける力、すなわち電気陰性度が高いためにトラップを形成する。また、等電子トラップによって電子が強く束縛されるために、位置と運動量との不確定性関係から、束縛電子の波動関数は、波数空間の広い領域にわたって存在確率を持つ。

そのため、本来 GaP は間接遷移型半導体であるが、等電子トラップによる準位を介してフォノンの吸収や放出を必要としない準直接遷移型の半導体となる。GaP 中の等電子トラップでは母体結晶が間接遷移型半導体であるため、バンド端発光の影響が少なく、等電子トラップの束縛エネルギーが大きいと期待されている。

図 1.11 に GaP 中の単一等電子トラップによる発光の HBT 測定と時間分解測定に関する研究結果を示す[15,16]。HBT 測定の結果では良好なアンチバンチング特性が得られているが、母体結晶が間接遷移型半導体であるために時間分解測定では減衰時間 τ が 40 ns と長く高速通信に向けて改善が必要である。また、発光波長が 530 nm~570 nm[17]と短波長であるために長距離通信に向かない。

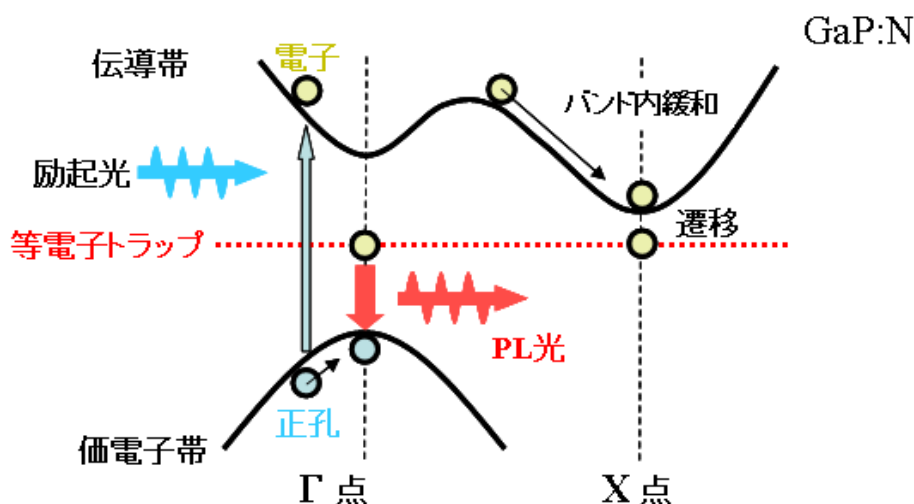


図 1.10 GaP:N のエネルギーバンド構造の模式図

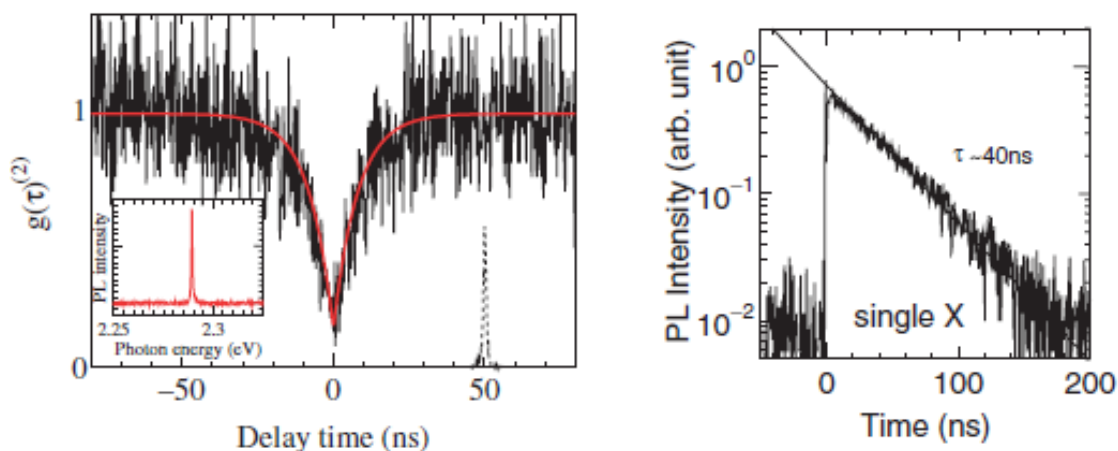


図 1.11 GaP 中の単一等電子トラップによる HBT 測定[15]と時間分解測定[16]

1.4.3 ダイヤモンド中の単一 NV 中心

ダイヤモンド中の NV 中心とはダイヤモンドを構成する炭素原子の代わりに N 原子が置き換わり、その隣に空孔(V)が存在する複合欠陥のことである。ダイヤモンド中の NV 中心では、母体結晶であるダイヤモンドの結合が強く硬いことで室温でも良好なアンチバンチング特性が得られている[18]。図 1.12 にダイヤモンド中の単一 NV 中心による PL スペクトル、時間分解測定、HBT 測定による発光特性を示す[21]。ダイヤモンド中の単一 NV 中心による発光も GaP 中の単一等電子トラップと同様に、発光波長が 575nm(NV⁰)や 637nm(NV⁻)と短波長で、減衰時間が数 10 ns とやや長く、長距離・高速通信に不向きであり、母体結晶であるダイヤモンドはそのままでは電流注入に適していないなど単一光子源への応用に向けて改善すべき点があげられる。

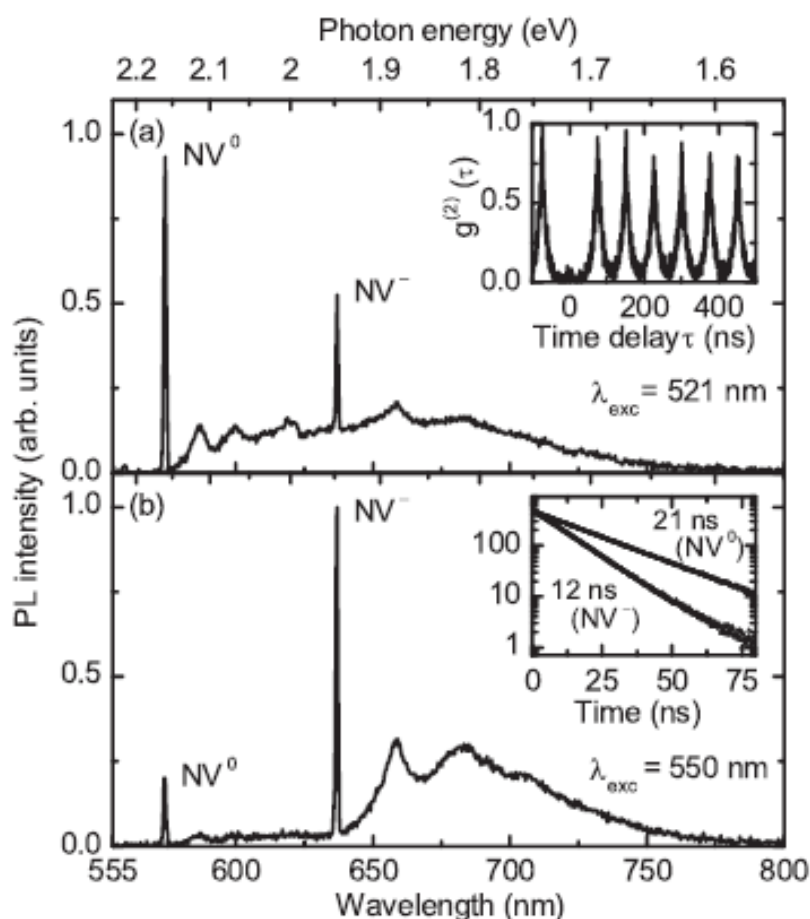


図 1.12 ダイヤモンド中の単一 NV 中心による発光特性[21]

1.5 GaAs 中の窒素原子対による等電子トラップ

III-V-N 混晶半導体とは Ga や In などの III 族原子と P や As などの V 族原子からなる III-V 族半導体に窒素をドーピングした混晶半導体のことである。III-V-N 混晶半導体には巨大バンドギャップボウイングと呼ばれる特異な物性がある[23]。例えば GaAs に窒素を加えていくと GaAs のバンドギャップである 1.42eV から立方晶 GaN のバンドギャップである 3.2eV に向かって単調に増加せず、低 N 濃度領域ではバンドギャップはむしろ減少していくというものである。この巨大バンドギャップボウイングは窒素原子の高い電気陰性度が要因であると考えられている。また、極低窒素濃度の GaAs:N 混晶では図 1.13 に示す様に等電子トラップが形成される。等電子トラップとは先述の通り電気陰性度の高い窒素に電子が束縛され、その電子がクーロン力により正孔を引き付けることで、窒素原子に束縛された励起子を形成する発光中心である。

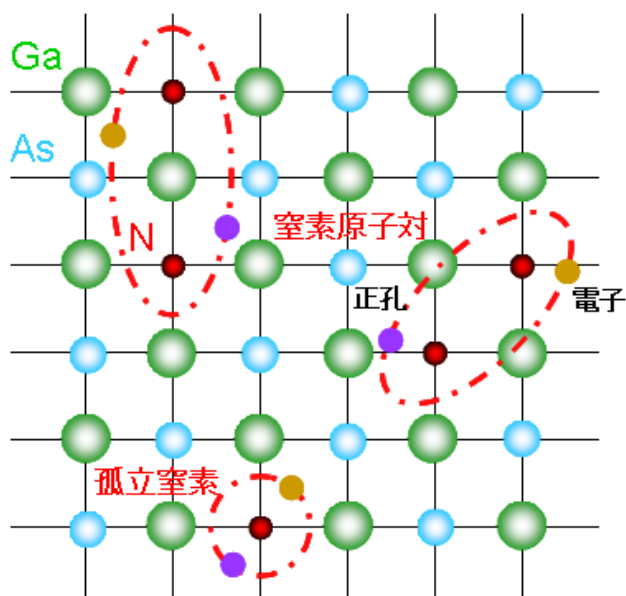


図 1.13 孤立窒素または窒素原子対による等電子トラップの形成

GaAs中の窒素原子対による発光には発光波長（あるいは発光エネルギー）に応じてラベルがつけられている。Schwabe等[24]は X_i ($i=1\sim 5$)、Shima等[25]は Y_j ($j=1\sim 8$)、Makimoto等[26,27]は A_k ($k=1\sim 4$)、 NN_m ($m=A\sim F$)、 Z_n ($n=1\sim 2$)とラベルをつけてGaAs中の窒素原子対による発光を報告した。特にMakimoto等は図1.14に示す様に窒素一様ドーピングGaAsと窒素 δ ドーピングGaAsの発光特性を比較し、さらに二つの窒素 δ ドーピング層を異なる面間隔(1,3,30nm)で作製し、それらの試料の発光特性を比較することで窒素原子対の配列と発光波長との対応を調べた。表1.1にその対応を示す。本論文では発光線の特定にMakimoto等によるラベルを使用する。

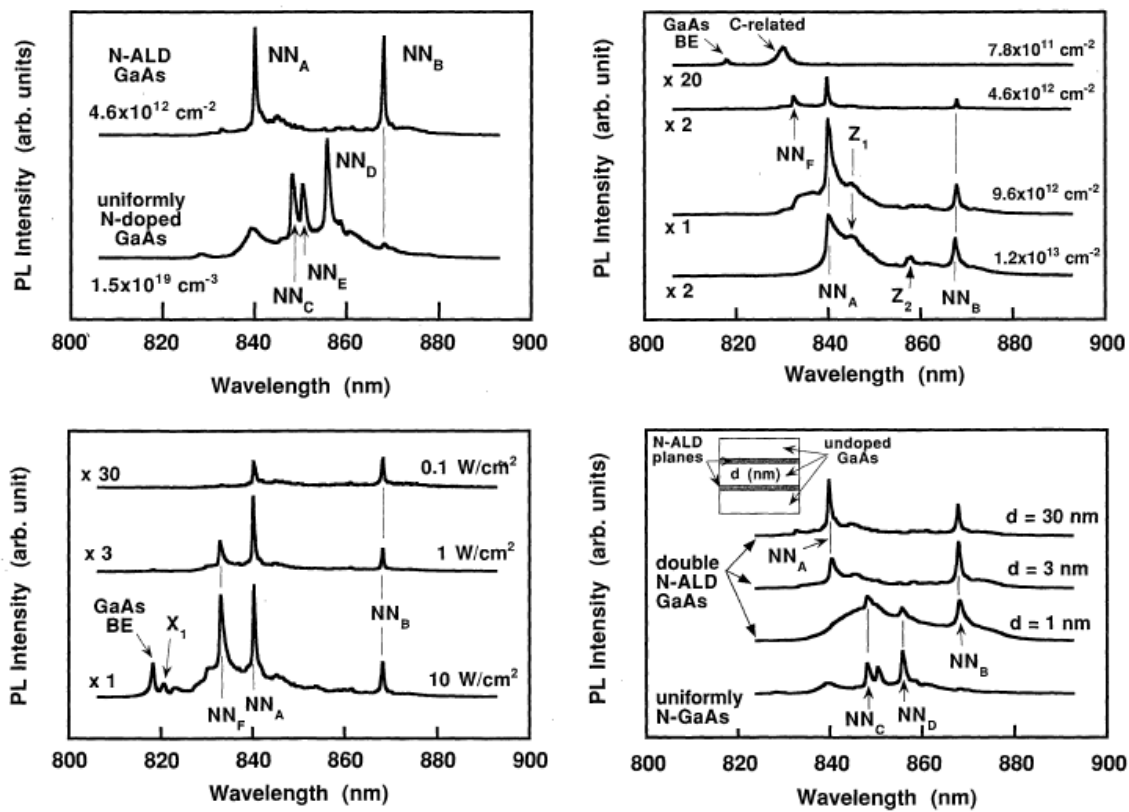


図 1.14 Makimoto 等による実験結果[26].

表 1.1 GaAs 中の窒素原子対のラベル[27]

発光エネルギー値 (eV)	発光波長 (nm)	ラベル
1.476	840.1	NN _A
1.467	845.2	Z ₁
1.462	848.0	NN _C
1.458	850.3	NN _E
1.449	855.6	NN _D
1.444	858.7	Z ₁
1.428	868.1	NN _B

等電子トラップは同じ種類(窒素原子の個数や原子間距離が同じ)であれば、その発光が同じ発光波長を示し、再現性に優れた発光中心である。そこで、等電子トラップによる発光波長制御を目的として図 1.15 に示す様に RHEED 観察を利用した GaAs 中の窒素原子対の配列制御についての研究[28]も行われており高い発光波長制御の可能性が示されている。

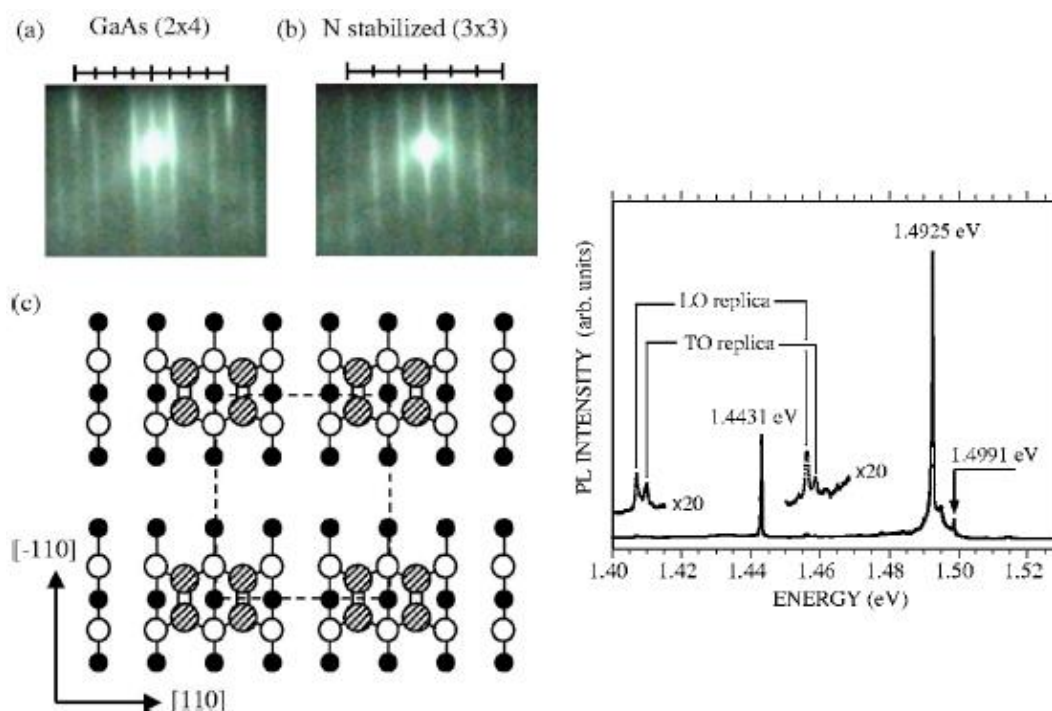


図 1.15 RHEED 観察による窒素原子対の配列制御と PL スペクトル[28]

図 1.16 に GaAs:N 中の等電子トラップによる PL スペクトル、偏光特性と励起強度依存性を示す[29]。励起強度依存性の結果から 1.493eV の発光は励起強度に比例し、1.509eV の発光は励起強度の二乗に比例しており、1.493eV の発光が励起子、1.509eV の発光が励起子分子による発光であると報告されている。この様に GaAs 中の等電子トラップによる励起子分子の束縛エネルギーは負の値(励起子分子発光が励起子発光と比べて高エネルギー側となる)をとる。さらに偏光特性の結果から、等電子トラップによる励起子、励起子分子発光は複数の発光ピークから成り、複数の発光は互いに直交する直線偏光特性を示すと報告されている。

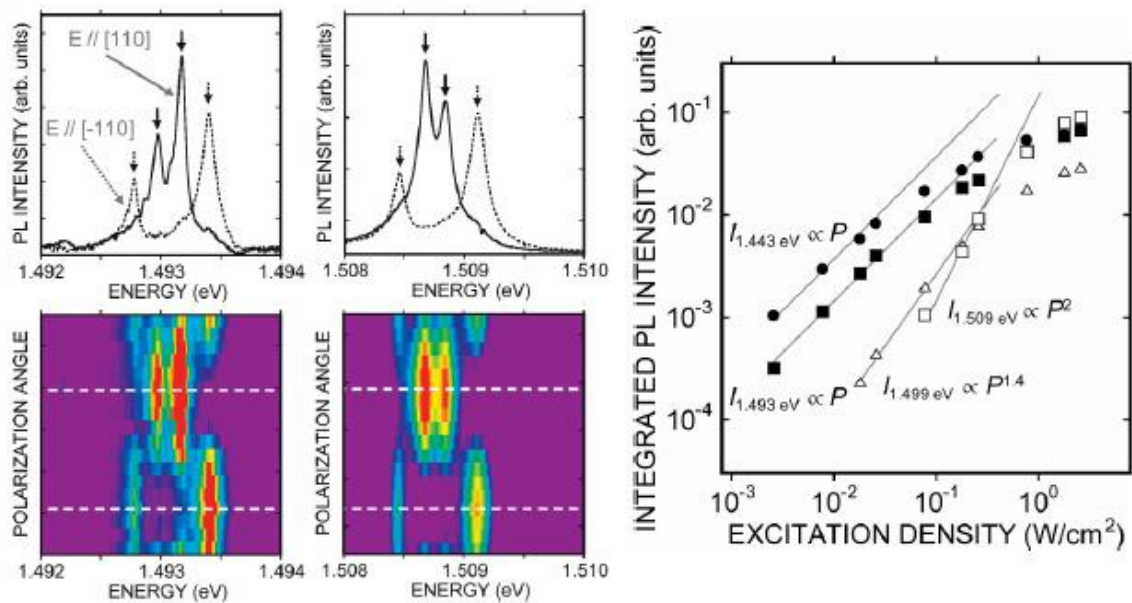


図 1.16 GaAs:N 中の等電子トラップによる PL スペクトル、偏光特性と励起強度依存性[29]

1.5.1 GaAs 中の単一等電子トラップ

前述の通り単一光子源を目的として単一量子ドットなど様々な方法が提案されている。単一光子を得る方法として鋭い発光線が得られることや、窒素原子対の配列に対応して発光波長の再現性が良い発光が得られるなどの理由から GaAs 中の窒素原子対が形成する単一等電子トラップが注目され、多くの研究が行われている[30-34]。図 1.17 に単一等電子トラップによる PL スペクトルと偏光特性を示す[30]。GaAs(001)基板上に作製した単一等電子トラップからの発光は二つのピークに分裂し、高エネルギー側の発光が[1-10]方向、低エネルギー側の発光が[110]方向と、それぞれの発光ピークが直交する直線偏光であることが報告されている。

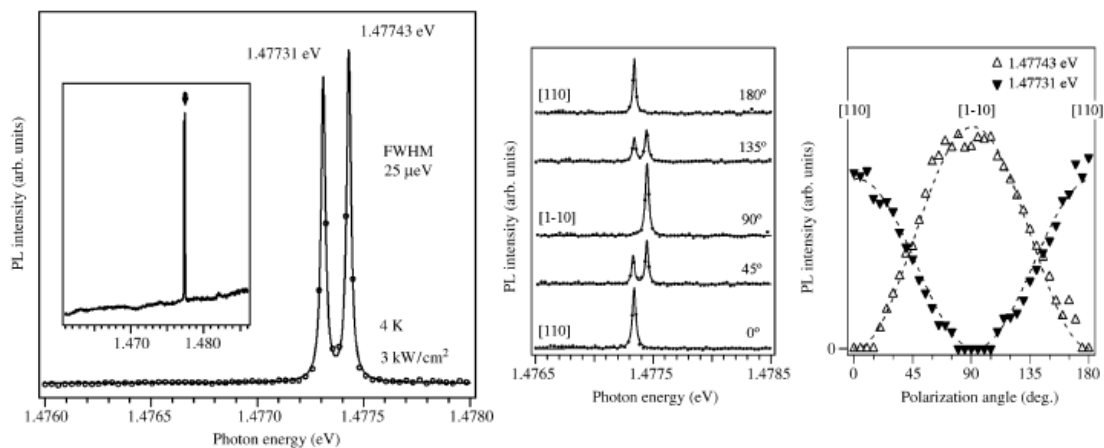


図 1.17 GaAs(001)上の単一等電子トラップによる PL スペクトルと偏光特性[30]

図 1.18 に単一等電子トラップによる発光の 2 次元マッピングと偏光特性を示す[31]。2 次元マッピングの図から単一等電子トラップによる発光範囲は局所的であることがわかる。また、偏光特性の結果から、単一等電子トラップによる発光が 4 つの発光ピークに分裂しており、内側 2 つの発光ピークと両脇 2 つの発光ピークが直交する直線偏光であることが報告されている。

図 1.19 に単一等電子トラップからの発光の PL スペクトル、偏光特性と HBT 測定の結果を示す[32]。PL スペクトルから単一等電子トラップから得られた発光がシングルピークの発光であることがわかる。また、偏光特性の結果からその発光が[110]方向の直線偏光であることがわかる。シングルピーク発光による HBT 測定の結果では良好なアンチバンチング特性が得られたことがわかる。

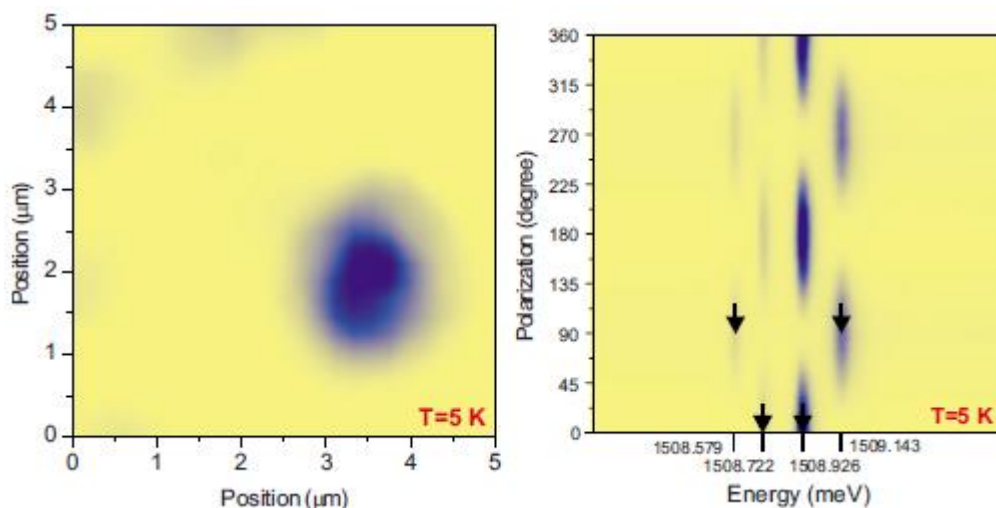


図 1.18 単一等電子トラップによる発光の 2 次元マッピングと偏光特性[31]

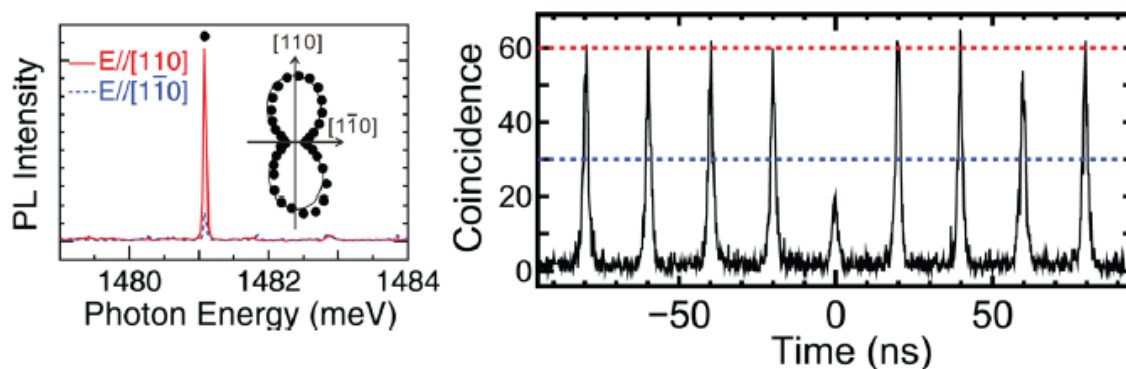


図 1.19 単一等電子トラップからの発光の偏光特性と HBT 測定[32]

1.6 本研究の目的

以上のように、単一光子源や量子もつれ光子対源などの非古典光発生源への実現に向けて様々な研究が行われている。本論文では以下の特長から GaAs 中の窒素原子対による単一等電子トラップに着目し研究を行った。

- ・ 発光線幅が狭い発光が得られること
- ・ 発光エネルギー値が窒素原子対の配列に対応して再現性が良いこと
- ・ 母体結晶である GaAs が電流注入に適していること
- ・ 比較的簡単に等電子トラップ(発光中心)が形成できる

しかし、これまでの研究から窒素 δ ドープ GaAs(001)中の単一等電子トラップによる発光は二つに分裂しそれぞれが直交する直線偏光であるなど量子情報技術の分野で用いる非古典光発生源への応用に向けて改善すべき点があげられている。

そこで本研究では GaAs 中の窒素原子対による単一等電子トラップからの非古典光の発光特性評価や物性解明、さらに発光特性改善を目的とし研究を行った。

1.7 本論文の構成

本論文の構成を以下に示す

第1章 序論

本章では、本研究の背景となる量子暗号技術の代表的な一例である BB84 や単一光子や量子もつれ光子対などの非古典光について紹介し、本研究で用いる GaAs 中の単一等電子トラップの特色などについて述べたあと、本研究の目的を述べている。

第2章 実験原理

この章では本研究で用いた実験原理について説明を行う。フォトルミネッセンス測定の原理や特徴を説明し、本研究で単一の等電子トラップを観測するために用いた顕微フォトルミネッセンス測定について具体的な例を出しながら説明を行った。最後に本研究で用いた試料の作製方法である有機金属気相エピタキシー法について説明し、実際に用いた試料について述べる。

第3章 GaAs 中の単一等電子トラップによる励起強度依存性

この章では同じ励起強度において単一等電子トラップの種類によって発光強度が異なることに着目し、量子暗号技術に用いる単一等電子トラップの種類選択の知見を得ることを目的に様々な単一等電子トラップに対して励起強度依存性を測定した。単一等電子トラップの発光モデルを考案し、励起強度依存性から窒素原子対の種類による相対的な発光再結合確率を求め、検討する。

第4章 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップからの発光

この章では GaAs 中の単一等電子トラップによる発光強度の増大と発光特性の改善を目的として窒素 δ ドープ GaAs を上下から AlGaAs 層で挟むダブルヘテロ構造を用いた試料における単一等電子トラップからの発光特性評価を行う。また、AlGaAs 層を用いない試料と比較し、その優位性と可能性について検討する。

第5章 GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光特性

GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光の偏光特性が同じ種類の窒素原子対においても異なることを示し、様々な種類の窒素原子対について偏光特性を測定することで窒素原子対の配列について検討を行い、量子暗号技術で必要とされているランダム偏光特性の可能性について述べる。

第6章 GaAs 中の単一等電子トラップによる励起子分子発光

この章では GaAs 中の単一等電子トラップから始めて観測することに成功した励起子分子発光について PL スペクトル、2次元マッピング、励起強度依存性を述べる。また、窒素原子対の種類による励起子分子発光も示し、単一等電子トラップによる励起子-励起子分子発光の特長などについて述べる。

第7章 単一等電子トラップによる発光の PLE 分光測定

GaAs 中の単一等電子トラップによる発光の物性解明を目的として、単一等電子トラップからの発光に対して PLE 分光測定を行った。励起子、励起子分子発光それぞれの PLE 測定の結果から励起子分子、励起子による量子もつれ光子対の高効率生成、選択励起などの可能性について検討を行う。

第8章 GaAs 中の単一等電子トラップによる発光の時間分解 PL 測定

この章では単一光子源において重要な知見である減衰時間についての知見を得るために時間分解 PL 測定を行った。本研究で初めて観測した励起子分子発光に対して時間分解 PL 測定を行い、励起強度の上昇に伴い速い減衰時間が現れるなどの特長から励起子分子発光の可能性について検討する。また、窒素原子対の種類による減衰時間の違いから量子情報技術で用いる単一等電子トラップの種類適性について述べる。

第9章 結論

この章では本研究における総括を述べる。

第2章

実験

2.1 フォトルミネッセンス測定の実験原理

図2.1 に直接遷移型半導体におけるフォトルミネッセンスの概念図を示す。研究対象であるGaAsは直接遷移型半導体であり、バンドギャップよりも大きいエネルギーの光を測定試料に照射すると、価電子帯から伝導帯へ電子が励起され、熱平衡状態に比べて過剰の電子・正孔対が形成される。これらの電子・正孔対がバンド内緩和などの過程を経て再結合する際に放出される発光をフォトルミネッセンスといい、その光を分光検出する光学測定をフォトルミネッセンス(PL:photoluminescence)分光法という。この測定は非接触・非破壊測定であることからバルク結晶、超格子構造や不純物による発光など様々な試料の光学的評価に用いられる。

GaAsに窒素をドーピングすると図2.2に示す様に等電子トラップによる準位が形成される。そのエネルギー準位は前述した様に等電子トラップを形成する窒素原子の個数や窒素原子対の距離によって異なる。したがって、PL測定を行い等電子トラップによる発光波長を観測することで窒素原子対の種類が断定が可能である。また、励起光の強度や、測定試料の温度を変えてPL測定を行うことで、励起強度依存性や温度特性など等電子トラップの発光特性評価が行える。

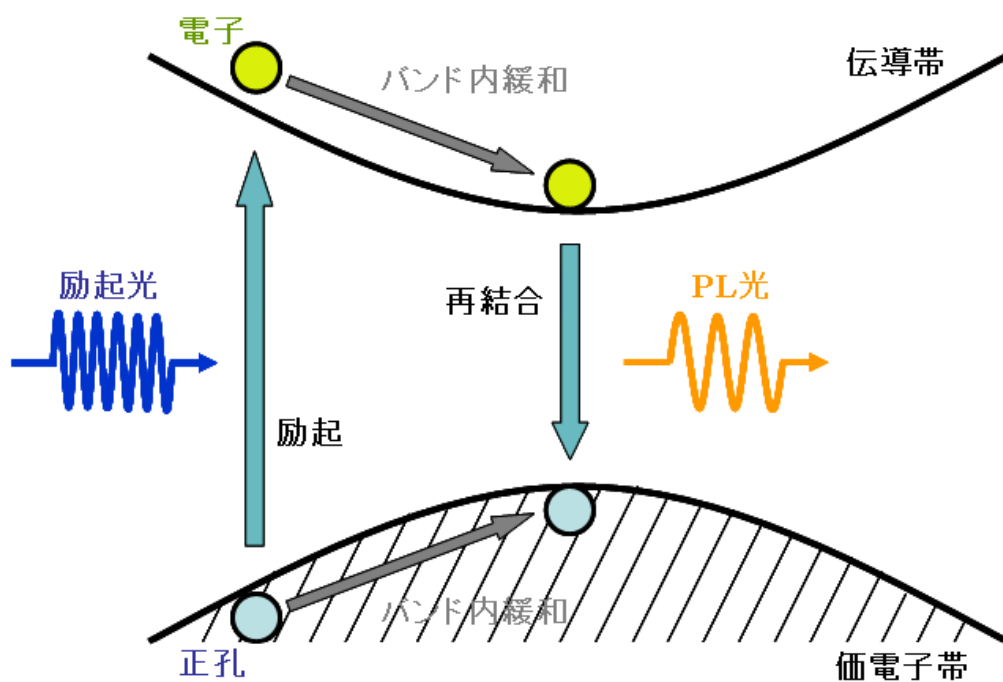


図 2.1 直接遷移型半導体におけるフォトルミネッセンスの概念図

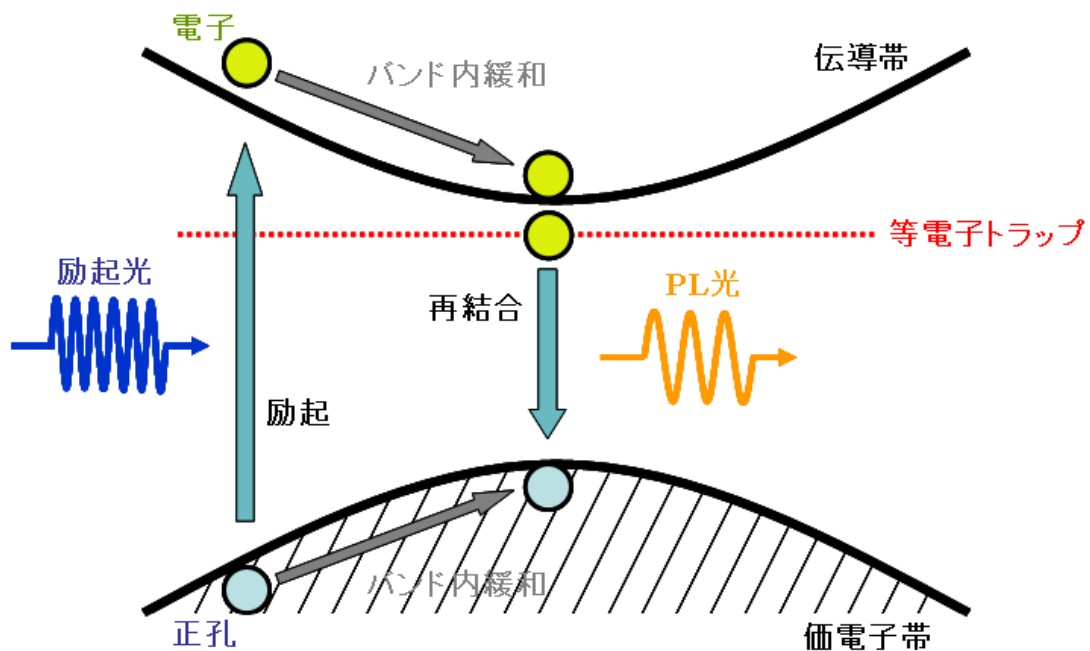


図 2.2 等電子トラップによる局在発光

2.2 顕微フォトルミネッセンス測定

本研究では単一等電子トラップによる発光を得るために深さ方向に窒素分布を制限する δ ドープ構造と空間分解能に優れている顕微 PL 測定を用いる。例えば、励起光の照射範囲を $100\ \mu\text{m}$ 程度で行うマクロ PL 測定を用いて深さ方向に窒素分布を持つ一様ドープ GaAs:N を測定した場合には図 2.3 に示す様に様々な等電子トラップからの発光が得られる。これは窒素原子が測定範囲、さらには深さ方向に多数存在するためである。

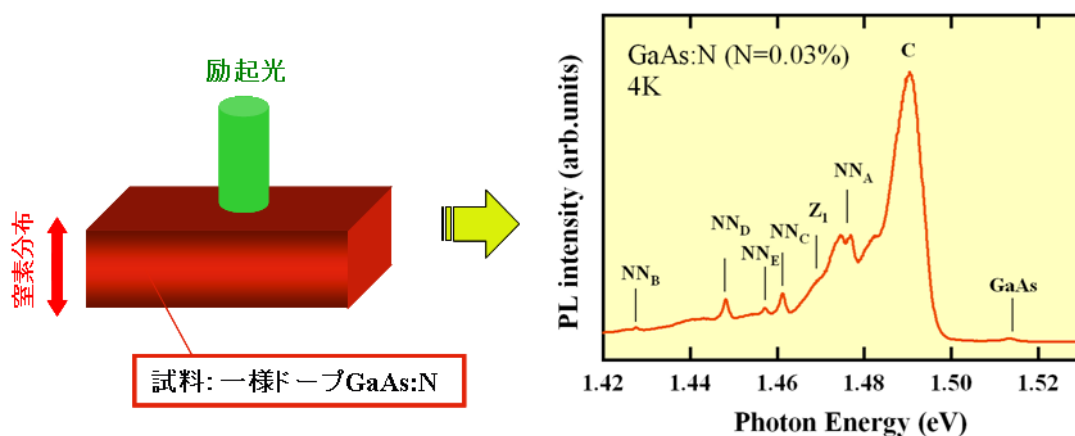


図 2.3 極低窒素濃度 GaAs:N のマクロ PL 測定

励起光を $1\ \mu\text{m}$ 程度に絞った顕微 PL 測定を用いて、一様ドープ GaAs:N を測定した場合には図 2.4 に示すような PL スペクトルが得られる。2つのスペクトルは異なる場所での PL スペクトルを表している。場所依存性の結果から、それぞれの場所で様々な等電子トラップからの発光が得られた。これは測定範囲を制限しても深さ方向に存在する多くの等電子トラップが同時に励起されるためである。

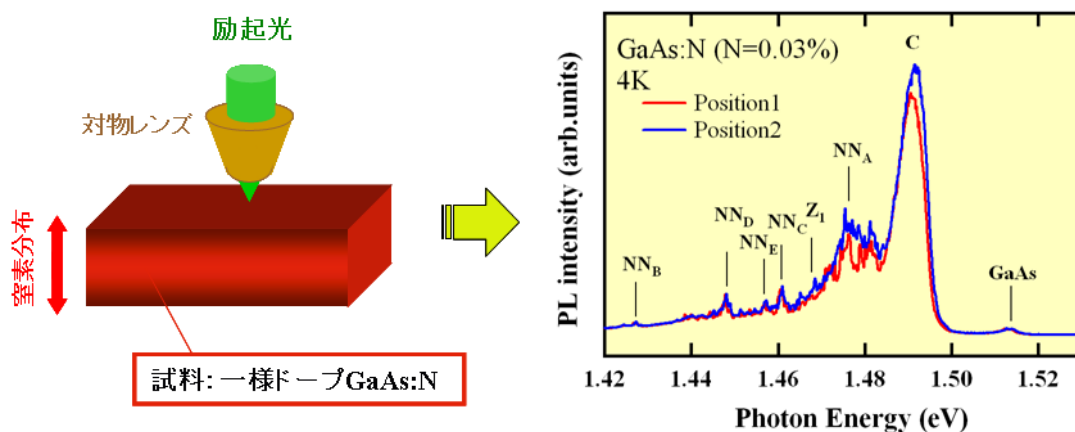


図 2.4 極低窒素濃度 GaAs:N の顕微 PL 測定

次に深さ方向に窒素分布を制限した δ ドープ構造を用いた試料にマクロ PL 測定を用いた場合の PL スペクトルを図 2.5 に示す。深さ方向に制限をかけることで窒素原子対による発光の状態密度が低下し、励起範囲の広いマクロ PL では母体結晶の発光が支配的になり、等電子トラップからの発光を観測することはできない。

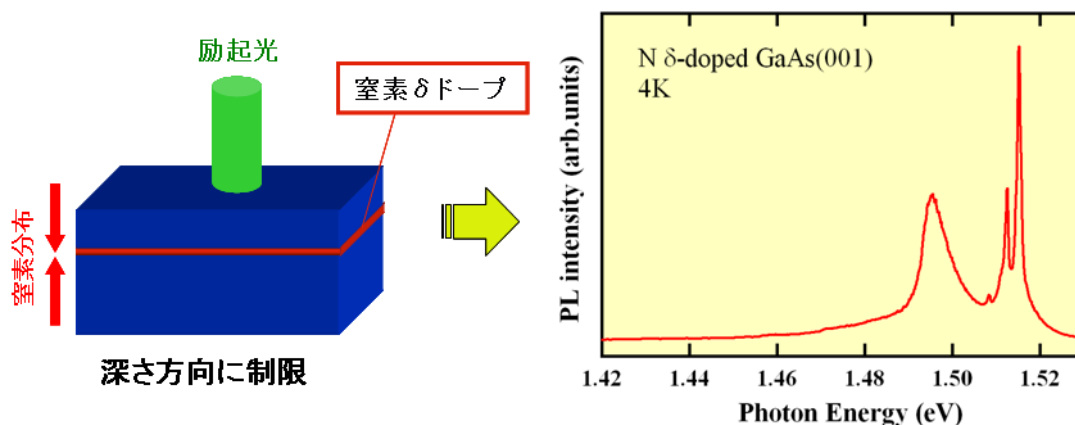


図 2.5 窒素 δ ドープ GaAs のマクロ PL 測定

窒素 δ ドープ GaAs 構造に顕微 PL 測定を用いた場合の PL スペクトルを図 2.6 に示す。単一等電子トラップによる発光が観測できることがわかる。これは照射範囲を絞ることで発光範囲の狭い単一等電子トラップによる発光が母体結晶や不純物による発光より相対的に強くなるためである。この様に単一等電子トラップの様な局所的で状態密度の低い発光中心の測定には面内方向、深さ方向ともに制限をかけた測定が重要である。

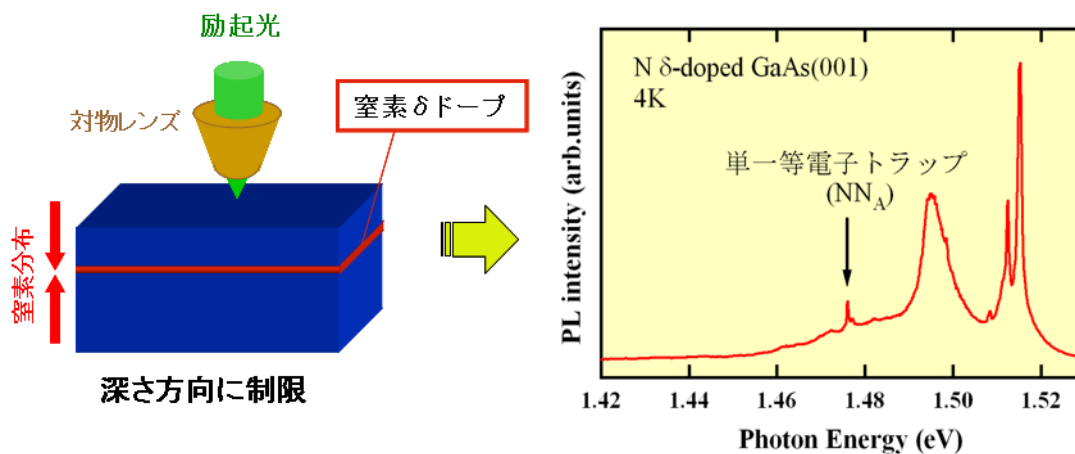


図 2.6 窒素 δ ドープ GaAs の顕微 PL 測定

本研究で用いた顕微PL測定系の概略図を図2.7に示す。測定温度は4Kで行った。励起光源として波長532nmのDPSSレーザを使用し、対物レンズによってスポット径を $1\mu\text{m}$ 程度まで集光して試料に照射した。試料からのPL光はブレイズ波長750nm・グレーティング300g/mmまたは、1200g/mmの回折格子で分光し、CCDを用いて検出した。顕微PL測定のエネルギー分解能はグレーティング1200g/mm、分光器のスリット幅 $20\mu\text{m}$ の場合、約 $30\mu\text{eV}$ である。偏光特性測定時には顕微PL測定システムに偏光板を組み込んだ。その際、システム内で使用したビームスプリッタおよびミラーには偏光特性のないものを使用した。

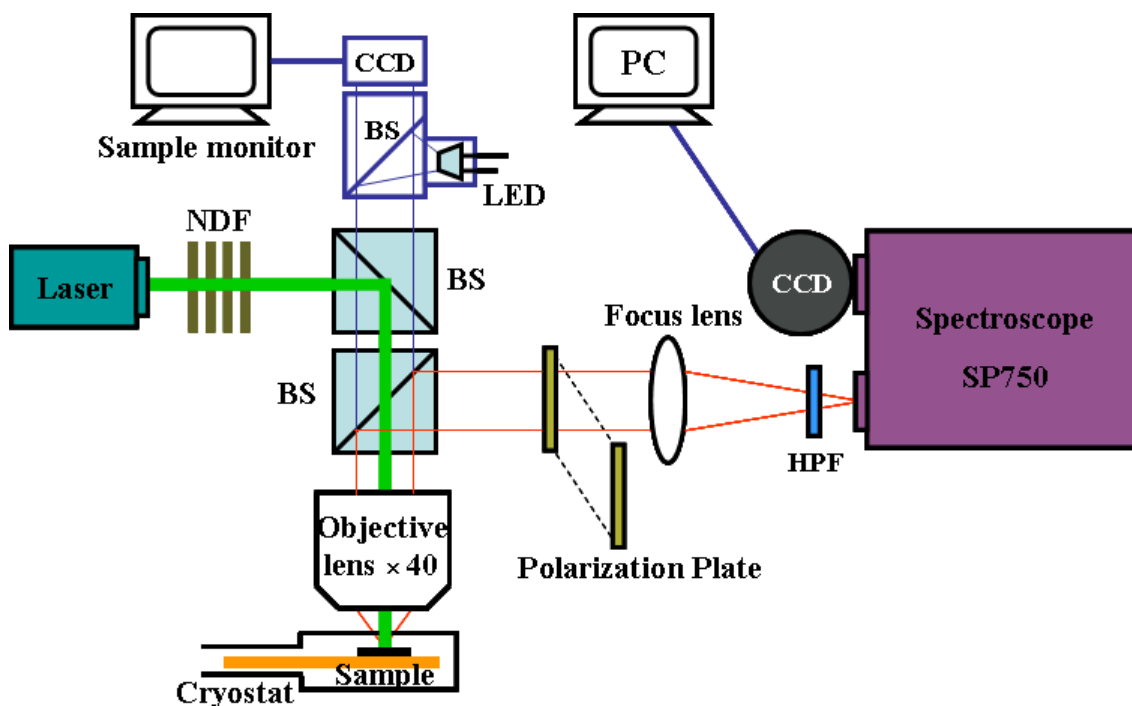


図 2.7 顕微フォトルミネッセンス測定系概略図

2.3 有機金属気相エピタキシー法

有機金属気相エピタキシー(Metalorganic Vapor Phase Epitaxy : MOVPE)法とは、化学気相堆積(Cheical Vapor Deposition : CVD)法の一つで、有機金属化学気相堆積(Metalorganic Chemical Vapor Deposition : MOCVD)法とも呼ばれることがある。化合物半導体の薄膜成長の場合にはエピタキシャル成長を目的とする意味で MOVPE 法と呼ばれることが多い。結晶成長には有機金属化合物や水素化合物を原料としてキャリアガスを用いて反応管内に供給し、熱分解反応によって基板上にエピタキシャル膜を作製する手法であり、現在では分子線エピタキシー(Molecular Beam Epitaxy : MBE)法と並び化合物半導体の薄膜結晶成長法として非常に有効な手段の一つである。

MOVPE 法は、気相成長のため結晶面内の平坦性が高く、MBE 法と比べて成長速度が速いことや、大気圧から低真空領域での反応を用いるため MBE 装置のような超高真空が必要ないために装置の大型化が可能で大量生産に向いているなどの特長がある。しかし、ヒ素原料であるアルシン(AsH_3)などの毒性が極めて強いガスや発火性を有する有機金属原料を用いるため使用には十分気をつける必要がある。また、有機金属を原料としているため、結晶中に炭素原子が混入することが避けられないなどの欠点もある。

図 2.8 に本研究で用いた MOVPE 装置の概略図を示す。ガリウム源、ヒ素源、窒素源、アルミニウム源には、それぞれトリメチルガリウム(TMGa)、ターシャルブチルアルシン(TBAs)、ジメチルヒドラジン(DMHy)、トリメチルアルミニウム(TMAI)を使用し、恒温槽温度はそれぞれ-10、5、20、17°Cとした。反応管内圧力は 60Torr、成長温度は RF コイルの出力値で設定を行った。また、成長中にパイロメータを用いて基板温度を確認した。反応管に供給されるガスは質量流量コントローラー(Mass Flow Controller : MFC)によって全て流量を制御されている。TMG などの有機金属原料はシリンダに液状でつめられており、浄化器を通した水素ガスによってバブリングを行い、原料は水素ガス中に蒸気として含まれた状態で基板まで輸送される。有機金属の入ったシリンダを通った水素には、恒温槽温度における飽和蒸気圧分の原料が蒸気として含まれるため、バブリングに用いられる水素ガス流量と恒温槽温度によって原料供給量を制御する。基板にはアンドープ GaAs(001)、GaAs(110)を用い、成長前処理としてメタノール、アセトン、トリエチルクロロエチレンの有機溶媒中で超音波洗浄を行った後、アンモニア：過酸化水

素水 : 水 = 15:5:480 の比率で配合したエッチャント液で 1 分間のエッチング処理を行っている。エッチング後は 10 分間の流水洗浄を行った。

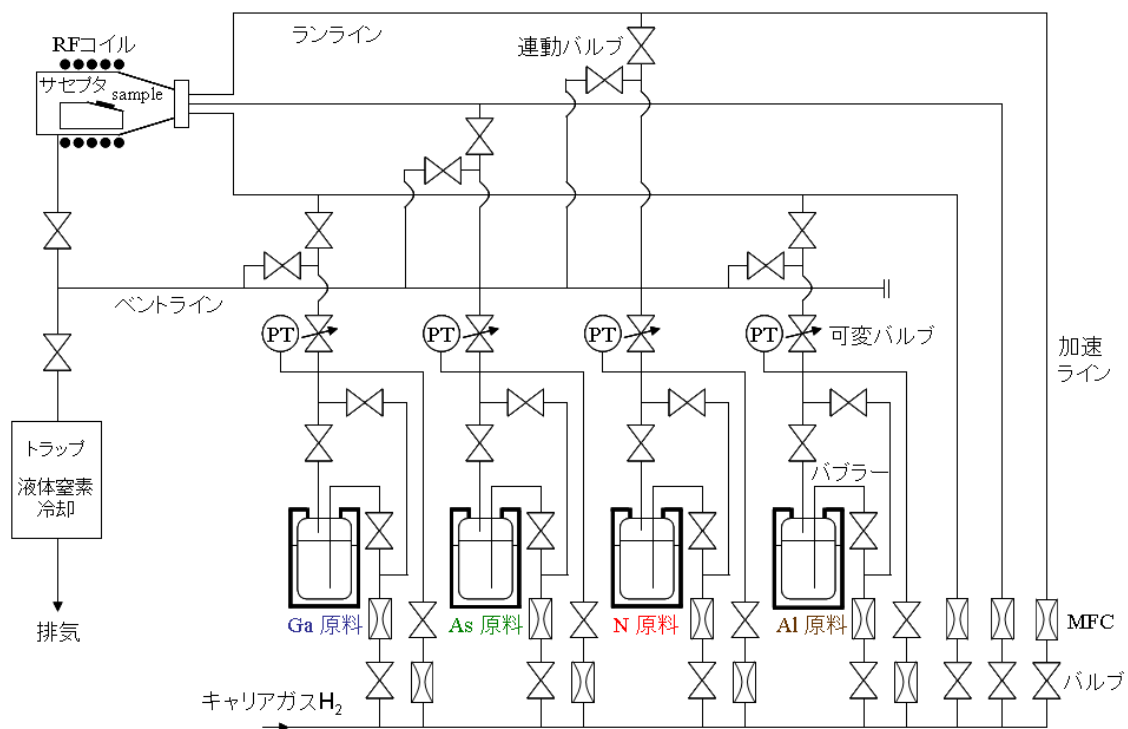


図 2.8 MOVPE 装置の概略図

図 2.9 に GaAs(001)基板上に作製した窒素 δ ドープ GaAs 試料のタイムチャートと試料構造を示す。基板を熱クリーニングした後、膜厚 300nm の GaAs バッファ層を成長し、窒素 δ ドープ層を施し、膜厚 40nm の GaAs キャップ層を成長した。窒素 δ ドーピング層は TMGa の供給を止めることで GaAs の成長を 5 秒間中断し、その間に DMHy を供給することで行った。成長温度は 600℃、DMHy 供給量は 500μmol/min、V/III比は 15 で GaAs の成長速度はおよそ 1nm/s で成長を行った。

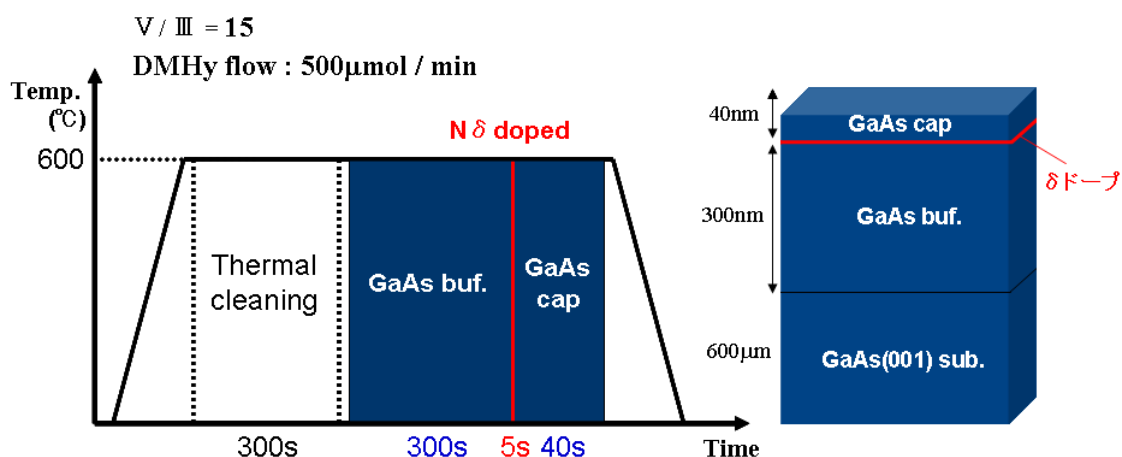


図 2.9 GaAs(001)基板上に作製した窒素 δ ドープ GaAs 試料のタイムチャートと構造

図 2.10 に GaAs(110)基板上に作製した窒素 δ ドープ GaAs 試料のタイムチャートと試料構造を示す。GaAs(001)基板上に作製した試料構造と同様に膜厚 300nm の GaAs バッファ層を成長し、窒素 δ ドープした後、膜厚 40nm の GaAs キャップ層を成長した。成長温度は 630℃、DMHy 供給量は 500μmol/min、V/III比は 8 で GaAs の成長速度はおよそ 1nm/s で成長を行った。

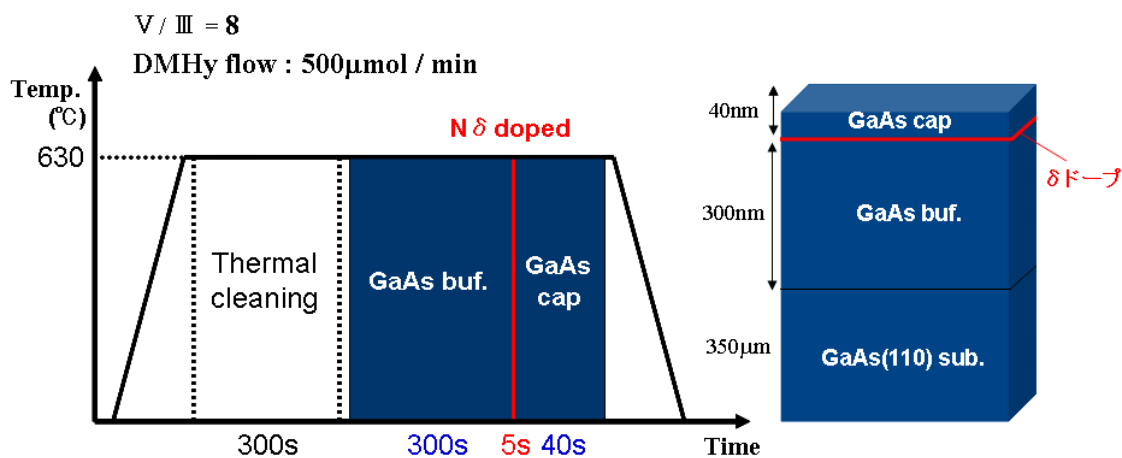


図 2.10 GaAs(110)基板上に作製した窒素 δ ドープ GaAs 試料のタイムチャートと構造

図 2.11、図 2.12 に GaAs(001)基板上に作製した窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 試料のタイムチャートと試料構造を示す。始めに 650°C で熱クリーニングを行いその後 GaAs バッファ層 1 μm 程度成長させ、その成長温度のまま障壁層である AlGaAs 層を 50nm、さらに N をドーピングするために成長温度を 600°C まで下げて窒素 δ ドープ GaAs 層を成長させ、再び成長温度を 650°C に戻し、AlGaAs 層、GaAs キャップ層を成長させた。DMHy 供給量 500 μmol/min、V/III 比 15、Al 組成 30% で、GaAs と AlGaAs の成長速度はそれぞれおよそ 0.8nm/s、1.2nm/s で成長を行った。成長後、X 線回折、分光エリプソメータを用いて膜厚、組成などの測定を行った。

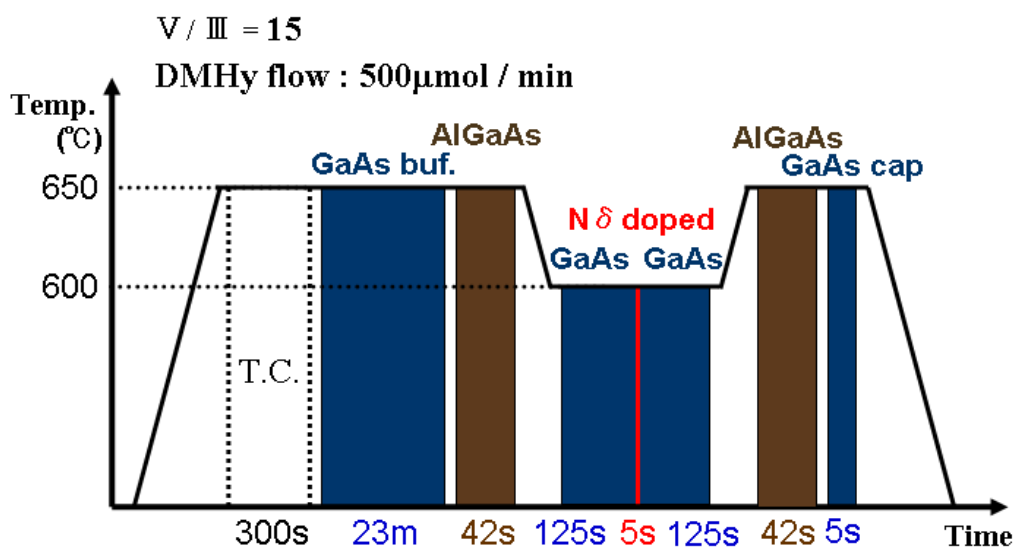


図 2.11 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 試料のタイムチャート

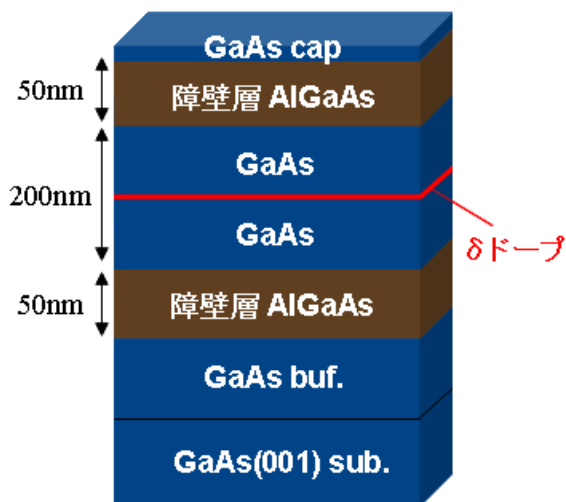


図 2.12 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 試料の試料構造

第3章

GaAs 中の単一等電子トラップによる励起強度依存性

3.1 序

単一の等電子トラップには同時に一つの励起子しか取り込まれないため、十分な数のキャリアが供給された場合、単一等電子トラップから放出される光子の数は励起子のライフタイム、すなわち励起子を取り込まれて消失(光子を放出)するまでの時間に依存する。図 3.1 に窒素 δ ドープ GaAs(001)中の様々な単一等電子トラップから得られた励起強度 $11.7 \mu\text{W}$ 時の発光スペクトルを示す。同じ励起強度において窒素原子対の種類によって発光強度が異なっていることから、種類によってライフタイムなどの発光特性が異なっている可能性がある。そこで、この章では単一光子源応用に向けた窒素原子対の種類選択の知見を得ることを目的とし、窒素 δ ドープ GaAs(001)中の単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性から窒素原子対の種類による相対的な発光再結合確率を求める。

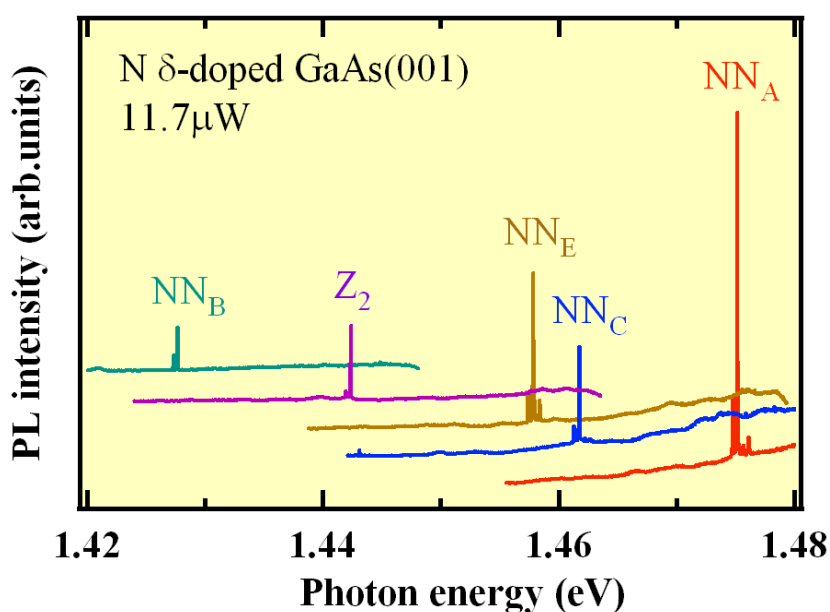


図 3.1 窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップによる発光

3.2 単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性

図3.2に窒素 δ ドープGaAs(001)中の単一等電子トラップ(NN_A)による発光の励起強度依存性スペクトルを示す。スペクトルから単一等電子トラップによる発光がダブルピークで、励起強度の上昇により発光強度が増加し、やがて飽和状態になっていることがわかる。GaAs(001)基板の上に作製した試料中の単一等電子トラップからの発光は、GaAs中に窒素原子を混入することで生じる面内歪の異方性により二つのピークに分裂すると報告されている[30]。図3.3に励起強度依存性スペクトルから得られた発光強度プロットを示す。励起強度が比較的弱い領域では励起強度に比例して上昇し、励起強度を上げるとやがて発光強度は飽和していく。また、さらに励起強度をあげると発光強度が下がる。これはキャリア密度の上昇によって形成される励起子分子発光に寄与することや、バックグラウンド発光の上昇に埋もれてしまい低く見積もられてしまうことなどが原因として考えられる。

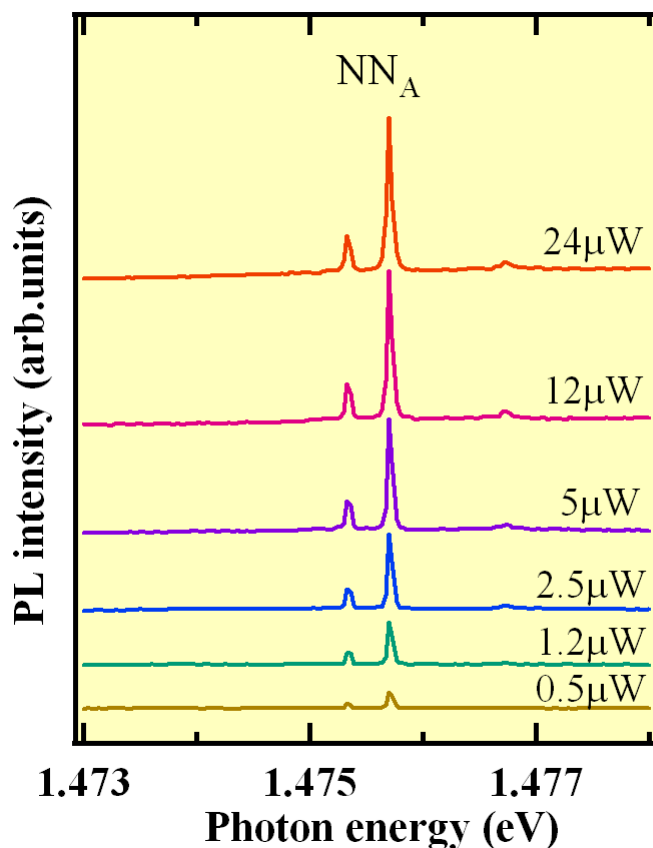


図 3.2 単一等電子トラップ(NN_A)による発光の励起強度依存性スペクトル

図 3.3 に示した単一等電子トラップによる励起強度依存性について、以下のような考えに基づいて解析を行った。単一等電子トラップに供給されたキャリアは全て R/τ の速さで光子として放出される。また、単一等電子トラップにキャリアが存在している時、キャリアの供給は行われぬ。以上のことから占有確率のレート方程式と発光強度の関係式は

$$\frac{dR}{dt} = -\frac{R}{\tau} + (1-R)CP = 0 \quad \dots (1)$$

$$I \propto \frac{R}{\tau} \quad \dots (2)$$

で与えられる。ここで、 R 、 τ 、 C 、 P 、 I はそれぞれキャリアの存在確率、キャリア寿命、キャリアの実効的供給効率、励起強度、発光強度を表している。式 (1) ではキャリアの存在確率の時間変化を表しており、 R/τ でキャリアが消失し、定数 C と励起強度 I 、さらに $(1-R)$ 、すなわちキャリアの存在しない確率に比例してキャリアが供給される。これらの式から発光強度 I は

$$I \propto \frac{CP}{1+CP\tau} \quad \dots (3)$$

この様に与えられる。図 3.3 に示すフィッティング結果は式 (3) を用いて行われており、実験結果と非常に一致していることがわかる。また、この式から励起強度 P が非常に大きい場合 ($P \gg 1$) には発光強度 I は

$$I \propto \frac{1}{\tau} \quad \dots (4)$$

この様になることがわかる。これは単一等電子トラップからの発光では、十分なキャリア供給を行うことでその発光強度が発光再結合確率 ($1/\tau$) に比例することを示している。すなわち励起強度依存性の収束値が単一等電子トラップによる発光の発光再結合確率 ($1/\tau$) になることを示している。

図 3.4 に同一試料内の同一ラベル (NN_A) から得られた発光の励起強度依存性を示す。それぞれ初期の線形領域での傾き ($I \propto CP$)、飽和する値がほぼ同じ値を示すことがわかる。これらの結果から、同じ種類の単一等電子トラップによる発光であれば、励起強度依存性から求めた発光再結合確率が概ね一致することがわかった。

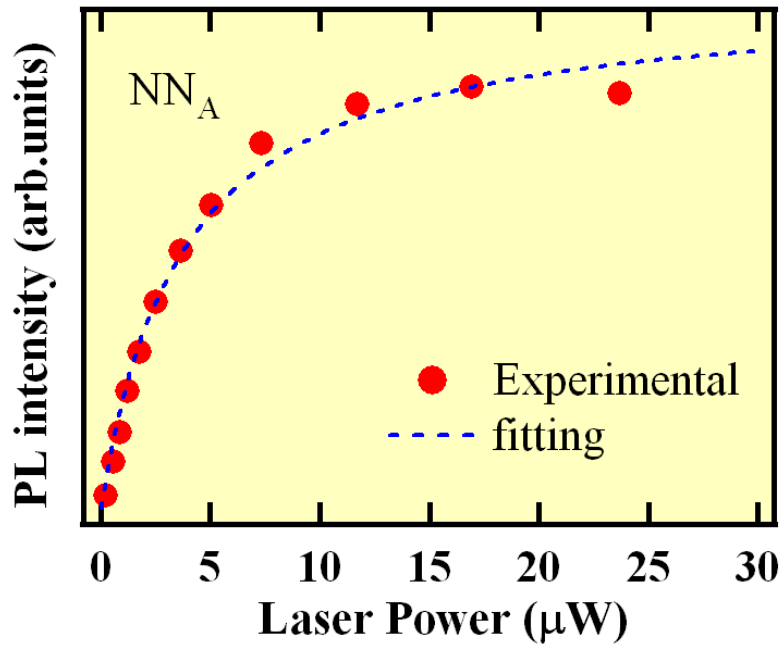


図 3.3 単一等電子トラップ(NN_A)による発光強度の励起強度依存性

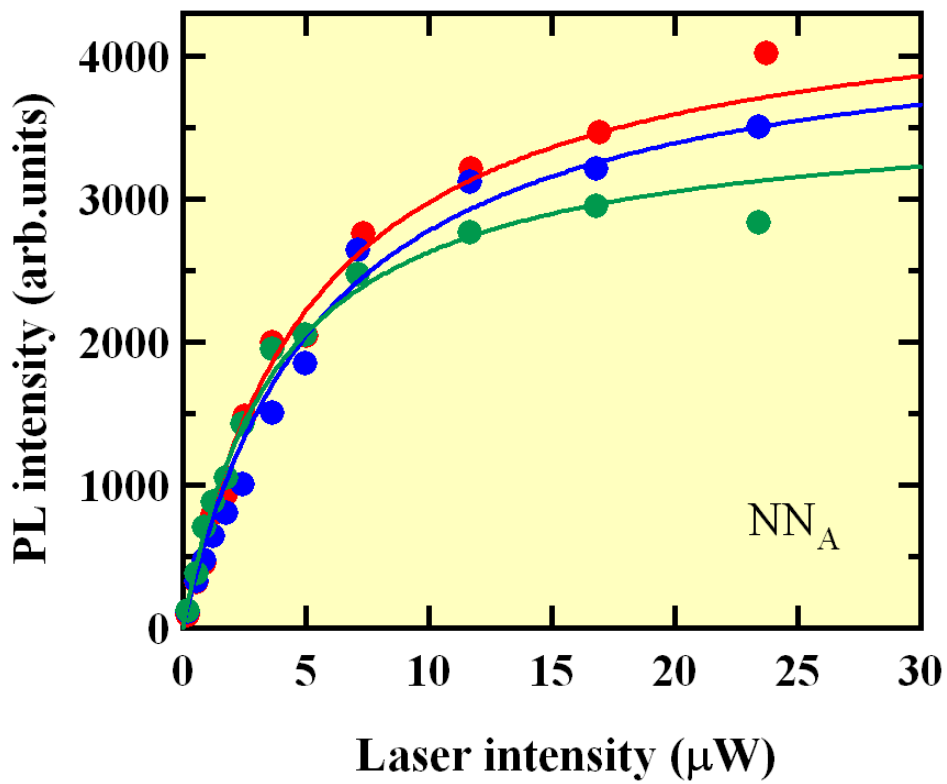


図 3.4 同一試料内から得られた単一等電子トラップによる発光強度の励起強度依存性

3.3 窒素原子対の種類依存性

単一等電子トラップ(NN_A)による発光の励起強度依存性から同じ種類の窒素原子対では、励起強度依存性から得られる初期の線形領域での傾き($I \propto CP$)や飽和する値($1/\tau$)がほぼ同じ値になることがわかった。ここでは窒素原子対の種類による励起強度依存性の違いについて検討するために様々な単一等電子トラップによる発光に対して励起強度依存性の測定を行った。例として図 3.5、図 3.6 に NN_B 、 NN_C とラベル付けされた単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性を示す。これらの実験結果は同一条件下で同じ試料内から得られた単一等電子トラップによる発光で測定を行い、発光強度の比較を行った。同じ種類の窒素原子対では励起強度依存性の収束値 ($1/\tau$) は 20% 程度のばらつきがあるものの非常に再現性が高いことがわかる。

図 3.7 にそれぞれの窒素原子対の種類による発光から得られた励起強度依存性の平均値を示す。また、表 3.1 に各窒素原子対での励起強度依存性フィッティングから求めた発光再結合確率を示す。発光エネルギーが高い窒素原子対の種類程、発光再結合確率が高い傾向にあることがわかる。結果から GaAs 中の単一等電子トラップによる発光は高エネルギー側の発光程ボア半径が大きい傾向にあると考えられる。また、GaP 中の窒素原子対による単一等電子トラップでは実験的に高エネルギー側の発光程ボア半径が大きい傾向にあると報告されている[35]。 NN_E 発光の様に傾向に当てはまらない発光もある。

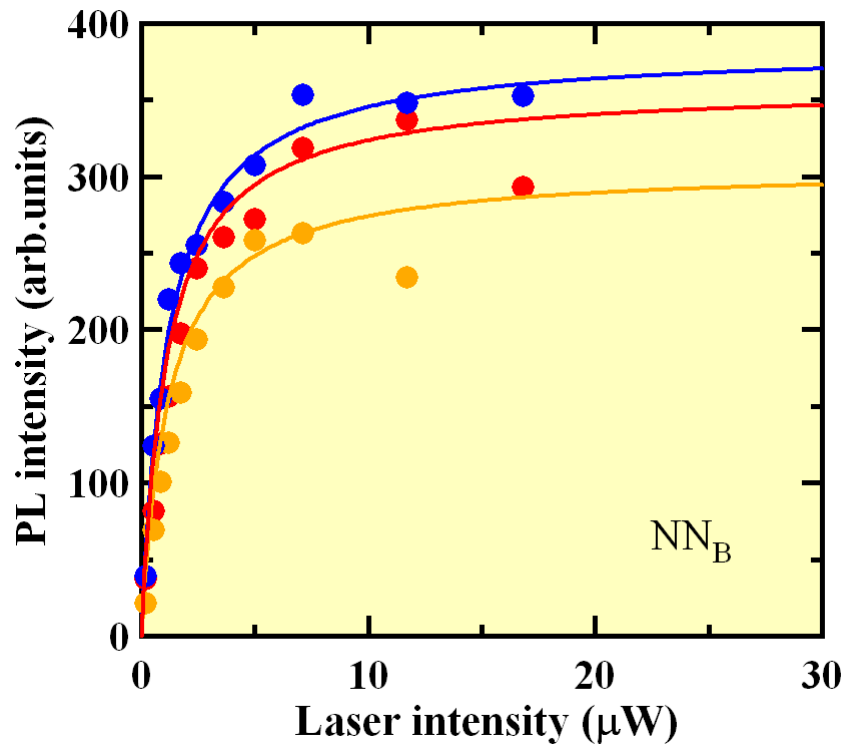


図 3.5 NN_B 発光の励起強度依存性

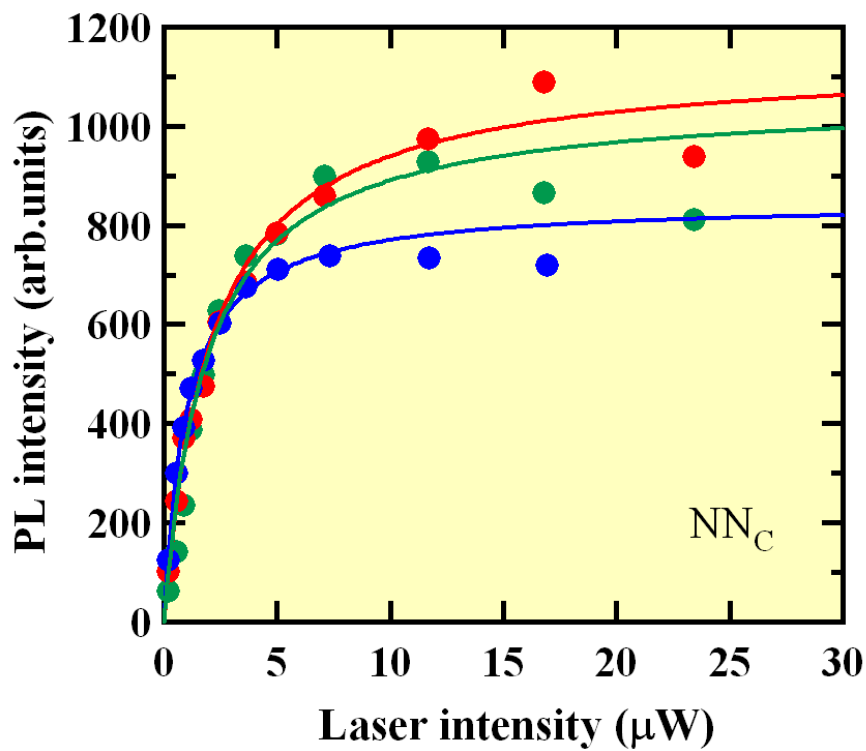


図 3.6 NN_C 発光の励起強度依存性

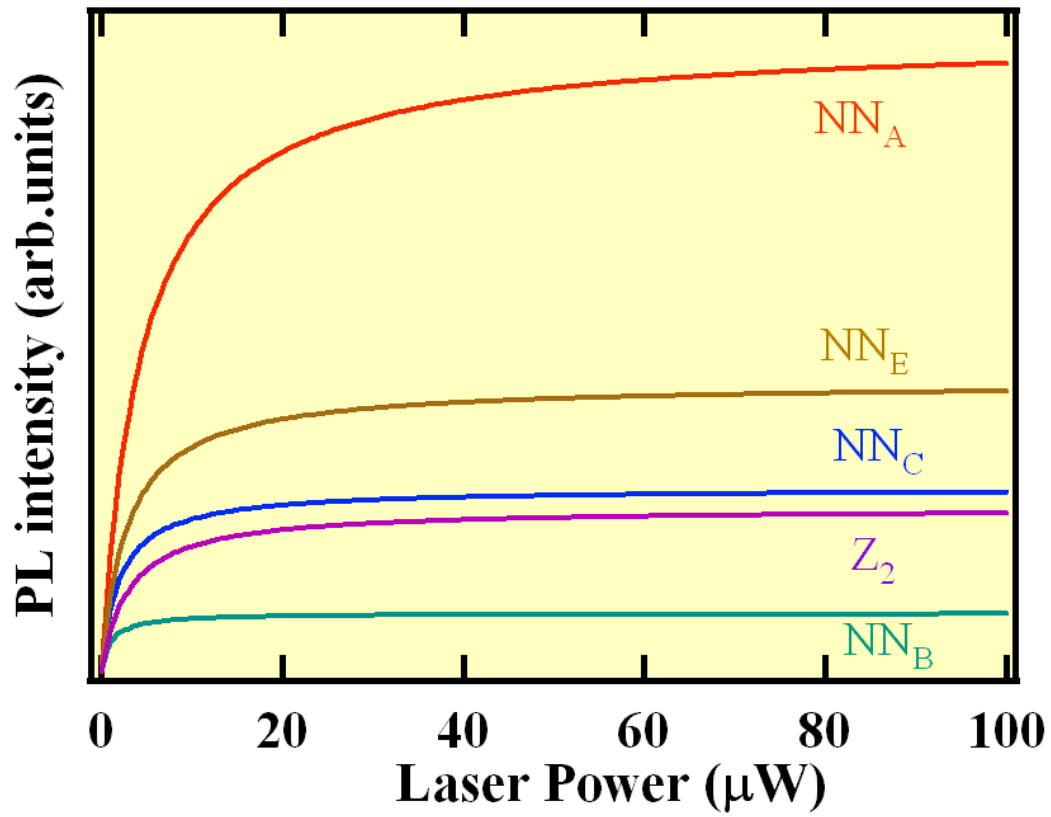


図 3.7 各単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性スペクトル

表 3.1 単一等電子トラップの種類と発光再結合確率

ラベル	発光エネルギー (eV)	発光再結合確率 $1/\tau$
NN_A	1.476	10.9
NN_C	1.462	3.1
NN_E	1.458	5.0
Z_2	1.444	2.8
NN_B	1.428	1.0

3.4 まとめ

単一光子源への応用に向けて窒素原子対の種類選択に関する知見を得るために、GaAs 中の単一等電子トラップによる発光に対して励起強度依存性の測定を行った。単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性に対してフィッティングを行うことで発光再結合確率 $1/\tau$ を求めた。同じ種類の窒素原子対では励起強度依存性の収束値である発光再結合確率はほぼ同じ値をとることがわかった。単一等電子トラップの種類によって発光再結合確率は異なり、その値は高エネルギー側の発光ほど、高い値をとる傾向であることがわかった。GaAs 中の単一等電子トラップによる発光は高エネルギー側の発光ほどボア半径が大きい傾向にあると考えられる。

以上の結果から、単一光子源への応用に向けて、単一等電子トラップの種類選択に関する重要な知見が得られた。

第 4 章

窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップによる発光

4.1 序

GaAs(001)基板上に成長を行った窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップからの発光は 2 つに分裂して、それぞれが直交する直線偏光であると報告されている。これは図 4.1 に示す様に N 原子の原子半径が As 原子と比べて小さいために N 原子が As 原子サイトに置換されると歪が生じ、さらに窒素 δ ドープ層から見た上下の GaAs 層の膜厚の違い(上部が下部に比べて圧倒的に薄いために N 原子の上部の Ga 原子が N 原子混入による影響を大きく受ける)によって生じる面内歪の異方性により、縮退が解けたことが原因であると考えられている。そこで図 4.2 に示す窒素 δ ドープ GaAs を上下から AlGaAs 層で挟んだダブルヘテロ構造を考えた。格子定数の異なる AlGaAs 層で上下から GaAs 層を挟み、その中心に窒素 δ ドープ層を作製することで、GaAs 層の膜厚の違いによって生じる面内歪の異方性を解消し、シングルピークでランダム偏光である発光が得られると考えた。さらにこの構造では、バンドギャップ幅が大きい AlGaAs 層で窒素 δ ドープ層を挟むことで AlGaAs 層が障壁層となり、キャリアを閉じ込めることで等電子トラップによる発光を強くできると考えた。

この章では、GaAs(001)基板上に窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs ダブルヘテロ構造を作製し、その試料における単一等電子トラップからの発光特性評価を行った。

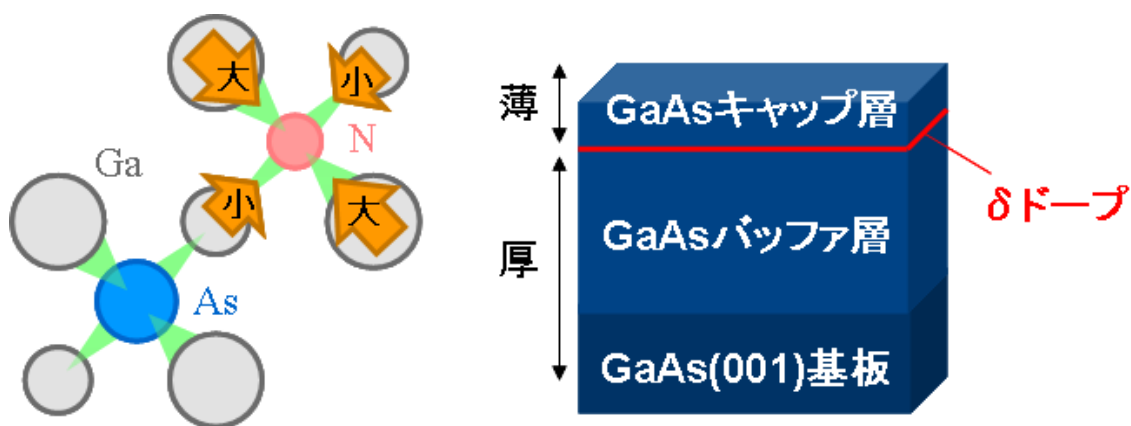


図 4.1 GaAs(001)面の上面図と窒素 δ ドープ試料構造

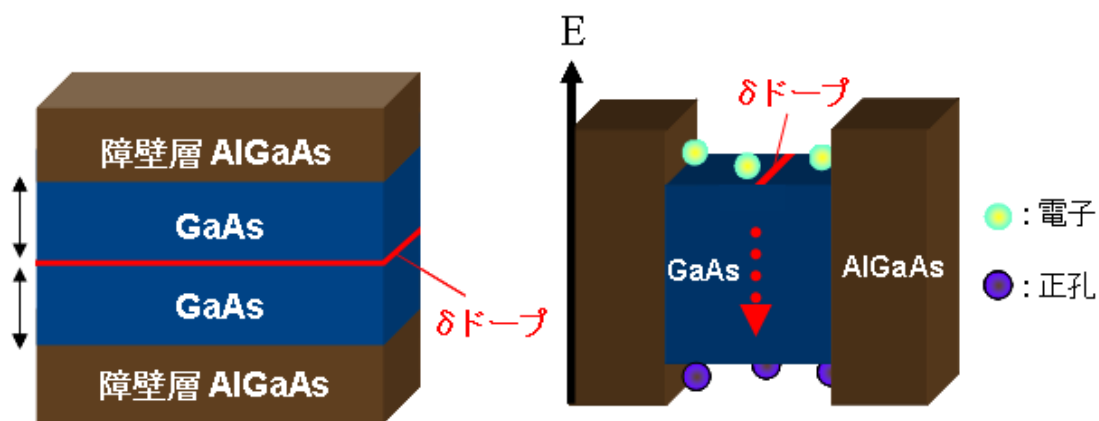


図 4.2 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs の試料構造とエネルギー構造

4.2 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップ

図 4.3 に窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップによる発光スペクトルとマッピングを示す。発光スペクトルの結果から単一等電子トラップ(Z_1)による発光は半値幅 $120 \mu\text{eV}$ 程度の鋭いシングルピーク発光であることがわかる。また、マッピングの結果から発光が $4 \mu\text{m}$ 程度の局在した発光であるため、単一の等電子トラップによる発光であることがわかる。図 4.4 に単一等電子トラップ(Z_1)からの発光に対する偏光特性プロットを示す。偏光角度 $0 \sim 180^\circ$ まで発光強度がほぼ同じ値が観測されたことからこの発光がランダム偏光であることがわかる。量子暗号では情報として偏光方向を使用するため、用いる単一光子源はランダム偏光が望ましいとされている。これらの結果は、AlGaAs 層で窒素 δ ドープ GaAs 層を上下から挟み、面内歪の異方性を解消することが

できたためだと考えられる。また、同じ試料内から半値幅 100μ 程度の2つに分裂した発光や、シングルピークで直線偏光の発光など様々な特性の発光が観測された。これは AlGaAs 混晶の面内における組成ゆらぎや、不均一な結晶性が原因であると考えられるため AlGaAs 層や活性層である GaAs 層の成長条件を検討していく必要がある。

図 4.5 に窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップ(NN_E)と窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップ(NN_E)による発光の励起強度依存性プロットとフィッティング結果を示す。フィッティング関数は前述のものを用い、収束値である発光再結合確率 $1/\tau$ が同じになる様に規格化を行った。今回用いた窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップからの発光は障壁層(AlGaAs 層)がない試料と比べて、初期の線形領域 ($I=CP$)での傾きが約 8 倍高いことがわかった。すなわちキャリアの実効的供給効率 C が約 8 倍高くなっている。これは障壁層によりキャリアが試料表面や、基板側に拡散することを防ぐことや、障壁層からのキャリアの流れ込みなどの効果が考えられる。以上の様に、窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 層を用いることで、ランダム偏光である発光が得られ、さらにキャリアの実効的供給効率を 8 倍に上げることに成功した。

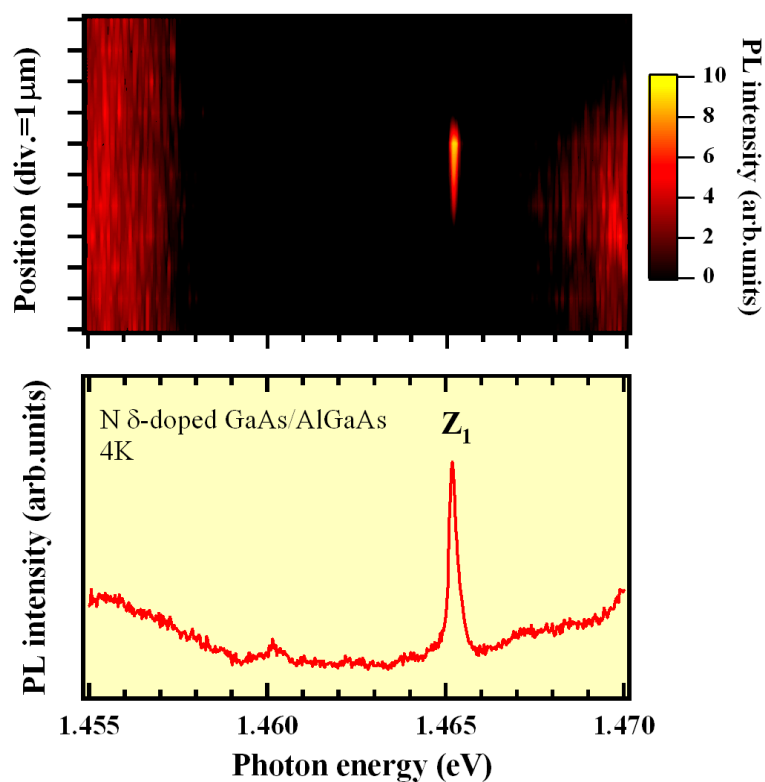


図 4.3 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップによる発光スペクトルとマッピング

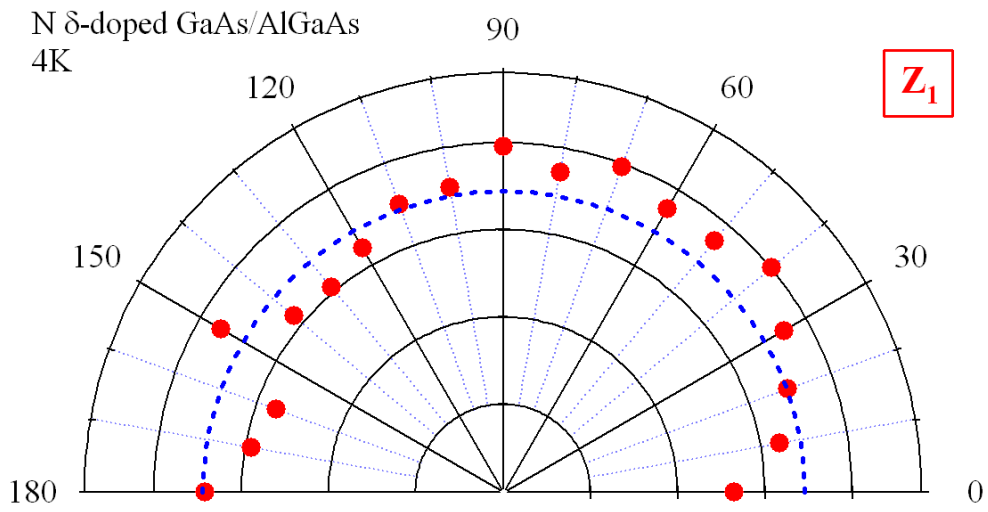


図 4.4 単一等電子トラップ(Z_1)による発光に対する偏光特性プロット

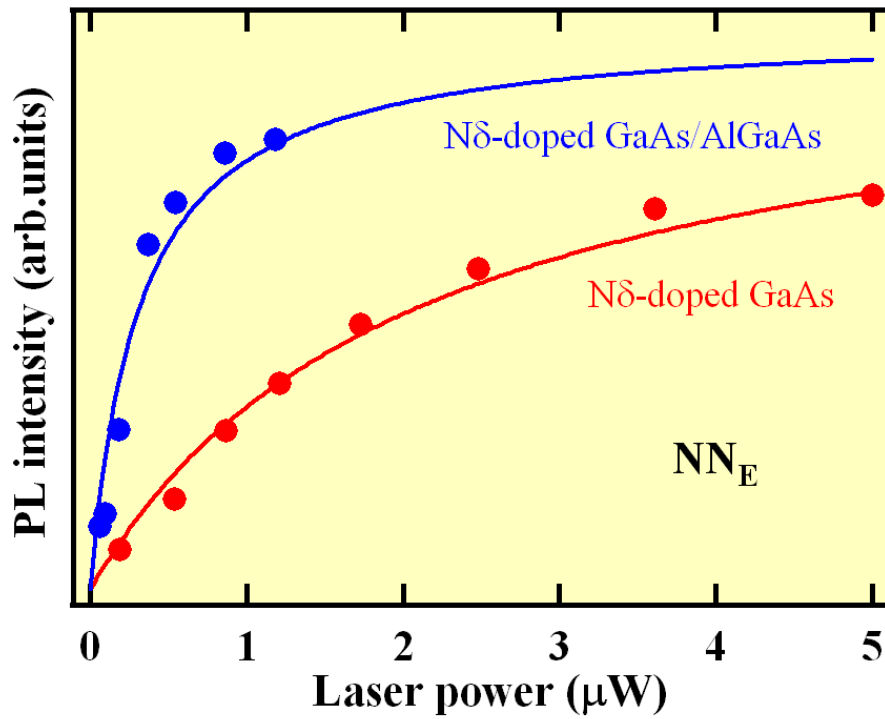


図 4.5 単一等電子トラップによる発光の励起強度依存性比較

4.3 まとめ

量子情報技術の分野で用いる単一光子源に適した特性を得ることを目的として窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs ダブルヘテロ構造を作製し、その試料中の単一等電子トラップによる発光特性評価を行った。窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 中の単一等電子トラップからシングルピークでランダム偏光である発光が得られた。これは AlGaAs 層によって窒素混入によって生じる面内歪の異方性が解消したためと考えられる。さらに、AlGaAs 層が障壁層となることで AlGaAs 層が無い試料と比べてキャリアの供給効率を約 8 倍上げることに成功した。以上の様に、AlGaAs 層を用いることで量子情報技術の分野で用いる単一光子源に適した特性が得られる可能性を示唆することができた。

第 5 章

GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光特性

5.1 序

GaAs(110)基板を用いた試料中の単一等電子トラップによる発光は等電子トラップの種類によって偏光方向が異なると報告されている[36]。また、GaP中の単一等電子トラップによる発光の偏光特性は等電子トラップの配列方向によって偏光方向が異なると報告されており、GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光も窒素原子対の配列に依存している可能性がある。

以上のことから、GaAs(110)を用いた試料中の単一等電子トラップによる発光の偏光方向を詳細に調べることで窒素原子対の配列についての知見を得ることや、ランダム偏光である単一光子の可能性について検討を行うことを目的として研究を行った。

5.2 単一等電子トラップ(Z_2)による偏光特性

図 5.1-5 に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光の PL スペクトルと偏光特性を示す。これらの発光は同一試料内から得られた同じ種類 (Z_2) の単一等電子トラップによる発光である。図 5.1 に示す発光はシングルピークの発光で、偏光特性は 135° でピークとなる直線偏光である。図 5.2 に示す発光はシングルピークの発光で、 90° にピークを持つ直線偏光である。図 5.3 に示す発光は 2 つに分裂した発光で、偏光特性は低エネルギー側の発光が 0° 、高エネルギー側の発光が 90° でピークとなるそれぞれが直交した直線偏光である。図 5.4 に示す発光は 2 つに分裂した発光で、低エネルギー側の発光が 34° 、高エネルギー側の発光が 124° でピークとなるそれぞれが直交した直線偏光である。また、図 5.5 に示す発光はシングルピークの発光で、その偏光特性は $0^\circ \sim 180^\circ$ までほぼ一定の発光強度が得られたことから、ランダム偏光であることがわかる。これらの結果から GaAs(110)中の単一等電子トラップは同じ種類の窒素原子対(例として Z_2 とラベル付けされた発光を示した)でも発光ピーク形状や偏光特性が異なっており、窒素原子対の配列方向が偏光方向に影響を与えていると考えられる。

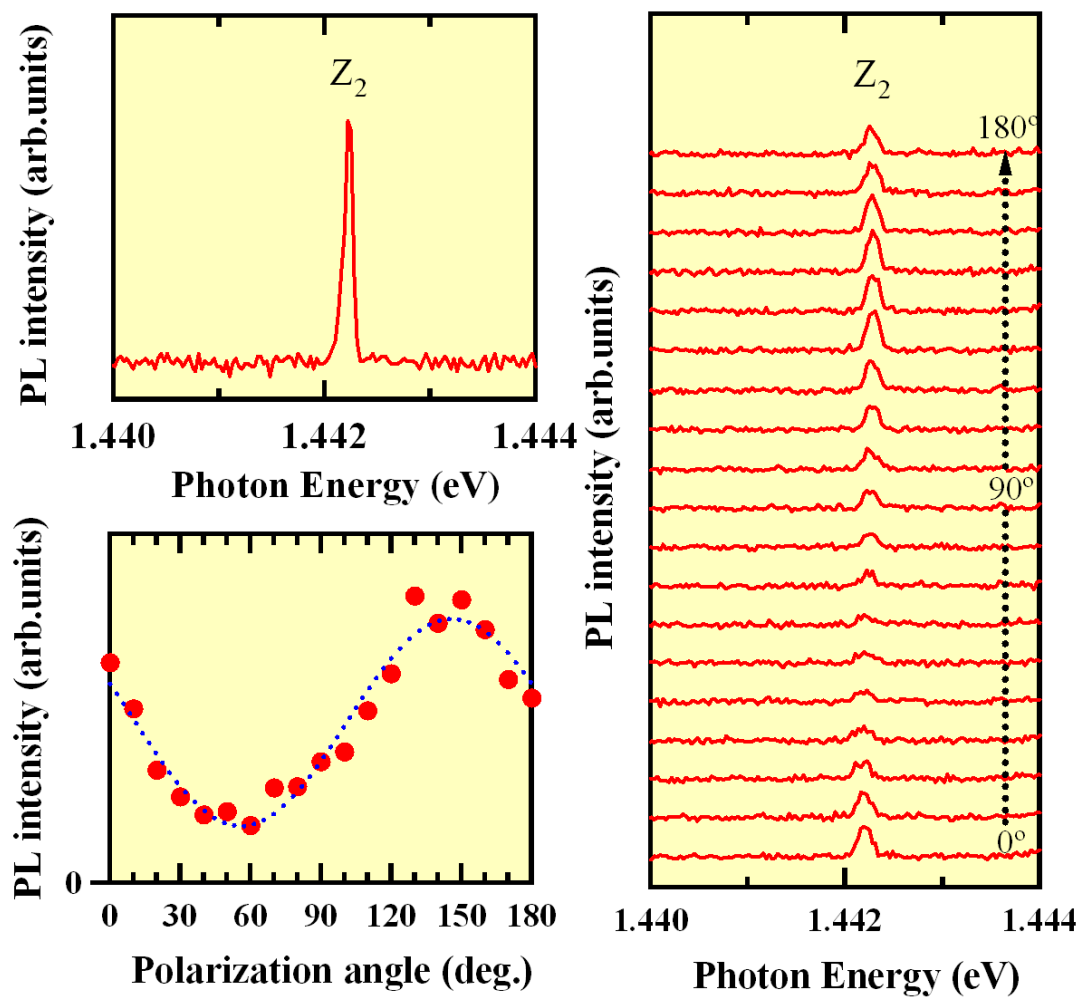


図 5.1 単一等電子トラップによる発光の PL スペクトルと偏光特性(1)

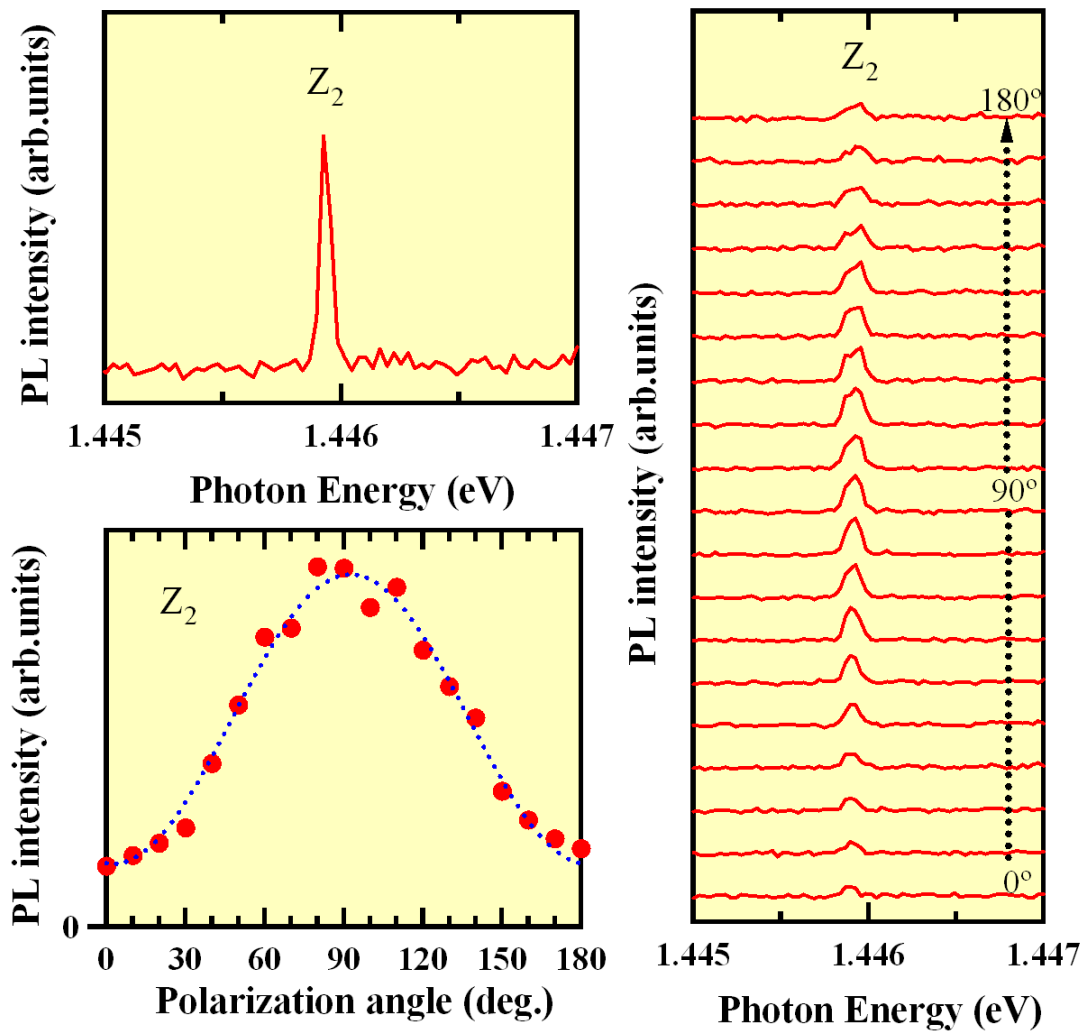


図 5.2 単一等電子トラップによる発光の PL スペクトルと偏光特性(2)

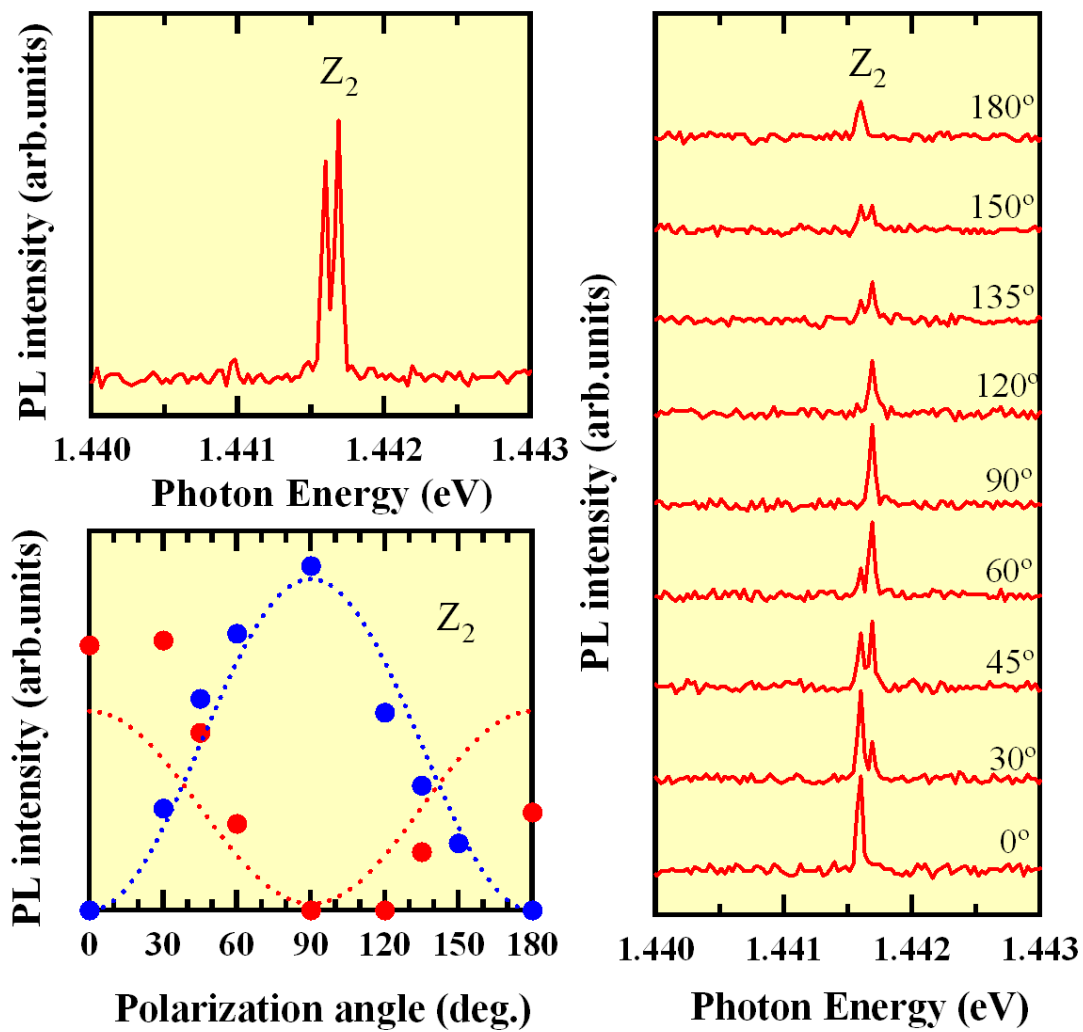


図 5.3 単一等電子トラップによる発光の PL スペクトルと偏光特性(3)

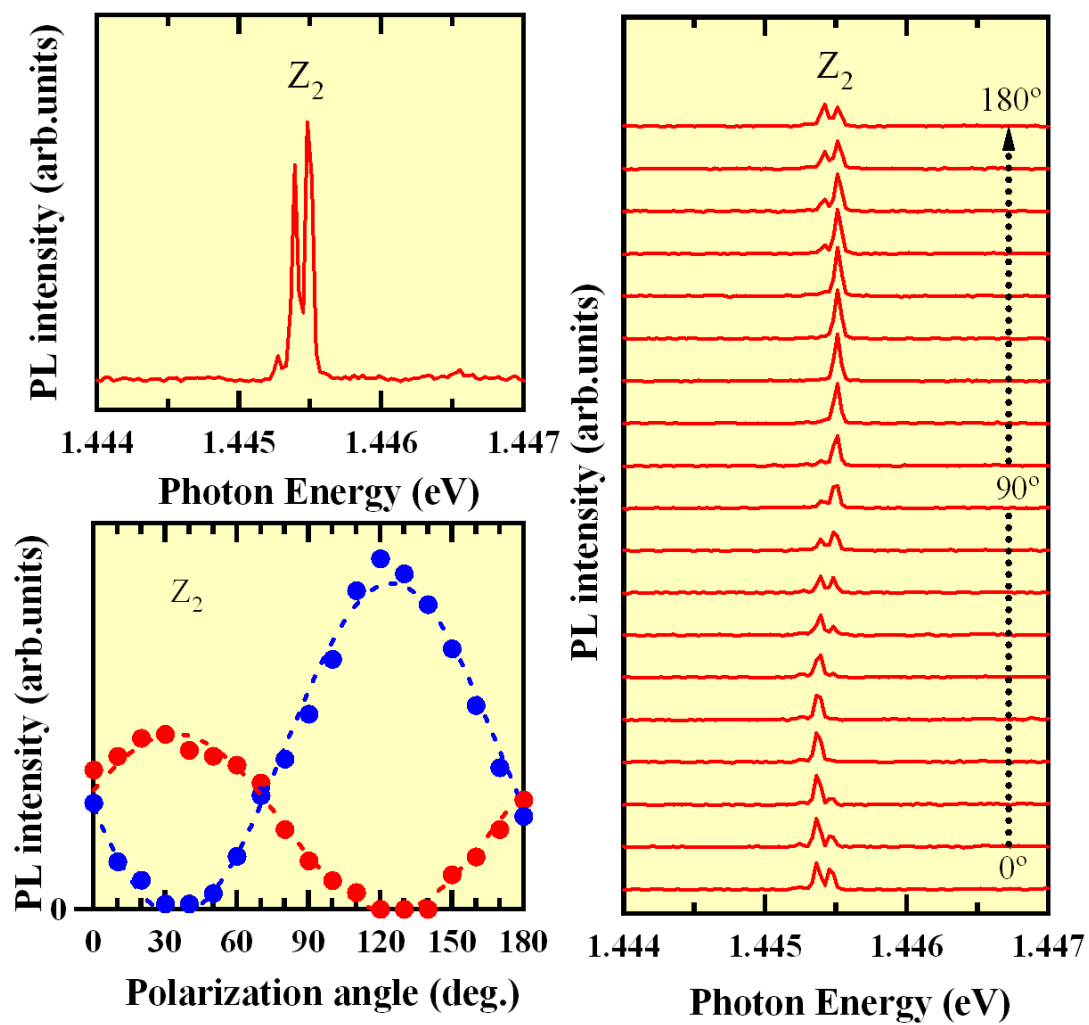


図 5.4 単一等電子トラップによる発光の PL スペクトルと偏光特性(4)

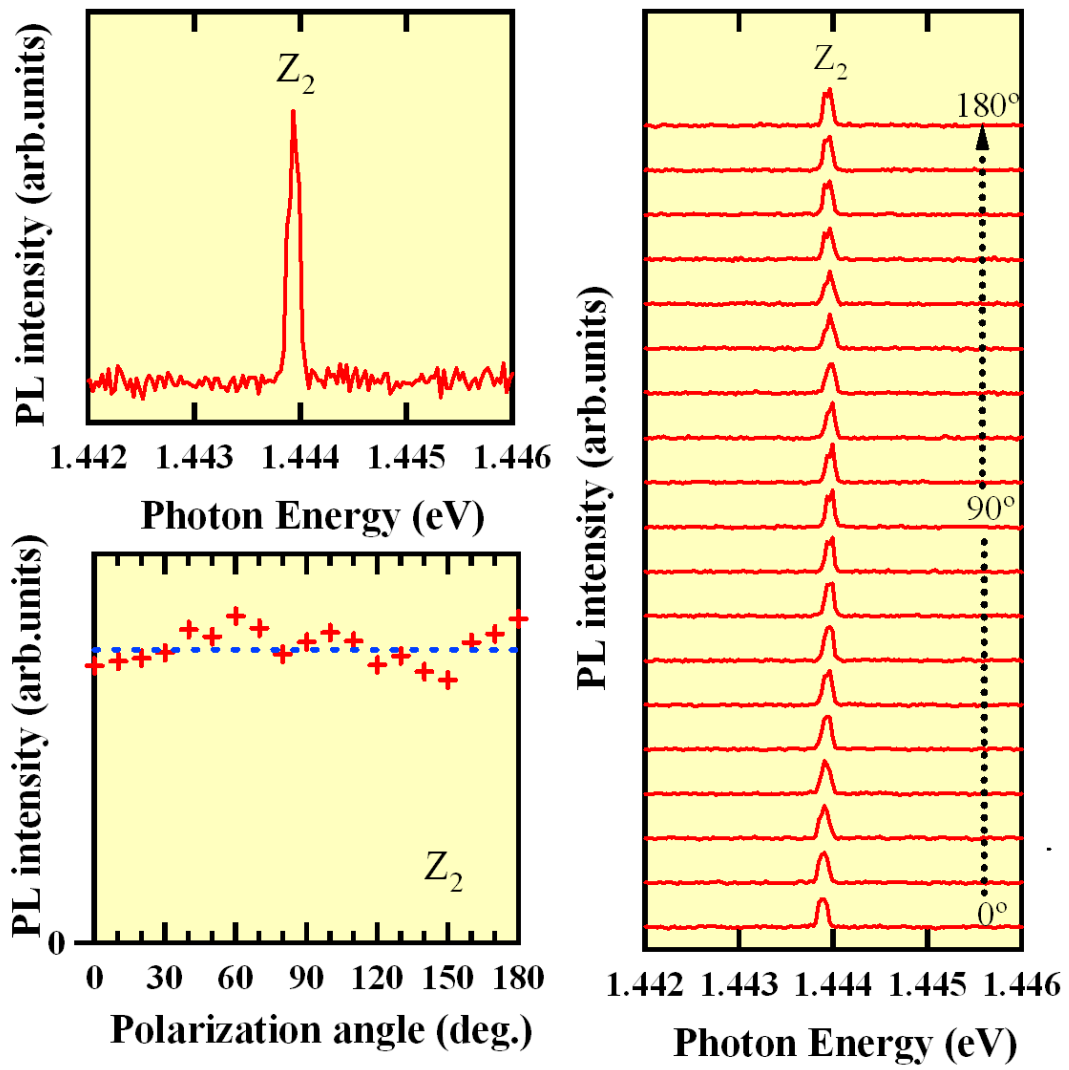


図 5.5 単一等電子トラップによる発光の PL スペクトルと偏光特性(5)

5.3 様々な等電子トラップによる偏光特性

表 5.1 に同一の窒素 δ ドープ GaAs(110)試料から得られた単一等電子トラップによる発光の偏光特性をラベル毎にまとめた結果を示す。この時、ランダム偏光の場合はランダム、直線偏光特性の場合はピークとなる角度を示した。また、2つに分裂したダブルピークの発光は、窒素原子対の種類に寄らず常に直交した直線偏光特性であった。各窒素原子対の種類において、同じ種類の窒素原子対であっても偏光特性が異なっていることがわかる。この結果からも窒素原子対の配列方向が偏光特性に影響していると考えられる。図 5.6 に示すように GaAs(110)面上の窒素配列について考えてみる。ある原子を原点とし、例えば配列[112]を考えると等価な点が二つあることがわかる、それは[1-10]方向からみて 54.7° と 125.3° である。この様にすべての配列について取りうる偏光角度をまとめたものを表 5.2 に示す。また、理想的な δ ドープ層は一原子層ドープであるが、実際には完全な一原子層ドープは困難であるため、今回は δ ドープ層 ± 1 層の染み出しを考慮した配列も示す。

測定の結果から Z_2 からのみランダム偏光が得られていることがわかる。ランダム偏光が得られる窒素原子対の配列は、測定方向に対して垂直方向に並んだ時と考えられる。 δ ドープ層 ± 1 層の三層で考えた場合、垂直な配列が可能なのは最近接ペアの[011]のみである。従って、1.444eV の発光が最近接ペア[011]である可能性が高いと考えられる。これらの結果から窒素 δ ドープ GaAs(110)を用いて窒素原子対を GaAs(110)面に垂直方向に制御することでランダム偏光である発光が得られる可能性を示唆した。

表 5.1 発光エネルギー値と偏光角度まとめ

発光エネルギー値(eV)	ラベル	偏光角度($^\circ$)
1.428	NN _B	2 28 89
1.444	Z ₂	20 34 92 135 150 178 ランダム
1.449	NN _D	0 15 29 75 113 119 140 150
1.458	NN _E	0 80 150
1.462	NN _C	70 80
1.467	Z ₁	0 30 59 80 102 147
1.473	A ₃	0 30 60 90 97
1.476	NN _A	8 12 20 30 64 140

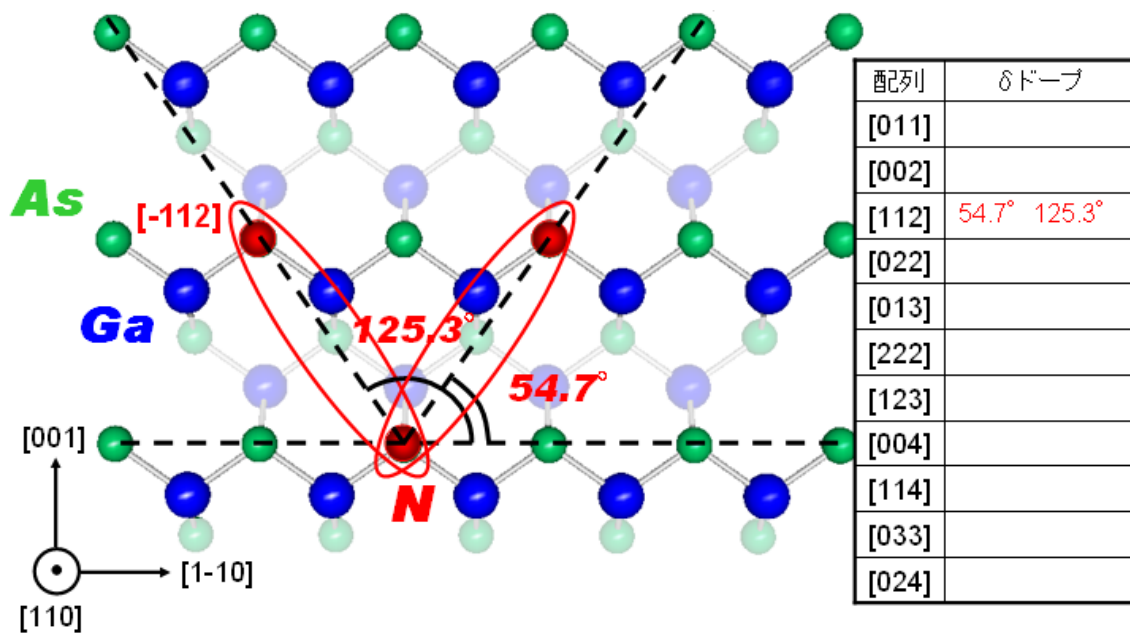


図 5.6 GaAs(110)面上面図と窒素配列について

表 5.2 配列により考えられる偏光角度 ($0^\circ = [1-10]$ 方向)

配列	δ ドーピング	δ ドーピング±1層
[011]	0°	54.7° 125.3° 垂直
[002]	90°	0°
[112]	54.7° 125.3°	25.2° 154.8°
[022]	0°	54.7° 125.3°
[013]		0° 76.7° 103.3°
[222]	35.3° 144.7°	
[123]		15.8° 35.3° 54.7° 125.3° 144.7° 164.2°
[004]	90°	
[114]	70.5° 109.5°	90°
[033]	0°	
[024]		0° 70.5° 109.5°

5.4 まとめ

窒素原子対の配列に関する知見や、ランダム偏光である単一光子を得ることなどを目的として窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光の偏光特性について詳細に調べた。窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップによる発光は、同じ種類の窒素原子対であってもピーク形状や偏光特性が異なっていることがわかった。これらの結果から GaAs(110)中の単一等電子トラップでは窒素原子対の配列方向が偏光方向に影響していると考えられた。また、様々な窒素原子対に対して偏光特性を行ったところ 1.444eV の発光からのみランダム偏光が観測されたことから 1.444eV 発光が最近接ペア[110]である可能性が高いことがわかった。

GaAs(110)面を用いて、面に垂直な方向に窒素原子対の配列制御を行うことで鋭いシングルピークでランダム偏光である単一光子を得られる可能性を見出した。

第 6 章

GaAs 中の単一等電子トラップによる励起子分子発光

6.1 序

III-V-N 混晶半導体である GaAsN 混晶は巨大バンドギャップボウイングやバンドオフセットなどその特異な特性から発光デバイスなど様々な研究が盛んに行われてきた。本研究では単一光子源を目的として GaAs 中の窒素原子対による単一等電子トラップについて詳細な研究を行うことで、単一等電子トラップによる励起子分子発光を初めて観測したのでその研究結果について報告する。

表 6.1 にこれまでの研究で得られた結果や報告された結果[33]など、窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップによる発光の成長基板面方位依存性についてまとめたものを示す。量子情報技術の分野で用いる単一光子源を目的とするため、5 章で述べた様に半値幅の狭い発光が得られ、ランダム偏光特性が得られるなどの理由から GaAs(110)基板を用いて試料の作製を行った。

この章では窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップから得られた励起子、励起子分子発光について報告し、励起強度依存性や偏光特性といった光学特性について述べる。

表 6.1 成長基板面方位による単一等電子トラップの発光特性

成長基板面方位	単一等電子トラップの発光特性		
	ピーク形状	半値幅	偏光特性
GaAs(001)	ダブルピーク	30~50 μ eV	ラベルに依らず直線偏光
GaAs(110)	シングル or ダブル	30~100 μ eV	窒素配列が影響する
GaAs(111)	シングルピーク	> 100 μ eV	ラベルに依らずランダム偏光[33]

6.2 PL スペクトルとマッピング

図 6.1(b)に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップによる励起子(X)、励起子分子(XX)発光の PL スペクトルを示す。PL スペクトルは縦軸 PL 強度、横軸光子エネルギーを表している。スペクトルから発光エネルギー値 1.444eV(Z_2)と 1.436eV に半値幅 $30\mu\text{eV}$ 程度の鋭いシングルピーク発光ピークが確認できる。図 6.1(a)に二つの発光に対して行った一次元 PL マッピングを示す。マッピングは縦軸測定位置、横軸光子エネルギーを表しており、2つの発光はそれぞれ局所的な場所からの発光であることから、これらの発光が単一の等電子トラップによる発光であることがわかる。また、X 発光が $10\mu\text{m}$ 、XX 発光が $7\mu\text{m}$ の範囲で分布しており、発光範囲に違いがあることがわかる。

図 6.2 に X、XX 発光に対して行った 2次元マッピングを示す。縦軸、横軸は測定位置を表しており、赤色と青色で示した 2次元マッピングは測定範囲が同じで、赤が XX 発光強度、青が X 発光強度にそれぞれ対応している。発光領域は X、XX 発光ともに円形になっており、発光中心が同じ位置にあることがわかる。二次元マッピングでも、XX 発光の発光範囲が X 発光と比べて狭くなっていることがわかる。これは励起子二量体の結合状態である励起子分子(XX)の形成にはキャリア密度をある程度上げ、励起子間の相互作用を無視できなくする必要があるのでと考えられる。

InAs 単一量子ドットでは励起子分子結合エネルギーが $-5\sim 3\text{meV}$ [37]と小さい値をとるのに対し、単一等電子トラップでは、励起子分子結合エネルギーが約 8meV と非常に大きな値であることがわかる。これは励起子二つの状態より、励起子分子状態で存在する方が安定であると言える。また、カスケード遷移による量子もつれ光子対発光源としての応用を目指したとき、励起子、励起子分子発光の 2つの発光を別けることが容易で優位となる。さらに単一量子ドットでは発光エネルギー値、励起子分子結合エネルギーがドットの直径により変化するのに対し、単一等電子トラップでは、窒素原子対の種類によってそれらが決まっており、例えば多層膜フィルタやバンドパスフィルタ等の設計や製作が容易である。

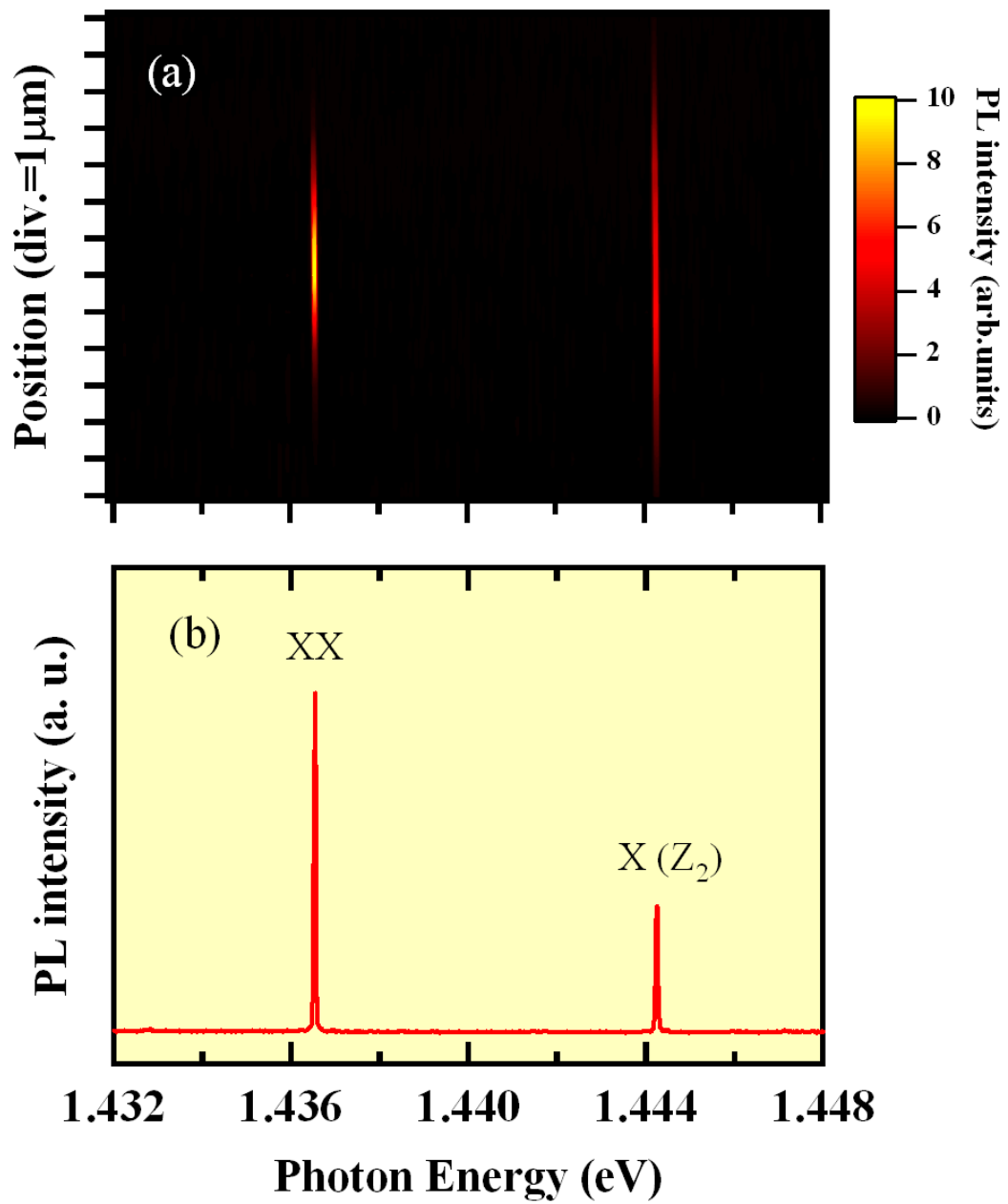


図 6.1 励起子-励起子分子発光の(a)マッピングと(b)PL スペクトル

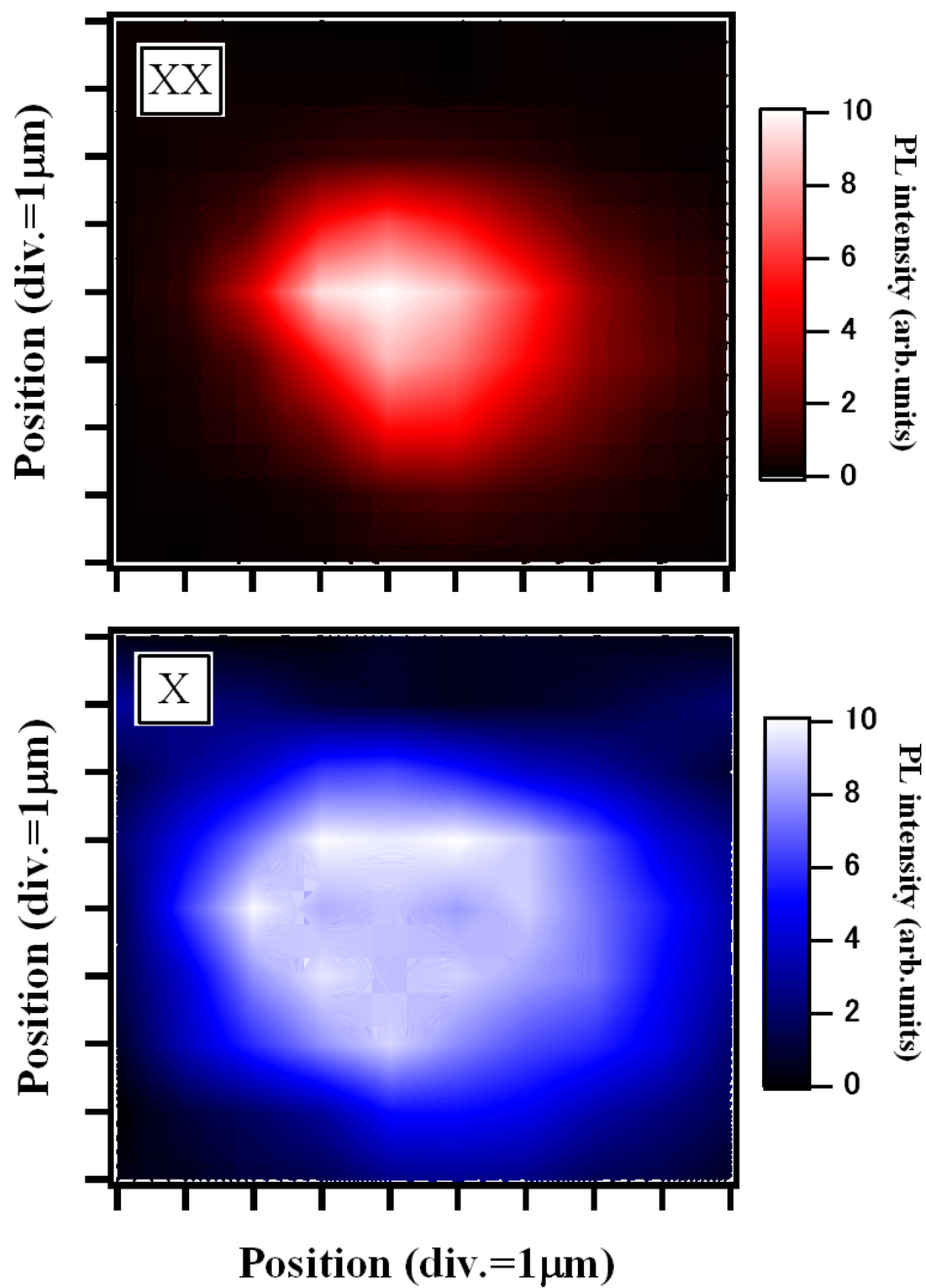


図 6.2 励起子-励起子分子発光の二次元マッピング

6.3 励起強度依存性

図 6.3 に励起子、励起子分子発光の励起強度依存性スペクトルを示す。励起強度が 20nW と弱い時には励起子(X)発光のみが観測され、励起強度を上げていくと励起子分子(XX)発光が現れやがて X 発光を追い抜いていく様子がわかる。励起強度の上昇に対し非線形光学特性を示しているといえる。また、単一等電子トラップからの X、XX 発光は励起強度の増加による発光エネルギー値の変化は生じなかった。図 6.4 に縦軸発光強度、横軸レーザ強度をとった励起強度依存性プロットを示す。励起強度の増加に伴い X 発光の発光強度は線形に増加し、XX 発光は二乗で増加する。また、X、XX 発光は単一等電子トラップによる発光であるために状態密度が低く、200~300nW 程度の励起強度下で初期の線形領域から外れやがて飽和する。図 6.5 に縦軸に XX 発光強度、横軸に X 発光強度をとったプロットを示す。X 発光強度が弱い領域では XX 発光が X 発光に対して二乗で増加する。さらに、X 発光強度がある程度強い領域になると、XX 発光強度は二乗での増加をさらに超えた増加が生じている。

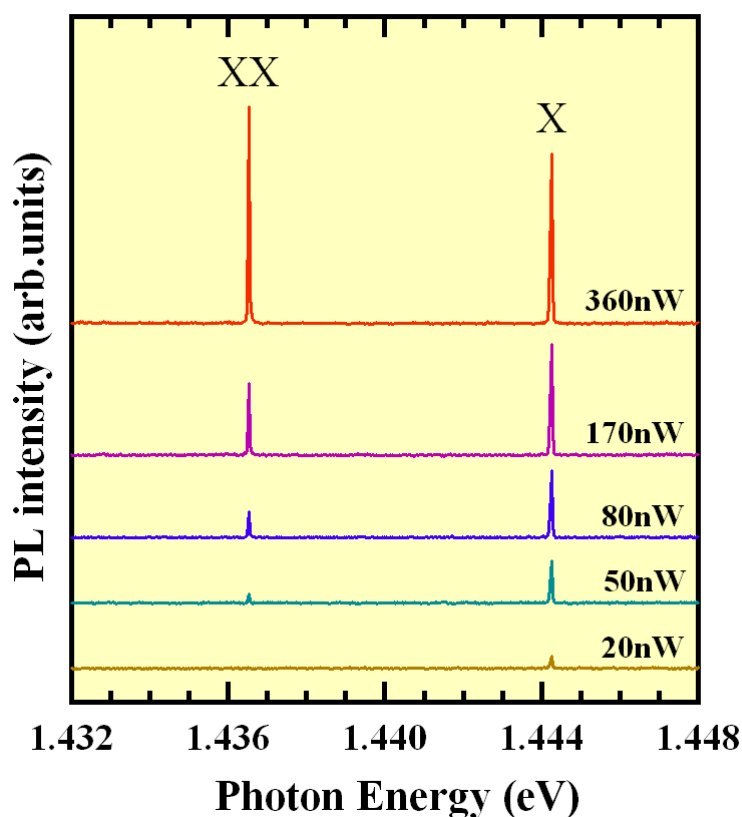


図 6.3 励起子-励起子分子発光の励起強度依存性スペクトル

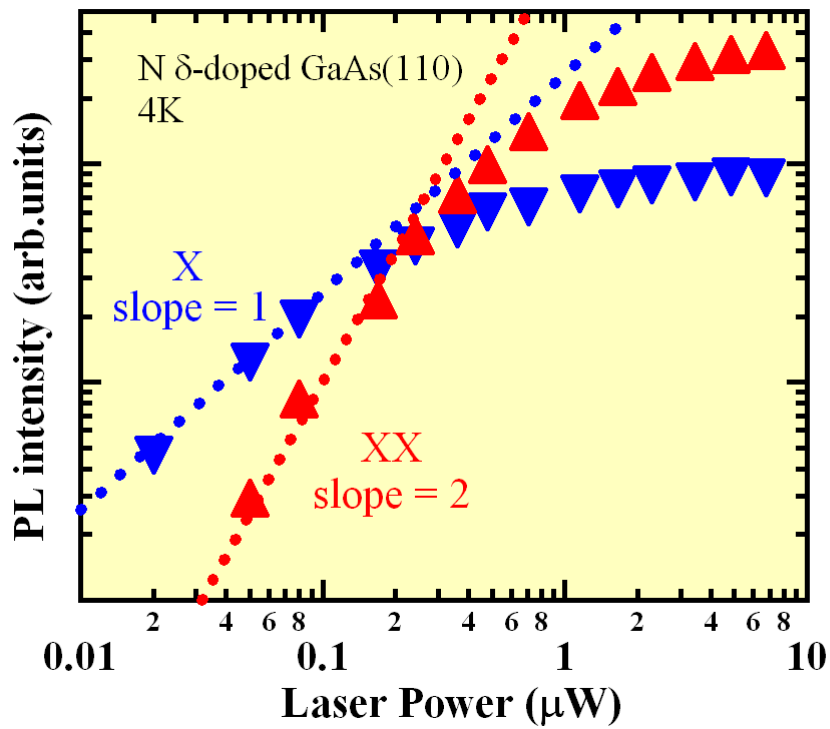


図 6.4 励起子-励起子分子発光の励起強度依存性

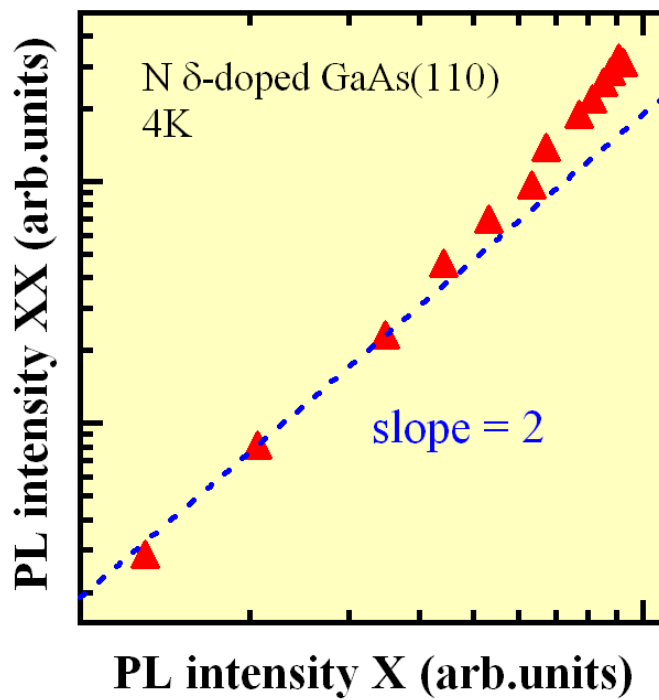


図 6.5 励起子発光に対する励起子分子発光の発光強度プロット

6.4 偏光角度依存性

図 6.6 に励起子、励起子分子発光の偏光角度依存性スペクトルを示す。図 6.7 に偏光角度 0、90、180° の拡大したスペクトルを示す。偏光角度 0~180° まで励起子、励起子分子ともに発光が観測された。さらに偏光角度に依らず発光エネルギー値に変化は無く、常にシングルピーク発光であった。図 6.8 に偏光角度依存性スペクトルから得られた偏光特性プロットを示す。偏光角度に依らずおよそ一定の発光強度が得られたことから、X、XX 発光がそれぞれランダム偏光であることがわかる。これらの光学特性は情報のやり取りを偏光方向により行う量子暗号通信への応用に適している特性であるといえる。この様に GaAs(110)基板を用いた窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップからの励起子、励起子分子発光では偏光角度により発光強度、発光エネルギー値の変化が少ない優れたランダム偏光が得られた。また、同じサンプル内の同じラベルによる単一等電子トラップからダブルピークで量子暗号通信応用に不向きな直線偏光な発光も確認された。これは GaAs(110)基板を用いた単一等電子トラップからの発光は窒素原子対の配列に寄与するためであると考えられる。しかしながら、窒素原子対の配列制御を行うことで発光波長の決まった良質なランダム偏光な単一光子源が得られることを示唆することができた。

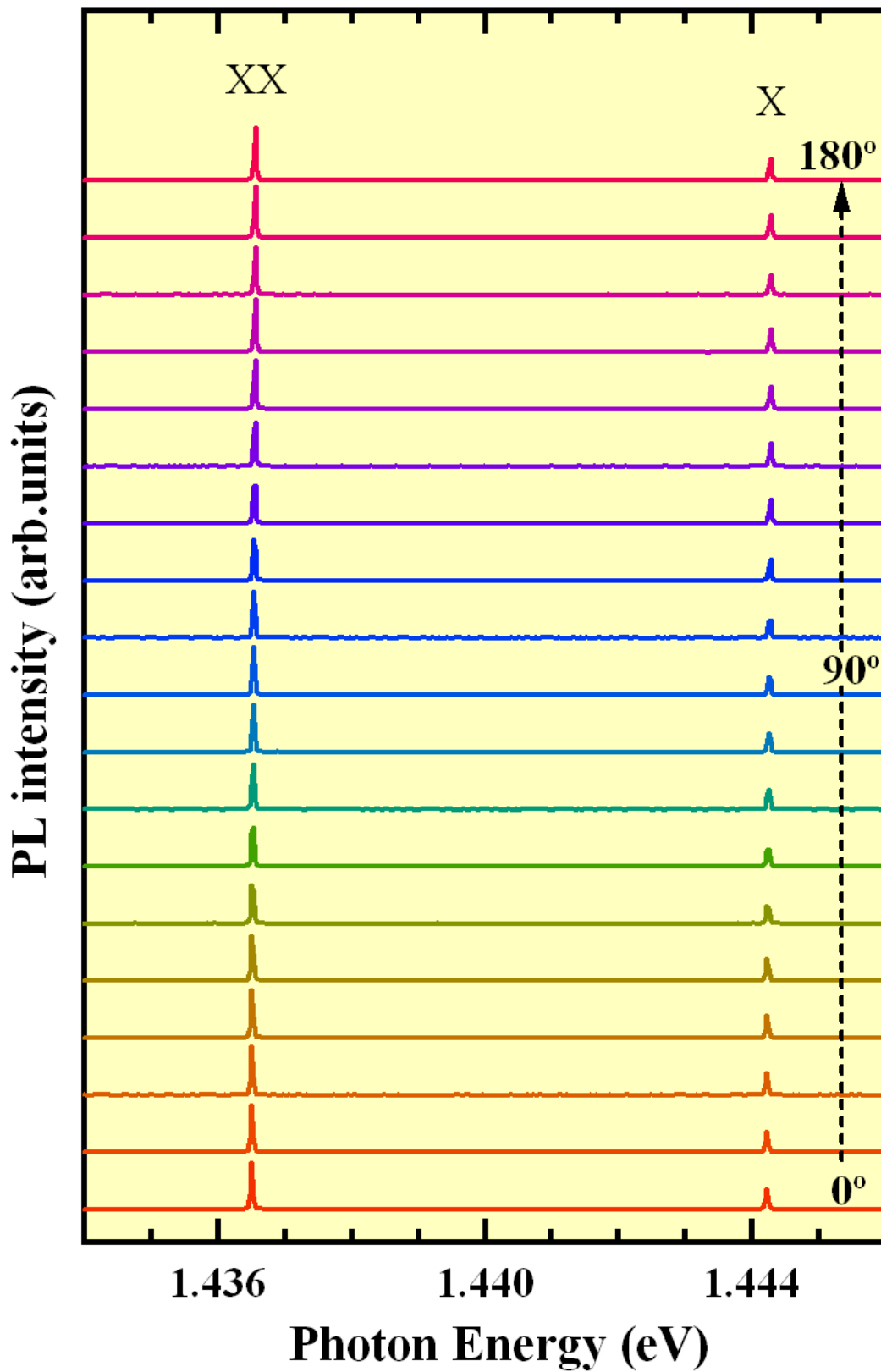


図 6.6 励起子-励起子分子発光の偏光角度依存性スペクトル

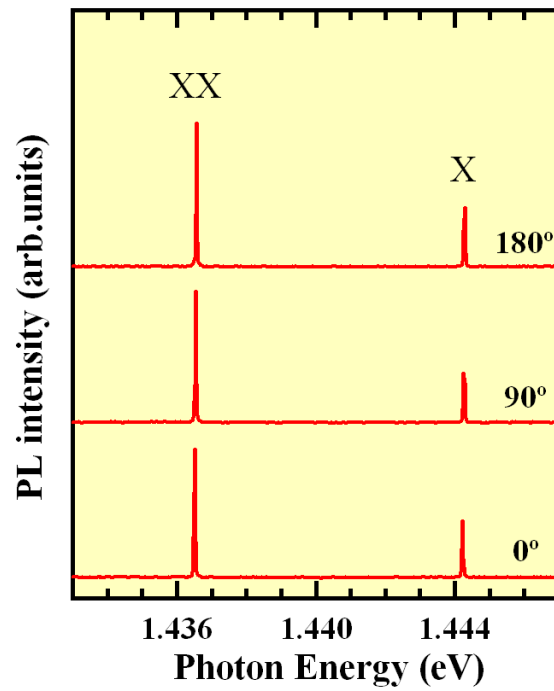


図 6.7 励起子-励起子分子発光の偏光角度依存性スペクトル

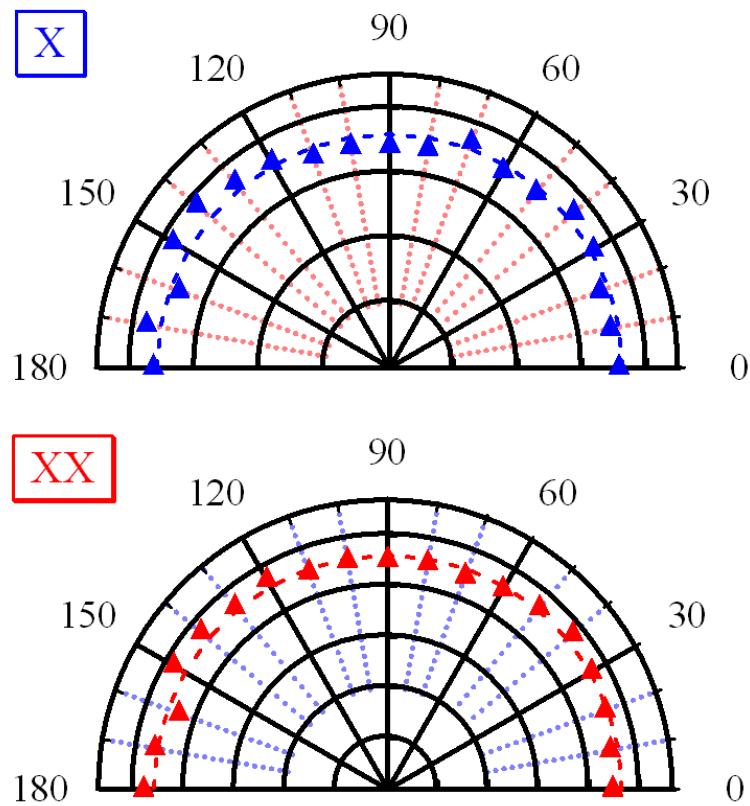


図 6.8 励起子-励起子分子発光の偏光角度依存性

6.5 窒素原子対の種類依存性

図 6.9 に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップから得られた励起子(NN_B)、励起子分子発光の PL スペクトルとマッピングを示す。励起子、励起子分子発光ともに半値幅 $30\mu\text{eV}$ 程度の鋭い発光ピークが得られた。また、マッピングの結果からこれらの発光が単一等電子トラップからの発光であることがわかる。図 6.10 に励起子、励起子分子発光に対する励起強度依存性スペクトルを示す。弱励起では励起子発光が支配的で、励起強度をあげるに連れ励起子分子発光が追い抜いていく。図 6.11 に励起子発光に対する励起子分子発光の発光強度プロットを示す。励起子発光の増加に対し、励起子分子の発光強度が二乗で増加していることがわかった。これらの結果から、単一等電子トラップ NN_B から励起子分子発光を観測し、その励起子分子束縛エネルギーが 6meV 程度であることがわかった。

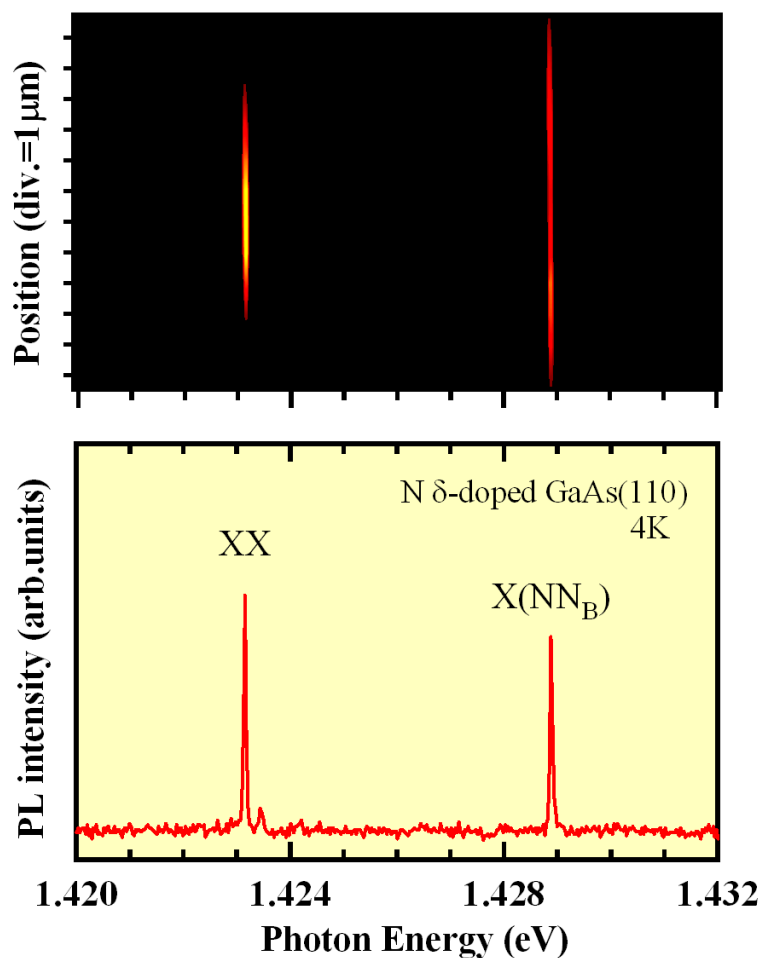


図 6.9 励起子(NN_B)—励起子分子発光の PL スペクトルとマッピング

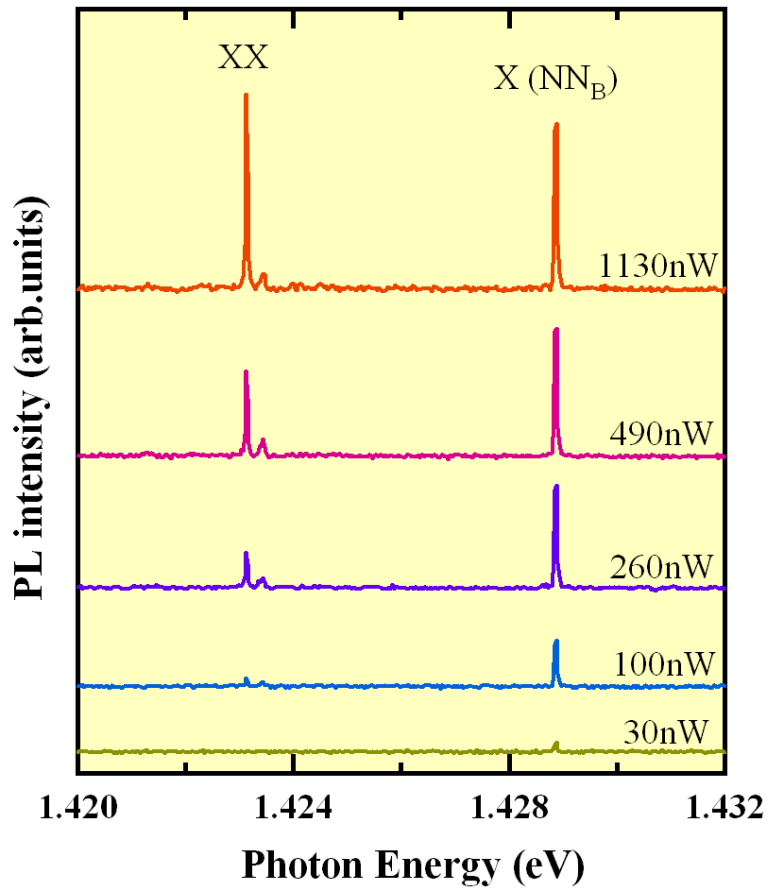


図 6.10 励起子(NN_B)-励起子分子発光の励起強度依存性スペクトル

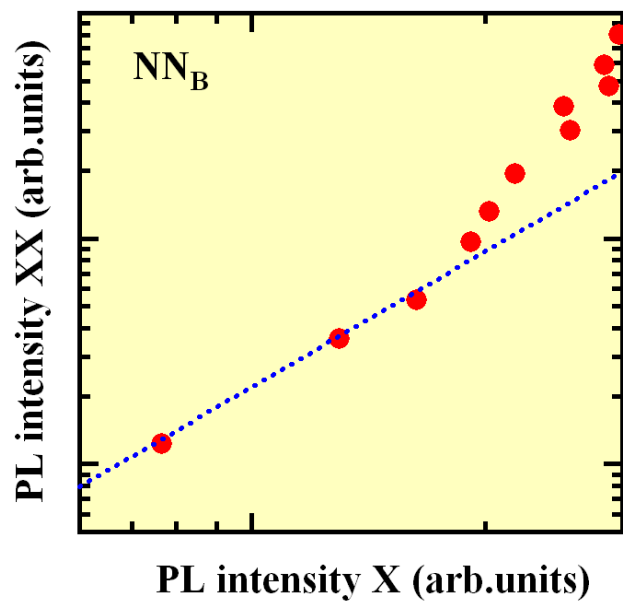


図 6.11 励起子(NN_B)発光に対する励起子分子発光の発光強度依存性

図 6.12 に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップから得られた励起子(NN_D)、励起子分子発光の PL スペクトルとマッピングを示す。励起子発光は二つに分裂した鋭いピークで、励起子分子は鋭いシングルピーク発光が得られた。また、マッピングの結果からこれらの発光が単一等電子トラップからの発光であることがわかる。図 6.13 に励起子、励起子分子発光に対する励起強度依存性スペクトルを示す。他のラベルと同様に弱励起では励起子発光が支配的で、励起強度をあげるに連れ励起子分子発光が追い抜いていく。図 6.14 に励起子発光に対する励起子分子発光の発光強度プロットを示す。励起子発光の増加に対し、励起子分子の発光強度が二乗で増加していることがわかる。これらの結果から、単一等電子トラップ NN_D からでも励起子分子発光を観測し、その励起子分子束縛エネルギーが 4meV 程度であることがわかった。

以上の結果から単一等電子トラップの種類によって励起子分子束縛エネルギーが異なり、その大きさは等電子トラップの種類が同じであればほぼ同じ値になることがわかった。これまでに観測された単一等電子トラップでは、 Z_2 発光が最も励起子分子束縛エネルギーが大きい。

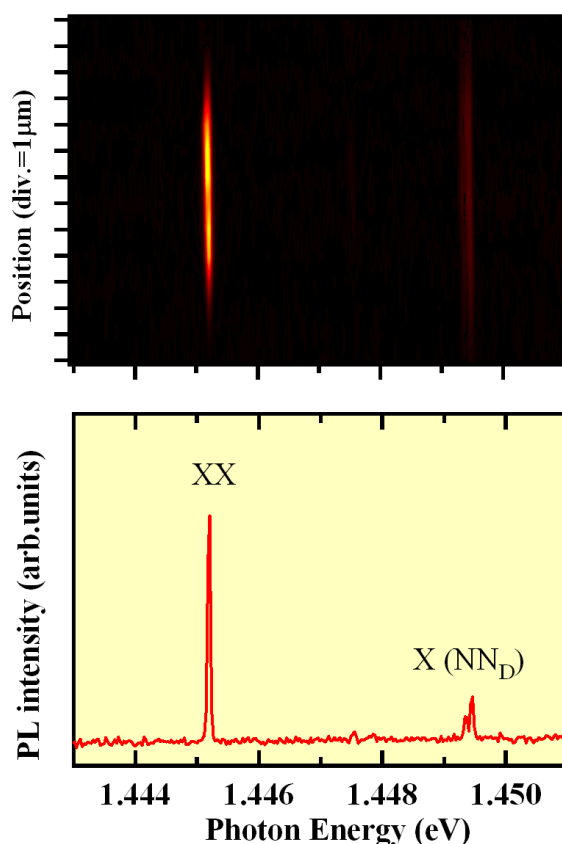


図 6.12 励起子(NN_D)—励起子分子発光の PL スペクトルとマッピング

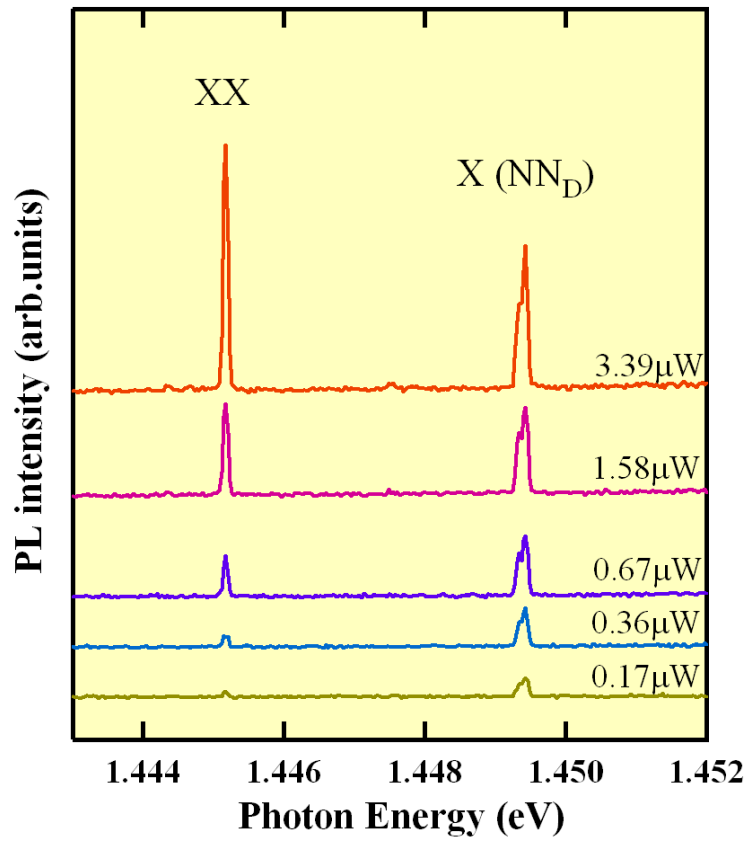


図 6.13 励起子(NN_D)—励起子分子発光の励起強度依存性スペクトル

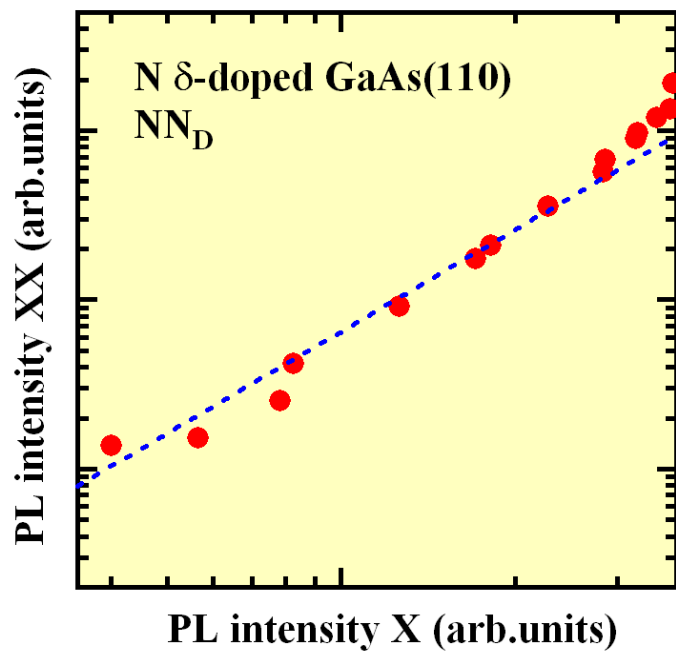


図 6.14 励起子(NN_D)発光に対する励起子分子発光の発光強度依存性

6.6 まとめ

窒素 δ ドープ GaAs(110)から得られた X、XX 発光に対して、励起強度依存性を測定したところ、励起強度に対して、X 発光は線形に、XX 発光は二乗に比例して増加することがわかった。また、この二つの発光に対して二次元マッピングを行った結果から 2 つの発光中心が同じ位置であることがわかった。これらのことから X が励起子発光、XX が励起子分子発光であるとわかった。本研究で初めて GaAs 中の窒素原子対による単一等電子トラップから励起子分子発光の観測に成功した。単一等電子トラップ Z_2 による励起子分子束縛エネルギーは約 8 meV と非常に大きな値をとる。また、偏光特性の結果から、それらの発光はともにランダム偏光であることがわかった。等電子トラップの種類によって励起子分子束縛エネルギーの大きさが異なる。以上の結果から、GaAs 中の単一等電子トラップを用いた励起子 - 励起子分子カスケード遷移による量子もつれ光子対源への応用に向けた重要な知見が得られた。

第 7 章

単一等電子トラップによる発光の PLE 分光測定

7.1 序

フォトルミネッセンス励起(PLE:Photoluminexcence Excitation)分光測定はある発光に対し励起光波長を走査させてモニタリングし、その発光強度を縦軸に、励起光波長を横軸にプロットすることでスペクトルを得る手法である。PLE スペクトルから受光に用いた発光がどの波長により励起されているか、またどこに吸収ピークがあるかを調べることができる、すなわち PLE スペクトルは吸収スペクトルに相当する。この手法は PL スペクトルでは観測しづらい高エネルギー遷移に対しても共鳴吸収ピークとして観測可能なことや、非接触、非破壊など優れた点が多く、半導体の光学遷移などの研究に多用されている。PLE 測定は励起光波長を走査させるために励起光源には色素レーザーやチタンサファイアレーザーなどの波長可変レーザーを用いる必要がある。また、励起光源の波長と、発光波長が近い場合や、発光強度が弱い場合には、励起光源による散乱光の除去に特に気を使わなくてはならない。

図 7.1 に今回の研究で用いた PLE 測定実験系の概略図を示す。励起レーザーにはチタンサファイアレーザー(波長可変領域:750nm~950nm)を用い、測定温度は 4K で行った。励起光側、PL 光側の両方に互いに直交した偏光板(Polarization Plate)を用いて散乱光の除去を行った。また、チタンサファイアレーザーが波長変化に伴い励起強度が変化してしまうため PL 強度の測定と同時に励起光(ビームスプリッタの透過光)強度をパワーメータによって測定し補正を行った。

図 7.2、図 7.3 にそれぞれ窒素濃度 0.05%と 0.11%の GaAs:N 試料から得られた PL スペクトルと PLE スペクトルを示す。PLE スペクトルの測定波長には窒素ペアによる発光(点線で囲んだ範囲)を用いた。それぞれの PL スペクトルには窒素原子対による発光、PLE スペクトルには GaAsN FE と GaAs FE の明瞭な吸収ピークが観測された。図 7.4 に図 7.2、図 7.3 から得られた GaAs:N の PLE スペクトルを示す。窒素濃度の増加に伴い、

GaAsN FE の吸収ピークがレッドシフトしている様子がわかる。これはIII-V-N 混晶半導体の特徴である低窒素濃度領域において窒素の増加に伴いバンドギャップが下に大きく凸になる巨大バンドギャップボウイングである。またこの時、GaAs 自由励起子の吸収ピーク値に変化が無いことがわかる。

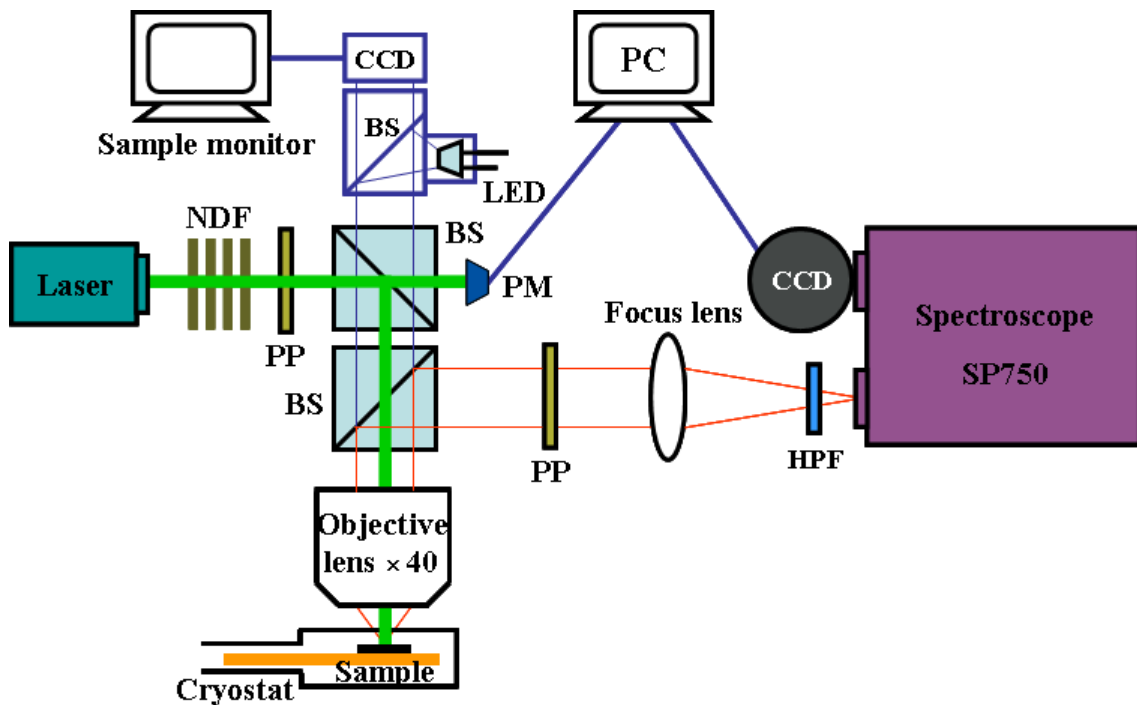


図 7.1 フォトルミネッセンス励起分光測定の実験系

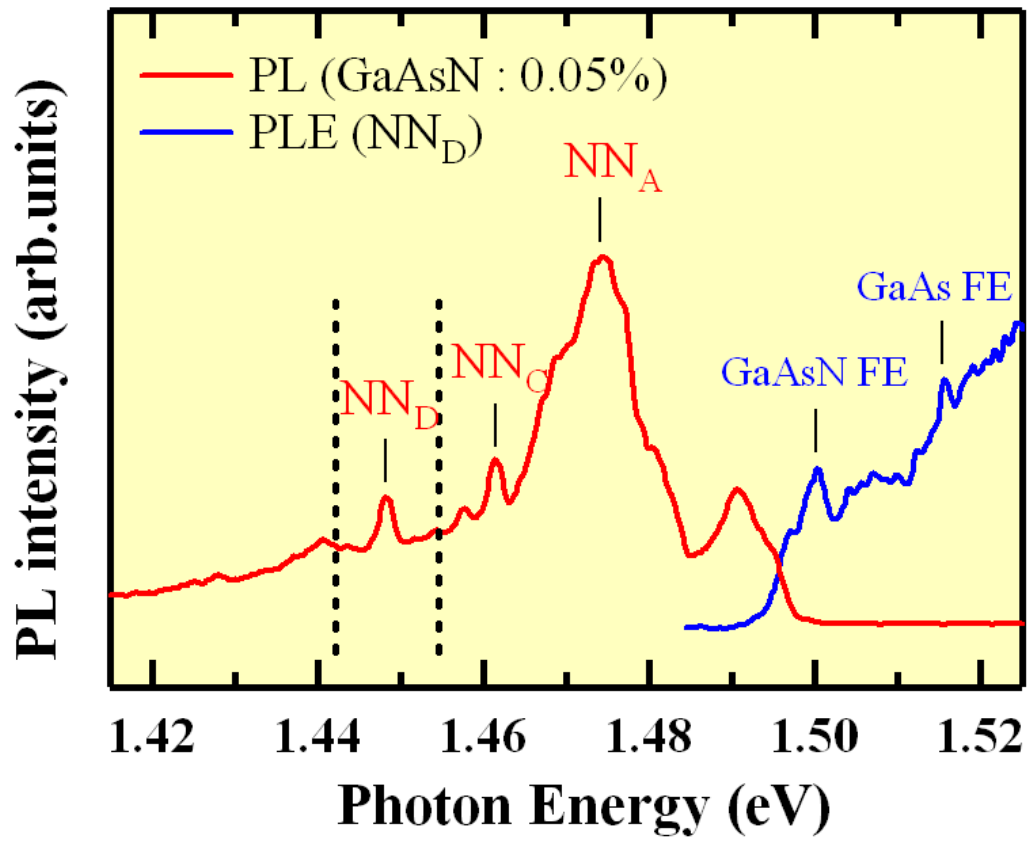


図 7.2 GaAsN(N:0.05%)の PLE スペクトル

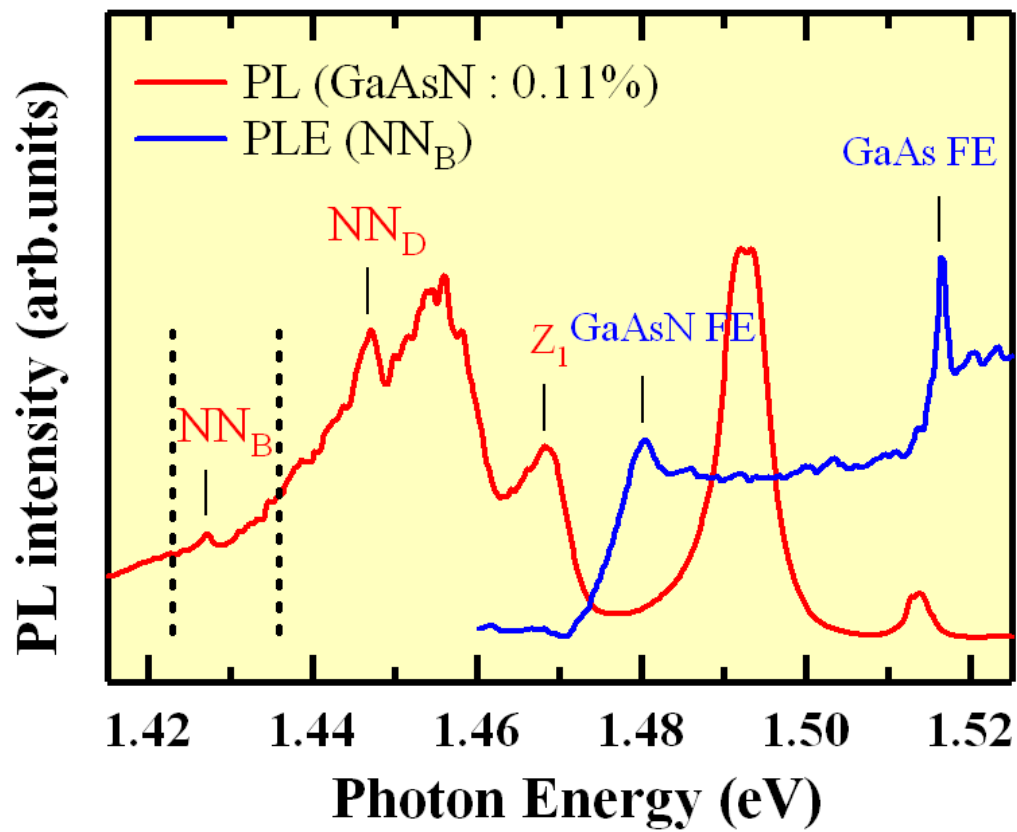


図 7.3 GaAsN(N:0.11%)の PLE スペクトル

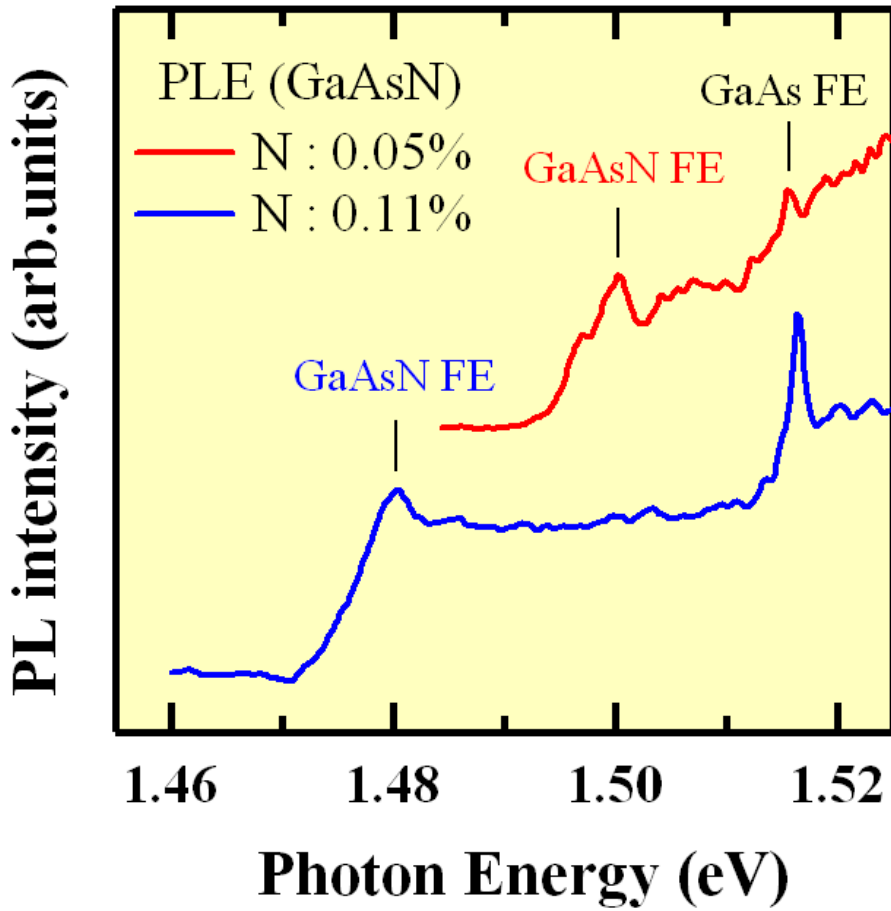


図 7.4 GaAsN の N 濃度依存性 PLE スペクトル

7.2 単一等電子トラップによる発光の PLE 分光測定

図 7.5 に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップから得られた励起子 $Z_2(X)$ 、励起子分子(XX)発光と GaAs:N(窒素濃度 0.11%)中の等電子トラップ発光をそれぞれ測定波長として得られた PLE スペクトルを示す。励起子分子発光による PLE スペクトルにおいて、明瞭な二つの吸収ピークが存在することがわかる。またこれの吸収ピークは GaAs:N 発光から得られた GaAs FE より 4meV と 5meV 程度高エネルギー側で観測された。また、GaAs FE での吸収が無いことがわかる。励起子発光から得られた PLE スペクトルでは励起分子発光で見られた吸収ピーク値において発光強度が下がっていることがわかる。これは励起子分子発光が共鳴吸収により発光強度が増大し、励起子発光が生じる前にキャリアが励起子分子発光に寄与してしまう為であると考えられる。

図 7.6 に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップから得られた励起子分子発光と 850nm 辺りのブロードな発光をそれぞれ測定波長として得られた PLE スペクトルを示す。バックグラウンド発光にあたる 850nm 発光の PLE スペクトルでは GaAs:N から得られた様に GaAs FE による吸収ピークが得られたことから周囲の GaAs での吸収が発光に寄与していることがわかる。

図 7.7 に単一等電子トラップによる $X(Z_2)$ 、XX 発光の励起波長依存性スペクトルを示す。波長 818.4nm での励起では GaAs FE での共鳴励起にあたり 850nm 辺りのブロードな発光が非常に強くなっていることがわかるが、単一等電子トラップによる発光がないことがわかる。波長 801.4nm による励起は今回行った PLE 測定で用いた励起波長帯の中で最短波長である。高エネルギー励起での発光スペクトルは励起子の発光が強く励起子分子の発光が弱いことがわかる。しかし、同じ励起強度による波長 815.5nm での発光スペクトルでは励起子分子による発光が非常に強くなっていることがわかる。以上のことから単一等電子トラップによる共鳴吸収ピークは GaAs FE と異なっており、他の GaAs 起因と考えられる不純物発光が抑えられる励起波長において単一等電子トラップによる発光を選択的に強くすることが可能であると示唆した。

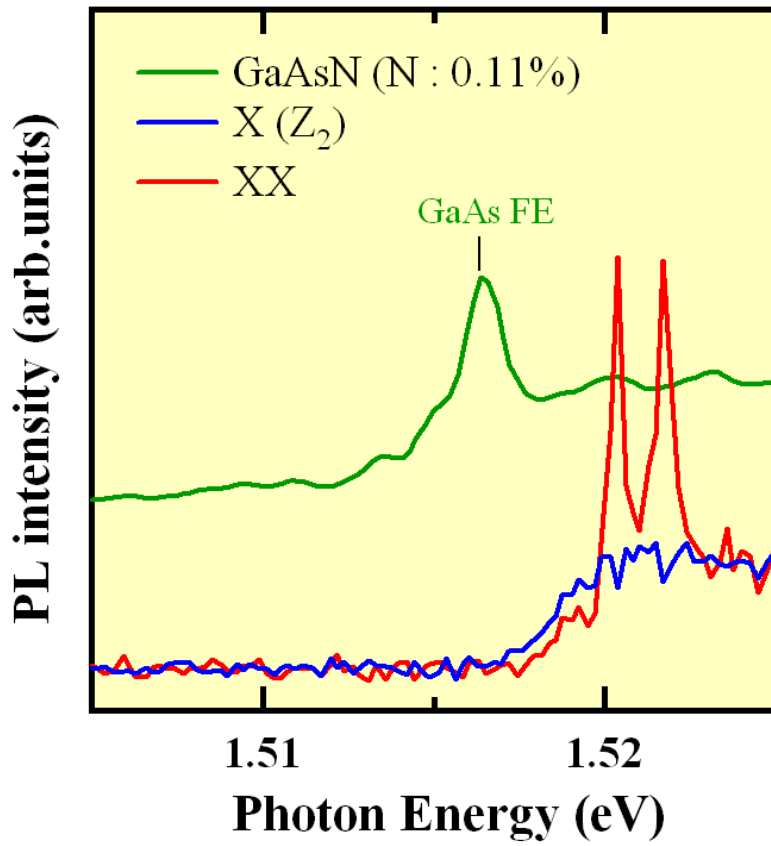


図 7.5 励起子-励起子分子発光と GaAs:N 発光による PLE スペクトル

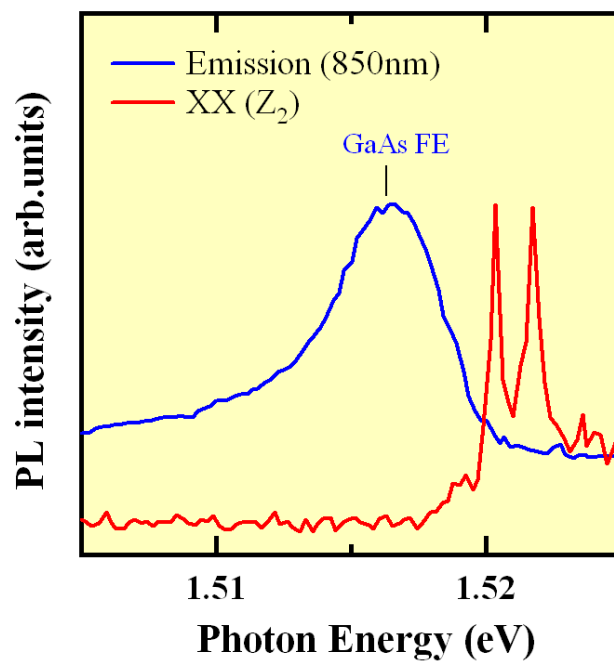


図 7.6 バックグラウンド発光と励起子分子発光の PLE スペクトル

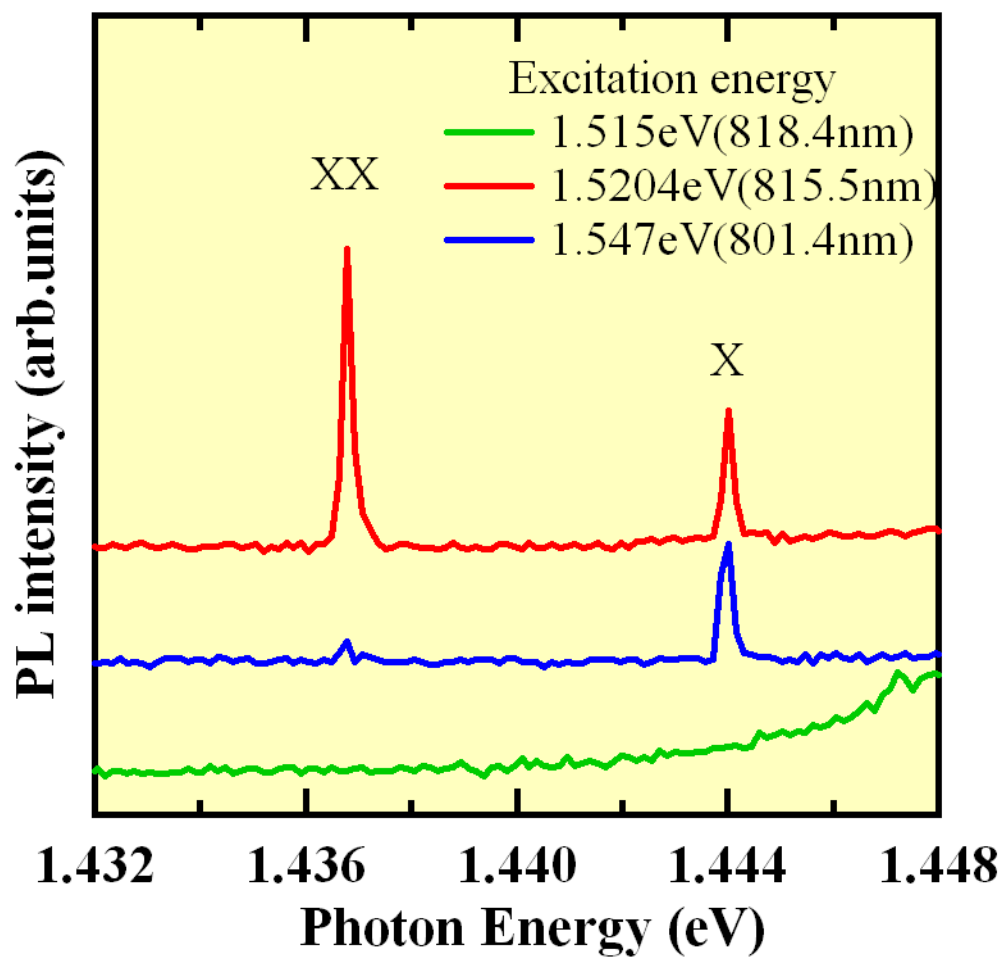


図 7.7 単一等電子トラップによる X(Z_2)、XX 発光の励起波長依存性スペクトル

7.3 窒素原子対の種類依存性

図 7.8 に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップである NN_D 、 Z_2 による励起子分子発光をそれぞれ測定範囲として得られた PLE スペクトルを示す。単一等電子トラップ NN_D 励起子分子発光においても前途と同様に明瞭な二つの吸収ピークが観測された。また、等電子トラップの種類によってその吸収ピーク値が若干異なることがわかる。

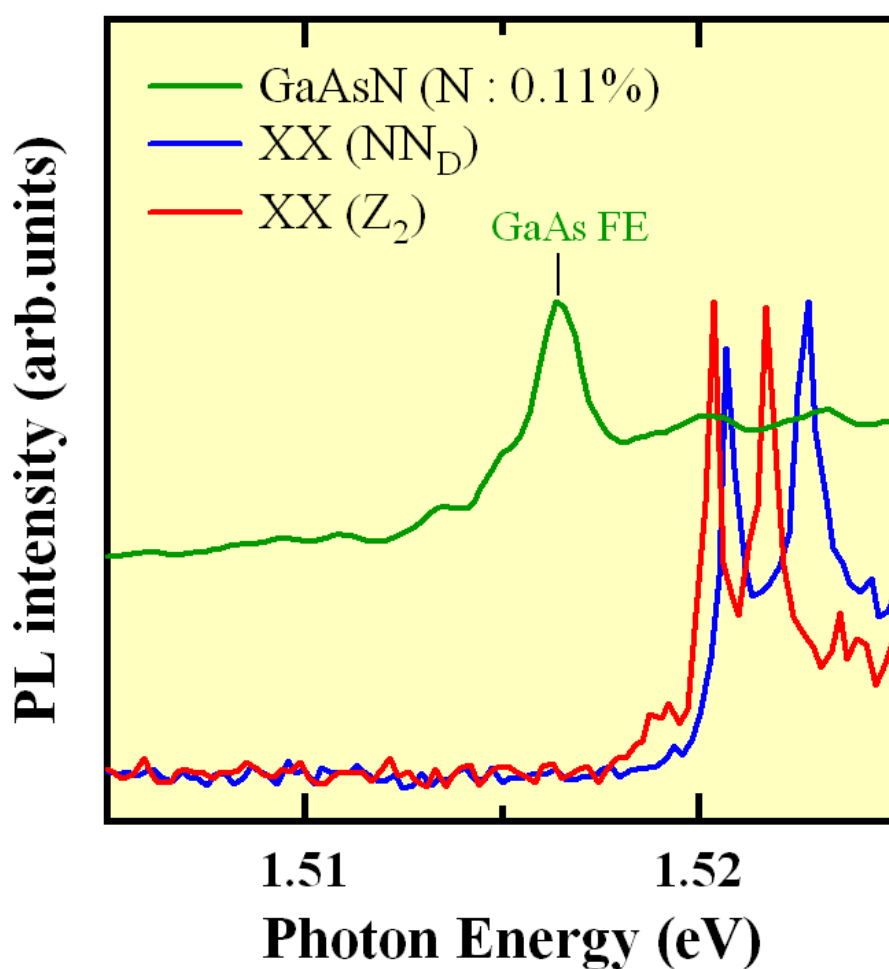


図 7.8 単一等電子トラップ NN_D と Z_2 による励起子分子発光の PLE スペクトル

7.4 まとめ

GaAs:N 試料から得られた等電子トラップによる発光に対して PLE 測定を行ったところ GaAs 自由励起子、GaAsN 自由励起子の PLE 吸収ピークを観測した。また、窒素濃度依存性から窒素混入によって生じる巨大バンドギャップボウイングを確認した。

GaAs 中の単一等電子トラップによる励起子分子発光に対して PLE 測定を行ったところ、GaAs 自由励起子の吸収ピークの値より 4meV と 5meV 程度高エネルギー側に 2つの PLE 吸収ピークが存在していることがわかった。また、吸収ピークの値は等電子トラップの種類によって多少変化する。

以上の結果から、波長選択励起によって単一等電子トラップによる発光を強め、さらに周囲の GaAs 起因で生じる発光を抑えることが可能であることを示唆した。

第 8 章

GaAs 中の単一等電子トラップによる発光の時間分解 PL 測定

8.1 序

現在、時間分解フォトルミネッセンス法は、励起電子状態やその緩和過程の研究、また半導体の結晶性評価などに有用であるとされています。代表的な時間分解分光法として、光カーゲート法、アップコンバージョン法、ストリークカメラ法、時間相関単一光子計数法などがある。これらのうち特に用いられているのは後者の二つである。ストリークカメラ法は、ピコ秒レーザと組み合わせることにより、ピコ秒からナノ秒領域の測定に適している。一方、時間相関光子計数法は、100ps 程度からマイクロ秒領域の測定に適している。時間相関単一光子計数法は感度や測定精度や PL 強度のダイナミックレンジが広い点などで優れた方法である。

本研究では CFD(Constant Fraction Discriminator:定比率波高弁別器)、TAC(Time Amplitude Converter:時間-電圧変換器)、MCA(Multi-Channel Analyzer:多重波高分析器)を組み合わせた時間相関光子計測法を用いて時間分解 PL 測定を行った。図 8.1 に時間分解 PL 測定実験系概要図を示す。実験は Ti:Sapphire レーザ(パルス幅:~200fs、繰返し周波数:~76MHz)を励起光源として用い、単一等電子トラップからの発光を観測する為に顕微 PL 測定法を用い分光器で発光を確認の後に APD を用いて測定を行った。発光はバンドパスフィルタ(BPF)を用い取り出し、測定温度は 4 K で行った。また、レーザ光の時間分解測定から今回用いた実験系の時間分解能は 160ps 程度であった。

図 8.2 に BPF で取出した単一等電子トラップからの発光スペクトルを示す。単一等電子トラップからの発光では発光強度が弱いためにバックグラウンド(BG)発光を無視できない、そのため実際の時間分解 PL スペクトルでは BPF で取出した発光の時間分解 PL スペクトルから BG 発光の時間分解 PL スペクトルを差引くことで単一等電子トラップからの発光による時間分解 PL スペクトルとした。この BG 発光を気にしない為には SN

比をあげる必要があり、単一等電子トラップからの発光強度をあげる、あるいは透過幅の鋭いバンドパスフィルタを用い BG 発光を減らすなどの工夫が必要である。

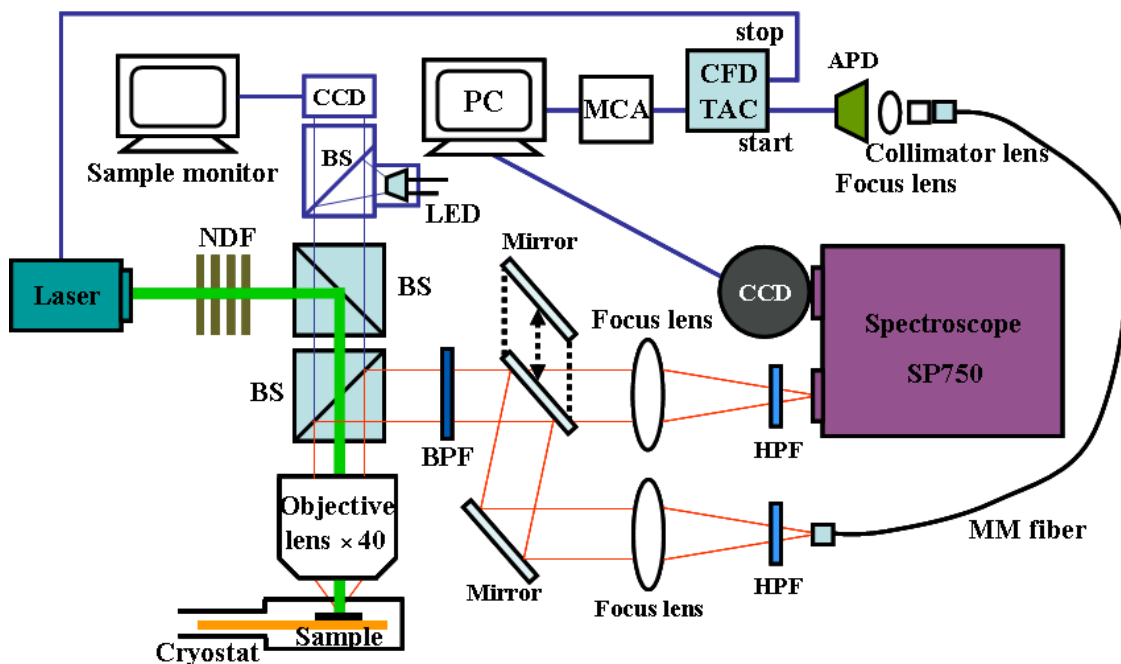


図 8.1 時間分解フォトルミネッセンス測定系概要

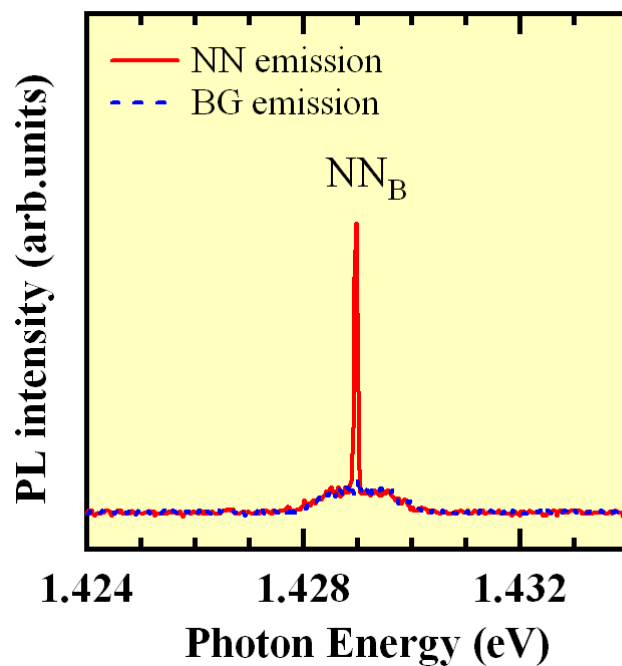


図 8.2 BPF を用いた単一等電子トラップからの発光

8.2 励起子-励起子分子発光の時間分解 PL 測定

図 8.3 に窒素 δ ドープ GaAs(110) から得られた単一等電子トラップ (Z_2) からの励起子 (X)、励起子分子 (XX) 発光に対する時間分解 PL スペクトルと減衰フィッティングの結果 (黒点線) を示す。減衰フィッティングの結果から、励起子分子発光の減衰時間 $\tau_{XX} = 5\text{ns}$ 、励起子発光の減衰時間 $\tau_X = 11\text{ns}$ 、また、同試料の GaAs バンド端発光の減衰時間 $\tau_{\text{GaAs}} = 180\text{ps}$ と見積もられた。

一般に、励起子分子、励起子間の減衰時間関係は、 $2\tau_{XX} = \tau_X$ が成立つとされており [38]、今回測定を行った GaAs 中の単一等電子トラップからの発光でもこの関係が成立つことがわかった。このことから XX 発光が X (Z_2) 励起子発光の励起子分子発光であると言える。

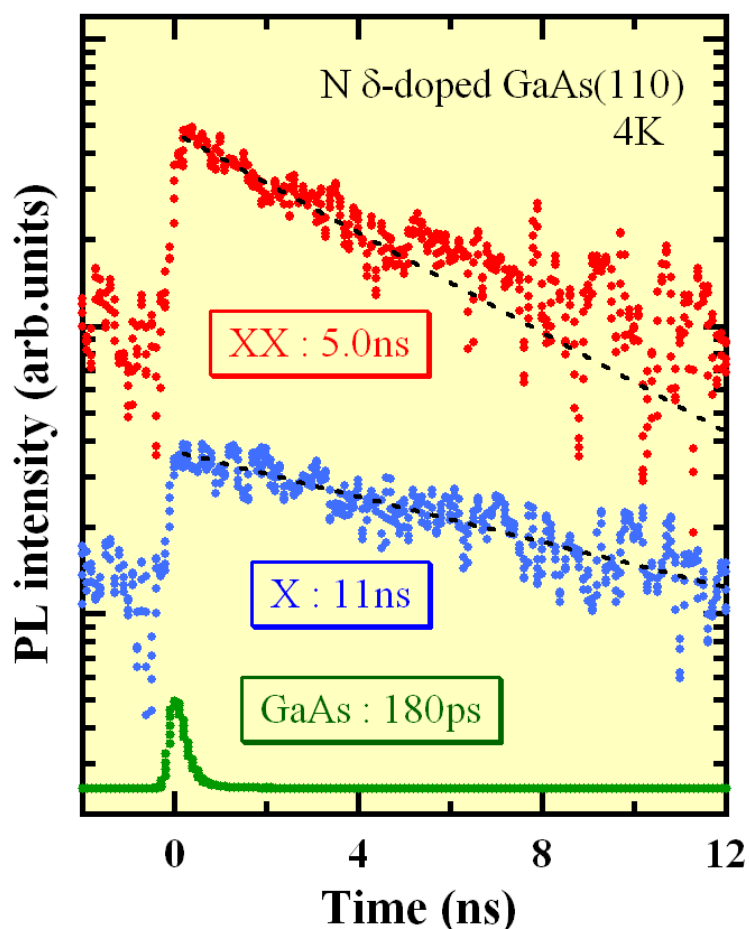


図 8.3 励起子 (Z_2) - 励起子分子発光の時間分解測定

8.3 励起子分子発光の励起強度依存性

図 8.4 に窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップ(Z_2)による励起子分子発光の時間分解 PL スペクトルの励起強度依存性を示す。弱励起($0.6 \mu\text{W}$)時には減衰時間 $\tau_{xx}=5.0 \text{ ns}$ なのに対し、強励起($2.2 \mu\text{W}$)時では減衰時間 $\tau_{xx}=3.0 \text{ ns}$ と減衰時間が速くなっていることがわかる。また、時間の経過、すなわちキャリア密度の減少と共に減衰時間は遅くなる。励起強度が強い領域では励起子分子の発光が等電子トラップからの発光により誘導放出効果により減衰時間が早くなる、すなわちライフタイムが短くなっていると考えられる。励起子密度が上昇したことで生じる励起子-励起子散乱の可能性も考えられるが、PL スペクトルを見ると励起強度の上昇によらず発光エネルギー値の変化が見られないので励起子-励起子散乱による発光とは考えにくい。

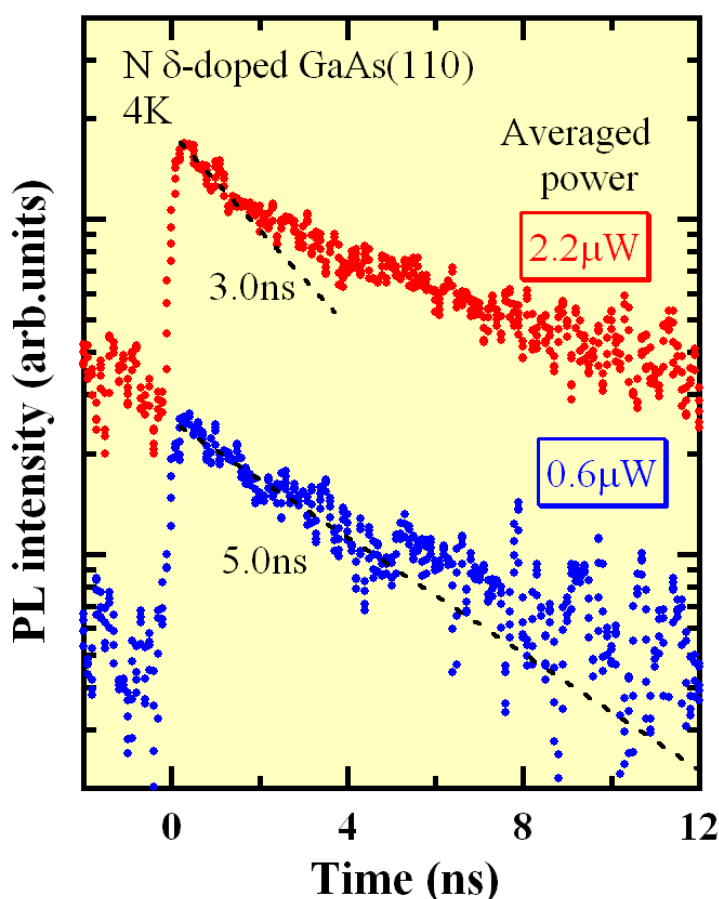


図 8.4 励起子分子発光の励起強度依存性による時間分解測定

8.4 窒素原子対の種類依存性

図 8.5 に同一試料内から得られた Z_2 とラベル付けされた単一等電子トラップによる励起子発光の時間分解 PL スペクトルを示す。フィッティングから求めた減衰時間 τ_x は共に 11ns であった。図 8.6 に同一試料内から得られた Z_2 と NN_A とラベル付けされた単一等電子トラップによる励起子発光の時間分解 PL スペクトルを示す。それぞれの減衰時間 τ_x は $\tau_x(Z_2)=11\text{ns}$ 、 $\tau_x(NN_A)=29\text{ns}$ であった。これらの結果より、同一試料内における同じ種類の単一等電子トラップによる発光であれば減衰時間が同じであり、種類が異なると減衰時間が異なることがわかる。これは窒素原子対の距離がことなることで、種類毎に励起子ボーア半径が異なることで依存が生じているのではないかと考えられる。単一光子源を目指すうえで、単一等電子トラップからの単一光子発生量は減衰時間 τ に強く依存するため等電子トラップの種類選択は重要な要素であると言える。

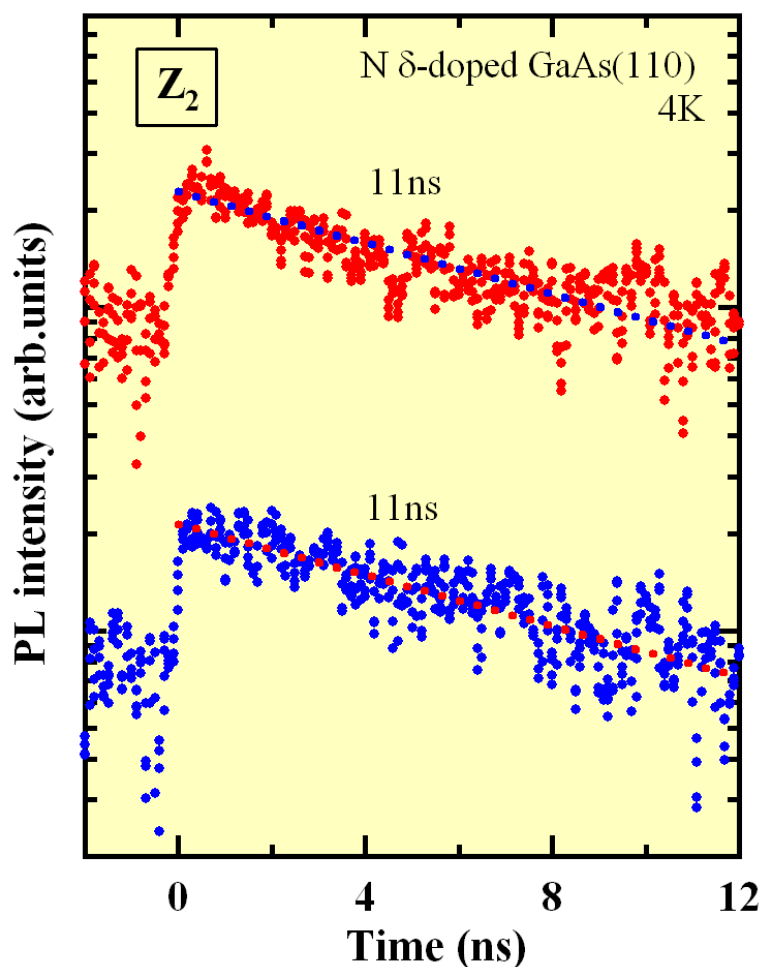


図 8.5 同じ種類の単一等電子トラップによる時間分解測定

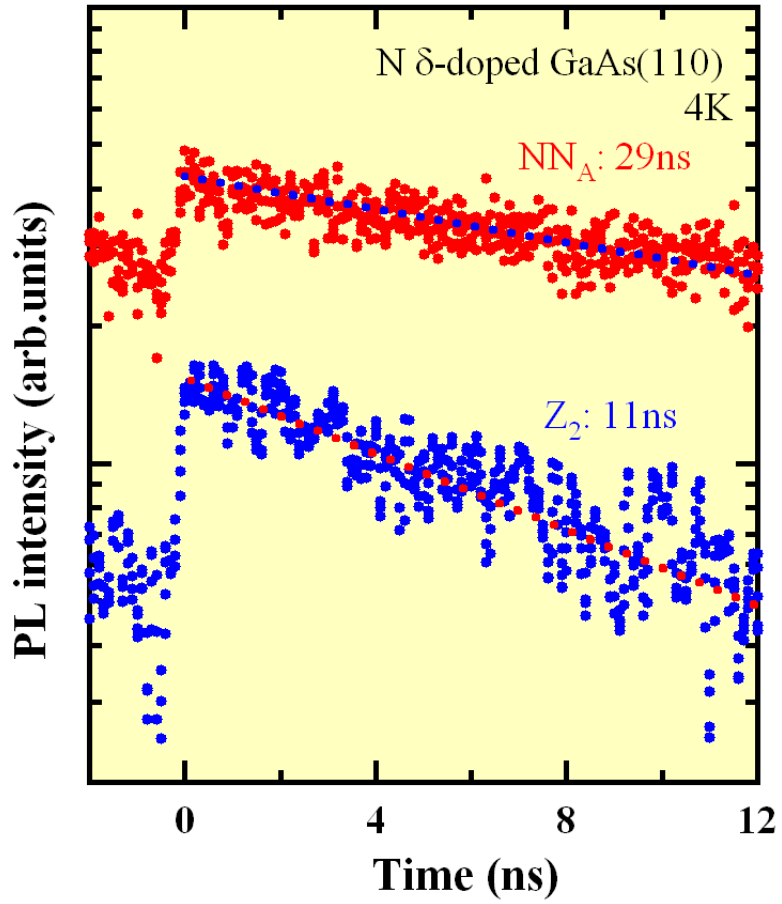


図 8.6 種類の異なる単一等電子トラップによる時間分解測定

8.5 まとめ

GaAs 中の単一等電子トラップからの発光に対して時間分解 PL 測定を行った。等電子トラップの種類が同じであれば減衰時間が同じであることを確認した。励起子-励起子分子発光に対して時間分解測定を行ったところ $\tau_x = 2 \tau_{xx}$ の関係にあることがわかった。この結果から、単一等電子トラップによる励起子-励起子分子発光であることが時間分解 PL 測定においても確認できた。単一等電子トラップにおいては発光再結合確率 $1/\tau$ が発光強度に強く依存することから τ の小さい励起子分子発光を観測ことは量子情報通信分野において高速通信の可能性を示唆し、非古典光源応用に向けて重要な知見である。

第9章

結論

本研究では非古典光源への応用に向けて GaAs 中の窒素原子対による単一等電子トラップからの発光に着目し、詳細な発光特性評価また特性改善を目的として研究を行った。本研究で得られた主な結果を以下にまとめる。

- (1) 窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップからの発光に対して励起強度依存性を測定することで、発光再結合確率 $1/\tau$ を求めた。また等電子トラップの種類によって発光再結合確率が異なり、高エネルギー側の発光程ボーア半径が大きく発光再結合確率が高いことを見出した。
- (2) 窒素 δ ドープ GaAs/AlGaAs 構造を用いることで、単一等電子トラップからの発光が単峰でランダム偏光である発光を得ることができた。また障壁層の効果として AlGaAs 層を用いない試料と比べてキャリアの供給効率を約 8 倍程度向上させることに成功した。
- (3) 窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップから得られた X、XX 発光に対して励起強度依存性、空間マッピング、時間分解 PL 測定を行った結果から本論文で初めて GaAs 中の窒素原子対による単一等電子トラップから励起子分子発光を観測することに成功した。また励起子 - 励起子分子発光に対して偏光特性測定を行い、量子情報技術の分野に用いる光源に適したランダム偏光特性を得ることを見出した。
- (4) GaAs 中の単一等電子トラップによる発光に対して PLE 分光測定を行ったところ、PLE 吸収ピークが GaAs 自由励起子よりも 4meV と 5meV 程度高エネルギー側に 2 つ存在することがわかった。これにより、波長選択励起を用いることで SN 比が優れた非古典光源への可能性を見出した。

以上の様に本研究によって、GaAs 中の窒素原子対による単一等電子トラップから励起子分子発光を確認し、量子情報技術の分野で用いる非古典光源への応用に向けた重要な知見が得られた。

【 参考文献 】

- [1] C. H. Bennett and G. Brassard, Proc. IEEE Int. Conf. Computers, Systems and Signal Processing (1984) 175
- [2] A. K. Ekert, Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 661
- [3] C. H. Bennett, Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 3121
- [4] C. H. Bennett, G. Brassard and N. D. Mermin, Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 557
- [5] O. Akimoto and E. Hanamura, J. Phys. Soc. Jpn. **33** (1972) 1537
- [6] Y. Yamada, T. Sakashita, H. Watanabe, H. Kugimiya, S. Nakamura and T. Taguchi, Phys. Rev. B **61** (2000) 8363
- [7] Y. Yamada, Y. Ueki, K. Nakamura and T. Taguchi, Phys. Rev. B **70** (2004) 195210
- [8] R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss, *Proc. R. Soc.* **A243** (1958) 291
- [9] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale and Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 1502
- [10] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie and A. J. Shields. Nature **439** (2006) 179
- [11] O. Gazzano, M. P. Almeida, A. K. Nowak, S. L. Portalupi, A. Lemaitre, I. Sagnes, A. G. White and P. Senellart, Phys. Rev. Lett. **110** (2013) 250501
- [12] D. Press, S. Gotzinger, S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Löffler, M. Kamp, A. Forchel and Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 117402
- [13] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. Solomon and Y. Yamamoto, Nature **419** (2002) 594
- [14] D. G. Thomas, J. J. Hopfield and C. J. Frosch, Phys. Rev. Lett. **15** (1965) 857
- [15] M. Ikezawa, Y. Sakuma and Y. Masumoto, Jpn. J. Appl. Phys. **46** (2007) L871
- [16] M. Ikezawa, Y. Sakuma, M. Watanabe and Y. Masumoto, Jpn. J. Appl. Phys. **48** (2009) 04C158
- [17] D. G. Thomas and J. Hopfield, Phys. Rev. **150** (1966) 680
- [18] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda and H. Weinfurter, Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 290
- [19] P. Siyushev, H. Pinto, M. Voros, A. Gali, F. Jelezko and J. Wrachtrup, Phys. Rev. Lett. **110** (2013) 167402
- [20] R. Albrecht, A. Bommer, C. Deutsch, J. Reichel and C. Becher, Phys. Rev. Lett. **110** (2013) 243602
- [21] K. Beha, A. Batalov, N. B. Manson, R. Bratschitsch and A. Leitenstorfer, Phys. Rev. Lett. **109** (2012) 097404
- [22] B. Lounis and W. E. Moerner, Nature **407** (2000) 491

- [23] M. Weyers, M. Sato and H. Ando, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31** (1992) L853
- [24] R. Schwabe, W. Seifert, F. Bugge, R. Bindemann, V. F. Agekyan and S. V. Pogarev, *Solid State Communications* **55** (1985) 167
- [25] T. Shima, Y. Makita, S. Kimura, T. Iida, H. Sandhu and Y. Hoshino, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **127/128** (1997) 437
- [26] T. Makimoto, H. Saito and N. Kobayashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36** (1997) 1694
- [27] T. Makimoto and N. Kobayashi, *Appl. Phys. Lett.* **67** (1995) 688
- [28] T. Kita and O. Wada, *Phys. Rev. B* **74** (2006) 035213
- [29] Y. Harada, O. Kojima, T. Kita and O. Wada, *Phys. Status Solidi B* **248** (2011) 464
- [30] Y. Endo, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Yoshita, H. Akiyama, Nakajima, R. Katayama and K. Onabe, *Phys. E* **40** (2008) 2110
- [31] D. Karaiskaj, A. Mascarenhas, J. F. Klem, K. Volz, W. Stolz, M. Adamcyk and T. Tiedje, *Phys. Rev. B* **76** (2007) 125209
- [32] M. Ikezawa, Y. Sakuma, L. Zhang, Y. Sone, T. Mori, T. Hamano, M. Watanabe, K. Sakoda and Y. Masumoto, *Appl. Phys. Lett.* **100** (2012) 042106
- [33] T. Fukushima, Y. Hijikata, H. Yaguchi, S. Yoshida, M. Okano, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, R. Katayama and K. Onabe, *Phys. E* **42** (2010) 2529
- [34] H. Yaguchi, *Proc. SPIE* **7945** (2011) 79452F
- [35] B. Gil, M. Baj, J. Camassel and H. Mathieu, *Phys. Rev. B* **29** (1984) 3398
- [36] 福島俊之、埼玉大学大学院理工学研究科 修士論文 (2010)
- [37] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, K. M. Groom, A. I. Tartakovskii and M. S. Skolnick, *Phys. Rev. B* **72** (2005) 113305
- [38] G. Sek, P. Podemski, A. Musial, J. Misiewicz, S. Hein, S. Hofling and A. Forchel, *J. Appl. Phys.* **105** (2009) 086104

【 謝辞 】

本研究を進めるにあたり、本当に多くの方々に御指導、御助言また御協力を頂きましたこの場を借りて深く感謝いたします。

終始適切な御指導ならびに御助言をいただきました矢口裕之教授、土方泰斗准教授、八木修平助教、折原操技術職員、吉田貞史元教授(現、産総研)に深く感謝いたします。貴重な御意見、御協力をいただき、また日々の研究室での生活において大変御世話になった光エレクトロニクス研究室の皆様に深く感謝いたします。

東京大学新領域創成科学研究科の尾鍋研究室の皆様、特に尾鍋研太郎教授、窪谷茂幸博士(現、東北大学助教)、サクンタムサノーピン博士、菊地健彦氏には試料の作製、X線測定など御協力頂きました。また成長条件等に関して貴重なご意見等を頂きました。大変感謝しています。

東京大学物性研究所の秋山研究室の皆様、特に秋山英文准教授、望月敏光助教、吉田正裕博士、岡野真人博士、伊藤隆氏には顕微 PL 測定装置をはじめ多くの装置を使用させて頂きました。また装置の取り扱いの御教授、研究を進めるに辺り貴重な御意見等を頂きました。大変感謝しております。

東北大学の片山竜二准教授、岩淵拓也氏、正直花奈子氏にはX線測定をはじめ多くの装置の御協力頂きました。また研究を進めるに辺り貴重な御意見等頂きました。大変感謝しております。

本論文を作成するに当たり貴重な御意見等頂きました学位論文審査委員の鎌田憲彦教授、内田秀和准教授、田井野徹准教授に大変感謝しております。

博士課程進学に対して御理解・御協力を頂いた両親に大変感謝しております。

最後に矢口裕之教授には終始丁寧にしつかりと御指導していただきました。また、尾鍋研究室、秋山研究室や東北大での実験を行う機会や、国際会議での発表など貴重な体験をさせていただきました。厚く御礼申し上げます。

【 研究業績 】

学会発表

- [1] “窒素 δ ドープ GaAs(110)中の単一等電子トラップからの発光の偏光特性”
高宮 健吾、福島 俊之、星野 真也、八木 修平、土方 泰斗、望月 敏光、吉田 正裕、
秋山 英文、窪谷 茂幸、尾鍋 研太郎、片山 竜二、矢口 裕之
第 72 回応用物理学会学術講演会（平成 23 年 9 月、山形大学） **30p-ZA-5**
- [2] “窒素 δ ドープ GaAs における単一等電子トラップからの励起子分子発光”
高宮 健吾、福島 俊之、星野 真也、八木 修平、土方 泰斗、望月 敏光、吉田 正裕、
秋山 英文、窪谷 茂幸、尾鍋 研太郎、片山 竜二、矢口 裕之
第 59 回応用物理学関係連合講演会（平成 24 年 3 月、早稲田大学） **17a-A8-9**
- [3] “窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップからの発光のフォトルミネッセンス
励起分光測定”
高宮 健吾、八木 修平、土方 泰斗、望月 敏光、吉田 正裕、秋山 英文、窪谷 茂幸、
尾鍋 研太郎、片山 竜二、矢口 裕之
第 73 回応用物理学会学術講演会（平成 24 年 9 月、愛媛大学、松山大学） **12p-PB11-20**
- [4] “窒素 δ ドープ GaAs 中の単一等電子トラップによる励起子分子発光の時間分解フ
ォトルミネッセンス測定”
高宮 健吾、八木 修平、土方 泰斗、望月 敏光、吉田 正裕、秋山 英文、窪谷 茂幸、
片山 竜二、尾鍋 研太郎、矢口 裕之
第 74 回応用物理学会学術講演会（平成 25 年 9 月、同志社大学） **19p-P8-11**
- [5] “Single Photon Generation From Nitrogen Atomic-Layer Doped Gallium Arsenide”
K. Takamiya, S. Yagi, Y. Hijikata, H. Yaguchi, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama,
S. Kuboya, K. Onabe, and R. Katayama
THERMEC’ 2011 (August 2011, Quebec, Canada)

- [6] “Biexciton Emission from Single Isoelectronic Traps in Nitrogen Atomic-Layer-Doped GaAs”
K. Takamiya, T. Fukushima, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama, and H. Yaguchi
SemiconNano 2011 (September 2011, Traunkirchen, Austria)
- [7] “Biexciton Emission from Single Isoelectronic Traps Formed by Nitrogen-Nitrogen Pairs in GaAs”
K. Takamiya, T. Fukushima, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, K. Onabe, R. Katayama, and H. Yaguchi
International Conference on the Physics of Semiconductors 2012 (July 2012, Zurich, Switzerland)
- [8] “Excitation power dependence of the emission from various N-N pairs in N δ -doped GaAs”
K. Takamiya, S. Yagi, Y. Hijikata, T. Mochizuki, M. Yoshita, H. Akiyama, S. Kuboya, R. Katayama, K. Onabe, and H. Yaguchi
SemiconNano 2013 (October 2013, Lake Arrowhead, California)

学術論文

- [1] “Single Photon Generation from Nitrogen Atomic-Layer Doped Gallium Arsenide”
Kengo Takamiya, Yuta Endo, Toshiyuki Fukushima, Shuhei Yagi, Yasuto Hijikata, Toshimitsu Mochizuki, Masahiro Yoshita, Hidefumi Akiyama, Shigeyuki Kuboya, Kentaro Onabe, Ryuji Katayama, and Hiroyuki Yaguchi
Materials Science Forum **706** (2012) 2916
- [2] “Biexciton Luminescence from Individual Isoelectronic Traps in Nitrogen δ -Doped GaAs”
Kengo Takamiya, Toshiyuki Fukushima, Shuhei Yagi, Yasuto Hijikata, Toshimitsu Mochizuki, Masahiro Yoshita, Hidefumi Akiyama, Shigeyuki Kuboya, Kentaro Onabe, Ryuji Katayama, and Hiroyuki Yaguchi
Appl. Phys. Express **5** (2012) 111201