

末宗 幾夫

北海道大学電子科学研究所・教授

超伝導フォトニクスの創成とその応用

§ 1. 研究実施の概要

現在量子情報処理ネットワークに関する研究が活潑に進められており、集積化の可能な固体量子ビットの有力候補が超伝導量子ビットである。しかしこれまで情報伝送媒体としてのフォトニクスと超伝導をつなぐ境界領域の科学的、技術的な基盤はほとんど構築されていない。本研究の目標は、超伝導とフォトニクスの研究領域をつなぐ基盤技術を開発し、超伝導とフォトニクスの境界領域にまたがる新しい学問分野・技術分野の開拓を進めることである。具体的には、超伝導電極を持った発光ダイオードを作製し、クーパー対の持つ巨視的な量子状態を、発生する光子に転送する技術の開発を目指している。例えば、電子クーパー対の大きなコヒーレント体積による振動子強度の増強により、より高速の光子発生が期待され、またクーパー対と半導体量子ドットの離散準位に対するパウリの排他律を組み合わせることで、On demand で一度に単一の量子もつれ合い光子対を発生するダイオード光源の実現が期待される。

前年度までに得られた主な成果をまとめると以下の通りである。

- (1) Nb 超伝導電極から n 型 InGaAs 系への電子クーパー対注入ならびに p 型 InGaAs 系の正孔クーパー対注入をジョセフソン電流の観測により確認した。
- (2) Nb 超伝導電極と直接コンタクトした InAs 量子ドット PL 発光の超伝導臨界温度以下での増大を観測した。
- (3) InGaAs 系超伝導発光ダイオードからの EL が超伝導臨界温度以下で増大することを観測した。さらに、EL 発光強度と発光寿命の関係を詳細に検討し、発光再結合寿命が短縮(発光再結合レートが増大)していることを確認した。
- (4) より高い温度で超伝導 LED を動作させることを目指して MgB₂ 薄膜の検討を進め、GaAs 基板上で超伝導臨界温度 30 K を持つ MgB₂ 膜の形成に成功した。

H21 年度は、超伝導発光ダイオードにおける電子(クーパー)対がどのように LED 発光増強に寄与しているか、特に電子が対を形成していることによって光子対が発生する可能性の検討

を中心に実験・理論の両面から進めた。理論的には Bogoliubov 変換を用いて超伝導効果を取り入れた摂動理論によって、電子が正孔と再結合する際に、クーパー対を形成することによって正孔対と再結合するレートが大きく増大することが導出された。これに対する実験検討として、まず超伝導 LED 自体で Nb-InGaAs-Nb の超伝導-半導体接合における DC ジョセフソン効果・AC ジョセフソン効果の観測、超伝導臨界電流の LED p-n 接合バイアスによる変化によって、LED 活性層近傍まで電子クーパー対が流れていることを確認、さらに前年度確認した発光再結合寿命と内部量子効率の温度依存性についてより定量的に正確な議論を行い、上記の理論と定量的に良く一致することを確認した。これによって、現在検討を続けている超伝導 LED によって量子もつれあい光子対を発生できる可能性が高まった。一方で発生した光子対を共に高い確率で検出器に取り出さないと、もつれあい光子対の確認はできない。半導体は 3.5 程度の高い屈折率を持つために半導体から空気に光子を取り出せる確率はわずか 2% である。そこでこの点を改善するために、半導体量子ドットを金属に埋め込む構造を考案し、30 倍以上の PL 発光増強を確認している。現在、この光子対を高い確率で外部に取り出せる構造を LED に適用した新型超伝導 LED の試作を続けており、最終年度には、量子もつれ合い光子対発生を実証する。

§ 2. 研究実施体制

(1)「北海道大学」グループ

①研究分担グループ長:末宗 幾夫(北海道大学、教授)

②研究項目

1. 超伝導 LED における超伝導効果の理論検討
2. 超伝導 LED の超伝導による発光増強、発光寿命の短縮の検討
3. 光子外部取り出し効率を高めた Nb 埋め込み InAs 量子ドット構造の試作
4. Nb-InGaAs-Nb 超伝導 LED の製作と評価
5. InGaAs 単一光子検出器を高速変調する新方式でのもつれあい光子対の検証実験
6. GaAs/GaAsSb Type-II 量子ドット系単一光子発生 LED の試作
7. Se の δ ドープ層によるオーミック層等を用いた超伝導電極と半導体へのオーミックコンタクトとクーパー対注入の検討

(2)「浜松ホトニクス株式会社」グループ

①研究分担グループ長:田中 和典(浜松ホトニクス株式会社、専任部員)

②研究項目

1. InGaAs p-n 接合を用いた超伝導 LED の検討

2. InP/InGaAs p-n 接合を用いた超伝導 LED の検討

(3)「日本電信電話株式会社」グループ

①研究分担グループ長:赤崎 達志(日本電信電話株式会社、グループリーダー)

②研究項目

1. 半導体上へのNb超伝導電極の形成
2. n^+ -GaAsNSeオーミックコンタクト層を用いた超伝導電極と半導体へのオーミックコンタクトの検討
3. Nb超伝導電極を用いた, 電子クーパー対注入の検討
4. 自己形成InAs量子ドットを用いた超伝導体・半導体接合の作製
5. 超伝導電極の高 T_C 化のため、 MgB_2 超伝導薄膜を用いた超伝導体・半導体接合の検討
6. 超伝導体・半導体接合への光照射効果

(4)「東京理科大学」グループ

①研究分担グループ長:高柳 英明(東京理科大学、教授)

②研究項目

1. Nb超伝導電極と n^+ -GaAsNSeオーミック層, n^+ -GaAsNSe/ n^+ -InGaAsひずみ補償擬似傾斜バンドギャップ超格子による接合における、界面特性の解明(超伝導近接効果、アンドレーエフ反射)。このNb超伝導電極を用いて、電子クーパー対注入に関する検討を行う。
2. Nb-p形InGaAs-Nb接合における超伝導特性解明。
3. MgB_2 超伝導薄膜の特性評価と MgB_2 -半導体接合の特性解明。
4. 超伝導を用いた単一光子検出器の基礎検討。
5. 超伝導電極との直接接合を目指した開放型InAs量子ドットの伝導特性評価。
6. 超伝導量子ビットと光子系との結合の基礎検討。

(5)「物材機構」グループ

①研究分担グループ長:高柳 英明(物質・材料研究機構、主任研究員)

②研究項目

1. Nb超伝導電極と n^+ -GaAsNSeオーミック層, n^+ -GaAsNSe/ n^+ -InGaAsひずみ補償擬似傾斜バンドギャップ超格子による接合における、界面特性の解明(超伝導近接効果、アンドレーエフ反射)。このNb超伝導電極を用いて、電子クーパー対注入に関する検討を行う。
2. Nb-p形InGaAs-Nb接合における超伝導特性解明。

3. MgB₂超伝導薄膜の特性評価とMgB₂-半導体接合の特性解明。
4. 超伝導を用いた単一光子検出器の基礎検討。
5. 超伝導電極との直接接合を目指した開放型InAs量子ドットの伝導特性評価。
6. 超伝導量子ビットとフォトニクス系との結合の基礎検討。

§ 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する)

[研究目的]

H21年度は、超伝導発光ダイオードにおける電子(クーパー)対がどのようにLED発光増強に寄与しているか、特に電子が対を形成していることによって光子対が発生する可能性の検討を中心に実験・理論の両面から進めた。理論的には Bogoliubov 変換を用いて超伝導効果を取り入れた摂動理論によって、電子が正孔と再結合する際に、クーパー対を形成することによって正孔対と再結合するレートを検討した。これに対する実験検討として、まず超伝導LED自体でNb-InGaAs-Nbの超伝導・半導体接合におけるDCジョセフソン効果・ACジョセフソン効果の観測、超伝導臨界電流のLED p-n接合バイアスによる変化によって、LED活性層近傍まで電子クーパー対が流れていることの確認を目指した。さらに前年度確認した発光再結合寿命と内部量子効率の温度依存性についてより定量的に正確な議論を行い、上記の理論と定量的に比較する。これによって、現在検討を続けている超伝導LEDによって量子もつれあい光子対が発生できる可能性を探った。一方で発生した光子対を共に高い確率で検出器に取り出さないと、もつれあい光子対の確認はできない。半導体は3.5程度の高い屈折率を持つために半導体から空気に光子を取り出せる確率はわずか2%である。そこでこの点を改善するために、半導体量子ドットを金属に埋め込む構造を考案し、PL発光の増強を確認した。さらに、この光子対を高い確率で外部に取り出せる構造をLEDに適用した新型超伝導LEDの試作を続け、最終年度の量子もつれ合い光子対発生の実証へと研究を進める。

[研究実施の方法と結果]

A. 北海道大学グループ

超伝導LEDにおける超伝導効果の理論検討

Bogoliubov 変換を用いて超伝導効果を取り入れた摂動理論によって、電子が正孔と再結合する際に、クーパー対を形成することによって正孔対と再結合するレートが大きく増大することが導出された。図A1に示すように、通常電子(青丸)と正孔(白丸)が再結合して光子(黄丸)が発生するプロセスはそれぞれ独立である。それに対して Bogoliubov 変換を用いて超伝導効果を取り入れる

と、図 A2 のようにスピンの反転した電子対を形成し、これと通常の正孔の対とが再結合する過程が増強されることがわかった (Y. Asano, et al: “Luminescence of a Cooper Pair” Phys. Rev. Lett. **103** (2009) 187001.). これは今実験を行っている超伝導 LED でもつれあい光子対が発生されていることを示している。

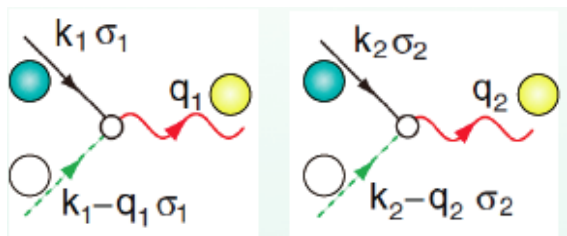


図 A-1 通常の電子—正孔の再結合による光子生成。

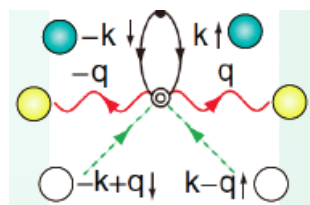


図 A-2 電子がスピンスングレット対を作り、2つの正孔と再結合して光子対を生成する過程。

超伝導 LED の超伝導による発光増強、発光寿命の短縮の検討

東京理科大 G の報告にあるように、超伝導 LED 自体で Nb-InGaAs-Nb の超伝導-半導体接合における DC ジョセフソン効果・AC ジョセフソン効果の観測、超伝導臨界電流の LED p-n 接合バイアスによる変化によって、LED 活性層近傍まで電子クーパー対が流れていることを確認し、実験している超伝導 LED が理論で想定した状況になっていることを確認した。さらに前年度確認した発光再結合寿命と内部量子効率の温度依存性についてより定量的に正確な議論を行った。一例として、内部量子効率が 100%と見なされる LED の特性を図 A3, 図 A4 に示す。図 A3 で再結合寿命が温度によって急激に変わっているのに、図 A4 で EL 強度が温度によってほとんど変化しないことが、内部量子効率~100%の証拠となる。これは同時に、図 A3 に示した寿命が発光再結合寿命であることを示しており、実線の上記の理論と定量的に良く一致している。これによって、現在検討を続けている超伝導 LED によって量子もつれあい光子対を発生できる可能性が高まった。

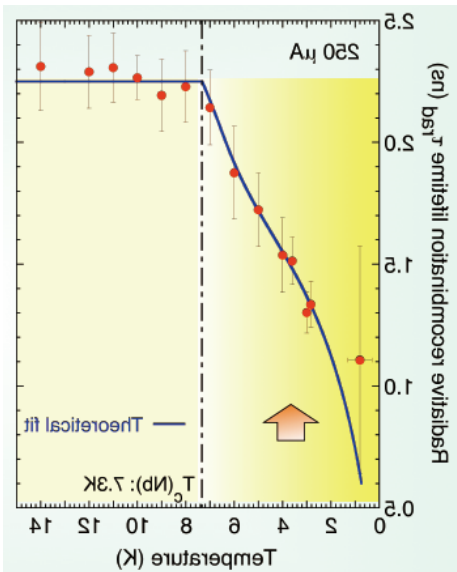


図 A-3 超伝導 LED の（発光）再結合寿命の温度依存性測定結果と理論との比較。

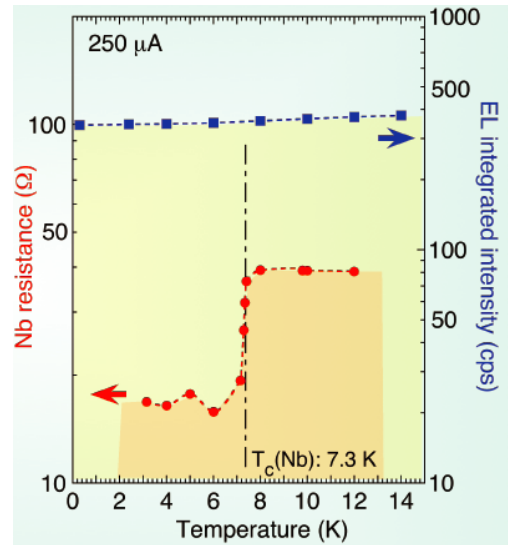


図 A-4 EL 積分強度の温度依存性（下部はニオブ電極の抵抗値とその温度依存性）

光子外部取り出し効率を高めた Nb 埋め込み InAs 量子ドット構造の試作

半導体は 3.5 程度の高い屈折率を持つために半導体から空気に光子を取り出せる確率はわずか 2% である。そこでこの点を改善するために、半導体量子ドットを金属に埋め込む構造を考案し、30 倍以上の PL 発光増強を確認した。図 A5 にその模式図と FDTD シミュレーション結果、図 A6 に Nb に埋め込む前のスペクトルと埋め込んだ後のスペクトルの比較、ならびに多数のサンプルを測定した結果をまとめた金属埋め込みによる発光増強を示す。

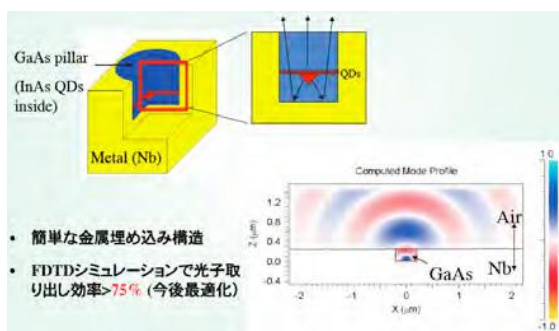


図 A-5 ニオブ金属に埋め込んだ InAs 量子ドットを内包した GaAs ピラーの模式図と FDTD シミュレーションの例

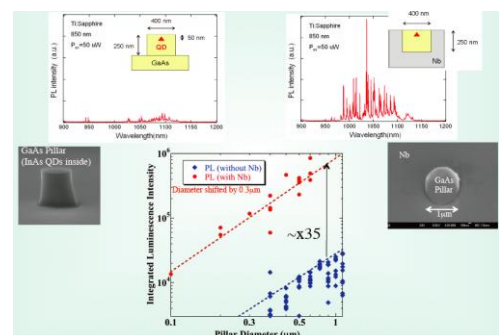


図 A-6 Nb に埋め込む前後の InAs QD の PL スペクトルの比較

Nb-InGaAs-Nb 超伝導 LED の製作と評価

現在、この光子対を高い確率で外部に取り出せる構造を LED に適用した新型超伝導 LED の試作を続けており、浜松ホトニクス G でその詳細が記述されている。

B. 浜松ホトニクス株式会社グループ

InGaAs p-n 接合に電子クーパー対と正孔クーパー対を注入し、発光再結合することで量子もつれ合い光子対を発生させるために、InGaAs p-n 接合薄膜(全体膜厚 \sim 200nm)を Nb 電極で直接挟み込む構造の作製に取り組んでいる。上記のような構造を実現するために基板貼り付け技術を用いてデバイスの作製を進めた。Nb 電極の超伝導デバイスを作製する前に、Au 電極で InGaAs p-n 接合薄膜を挟みこんだデバイスを作製・評価することでプロセス技術の確立を推し進めた。図 B1 は実際に作製したデバイスの表面写真(サイズ:1x1mm)と断面構造を示している。InGaAs p-n 接合薄膜を選択エッチングによりパターニングし、その後に絶縁膜(Si_3N_4)の成膜とパターニングを行った。さらに Ti/Pt/Au 電極を蒸着し、In を介して金薄膜が蒸着してある支持基板に貼り付けを行った。貼り付け後に InGaAs p-n 接合薄膜を成膜した InP 基板を完全に除去し、表面に電極を形成することで InGaAs p-n 接合薄膜を Au 電極で挟みこんだ構造が作製できる。図 B2 は 10K での電流注入による発光特性を示しており、 $100\mu\text{A}$ 以下の電流注入で 1600nm 帯域に発光ピークを確認することができた。今後はこれまでの実験で得られたプロセス技術を使用して Nb 電極デバイスの作製を進めていく予定である。

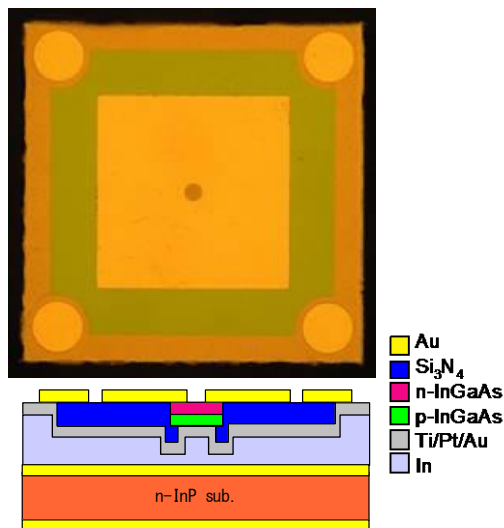


図 B-1 Au 電極基板貼り付けデバイスの表面写真と断面構造

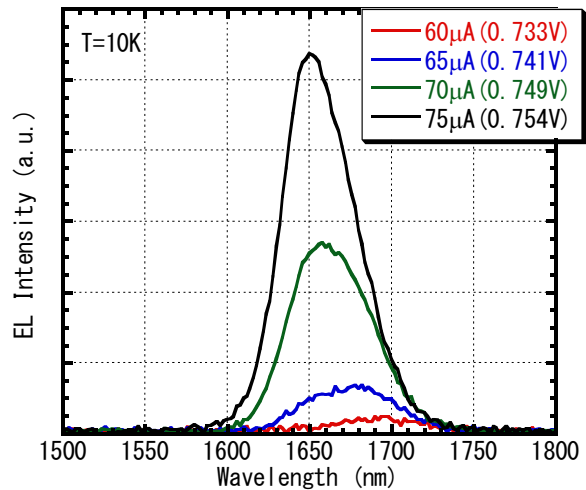


図 B-2 10K での電流注入による発光特性

C. 日本電信電話株式会社グループ

MgB₂による超伝導臨界温度上昇と SNS 接合作製の試み

素子の動作温度の上昇を目指し、高い T_c を有する MgB₂ を超伝導電極に用いることを可能にするため、電子ビーム共蒸着法を用いて、浜松ホトニクスで作製した InGaAs ヘテロ構造上への MgB₂ 薄膜成長と微細加工技術の確立に取り組んだ。MgB₂ 超伝導接合では、Nb 等で通常用いられるリフトオフ法や RIE によるドライエッチング法による接合作製が困難であるため、段切れプロセスによる接合作製技術を確立した。最初に用いた SiO₂ パターンでの段切れプロセスでは、1.5μm 程度のギャップの接合は作製できるが、サブミクロンサイズの接合では段切れが起こらなかった。そこで、形状、材質を見直し、SiO₂ をオーバーハング形状 C/Si パターンに変更した (図 C-1 参照)。この段切れプロセスにより、 $L \sim 0.5\mu\text{m}$ 程度の MgB₂/n-InGaAs / MgB₂ 接合の作製に成功した。しかしながら、この MgB₂ 超伝導接合は、数十 kΩ の高抵抗となり、Josephson 電流等の超伝導特性を観測することはできなかった。この原因を解明するため、MgB₂/n-InGaAs 界面の TEM 観察を行った。その結果、MgB₂ 層直下の n-InGaAs 層の一部に変質部位が観測された。HAADF-STEM、EDS マッピング、EELS 分析から、MgB₂/n-InGaAs 界面近傍で、MgB₂ 層での Mg 濃度の減少が観測され、一方 n-InGaAs 層の変質部位から Mg の存在が確認された (図 C-2 参照)。このことから、成長時、Mg が n-InGaAs 層に拡散し、特性劣化を引き起こしているものと考えられる。今後は、MgB₂/n-InGaAs 界面への金属バッファ層の導入を検討し、Mg 拡散による n-InGaAs の特性劣化を防ぎ、良好な界面特性を有する MgB₂ 超伝導接合の実現を目指す。

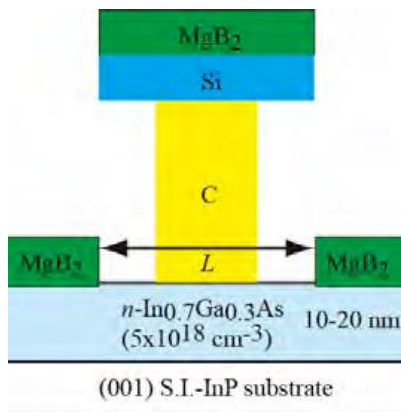
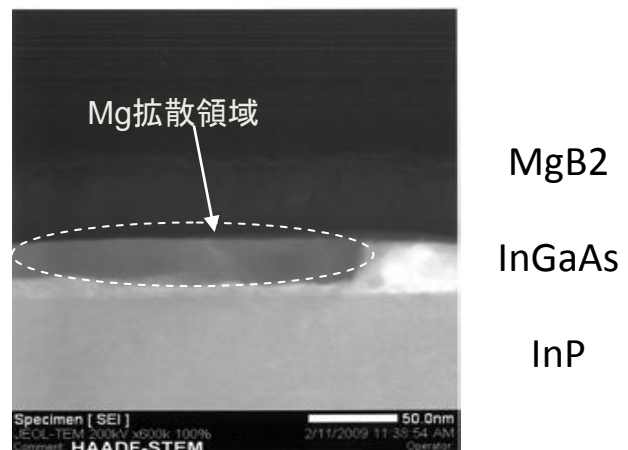


図 C-1 MgB₂/n-InGaAs/MgB₂ 複合構造 (模式図)



図C-2 HAADF-STEM 像

D. 東京理科大学グループ

H21 年度は、前年度に引き続き図 D-1(a)のような超伝導発光ダイオード(超伝導 LED)構造

における二つの Nb 電極間の輸送特性について詳細に調べた。その主な結果を図 D-1(b)に示す。まず挿入図の通りマイクロ波照射下において明瞭なシャピロステップを確認した。これによって、二つの Nb 電極とその間の n-InGaAs 層が超伝導-半導体-超伝導ジョセフソン接合を構成していると直接的に実証できた。さらに p-InP 層に取り付けられた背面ゲート電極の電圧によってジョセフソン接合特性が図 D-1(b)主要図の通り変化することが分かった。超伝導 LED 構造における p-InP 層と n-InGaAs 層は pn 接合を構成しており、界面のキャリア出払い層は背面ゲート電極の電圧によって変化する。図 D-1(b)主要図の変化によって、超伝導 LED 構造において電子クーパ対が Nb 超伝導電極から p-InP/n-InGaAs 界面の発光層に近接効果によって浸入していると証明できた。さらに臨界電流 I_c の振舞いから発光再結合過程がモニタできることが分かり、その詳細を現在解析している。この超伝導 LED 素子の構造は、北大グループおよび浜松ホトニクスグループでフォトルミネセンス・エレクトロルミネセンス発光強度増強を測定している素子の構造と同一であり、発光再結合過程を光測定と輸送測定双方から調べることに成功したことになる。

超格子構造を含む超伝導-半導体-超伝導接合のマイクロ波照射下における微分抵抗振動現象については、H19 年度の発見以来研究を進めているが、H21 年度に新しい試料の作成に成功したので今後測定・解析を行う。

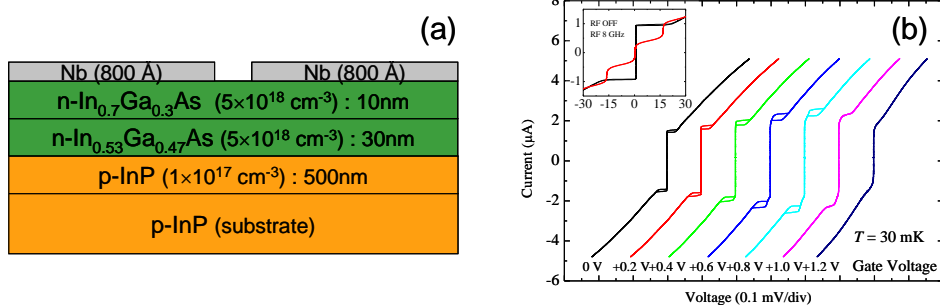


図 D-1 超伝導 LED の (a) 模式的断面構造 と (b) 背面ゲート電圧によるジョセフソン接合特性の変化。挿入図はマイクロ波照射下におけるシャピロステップ

E. 物材機構グループ

このグループは今年度新たに発足したグループであるが、研究者および研究テーマは、理科大グループと重複する部分が多い。それは、高柳が物質・材料研究機構の国際ナノアーキテクニクス研究拠点の主任研究員に採用され、研究場所も東京理科大学と物質・材料研究機構の2箇所になったためである。

H21 年度の理科大グループの測定は、基本的に物質・材料研究機構にある希釈冷凍機を用いてにおいて実施されたので、物材機構グループとの連携が必要不可欠であった。また超格子構

造を含む超伝導・半導体・超伝導接合の新しい試料は、物質・材料研究機構ナノテクノロジー融合センターナノ集積ラインの技術協力によって作成された。

物質・材料研究機構では、波長可変パルスレーザーを照射しての実験が可能であるため、今後分担して実験を進める。

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

- [1] H. Kumano, S. Ekuni, H. Kobayashi, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi, and S. Muto: “Spin-flip Quenching in Trion State Mediated by Optical Phonons in a Single Quantum Dot” *phys. stat. sol. B* **246** (2009) pp. 775-778. DOI 10.1002/pssb.200880619
- [2] Y. Idutsu, S. Miyamura, and I. Suemune: “Improved Luminescence Efficiency of InAs Quantum Dots Grown on Atomic Terraced GaAs Surface Prepared with In-situ Chemical Etching” *phys. stat. sol. C* **6** (2009) pp. 868-871. DOI 10.1002/pssc.200880634
- [3] J. Ibanez, E. Alarcon-Llado, R. Cusco, L. Artus, D. Fowler, A. Patane, K. Uesugi, and I. Suemune: “LO Phonon-plasmon Coupled Modes and Carrier mobilities in Heavily Se-doped Ga(As,N) Thin Films” *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* **20** (2009) pp. S425-S429. DOI 10.1007/s10854-008-9661-x
- [4] Y. Idutsu, M. Takada, Y. Hayashi, T. Akazaki, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: “Observation of Enhanced Luminescence Emitted from InAs Quantum Dots with Direct Contact to Superconducting Niobium Stripe” *phys. stat. sol. C* **6** (2009) pp. 849-852. DOI 10.1002/pssc.200880669
- [5] Y. Asano, I. Suemune, H. Takayanagi, and E. Hanamura: “Luminescence of a Cooper Pair” *Phys. Rev. Lett.* **103** (2009) 187001. DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.187001
- [6] H. Sasakura, H. Kumano, I. Suemune, J. Motohisa, Y. Kobayashi, M. van Kouwen, K. Tomioka, T. Fukui, N. Akopian, and V. Zwiller: “Exciton Coherence in Clean Single InP/InAsP/InP Nanowire Quantum Dots Emitting in Infra-red Measured by Fourier Spectroscopy” *J. Phys.* **193** (2009) 01232. doi:10.1088/1742-6596/193/1/012132
- [7] T. Akazaki, H. Hashiba, M. Yamaguchi, K. Tsumura, S. Nomura, and H. Takayanagi, “Interplay between negative photoconductivity and enhanced Andreev reflection in InGaAs-based S-Sm-S junctions when exposed to infrared light”, *J. of Physics: Conf. Series* **150**, 052004 (2009).
- [8] K. Tsumura, S. Nomura, T. Akazaki, and H. Takayanagi, “Optical imaging of the transport properties of S-Sm-S junctions”, *J. of Physics: Conf. Series* **150**, 052273 (2009).
- [9] R. Inoue, H. Takayanagi, T. Akazaki, K. Tanaka, and I. Suemune: “Transport Characteristics of a Superconductor-based LED” *Supercond. Sci. Technol.* **23** (2010) 034025.

doi:10.1088/0953-2048/23/3/034025

- [10] H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, Y. Idutsu, H. Sasakura, and I. Suemune: “Quantum-dot-based Photon Emission and Media Conversion for Quantum Information Applications” *Advances in Mathematical Physics* Vol. 2010, No. 391607 (2010) 1-13 (Review Paper). doi:10.1155/2010/391607

(4-2) 知財出願

CREST 研究期間累積件数(国内 3 件)