

修士論文

III 族窒化物量子ドットの 光子取り出し効率の向上に関する研究

Research on Improving the Photon Extraction Efficiency from III-nitride Quantum Dots

指導教員 Mark J. Holmes 准教授

東京大学大学院 工学系研究科

電気系工学専攻

電気電子工学コース

37-186432 青木伴晋

令和2年1月30日 提出

目次

第 1 章 序論.....	1
1.1. 研究背景.....	1
1.2. 研究目的.....	3
1.3. 本論文の構成.....	4
第 2 章 本研究に関する基礎事項.....	5
2.1. III 族窒化物半導体.....	5
2.2. 量子ドット (QUANTUM DOT, QD)	6
2.3. 分布ブラッグ反射鏡 (DISTRIBUTED BRAGG REFLECTOR, DBR) および BULLSEYE 構造の動作原理.....	9
第 3 章 光子取り出し効率の高い構造の設計	15
3.1. はじめに	15
3.2. $5\lambda/4n$ DBR 層をもった BULLSEYE 構造	15
3.3. 光子取り出し効率のシミュレーション手法	17
3.4. III 族窒化物用 BULLSEYE 構造の設計.....	18
3.5. シミュレーションによる光子取り出し効率の見積り	20
第 4 章 GaN 量子ドットを用いた光子の高取り出し効率構造の作製.....	22
4.1. はじめに	22
4.2. QD サンプル	22
4.3. プロセスフロー	23
4.4. 条件出し用 BULLSEYE 構造の試作	24
4.4.1. EB レジスト剤の塗布.....	24
4.4.2. EB lithography	25
4.4.3. 現像.....	26
4.4.4. Dry Etching.....	27
4.4.5. レジスト剤剥離.....	28
4.4.6. 試作したデバイスの観察.....	29

4.5.	BULLSEYE 構造の作製.....	33
4.5.1.	EB レジスト剤の塗布.....	33
4.5.2.	EB lithography.....	34
4.5.3.	現像.....	35
4.5.4.	Dry Etching.....	35
4.5.5.	レジスト剤剥離.....	36
4.6.	作製したデバイスの観察.....	37
第 5 章 作製したデバイスの光学特性評価.....		40
5.1.	はじめに.....	40
5.2.	光学系のセットアップ.....	40
5.3.	光子取り出し効率の測定方法.....	41
5.4.	光学評価結果.....	42
第 6 章 更なる高取り出し効率構造を目指して.....		48
6.1.	新たな BULLSEYE 構造の設計.....	48
第 7 章 まとめと今後の展望.....		50
7.1.	まとめ.....	50
7.2.	今後の展望.....	50
参考文献.....		52
本研究に関する発表.....		56
関連研究.....		56
謝辞.....		58

第1章 序論

1.1. 研究背景

量子情報通信技術は、重ね合わせ状態や不確定性原理、量子もつれといった量子力学の性質を用いることで、現在の古典的な情報通信技術を凌駕する性能・性質をもつと期待されている。量子情報通信技術において、量子情報の基本単位である量子ビット (qubit) は量子力学的 2 準位系で表現され、その候補として超伝導の磁束[1]や原子イオン[2]、単一原子[3]、固体中電子スピン[4]、光子[5]といった様々な物理系が挙げられている。これらの中でも特に光子は、他の量子系と比較するとコヒーレンス時間が長い、つまり量子重ね合わせ状態が壊れにくい。また、他の量子系が極低温で無ければ安定に存在することが出来ないのに対し、光子は室温でも安定して存在することが出来る。さらに、光子は光ファイバを用いることで長距離伝送を行うことが出来る点でも非常に有望な量子ビットといえる[6,7]。

光子を用いた量子ビットの実装には、よく単一光子の偏光状態[8 - 10]が用いられている。実際にこの光量子ビットを用いた量子情報通信技術の手法や実証例が近年盛んに報告されており[11-14]、代表的なものとしてこれまでに線型の光量子コンピュータ[15-18]や量子鍵配送(Quantum Key Distribution, QKD)[19-21]などが提案されている。しかし、これらの実証実験の中では光量子ビットを作り出すための量子光源として、従来のレーザ光の強度を極端に減衰させ1つのパルス中に平均して1個以下の光子が存在するようにしたものが用いられる事が多い。この方法でも、確かに単一光子は得られるが、光子数を制御していないため、1つのパルス中に2つ以上の光子が入る可能性がある。この場合、量子鍵配送では通信の秘匿性が崩壊し、量子コンピュータでは正しく演算を行うことが出来ない。

そこで量子情報通信技術の実用化を目指す上で、量子光源に求められる要件として次の3つが挙げられる。(i)高温での単一光子生成、(ii)純度(purity, 1つのパルス内に必ず光子が1つだけ存在し、2つ以上の光子が入ることを抑える)[22]、(iii)高効率動作。特に量子暗号通信への応用を考えた場合で解説をすると、(i)の高効率動作については実用上重要であることは言うまでも無い。光子以外の量子ビットの生成では、系を極低温に冷やす必要があるのに対して、光子は上述のように室温でも安定して存在可能な為、その生成においても室温環境下で可能である。(ii)については、2つ以上の光子に情報を書き込んでしまった場合、複数ある光子の内の1つから情報を盗られても気付くことが出来ず、暗号の秘匿性を失ってしまう。(iii)では、2種類の効率について考えること

が出来る。1つは発光効率で、もう1つは素子から外部への光子の取り出し効率である。長距離量子暗号通信において、発光効率や素子から光ファイバまでの結合効率が悪いと通信のデータレートが低下してしまうという大きな問題点となる。

そこで上記(i)-(iii)の要件を満たしうる単一光子源の候補として、自己形成半導体量子ドット(Quantum Dot, QD)が挙げられる[23-26]。GaAs系の半導体量子ドットにおいては、(ii)を満たす非常に純度の高い単一光子を生成でき[27]、GaN系の半導体量子ドットにおいては、(i)を満たす350 Kという高温での単一光子生成が報告されている[28]。一方で半導体量子ドットは、半導体の屈折率が空気よりも大きい為に、生成された光子は半導体内部で反射してしまい外部に取り出すのが困難という問題点がある。実際に、何も加工の無い平坦な表面からの光子放出の様子を表したものを図1.1に示す。この図中では、AlN($n = 2.262$)を用いており、 $NA = 0.4$ のレンズでの光子取り出し効率は1.1%である。

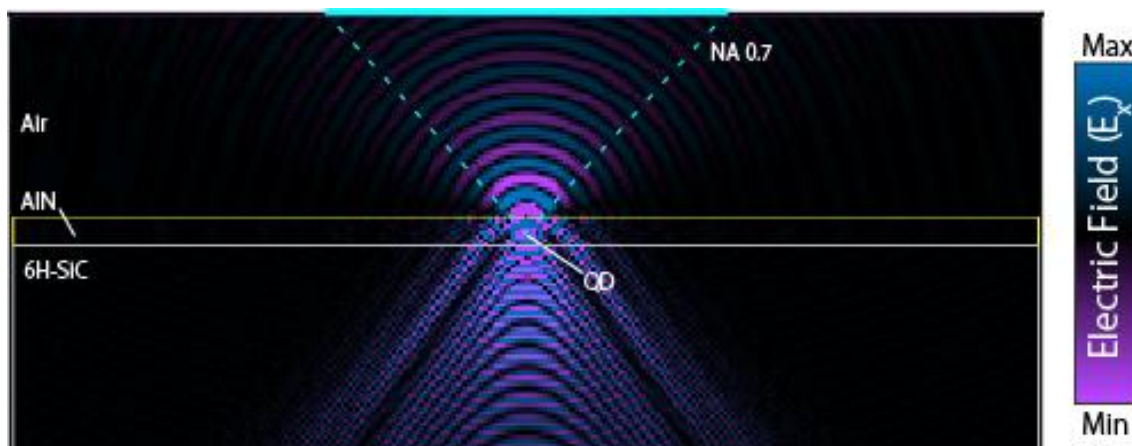


図 1.1 無加工で平坦な窒化物半導体量子ドットからの光子放出の様子

これまで半導体量子ドットからの光子の取り出し効率を向上させるために、様々な構造が考案されてきた。GaAs系の量子ドットでは、分布ブラッグ反射鏡(DBR)を用いた微小共振器を応用したもの[29]や、先が細くなったアンテナ状のNanowire中に量子ドットを埋め込み、Nanowireの下にAuの鏡を配置した構造[30]、そしてNanowireを中心に円環状にDBR層を設けたBullseye構造と呼ばれる構造がある[31,32]。GaN系の量子ドットでは、オベリスク状のNanopillar構造[33]やホーン型の構造[34]がある。これらの構造の中で比較的取り出し効率が高いのは、Bullseye構造である。しかし、窒化

物半導体量子ドットを用いて Bullseye 構造を作製しようとした場合、発光波長の短さ故に構造のスケールが小さくなってしまふ点や、材料そのものが堅いという点により、プロセス加工が非常に困難である。一方で窒化物半導体量子ドットは、GaAs 系の半導体量子ドットに比べて、励起子束縛エネルギーが大きく、室温での動作が可能という利点がある。よって、実用的な単一光子源を開発するために、室温動作可能な窒化物半導体量子ドットにおいて、高い光子の取り出し効率が見込める Bullseye 構造を設計し作製することが有効であると言える。

1.2. 研究目的

改めて、本研究で着目した Bullseye 構造とは前述のように、Nanowire を中心に円環状に DBR 層を設けた図 1.2 のような構造である。この構造を採用した理由は、高い取り出し効率が期待できることに加え、プロセスフロー自体は、一般的なトップダウン型のプロセス加工により比較的容易に行えるためである。しかし、前述のように GaAs 系の半導体用に設計された Bullseye 構造を単純に窒化物半導体の波長に合うようにスケールリングしただけでは、極めて微細な構造になってしまいデバイスの作製が困難である。

そこで本研究では、まず FDTD 法を用いた数値シミュレーションによって、プロセスが行える程度のスケールで、なおかつ Bullseye 構造としての効果が得られるようなデバイスの設計を行う。その後設計したデバイスを作製し、光学評価を行うことで窒化物半導体量子ドットを用いた光子の取り出し効率の向上を実証することを目的とする。

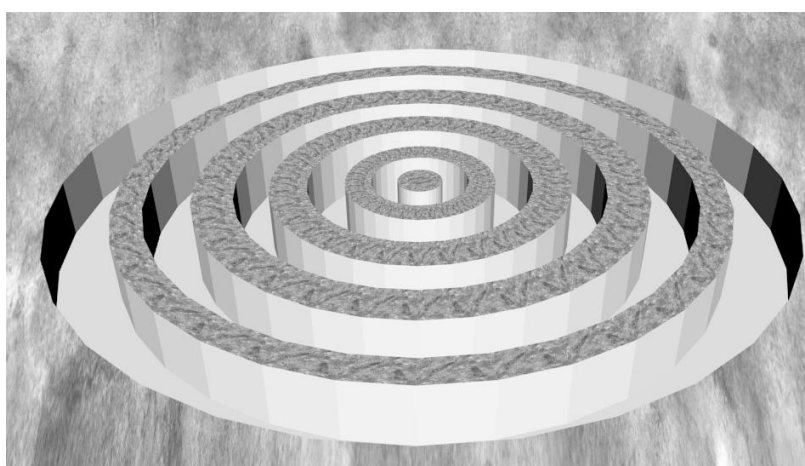


図 1.2 Bullseye 構造の模式図

1.3. 本論文の構成

本論文は全 9 章で構成されている。

第 1 章(本章)では、本研究の背景と目的を述べる。

第 2 章では、本研究に関する基礎事項について述べる。

第 3 章では、シミュレーションによって窒化物半導体用に Bullseye 構造を最適化したので、その計算方法を述べる。

第 4 章では、Bullseye 構造からの光子取り出し効率の向上効果を実験的に確かめる為に、第 3 章で設計したデバイスを作製したのでその作製方法について述べる。

第 5 章では、第 4 章において作製したデバイスの光学評価の結果について述べる。

第 6 章では、プロセスの制約を無視し、理論上さらに取り出し効率の高い構造の提案を行う。

第 7 章では、本研究のまとめと今後の展望を述べる。

第2章 本研究に関する基礎事項

2.1. III 族窒化物半導体

III 族窒化物半導体とは、III 族元素であるアルミニウム (Al) やガリウム (Ga)、インジウム (In) と、V 族元素の窒素 (N) から成る III-V 族化合物半導体およびその混晶半導体のことである。結晶構造は、立方晶の閃亜鉛鉱型構造と六方晶のウルツ鉱型構造 (図 2.1) が可能であるが、熱力学的に安定なのは六方晶ウルツ鉱型構造である。AlN や GaN、InN およびこれらの混晶半導体は、全組成域で直接遷移型バンド構造であるため光デバイスへの応用が可能である。さらに、図 2.2 に示すように III 族窒化物半導体のバンドギャップエネルギーは室温において InN の 0.64 eV[36]から AlN の 6.2 eV[37]にまで渡っており、これはすなわち赤外から可視光全域及び紫外域までカバーしているという事である。これにより、原理的には III 族窒化物半導体のみで、赤外か

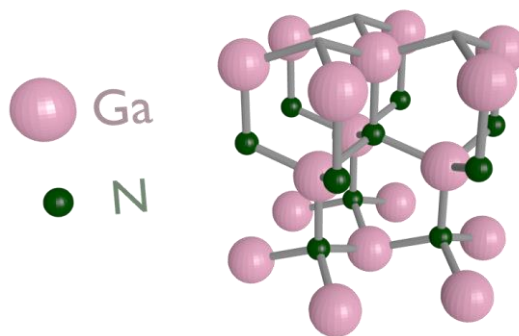


図 2.1 六方晶ウルツ鉱型構造 (GaN)

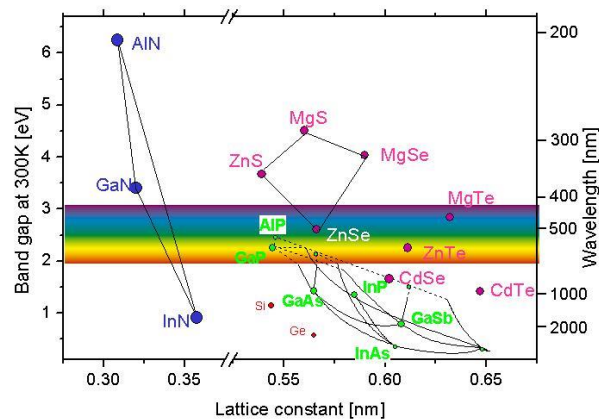


図 2.2 各種半導体の格子定数とバンドギャップエネルギー[35]

ら紫外に至る幅広い波長域の発光デバイスを作製することが可能である。

さらに III 族窒化物半導体は、その他の半導体に比べて、高温でも励起子が安定に存在するという利点をもつ。これは、III 族窒化物半導体の励起子結合エネルギーが、室温の熱エネルギーよりも高い為である。ここで自由励起子とは、光励起などによって生成された電子・正孔対がクーロン引力によって結合し、それぞれ独立に存在していた状態よりも、エネルギー的に安定になった状態をいう。GaN 中での励起子の半径は、約 30 Å 程度であり、原子間距離と比較して十分大きい為、ワニエ型励起子と見なせる。励起子結合エネルギー E は、

$$E = \frac{q^4 \mu}{2(4\pi\hbar\epsilon_r\epsilon_0)^2} \quad (2.1)$$

$$\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h} \quad (2.2)$$

となる [38]。ここで、 q は素電荷、 m_e, m_h はそれぞれ電子・正孔の有効質量、 ϵ_r は比誘電率、 ϵ_0 は真空の誘電率である。GaN の場合、基底状態において励起子結合エネルギー E は、約 26–28 meV である。これに対し、室温の熱エネルギーは 25.4 meV である。

III 族窒化物半導体は、上述したバンドギャップエネルギーが赤外から紫外までの広い範囲をカバーしている点や、室温での動作が可能な点以外にも、内部量子効率が高い点や、絶縁破壊電圧が高い点、電子の飽和速度が大きい点そして、GaAs などの半導体と比べて環境に優しい点等様々な利点を持ち合わせており、光デバイスに限らず次世代の半導体デバイスの開発には欠かせない非常に有望な材料であると言える。

2.2. 量子ドット (Quantum Dot, QD)

量子ドット (QD) とは、3 次元全ての方向から自由電子を閉じ込めることが可能なナノ構造 (寸法: 数十 nm) である。特に本研究で用いる半導体量子ドットは、バンドギャップの大きさの異なる 2 つの半導体材料 (本研究では、AlN と GaN の 2 種類) から形成される。図 2.3 に実際の GaN/AlN 半導体量子ドットの TEM 像を示す [39]。その大きさは直径約 22 nm, 高さは約 2.5 nm で約千個の原子で構成されている。1982 年に荒川・榊 [40] によって量子ドットを用いたレーザの温度特性が優れていることが報告されて以来、レーザ応用を中心に数多くの研究がなされている。[41-43] 量子ドットに捕らえられた電子は、3 次元全方位からの閉じ込めにより完全に動きを制限される為、図 2.4 に示すような離散的な状態密度 (Density of state, DOS) をもつ。[44] 図 2.4 はバルク、量子井戸、量子細線、量子ドットの状態密度を示している。ここで、状態密度と

は、単位体積あたり、単位エネルギーあたりの電子の量子状態の数である。[45]量子ドットの状態密度が離散的であり、尚且つ電子がフェルミ粒子であることから、図 2.5 に示すような 2 準位系のモデルを用いて、量子ドットにおける単一光子発生を考えることが出来る。[46,47]光励起や電流注入によって、半導体内に注入された電子正孔対は量子ドットに捕獲され、クーロン相互作用によって励起状態で安定となる。やがて、励起電子が再結合を起こし基底状態に緩和する際に光子を放出する。

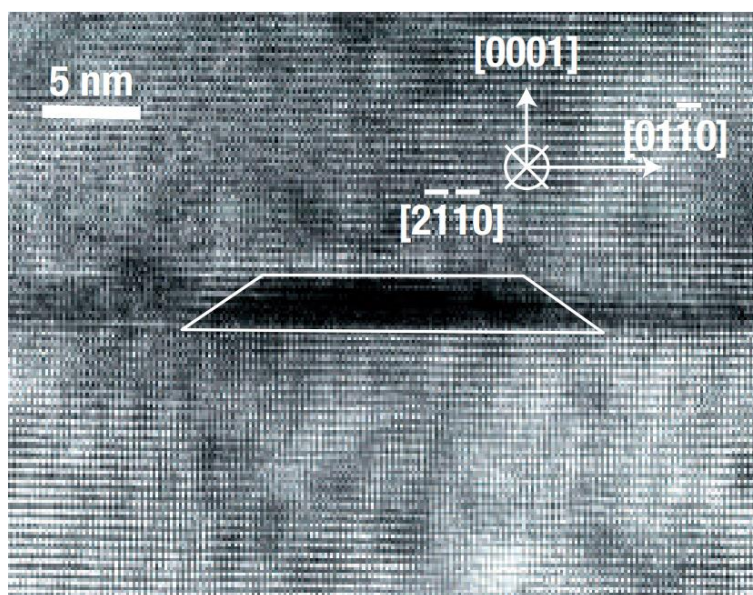


図 2.3 GaN/AlN 半導体量子ドットの TEM 像[37]

量子ドットの成長にはいくつかの方法がある。本研究で使用する量子ドットのサンプルは、有機金属気相成長法 (Metal Organic Chemical Vapor Deposition, MOCVD) を用いた SK 成長 (Stranski-Krastanov, S-K) モードにより作製されている。[48]この方法では、まず AlN 上に GaN 結晶を成長させる。はじめは 2 次元のウェットティングレイヤーを形成する。このとき、GaN と AlN の格子定数の違い (2.4%) により、結晶成長中に歪エネルギーが蓄積されていく。ある膜厚 (臨界膜厚) を超えると増大した歪エネルギーの緩和のために、成長層に大きさが 10 nm 程度の 3 次元島状構造がランダムに形成される。この島状構造が量子ドットとなる。最後に AlN 層でキャッピングをして、GaN/AlN 量子ドットウェーハーが完成する。

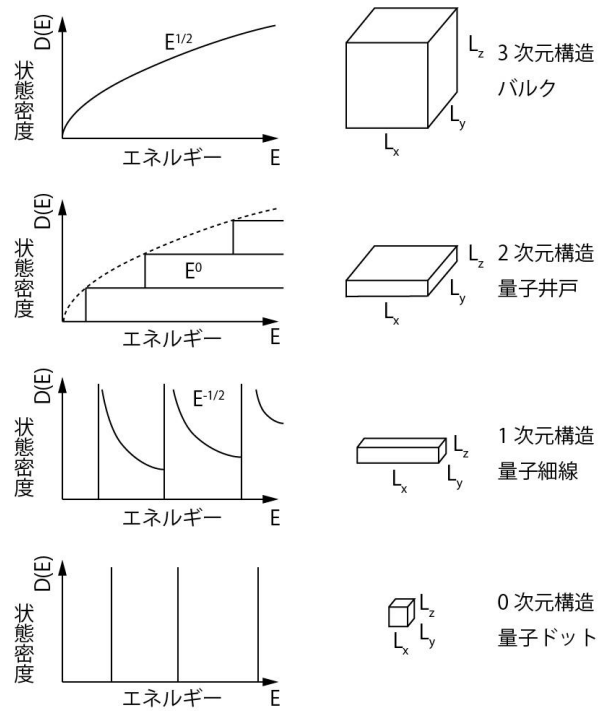


図 2.4 低次元構造の状態密度

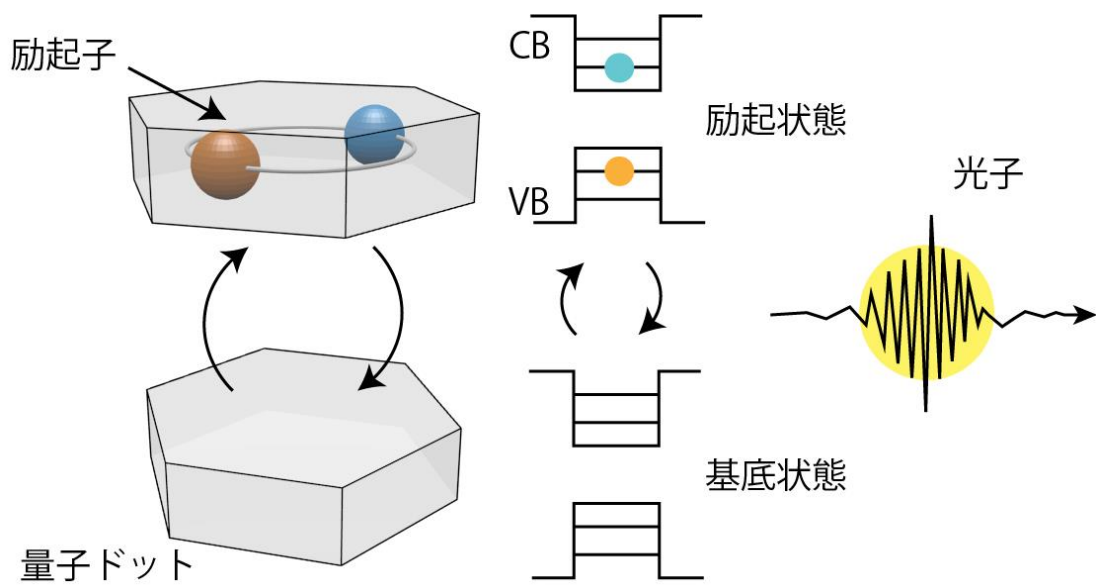


図 2.5 量子ドットからの発光原理

2.3. 分布ブラッグ反射鏡 (Distributed Bragg Reflector, DBR) および Bullseye 構造

の動作原理

分布ブラッグ反射鏡 (Distributed Bragg Reflector, DBR) とは、屈折率の異なる 2 つの媒質をそれぞれ厚さが $\lambda/4n$ (λ : 波長, n : 屈折率) になるように調整して交互に積層させた反射鏡である。媒質には、誘電体薄膜や半導体薄膜が用いられる。特に、半導体デバイスにおいてこの分布ブラッグ反射鏡は、結晶成長中に 2 種類の半導体薄膜を交互に成長させることで形成でき、またエッチングによって溝を掘ることで形成出来るので、簡単に高性能な反射鏡をデバイスに組み込める為プロセスとの相性が良く、度々応用される。

図 2.6 は、DBR の反射の原理を模式的に表したものである。屈折率の高い媒質 n_L と低い媒質 n_S の境界では僅かな反射が生じる。屈折率の高い媒質中から低い媒質に光が入射したとき、その反射波の位相は境界面において変化しない。一方で、屈折率の低い媒質中から高い媒質に光が入射したとき、その反射波の位相は境界面で π 変化する。ここで、各媒質の厚さが $\lambda/4$ の光路長に調整されていると、各層で反射した光の位相が揃い強め合う。反対に、透過した光は打ち消し合って減衰する。よって、薄膜の層数が十分にあれば、入射光は減衰し、反射光のみ強く表れるため反射鏡として機能する。

次に、分布ブラッグ反射鏡の反射率を計算する。はじめに、2 つの媒質の界面における光の反射と透過について考える。図 2.7 のように、入射角、反射角、屈折角をそれぞれ ϕ_0, ϕ'_0, ϕ_1 とし、媒質 0,1 の屈折率をそれぞれ n_0, n_1 とすると、

$$\phi_0 = \phi'_0 \quad (2.3)$$

となる。また、Snell の法則より、

$$n_0 \sin \phi_0 = n_1 \sin \phi_1 \quad (2.4)$$

である。よって、s 偏光に対する振幅反射係数および透過係数は、

$$\frac{E_{0s}^-}{E_{0s}^+} = \frac{n_0 \cos \phi_0 - n_1 \cos \phi_1}{n_0 \cos \phi_0 + n_1 \cos \phi_1} = r_s \quad (2.5)$$

$$\frac{E_{1s}^+}{E_{0s}^+} = \frac{2n_0 \cos \phi_0}{n_0 \cos \phi_0 + n_1 \cos \phi_1} = t_s \quad (2.6)$$

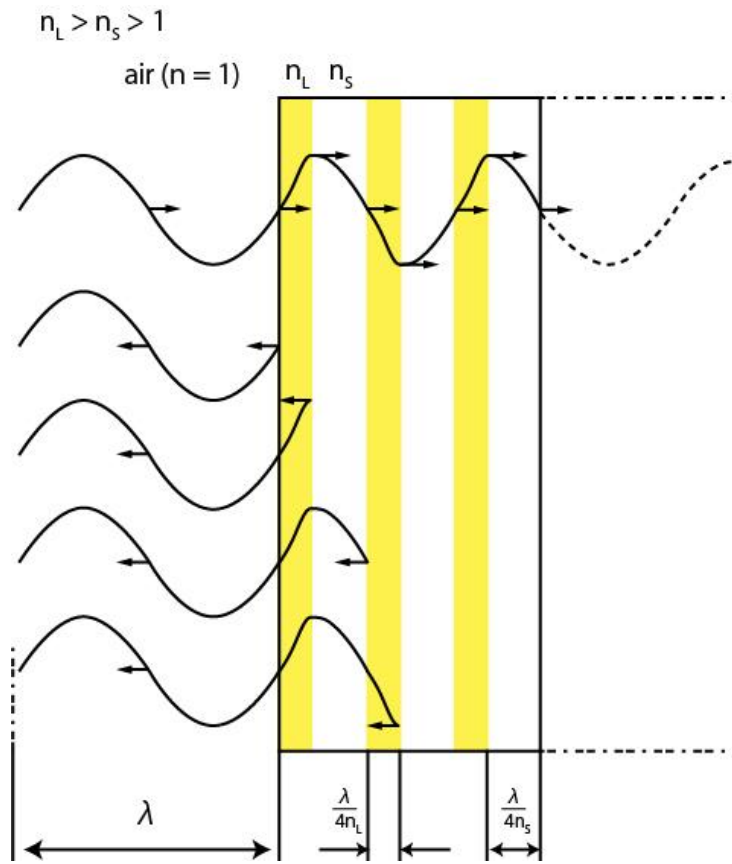


図 2.6 DBR における反射の原理

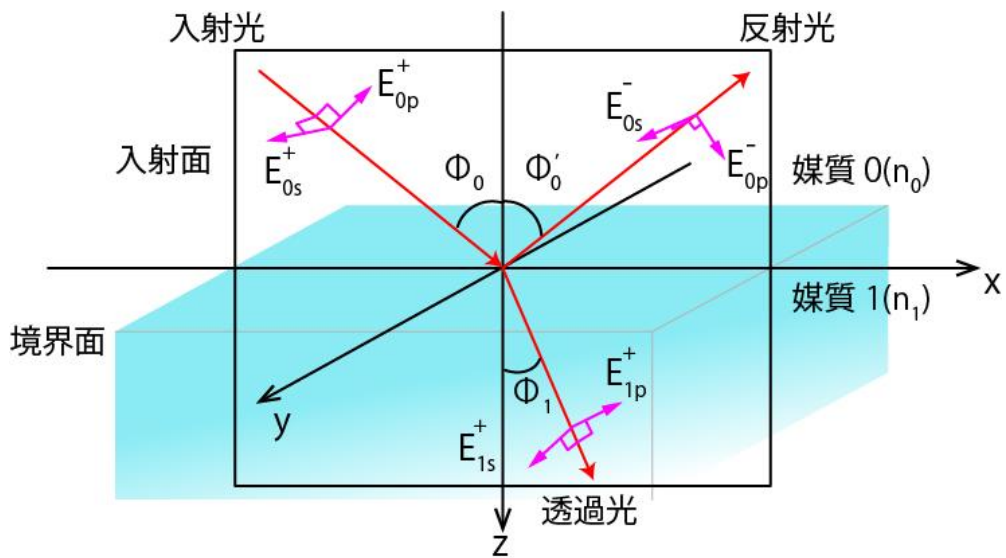


図 2.7 2つの媒質の界面における光の反射と透過

また、p 偏光に対しても同様に、

$$\frac{E_{0p}^-}{E_{0p}^+} = \frac{n_0 \cos \phi_1 - n_1 \cos \phi_0}{n_0 \cos \phi_1 + n_1 \cos \phi_0} = r_p \quad (2.7)$$

$$\frac{E_{1p}^+}{E_{0p}^+} = \frac{2n_0 \cos \phi_0}{n_0 \cos \phi_1 + n_1 \cos \phi_0} = t_p \quad (2.8)$$

ここで、 E_{0s}^+ は媒質 0 中を z 軸正の方向へ伝搬する光の電場の s 偏光成分、 E_{1s}^+ は媒質 1 中を z 軸正の方向へ伝搬する光の電場の s 偏光成分、 E_{0s}^- は媒質 0 中を z 軸負の方向へ伝搬する光の電場の s 偏光成分である。また p 偏光についても同様である。r および t は、それぞれ反射及び透過のフレネル(Fresnel)係数である。

エネルギー反射率、透過率は

$$R = |r|^2 \quad (2.9)$$

$$T = \frac{n_1 \cos \phi_1}{n_0 \cos \phi_0} |t|^2 \quad (2.10)$$

となる。

ここで、垂直入射の場合は $\phi_0 = \phi_0' = \phi_1 = 0$ となるため、s 偏光と p 偏光の区別はなくなる。よって、フレネル係数は次のようになる。

$$r_0 = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1} \quad (2.11)$$

$$t_0 = \frac{2n_0}{n_0 + n_1} \quad (2.12)$$

また、エネルギー反射率、透過率は、

$$R_0 = \left(\frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1} \right)^2 \quad (2.13)$$

$$T_0 = \frac{4n_0n_1}{(n_0 + n_1)^2} \quad (2.14)$$

となる。ここでは、媒質中での吸収は無視している。

次に、単層膜における反射と透過について考える。図 2.8 のように、基板上 (媒質 2) の薄膜 (媒質 1) に外部 (媒質 0) から光が入射する場合を考える。ここでは、それぞれの媒質の屈折率を n_0, n_1, n_2 とし、媒質 1 の膜厚を d とする。図 2.8 に示すように、媒質 0 から入射し、媒質 1 の表面 A 点で反射した光と、膜を往復して媒質 1 の表面 B 点から透過して出ていく光の位相差 $2\delta_1$ は、

$$2\delta_1 = \frac{4\pi}{\lambda} n_1 d \cos \phi_1 \quad (2.15)$$

となる。反射と透過を繰り返した光の総和をとった振幅反射係数、透過係数は次のようになる。

$$R = r_1 + t_1 r_2 t_1' e^{-2i\delta_1} + t_1 r_2 (r_1' r_2) t_1' e^{-4i\delta_1} + t_1 r_2 (r_1' r_2)^2 t_1' e^{-6i\delta_1} + \dots \quad (2.16)$$

$$T = t_1 t_2 e^{-i\delta_1} + t_1 (r_2 r_1') t_2 e^{-3i\delta_1} + t_1 (r_2 r_1')^2 t_2 e^{-5i\delta_1} + \dots \quad (2.17)$$

r_1, r_2, t_1, t_2 はそれぞれ界面 1, 2 での反射および透過のフレネル係数であり、 t_1', r_1' は界面 1 で媒質 1 から媒質 0 に入射する光のフレネル係数である。ここで、 $t_1' = t_1, r_1' = -r_1$ であるから、式 (2.16), (2.17) は、

$$R = \frac{r_1 + r_2 e^{-2i\delta_1}}{1 + r_1 r_2 e^{-2i\delta_1}} \quad (2.18)$$

$$T = \frac{t_1 t_2 e^{-i\delta_1}}{1 + r_1 r_2 e^{-2i\delta_1}} \quad (2.19)$$

となる。これらは、有効フレネル係数という。

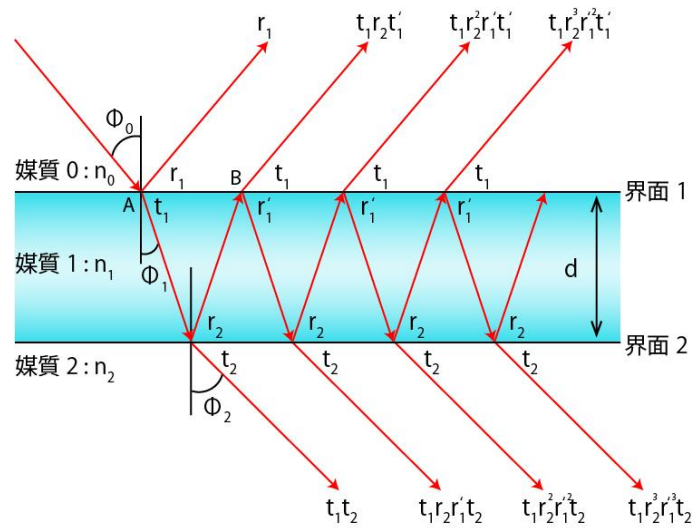


図 2.8 基板上的単層膜での反射と透過

最後に、式 (2.18), (2.19) の有効フレネル係数を用いて任意の多層膜、つまり分布ブラッグ反射鏡の反射率を求める。図 2.9 に示すような N 層の多層膜を考える。第 1 層からの反射の有効フレネル係数は、

$$R_1 = \frac{r_2 + r_1 e^{-2i\delta_1}}{1 + r_2 r_1 e^{-2i\delta_1}} \quad (2.20)$$

で表される。ここで、 r_1, r_2 は各層での反射のフレネル係数である。

第 1 層までをまとめて反射の有効フレネル係数 R_1 をもつ単一境界とみなすと、第 2 層からの反射の有効フレネル係数は、

$$R_2 = \frac{r_3 + R_1 e^{-2i\delta_2}}{1 + r_3 R_1 e^{-2i\delta_2}} \quad (2.21)$$

となる。ここで、

$$R_0 = r_1 \quad (2.22)$$

$$\delta_j = \frac{2\pi}{\lambda} n_j d_j \cos \phi_j \quad (2.23)$$

とすれば、第 j 層からの反射の有効フレネル係数は、

$$R_j = \frac{r_{j+1} + R_{j-1} e^{-2i\delta_j}}{1 + r_{j+1} R_{j-1} e^{-2i\delta_j}} \quad (2.24)$$

となる。これを、 $j = 1$ から $j = N$ まで積算することにより、 N 層の多層膜の反射率(分布ブラッグ反射鏡)を求めることができる。

式(2.24)をもとに、AlN($n = 2.262$)と Air($n = 1.0$)で構成された 11 層 DBR の反射率を図 2.10 に示す。波長を 310 nm とし、AlN 層の厚さは、34.3 nm、Air 層の厚さは、77.5 nm である。

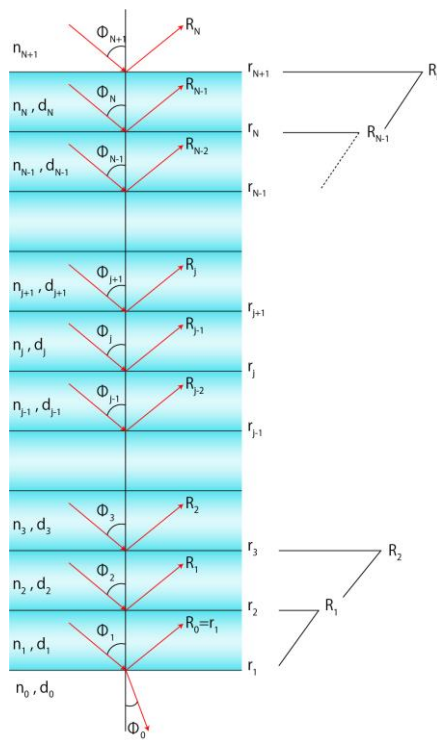


図 2.9 フレネル係数を用いた多層膜の反射率計算

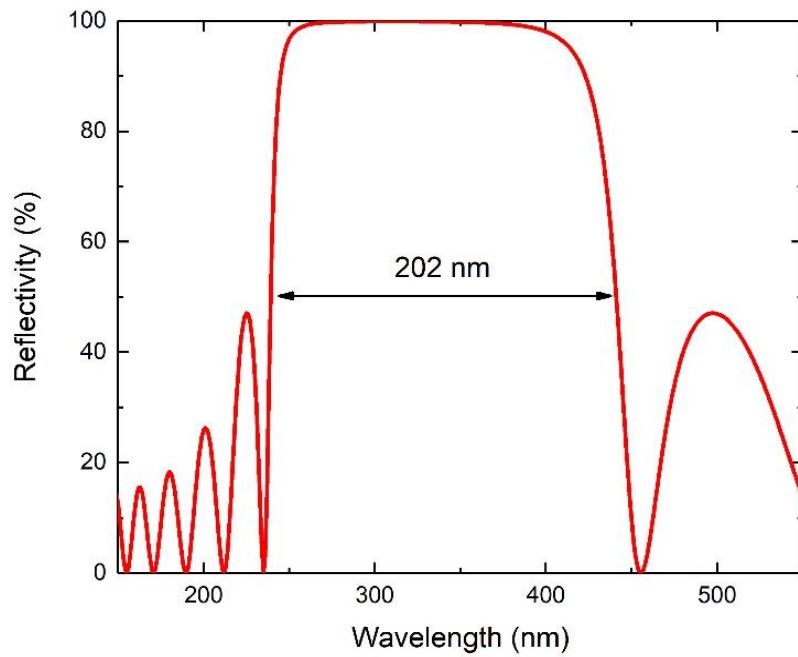


図 2.10 DBR 反射率の波長依存性

この DBR を、Nanowire を中心にリング状に配置したものが Bullseye 構造 (図 1.2 参照) である。中心の Nanowire を DBR で囲むことにより、横方向の光は抑圧される。したがって Nanowire 中の量子ドットから出た光の多くは、上下方向に放射される。次章で、この Bullseye 構造について数値計算を用いてより詳細に解説する。

第3章 光子取り出し効率の高い構造の設計

3.1. はじめに

III 族窒化物半導体に対して通常の $\lambda/4n$ DBR 層では、発光波長の短さ故に Bullseye 構造が微細になりすぎてしまいプロセスをおこなうことが困難である。そこで、我々の研究室の過去の研究において III 族窒化物半導体用に調整した $5\lambda/4n$ DBR 層をもった Bullseye 構造を提案していた。[49]本章ではまず、この $5\lambda/4n$ DBR 層をもった Bullseye 構造がプロセスを行える程度のスケールをもち、尚且つ反射率が 100 %となる DBR Stopband 幅が狭すぎない構造であることを確認する。その後、 $5\lambda/4n$ DBR 層をもった Bullseye 構造において、表面からの量子ドットの位置、DBR 層作製時のエッチングの深さ、Bullseye 構造の中心 Nanowire の直径、以上 3 つをパラメータとして、最も取り出し効率の高くなる値を、FDTD 法を用いた電磁界シミュレーションにより探索する。

3.2. $5\lambda/4n$ DBR 層をもった Bullseye 構造

まず、 $5\lambda/4n$ DBR 層が反射鏡として十分機能していることを確認する為、第 2 章 3 節の解説をもとに $3/4$ 波長の周期、 $5/4$ 波長の周期、 $7/4$ 波長の周期をもつ DBR 層の反射率を計算した。これを図 3.1 に示す。ここでは、AlN と Air の多層膜を考え、AlN の屈折率を 2.262、Air の屈折率を 1.0 とした。また、波長は $\lambda = 310$ nm とした。図 3.1 から、周期が $3/4$ 波長、 $5/4$ 波長、 $7/4$ 波長と大きくなるにつれて、反射率が 100 % となる DBR Stopband の幅は狭くなっていくことが分かる。また、それぞれの周期のときの AlN 層と Air 層の厚さを表 3.1 に示す。 $3\lambda/4n$ のとき、DBR Stopband は、61 nm と広範囲だが、AlN 層の厚さが約 100 nm しかなくプロセスが困難である。一方で、 $5\lambda/4n$ のとき、DBR Stopband は 37 nm 残っており、AlN 層の厚さも 170 nm ある。

したがって、 $5\lambda/4n$ DBR 層をもった Bullseye 構造は、プロセス加工の容易さと DBR の反射性能とのバランスがとれた構造であると言える。この構造であれば、III 族窒化物半導体に対してもプロセス加工をおこなうことができ、かつ Bullseye 構造としての効果も発揮することが出来ると考えられる。

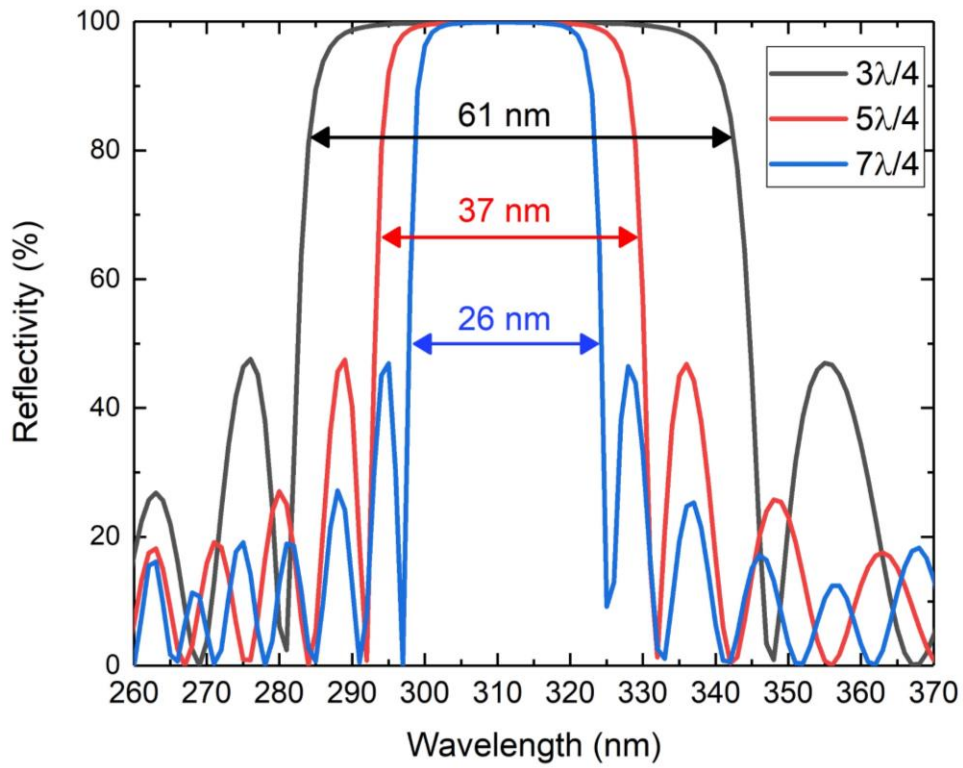


図 3.1 AlN/Air DBR の反射率

表 3.1 AlN/Air DBR の膜厚

DBR 構造	$\frac{\lambda}{4n}$	$\frac{3\lambda}{4n}$	$\frac{5\lambda}{4n}$	$\frac{7\lambda}{4n}$
AlN [nm]	34.3	102.8	171.3	239.8
Air [nm]	77.5	232.5	387.5	542.5

3.3. 光子取り出し効率のシミュレーション手法

Bullseye 構造からの光子の取り出し効率の理論値を計算するために、RSoft FullWAVE (Synopus 社) と呼ばれる微小光学素子設計・解析ソフトウェアを使用した。このソフトは、ソフト上で設計した構造に対し有限時間領域差分法 (Finite - Difference Time - Domain method, FDTD 法) を用いた電磁界解析をおこなうことができる。ここで FDTD 法とは、電磁界解析手法の 1 つであり Maxwell 方程式を差分化したものを用いて、時間領域で電界と磁界に関して交互に解いていくことで電磁界の挙動を解析する手法である。

次に、この RSoft を用いて、シミュレーションにより光子の取り出し効率を計算する方法を説明する。図 3.2 に RSoft のワークスペースのキャプチャ画像を示す。図 3.2 中の #1 - #4 と記した緑色の板が検出器である。また、#L1 と記した黄色い板はレンズ (NA = 0.7) の代わりとなる検出器である。図のように Bullseye 構造の四方を検出器で囲む事により、量子ドットからの全放射エネルギーを検出することが出来る。光子の取り出し効率は、全放射エネルギーの内、レンズの中に入ったエネルギーによって求められる。従って、検出器 #1 - #4 に入ったエネルギーを E_1, E_2, E_3, E_4 とし、レンズ #L1 に入ったエネルギーを E_{L1} とすると光子取り出し効率 η は、

$$\eta = \frac{E_{L1}}{E_1 + E_2 + E_3 + E_4} \quad (3.1)$$

と表される。なお、本節では 2 次元計算で説明をおこなったが RSoft では 3 次元での電磁界解析を行うことも可能であり、この場合 Bullseye 構造を囲む検出器は全 6 面となる。ここで注意点として、RSoft では円形の検出器が用意されていないため、3 次元計算を行う時、レンズの代わりとなる検出器は図 3.3 のように設置する必要がある。図 3.3 中の #D1 - #D3 は、実際にはレンズの外側に当たる部分であり、レンズ内に入ったエネルギー E_l は近似的に、

$$E_l = E_{L1} - 4 * (E_{D1} + E_{D2} + E_{D3}) \quad (3.2)$$

により求められる。よって、3 次元計算での光子取り出し効率は、

$$\eta = \frac{E_l}{E_1 + E_2 + E_3 + E_4 + E_5 + E_6} \quad (3.3)$$

となる。さらに、本研究では Bullseye 構造の対称性を利用して、計算時間を短縮するために計算領域を Bullseye 構造の中心を原点に 4 等分して計算を行った。

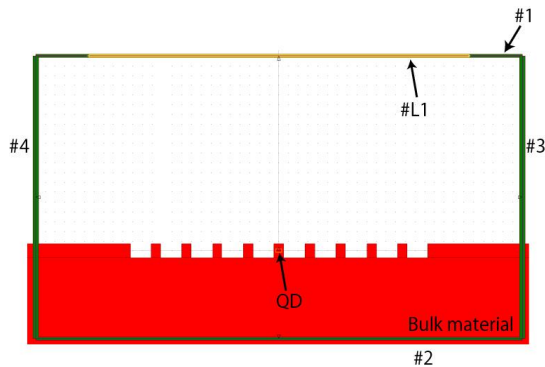


図 3.2 RSoft のワークスペース

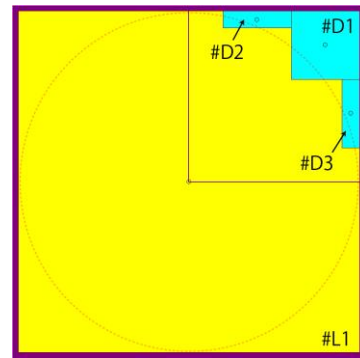


図 3.3 3次元計算時の近似的なレンズ

3.4. III 族窒化物用 Bullseye 構造の設計

第 3 章 2 節では、 $5\lambda/4n$ DBR 層をもった Bullseye 構造が III 族窒化物半導体において高い取り出し効率を期待できる、作製可能な構造であることを確認した。本節では、光子取り出し効率の高い Bullseye 構造を設計するために、Bullseye 構造のパラメータとして図 3.4 に示す 3 つを考え、これらのパラメータの最適値を前節で説明したシミュレーション方法により探した。1 つ目は、サンプル表面からの QD の位置 : Q 、2 つ目は、ドライエッチングにより AlN を削る深さつまり、DBR 層の高さ : H 、最後に、Bullseye 構造中心にある Nanowire の直径 : D である。

シミュレーションに用いた物性値は、AlN の屈折率を 2.262 [50]、6H-SiC の屈折率を 2.958[51]、発光波長は 310 nm とした。

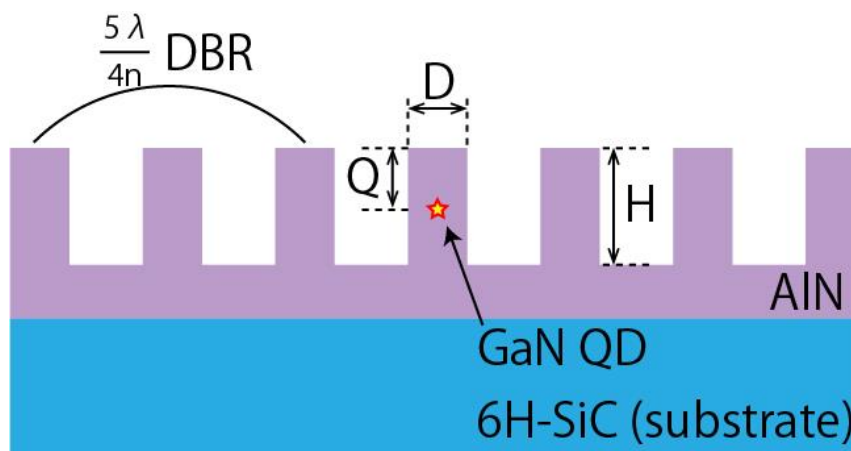


図 3.4 Bullseye 構造の設計パラメータ

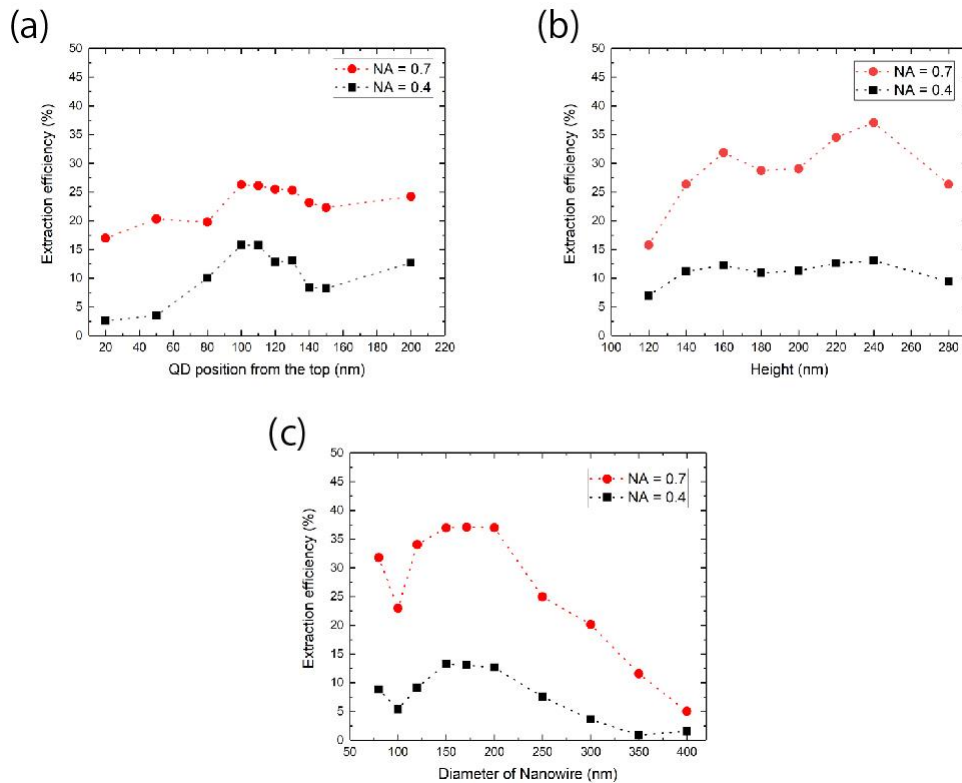


図 3.5 Bullseye 構造設計のためのシミュレーション (a) Q を変化させたときの取り出し効率 (b) D を変化させたときの取り出し効率 (c) H を変化させたときの取り出し効率

図 3.5 に RSoft によるシミュレーションの結果を示す。(a)では、 $H = 300 \text{ nm}$ 、 $D = 171.3 \text{ nm}$ で固定し、 Q の値を変化させて取り出し効率を調べた。 $Q = 100 - 120 \text{ nm}$ 付近で取り出し効率が高くなった。したがって、本研究では、 $Q = 120 \text{ nm}$ を採用した。(b)では、 $Q = 120 \text{ nm}$ 、 $D = 171.3 \text{ nm}$ で固定した場合において、 H の値を変化させた。(b)のグラフより、 $Q = 120 \text{ nm}$ 、 $H = 240 \text{ nm}$ のとき取り出し効率が高くなった。したがって、 $H = 240 \text{ nm}$ を採用した。(c)では、ここまでで決定している、 $Q = 120$ 、 $H = 240 \text{ nm}$ の値を固定し、 D を変化させた。(c)のグラフより、 $D = 150 - 200 \text{ nm}$ の範囲で取り出し効率が高くなっている。ここでは、ちょうど $5\lambda/4n$ となる $D = 171.3 \text{ nm}$ を採用した。

以上より、Bullseye 構造の 3 つのパラメータの設計値は、 $Q = 120 \text{ nm}$ 、 $H = 240 \text{ nm}$ 、 $D = 171.3 \text{ nm}$ とする。

3.5. シミュレーションによる光子取り出し効率の見積り

第3章4節にて設計した $5\lambda/4n$ DBR Bullseye 構造について RSoft を用いて取り出し効率や光子放出の様子を調べてみた。

設計値は、AIN 層の厚さを 171.3 nm、AirGap 層の厚さを 387.5 nm、量子ドットの位置は表面から 120 nm、エッチングの深さは 240 nm、Bullseye 構造中心の Nanowire の直径は 171.3 nm である。

図 3.6,3.7 にシミュレーションによる光子放出の様子を示す。図 3.6 には Bullseye 構造を作り込む前のプレーンな表面での様子を、図 3.7 には設計した Bullseye 構造での様子を示す。図 3.6 より、Bullseye 構造を作製する前は量子ドットから放出された光子の多くがサンプル表面で反射され、基板の裏側に向かっていているが、図 3.7 より Bullseye 構造にすることで明らかに半導体の外に出る光子の量が増え、さらに光子放出の指向性が増していることが分かる。プレーンな表面での光子取り出し効率は 1.1 % (NA = 0.4) で、Bullseye 構造の光子取り出し効率は 13.1 % (NA = 0.4) となった。本構造の DBR 層の反射率を計算すると図 3.8 のようになる。図より、波長 293 nm から 329 nm の範囲に幅 37 nm の DBR Stopband を持つ。したがって、この範囲内で発光した光子の取り出し効率が向上すると考えられる。図 3.9 に、レンズの NA の違いによる光子取り出し効率の変化をプロットしたものを示す。Bullseye 構造にすることで、上方向に放出される光子の指向性が高まるため、レンズの NA が大きくなるにつれて取り出し効率は大きくなる。一方、何も加工の無いサンプルでは、上方向に放出される光子は大きく広がって放出されるため、レンズの NA が大きくなっても取り出し効率はあまり上がっていないことが分かる。

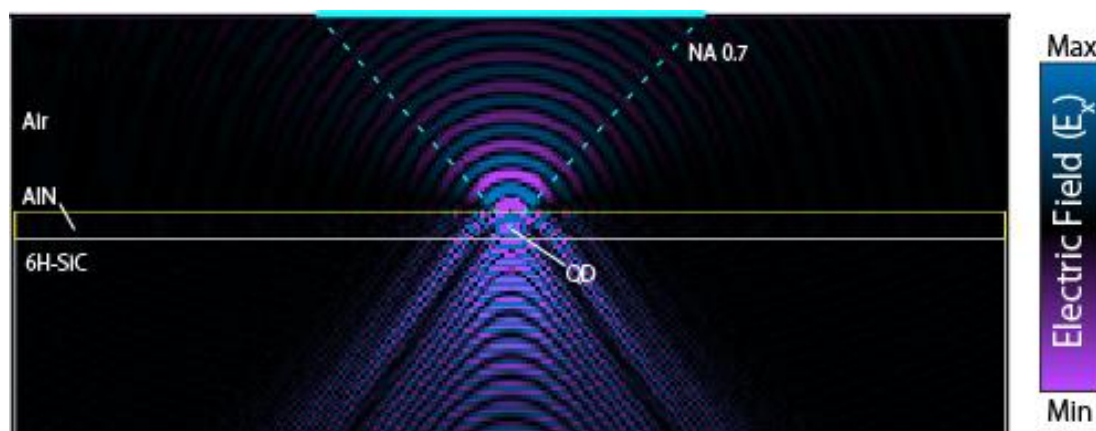


図 3.6 シミュレーションによる光子放出の様子(無加工な半導体量子ドットからの光子放出)

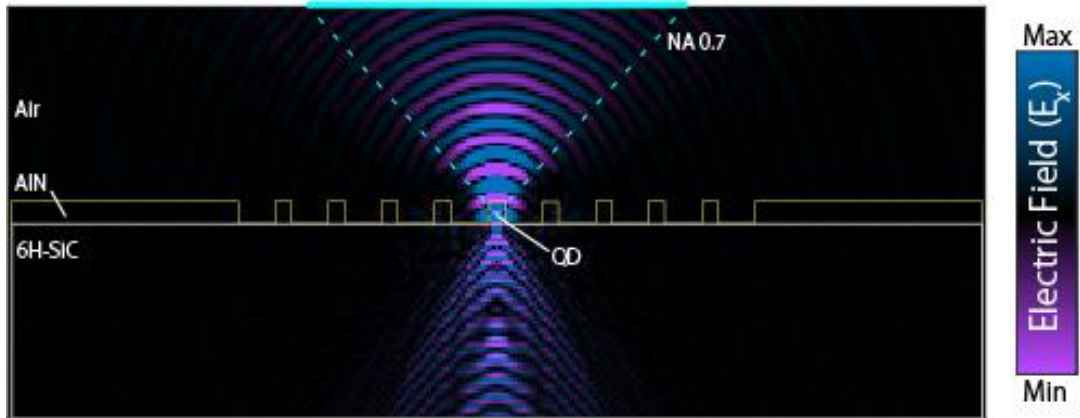


図 3.7 シミュレーションによる光子放出の様子 (Bullseye 構造中の量子ドットからの光子放出)

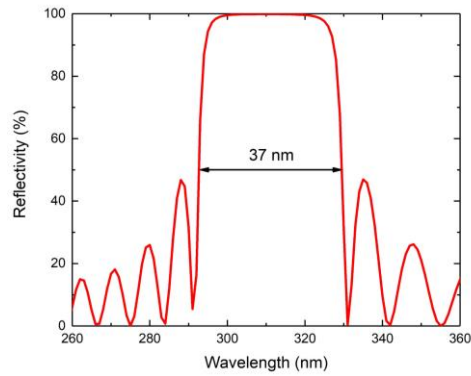


図 3.8 設計した Bullseye 構造における反射率の計算結果

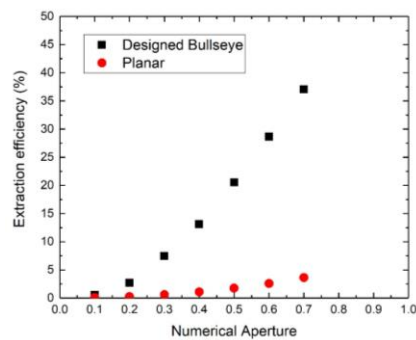


図 3.9 設計した Bullseye 構造と何も加工の無いサンプルからの光子取り出し効率のレンズ NA 依存性

第4章 GaN 量子ドットを用いた光子の高取り出し効率 構造の作製

4.1. はじめに

第1章2節で述べたように、本研究で用いる Bullseye 構造は GaAs 系半導体では実証例があるが窒化物半導体では作製されていない。第3章で行ったシミュレーションによると、窒化物半導体に対して $5\lambda/4n$ DBR の Bullseye 構造を作製することで光子の取り出し効率が 1.1 % ($NA = 0.4$) から 13.1% ($NA = 0.4$) まで向上することが示された。

本章では、前章で行った設計に基づき実際に III 族窒化物量子ドットを用いて Bullseye 構造の作製を行う。まず初めに、プロセスの条件出しのために Bullseye 構造の試作を行った。試作した Bullseye を観察し、設計値からのズレを評価した。その後、その結果をフィードバックして、第3章で設計した Bullseye 構造を作製する。この一連の作製手順について述べ、最後に完成したデバイスの SEM による観察結果およびこの観察結果をもとにシミュレーションした取り出し効率の理論値について述べる。

4.2. QD サンプル

今回の Bullseye 構造の作製に用いた QD サンプルの構造を図 4.1 に示す。MOCVD 装置により S-K モードで作製された QD サンプルである。第3章で行った設計値に合うように、6H-SiC 基板上に下地層として 120 nm の AlN を成長させ、その上に GaN QD 層を成長した。そして最後にキャップ層として AlN を 120 nm 成長している。図 4.2 に、本サンプルの量子ドット密度を表す AFM 像を示す。図より今回使用したサンプルの密度を求めると $1.4 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 程であった。サンプル内に密度の勾配はあるが、高密度なサンプルであると言える。このサンプルの PL スペクトルを図 4.3 に示す。(266 nm CW レーザ励起, 17 mW, Grating 150 本/mm, 7 K) 290 nm から 330 nm の範囲で複数の量子ドットから発光していることが分かる。なお、先ほど算出した密度を使用し、図 4.3 で発光している量子ドットの数と求めると、約 440 個であり、図 4.3 のスペクトルはこれらの量子ドットからの発光のアンサンブルである。

本サンプルは、荒川研究室有田氏より提供して頂いた。

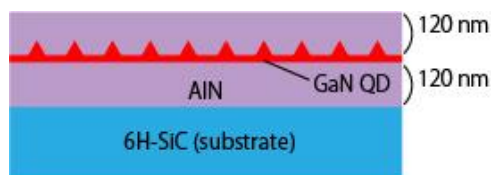


図 4.1 本章のプロセスで用いた QD 基板

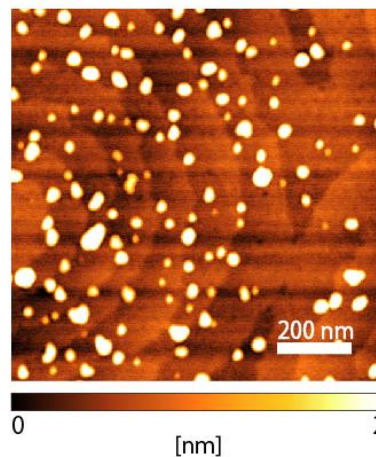


図 4.2 サンプルの量子ドット密度を表す AFM 像

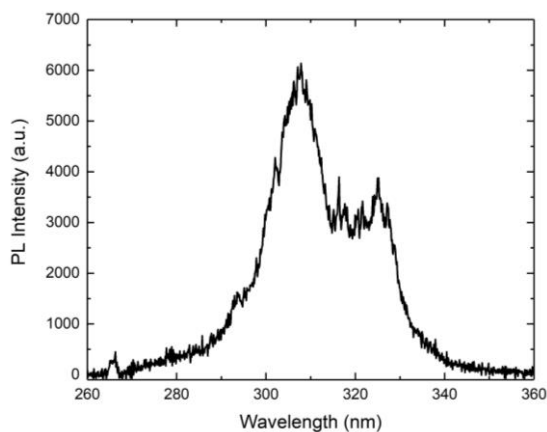


図 4.3 サンプルの PL スペクトル

4.3. プロセスフロー

Bullseye 構造の作製の流れについて述べる。図 4.4 に本研究で行った半導体デバイスの作製プロセスフローを示す。まず、レジスト剤を半導体表面に塗布し、EB 露光装置によって、作製したい構造 (Bullseye 構造) のマスクを描画する。その後ドライエッチング装置で不要な部分を削り、最後にマスクを除去することで完成である。以下、各手順の詳細について述べる。

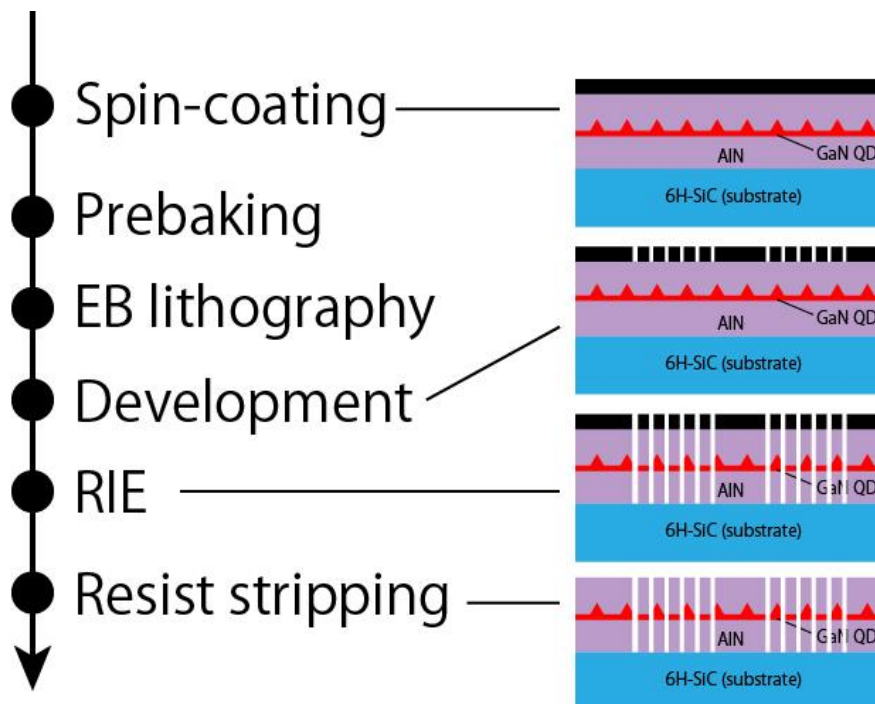


図 4.4 Bullseye 構造の作製プロセスフロー

4.4. 条件出し用 Bullseye 構造の試作

4.4.1. EB レジスト剤の塗布

本研究では、電子線描画用のレジスト剤として、ZEP520A（日本ゼオン）を用いた。レジスト剤はスピナーを用いて、QD サンプル上に均一に塗布する。スピナーの回転数が低すぎるとレジスト剤の膜厚にムラが生じ、高すぎると膜厚が薄くなりドライエッチングの際にマスクとして機能しなくなる為、適切な回転数で塗布することが重要である。

本研究では、回転数は初速 500 rpm で 5 秒間、終速 2500 rpm で 60 秒間とした。

スピナーによるレジスト剤の塗布後、オーブンを用いて 180 度で 20 分間ベーキングし、レジスト剤を焼き固めた。これは、レジスト剤から溶剤を蒸発させて、基板との密着性を向上させる或いは、ドライエッチング時のマスクとしての強度を高める為の処理である。

4.4.2. EB lithography

塗布したレジスト剤に電子線描画装置を用いて電子線を照射することで、任意のマスクパターンを形成することができる。本研究で用いる Bullseye 構造は、DBR を原理としているため各層の厚さが設計通りでない、DBR の反射スペクトルがずれてしまう。DBR の Stopband (反射率が 100%近くなる帯域) が QD の発光波長から外れてしまえば、Bullseye 構造の意味を成さなくなる為、致命的な問題である。ところが、図 4.5(a) に示すような Bullseye 構造のパターンを電子線描画装置で描画すると、レジスト剤内部や AlN 基板において、照射した電子が散乱される。レジスト剤内部での散乱を前方散乱、基板での散乱を後方散乱と呼ぶ。散乱された電子は、目標となる照射箇所を中心に同心円状に広がるため、Bullseye のリングは中央に近いリングほど端に近いリングに比べて照射される電子の数が多くなり、照射面積も拡大してしまう。その結果、Bullseye の中心では、設計値よりも細かい DBR 層となってしまうことが予想される。このように、電子散乱のために描画パターンの近傍にまで電子が照射されてしまう効果を近接効果と呼ぶ。この効果により、本来電子を照射したくない部分にも電子が照射されるため、描画パターンの寸法を変化させるという悪影響をもたらす。そこで本研究では、Bullseye 構造において近接効果による影響がどれほど効いてくるのかを確認し、その影響を軽減する為に Dose 量 ($\propto I \cdot t$) の条件出しを行った。具体的には、図 4.5(b) に示すように内側から 3 つめのリング (図中緑色) を中心に Dose 量に変調をかけた。すべてのリングを同一の Dose 量で描いたものを SHOT 01、 $\pm 5\%$ の変調をかけたものを SHOT 02、 $\pm 10\%$ の変調をかけたものを SHOT 03、 $\pm 15\%$ の変調をかけたものを SHOT 04、 $\pm 20\%$ の変調をかけたものを SHOT 05 とした。表 4.1 に各 SHOT の Dose 量をまとめたものを示す。なお Dose 量とは、単位面積あたりに照射する電子線の量である $[\mu\text{C}/\text{cm}^2]$ 。Dose 量 $D[\mu\text{C}/\text{cm}^2]$ は Dose 時間 $t[\text{s}]$ とビーム電流 $I[\text{pA}]$ の 2 つのパラメータで決定される量である。

表 4.1 各 SHOT におけるリングごとの Dose 量

SHOT	内側 \Rightarrow 外側 $[\mu\text{C}/\text{cm}^2]$				
01	400	400	400	400	400
02	360	380	400	420	440
03	320	360	400	440	480
04	280	340	400	460	520
05	240	320	400	480	560

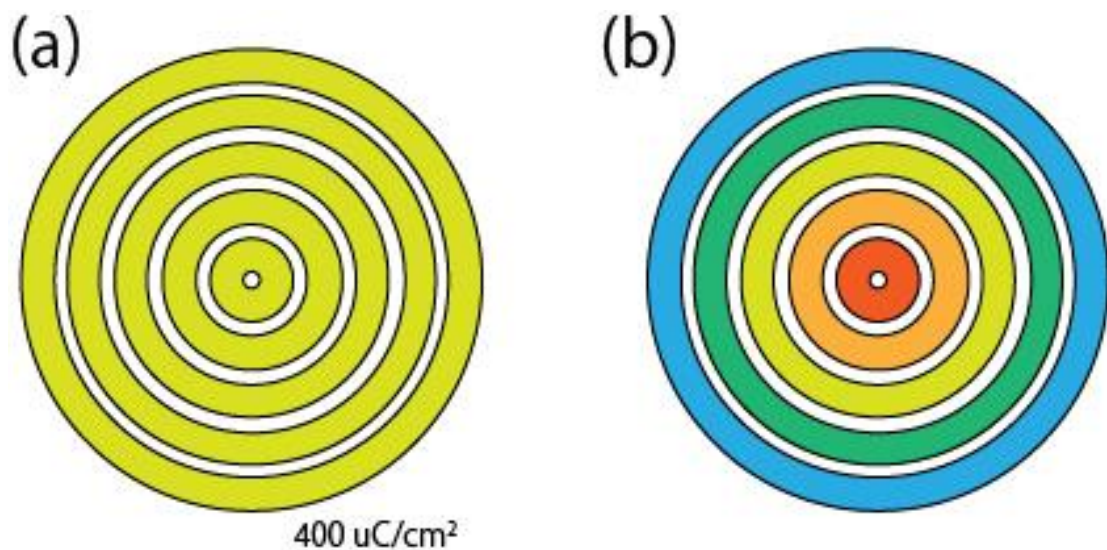


図 4.5 Bullseye 構造の EB 描画パターン (a)すべてのリングを同一の Dose 量で描画した場合 (b)リングごとに Dose 量を変えた場合

4.4.3. 現像

現像は、現像液を用いてレジスト剤の電子線が照射された部分を取り除く工程である。現像液には、ZED-N50（日本ゼオン）を、リンス液に ZMD-B（日本ゼオン）を用いた。

まず、現像液及びリンス液をそれぞれビーカーに 40 ml 取り、COOL BATH を用いて 10°C に設定した。溶液全体が 10°C で一定になるまで 1 時間待った後に、現像液に 2 分間、リンス液に 20 秒間サンプルを浸した。リンス液の入ったビーカーからサンプルを取り出してから 10 秒後に窒素ガスでブローした。図 4.6 に現像後のサンプルの光学顕微鏡像を示す。図 4.6 より、目的の Bullseye 構造のマスクパターンが作製できていると言える。

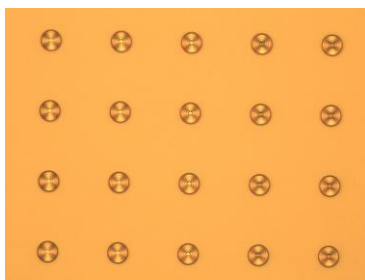


図 4.6 現像後のサンプルの光学顕微鏡像

4.4.4. Dry Etching

本研究では、高精度な微細加工が可能なエッチング方法である誘導結合プラズマ-反応性イオンエッチング (Inductively Coupled Plasma-Reactive Ion Etching, ICP-RIE) を用いて、現像したサンプルのエッチングを行った。

ドライエッチングの基本原理の概念図を図 4.7 に示す。ICP-RIE は、コイルに高周波の電圧 (ICP 電圧) を印加することで誘導結合プラズマを生じ、これにより反応性ガス (Cl_2) と不活性ガス (Ar) をプラズマ化する。生成された Cl ラジカルは試料との化学反応によって等方的エッチングを行い、Ar イオンは試料下部にある陰極にバイアス電圧を印加することで、試料方向に加速され、それらが指向性をもって試料に衝突することで異方性エッチングを行うことが出来る。そのため、ガス流量や ICP 電圧、バイアス電圧を調整することで、結晶面に依らず垂直にエッチングすることが可能である。

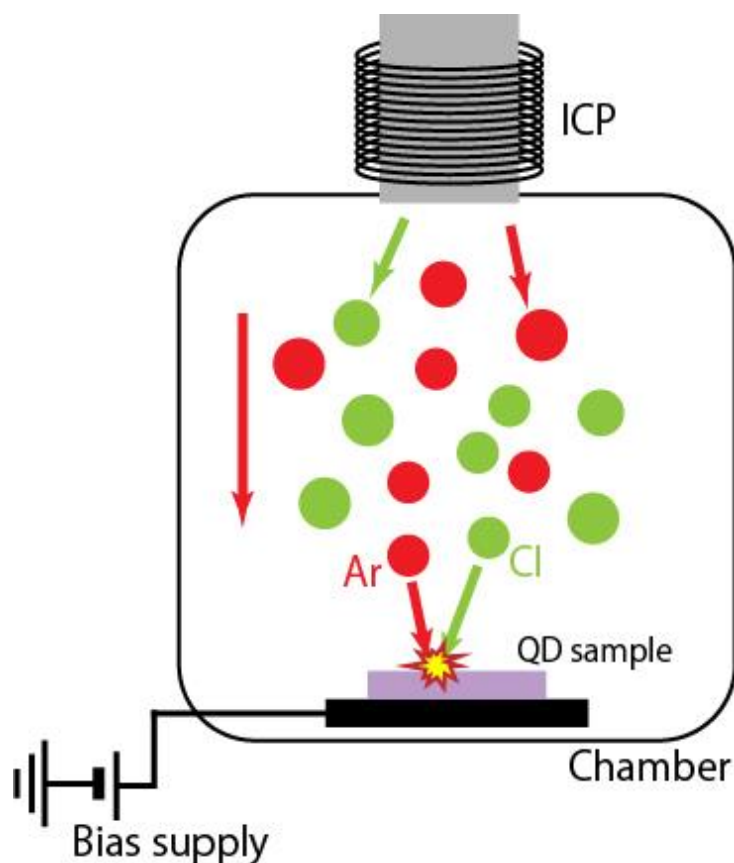


図 4.7 ドライエッチングの基本原理図

本研究では、表 4.2 のような条件でドライエッチングを行った。ここで、表中の単位 sccm (standard cc/min, cc = cm³) は大気圧下において一定温度で規格化されたガス流量を意味する。図 4.8 にドライエッチング後のサンプルの光学顕微鏡像を示す。図 4.6 の現像後の光学顕微鏡像と比較して、Bullseye の形が崩れることなくエッチングが出来ていると思われる。SEM 像を用いたより詳細な観察は次々節で行う。

また、今回エッチングレートを算出するために、別々のサンプルを用いてエッチングを 2 回行っている。1 回目のエッチングでは、37 秒間で 60 nm エッチングされていた。2 回目のエッチングでは、100 秒間で 176 nm エッチングされていた。したがって、表 4.2 のエッチング条件で本サンプル (GaN/AlN QD) をエッチングする場合、エッチングレートは、1.8 nm/sec となる。

表 4.2 ドライエッチングの条件

Ar ガス	Cl ガス	Pressure	Bias 電圧	ICP 電圧	Time
20 sccm	2 sccm	0.7 → 0.5 Pa	100 W	200 W	100 sec

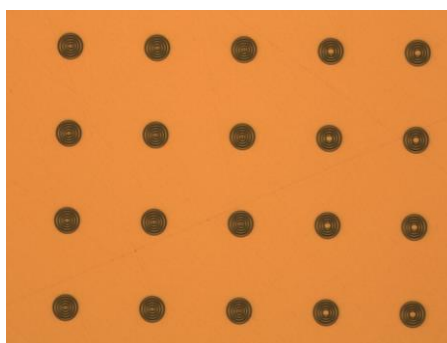


図 4.8 ドライエッチング後のサンプルの光学顕微鏡像

4.4.5. レジスト剤剥離

ドライエッチング後には、パターンマスクとして利用したレジスト剤を除去する。サンプルを常温の剥離液 (ZDMAC; 日本ゼオン) に浸し、10 分間超音波洗浄機にかけた。この際、サンプルをお玉型のサンプル受け (テフロン製) に乗せた。剥離液による超音波洗浄終了後、窒素ガスでブローを行った。これで、一連のプロセスが終了である。

4.4.6. 試作したデバイスの観察

完成した条件出し用 Bullseye 構造の SEM 像を図 4.9 に示す。図 4.9 より、Bullseye 構造ができていることが確認できる。Dose 量変調の結果について観察する。図 4.10 に SHOT 01 から SHOT 05 までの Bullseye の中心を拡大した SEM 像を示す。図 4.10(a-1) より、SHOT 01 は DOSE 量に変調をかけなかったため、近接効果によって本来電子線の当たらない部分である、中心の Nanowire 上のレジスト剤に電子線が多く当たってしまい、現像時にこの部分のレジスト剤も抜けてしまったと言える。一方、同じ SHOT 01 でも図 4.10(a-2)を見ると、中心の Nanowire は残っていた。つまり、SHOT 01 は Nanowire が残るか否かの際どい Dose 量であったと言える。図 4.10(e)SHOT 05 では Dose 量の変調を急峻にかけすぎたために、内側のリングの Dose 量が小さくなり過ぎてレジスト剤が感光できていなかったと言える。図 4.10(d)の SHOT 04 についても SHOT 05 と同様に、内側のリングの Dose 量が小さく、十分に電子線が当たらなかった為、現像時に中途半端な形でレジスト剤が残ってしまい、結果としてエッチング時に残ったレジストが邪魔をし、浅めのエッチングになってしまったと言える。図 4.10(b)(c)の SHOT 02、SHOT 03 に関しては、SEM 像を見る限りどちらも綺麗に作製できていると言える。

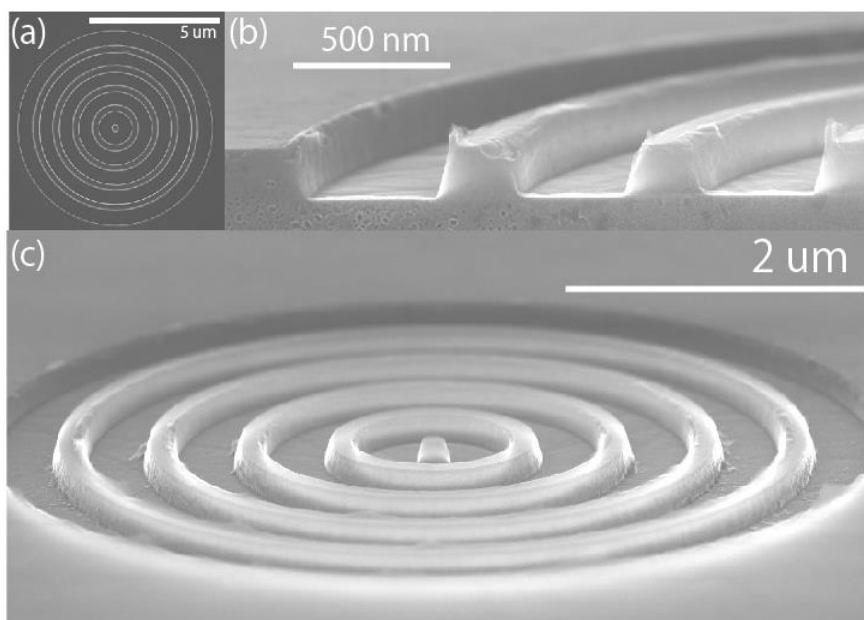


図 4.9 条件出し用 Bullseye 構造の電子顕微鏡像(SEM 像) (a)真上からの観察 (b)断面の観察 (c)斜めからの観察

次に、Dose 量変調の効果をさらに詳細に見るために、各 SHOT の Bullseye の DBR 層の寸法を計測した。本来ならば各層の厚さを計測する場合は、断面を用いて計測すべきであるが、Bullseye 構造が円形をしているため、ちょうど中心を通るような断面を用意するのが困難である。したがって、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて、図 4.11 に示すようにサンプルを上面から観察し、AIN 層の厚さおよび AirGap 層の厚さを計測した。各 SHOT の Bullseye を 4 つずつ選んで計測した。最後に SHOT ごとに平均をとった。この計測結果を表 4.3 に示す。表 4.3 中の a-t の記号は図 4.12 のものに対応する。また、表 4.4 に、(設計値) - (計測値) をおこなったものを示す。

表 4.3, 4.4 より、どの SHOT も設計値とのズレが大きく、うまく設計値に一致しているものは無かった。数値のばらつきが大きく一概には言えないが、傾向として変調の度合いが小さいほど (SHOT 01 など) 中心付近の設計値とのズレが小さい。一方、変調の度合いが大きいほど (SHOT 05 など) 中心から遠い位置での設計値とのズレが小さいと言える

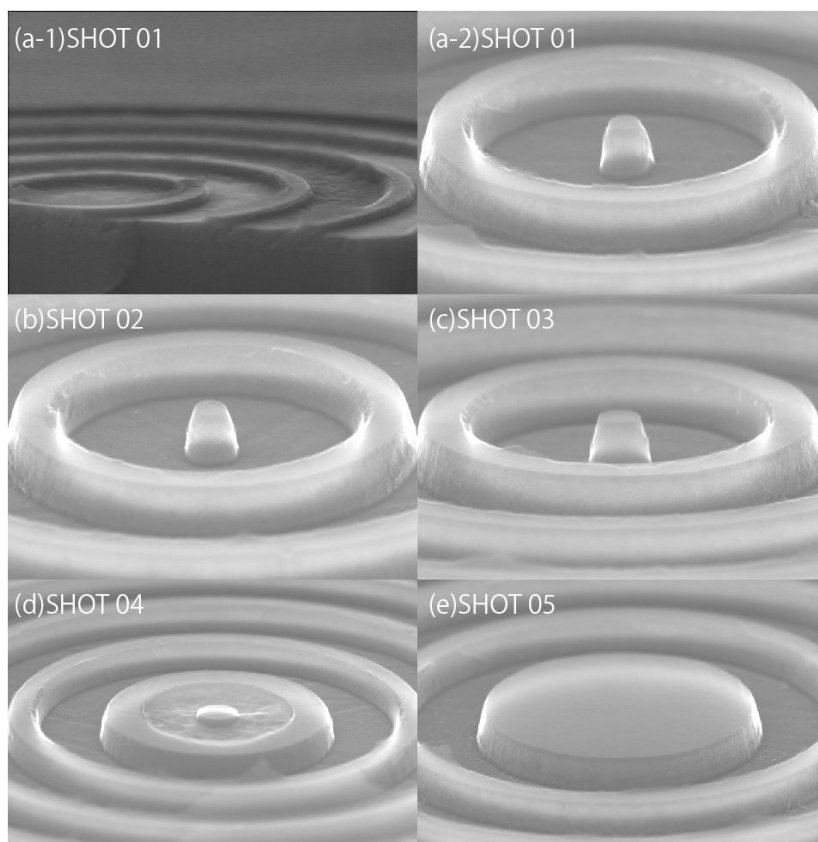


図 4.10 SHOT 01 から SHOT 05 までの Bullseye の中心を拡大した SEM 像

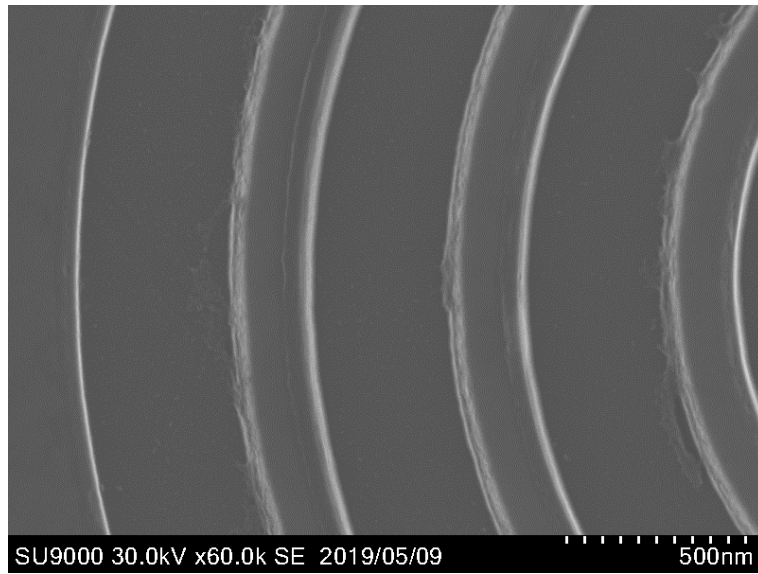


図 4.11 サンプル上部から観察した SEM 像

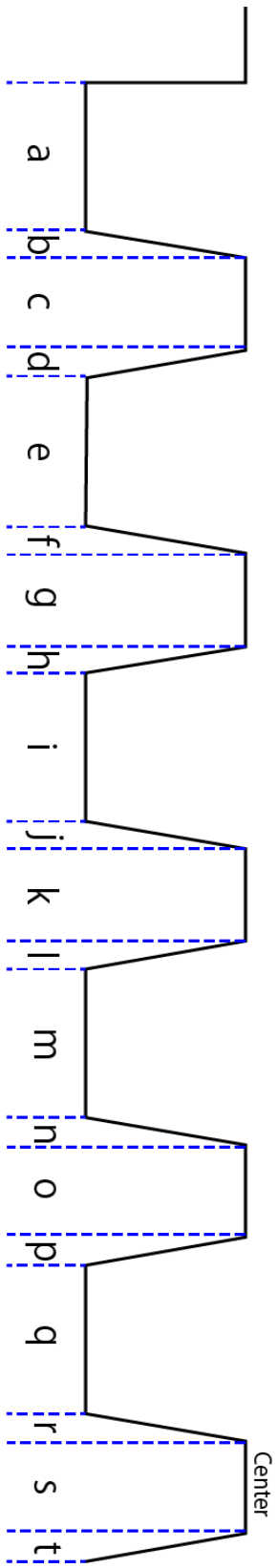


図 4.12 作製したデバイスのスケールの実測時のパラメータ

表 4.3 作製したデバイスのスケールの実測値

	a	b	c	d	e	f	g	h	i	j	k	l	m	n	o	p	q	r	s	t
SHOT 01	411.8	32.6	177.7	17.9	382.7	32.0	167.3	16.3	394.6	27.6	164.7	13.9	401.3	24.4	160.0	11.9	411.9	43.6	115.7	36.4
SHOT 02	420.3	32.6	167.4	20.3	388.5	28.2	167.4	15.0	390.3	32.6	164.7	14.1	402.1	27.8	158.7	12.6	402.1	42.3	126.3	37.0
SHOT 03	427.5	31.7	165.8	18.5	390.5	29.1	165.7	15.0	393.2	30.9	165.0	14.5	395.3	30.4	166.6	12.6	390.7	37.7	149.4	36.4
SHOT 04	428.2	31.7	159.5	22.9	391.2	28.2	164.8	15.0	395.7	32.6	161.3	13.2	389.2	34.4	220.5	0.0	334.3	0.0	268.8	0.0
SHOT 05	430.1	35.3	154.2	20.3	397.4	29.1	162.2	14.1	394.0	26.4	171.0	13.2	376.6	35.8			1390.0			35.8
design	437.5		162.5		437.5		162.5		437.5		162.5		437.5		162.5		437.5		190	

表 4.4 作製したデバイスのスケールの (実測値) - (設計値)

	a	b	c	d	e	f	g	h	i	j	k	l	m	n	o	p	q	r	s	t
SHOT 01	25.7	32.6	-15.2	17.9	54.8	32.0	-4.8	16.3	42.9	27.6	-2.2	13.9	36.2	24.4	2.5	11.9	25.6	43.6	74.3	36.4
SHOT 02	17.2	32.6	-4.9	20.3	49.0	28.2	-4.9	15.0	47.2	32.6	-2.2	14.1	35.4	27.8	3.8	12.6	35.4	42.3	63.7	37.0
SHOT 03	10.0	31.7	-3.3	18.5	47.0	29.1	-3.2	15.0	44.3	30.9	-2.5	14.5	42.2	30.4	-4.1	12.6	46.8	37.7	40.6	36.4
SHOT 04	9.3	31.7	3.0	22.9	46.3	28.2	-2.3	15.0	41.8	32.6	1.2	13.2	48.3	34.4	-58.0	0.0	103.2	0.0	-78.8	0.0
SHOT 05	7.4	35.3	8.3	20.3	40.1	29.1	0.3	14.1	43.5	26.4	-8.5	13.2	60.9	35.8			1390.0			35.8

ここでさらに、図 4.9(b)の断面図を見ると DBR 層の AlN が台形になってしまっていることが分かる。実際に角度を見積もってみると、約 75° - 80° である。これは、図 4.13 に示すように、レジスト剤がパターンの端にいくほど薄くなるためと考えられる。ドライエッチングにより、マスクであるレジスト剤も削られてしまう為、長時間エッチングを行うとパターン端のレジスト剤が中央部分に比べて先に削られてしまい、マスク下の半導体部分を削り始めてしまうからである。シミュレーションによると、この傾斜の影響で取り出し効率が 2-3 %程低下する。しかし、これを完璧に抑えるのは困難な為、本研究では特別に取り扱わない事とした。

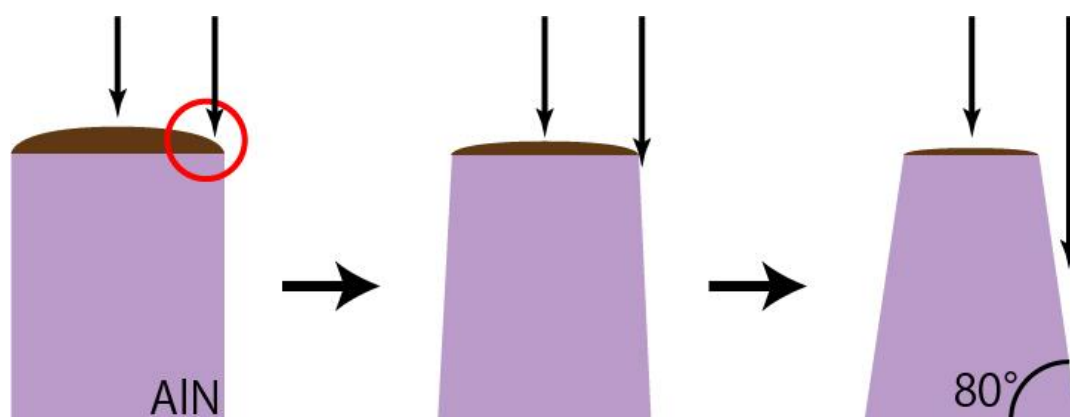


図 4.13 ドライエッチング時の斜面形成の原因

4.5. Bullseye 構造の作製

ここからは、第 3 章で設計した Bullseye 構造の作製について述べる。

4.5.1. EB レジスト剤の塗布

レジスト剤は前節と同様のもの(ZEP520A; 日本ゼオン)を用いるので、スピンの回転数についても、条件出し時と同様に初速 500 rpm で 5 秒間、終速 2500 rpm で 60 秒間とした。レジスト剤の塗布後のベーキングも同様にオーブンをを用いて 180 度で 20 分間行った。

4.5.2. EB lithography

前節の Dose 量変調の考察をもとに、EB lithography の描画パターンを決定する。表 4.4 より、Dose 量をどのように変調しても完成後のサンプルは設計値からズレてしまう。そこで、あえて設計値からずらしたスケールで EB 描画を行う事とした。ズレの量は、表 4.3 に示す実測値データより算出した。結果として、AIN 層は設計値よりも薄く、AirGap 層は設計値よりも厚くした。ここでは、この操作を Calibration と呼称する。また Dose 量に関して、前節の SHOT 01 の結果より、各リングを同一の Dose 量で描くと Bullseye 構造の中心部分のズレが少ない。一方 SHOT 05 の結果より、各リングに対して 20 % ずつ変調をかけると、Bullseye 構造中心から遠い位置でのズレが少ない。ただし、中心部分は Dose 量が弱すぎる。この結果を踏まえて本番用の EB lithography では、基準となる Dose 量を $400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ として、「Calibration 有 + Dose 量一律 20 % 増」にて EB 描画を行った。図 4.14 に EB 描画用のパターンファイルの模式図を示す。比較用に、「Calibration 有+基準 Dose 量」、「Calibration 無+基準 Dose 量」、「Calibration 無 + Dose 量一律 20 % 増」の 3 つを用意した。

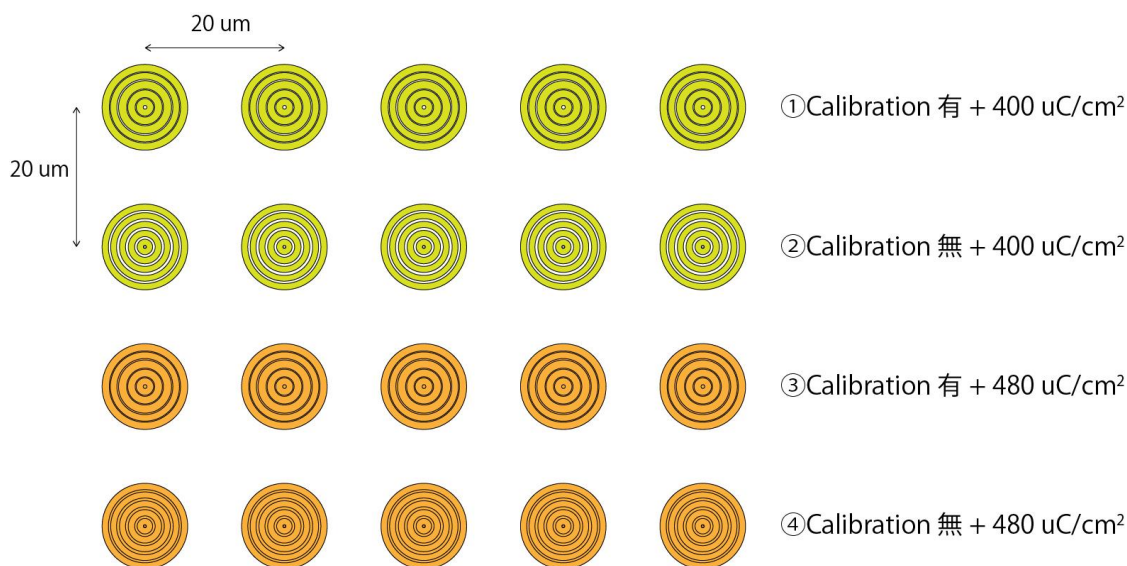


図 4.14 EB 描画パターン

4.5.3. 現像

前節と同様の条件（溶液の温度：10 °C、現像時間：2分）で行ったところ、Bullseyeのリングがサンプル表面に散らばってしまっていた。これは、現像時間が長すぎる過現像によるものと考えられた為、現像時間を1分に短くした。

10°Cで一定になった現像液に1分間、リンス液に20秒間サンプルを浸し、リンス液の入ったビーカーからサンプルを取り出してから10秒後に窒素ガスでブローした。図4.15に現像後のサンプルの断面SEM像を示す。レジスト剤の膜厚はおよそ1 μmある。これらのSEM像より目的のBullseye構造のマスクパターンが出来ていると言える。

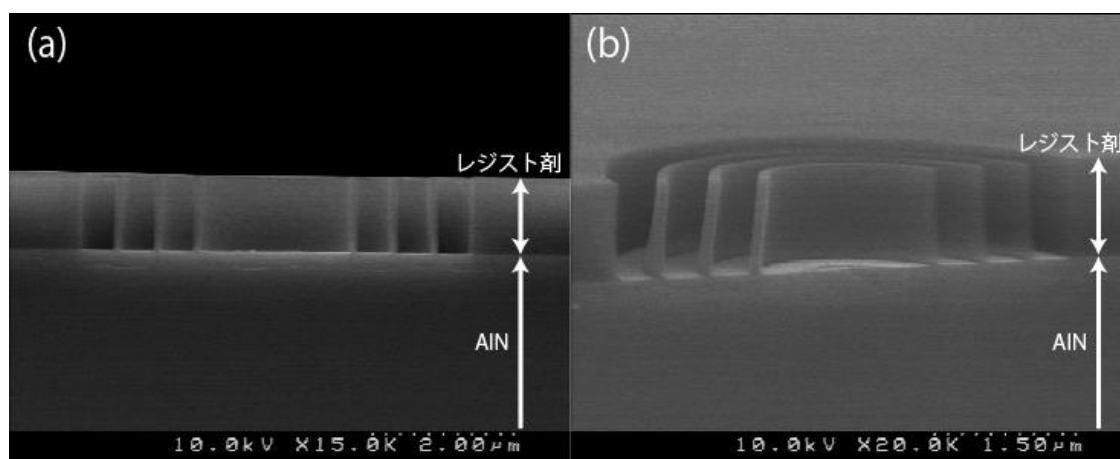


図 4.15 現像後のサンプルのSEM像

4.5.4. Dry Etching

前節の条件出しより、エッチングレート 1.8 nm/sec と算出されたが、これはおおよその値である。実際にはエッチング後の同一基板内の Bullseye でもエッチング時に衝突してくる粒子数のゆらぎや、レジスト剤が薄く残ってしまっていたか否かでエッチングの深さは異なってくる。したがって、厳密に深さ 240 nm に制御するのは極めて困難である。今回のプロセスでは、おおよそ 240 nm 付近になることを狙って、エッチング時間は2分30秒とした。（深さ 270 nm）エッチング条件をまとめたものを表 4.5 に示す。図 4.16 にドライエッチング後のサンプルの電子顕微鏡像を示す。斜面の形成は免れていないが、エッチングが行えていることがわかる。エッチングの深さは 280 nm で

あり、QD 層の高さにおける、AirGap 層の厚さは約 345.7 nm、AlN 層の厚さは約 237.3 nm であった。

表 4.5 ドライエッチングの条件

Ar ガス	Cl ガス	Pressure	Bias 電圧	ICP 電圧	Time
20 sccm	2 sccm	0.7 → 0.5 Pa	100 W	200 W	150 sec

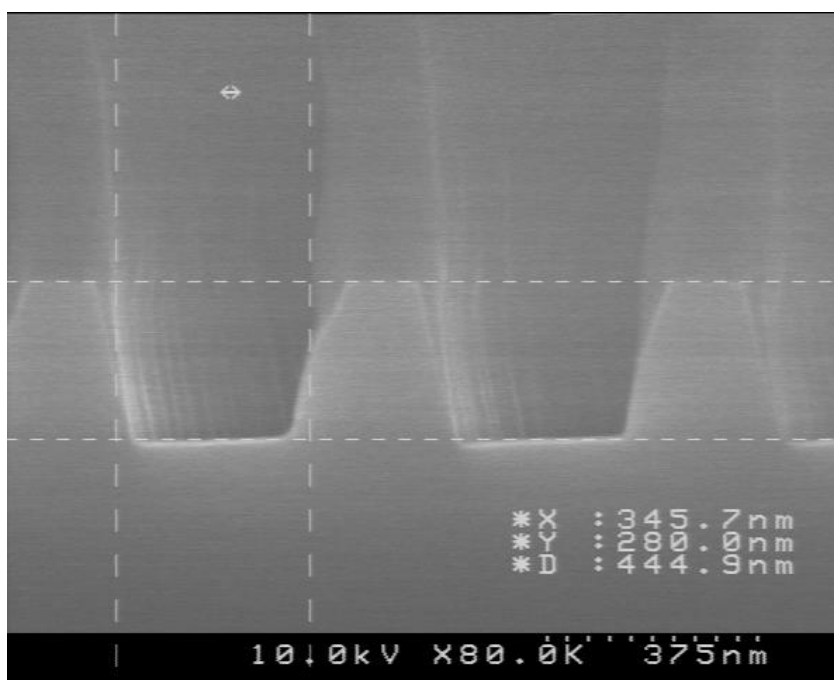


図 4.16 ドライエッチング後のサンプル断面像

4.5.5. レジスト剤剥離

レジスト剤の剥離に関しては、緻密な制御は必要ないので、前節と同様に常温の剥離液 (ZDMAC; 日本ゼオン) に浸し、時間はやや長くして 15 分間超音波洗浄機にかけた。剥離液による超音波洗浄終了後、窒素ガスでブローを行った。

4.6. 作製したデバイスの観察

完成した Bullseye 構造の SEM 像を図 4.17 に示す。図より、目的の Bullseye 構造が作製できていることが分かる。図 4.17 中の①②③④の Bullseye はそれぞれ図 4.14 中の EB 描画条件①②③④に対応している。①②は Bullseye 構造が完成しているが、③④では中心の Nanowire が無くなってしまっている。これは、Dose 量 $480 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ が大きすぎたためである。

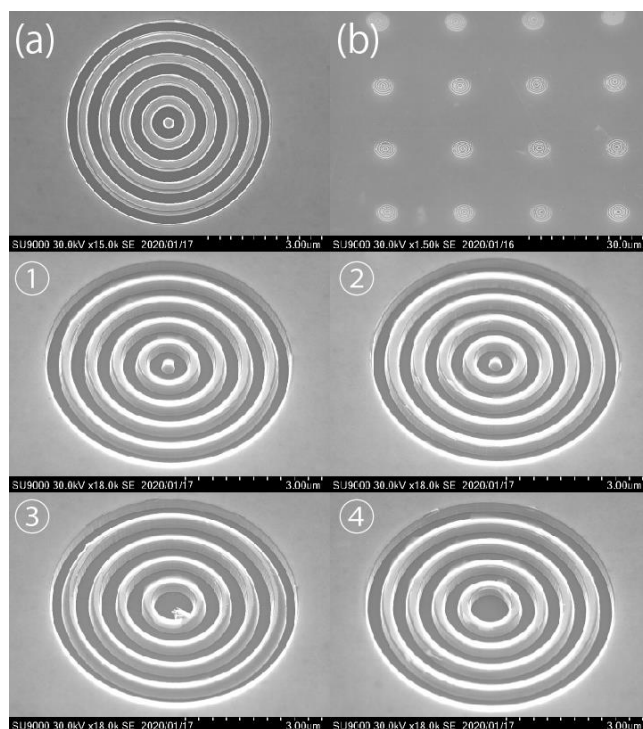


図 4.17 完成した Bullseye 構造の SEM 像 (a) 上部から観察 (b) 俯瞰図 ①EB 描画条件 1 ②EB 描画条件 2 ③EB 描画条件 3 ④EB 描画条件 4

次に、サンプルを真上から SEM で観察することで、完成した Bullseye 構造のスケールを測定した。結果としては、AIN 層は傾斜の部分込みで $80 - 100 \text{ nm}$ 程大きくなり、AirGap 層は、 $80 - 100 \text{ nm}$ も小さくなってしまった。Calibration により、AIN 層は設計値よりも薄く、AirGap 層は設計値よりも厚くしたのにも関わらず、このような大きな差異が生じてしまった理由について考察する。図 4.18 にドライエッチング後の断面 SEM 像を示す。

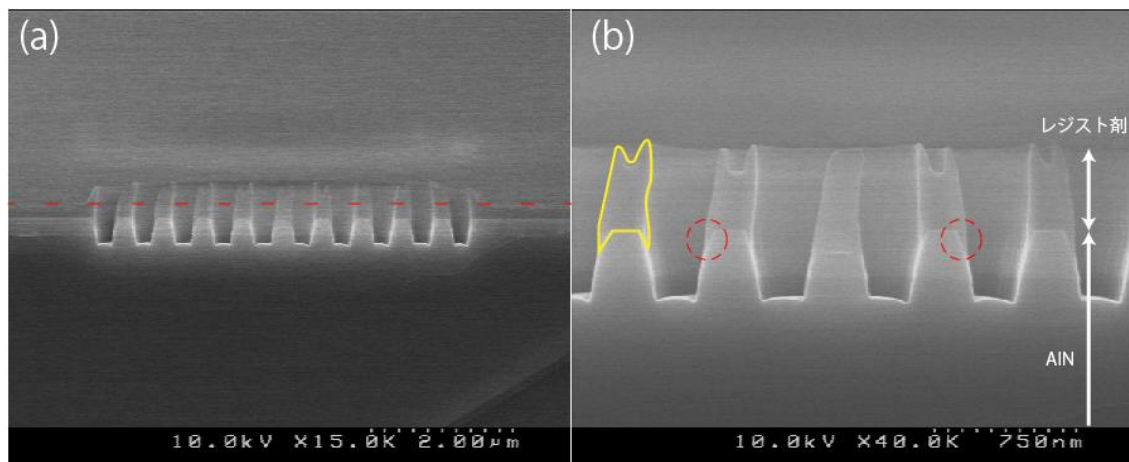


図 4.18 ドライエッチング後の断面 SEM 像

図 4.18(a)を見ると、レジスト剤が Bullseye 構造のところで赤の破線より上に盛り上がっていることが分かる。これは、この盛り上がった部分が削られなかったのではなく、エッチング中に堆積したものであると考えられる。その根拠として、図 4.18(b)の赤丸の部分を見ると、AlN 層の斜面部分に堆積物が付いており、これよりエッチング中に堆積物が出来ていると言える。ここでの堆積物とは、レジスト剤や Cl、Ga や N などの物質からなる化合物だと考えられる。図 4.18(b)の黄色く囲った部分のように、堆積物がレジスト剤の側面に付着することで、エッチングマスクが太く広がってしまっており、これが原因で AlN 層が設計値よりも厚く、AirGap 層が薄くなってしまったと言える。

この現象を軽減するためには、レジスト剤の膜厚を薄くする必要がある。レジスト剤はエッチング中に半導体同様削られてしまうのである程度の厚さは必要であり、今回のプロセスでは、レジスト剤の膜厚は 1 μm 程度であった。しかし、図 4.18(a)を見ると 270 nm の深さを削るために 150 秒間のエッチングを行っているが、エッチング後でも Bullseye 構造の外側部分のレジスト剤の厚さにまだ余裕がある。従って、もっと薄く塗布してもエッチングマスクとして機能する。よって、スピンドーターの回転数を上げ、レジスト剤の膜厚を薄くすることで、より設計値に近い Bullseye 構造が作製できると考えられる。

次に、測量結果をもとに完成したデバイスの光子取り出し効率の理論値を計算した。この時の光子放出の様子を図 4.19 に示す。計算によると、取り出し効率は 11.5 % (NA = 0.4) となる。3 章 5 節で議論した、設計時の取り出し効率 13.1 % (NA = 0.4) から下がってしまった。これは、完成した Bullseye 構造のスケールに設計とのズレがある点や、エッチングの断面が垂直ではなく、斜面になっているからである。それでも、無加工の状態のもの(1.1 % , NA 0.4)と比較して、10.5 倍の取り出し効率が得られている。図 4.20 に、無加工のもの、設計、実際に完成したものの光子取り出し効率レンズ NA 依存性を示す。

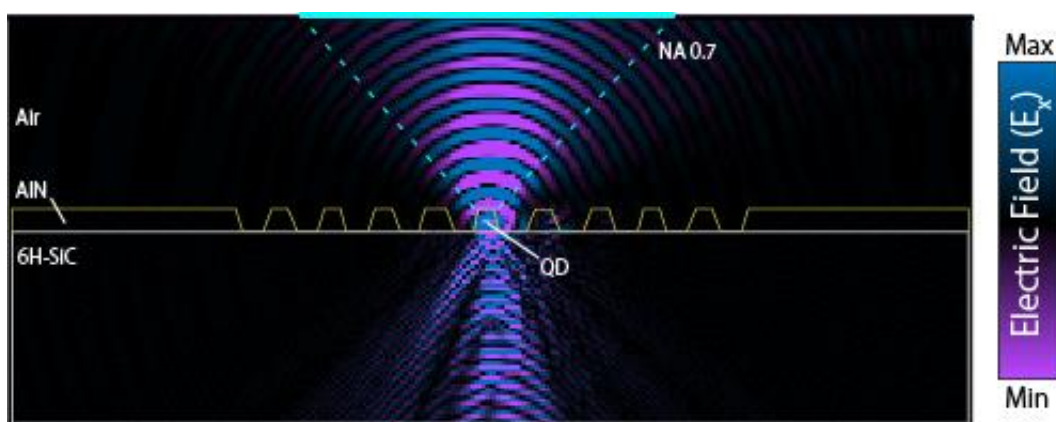


図 4.19 シミュレーションによる光子放出の様子(実際に作製したサンプルのスケールを用いた構造)

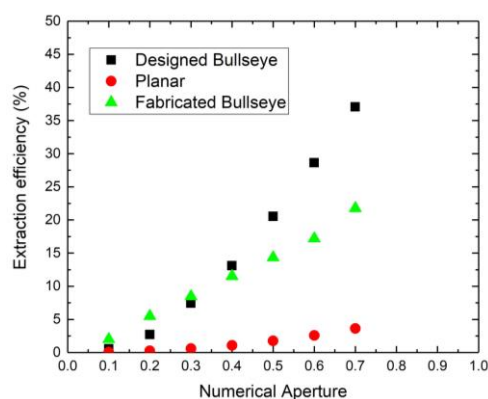


図 4.20 平面、設計値 Bullseye および作製した Bullseye の光子取り出し効率-レンズ NA 依存性

第5章 作製したデバイスの光学特性評価

5.1. はじめに

本章では、第4章で作製した Bullseye 構造の光学特性評価について述べる。本研究で用いた量子ドットは S-K 法により成長されたものであり、濡れ層内にランダムに分布している。したがって、位置制御が出来ておらず Bullseye の中心 Nanowire の中に何個の量子ドットが含まれているか定かではない。そのため、Bullseye 構造を作製したことによる光子の取り出し効率向上効果を実験的に示すため、複数の Bullseye 構造からのスペクトルを測定しアンサンブルをとった。ここでは、光学系のセットアップを紹介し、取り出し効率向上効果の確認方法を述べた後、実験で得られたデータを示し、シミュレーション結果との比較を行う。

5.2. 光学系のセットアップ

サンプルの光学特性評価は低温顕微分光法を用いて行った。まず、サンプルはクライオスタットの中に入れ、 10^{-4} Pa のオーダーまで真空引きをした。その後、クライオスタットに液体ヘリウムを流すことで、サンプルを 7 K まで冷却した状態で Photoluminescence 測定を行った。

本実験で用いた光学系のセットアップを図 5.1 に示す。励起光には、波長 266 nm の CW レーザを用いた。レーザ光源から出力された光は、ND フィルタ (Neutral Density) によってレーザ強度を調整できる。本実験では、レーザ強度は 17 mW とした。クライオスタット内のサンプルにレーザを照射する際、レーザは斜めの方向から照射しサンプル表面の広い範囲を励起した。クライオスタットには、ステップモーターが取り付けられており微動による位置制御が可能である。

サンプルからの発光は、対物レンズ (50x, NA = 0.4) を通って図 5.1 に示す光学系を通り分光器 (Grating; 150, 600, 2400 本/mm) へと導かれる。光学パス中のピンホールは、共焦点空間フィルターの役割を果たしている。この原理図を図 5.2 に示す。結像面にピンホール ($\phi 100$) を設置することで、焦点の合った光のみがピンホールを通過することが出来る。これにより PL の測定領域を 2 μm まで絞ることが可能である。また、フリップミラーを用いて、分光器へ向かうパスから、UV カメラに向かうパスへと変更が可能であり、これによりサンプル表面の UV 画像を見ることが可能である。

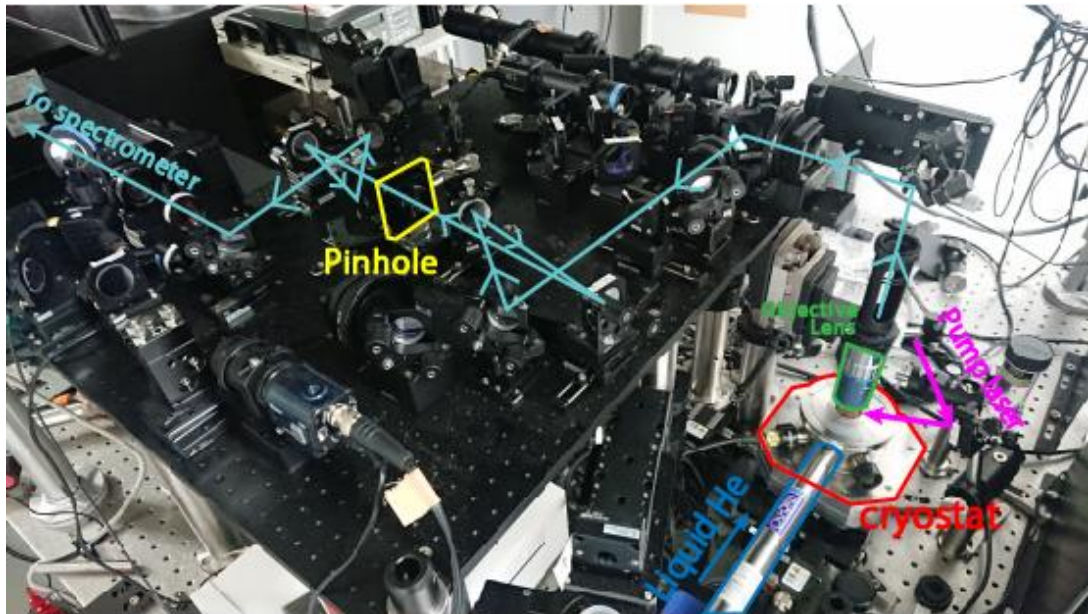


図 5.1 光学系のセットアップ

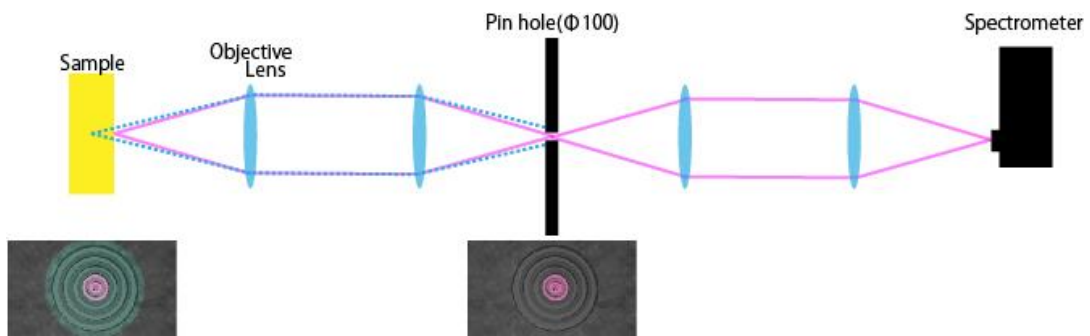


図 5.2 共焦点空間フィルターの原理図

5.3. 光子取り出し効率の測定方法

Bullseye 構造を作製したことで光子の取り出し効率が向上していることを実験的に示すために、スペイシャルフィルターによって狭めた PL の測定領域を Bullseye 構造の中心にした場合と、Bullseye 構造から離れたところにした場合の 2 つの PL 強度を比較した。この様子を図 5.3 に示す。

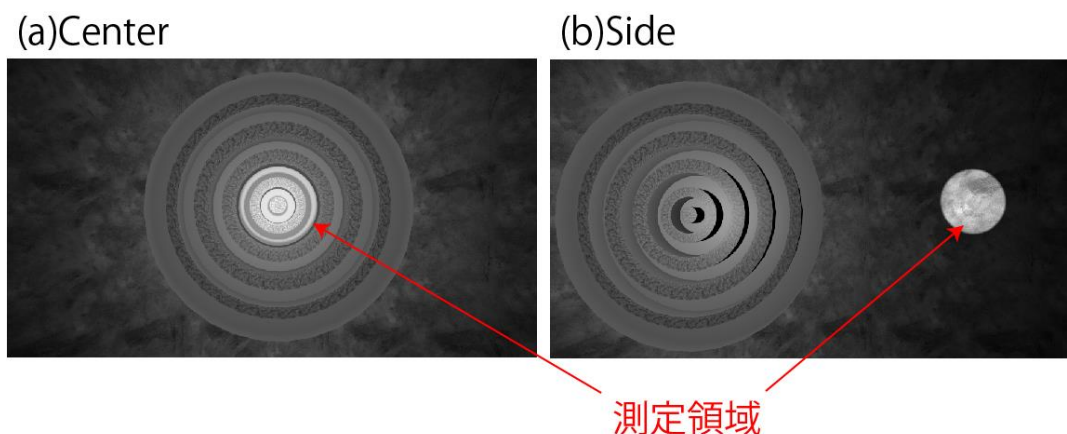


図 5.3 Bullseye 構造からの光子取り出し効率の測定

PL 測定により、図 5.3(a)Center と (b)Side から得られたスペクトルをそれぞれ適切な範囲で積算する。この PL 積算強度の比が光子取り出し効率の向上度合いとなる。

ここで、Bullseye 構造からの PL 強度には注意すべき点がある。Bullseye 構造は、エッチングによってサンプル中の QD 層よりも深く溝を掘っているために、発光領域の面積が小さくなっている。本研究で用いたサンプルは、図 4.2 より量子ドットの密度が高い為、測定領域内の至る所で発光していると考えられる。したがって、発光領域の減少による PL 積分強度の減少を考慮する必要があると言える。本研究では、測定領域をちょうど Bullseye の中心にもってきたと仮定し、第 4 章 6 節での測量結果を元に Bullseye 構造の発光領域の面積を算出した。これと、何も加工の無い平面な試料の発光領域 (=測定領域: 2 μm) との比を算出し、PL 積分強度にかけ合わせる必要がある。これを、本研究における光子取り出し効率の向上度とする。

5.4. 光学評価結果

まず初めに Bullseye 構造からの発光を UV カメラで撮影した様子を図 5.4(b)に示す。図 5.4(a)はその光学顕微鏡像である。図より、Bullseye 構造の中心部分から明るい発光が得られていることがハッキリと見てわかる。

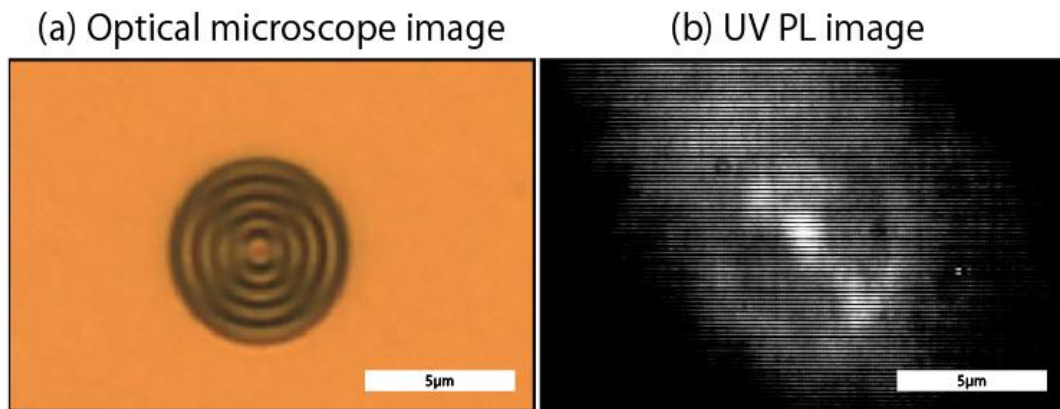


図 5.4 (a)光学顕微鏡像 (b)PL 測定中に UV カメラで撮影した像

次に図 4.17 のサンプルに対して、5 章 2 節で示した光学測定を行った。図 4.17 の条件①のサンプルを主として、合計 108 個の Bullseye の PL を測定した。図 5.5 に、特に際立ったスペクトルを代表して 4 つ示す。なお図 5.5 のスペクトルは前節で議論した発光領域面積の違いを考慮済みのデータである。

どのデータを見ても、Bullseye 構造の中心で測定した PL スペクトルの方が、Bullseye 構造の外側の何も加工の無い部分で測定した PL スペクトルよりも、全体的な強度が高いことが分かる。図 5.5(a)のスペクトルの取り出し効率増強度 η は、6.92 倍であった。ここではスペクトルを示すのは図 5.5 の 4 つのみに控えるが、108 個すべての Bullseye に対して、Bullseye 中心からの発光の方が、Bullseye の外側からの発光より強度が大きいという結果が得られた。これをヒストグラムにしたものを図 5.6 に示す。

図 5.6 のヒストグラムより、取り出し効率増強度の平均は 6.35 倍であった。第 3 章で行ったシミュレーションによると、設計段階では取り出し効率は 12 倍であり、これが実際にプロセスを行って出来上がったものでは、10.5 倍（第 4 章 6 節）であった。したがって、理論値よりも光子取り出し効率がやや下がってしまった。

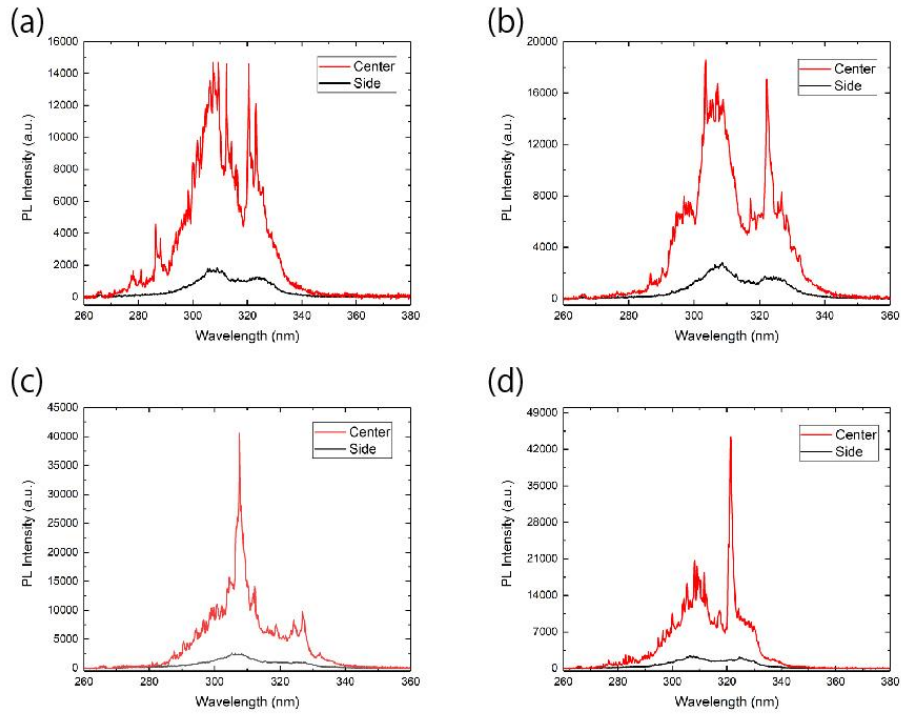


図 5.5 Bullseye 構造からの PL スペクトルと Bullseye 構造の外側からの PL スペクトル

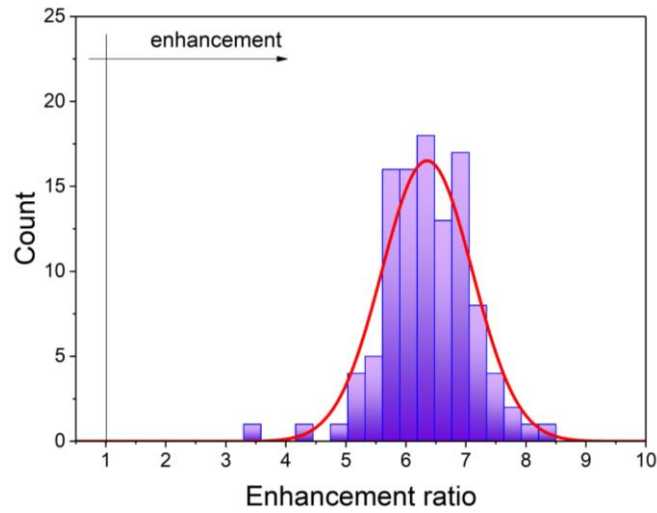


図 5.6 取り出し効率増強度のヒストグラム

シミュレーションによる理論値よりも光子取り出し効率が下がってしまった原因として次の3つが考えられる。(i)キャリア拡散時の非発光再結合確率の増大。(ii)Bullseye中の量子ドットの位置。(iii)Bullseye 構造中 DBR 層の側面の粗さ。以下、この3つの原因について詳しく述べる。

(i) キャリア拡散時の非発光再結合確率の増大

Bullseye 構造は、エッチングにより溝を掘り 3次元構造となっている為に、注入したキャリアが拡散した際に QD に入らずに非発光再結合してしまう場合が増える。非発光再結合が増えることで、取り出し効率ではなく、発光効率が低下してしまい結果として PL 測定をした際に、PL 強度が低下してしまう。図 5.7 にこの影響を表す模式図を示す。

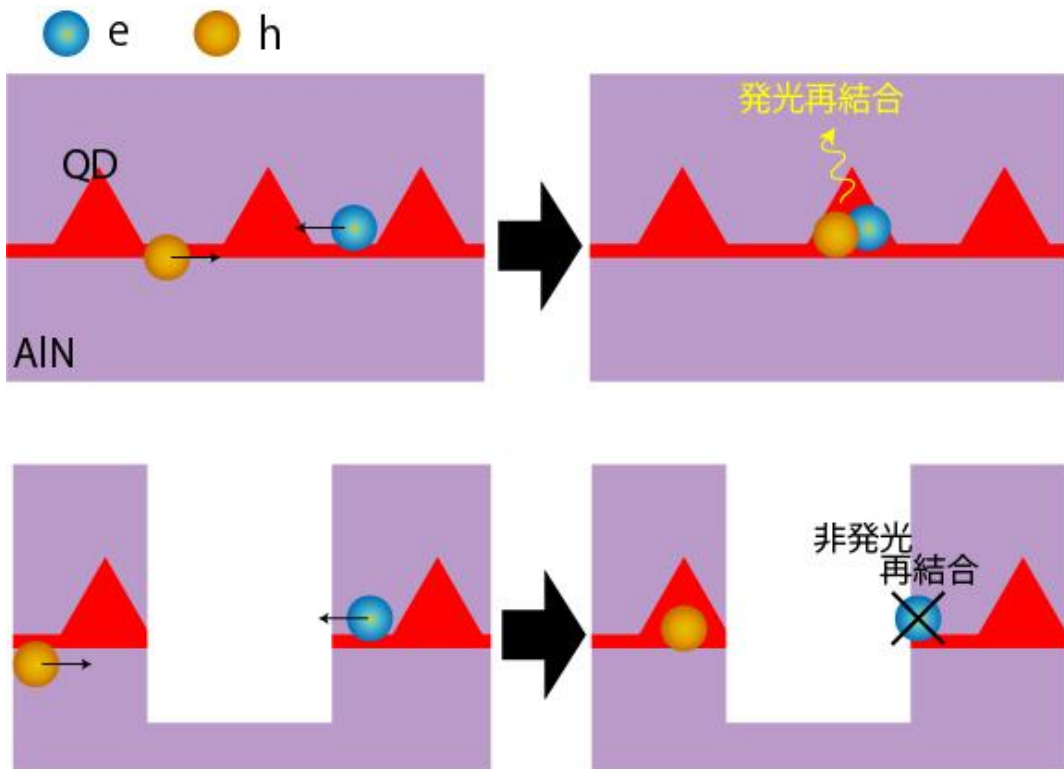


図 5.7 キャリア拡散による非発光再結合

(ii) Bullseye 中の量子ドットの位置

本研究のシミュレーションでは、中心にある Nanowire の中の中心軸上に量子ドットを配置している。しかし、今回の量子ドットサンプルは S-K 法により成長したものであり、量子ドットの位置制御はされていない。したがって、作製した Bullseye 構造中のどこに量子ドットが居るかが定かではない。Nanowire の端にいる場合や、そもそも Nanowire 中ではなくリング中にある場合も考えられ、この時取り出し効率は低下してしまう。

(iii) Bullseye 構造中 DBR 層の側面の粗さ

図 5.8 に、DBR 層の側面を観察した SEM 像を示す。図 5.8 より、ドライエッチング後の側面は、鏡面のような綺麗なものではなく凸凹としてしまう。このため、DBR の反射率が下がってしまい、結果として取り出し効率の低下を引き起こしてしまうと考えられる。この影響を抑えるためには、ドライエッチング工程の条件出しを行う必要がある。Cl ガス、Ar ガスの流量調整や、Bias 電圧、ICP 電圧を見直すことで凹凸を軽減することができると考えられる。

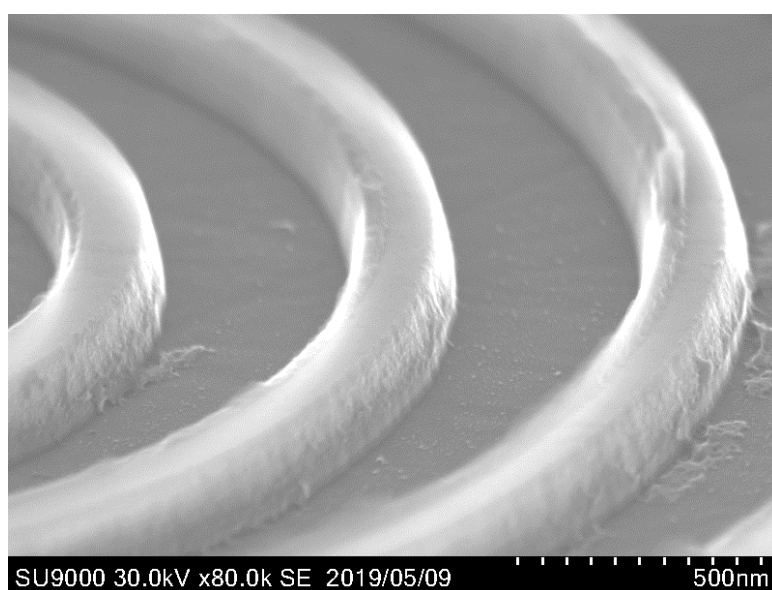


図 5.8 DBR 層の側面 SEM 像

一方で、Bullseye 構造を作ることによって 2 次元平面構造から 3 次元立体構造になるため、励起光の照射面積が増大し、これにより励起効率が上がると考えられる。励起効率が上がることで、PL 強度も増大するため取り出し効率増強度は増加してしまう。この励起効率上昇による影響と取り出し効率上昇の影響を区別するのは困難である。

最後に光子の単一性について検討する。図 5.5 のスペクトルを見るといくつか鋭い発光ピークが見られる。しかし、どのピークに対してもバックグラウンドの成分が多く、すぐ近傍に別のピークが見られる為、ある特定のピークを孤立させ取り出すのは困難だ

と言える。これは、サンプル中の量子ドットの密度が高いためである。(図 4.2 参照)
図 5.9 に量子ドットの密度の高さが分かる PL スペクトルを示す。ギザギザしたピーク
1つ1つが量子ドットからの発光であり、如何に量子ドット密度が高いかがよくわかる。
実際に、Bullseye 構造の中心に測定領域 (直径 2 μm) をもってきた際に、観測してい
る量子ドットの数約 150 個である。したがって本デバイスは、光子の取り出し効率は
高いが、量子ドットの密度を減らさない限り単一光子を得るのは難しいと言える。

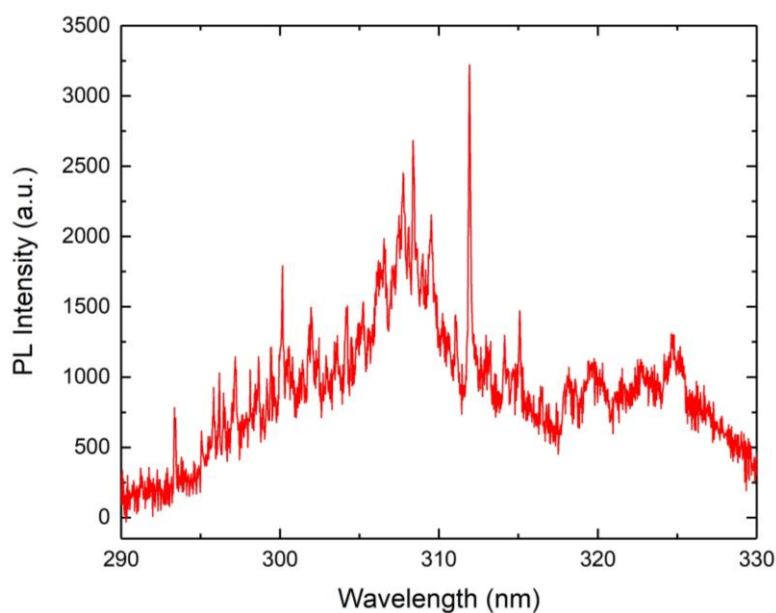


図 5.9 量子ドット密度の高さを示す PL スペクトル

以上の実験結果より、プロセス加工の際に設計値からずれてしまった Bullseye 構造
であったが、図 5.5 や 5.6 の PL スペクトルより、光子の取り出し効率が向上し、PL 強
度が増強されていることが確認できた。よって、本研究では III 族窒化物量子ドットに
おいて、光子取り出し効率の向上を目的に Bullseye 構造を作製し、実験的に光子取り
出し効率の向上を確認することができた。

第6章 更なる高取り出し効率構造を目指して

6.1. 新たな Bullseye 構造の設計

本研究では、実際にデバイスを作製し、シミュレーションではなく実験的に III 族窒化物量子ドットの光子取り出し効率向上を観測することを目的とした為、プロセスが容易に行えるような構造を設計する必要がある。しかし、今ここでプロセスの困難さには目をつむり、III 族窒化物量子ドットからの光子の取り出し効率の理論上の最高値に挑戦した。

まず、DBR 層の AlN と AirGap の厚さを AlN と AirGap を合わせた周期が $5\lambda/4$ [31] となるようにし、この条件の中でそれぞれの層の厚さをシミュレーションにより探索した。シミュレーションの結果、AlN 層の厚さが 111.18 nm、AirGap 層の厚さが 136 nm と決定した。次に、第 3 章で行った計算と同様に、パラメータ Q と D を決定するためにシミュレーションを行った。その結果、 $Q = 131$ nm、 $D = 171$ nm と決定した。次に、横方向の光の伝搬を抑えるために DBR 層の数（リング数）も 20 層まで増大させた。最後に、SiC の基板を取り去り、サンプル裏側に鏡（アルミニウム）を導入した。これにより、基板側に放出される光を反射させて表側から取り出すことが出来る。このとき、鏡の位置は反射波の位相が揃うように位相整合をとった位置に導入した。

図 6.1 に設計した新たな Bullseye 構造とその放射パターンを示す。このときの光子取り出し効率は、56.4 % ($NA = 0.4$) である。さらに $NA = 0.7$ のレンズを用いた場合には、88.7 % と極めて高い値が得られた。図 6.2 には、DBR 層の周期数（リングの数）による取り出し効率の変化を、図 6.3 にはレンズの NA の大きさによる取り出し効率の変化を示す。

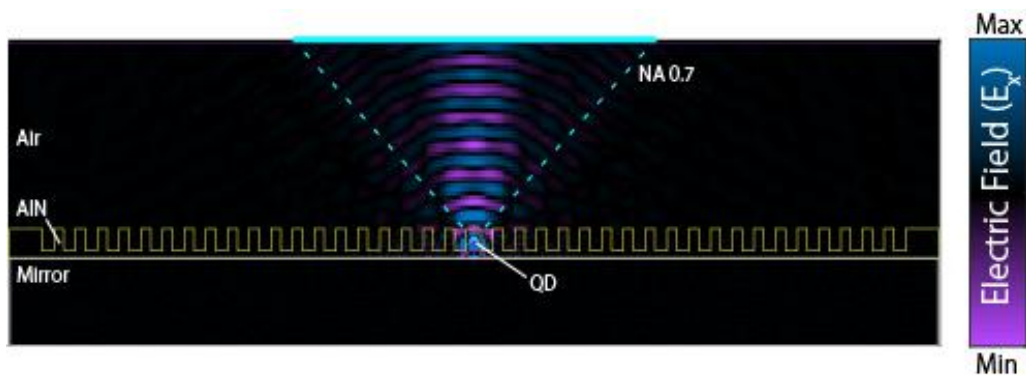


図 6.1 新たな Bullseye 構造からの光子放出の様子

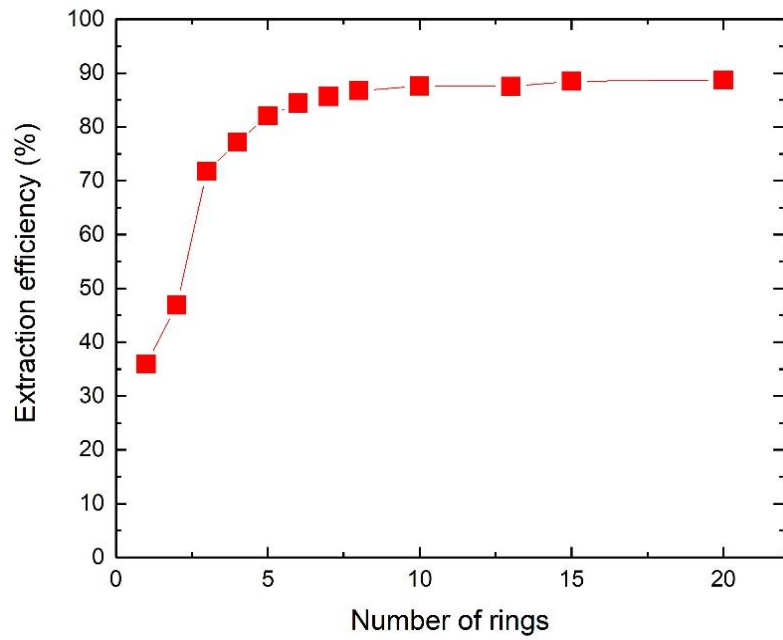


図 6.2 新たに設計した Bullseye 構造のリング数に対する取り出し効率変化

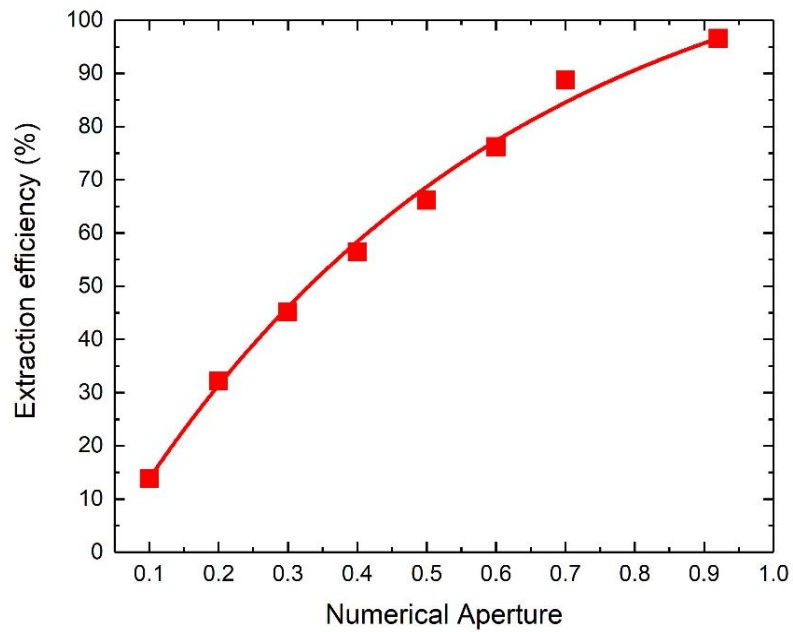


図 6.3 新たに設計した Bullseye 構造のレンズ NA に対する取り出し効率変化

第7章 まとめと今後の展望

7.1. まとめ

本研究では、量子鍵配送に代表されるような量子情報通信技術を実現する上で重要となる、III 族窒化物量子ドットからの光子の取り出し効率向上を実験的に検証した。

第 3 章では、III 族窒化物量子ドットに対して、プロセスが容易に行え尚且つ光子の取り出し効率も高い Bullseye 構造の設計を行った。シミュレーションにより、本研究で設計した Bullseye 構造では、光子の取り出し効率が何も加工の無い場合に比べて約 12 倍に上昇することを確認した。

第 4 章では、第 3 章で行った設計に基づいて実際に AlN/GaN QD サンプルに対して Bullseye 構造の作製を行った。また、完成後のデバイスの観察を行い、作製したデバイスの光子取り出し効率の計算値も示した。

第 5 章では、第 4 章で作製したデバイスの光学評価を行った。光子の取り出し効率を向上していることを示すために、Bullseye 構造中心からの発光強度と Bullseye 構造の外側からの発光強度を比較した。本研究では、Bullseye 構造中の量子ドットの数や位置によるばらつきを鑑みて、同一基板上の複数個の Bullseye からの発光を観測しアンサンブルをとった。結果として、すべての Bullseye からの発光強度が、Bullseye の外からの発光強度と比較して上昇していることが確認できた。よって、Bullseye 構造を作ることによって III 族窒化物量子ドットからの光子取り出し効率向上を実現した。

第 6 章では、プロセスの容易さを無視し、さらに取り出し効率の高い設計を試みた。AlN、AirGap 層の厚みおよび周期数、表面からの量子ドットの位置、中心の Nanowire の直径を再調整し、基板裏側に反射波の位相が揃う鏡を入れることで、光子取り出し効率 88.7 % (NA = 0.7) を達成することが出来た。

7.2. 今後の展望

今後は、光子取り出し効率の高い単一光子源の実現に向けて、より量子ドット密度の低いサンプルで Bullseye 構造を作製する必要がある。量子ドットの密度が低くなると、中心の Nanowire 中の量子ドットの数や位置の違いによる取り出し効率の差異が大きく表れるので、この点に注意をする必要がある。例えば、何らかの方法で量子ドットの位置を特定し、そこに合わせて Bullseye 構造を作ることによってこの問題点に対処可能である。

或いは、図 7.1 に示すように量子井戸構造を持ったサンプルに対して、トップダウン型のプロセスにより直径数十 nm の Nanowire を作製し、量子井戸から量子ドットを作製するような研究がある。[52-57]この技術を応用し、量子井戸サンプルに対してトップダウン型プロセスで Bullseye 構造を作製することで、量子ドットの位置制御をせずとも、必ず Bullseye 中心の Nanowire 中に量子ドットが入るような構造を作製することが出来る。

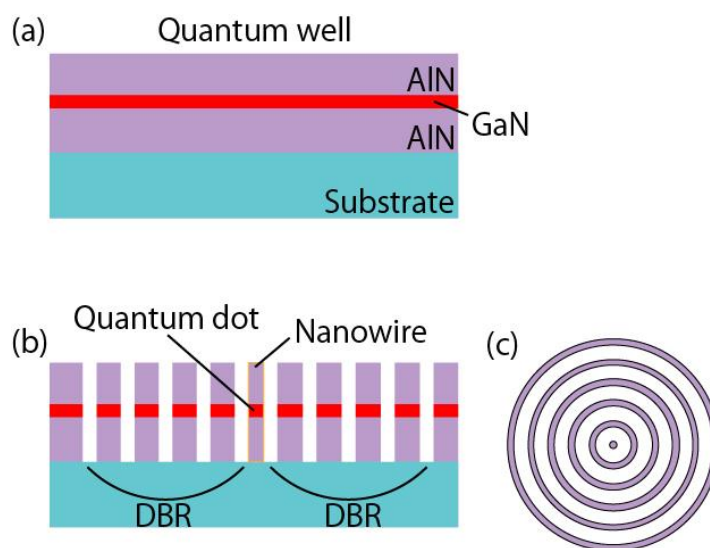


図 7.1 量子井戸構造に対してトップダウン型のプロセスにより作製される Nanowire 中量子ドット (a)量子井戸サンプル (b)トップダウン型のプロセスにより作製された Bullseye 構造 (c)(b)の上面図 (Bullseye 構造)

また、第 6 章で設計した構造の作製にも取り組みたい。設計のままでは、作製が困難な為、シミュレーションによりプロセスの容易さと取り出し効率の高さのバランスが取れる設計値を探す等して、作製を行う必要がある。

これらの試みを達成することが出来れば、III 族窒化物量子ドットで世界最高取り出し効率な単一光子源を実現することができ、量子情報通信技術の実現への極めて重要な一歩となる。

参考文献

- [1] Y. Nakamura, Y. A. Pashkin and J. S. Tsai, “Coherent control of macroscopic quantum states in a single-Cooper-pair box,” *Nature* **398**, 786-788 (1999).
- [2] D. Kielpinski, C. Monroe and D. J. Wineland, “Architecture for a large-scale ion-trap quantum computer,” *Nature* **417**, 709-711 (2002).
- [3] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, a. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer and M. D. Lukin, “Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond,” *Science* **314**, 281-285 (2006).
- [4] J. J. Pla, K. Y. Tan, J. P. Dehollain, W. H. Lim, J. J. L. Morton, D. N. Jamieson, A. S. Dzurak and A. Morello, “A single-atom electron spin qubit in silicon,” *Nature* **489**, 541-545 (2012).
- [5] R. Loudon and L. Hunter, “The Quantum Theory of Light,” *American Journal of Physics* **54**, 285 (1986).
- [6] J. L. O'Brien, “Optical Quantum Computing,” *Science* **318**, 1567-1570 (2007).
- [7] J. W. Silverstone, D. Bonneau, J. L. O'Brien and M. G. Thompson, “Silicon Quantum Photonics,” *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **22**, 390-402 (2014).
- [8] J. L. O'Brien, A. Furusawa and J. Vuckovic, “Photonic quantum technologies,” *Nature Photonics* **3**, 687-695 (2009).
- [9] A. A. Guzik and P. Walther, “Photonic quantum simulators,” *Nature physics* **8**, 285-291 (2012).
- [10] M. Hosseini, G. Campbell, B. M. Sparkes, P. K. Lam and B. C. Buchler, “Unconditional room-temperature quantum memory,” *Nature physics* **7**, 794-798 (2011).
- [11] J. S. Neergaard-Nielsen, B. M. Nielsen, C. Hettich, K. Molmer and E. S. Polzik, “Generation of a Superposition of Odd Photon Number States for Quantum Information Networks,” *Physical Review Letters* **97**, 083604 (2006).
- [12] C. Monroe, “Quantum information processing with atoms and photons,” *Nature* **416**, 238-246 (2002).
- [13] S. Tanzilli, W. Tittel, M. Halder, O. Alibart, P. Baldi, N. Gisin and H. Zbinden, “A photonic quantum information interface,” *Nature letters* **437**, 116-120 (2005).
- [14] C. H. Bennett and P. W. Shor, “Quantum Information Theory,” *IEEE Transactions on information theory* **44**, 2724-2742 (1998).
- [15] K. Fukui, A. Tomita and A. Okamoto, “High-Threshold Fault-Tolerant Quantum Computation with Analog Quantum Error Correction,” *Physical Review X* **8**, 021054 (2018).
- [16] S. Takeuchi, “Experimental demonstration of a three-qubit quantum computation algorithm using a single photon and linear optics,” *Physical Review A* **62**, 032301 (2000).
- [17] T. B. Pittman, B. C. Jacobs and J. D. Franson, “Probabilistic quantum logic operations using

- polarizing beam splitters,” *Physical Review A* **64**, 062311 (2001).
- [18] H. F. Hofmann and S. Takeuchi, “Quantum phase gate for photonic qubits using only beam splitters and postselection,” *Physical Review A* **66**, 024308 (2002).
- [19] V. Scarani, H. B. Pasquinucci, N. J. Cerf, M. Dusek, N. Lutkenhaus and M. Peev, “The Security of Practical Quantum Key Distribution,” *Review of modern physics* **81**, 1301 (2009).
- [20] K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, Y. Sakuma, T. Yamamoto, S. Yoroza and Y. Arakawa, “Quantum key distribution over 120 km using ultrahigh purity single-photon source and superconducting single-photon detectors,” *Scientific Reports* **5**, 14383 (2015).
- [21] C. H. Bennett, “Experimental Quantum Cryptography,” *Journal of cryptology* **5**, 3-28 (1992).
- [22] I. Aharonovich, D. Englund and M. Toth, “Solid-state single-photon emitters,” *Nature photonics* **10**, 631-641 (2016).
- [23] P. Senellart, G. Solomon and A. White, “High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources,” *Nature nanotechnology* **12**, 1026-1039 (2017).
- [24] A. Singh, Q. Li, S. Liu, Y. Yu, X. Lu, C. Schneider, S. Hofling, J. Lawall, R. Mirin, S. W. Nam, J. Liu and K. Srinivasan, “Quantum frequency conversion of a quantum dot single-photon source on a nanophotonic chip,” *Optica* **6**, 563-569 (2019).
- [25] N. Prtljaga, R. J. Coles, J. O’Hara, B. Royall, E. Clarke, A. M. Fox and M. S. Skolnick, “Monolithic integration of a quantum emitter with a compact on-chip beam-splitter,” *Applied Physics Letters* **104**, 231107 (2014).
- [26] M. Arcari, I. Söllner, A. Javadi, S. L. Hansen, S. Mahmoodian, J. Liu, H. Thyrestrup, E. H. Lee, J. D. Song, S. Stobbe and P. Lodahl, “Near-Unity Coupling Efficiency of a Quantum Emitter to a Photonic Crystal Waveguide,” *Physical Review Letters* **113**, 093603 (2014).
- [27] L. Schweickert, K. D. Jöns, K. D. Zeuner, S. F. Covre da Silva, H. Huang, T. Lettner, M. Reindl, J. Zichi, R. Trotta, A. Rastelli and V. Zwiller, “On-demand generation of background-free single photons from a solid-state source,” *Applied Physics Letters* **112**, 093106 (2018).
- [28] M. J. Holmes, S. Kako, K. Choi, M. Arita and Y. Arakawa, “Single Photons from a Hot Solid-State Emitter at 350 K,” *ACS Photonics* **3**, 543-546 (2016).
- [29] X. Ding, Y. He, Z. C. Duan, N. Gregersen, M. C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C. Y. Lu and J. W. Pan, “On-Demand Single Photons with High Extraction Efficiency and Near-Unity Indistinguishability from a Resonantly Driven Quantum Dot in a Micropillar,” *Physical review letters* **116**, 020401 (2016).
- [30] J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne and J. M. Gerard, “A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire,” *Nature photonics* **4**, 174-177 (2010).
- [31] H. Wang, H. Hu, T. H. Chung, J. Qin, X. Yang, J. P. Li, R. Z. Liu, H. S. Zhong, Y. M. He, X. Ding, Y. H. Deng, Q. Dai, Y. H. Huo, S. Höfling, C. Y. Lu and J. W. Pan, “On-Demand

- Semiconductor Source of Entangled Photons Which Simultaneously Has High Fidelity, Efficiency, and Indistinguishability,” *Physical review letters* **122**, 113602 (2019).
- [32] M. Davanço, M. T. Rakher, D. Schuh, A. Badolato and K. Srinivasan, “A circular dielectric grating for vertical extraction of single quantum dot emission,” *Applied Physics Letters* **99**, 041102 (2011).
- [33] J. H. Kim, Y. H. Ko, S. H. Gong, S. M. Ko and Y. H. Cho, “Ultrafast single photon emitting quantum photonic structures based on a nano-obelisk,” *Scientific Reports* **3**, 2150 (2013).
- [34] X. Sun, P. Wang, T. Wang, D. Li, Z. Chen, L. Chen, K. Gao, M. Li, J. Zhang, W. Ge, Y. Arakawa, B. Shen, M. Holmes and X. Wang, “Single photon source based on an InGaN quantum dot in a site-controlled optical horn structure,” *Applied Physics Letters* **115**, 022101 (2019).
- [35] <http://www-opto.e-technik.uni-ulm.de/lehre/cs/> (accessed 5 December 2018).
- [36] V. Y. Davydov, A. A. Klochikhin, R. P. Seisyan, V. V. Emtsev, S. V. Ivanov, F. Bechstedt, J. Furthmuller, H. Harima, A. V. Mudryi, J. Aderhold, O. Semchinova and J. Graul, “Absorption and Emission of Hexagonal InN. Evidence of Narrow Fundamental Band Gap,” *Physica status solidi (b)* **229**, R1-R3 (2002).
- [37] H. Yamashita, K. Fukui, S. Misawa and S. Yoshida, “Optical properties of AlN epitaxial thin films in the vacuum ultraviolet region,” *Journal of Applied Physics* **50**, 896 (1979).
- [38] 赤崎 勇, *アドバンスト・エレクトロニクス I-21 III 族窒化物半導体* (培風館, 1999) p46 .
- [39] S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Gotzinger, Y. Yamamoto and Y. Arakawa, “A galliumnitride single-photon source operating at 200K,” *Nature materials* **5**, 887-892 (2006).
- [40] Y. Arakawa and H. Sakaki, “Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current,” *Applied Physics Letters* **40**, 939 (1982).
- [41] N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S. S. Ruvimov, M. V. Maximov, P. S. Kopev, Zh. I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele and J. Heydenreich, “Low threshold, large T_0 injection laser emission from (InGa)As quantum dots,” *Electronics letters* **30**, 1416-1417 (1994).
- [42] K. Otsubo, N. Hatori, M. Ishida, S. Okumura, T. Akiyama, Y. Nakata, H. Ebe, M. Sugawara and Y. Arakawa, “Temperature-Insensitive Eye-Opening under 10-Gb/s Modulation of 1.3-um P-Doped Quantum-Dot Lasers without Current Adjustments,” *Express Letter* **43**, 1124-1126 (2004).
- [43] K. Tanabe, K. Watanabe and Y. Arakawa, “III-V/Si hybrid photonic devices by direct fusion bonding,” *Scientific Reports* **2**, 349 (2012).
- [44] 古川 静二郎, *半導体デバイス* (コロナ社, 1995) p11.
- [45] 松澤 剛雄, 高橋 清, 齊藤 幸喜, *電子物性* (森北出版, 2004) p140

- [46] S. Buckley, K. Rivoire and J. Vuckovic, “Engineered quantum dot single-photon sources,” *Reports on Progress in Physics* **75**, 126503 (2012).
- [47] P. Lodahl, S. Mahmoodian and S. Stobbe, “Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures,” *Reviews of Modern Physics* **87**, 347-400 (2015).
- [48] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse and G. L. Roux, “Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices,” *Applied Physics Letters* **47**, 1099 (1985).
- [49] 高 亢, マーク ホームズ, 有田 宗貴, 荒川 泰彦, “III 族窒化物量子ドットの光子取り出し効率の向上,” 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 16p-A21-9 (2016).
- [50] A. Sadao, “Optical constants of crystalline and amorphous semiconductors,” Springer, p150, 978-0-7923-8567-7, (1999).
- [51] S. Wang, M. Zhan, G. Wang, H. Xuan, W. Zhang, C. Liu, C. Xu, Y. Liu, Z. Wei and X. Chen, “4H-SiC: a new nonlinear material for midinfrared lasers,” *Laser & Photonics Reviews* **7**, 831-838 (2013).
- [52] H. S. Chen, D. M. Yeh, Y. C. Lu, C. Y. Chen, C. F. Huang, T. Y. Tang, C. C. Yang, C. S. Wu and C. D. Chen, “Strain relaxation and quantum confinement in InGaN/GaN nanoposts,” *Nanotechnology* **17**, 1454 (2006).
- [53] S. Keller, C. Schaake, N. A. Fichtenbaum, C. J. Neufeld, Y. Wu, K. McGroddy, A. David, S. P. DenBaars, C. Weisbuch, J. S. Speck and U. K. Mishra, “Optical and structural properties of GaN nanopillar and nanostripe arrays with embedded InGaN/GaN multi-quantum wells,” *Journal of Applied Physics* **100**, 054314 (2006).
- [54] R. Debnath, J. Y. Ha, B. Wen, D. Paramanik, A. Motayed, M. R. King and A. V. Davydov, “Top-down fabrication of large-area GaN micro- and nanopillars,” *Journal of Vacuum Science & Technology B* **32**, 021204 (2014).
- [55] L. Zhang, C. H. Teng, P. C. Ku and H. Deng, “Site-controlled InGaN/GaN single-photonemitting diode,” *Applied Physics Letters* **108**, 153102 (2016).
- [56] L. K. Lee and P. C. Ku, “Fabrication of site-controlled InGaN quantum dots using reactive-ion etching,” *Phys. Status Solidi C* **9**, No. 3–4, 609–612 (2012).
- [57] L. Zhang, C. H. Teng, T. A. Hill, L. K. Lee, P. C. Ku and H. Deng, “Single photon emission from site-controlled InGaN/GaN quantum dots,” *Applied Physics Letters* **103**, 192114 (2013).

本研究に関する発表

<国際ワークショップ>

1. Tomoyuki Aoki, Kang Gao, Munetaka Arita, Yasuhiko Arakawa, and Mark Holmes, “Bullseye structures for increasing the photon extraction efficiencies of III-nitride quantum dots,” The 1st SNU-UT Workshop on Nanophotonics, (31/01/2020)

<国内学会>

2. 青木伴晋, 高亢, 有田宗貴, 荒川泰彦, ホームズ マーク, “窒化ガリウム量子ドットからの光子高取り出し効率構造の作製”, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会 (北海道大学) 20p-E310-12, 2019 年 9 月 20 日
3. 青木伴晋, 高亢, 有田宗貴, 荒川泰彦, ホームズ マーク, “GaN 量子ドット Bullseye 構造の光子高取り出し効率化の検討”, 第 67 回応用物理学会春季学術講演会 (上智大学), 2020 年 3 月(発表予定)

関連研究

<発表論文>

4. Kang Gao, Tomoyuki Aoki, Munetaka Arita, Yasuhiko Arakawa, and Mark Holmes, Observation of sharp emission lines from Zn-doped GaN. Japanese Journal of Applied Physics 58 SCCB15 2019, 査読有 <https://doi.org/10.7567/1347-4065/ab0cff>

<国際学会>

5. Kang Gao, Tomoyuki Aoki, Munetaka Arita, Yasuhiko Arakawa, and Mark Holmes. Photoluminescence spectroscopy of sharp emission peaks in Zn-doped GaN. International Workshop on Nitrides 2018 (IWN14), 11th-16th November 2018, Kanazawa, Japan.
6. Kang Gao, Tomoyuki Aoki, Munetaka Arita, Yasuhiko Arakawa, and Mark Holmes. [ICNN- 7-05] Zn-doped GaN: Localized emission lines in the blue. International Conference on Nano-photonics and Nano-optoelectronics (ICNN 2019), 24th-26th April 2019, Yokohama, Japan.

<国内学会>

7. Kang Gao, Tomoyuki Aoki, Munetaka Arita, Yasuhiko Arakawa, and Mark Holmes.
“Zn:GaN/AlGaN 量子井戸発光スペクトルにおける鋭い発光ピークの観察” 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会 (2017 名古屋, 日本).

謝辞

本研究を遂行するにあたり、多くの方々のご指導、ご協力を頂きました。この場をお借りし深く御礼申し上げます。

指導教官である Mark Holmes 准教授には、本研究に関して多大なるご指導ご鞭撻を賜りました。修士課程での研究生活全般をサポートして頂き、学術的なお話だけでなく、今後の人生で必要な物事の見方や考え方、伝え方もご指導して頂きこの2年間で大きく成長することが出来ました。ここに深く感謝を申し上げます。

有田宗貴特任准教授には、本研究のプロセス技術に関して多大なるご支援ご協力を頂きました。窒化物半導体のプロセス技術に関して右も左も分からない私に懇切丁寧に指導頂きました。量子ドットサンプルのご用意から、デバイスの作製指針のご相談、実験に関するご指導など、本研究を遂行するにあたり多くの時間を割いていただいたからこそ、ここまで研究を進めることができました。心より深く御礼申し上げます。

斎藤敏夫助教には、同じ Holmes 研究室のメンバーとして、私の発表練習の際には適切な助言をくださり、また学術的な面のみならず学生生活を送るうえで必要な事務的な手続きのサポートもして頂きました。おかげさまで、研究をより円滑に遂行することが出来ました。心から感謝申し上げます。

高亢元研究員には、実験装置の使い方、測定方法やシミュレーションの方法に至るまで、あらゆる面で直接的なご指導を頂きました。荒川泰彦特任教授には、研究に関して高い視点からのご助言を頂きました。岩本敏教授には、研究或いは研究生活に行き詰まった際に的確なアドバイスをして頂きました。石田悟己助手には、プロセスで使用する装置全般の指導と管理をして頂き、西岡政雄助手には、クリーンルームの使用に際して丁寧に指導頂きました。秘書の奈良律子氏には、出張時のお金にかかわる手続きなどを行って頂きました。岩本研究室の吉見拓展氏、孫照印氏には、Holmes 研究室内に同期の居ない私にとって、どんなことでも相談できる良き友人でした。授業や研究生活において、様々なサポートをしてくださいました。岩本研究室の先輩である、田尻武義氏、車一宏氏、玉田晃均氏、勝見亮太氏、林文博氏、山口拓人氏には、Holmes 研究室内に修士課程を経た先輩が居なかった私にとって、研究室の先輩そのものでした。授業や研究生活において、様々なアドバイスをくださいました。

また、研究生活に関して、量子ドットラボ・岩本研究室の太田泰友特任准教授、権晋寛特任講師、角田雅弘特任助教、Natalia Morais 特任助教、渡邊克之特任助教、詹文博技術補佐員、男澤宏也シニア協力員、大内瑞和秘書、吉川弘文研究員、土江貴洋研究員

には多大なるご支援を頂きました。感謝申し上げます。

そして、学生として共に研究に励んだ孫蕭蕭氏、浅井翼氏、夏思佳氏に感謝し益々のご活躍を祈念いたします。

最後に、この東京大学大学院修士課程での2年間の生活を支えてくださった両親に深く感謝いたします。

2020年1月29日

青木 伴晋