

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：13501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25870284

研究課題名(和文)近接場を介した励起移動を基にするナノサイズ光電子デバイスの微視的基礎研究

研究課題名(英文)Microscopic study of nano-optoelectronic device based on excitation transfer via near-field optical interaction

研究代表者

内山 和治 (UCHIYAMA, Kazuharu)

山梨大学・総合研究部・助教

研究者番号：70538165

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：光の波長より小さいナノメートルサイズの物質に光を当てた時に発生する微細な光(近接場光)が、情報をどのように伝えるのかを調べた。情報が伝わる舞台である半導体量子井戸(情報が伝わる隙間)の1点に、金のナノ針の針先から情報を注入し、その情報がどのように広がるかを、情報の居場所が分かる針(光ファイバプローブ)でなぞり、まさに目で見えるように観察することを目指した。本研究で得られた知見をもとに、井戸の深さや間隔などを調節することで、近接場光で動く新しい情報機器が生まれることが期待される。

研究成果の概要(英文)：We have investigated excitation transfer via near-field optical interaction, which is generated on illuminated nanometer-scale matter. We measured excitation transfer in semiconductor quantum well with local excitation by a gold nano-rod by using a scanning near-field optical microscope, which visualizes distribution of excitation in the well. This study is essential basis for developing new devices based on near-field optical interaction.

研究分野：ナノ物性

キーワード：近接場光 量子井戸 励起移動

### 1. 研究開始当初の背景

光の波長よりも小さいナノメートルスケールの物質に光が当たると、その物質のまわりにその物質の大きさ程度しみた電場が生まれる。この電場は遠くからでは見えない光であり、近接場光と呼ばれる。近接場光は物質中の電子、フォノンと強い関係を持った光であり、例えば、1つのナノ物質Aの周りに発生した近接場光を、もう1つのナノ物質Bが受け取るかどうかは、物質のサイズや組成など多様な要因の影響を受ける。この近接場光の性質を理解し利用することで、ナノメートルスケールで光によって物質を制御することを始めとする、多様な応用につながると期待できる。また、これまでの研究から、近接場光には、注目するスケールごとに異なる機能を発現する特異な階層構造があることが分かってきており、物理現象から価値に至るまでの脳にも似た機能実現につながる学術上も重要な研究対象である。

我々は山梨大学の共同研究グループとして、実験研究では半導体多重量子井戸構造などの試料作製から、磁気フォトルミネッセンス法によるバルク分光測定、さらに走査型プローブ顕微鏡による微視的光計測まで一貫した実験研究体制を有し、また、理論研究も同一グループで行っている。この研究体制を活用して、近接場光を利用した新しいデバイスの実現に向けて素過程に迫る微視的研究を進めている。

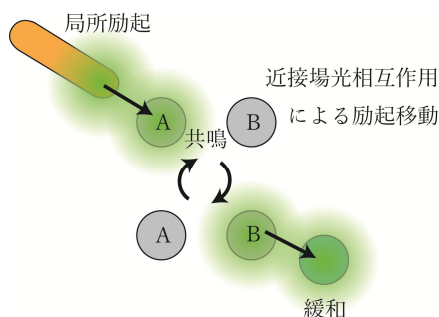


図1 近接場光による励起移動

### 2. 研究の目的

近接場光を介した励起移動の性質を、実空間での計測で明らかにすることを目的とした。特に、電子系を局所励起し、その励起が近接場光を介して伝播し、安定サイトに緩和するまでの一連の過程を観察することを目指した。この観察のためには、近接場光を介した励起移動が起こる電子系、局所励起および緩和先の設定、計測手法の確立、の3点が不可欠である。本研究では、この3点を個別に追求しつつ、研究期間内に全てを同時に満たす系を構築することを目指した。

### 3. 研究の方法

研究目的に記した3つの課題に分けて記述する。

(1) 一つ目の課題は、近接場光を介した励起

移動が起こる電子系の用意である。励起移動のプロセスは、熱ゆらぎ、量子ゆらぎによる移動や、伝搬光を介した移動などが一般的である。近接場光を介した励起移動は、共鳴するエネルギー準位を持つナノ電子系が、光の波長の4分の1程度よりも近接して存在する際に、顕著になる。この条件を満たす構造として、希薄磁性半導体多重量子井戸構造、および量子ドット構造に着目し、その調整を行い、磁気フォトルミネッセンス法と走査型近接場光顕微鏡により励起移動を計測した。

(2) 二つ目の課題は、局所励起の実現である。金ドット、金ナノロッドにプラズマ周波数の光を照射させた際に発生する局所増強電場を利用することを目指し、試料表面への低密度での設置を行い、それが走査型プローブ顕微鏡で計測可能であることを確認した。また、局所入力に困難であった場合の有効な代替手段として、金ナノロッドアレイにより形成される不均一な階層的近接場光構造を励起に応用することを検討した。

(3) 三つ目の課題は、計測手法の確立である。走査型近接場光顕微鏡は、他のプローブ顕微鏡と比較して、特に測定対象へのチューニングが重要となる手法である。本研究を進めるにあたり、当初予定していた、半導体量子井戸構造表面に金属コートをした上での測定ではなく、金属コートなしでの測定の条件を模索した。

### 4. 研究成果

(1) 希薄磁性半導体量子井戸構造間における励起移動の磁気フォトルミネッセンス測定(実験については雑誌論文 参照、背景となる理論については雑誌論文 を参照)

2つの量子井戸が15nmの距離で近接する半導体多重量子井戸について、井戸間励起移動の測定を行った。井戸間距離を15nmとしているため、量子力学的トンネル現象は抑制され、近接場光による励起移動と比べて伝搬光による励起移動は起こりづらい。量子井戸のうちの1つは磁性原子を含んでおり、外部磁場を加えることでゼーマンシフトが起き励起の主体である励起子のエネルギーは低エネルギーにシフトする。この性質を利用して、各井戸の励起子エネルギーの共鳴・非共鳴を制御し、共鳴時のみ近接場光による励起移動が起きるかを調べた。2つの井戸のエネルギーが重なり始めると、励起移動が起こることが確認され、時間分解フォトルミネッセンス測定により、その移動にかかる時間の計測に成功した。時間スペクトルに特異な振動が見られ、LOフォノンを加味した理論との対応を考慮に入れたさらなる研究が求められる。また、励起移動にスピン選択性が見られることから、近接場光による励起移動においてスピンが保存することが示唆される。以上

の成果から、近接場光によるナノスケールでの励起移動は、LO フォノンやスピンなど多様な要素を組み入れることが可能な現象であることが示唆される。

(2) 希薄磁性半導体量子井戸構造における励起子局在サイズ、励起子輸送サイズの走査型近接場光顕微鏡による計測（雑誌論文 参照・学会発表 ， ～ はこの成果を発表）

近接場光による励起移動を、近接場光顕微鏡により微視的に計測した。成果(1)の計測手法で励起移動が確認された半導体多重量子井戸試料（井戸間距離 50 nm）について、励起子の空間分布の磁場依存変化を走査型近接場光顕微鏡による近接場光像を通して計測した。励起子局在のサイズは数十 nm から数 100nm で、磁場に依存することが分かった。これは、井戸構造の変化と、熱ゆらぎおよび井戸内近接場光作用の効果の関係で説明可能と考えられる。各井戸の励起子密度を計測し、磁場変化を解析したところ、2つの井戸間の励起移動が特定の磁場で起きていること、さらにその励起移動が起きた際の近接場光像から、井戸間励起移動が、100nm 程度の近接した範囲で起きていることが分かり、この励起移動が近接場光によるものである確証が得られた。以上の成果から、近接場光による励起移動が外部電磁場で非配線で制御可能なことが明らかになった。また典型サイズは数十 nm であり、励起移動との組み合わせで、1 マイクロメートルよりも小さいスケールに、機能素子を実現することが可能である。

(3) 希薄磁性半導体多重量子井戸構造表面での金属コート無しでの STM 援用近接場計測の条件確立

希薄磁性半導体多重量子井戸構造に金ナノロッドを設置し局所励起下での計測を行う準備として、走査型トンネル顕微鏡向けに試料表面につけてある金属薄膜の一部を除去して、その境界での走査型トンネル顕微鏡計測を試みた。金ナノロッドによる局所励起の影響をクリアにみるためには、金属コートは望ましくなく、金属膜から極近傍での計測であれば電気抵抗が許容範囲となり計測可能かどうかを確認することが目的であった。この試験的計測の中で、特定の波長のレーザー光を照射することで、金属膜から数マイクロメートル以上離れても走査型トンネル顕微鏡による計測が可能になることが明らかになった。この成果により、当初予定していた、金ナノロッドと最表面金属薄膜との間の絶縁膜形成などのプロセスが簡素化された。近接場光計測の結果は、金属コート除去の効果で、成果(2)までの結果と比べてより高感度高分解能であった。この計測手法により、量子井戸の電子情報を走査型トンネル顕微

鏡により捉え、かつ走査型近接場光顕微鏡で光学特性を捉えるというナノスケールでの電子光子分光の可能性がひらかれた。

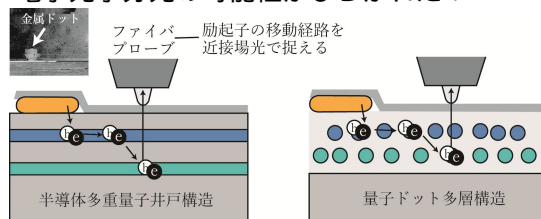


図2 作製した試料構造と励起子移動のイメージ 左は半導体多重量子井戸構造に金ナノロッドを配置したもの 右は量子ドットを積層した試料の上に金ナノロッドを配置したもの

(4) 半導体量子ドット積層構造の試作とフォトルミネッセンス測定による評価

室温で発光する半導体量子ドットを積層した試料を作製し、フォトルミネッセンス測定により励起移動を確認した。成果(1)～(3)で用いた試料は極低温での計測を必要とし、液体ヘリウムが入手困難であった時期は計測が困難になってしまった。そのため、室温で発光する試料の作製を行った。発光波長と吸収波長の組み合わせを考慮して、2種類以上の量子ドットを数十 nm 程度の厚みで積層させた。励起移動が起きているかどうかをフォトルミネッセンス法により確認した。層の順序、層厚や層間隔、また量子ドットを混合させた層を作るなど、柔軟に試料構造を設計作製出来る利点がある一方で、レーザー光励起による褪色現象が見られ、短時間での計測が必要となることが分かった。金ナノロッドとの積層化に向けて、金膜上での積層も試み、量子ドットの発光スペクトルに、金による吸収・増強の効果が現れることを確認した。

(5) 金ナノロッドの試料表面への低密度散布による局所励起サイトの設置と近接場光計測

成果(3)で作製した量子ドット積層試料に金ドットを積層し、局所励起を有する量子井戸系を試作した。金ナノロッド間隔は、各金ナノロッドからの励起の移動が重なり合わないよう、1 マイクロメートル程度とした。走査型電子顕微鏡により金ナノロッドの面密度を確認し、さらに走査型トンネル顕微鏡法で表面上の金ナノロッドの位置をトポ像から特定できることを確認した。作製した試料の上に白金を 10nm 程度コートした試料について、走査型近接場光顕微鏡による計測を行った。金ナノロッドの共鳴波長 532nm の光を照射し、金ナノロッドの先端に強く発生する近接場光を励起源として、励起移動の奇跡を量子ドットの発光により捉える計画であ

ったが、全量子ドットが532nmで励起される性質を持っており、局所励起由来の発光との区別をするまでには至らなかった。金ナノロッドが着脱可能であれば、比較により区別が可能と考えられ、プローブによる金ナノロッドの位置変更技術の検討を進めて今後の研究につなげたい。

(6) 局所励起への金ナノロッドアレイ試料の3次元近接場光構造の応用の検討(学会発表にて発表)

成果(5)では金ナノロッド単体を局所励起源として用いたが、金ナノロッドを並べた構造(金ナノロッドアレイ構造)の分極場を3次元ナノスケール高空間分解能で計測し、高さ(階層)ごとに異なる局所励起を加えるための基礎的知見を得た。また、この試料の表面での局所電流電圧特性に特異な光依存が見られ、電子デバイスと、近接場光デバイスの橋渡しになりうる構造であることが明らかになった。金ナノロッドの密度や間隔を調節した試料の作製に成功し、局所励起の空間的不均一性の制御も可能となった。この成果は、ナノスケールで完結した、複雑機能素子の実現に寄与する。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

Kazuharu Uchiyama, Satoru Kubota, Takashi Matsumoto, Kiyoshi Kobayashi, Hirokazu Hori, Magnetic-field-dependent excitation transfer in quantum wells of diluted magnetic semiconductor, Applied Physics A, 査読有, Vol. 115, 2014, p. 99-104,

DOI 10.1007/s00339-013-8005-8

Takayuki Suwa, Akira Ishikawa, Kazuharu Uchiyama, Takashi Matsumoto, Hirokazu Hori, Kiyoshi Kobayashi, Coherent-phonon-assisted excitation transfer via optical near fields in dilute magnetic semiconductor nanostructures, Applied Physics A, Vol. 115, p. 39-43, 2014, 査読有

DOI 10.1007/s00339-013-7929-3

Takashi Matsumoto, Fumiaki Iwasaki, Shuhei Konaka, Masao Hishikawa, Sakyo Fukasawa, Tsutomu Muranaka, Yoichi Nabetani, Akira Ishikawa, Kazuharu Uchiyama, Kiyoshi Kobayashi, Hirokazu Hori, Energy relaxation process in exciton transfer between (Zn, Cd, Mn)Se and (Zn, Cd)Se quantum wells, Phys. Status Solidi C, Vol. 11, p. 1244-1247 (2014) 査読有

DOI: 10.1002/pssc.201300599

[学会発表](計 5 件)

Kazuharu Uchiyama, Naoki Nishikawa, Satoru Kubota, Takashi Matsumoto, Kiyoshi Kobayashi, Hirokazu Hori, Near-Field Optical and Electronic Processes in Nano-Optoelectronic Functional Layered System, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO10), 北海道(函館市国際水産・海洋総合研究センター)2015年7月10日

Naoki Nishikawa, Kazuharu Uchiyama, Satoru Kubota, Kiyoshi Kobayashi, Hirokazu Hori, Optical Near-Field Modulation of Current-Voltage Characteristics in Double Tunneling Barrier System, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO10), 北海道(函館市国際水産・海洋総合研究センター)2015年7月9日

内山 和治, 堀 裕和, 小林 潔, 松本 俊, ナノ光電子機能における局所電磁相互作用と電子系の励起輸送過程の可視化と解析, 2015年電子情報通信学会総合大会, 滋賀県(立命館大学草津キャンパス)2015年3月12日, 招待講演

内山 和治, 西川 直樹, 久保田 悟, 松本 俊, 小林 潔, 堀 裕和, 希薄磁性半導体二重量子井戸における近接場光相互作用によるスピン選択的励起移動, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道(北海道大学札幌キャンパス)2014年9月18日

Kazuharu Uchiyama, Satoru Kubota, Takashi Matsumoto, Kiyoshi Kobayashi, Hirokazu Hori, Magnetic-field-dependent excitation transfer in quantum wells of diluted magnetic semiconductor, The 9th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO9), Singapore, 2013年7月5日

[その他]

ホームページ等

<http://www.szr.yamanashi.ac.jp/lab/hori/>

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

内山 和治 (UCHIYAMA, Kazuharu)

山梨大学・大学院総合研究部・助教

研究者番号: 70538165