

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：13501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04599

研究課題名(和文) 時間分解多探針SNOMを用いた光励起キャリア伝搬の観察

研究課題名(英文) Observation of photoexcited carrier propagation using time-resolved multi-probe SNOM

研究代表者

酒井 優 (SAKAI, Masaru)

山梨大学・大学院総合研究部・准教授

研究者番号：10371709

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：半導体量子井戸中に生成された光励起キャリアが量子井戸中を伝搬・拡散するメカニズムを明らかにすることを目的に、実験と理論の両面から研究を行った。実験面では、空間・時間の両面における高分解能測定を可能とする時間分解多探針近接場光学顕微鏡の開発を行い、InGaN量子井戸中における光励起キャリアの拡散の様子を詳細に観察した。理論面では、拡散方程式へ局所的な励起・発光過程を取り入れた現象論的解析モデルを構築し、実験結果との比較からキャリア拡散において重要なパラメータを同定した。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to clarify the propagation and/or diffusion process of photoexcited carriers generated in a semiconductor quantum well. We carried out both experimental and theoretical study. Experimentally, we developed a time-resolved multi-probe scanning near-field optical microscope that enables high resolution measurement in both spatial and time, and observed diffusion of photoexcited carriers in InGaN quantum well in detail. In theory, we constructed a phenomenological analytical model incorporating local excitation and luminescence processes into diffusion equations and identified important parameters in carrier diffusion from comparison with experimental results.

研究分野：ナノフォトニクス

キーワード：近接場光学顕微鏡 時間分解測定 キャリアダイナミクス

1. 研究開始当初の背景

近年の半導体光デバイスは、小型化が進むにつれ、原子レベルの欠陥やドーパントの分布などによる構造の不均一さがマクロな機能に与える影響が無視できなくなってきた。さらに、これまでのデバイスは半導体中に生成されたキャリアの集団的な振る舞いを利用しているが、個々のキャリアが持つ性質を理解しそれらの相関を利用できれば、全く新しい機能を持ったデバイスが実現できると期待されている。従って、半導体量子構造中におけるキャリアダイナミクスを実空間かつ実時間で明らかにすることができれば、既存デバイスの評価のみならず、物理的興味への探求、さらには新しい機能性デバイスの創生へ向けた本質的に重要な課題の解決につながる。

半導体中に生成される光励起キャリアの空間的分布を明らかにするためには、①局所領域にキャリアを生成し、②キャリアが伝搬した後の結果を局所観察する必要がある。しかし、これまで局所領域へのナノ励起やナノ観察を担ってきた近接場光学顕微鏡 (Scanning Near-field Optical Microscope; SNOM) は、光プローブが1本しかなかったため、①と②を独立して行うことは出来なかった。これに対し我々は、2本の光プローブ (探針) を局所領域に近接可能な独自の多探針 SNOM の構築を進めてきた (図1)。励起には銀コートした金属探針を用いてプローブ先端の局所電場増強効果により局所励起を行い、観察には光ファイバ先端を先鋭化して作製した開口型プローブを用いて局所観察を行う構成である。プローブとサンプル間の距離は、トンネル電流検知方式を用いてフィードバック制御している。本装置に時間分解測定を組み合わせることで、さらにキャリア伝搬の時間的振る舞いや過渡現象を明らかにできると考えた。

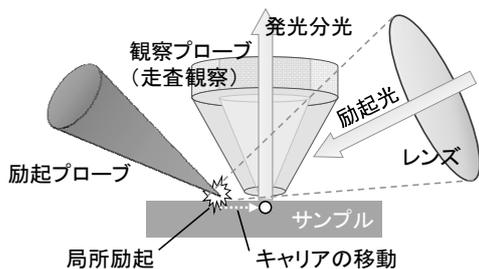


図1 多探針 SNOM の概略図

2. 研究の目的

本研究では、半導体中に生成された光励起キャリアが伝搬するようすを、空間と時間の両面において高分解能観察し明らかにすることを目的とする。観察には、我々が開発を進めてきたナノスケールでキャリアの生成と観察を独立に行うことが可能な多探針 SNOM に、新しく時間分解観察システムを組

み合わせて「時間分解多探針 SNOM」を構築する。本装置での観察によって半導体量子構造中の光励起キャリアの伝搬を実験的に可視化すると共に、伝搬メカニズムにおいて重要な要素を理論計算により明らかにする。光励起キャリアの量子的性質や相互作用を利用した新しい機能性デバイスの創生も視野に入れつつ、これまで十分に明らかになっていなかった光励起キャリアの時空間ダイナミクスの解明を目指す。

3. 研究の方法

(1) 本研究ではまず、図1において金属探針を用いていた励起プローブを開口型光ファイバプローブに置き換える。概略図を図2に示す。開口型プローブでは、空間分解能は開口径のみに依存するため、この置き換えによって光励起キャリアを生成する局所励起を高分解能で実現できる。まずはこの配置において半導体量子井戸内のエネルギーポテンシャル分布のマッピングを行う。光励起キャリアの井戸内での伝搬において、量子井戸中のエネルギーポテンシャルの揺らぎは重要な要素である。生成されたキャリアはより低いポテンシャルに向かって流れていくと考えられるため、まずはエネルギーポテンシャルの空間分布を明らかにし、その上で2プローブ測定によってキャリア拡散後の発光分布のイメージングを行う。

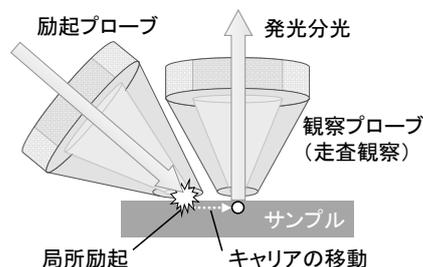


図2 開口型光ファイバプローブ2本で動作する多探針 SNOM の概略図

(2) ポテンシャル分布及びキャリアの拡散が確認されたら、時間分解測定を行う。量子井戸中を伝搬するキャリアの伝搬距離、伝搬速度、緩和時間との関係を時間軸上で詳細に分析する。並行して行う理論計算では、量子ボルツマン方程式と半導体ルミネセンス方程式をもとにした微視的理論によって、光励起キャリアの伝搬を量子力学的に解析する。量子性、光を介した伝搬効果、双極子相互作用、ポラリトンとしての寄与など、キャリアダイナミクスにおいて重要となる要素を理論的に明らかにする。

4. 研究成果

(1) 図2に示すように開口型光ファイバプローブ2本を用いて近接領域で測定を行う場合、ファイバ同士が干渉しないようにプローブの先端を鋭角にする必要がある。そこで、本研究では多探針 SNOM に適した光ファイバ

プローブ形状の最適化を行った。プローブには純粋石英コアのシングルモードファイバを用い、メニスカス法による HF エッチングで先端を先鋭化することで、ペンシル型の光ファイバプローブを作製した。典型的な光ファイバプローブ先端の電子顕微鏡写真を図 3 に示す。これに Ar イオンスパッタにより厚さ 100nm の金(Au)膜コーティングを行い、押し付け法により直径 100nm 程度の開口を形成したものを光ファイバプローブとして測定に用いた。

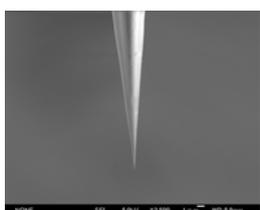


図 3 ペンシル型光ファイバプローブの電子顕微鏡写真

(2) 作製した光プローブを用いて、InGaN 量子井戸の SNOM 観察を行った。図 4 に 1 本の光プローブで C-mode (collection mode) 測定を行った際の測定結果を示す。8 μm 四方の領域について 100nm ステップで 81 \times 81 点の分光測定を行った。各点における InGaN の発光スペクトルは単峰性ピークを持っており、図 4(a)は各点における発光ピークの光子エネルギー、図 4(b)は各点における発光スペクトルの積分強度をマッピングしたものである。図 4 より、発光ピークエネルギーは InGaN 量子井戸のポテンシャル分布を反映しており、励起されたキャリアがポテンシャルの低い領域において強く発光していることが確認された。

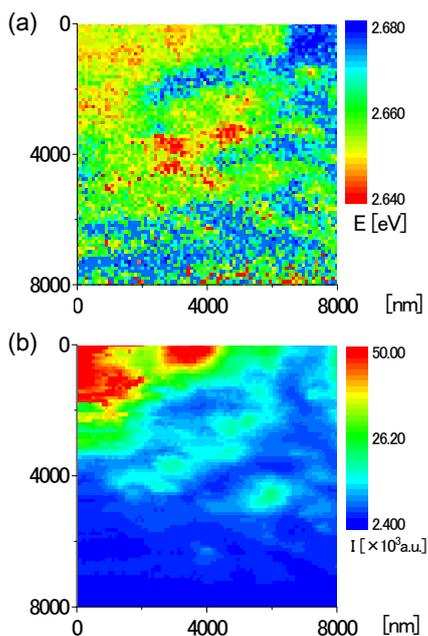


図 4 C-mode による SNOM 測定結果

(3) 続いて、2プローブによる測定を行った。1本のプローブで局所励起を行い (=励起プローブ)、もう1本のプローブで局所観察を行った (=観察プローブ)。2プローブ測定を行うにあたっては、まず1本のプローブで C-mode 測定を行ってポテンシャル分布を見積った上で、2プローブ測定を行う。これにより、局所励起によって生成されたキャリアの伝搬/拡散過程とポテンシャル揺らぎの相関を実験的に明らかにすることが出来る。図 5(a)に C-mode 測定で得られたポテンシャル分布を示す。図中のプローブの絵の位置に励起プローブをセットし、図中の黒線枠内を観察プローブで走査した際の2プローブ測定の発光強度イメージを図 5(b)に示す。励起プローブによって生成されたキャリアは、エネルギーポテンシャルの低い方に移動した後に発光することが明らかとなった。また、エネルギーポテンシャルの高い部分は障壁となり、光励起キャリアは障壁の向こう側には移動できないことも測定結果に現れている。

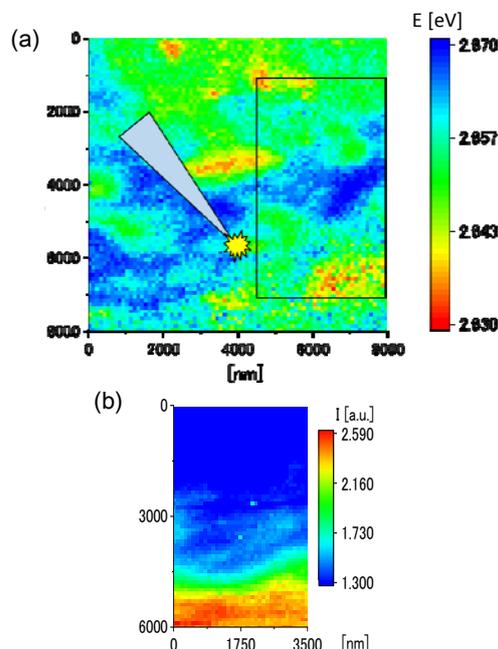


図 5 2プローブによる SNOM 測定結果

(4) 2プローブ測定によって明らかとなった光励起キャリアの拡散について、時間分解測定を行った。図 6(a)に C-mode 測定によって得られたポテンシャル分布のイメージ、図中の★の位置に励起プローブをセットし、●a~c の位置に観察プローブをセットして各点における発光の時間分解測定を行った結果を図 6(b)に示す。図 6(b)より、励起点からの距離が離れるに従って発光の立ち上がり時刻が遅くなっていることがわかった。これは光励起キャリアの拡散速度が現れていると考えられ、立ち上がり時刻の比較より拡散速度が約 10^4 m/s であることが見積られた。また、図 6(b)の a 点のグラフに対して黒線で示したように、発光の緩和過程が 2 成分に分けられることがわかる。これは、キャリアの拡散過

程と発光過程という異なるメカニズムにおける時定数が絡み合った結果であり、詳細については今後の測定データの蓄積を通じて明らかにしていく。また、本測定で見積られた拡散速度と SNOM 測定における測定領域を加味すると、測定の時間分解能（今回の測定では約 80ps）が十分でないことも明らかとなったため、時間分解能の向上も今後の課題である。

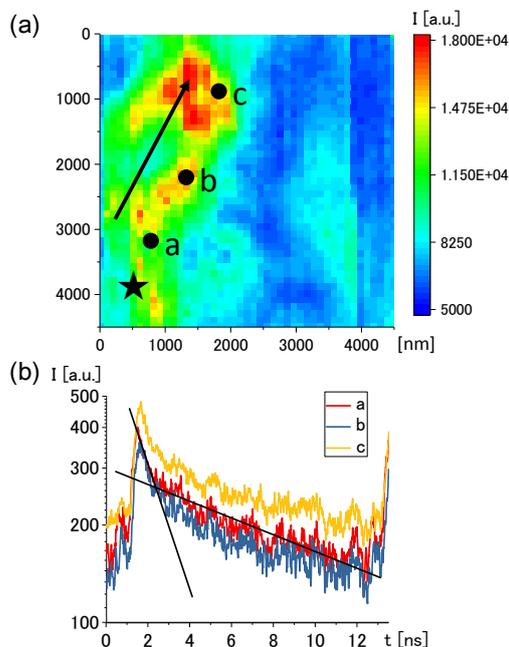


図 6 SNOM による時間分解測定結果

(5) 理論面では、拡散方程式へ局所的な励起・発光過程を取り入れた現象論的解析モデルを構築した。発光エネルギーの実空間分布を励起子バンド端エネルギー分布として導入し、励起子が感じる空間的に不均一なポテンシャル分布とする。その不均一ポテンシャル中における励起子拡散を数値的に再現し、2プローブによる局所励起・観察で得られた発光時間波形への効果を評価した。その結果、発光の立ち上がり時間に不均一ポテンシャル中の励起子拡散が反映されることが分かった。また、通常の励起子再結合過程に加え、拡散過程も局所的な励起子密度の減少へ関係するため、局所観察された励起子発光が2種類の時定数で減衰することも分かった。

次に、励起子の量子性など微視的性質の効果を議論するため、微視的モデルから半導体ルミネセンスボルツマン方程式を導出し全量子論的解析モデルの基本的枠組を構築した。その全量子論的モデルでは、局所的な光学応答を半導体ルミネセンス方程式で記述し、空間伝搬とバンド内緩和をボルツマン方程式で記述する。また、図 7 のように、励起子の空間伝搬とバンド内緩和を反映した時空間分解発光スペクトルを評価できる。図 7 は、バンド間励起で局所的に形成された励起子初期分布からポテンシャルの低い領域へ励起子が束縛されるまでの時空間分解発

光スペクトルの時間変化である。図中の実線は不均一ポテンシャル分布であり、発光強度はその実線に沿ってポテンシャルの低い領域へ空間的に拡がる様子が見て取れる。

今後は、極低温での実験実施等へ向けて、全量子論的モデルにより励起子の非古典的拡散メカニズムの解明を目指す。

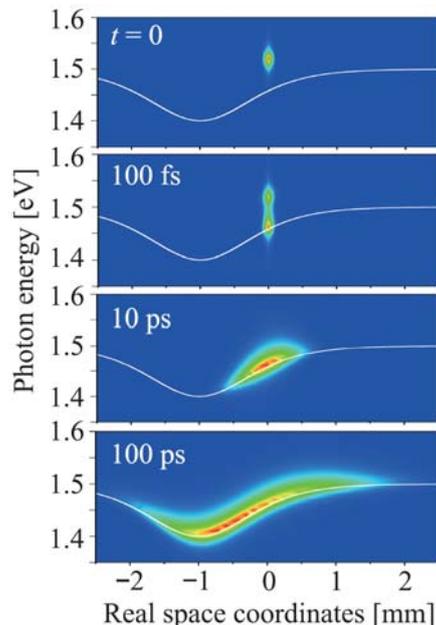


図 7 時空間分解発光スペクトル

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 13 件)

- ① A. Ishikawa, R. Okada, K. Uchiyama, H. Hori, K. Kobayashi, Quantum Coherent Dynamics Enhanced by Synchronization with Nonequilibrium Environments, Journal of the Physical Society of Japan 87, pp. 054001/1-10 (2018), DOI: 107566/JPSJ. 87. 054001. (査読有り)
- ② K. Kobayashi and A. Ishikawa, Quantum coherent nanodynamics by the interplay of localized photons, electron-hole pairs, and phonons, Progress in Quantum Electronics, in press (2018). (査読有り)
- ③ A. Syouji, S. Saito, A. Otomo, Creation of Excitons Excited by Light with a Spatial Mode, Journal of the Physical Society of Japan 86, 124720 (2017), DOI: 10. 7566/JPSJ. 86. 124720. (査読有り)
- ④ R. Sezaki, A. Ishikawa, K. Miyajima, K. Kobayashi, Theory of superfluorescence-laser crossover in a cavity QED system, Journal of Applied Physics A 123, 690/1-9 (2017),

DOI: 10.1007/s00339-017-1301-y. (査読有り)

- ⑤ T. Kouno, M. Sakai, K. Kishino, A. Kikuchi, N. Umehara, K. Hara, Crystal structure and optical properties of a high-density InGaN nanoumbrella array as a white light source without phosphors, *NPG Asia Materials* 8, e289/1-7 (2016), DOI: 10.1038/am.2016.99. (査読有り)
- ⑥ A. Ishikawa, K. Miyajima, M. Ashida, T. Itoh, H. Ishihara, Theory of superfluorescence in highly inhomogeneous quantum systems, *Journal of the Physical Society of Japan* 85, 034703/1-9 (2016), DOI: 10.7566/JPSJ.85.034703. (査読有り)
- ⑦ T. Tamaya, A. Ishikawa, T. Ogawa, K. Tanaka, Diabatic Mechanisms of Higher-Order Harmonic Generation in Solid-State Materials under High-Intensity Electric Fields, *Physical Review Letters* 116, 016601/1-5 (2016), DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.016601. (査読有り)
- ⑧ T. Kouno, M. Sakai, K. Kishino, K. Hara, Excitation area dependence of lasing modes in thin hexagonal GaN microdisks, *Japanese Journal of Applied Physics* 55, 01AC03 (2016), DOI: 10.7567/JJAP.55.01AC03. (査読有り)

(他 5 件)

[学会発表] (計 48 件)

- ① 栗原 和也, 岩本 亘平, 酒井 優, 石川 陽, 堀 裕和, 岸野 克巳, 小林 潔, 近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明IV, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018.
- ② 早川 祐輔, 石川 陽, 小林 潔, 空間的に不均一な系における時空間キャリアダイナミクス, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018.
- ③ 東海林 篤, 齋藤 伸吾, 大友 明, 空間モードを持った光による励起子生成, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018.
- ④ 岩本 亘平, 栗原 和也, 酒井 優, 石川 陽, 堀 裕和, 岸野 克巳, 小林 潔, 近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明, 日本光学会ナノオプティクス研究グループ第 24 回研究討論会, 2017.
- ⑤ 矢崎 智昌, 岡田 遼, 石川 陽, 小林 潔, 光近接場量子ダイナミクスにおける Non-Markovian 過程の理論, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 2017.
- ⑥ 岡田 遼, 矢崎 智昌, 内山 和治, 堀 裕和, 石川 陽, 小林 潔, 局所環境支援励起移動ダイナミクス II, 第 78 回応

用物理学会秋季学術講演会, 2017.

- ⑦ 岩本 亘平, 酒井 優, 石川 陽, 堀 裕和, 岸野 克巳, 小林 潔, 近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明III, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 2017.
- ⑧ A. Syouji, S. Saito, A. Otomo, Beyond plane wave interaction in exciton creation;excitation by light with a spatial mode, The 11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNF011), 2017.
- ⑨ T. Yazaki, R. Okada, A. Ishikawa, K. Kobayashi, Foundation of optical near fields from a quantum dynamics viewpoint, The 11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNF011), 2017.
- ⑩ R. Okada, T. Yazaki, K. Uchiyama, H. Hori, A. Ishikawa, K. Kobayashi, Non-resonant collective quantum dynamics, The 11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNF011), 2017.
- ⑪ 岩本 亘平, 酒井 優, 石川 陽, 堀 裕和, 岸野 克巳, 小林 潔, 近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明II, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017.
- ⑫ 岩本 亘平, 酒井 優, 石川 陽, 堀 裕和, 岸野 克巳, 小林 潔, 近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016.
- ⑬ K. Iwamoto, M. Sakai, T. Kougo, K. Uchiyama, K. Kishino, H. Hori, A. Ishikawa, and K. Kobayashi, Experimental and Theoretical Investigation of Carrier Dynamics after Local Excitation with Two-Probe SNOM, The 14th International Conference of Near-Field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NF014), 2016.
- ⑭ R. Okada, T. Yazaki, K. Uchiyama, H. Hori, A. Ishikawa, and K. Kobayashi, Collective excitation transfer dynamics due to locally non-thermal phonon environment, The 14th International Conference of Near-Field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NF014), 2016.
- ⑮ 東海林 篤, 齋藤 伸吾, 大友 明, 光の空間モードによる空間モードをもった励起子の生成, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016.
- ⑯ A. Syouji, K. Fukushima, H. Ishihara, Enhancement of the diffraction light intensity imbalance using two dimensional photonic crystals, The

10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNF010), 2015.

- ⑰ M. Sakai, Y. Miwa, A. Syouji, A. Ishikawa, K. Uchiyama, K. Kobayashi, T. Matsumoto, K. Kishino, H. Hori, Development of Multi-Probe SNOM for Investigation of Carrier Dynamics in Semiconductor Quantum Wells, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNF010), 2015.
- ⑱ A. Ishikawa, M. Sakai, K. Iwamoto, T. Kougo, Y. Miwa, K. Uchiyama, H. Hori, K. Kobayashi Theory of Spatiotemporal Carrier Dynamics in a Semiconductor Quantum Well, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNF010), 2015.

(他 30 件)

[その他] ホームページ等

- ① 山梨大学研究者総覧 - 酒井 優
<http://nerdb-re.yamanashi.ac.jp/Profiles/337/0033680/profile.html>
- ② 山梨大学研究者総覧 - 東海林 篤
<http://nerdb-re.yamanashi.ac.jp/Profiles/337/0033681/profile.html>
- ③ 山梨大学研究者総覧 - 石川 陽
<http://nerdb-re.yamanashi.ac.jp/Profiles/337/0033682/profile.html>
- ④ 山梨大学工学部先端材料理工学科 - 酒井研究室
<http://www.eng.yamanashi.ac.jp/laboratory/sakaims/>
- ⑤ 山梨大学工学部先端材料理工学科 - 石川研究室
<http://www.eng.yamanashi.ac.jp/laboratory/aishikawa/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

酒井 優 (SAKAI, Masaru)
山梨大学・大学院総合研究部・准教授
研究者番号：10371709

(2) 研究分担者

東海林 篤 (SYOUJI, Atushi)
山梨大学・大学院総合研究部・准教授
研究者番号：40392724

石川 陽 (ISHIKAWA, Akira)
山梨大学・大学院総合研究部・准教授
研究者番号：10508807