

機関番号：12701
 研究種目：基盤研究(C)
 研究期間：2008 ～ 2010
 課題番号：20510120
 研究課題名（和文） ポリマー分散型量子ドットを内包するマイクロキャビティ構造の研究
 研究課題名（英文） Study on the micro cavity structure which contains a polymer dispersion type quantum dot
 研究代表者
 向井 剛輝（ MUKAI KOKI ）
 横浜国立大学・工学研究院・教授
 研究者番号：10361867

研究成果の概要（和文）：ポリマー分散型量子ドットを内包するポリマー製マイクロキャビティの製造技術の検討を行い、パッシブ・デバイスの試作に成功した。光共振器性能の評価を行い、シミュレーションとほぼ一致する結果を得た。量子ドット合成技術の開発にも着手し、市販品よりも構造対称性が高く、従って偏光等方性の高い発光をする量子ドットを実現した。X線を用いた、量子ドットの簡便な構造評価技術の開発にも成功した。化合物半導体制のアクティブ・デバイスを試作し、共振器性能のマイクロマシン方式による操作を実現した。

研究成果の概要（英文）：We examined the production technology of micro cavity structure which contains a polymer dispersion type quantum dot, and succeeded in the manufacture of the passive device. We evaluated the optical resonator performance and obtained the result which agrees with simulation. We started the development of quantum dot synthetic technique and realized the quantum dot which has symmetric structure more than the commercial one and therefore emits light of high polarization isotropy. We developed the simple and easy method to evaluate quantum dot structure using X-rays. We produced an active device made by a compound semiconductor and realized the control of the resonator performance by the micromachine method.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学、マイクロ・ナノデバイス

キーワード：量子ドット、マイクロ・ナノデバイス、マイクロキャビティ、ポリマー分散型、フォトニックドット、エアブリッジ構造、ポリマー光導波路、量子計算

1. 研究開始当初の背景

【本研究の背景】

21世紀のICT (Information and Communication Technology) 社会においては、極めて大容量・高機能な情報処理技術が必要となると考えられる。そのため既存技術

のパラダイムシフトが求められており、そうした中で、実用化まではまだ時間がかかるが、有力な技術の一つとして期待をかけられているのが、量子情報処理技術である。量子情報処理を行なうため、NMR (Nuclear Magnetic Resonance) やレーザー冷却によ

るイオントラップなど様々な手段が提案されており、その中でも、固体素子化を念頭においたものとして、半導体自己形成量子ドットを用いた単一光子発生器が、特に量子通信の分野で成果を挙げている (T. Miyazawa 他, Jpn. J. Appl. Phys. 44, L620 (2005)など)。単一光子発生器は量子情報処理を行なうための基本技術であり、量子通信用途のみならず、量子計算機にも用いることができるものである。

半導体自己形成量子ドットを用いた従来の典型的な単一光子発生器は、VCSEL (Vertical Cavity Surface Emitting Laser) の製造技術によって作製した垂直マイクロキャビティ構造中に、量子ドットを内包させたものである。これによって、量子情報を含んだ単一光子を、素子上方の空間に向けて発生できる。しかしこれを量子計算機に用いようとする場合、光の射出方向が上方であるという原理的な制約によって、固体集積回路化への具体的な道筋は見えていない。また、光子発生源として半導体自己形成量子ドットを、更に反射鏡として半導体多層膜ミラーを用いるため、高度な作製技術と長い結晶成長時間が必要である。更に多層膜ミラーは点光源からの単一波長光に対しては反射率が不均一 (3次元的な方向によっては不十分) であり、点光源とみなせる量子ドットからの光を反射するには適していない、などの問題点を有している。

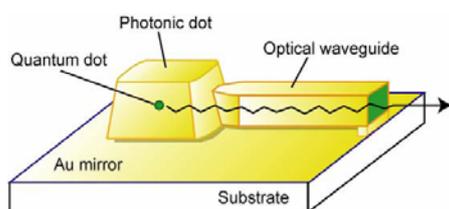


図1 検討する構造 (アクティブ・デバイス)

そこで我々はこれまで、従来の単一光子発生器の問題点を解消すべく、図1に示した単一光子発生器の構造を提案し、半導体自己形成量子ドットとリソグラフィ技術によって実際にデバイスを作製して、動作を検証してきた (K. Mukai et al., J. Cryst. Growth 301-302, 984 (2007).他)。本デバイスの光子放出確率の制御方法には、マイクロキャビティと光導波路との光結合効率の制御方法による、3通りのバリエーションがある。光導波路をカンチレバーとして併用して基板との物理的な距離を変化させるマイクロマシン方式を第1候補として、この他に、下方の半導体多層膜に電流を流すことによるキャリアプラズマ効果によって光の感じる実効的なサイズを変化させるもの、また、ヒーターに素子を接触させ温度を変化させること

で量子ドットの発光波長を変化させる方法がある。マイクロマシン方式は、すでにVCSELで実績のある方法であり、波長可変幅が100nmと十分な幅が見込めることが知られている。我々はこれまで、作製も容易で、光結合の変化のための波長可変幅も広い (但し制御に時間がかかるため実用的ではない)、ヒーターによる温度制御方式によるデバイス構造を、化合物半導体のリソグラフィ技術によって試作した。その結果、10度程度の温度変化で量子ドットからの光がキャビティと結合不全となり、結果的に光放出のOn/Off制御できる可能性を示した。引き続き、化合物半導体構造でエアーブリッジ構造を実現し、マイクロマシン方式による検討を継続している。もし、これらのデバイスを、高度なエピタキシャル成長や半導体リソグラフィ技術を介することなしに、既に市販が開始されたポリマー分散型量子ドットを用いて、ポリマー製の単一光子発生器が実現できれば、試作の容易性や価格面からの将来性によって、当該分野に与えるインパクトは非常に大きいものと考えられる。

2. 研究の目的

本研究は、光導波路を通して単一光子を基板面内に放出するプレーナー型構造を持ち、安価に入手できるポリマー分散型量子ドットを光源として有し、キャビティを構成するミラーとして金膜を用いた、ポリマー製単一光子発生器を実現し、固体集積化が可能な量子計算機の実現を目指して、そのための基盤技術を構築することを目的とした。そのために、電子ビーム描画を用いてポリマーによるマイクロキャビティ構造を作製し、そのデバイスの光子発生器としての基本性能、及び光子放出確率の制御可能性の確認を目指した。尚、デバイス構造としては、エアーブリッジ構造によるマイクロマシン方式を採用することとした。

3. 研究の方法

まず、基本的な試作・設計技術の構築を進め、ポリマー製のマイクロ共振器構造を実現する。この際、1.3ミクロン付近で発光する市販のポリマー分散型PbS量子ドットを光源として用い、光導波路材料には光素子の構成材料としてこれまで実績があるPMMA (polymethyl methacrylate) を用いる。更に、デバイスの機能を評価するとともに、新たに明らかになるであろう諸問題に対応することとした。具体的には、以下のサブテーマを掲げて研究を進めた。

(1) デバイス試作のための基本技術の構築

本デバイスの基本構造を PMMA で作製する技術を構築する。具体的には、多層構造作製によるポリマー・エアブリッジ構造の実現と、それに引き続いて量子ドットを封入したマイクロキャビティ構造の実現、の2段階の目標を掲げた。我々が目指すデバイス構造は、図1のアクティブ・デバイス構造の他に、図2に示すような、2本の導波路がマイクロキャビティに結合したパッシブ・デバイス構造がある。

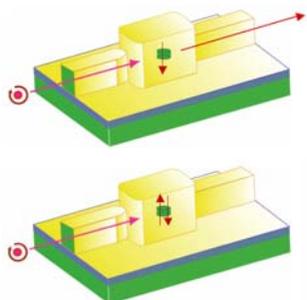


図2 パッシブ・デバイス構造

この構造は、円偏光を持つ光子が量子ドット中に励起する電子スピン方向の一意性を利用し、連続する同一円偏光の2光子を吸収できないことを用いて、演算動作を実現することを意図している。まずは、比較的作製しやすいこの両持ち梁構造の作製によって、技術の完成度を確かめながら試作を進め、最終的なアクティブデバイス構造の試作技術へと発展させる。

(2) デバイス構造の設計

3次元 FDTD (Finite-difference time-domain method) 法をベースとするシミュレータによって光学特性を明らかにし、具体的なデバイス構造を設計する。試作技術の開発状況、すなわち例えば描画・現像後のエッジ形状の精度や、現実の立体構造等を構造設計にフィードバックし、できるだけ現実的な設計を進める。ここで使用する予定のシミュレータは、これまで半導体構造での共振器設計における実績があり、本サブテーマの検討を進めるのに際して、技術上の大きな問題は発生しないと考えている。アクティブ・デバイスとパッシブ・デバイスの両方について、検討することになる。

(3) フォトルミネッセンスによる光共振器性能の評価

本デバイスがマイクロキャビティとして機能すれば、発光スペクトルが大幅な狭線化を起こすはずであり、初期的な評価手段として、この狭線化をフォトルミネッセンス測定によって確認する。具体的には、同一サンプルにおける、マイクロキャビティ構造部分からの横方向への発光と、それ以外の上方向への

発光を測定・比較することで、試作デバイスの完成度を評価する。

(4) 光ファイバー結合系による光共振器性能の評価

パッシブ・デバイス構造について、図3に示すような In/Out の光ファイバー結合を有する光学評価系を構築し、光透過スペクトルの評価を行う。(3)のフォトルミネッセンス特性は、マイクロキャビティの共振器性能と、それに内包された量子ドットの発光特性との重ね合わせであるが、ポリマー分散型量子ドットの発光波長には大きな分布があるため、内包された量子ドットの正確な発光特性は未知である。透過波長特性によって、精密な光共振器性能を知ることができる。その結果を試作技術へフィードバックすることにより、より高度なデバイス開発ができるようになる。

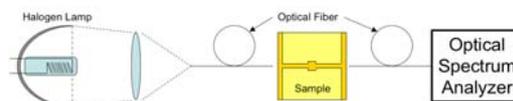


図3 光ファイバー結合評価系

(5) 電界印加によるデバイスの操作

マイクロキャビティ部分と基板部分に電圧を印加し、静電的な引力及び斥力によってマイクロキャビティ部分と基板部分との距離を変え、吸収・反射波長の操作を実現するための構造を、試作・検討する。まず、両持ち梁構造を持つパッシブ・デバイスを検討するデバイスの実現の為には、電圧印加部分の絶縁のため、金膜のパターンニング形状や、金膜の厚さとエアブリッジ構造の高さの差などの調整が必要になると予想される。これによって、本デバイスの On/Off 制御の可能性を示すことを目指す。

その後、アクティブ・デバイス構造を試作・検討する(図4)。片持ち梁構造であることに起因するスティッキング等の製造上の困難が予想されるが、本デバイスの実現の為に必要な製造ノウハウの多くは、上記(5)で得られるものと期待している。

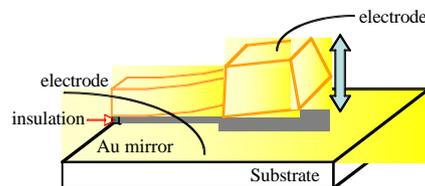


図4 電界印加によるマイクロマシン動作

4. 研究成果

ポリマー製マイクロキャビティの製造技術の検討を行い、パッシブ・デバイスを試作した。光ファイバ結合系によって、試作デバイ

スの光共振器性能の評価を行い、シミュレーションとほぼ一致する結果を得た。研究の過程で、市販の化学合成量子ドットの構造対称性が悪く、将来的に量子光学素子に適用することが難しいと判断した為、当初の予定にはなかった、自前の合成技術の開発に着手した。その結果、市販品よりも構造対称性が高く、従って偏光等方性の高い発光をする量子ドットを実現した。また、その仮定で量子ドットの簡便な構造評価技術にも着手した。その結果、従来は放射光施設でしか実現出来なかった微小角入射X線回折法(GIXD法)を、ラボ用施設でも実現した。また、パイロットとして進めていた、化合物半導体を用いた検討において、アクティブ・デバイスの試作と、その共振器特性のマイクロマシン方式による操作を実現した。

以下、各項目に分けて詳述する。

(1) ポリマー製パッシブ・デバイスの試作

エアブリッジ構造を実現するために、電子ビームによるパターンニングを繰り返すことでポリマー層を多層化する方法と、単層のポリマー層の下板をGaAsとしてこれを選択エッチングする方法の2通りを検討した。両方法ともエアブリッジ構造の作製に成功したが、出来上がりの構造が良好なGaAsを下板とする方法を採用することにした(図5)。

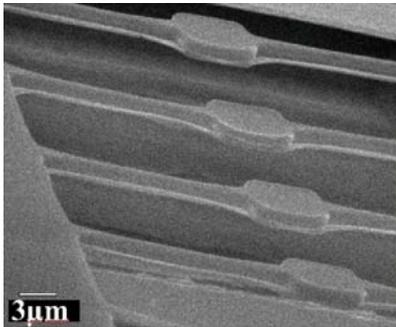


図5 試作したポリマー製マイクロキャビティ

次に、ポリマー製マイクロキャビティと量子ドットを組み合わせる技術に取り組んだ。まず、GaAs基板上に量子ドットを混入したポリマー層を形成し、そこからのフォトルミネッセンス発光を確認した。当初はこのポリマー層を加工して、マイクロキャビティとする予定であったが、次項で述べる構造設計の結果、ポリマーからの光漏れが大きいことが分かった為、急遽、更に光閉じ込めを強化する目的で、ポリマー層と基板との間に薄いAu層を設けるプロセスを検討した。Au膜による近接効果の増大によってポリマー層のプロセス条件の大幅な変更が必要だったものの、目的とする構造の製造技術に目処を付けることができた。

最終的に、ポリマー製のマイクロキャビティと市販の化学合成PbS量子ドットとを組み合わせたパッシブ・デバイス構造を実現し、次項に述べる光共振器特性を実現できた。

(2) 構造設計技術の構築と光共振器性能の評価

3次元FDTD法による光共振器特性のシミュレーションに、構造材料の作製精度限界による形状の特徴を取り入れたことで、精度の高いデバイス設計を可能にした。その結果、新たに構築した評価測定系による実測と、シミュレーションとがよく一致するようになった。試作したポリマー製パッシブ・デバイスの実測とシミュレーションの結果を図6に示す。ピークの位置等がシミュレーションによって良く再現されていることが分かる。

更に、効率よいスイッチング制御を実現するデバイス構造を、シミュレーションによって検討した。空気層への光の広がりがモードを乱すことが分かったため、これを抑止する金膜を設計に考慮することで、きれいな導波モードが実現できることを見いだした。

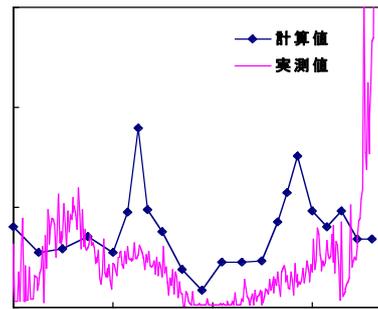


図6 パッシブ・デバイス構造の共振器特性

(3) 量子ドットの化学合成技術

研究の過程で、市販の化学合成量子ドットの構造対称性が悪く、そのままでは将来的に量子光学素子に適用することが難しいと判断した為、当初の予定にはなかった、量子ドットの合成技術の開発に着手した。

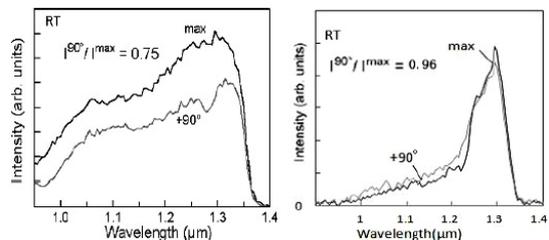


図7 市販品(左)と自作の量子ドット(右)の偏光依存性の比較

水溶液を用いる製造方法において、原料の選定、分散剤の添加、及び遠心分離による選

別等を行った結果、形状が等方的で、比較的サイズの揃った、直径数ナノメートルの球状の量子ドットを得ることができた。発光波長は1.3ミクロン付近を中心に分布しており、類似の市販品と比較したところ、図7に示すように、発光の偏光等方性が大幅に改善していることが確認できた。

更に、水溶液を用いる方法に比べて得られる量子ドットのサイズ均一性が高い、有機溶媒を用いた合成にも着手した。検討の結果、こちらもこれまでより構造対称性が高く、偏光の方向依存性が低いPbS量子ドットを実現した。

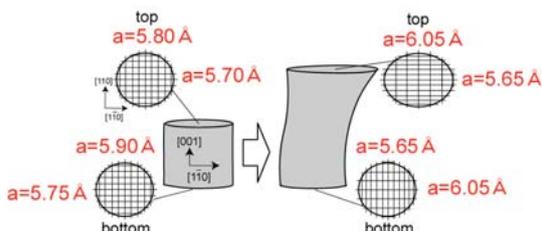


図8 GIXD法で明らかになった円柱型量子ドット内部の格子定数分布

(4) 量子ドット構造の簡便な評価技術の検討

従来放射光施設で実績のある、量子ドットの内部構造を非破壊で評価できる微小角入射X線回折法(GIXD法)を、ラボ用施設でも実現出来るようにした。この方法を用いて、円柱型InAs/GaAs量子ドットの内部格子定数分布の評価に成功し(図8)、格子定数の基板方位依存性と偏光異方性との関連性を具体的に明らかにした。本方法は化学合成量子ドットに対しては、基板に対しフリーであることを理由に詳細な評価ができない。しかし、電子顕微鏡観察を併用した実験によって、粒径分布は評価出来ることを確かめた。

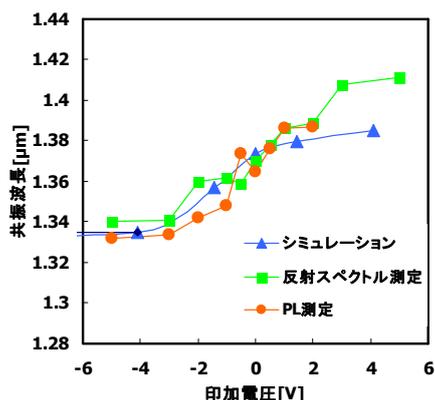


図9 共振波長とその操作

(5) 電界印加による化合物半導体製アクティブ・デバイスの操作

パイロットとして進めていたInP系半導体による検討において、アクティブ・デバイス

の試作と、電圧印加による共振器性能のコントロールを実現出来た。図9はその様子である。フォトルミネッセンス測定においても光ファイバー結合系による反射測定においてもほぼ同様の、電圧印加に伴うマイクロマシン動作に起因した共振波長の移動が確認された。しかも、その変化量はシミュレーションによる見積りとも良く合致した。

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6件)

- ①. Kohki Mukai, "Grazing Incidence X-ray Diffraction Measurements of InAs/GaAs Quantum Dots Using Equipment Available for Laboratories", Journal of Nanoelectronics and Optoelectronics, (招待論文) 2011 投稿中.
- ②. Kohki Mukai, Keita Watanabe, and Yuuta Kimura, "Grazing Incidence X-ray Diffraction Measurements of Columnar InAs/GaAs Quantum Dot Structures", Jpn. J. Appl. Phys. 査読有, Vol. 49 (2010) pp. 04DH07.
- ③. Kohki Mukai, Keita Watanabe and Kenta Nakashima, "Computational study on the in-plane symmetry of electron wavefunctions in self-assembled InAs/GaAs quantum dots", Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 査読有, Vol. 9 (2009) pp.108-114.
- ④. Kohki Mukai and Yuuta Kimura, "Characterization of columnar-shaped InAs/GaAs quantum-dot structures using grazing incidence X-ray diffraction", Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, Vol. 48 (2009) pp. 04C147.
- ⑤. Kohki Mukai and Keita Watanabe, "Polarization Symmetry of Vertical Photoluminescence from Columnar InAs/GaAs Quantum Dots", e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, 査読有, Vol. 7 (2009) pp. 537-540.
- ⑥. Kohki Mukai, Kenta Nakashima, "Suppression of the polarization dependence of the vertical photoluminescence from InAs/GaAs quantum dots by InGaAs strain-reducing layer", Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 47, (2008) pp. 5057-5061.

〔学会発表〕(計15件)

- ①. Kohki Mukai, "Grazing Incidence X-ray Diffraction Measurements of InAs/GaAs Quantum Dots Using Equipment Available for Laboratories", Villa Conference on Interactions Among Nanostructures (Invited), 2011年4月22日, Las Vegas, Nevada, USA
- ②. 菊島浩介, 田中健裕, 向井剛輝, "InGaAs 層埋込みによるInAs 量子ドット発光の偏光対称性制御と温度依存性", 春期応用物理学会学術講演会, 2011年3月24-27日, 神奈川工科大学
- ③. 山本翔平, 向井剛輝, "SPM 酸化によって作製する量子ドット位置制御のためのシリコン・テンプレート", 春期応用物理学会学術講演会, 2011年3月24-27日, 神奈川工科大学
- ④. 川井洋介, 向井剛輝, "量子ドット発光制御のための可動式マイクロキャビティの検討", 春期応用物理学会学術講演会, 2011年3月24-27日, 神奈川工科大学
- ⑤. 山本翔平, 向井剛輝, "SPM 酸化によって作製する量子ドット位置制御のためのシリコン・テンプレート", 国大-市大ナノテクシンポジウム, 2011年3月4日, 横浜市立大学
- ⑥. 川井洋介, 向井剛輝, "量子ドット発光制御のための可動式マイクロキャビティの検討", 国大-市大ナノテクシンポジウム, 2011年3月4日, 横浜市立大学
- ⑦. 蔡俊江, 田中健裕, 川井洋介, 山本翔平, 向井剛輝, "量子ドットの構造評価とマイクロキャビティによる発光制御", 横浜キーテクノロジー創生フォーラム, 2010年11月2日, 横浜情報文化センター
- ⑧. J. Cai and K. Mukai, "Polarization Symmetry of Photoluminescence from PbS Quantum Dots", International Symposium on Advanced Functional Materials, February 21 - 23, 2010, Yokohama, Japan
- ⑨. J. Cai and K. Mukai, "Polarization Symmetry of Photoluminescence from PbS Quantum Dots", IEEE Int. NanoElectronics Conf. 2010, January 3 - 8, 2010, Hong-Kong, China
- ⑩. Keita Watanabe, Yuuta Kimura, and Kohki Mukai, "Grazing Incidence X-ray Diffraction Measurements of Columnar InAs/GaAs Quantum Dot Structures", 2009 Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM), October 7-9, 2009, Miyagi, Japan
- ⑪. 蔡俊江, 渡辺啓太, 田中健裕, 向井剛輝, "量子計算機を可能にする偏光無依存型量子ドットの実現", 横浜キーテクノロジー創生フォーラム, 2009年9月3日, 横浜産業貿易ホール
- ⑫. 渡辺啓太, 向井剛輝, "もつれ合い光子対実現の為の量子ドットの検討", 横浜国大市大交流シンポジウム, 2009年3月6日, 横浜国立大学
- ⑬. Keita Watanabe and Kohki Mukai, "Polarization Symmetry of Vertical Photoluminescence from Columnar-Shaped InAs/GaAs Quantum Dots", International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS-5), Nov. 9 - 13, 2008, Tokyo, Japan
- ⑭. Yuuta Kimura and Kohki Mukai, "Characterization of columnar-shaped InAs/GaAs quantum-dot structures using grazing incidence X-ray diffraction", 2008 Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM), Sept. 24 - 26, 2008, Tsukuba, Japan.
- ⑮. 木村祐太, 渡辺啓太, 田中健裕, 向井剛輝, "光子対の量子状態制御の為の量子ドット技術", ナノテクシンポジウム 2008, 2008年8月27日, 横浜産貿ホール

〔図書〕(計1件)

- ①. 向井剛輝(共著), (株) エヌ・ティー・エス, "量子ドットエレクトロニクスの最前線", 2011, 440頁(p.p.183-195)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.kmlab.ynu.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

向井 剛輝 (MUKAI KOKI)
横浜国立大学・工学研究院・教授
研究者番号: 10361867

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし