

令和 4 年 6 月 2 日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01470

研究課題名（和文）ナノ物質ヘテロ界面における近接場光励起による新奇光機能デバイス応用

研究課題名（英文）Development of new functional optical devices using near-field excitation at the hetero interface in nanometer-scale

研究代表者

八井 崇（Yatsui, Takashi）

豊橋技術科学大学・工学（系）研究科（研究院）・教授

研究者番号：80505248

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,930,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は近接場光による波数励起および二次高調波発生を利用したSi受光器の検出効率のさらなる向上を目的とする。これを実現するために、Si受光デバイスを作製し、近接場光発生源として金ナノ微粒子を塗布することで、受光検出効率の検討を行った。作製したSi受光デバイス構造を用いて光電流の増加率の測定を行った。作製した構造に対して金微粒子を塗布し、受光感度特性を測定した。その結果、塗布する前と比較して、受光感度特性はいずれの場合でもバンド端近傍で高くなる傾向が得られた。金微粒子塗布前と比較して、最大で約20倍程度の受光感度増大を得ることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

間接遷移半導体であるSiの光吸収増大を実証することで、太陽電池分野への応用利用が期待される。Si以外にも受光感度が低い間接遷移半導体の利用範囲が広がる。また、二次高調波発生により、バンド端波長よりも長波長帯の利用可能性が広まり、アイセーフ波長光の利用の更なる拡大を図る上で、環境にもやさしいSiを受光材料とする受光センサ実現が期待される。近年自動運転や、ドローンなどに利用される受光センサの開発が盛んであるが、本課題で開発された高感度Si受光センサの実現により、アイセーフ波長用受光センサの低コスト化とそれに伴う広範な普及が進むと期待される。

研究成果の概要（英文）：We developed a Si photodetector with high efficiency by utilizing the effect of wavevector excitation and second harmonic generation by the optical near-field. To realize this, we fabricated Si photodetector with nanostructures of gold nanoparticle, we examined the efficiency.

We successfully realized that the efficiency was increased as increase in the wavelength to the band gap wavelength around 1100 nm. The efficiency was increased by 20 times in comparison with that without nanostructures.

研究分野：光検出器

キーワード：近接場光 非一様光場

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ナノテクノロジー、情報通信等、産業技術のあらゆる分野において光デバイスは欠かせないものとなっている。しかしながら、光エネルギーの利用効率は著しく低いものとなっている。その原因は、空間的に一様な伝搬光で動作する現状の光デバイスでは、光を単なる外場とみなしてしまい、光と物質の相互作用を真に取り込んでいないためである。

上記の従来光デバイスの諸問題を解決するために、提案者は近接場光が有する空間的に非一様な光の場(非一様光場)の特長に着目し、双極子近似に基づく従前の光応答では不可能であった新奇かつ有用な光励起が可能であることを実証してきた。この近接場光を、光デバイスの動作原理に用いることが出来れば、従来型とは本質的に異なる新奇光機能デバイスの創生が期待できる。この実現には、近接場光源となるナノ構造体の精密な設計と、発生する近接場光の空間的非一様性を制御し、有用な光機能を実現する近接場光励起が鍵となる。

近接場光の非一様性は、発生するナノ構造体の局所構造に大きく依存しているが、この局所構造は、異種(ヘテロ)物質に囲まれることで形成されている。言い換えると、近接場光の発生には、ヘテロ界面が必要となる。

一方、従来のヘテロ界面を利用したデバイスとしては、異種物質の組み合わせによって多彩な電子状態が界面領域に現れると期待され、電界トランジスタ等の量子デバイスの研究が非常に盛んに行われている。しかしながら、ヘテロ界面電子系の電子的相互作用が、光励起、電圧印加、電子注入などの外場に対してどのような応答を示すのか明らかになっていない。

2. 研究の目的

(1) 高効率・広帯域 Si 受光器の開発

提案者はこれまでに横型 Si p-n 接合デバイスにランダムに金微粒子を配置することで、p-n 接合界面に近接場光を誘起し、900-1100nm 領域における光吸収特性を向上することに成功している。アイセーフ帯での利用を目指しさらなる高効率化実現を目的とする。

(2) 近接場光源の解明

これまでの予備検討により、近接場光誘起の波数励起、SHG が可能であることを理論的に明らかにした。また、実験的に、これらの可能性を示す定性的な結果が得られている。しかしながら、実験結果と理論計算との定量的な整合性が不完全である。このため、理論計算によって、どのような構造体(形状、寸法)において近接場光が高効率に発生するかを明らかにするとともに、その発生した近接場光が、波数励起および SHG にどのように寄与するのかを、実験結果と比較し詳細を明らかにすることで理論的限界の指針を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 高効率・広帯域 Si 受光器の開発

p-n 構造よりも空乏層が大きく取れる p-i-n 構造の作製を行う。また、金微粒子塗布の最適化も行い、高効率化を実現する。

(2) 近接場光源の解明

第一原理計算を用いて、Si 薄膜に対する近接場光励起によって励起エネルギーの低エネルギー化を確認している。この予備検討では、近接場光を理想的なポイントダイポールと仮定して計算をしている。本課題では、p-n 接合界面における実際の金属ナノ構造をモデル化し、ナノ光源として取り込んだ理論計算を行う。この解析によって、どのような構造体(形状、寸法)において近接場光が高効率に発生するかを明らかにするとともに、その発生した近接場光が、ナノヘテロ界面電子系での波数励起および二倍波励起にどのように寄与するのかを、実験結果と比較し詳細を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 高効率・広帯域 Si 受光器の開発

p-i-n 構造として、p 層と n 層の間に 400nm 弱の i 層を配置した構造を作製した(図 1(a))。基板には SOI 基板を用いた。作製した構造を用いて光電流の増加率の測定を行った。作製した構造に対して金微粒子(直径 5、10、100nm)を塗布し、受光感度特性を測定した。その結果、塗布する前と比較して、受光感度特性はいずれの場合でもバンド端近傍で高くなる傾向が得られた(図 1(b))。プラズモン増強は波長 500nm 付近で最大となるのに対して、このようにバンド端近傍で感度増強が得られたことは、近接場による不確定性原理による波数励起が発生した結果であると考察される。また、逆バイアス依存性の計測も行った。その結果、逆バイアス電圧増大に伴って、受光感度が増大する傾向が得られ、金微粒子塗布前と比較して、最大で約 20 倍程度の受光感度増大を得ることに成功した(図 1(c))。

直径 100nm の金微粒子を用いた結果から、バンドギャップ波長(~1100nm)における受光感度は 0.01 [A/W]であった。また、受光感度の波長依存性のフィッティング直線より、波長 1500nm における受光感度は 0.0002 [A/W]にと見積もられる(図 1(d)、1(e))。実験における、金微粒子

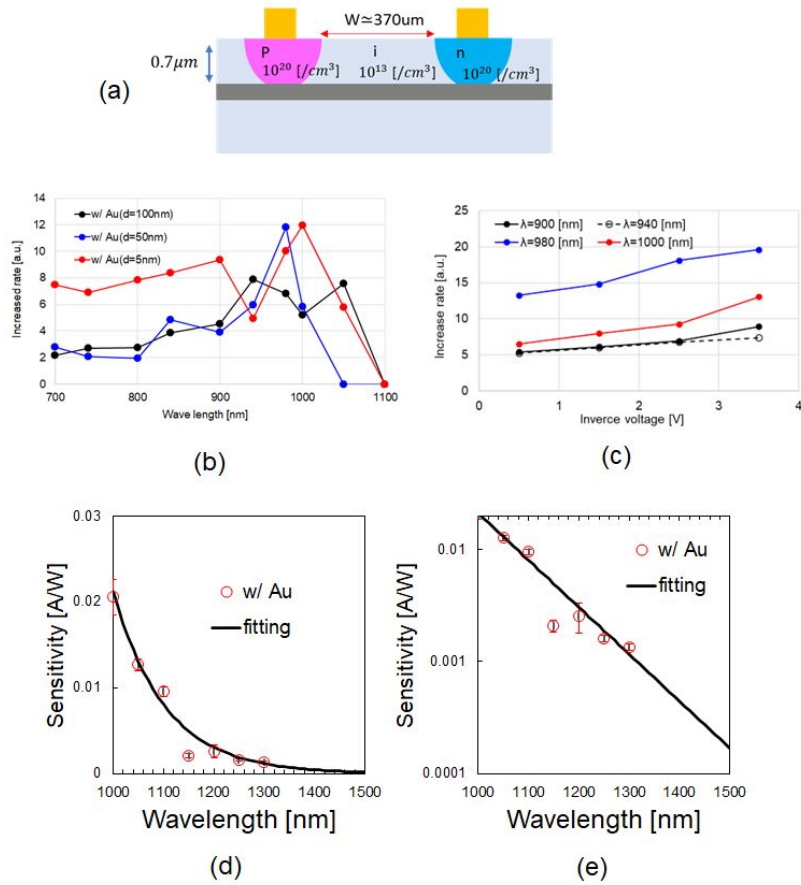


図1 (a) p-i-n 構造。p-i-n 構造における受光感度特性：(b) 金微粒子依存性、(c) 逆バイアス依存性。(d), (e) 金微粒子(直径 100nm)塗布による受光感度特性。(e)は(d)の縦軸を対数表記にしたもの。

の被覆率(約 1.8%)から鑑みて、金微粒子塗布の最適化により、受光感度 0.1 [A/W] (バンドギャップ波長 ~ 1100nm) 0.001 [A/W] (アイセーフ波長 ~ 1500nm) が期待される。

局所的な近接場光の発生に対応した光電流増加を調べるために、顕微感度マッピング測定系を構築した。構築した測定系を利用して、あらかじめ観察した電子顕微鏡像(SEM 像)と対応させて評価を行った(図 2(a))。その結果、金微粒子が塗布されているところで選択的に受光感度が増強されていることを確認することに成功した。

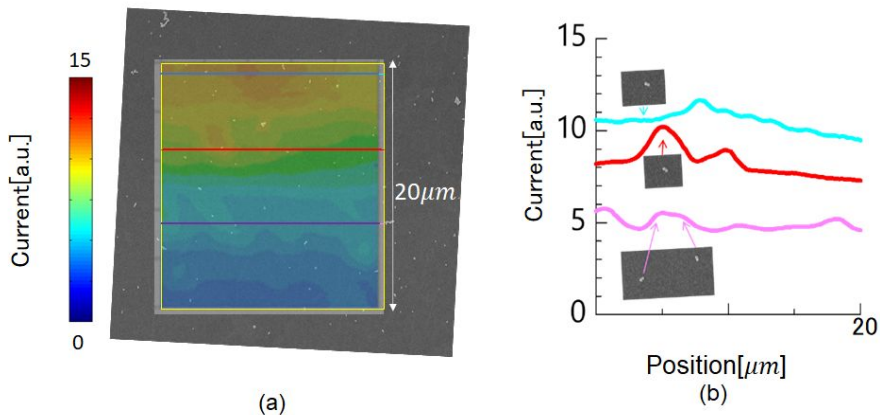


図2 (a) SEM 画像とマッピング像。(b) 位置ごとの受光感度特性。各色が(a)のそれぞれの色における受光感度特性。

(2) 近接場光源の解明

近接場光源の寸法に対する励起強度の依存性を明らかにするべく、第一原理計算プログラム SALMON を用いて、シリコン薄膜の近接場光励起の研究を行った。対象とした系のスキームを図 3 に示す。近接場光と伝搬光の両者を露わに考慮してシリコン薄膜の光励起電子ダイナミクスをシミュレーションした。近接場光は半径 R の完全導体 が作る双極子放射場でモデル化して、その中心は水素末端から $R + 1 \text{ \AA}$ 離れた位置に置いた。

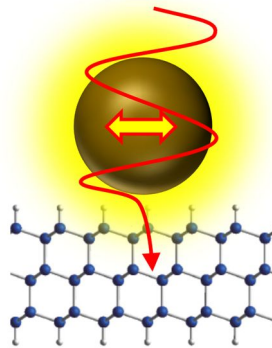


図 3. 伝搬光と近接場光の両者を用いたシリコン薄膜の光学応答。

図 4 に、 0.7 eV の赤外光を用いたときの SHG に相当する $1.35\text{-}1.45 \text{ eV}$ での波数励起の強度を示す。 R^6 に比例して線形に増加していることは、一光子吸収と同じく、近接場光強度に 1 次で比例することを意味している。一方で、近接場光を用いずに伝搬光のみだと、SHG は殆ど生じなかった。これは、幾何的構造の反転対称性によって、伝搬光に対しては SHG がほぼ禁制となるためである。しかし、伝搬光と近接場光の両者を用いると、伝搬光のみでは励起されないにも関わらず、伝搬光強度に対しても 1 次で比例していた。これより、近接場光強度と伝搬光強度の積によって励起の強度が決定づけられていることが明らかになった。近接場光だけによる 2 次の光励起 (R^{12} に比例) に比べると小さな近接場光源でも比較的高効率に励起できるという、近接場光源の寸法を決めるうえでの指針となる知見が得られた。近接場光源のサイズに対する依存性は、反転対称性のある物質の SHG の強度が電場と電場の空間微分の積で決まることに由来する。電場の空間微分の大きさは電場の空間的な非一様性に相当し、近接場光源の形状に強く依存する。従って本計算結果は、近接場光源の形状を制御することも SHG の効率を向上させるのに有用であることを示している。

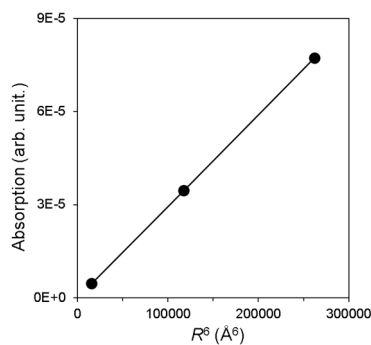


図 4. 近接場光源のサイズに対する光励起強度の依存性。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Akihiro Kuwahata, Takahiro Kitaizumi, Kota Saichi, Takumi Sato, Ryuji Igarashi, Takeshi Ohshima, Yuta Masuyama, Takayuki Iwasaki, Mutsuko Hatano, Fedor Jelezko, Moriaki Kusakabe, Takashi Yatsui, and Masaki Sekino	4. 巻 10
2. 論文標題 Magnetometer with nitrogen-vacancy center in a bulk diamond for detecting magnetic nanoparticles in biomedical applications	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 2483 (10 pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-59064-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Naoya Tate and Takashi Yatsui	4. 巻 9
2. 論文標題 Visible light-induced thymine dimerisation based on large localised field gradient by non-uniform optical near-field	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 18383 (6 pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-54661-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Takashi Yatsui	4. 巻 2
2. 論文標題 Recent improvement of silicon absorption in opto-electric devices	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Opto-Electronic Advances	6. 最初と最後の頁 190023
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.29026/oea.2019.190023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Takashi Yatsui, Syunsuke Okada, Tatsuya Takemori, Takumi Sato, Kota Saichi, Tatsuro Ogamoto, Shohei Chiashi, Shigeo Maruyama, Masashi Noda, Kazuhiro Yabana, Kenji Iida, and Katsuyuki Nobusada	4. 巻 2
2. 論文標題 Enhanced photo-sensitivity in a Si photodetector using a near-field assisted excitation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 62 (8 pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42005-019-0173-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Takashi Yatsui, Yusuke Nakahira, Yuki Nakamura, Tatsuki Morimoto, Yuma Kato, Muneaki Yamamoto, Tomoko Yoshida, Kenji Iida, and Katsuyuki Nobusada	4. 巻 30
2. 論文標題 Realization of red shift of absorption spectra using optical near-field effect	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 34LT02
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6528/ab2092	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Noda Masashi, Iida Kenji, Yamaguchi Maiku, Yatsui Takashi, Nobusada Katsuyuki	4. 巻 11
2. 論文標題 Direct Wave-Vector Excitation in an Indirect-Band-Gap Semiconductor of Silicon with an Optical Near-field	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 44053
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.11.044053	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Brandenburg F., Nagumo R., Saichi K., Tahara K., Iwasaki T., Hatano M., Jelezko F., Igarashi R., Yatsui T.	4. 巻 8
2. 論文標題 Improving the electron spin properties of nitrogen-vacancy centres in nanodiamonds by near-field etching	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 15847
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-018-34158-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Takashi Yatsui
2. 発表標題 Recent development of the photochemical reactions and the opto-electric
3. 学会等名 The International Symposium on Plasmonics and Nano-photonics (iSPN2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Yatsui
2. 発表標題 Applications of novel optical near-field reactions based on a special non-uniformity
3. 学会等名 The 12th Asia Pacific Conference on Near field Optics (APNF012) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masashi NODA, Kenji IIDA, Maiku YAMAGUCHI, Takashi YATSUI, Katsuyuki NOBUSADA
2. 発表標題 Direct wave vector excitations of silicon with optical near fields
3. 学会等名 The International Symposium on Plasmonics and Nano-photonics (iSPN2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 浅沼 将人、藤原 弘康、飯田 健二、野田 真史、矢花 一浩、八井 崇
2. 発表標題 表面ナノ構造によるSi受光器の高効率化
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浅沼 将人、藤原 弘康、飯田 健二、野田 真史、矢花 一浩、八井 崇
2. 発表標題 顕微分光法による近接場光励起Si受光器の評価
3. 学会等名 Optics & Photonics Japan 2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 竹森 達也、齋地 康太、佐藤 匠、大鋸本 達郎、千足 昇平、丸山 茂夫、野田 真史、矢花 一浩、飯田 健二、信定 克幸、八井 崇
2. 発表標題 近接場光援用光吸収によるシリコン受光感度の高効率化
3. 学会等名 2019年第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masashi Noda, Kenji Iida, Maiku Yamaguchi, Kazuya Ishimura, Takashi Yatsui, Katsuyuki Nobusada, Kazuhiro Yabana
2. 発表標題 Massively-parallel time-dependent density functional theory calculations for optical near-field excitations in silicon
3. 学会等名 APS March Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Yatsui Research Group https://lux.ee.tut.ac.jp/
--

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------