

近接場マルチプローブ分光の基盤技術開発

Development of Key Technologies for the Multi-probe Spectroscopy based on Near-field Optics

川上 養一 (KAWAKAMI YOICHI)

京都大学・大学院工学研究科・教授



研究の概要

本研究は、近接場マルチプローブ分光技術を確立し、半導体ナノ構造・新規光材料・フォトリソグラフィデバイスなどにおけるキャリア・エキシトン・プラズモンなどの素励起の時間的・空間的な再結合ダイナミクスを可視化するための装置と解析手法を開拓することを目的としている。これによって、新しい光科学の探索を推進する。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：光物性、半導体、微小光学、光計測、走査プローブ顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

キャリア・エキシトン・プラズモンなどの素励起の時間的・空間的ダイナミクスは、光デバイスの発光再結合や各種フォトリソグラフィ構造の機能発現などの機構解明のために極めて重要な情報である。しかしながら、これまで開発されたカソードルミネッセンスや近接場光学顕微鏡 (SNOM) などの顕微分光技術では、如何にして微細な領域を光励起するかには焦点がおかれていた。したがって、素励起の拡散による空間分解能の低下は不可避であり、それらを詳細に評価するための計測技術は確立していなかった。

2. 研究の目的

本研究は、微細加工された材料やデバイスそして生体細胞などの各部位へ近接場領域で光アクセス可能なマルチプローブヘッドを開発し、生成された励起子やキャリアの再結合によって生じるルミネッセンスなど、光ダイナミクスを測定するための基盤技術を開拓することを目的としている。すなわち、時間、空間、波長、発光強度からなる5次元

データを、並列測定し高速で解析することによって、キャリアの拡散、局在、輻射および非輻射再結合過程をナノ空間において可視化する技術を開発し、新材料・デバイスを評価するために不可欠なツール実現を目指す。

3. 研究の方法

光ファイバー先端などからなる一つの微小開口から試料の微小領域を光励起し、数10 nm～数 μm 程度離れた場所からの発光を別の微小開口プローブを用いて時間分解で検出するマルチプローブ技術の開発に取り組む。

開発されたマルチファイバー技術を、(a) ワイドギャップ半導体低次元構造の分光のみならず、(b) プラズモニクス素子やフォトリソグラフィ結晶などの光集積デバイスにおける動作モニタリング、(c) 神経細胞における機能発現やシグナル伝達を測定することにも展開し、応用の裾野を広げていく。

4. これまでの成果

(1) 近接場マルチプローブ装置の開発

光材料中のキャリア・励起子・プラズモンなどの素励起状態の時間空間ダイナミクスを可視化するために、一方のファイバープローブ (I プローブ) で光励起を行い、もう一方のファイバー (C プローブ) で光測定を行うデュアルプローブ近接場光学顕微鏡 (Dual probe scanning near-field optical microscope: DSNOM) の開発を行った。

図2に開発したDSNOM装置の概略図を示している。ファイバー構造の設計・作製、2ファイバー近接技術および装置構成の詳細は、

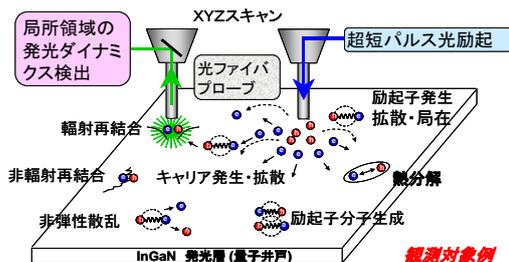


図1：近接場マルチプローブ分光の概念図

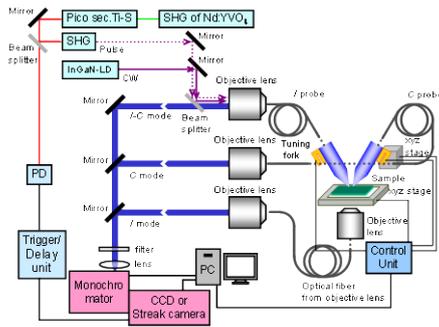


図 2: DSNOM による発光マッピング測定装置

特許出願するとともに Review of Scientific Instrumentation に投稿中である。

(2) 発光ダイナミクス評価

InGaN 系半導体ナノ構造では、ポテンシャルの揺らぎによるキャリア（励起子）の局在化が、発光機構を決定する要因となる。そこで、緑色発光 InGaN 量子井戸の DSNOM による発光ダイナミクス評価を行った。図 3 に発光強度および発光波長マッピング結果を示す。詳細な発光スペクトル解析によって、ポテンシャル揺らぎとキャリア拡散の様子をモデル化することに成功した。すなわち、キャリアの拡散方向や拡散長は、輻射および非輻射再結合中心の分布だけでなく、局所的にポテンシャルの低い領域や高い領域によって大きく影響を受けており、発光の内部量子効率や効率 Droop 効果と密接に関係していることが明らかにされた。これら成果は、*Applied Physics Express* **3**, 102102 (2010) に報告済。

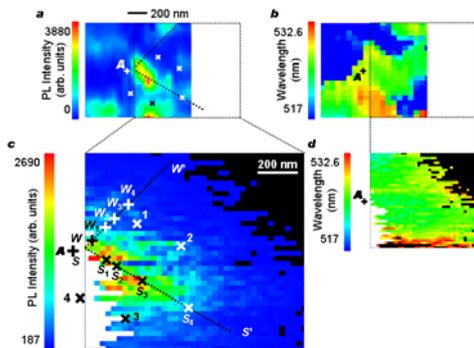


図 3: DSNOM による緑色発光 InGaN 量子井戸の発光強度と発光波長マッピング像

(3) プラズモン伝搬の可視化

Ag 薄膜および Ag 細線（幅 3.4 μm）における表面プラズモンポラリトン（Surface plasmon polariton: SPP）伝搬を DSNOM によって可視化した。図 4 に示すように、薄膜の場合には SPP が同心円状に広がって伝搬しているのに対し、細線の場合には、干渉縞が形成されており、伝搬距離が長くなっている。これは、細線端で SPP が反射し、もとの波と干渉したためだと考えられ、SPP の波としてのコヒーレンスが顕在化している例として興味深い（*Applied Surface Science* 印刷中）。

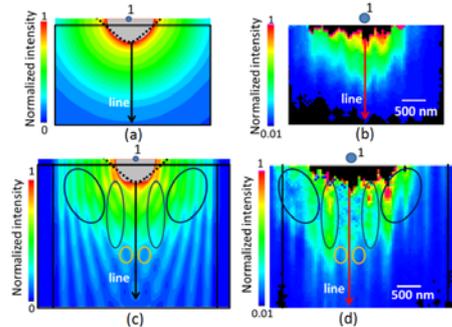


図 4: Ag 薄膜の SPP 伝搬の (a) シミュレーションと (b) DSNOM 測定結果。

5. 今後の計画

つぎの研究・開発目標は、(1) DSNOM 装置に様々な機能を付加することと、(2) 測定対象を拡大して装置としての有用性を高めていくことにある。すなわち、(1) については、(a) 表面プラズモン効果の応用、(b) 近接場過渡レンズ法による非輻射再結合過程の可視化、(3) 2本以上の多数プローブを用いた SNOM の開発を中心に取り組みを進めている。(2) については、プラズモン光配線の共同プロジェクトへの参画や新機光材料やバイオ計測への展開を予定している。

6. これまでの発表論文等（受賞等も含む）

“Interference of the surface plasmon polaritons with an Ag waveguide probed by dual-probe scanning near-field optical microscopy”, R. Fujimoto, A. Kaneta, K. Okamoto, M. Funato, and Y. Kawakami, *Appl. Surf. Sci.* (印刷中)。

“Time-of-flight measurements of charge carrier diffusion in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ quantum wells”, J. Danhof, U. T. Schwarz, A. Kaneta and Y. Kawakami, *Phys. Rev. B*, **84**, 035324/1-5 (2011)。

“Real-time near-field evidence of optical blinking in the photoluminescence of InGaN by scanning near-field optical microscope”, K. Oikawa, C. Feldmeier, U. T. Schwarz, Y. Kawakami and R. Micheletto, *Opt. Mater. Exp.* **1**, 158-163 (2011)。

“Visualization of the local carrier dynamics in InGaN SQW using dual probe scanning near field optical microscope”, Y. Kawakami, Intern. Symp. Advanced Nanomaterials and Nanosystems / 4th Intern. Photonics and OptoElectronics Meetings, Wuhan, China (1-5 Nov. 2011) (招待講演)。

“Visualization of the local carrier dynamics in an InGaN quantum well using dual-probe scanning near-field optical microscopy”, A. Kaneta, T. Hashimoto, K. Nishimura, M. Funato and Y. Kawakami, *Appl. Phys. Exp.* **3**, 102102/1-3 (2010)。

川上養一, 第 5 回(2011 年度)応用物理学会 Fellow 表彰

ホームページ等

<http://www.optomater.kuee.kyoto-u.ac.jp/>