

京都大学	博士 (工学)	氏名	児 島 貴 徳
論文題目	光学顕微イメージングを用いた単一量子ドット・フォトニック結晶ナノ構造結合系の作製および基礎特性評価		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>本論文は、量子ドット・ナノ共振器結合系のデバイス応用を見据えて単一の半導体量子ドットの位置および波長を精密に検出し、フォトニック結晶ナノ共振器との位置・波長合わせを行うことで単一量子ドットとフォトニック結晶ナノ共振器の結合を実現する技術を提案・実証した成果をまとめたものであって、全 6 章から構成される。</p> <p>半導体量子ドット(Quantum dot, QD)と微小光共振器の結合系は、固体中における共振器量子電磁力学(Cavity Quantum Electrodynamics, CQED)のプラットフォームとして注目を集めている。CQED に特有の種々の現象は量子情報処理素子や高効率単一光子光源、無閾値レーザーなど様々な新しい応用が期待される。本研究では QD として InAs/GaAs 自己形成 QD、フォトニック結晶として GaAs2 次元スラブフォトニック結晶を用いている。ここで、上述のような応用を考えると、フォトニック結晶構造中の所望の位置にのみ、単一の QD を配置することが必須であるが、InAs/GaAs 自己形成 QD の形成位置はランダムであり、これまでの研究ではフォトニック結晶構造中の所望の位置に QD が必ず含まれるように比較的高密度な QD が用いられており、所望の位置にも、意図しない位置にも多数の QD が存在する状況で種々の実験的検討がなされてきた。</p> <p>本論文では上記の問題を解決するため、極低密度 QD の発光像を直接イメージングすることによって QD の位置を高精度に特定し、波長を合わせて測定することで QD と位置および動作波長を合わせたナノ構造を形成する技術を提案・実証した。光学観測による位置合わせによって、位置誤差 50 nm 以下という極めて高い精度を実現している点は特筆に値する。さらに、本手法がフォトニック結晶構造形成前後で同一の単一 QD の特性を追跡評価できる点を活かし、フォトニックバンドギャップの有無による単一 QD の光学特性変化を測定した。その結果、フォトニックバンドギャップ存在下で QD の発光寿命が延びた場合に顕在化する非輻射過程の存在を指摘している。</p> <p>第 1 章は序論であり、研究背景として QD とナノ共振器の概要を述べた後、それらの結合系を作製するための従来用いられてきた手法の問題点が指摘されている。</p> <p>第 2 章では、QD とナノ共振器のより詳細な解説を行った後、QD・ナノ共振器結合系における共振器量子電磁力学を考える上で重要なパラメータについて述べられている。このうち結合定数 g と共振器 Q 値のバランスによって、系の応答が大きく異なる。従って、共振器 Q 値の設計が重要である。共振器 Q 値を向上させるためには、試料作製精度の向上による構造の不完全性の抑制や、結晶成長の最適化による吸収要因の抑制などの課題がある。得られる g の具体的な値から Q 値は 10000 以上が必要であることを指摘し、QD を含むナノ共振器において Q 値を向上させるためには、QD を埋め込むためのキャップ層の成長条件、特に成長レートが重要であることが示されている。</p>			

第3章では、本論文で用いられる極低密度 QD の成長と評価について述べられている。一般的に低密度と呼ばれる 10^8 個/cm² 程度の密度では、ナノ共振器・導波路結合系のような大規模な系に QD を導入するにあたって、多数の QD が共振器内部以外の意図しない位置に存在することとなり、不要な吸収や散乱の要因となるものと考えられる。そこで、分子線エピタキシー法による結晶成長の条件を探索し、 10^6 個/cm² 以下の極低密度 QD を得ることに成功している。また、実際に光学評価に用いる QD はキャップ層で埋め込まれているため、従来用いられてきた走査型電子顕微鏡や原子間力顕微鏡のように表面を観察する顕微鏡では QD を評価することができず、新たな評価手法が必要であった。このために本論文では、これらの QD を光励起した時にフォトルミネッセンス光を発することを利用し、QD の発光を光学顕微鏡で直接とらえる測定系を構築し、 1.5×10^5 個/cm² という極めて低い密度の QD の光学顕微イメージングによる観測および個々の単一 QD の光学特性評価に成功している。

第4章では、第3章で得られたような極低密度 QD とナノ共振器を組み合わせる上で、位置・波長合わせ技術が必要不可欠であることが述べられている。これは、QD の密度と波長分布から考えると、位置・波長合わせ技術無しに QD・ナノ共振器結合系が得られる確率は 0.5% 以下にすぎないことに起因する。さらに、既存の技術がもつ問題点を指摘し、それらを解決する手法として、第3章でも用いた光学顕微イメージングを用いた位置・波長合わせ技術を提案・実証している。画像解析の手法を用いることで、光学的な測定であるにも関わらず、50 nm という極めて高い精度を得ることに成功している。

第5章では、QD・ナノ共振器結合系の光学特性評価を行い、比較的長い寿命をもつ非輻射過程が存在することの指摘および、強結合状態の創出について述べられている。光学顕微イメージングを用いた QD・ナノ共振器間位置・波長合わせ手法のもつ特徴を用いて、単一 QD がフォトリックバンドギャップ (PBG) によって自然放出を抑制されたときに、その光学特性がどのように変化するかを調査した。その結果、QD の s-shell 由来の4つの光学許容な荷電状態のうち、PBG による光の状態密度の減少から期待される発光寿命の増大を示すのは中性励起子のみで、荷電励起子や励起子分子は発光寿命の増大割合が小さいことを明らかにした。この理由として、QD 内の荷電粒子のみで完結する QD 内オージェ過程による非輻射遷移の存在を指摘した。また、光学顕微イメージングを用いた QD・ナノ共振器間位置・波長合わせ技術のもつ高い位置合わせ精度から期待される、強結合状態にある QD・ナノ共振器結合系の作製に成功した。実験結果から見積もられる結合定数 g は $57.5 \mu\text{eV}$ であり、QD・ナノ共振器間の位置ずれ量に換算すると 37 nm であった。この値は観測に用いた波長 ($\sim 1 \mu\text{m}$) の 1/10 を超える位置合わせ精度の高さを裏付ける値である。

第6章では、本研究で得られた知見を総括し、さらに今後の研究課題と展望を述べている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、量子ドット・ナノ共振器結合系のデバイス応用を見据えて単一の半導体量子ドットの位置および波長を精密に検出し、フォトニック結晶ナノ共振器との位置・波長合わせを行うことで単一量子ドットとフォトニック結晶ナノ共振器の結合を実現する技術を提案・実証した成果をまとめたものである。本論文において、得られた主な成果は次のとおりである。

1. QD とフォトニック結晶ナノ共振器を用いた CQED においては、QD・ナノ共振器間の結合定数 g と共振器 Q 値のバランスによって系の時間応答が大きく異なる。現実的なパラメータから算出される g の最大値 $76.4 \mu\text{eV}$ (時定数 8.6 ps) から考えて、共振器 Q 値は 10000 (時定数 10 ps) が必要であることを示した。また、この Q 値は QD を含まないナノ共振器では比較的容易に得られる一方で、QD を含むナノ共振器では QD を埋め込む GaAs 層の成長レートを適切に選ばなければ、QD 直上に生成される、貫通転移等に由来すると考えられる微小な孔の影響を受けて高い Q 値が得られないことを明らかにした。そして、この孔の生成が抑制される成長条件を用いることで、共振器 Q 値 15000 が得られることを示した。
2. 一般に低密度と言われる 10^8 個/ cm^2 程度の密度の QD であっても、本研究の目標であるフォトニック結晶構造中の任意の位置への QD の配置にはまだ密度が高く、 10^6 個/ cm^2 程度の極低密度 QD が必要であることを指摘した。QD の低密度化に向けて原料である In の供給量を低減する手法を用いて極低密度 QD の成長に成功した。さらに、従来の QD 評価手法では光学特性評価に用いる極低密度 QD の評価が困難であることを指摘し、QD のフォトルミネッセンスを光学顕微鏡で直接イメージングする手法によって、極低密度 QD 試料から個別の QD の発光スペクトルを得ることに成功した。
3. 単一 QD がフォトニックバンドギャップ (PBG) によって自然放出を抑制されたときに、その光学特性がどのように変化するかを調査した結果、QD の s-shell 由来の 4 つの光学許容な荷電状態のうち、PBG による光の状態密度の減少から期待される発光寿命の増大を示すのは中性励起子のみで、荷電励起子や励起子分子は発光寿命の増大割合が小さいことを明らかにした。この理由として、QD 内の荷電粒子のみで完結する QD 内オージェ過程による非輻射遷移の存在を指摘した。また、異なる非輻射過程をもっていると考えられる中性励起子と荷電励起子について PBG 存在下で発光寿命の温度特性を測定し、温度で活性化する非輻射過程と、QD 内オージェ過程の有無のみで結果を説明できることを明らかにした。
4. 光学顕微イメージングを用いた QD・ナノ共振器間位置・波長合わせ技術のもつ高い位置合わせ精度から期待される強結合状態にある QD・ナノ共振器結合系の作製に成功した。実験結果から見積もられる結合定数 g は $57.5 \mu\text{eV}$ であり、QD・ナノ共振器間の位置ずれ量に換算すると 37 nm であった。この値は観測に用いた波長の $1/10$ を超える位置合わせ精度の高さを裏付ける値である。

以上のように本論文は、量子ドットとフォトニックナノ構造を組み合わせたデバイス実現に向けた基盤となるものと評価でき、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 25 年 4 月 19 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。