

金属ナノ開口面発光レーザを用いたナノ光プローブ -ナノの世界を光で照らす-

東京工業大学大学院
物理情報システム創造専攻博士課程 3年
橋爪 滋郎

1. はじめに

現在の高度情報化社会において、今まで投函から返信を受け取るまで数日かかっていた手紙が数秒で届く E-mail や、自宅に居ながらキーボードを操作するだけで配送されてくるインターネットショッピングなど、利便性が格段に向上してきている。ところで、何気なく受信した E-mail のデータやインターネットショッピングのカタログの実体ははいつたどこにあるのであろう？これまでであればメールやカタログのデータは、紙面上に文字や絵として記録されていた。しかし、現在これらの情報は人間が直接見ることの出来ないデジタルデータとしてパソコンの記録媒体に記録されている。またこのように、現在映像・音声などの様々な情報がデジタルデータとしてやり取りされ、それに伴い記録されるデータは急速に増大している。

その膨張し続ける膨大な情報量に従い情報の記録速度の向上はもとより、単位面積当りに記録される情報の密度を高める高密度記録技術が必要となり、2010 年までに 1Tbit/inch² の記憶容量が要望されている。現在、大容量記録媒体として主流の磁気ハードディスクは、研究段階でも数 100Gbit/inch² に達しているが、記録マークの微小化に伴い熱により記録磁化が自然反転する、いわゆる磁気緩和現象によりこれ以上の記録密度の領域での可能性が不透明である。また、光記録方式において従来の CD や DVD などに使われているレンズを使いレーザ光を集光して記録・再生を行う技術では、スポットサイズが回折現象により λ/NA (NA =開口数, λ =波長) の大きさに制限されるため、記録密度には限界が生じる。波長を短くし、また開口数を大きくすることにより記録密度は向上するが、現在の DVD では波長 650nm, 開口数 0.6 で記録密度約 4Gbit/inch² が達成されているに過ぎない。紫外線光波長(250nm 程度)を用いた場合でも記録密度は 20Gbit/inch² に達する程度であろう。さらに体積ホログラムメモリは参照・情報光空間分離により小型化できない、メディアの位置あわせが困難、レーザの波長シフトに敏感である等の理由によりいまだ実験段階を超えていない。

光技術を用いた大容量の光ストレージ技術を可能とする新しい手法として、回折限界を超えてナノメートルの微小領域に光を局在させる光近接場技術が注目されている[1]。また、面発光レーザアレイを用いた光近接場メモリの手法などが提案されているものの[2]、その技術の核となる光プローブが未確立であった。

本研究では、図1に示すように光の波長程度の小さな面発光レーザから、近接場光と呼ばれるナノサイズの小さな光を直接作りだし、ナノスケールの世界に情報を書き込み・読み出し可能とするナノ光プローブを創案するとともに、さらに金属ナノ構造の導入により光強度を大幅に増強できることを見出した。本研究の特色は以下に集約される。

- 1) 金属ナノ開口面発光レーザからの近接場光の生成技術の確立
- 2) 金属ナノ開口面発光レーザを用いた、ナノスケールの情報を読み出すプロービング技術の確立
- 3) 近接場光プローブの高分解能・高効率化の検討

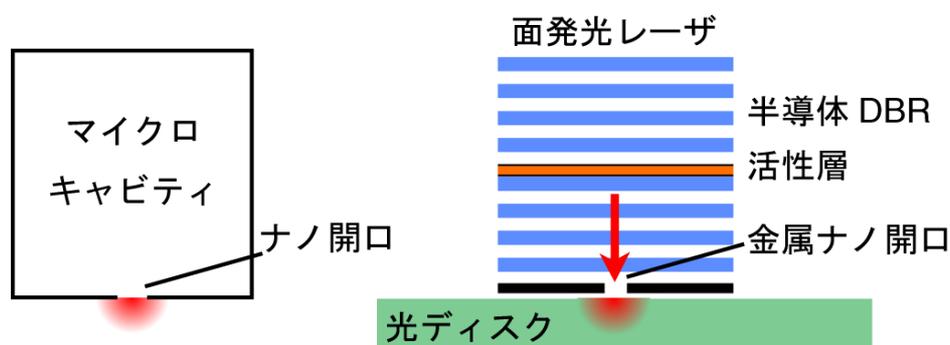


図1 光の波長程度の微小共振器面発光レーザからの近接場光生成

2. 光プローブにおける近接場光の意義

近接場光は、光によって媒質中に励起された双極子が作る電磁場が媒質表面にごくわずかにしみ出したもので、通常の光のように伝搬はせず、媒質表面のごく近傍にのみ局在する。従ってその空間分布は媒質の形状や寸法に依存するので、波長の制約なしに微細な近接場光スポットを形成することが可能である。実際のスポットサイズは形成可能な金属開口サイズと同程度まで微小化でき、数 10nm の開口を持つ光プローブでは、1Tbit/inch²の記録容量の実現が期待される。さらにナノ領域での光は電子等との相互作用も考えられ、これを利用することにより「近接場光=弱い光」という概念を打ち破り、ナノ領域に局在した巨大なパワー密度の光を作り出す新たなデバイスが期待できる。

3. 金属ナノ開口面発光レーザプローブの構造と動作原理

近接場光は、波長の制約なしに微細な近接場光スポットを形成することが可能であり、数 10nm の開口によっては、数 10nm のサイズの光を生成でき、それにより 1Tbit/inch²の記録容量の実現が期待される。一方、データ転送速度の向上法として近接場光を発生する面発光レーザアレイを用い、図2のような二次元並列走査をすることにより高速な

転送速度を得ることが提案されているが、近接場光は出射開口から、その開口サイズの領域にしか存在しないので、数 10nm の記録・再生を行うには、記録媒体と面発光レーザーの間隔を数 10nm に保つ必要があり、信号再生のための光学系をその間に入れることが困難となり、再生手法はいまだ未確立であった。

そこで、本研究では近接場光を生成し、これにより直接記録媒体に記録・再生を 1つのデバイスで可能とする、金属微小開口面発光レーザー(図 3)を提案した[3]. この系では、金属開口からの励起された微小ナノサイズの近接場光の熱エネルギーにより、相変化媒質等の記録媒体表面の屈折率変化を引き起こし記録を行う。一方、開口からの近接場光を記録媒体上に照射し、記録部／非記録部間の屈折率変化により、レーザーの実効的反射率が変化し、これによる一定電流駆動下における印加電圧の (図.4)を測定することにより信号再生を行う。

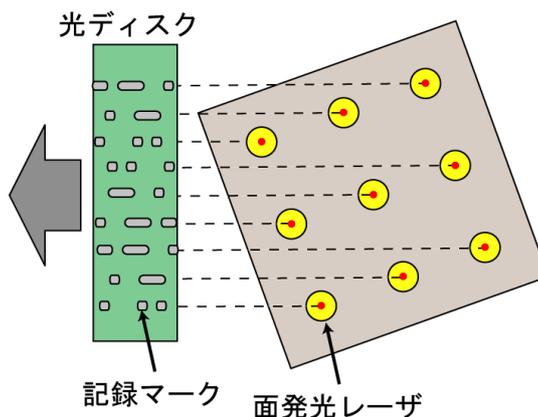


図 2 二次元並列走査ヘッド

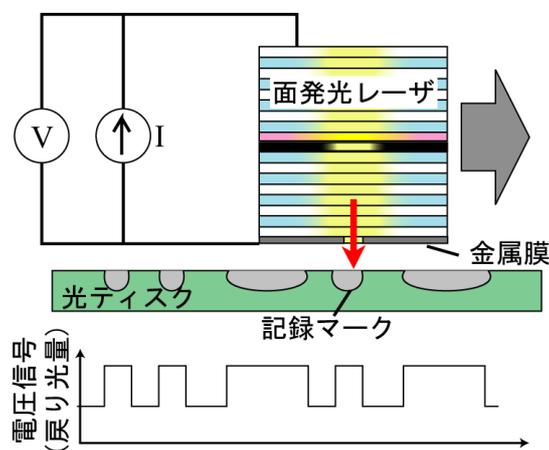


図 3 提案した光記録読み出しヘッド

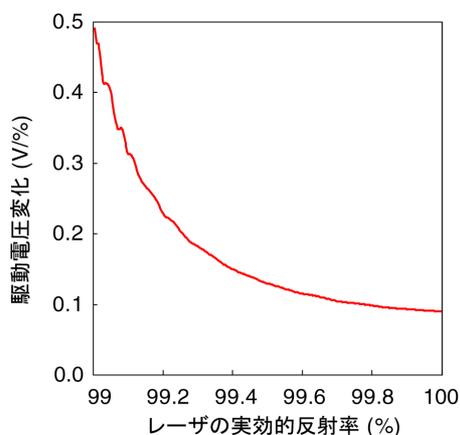


図 4 提案した光記録読み出しヘッドにおける電圧信号の変化

4. ナノ開口面発光レーザーのプロープ動作

通常、面発光レーザーはその光を発生させる活性層と呼ばれる層が非常に薄く、励起できる光が非常に弱い為、活性層の上下に配置した分布ブラッグ反射器(DBR)ミラーにより99%以上の光をレーザー内部に反射し、内部の光密度をレーザー発振に必要な密度まで上げる手法を採っている。その為、レーザー光として外部に出てくる光はわずか1%にも遥かに満たない。

一方、金属ナノ開口を透過して出てくる近接場光は、開口通過時に強い減衰を受ける為、光出力としては非常に小さく、その生成効率を向上させる新構造の探索が必要である。そこで実際に近接場光を励起する金属ナノ開口面発光レーザーを製作するに当たり重要な点は、レーザー全体のミラー反射率を保ったまま局所的に開口部でのミラー反射率を低下させ内部からの光の透過率を向上させる設計にすることである。そこで我々は図5に示すように、通常23ペアのp-DBRを11ペアと減らすことによりp-DBRのミラー反射率を83%に低下させ、開口部での透過効率を向上させると共に、p-DBR上に高反射率の金膜を複合ミラーとして形成することにより、レーザー全体の反射率を十分保てる構造を提案した。この構造を二次元の有限要素法(2D-FEM)を用いたシミュレーションを行い、開口径100nmの構造においてこの構造導入により開口からの透過効率が約4倍向上することが見積もられた。

この構造を導入した面発光レーザーデバイスを作成し、400nmの開口から図6に示す強い近接場光生成の観測に初めて成功した。一方、金属ナノ開口から生成された近接場光が外部のナノサイズの微小反射率変化による読み出し信号再

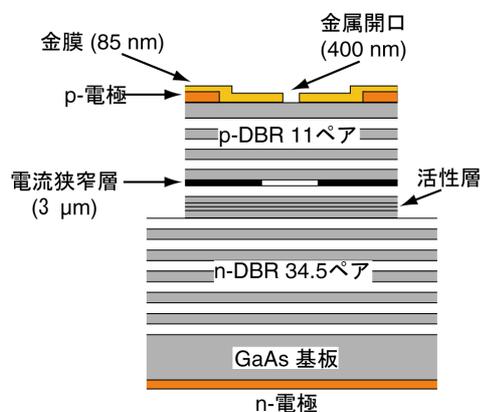


図5 金属ナノ開口面発光レーザー

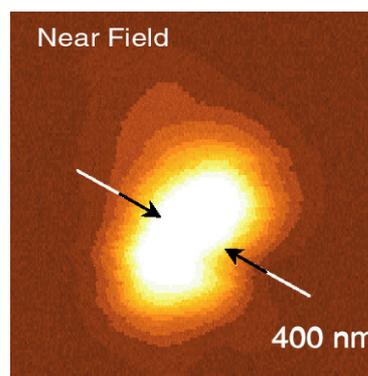


図6 ナノ開口面発光レーザーから生成された近接場光の強度分布

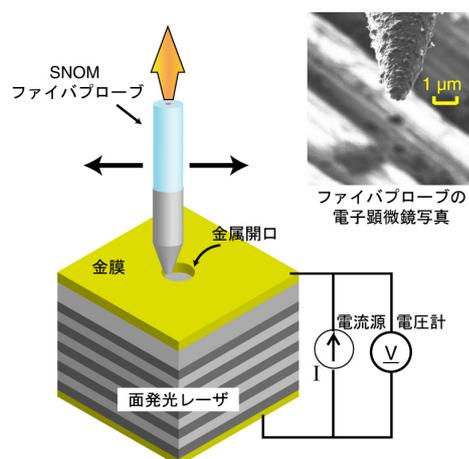


図7 面発光レーザーのナノプローブ動作

生じた近接場光が外部のナノサイズの微小反射率変化による読み出し信号再

生動作の検討として、図 7 に示す評価系を構築した。この評価系は近接場光学顕微鏡 (SNOM) の装置を利用した構成となっており、近接場光が存在している金属表面直上をナノスケールのファイバ先端が走査することにより、表面の凹凸形状を測定すると共に、開口部においては空気→ファイバの反射率変化を起し、その時の電圧変化を測定 (図 8)、同時に表面の近接場光分布をファイバプローブで観測が同時に可能となるものである。図 9 に金属開口

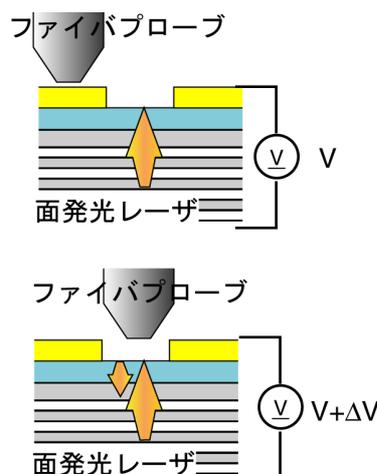


図 8 近接場顕微鏡によるナノ開口面発光レーザーの評価

径 170 nm のデバイスでの測定結果を示す。これより近接場光の生成されている (a) の開口部において、(c) に示すような電圧変化が観測され、これより初めて金属ナノ開口面発光レーザープローブから生成された近接場光による信号再生手法を実証した[3]。

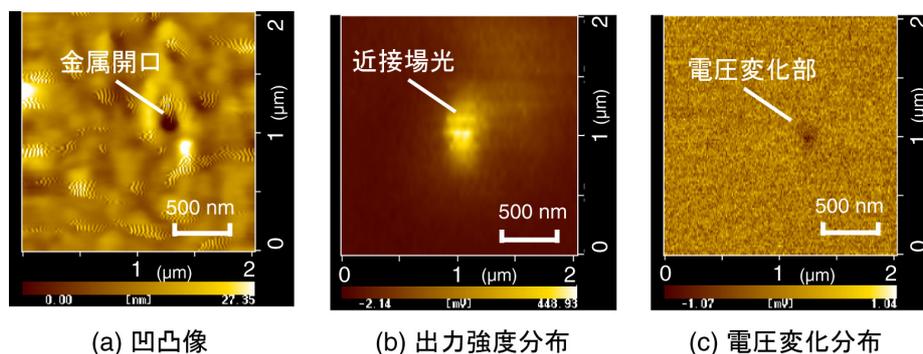


図 9 金属ナノ開口面発光レーザープローブの表面凹凸像(a)、光出力強度分布(b)、電圧変化分布(c)

5. 表面プラズモンによる金属ナノ開口面発光レーザープローブの光電場増強

前章では開口径 400 nm の金属ナノ開口面発光レーザープローブからの近接場光生成と、それを用いた光記録読み出し動作の初期的実証を行ったが、そのパワー密度は、16 W/cm² 程度であり、実際に光記録再生に用いるには、その光のパワー密度を数 10 倍増強する必要がある。さらに開口からの近接場光は開口が波長より十分小さい領域ではそのパワー密度は金属開口径に依存し指数関数的に減衰を受ける為 (図 10)、より開口径の小さな数 10 nm 以下の光記録・再生を実現する上では更なる近接場光強度増強が必要となってくる。

そこで、光の波と電子の波の融合により起こる表面プラズモン増強効果を本デバイスに導入することを検討した。金属と誘電体間に局在する電子の振動波である表面プラズモンが近接

場光を励起する金属開口近傍で励起されている条件では、近接場光とカップリングを起し、近接場光強度に強く影響を及ぼすことが知られている。図 11 は、金属単開口、2連開口における光近接場強度の数値解析結果を示している。本研究で用いている金属開口では表面プラズモンが入射光の偏光方向に依存した開口のエッジ部に強く局在する為、このエッジ部に局在する表面プラズモンを利用し開口からの近接場光強度増強となる構造があるのではないかと考えた。そして図 11 に示すように金属開口を近接させることにより、各開口に局在していたプラズモンが結合を起し、開口間に強い局在したプラズモンに起因する近接場光強度増強が数値解析より明らかになった。なお、解析には厚さ 100 nm の金薄膜上に、開口径 200 nm、開口間隔 20 nm を形成し、波長 850 nm の光を紙面下側から入射したモデルにおけるの開口表面の近接場光強度を評価した。

次に、図 12 に示す 850 nm 帯 GaAs 面発光レーザ上に金属二連ナノ開口形成を行った。このレーザは p 側の DBR が 12 ペア、n 側の DBR が 34.5 ペアであり、AlAs/AIOx による電流狭窄の為の酸化狭窄層幅は 2.8 μm である。製作プロセスは通常的面発光レーザの作成を行った後に位相整合させた約 320 nm の SiO₂ 層をスパッタにより蒸着し、バッファードフッ酸(BHF)により出射端上以外の部分をエッチングし、さらに 100 nm の厚さの金薄膜を真空蒸着し、集光イオンビーム(FIB)による Ga+イオンで 220 nm の開口をエッチングした。このデバイスのしきい値電流は約 200 μA であり、光出力は 10 mm x 10 mm の Si フォ

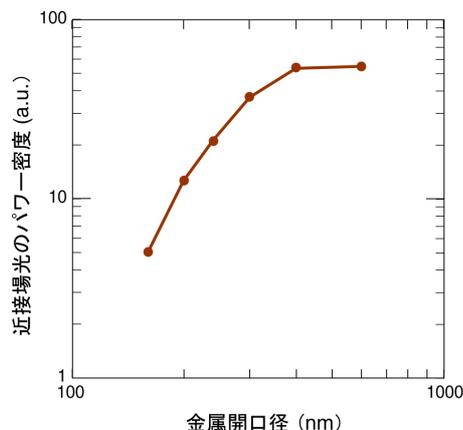


図 10 金属開口径と近接場光パワー密度の関係の計算結果

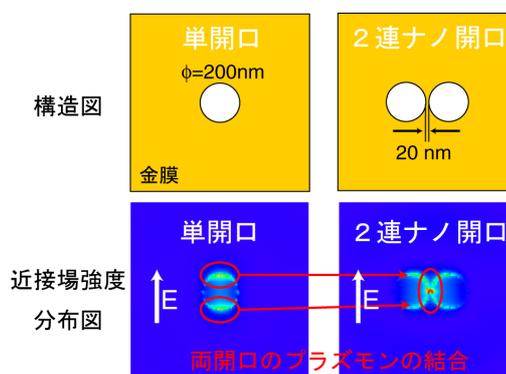


図 11 金属開口と近接場光パワー密度の関係の計算結果

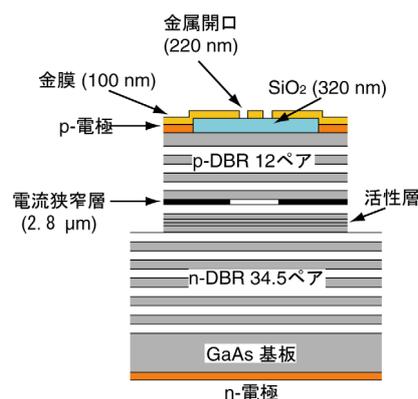


図 12 2連ナノ開口面発光レーザの構造図

トディテクタを面発光レーザから 3 mm の距離で測定をした。単開口からの光出力は金と面発光レーザの出射端間に SiO₂ 層を導入することにより約 4 倍強くなった。この結果より、金と面発光レーザの出射端間に配置した SiO₂ が光出力増強につながる表面プラズモンに強く作用している事が考えられる。さらに、開口を 2 つ 60 nm の幅で配置する金属ナノ構造を作製し、光出力約 2.5 倍の増強を確認した(図 13)。同時にこれらの近接場光強度分布を走査型近接場光学顕微鏡 (SNOM) を用いて測定し(図 14)、2 連ナノ開口において、プラズモンが開口間に局在していることによる光の半値全幅 (FWHM) 縮小、さらに光のパワー密度が SiO₂ 層を導入しない単開口構造と比べ約 13 倍の増強が起こっていることが確認された。近接場光パワー密度としては、0.26 MW/cm² が得られた[4]。ただし、この構造では、構造が面発光レーザの偏光に対して依存性があり、偏光制御が困難な面発光レーザでは問題となることが明らかになった。

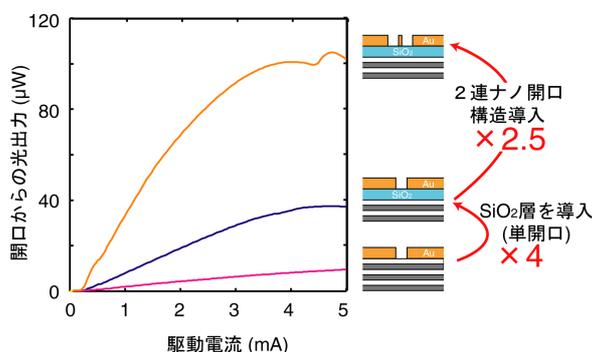


図 13 2連ナノ開口面発光レーザの光電場増強

同時にこれらの近接場光強度分布を走査型近接場光学顕微鏡 (SNOM) を用いて測定し(図 14)、2 連ナノ開口において、プラズモンが開口間に局在していることによる光の半値全幅 (FWHM) 縮小、さらに光のパワー密度が SiO₂ 層を導入しない単開口構造と比べ約 13 倍の増強が起こっていることが確認された。近接場光パワー密度としては、0.26 MW/cm² が得られた[4]。ただし、この構造では、構造が面発光レーザの偏光に対して依存性があり、偏光制御が困難な面発光レーザでは問題となることが明らかになった。

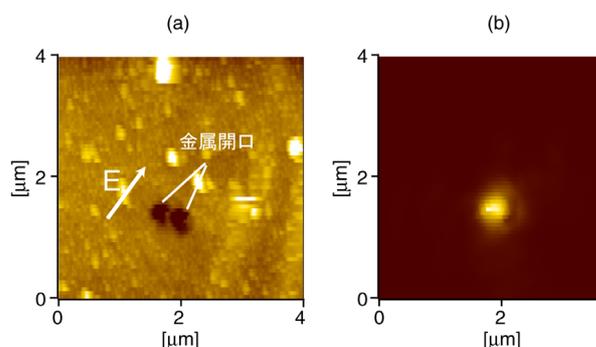


図 14 2連ナノ開口面発光レーザの表面凹凸像

(a)、近接場光分布 (b)

6. 金属ナノ開口面発光レーザプローブの偏光無依存化

表面プラズモン増強による更なる近接場光の増強と同時に、前章で問題であった偏光依存性を克服する構造としてレーザ共振器の光に対して対称な金属ナノ構造を導入する必要がある。そこで金属開口の中心に構造的に軸対称のナノサイズの

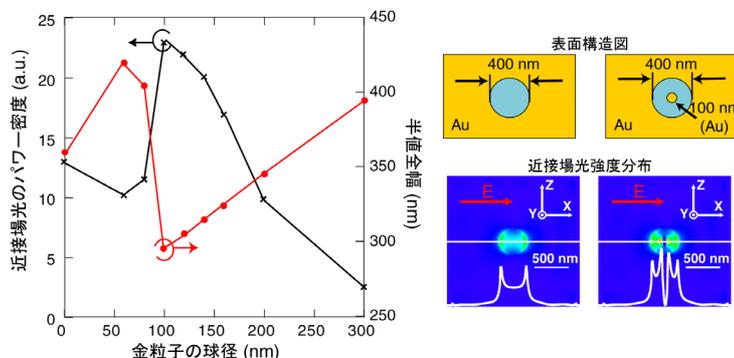


図 15 金属ナノ微粒子による近接場光の局在と増強

の金属微粒子を配置する構造を提案した。金属ナノ微粒子では球に光が入射すると球内

の電荷が光の電界振動により共鳴振動を励起され、球内に局在した表面プラズモンが励起されることが見込まれる。

光と金属球の相互作用は入射波長や相互作用する金属の球径が強

(a) 金膜上の構造 (b) 金膜上の電子顕微鏡像

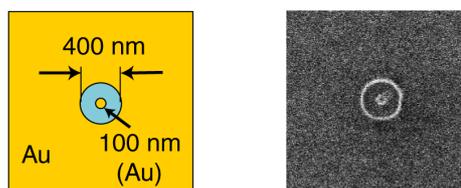


図 16 製作した金属ナノ構造面発光レーザの表面構造

く依存する事が予想される為、開口内に配置する金属球径と開口から励起される近接場光のパワー密度の検討を数値解析で行った。解析には SiO₂ 層上に形成された厚さ 100 nm の金薄膜の中心に 400 nm の開口を形成し、その中心に様々なサイズの金ナノ粒子を配置した。図 15 に示すように Au の球径 100 nm 付近で近接場光のパワー密度は最大約 2 倍以上に増幅されると共に、近接場光強度分布から明らかに分かるように開口内部に配置した金属球に強い近接場光局在効果が現れ、光のスポットサイズを意味する半値全幅が最小となることが分かった。

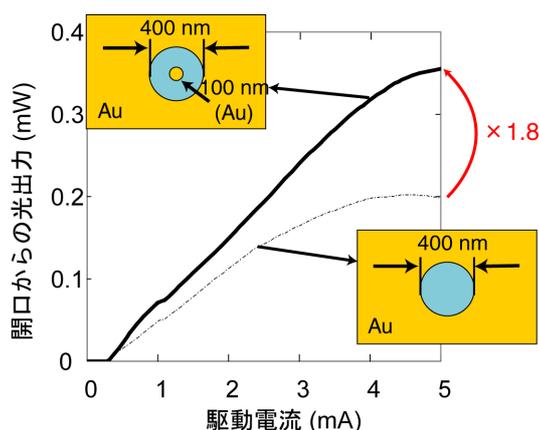
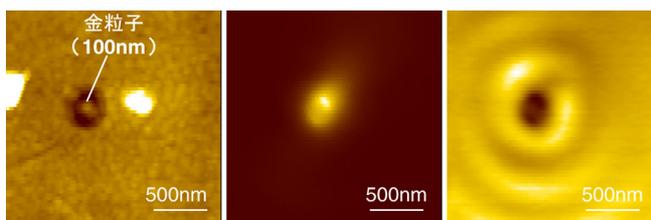


図 17 金属ナノ構造面発光レーザの光出力

このように入射光と強く共鳴する金属球の条件を用い、図 16 に示すデバイス製作を行った。製作したデバイスの構造は、上部金薄膜のエッチング形状を除いては前章と同一である。開口径 400 nm において金属球の有無による電流—光出力強度の比較を行い、球径 100 nm の金属球を開口内部に配置することにより光出力が約 1.8 倍増強することを実証した(図 17)[5]。一方、前章で用いた近接場光顕微鏡を用いた図 7 の測定系により金属開口からの実効半値全幅 240 nm の微小な近接場光の生成(図 18(b))と共に、ファイバプローブによる反射率変化により引き起こされる明確な信号電圧変化(図 18(c))の観測に成功した。さらにこの時測定された近接場光、信号電圧変化は共に金粒子を配置前後において約2倍の強度増強が観測され、金粒子による金属ナノ開口プローブの特性向上を実証した[6]。

この開口から生成された近接場光強度のパワー密度は 0.77MW/cm² であり、これは図 6 で示した実験当初値に比べ、実に約



(a) 表面の凹凸像 (b) 近接場光強度分布 (c) 電圧信号変化

図 18 近接場光学顕微鏡による評価結果

50 倍の近接場光強度の増強に成功した. このパワー密度は, 面発光レーザーのような微小共振器レーザーから生成される光パワー密度としては, 世界最高値であり, 面発光レーザーへのわずか 10mW 程度の微小な電力で, 巨大なパワー密度の生成が可能であることを示している.

7. 極限のナノ光プローブへの挑戦

では, 金属ナノ開口面発光レーザーはナノの世界でどこまで通用するのであろうか? より小さなナノ領域に局在する光を生成する為に金属開口径を小さくしていく必要がある. 図 19 に金属開口径と光のサイズに相当する半値全幅の関係を解析した結果を示す. これより, 光のサイズは開口径に依存して小さく出来るが, それと共に 5 章で述べたように近接場光は指数関数的な減衰を受けてしまう. ところが, 前章で検討し

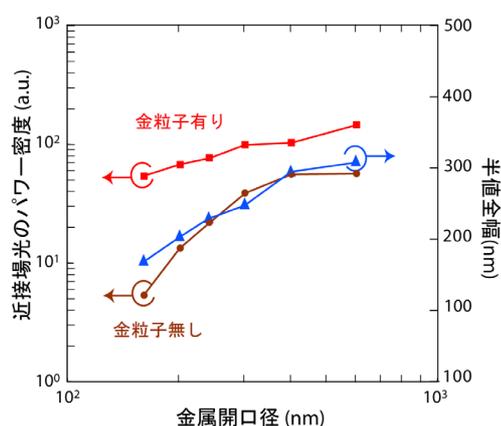


図 19 金ナノ粒子のサイズに対する近接場強度と光電場局在の計算結果

た金ナノ粒子を開口内部に配置構造においてはその指数的な減衰が, 劇的に改善され今後より小さなナノ領域に微小化した世界でも通用する可能性を秘めていることが分かった(図 19).

これまでに, 実際に開口径 200 nm, 金粒子径 100 nm の構造を製作し, 実効半値全幅 100 nm, パワー密度 0.84 MW/cm^2 において信号電圧変化の実証に成功し

ており(図 20) [7], 今後構造を最適化することにより, より小さなナノ光によるプローブ動作が実現できるものと考えられる.

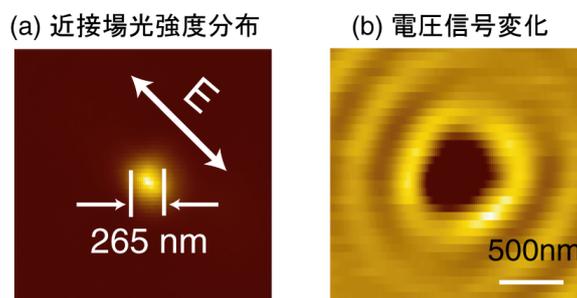


図 20 開口サイズを微小化した金属ナノ構造面発光レーザーの光近接場とプローブ動作

8. 結論

本研究では, ナノスケール世界への光記録・再生を実現のため, 金属ナノ開口面発光レーザーによる近接場光プローブを提案し, また光の波と電子の波の融合をさせることにより, その光の強度増強させる新しい構造を実現することに成功した. 本論文の成果をまとめると以下の通りである.

- ①金属ナノ開口面発光レーザーから近接場光を直接生成するデバイス技術を確立した.

②金属ナノ開口面発光レーザを用いて、ナノスケールの分解能を有するプローブ動作を初めて実証した。

③光とプラズモンの相互作用を用いて、近接場光プローブの光電場増強と高分解能化を実現した。

本研究により、わずか 10mW 程度の微小電力で、 $1\text{MW}/\text{cm}^2$ に及ぶ巨大なパワー密度を有する局在光を半導体レーザから直接生成する技術が可能になるとともに、ナノの局在光の発信器と検出器の機能を集積したプローブ動作が可能になった。今後、これらの技術を用いることにより、さらに、高効率に局在した近接場光を励起するナノ光プローブの実現を目指す。また、ナノスケールの光を操作することにより、マクロな光を制御する光トランジスタのような新しい機能も創案していきたい。本研究が次世代ナノテクノロジーへの新たな展開をもたらす希望の光となれば、幸いである。

謝辞

本研究を行うにあたり、日々ご指導頂いている小山二三夫教授に心より感謝する。

参考文献

- [1] M. Ohtsu, " Near-field nano/atom optics and technology", Tokyo ; New York : Springer-Verlag , 1998.
- [2] K. Goto, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.37, 2274-2278 (1998).
- [3] J. Hashizume, S. Shinada, F.Koyama, Jpn. J. Appl. Phys. Vol.41, 700, (2002).
- [4] J. Hashizume and F. Koyama, Appl. Phys. Lett., Vol.84, 3226-3228 (2004).
- [5] J. Hashizume and F. Koyama, IEICE Electronics Express, Vol.1, 77-80 (2004).
- [6] J. Hashizume and F. Koyama, Optics Express, Vol.12, 6391-6396 (2004).
- [7] J. Hashizume and F. Koyama; NPIS 2005, NFA4.