

## IX-2 ナノフォトニクスグループ

准教授	池沢 道男
講師	久保 敦
助教	富本 慎一
名誉教授	舛本 泰章
大学院生	12名
卒研究生	4名

### 【1】量子ドットの分光研究（池沢道男、舛本泰章）

(1) GaAs中の単一Nx発光中心から発生させた2光子の干渉（張遼，池沢道男，佐久間芳樹<sup>A</sup> A物質・材料研究機構）

昨年までの研究で、GaAs中の窒素等電子トラップに束縛された励起子が量子ドットに閉じ込められた励起子と同程度の長い位相緩和時間を示し、区別のつかない光子の発生に有用であることが分かってきた。そこで、一つの等電子トラップから引き続いて発生させた2つの光子を干渉させ、光子の不可弁別性を評価した。発光中心は、我々がNxセンターと呼んでいる明るい発光中心を用いた。発光寿命と位相緩和時間は温度 5 K でそれぞれ 350 ps と 800 psであった。2光子干渉のために、試料を 2 ns だけ離れたパルス対で非共鳴励起した。発光はシングルモード光ファイバーで非対称マイケルソン干渉計に送られ、2 ns 間隔で連続して発生した2光子は、ある確率でビームスプリッター上に同時入射する。この際、2光子が区別がつく場合と区別がつかない場合を比較できるように、干渉計の一方のパスに半波長板を挿入してある。実験の結果、偏光を平行にしてどちらのパスを通ったか分からなくした場合のみ、遅延時間ゼロに明瞭な窪みがみられた。この窪みの大きさから光子のindistinguishabilityを求めると、0.25 ほどであった。これは非共鳴励起された量子ドットの典型的な値と同程度である。また、励起パルスの時間間隔を伸ばしても、ほとんど変化が見られなかった。理想値からのずれは、非共鳴励起のため自由キャリアが生成され、それらによる位相緩和メカニズムが早い時間領域で顕著に起こっているためではないかと考えられた。

(2) フォトニック結晶と結合させた等電子トラップからの単一光子発生（池沢道男，佐久間芳樹<sup>A</sup>，迫田和章<sup>A</sup>，杉本喜正<sup>A</sup>，<sup>A</sup>物質・材料研究機構）

2次元フォトニック結晶を用いた微小共振器を単一の等電子トラップの周りに作製し、パーセル効果を利用した発光寿命の短縮のための研究を行った。これまでに研究例のある量子ドットと比べて、エネルギーのそろった等電子トラップでは、再現性良く共振器モードと結合させることが期待できる。この手法により発光寿命の大幅な短縮が実現できれば、フーリエ変換限界の単一光子パルスに達する可能性があり、より明瞭な2光子干渉が期待される。

GaAs:N中のNN<sub>A</sub>窒素等電子トラップに共鳴波長を合わせた2次元フォトニック結晶構造を作製し、低温における発光スペクトルにキャビティーモードに起因すると考えられる鋭いピークを多数観測した。これまでは、発光中心の密度が高かったために、複数個の発光中心がキャビティーモードと結合しており、アンチバンチングは見られたものの単一光子性が悪かった。本年度、より希薄ドープした試料を用いたところ、これまで観測されていたピークよりもさらに狭い、少数個の発光ピークが共振器モードと考えられる波長範囲内に観測された。各々のピークは強いアンチバンチングを示し、これらが単一の発光中心に起因することが確認された。

パーセル効果が起こっているかどうかについては、発光の減衰時間が確かに速くなっていることが観測されているものの、キャビティーを形成していない未加工領域の発光減衰時間も同様に速くなっているため、観測された短い発光寿命にパーセル効果がどの程度寄与しているか慎重に検討し

なければならない。さらに、微細加工によるダメージも高速の非発光過程を引き起こす可能性もある。そのため、キャビティーモードをガスの吸着によってシフトさせ、発光中心との結合を実験中に調整できるような機構を導入した。これまでのところ、窒素ガスの吸着で、波長にして2~3 nmの長波長シフトが確認されている。今後、これを用いて、パーセル効果の寄与を明らかにする予定である。

### (3) 時間分解スピン回転をプローブとした高速電子移動の研究 (舛本泰章)

化学的に生成された量子ドットへの電子や正孔のドーピングは、重要な課題である。従来はタイプII型のシェルを形成することによってのみ電子や正孔のドーピングが行われていたが、本研究では量子ドットの表面に電荷アクセプター(受容体)を化学的に結合させたり、配置したりすることで光励起後に過渡的に量子ドットへ電子や正孔のドーピングを行い、これを時間分解ファラディ回転信号の強度により電子と正孔の異なるスピン回転周波数を電子か正孔かを同定してドーピングの程度を調べることに成功した。量子ドット中に電子が存在すると、室温・横磁場でフェムト秒時間分解ファラディ回転信号中に、電子スピンの回転を反映した振動構造が観測される。ファラディ回転信号中の非振動成分は、正孔スピンの強い方向異方性を反映して励起子のスピン分極と同定され、CdS量子ドットに比べてCdS量子ドット・電荷アクセプター複合系ではわずかに減衰が速くなり、CdS量子ドット・正孔アクセプター複合系では減衰が大幅に速くなる。CdS量子ドットが分子リンカーを介してTiO<sub>2</sub>電子アクセプターに結合している時には、電子スピンの回転信号は増強され、スピン緩和時間は室温でもT<sub>2</sub>\*=450psまで長くなる。このとき、CdS量子ドット中に光励起された電子・正孔対から電子のみがTiO<sub>2</sub>に移り、励起レーザーパルス列の次のレーザー光パルスが量子ドットを励起したときまでかなりの数のCdS量子ドット中に正孔が残留し、この中に電子1つと互いに反平行なスピンをもった2つの正孔が結合した正のトリオンが形成される。正のトリオンのスピンと同じとなる電子スピンの回転は前の光励起の後に残留した正孔から正のトリオンへの光励起遷移により開始される。量子ドットを光励起後に過渡的に正孔をドープすることで電子スピンの回転信号を増強することが示された。

## 【2】表面プラズモンダイナミクス・プラズモニクス (久保 敦)

### (1) フェムト秒表面プラズモン波束の変形の詳細な計測と解析 (中村、久保)

分散媒質中を伝搬する光パルスは、群速度分散(2次分散)のためにパルス幅が広がり、さらに、高次分散の影響により包絡線の形状が大きく変形する。このようなパルスの変形は幅広いスペクトル成分を有する超短パルス光で特に顕著である。パルスの変形は光通信の最大帯域を制約し、また光電場の尖頭値を低減させるため、特に光ファイバー光学やレーザー工学、非線形光学等の観点から多くの研究がなされてきた。電磁光学に基づくパルスの解析解は2次分散まで考慮した場合が一般的に知られているが、これらの解析ではパルスの「時間応答」を記述したものが大部分であり、「空間分布」についての報告は理論・実験ともほとんどない。しかし、時間分解顕微鏡法を用いることで伝搬する超短パルスの「空間分布」を観察し、パルス形状の変形を定量的に解析することが可能になる。本研究では、光パルスと性質が類似する表面プラズモン(Surface Plasmon: SP)波束をAu表面に励起し、10fsパルス対による時間分解顕微鏡法により、伝搬の様子を可視化した。特に、フェムト秒時間領域における位相情報をも含めたSP波束の変形に注目し、伝搬に伴う搬送波周波数の変化(チャープ)の発現や波束の空間的広がり、包絡線形状変化の空間的非対称性に注目し評価を行った。これらの波束変形は高次分散を考慮することで定量的に解釈されることが示された。なお本研究での試料は筑波大学微細加工プラットフォームで製作した。

### (2) 伝搬形表面プラズモン波束とナノスケール共振モードとの相互作用 (大竹、久保)

次世代情報処理デバイスであるプラズモニクデバイスにおいては、回路内の各要素・素子間の信

号伝達は伝搬型表面プラズモンポラリトン (SPP) により行われる。今回、パルス状 SPP と、光波長より十分に小さいナノスケールプラズモニック素子との超高速時間領域における相互作用を模擬するため、Au 薄膜上に一辺 100 nm の平面型プラズモンキャビティを作成し、これにパルス幅 10 fs の SPP 波束を入射して共鳴励起を行い、キャビティが励振される様子を時間分解顕微鏡法により観察した。10 fs レーザーを光-SPP 結合部とキャビティを含む試料表面に照射し、SPP 波束の動きとキャビティの励振を動的に可視化した。ポンプ-プローブ遅延時間を励起レーザー光の 1 周期分増大させる間にキャビティは 1 回振動し、キャビティは伝搬型 SP の入射により共鳴的に励振される様子が確認された。なお本研究の試料作製は NIMS 微細加工プラットフォームで行った。

### (3) 通信帯波長 1.55 $\mu\text{m}$ フェムト秒表面プラズモンのダイナミクス (村上、久保)

表面プラズモンポラリトン(SPP)を情報伝達の媒体に用いる「プラズモニックデバイス」の実装化にあたっては、実用が先行するフォトニックデバイスの使用波長域 (光通信波長帯:  $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$ ) との整合が求められる。また、プラズモニックデバイスの超広帯域な動作を実現するため、超高速時間領域におけるプラズモン信号の測定法を確立し、信号伝搬の様相や能動素子との相互作用について理解することが必要である。本研究では時間分解顕微鏡法を用いた光通信帯表面プラズモンの動的な観察法の構築を目的とし、1.55  $\mu\text{m}$  フェムト秒レーザーを用いたストライプ型 Au プラズモン導波路への SPP の励起、および時間分解顕微鏡法による可視化を行った。レーザー光源はチタン・サファイアフェムト秒再生増幅器の出力で励起した光パラメトリック増幅器のシグナル光 (110 fs, 1.55  $\mu\text{m}$ , 1 kHz, 60  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ ) を使用した。時間分解像から決定される SPP 波長、SPP 群速度は分散曲線から見積もられる値と良い一致を示した。なお本研究の試料作製は NIMS 微細加工プラットフォームで行った。

### (4) 表面プラズモンの非線形増幅 (松本、尾島、久保)

2003 年に Stockman らにより提唱された、反転分布した利得媒質と表面プラズモンのモードを空間的に重ねることで、誘導放出によりコヒーレントなプラズモン増幅がなされるとする SPASER (surface plasmon amplification of stimulated emission of radiation) 機構は、SP 信号の増幅や非線形な振幅変調 (スイッチング) を実現する方法として高く注目され、プラズモニックナノレーザーなどの微小光源や能動的な信号変調を実現するための指導原理になっている。クレッチマン型全反射減衰測定装置を用い、可視光域 (波長約 600 nm) で SPASER 機構による反射率変調の計測を行った。利得媒質層への光ポンピングに伴い表面プラズモンが増強され、これに伴いプローブ光の反射率変調される現象が確認され、当測定手法が表面プラズモン増幅度の定量的評価や、利得媒質物質の選定、最適な光ポンプ強度の調査などに用いられることを確認した。加えて、波長 1.55  $\mu\text{m}$  帯レーザーをプローブ光とする同様の計測装置も構築し、通信波長帯表面プラズモンの光増強の評価システムを構築した。なお本研究の試料作製は NIMS 微細加工プラットフォームで行った。

### (5) カルコゲナイド超格子の光誘起相転移と光学変調素子への適用 (杉山、久保)

$[(\text{GeTe})_2(\text{Sb}_2\text{Te}_3)]$ 超格子 (以下 GST 超格子) を絶縁体/金属層構造と共に積層化した、金属-絶縁体相転移物質 (Metal-Insulator-Phase transition material; MIP) 積層型のプラズモニック信号変調素子の開発を目指し、FDTD 法による素子形状のシミュレーションならびに通信帯近赤外光の変調実験を行った。Au/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/GST 超格子積層膜に集束イオンビームエッチングによるナノ加工を施して作製した、光と GST 層の相互作用長がわずか 40nm の試料で、波長 1.55 $\mu\text{m}$  光の透過強度に最大 20% の変調を得た。相転移に伴う GST 超格子の複素屈折率変化は、同組成の GeSbTe 合金に比べて数倍程度も大きい。光学定数の変化は光の減衰や閉じ込めを複合的に変化させ光変調機能を発現することが、電磁場シミュレーションから示唆された。本研究は産総研グループを代表とする CREST 研

究であり、産総研ナノエレクトロニクス部門から超格子試料の提供を受け、追加加工を筑波大学微細加工プラットフォームおよびNIMS 微細加工プラットフォームで行った。

(6) カルコゲナイド超格子のプラズモン励起のためのパルス中赤外光源開発 (伊藤、久保)

[(GeTe)<sub>2</sub>(Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>)]超格子の有するトポロジカル物性から予測されるディラック・プラズモンの励起/観察を行うため、波長可変なフェムト秒パルス中赤外光源の開発を行った。2波長の近赤外パルスレーザー光の差周波発生 (DFG) により 4~10 μm 程度の範囲で波長可変なパルス光を発生する。フェムト秒再生増幅器 (100 fs, 1 kHz)、光パラメトリック増幅器から波長可変な2つの近赤外パルス、シグナル光、およびアイドラー光を取り出し、両者の DFG により中赤外パルスを発生する光学系の構築を行った。EKSMA OPTICS 社製 AgGaS<sub>2</sub> 結晶を DFG 結晶に用いて発生した波長 5.6 μm の中赤外パルスを PbSe 光導電素子で測定し、繰り返し周波数 1 kHz の安定的な中赤外パルスの発生を確認した。

<論文>

(査読論文)

1. P. Jing, W. Ji, X. Yuan, S. Qu, R. Xie, M. Ikezawa, J. Zhao, H. Li, Y. Masumoto: "Ultrafast Carrier Dynamics and Hot Electron Extraction in Tetrapod-Shaped CdSe Nanocrystals", *Appl. Mater. Interfaces* **7**, 7938 (2015).
2. Y. Masumoto, H. Umino, J. Sun, E. Suzumura: "Enhanced electron spin rotation in CdS quantum dots", *Physical Chemistry Chemical Physics* **17**, 25278 (2015).
3. Q. Sun, H. Yu, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, "Dissecting the Few-Femtosecond Dephasing Time of Dipole and Quadrupole Modes in Gold Nanoparticles Using Polarized Photoemission Electron Microscopy", *ACS NANO* **10**, 3835-3842 (2016)

(学位論文)

1. 修士論文 鈴木 諒、「CdSe Nanoplatelets の合成と光学スペクトル」
2. 修士論文 山田 雄太、「GaAs フォトニック結晶共振器中の窒素不純物発光中心」
3. 修士論文 杉山 岳、「(GeTe)/(Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>)超格子の光誘起相転移を用いたナノスリット構造の光導波変調」
4. 卒業論文 Abdul Karim、「プラズモン共鳴のための CuInS<sub>2</sub> 量子ドット合成」
5. 卒業論文 伊藤 祥太、「レーザー励起蛍光顕微鏡の開発と AgGaS<sub>2</sub> 結晶を用いた中赤外パルス光の発生」
6. 卒業論文 大竹 祐香、「フェムト秒表面プラズモン波束による平面型ナノキャビティの共鳴励起」
7. 卒業論文 尾島 隆也、「光通信波長帯 1.55 μm 光を用いた Au 薄膜の Kretschmann 配置型反射率測定」

<書籍>

1. 舛本泰章 他 89 名 (編集者: 木下修一、太田信廣、永井健治、南不二雄)「発光の事典 基礎からイメージングまで」朝倉書店、2015 年、788 ページ
2. 舛本泰章 「量子ドットの基礎と応用」裳華房、2015 年、312 ページ

<国際会議>

1. M. Ikezawa, N. Yasuda, L. Zhang, Y. Sakuma, K. Sakoda, and Y. Masumoto: "Resonant Excitation of Single Luminescence Centers in GaAs:N", 2015 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2015) (札幌, 2015.9)
2. M. Ikezawa, Y. Yamada, Y. Sakuma, L. Zhang, Takeda, N. Ikeda, Sugimoto, K. Sakoda, and Y. Masumoto: "

Non-classical Light Generation from Isoelectronic Traps Embedded in Photonic Crystal Microcavities", the joint conference of 21st International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-21) and 17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS-17) (仙台, 2015.7)

3. M. Ikezawa: "Single Photon generation from nitrogen isoelectronic traps in III-V semiconductors", Korea-Japan Joint Symposium on Semiconductor Physics and Technology - Ultrafast Nanophotonics (韓国Daejeon, 2015.4) [招待講演]
4. A. Kubo, "Evolution of surface plasmon wave packets in femtosecond time-domain", MANA-DIPC Workshop 'Nanostructures and Complex Functional Materials', 2015年8月27日, DIPC, San Sebastian, Spain [招待講演]
5. A. Kubo, "Femtosecond imaging of surface plasmon wave packet by using time-resolved fluorescence microscopy", The 9th International Symposium on Ultrafast Surface Dynamics, 2015年5月26日, Resort Hotel Laforet Biwako, Siga, Japan
6. Q. Sun, H. Yu, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, "Exploring plasmonic hot spots and their dynamics by photoemission electron microscopy", Pacificchem 2015, 2015年12月15~20日, Honolulu, Hawaii, USA
7. H. Yu, Q. Sun, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, "Fano resonances on gold nano dolmen structures probed by photoemission electron microscopy", Pacificchem 2015, 2015年12月15~20日, Honolulu, Hawaii, USA

#### <国内会議>

1. 張遼、池沢道男、佐久間芳樹、迫田和彰、舛本泰章：「GaAs中の窒素発光中心から発生した光子の量子干渉」 応用物理学会 第63回応用物理学会春季学術講演会（東工大、2016年3月）
2. 池沢道男：「GaAs中の窒素発光中心を用いた単一光子源」 第1回 光・量子計測シンポジウム（つくば、2015年9月）
3. 池沢道男：「半導体量子ドットのレーザー分光～量子光源・太陽電池応用に向けて」 第1回 光・量子計測シンポジウム（つくば、2015年9月）
4. 久保敦, "プラズモニクスと伝搬型表面プラズモン", 第5回光科学異分野横断萌芽研究会, 2015年8月4日, ホテル竹島 [招待講演]
5. 久保敦, "非同径干渉時間分解蛍光顕微鏡法による局所励起表面プラズモン波のフェムト秒映像", 国際光年記念シンポジウム, 2015年4月21日, 東京大学安田講堂
6. 中村圭佑, 久保敦, "フェムト秒表面プラズモン波束の変形・減衰ダイナミクス", 国際光年記念シンポジウム, 2015年4月21日, 東京大学安田講堂
7. 杉山岳, 久保敦, 中野隆志, "金属-絶縁体-(GeTe)(Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>)超格子型光変調素子", 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 2015年9月15日, 名古屋国際会議場
8. 中村圭佑, 久保敦, "フェムト秒表面プラズモン波束のチャープ広がり時間分解観察", 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 2015年9月15日, 名古屋国際会議場
9. 久保敦, "極小ポンプ-広域プローブ型干渉時間分解顕微鏡法", 「新しい光科学の創成とナノ情報デバイスへの展開Ⅲ」研究会, 2015年10月15日, 東北大学電気通信研究所
10. 中村圭佑, 久保敦, "フェムト秒時間領域における高次分散に起因する表面プラズモン波束の変形の解析", 第63回応用物理学会春季学術講演会, 2016年3月20日, 東京工業大学大岡山キャンパス
11. 村上亮輔, 池沢道男, 久保敦, "1.55 μm帯フェムト秒表面プラズモンの二光子蛍光顕微鏡観察", 第63回応用物理学会春季学術講演会, 2016年3月20日, 東京工業大学大岡山キャンパス
12. 大竹祐香, 久保敦, 笠谷岳士, 宮崎英樹, "フェムト秒表面プラズモン波束による平面型ナノキャビティの共鳴励起" 第63回応用物理学会春季学術講演会, 2016年3月21日, 東京工業大学大岡山キ

キャンパス

13. H. Yu, Q. Sun, T. Oshikiri, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, “Spectral response and spatial evolution of plasmonic near field in coupled gold nanostructures”, 日本化学会第96回春季年会, 2016年3月24~27日, 同志社大学京田辺キャンパス

<外部資金>

1. 科研費 基盤(C), 研究代表者, H26~28, 「時間分解スピン回転をプローブとした高速電子移動の研究」: 舛本泰章
2. 光科学技術研究振興財団 研究助成, H26~27 「半導体中の等電子不純物の共鳴励起による超コヒーレントな光子の発生」: 池沢道男
3. 科研費 若手(A), 研究代表者, H26~29, 「通信帯フェムト秒表面プラズモン波束の顕微映像化と非線形増幅」: 久保敦
4. 科学技術振興機構 CREST, 研究担当者, H26~H31, 「カルコゲン超格子を用いたアクティブプラズモニクス」: 久保敦
5. 学術指導契約, コニカミノルタ株式会社: 久保敦