

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	13名
卒研究生	6名

【1】0次元半導体の分光研究（池沢道男、舛本泰章）

(1) フォトニック結晶による単一窒素等電子トラップの発光寿命制御（池沢道男, 舛本泰章, 佐久間芳樹^A, 迫田和彰^A, 杉本喜正^A, ^A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（Photonic Crystal Cavity, PCC）を単一の等電子トラップの周囲に作製し、パーセル効果を利用した発光寿命の短縮の研究を行った。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できるかと期待される。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。

昨年度までに、GaAs:N中の NN_A 窒素等電子トラップに共鳴波長を合わせた2次元PCC構造を作製し、低温における発光スペクトルに格子定数に依存した波長をもつ鋭いピーク群を観測していた。これらのピーク1つ1つが単一の発光中心に対応していることは、光子相関測定からすでに明らかになっている。このようなピーク群について、時間相関単一光子計数法によって発光寿命を調べたところ、ピーク群の中でも共振器モードの中心に近いものほど寿命が短く、離調の増大とともに発光寿命が長くなっている傾向があることが確認された。同様の傾向は複数のフォトニック結晶共振器で確認されている。これは、パーセル効果による寿命短縮が起こっているという解釈と矛盾しない。最も短い発光寿命は400 ps程度であり、共振器構造を持たない希薄な NN_A 窒素等電子トラップについて観測されていた5~6 nsという発光寿命に比べて大幅に短縮されている。

また、5K程度に冷却したPCC試料の周りに窒素ガスを導入し、PCCに吸着させることによって共振器モードの波長を2~3 nmだけ長波長シフトさせる手法を用いて、発光中心と共振器モードとの結合の強さを変化させたところ、期待通りの寿命の変化が観測された。これらのことから、単一の窒素発光中心の発光寿命をPCCによるパーセル効果によって制御できたことが確かめられた。

(2) 単一窒素等電子トラップの電荷制御（池沢道男, 佐久間芳樹^A, ^A物質・材料研究機構）

様々な半導体量子ドットについて、量子ドットの電荷状態を印加電圧によって制御する技術が確立しており、正や負の様々な荷電励起子状態が発光スペクトル中に観測されている。量子ドットに類似の系であるGaAs:N中の窒素発光中心では、NがAsを置換しているものと考えられ、電子親和力の差に起因して、電子を近距離的な力で引き付けるとされている。このような等電子不純物の電荷状態が量子ドットと同様に制御できるかどうかは基礎と応用両面から興味深い。GaAs中の窒素発光中心についても、近年、負の荷電励起状態が観測されたという報告があったことから、発光中心の荷電状態の制御が期待できる。

我々は、電荷制御量子ドットに用いられる試料構造を用いて、単一発光中心の電荷制御を試みた。nドープ層から100 nm程度離れた位置に窒素デルタドープ層を形成し、その後に20 nmのGaAs層、100 nmのAlGaAsブロッキング層、20 nmのGaAs層を成長させ、表面にはITO透明電極をスパッタ製膜した。裏面はオーミックコンタクトとした。そのような試料について顕微発光スペクトルを観測したところ、印加電圧に依存したピークの出現、消失が観測された。GaAs:Nでよく見られる窒素発光中心の発光スペクトルは微細分裂し、それらが互いに垂直な直線偏光を持っている。しかし、この試料構造を用いると、ある電圧下でそのような微細分裂が見られないピークが現れる

ことが分かった。電子や正孔を余計に一つ持つ荷電励起子では、微細分裂が消失することが知られており、今回の観測は、あるバイアス電圧下で荷電励起子状態が形成されていることを表しているのではないかと解釈することができる。今後、試料に磁場を印加する事によって、対応する中性励起子状態のエネルギーや、電荷の正負などについて情報が得られることが期待される。

(3) 窒素等電子トラップのスピンの研究 (池沢道男, 佐久間芳樹^A, ^A物質・材料研究機構)

これまで、希薄なN等電子トラップのスピンの寿命に関する研究はあまり行われて来なかった。この材料は、単一光子源として有用な事から、スピンと光子の変換の観点からも、そのスピン特性を知ることは重要である。そのため、GaAs/AlGaAs量子井戸の中央に窒素デルタドープ層を形成した試料を作製した。このような試料では、GaAs量子井戸の元々の発光はほぼ見られなくなり、窒素由来の発光が支配的になるため、高速に光励起キャリアが等電子トラップに束縛されていると考えられる。量子井戸では重い正孔と軽い正孔の縮退が解けているため、適切な波長による円偏光励起で、スピンの100%揃った電子を励起することが出来、これらが高速に不純物窒素にトラップされる。この発光の円偏光度を調べる事で、スピンの寿命に関する情報が得られる。その結果、低温では200 ps程度のスピン寿命が観測された。他グループからは、似た材料系で、温度上昇とともにスピン寿命が長くなり、1ns超に達したという報告があることから、これらの温度依存性を調べることは興味深い。

(4) セレン化カドミウムナノプレートの合成と光学測定 (池沢道男)

近年、CdSe, CdS, CdTeなどのカドミウムカルコゲナイドのナノメートルサイズの板状結晶を化学的手法で合成できるようになってきた。これらは原子層レベルでフラットな構造になっており、原子層厚さに対応した離散的な吸収スペクトル変化が見られる。また球形の量子ドットに比べて非常に高速の応答が期待されている。このようなナノプレートを超高速の単一光子発生に利用するために、CdSeナノプレート試料合成と、分離、顕微PL測定を進めた。光学スペクトルからは、合成した試料は6ML厚に良く揃っており、7ML以上の厚さのナノプレートはほぼ存在しておらず、良好な試料が得られていることが分かった。ナノプレートは適当な化学処理を施してスタックを解除した上で基板上にドロップキャストして顕微発光観察を行った。発光寿命には室温においても、溶液中のナノプレートには見られない、300 psを切るような速い減衰成分が観測されており、これらは非発光過程によるものと考えられる。今後、このような非発光過程を抑制しつつ、孤立ナノプレートを観測可能な程度に希薄に分散させる手法の開発が必要である。

【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) 10 フェムト秒表面プラズモン波束の位相・包絡線形状の空間領域における変化の研究 (久保敦)

光パルスの変形や伝搬速度については多くの議論があり、古くは1914年に Brillouin と Sommerfeld により予測された分散媒質中を伝搬するパルス信号に付随する先駆信号の観測や、最近では負の屈折率を持つメタマテリアル中での負の群速度の実現などの報告がある。波動光学の基本となる均一で等方的な誘電媒質中を伝搬する光パルスの変形に関しては、媒質の2次分散までを考慮した場合の解析解が一般的に知られている。しかし、このような光パルスの伝搬に関する研究においては、その大部分が空間中のある座標に固定された観測点において、「時間領域」における光パルス形状を解析したものであり、パルスの空間形状に関わる「空間領域」の観点から行われた研究は理論・実験とも非常に限定的である。我々は時間分解顕微鏡法を用いることで、金属-誘電体界面を伝搬する10 フェムト秒表面プラズモン (SP) 波束の「空間領域」における波束形状を観察し、光波束の位相

および形状の変化に関する定量的な解析を可能にした。SP 波束の搬送波位相と包絡線形状の変化は、SP 波束が伝搬する導波空間の分散に起因する。そのため、本研究の議論は、一般に分散媒質中を伝搬する光パルスに適用でき、光波束の空間的広がりがある性質について新たな知見を与える。

(2) プラズモニック結晶導波路における 10 フェムト秒表面プラズモン波束の伝搬 (久保敦)

SPP の分散関係は導波路構造をナノスケールの精度で人工的に形成することにより様々に変調でき、その結果極端に大きな波数 (スロー・ライト) や負の群速度などの興味深い状態を作り出すことができる。これらの特徴から次世代ナノスケールデバイスへの応用が見込まれており、金属表面に MIM 構造、金属ストライプ構造などを作製することで SPP の伝搬を制御する研究が多く行われている。フォトニック結晶の考え方を応用したプラズモニック結晶では特定の波長帯の SPP に対してバンドギャップを形成すること、プラズモニック結晶中の構造を取り除くことで導波路のようにふるまうこと、バンド端でスローライトが実現すること、等が知られている。本研究ではプラズモニック結晶中に構造を取り除いた領域 (欠陥) を設けることで作製したプラズモニック結晶導波路に SPP を伝搬させ、10 fs パルス対を用いたポンプ-プローブ法に基づく時間分解二光子顕微鏡観察を行い、プラズモニック結晶導波路における SPP 波束のダイナミクスを時間分解イメージングした。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。

(3) 光通信帯波長 1.55 μm フェムト秒表面プラズモンのダイナミクス (久保敦)

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」を実装化するには、実用化が先行するフォトニックデバイスで用いられる波長域 (光通信波長帯: $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$) との整合が求められる。超広帯域なデバイス動作を実現するためには、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、信号伝搬の様相について理解することが必要である。また、励起光のフォトンエネルギーを近赤外域まで下げることで、金属酸化物などより多くの物質への SPP 励起が可能になることや、SPP の伝搬長が大きく伸びるといった物性論的な観点からも、通信波長域における SPP 励起は注目されている。そこで、本研究では時間分解顕微鏡法を用いた 1.55 μm 帯表面プラズモンの動的な観察法の構築と Au 導波路を伝搬する SPP 波束の動的特性の評価を目的とし、1.55 μm フェムト秒レーザーパルスの自己相関法による時間幅の評価、SPP 導波のための Au 導波路の構築と 1.55 μm 光で二光子蛍光発光する蛍光薄膜の形成、ならびにそれを用いた SPP の二光子蛍光顕微鏡法による可視化・時間分解観察を行い、SPP の群速度や伝搬長、波数の時間発展を評価した。なお本研究の試料作成は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。

(4) 表面プラズモンの誘導放出による増幅 (久保敦)

金属と反転分布した利得媒質からなる積層構造の界面においては、励起子から表面プラズモン (SP) へのエネルギー移行によりコヒーレントに SP が増幅される SPASER (SP amplification by stimulated emission of radiation) が生じる。この現象は SP の損失補償やナノレーザー開発の基本原則となるもので高く注目されている。SPASER の最初の実験的報告は、プリズムに蒸着した Ag 薄膜上に色素溶液セルや色素ドープ樹脂を配した試料を用い、クレッチマン配置における反射率の色素ポンプに伴う変化や、色素ポンプで誘起される SP 輻射光のスペクトル幅の狭窄化として観測された。本研究では、角度 (波数) 分解分光法を用い、パルスレーザーで励起 (ポンプ) した Dye-PMMA/Ag/プリズム積層構造において、Ag/Dye-PMMA 界面の表面プラズモン、および Dye-PMMA 層内の多重な光導波モード、それぞれの共鳴角に強く指向した輻射を測定した。これらは増幅自然放出 (Amplified spontaneous emission : ASE) の特徴であるスペクトルの狭窄化を示し、輻射光強度がポンプ光強度に対して非線形的に増大する閾値を示した。特に SP については、光ポンプ色素層から

の誘導放出による SP 増幅 (SPASER) の実現が確認された。

(5)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, 中野隆志^A, ^A産業技術総合研究所)

GeTe/Sb₂Te₃ 超格子 (GST) へのパルス電圧印加により繰り返し RESET-SET 相転移が可能なプラズモニク光変調デバイスの製作を行った。Au/SiO₂/GST 多層膜にスリット状の光入力部と電極パッドを、集束イオンビームエッチング/デポジション法により作製した。入力した光信号はスリット部でプラズモンに変換され、Au/SiO₂/GST 層を導波する。パルス電圧印加/レーザー照射その場観察装置により、電圧パルス (V_{set}) 印加に伴うリード抵抗の変化を計測し、iPCM の動作に類似した RESET-SET-RESET 動作を捉えることに成功した。これにより、ミクロンサイズの GST 面積を有するプラズモニクデバイスの繰り返し駆動が可能であることの証左を得た。なお、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) GeTe/Sb₂Te₃ 超格子スピン偏極プラズモン観察用中赤外ポンプ-プローブ光学系の開発 (久保敦, 中野隆志^A, ^A産業技術総合研究所)

GeTe/Sb₂Te₃ 超格子のプラズモン励起・観察のための波長可変フェムト秒中赤外光源の構築を進めた。本年度は光学系の改良による差周波発生 (DFG) の高効率化を実施し、また中赤外/近赤外分光器を用い中赤外パルスの分光学的な評価を行った。この中赤外パルスをプラズモン励起のポンプパルスに、波長 800nm の近赤外フェムト秒パルスをプローブパルスに用いた時間分解ポンプ-プローブ法により、プラズモン場を和周波過程により可視光域にアップコンバートし高感度 CCD により検出する。DFG による中赤外パルスは波長 3~8 μm の範囲で発生し、時間幅は約 110fs であった。この範囲で波長は連続的に可変であり、0.35 μJ/pulse の出力が得られる。ポンプパルスが波長可変であることから、プラズモンモードの分散関係など分光学的な調査までも行う目処が立った。

<論文>

(査読論文)

1. M. Ikezawa, L. Zhang, Y. Sakuma, and Y. Masumoto: "Quantum interference of two photons emitted from a luminescence center in GaAs:N", (to be published in Appl. Phys. Lett.).
2. H. Yu, Q. Sun, J. Yang, K. Ueno, T. Oshikiri, A. Kubo, Y. Matsuo, Q. Gong, H. Misawa, "Near-field spectral properties of coupled plasmonic nanoparticle arrays", Optics Express, **25**, 6883-6894 (2017).
3. H. Yu, Q. Sun, J. Yang, K. Ueno, T. Oshikiri, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, "Exploring Coupled Plasmonic Nanostructures in the Near Field by Photoemission Electron Microscopy", ACS Nano, **10**, 10373-10381 (2016).
4. T. Sugiyama, A. Kubo, T. Nakano, "Optical Modulating Device using Phase Transition of [(GeTe)/ (Sb₂Te₃)]₂₀ Superlattice", Extended Abstracts of the 2016 International Conference on Solid State Devices and Materials, 863-864 (2016).
5. 久保敦, "表面プラズモンのフェムト秒時間・ナノメートル空間分解イメージング", 光アイアンス, **27**, 14-18 (2016).

(学位論文)

1. 修士論文 佐藤 浩介, 「GaAs 中の単一窒素不純物発光中心の電荷制御」

2. 修士論文 吉岡 篤志、「GaAs 中の希薄窒素等電子トラップのスピン特性」
3. 修士論文 王 若曦、「フォトニック結晶共振器による単一等電子発光中心の発光寿命制御」
4. 修士論文 中村 圭佑、「時間分解顕微鏡法を用いたフェムト秒表面プラズモン波束の位相・包絡線形状の空間領域における変化の研究」
5. 修士論文 松本 実夏、「Ag/利得媒質積層膜における表面プラズモンの誘導放出による増幅」
6. 修士論文 村上 亮輔、「Au 導波路における 1.55 μm 帯フェムト秒表面プラズモンポラリトンの動的特性評価」
7. 卒業論文 阿部 美咲、「[(GeTe)₂(Sb₂Te₃)₂₀ 超格子の相転移を用いたプラズモニック導波モード変調」
8. 卒業論文 大野 裕樹、「二次元プラズモニック結晶導波路を用いた表面プラズモンポラリトンの伝搬制御」
9. 卒業論文 佐藤 耀至、「波長可変フェムト秒中赤外パルスの時間分解ポンプ - プローブ光学系の開発」
10. 卒業論文 宮崎 純、「光通信波長帯表面プラズモンパルスの 2 光子蛍光顕微鏡法によるフェムト秒時間分解観察」
11. 卒業論文 貝塚 秀樹、「窒素をデルタドープした GaAs 量子井戸の光学特性」
12. 卒業論文 山下 勇真、「スペクトロメータを用いた干渉法による位相緩和時間測定」

<書籍>

1. Y. Sakuma, M. Ikezawa, and L. Zhang, in *Micro- and Nanophotonic Technologies*, edited by P. Meyrueis, K. Sakoda, and M. Van de Voorde (Wiley-VCH, Weinheim, 2017) pp. 125-141.
2. 久保敦, 「科学者からのメッセージ “遍歴する研究者”」, p.143-144 「もっと知りたい! 「科学の芽」の世界 Part 5」筑波大学出版会 (2016)

<国際会議>

1. M. Ikezawa, L. Zhang, Y. Sakuma, K. Sakoda, and Y. Masumoto: " Study on coherence time and indistinguishability of single photons from nitrogen impurity centers in GaAs", 9th International Conference on Quantum Dots (QD 2016) (韓国済州島, 2016/05).
2. A. Kubo, "Dissecting deformation dynamics of femtosecond surface plasmon wave packet", OSJ-OSA Joint Symposia, 2016 年 10 月 30 日, Univ. of Tsukuba, Tokyo, Japan [招待講演]
3. T. Sugiyama, A. Kubo, T. Nakano, "Optical Modulating Device using Phase Transition of [(GeTe)₂(Sb₂Te₃)₂₀ Superlattice]", SSDM2016, 2016 年 9 月 28 日, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan

<国内会議>

1. 王若曦; 池沢道男; 山田雄太; 佐久間芳樹; 武田寛之, 池田直樹, 杉本喜正, 迫田和彰, 舛本泰章:「フォトニック結晶共振器による単一等電子発光中心の発光寿命制御」 応用物理学会 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 (パシフィコ横浜、2017 年 3 月)
2. 王若曦; 池沢道男; 山田雄太; 佐久間芳樹; 武田寛之, 池田直樹, 杉本喜正, 迫田和彰, 舛本泰章:「等電子トラップを埋め込んだフォトニック結晶共振器による 単一光子発生と発光寿命制御」 日本物理学会 第 72 回年次大会 (大阪大学、2017 年 3 月)
3. 池沢道男:「GaAs 中の窒素不純物を利用した明るい単一光子源」 第 2 回 光・量子計測シンポジウム (つくば、2016 年 11 月)

4. 久保敦, “「光のパルス」を金属表面やナノ空間に補足して 可視化する - レーザーと電子顕微鏡・光学顕微鏡の組み合わせ”, 日本顕微鏡学会様々なイメージング技術研究部会第4回研究会, 2016年11月20日, ホテル紫雲閣・日立製作所基礎研究センタ〔招待講演〕
5. 久保敦, “フェムト秒時間領域における プラズモン波束の変形と崩壊”, 日本物理学会2016年秋季大会シンポジウム「表面界面ナノ構造のその場観察」, 2016年9月15日, 金沢大学〔招待講演〕
6. 中村圭佑, 久保敦, “フェムト秒表面プラズモン波束の搬送波位相・包絡線形状変化の超高速イメージングによる解析”, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年9月14日, 金沢大学
7. 杉山岳, 久保敦, 中野隆志, “[$(\text{GeTe})_2/(\text{Sb}_2\text{Te}_3)$]超格子の相転移で誘起される金属-絶縁体-超格子型積層膜のナノスリット構造における電磁場モード変調”, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年9月15日, 金沢大学
8. 松本実夏, 久保敦, “Dye-PMMA/Ag/プリズム積層構造の蛍光発光スペクトルの角度分解測定”, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年9月15日, 金沢大学
9. 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MIM型ナノキャビティ励振のダイナミクス”, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年9月15日, 金沢大学
10. 久保敦, “フェムト秒レーザー励起二光子蛍光顕微鏡法によるフェムト秒プラズモン波束の時間・空間ダイナミクス”, 筑波大学プレ戦略イニシアチブキックオフシンポジウム, 2016年11月1日, 筑波大学
11. 久保敦, “物質の2次分散と3次分散は波束をどの様に歪ませるか?”, 分子キラリティー研究センターシンポジウム「光化学の最先端2016」, 2016年11月24日, 千葉大学西千葉キャンパス
12. 松本実夏, 久保敦, “Ag/Rhodamine 系色素積層構造における表面プラズモン・光導波モードの多重波数ASE”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017年3月14日, パシフィコ横浜
13. 村上亮輔, 宮崎純, 池沢道男, 久保敦, “Au 導波路における1.55 μm 帯フェムト秒表面プラズモンポラリトンの時間分解顕微鏡観察”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017年3月14日, パシフィコ横浜

<外部資金>

1. 公益財団法人住友電工グループ社会貢献基金, H28~29, 「半導体ナノ構造の共鳴光励起による区別のつかない光子の発生」: 池沢
2. 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
3. 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
4. TIA 連携プログラム探索推進事業かけはし, 共同研究者, H28, 「材料およびバリア膜・コーティング膜評価のための、吸着・脱離・透過測定装置開発に関する調査研究」: 久保