

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	16名
卒研究生	5名
研究生	1名

【1】0次元半導体の分光研究（池沢道男、舛本泰章）

(1) 単一窒素等電子トラップの偏光異方性（池沢道男, 佐久間芳樹^A, ^A物質・材料研究機構）

GaAs に希薄ドーピングされた窒素不純物による等電子トラップは、数百 ps 程度の短い寿命を持つ明るい単一光子源や、エネルギーが良く揃った単一光子源などとして有用である。我々はこれまで、GaAs(001)面に窒素ドーピングした際に形成される発光中心を主に研究してきたが、その発光スペクトルには微細分裂と偏光異方性が見られるのが一般的であった。他方、GaAs(111)A 面上への窒素ドーピングではシングルピークを示す発光中心が得られるという報告があり、ランダム偏光の光子発生に利用できる可能性がある。そこで、今回、GaAs(111)A 上に窒素ドーピングした試料を用いて、単一発光中心の発光の偏光異方性を調べた。

試料は、MOCVD 法で GaAs (111)基板上に GaAs バッファ層を成長させ、その上に窒素デルタドーピング層を 1~3 層成長させ、GaAs でキャップしたものである。励起には波長 532nm のレーザー光を用い、共焦点光学系で単一の発光中心を選択した。試料温度は 5K である。その結果、(111)面上でも、(001)面に見られる NN_A 発光中心に近いエネルギーを持つピークが観測されたが、(001)面の場合のように、同じエネルギーに繰り返し観測される訳ではなく、エネルギーには比較的大きなばらつきが見られたため、同じ原子配置を持った NN_A 発光中心と結論することが出来なかった。微細構造についても、分裂幅や強度比にいくつかのパターンが見られたが、期待されたようなシングルピークになるものは観測されなかった。他方、(111)面では、微細分裂が伴うものの偏光異方性がほとんど見られない発光中心が少数ながら観測された。このような等方的な発光を示す発光中心は、これまで(001)面の GaAs:N では全く観測されていなかったものであるため、面方位を変えた試料についての単一発光中心の偏光異方性の研究が、応用面からも今後重要になると考えられる。

(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、昨年度までに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、試料に印加したバイアス電圧に依存した単一発光中心のスペクトル変化を観測していた。しかし、原因不明のバックグラウンド発光が重畳するなど、より詳細な研究には問題があった。そこで、今年度はバックグラウンド発光をおさえるべく、構造のパラメータを変更した類似の試料を作製した。n ドーピング層から 30 nm 離れた位置に窒素デルタドーピング層を形成し、その後 20~100 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。昨年度はブロッキング層とド

ープ層が近すぎたため、ポテンシャルの段差部分に蓄積した正孔がバックグラウンド発光の原因ではないかと考えていたが、低温での顕微発光観測の結果、ブロッキング層を遠ざけた試料でもバックグラウンド発光は観測されたため、原因については再検討が必要となった。一方で、バイアス電圧に依存したスペクトルの離散的変化は観測され、この現象の再現性は確認することが出来た。

(3) 窒素等電子トラップの四光波混合測定 (池沢道男, 佐久間芳樹^A, ^A物質・材料研究機構)

区別のつかない光子を得るためには、コヒーレンス時間 T_2 が発光寿命 T_1 の2倍で与えられるフーリエ変換限界値に達している必要がある。これまで、単一発光中心の発光の干渉測定によってコヒーレンス時間を評価してきたが、この方法は簡単であるものの、遅いスペクトル拡散の影響を受けてしまう事が問題であった。我々は、図に示すように、GaAs 中の窒素発光中心に関して、初めて四光波混合(Four-wave mixing, FWM)信号を得ることに成功した。コヒーレンス時間の有力な測定法である FWM 法は信号強度が弱いため、単一光子源として利用可能なような、低密度で存在する発光中心について信号を取得する事はこれまで難しかった。我々は、ヘテロダイン検出法を用いることによって、光学顕微鏡で個別の発光中心を区別できる程度に低濃度のデルタドープ (1 原子層のみの窒素ドープ) 試料について初めて信号を検出することができた。しかし、中段に示すように、位相緩和時間は 60ps 程度であり、より長波長側の発光中心について期待された数百ピコ秒に比べてずっと短い。この結果は、 T_2 が発光中心の種類 (あるいは束縛エネルギー) に強く依存していることを示唆しているのかも知れない。信号が検出できる励起波長に制限があったため、研究期間内には長波長領域の発光中心について測定ができていないが、スペクトル拡散の影響を排除して T_2 が測れる FWM 法が可能になったことは大きな意義がある。

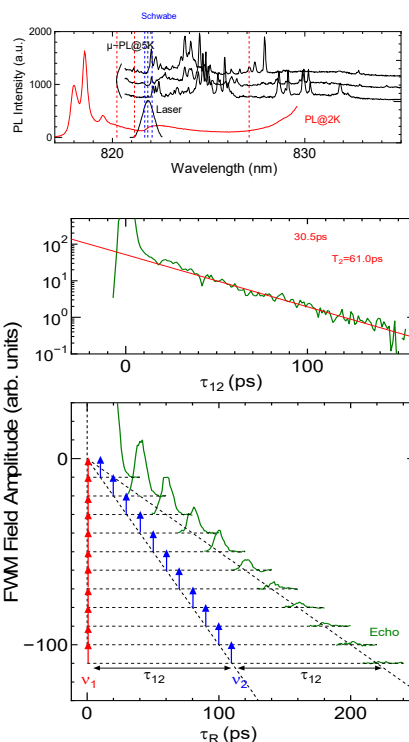


図: (上) 窒素をデルタドープした GaAs 試料の発光スペクトルと顕微発光スペクトル。(中) 波長 822nm のピコ秒光パルスで励起した場合の時間積分 FWM 信号。 T_2 が 60ps 程度と分かる。(下) 時間分解 FWM 信号。↑で示した2つの励起パルスから同じ時間だけ遅れたフォトンエコーが観測されている事が分かる。

(4) セレン化カドミウムナノプレートレットの単一観測 (池沢道男, 舛本泰章)

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 (Nano) 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観測されており、超高速の単一光子発生に利用できる可能性がある。我々は、今年度、室温で単一 CdSe NPL を観測する事に成功した。まず、セレン化カドミウム (CdSe) NPL を化学的に合成し、6 モノレイヤー (ML)、または 5 ML 厚さの CdSe NPLs を得た。透過電子顕微鏡観察では、厚さ 1.8nm 程度、横方向の広がり が 15~20nm 程度の NPLs が積み重なったものが観測されている。適切な化学的処理の後、カバーガラス上に NPLs を分散させ、油浸対物レンズと共焦点顕微鏡を用いた顕微分光を行った。単一 NPL の発光は、単一量子ドットにも共通して見られる

強い明滅現象を示した。さらに、10MHzの50psパルス励起の下でHanbury-Brown and Twiss測定を行ったところ、明瞭なアンチバンチング特性が観測されたことから、このサイズのCdSe NPLからも単一光子が発生していることが確認された。さらに、低温での共鳴励起の実験を進めるために、温度5Kでの顕微観測も行い、温度低下に伴うスペクトルの幅の減少、発光の明滅現象の兆候を観測することが出来た。この系では、低温で巨大振動子効果のために発光寿命の大幅な減少が起こることが期待されており、それを観測することが次のステップである。

(4) 量子リングのコヒーレンス (池沢道男, Kwangseuk Kyhm^A, ^APusan National University)
半導体量子リング(Quantum Ring, QR)はAhanorov-Bohm効果(AB効果)のような他の量子構造には見られないような独特な性質を持つことで注目を集めている。リム高に異方性を持つ火山型の構造のリングでは、鉛直方向の量子数 $k=1,2,3$ の異なる束縛状態が存在する。これにより局在状態の励起子と非局在状態の励起子、さらには励起子分子の発光が観察される。しかし、この量子構造において位相緩和時間(T_2)の研究はあまり行われてこなかった。そこで、単一のQRからの発光の干渉測定を行い、 T_2 を求めた。用いたGaAs QRは分子線エピタキシー法により、AlGaAs上に成長させAlGaAsでキャップされている。QRのサイズは半径~20nm、高さ~10nm程度である。励起光として517nmのレーザー光を用い、マイケルソン干渉計を通した後、焦点距離75cmのスペクトロメータとマルチチャンネル検出器で発光の干渉スペクトルを得た。温度5Kでの単一のQRの発光スペクトル線幅は分光器の分解能以下であり、干渉法が有効に働く。この発光は、そのエネルギーから、励起子が量子リング内に三日月状に局在した状態からの発光と考えられる。干渉の明瞭度は干渉計の光路差の増加とともに指数関数的に減衰し、その時定数から位相緩和時間が約25psと分かった。またコヒーレンス時間が5Kから20Kの範囲において温度に強く依存し、その温度係数は量子ドットのそれと比べて大きい事も分かった。このようにデコヒーレンスが強く起こる原因の一つとして、異なる k 状態間の散乱が考えられる。

【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) ナノキャビティとフェムト秒表面プラズモン波束の相互作用ダイナミクス (大竹, 大野, 伊知地, 久保)

ナノスケールの微細加工技術を駆使することにより、光の振動数の電磁場に対し電氣的/磁氣的共鳴を有する微細構造を集積し、天然物質にはない巨視的な電磁氣的特性(屈折率、透磁率など)を有する「メタマテリアル」と呼ばれる物質群を作製することが可能である。メタマテリアルの構成要素を「メタ原子」と呼ぶ。メタマテリアルが示す特異な光学特性はひとつひとつのメタ原子の電磁波との相互作用の集積の効果であり、メタマテリアルによる自在な光制御を実現する上でメタ原子の光学応答の微視的なダイナミクスの解明は不可欠である。しかしながらほとんどの場合、メタマテリアルの研究は遠隔場(far-field)における光線光学的な計測による光学特性の評価に限られている。

本研究は、入射波が単一のメタ原子と相互作用し変調を生じる過程を微視的に映像化する事を目的とし、金属膜上を伝搬するフェムト秒表面プラズモン波束が同一平面上に形成されたメタ原子に入射し、光学的相互作用を経由して再び波束として出射する様子の時間分解顕微鏡法による映像化を行った。その結果から、単一のメタ原子によりプラズモン波束に生じる位相変調量を実験的に決定することに成功した。メタ原子はAu蒸着膜上に形成した金属-絶縁体-金属(MIM)型ナノキャビティである。このナノキャビティはフィッシュネット型メタマテリアルの単位構造であると共に磁場に対し共鳴するメタ原子でもある。様々な幅のキャビティを作製し、共鳴周波数を系統的に変化させたメタ原子に対しプラズモン波束の位相変調量を評価した結果、波束の搬送波周波数に対する共鳴周波数の離調量を操作することにより位相変調量を正負両方に調整できることが明らかになっ

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。

(2) 誘電体体積型導波路における光通信帯波長 1.55 μm 表面プラズモンの導波(宮崎, 組澤, 久保)

小型・高速情報処理素子としてのプラズモニックデバイスは、既存のフォトニックデバイスを補完することが期待されているため、光通信帯波長 ($\lambda=1.55 \mu\text{m}$) で動作する必要がある。我々の研究室では、今までに波長 1.55 μm のフェムト秒パルスレーザーを用いた時間分解顕微鏡法を構築し、Au のストライプ型導波路を伝搬する SPP 波束の動的可視化、ならびに波束のダイナミカルな特性の評価を行ってきた。

今回、表面プラズモンモードの空間的な閉じ込めがより強固で、導波路の“曲げ”や“分岐”等の構造における散乱損失がより低いプラズモン導波路の開発を目的とし、誘電体堆積型表面プラズモンポラリトン導波路 (Dielectric Loaded SPP Waveguide; DLSPPW) の作製、ならびに同導波路におけるプラズモン導波の顕微観察を行った。Zayats らの報告によれば、金属膜上に高さ、幅とも 600 nm の誘電体を堆積した構造が、波長 1.55 μm の入射光に対するシングルモードプラズモン導波路として機能する。今回、Au 蒸着膜上にコートしたネガ型フォトリソグロフイー法による導波路のパターニングを行い、現像処理後にさらに集束イオンビームエッチングによる表面プラズモン結合部の追加工を施すことで、DLSPPW の作製を行った。導波路に対し波長 1.55 μm フェムト秒レーザーを照射し、蛍光顕微鏡法による導波路中を伝搬するプラズモンモードの観察を行った。顕微像は時間領域差分 (FDTD) 法による導波路内部のモード分布と対応し、目的とするプラズモニック導波路が構築された事の証左を得た。なお本研究の試料作製は筑波大微細加工プラットフォームで行った。

(3) 半導体量子ドットを用いた 1.55 μm 帯表面プラズモンの誘導放出による増幅(尾島, 藤本, 久保)

光励起により反転分布した利得媒質を金属表面に近接させ SP モードの空間分布と整合させることで、励起子から SP への誘導放出による SP のコヒーレントな増幅 (Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation : SPASER) が生じる。本研究では、光通信帯波長 1.55 μm における SP の増幅と評価を目的とし、波長 1.55 μm を含む近赤外域における Kretschmann 配置を用いた発光/反射スペクトルの角度分解測定システムの構築を行った。本システムはスペクトル計測に InGaAs マルチチャンネル検出器を使用し、波長 900-1700 nm の近赤外域のスペクトルを角度分解能 0.01° で取得することを可能にする。膜厚 30-40nm の Au 薄膜を蒸着したガラスプリズムに対し角度分解反射率スペクトルを測定した結果は、表面プラズモン励起に対応する非常に狭線幅の反射率ディップを示し、本手法が近赤外域の表面プラズモン分散の計測に有効であることが示された。次に、近赤外域に発光を有する PbS 量子ドットをガラス基板上に薄膜化した試料に対し Nd:YAG レーザー第 2 高調波 (波長 532nm) による励起を行い、同装置による発光スペクトルの計測が可能であることを確認した。SPASER による表面プラズモン増幅は、利得層/金属/プリズム試料を光ポンプして生じる、SP 共鳴角方向へ放射される発光スペクトル幅の狭帯域化として観察される。今回の研究では Pb-QD/Au/プリズム試料からの発光は検出されず、安定した Pb-QD 薄膜の形成方法に課題を残した。

(4) カルコゲン超格子を用いたアクティブプラズモニクス(杉山, 久保)

(GeTe)₂(Sb₂Te₃)₁ 超格子 (GST-SL) の電圧パルス誘起相転移に基づくプラズモニック変調素子の構築を目標に、現在までに、最表面側から金属/絶縁体/GST-SL の順に積層した多層膜に導波路や電極を付加したデバイスを作製し、電圧パルスを用いた R-V 測定の結果から、GST-SL の RESET-SET/SET-RESET 相転移動作を確認している。その後、金属層と GST-SL 層を逆転した、最表面側から GST-

SL/絶縁体/金属の順に積層した多層膜構造を考案した。当構造におけるプラズモンモードの導波特性についてFDTD法による評価を行い、各層の積層膜厚の最適値を決定した。実際に作製した積層基板からテスト試料を切り出し、パルス電圧印加によるGST-SLの相転移動作の実現を確認した。これにより新デザインの多層膜でプラズモニック変調素子を製作する見込みがいたので、より実際のデバイスに近いミクロンスケールの微小素子を設計し、作製のプロセスを考案した。作製プロセスは複数回のパターン描画やドライエッチングの工程からなり、つくば地区（筑波大学、NIMS、産総研）の微細加工プラットフォーム群を利用する。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試料の提供を受け、加工に筑波大学微細加工プラットフォーム、NIMS微細加工プラットフォームを利用した。

(5) カルコゲン超格子の中赤外プラズモン観察用光学系の開発（佐藤, 久保）

本研究はGST超格子の中赤外域でのスピン偏極プラズモンの励起・観察を目的とする。今までに波長可変フェムト秒中赤外光源の構築、ならびに中赤外パルスのパワーやスペクトルの分光学的な評価が完了している。H29年度はこれに引き続き、中赤外パルスをポンプ、波長800nmパルスをプローブ光とする、ポンプ-プローブ蛍光顕微鏡光学系の構築を行った。チタン・サファイア再生増幅器の出力により光パラメトリック増幅器（OPA）を励起し、シグナル光とアイドラー光の差周波発生（DFG）により中赤外パルスを発生する（ポンプ光）。また、OPA励起後の残余の800nmパルスを光学遅延（H29年度導入）に引き入れ、時間的な同期を取った上で、中赤外パルスとほぼ同軸に光路を調整し、試料表面に照射する（プローブ光）。中赤外パルス照射による、GST-SLのバルクバンドギャップ内に出現するトポロジカル状態の共鳴的な励起の実現を想定している。

<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”, Appl. Phys. Lett. **110**, 152102 (2017).
2. T. Sugiyama, A. Kubo, T. Nakano: “Optical modulator driven by electrical pulse-induced phase transition of $[(\text{GeTe})_2(\text{Sb}_2\text{Te}_3)]_{120}$ superlattice”, Proceedings of the 29th Symposium on Phase Oriented Science PCOS 2017, 1, pp. 51-52 (2017)
3. A. Kubo, T. Sugiyama, T. Nakano: “Active-controlled plasmonic waveguides using GeSbTe superlattice”, Proceedings of the 29th Symposium on Phase Oriented Science PCOS 2017, 1, pp. 37-40 (2017)

（学位論文）

1. 修士論文 安藤 玄樹、「CdSe ナノプレートレットの単一分光」
2. 修士論文 福島 峻太、「窒素をデルタドープしたGaAsにおける縮退四光混合」
3. 修士論文 大竹 祐香、「金属-絶縁体-金属積層型ナノキャビティを配置した金属表面におけるフェムト秒表面プラズモン波束の伝搬」
4. 修士論文 尾島 隆也、「半導体量子ドットを用いた1.55 μm 帯表面プラズモンの誘導放出による増幅」
5. 卒業論文 北尾 貴之、「2次元物質での強結合状態形成のための光共振器の作製」
6. 卒業論文 松山 亨平、「窒素デルタドープ GaAs における単一不純物発光中心の偏光異方性」
7. 卒業論文 伊知地 直樹、「金属-誘電体-金属型ナノキャビティとフェムト秒表面プラズモン波束の相互作用ダイナミクス」
8. 卒業論文 組澤 悠真、「誘電体堆積型導波路におけるフェムト秒レーザー励起表面プラズモンポラリトンの観察」

9. 卒業論文 藤本 拳、「Kretschmann 配置型角度分解近赤外発光・反射スペクトル測定システムの構築」

<書籍>

1. A. Kubo, "Time-Resolved Photoemission Electron Microscopy" in "Compendium of Surface and Interface Analysis", Ed. by The Surface Science Society of Japan, pp. 741-748, Springer (2018)

<国際会議>

1. M. Ikezawa: "Single Photon emission from nitrogen isoelectronic traps in GaAs", International Symposium on Functional Materials (吉林師範大学, 2017/10) [招待講演]
2. A. Kubo, T. Sugiyama, T. Nakano, "Active-controlled plasmonic waveguides using GeSbTe superlattice", The 29th Symposium on Phase Change Oriented Science PCOS2017, 2017年11月16-17日, Atami, Japan [招待講演]
3. T. Sugiyama, A. Kubo, T. Nakano: "Optical modulator driven by electrical pulse-induced phase transition of $[(\text{GeTe})_2(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_1]_{20}$ superlattice", The 29th Symposium on Phase Change Oriented Science PCOS2017, 2017年11月16-17日, Atami, Japan

<国内会議>

1. 福島峻太, 田久保悠一, 佐久間芳樹, 池沢道男:「窒素をデルタドープした GaAs の四光波混合測定」応用物理学会 第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (早稲田大学西早稲田キャンパス、2018 年 3 月)
2. 山下勇真, 池沢道男, Seongho Park, Kwangseuk Kyhm, Jindong Song :「GaAs 量子リングの位相緩和時間測定」応用物理学会 第 78 回 応用物理学会 秋季学術講演会 (福岡国際会議場、2017 年 9 月)
3. 王若曦, 松山亨平, 佐久間芳樹, 池沢道男, 舛本泰章:「窒素をデルタドープした GaAs(111)A 面上の発光中心の偏光異方性」応用物理学会 第 78 回 応用物理学会 秋季学術講演会 (福岡国際会議場、2017 年 9 月)
4. 久保敦, 「フェムト秒時間領域における表面プラズモン波束の動的振舞い」, CPEC seminar, 2018 年 2 月 20 日, 東京大学生産技術研究所 [招待講演]
5. 久保敦, 「フェムト秒時間領域における表面電磁波の振る舞い」, 第 14 回原子・分子・光科学 (AMO) 討論会, 2017 年 6 月 30 日-7 月 1 日, 電気通信大学 [招待講演]
6. 大竹祐香, 伊知地直樹, 久保敦, 「金属-絶縁体-金属積層型ナノキャビティを配置した金属表面における フェムト秒表面プラズモン波束の伝搬」, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年 3 月 17-20 日, 早稲田大学
7. 大竹祐香, 伊知地直樹, 久保敦, 「単一ナノキャビティのコヒーレント応答によるフェムト秒表面プラズモン波束の位相変調」, 第 15 回プラズモニクスシンポジウム, 2018 年 2 月 2-3 日, 大分コンパルホール
8. 大竹祐香, 久保敦, 「MIM 型ナノキャビティを有する金属表面におけるフェムト秒表面プラズモン波束の挙動」, Optics & Photonics Japan 2017, 2017 年 10 月 30 日-11 月 2 日, 筑波大学東京キャンパス文京校舎
9. 杉山岳, 久保敦, 中野隆志, 「 $[(\text{GeTe})_2(\text{Sb}_2\text{Te}_3)_1]_{20}$ 超格子の可逆的相転移を用いたプラズモン変調素子」, 2017 年第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 2017 年 9 月 5 日-8 日, 福岡国際会議場・国際センター・福岡サンパレス

<集中講義>

1. 久保敦, 「プラズモニクス研究の基礎と応用」, 東京理科大学 大学院共通特別講義, 2017年6月22日, 東京理科大学葛飾キャンパス

<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 基盤(B), 研究代表者, H29~31, 「0次元および2次元的に閉じ込められた励起子の共鳴励起による区別のつかない光子発生」 : 池沢
3. 科研費 基盤(B), 研究分担者, H29~32, 「MOCVD法による遷移金属ダイカルコゲナイドの成長技術開発とフォトニクス機能探索」 : 池沢
4. 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
5. 科研費 国際共同研究加速基金, 研究代表者, H29~31, 「高空間分解・時間分解イメージング法によるメタマテリアルの新奇な波束伝搬機構の解明」 : 久保
6. 科学技術振興機構 CREST, 共同研究者, H26~H31, 「カルコゲン化合物・超格子のトポロジカル相転移を利用した二次元マルチフェロイック機能デバイスの創製」(担当課題名:「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
7. TIA 連携プログラム探索推進事業かけはし, 共同研究者, H29, 「アト秒光電子顕微鏡のための基礎技術と応用に関する調査研究」 : 久保