

「電子・光子等の機能制御」

平成11年度採択研究代表者

覧具 博義

(東京農工大学工学部 教授)

「光・電子波束制御エンジニアリング」

1. 研究実施の概要

フェムト秒パルスの持つ振幅・位相情報を量子構造半導体中に生成された量子波束の振幅・位相情報に転写し、またその逆の動作も可能とするデバイスの原理を実証することを目的として、フェムト秒プログラマブル位相制御光源とフェムト秒位相分光法の開発を行い、有機分子や量子構造半導体中での量子波束制御実験を行う。また、波束制御に最適な多準位遷移評価用非対称量子井戸材料の設計と試作を行う。

上記の狙いを達成するために、農工大・工・物理システム工学科の覧具および三沢研究室は、フェムト秒波束制御グループを構成して、フェムト秒パルス技術およびその物質との相互作用に関する実験および理論的な研究を実施している。量子構造半導体の設計および製作については、日本電気(株)光・無線デバイス研究所の西研一グループの参画を、また、フェムト秒テクノロジー研究機構(FESTA)の協力を得ている。

平成13年度からは、上記の狙いに強く関係する研究を実施している東北大学多元物質科学研究所の佐藤幸紀研究室の参画を得て、分子における量子波束形成、波束間干渉の実証とそのコーディングや量子演算への応用の可能性の研究を開始し、農工大グループとの緊密な研究協力の下に両グループの研究の加速をはかっている。

最終的には、光の運ぶ情報を半導体素子中に一時的に保持する光メモリあるいは光バッファとしての実現可能性を探求する。

2. 研究実施内容

2.1. フェムト秒波束制御グループおよび量子構造材料グループ

(1) フェムト秒位相制御光源の開発

液晶光変調器を用いた位相変調器、周波数分解光ゲート法を用いた位相解析器を組み合わせたフィードバック制御システムにより、 $1.1\sim 1.6\mu\text{m}$ 帯のフェムト秒パルスの内部位相を、周波数成分ごとに個別に位相制御し、再合成する位相制御光源を開発した。この波長域の位相制御フェムト秒光源としては、光ファイバー中の分散

補償を目的としたシステム 1 例だけが先行しているが、本プロジェクトで開発している波束制御用光源は、光通信のみならず、生体機能性分子の光化学反応の制御などにも応用できることから強い関心を集めている。

(2) フェムト秒位相分光法の開発

位相制御光源の開発とならんで、光パルスの内部位相を波長分割かつ時分割で検出する技術も、このプロジェクト研究の重要要素である。本プロジェクトでは、フェムト秒パルスの内部位相に着目して、光の位相を周波数分割して測定する技術の確立をめざし、その手法を物質分極の周波数分散測定へ応用してその有効性を実証した。特に今年度は偏光分割型フェムト秒サニャック干渉計による非線形複素感受率のフェムト秒時間分解干渉測定を行い、従来方法にくらべて非線形位相変化の検出限界を 3 桁向上させた。この手法は、光路長のゆらぎに対し安定なリング型同一光路干渉計を用いて、試料の励起パルスによる屈折率・吸収変化を、プローブパルスの位相・振幅変化として検出するものである。偏光分割型を用いることにより、得られる干渉縞が理想的な正弦関数となり、プローブパルスの非線形位相変化と振幅変化を分離する精度が改良され、結果として検出限界の 3 桁向上につながった。

(3) 量子構造半導体中での量子波束制御実験

0.8 μm 帯フェムト秒位相制御光源をもちい、有機色素分子を試料として実証した波束生成・検出実験のメカニズムを詳細に理論解析し、この現象の本質が下 2 準位上 1 準位 (2 + 1) ないし下 2 準位 + 上 2 準位 (2 + 2) の単純な系でも実現できることを明らかにした。すなわち、色素よりはるかに単純で設計可能な準位構成を持つ半導体量子井戸などで実現可能という見通しが得られた。この結果に基づいて、今年度は波束形成制御を行うためのナノ構造の設計を行った。量子井戸構造に書き込み光となるフェムト秒光パルスの情報を正しく、効率よく量子波束として転写するための、非対称階段構造などの構造制御の要件を明らかにした。

量子井戸内での光学遷移において、電子-ホールそれぞれの基底準位間遷移と、ホール基底準位-電子第一励起準位間遷移が、ほぼ同様の確率で生じる構造を作製し、量子波束の制御の初期実験用のサンプルとした。具体的な構造としては、まず 25 周期 (GaAs 3nm, $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ 7nm) 非対称井戸/ $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 10 nm バリヤ構造を成長した。さらに、基底準位間遷移エネルギーを調整するために、量子井戸を InGaAs/GaAs とする構造も作製した。ここで、伝導帯のバンド不連続量が、基底準位と高次準位の波動関数の形状を決定し、これが初期の目的達成のために本質的であるため、GaAs 上の InGaAs の歪によるバンド構造変化量を定量的に計算し、その In 組成および膜厚を決定した。具体的には、量子井戸構造を 25 周期の ($\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ 3nm, GaAs 7nm) 非対称井戸/ $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 10 nm バリヤ構造としたサンプルを作製した。

これらの試料について、量子準位の同定および、遷移確率の定量化を目的として、変調反射スペクトルを測定した。特に短波長側に伝導帯の励起状態への遷移も確認

され、波束生成の可能性が確認された。

(4) 多準位系と超短光パルスのコヒーレント相互作用の詳細解析

上記(3)で実証した非対称階段構造量子井戸などを用いた電子波束形成と検出の可能性を検討するために、基底準位(準位1)とそこからの光学遷移が許容されている二つの近接する励起準位(準位2, 3)を持つ3準位系とフェムト秒光パルスとのコヒーレント相互作用を、特に励起パルスのもつチャージングの効果に注目して詳細に解析した。これまで、adiabatic rapid passageなど、原子・分子の励起状態を制御する目的で光パルス照射効果を解析した研究はあるが、照射パルスの内部位相情報を検出する視点からの解析は少ない。解析結果から、二つの上準位2, 3への励起密度の差は、その符号は励起パルスのチャージングの方向に依存し、絶対値はチャージングの大きさとともに増大することを見いだした。この「非対称励起効果」は、一般には短時間で生ずる位相緩和の影響を受けないため、実用的なチャージング量検出方法としての応用が期待される。

(5) 半導体ナノ構造中のキャリア緩和の評価

量子ナノ構造中での波束生成・検出を実現するには、緩和の情報が不可欠である。特に位相情報の記録、演算は、位相緩和時間に大きく影響されるため、位相緩和が抑制できる物質系を選ばなければならない。

波束形成に際しては、これらの緩和速度を実験的に直接測定し評価することが必要である。そこで、実際に設計製作した量子ナノ構造を超短パルスレーザーで励起し、発光の動的変化を時間分解発光分光装置および位相緩和測定装置を用いて測定した。

(6) 量子ドットレーザーの特性解析

量子ナノ構造中におけるキャリア緩和は、例えば量子ドットレーザーの発振特性に重要な影響を及ぼす。このため量子ドットレーザーの特性解析から準位間緩和速度などを推定することが可能であり、また、レーザー特性の最適設計の指針が得られることが期待される。これまでに、量子ドットレーザーの束縛準位間、および束縛準位と(wetting layerなどの)連続準位間のエネルギー緩和および位相緩和がスペクトルおよび空間的なホールバーニングを通じて発振スペクトルに及ぼす影響を解析した。また、これらの緩和が直接変調特性に及ぼす影響を解析した。

さらに詳細な解析から、測定されている量子ドットレーザーの帯域制限因子は、従来言われていた準位間緩和速度ではなく、量子ドットレーザー特有の因子であることを明らかにした。まず、量子井戸準位が離散的であるためにそこへのキャリア分布数がパウリの排他効果に強く支配されることからくる「パウリ・ブロッキング」は、レーザー準位の分布確率が80%程度を越えるときわめて強く変調帯域を制限することがわかった。また、ドットサイズのばらつきに起因するスペクトル的なホールバーニングも応答に大きな遅延をもたらすことがわかった。

これらの結果からドット密度を上げることによって発振時のレーザ準位におけるキャリア占有確率を低く抑えること、そしてドットサイズのばらつきを押さえること、などが変調特性改善に大きく寄与するというデバイス設計指針が導かれた。

2.2. アト秒光量子波束グループ

光による量子波束のコヒーレント制御は、光電場の振動位相に同期させて物質波（量子波束）の波としての位相を操作する技術である。コヒーレント制御の一手法として、本グループでは、二連の超短光パルスによって単一分子内に生成する二つの核波束の干渉を利用した量子位相情報の制御と読み出しを行う技術の確立を目指している。この技術においては、光パルス間の遅延時間（相対位相）を如何に精度良く制御できるかが決定的に重要となる。

（1）周波数分解アト秒位相変調器の開発

光パルスが気体中を通過する際に気体の屈折率に依存して群速度が変化する原理に基づき、光パルス間の相対位相をアト秒領域で制御する位相変調器（APM）を製作した。さらに、APMの発展型である周波数分解アト秒位相変調器（FRAPS）の開発を進めている。これは、光パルスを幾つかの周波数帯域に分散させた後、APMの原理に基づいてそれぞれの帯域の位相を独立に操作するデバイスである。多準位量子系への適用を念頭に置いている。

（2）量子位相情報のコーディング

HgAr分子内の二つの核波束間の位相差をアト秒精度で制御することによって様々な情報を量子波束の節目構造として記録（コーディング）し、これらを三つの振動固有状態 $v=3, 4, 5$ の量子振幅の比として読み出す技術を開発することに成功した。このような技術の開発は、光通信における単一分子バッファメモリの可能性を示唆するものである。さらに当グループは、単一分子量子コンピューターの開発を念頭に置き、HgAr分子内の二つの振動固有状態 $v = 3, 4$ によって構成される1キュビット（qubit）系に対して高精度位相シフターを作用させることにも成功している。現在、制御NOTゲートの開発に向けて更に研究を進めている段階である。

（3）アト秒光位相変調を用いた非線形光学過程の量子位相制御

光照射に対する物質の非線形応答は、物質内に発生した電子波束や核波束の運動に起因するものであり、照射した光に含まれる位相情報に本質的に敏感である。先に述べたFRAPSによって位相変調を施した光パルスを分子に照射し、分子内に発生する電子波束と核波束の量子位相を操作することによって、極紫外領域のコヒーレントな高調波光の強度やパルス形状を制御する。今後、実験で得られた結果を分析し、発生する高次高調波の特性と照射した光の位相情報との対応を明らかにする。

3. 研究実施体制

フェムト秒量子制御グループ

① 研究分担グループ長： 覧具博義（東京農工大学・工学部、教授）

② 研究項目：

- (1) フェムト秒プログラマブル位相制御光源の開発
- (2) フェムト秒位相分光法の開発
- (3) 有機分子系での量子波束制御実験
- (4) 量子構造半導体中での量子波束制御
- (5) 半導体ナノ構造中のキャリア緩和

量子構造材料グループ

① 研究分担グループ長： 西研一（日本電気(株)光・無線デバイス研究所、主任研究員）

② 研究項目：

- (1) 量子ドットレーザへのキャリア注入メカニズムの検討
- (2) 多準位遷移評価用 非対称量子井戸材料の設計、結晶成長
- (3) 量子ドット結晶成長

アト秒光量子波束グループ

① 研究分担グループ長： 佐藤幸紀（東北大学多元物質科学研究所、教授）

② 研究項目：

- (1) フェムト秒レーザーパルス電場位相の制御
- (2) 位相制御されたパルス列による核波束干渉操作
- (3) 分子内核波束干渉を利用した単一分子素子
- (4) 高次非線形光学効果制御

4. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

(1) 論文（原著論文）発表

- azuhiko Misawa, Isao Matsuda, and Roy Lang, "Femtosecond Wave Packet Engineering in a cyanine dye molecule", SPIE Proceedings 2002, (2002).
- Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Wave Packet Engineering Using a Phase-Programmable Femtosecond Optical Source", Technical digest of Conference on Lasers and Electro-Optics 2002, p.113 (2002).
- Roy Lang, "Response to 'Comment on 'Problems in recent analysis of injected carrier dynamics in semiconductor quantum dots''" [APL. 79, 3912(2001)], Appl. Phys. Lett. 81, 565(2002).
- 森賢治、「アト秒精度の量子波束エンジニアリング」、「応用物理」第71巻2号（2002年2月号）、pp. 195-199

- Kazuhiko Misawa, Sayako Ito and Roy Lang, “Broadband Measurement of the Nonlinear Phase Changing Using Cross-Correlation Frequency Resolved Optical Gating”, The 9th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2002 p.204(2002)
- Fumikazu Inuzuka, Kazuhiko Misawa, Roy Lang, “Polarization-division Sagnac Interferometer for Femtosecond Phase Spectroscopy”, The 9th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2002 p.203(2002)
- Kenji Ohmori, E. I. Dashevskaya, E. E. Nikitin, M. Okunishi, I. Oref and Y. Sato, “Energy dependence Energy dependence of the intramultiplet mixing cross section in Hg-N₂ collisions: Conical intersection mechanism, indication at tunneling and interference”, Physical Chemistry Chemical Physics website(2003)
- Naoyuki T. Hshimoto, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, “A Three-Level Picture for Chirp-Dependent Fluorescence-Yields under Femtosecond Optical Pulse Irradiation”, Applied Physics Letters, 87(17) 2749-2751(2003)

(2) 特許出願

H14年度特許出願件数：3件（研究期間累積件数：5件）