

「新しい物理現象や動作原理に基づくナノデバイス・システムの創製」
平成14年度採択研究代表者

石原 一

(大阪府立大学大学院工学研究科 教授)

「光電場のナノ空間構造による新機能デバイスの創製」

1. 研究実施の概要

本研究課題のねらいは、閉じ込め励起子による内部電場のナノ空間構造が引き起こす新奇な光学過程を解明し、従来のナノ系光学応答解析における常套手段であった長波長近似では捉えきれない新しい光学原理がデバイス開発に有用であることをデモンストレーションすることにある。これまで、(1) 半導体薄膜構造による高効率光スイッチのデモンストレーション、(2) II-VI, I-VII系薄膜、量子ドットを用いた新材料開発と新奇現象の探索、(3) 「光電場のナノ空間構造」による高非線形を利用したユニバーサル量子位相ゲートの開発、を3本の柱として研究を行ってきた。(1)においてはこれまでGaAs系薄膜における非線形応答の大きさと速度についての試料構造依存性を理論的に明らかにしてきており、これを実験的に高精度かつ系統的に検証するための結晶成長、及び融着による試料作製条件の検討を行ってきた。試料作製と測定の前準備がほぼ整ってきており、期間後半で、この材料系が持つポテンシャルを明らかにし、デバイスデモへ繋げていく。(2)においては電子線照射を用いて巨大非線形応答が予想されるCuClの高品質試料が作製し、理論で予測される非線形応答の異常な膜厚依存性が観測にかかってきた。今後、より系統的な試料構造依存性を調べる予定である。他にも、液体He中の光マニピュレーションの予備実験で量子ドットが輻射圧で移動している兆候を掴み、また昨年度より観測している量子ドットレーザー発振の機構についても新たな知見が蓄積されている。(3)については巨大光学非線形物質として想定しているCuClのナノ構造半導体に共鳴する光子エネルギーをもった、新たな量子もつれ光源の開発に成功した。一方で単一光子レベルでの光学非線形性を評価するための高感度偏光干渉計の開発を進めており、理論的検討の結果に基づいて選定された高非線形試料を用いて量子位相ゲートのデモを行う準備が整いつつある。

2. 研究実施内容

本研究課題では閉じ込められた励起子による内部電場のナノ空間構造が引き起こす新奇な光学過程を解明し、その物理的機構が新しいデバイス開発に対して有用であることをデモンストレーションする。この目的のため、以下の3つの具体的目標を掲げて研究を行っているが、それぞれについての実施内容を述べる。

(1) 半導体薄膜構造による高効率光スイッチのデモンストレーション

井須グループ、理論グループが共同で半導体多層膜の構造を制御することにより、高い非線性と応答の高速性が両立する光ゲートデバイスの動作実証を目指している。15年度までに理論グループにより、励起子活性薄膜に対する環境部分（基板、バッファ層、キャップ層など）を設計することで活性部分の内部電場構造が操作でき、非線形応答の大きさだけでなく応答速度の速さも兼ね備えた最適構造を設定できることが明らかになったが、当面、このことを実証できる実験を目指している。本年度前半では、光スイッチとして超高速動作を阻害するキャリア発生を生じないようにした周期的多層構造の二光子共鳴非線形を用いる新たな光ゲートデバイスについての検討を進め、超高速動作の阻害要因である吸収によって生じるパターン効果が1Tb/s相当のパルス列に対しても無いことを確認し多層周期構造の持つ優位性とそれが高品質に出来ていることを確認した。後半は研究場所を三菱電機(株)先端技術総合研究所から独立行政法人情報通信研究機構に移したため、新研究場所立ち上げの一環として、(1)試料作製における結晶成長装置の条件の確認、(2)ウエハ融着による試料作製のための装置の移設、(3)ならびに作製条件の適正化のための基礎実験を進めた。また、(4)半導体薄膜の非線形性測定のためのフェムト秒赤外OP0システムを導入しその立ち上げを行うと共に、(5)非線形光学応答の測定光学系の整備・構築を行った。

理論グループではダンピングの異なる多層薄膜の実時間応答を計算する理論がほぼ出来上がり、今年度はこれを基に時間軸上での理論、実験の直接比較も行っていく。

(2) I-VI, I-VII系薄膜、量子ドットを用いた新材料開発と新奇現象の探索

このテーマでは理論グループにより感受率と内部電場の二重共鳴による非線形光学応答増強が非常に顕著に観測されると予想されている(i)CuCl超平坦薄膜における非線形光学応答の評価を行っている。これまで分子線エピタキシー(MBE)法では困難とされてきたが、本グループでは電子線照射により表面モフォロジーを大幅に改善することで高品質CuCl薄膜の作製に成功し、16年度は非線形光学信号の増強効果を調べるのに適した厚さ数10 nmの高品質薄膜を作製することができた。観測されたCuCl薄膜における縮退四光波混合信号のスペクトルを見ると膜厚40 nmの試料における信号強度が120 nmの試料のものより一桁程度高くなっていることが分かる(図1)。これは結晶のサイズに比例して非線形光学信号が増大するという長波長近似の予測に反しており、内部電場の空間構造が重要な役割を果たしていることを

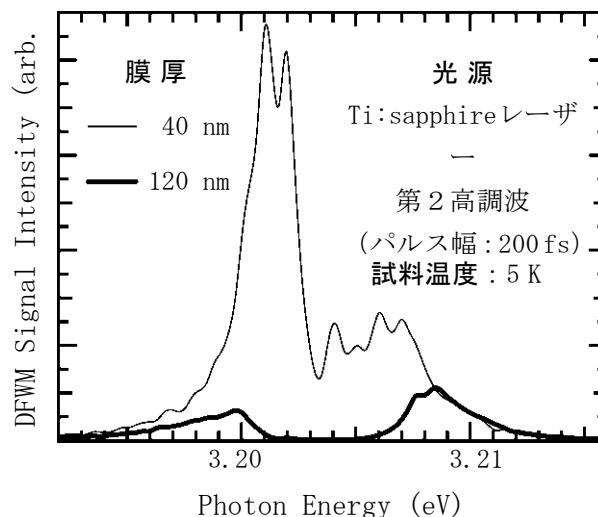


図1 CuCl薄膜の四光波混合スペクトル

示唆している。今後このようなサイズ依存性をより系統的に調べることにより、新しい原理の検証を進める。

(ii) 2光子共鳴励起下でのCuCl量子ドット中の励起子分子発光によるレーザー発振

これまでNaCl単結晶に担持したCuCl量子ドットにおいて、励起子分子を二光子共鳴励起することによって高効率なレーザー発振現象が起こることを報告して来たが、平成16年度は、二光子共鳴励起下において励起子分子発光寿命が励起強度増大に伴い短くなっていくことを明らかにした。このことは励起子分子-励起子状態間の反転分布が形成されて誘導放出が起こりやすくなることを示しており、ドット間のコヒーレントな結合による超放射現象に基づいた新しい光学現象に結びつく可能性がある。

(iii) 量子ドットの超流動ヘリウム中における直接生成とその光マニピュレーション

光マニピュレーションによる量子ドットのサイズ選択等を実現し、高コヒーレンス材料実現のための新たな選択肢の獲得を目指している。16年度は、超流動液体ヘリウム中においてレーザーアブレーションを行うことにより、100nm以下の粒径をもつCuCl、及び室温でも発光が観測できるZnOの量子ドットが直接生成されることを確認した。また、マニピュレーション用の光を同時に照射することにより、量子ドットの超流動ヘリウム中での運動状態を光によって変化させられる兆候を掴んだ。また理論グループは光で誘起される量子ドット間の相互作用を明らかにし、ドットの集団運動制御の可能性を議論した。現在、マニピュレーションの明確な検証実験に向けて、ヘリウムクライオスタットの設計を行うなど、準備を行っているところである。

(3) 「光電場のナノ空間構造」による高非線形を利用したユニバーサル量子位相ゲートの開発

本テーマでは単一光子レベルでの巨大な光学非線形性を用いたユニバーサル量子位相ゲートの実現を目指している。最初のステップとして位相シフト量を評価するための量子もつれ光源の開発が必須であるが、本研究では特に、巨大光学非線形物質として想定しているCuClやGaAs等のナノ構造半導体に共鳴する光子エネルギーをもった、新たな量子もつれ光源の開発を行っている。

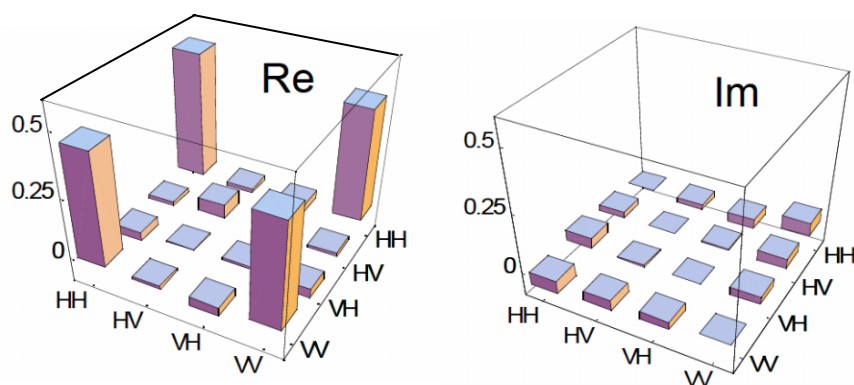


図2. CuClにおける励起子分子共鳴を用いて発生した量子もつれ光子の、二光子偏光状態の密度行列の実部（左）および虚部（右）。HおよびVは各々水平および垂直な直線偏光を意味する。 $|\text{HH}\rangle\langle\text{HH}|$ および $|\text{VV}\rangle\langle\text{VV}|$ の対角項以外に、 $|\text{HH}\rangle\langle\text{VV}|$ および $|\text{VV}\rangle\langle\text{HH}|$ の非対角項が大きな値をもち、観測された状態が高い純度の量子もつれを有することを表している。

昨年度までに、CuCl単結晶における励起子分子共鳴を用いた量子もつれ光子対の生成に世界で初めて成功し、発生した光子対が古典的統計状態ではあり得ない量子もつれ合い状態にあることを検証した。本年度は、その結果をNature誌上に発表し、多数の新聞報道を得る等、専門家のみならず一般にも大きなインパクトを与えた。さらに、試料や実験装置の改良により、より高い量子もつれを観測することに成功した(図2)。量子もつれを表す量であるTangle (T)またはEntanglement of formation (EOF) や、古典的混合の程度を表すLinear entropy (S_L)の値を評価し、量子もつれ状態の定量的評価を行った結果、発生した光子対が高い純度の量子もつれ状態にあることを定量的に確認した。並行して、単一光子レベルでの光学非線形性を評価するための高感度偏光干渉計の開発を行い、フォトニック結晶ファイバにおける光学非線形性の評価等の試験的成果を得ている。また理論グループは独自に開発した多自由系の2光子非線形位相シフトの評価法を用いて多原子の場合の評価を行い、最適な材料系選定への知見を得た。

3. 研究実施体制

理論グループ

- ① 研究分担グループ長：石原 一（大阪大学大学院基礎工学研究科、助教授）
- ② 研究項目：理論解析による実験支援、モデル計算による新奇現象の提案

超高速光スイッチグループ

- ① 研究分担グループ長：井須 俊郎（独立行政法人情報通信研究機構 特別研究員）
- ② 研究項目：GaAs薄膜構造による高効率光スイッチ素子作製

新現象新材料探索グループ

- ① 研究分担グループ長：伊藤 正（大阪大学大学院基礎工学研究科、教授）
- ② 研究項目：II-VI, I-VII系薄膜、量子ドットを用いた新材料開発と新奇現象の探索

光量子位相ゲートグループ

- ① 研究分担グループ長：枝松 圭一（東北大学電気通信研究所、教授）
- ② 研究項目：「光電場のナノ空間構造」による高非線形を利用したユニバーサル量子位相ゲートの開発

4. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

(1) 論文発表

理論グループ

- A. Syouji, B. P. Zhang, Y. Segawa, J. Kishimoto, H. Ishihara, K. Cho: Interchange of quantum states of confined excitons caused by radiative corrections in CuCl films,
Phys. Rev. Lett, Vol.92, No. 25, 257401(1-4), 2004

- H. Ishihara and H. Mifune: Degenerate four-wave-mixing of spiral-type excitons, in *Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications on CDROM* (The Optical Society of America, Washington, DC, 2004), TuC3
- H. Ishihara, H. Mifune and T. Nakatani: Linear and Nonlinear Optical Response of Spiral-type Excitons, *Journal of Luminescence* Vol. 112 465-468 (2005)
- T. Iida and H. Ishihara, Optically-induced mechanical interaction between semiconductor quantum dots under an electronic resonance condition, *Physica E*, Vol.26, p.163-168 (2005)
- T. Iida and H. Ishihara, Optically-induced force between nano-particles irradiated by electronic resonant light, *Journal of Luminescence*, Vol.112, p.151-155 (2005)
- K. Koshino and H. Ishihara, Two-photon nonlinearity in general cavity QED systems
Phys. Rev. A **70** 013806 (2004).
- K. Koshino, Quantum anti-Zeno effect by false measurements
Phys. Rev. Lett. **93** 030401(2004).
- K. Koshino and H. Ishihara, Evaluation of Two-photon nonlinearity by Semiclassical Method
Phys. Rev. Lett. **93** 173601 (2004).
- K. Koshino, Relation between conventional and dynamical formalisms in the quantum Zeno effect
Phys. Rev. A **71** 034104 (2005).
- K. Koshino and H. Ishihara, Theoretical study on two-photon nonlinearity in atom-cavity systems in *Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications on CDROM* (The Optical Society of America, Washington, DC, 2004), WD21.
- H. Ajiki, Parameters of a driven Jaynes-Cummings Hamiltonian
J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt. Vol.7 29-34 (2005)
- H. Ajiki, Validity of Semiclassical Treatment of optical response of cavity systems
Phys. Rev. B Vol.71 125302(1-5) (2005)

超光速光スイッチ

- T. Isu, K. Akiyama, N. Tomita, T. Nishimura, Y. Nomura, ; “Ultrafast Optical Gate Switch of AlGaAs/AlAs Multi-Layer Structure Using Enhanced Nonlinear Response at Two-Photon Resonance” , *Institute of Physics Conference Series No. 184*, (IOP Publishing Ltd.) p.119 (2005).

新現象新材料探索グループ

- K. Miyajima, G. Oohata, Y. Kagotani, M. Ashida, K. Edamatsu, and T. Itoh, Two-Photon Excitation of Confined Biexcitons in CuCl Quantum Dots, *Physica E* **26**, 33~36 (2005).
- G. Oohata, Y. Kagotani, K. Miyajima, M. Ashida, S. Saito, K. Edamatsu, and T. Itoh, Stable biexcitonic lasing of CuCl quantum dots under two-photon resonant excitation, *Physica E* **26**, 347-350 (2005).

光量子位相ゲートグループ

- K. Edamatsu, G. Oohata, R. Shimizu, and T. Itoh, Generation of ultraviolet entangled photons in a semiconductor, *Nature* **431**, 167-170 (2004)
- A. Hasegawa, T. Kishimoto, Y. Mitsumori, M. Sasaki, F. Minami, Multi-wave-mixing of two dimensional excitons in semiconductors, *J. Lumin.* **108**, 211-214 (2004)
- M. Sasaki, A. Hasegawa, Y. Mitsumori, F. Minami, Theory of active dephasing control in qubit array, *J. Lumin.* **108**, 215-219 (2004)
- Y. Mitsumori, Y. Ohkubo, A. Hasegawa, M. Sasaki, and F. Minami, Optical selection rule of hyper Rayleigh scattering in resonance with excitonic wave functions in ZnSe, *J. Lumin.* **108**, 259-262 (2004)
- H. Sekiguchi, K. Ikeda, F. Minami, J. Yoshino, Y. Mitsumori, H. Amanai, and S. Nagao, Photon bottleneck effects in InAs/GaP quantum dots, *J. Lumin.* **108**, 273-276 (2004)

(2) 特許出願

H16年度特許出願件数：1件（CREST研究期間累積件数：5件）