

「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。この目的のため、本チームでは(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): 17年度は特定膜厚で大きな非線形信号が発生することが分かっている薄膜中2番目の閉じ込め励起子についてフェムト秒レーザー励起における非線形光学応答を時間分解およびスペクトル測定の両面から観測し、四光波混合信号でパルス幅程度の超高速応答を確認した。また励起パルスのスペクトル幅や励起エネルギーに大きく依存した強度と時間応答が得られ、これまで調べてきたピコ秒パルス励起とは異なった新たなダイナミクスの存在が明らかになった。(2): 電子線照射を用いて超平坦化した CuCl 薄膜により励起子系としては異例の 100fs 以下の超高速輻射緩和が見出された。また、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が現れることを確認した。さらに、超流動液体ヘリウム中において作製した粒径 20–50nm の量子ドットを、レーザー光を照射することにより輸送できることを確認した。(3): 単一光子レベルでの光学非線形性、位相シフト量を評価するための新しい量子もつれ光源の開発と改良を行い、CuCl において高度な量子もつれを伴う光子対の生成に成功した。また、単一光子レベルでの微小な位相シフト量を評価するための新たな干渉計を考案し、その基礎特性の研究を行った。

2. 研究実施内容

本研究課題では、以下の3つの具体的目標を掲げ、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。それぞれについての17年度の実施内容を以下に記す。

(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、ナノスケール薄膜における光電場ナノ空間構造を制御することにより、これまでにない高い非線形性と超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。この目的を達成するため、輻射緩和の高速化に焦点を当て、GaAs/AlGaAs ダブルヘテロ構造の活性層である高品質GaAs 層での光電場ナノ空間構造を考慮した非線形応答のサイズ依存性に着目した研究を行っている。また、実験、理論両面で精度を上げた定量的な解析を行うために、超高速応答と巨大非線形性を両立しうる試料構造の設計とその作製可能性の検討を進めてきた。昨年度、研究実施場所を三菱電機㈱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、ウエハ融着による構造作製の基礎実験や半導体薄膜の非線形性光学応答の測定並びに光学系の整備・構築を進めた。今年度は若手研究者1名を加えて、より高速で大きな非線形性を持つ構造の探索、および応答の超高速性を測定することを目的として、ダブルヘテロ構造中の弱閉じ込め励起子の非線形光学応答の評価に重点を置いて研究を実施してきた。

半導体ダブルヘテロ構造薄膜に弱く閉じ込められた励起子の非線形光学応答は、これまでの研究から、特定の膜厚で非線形光学応答が共鳴的に増大し且つ高速の応答を示すことが示されている。この応答は励起子閉じ込めの2番目の準位が大きな寄与をしており、この準位に共鳴するピコ秒パルスによりその応答特性が調べられてきたが、より高速な応答を探索するため、フェムト秒レーザー励起における非線形光学応答を時間分解およびスペクトル測定の両面から観測し、閉じ込め励起子のダイナミクスを調べた。3ビーム入射の過渡回折法による励起子密度の時間変化測定では、スペクトル幅の広い100フェムト秒程度のパルス励起では100ピコ秒以上の遅い緩和を示し、応答のスペクトル形状はほぼ一定で常に2番目の準位で大きな信号強度を示すことがわかった。また2ビーム入射の四光波混合信号では、励起パルスのスペクトル幅や励起エネルギーに大きく依存した強度と時間応答が得られ、条件によってパルス幅程度の超高速応答が現れることが分かった。これらの結果は、複数の励起子状態を同時励起する超短パルスの場合には、ピコ秒パルス励起とは異なった新たなダイナミクスにより応答が支配されていることを示唆しており、この系のデバイス応用上の新しい可能性が明らかになった。

(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。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ており、17 年度はその高品位薄膜を用いて、フェムト秒パルスを用いた四光波混合測定を行った。観測されたスペクトルと理論計算は驚くべき一致を示し、微細構造がどの量子化準位に対応するか完全に同定できた (図 1)。さらに信号の時間応答を調べたところ、測定の時間分解能程度である 100 フェムト秒オーダーの超高速減衰が観測された。この超高速応答は、理論計算より見積もられる励起子・輻射場結合

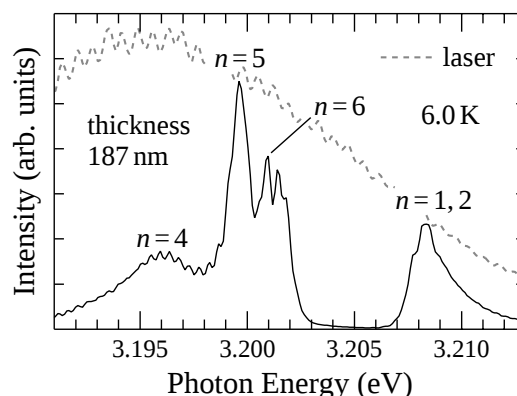


図 1 CuCl 薄膜の四光波混合スペクトル

系における輻射幅を反映していると考えられる。このように、四光波混合実験の結果は非局所応答理論に基づいた計算によってうまく説明できることが明らかになった。理論によれば、10 フェムト秒オーダーの超高速時間応答を観測できる可能性もあり、適当な膜厚をもつ高品位試料の作製と時間分解能の向上を精力的に進めている。

(ii) 2 光子共鳴励起下での CuCl 量子ドットの超放射現象

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、あるいは超放射的な新奇現象が起こることを報告して来た。平成 17 年度は、二光子共鳴励起下における励起子分子発光の時間応答を、カーゲート法を用いて、100 フェムト秒の時間分解能で行った。その結果、実際に時間幅 200 フェムト秒程度の発光が、レーザーパルスより時間遅れを伴って生じることを確認した。この現象は、ドット間の輻射場を介した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である可能性が高い。大きな振動子強度を持つ多ドット系の超放射は観測例が無く、この機構を用いたデバイス応用の検討を始めている。

(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

共鳴レーザー光照射時に物質に印加される輻射力が個々の物質の量子力学的個性に依存して選択的に働くことを利用して、量子ドットのサイズ選択的マニピュレーション等を実現し、高コヒーレンス材料実現のための新たな選択肢を獲得することを目指している。17 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って作製した CuCl 量子ドットに、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、粒径 20–50nm の量子ドットを超流動ヘリウム中で力学的に輸送可能であることを確認した。上記実験では、光マニピュレーションの手始めとして、100nm 程度以下の量子ドット全てに輻射圧が働くような線幅の広い光源を用いたが、特定サイズの量子ドットのみに共鳴する線幅の狭い光源を準備し、nm オーダーのサイズ選択が可能であるか確認を行っている。また理論グループにおいても狭線幅レーザーを用いたサイズ選別の計算を行い、実験結果との比較検討に備えている。一方、サイズ選択を容易にするべく、大型ヘリウムクライオスタットの作製を行った。それを利用した実験の立ち上げも同時

に進めている。

(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

本項目では昨年度に引き続き、単一光子レベルでの光学非線形性、位相シフト量を評価するための、新しい量子もつれ光源の開発と改良を行った。本研究では、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子対源が必要である。CuCl の励起子分子準位に励起光を共鳴させるハイパーパラメトリック散乱を利用した量子もつれ光子対源の開発では、励起方法の工夫によって偶然の同時係数を減少させ、人工的な後処理を行うことなくさらに高度な量子もつれを伴う光子対の生成に成功した。また、GaAs の微小共振器構造におけるポラリトン散乱を利用した量子もつれ光源の開発に関しては、ポンプ・プローブ分光による誘導パラメトリック散乱の測定に成功し、自発パラメトリック散乱の検出に向けて研究を続けている。さらに、単一光子レベルでの微小な位相シフト量を評価するための新たな干渉計を考案し（特許出願中）、フォトニック結晶ファイバを用いてその基礎特性の研究を行った。

上記研究の結果、CuCl のハイパーパラメトリック散乱を利用した量子もつれ光子対源に関する成果が、解説・招待論文として多くの雑誌に掲載されたほか、複数の国際会議で招待講演として発表した。単一光子レベルでの位相シフト量を評価するための新たな干渉計に関しては、国内特許を出願中であり、日本物理学会をはじめとしていくつかの国内学会で成果を発表した。

一方、理論グループでは16年度、共振器中に多原子が存在する場合に位相シフトが減退するとの結果を得ていたが、17年度からはこの困難を克服する誘導吸収による位相シフトの方法を考案し、その有効性を確認する計算を行っている。

現在、新たに開発した干渉計を用いて、単一光子レベルの微小な光学非線形性を実際に測定する実験を進めており、開発が進んでいる量子もつれ光子対源と併せて、単一光子レベルでの非線形位相シフトを測定する装置の準備はほぼ整ってきている。また、パラメトリック下方変換における空間的量子もつれを偏光の量子もつれに変換する新たな量子もつれ光源を考案し、その実証実験も開始している（特許出願中）。今後は、理論グループと物質開発グループとの共同研究により、単一光子レベルでの光学非線形性を有するナノ構造物質の開発を進める。

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（大阪府立大学大学院工学研究科、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（情報通信研究機構 基礎先端部門、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（原著論文）発表

- T. Iida and H. Ishihara: “Optically-induced force between nano-particles irradiated by electronic resonant light”, Journal of Luminescence Vol.**112**, p.151 (2005)
- K. Koshino and H. Ishihara: “Two-photon nonlinearity by an excitonic system placed in a cavity”, Phys. Rev. A, Vol.**71**, p.063818 (2005)
- T. Iida and H. Ishihara: “Optical manipulation of nano materials under quantum mechanical resonance conditions”, IEICE Transactions, Vol.**E88-C**, p.1809 (2005)
- K. Koshino and H. Ishihara: “Nonlinear phase shift in two-photon wavefunction implemented by two-level systems placed in a cavity”, IQEC/CLEO-PR, Technical Digest, QFD1-4 (2005)
- K. Koshino and H. Ishihara: “Drastic effects of damping mechanisms on the third-order optical nonlinearity in the optical response of a superradiant system”, J. Phys. Soc. Jpn. Vol.**74**, p.2921 (2005)
- H. Ajiki: “Enhancement of Nonlinearity due to Cavity Effect of a Quantum Dot,” IEICE Transactions, Vol.**E88-C**, p.1803 (2005)
- H. Ajiki: “Optimal Conditions for Achieving Strong Third-Order Nonlinearity in Semiconductor Cavities”, J. Phys. Soc. Jpn. Vol.**74** p.2929 (2005)

- H. Ajiki: “Optimal Condition for Large Optical Nonlinearity of Cavity Systems”, Proc. of Lasers and Electro-Optics European Quantum Electronics Conf. Munich, EJ-2 (2005)
- H. Ajiki: “Validity of Semiclassical Treatment of Optical Nonlinearity, Proc. of Int. Quantum Electronics Conference”, Tokyo, CWAB3-P46 (2005)
- T. Kaneno, H. Ajiki, and H. Ishihara: “Interaction between Radiation and a Single Excitonic State Widely Extended in a Shell Structure”, Proc. of Lasers and Electro-Optics European Quantum Electronics Conf. Munich, EI-3-2 (2005)
- T. Iida and H. Ishihara: “Control of Polaritonic Molecule Formation in a Quantum-Dot Pair by Radiation Force”, Proc. of Lasers and Electro-Optics European Quantum Electronics Conf. Munich, EI3-3-WED (2005)
- K. Koshino and H. Ishihara: Nonlinear interaction between two photons mediated by nonlinear media embedded in a cavity, Proc. of Lasers and Electro-Optics European Quantum Electronics Conf. Munich, EG-7 (2005)
- H. Ishihara: “Drastic size effects in light-matter interactions due to long-range excitonic coherence”, Laser Physics, Vol.**16**, p.232 (2006)
- Y. Kagotani, K. Miyajima, G. Oohata, S. Saito, M. Ashida, K. Edamatsu and T. Itoh: “Two-photon absorption and lasing due to biexciton in CuCl quantum dots”, J. Luminescence, Vol.**112**, p.113 (2005).
- K. Miyajima, Y. Kagotani, S. Saito, M. Ashida and T. Itoh: “Highly Efficient Biexcitonic Lasing of Semiconductor Quantum Dots under Resonant Two-Photon Excitation”, IQEC/CLEO-PR, Technical Digest, JTuH1-3 (2005).
- M. Ichimiya, M. Hasegawa, H. Ishihara, M. Ashida and T. Itoh: “Enhancement of Degenerate Four-Wave Mixing Signal in CuCl Nanostructures with High Crystalline Quality”, IQEC/CLEO-PR, Technical Digest, JWAB3-P1 (2005).
- M. Ichimiya, Y. Sawada, M. Ashida and T. Itoh: “Free exciton luminescence of ZnO:Zn microcrystals under electron beam excitation”, phys. stat. sol. (c) Vol.**3**, p.1189 (2006).
- M. Ichimiya, T. Horii, T. Hirai, Y. Sawada, M. Minamiguchi, N. Ohno, M. Ashida and T. Itoh: “Nano-scale distribution of ZnO free exciton luminescence in ZnO:Zn microcrystals and its modification under electron beam excitation”, J. Phys: Condens. Matter Vol.**18**, p.1967 (2006).
- G. Oohata and K. Edamatsu: “Generation of entangled photons from biexcitons in a semiconductor”, Proc. SPIE Vol.**5631**, p.20 (2005)
- G. Oohata, R. Shimizu, and K. Edamatsu: “Generation of entangled photons via biexciton-resonant hyper-parametric scattering”, Proc. SPIE Vol.**5721**, p.15 (2005)

- M. Sasaki, A. Hasegawa, J. Ishi-Hayase, Y. Mitsumori, and F. Minami: “Theory of multiwave mixing and decoherence control in a qubit array system”, Phys. Rev. B Vol.**71**, p.165314 (2005)
- Y. Mitsumori, A. Hasegawa, M. Sasaki, H. Maruki, and F. Minami: “Local field effect on Rabi oscillations of excitons localized to quantum islands in a single quantum well”, Phys. Rev. B Vol.**71**, p.233305 (2005)
- G. Oohata, R. Shimizu, and K. Edamatsu: “Entangled-photon generation from biexcitons in a semiconductor”, Proc. of Lasers and Electro-Optics European Quantum Electronics Conf. Munich, EG1-4-MON (2005)
- G. Oohata, R. Shimizu, and K. Edamatsu: “Entangled photon generation via biexciton-resonant hyper parametric scattering in a semiconductor”, IQEC/CLEO-PR, Technical Digest, QWD4-1, (2005)
- 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).
- T. Isu, K. Akiyama, N. Tomita, T. Nishimura, Y. Nomura and K. Kanamoto: “Optical Kerr gate switching of AlGaAs/AlAs multilayer structures without pattern effects by the two-photon resonant nonlinear response”, physica status solidi (c) Vol.**3**, p.671 (2006).
- O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, and M. Tsuchiya: “Spectrally resolved nonlinear optical response of weakly confined excitons under femtosecond laser pulse excitation in GaAs thin films”, physica status solidi (c) Vol.**3**, p.675 (2006).
- J. Inoue, T. Isu, K. Akahane, N. Yamamoto and M. Tsuchiya: “Characterization of highly stacked InAs quantum dots layers on InP substrate for a planar saturable absorber at 1.5 μm band”, physica status solidi (c) Vol.**3**, p.520 (2006).

(2) 特許出願

H17 年度出願件数 : 3 件 (CREST 研究期間累積件数 : 8 件)