

「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

本チームでは従来の光学応答理論では無視されてきた内部電場のナノ空間構造の自由度に着目し、それをデバイス機能に結びつけることを目的としてプロジェクトを推進している。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) : 超高速な応答を探求するためのフェムト秒レーザー励起における非線形光学応答には、ピコ秒パルス励起にはない新たなダイナミクスが存在する可能性を昨年度までに示した。18年度は GaAs/AlGaAs ダブルヘテロ構造中の弱閉じ込め励起子に対して、サブピコ秒パルスにより複数の励起子準位を同時に励起した場合、励起子準位間の干渉効果により 100fs クラスの超高速応答が得られることを明らかにした。今後、超高速信号と励起子密度緩和の関係を明らかにしていくと共に、超高速光カー信号の検証を進めていく予定である。(2) : 昨年度、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 以下の超高速緩和を見出したが、今年度は過渡回折格子実験により、これが輻射緩和によるものであることを確認した。また、光マニピュレーション実験では、レーザーアブレーションにより作製された CuCl 量子ドットの良好な結晶性を確認し、昨年のフェムト秒レーザーに引き続き、ピコ秒レーザーでもそれらが輸送可能であることを確認した。(3) : 単一光子による量子位相ゲートの実現に向けて、半導体や光学非線形結晶を利用し、本グループでこれまで得られていたよりもさらに高効率・高純度な量子もつれ光子の発生方法と、少数光子による微小な非線形位相シフトの測定方法を開発した。また、共振器-原子結合系における 2 光子非線形過程に関して、位相シフト量と原子数のトレードオフの問題を克服する新しい機構を理論的に提案した。今後、この機構が働く実際の試料等を用い、非線形シフトの計測を行う予定である。

## 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機能に結びつくことをデモンストレーションしようとして試みている。それぞれの目標に関する18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

これまで光電場ナノ空間構造を考慮した非線形応答について、GaAs/AlGaAs ダブルヘテロ構造の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ピコ秒パルスを使った実験により示されていた。現在、より高速な応答を探求するため、フェムト秒レーザ励起における閉じ込め励起子の非線形光学応答を調べている。本研究ではこれまで、エネルギーがわずかに異なる複数の励起子準位を同時励起する超短パルス入射の場合には、自己回折法による位相緩和信号はパルス幅程度の超高速性を示すことを見出し、ピコ秒パルス励起とは異なった新たなダイナミクスが存在する可能性を示してきた。

今年度は、フェムト秒レーザからの光パルス幅をスペクトル幅制限により変化させてサブピコ秒パルスとし、これを使った場合の閉じ込め励起子の非線形光学応答について、パルス幅依存性、エネルギー依存性などを、時間領域とスペクトル領域の両面においてさらに詳しく調べた。その結果、複数の励起子準位を同時に励起した場合、励起子位相緩和に起因する応答は 1.6ps 程度であるが、励起子準位間の干渉効果によりサブピコ秒のパルス幅程度の超高速応答が得られることを明らかにした。また、光カー効果による偏光回転信号は 1ps 程度の超高速緩和であることを確認した。また、ダブルヘテロ構造の試料作製と活性層周辺の環境層の光学的構造を制御するため融着による試料作製を進め、活性層の光学特性を劣化させずに融着できることが確認できた。今後この方法により、より大きな非線形光学応答が期待できる構造を作製するとともに、弱閉じ込め励起子系の光学応答ダイナミクスを明らかにしつつ超高速光スイッチの動作検証をすすめていく予定である。

### (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

1. CuCl 超平坦膜導による超高速輻射緩和の観測：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顕著に現れると予想されている 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、昨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、さらに信号の時間応答は測定の時間分解能程度である 100fs オーダーの超高速減衰を示した。今年度はさらに過渡回折格子実験を行って励起子の発光寿命を

測定したところ、やはり 100fs を切る超短寿命を示すことを見いだした。理論計算との詳細な比較検討を試みたところ、この超高速応答は、励起子波動関数と輻射場の相関が何波長にも渡って保たれ、数 100nm の薄膜中で巨大な輻射結合が形成された結果であることが分かった。この機構の詳細な説明は超高性能デバイス開発への新しい指導原理に直結するものとして期待がかかる。

2. **光マニピュレーション**：光マニピュレーションによって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奇ナノ構造作製法を確立することを目指している。今年度は超流動液体ヘリウム中におけるレーザーアブレーションによって作製された微粒子群の透過電子顕微鏡観察を行い、格子縞が確認できる程結晶性の高い粒径数 nm の量子ドットが作製できていることを見いだした。さらに、作製した CuCl 量子ドットにマニピュレーション用の光を照射することにより、粒径数 nm から数百 nm の広い粒径分布を持った集団から 20–50nm の量子ドットのみを超流動ヘリウム中で移動させられることを確認した。

3. **量子ドット超放射現象の研究**：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発見してきた。二光子共鳴励起下における励起子分子発光の時間応答解析をカーゲート法によって 100fs の時間分解能で行い、実際に時間幅 200fs 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。今年度はさらに発光の時間応答の詳細な解析から、この現象が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であることを明らかにした。

(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

1. **半導体を用いた量子もつれ光源の開発**：本研究ではこれまで、CuCl 結晶を用いて励起子分子共鳴ハイパーパラメトリック散乱(RHPS)による量子もつれ光子対の発生を実証し、半導体を用いた量子もつれ光子の発生に世界で初めて成功している(Nature 2004)。その成果をさらに高度化し、量子もつれをもつ光子対以外の光子の寄与を大幅に小さくして、統計的処理を施すことなく、高純度の量子もつれ光子対を発生することに成功した。

2. **極少数光子による非線形位相シフトの計測方法の開発**：単一光子による量子位相ゲートの実現に向け、少数光子による微小な非線形位相シフトの測定方法を開発している。これまで開発してきた Sagnac 干渉計にロックイン検出法を組み合わせ、フォトニック結晶ファイバを非線形媒質として、励起レーザーパルスあたり約 6 個の光子による非線形位相シフト( $10^{-7}$  rad 程度)が観測可能であることを実証した。

3. **新しい量子もつれ光源の開発**：パラメトリック下方変換によって発生した光子対の空間的量子相関を偏光の量子相関に変換する新しい手法を開発した。さらに、Type-2 擬位相整合非線形

結晶から準同軸で生じるパラメトリック下方変換光が、偏光に関する量子もつれを有することを見出し、検証実験によりこれを実証した。

4. **新しい2光子非線形応答の提案**：共振器-原子結合系における2光子非線形過程で、これまで本チームが明らかにしてきた位相シフト量と原子数のトレードオフの問題を克服する誘導吸収による新しい2光子非線形機構を理論的に提案し、それが有効となる条件を明らかにした。

### 3. 研究実施体制

#### (1)「理論」グループ

##### ①研究者名

石原 一(大阪府立大学 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

#### (2)「超高速光スイッチ」グループ

##### ①研究者名

井須 俊郎(徳島大学大学院 ソシオテクノサイエンス研究部 (情報通信研究機構) 教授(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

#### (3)「新現象新材料探索」グループ

##### ①研究者名

伊藤 正(大阪大学 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

#### (4)「光量子位相ゲート」グループ

##### ①研究者名

枝松 圭一(東北大学 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. 研究成果の発表等

##### (1) 論文発表(原著論文)

- H. Ajiki, T. Kaneno, H. Ishihara: "Vacuum-field Rabi splitting in semiconducting core-shell microsphere", *Phys. Rev. B*, Vol. 73, p155322 (2006)
- H. Ajiki and H. Ishihara: "Cavity Effect on Generation of Entangled-Photon Pairs from Biexcitons", in Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies 2006 Technical Digest (Optical Society of America, Washington, DC, 2006), JTuD85
- M. Bamba and H. Ishihara: "Entangled-Photon Generation via Biexcitons in Semiconductor Nano-Structures", in Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference and Photonic Applications Systems Technologies 2006 Technical Digest (Optical Society of America, Washington, DC, 2006), JTuD4.
- H. Ajiki and H. Ishihara: "Enhanced generation of entangled-photon pairs from a cavity system", *physica status solidi (c)* **3**, 2440-2443 (2006)
- M. Ichimiya, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara, T. Itoh: "Ultrafast degenerate four-wave mixing in CuCl ultrathin films", *physica status solidi (b)* **243**, 3800-3805 (2006)
- K. Inaba, K. Imaizumi, K. Katayama, M. Ichimiya, M. Ashida, T. Iida, H. Ishihara, and T. Itoh: "Optical manipulation of CuCl nanoparticles under excitonic resonance condition in supersfluid helium" *physica status solidi (b)* **243**, 3829-3833 (2006)
- T. Iida and H. Ishihara: "Force Control between Nanostructures by Coupling of Spatially Separated Polaritons", *physica status solidi (c)* **3**, 3543-3546 (2006)
- M. Bamba and H. Ishihara: "Entangled-photon generation via biexcitons in nano-structures", *physica status solidi (c)* **3**, 3460-3463 (2006)
- M. Nakayama, D. Kim, and H. Ishihara: "Center-of-mass quantization of excitons in PbI<sub>2</sub> thin films grown by vacuum deposition", *Phys. Rev. B* **74**, 073306 (2006)
- T. Iida and H. Ishihara: "Force control between quantum dots by light in polaritonic molecule states", *Phys. Rev. Lett.* **97**, p.117402 (1-4), (2006)
- T. Iida and H. Ishihara: "Collective Effects in Radiation Force on Movable Quantum Dots", *physica status solidi (b)* **243**, 3946-3951 (2006)
- K. Koshino: "Evaluation of cavity quantum electrodynamics parameters for a planar-cavity geometry", *Phys. Rev. A* **73**, 053814, (2006)
- K. Koshino: "Squeezing in the output field from a one-dimensional atom" *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **39**, 4853-4859 (2006)
- K. Koshino: "Semiclassical evaluation of two-photon cross-Kerr effect", *Phys. Rev. A* **74**, 053818 (2006)
- Y. Sawada, M. Ichimiya, M. Ashida, S. Shimomura, S. Hiyamizu, and T. Itoh:

- “Cathodoluminescence properties of GaAs/AlGaAs pyramidal cap structures with high spatial resolution,” *physica status solidi (c)* **3**, 3553-3556 (2006).
- J. Inoue, T. Isu, K. Akahane, M. Tsuchiya, “Saturable absorption of highly stacked InAs quantum dots layer in 1.5μm band”, *Applied Physics Letters* **89**, 151117 (2006).
  - A. Takamizawa, G. Yonezawa, H. Kosaka, and K. Edamatsu: “Littrow-type external-cavity diode laser with a triangular prism for suppression of the lateral shift of output beam”, *Rev. Sci. Instr.* **77**, 046102/1-4 (2006)
  - R. Shimizu, K. Edamatsu, and T. Itoh: “Quantum diffraction and interference of spatially correlated photon pairs and its Fourier-optical analysis”, *Phys. Rev. A* **74**, 013801/1-10 (2006)
  - T. Iida and H. Ishihara: "Theoretical study of the resonant-light-induced force microscopy", *Nanotechnology* **18**, 084018(1-7) (2007)
  - H. Minami, M. Kusunoki, M. Minamiguchi, M. Ichimiya, M. Ashida and T. Itoh: “Modification of photonic band structure in an ordered polystyrene particle layer by controlling interparticle light-mode interaction,” *Journal of Luminescence* **122-123**, 747-749 (2007).
  - M. Ashida, K. Inaba and T. Itoh, “Optical manipulation of semiconductor quantum dots in superfluid helium,” *Proceedings of SPIE, the Physics and Simulation of Optoelectronic Devices XV*, 6468-41 (2007).
  - O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, M. Sasaki, and M. Tsuchiya, “Ultrafast nonlinear optical response of weakly confined excitons in GaAs thin films”, *physica status solidi (c)* **4**, 1753 (2007).
  - T. Isu, J. Inoue, K. Akahane, H. Sotobayashi, M. Tsuchiya, “Nonlinear absorption of highly stacked InAs quantum dot layers on an InP(311) substrate”, *Proceedings of SPIE* **6393**, 639309 (2007).
  - Y. Mitsumori, A. Hasegawa, M. Sasaki, and F. Minami: “Anomalous photon echoes and Rabi oscillations of quantum dot excitons”, *Proc. SPIE* **6115**, 61151J/1-6 (2006)
  - M. Nakayama, T. Nishioka, S. Wakaiki, G. Oohata, K. Mizoguchi, D. Kim, and K. Edamatsu: “Observation of biexciton-resonant hyper-parametric scattering in SiO<sub>2</sub>/CuCl layered structures”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, L234-L236 (2007)

## (2) 特許出願

平成 18年度特許出願: 1件 (CREST 研究期間累積件数: 11 件)