

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 光電場のナノ空間構造による新機能デバイスの創製

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点)

研究代表者

石原 一 (大阪府立大学大学院工学研究科 教授)

主たる共同研究者

伊藤 正 (大阪大学大学院基礎工学研究科 教授)

枝松 圭一 (東北大学電気通信研究所 教授)

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客員教授)

3. 研究内容及び成果

近年のナノ構造作製技術の発達により高品質化された固体試料中では素励起(電子的励起状態など)のコヒーレント長が伸張り、また固体中では光波長の短縮が起こる。本研究は、このような素励起波動と光波動の空間的相関が従来の「長波長近似の常識」を越えたサイズ領域での量子現象や、デバイス創成への新しい自由度獲得に結びつく物理機能を発現するとの考えで進められたもので、以下の研究成果を得た。

### 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

GaAs 薄膜の膜厚制御によってバルク試料より2桁程度大きい非線形信号が得られることをベースに研究を展開した。GaAs 系試料を用いたフェムト秒パルス励起にともなう多準位間の干渉効果により、入射パルス幅程度の極めて高速な応答信号が得られるという重要な成果を得た。さらに、励起子密度が残存していても時間応答形状が変化せず超高速応答特性を維持することも分かり、この機構を用いたサブピコ秒の応答と高い非線形効率を併せ持つ光スイッチ動作に成功した。

### 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

高品質な CuCl 薄膜(100 - 300 nm)の試料についてもフェムト秒パルスによる 4 光波混合を測定し得られたスペクトルを解析した結果、長波長近似を遙かに超えた長距離結合から生じる巨大な輻射補正を含んだポラリトンモードを完全に捉えていることを明らかにした。このようなモードには輻射緩和速度にして 100 fs を優に切るものも含まれ、理論的にはさらに高速な数 10 fs の応答も可能であることを示した。

さらに「量子ドットの光マニピュレーション」の実証にも取り組み、超流動ヘリウム中のレーザーアブレーションによる極めて高品質な量子ドットの作製と、これを選択的に光輸送して基板上に配列させることに成功した。

実験のベースとなる CuCl の高品質薄膜作製技術については電子線照射と MBE 成長を組み合わせた新手法による大幅な膜質向上(原子レベルの平坦化)によって解決し、チーム内で共有して幅広い物性探索を行った。その結果、当初の計画通り、励起子共鳴域において極めて強い非線形信号を得ることに成功し、上述した超高速輻射緩和を伴う非線形応答の観測にも結びついた。

また、量子ドット系でのデバイス応用可能な新現象探索という課題に関しては、量子ドット中の励起子分子を 2 光子共鳴励起する手法で新しい現象を探り、量子ドット系の 2 光子共鳴励起特有の新しいレーザー発振機構、及び超放射機構などの新規な光学応答機構を見出すことができた。

### 光電場のナノ空間構造による高非線形を利用した量子位相ゲートの開発

本課題に対しては(i) 半導体による良質なもつれ光子対生成、(ii) 微小非線形位相シフトの検出手法の開発、(iii) 2光子状態に対する高効率非線形材料の設計に挑んだ。特に(i)の CuCl 励起子分子のハイパーパラメトリック散乱(HPS)を用いたもつれ合い光子対生成について、最終的には真にベルの不等式を破る高純度の量子もつれ光子の発生にも成功した。

また、量子位相ゲート実現に必要な2光子非線形効果の理論的研究を(i)、(ii)の課題と並行して行ったが、この研究の過程で、高効率な2光子非線形実現のためには、光子数確定パルスの時空間制御技術と多自由度系における非線形性能確保の新しいスキームが必要であることが明らかになった。この研究過程で古典光入射のモデルを用い全量子論をバイパスして光子数確定状態による位相シフトや波動関数を評価する理論的手法が得られ、また多自由度系における2光子非線形性能確保の新しい手法を理論的に提案することができた。

量子位相ゲートの実現に必要な計測技術として少数の光子によって誘起される微小な非線形位相シフトが測定できる技術の開発では偏光サニャック干渉計に工夫を加え、非線形媒質としてフォトリック結晶ファイバを用いて、1パルスあたり平均光子数1個以下のポンプ光子によって誘起される $10^{-8}$ ~ $10^{-7}$  rad程度の微小な位相シフトを高精度で測定できる装置を開発することに成功した。

また、もつれ合い光子対生成については固体試料、特にナノ系や共振器系を用いた場合の物性的立場に立脚した理論研究がこれまで希薄であったが、本研究では、「内部電場のナノ空間構造」が重要になる状況での非古典光子と物質の相互作用を記述できる全量子論の開発と、励起子分子HPSによるもつれ合い光子対生成効率を増強させる新しいスキームの理論提案に基づいた実験的検証作業を進めた。

#### 4. 事後評価結果

##### 4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

ナノ構造体内部では光電場のナノ空間パターンが物質量子準位に共鳴して増大するため、得られる非線形光学効果は桁違いに大きくなるとの予測を基に、理論と実験を両輪として推進した本研究で得られた、科学的知見や基礎技術に関する成果は、英文論文106件、国際会議招待講演25件、口頭(ポスター含)発表467件(国内309/国際158)を通じて公開され、光学応答の基礎物理的理解の方向性提示や深耕にも大きく貢献した。新たな領域開拓の基盤となる基礎的な特許も国内11件、海外8件を出願した。

主要な具体成果を挙げる。

超高速光スイッチ関連では、GaAsナノ構造の巨大非線形性についてフェムト秒パルスを用いてサブピコ秒領域でのダイナミクスを詳細に調べた。高非線形性と高速性が両立する可能性を追求し、励起子の複数状態の同時励起による非線形応答が、ピコ秒パルス励起の場合とは異なり、励起子準位間の干渉効果により位相緩和信号、配向緩和信号、光カー回転信号において巨大非線形を保ったまま励起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。位相緩和速度を上回る超高速信号応答を得られたことは、この特性を使った新規な超高速光スイッチ動作実現の可能性を示唆しており特筆すべき成果である。

さらにデバイス利用の観点から上記機構の特質を探り、励起子密度の残留は応答の時間波形にほとんど影響せず、また強度減少は強度に対して飽和傾向が見られ、超高速光スイッチ動作においてこの超高速応答が生かされるなど複数準位の同時励起による超高速応答は内部電場のナノ空間構造による巨大非線形性と両立する光スイッチの新しい動作原理として有望である。

新現象・新材料探索関連では、CuCl薄膜、及びCuCl量子ドット集合系の2つのタイプの試料による新奇光学応答の探索を行い、薄膜についてはMBE法と電子線照射を組み合わせることで表面モフォロジーを大幅に改善し、励起子重心運動のコヒーレンスが非長波長近似領域まで明瞭に確認できる極めて高品質な試料の作製に成功した。そのことが大きな非線形応答の確認や励起子波動関数と輻射場の空間的相関が何波長にも渡って保たれ巨大な輻射結合が形成されていることを示す分光結果を得るなどの成果につながった。またCuCl量子ドット集合系の光学応答では、これまでに例のない、励起子分子系の超放射現象が確認された。この現象では2光子励起により励起子分子を直接生成することにより容易に反転分布が形成され、条件によって極めて効率的にレーザー発振や超放射が起こり、高速デバイスの新しい機構として注目に値するもので、これらは超高性能デバイス開発の新たな指導原理となる成果である。

光マニピュレーションの実証は共鳴レーザー光照射時にナノ物質に印加される輻射力が個々のナノ物質の

量子力学的個性に依存して選択的に働くことを利用した究極の選別技術になりうるもので、超流動液体ヘリウム中ではあるが微小物質の力学的運動と内部量子自由度をリンクさせた初めての成果で、ドットの集団運動制御や共鳴放射力顕微鏡などの新しい展開にもつながる新奇デバイス材料作製の新技术確立に寄与するものである。

量子位相ゲート関連では、CuCl バルク結晶におけるハイパーパラメトリック散乱過程を利用した実験の結果、世界初である半導体からのもつれ合い光子対の生成に成功し、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させるなど、量子情報処理技術に与えるインパクトは大きい。

また、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、励起レーザーパルスあたり平均1個以下の光子による非線形位相シフト( $10^{-8}$ ~ $10^{-7}$  rad 程度)が観測可能であることを実証するなど、周辺要素技術への貢献も大きい。

本研究は研究代表者をリーダーとする理論グループがチーム研究全体に渡り、実験のサポートと新しい理論的提案を行って顕著な成果を挙げた点も特色のひとつである。GaAsとCuClの異なる材料系における現象の類似性と相違の徹底的な検討による各々の超高速応答機構の解明や、励起子分子の2光子励起という共通の手法を追求したグループ間の連携から生まれた半導体からのもつれ合い光子対生成の成功など、理論を介在とするチーム型研究の特徴が生かされインパクトのある成果に結実した。

しかしながら、このチーム型研究を通じて実験グループ間のなお一層の有機的結合があれば、一部の成果はデバイスのデモンストレーションに到達したものと思われる。多くの理論が本研究期間内に実証され、実証を待つ桁違いの改善を示唆する理論提案もあるにも拘らず、すべての成果がデバイス化への道筋を示すところで終わっている点と、チャレンジングであるとは言え単一光子による位相ゲートの実証が期間内にできなかった点は本研究課題の主目標の一つであっただけに残念である。しかし後述するように次につながる多くの研究が強力に進められており、本チームの研究パワーの今後の活躍が期待できる。

#### 4 - 2 . 成果の戦略目標・科学技術への貢献

画期的性能を持つ光非線形性デバイスの実現を目指してこれまで励起子共鳴効果に着目した研究が行われてきたが、共鳴効果が本質的に持つ効率と速度のトレードオフや室温での不安定性と位相緩和によるコヒーレンスの擾乱の問題が立ちはだかり、長年の研究にも関わらず実用的デバイスへの道筋が描き切れていなかった。このような中、ナノからバルクへのクロスオーバー領域において発現する励起子と光の巨大結合により位相緩和時間を遙かに凌ぐ放射緩和時間を実現した本研究成果は将来的に室温近くにおいてもその本領を發揮し、従来認識されていた性能の限界を突破する光デバイスへの道筋を描くものといえる。

共鳴放射力によるナノ構造運動制御(光マニピュレーション)に関する成果は、理想的なナノ材料選別技術であり、今後の物性探索を飛躍させる研究ツールとして、さらには革新的デバイスコンセプトの実証ツールとしても発展が期待され、量子ドットレーザの性能向上、生体マーカーの波長選別性の向上などにつながっていく成果である。

量子相関(量子もつれ)光子発生素子は、量子情報通信技術において最も重要な光源の一つであるが、半導体による量子もつれ光子の発生技術の開発は、将来的には電流励起による量子もつれ光子発生素子へとつながるもので、そのインパクトは非常に大きいと言える。

本研究はこれまでに発想されたことのない新しい機能発現の源泉を探る研究であり、従来その両立が原理的に困難と考えられてきた高非線形性と超高速応答が両立する物理機構や、「放射力」と「ナノ系の量子力学的現象」を結びつけるアイデアは世界的に例がなかった。独自の独創的発想から生まれたものであり、今後この機構に基づいた研究をさらに推進することは長期的展望に立った国際的技術競争力の確保に資するものと期待できる。

#### 4 - 3 . その他の特記事項(受賞歴など)

本 CREST の多彩な先駆的成果が基礎になって、他の研究支援制度で発展的に展開されることは光エレクトロニクスの革新につながる基盤構築となるものと期待される。

科学研究費補助金では平成 17～21 年度の学術創成研究「超高効率量子もつれ光源および検出器の創成と量子もつれ回復プロトコルの研究」研究代表者: 枝松圭一(東北大学)、平成 19～21 年度の基盤研究(B)「超流動ヘリウム中における量子ドットの作製と光マニピュレーション」研究代表者: 芦田昌明(大阪大学)をはじめ、複数の計画研究代表として参画するなど活動範囲はさらに広がっており、産業界からも注目されて寄附講座(徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部フロンティア研究センター、ナノマテリアルテクノロジー講座 井須俊郎教授)が設置された。

さらに、本チームの全グループから合計 5 名のさきがけ研究者[芦田昌明(大阪大学)、越野和樹(東京医科歯科大)、早瀬潤子(情報通信研究機構)、清水亮介(科学技術振興機構)、飯田琢也(大阪府立大学)]を輩出した点は、科学技術基本計画で重点推進されている研究人材育成道場として CREST が機能している好事例となるものである。