

平成 21 年 5 月 29 日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19760218

研究課題名（和文） 超短光パルス制御による励起子非線形光学応答制御

研究課題名（英文） Control of nonlinear optical response of excitons by control of ultrashort optical pulses

研究代表者

小島 磨(KOJIMA OSAMU)

神戸大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：00415845

研究成果の概要：

半導体薄膜中に閉じ込められた励起子の光学非線形性を利用した超高速光デバイスを実現するために、励起光パルスを制御して励起子応答を制御することを目的に研究を行なった。その結果、励起するレーザーパルスのスペクトル幅を制御して複数の励起子準位を励起することで、励起子準位間の干渉効果に起因した高強度な超高速応答を得られることが分かった。また、励起子状態を光制御するための基礎的な知見を得ることができた。これらの結果は、高光学非線形性と超高速応答性が要求される超高速光スイッチの実現に向けて、重要な知見であると考えられる。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,300,000	0	2,300,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	300,000	3,600,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 電子・電気材料工学

キーワード：薄膜・量子構造

1. 研究開始当初の背景

近年のインターネット等の情報通信技術の発展および普及のために、より簡便な超高速・大容量光通信デバイスの実現が期待されている。半導体中の励起子は、高い光学非線形性を示すことから、励起子応答を利用した高非線形・高速応答光デバイスの実現が望まれている。半導体薄膜の光学特性は、励起子状態により決定されるため、励起子状態を制御することにより、半導体デバイスにおける光学応答を制御することが可能であり、申

請者はこれまで半導体薄膜や半導体多重量子井戸構造を対象として、励起子状態の制御とフェムト秒時間スケールでのその応答特性に関する研究を行ってきた。超高速応答デバイス実現において必要とされる光学非線形応答特性に関しては、励起子と光電場との間の非局所応答に起因する励起子-光相互作用により、特定の膜厚で顕著に増強されることが報告されている。また、その場合の応答速度は、励起子の緩和を反映した数ピコ秒から10ピコ秒程度であり、他の励起子系と比

べて比較的高速な応答を示すことも報告されている。

しかしながら、これまでの励起子-光相互作用に起因する励起子非線形光学応答に関する研究は、パルス幅が数ピコ秒以上(すなわちエネルギー幅が 1 meV 程度以下)のパルスレーザーを用いて行われてきた。一方、励起子の非線形光学応答は、励起子をパルスレーザーにより共鳴励起することで誘起されるので、より高速な応答を引き出すためにはスペクトル幅の広いフェムト秒パルスレーザー(100 fs は波長 800 nm 付近で約 20 nm[~40 meV]のスペクトル幅に相当)による励起が必要となる。

励起子を、ナノメートルスケールで構造を制御した半導体薄膜中に閉じ込めた場合、量子閉じ込め効果により励起子準位は複数の準位に分裂し、膜厚で決定されるエネルギー領域内に分布することになる。そのように複数の励起子準位を有する半導体薄膜を、上述のフェムト秒パルスレーザーで励起した場合(図 1)、複数の励起子準位間の相互作用が起こるために、単一の励起子準位が励起された場合とは異なる応答が得られる可能性がある。二つのコヒーレントに生成された励起子状態が関与する現象として、励起子量子ビートがよく知られており、申請者は GaAs/AlAs 多重量子井戸を対象として励起子量子ビートに関する研究を行ってきたが、3 準位、4 準位と多準位の量子状態がコヒーレントに励起された状態の励起子応答に関する研究報告はほとんどなかった。

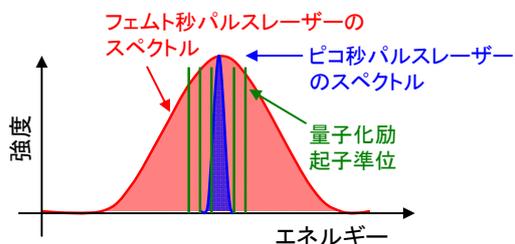


図 1. レーザースペクトルと量子化された励起子準位の模式図。

2. 研究の目的

上記の状況から、本研究は、レーザーのスペクトル波形を様々に制御することにより、励起子準位間相互作用ならびに励起子の緩和ダイナミクスを時間スケールとエネルギースケールの両面で明らかにすることを目的として実施した。これにより、半導体光デバイスにおいて高光学非線形性と高速応答特性を両立させるための物理的機構について明らかにできると考えた。この結果から、例えば 1 ピコ秒以下という高速非線形光学応答を得る条件を確立でき、半導体の励起子非

線形光学応答を利用した高速応答光デバイスの実現に関する研究を大きく前進させることができると考えている。

3. 研究の方法

試料には、分子線エピタキシー法により作製した GaAs/AlGaAs ダブルヘテロ構造(図 2)を用いた。ダブルヘテロ構造とすることで、GaAs 層内に励起子閉じ込め状態を確実に形成できる。非局所応答理論により光学非線形性の増強が生じる膜厚の試料(GaAs: 110 nm)を中心に、非線形光学応答の制御するために膜厚や層数などのパラメータを変更した試料を用いた。

上記の GaAs 薄膜(ダブルヘテロ構造)を試料として、励起子の緩和過程に関する研究を、励起パルス幅可変四光波混合法およびポンプ・プローブ法により極低温(5K)にて行った。回折格子とスリットを用いてフェムト秒パルスレーザーのスペクトル幅を制御することで、パルス幅をフェムト秒からピコ秒のスケールまで自在に制御した。励起パルスのスペクトル幅とエネルギーを同時に制御することで、励起子の緩和ダイナミクスおよび非線形光学応答に対する励起スペクトル幅およびエネルギー依存性を系統的に調べた。

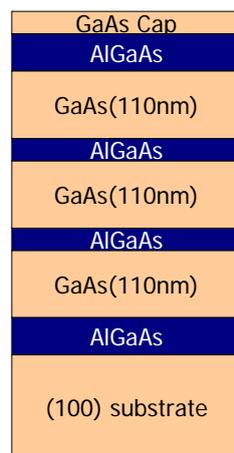


図 2. 試料構造

4. 研究成果

図 3 に示すような、回折格子対とスリット

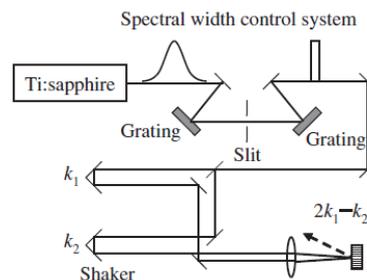


図 3. スペクトル幅制御ユニット

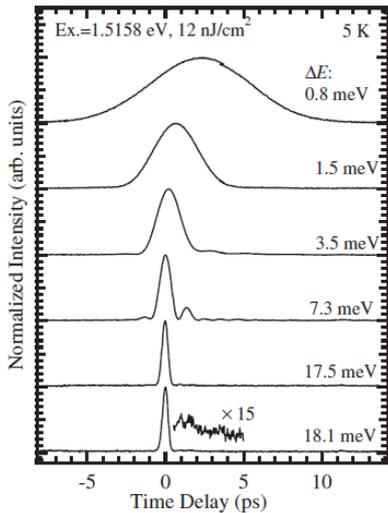


図 4. 縮退四光波混合信号のレーザースペクトル幅依存性。

から構成されるスペクトル幅制御ユニットを時間分解分光システムに導入し、縮退四光波混合信号のレーザースペクトル幅依存性を測定した。その結果を図 4 に示す。レーザーのスペクトル幅 ($\cdot E$) を大きくするにしたがい、時間原点付近にパルス幅程度の超高速応答成分が出現している。

この超高速応答の起源を明らかにするためにスペクトル測定をした結果から、この応答は閉じ込め励起子の光学非線形応答に起因しており、複数の励起子準位を同時に励起して生じる干渉信号、すなわち励起子量子ビートが過渡応答信号に重畳することで、パルス幅程度の超高速応答を得られることが分かった。

さらに、図 5 に示すように、 $\cdot E$ を一定にして、励起光エネルギーを様々に変えて縮退四光波混合信号を観測した。その結果、励起光エネルギーが増加し、複数の励起子準位が励起される、つまり単一の励起子準位の応答

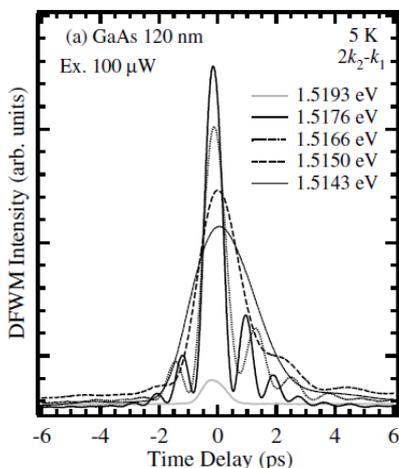


図 5. 縮退四光波混合信号の励起光エネルギー依存性。

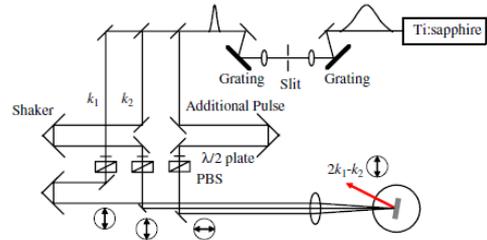


図 6. パルスを追加した光学系。

から、2つ、3つと複数の励起子準位の応答というように、複数の励起子準位が関与するようになるのに応じて、信号強度が増強された。この結果は、スペクトル領域である程度密に詰まった系において、複数の励起子準位を励起することで、励起した励起子準位の数に応じて強い非線形光学応答を得られることを示唆している。

以上の結果から、複数の励起子準位を励起することで、超高速かつ高強度な非線形光学応答を得られる可能性を得た。しかしながら、試料の品質が高いために、長寿命励起子成分が存在することも明らかとなったので、この長寿命成分の影響を明らかにするために、図 6 のように、付加的にもう一本偏光条件の異なるパルスを加えて、励起子密度が存在する場合での縮退四光波混合信号を測定した。その結果を図 7 に示す。この結果では、励起子が存在する条件下においては、信号強度はある程度励起子密度に応じて低下するが、応答速度は変化していない。したがって、励起子が存在していても超高速応答性が得られると考えられる。

上記の強度の低下を抑制するために、励起子密度を光制御する可能性について検討した。図 8 は、縮退四光波混合測定における k_2 光強度依存性である。 k_2 光強度の増加とともに、信号強度が低下している。挿入図は、信号強度の変化をまとめたものであるが、1.0

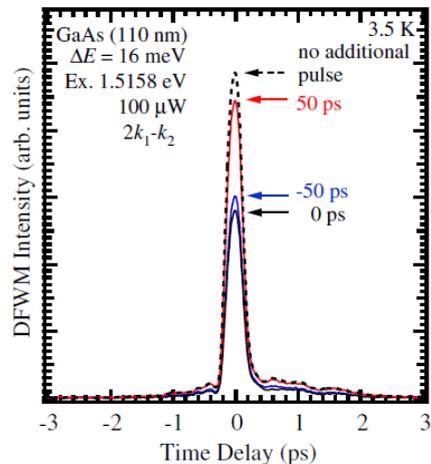


図 7. 様々な時間で励起子密度を注入した場合の縮退四光波混合信号。

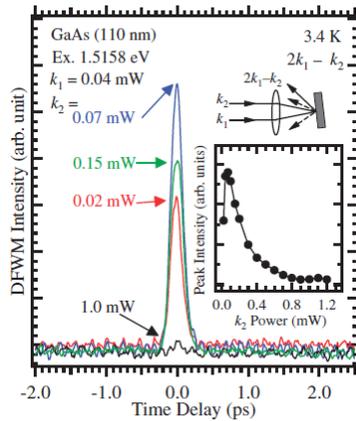


図 8. 縮退四光波混合信号の k_2 光強度依存性。挿入図は強度をまとめたもの。

mW付近でほとんど信号強度は観測されなくなっている。この信号強度の変化の起源を明らかにするために、スペクトル測定を行い、励起子エネルギー成分の信号強度の変化を抽出し、解析を行なった。その結果を図9に示す。この信号強度の変化を解析した曲線(実線と破線)は、ラビ振動の理論に基づいたものである。この図のように最初のピークまでではあるが、ラビ振動による解析曲線と一致しており、また、 k_1 パルス強度依存性を測定し、同様の解析を行なった結果でも一致をえた。したがって、この結果は、励起子ラビ振動を利用した励起子密度の光制御の可能性を示唆していると考えられる。なお、これまでに薄膜系の励起子でラビ振動が観測された例はなく、この結果が初めてのものと考えている。

以上の結果から、励起光パルスの時間、スペクトル波形を制御することで、励起子の非線形光学応答を制御でき、さらに励起子密度の光制御に繋がる結果を得られたと考えている。これらの結果は、励起子の非線形光学応答を利用した超高速光デバイスの実現に向けて必要な、超高速かつ高非線形性を有す

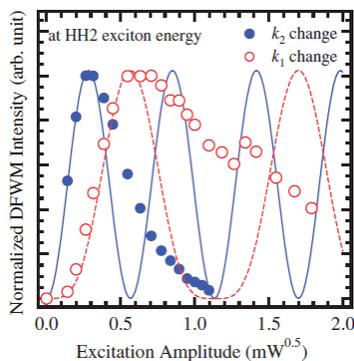


図 9. 縮退四光波混合信号強度のパルス強度依存性を特定の励起子エネルギーで抽出しまとめた結果と、理論解析を行なった結果。

る材料開発において重要な知見を与えるものである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 12 件)

① O. Kojima, A. Miyagawa, T. Kita, O. Wada, T. Isu, “Ultrafast All-Optical Control of Excitons Confined in GaAs Thin Films”, Applied Physics Express, 1, pp. 112401-1-3 (2008) (査読有)

② O. Kojima, H. Nakatani, T. Kita, O. Wada, K. Akahane, M. Tsuchiya, “Photoluminescence characteristics of quantum dots with electronic states interconnected along growth direction”, Journal of Applied Physics, 103, pp. 113504-1-5 (2008) (査読有)

③ O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, A. Kanno, R. Katouf, M. Sasaki, M. Tsuchiya, “Spectral width dependence of residual carrier effect on nonlinear optical response of weakly confined excitons”, physica status solidi (c) 5, pp. 2858-2860 (2008) (査読有)

④ O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, A. Kanno, R. Katouf, M. Sasaki, M. Tsuchiya, “Ultrafast response induced by interference effects between weakly confined exciton states”, Journal of the Physical Society of Japan, 77, 044701-1-4 (2008) (査読有)

⑤ O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, A. Kanno, R. Katouf, M. Sasaki, M. Tsuchiya, “Effects of excitation spectral width on decay profile of weakly confined excitons”, Journal of Luminescence 128, pp. 966-968 (2008) (査読有)

⑥ O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, A. Kanno, R. Katouf, M. Sasaki, M. Tsuchiya, “Decay of orientational grating of weakly confined excitons in GaAs thin films”, Journal of Luminescence 128, pp. 963-965 (2008) (査読有)

⑦ O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, M. Sasaki, M. Tsuchiya, “Enhancement of nonlinear optical response of weakly confined excitons in GaAs thin films by spectrally rectangle-shape-pulse-excitation”, Journal of Physics: Conference Series 61 pp. 618-622 (2007) (査読有)

⑧ O. Kojima, T. Isu, J. Ishi-Hayase, M. Sasaki, M. Tsuchiya, “Ultrafast nonlinear optical response of weakly confined excitons in GaAs thin films”,

physica status solidi (c) 4, pp. 1731-1734 (2007) (査読有) 他4件

[学会発表] (計48件)

①小島磨, "GaAs薄膜における励起子過渡応答に対する空間コヒーレンス効果", 第56回応用物理学関係連合講演会, 2009. 3. 30, 筑波大学

②小島磨, "超高速全光スイッチに向けた励起子光学非線形応答制御 Control of optical nonlinear response of excitons towards to ultrafast all-optical switches", ナノ学会ナノ構造・物性部会第1回研究会, 2009. 1. 23, 神戸大学

③小島磨, "積層超高密度量子ドットの発光特性に対する3次元結合効果", 第19回光物性研究会, 2008. 12. 6, 大阪市立大学

④小島磨, "GaAs薄膜における超高速励起子密度制御", 日本物理学会第2008年秋季大会, 2008. 9. 23, 岩手大学

⑤小島磨, "GaAs薄膜における閉じ込め励起子の密度制御", 第69回応用物理学学会学術講演会, 2008. 9. 3, 中部大学

小島磨, 喜多隆, 和田修, 井須俊郎

⑥小島磨, "積層量子ドットにおける励起子発光強度に対する電子間結合効果", 第69回応用物理学学会学術講演会, 2008. 9. 4, 中部大学

⑦ O. Kojima, "Lengthening of photoluminescence decay time owing to expansion of electron envelope functions in stacked quantum dots", 3rd International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications

2008. 7. 23 Edmonton, Canada

⑧ O. Kojima, "Optical control of residual excitons for ultrafast nonlinear response in GaAs thin films", 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter 2008. 6. 22-27 Kyoto, Japan

⑨ O. Kojima, "Optical cancellation of exciton population in GaAs thin films", 3rd International Laser, Light-Wave and Microwave Conference, 2008. 4. 23-25 Yokohama, Japan

⑩小島磨, "GaAs薄膜における閉じ込め励起子の超高速非線形応答の励起光強度依存性", 第55回応用物理学関係連合講演会, 2008. 3. 28 日本大学

⑪ O. Kojima, "Spectral width dependence of residual carrier effect on nonlinear optical response of weakly confined excitons", 34th International Symposium on Compound Semiconductors 2007. 10. 15-18 Kyoto, Japan

⑫小島磨, "弱閉じ込め励起子の配向緩和", 日本物理学会第62回年次大会, 北海道大学予稿集4, p769, 23pPSA-91, 2007. 9. 21-24

⑬小島磨, "弱閉じ込め励起子の非線形光学応答に対する残留キャリア効果", 第68回応用物理学学会学術講演会, 北海道工業大学予稿集3, p1461, 4a-ZK-12, 2007. 9. 6

⑭小島磨, "Interference effects between weakly confined exciton states on exciton dephasing", 戦略的創造研究推進事業「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」研究領域ナノテクデバイス研究会, 産業総合研究所, 2007. 7. 9-10

⑮小島磨, "Interference effects on degenerate four-wave-mixing signals by weakly confined exciton states", 第26回電子材料シンポジウム, ラフォーレ琵琶湖, 論文集, pp. 159-160, G5, 2007. 7. 4-6

⑯ O. Kojima, "Effects of excitation spectral width on decay profile of weakly confined excitons", 16th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids 2007. 6. 17-22 Segovia, Spain

⑰ O. Kojima, "Decay of orientational grating of weakly confined excitons in GaAs thin films", 16th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids 2007. 6. 17-22 Segovia, Spain

他31件

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

出願番号: 特願2008-241688 (国内)

発明者: 小島磨、井須俊郎、土屋昌弘、菅野敦史

発明の名称: 超高速光スイッチ

出願人: 科学技術振興機構、神戸大学、情報通信研究機構

出願日: 平成20年9月19日

[その他]

- ・JPSJ Editors' Choice 受賞 2008. 3. 25 (Journal of Physical Society of Japan 誌編集部が選ぶ注目論文として)
- ・日経工業新聞 4/15、科学新聞 4/23、日本物理学会誌 7月号において、本研究の成果である励起子の超高速応答が紹介。
- ・ICOOPMA' 08 Best Poster Award 受賞 2008. 7. 23 国際会議 3rd International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications において。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小島 磨 (KOJIMA OSAMU)
神戸大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号：00415845

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

○研究協力者

和田 修 (WADA OSAMU)
神戸大学・大学院工学研究科電気電子工学
専攻・教授
研究者番号：90335422

喜多 隆 (KITA TAKASI)
神戸大学・大学院工学研究科電気電子工学
専攻・教授
研究者番号：10221186

渡部 真吾 (WATANABE SHINGO)
神戸大学・大学院工学研究科・学生

宮川歩弓 (MIYAGAWA AYUMI)
神戸大学・大学院工学研究科・学生

井須俊郎 (IZU TISHIRO)
徳島大学・大学院フロンティア研究センター・教授