

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 22 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009 ～ 2011

課題番号：21340085

研究課題名（和文） ナノからバルクへのクロスオーバー領域における新しい光機能の探索

研究課題名（英文） Study of novel photonic functions in nano-to-bulk crossover regime

研究代表者

石原 一（ISHIHARA HAJIME）

大阪府立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60273611

研究成果の概要（和文）：

本課題では、内部光電場と素励起のナノスケールな空間インタープレイのためクロスオーバー領域に現れる新しい光学現象の機構を研究した。その結果、励起子準位と光が長距離に渡る相互作用体積を確保した結果、10fs 級の超高速輻射緩和が起こることが実験的に明らかになり、またその様な超高速モードを用いた、高効率と超低雑音が両立した「もつれ光子対生成」が理論的に提案された。

研究成果の概要（英文）：

In this project, we have studied novel optical phenomena arising from the spatial interplay between the internal light field and wavefunctions of elementary excitations that is peculiar to nano-to-bulk crossover regime. As a result, we have experimentally clarified an ultrafast radiative decay with around 10 fs that is due to the large-scale interaction volume. Further, we have theoretically proposed an entangled photon-pair generation with both the high efficiency and ultra-low-noise by using such ultrafast modes.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	6,500,000	1,950,000	8,450,000
2010 年度	4,200,000	1,260,000	5,460,000
2011 年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
年度			
年度			
総計	14,800,000	4,440,000	19,240,000

研究分野：光物性理論

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：励起子、ポラリトン、CuCl、薄膜、四光波混合分光、励起子超放射、輻射緩和、位相緩和

1. 研究開始当初の背景

光と物質素励起が強く結合した状態はバルクにおいてはその並進対称性によりポラリトンなる固有状態として存在することがよ

く知られ、長年の研究蓄積がある。一方、素励起を閉じ込めたナノ構造の光学応答は励起子超放射など、物質系の量子サイズ効果を

反映する現象として近年盛んに研究されている。しかしながら、量子閉じ込め系とバルクの間サイズ領域では、極めて興味深い物理が存在するにもかかわらず、(i)並進対称性が存在せず、(ii)かつナノ系の解析で中心的役割を果たす長波長近似 (Long Wavelength Approximation (LWA)) が成り立たないなど、それぞれの領域で中心的役割を果たしてきた仮定や近似が破綻する困難があり、この領域特有の物理の議論は極めて限定的であった。このような中、申請者らは、内部光電場と素励起の両方のナノスケールな空間構造を適切に取り入れる独自の微視的理論をスタートとして、光励起された分極波と光の波動としての空間的インタープレイが支配するクロスオーバー領域の新しい物理を理論・実験の両面から系統的、かつ重点的に調べる本課題を計画した。

2. 研究の目的

本研究では次の目的を掲げた。

(1) クロスオーバー領域に現れる新しい光学現象の基本的機構を理解する。

(2) さらにそこで現れる、ナノ領域やバルクにはない新現象を理論的に予言し、また実験的に発掘する。

(3) それら現象を活用すべき光機能として見たときの限界性能を追求する。

3. 研究の方法

上記目的のため、以下の方法を用いた。

(1) 内部光電場と素励起の両方のナノスケールな空間構造を適切に取り入れる独自の微視的理論により、クロスオーバー領域の固有モード、また線形応答理論での誘起分極、非線形応答理論での四光波混合分光のスペクトルを計算し、実験との比較に備えた。

(2) 実験的には試料として数 10nm から

500nm 程度までの CuCl 薄膜をコンスタントに作製できる体制を整え、計算スペクトルとのフィッティングと同時に、エリプソメーターを用いた多角的な膜厚評価を行い、得られたデータの膜厚依存性が可能な限り正確に議論できるようにした。

(3) クロスオーバー領域で申請者等のグループが理論的に予言していた数 10fs クラスの輻射緩和や、特異な光双安定などについて、非線形応答理論、実時間理論を駆使した探索的研究を行い、さらに四光波混合などの手段を用いて、これら理論提案の実験実証を進めた。

4. 研究成果

本研究では以下の成果を得た。

(1) クロスオーバー領域における励起子コヒーレンス長の概念を覆す特異現象を、高品質薄膜を用いて明らかにした。すなわち、この領域では LWA を超え、非双極子的空間構造を持つ励起子準位と光が長距離に渡る相互作用体積を確保するため、極めて強い結合が巨大輻射シフトや 100fs 級の超高速輻射緩和として現れることを突き止めた。この結果は *Physical Review Letters* [雑誌論文の 14] などに掲載され、また *Laser Focus World Japan* 2010 年 1 月号 *World News* 欄にて紹介された。

(2) 上記超高速輻射緩和は、いわゆる *time-of-flight* の描像が成り立つ、バルク領域へ入る前の、フェルミの黄金律により輻射緩和が支配されるサイズ領域特有のものであることが分かった。その理論的考察が *Physical Review B* [雑誌論文の 15] に掲載された。

(3) 輻射緩和時間にして 17fs という、これまで超高速輻射緩和と認識される緩和時間に比べてもさらに 3 桁程度速い、超高速

モードの観測に"室温"で成功した。励起子は通常位相緩和に弱く、通常室温でコヒーレント信号は観測されない。しかしながら本応答は室温の位相緩和より速いため、位相緩和が始まる前に応答を完了するという劇的な形で室温観測が実現している。この結果は本課題推進メンバーである一宮の国内外での多数の受賞 (EXCON' 10 Wiley Oral Prize、第5回日本物理学会若手奨励賞、ナノ学会第8回大会若手優秀発表賞など) や複数の学生の受賞 (光物性研究会奨励賞) 等を通して注目を集めた。

(4) クロスオーバー領域での超高速輻射緩和が超低雑音「もつれ光子対生成」に結びつく事を理論的に明らかにし、成果を *Physical Review Letters* [雑誌論文の13] 等に発表した。超高速応答のため、通常はトレードオフの関係になる超低雑音性と高出力性を両立させた量子もつれ光子対生成が可能となるからであるが、これは量子もつれ光子対を情報技術に用いるだけでなく、物質制御のための励起光源として用いることを可能とする提案でもある。

(5) 室温で得られた信号をさらに再現性良く得るために高品質薄膜の安定した生成を目指し、これまで得られた中で最高品質の薄膜が作製出来るようになった。また、この薄膜より、ルミネッセンスでは通常観測されないような明瞭な閉じ込めポラリトン準位が観測された。

(6) 将来の超高速信号観測に備えた Kerr 回転測定を解析するための理論枠組みを完成した。これは、これまで四光波混合などで信号の高速性は確認できていたが、信号の強さの確認が課題であったことを受け、回転角からそれを明らかにする方法を検討したものである。特に励起子波動関数が結晶中に長距離に広がり非局所性が重要とな

る条件で Kerr 回転測定を計算する手法としては初めての結果である。

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 16 件)

1. Y. Shim, J. Sakamoto, A. Suzuki, K. Khalilova, K. Wakita, N. Mamedov, A. Bayramov, E. Huseynov and I. Hasanov, Spectroscopic ellipsometry studies of CdS:O layers for solar cells, *Japanese Journal of Applied Physics*, 有, 50, 2011, 05FC14(1-3)
2. M. Bamba and H. Ishihara, Generation of entangled-photon pairs from biexcitons in CuCl thin films : Nano-to-bulk crossover regime, *Physical Review B*, 有, 84, 2011, 045125
3. Y. Shim, H. Aoh, J. Sakamoto, K. Wakita and N. Mamedov, Temperature dependence of dielectric function and optical transitions in TlInSe₂ and TlGaTe₂, *Thin Solid Films*, 有, 9, 2011, 2852-2854
4. M. Ashida, M. Ichimiya, K. Mochizuki, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Coherent nonlinear response surviving at room temperature caused by ultrafast radiative decay of confined excitons, *ultrafast Phenomena XVII*, 有, 2011, 302-304
5. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Room-temperature degenerate four-wave mixing in CuCl thin films, *physica status solidi B*, 有, 248, 2011, 456-459
6. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Efficient radiative recombination of multinode-type excitons up to room temperature in CuCl thin films, *Journal of Luminescence*, 有, 131, 2011, 498-501
7. Y. Shim, H. Aoh, J. Sakamoto, K. Wakita and N. Mamedov, Temperature dependence of dielectric function and optical transitions in TlInSe₂ and TlGaTe₂, *Thin Solid Films*, 有, 519, 2011, 2852
8. M. Ashida, M. Ichimiya, K. Mochizuki, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Coherent nonlinear response surviving at room temperature caused by

- ultrafast radiative decay of confined, Excitons, Ultrafast Phenomena XVII, 有, 2011, 302-304
9. S. Yoshino, G. Oohata, Y. Shim, H. Ishihara and K. Mizoguchi, Rabi splitting in CuCl microcavity with DBR consisting of PbCl₂/NaF multilayers, physica status solidi C, 有, 8, 2011, 221-224
 10. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Room-temperature degenerate four-wave mixing in CuCl thin films, physica status solidi B, 有, 248, 2011, 456-459
 11. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Efficient radiative recombination of multinode-type excitons up to room temperature in CuCl thin films, Journal of Luminescence, 有, 131, 2011, 498-501
 12. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Confined Excitons with Ultrafast Radiative decay time less than 100 fs enabling survival at room temperature, CLEO/QELS:2010, Technical Digest, 有, QWG1, 2010, 1-2
 13. M. Bamba and H. Ishihara, Generation in nano-to-bulk crossover regime, Physical Review Letters, 有, 105, 2010, 123906
 14. M. Ichimiya, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Observation of superradiance by nonlocal wave coupling of light and excitons in CuCl thin films, Physical Review Letters, 有, 103, 2009, 257401(1-4)
 15. M. Bamba, and H. Ishihara, Crossover of exciton-photon coupled modes in a finite system, Physical Review B, 有, 80, 2009, 125319(1-11)
 16. H. Yasuda and H. Ishihara, Multiple beats of weakly confined excitons with inverted selection rule, Physical Review B, 有, 79, 2009, 193308(1-4)

[学会発表] (計 39 件)

1. 吉野慎吾、大畠梧郎、沈用球、石原一、溝口幸司, Rabi 分裂エネルギーを抑制した CuCl 微小共振器における共振器パラリトンの光学特性と時間応答, 日本物理学会・2012 年春季大会, 2012 年 3 月 24 日, 関西学院大学 (兵庫県)
2. 松浦心平、三森康義、小坂英男、枝松圭

- 一、宮崎健一、金谷侑佳、金大貴、中山正昭、大畠梧郎、岡寿樹、安食博志、石原一, 時間分解 2 光子偏光分光法による CuCl 薄膜及び微小共振器中励起子分子寿命の評価, 日本物理学会・2012 年春季大会, 2012 年 3 月 24 日, 関西学院大学 (兵庫県)
3. 池田圭吾、松田卓也、石川陽、石原一、芦田昌明、宮島顕祐, CuCl 量子ドット集合系における励起分子超蛍光の発生機構, 日本物理学会・2012 年春季大会, 2012 年 3 月 24 日, 関西学院大学 (兵庫県)
4. 岡本尚也、高橋和貴、石原一, 励起子弱閉じ込め薄膜における超高速光力-応答の理論, 日本物理学会・2012 年春季大会, 2012 年 3 月 24 日, 関西学院大学 (兵庫県)
5. 吉野慎吾、大畠梧郎、久津輪武史、沈用球、石原一、溝口幸司, CuCl 微小共振器における面内方向膜厚揺らぎの解析, 第 22 回光物性研究会, 2011 年 12 月 10 日, 熊本大学 (熊本県)
6. 岡本尚也、高橋和貴、石原一, CuCl 薄膜中閉じ込め励起子系における光カー応答の実時間解析, 第 22 回光物性研究会, 2011 年 12 月 9 日, 熊本大学 (熊本県)
7. 北野敦資、沈用球、脇田和樹、N. Mamedov, A. Bayramov, E. I. Huseynov, K. Khalilova, I. Hasanov, 分光エリプソメトリによる CdS:0 薄膜の光学定数評価, 多元系機能材料研究会 2011 年年末講演会, 2011 年 12 月 9 日, 愛媛大学 (愛媛県)
8. 松浦心平、三森康義、小坂英男、枝松圭一、宮崎健一、金大貴、中山正昭、大畠梧郎、岡寿樹、安食博志、石原一, CuCl 微小共振器中における励起子分子? 光子結合状態 II, 日本物理学会・2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 23 日, 富山大学 (富山県)
9. 吉野慎吾、大畠梧郎、久津輪武史、沈用球、石原一、溝口幸司, CuCl 微小共振器における面内不均一性の効果, 日本物理学会・2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 21 日, 富山大学 (富山県)
10. 浅葉亮、鈴木昭典、沈用球、N. Mamedov, A. Bayramov, E. Huseynov, 脇田和樹, CdS:0 薄膜のナノ構造とフォトルミネセンス, 第 72 回応用物理学関係連合講演会, 2011 年 8 月 31 日, 山形大学 (山形県)
11. 一宮正義、保田英樹、望月敬太、芦田昌明、石原一、伊藤正, 量子閉じ込め励起子の波動共鳴による室温非線形光応答, 第 72 回応用物理学関係連合講演会, 2011 年 8 月 31 日, 山形大学 (山形県)
12. R. Asaba, A. Suzuki, K. Wakita, Y. Shim, N. Mamedov, A. Bayramov, E. Huseynov, Nanostructure and photoluminescence

- of CdS:0 thin films obtained by cathode sputtering, 21st International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC-21), November, 29, 2011, Fukuoka, Japan
13. M. Ichimiya, H. Yasuda, M. Ashida, K. Mochizuki, H. Ishihara and T. Itoh, Ultrafast and efficient photoresponse up to room temperature by coherent coupling between excitons and radiation wave, 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2011), October, 27, 2011, Kyoto, Japan
 14. K. Wakita, A. Suzuki, Y. Shim, N. Mamedov, A. Bayramov, E. Huseynov, I. Hasanov, Optical properties of CdS:0 thin films with nanocrystals, European Congress and Exhibition on Advanced Materials and Processes (EUROMAT2011), September, 12, 2011, Montpellier, France
 15. 吉野慎吾、大畠悟郎、沈用球、石原一、溝口幸司、屈折率の空間構造を考慮したCuCl微小共振器における光学応答の解折、日本物理学会・2011年春季大会、2011年3月26日、新潟大学（新潟県）
 16. 石原一、ナノ物質と光の相互作用 -長波長近似を超えて-, ~The 55th Condensed-Matter Physics Summer School~ 物性若手夏の学校、2010年8月10日、ホテルたつき（愛知県）
 17. 石原一、光と物質波動の空間的インタープレイ：マクロから一分子へ、特定領域研究「光一分子強結合反応場の創成」領域および 新学術創成研究「半導体における動的相関電子系の光科学」領域合同シンポジウム、2010年5月27日、日本科学未来館みらいCANホール（東京都）
 18. 松浦心平、三森康義、小坂英男、枝松圭一、宮崎健一、金大貴、中山正昭、大畠悟郎、岡寿樹、安食博志、石原一、CuCl微小共振器における励起子分子の観測、第21回光物性研究会、2010年12月11日、大阪市立大学（大阪府）
 19. 高橋和貴、保田英樹、石原一、CuCl薄膜中弱閉じ込め励起子の超高速カー効果応答の理論、日本物理学会・2010年秋季大会、2010年9月25日、大阪府立大学（大阪府）
 20. 松浦心平、三森康義、小坂英男、枝松圭一、宮崎健一、大畠悟郎、金大貴、中山正昭、岡寿樹、安食博志、石原一、四光波混合法によるCuCl微小共振器中の励起子分子の観測、日本物理学会・2010年秋季大会、2010年9月25日、大阪府立大学（大阪府）
 21. 一宮正義、望月敬太、芦田昌明、保田英樹、石原一、伊藤正、ナノからバルクへのクロスオーバー領域における励起子超放射、ナノ学会第8回大会、2010年5月13日、岡崎コンファレンスセンター（愛知県）
 22. S. Yoshino, G. Oohata, Y. Shim, H. Ishihara and K. Mizoguchi, Rabi splitting in CuCl microcavity with DBR consisting of PbCl₂/NaF Multilayers, 9th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Matter (EXCON' 10), July, 13, 2010, Brisbane, Queensland, Australia
 23. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Room-temperature degenerate four-wave mixing in cucl thin films, 9th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Matter (EXCON' 10) July, 14, 2010, Brisbane, Queensland, Australia
 24. M. Ashida, M. Ichimiya, K. Mochizuki, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Coherent nonlinear response surviving at room temperature caused by ultrafast radiative decay of confined excitons, 17th International Conference on Ultrafast Phenomena (UP), July, 22, 2010, Colorado, USA
 25. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Efficient radiative recombination of multinode-type excitons up to room temperature in CuCl thin films, 17th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC' 10), June, 21, 2010, Argonne, USA
 26. Y. Shim, H. Aoh, J. Sakamoto, K. Wakita and N. Mamedov, Temperature dependence of the dielectric function and optical transitions in TlInSe₂ and TlGaTe₂, 5th International Conference on Spectroscopic Ellipsometry (ICSE-V), May, 25, 2010, Albany NY, USA
 27. M. Ichimiya, K. Mochizuki, M. Ashida, H. Yasuda, H. Ishihara and T. Itoh, Confined excitons with ultrafast radiative decay time less than 100 fs enabling survival at room temperature, Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum

- Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS: 2010), May, 19, 2010, San Jose, USA
28. 保田英樹、一宮正義、望月敬太、芦田昌明、伊藤正、石原一、薄膜における高温縮退四光波混合の理論解析, 日本物理学会・2010年春季大会, 2010年3月20日, 岡山大学 (岡山県)
 29. 一宮正義、望月敬太、芦田昌明、保田英樹、石原一、伊藤正, CuCl薄膜における高温縮退四光波混合, 日本物理学会・2010年春季大会, 2010年3月20日, 岡山大学 (岡山県)
 30. 石原一, 局在光電場による分子の励起状態及び力学的運動の操作, 第57回応用物理学関係連合講演会, 2010年3月17日, 東海大学 (神奈川県)
 31. 石原一, 光電磁場と物質波動関数の空間的インタープレイに基づく光学現象, 物性研短期研究会「顕微分光とナノサイエンスの発展」, 2010年2月23日, 東京大学 (東京都)
 32. 石原一, 局在電磁場による分子の励起状態及び力学的運動制御, 日本分光学会高感度表面・界面部会第2回シンポジウム, 2009年12月25日, 産業技術総合研究所つくばセンター (茨城県)
 33. 石原一, 局在光電磁場と分子空間構造のインタープレイを通じた励起状態制御, 第56回応用物理学関係連合講演会, 2009年4月1日, 筑波大学 (茨城県)
 34. 宮崎健一、川瀬稔貴、大畠悟郎、金大貴、石原一、中山正昭, HfO₂/SiO₂ DBR型CuClマイクロキャビティにおけるラビ分裂の制御, 第20回光物性研究会, 2009年12月12日, 大阪市立大学 (大阪府)
 35. 吉野慎吾、大畠悟郎、沈用球、石原一、溝口幸司, PbCl₂/NaF多層膜をDBRとしたCuCl微小共振器におけるRabi分裂の研究, 第20回光物性研究会, 2009年12月12日, 大阪市立大学 (大阪府)
 36. 田辺俊雄、石原一, 多成分励起子を含むZnO薄膜の光学応答, 第20回光物性研究会, 2009年12月12日, 大阪市立大学 (大阪府)
 37. 宮崎健一、川瀬稔貴、大畠悟郎、金大貴、石原一、中山正昭, HfO₂/SiO₂DBR型CuClマイクロキャビティにおけるラビ分裂の制御, 日本物理学会・2009年秋季大会, 2009年9月28日, 熊本大学 (熊本県)
 38. 田辺俊雄、石原一, 多成分励起子を含む共振器中ZnO薄膜の光学応答, 日本物理学会・2009年秋季大会, 2009年9月27日, 熊本大学 (熊本県)
 39. 吉野慎吾、大畠悟郎、沈用球、石原一、

溝口幸司, PbCl₂/NaF多層膜を用いたCuCl微小共振器におけるRabi分裂の評価, 日本物理学会・2009年秋季大会, 2009年9月27日, 熊本大学 (熊本県)

〔図書〕 (計3件)

著者名: 石原一
出版社: 物性研究
書名: ナノ物質と光の相互作用 -長波長近似を超えて-
総ページ数: 444-445
発行年: 2011年

著者名: 一宮正義、望月敬太、芦田昌明、保田英樹、石原一、伊藤正
出版社: ナノ学会会報 (The Bulletin of the Nano Science and Technology)
書名: ナノからバルクへのクロスオーバー領域における励起子超放射
総ページ数: 29-32
発行年: 2010年

著者名: 石原一
出版社: JILS (強光子場科学研究懇親会) 出版
書名: 光科学研究の最前線 2
総ページ数: 258
発行年: 2009年

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石原 一 (ISHIHARA HAJIME)
大阪府立大学・工学研究科・教授
研究者番号: 60273611

(2) 研究分担者

沈 用球 (SHIM YOMGGU)
大阪府立大学・工学研究科・助教
研究者番号: 20336803

(3) 研究分担者

芦田 昌明 (ASHIDA MASAOKI)
大阪大学・基礎工学研究科・教授
研究者番号: 60240818

(4) 研究分担者

一宮 正義 (ICHIMIYA MASAYOSHI)
大阪歯科大学・歯科部・助教
研究者番号: 00397621