

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 24 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654081

研究課題名(和文)半導体による直交位相振幅スクイズド光の発生

研究課題名(英文)Generation of quadrature squeezed light by semiconductors

研究代表者

三森 康義 (Mitsumori, Yasuyoshi)

東北大学・電気通信研究所・准教授

研究者番号：70375153

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円、(間接経費) 870,000円

研究成果の概要(和文)：半導体中の励起子分子を利用する直交位相振幅スクイズド光源開発への道筋を拓くことを目的に、CuCl薄膜、CuCl微小共振器中の励起子分子の基礎光学特性の取得を行った。薄膜中の励起子分子の位相緩和過程はエネルギー緩和過程のみに依存しており、またエネルギー緩和過程は結晶の膜厚に依存していることを明らかにした。微小共振器においては励起子分子の観測のみならず、2ポラリトン状態の反結合状態、励起子分子の共振器効果であるパーセル効果を観測した。これらの結果より、励起子分子はスクイズド光発生に対して理想的な量子状態であることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：We studied the optical properties of the biexcitons in CuCl thin films and CuCl microcavities for the generation of quadrature squeezed light by semiconductors. We found that the dephasing process of the biexcitons in the thin films was governed by the energy relaxation process, which depended on the thickness of the samples. In the microcavities, we observed the Purcell effect for the biexciton. These findings indicate that the biexciton is a quantum state suitable for the generation of quadrature squeezed light by semiconductors.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：光物性

### 1. 研究開始当初の背景

光のス퀴ズド状態は 1985 年に Na 原子において四光波混合法により直交位相振幅ス퀴ズド状態を生成することで初めて観測された。直交位相振幅ス퀴ズド状態とは、電場の複素表示上での振幅の揺らぎの形状を円形(コヒーレント状態)から片軸方向に圧縮した状態である。このような電場振幅の揺らぎの操作は、2つの光子を同時に放出する 2光子過程を利用することにより達成される。具体的には、2次の非線形光学過程である縮退パラメトリック増幅過程、または3次の非線形光学効果である縮退四光波混合法により放出されるシグナル光とアィドラー光の和をとることにより実現される。近年の直交位相振幅ス퀴ズド状態の生成は非線形光学結晶(KTP、LiNbO<sub>3</sub>等)を使用するパラメトリック増幅過程(ダウコンバージョン)を利用する方法が主流である。パラメトリック増幅過程は全ての光学過程が非共鳴のため、自然放出光(発光)の影響を取り除け高品質のス퀴ズド光が得られるが、高性能の外部共振器や高出力のレーザーシステムが必要となる。一方で、縮退四光波混合法過程を利用する生成法ではポンプ光周波数 $\omega_p$ 、シグナル光 $\omega_s$ 、アィドラー光 $\omega_i$ を光学遷移可能な量子状態間の遷移周波数 $\omega_{12}$ に設定し( $\omega_p = \omega_s = \omega_i \sim \omega_{12}$ )、量子状態間の共鳴効果を利用して、非線形感受率を増大させて発生させる。このため比較的出力レーザーシステムでもス퀴ズド光の発生が可能である。ただし、この方法は $\omega_{12}$ の自然放出や吸収過程の影響を受けるため、ス퀴ズングが破壊されやすい欠点をもつ。このため初期の Na 原子の実験ではポンプ光の波長を共鳴条件から意図的に僅かに外す工夫を要し、共鳴効果を最大限活用していない結果となっている。

### 2. 研究の目的

本研究課題ではパラメトリック増幅過程、縮退四光波混合法過程によるス퀴ズド光発生の問題点を克服するために、ポンプ光を半導体中の励起子分子状態に2光子共鳴させた際の共鳴ハイパーパラメトリック散乱過程を利用し、高効率かつ高品質なス퀴ズド光の発生法の確立を目指し、半導体ス퀴ズド光源開発への道筋を拓くことを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究課題が目指すス퀴ズド光の生成方法は、生成されるス퀴ズド光の波長領域に存在する励起子の発光再吸収過程の影響を如何に効率よく取り除くことができるかが非常に重要なポイントとなる。このため、励起子状態の共鳴周波数 $\omega_{exciton}$ とシグナル(アィドラー)光の共鳴周波数 $\omega_p(\omega_i)$ が十分エネルギー的に分離している半導体を用いることが望まれる。そのため、まず励起子分子の結合エネルギーが非常に大きい CuCl 結晶で原理検証実験を行う。CuCl 結晶は自発的

共鳴ハイパーパラメトリック散乱の観測が数多く報告されているため、本研究課題の初期段階の実験においては非常に適した物理系であると考えられる。本研究課題ではまず CuCl 薄膜、CuCl 微小共振器中での励起子分子の基礎光学特性を四光波混合法とポンプ-プローブ法を用いて取得を行い、CuCl 結晶中の励起子分子がス퀴ズド光を発生する上で理想的量子状態であることを確認し、励起子分子を用いる半導体ス퀴ズド光源開発への道筋を拓く。

### 4. 研究成果

#### (1) CuCl 薄膜中の励起子分子の基礎光学特性の取得

CuCl 結晶中の励起子分子は非常に大きな結合エネルギーを示すため、バルク結晶においては多くの研究結果が報告されている。本研究においてはス퀴ズド光の発生を目指しているため、結晶表面が平坦であることが必要不可欠である。そのため、非常に表面が平坦に作成できる薄膜結晶において四光波混合法とポンプ-プローブ法によって励起子分子の基礎特性の取得を行った。温度 3.3K における四光波混合法による位相緩和時間の測定結果を図 1 に示す。励起子分子の位相緩和時間は、顕著な膜厚依存性が観測され、測定領域の膜厚(50 ~ 200nm)では位相緩和時間がおよそ 0.33 ~ 1.3ps とほぼ膜厚に対して線形に増加することが明らかになった。この励起子分子の位相緩和時間の膜厚依存性は

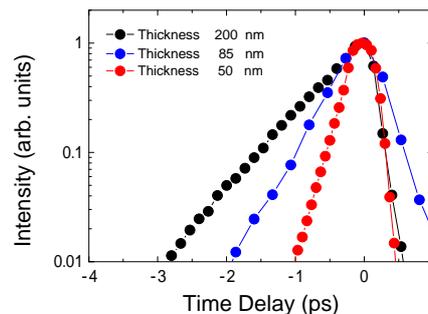


図 1: 四光波混合信号の減衰曲線の膜厚依存性

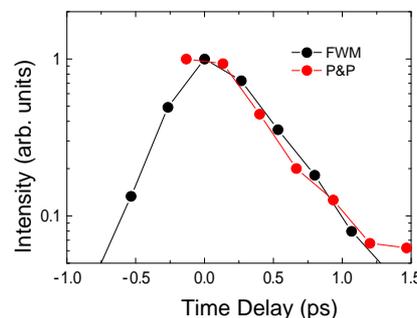


図 2: 四光波混合信号(FWM)とポンプ-プローブ信号(P&P)の減衰曲線

本研究課題によって初めて系統的に観測された効果である。次に励起子分子のエネルギー緩和時間をポンプ-プローブ法により測定した結果を図2に示す。測定は膜厚85nmの薄膜を用いた。位相緩和時間と比較するために四光波混合法で測定された減衰曲線も図中に描いている(遅延時間は図1と逆方向で描画)。四光波混合信号とポンプ-プローブ信号はほぼ同じ時定数で減衰していることが見て取れる。これは、薄膜中の励起子分子の位相緩和過程は純粋にエネルギー緩和過程のみに依存しており、フォノン散乱等による緩和過程が含まれていないことを意味している。このことは、励起子分子はスクイズド光を発生する上で非常に理想的な量子状態であることに対応する。一方、位相緩和時間の膜厚依存性の結果より、薄膜中の励起子分子のエネルギー緩和時間は膜厚に対して比例関係であるという重要な物理的知見が本研究により初めて明らかになった。この励起子分子のエネルギー緩和時間の膜厚依存性に関しては、光と励起子分子の相互作用の理解を深めるうえで早急に解明すべき課題であると考えられる。

## (2) CuCl 微小共振器中の励起子分子の光学特性

微小共振器中に共振器光子と共鳴する光学活性の量子状態が存在すると、共振器光子と量子状態は強く結合し、共振器内部の量子状態から発せられる光を共振器外部に効率よく取り出せることが知られている。このため、CuCl 薄膜から高効率にスクイズド光を発生させるために微小共振器中の励起子分子に着目し、その光学応答の取得を行った。半導体微小共振器中の励起子分子の観測はIII-V族系半導体で数例観測されているのみで、他の物質系においては皆無である。またその光学特性の詳細は未解明のままとなっている。用いたCuCl微小共振器は共振器のQ値が300程度で、共振器光子がCuClバルク結晶中の励起子分子に2光子共鳴する構造のものを用いた。図3に温度3.3K、遅延時間 $\tau = 0.2\text{ps}$ 、入射角 $\theta = 31^\circ$ で測定した四光波混合スペクトルの入射偏光依存性の測定結果を示す。微小共振器の定常反射スペクトルの角度依存性との比較から、円偏光励起時( $\sigma^+, \sigma^+$ )に観測されているピークはローワーポラリトン(LP)と同定することができた。一方、直交直線偏光励起( $\downarrow, \leftrightarrow$ )においては、LPよりも高エネルギー側に大きなピークが観測され、また低エネルギー側にも小さいピークが観測された。LP、2つの共振器ポラリトン(2ポラリトン状態)の反結合状態(AS)、結合状態の共振器中の励起子分子(BS)と基底状態から構成される5準位系における四光波混合過程の解析から、直交偏光励起の高エネルギー側のピークは2ポラリトン状態の反結合状態からの信号で、低エネルギー側のピークは結合状態の励起子分子からの信号であると同

定された。微小共振器中の励起子分子BSと反結合状態ASのエネルギー位置の励起光の入射角度依存性を図4に示す。励起光の入射角度依存性の測定は共振器の離調依存性の測定に対応し、角度が増加するにしたがって離調が正の方向に変化する。微小共振器中の励起子分子のエネルギー位置 $E_{BS}$ はほぼバルク結晶中の励起子分子のエネルギー位置 $E_{BX}$ と一致しているが、角度が大きくなるとLPの2倍のエネルギー位置 $2E_{LP}$ に近づく傾向が観測された。これは、共振器中の励起子分子が2つのLPを通じて共振器光子と結合していることを示唆している。一方、ASのエネルギー位置 $E_{AS}$ は入射角度の増加に伴い、 $2E_{LP}$ より高エネルギー側にシフトしていく様子が観測された。一般に離調の増加とともにLPの励起子成分が多くなるため、角運動量 $J=2$ を持つASにおいては位相充填効果が入射角度の増加と共により強く働くようになる。そのため1ポラリトン状態から2ポラリトン状態への遷移モーメントは基底状態と1ポラリトン状態間に比べ低下し、結果的に2ポラリトン状態に対するラビ分裂幅が縮小する。この2ポラリトン状態に対するラビ分裂幅の縮小により、ASは入射角度の増加と共に $2E_{LP}$ より高エネルギー側にシフトして行くと考えられる。図5にCuCl微小共振器中の励起子分子とCuCl薄膜(50nm)の四光波混合の減衰形状を示す。共振器中の励起子分子は薄膜中よりも速く緩和することが明らかに

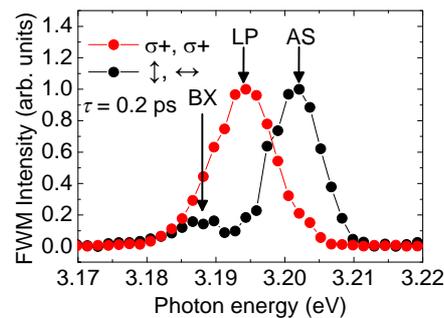


図3：四光波混合スペクトルの入射偏光依存性

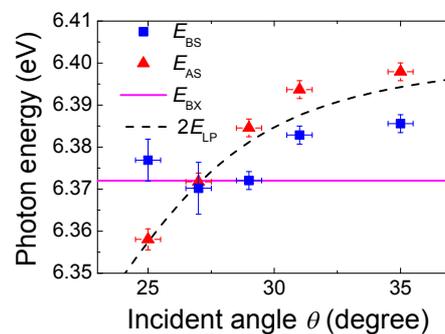


図4：共振器中の励起子分子(BS)、2ポラリトン状態の反結合状態(AS)、バルク結晶中の励起子分子(BX)のエネルギー位置の励起入射角度依存性

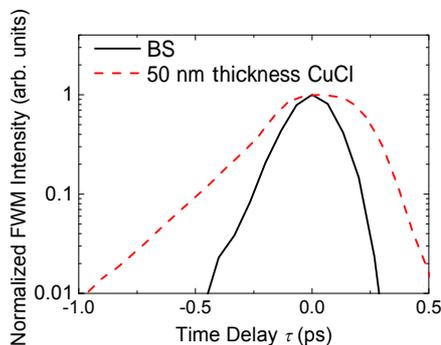


図 5 : 微小共振器中の励起子分子(BS)と CuCl 薄膜(50nm)中の励起子分子の四光波混合信号の減衰曲線

なった。これは微小共振器中の励起子分子は共振器中の共振器光子と結合し、効率よく光として早く緩和していることを意味し、励起子分子における共振器効果の一つであるパーセル効果の観測に成功したことに対応する。

以上のように本研究課題は、薄膜、微小共振器中の励起子分子の光学特性、及び 2 ポラリトン状態の反結合状態の観測等、従来報告例がない新しい光学特性を明らかにすることに成功した。これらの結果から CuCl 薄膜、CuCl 微小共振器中の励起子分子はスクイズド光を発生させるうえで、理想的な量子状態であることが明らかになった。今後は、励起子分子から出射されるハイパーパラメトリック散乱光の平衡ホモダイン測定を行うことでスクイジングレベルの測定等を行い、より実用化に向けた研究が重要であると考えられる。

##### 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 5 件)

T. Inagaki, H. Kosaka, Y. Mitsumori, and K. Edamatsu, Process tomography of coherent state transfer from light polarization to electron spin polarization in a semiconductor, Phys. Rev. B **89**, 085311/1-7 (2014) 査読有 DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.89.085311>

S. Matsuura, Y. Mitsumori, H. Kosaka, K. Edamatsu, K. Miyazaki, D. Kim, M. Nakayama, G. Oohata, H. Oka, H. Ajiki, and H. Ishihara, Observation of bound and antibound states of cavity polariton pairs in a CuCl microcavity, Phys. Rev. B **89**, 035317/1-6 (2014) 査読有

DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.89.035317>

R.-B. Jin, J. Zhang, R. Shimizu, F. Kaneda, Y. Mitsumori, H. Kosaka, and K.

Edamatsu, Entangled state generation with an intrinsically pure single-photon source and a weak coherent source, Phys. Rev. A **88**, 012324/1-4 (2013) 査読有

DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.88.012324>

K. Asakura, Y. Mitsumori, H. Kosaka, K. Edamatsu, K. Akahane, N. Yamamoto, M. Sasaki, and N. Ohtani, Excitonic Rabi oscillations in self-assembled quantum dots in the presence of a local field effect, Phys. Rev. B **87**, 241301(R)/1-4 (2013) 査読有

DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.87.241301>

S. Matsuura, Y. Mitsumori, H. Kosaka, K. Edamatsu, K. Miyazaki, Y. Kanatani, D. Kim, M. Nakayama, G. Oohata, H. Oka, H. Ajiki, and H. Ishihara, Polarization dependence of four-wave mixing via biexcitons in CuCl microcavities, Phys. Stat. Sol. (c) **9**, 2513-2516 (2012) 査読有

DOI : 10.1002/pssc.201200328

###### [学会発表](計 10 件)

三森康義, 松浦心平, 小坂英男, 枝松圭一, 宮崎健一, 金大貴, 中山正昭, 大島悟郎, 岡寿樹, 安食博志, 石原一, CuCl 微小共振器における四光波混合スペクトルの偏光依存性, 日本物理学会 第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 27 日, 神奈川  
安食博志, 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, 大島悟郎, 石原一, CuCl 微小共振器における励起子分子の輻射緩和, 日本物理学会 第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 27 日, 神奈川

佐々木匠, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克, 外部印加静電場による量子ドット中の荷電励起子の観測, 第 24 回光物性研究会, 2013 年 12 月 13 日, 大阪

内山将一, 松浦心平, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 金谷侑佳, 幸内淳悟, 金大貴, 中山正昭, CuCl 薄膜における励起子分子の位相緩和時間の膜厚依存性, 第 24 回光物性研究会, 2013 年 12 月 13 日, 大阪

安食博志, 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, 大島悟郎, 石原一, 共振器中の CuCl 薄膜における励起子分子の輻射緩和, 第 24 回光物性研究会, 2013 年 12 月 13 日, 大阪

長谷川寛幸, 三森康義, 小坂英男, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克, 半導体量子ドットにおける顕微共鳴発光分光法の開発, 第 24 回光物性研究会, 2013 年 12 月

13日,大阪

内山将一,松浦心平,三森康義,小坂英男,枝松圭一,金谷侑佳,金大貴,中山正昭,CuCl 薄膜における励起子分子の位相緩和時間の膜厚依存性,日本物理学会 2013年秋季大会,2013年9月26日,徳島

長谷川寛幸,三森康義,小坂英男,枝松圭一,赤羽浩一,山本直克,半導体量子ドットにおける顕微共鳴発光分光法の開発,日本物理学会 2013年秋季大会 2013年9月26日,徳島

阿部尚文,小坂英男,新倉菜恵子,三森康義,枝松圭一,ダイヤモンド単一 NV 中心における磁気光学三重共鳴,日本物理学会 2013年秋季大会,2013年9月26日,徳島

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,大島悟郎,岡寿樹,安食博志,石原一,CuCl 微小共振器中励起子分子のエネルギー緩和,日本物理学会 2012年秋季大会,2012年9月18日,神奈川

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

三森 康義 (Mitsumori Yasuyoshi)  
東北大学・電気通信研究所・准教授  
研究者番号:70375153

### (2)研究分担者

なし。

### (3)連携研究者

なし。