

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760037

研究課題名(和文)量子ドット-ナノ共振器結合系における二光子自然放出過程を活用した量子光源

研究課題名(英文)Quantum light sources based on spontaneous two photon emission from quantum dot-nanocavity coupled systems

研究代表者

太田 泰友(Ota, Yasutomo)

東京大学・ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構・特任准教授

研究者番号：90624528

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：量子ドット フォトニック結晶ナノ共振器結合系における二光子相互作用の物理およびその応用に関する多くの成果を上げた。特に、レーザー発振および非線形光学波長変換を単一ナノ共振器中で実現する自己周波数変換ナノ共振器レーザーを提案・実現した。量子ドットの広帯域ゲインを利用し、ほぼ可視域全体をカバーするマイクロ集積可視ナノレーザーアレイを実現した。また、第二高調波発生が光子の量子統計性に依存することを実験理論の両面から議論した。加えて、強く結合した量子ドット ナノ共振器系からの自由空間への自然放出を測定する手法を提案・実証した。これらの成果は、二光子の物理を応用した様々な量子光源開発に対して重要な知見となる。

研究成果の概要(英文)：Quantum dot photonic crystal nanocavity coupled systems have been studied in terms of the two photon interaction. The concept of self-frequency conversion, in which both lasing oscillation and nonlinear optical frequency conversion occur using a single laser crystal, has been applied to nanocavities, leading to the demonstration of self-frequency conversion nanolasers. Combining with a broad quantum dot gain, micro integration of the self-frequency conversion lasers enables the realization of a visible nanolaser array, covering an almost entire visible range. In addition, the efficiency of the frequency conversion has been studied in terms of the statistics of the intracavity photons. Furthermore, a method to extract the direct free space spontaneous emission from strongly coupled quantum dot nanocavity systems has been developed. These results will provide significant insights for the development of quantum optical light sources based on the intra-cavity two photon physics.

研究分野：量子オプトエレクトロニクス

キーワード：量子ドット フォトニック結晶 二光子過程 非線形光学 ナノレーザー

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 励起状態にある単一量子発光体の発光緩和過程は、それが禁制でない限り、単一光子の自然放出が支配的である。しかし、励起状態に二光子共鳴する微小共振器を用いれば、高次の過程である二光子自然放出を支配的にできる場合がある。このことは研究提案申請時、申請者らによって半導体量子ドットナノ共振器結合系を用いることで初めて実証された。このことを受けて、半導体量子ドットナノ共振器結合系における二光子過程を高度に制御した新規光源の研究を進めることを着想し、研究開始に至った。

### 2. 研究の目的

(1) 共振器により増強した量子ドットからの2光子自然放出を利用したナノ量子光源およびその物理について検討する。

(2) 量子ドット-ナノ共振器結合系における二光子相互作用の物理を探求し、その光源応用を検討する。

### 3. 研究の方法

(1) 試料作製：高精度原子蒸着手法である分子線エピタキシー法によって、ガリウム砒素中にインジウム砒素量子ドットを埋め込んだ基板を成長する。量子ドットの数は、堆積するインジウム砒素の量で調整可能である。その後、半導体リソグラフィ加工を駆使して基板上に、二次元フォトニック結晶ナノ共振器を作製し、評価のため試料冷却用クライオスタットに設置する。

(2) 試料測定：基礎特性を正確に知るために、低温・光励起で試料の光学特性評価を行った。構造がマイクロ・ナノスケールであるため、高倍率対物レンズを用いた自作顕微鏡により単一試料へアクセスした。光検出には各種光フィルターおよび高分解能分光器、冷却 CCD カメラ等を用いた。

(3) 理論解析：光の場合および物質（電子）の場合を量子化し、共振器等の自由空間への散逸を取り込んだ開放量子系の理論を用いて解析を行った。主に、量子マスター方程式を元に解析的・数値的に実験結果を分析し、物理学的な知見を得た。レーザーの解析には、量子マスター方程式から近似的に導出したレーザーレート方程式を利用した。

### 4. 研究成果

(1) 高Q値・極小モード体積ナノ共振器を利用した量子ドット-ナノ共振器強結合系の実現：高次の摂動効果に起因する二光子過程を効率よく発生させるためには、共振器内部の光強度の増強が極めて重要である。この観点から、共振器の閉じ込め時間に比例するQ値向上および単一光子電界振幅増大に必須である共振器モード体積の極小化に精力

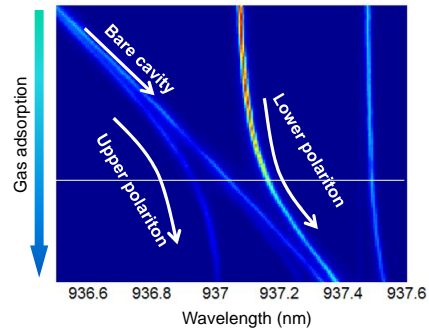


図1. 強結合状態の観測

的に取り組んだ。我々は H0 型と呼ばれる二次元フォトニック結晶ナノ共振器の設計・作製過程を丹念に向上させ、回折限界のモード体積を保ったまま、波長1マイクロメートル帯量子ドットを含むナノ共振器の中で最も高いQ値おおよそ $\sim 100,000$ の実現に成功した。この共振器を用いて、単一量子ドット-共振器強結合系の性能指数の一つである量子ドット-共振器光子結合強度と共振器リークレートの比において世界最高値を達成した。図1に、その試料におけるフォトルミネッセンススペクトルを示す。量子ドットピーク及び共振器ピーク間で明瞭な反交差が見られ、系が強結合状態であることを示している。また、H1型と呼ばれる二次元フォトニック結晶ナノ共振器の設計においても、高Q値・極小モード体積の実現に成功した。

(2) 自己周波数二倍化を用いた可視ナノレーザーの実現：二光子相互作用は、共振器内非線形光学波長変換においても主要な役割を果たす。ここでは、量子ドットから発生した近赤外光を共振器内でそのまま非線形光学周波数変換する自己周波数変換を調べた。特に、量子ドットをゲイン媒体としてナノレーザー発振を引き起こし、その共振器内部発生光を直接可視光へ共振器内で変換する自己周波数変換ナノレーザーを提案し、実現した。量子ドットは、近赤外波長域に広帯域なゲイン幅を有するため、近赤外発振波長の異なるナノレーザーをモノリシック集積することで、多色可視ナノレーザーアレイが実現可能となる。実際に実現した単一半導体チップ上に集積した24個の異なる色を持つ可視ナノレーザー

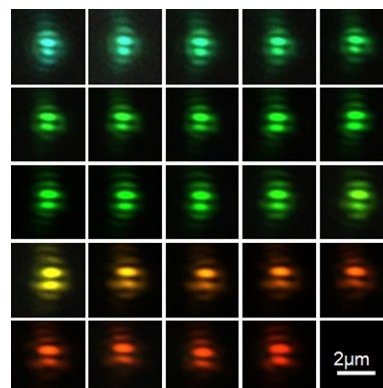


図2. 自己周波数変換可視ナノレーザーアレイ

の近視野像を図2に示す。シアンから赤に渡るほぼ可視全域をカバーする局在レーザー光の発生が確認できる。このナノレーザは非常に簡易に集積が可能であるため、可視コヒーレント光源として、新たな応用を切り開く可能性がある。

(3) 自己和周波発生：自己周波数変換において、2つの異なる共振器モードの間の和周波発生も調べることも可能である。ここでは、H1型の3モード同時ナノレーザ発振を利用して、自己和周波発生を調べた。結果、非常に効率良く和周波発生が引き起こされていることがわかり、非発振モードとの非線形光学相互作用も含めて単一のナノ共振器を利用して総計15本もの可視強線幅ピークが発生できる事がわかった(図3参照)。

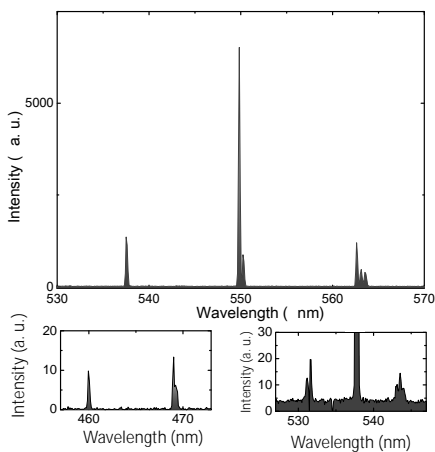


図3．自己和周波発生

(4) ナノレーザ自己周波数変換における量子統計の影響：自己周波数変換において、共振器内光子の量子統計は非線形光学変換効率に対して大きな影響を及ぼす。例えば、単一光子状態をいくら準備しても2光子相互作用は起こりえず、変換効率は0のままとなる。ここでは、レーザ発振に伴う熱分布状態からコヒーレント状態への光子統計性の変化時における非線形光学変換効率を調べた。結果、光子統計性の変化に伴った明瞭な非線形変換効率の変化が観測された(図4参照)。レーザ発振閾値よりも励起強度が弱い場合

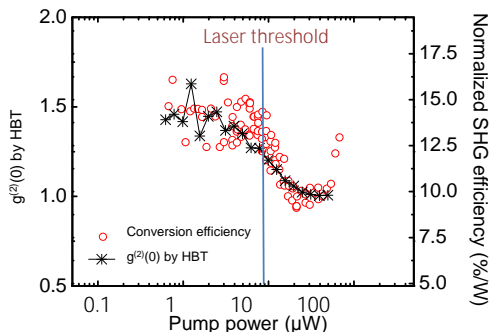


図4．非線形変換効率と光子統計性

は、共振器内光子は熱分布に近い性質を持っており、二光子が同時に存在する確率が、発振時におけるコヒーレント状態よりも高いことを示している。これらの観測事実は、量子マスター方程式を用いた量子光学モデルでよく説明できることも分かった。また、この実験に付随して、ナノレーザが発振閾値付近にて明瞭な緩和振動を示す事が分かった。これは、ナノレーザの大きな自然放出結合数によって、閾値付近での自然放出雑音が大きいことに起因する。こちらも、レーザレート方程式等を用いた解析でよく説明できた。

(5) 自由空間への自然放出測定技術の開発：共振器増強二光子自然放出は、量子ドットから共振器へ光子が吐き出されるものの、その相補的な緩和過程である自由空間への直接的な自然放出を測定することで、量子ドット-ナノ共振器系のダイナミクスをより詳細に調べることができる。ここでは、共振器設計、偏光およびフーリエ空間フィルタを利用することで、量子ドット-ナノ共振器強結合系から自由空間への直接自然放出を測定する手法を開発し、その真空ラビ分裂スペクトルの定量的な違いを議論した。利用した測定系を図5に示す。共振器モードの偏光および遠方界分布の特徴をうまく活かすことで、自由空間への自然放出のみを検出器へ送ることができる。今後はこの系を発展させることで、量子ドット-ナノ共振器結合系における、共振器増強二光子自然放出を含む様々な物理現象の理解およびその光源応用を検討する。

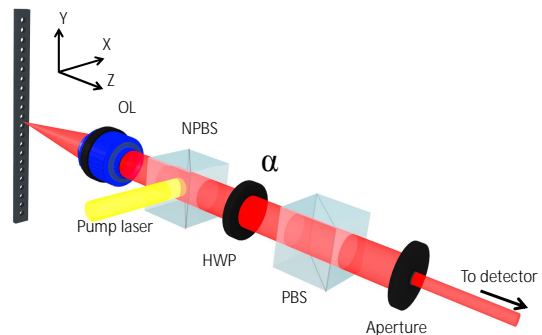


図5．自然放出光の測定系

## 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 6件)

Y. Ota, R. Ohta, N. Kumagai, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, "Vacuum Rabi Spectra of a Single Quantum Emitter", Phys. Rev. Lett. 114, 143603 (2015). 査読有、DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.143603>

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Measuring the second-order

coherence of a nanolaser by intra-cavity frequency doubling", Phys. Rev. A 89,023824 (2014). 査読有、DOI:http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.89.023824

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Self-frequency summing in quantum dot photonic crystal nanocavity lasers", Appl. Phys. Lett. 103, 243115 (2013). 査読有、DOI: http://dx.doi.org/10.1063/1.4846355

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Nanocavity-based self-frequency conversion laser", Opt. Express 21, 19778 (2013). 査読有、DOI: 10.1364/OE.21.019778

H. Takagi, Y. Ota, N. Kumagai, S. Ishida, S. Iwamoto, Y. Arakawa, "High Q H1 photonic crystal nanocavities with efficient vertical emission", Opt. Express 20, 28292-28300 (2012). 査読有、DOI: 10.1364/OE.20.028292

Y. Arakawa, S. Iwamoto, M. Nomura, A. Tandrachanurat, and Y. Ota (Invited), "Cavity Quantum Electrodynamics and Lasing Oscillation in Single Quantum Dot-Photonic Crystal Nanocavity Coupled Systems", IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron., 18, 1818(2012). 査読有、DOI: 10.1109/JSTQE.2012.2199088

[学会発表](計 20 件)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Single Emitter Vacuum Rabi splitting measured through Direct Free Space Spontaneous Emission", The Conference on Lasers and Electro-Optics and The Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS 2015), FF1B.5, San Jose, California, USA (2015/05/15).

太田泰友、渡邊克之、岩本 敏、荒川泰彦, "自己周波数変換ナノ共振器レーザー", 2015年レーザー・量子エレクトロニクス研究会, 金沢(2015/05/21)

太田泰友, 太田竜一, 熊谷直人, 岩本敏, 荒川泰彦, "量子ドット-ナノ共振器強結合系における光散逸経路間干渉", 第

62 回応用物理学会春季学術講演会, 12a-A10-7, 東海大学、神奈川 (2015/03/12)

Y. Ota, S. Iwamoto, Y. Arakawa, "Recent advance in quantum dot cavity quantum electrodynamics", Physics of light-matter coupling in nanostructures 2015, session 4 15:50, Universidad de Antioquia, Medellin, Colombia (2015/02/04)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Nonlinear optics in photonic crystal nanocavity quantum dot lasers", SPIE Photonics Asia, 9277-19, Beijing International Convention Center, Beijing, China (2014/10/10).

太田泰友、渡邊克之、岩本 敏、荒川泰彦, "自己周波数変換フォトニック結晶ナノ共振器レーザー", 2014年電子情報通信学会ソサイエティ大会,C-4-21, 徳島大学, 徳島(2014/09/24)

太田泰友、太田竜一、熊谷直人、岩本敏、荒川泰彦, "ナノ共振器と強く結合した量子ドットの自由空間への自然放出スペクトル測定", 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-C8-3, 北海道大学, 札幌(2014/09/18)

Y. Arakawa, Y. Ota, K. Kamide, and S. Iwamoto, "Quantum Dot Laser in the Cavity Quantum Electrodynamical Regime", 24th IEEE International Semiconductor Laser Conference, WP1, Meliá Palas Atenea, Palma de Mallorca, Spain (2014/09/07)

Y. Ota, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Quantum dot cavity quantum electrodynamics using a photonic crystal nanocavity with high Q and small V", Progress In Electromagnetics Research Symposium, 1P2b, Langham Place Guangzhou, Guangzhou, China (2014/08/25)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, "Measurement of the second order coherence of a nanolaser through its intra-cavity second harmonic generation", The Conference on Lasers and Electro-Optics and The Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS 2014), SW1G.2, San Jose convention center, San Jose,

California, USA (2014/06/11).

太田泰友, 渡邊克之, 岩本敏, 荒川泰彦, " フォトニック結晶ナノ共振器レーザにおける発振閾値近傍での緩和振動の観測 ", 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 18a-E16-7, 青山学院大学, 相模原市, 神奈川 (2014/03/18)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, " Self-frequency conversion in photonic crystal nanocavity quantum dot lasers ", SPIE Photonics West Conference 2014, 9002-33, California, USA (2014/02/05)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, " Nonlinear photonic crystal nanocavities containing quantum dots ", 2013 EMN open access week, B12, Homeland Hotel, Chengdu, China (2013/10/22)

太田泰友, 高宮大策, 太田竜一, 熊谷直人, 石田悟己, 岩本敏, 荒川泰彦, " 高 Q 値 H0 型フォトニック結晶ナノ共振器を用いた  $g/k \sim 4$  を有する量子ドット共振器量子電磁力学系の実現 ", 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 17a-P14-15, 同志社大学, 京都(2013/09/17)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, " Self-frequency Summing in Photonic Crystal Nanocavity Quantum Dot Lasers ", The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim, MI2-7, Kyoto International Conference Center, Kyoto, Kyoto, Japan (2013/07/01)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, " Multi-color visible light generation by self-frequency doubling in photonic crystal nanocavity quantum dot lasers ", The Conference on Lasers and Electro-Optics and The Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS 2013), CThF2, San Jose convention center, San Jose, California, USA (2013/06/13).

太田泰友, 都木宏之, 渡邊克之, 岩本敏, 荒川泰彦, " 自己周波数逡倍化を利用したナノ共振器レーザの  $g^{(2)}(0)$  測定 ", 第 60 回 応用物理学関係連合講演会, 28a-C1-2, 神奈川工科大学, 神奈川 (2013/3/28)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y.

Arakawa, "Coherent visible light generation via self-frequency doubling in photonic crystal nanocavity quantum dot lasers", Joint Workshop on Advances in Nanophotonics, Wurzburg, Germany (2012/11/14)

Y. Ota, K. Watanabe, S. Iwamoto and Y. Arakawa, " Intra-cavity frequency doubling in photonic crystal nanocavity quantum dot lasers ", 2012 IEEE Photonics Conference, WW 3, California, USA (2012/09/26)

太田泰友, 渡邊克之, 岩本敏, 荒川泰彦, " フォトニック結晶ナノ共振器内自己波長変換を利用した可視域多色モノリシック集積量子ドットレーザ ", 第 73 回応用物理学会学術講演会, 14a-B1-6, 愛媛大学, 愛媛 (2012/09/14)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕  
出願状況 (計 0 件)  
取得状況 (計 0 件)

〔その他〕  
特記事項無し

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

太田 泰友 (OTA, Yasutomo)  
東京大学・ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構・特任准教授  
研究者番号 : 90624528

(2) 研究分担者  
なし

(3) 連携研究者  
なし