

フェムトの時間域で電子を操作する

「場と反応」領域 小森 和弘

1. 研究の背景と目的

レーザ技術の進展に伴い、光の振動周期の2倍程度（～5フェムト秒）の非常に時間幅の狭い光パルスの発生が可能になってきている。一方、通信や情報処理に使われている半導体光・電子素子では、ピコ秒領域の信号を扱うのがようやく可能になったばかりであり、フェムト（ 10^{-15} s）の時間域は既存の素子技術では未踏の領域である。

従来の超高速光制御素子では、光励起による実励起キャリアの生成とその緩和を用いて光制御を行っている為に、数ピコ秒（ 10^{-12} s）からナノ秒（ 10^{-9} s）の緩和時間によって動作速度が制限されていた。一方、光励起してから位相緩和するまで間のコヒーレントなキャリアは、光励起の位相情報を保持しており、位相相関のある光パルス列によって超高速光制御（コヒーレント制御）することが可能である。この原理を用いることにより従来よりも1～3桁高速なフェムトの時間域でのキャリアの超高速光制御が期待できる。

これまで、コヒーレント現象の制御に関する研究は、位相緩和時間の長い原子・分子系に限られていた。しかし、最近の超短光パルスレーザ技術の進展に伴い、ピコ秒以下の時間域での光制御・計測が可能になっただけでなく、半導体ナノ構造の作成技術の進展により、高品質半導体量子ナノ構造中の励起子では、数ピコ秒から数100ピコ秒（疑似量子ドット中の局在励起子）の比較的長い位相緩和特性も得られるようになり、半導体中でもコヒーレント現象の制御が可能になってきた。

本研究は、ピコ秒以下の時間域で動作可能な超高速光・電子素子の実現に向けて、新しい動作原理として半導体中のコヒーレント現象の制御（コヒーレント制御）を取り上げ、その為の素子の構成法およびコヒーレント現象の人工操作法についての提案を行なった。また、基礎実験を通してフェムトの時間域で半導体中のコヒーレントキャリアを人工操作する為の基盤技術を確立することを目指した。

2. 研究方法と成果

(1) 半導体結合ナノ構造と重ね合わせ状態の制御

図1に本研究で提案している新しい光・電子素子の概念図を示す。制御光パルスとして光

位相相関のある多連パルスを用いる。素子の内部には、半導体ナノ構造（量子構造）を障壁層を介して多重結合した結合ナノ構造によって人工的な多準位系が形成されている。制御光パルス列によって特定の励起状態を励振・制御することによって、電子分極（密度と分極）の時間発展を制御することができ、素子に入力する信号光の透過・反射率の超高速制御が可能になる。さらに、波動関数が異なる空間分布を有する励起電子の重ねあわせ状態を励振・制御することにより、局在電子の空間振動（量子振動）の時間発展の制御も可能になり、この電荷振動に伴って発生するテラヘルツ電磁波を制御することが可能になる。

コヒーレント現象を制御するには、位相緩和時間内ですべての操作を行なわなければならない為に、半導体ナノ構造としては高品質で位相緩和時間の長いものが必要とされる。本研究では、半導体ナノ構造としてMBE成長法を用いて形成した GaAs/AlGaAs 量子井戸構造と、MOCVD 選択成長法を用いて形成した三日月形状の GaAs/AlGaAs 量子細線構造の利用を考えた。図2には、3重結合量子細線構造の断面図を示す。三日月形状した厚さ5nm、等価幅20nmの3つのGaAs量子細線が薄いAlGaAs障壁層を介して結合した構造が形成されている。発光線幅は量子井戸構造では約1~2meV(12K)で、位相緩和時間は3~4ピコ秒程度であった。一方、量子細線構造においては、マクロな光学測定（ビーム径300μm）では発光線幅が5~6meVと広いが、マイクロな光学測定（ビー

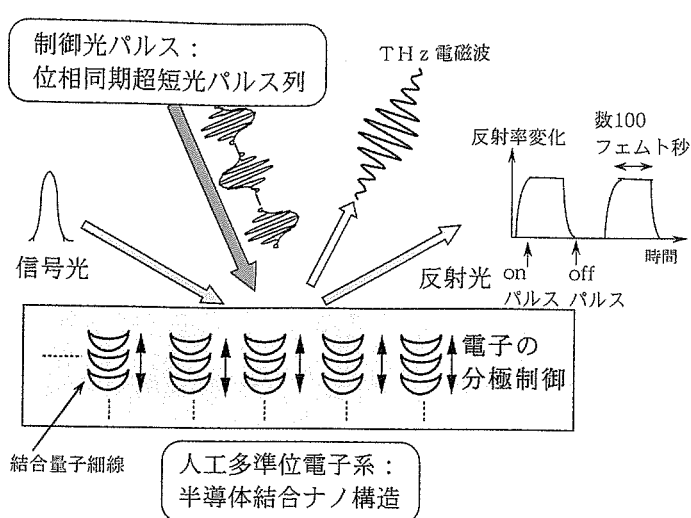


図1 新しい光・電子素子の概念図

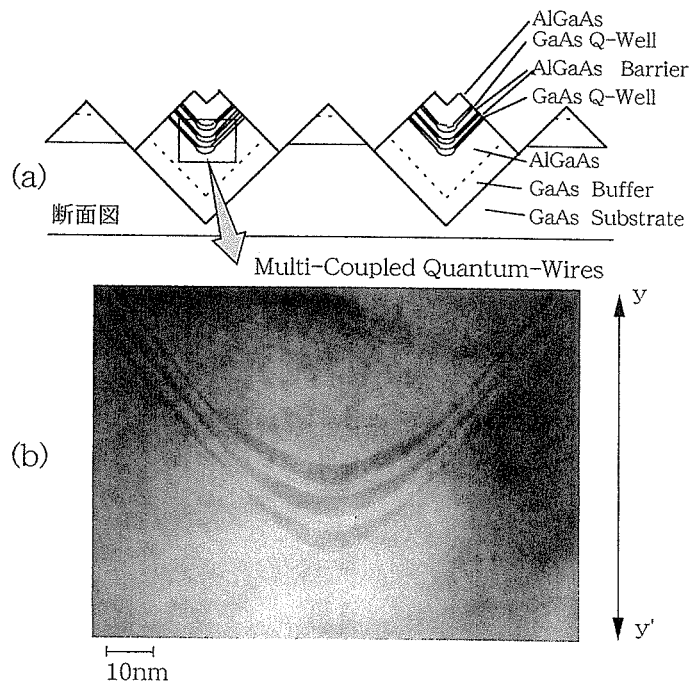


図2 (a) 半導体結合ナノ構造（3重結合量子細線）(b) 断面 TEM 写真

μ径～1 μm) では線幅0.2meV 以下の急峻なピークが見られ、量子井戸よりも位相緩和時間が長いことが予想された。量子井戸、量子細線とも2重結合の構造で結合効果を評価し、いずれも結合による準位の分裂が観測された。以上から、作製した結合ナノ構造が本提案の超高速光・電子素子に応用可能な特性を持っていることが明らかになった。

図3(a)には、本研究で提案している半導体ナノ構造を用いた人工的な多準位系での重ねあわせ状態の制御法の一例を示す。半導体ナノ構造として、量子井戸、細線、箱等を用いて、それぞれを薄い障壁層を介して量子力学的に結合してn個の準位を形成する。電界印加によって各井戸での遷移エネルギーを選択し、超短光パルス列によって特定の井戸の特定の数準位だけを選択的に励振する。これによって特定の波動関数の重ねあわせ状態を励振することが可能になる。一例として、3重結合量子細線の結合による3つに分裂した電子の波動関数(トリプレット状態)を図3(b)に示す。この3つの波動関数を超短光パルスによって同時に励振したときの、励起電子の重ねあわせ状態の時間発展のシュミレーション結果を図3(c)に示す。数100フェムト秒の周期で3つの量子細線の間を電子が周期的に移動する

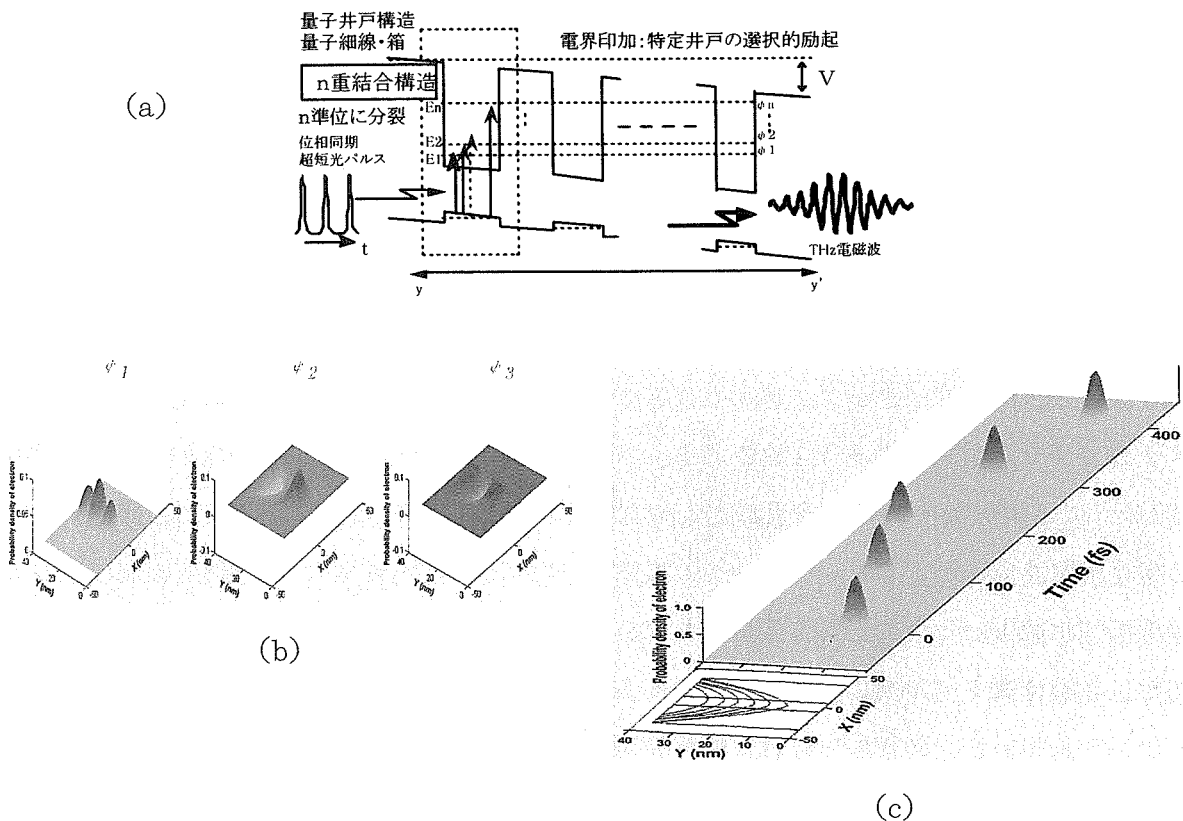


図3 (a) 半導体結合ナノ構造のエネルギー準位図と励起制御
 (b) 3つの結合波動関数
 (c) 半導体結合ナノ構造での量子振動のシュミレーション結果

様子が示されている。このように、人工多準位系の波動関数とその重ねあわせ状態を選ぶことによって、フェムトの時間域で電子の振動（量子振動）の人工的な操作が可能であることが予想される。（図3(a)の例では、バンド間エネルギーに相当する光パルスによって制御しているので、バンド間分極を通して制御できる密度行列要素に関して人工操作が可能になる。）

(2) 位相同期光パルス列形成技術

位相同期光パルス列を形成する場合、光速を c 、パルス間隔を T 、レーザの中心波長を λ とすると、2つの光パルス間の位相が同相（0位相）の条件は、 $cT = m\lambda$ （ m ：整数）、逆位相（ π 位相）の条件は $cT = (m+1/2)\lambda$ となる。このパルス間の位相をマイケルソン干渉計を用いて時間軸上で制御すると非常に精密な制御が必要になる。たとえば位相誤差を5%に抑える為には、パルスの時間間隔を0.07フェムト秒の精度で制御しなければならない。一方、周波数軸上でパルス列を形成する光パルスシンセサイジング法（波形整形法）を用いれば、この制御性が容易になり、また、パルス列形成の自由度も大幅に向上する。そこで本研究では図4(a)に示す光パルスシンセサイジング法を用いて位相同期多連パルス列の形成を行なった。2対のレンズとグレーティング、位相・振幅液晶空間マスク（変調器）を直線に各々がレンズの焦点距離 f となるように配置してある。ここにモード同期レーザからの超短光パルスを入射すると、グレーティングによって各波長ごとに異なった角度で回折され、次に、レンズによって空間的にフーリエ変換される。そして、液晶空間変調器によって位相・振幅の変調が行われる。その後、レンズ、グレーティングによって空間的に逆フーリエ変換され、マスクパターンに応じた任意のパルス列が形成できる。使用した位相と振幅マスクのピクセル数はそれぞれ128である。光パルスシンセサイジング法によりパルス間隔500(fs)の3連対称パルス列を形成し、マスクによる変調後のスペクトル波形と出力パルスの相互相関波形を測定した。図4(b)にそのスペクトル波形を示す。実線は3連パルスの位相相関が第1パルスに対して第2パルス、第3パルスとも同相（0-0-0位相パルス）、また、点線は第1パルスに対して第2パルスが逆相、第3パルスが同相（0- π -0位相パルス）を示している。図4(c)には、相互相関法により測定した3連パルスの相関波形を示す。ほぼ設定どおりの対称位相同期多連パルスの形成が可能になった。

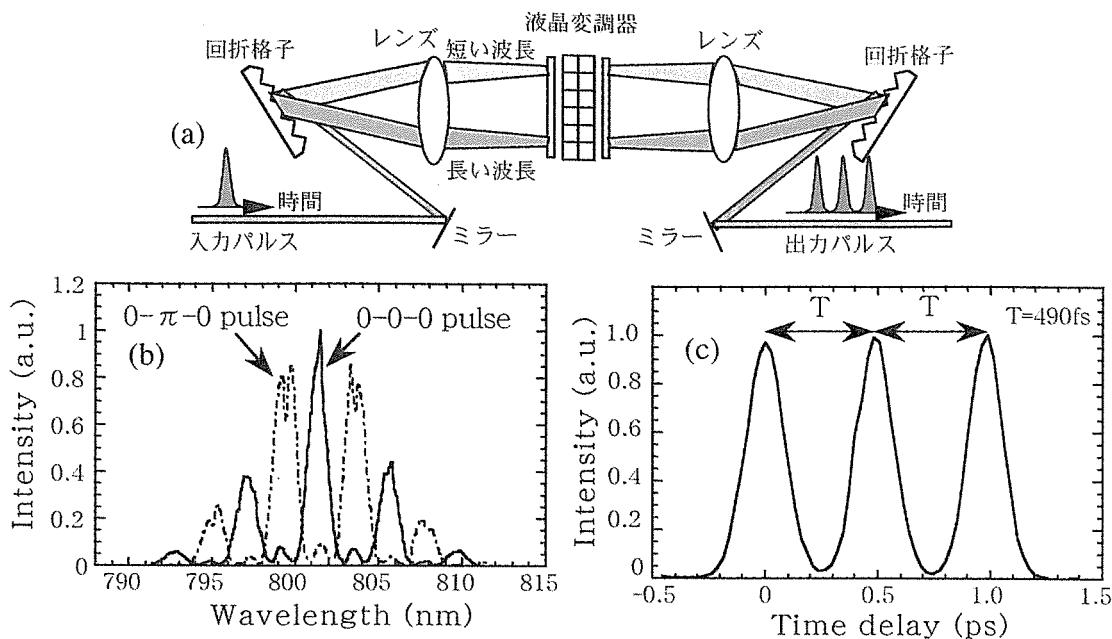


図4 (a) 光パルスシンセサイジング法の光学系
 (b) 位相同期超短光パルス列のスペクトル
 (c) 位相同期超短光パルス列の相互相関波形

(3) 半導体量子構造中の励起子の超高速光制御

図5 (a) には、位相同期パルス列を用いた量子井戸構造中の励起子の超高速光制御の基礎実験の測定原理図を示す。制御光として光パルスシンセサイジング法によって形成した多連パルス列を用いて励起状態を制御する。信号光（プローブ光）としてパルス幅120フェムト秒の超短光パルスを用いて、制御光による励起状態変化に伴う反射率変化を時間分解でモニターする。実験ではポンプとプローブの偏光は垂直に配置し、ロックイン検出によってその反射率変化を計測した。

位相同期3連パルスの概念図を図5 (a) 下図に示す。高周波成分が光電場の振動であり、緩やかな成分が光パルスの包絡線波形である。光電場の振動に対する包絡線の位相を見ると第1パルスに対して、第2パルスでは逆相、第3パルスでは同相になっており、これは0- π -0位相パルスを意味する。ここでコヒーレント制御の原理を説明する。簡単の為、弱励起条件下で位相緩和時間はパルス間隔に比べて十分長いと仮定する。0- π -0位相パルスを制御光として入射すると、第1パルスでパルス面積 S_1 に応じた光キャリア（励起子）が生成される（光を吸収）。次に第2パルスに対して逆位相のパルスが入射するとパルス面積は2つのパルス面積の差となり、第2パルスの面積 S_2 に相当する励起子が消去される（光を強制的に放出）。さらに、第3パルス（パルス面積： S_3 ）入射後は $S_1 - S_2 + S_3$ のパルス面積

に相当する励起子が生成される（光を吸収する）。サンプルの反射率変化は量子井戸での励起キャリア（励起子）密度に比例するので、反射率変化の測定を通して励起子密度の変化を測定することができる。このように、同相または逆位相のパルスからなる位相同期多連パルス列を用いることにより、励起子密度を人工的に操作できることが予想される。

超高速コヒーレント制御の実験では、MBE 法で成長した高品質の単層 GaAs/AlGaAs 量子井戸（量子井戸厚10nm）を用いた。低温（12K）での発光波長は801.4nm で発光線幅は約1.4meV、位相緩和時間は3～4ピコ秒であった。光パルスシンセサイジング法によって形成した2連位相同期パルス列（0- π パルス）と3連位相同期パルス列（0- π -0パルス）を用いた量子井戸励起子の超高速光制御の実験の測定結果を図5（b）に示す。横軸が時間、縦軸が反射率変化を表している。実線が2連位相同期パルス列を用いた場合、点線が3連位相同期パルス列を用いた場合の実験結果を示す。2連位相同期パルスの場合、時間0で第1パルスが入射し、その後490フェムト秒で第2パルスが入射し、逆相では反射率が減少し同相で反射率が増加する結果が得られた。逆相での反射率変化の消去率から、87%のキャリアがコヒーレント制御されていることがわかった。3連位相同期パルスでは、時間0で第1パルスが入射し、約390フェムト秒で第2パルスが入射し、約780フェムト秒で第3パルスが入射する。第2パルス入射後、反射率変化（励起子密度）が減少し、第3パルスの入射後に反射率変化（励起子密度）が増加し、光位相相関に応じてコヒーレント制御されているのが示された。以上より、フェムトの時間域で励起子密度の初期的な人工操作が可能になった。

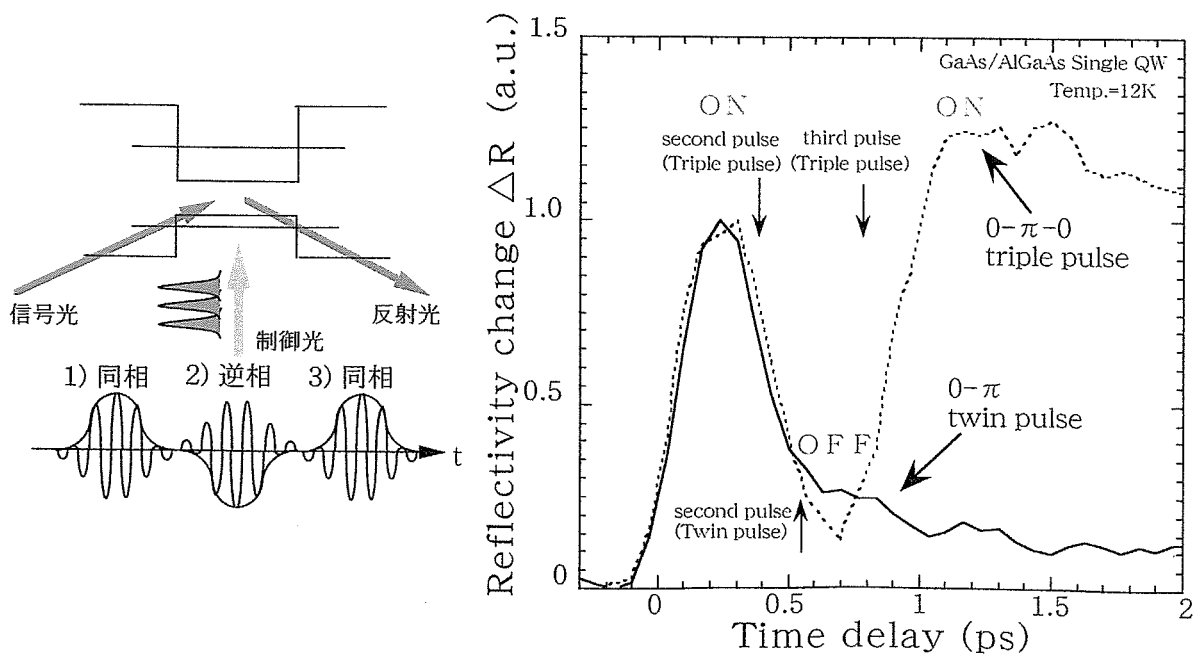


図5 (a) 超高速コヒーレント制御の概念図 (b) 量子井戸の励起子の超高速光制御特性

図6(a)に示す量子井戸のHH-LH系からなる3準位系（1電子準位と2ホール準位）や、結合量子井戸の結合準位（2電子準位と1ホール準位）からなる3準位系では、2つの励起電子（ホール）の波動関数の重ね合せ状態を制御できることが予想される。ここでは、結合量子井戸によって形成した疑似3準位系での励起子密度と分極の制御の基礎実験について述べる。

2連位相同期パルスを用いて制御する場合、2連パルスの第1パルス直後、光スペクトルはパルス幅に対応した幅広いスペ

クトルを有し、2つの励起準位が同時に励起される。その結果、図3に示したように2つの結合量子井戸間で電荷の振動（量子ビート）が生じる。続いて第2パルスの直後の光スペクトルには第1パルスとの干渉による変調が現れる。このスペクトルのピークのところが同相、スペクトルの最小のところが逆相の条件を意味する。そこで、2連パルスのスペクトルのピークに励起子波長があるときは、2つの励起子密度とも同相で励振され、量子ビートも同相励振されることになる。その結果、第2パルス直後では、量子ビートの増強が生じる。一方、双方の準位ともスペクトルの溝にある場合は、双方の励起子密度が逆相で励振される量子ビートも励起子密度を通して減少させられる。その結果、第2パルス直後では、励起子密度と量子ビートの双方が消去される。これらは光学ブロッホ方程式の数値解析結果によっても確かめられた。以上より、結合量子井戸等の3準位系では、位相同期パルス間の位相（励起光スペクトル）を選ぶことによって励起子密度と励起子分極の双方を制御できることが予想される。

縮退4光混合波法を用いた励起子分極のコヒーレント制御実験の一例を図6(b)に示す。サンプルとしてMBE法によって作製したGaAs/AlGaAs結合量子井戸構造を用いた。波数 k_1 のパルスとして位相同期2連パルスを用い、波数 k_2 のパルスとして単一パルスを用い

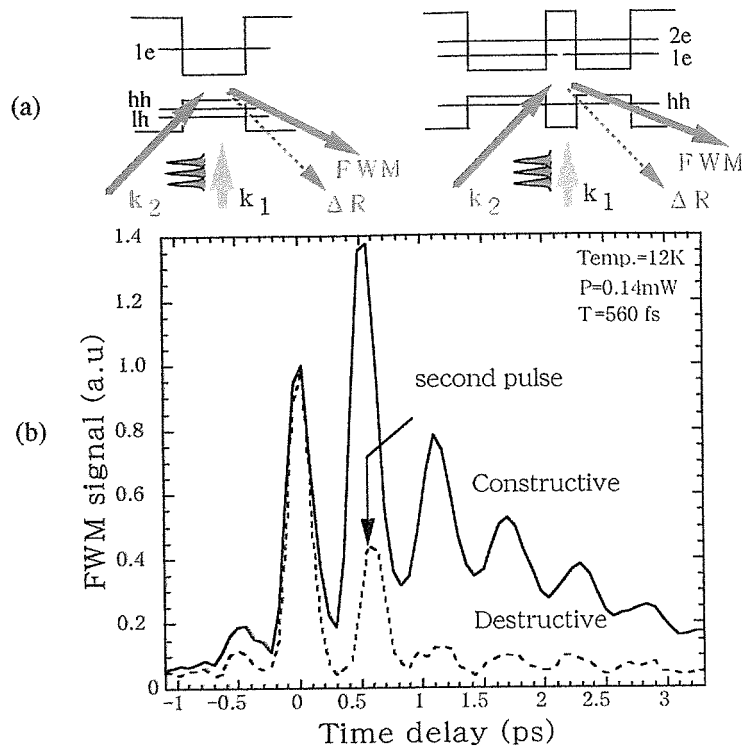


図6. 結合量子井戸の量子振動の超高速光制御

ている。横軸に k_1 パルスと k_2 パルス間の時間差、縦軸に縮退 4 光混合波法の時間積分回折光強度を示す。実線はパルス間の位相が同相 (0-0 パルス) の場合と、点線は逆相 (0- π パルス) の場合の測定結果を示す。

双方の曲線が 1.8THz の周期で振動しているのは量子ビートによるものである。 $t = 0$ で第 1 パルスが入射し、約 560 フェムト秒で第 2 パルスが入射している。第 2 パルス入射後、同相の場合は量子ビートの振動の増強が見られ、逆相の場合には量子ビートの急激な減少が見られた。また、同時に反射率変化を調べたところ、励起子密度も同様にコヒーレント制御されていることが示された。以上より、フェムトの時間域で、結合量子構造での励起子密度と分極の双方の超高速光制御が可能であることが示された。

3. 今後の展望

本研究は、半導体中における超高速現象 (コヒーレント現象) のデバイス応用に向け、高品質の結合ナノ構造を用いた結合電子系の形成に関する研究、超高速光制御用位相同期パルス列の形成に関する研究、半導体ナノ構造中の励起子の超高速光制御・計測に関する研究を通して、フェムトの時間域で半導体中のキャリアを人工操作する為の基盤技術の確立を目指した。実際に、位相同期超短光パルス列を用いた半導体量子構造中の励起子のフェムト秒時間域での人工操作の実験に成功し、本提案の有効性を実証した。課題としては、コヒーレント制御に適した位相緩和時間の長い材料の利用、多体効果の低減、動作温度特性の向上等が上げられ、これらの解決には、位相緩和時間が長く、多体効果が少ないことが予想される量子箱等の半導体低次元構造の利用が有望であると考えられる。

今後、本研究で提案する半導体中での超高速現象の人工操作法は従来の素子 (最小動作時間～ピコ秒台) よりも 1～3 桁も高速なフェムトの時間域で動作する新しい光・電子素子 (光制御型光変調素子、テラヘルツ電磁波発生素子、量子情報素子等) への応用が期待される。

4. 発表リスト

1. K.Komori, M.Arakawa, "Electron states in crescent shaped GaAs coupled quantum-wires" Jpn. J. of Appl. Phys., 1, 3, 1927-1932, (Mar. 1997)
2. K.Komori, X.L.Wang, M.Ogura, and H.Matsuhata, "Observation of exciton states in GaAs coupled quantum wires on a V-grooved substrate", Appl. Phys. Lett., 71, 23, 3350-3352, (Dec. 1997)

3. K.Takasago, M.Takekawa, M.Suzuki, K.Komori, and F.Kannari, "Evaluation of femtosecond pulse shaping with low-loss phase only masks", IEEE J. of Selected Topics in Quantum Electron., **4**, 2, 346-352, (Mar. 1998)
4. K.Komori, F.Sasaki, X.L.Wang, M.Ougra, and H.Matsuhata, "Barrier thickness dependence of optical properties in GaAs coupled quantum wires", Solid State Electron., **42**, 7-8, 1211-1216, (July 1998)
5. K.Komori, X.L.Wang, M.Ogura, H.Matsuhata, and A.Hamoudi, "Subband structure of GaAs coupled quantum wires on V-grooved substrate", IST. phys. conf. series,1997 IEEE Inter. Symp. on Compound Semicond., **97TH8272**, 557, (1998)
6. K.Komori, T.Asahara, T.Sugaya, M.Watanabe, and T.Hidaka, "Coherent Control of Excitons in Quantum Well Structure by Pulse Shaping Technique", Proc. of LEOS'98, **98CH36243**, 2, 59-60 (Dec.1998)
7. K. Komori, T. Asahara, T. Sugaya, M. Watanabe, and T. Hidaka "Coherent control of excitons in single and coupled quantum wells" SPIE Proc. of Ultrafast Phenomena in Semiconductor 3, **3624**, 159-166, (Jan.1999)

他 口頭発表 (国際会議12件、国内会議26件)