

「光の創成・操作と展開」研究領域 領域活動・評価報告書
—平成20年度終了研究課題—

研究総括 伊藤 弘昌

1. 研究領域の概要

本研究領域は、光の本質の理解、光に関わる新しい現象・物性の解明、光の制御や光による物質の制御に関する新しい概念・手法の探求などに関して研究を進めるもので、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据え、個人の独創的な発想に基づいたこれまでにない研究を対象とするものである。

具体的には、赤外、可視、紫外のみならず広範な領域を対象とした、光の発生・伝搬・検知の手法・技術に関する研究、それらに対応する素子等の研究、光と物質の局所的相互作用に関する研究、光による原子・分子の制御手法の研究、光の波長・振動数、位相、エネルギー密度計測手法などの光の本質の理解に関する研究、などがあげられます。これらの研究によって、新たな原理の発見、方法論の創出が成され、革新的な技術展開の契機となることが期待される研究を対象とする。

2. 研究課題・研究者名

別紙一覧表参照

3. 選考方針

選考の基本的な考えは下記の通り。

- 1) 選考は「光の創成・操作と展開」領域に設けた領域アドバイザー15名の協力を得て研究総括が行う。
- 2) 選考方法は、書類選考、面接選考及び総合選考とする。
- 3) 選考の基本的な考え方は、研究課題が戦略目標「光の究極的及び局所的制御とその応用」に合致した新しい概念・手法の探求などに関して研究を進めるもので、これらの研究によって、新たな原理の発見、方法論の創出が成され、革新的な技術展開の契機となることが期待される研究を対象とした。また、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据え、個人の独創的な発想に基づいたこれまでにない研究であることも重視した。

4. 選考の経緯

一応募課題につき領域アドバイザー3名が書類審査し、書類選考会議において面接選考の対象者を選考した。続いて、面接選考および総合選考により、採用候補者を選定した。

選考	書類選考	面接選考	採用者
対象者数	125名	21名	10名

5. 研究実施期間

平成17年10月～平成21年3月

6. 領域の活動状況

領域会議:6回

＜領域会議に併設して、会場近隣の施設を視察＞

光関連研究施設見学会:5回

＜双方の研究総括の申し入れで交流を行う＞

CREST「光の究極的及び局所的制御とその応用」研究領域との交流(研究発表会への有志参加):1回

さきがけ「光と制御」研究領域との領域交流(領域会議への有志参加):1回

さきがけ「物質と光作用」研究領域との領域交流(領域会議への有志参加):8回

研究総括(または技術参事)の研究実施場所訪問:101回

研究開始時に研究現場を訪問し、研究環境、設備等の確認及び研究費、研究の進め方のヒアリングを行った。併せて、組織責任者への協力依頼を行った。特に、外国研究機関にて研究を進めている研究者に対しても現地を訪問し、きめ細かなフォローを行った。また、研究期間内で異動した研究者をその都度訪問し、研究環境を

確認した上で、新組織責任者への協力依頼、研究継続に必要な支援の決定を行った。訪問については、技術参事が同行するとともに、研究者の課題早期発見並びに課題相談に、技術参事が別途研究者訪問を行った。

7. 評価の手続き

まず、研究期間中間時点の領域会議(平成 19 年秋)で「中間まとめと今後の展望」を特別テーマとして実施し、研究総括、アドバイザーの意見を頂いた。次に、研究期間最終年度に、研究者の課題別評価書を基に領域アドバイザーの意見を参考にして研究総括が評価を行った。

また、研究終了時に科学技術振興機構が開催する、一般公開である研究終了報告会の参加者の意見を参考とした。特に、研究終了報告会には、2005 年ノーベル物理学賞受賞者の J. Hall 博士、アト秒科学の P. Corkum 博士を始めとする海外研究者 4 名にも参加頂き、活発な意見のもと、その研究成果評価と共に研究の将来性に有用な意見を頂いた。

(評価の流れ)

平成19年11月	H19 第2回領域会議にて、特に第1期生に「中間評価と今後の展開」をテーマ設定し、総括・アドバイザーによる進捗評価とアドバイスを実施。
平成20年11月	H20 第2回領域会議にて、第1期生に「研究終了評価と今後の展開」をテーマ設定し、総括・アドバイザーによる進捗評価とアドバイスを実施。
平成21年 2月	研究報告書及び研究課題別評価書提出(研究者作成)
平成21年 3月	研究報告会開催(研究総括、アドバイザー、海外招聘研究者、一般公開報告会参加者による評価の実施)
平成21年 3月	研究期間終了
平成21年 3月	領域活動・評価報告書及び研究課題別評価書提出
平成21年 4月	研究報告書提出

8. 評価項目

- (1) 研究計画書の目標に対する研究課題の達成度
- (2) 得られた研究成果の科学技術への貢献
- (3) 計画外成果の科学技術への貢献
- (4) 外部発表(論文、口頭発表、等)、発明出願など研究成果の発信状況
- (5) 表彰・招待講演など外部からの評価状況

9. 研究結果

当領域では、光の本質の探究から光の応用に至る幅広い研究課題が採択されている。本質の探究には、原子・光子の量子操作、分子構造のイメージングなどがあり、応用は、光の制御から始まり光による物質の制御、新奇な物質の創成に至っている。これらの研究には、光科学に関する様々な分野の協力が必要であるが、当領域の幅広い専門分野の研究者、並びにアドバイザーの交流により多くの研究課題発展が図られた。その結果、研究成果に、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据えた、新たな原理の発見、方法論の創出、並びに、革新的な技術展開の契機が示された。研究者別にそれらの研究目的と結果、及び評価を記述する。

○ 芦田 昌明 研究者

アンテナは電波を捉える手段として多用されているが、光も電波と同様、電磁波であり、同様にアンテナで検出することができるとの観点で、これまでの光検出器にない新奇機能を実現することを試みた。特に、光と電波の境界領域であるテラヘルツ電磁波(0.1-10THz)に適切な検出手法が無く、この領域での検出手法を確立すると言う成果を得た。検出された電磁波の最高周波数がいわゆる光の領域である近赤外域 170THz(1.7 μ m)に至り、世界記録を達成した。このことにより、本手法の検出域がテラヘルツ領域を遙かに超え、光通信波長帯を含む近赤外域、いわゆる光の領域にまで拡張できる見通しも得た。従来にない検出法として分光技術に画期的な発展をもたらす他、情報通信技術への広い応用が期待される。

本研究で開発した技術を用い、高温超伝導体、半導体ナノ構造物質、メタマテリアルなど、興味ある物質の新奇物性解明に適用していくことが望まれる。

○ 石川 顕一 研究者

時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・あやつる革新的な方法を創出することを目標に研究を行った。アト秒科学の重要な潮流である「高次高調波発生の基本波長依存性」の詳細な検討を、世界にさがけておこない、下記を提案する成果を得た。「アト秒2重・3重スリット実験」は、高強度超短パルス光と高強度短波長光を組み合わせることによって電子のダイナミクスをあやつり、「基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生」はさらにそれを革新的なアト秒パルス発生法として応用するものである。いずれも特筆すべき成果である。電子やイオンなどの量子ビームやプラズマの物理も含めて、研究を展開して行き、光と量子ビームの統合シミュレーションまで展開することを期待する。

○ 井戸 哲也 研究者

周波数コムや高分解能分光等、究極の光の位相制御を真空紫外域で実現することを研究の目標とした。この精密分光はラムシフトの測定精度の向上等物理学の根本部分に大きなインパクトを与えるものである。さがけ研究期間中に、光周波数コム研究のメッカである JILA から日本に研究場所を異動し、研究環境の新規立ち上げというハンディを負ったが、受動共振器による近赤外増強パルスでの原子のプラズマイオン化を実現したのは大きな成果である。また、光格子時計でのかつてない Q 値であるわずか 2Hz のスペクトル幅での分光は、レーザー発明以来の高分解能分光の歴史における 1 つのマイルストーンと言うべき特筆すべきものである。今後、これらの手法を確立し、受動光共振器による強度増強、及び、周波数コムや高分解能分光等究極の光の位相制御を真空紫外域で実現することを望む。また、本研究の応用として、真空紫外域顕微鏡の照明等、高い平均強度の一方で、より低い電場強度が要請される分野があり、この波長域の光学技術を大きく発展させることを期待する。

○ 大村 英樹 研究者

波長の異なるフェムト秒光パルスを重ね合わせ、その相対位相を精密に制御した位相制御光による分子配向に関する量子制御技術を世界に先駆けて実現し、位相制御光と分子との相互作用は位相に強く依存する多彩な量子現象を示すことを明らかにした。開発した手法は光電場の非対称性という位相制御レーザーパルスの持つ新しい光の本質に基づく空間領域での量子制御に位置づけられ、位相制御光を用いた物質制御の新しい方法論を提示できるものと高く評価できる。今回開発した技術は高度に制御された光による最先端の分子操作技術であることに特徴があり、反応制御にとどまらずナノテクノロジーなどの分野での横断的、融合的な技術展開が可能であり、社会的経済的波及効果をもつ。位相制御レーザーパルスの持つ新しい光の本質に基づく物質の量子制御の更なる発展のためには、実用的な技術の創出の可能性を示すことが重要である。従来困難であった制御が、位相制御レーザー光による量子制御によって実現可能となる新技術の開発を期待する。

○ 尾松 孝茂 研究者

非線形光学、レーザー工学を高度に駆使し、CW からフェムト秒に至る時間領域でトポロジカルチャージを有する高出力・高強度レーザー(トポロジカル光波)を高効率でかつ自在に創製し、新しい光科学の創成を目標として、下記特筆すべき成果を得た。①高出力ピコ秒ラゲルガウスビーム(平均出力 8W、パルス幅 4.5ps、パルス繰り返し周波数 150MHz)の発生に成功。②高出力高品位ピコ秒パルスレーザー(平均出力 95W、ピークパワー>10MW)を世界ではじめて開発。③世界ではじめて多重光渦による光マニピュレーションでナノ微粒子を輸送。研究期間を通して開発してきた高出力・高強度トポロジカル光波のいくつかは完成度も高く、実用光源として次世代のプラットフォームとなりうるもので、特に、高出力ピコ秒レーザーはテラヘルツ波や OPCPA の励起光源として応用できるとともに、シリコンやサファイアをはじめとする難加工材のアブレーション加工用光源として産業界にも大きく貢献すると期待される。また、プラズマ密度や再結合時間をトポロジカル光波で制御できれば、EUV 光の発生効率改善やプラズマによる光学部品の損傷や汚染低減などの効果が期待できるので、産業界に与えるインパクトは計り知れない。

○ 桂川 眞幸 研究者

本研究は、ほぼ完全にコヒーレントに振動/回転する高密度($\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)分子集団による超高周波の光変調器を開発し、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を得ることを目的としたが、一オクターブを遥かに超える超広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルを生成するという成果をえた。この成果は、高く評価され論文誌(Phys. Rev. Lett.)の表紙を飾っている。また、離散的・広帯域に渡るスペクトルから形成される超短パルス光の評価法、並びに、広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルの位相定量評価法を確立し、離散スペクトル

に特有の新しいパルス圧縮法を見出したことは特筆すべき成果である。ここでの研究成果が礎となって、Rydberg励起状態の空間的量子局在、単色テラヘルツ波発生など、パルス光列の高精度高繰り返し性という軸での研究領域が切り開かれることが期待される。更に、シンセサイザーのように、“光振幅波形”を制御した超短パルス列を単一周波数レーザー光から組み立てる新奇光源の実用化も望まれるところである。

○ 久保 敦 研究者

自ら考案した「干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM)」により、素子中を伝搬する表面プラズモン(SP)波束を映像化し、SPの運動を再現するための解析手法開発、SP光学素子類の製作手法確立、並びに試料製作を行った。ITR-PEEMによる表面プラズモンの顕微映像化に成功し、表面プラズモン映像解析シミュレーションの開発に結びつけたことは大きな成果である。SPの集光レンズなどSP光学素子の製作手法を確立し試料試作に結びつけたことは特筆すべきことである。また、飛行時間型光電子顕微鏡による表面プラズモンの空間分解光電子分光の実現、光位相による表面プラズモンのコヒーレントコントロールの実証、などその手法の応用も幅広く成果を得ている。中長期的な展望として、さらに時間分解能を高めた、SP波束そのものを観察する「アト秒PEEM」への展開を期待したい。

○ 熊倉 光孝 研究者

長時間に亘って擾乱の少ない状態で原子波伝搬を観測するための“原子波回路”開発を行った。この回路上で物質波ソリトンの運動特性や衝突相互作用などを明らかにし、新たな非線形量子現象の開拓や原子波を利用した新規デバイスの可能性を探ることができる。国内では7ヶ所目のBase凝縮体生成装置を開発し、今後、量子凝縮相を利用した実験研究を広く展開する新しい研究室として、凝縮体の基礎物理や応用研究に大きく貢献できる研究基盤を整えることができたことは大きな成果である。開発装置を用い、Bose凝縮が起り始めたと考えられる最終RF周波数1.370 MHzで、原子気体の位相空間密度が始めて大きく2.6を超え、理論的な条件と一致していることを確認した。また、同様に、1.355 MHzの最終RF周波数では、熱的な成分がほとんど消え、ほぼ純粋な凝縮体を生成できたが、これらは高く評価できるものである。BEC中のソリトンは、原子波の位相ステップとして特徴付けられ、ソリトンを原子波位相のインジケータとして利用する新しい精密計測技術への展開が期待される。

○ 長谷 宗明 研究者

本研究では、コヒーレント物質波の振動振幅、周波数、位相を巧みに光制御する事により、この物質波と相互作用する電子や光子を操作する事を目的とした。「半導体における電子移動度の同定と制御」において、コヒーレントLOPCモードの寿命から移動度を見積もるという手法確立まで至ったことは意義あることである。具体的には、(i)コヒーレントLOPCモードから電子移動度の同定を行ったこと(論文2本と特許出願)、(ii)理論的にコヒーレントLOPCモードのパルス列励起により L_+ モードの緩和時間が変化しうることを予測したこと(論文1本)、(iii)ダブルパルスを用いたコヒーレントLOPCモードの共鳴励起にて L_+ モードの増強を確認できたこと、にその成果が結実している。更に、強誘電体および光記録材料における構造相転移の制御にも範囲を広げ、次世代のDVD記録膜材料として有望な $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ 超格子試料におけるコヒーレント光学フォノンの実時間観測にも成功した。また、フォノンの周期に同期したダブルパルスによりコヒーレントフォノンの振幅を制御する、などの成果を上げている。これらの結果は、大振幅($\Delta R/R \sim 10^{-3}$)且つ、その寿命が100 ps以上と非常に長いことからフォノン・モジュレーターへの応用が期待できる。さらに、アト秒精度のコヒーレント物質波制御への展開を期待したい。

○ 菱川 明栄 研究者

研究者独自の「光電子ホログラムを用いた超高速実時間反応追跡手法」を提案し、その実現を目指したもので、これまで困難であった水素移動反応を可視化することに初めて成功した。クーロン爆発イメージングを用いた異性化反応の追跡によって、水素移動過程を構造変化として可視化することが出来たことは大きな成果だといえる。また、本方式が従来の手法に比べて、高い時間分解能($\sim 10\text{fs}$)で反応追跡が可能であることを示した。本手法の一部である「電子-イオンコインシデンス運動量画像法」による分子座標系光電子散乱分布の観測により、強レーザー場における分子のイオン化ダイナミクスが光電子散乱分布に反映されることを示したことも大きな成果である。今後、最終目的である「光電子ホログラムの時間分解計測」が実現できることを望む。更に、近い将来に、反応過程において姿を変える分子を高時間分解能および高空間精度で捉えられることを期待する。

10. 評価者

研究総括 伊藤 弘昌 東北大学大学院工学研究科 教授

領域アドバイザー氏名(五十音順)

伊澤 達夫 東京工業大学 理事・副学長
 占部 伸二 大阪大学大学院基礎工学研究科 教授
 枝松 圭一 東北大学電気通信研究所 教授
 江馬 一弘 上智大学理工学部物理学科 教授
 桜井 照夫 産業技術総合研究所 光技術研究部門 招聘研究員
 笹木 敬司 北海道大学電子科学研究所 所長・教授
 栖原 敏明 大阪大学大学院工学研究科 教授
 張 紀久夫 豊田理化学研究所 フェロー／大阪大学 名誉教授
 筒井 哲夫 さきがけ「物質と光作用」研究総括
 富永 淳二 産業技術総合研究所 近接場光応用工学研究センター センター長
 納富 雅也 NTT 物性科学基礎研究所 グループリーダー(主幹研究員)
 野田 進 京都大学大学院工学研究科 教授
 緑川 克美 理化学研究所中央研究所 緑川レーザー物理工学研究室 主任研究員
 横山 弘之 東北大学未来科学技術共同研究センター 教授
 覧具 博義 東京農工大学 名誉教授

(参考)

(1)外部発表件数

	国内	国際	計
論文	4	73	77
口頭	89	60	149
招待講演	53	42	95
著書・解説	14	4	18
プレス発表	3	0	3
合計	163	179	342

※平成21年3月現在

(2)特許出願件数

国内	国際	計
13	1	14

(3)受賞等

- 石川 顕一 研究者
 2008年12月 バイオスーパーコンピューティング・シンポジウム 2008 ベストポスター賞
 「モンテカルロ法による重粒子線治療シミュレーターの開発」
- 井戸 哲也 研究者
 2007年9月 第1回 日本物理学会若手奨励賞
 2008年4月 平成20年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞
- 尾松 孝茂 研究者
 2006年5月 平成18年度ちばぎんひまわり賞
 「位相共役光学を用いた高品位ラップトップ超短パルスレーザー」
 2007年9月 平成19年度千葉大学オープンリサーチ 2007 学長賞最優秀賞
- 桂川 眞幸 研究者

2007年11月 科学技術の「美」パネル展における優秀作品への表彰;科学技術館
出品者:桂川眞幸、鈴木隆行
作品名:「冷たい水素から放たれる50色のレーザー光」

2008年12月 研究成果図が、学会誌表紙図案に選定される。
Physical Review Letters Vol. 101 (2008), No.24

- 熊倉 光孝 研究者
2006年度、2007年度、2008年度の3年間 「福井大学重点研究・競争的配分経費」に採択
- 長谷 宗明 研究者
2008年3月 日本物理学会若手奨励賞(領域5)
「コヒーレント・フォノン分光による半金属・半導体の電子・格子ダイナミクスの研究」
- 菱川 明栄 研究者
2007年8月 公益信託分子科学研究奨励森野基金
「クーロン爆発イメージングによる強レーザー場中分子過程」

(4)招待講演

国際 42件

国内 53件

「光の創成・操作と展開」領域 研究課題名および研究者氏名

研究者氏名 (参加形態)	研究課題名 (研究実施場所)	現職 (応募時所属)	研究費 (百万円)
芦田 昌明 (兼任)	光伝導アンテナによる光電場の 直接検出 (大阪大学大学院基礎工学研究科)	大阪大学大学院基礎工学研究科 准教授 (同上 助教授)	52
石川 顕一 (兼任)	高強度超短パルス短波長光中の 原子分子ダイナミクス (理化学研究所・次世代計算科学研究 開発プログラム)	理化学研究所・次世代計算科学研究 開発プログラム 上級研究員 (東京大学大学院工学系研究科 助教授)	38
井戸 哲也 (兼任)	位相コヒーレント真空紫外パルス による精密原子分光 (情報通信研究機構 (NICT) 光・時 空標準グループ)	情報通信研究機構 (NICT) 光・時 空標準グループ 主任研究員 (JILA (米国) Research associate)	42
大村 英樹 (兼任)	位相制御光による量子的分子操 作と極限計測技術への展開 (産業技術総合研究所 計測フロン ティア研究部門)	産業技術総合研究所 計測フロン ティア研究部門 主任研究員 (同上 研究員)	41
尾松 孝茂 (兼任)	トポロジカル光波シンセシス (千葉大学工学部)	千葉大学工学部 教授 (同上 助教授)	42
桂川 眞幸 (兼任)	分子光変調による超高繰り返し 超短パルス光の発生 (電気通信大学 電気通信学部)	電気通信大学 電気通信学部 准 教授 (同上 助教授)	55
久保 敦 (兼任)	ナノ光学素子中のプラズモンダイ ナミクスのフェムト秒映像化 (筑波大学大学院数理物質科学研究 科)	筑波大学大学院数理物質科学研究 科 助教 (さきがけ専任: University of Pittsburgh Postdoctoral fellow)	62
熊倉 光孝 (兼任)	原子波回路を用いた物質波ソリ トンの光学的制御 (福井大学工学部 物理工学科)	福井大学工学部 物理工学科 准教授 (京都大学大学院 理学研究科 助教)	54

<p>長谷 宗明 (兼任)</p>	<p>コヒーレント物質波制御による電子・光子の操作 (筑波大学大学院数理物質科学研究科)</p>	<p>筑波大学大学院数理物質科学研究科 准教授 (物質・材料研究機構 材料研究所 主任研究員)</p>	<p>46</p>
<p>菱川 明栄 (兼任)</p>	<p>光電子ホログラフィーによるレーザー場反応追跡 (自然科学研究機構 分子科学研究所)</p>	<p>自然科学研究機構 分子科学研究所 准教授 (同上 助教授)</p>	<p>41</p>

研究課題別評価書

1. 研究課題名

光伝導アンテナによる光電場の直接検出

2. 氏名

芦田昌明

3. 研究のねらい

アンテナは電波の入口として日常生活の様々な場面、例えばテレビや携帯電話などで多用されている。一方、光も電波と同様、電磁波であり、同様にアンテナで検出することができるはずである。アンテナの特徴を活かし、これまでの光検出器にない新奇機能を実現するのが本研究の狙いである。最近、光と電波の境界領域であるテラヘルツ電磁波(0.1-10THz)が注目を集めている。この周波数帯では、時間領域分光という手法が用いられている。電磁波パルスの電場の時間応答を直接測定し、そのフーリエ変換からスペクトル情報を求めるもので、強度のみしか検出できないこれまでの分光法と比べて、位相情報も得られるのが特徴である。例えば、誘電率などの応答関数の測定の際、実部と虚部、二つの情報が同時に得られるという他の手法にない利点を有している。

これほど高い周波数帯では、通常のエレクトロニクス技術は使えないため、光伝導アンテナと呼ばれる半導体基板上に作製されたアンテナ構造を用いる。即ち、その間隙部分に超短パルスレーザーを照射し、いわば回路の開閉を行う(パルス光が当たった瞬間に電流を担うキャリアが発生する)ことを行う。パルス光を照射する時間を少しずつ走査し、ストロボ写真を撮るように、被測定電磁波の電場の瞬間値を記録していく。その結果をパルス光がアンテナに照射される時間を横軸にして描くことで、時間波形を再現できる。これはサンプリングスコープと同じ原理である。この手法をテラヘルツ領域を遙かに超え、光通信波長帯を含む近赤外域、いわゆる光の領域にまで拡張することが本研究の目的である。従来にない検出法として分光技術に画期的な発展をもたらす他、情報通信技術への広い応用が期待される。

4. 研究成果

図1に実験配置の概略図を示す。チタンサファイア(Ti:Sapphire)レーザー(Nanolayers社Venteon UB)は本課題の研究費で購入したもので、チタンサファイア結晶のほぼ全ての利得領域、即ち0.6-1.2 μm の波長範囲で発振するモード同期レーザーであり、時間幅 6fs以下の超短パルスを実現する。これは同種の商用レーザーの中で世界最短のものである。空气中や光学素子を通過する際、波長によって群速度が異なることから生じるパルスの歪み(チャープ)を補正するため、ダブルチャープミラー(DCM)とBaF₂結晶を組み合わせ、最適な条件になるように調整した。その際、パルスの時間波形をSPIDER(spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction)法を用いて観測した。得られた最短パルスを図中に示す。余剰成分も存在するが、幅 5fs程度の超短パルスが得られていることが分かる。

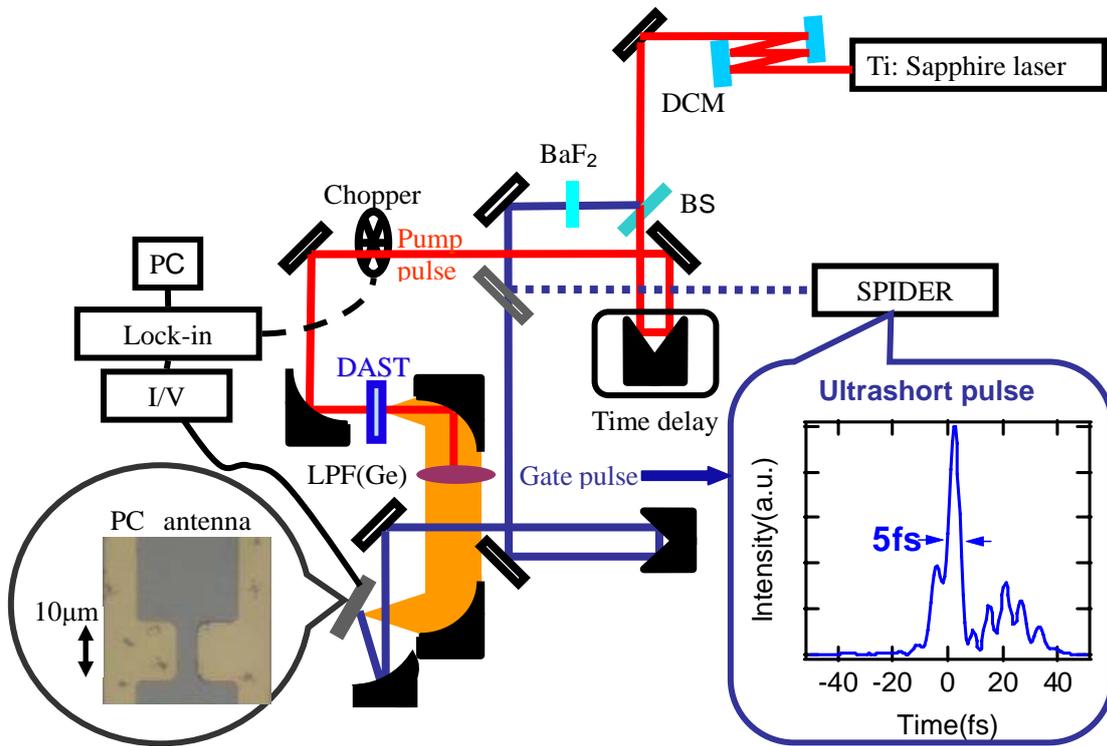


図1. 実験配置

A. 超広帯域赤外パルス光発生

本さきがけ領域の研究総括である伊藤宏昌先生のグループが作製された、非線形性が非常に

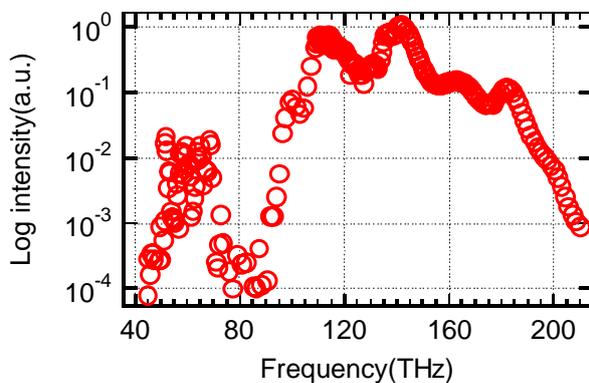


図2. DAST結晶による赤外パルス光のスペクトル

大きな有機光学非線形結晶 DAST (4-(4-dimethylaminostyryl)-1-methyl pyridinium tosylate)を使用して、光整流過程(パルス光の高い振動数成分が非線形効果の一種である差周波発生によって消失、即ち整流され、その包絡線に対応する電場が発生する過程)によって超広帯域赤外パルス光発生を行った。結晶の厚さが0.4mm程あるため、5fs程度の超短パルスを用いた場合は、結晶内部でのパルス形状の歪み(チャープ)が避けられない。このため、レーザーパルスに予め結晶内部

で生じる効果を打ち消すようにチャープを施し、最適な状況を得るように工夫した。その結果、コヒーレント赤外光として世界で最も広い帯域、即ち 0.5THz から 200THz に至るパルス光の発生に成功した。近赤外域のスペクトルを図 2 に示す。なお、この測定は、図 1 と異なり、標準光源を用いてスペクトル感度較正がなされた測定系(半導体赤外検出器と分光器の組み合わせ)で行った。

B. 超広帯域赤外パルス光電場検出

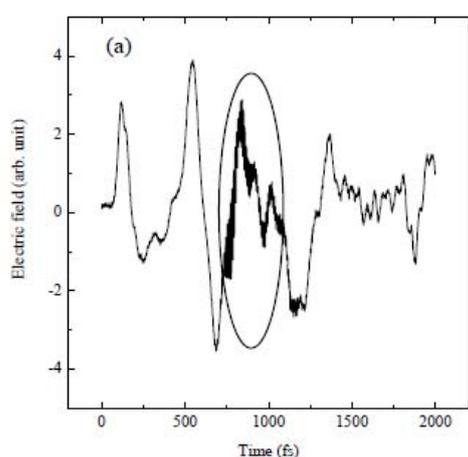


図 3 (a). 光伝導アンテナを用いて検出した時間波形の例

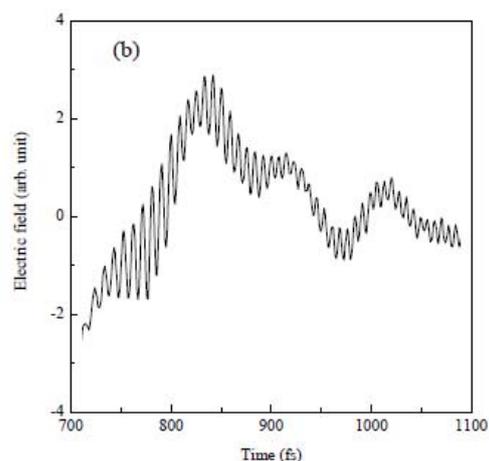


図 3 (b). 図 3(a)の枠で囲んだ部分の拡大図

図 1 左下部に顕微鏡写真を示す光伝導アンテナ(PC antenna)を用いて、A. で発生した赤外パルス光の電場形状を直接測定した。光伝導アンテナに照射した Gate pulse は図 1 に示すような超短パルスを用い、DAST 結晶へは A. で述べたチャープを施した Pump pulse をチョッパー(Chopper)を通して用いた。なお、両パルスはビームスプリッタ(BS)で元のレーザーを二分して得、時間差はステージ(Time delay)で走査した。光伝導アンテナからの信号は電流電圧変換アンプ(I/V)とロックインアンプ(Lock-in)で増幅した後、パソコン(PC)に記録した。その結果を図 3(a)に示す。DAST 結晶が厚いため、A. で述べたチャープの効果により、発生した電場の形状は複雑であるが、楕円で囲んだ領域を拡大した図 3(b)から分かる通り、周期が 10fs 以下の非常に高い振動数成分を含んでいることが分かる。図 3(a)をフーリエ変換した結果を図 4 に示す。100THz 以上の

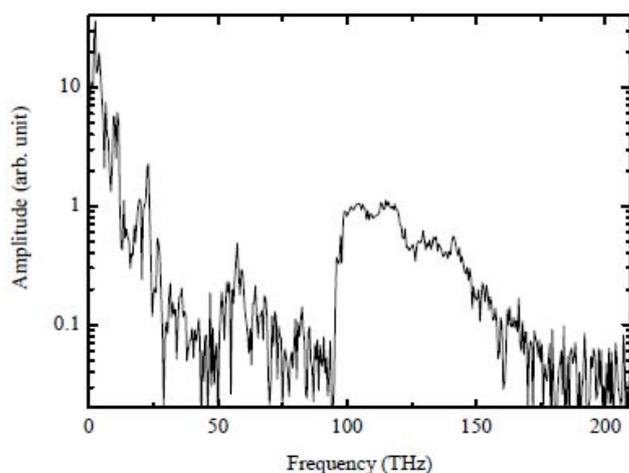


図 4. 図 3(a) のフーリエ変換スペクトル

高周波成分が見られるが、これは図 3(b)の細かな振動に対応している。このように、世界最高周波数となる 170THz に至る検出に成功した。また、この限界はレーザーの裾を切るために使用したローパルフィルターである Ge 基板の透過特性によって決まっており、その改善でさらなる高帯域化が可能となると考えられる。一方、100THz 以下で強度が減少しているのは DAST の吸収によるものである。なお、これまで、パルス幅 10fs のレーザーを用い、GaSe 結晶、あるいは光伝導アンテナを用いた広帯域赤外

パルス光発生を行い、それぞれ 10-100THz, 0.1-10THz の検出に成功していたので、今回の成果と合わせ、1 個の光伝導アンテナでサブミリ波から近赤外域(0.1-170THz)をカバーすることが可能であることが分かった。実に三桁以上の周波数範囲をカバーする他に例を見ない検出器であると考えられる。

C. 光伝導アンテナのスペクトル感度評価

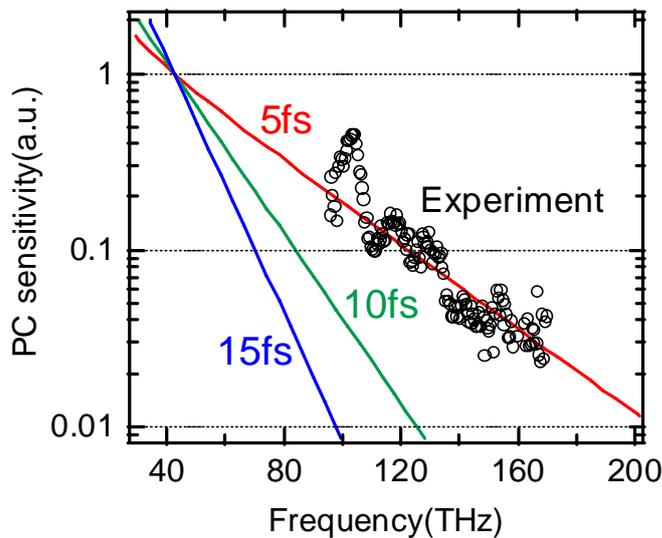


図 5. 光伝導アンテナのスペクトル感度

次に、図 2 の結果と図 4 結果から光伝導アンテナの感度を求めた。図 5 の黒丸がその結果である。このスペクトル感度を決定している要因を探るため、光伝導アンテナの動作原理を吟味した。取り出せる電流 J は以下のようにかける。

$$J(t) = e\mu \int_{-\infty}^{\infty} n(\tau - t)E(\tau)d\tau$$

ここで、 e は電子の電荷、 μ は移動度、 $n(t)$ はパルス光照射によって生じた電子密度の時間変化、 $E(t)$ は入射パルスの電場である。ここで簡単のため、 μ の時間依存性は無視した。

先の式をフーリエ変換すると、

$$J(\omega) \propto n(\omega) \cdot E(\omega) \quad (1)$$

となる。従って、 $n(\omega)$ が光伝導アンテナのスペクトル感度を表すことになる。さらに、 $n(t)$ は以下の畳み込み積分で表される。

$$n(t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} P(\tau)D(\tau - t)d\tau \quad (2)$$

ここで、 $P(t)$ は照射パルス光の時間波形、 $D(t)$ は生成された電子密度の時間変化である。さらに、式(2)にフーリエ変換を施すと、

$$n(\omega) \propto P(\omega) \cdot D(\omega) \quad (3)$$

となり、パルス光の時間幅が狭く、スペクトル幅が広いほど、帯域が広がる事が分かる。同様に、光で生成された電子の減衰が速いほど、やはり帯域は広がることになる。 $D(t)$ は基板材料に用いた低温成長 GaAs の過渡反射応答などから時定数 200fs 程度の指数関数で近似することができる事が分かった。また、 $P(t)$ としてはガウス関数を仮定し、そのパルス幅を 5, 10, 15fs の 3 通りに変化した場合の計算結果を図 5 に示す。赤線の 5fs の場合が最もよく実験データを再現しており、このパルス幅は実際に用いたレーザーのものと一致する。このように、ここで仮定した単純なモデルで光伝導アンテナのスペクトル感度がうまく再現できることが分かった。また、図 5 の赤、緑、青線の傾きを比較することで、高帯域検出においてレーザーパルス幅の狭窄化が重要である事が分かる。

5. 自己評価

検出された電磁波の最高周波数がいわゆる光の領域である近赤外域 170THz(1.7 μ m)に至り、世界記録を達成したことで、目的とした光電場のアンテナによる検出に成功したものと評価している。一方で、いわゆる光通信波長帯の中心(1.5 μ m)までの発生に初めて成功しながら、その検出には、研究期間内において、僅かに及ばなかったことになる。その原因として、購入したレーザーの長期(合計で一年以上)に亘る不良やその整備に時間を取られ過ぎた点などが挙げられる。しかしながら、本研究の多くの成果はパルス幅狭窄化によって得られたものであり、やむを得ない面もあると考えている。

6. 研究総括の見解

アンテナは電波を捉える手段として多用されているが、光も電波と同様、電磁波であり、同様にアンテナで検出することができるとの観点で、これまでの光検出器にない新奇機能を実現することを試みた。主たる成果は次の3点である。

(A)超広帯域赤外パルス光発生:有機光学非線形結晶 DAST(4-(4-dimethylaminostyryl)-1-methyl pyridinium tosylate)を使用して、コヒーレント赤外光として世界で最も広い帯域、即ち 0.5THz から 200THz に至るパルス光の発生に成功した。

(B)超広帯域赤外パルス光電場検出:光伝導アンテナ(PC antenna)を用いて、A. で発生した赤外パルス光の電場形状を直接測定し、世界最高周波数となる 170THz に至る検出に成功した。

(C)既に、0.1-10THz, 10THz-100THz の検出に成功しているので、今回の研究成果と合わせ、1個の光伝導アンテナでサブミリ波から近赤外域 (0.1-170THz) をカバーする可能性を示した。

理論的で独創的な研究手法により、光と電波の境界領域で適切な検出手法が無いテラヘルツ電磁波(0.1-10THz)領域での検出手法を確立すると言う成果を得た。

研究成果は、8編の原著論文、6件の招待講演に纏められているが、著書・解説5件、口頭発表26件と精力的に発表を行っている。

本手法の検出域がテラヘルツ領域を遙かに超え、光通信波長帯を含む近赤外域、いわゆる光の領域にまで拡張できる見通しも得ており、従来にない検出法として分光技術に画期的な発展をもたらす他、情報通信技術への広い応用が期待される。本研究で開発した技術を用い、高温超伝導体、半導体ナノ構造物質、メタマテリアルなど、興味ある物質の新奇物性解明に適用していくことが望まれる。

7. 主な論文等

(A)さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1)論文(原著論文)発表

論文(国際)

- M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, K. Miyamoto, and H. Ito, "Electric Field Detection of Near-Infrared Light Using Photoconductive Sampling," *Ultrafast Phenomena XVI* (Springer Series in Chemical Physics, 2009), in press.
- M. Ashida, "Ultra-broadband Terahertz Wave Detection Using Photoconductive Antenna," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47**, 8221 (2008).
- I. Katayama, H. Shimosato, Dhanvir Singh Rana, I. Kawayama, M. Tonouchi, and M. Ashida, "Hardening of the ferroelectric soft mode in SrTiO₃ thin films," *Appl. Phys. Lett.* **93**, 132903 (2008).
- I. Katayama, H. Shimosato, M. Ashida, I. Kawayama, M. Tonouchi, T. Itoh, "Thickness

dependence of the soft ferroelectric mode in SrTiO₃ thin films deposited on MgO,” Journal of Luminescence **128** 998 (2008).

・ M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, K. Miyamoto, H. Ito, “Ultrabroadband THz Field Detection beyond 170THz with a Photoconductive Antenna,” Conference on Lasers and Electro-Optics 2008, Technical Digest, CTuX6.

(2) 著書

・ 芦田昌明

第2章テラヘルツ波の基礎、第4章テラヘルツ検出器

ハンドブック「テラヘルツ技術総覧」、出版:NGT社(分担執筆) 2007.11.30.発行

・ M. Ashida,

Part C Measurement Methods for Materials Properties

11. Optical Properties

11.1 Fundamentals of Optical Spectroscopy

11.4 Nonlinear Optics and Ultrashort Pulsed Laser Application”,

Springer Handbook of Materials Measurement Methods, (分担執筆)2006.11.08.発行

(3) 招待講演

・ M. Ashida

“Ultrabroadband THz generation and detection with 5-fs pulses”

第2回日韓合同ワークショップ 2008年10月24-25日:テラヘルツテクノロジーフォーラム
(三菱ビル コンファレンススクエアエムプラス 丸の内)

・ M. Ashida,

“Ultrabroadband terahertz spectroscopy using photoconductive antenna”

The First International Workshop on Material and Information Sciences in High
Technologies, MISHT-2007, 2007.09.26-29.

・ 芦田昌明

“光伝導アンテナによる超広帯域 THz 波の検出”

2007年春季 第54回応用物理学関係連合講演会、2007.03.27.

(B) その他の主な成果

(1) 招待講演

・ 芦田昌明

「高帯域テラヘルツ波発生と応用」

第4回テラヘルツ電磁波産業利用研究会

平成21年(2009年)3月26日(木) (大阪科学技術センター)

・ 芦田昌明,

「テラヘルツ時間領域分光法とその超広帯域化」,

大阪府電磁波利用技術研究会 平成19年度 技術講演会『テラヘルツ技術の進展と応用展望』, 2008.03.25.

研究課題別評価書

1. 研究課題名

高強度超短パルス短波長光中の原子分子ダイナミクス

2. 氏名

石川顕一

3. 研究のねらい

超短パルスレーザー、高次高調波発生、次世代自由電子レーザーなど、赤外からエックス線までの広範囲の波長域にわたる新しい光源の研究が急進展している。これらの光源は、高強度あるいは超短パルスという既存の光にはない著しい特徴を持っている。このような新しい光と物質の相互作用の研究はそれ自体が学術的に興味深い研究対象であるだけでなく、原子・分子の制御、化学反応の制御などに代表される革新的な光技術開発の新しい扉を開くものと期待されている。そのような技術革新のためには、その光の場の中におかれた原子・分子ダイナミクスの新たな理論の構築が強く望まれる。

高強度・超短パルス光においては、非線形光学効果や複数の電子の相互作用が重要な役割を果たしている。このような現象を理論的に究明するには、摂動論的な取り扱いやその他の近似的な手法では不十分である。

そこで、本研究では、時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・あやつる革新的な方法を創出することをねらいとする。

4. 研究成果

① 2アト秒2重・3重スリット実験

高次高調波発生で得られるアト秒軟エックス線パルス列は複数の高調波次数成分を含んでおり、原子をイオン化した場合の光電子スペクトルはそれらに対応する複数のピークからなる(Fig. 1(b)の実線)。この至極当然な結果は、電子の二重性のあらわれであるヤングの干渉実験の時間版としても理解することができる。電子が複数あるスリットのうちどれを通過してきたか分からないために干渉縞ができるのと同じように、パルス列によるイオン化では電子がどのパルスによって放出されたか分からないためにできる干渉縞がスペクトル中の複数のピークなのである。ならば電子の放出時刻の情報によって干渉縞のでき方を制御できるはずである。今研究では、「電子の挙動をあやつる」方法の一つとして、レーザーパルスによって干渉縞のでき方を制御する「アト秒2重・3重スリット実験」を提唱した。

アト秒パルスを応用した時間分解測定で必要となる電子放出時刻の測定法として、レーザーパルスによる運動量およびエネルギー変化がイオン化の時刻に依存することを利用する「アト秒ストリークカメラ」がある。レーザーパルスのベクトルポテンシャルを $A(t)$ とすると、時刻 t_r に放出された電子のエネルギー W は、角度 θ 方向では $-\sqrt{2W}A(t_r)\cos\theta$ だけシフトする。

Fig. 1(a)に実線で示すトリプルパルスで水素原子をイオン化すると同時に、破線あるいは点線で示すようなベクトルポテンシャルのレーザーパルス(波長 800nm、パルス幅 5×10^{12} W/cm²)を照射した場合の、0 度方向のスペクトルをTDSE計算で求めたものをFig. 1(b)に示す。特に点線の場合に着目すると、第1、3パルスによって放出された電子はエネルギーが増加し、第2のパルスによって放出された電子はエネルギーが減少する。このため 20 eV付近では、第2パルス(シングルスリット)によるイオン化であると特定できるのでフリンジは消え、35 eV付近では、第1、3パルスのダブルスリットになるので、フリンジ間隔がトリプルパルスのみの場合の半分の干渉縞ができる。着目すべきは、放出される電子の数は1つだということである。同じ1つの電子が、シングルスリットとダブルスリットの両方を同時に通過し、その結果が同じ方向で1つのエネルギー

ースペクトルとして得られる、興味深い実験の提案である。

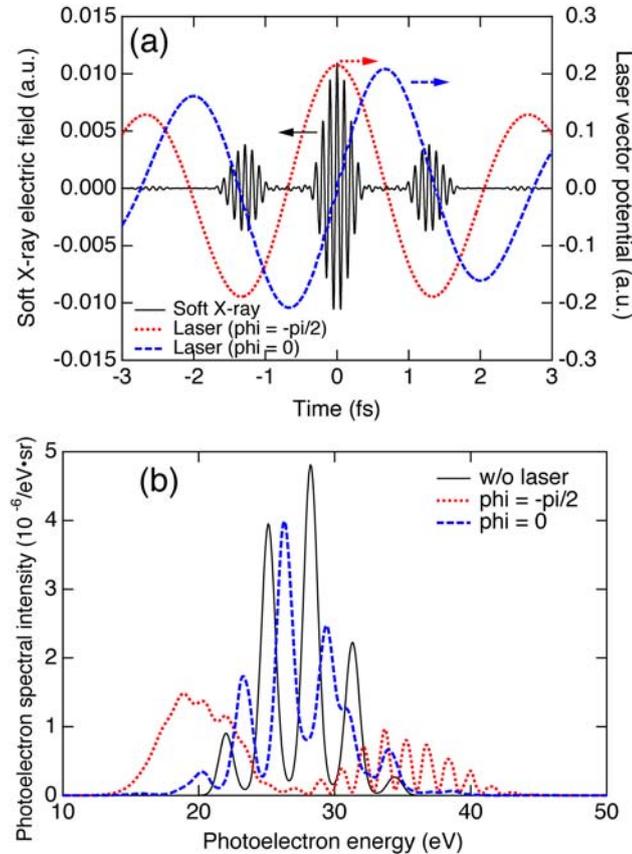


Fig. 1 (a) 基本波長 800nm のレーザー光の 23~31 次高調波からなるアト秒軟エックス線取りパルスパルス(実線)、およびキャリアエンベロープ位相ゼロ(破線)・ $-\pi/2$ (点線)のレーザー電界のベクトルポテンシャルの時間プロファイル。レーザーのピーク強度は 5×10^{12} W/cm 2 。(b) トリプルパルスによるイオン化で放出される光電子の運動エネルギー(実線)および電子の放出時刻の情報を与えるレーザーパルスを同時照射した場合の光電子スペクトル(破線と点線)。

② 基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生

アト秒パルス列を特定の量子経路をとりだすゲートとして利用し、アト秒シングルパルス発生に応用できる可能性を示した。Fig. 2(a)に示すように、波長 800nm の基本波の 11~19 次光からなるシードパルス列と波長 2.1 ミクロンの駆動光との組み合わせによる高次高調波発生(HHG)を考える。後者は光パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)で得られる波長に対応しており、パルス列の基本波とは波長が異なる点に注意する。シードパルス列はパルス幅 15fs 程度のマルチサイクルレーザーで発生できるものを想定しているが、駆動光のほぼ1周期におさまっている。従って、シードパルス列による HHG の飛躍的増大効果で、この1周期の間だけ高調波発生が起こるのであろう。さらに、カットオフ近傍に寄与する量子経路は駆動電界がピークを過ぎた位相 17° で放出されるものであることに注意すれば、カットオフ高調波は縦の矢印で示したパルスのところでのみ発生し、アト秒単パルスが発生すると期待される。

実際に、Ne を標的原子として TDSE 計算を行い 30nm 付近で発生する軟エックス線パルスの時間プロファイルを求めたものを Fig. 2(b)に示す。パルス幅 800 アト秒の単独パルスが得られていることが分かる。本研究で提唱した方法では、駆動光、シードパルス列を発生する基本波ともにマルチサイクルでいいのが特徴で、特に駆動パルスが非常に長くても、シードパルス列中の1

つのみが飛躍的増大ゲート(attosecond enhancement gate for isolated pulse generation, AEGIS)の役割を果たすため、アト秒シングルパルスが発生する。本研究では、さらに、逆の波長の組み合わせ、すなわち波長 2.1 ミクロンの基本波の高調波からなるシードパルス列と波長 800nm の駆動光との組み合わせでも、350 アト秒の単独パルスが発生できることを示した。

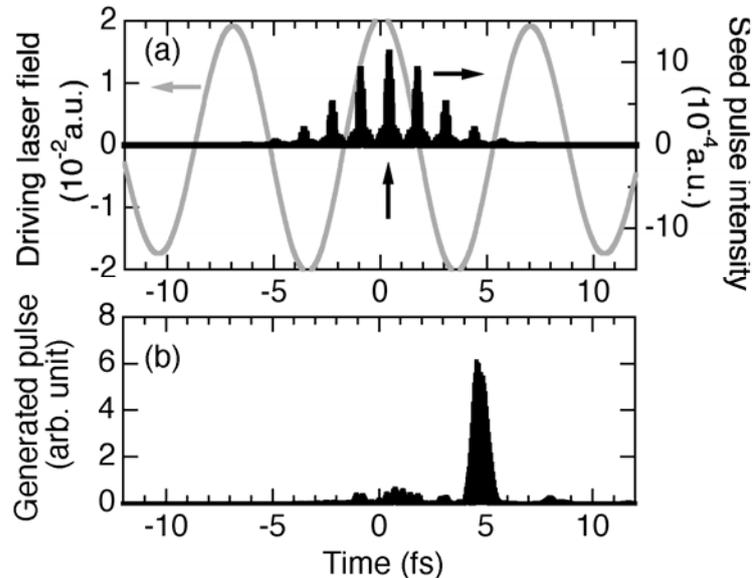


Fig. 2 (a) ピーク強度 10^{13} W/cm² 総パルス幅 5 fsのシード高調波の強度プロファイル(黒、右の縦軸)およびピーク強度 1.5×10^{13} W/cm² パルス幅 30 fsの駆動レーザー電界の時間プロファイル(グレー、左の縦軸) (b) 発生したアト秒シングルパルス(波長 30 nm付近)の時間プロファイル。

③ 高次高調波発生の基本波長依存性

高次高調波発生はこれまでおもに波長 800nm前後のチタンサファイアレーザーで行われており、安定した出力の高調波は波長 13 nm以上にとどまっている。標的原子のイオン化ポテンシャル I_p 、ポンデロモータビリティエネルギー U_p を用いて、発生する高調波の光子エネルギーの最大値 E_c (カットオフ)は $E_c = I_p + 3.17 U_p$ と表される。 U_p は基本波長の2乗に比例するので、水の窓領域(2~4 nm)やkeV領域の高調波の発生をめざし、OPCPA等による中赤外高強度レーザーの開発が国内外で進められている。そのためには、従来の 800nm付近の波長領域と比べて、高次高調波の発生効率がどの程度変わってくるのかが重要な鍵を握ることになる。これに関して、本研究では、高次高調波発生の詳細な基本波長依存性のパイオニア的研究を行った。

中赤外レーザーによる高次高調波発生を目指す実験研究者にとって大きな関心事は、波長 800nm 付近と波長 1.5 ミクロンあるいは2ミクロン付近では発生効率がどれくらい違うのかということであろう。そこで、20~50eV の範囲の高調波収量の広域的な基本波長依存性を調べた。水素原子の場合の結果を Fig. 3 に正方形のマーカーで示す。この 50nm おきに計算した結果によると、おおむね波長のマイナス5乗でスケールアップしていることが分かる。また Ar についてもマイナス 5.5 乗のスケールアップを得ている。

ではなぜこのようなスケールアップになるのであろうか。よく知られているように、高次高調波発生メカニズムは3ステップモデルで説明される。すなわち①トンネル電離した電子が②レーザー電界中で振動運動をし、親イオンの位置に戻ってくる際に③再結合して光子を放出する。トンネル領域では①は波長にあまり依存しない。②は波束の広がりから λ^{-3} 。③についてはカットオフがのびるほど決められた光子エネルギーの範囲の収量は λ^{-2} で変化する。これらを合わせてマイナス5乗スケールアップになると考えられる。

Fig. 3 の正方形のマーカをよく見ると、高調波収量はスケーリング則にきれいに従っているわけではなく、上下にばらついていることに気付く。数値計算の結果であるから「実験誤差」ではすまされず、このふらつきには何らかの意味があるはずである。そこでより細かいピッチ(1nm ピッチ)での計算を行った。その結果を Fig. 3 に実線で示す。収量は波長と共になめらかに変化するのではなく大きく振動することが分かる。特に基本波長2ミクロン付近では、基本波長が 3nm 変わるだけで収量が5, 6倍変化することが分かる。

この驚くべき振動の原因は何であろうか。すぐ頭に浮かぶのは、ショートトラジェクトリーとロングトラジェクトリーの干渉であろう。そこで我々は Lewenstein モデルにおける鞍点解析(SPA)を行い、その結果として、再結合軌道(トラジェクトリー)の数を増やすにつれて、それらの位相の干渉によって TDSE で求めた振動の振幅と周期がよく説明できることを示した。ここで注意しないといけないのは 10 を超えるトラジェクトリーが寄与していることである。従来、最も短い2つのトラジェクトリー(ショートとロング)の寄与がほとんどであると考えられてきたが、実際には意外なことに高次のトラジェクトリーからの寄与も重要であり、基本波が長波長の場合に特にその傾向が顕著であることを明らかにした。ここで用いているパルスの時間波形は、8サイクルフラットトップであり、スペクトル幅は中心波長の 10%以上である。すなわち、Fig. 3 の横軸は、単色光の波長ではなく広いスペクトルの中心波長であり、スペクトル幅よりはるかに細かい周期の振動が見られるというのは特筆すべきことである。

次に浮かぶ自然な疑問は「何が振動の周期を決めているか」である。そこで、波長のかわりに、チャンネルクローリング数 $R = (U_p + I_p) / h\omega$ を横軸にとってプロットし直してみる。これはボンデロモーティブエネルギーだけシフトしたイオン化ポテンシャルを超えて電離するのに必要な光子数を表す無次元数である。いくつかのピーク強度に対するプロットを Fig. 4 に示す。振動の周期は R の値がちょうど1だけ変化するのに対応していることが分かる。しかも R を用いて波長依存性を表すと、ピークの位置や依存性カーブの構造も、基本波強度にあまり依存しないことが分かる。なお、高強度場近似(SFA)ではピークの位置は R の整数値になるのだが、Fig. 4 に示す TDSE の結果ではそうになっていない。検討の結果、このピークシフトは、SFA では無視されているクーロンポテンシャルの長いテールが電子の運動に及ぼす影響によるものであることを見出した。

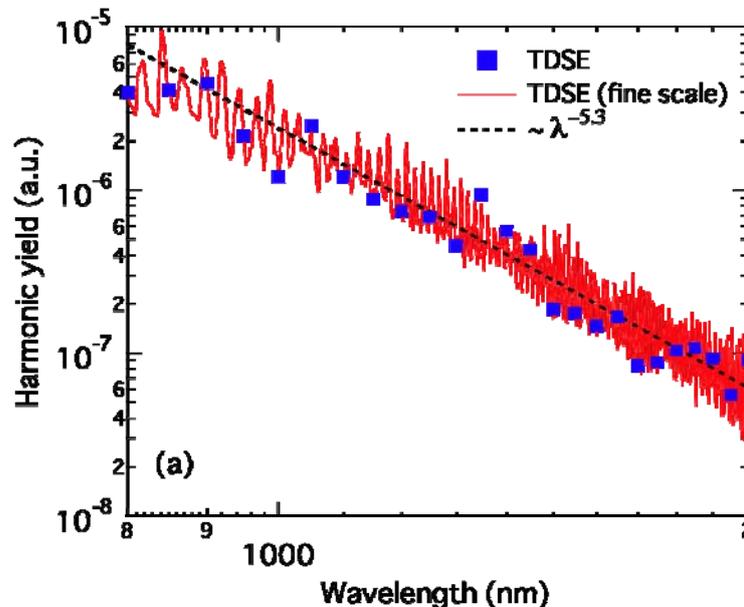


Fig. 3 ピーク強度 1.6×10^{14} W/cm² の8サイクルフラットトップパルスによる水素原子からの 20 ~50eVでの高次高調波発生収量の、基本波長依存性。50 nmピッチで計算した結果を正方形のマーカで、1 nmピッチの詳細な計算の結果を実線でしめす。破線は、累乗則によるフィット

イング。

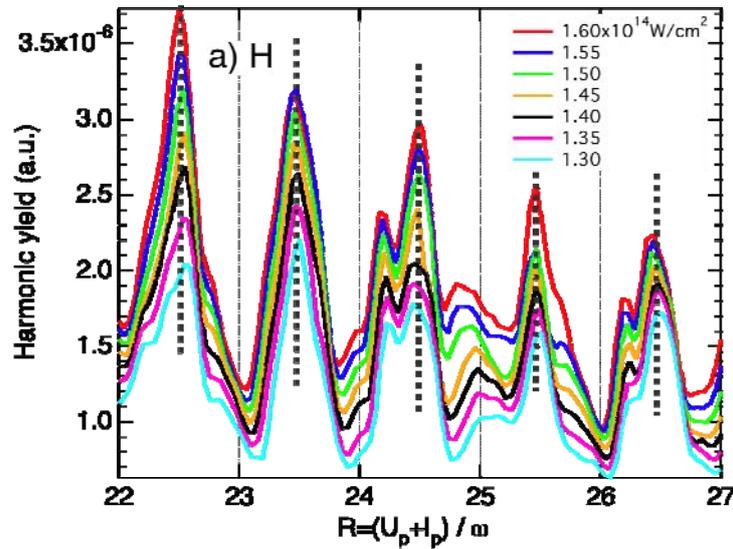


Fig. 4 いくつかの異なるピーク強度の8サイクルフラットトップパルスによる水素原子からの20～50eVでの高次高調波発生収量の基本波長依存性(1000～1100 nm)を、チャンネルクロージング数 R を横軸にプロットしたもの。

5. 自己評価

本研究の目標は、時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・あやつる革新的な方法を創出することであった。

成果として提案した「アト秒2重・3重スリット実験」は、高強度超短パルス光と高強度短波長光を組み合わせることによって電子のダイナミクスをあやつり、「基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生」はさらにそれを革新的なアト秒パルス発生法として応用するものである。いずれも大変興味深い成果である。

当初はリチウム原子や水素分子も研究対象として想定していたが、研究開始後に、従来とはことなる長波長(中赤外)光を用いた高次高調波発生が、アト秒科学の重要な潮流となった。そのため「高次高調波発生の基本波長依存性」の詳細な検討を、世界にさきがけておこなった。地道な解析から新しい発見が生まれ、波長そのものが、電子のアト秒量子ダイナミクスやその干渉を観測・制御する重要な手段であることが明らかになった。これらは膨大な計算量を必要とし、さきがけの助成なくしてはなしえなかった重要な成果である。

このように、当初のねらい・目的をしっかりと見すえ、かつ本研究分野の急速な発展を的確にとらえた、世界的な視点から価値のある十分な成果を挙げたものと自負している。

6. 研究総括の見解

時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・あやつる革新的な方法を創出することを目標に研究を行った。主たる成果は次の3点である。

①「電子の挙動をあやつる」方法の一つとして、レーザーパルスによって干渉縞のでき方を制御する「アト秒2重・3重スリット実験」を提唱した。同じ1つの電子が、シングルスリットとダブルスリットの両方を同時に通過し、その結果が同じ方向で1つのエネルギースペクトルとして得られる、との内容で興味深い実験の提案として評価を得た。

②基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生手法を提案した。具体的には、アト秒パルス列を特定の量子経路をとりだすゲートとして利用し、アト秒シングルパルス発生に応

用できる可能性のもと、350 アト秒の単独パルスが発生できることを示した。

③高次高調波発生の詳細な基本波長依存性のパイオニア的研究を行い、高調波収量において高次のトラジェクトリーからの寄与も重要であり、基本波が長波長の場合に特にその傾向が顕著であることを明らかにした。

理論的で独創的な研究手法により、アト秒科学の重要な潮流である「高次高調波発生の基本波長依存性」の詳細な検討を、世界にさきがけておこない成果を得たことは高く評価できる。

研究成果は、9編の原著論文、8件の招待講演に纏められている。

「アト秒2重・3重スリット実験」は、高強度超短パルス光と高強度短波長光を組み合わせることによって電子のダイナミクスをあやつり、「基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生」はさらにそれを革新的なアト秒パルス発生法として応用するものである。今後、実験グループとの連携の基その有用性を確認して行くことも重要である。

電子やイオンなどの量子ビームやプラズマの物理も含めて、研究を展開して行き、光と量子ビームの統合シミュレーションまで展開することを期待する。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, and J. Burgdörfer, Fine-scale oscillations in the wavelength and intensity dependence of high-order harmonic generation: Connection with channel closings, *Phys. Rev. A*, in press (2009).
- K. Schiessl, K. L. Ishikawa, E. Persson, and J. Burgdörfer, Quantum path interference in the wavelength dependence of high-harmonic generation, *Phys. Rev. Lett.* 99, 253903 (2007).
- K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, Single-attosecond pulse generation using a seed harmonic pulse train, *Phys. Rev. A* 75, 021801(R) (2007).
- K. L. Ishikawa, Temporal Young's interference experiment by attosecond double and triple soft-x-ray pulses, *Phys. Rev. A* 74, 023806 (2006).

(2) 受賞

- 2008年12月 バイオスーパーコンピューティング・シンポジウム 2008 ベストポスター賞 受賞「モンテカルロ法による重粒子線治療シミュレーターの開発」

(3) 招待講演

- (予定) K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, J. Burgdörfer, E. J. Takahashi, K. Midorikawa, Wavelength dependence of high-harmonic generation, Ultra-Fast Dynamic Imaging of Matter II (UDIM09), Ischia Island, Naples, Italy, April 30-May 3, 2009
- K. L. Ishikawa, Atoms in ultrashort intense laser and XUV pulses, 5th ADLIS (ADvanced Light Sources) Workshop, Munich, Germany, March 2-4, 2009.
- K. L. Ishikawa, Wavelength-dependence of high-harmonic generation, 38th Winter Colloquium on The Physics of Quantum Electronics, Snowbird, Utah, USA, January 6-10, 2008.
- K. L. Ishikawa, Atoms in intense ultrashort laser and soft-x-ray pulses, Canada-Japan Bilateral Conference on Ultrafast Intense Laser Science, Québec, Canada, March 5-8, 2007.
- K. L. Ishikawa and K. Midorikawa, Two-photon double ionization of He by attosecond intense soft X-ray pulses, The 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem), Honolulu, Hawaii, USA, Dec. 15-20, 2005.

(4)学会発表(国際学会口頭発表)

- K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, and J. Burgdörfer, Quantum path interference in the wavelength dependence of high-harmonic generation, Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS) 2008, JFF5, San Jose, USA, May 4–9, 2008.
- K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, Single attosecond pulse generation using a seed harmonic pulse train, European Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-IQEC) 2007, CG3–5–TUE, Munich, Germany, June 17–22, 2007.
- K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, Single attosecond pulse generation using a seed harmonic pulse train, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2007, JTuD3, Baltimore, USA, May 6–11, 2007.
- K. L. Ishikawa, Attosecond double- and triple-slit experiment, 15th International Laser Physics Workshop (LPHYS' 06), Lausanne, Switzerland, July 24–28, 2006.
- K. L. Ishikawa and K. Ueda, Coherent control of stepwise and direct multiphoton ionization in the ultrashort pulse regime, Conference on Lasers and Electro-Optics / Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS 2006), JTUB4, Long Beach, USA, May 21–26, 2006.

(B)その他の主な成果

(1)論文(原著論文)発表

論文(国際)

- K. Schiessl, K. L. Ishikawa, E. Persson, and J. Burgdörfer, Wavelength dependence of high-harmonic generation from ultrashort pulses, *J. Mod. Opt.* 55, 2617–2630 (2008).

w 研究課題別評価書

1. 研究課題

位相コヒーレント真空紫外パルスによる精密原子分光

2. 氏名

井戸哲也

3. 研究のねらい

極限レーザー技術においては90年代初頭までは、

(I) 狭線幅連続波レーザーによる原子運動操作や高分解能分光

(II) 超短パルスレーザーによる高強度・短波長・超高速現象の探求

という比較的独立した二方向があった（以下、(I)、(II)はこの二方向を意味する。）。そして、本来物理学的には相補的であるはずのこの二方向は近年飛躍的な発展を遂げた光周波数コムによって緊密な連携を取る事が可能になった。これは90年代後半から(I)の専門家であった各国の時間標準研究所において(II)の短パルスレーザーの研究グループが多数立ち上げられたことや、他方(II)の研究グループが光電場の周波数スペクトルや位相にかつてない注意を払って高調波発生をした結果アト秒パルスや波長数nmのコヒーレントな光源が開発されたことに象徴されている。この流れの行き着く学術的な行き先の一つとして、周波数標準を専門分野とする本研究の研究者は「厳密に位相が制御された真空紫外域での精密分光及び周波数コム」をイメージしている。しかし現状を見ると真空紫外域での連続波レーザーは光学部品や利得媒質等がないために当分不可能と推測され、またチタンサファイアベースのCPAパルスの高調波として得られる真空紫外光は繰り返し周波数の低さから周波数コムとして使うのは現実的でなく、また目標とする1秒にも及ぶコヒーレンス時間を確保するのは能動増幅に伴う位相ノイズのために極めて困難である。そこで本研究はオッシレータからの近赤外パルスを受動光共振器に蓄積してパルス強度を上げ、この高次高調波を取り出すことによって厳密に位相が制御された真空紫外光を得ることを目標とし、さらにあわよくばこれを利用して原子分光を行うことを狙いとした。真空紫外域には、水素やヘリウム等構成が簡単な原子の基底状態からの遷移が多数あり、この精密分光はラムシフトの測定精度の向上等物理学の根本部分に大きなインパクトを与える。また、ごく一部の原子においてはこの波長域に核遷移を見いだすことが出来る。核遷移原子は固体中にあっても摂動を受けにくく、なおかつラムディッケ状態に原子核があるため、周波数標準を実現するには理想的であると言われている。また、この手法による真空紫外光発生の実社会への貢献は数多く想定される。近年急速にその位相ノイズが改善されたファイバ光周波数コム+増幅器を基本波として使用すれば、テーブルトップで容易に真空紫外光が取り出せる可能性がある。この場合、CPAパルスに比べて4-5桁高い数10MHzにも及ぶ繰り返し周波数は、例えば真空紫外域顕微鏡の照明等、高い平均強度の一方でより低い電場強度が要請されるアプリケーションにおいて広い活躍の場があると想定される。

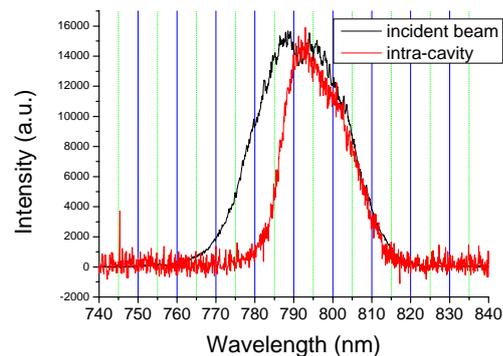
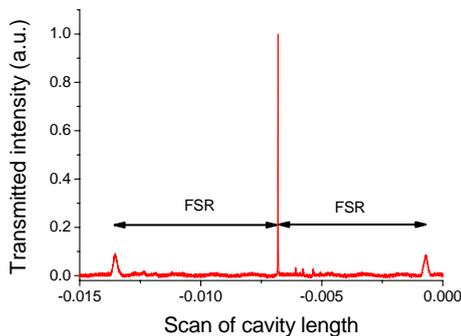
4. 研究の成果

フェムト秒チタンサファイアレーザーの受動光共振器による強度増強

繰り返し周波数 110MHz, パルス幅 60fs, バンド幅 30nm, 平均出力 550mWのチタンサファイアパルスレーザーを製作した。ここではリニアキャビティとし, 石英プリズムペアによる群速度分散補償を採用し, 負分散ミラーは使用していない。これは中心発振波長を結合させる受動光共振器の零速度分散波長に合わせるためにオッシレータの発振波長やバンド幅を可変としておく必要があるからである。また, パルスを蓄積増強する光共振器を真空槽内に組むことを考えて, 槽内



に光学定盤のように 25mmピッチでM6 ねじが切っている板を内包した角型真空槽を設計し(写真参照), この中で6枚構成のbow-tie共振器を組んだ。レーザーの共振器長と真空槽内の外部共振器長が完全に一致した時のみ共振器内に光強度が蓄積・増強される。下左図はその様子を示している。レーザー共振器の共振器長を掃引し, 共振器鏡から漏れてくる光強度によって共振器内強度を得ている。両方の光学長が一致した時のみ共振器内強度が劇的に上昇するのが見える。また, 自作したEOMを利用して, 繰り返し周波数を共振器に合わせるためのエラー信号を取得し, 安定にパルスを光共振器にロックすることに成功した。結果共振器内で330倍のパルス強度(平均強度 150W相当)を得た。この平均強度で, 繰り返し周波数 112MHz, 焦点でのビー



左図: レーザー共振器長をスキャンしたときの外部共振器内強度。レーザー共振器長と外部共振器の Free spectral range が一致した時のみキャビティに光が結合する。

右図: 入射レーザー及びキャビティに結合した光のスペクトラム。30nm の発振レーザーのバンド幅のうち 20nm 程度が共振器にカップルしている。光共振器の群速度分散のために, 共振器に結合するバンド幅は狭くなっている。

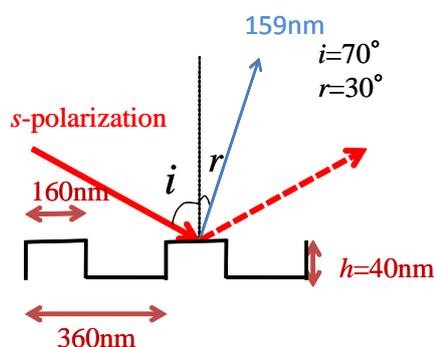
μ系(1/e²半径 10μm), パルス幅 60fsより, 焦点での瞬間ピーク強度は $8.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ となる。このとき, 共振器に結合した光のスペクトルを元のレーザーのスペクトラムと比較したのが右図である。レーザーの 30nm程度のバンド幅のうち, 20nm程度が結合しているの見える。

増強パルスによるXeガスのプラズマイオン化

上述の bow-tie 共振器の曲面鏡によって作った焦点に Xe ガスを供給して, 共振器内で強度増強されたパルスによって Xe 原子のプラズマイオン化が起きることを確認した。ガスノズルの直径は 0.1mm, 背圧 0.25atm としている。プラズマ電流が最大になるように, ノズルの位置および入射ビームのパルス幅を最適化して, 結果 1.6nAのプラズマ電流を検出した。この電流量は同一のピーク強度の Yb ファイバレーザーで得られている値と同じ程度となっている。現状では高調波を得るにはピーク強度が 2 倍程度足りないと推測され, 高調波を見るにはまだ至っていないが, (1) レーザーの平均出力の増大, (2) インプットカップラーの反射率の最適化, (3) 焦点のビーム系の縮小 (4) 共振器の群速度分散のより厳密な最適化 (5) ビーム径の拡大 (6) input coupler からの反射光の偏光回転を利用したロック法への変更 (7) より低い繰り返し周波数の利用 等の方策で共振器内強度を上げて高調波を得たい。

高調波取り出し用Laminar Gratingの作成

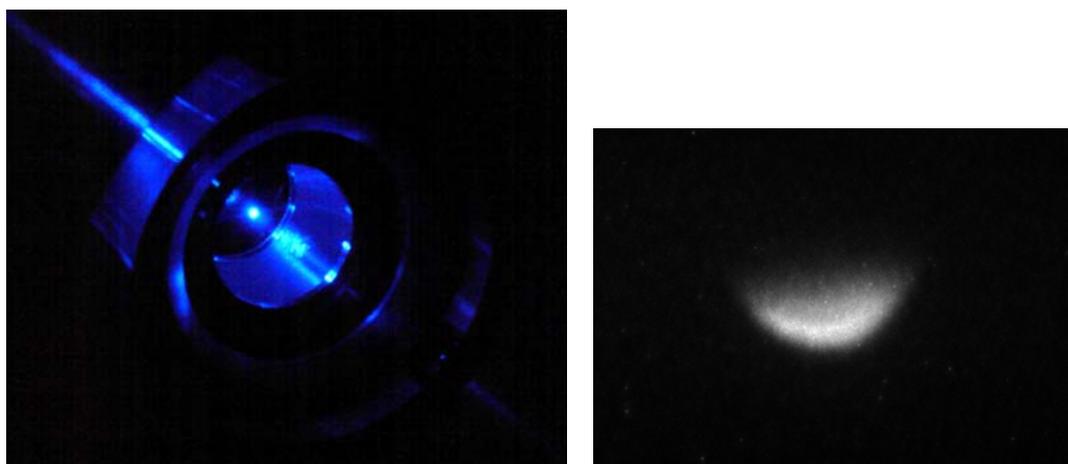
本研究で取り組んでいる受動共振器による強度増強と高調波発生の問題点は高調波を以下にして共振器の外に取り出すかである。低分散誘電体多層膜鏡の表面にラミナー型回折格子構造を形成したものを設計して発注, 入手した。基本思想は, 基本波については鏡, 高調波については回折格子となることを期待し, 高調波を回折光として取り出すことである。高調波は誘電体多層膜には吸収されるため, フレネル反射を利用する。従って入射角度を大きくとった設計とし, s 偏光の光を入射する。設計した回折格子の詳細仕様は図のようになっている。残念ながらこれにて高調波を取り出すまで研究が進まなかった。



冷却Sr原子系の準備及び精密飽和吸収分光によるバッファーガス衝突シフトの測定

真空紫外パルスによる精密原子分光の対象となりうる冷却Sr原子を用意した。双極子許容遷

移及びスピン禁制遷移の二段階での冷却によって温度 $3\mu\text{K}$ で $\sim 10^4$ 個がトラップされた。また、ここでのスピン禁制遷移でのレーザー冷却のために用意した光源及び絶対周波数安定化用蒸気セルを利用して、精密飽和吸収分光を行った。ここでは周波数コムを利用して常にプローブ光の絶対周波数をモニターしながら分光をして、わずかに数kHzのSr原子のバッファーガスとの衝突シフトを検出することに成功した。ここから得られる情報は次世代の周波数標準と言われている光格子時計において測定が困難な系統誤差である真空槽内のバックグラウンドガスとの衝突シフトの評価にとって非常に有用である。研究者のNICTでの任務は次世代の周波数標準として有望である中性Sr原子の光格子時計を構築することである。それに加えて本さきがけ研究のために他の原子系を用意するのは個人型研究として現実的でなく、この冷却原子を利用しての真空紫外域での分光を当初より検討してきた。しかしながら、現状では真空紫外光は強度が小さいためにこれによって原子の速度や位置等の外部自由度を制御するのは困難であり、一方で高分解能分光を目指す、真空紫外光の大きな光子運動量は原子に対して大きな反跳を与え分解能を得るのは容易ではないと感じている。



二段階での冷却・トラップをした ^{88}Sr 原子. 左は 461nm による予備冷却 (温度 $\sim\text{mK}$). 右は 689nm によるトラップ. 冷却遷移の幅が狭く、重力と同じ程度の輻射圧でのトラップのため磁場の形状を反映した形状となっている。

^{88}Sr 原子の光結合分光及びSr光格子時計

研究者は研究期間の最初の9ヶ月はJILA (米国)にて研究を行った。その間においては、帰国が確定していたため本格的な実験装置を立ち上げることは困難であった。そこで、繰り返し周波数 25MHz の Chirped pulse oscillator を結合させるための光共振器用チャンバの製作に参加した。また、それまでのJILAでの実験の延長としての ^{87}Sr の光格子時計及び ^{88}Sr の光結合分光の実験も並行して行った。光格子時計においては 400THz の光学遷移においてわずかに 2Hz (Q 値 2×10^{14}) のスペクトル幅の分光に成功した。ここで光周波数を計測するのに用いた周波数コムはチタンサファイアレーザーでリニアキャビティであり、この経験が帰国後のフェムト秒レーザー製作に生かさ

れている。光結合分光については今回の実験は可視域での分光であるが、将来的には真空紫外域での分子の分光は興味もたれるところであり、この実験により基底状態間の分子ポテンシャルの形状等有用な知見が得られた。

5. 自己評価

提案当初予定していた真空紫外光の発生にはまだ到達していないが、その前段階である受動共振器による近赤外増強パルスでの原子のプラズマイオン化を実現したのは研究者の知る限り本邦初である。これを実現している欧米の研究機関では一線級の光科学の研究者のもと複数の学生やポスドクが関与して研究していることを考えると文字通りの個人型研究としては健闘に値すると言えよう。また、光格子時計でのかつてないQ値であるわずか2Hzのスペクトル幅での分光はレーザー発明以来の高分解能分光の歴史における1つのマイルストーンといっても過言ではない。研究者はJILA（米国）にて研究を開始したが、開始後まもなくして帰国が決まり、当初想定していたある程度揃った環境でなく、零から環境を作り直す再スタートとなった。パルスレーザーの操作経験が少ないにもかかわらず、モードロックレーザーの自作から始まった帰国後の研究は決して順風満帆とは行かなかったが、どうにか重要な通過点である多光子イオン化まではこぎつけた。これまで連続波レーザーで光の位相コヒーレンスを追求してきた研究者にとって本さきがけ研究を機会として同じ目的に対してパルスレーザーからも現場レベルでアプローチできたことは、周波数標準の研究者として今後の発展の核を得られたと思う。提案当初の真空紫外光で精密な原子分光をする時代が来るという予測は3年半経とうとしている今でも変わらず、その端緒はちらほらと報告されている。またその一方で本提案の研究を実現するには広く光科学の英知を結集する必要があることも実感した。本テーマの研究としての重要性は研究の狙いに記した通りであるが、これまで比較的独立して発展してきた連続波レーザーの分野とパルスレーザーの分野の研究者が緊密に連携する契機となることも見逃せない。さきがけで得た光科学における多彩な知己を最大限活用して、さらなる研究の発展を期す所存である。

6. 研究総括の見解

周波数コムや高分解能分光等、究極の光の位相制御を真空紫外域で実現することを研究の目標とした。主たる成果は下記2点である。

- ①真空紫外光の発生に重要な役割を果たす、受動共振器による近赤外増強パルスでの原子のプラズマイオン化を実現。
- ②⁸⁷Srの光格子時計及び⁸⁸Srの光結合分光実験をおこない、光格子時計において400THzの光学遷移でわずか2Hz(Q値 2×10^{14})のスペクトル幅の分光に成功。

理論的な実験手法にて堅実に進めている。成果の①は日本でも先駆的な位置を占め、今後の真空紫外域研究を大きく進めるものと高く評価できる。また、成果②の、光格子時計でのかつてないQ値であるわずか2Hzのスペクトル幅での分光は、レーザー発明以来の高分解能分光の歴史における1つのマイルストーンと言うべき特筆すべきものである。

研究成果は、3編の原著論文、3件の招待講演に纏められている。

さきがけ研究期間中に、光周波数コム研究のメッカである JILA から日本に研究場所を異動し、研究環境の新規立ち上げというハンディを負ったが、今後、これらの手法を確立し、受動光共振器による強度増強、及び、周波数コムや高分解能分光等究極の光の位相制御を真空紫外域で実現することを望む。また、真空紫外域では、高い平均強度を求めながら低い電場強度が要請される分野があり応用範囲が広い。この波長域の光学技術を大きく発展させることを期待する。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文 (国際)

・ Tanya Zelevinsky, Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Tetsuya Ido, Jun Ye, Roman Ciurylo, Pascal Naidon, and Paul Julienne: “Narrow line photoassociation in an optical lattice” *Physical Review Letters*, Vol. 96, No. 20, p 203201 (2006).

(2) 受賞

- ・ 2007年9月 第1回 日本物理学会若手奨励賞
- ・ 2008年4月 平成20年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞

(3) 解説記事

- ・ 井戸哲也: 「受動光共振器によるパルス強度の増強と高次高調波発生」
レーザー研究 第35巻 10号 p633 (2007).

(4) 招待講演

- ・ Tetsuya Ido, “Background gas collision shift for $^{88}\text{Sr } ^1\text{S}_0\text{-}^3\text{P}_1$ spin-forbidden transition”
Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, 2008年11月, University of Western Australia, Perth, Australia
- ・ 井戸哲也, 「極限位相コヒーレント光: 狭線幅な連続波レーザーと光コム」、第6回超高速光エレクトロニクス研究会、2006.11.18.

(5) 学会発表

- ・ 井戸哲也, 「“外部光共振器によるチタンサファイアレーザーのパルス増強”, 応用物理学会秋期関係連合講演会, 2008年9月
- ・ Tetsuya Ido, ” What kind of atomic physics can we enjoy with phase-coherent UV combs?”,
20th International Conference on Atomic Physics, 2006.7.

(B) その他の主な成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Sebastian Blatt, Seth M. Foreman, Tetsuya Ido, Tanya Zelevinsky, and Jun Ye: “ ^{87}Sr Lattice Clock with Inaccuracy below 10^{-15} ”: Physical Review Letters, Vol. 98, p 083002 (2007)
- Martin M. Boyd, Tanya Zelevinsky, Andrew D. Ludlow, Seth M. Foreman, Sebastian Blatt, Tetsuya Ido, and Jun Ye: “Optical Atomic Coherence at the 1-Second Time Scale” Science, Vol. 314, p. 1430 (2007).

(2) 招待講演

- Tetsuya Ido, Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Tanya Zelevinsky, Seth M. Foreman, S. Blatt, and Jun Ye ; “Ultracold Sr at JILA: Precision spectroscopy, optical clock, and future outlooks”, Symposium on Cold Atom/Matter Waves, Abingdon, UK, May 1 – 3, 2006

(3) 学会発表

- Tetsuya Ido, Tanya Zelevinsky, Martin M. Boyd, Andrew D. Ludlow, Jun Ye, Roman Ciurylo, Pascal Naidon. And Paul S. Julienne, “ Narrow Line Photoassociation in an Optical Lattice”, Quantum Electronics and Laser Science Conference 2006, 2006.5.

研究課題別評価書

1. 研究課題名

位相制御光による量子的分子操作と極限計測技術への展開

2. 氏名

大村英樹

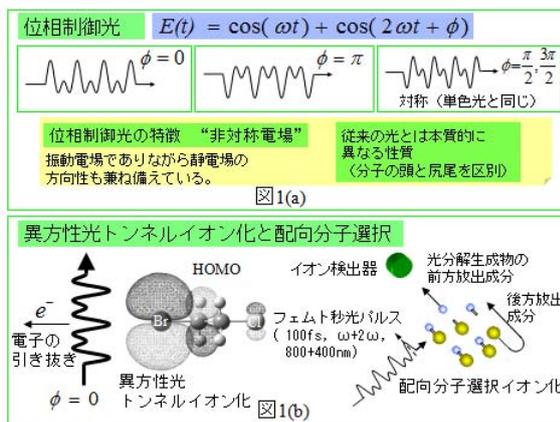
3. 研究のねらい

レーザー光を用いて物質の量子状態を直接操作し、物性や機能を制御しようとする量子制御に関する研究が近年精力的に行われている。研究提案者は波長の異なるフェムト秒光パルスを重ね合わせ、その相対位相を精密に制御した位相制御光による分子配向に関する量子制御技術を世界に先駆けて実現し、位相制御光と分子との相互作用は位相に強く依存する多彩な量子現象を示すことを明らかにした。位相制御光は従来の光とは本質的に異なった性質を持っているため、光の位相に関わる新しい量子現象の観測、さらに位相制御光を用いた物質制御の新しい方法論を提示できる可能性がある。

本研究提案の目的は、(1)位相制御光と分子との相互作用によって引き起こされる量子効果を系統的に探索・分類し、総合的な理解をすること、(2)位相制御光を用いた新しい方法論に基づく極限計測手法として、位相制御光により配向分子をイオン化して検出することにより、分子の質量と立体構造を同時に決定できる配向分子質量分析装置の開発を行うことである。光による高度な分子操作技術の基礎研究から計測装置の開発まで連続的な研究を行い、日本発の革新的な計測装置の開発を目指す。

4. 研究成果

レーザー光の基本波とその第二高調波の相対位相差 ϕ をゼロまたは π に固定して重ね合わせの場合(以下、 $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザー光)、その光電場波形は正負に対して非対称な形状となる(図 1(a))。 $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザー光は正負を区別できない通常の光電場とは異なり静電場的な方向性が生じる。この非対称性は、相対位相差 ϕ をゼロから π に変えると反転する。このように $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザー光は非対称光電場で特徴付けられ、振動電場でありながら静電場的な性質も兼ね備えており、従来の光とは本質的に異なる性質を示す。例えば非対称構造を持つ分子の頭と尻尾を区別するといった通常のレーザー光では困難な分子操作技術が可能なる。研究提案者は、強い $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザーパルス(10^{12} – 10^{13} W/cm²)を用いた気体分子の非共鳴イオン化の実験において、頭と尻尾を区別して配向した分子がイオン化、検出されていることを見出した。通常のレーザー光では困難であった頭と尻尾を区別した分子操作が $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザー光によって可能であり、配向分子の向きを相対位相差 ϕ によって反転できることを明らかにした。そこで本研究課題の第一の目的は、位相制御レーザーパルスによって引き起こされる量子現象の基礎過程を理解することである。



強い $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザーパルスによる気体分子の非共鳴光イオン化において頭と尻尾を区別した配向分子が検出されるという実験結果に対して2つのメカニズムが検討された。

第一のメカニズムは配向分子選択イオン化である(図 1(b))。ランダム配向である気体分子集団の中で、ある特定の方向の分子だけが選択的にイオン化されるというものである。 10^{13} W/cm²程

度の光強度で分子を非共鳴イオン化すると、分子はトンネルイオン化することが知られている。束縛電子のポテンシャルが光電場で歪むことによってその障壁が下がり、電子がポテンシャル障壁をトンネルすることによりイオン化する。分子のトンネルイオン化を記述する分子 Ammosov-Delone-Krainov(ADK)モデルによると、分子の最外殻軌道(HOMO)から電子が引き抜かれイオン化が起こるが、波動関数の空間的に広がったところから電場に沿って電子が引き抜かれる確率が高くなる。その結果、イオン化確率において分子と光電場との角度依存性が生じるため、光解離生成物の放出角度分布はHOMOの空間形状を反映したものになることが理論的に示されており、実験でも実際に観測されている。非対称なHOMOと $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザーパルスの非対称光電場が相互作用すると、非対称な波動関数において空間的に広がった方から非対称光電場の最大の方向に異方的なトンネルイオン化が起こる確率が高くなるため、ランダム配向の気体分子集団の中から(頭と尻尾を区別した)配向分子だけが選択的にイオン化されることが期待される(図 1(b))。

第二のメカニズムは気体分子の動的分子配向(より正確な表現は、レーザー電場による断熱および非断熱分子配向)である。分子の分極と非共鳴の高強度レーザー光による光電場との相互作用によって分子にトルクがかかり、分子が光電場の最大の方向に動的に配向するというものである。永久双極子と $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザーパルスの非対称光電場との非線形相互作用によって、分子が頭と尻尾を区別して配向することが、いくつかの理論研究によって指摘されている。(永久双極子と位相制御光の異方的光電場との線形の相互作用は、1周期の平均をとるとゼロとなるため動的配向効果は現れないが、非線形の相互作用まで考えると動的配向効果が現れる。)

上記の2つのメカニズムのどちらが主要な効果であるかを決定するため、研究提案者は次の4つの実験を行った。

1. 無極性分子 1-ブromo-2-クロロエタン($\text{Br}(\text{CH}_2)_2\text{Cl}$)

1-ブromo-2-クロロエタン($\text{Br}(\text{CH}_2)_2\text{Cl}$)は、エタン骨格の両側に電気陰性度の大きいハロゲン原子が位置しており、これらがお互いに打ち消し合うため永久双極子モーメントは非常に小さい(計算値; 0.0057D)。したがって、動的配向効果は無視できることが期待される。一方、HOMOは臭素の方に振幅が偏った非常に強い非対称性を示す(図 2(1))。 $\text{Br}(\text{CH}_2)_2\text{Cl}$ 分子に $(\omega+2\omega)$ 位相制御フェムト秒光パルス照射すると解離性イオン化反応によって、TOFスペクトルには親分子イオン、臭素イオン、塩素イオン、親分子からそれぞれのハロゲン原子が取れたカチオンが観測される。それぞれの光解離生成物の I_f/I_b を相対位相差 ϕ の関数としてプロットすると、解離生成物イオンは明瞭な 2π の振動を示し、塩素イオンとその反対側に位置するカチオン、臭素イオンとその反対側に位置するカチオンがお互いに逆位相の関係にあることから、配向分子が検出されることがわかった(相対位相差の変化による信号挙動の例については図3を参照)。さらに塩素イオンと臭素イオンの間でも I_f/I_b はお互いに逆位相であることから、 $\text{Br}(\text{CH}_2)_2\text{Cl}$ 分子の構造をほぼ反映したフラグメンテーションが起こることがわかった。 $\text{Br}(\text{CH}_2)_2\text{Cl}$ 分子は永久双極子モーメントがほぼゼロなので、実験結果は純粋に配向分子選択イオン化の効果であると言える。このように $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザーパルスは波動関数のレベルで無極性分子の頭と尻尾を識別することが可能である(文献1)。

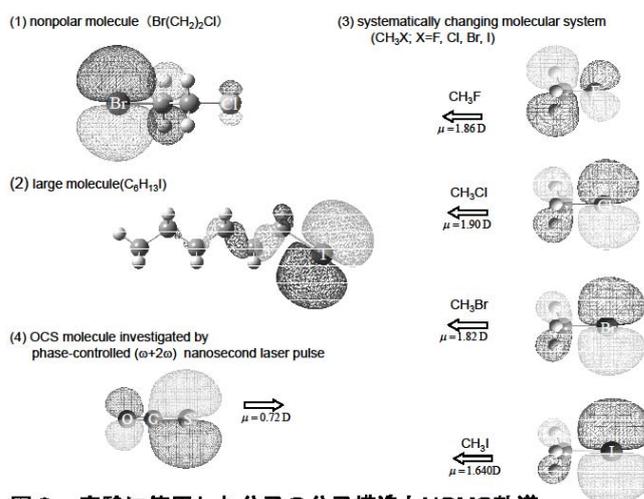


図2 実験に使用した分子の分子構造とHOMO軌道

2. 大きい分子ヨウ化ヘキサン(C₆H₁₃I)

ヨウ化ヘキサン(C₆H₁₃I)は図 2(2)に示されるように炭素を6個含む直線状の分子であり、そのHOMOはヨウ素原子に振幅の偏った非対称な形状を示す。C₆H₁₃I分子は永久双極子を持つが、このような大きさの分子では動的分子配向に数ピコ以上を要するため、($\omega+2\omega$)位相制御フェムト秒光パルスでは、パルスの時間幅内で分子を動的配向させるのは困難であることが予想される。 $(\omega+2\omega)$ 位相制御フェムト秒光パルスでC₆H₁₃I分子を非共鳴イオン化すると、TOFスペクトルには親分子イオンとさまざまな光解離生成物イオンが観測される。それぞれの光解離生成物の I_f/I_0 を相対位相差 ϕ の関数としてプロットすると、解離生成物イオンは明瞭な 2π の振動を示し、炭素イオンおよび炭化水素カチオンと、ヨウ素イオンおよびヨウ素を含むカチオンの間で完全に逆位相の関係であることがわかった(相対位相差の変化による信号挙動の例については図3を参照)。この結果は、動的配向が困難であろうと予測された比較的大きな分子でも配向分子の振る舞いが明瞭に観測されることから、配向分子検出のメカニズムは配向分子選択イオン化であり、さらに分子の構造情報をほぼ保ったまま解離性イオン化反応が起こることを示している。動的な分子配向効果では大きく重い分子ほどトルクが必要になるため配向操作が困難になるが、配向分子選択イオン化は分子の大きさ、重さや極性の制約を受けない可能性があり分子操作技術の観点からも興味深い結果である(文献4)。

3. 波動関数の非対称性と永久双極子が共存する分子系ハロゲン化メチル(CH₃X;X=F,Cl,Br,I)

四つのハロゲン化メチル(CH₃X;X=F,Cl,Br,I)は図 2(3)に示されるように、すべての分子において、永久双極子はハロゲン原子からメチル基のほうに向いており、おおよそ同じ大きさを示す。一方、HOMOはCH₃I, CH₃Br, CH₃Clではハロゲン側の振幅が大きい、CH₃Fのみメチル基側の振幅が大きい。図 2(3)に示されるようにこの分子系はCH₃IからCH₃FへHOMOの非対称性が系統的に移り変わるといふ特徴を持つ。4つのCH₃X分子で($\omega+2\omega$)位相制御フェムト秒光パルスによる非共鳴イオン化の実験を行った。光解離生成物の I_f/I_0 を相対位相差 ϕ の関数としてプロットすると、解離生成物イオンは明瞭な 2π の振動を示し、ハロゲンイオンとメチルカチオンの間でお互いに逆位相の関係を示すことから、4つの分子で配向分子が検出されていることがわかった。さらに、これらの分子の配向方向を決めるために、混合気体による測定を行った。CH₃Iを基準とした混合気体の測定を行い、4つ分子の位相関係を確定する実験を行った。その結果、CH₃Br/CH₃I混合気体では、ヨウ素イオンと臭素イオンの I_f/I_0 は同位相の挙動を示した。この実験結果は、CH₃IとCH₃Brは同じ配向方向であることを示している。CH₃Cl/CH₃I混合気体を用いた実験でも同様の結果が得られた。他方、CH₃F/CH₃I混合気体の実験では、ヨウ素イオンとフッ素イオンの I_f/I_0 はお互いに逆位相であることがわかった。以上のCH₃X混合気体を用いた実験から4つのCH₃X分子の中でCH₃Fのみ逆方向の配向方向の分子が検出されていることが明らかとなった。これらの実験結果は検出された配向分子の向きは永久双極子ではなく波動関数の非対称性に相関があることを示しており、永久双極子と波動関数の非対称性が共存するような系でも、($\omega+2\omega$)位相制御レーザーパルスの異方性光トンネルイオン化に基づく配向分子選択イオン化が主要な効果であるということが明らかとなった。

ここでひとつ注意したいのは、分子のトンネルイオン化を記述する分子ADKモデルによると、光解離生成物の放出角度分布はHOMOの空間形状を反映したものになるため、ハロゲン化メチルの系のようにHOMOが π 軌道の場合、その空間形状を反映したバタフライ型の放出角度分布が予想されることである。実際に酸素分子でバタフライ型の光解離生成物の放出角度分布が8フェムト秒の極短光パルスを使用することによって観測されている。さらに35フェムト秒以上の時間幅の光パルスでは、強い光電場とそれによって誘起された分子分極との相互作用によって生じた動的な整列(分子の頭と尻尾を区別しない分子軸だけの整列)効果によって、HOMOの空間形状を反映した光解離生成物放出角度分布から分子軸に偏った光解離生成物放出角度分布へ移行変わることが報告されている。今回の筆者の行った実験は、光解離生成物の前方放出成分と後方放出成分しか区別していないため放出角度分布に関する情報は得られないが、使用したフェムト秒パルスは130fsであることから動的な分子整列効果も含んでいると考えられる。したがって、本研究で得られた結果は、ランダム配向の気体分子における配向分子選択イオン化というよりは、

レーザー電場により動的に整列した気体分子における配向分子選択イオン化である可能性が高い(文献 2)。

4. ナノ秒位相制御レーザーパルスを用いた実験

($\omega+2\omega$)位相制御レーザーパルスによる動的分子配向は、分子の種類に依存するが数ピコ秒以上の時間を要することが理論的に指摘されており、フェムト秒パルスのパルス幅内で動的に分子を配向させるのは困難であることが予想される。ナノ秒パルスでは動的分子配向を起こす時間が十分あるので動的分子配向効果の観測が期待される。そこで図 2(4)で示されるOCS(硫化カルボニル)を対象としてナノ秒Nd:YAGレーザーを用いた実験を行った。 $(\omega+2\omega)$ 位相制御ナノ秒光パルス

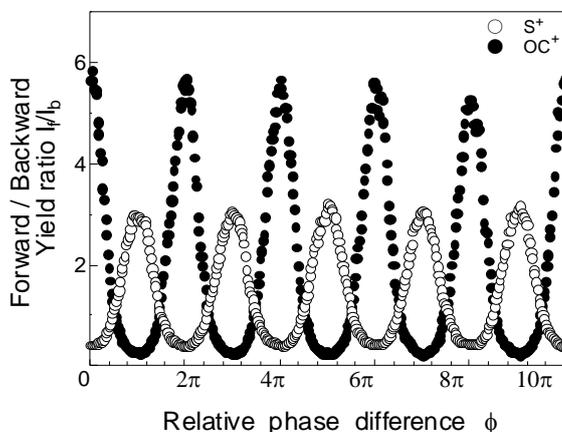


図3 OCS分子における量子制御(前方放出成分と後方放出成分の比を位相差の関数としてプロット)

でOCS分子を非共鳴イオン化すると、TOFスペクトルには親分子イオンとさまざまな光解離生成物イオンが観測される。それぞれの光解離生成物の I_f/I_b を相対位相差 ϕ の関数としてプロットすると、解離生成物イオンは明瞭な 2π の振動を示し、OCイオンとSイオンの間で完全に逆位相の関係を示すことから、配向分子が検出されていることがわかった(図3)。さらに CH_3X 分子の場合と同様に、OCS/ CH_3Br 混合ガスを用いて検出された配向分子が永久双極子モーメントの向きに相関があるか、HOMOの非対称性に相関があるかを決定する実験を行った。実験結果は永久双極子の向きではなくHOMOの非対称性に相関があり、動的配向効果が十分期待されるナノ秒パルスでさえも、位相制御レーザーパルスの非対称光電場と非対称波動関数との相互作用によって引き起こされる異方的トンネルイオン化に基づく配向分子選択イオン化が主要な効果であることが明らかになった(文献 3)。

まとめ

($\omega+2\omega$)位相制御レーザーパルスによる気体分子の非共鳴イオン化によって引き起こされる量子現象を系統的に探索・分類し理解すること目標とした。具体的には、強い($\omega+2\omega$)位相制御レーザーパルスによる気体分子の非共鳴光イオン化において頭と尻尾を区別した配向分子が検出されるという実験結果に対して2つのメカニズム;(1)動的分子配向(2)異方性光トンネルイオン化による配向分子選択効果、この2つの現象の寄与を明らかにすることを目標とした。

フェムト秒($\omega+2\omega$)位相制御レーザーパルスを用いた無極性分子($\text{Br}(\text{CH}_2)_2\text{Cl}$)、重い分子($\text{C}_6\text{H}_{13}\text{I}$)、波動関数(HOMO)が系統的に変わる分子系(CH_3X ; $\text{X}=\text{F}, \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$)を対象とした実験、ナノ秒($\omega+2\omega$)位相制御レーザーパルスを使用した実験を行い、位相制御レーザーパルスの非対称光電場と非対称波動関数との相互作用によって引き起こされる異方性トンネルイオン化に基づく配向分子選択イオン化が主要な効果であり、(1)($\omega+2\omega$)位相制御レーザーパルスのパルス幅に依存しない。(2)共鳴遷移を必要としないため光の波長を変える必要がなく分子の種類に依存しない。(3)分子の極性や大きさの制約を受けない適応範囲の広い汎用的な手法となる可能性があることを明らかにした。

この手法は、分子の異方性光トンネルイオン化を通して分子の波動関数の空間領域での選択が実現しており、光電場の非対称性という位相制御レーザーパルスの持つ新しい光の本質に基づく空間領域での量子制御に位置づけられる。ランダムな配向である気体分子の集団から特定の配向方向の分子だけを選択イオン化する配向分子選択イオン化は、ランダム配向による物理情報の平均化を除去できるため重要な分子操作技術である(文献 5)。

5. 自己評価

目標達成度については、おおむね達成された。第一の目標である基礎過程の理解については、当初の研究計画に基づいて系統的な研究を行うことができた。また第二の目標である計測装置への応用に関してはまだ中途段階であるものの、計画当初に予想しなかったアイデアに結びついた。それを元に新しい研究提案に結びつけることができ、ある部分では目標以上のことが達成された。

研究成果の科学的・技術的価値については、高度に制御された光による分子操作技術を開発することができた。その結果は国際的に見ても最先端であり、Physical Review Lettersなどの国際誌に論文発表することができた。開発した分子操作技術は分子の異方性光トンネルイオン化を通して分子の波動関数の空間領域での選択が実現しており、この手法は光電場の非対称性という位相制御レーザーパルスの持つ新しい光の本質に基づく空間領域での量子制御に位置づけられる。ランダムな配向である気体分子の集団から特定の配向方向の分子だけを選択イオン化する配向分子選択イオン化は、ランダム配向による物理情報の平均化を除去できるため重要な分子操作技術であり、実用技術への展開の観点からも大きな指針となりうる。

研究成果の社会的・経済的波及効果については、今回開発した技術は高度に制御された光による最先端の分子操作技術であることに特徴がある。反応制御にとどまらずナノテクノロジーなどの分野での横断的、融合的な技術展開が可能であり、社会的経済的波及効果をもつ。

研究計画については、研究項目毎に適切な予算配分を行うことができた。また、装置の作製とその評価において問題点を的確に把握し、十分な修正を行うことができた。

研究者の自立性について、計画、実験装置の立ち上げ、実験、論文発表等を含むすべての過程において本人が行い、十分自立的な研究が行われた。また、この手法に成功しているのは研究提案者のみで独自性の高い手法である。

6. 研究総括の見解

位相制御光と分子との相互作用によって引き起こされる量子効果を、新しい方法論に基づく配向分子質量分析装置を開発し探索することを目的とした。主たる成果は次の2点である。

①波長の異なるフェムト秒光パルスを重ね合わせ、その相対位相を精密に制御した位相制御光による分子配向に関する量子制御技術を世界に先駆けて実現した。

②位相制御光と分子との相互作用は、位相に強く依存する多彩な量子現象を示すことを明らかにした。

開発した手法は、光電場の非対称性という位相制御レーザーパルスの持つ新しい光の本質に基づく空間領域での量子制御に位置づけられ、位相制御光を用いた物質制御の新しい方法論を提示できるものと高く評価できる。

研究成果は、5編の原著論文、2件の招待講演に纏められている。この研究結果に基づく特許1件を出願している。

今回開発した技術は、高度に制御された光による最先端の分子操作技術であることに特徴があり、反応制御にとどまらずナノテクノロジーなどの分野での横断的、融合的な技術展開が可能で、社会的経済的波及効果をもつ。位相制御レーザーパルスの持つ新しい光の本質に基づく物質の量子制御の更なる発展のためには、実用的な技術創出の可能性を示すことが重要である。従来困難であった制御が、位相制御レーザー光による量子制御によって実現可能となる新技術の開発を期待する。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

- (1) 論文(原著論文)発表
論文(国際)

- Hideki Ohmura, Naoaki Saito, and M. Tachiya
Selective ionization of oriented nonpolar molecules with asymmetric structure by phase-controlled two-color laser fields
Physical Review Letters **96**, 173001 (2006)
- Hideki Ohmura, Fumiyuki Ito, M. Tachiya
Phase-sensitive molecular ionization induced by a phase-controlled two-color laser field in methyl halides
Physical Review **A74**, 043410(2006)
- Hideki Ohmura and M. Tachiya
Robust quantum control of molecular tunneling ionization in the space domain by phase-controlled laser fields
Physical Review **A77**, 023408(2008)
- Hideki Ohmura, Naoaki Saito, Hidehiko Nonaka, and Shingo Ichimura
Dissociative ionization of a large molecule studied by intense phase-controlled laser fields
Physical Review **A77**, 053405(2008)

論文(国内)

- 大村 英樹
位相制御レーザーパルスによる量子的分子操作
レーザー研究 **37**,16(2009).

(2)特許出願

研究期間累積件数: 1件
国内特許: 1件(未公開)

(3)招待講演

- 大村 英樹
二次元イオン検出器と光による配向制御を用いた分子構造解析
第 55 回質量分析総合討論会 2007 年 05 月 17 日(広島国際会議場)(予稿集 3A-S7-1400)
- 大村英樹
非線形光過程による分子操作
強光子場科学研究懇談会 平成 19 年度第 1 回懇談会(2008 年 2 月 8 日、産業技術総合研究所)

(4)学会発表

- H.Ohmura
COHERENT CONTROL OF DISSOCIATIVE IONIZATION PROCESS BY USING PHASE-CONTROLLED TWO-COLOR LASER FIELDS
PCPM2003(The 7th AIST International Symposium on Photoreaction Control and Photofunctional Materials), 2006.1.17-19, Tsukuba, (Abstract, p80 (A-13))
- 大村英樹、齋藤直昭
位相制御レーザーパルスを用いた無極性非対称分子の配向分子選択イオン化
分子構造総合討論会 2006 年 9 月 20 日(静岡県コンベンションアーツセンター、静岡市)
- Hideki Ohmura
Quantum control of molecular tunneling ionization in the space domain by phase-controlled two-color laser fields
Gordon Research Conferences

QUANTUM CONTROL OF LIGHT AND MATTER (August 12–17 2007, Salve Regina University, Newport RI)

・大村 英樹、斎藤 直昭

位相制御光パルスを用いた配向分子選択イオン化

第2回分子科学討論会(2008年9月27日福岡国際会議場)(予稿集 4C05)

・Hideki Ohmura and Naoaki Saito

Quantum control of molecular tunneling ionization in the space domain by phase-controlled two-color laser fields

International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 7(ISUL7) (November 24–28, 2008, Kyoto Garden Palace, Japan)

(B)その他の主な成果

なし

研究課題別評価書

1. 研究課題名

トポロジカル光波シンセシス

2. 氏名

尾松孝茂

3. 研究のねらい

トポロジカルチャージとは光波の空間分布(トポロジカルな分布)に依存して現れる角運動量(軌道角運動量)である。トポロジカルチャージを効率良く利用できれば、例えば、液中やガス中に浮遊するサブミクロンレベルの極微粒子に光照射だけでトルクを与え、任意の回転速度で駆動できる。また、高強度パルスレーザーのトポロジカルチャージを利用すれば、アブレーション過程で発生するプラズマの空間密度分布や再結合時間をはじめとするトポロジカルな物質構造制御ができる。このように光が示す量子力学的な性質であるトポロジカルチャージは新しい量子光学、物性工学を生み出す可能性を秘めている。

本研究の目的は、非線形光学、レーザー工学を高度に駆使し、CW からフェムト秒に至る時間領域でトポロジカルチャージを有する高出力・高強度レーザー(トポロジカル光波)を高効率でかつ自在に創製(デザイン)し、新しい光科学の創成を目指すことにある。

4. 研究成果

以下、具体的な研究成果を項目別に列挙する。

1. 高出力ラゲルガウスモードレーザー

レーザー共振器の固有モードであるエルミートガウスビームと異なるトポロジカル光波を高効率にかつ高出力に発生させることは難しく、トポロジカル光波の潜在能力は未だほとんど利用されていない。

トポロジカル光波の代表例はラゲルガウスモードである。円筒座標系における電磁気学的波動方程式の固有解であるラゲルガウスを共振器の固有モードとして発生させるために、共振器内に軸対称性を持つ位相板を挿入する、励起光をドーナツモードにする、などの方法が提案されてきた。しかしながら、いずれも位相板の挿入損失が大きい、ドーナツモードである励起光とレーザーモードとのモードマッチング効率が低い、などの理由からレーザー出力は 1W にも満たない。

われわれは、側面励起型固体レーザーにおいて共振器の安定性を決定するレーザー結晶の熱光学効果

(主にレンズ効果)がガウスモードより

ラゲルガウスモードに対しては有利に作用すること、レーザー素子の利得空間ホールバーニングにより 3 次非線形性が発生すること、からラゲルガウスモードがレーザー共振器

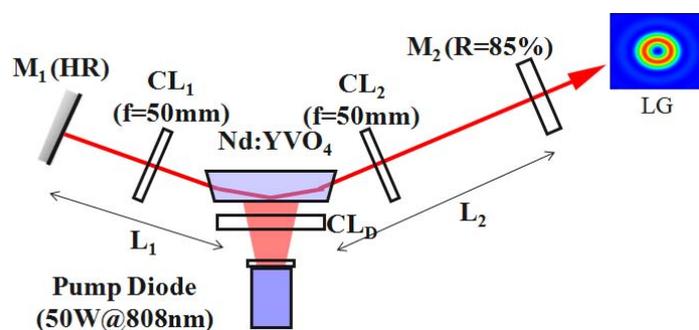


図 1 高出力トポロジカルレーザー

の固有モードとして存在できることを世界で初めて発見した。実際に図 1 に示したような簡単なレーザー共振器で 10W 以上のラゲールガウスモードが安定にレーザー発振する(図 2)。

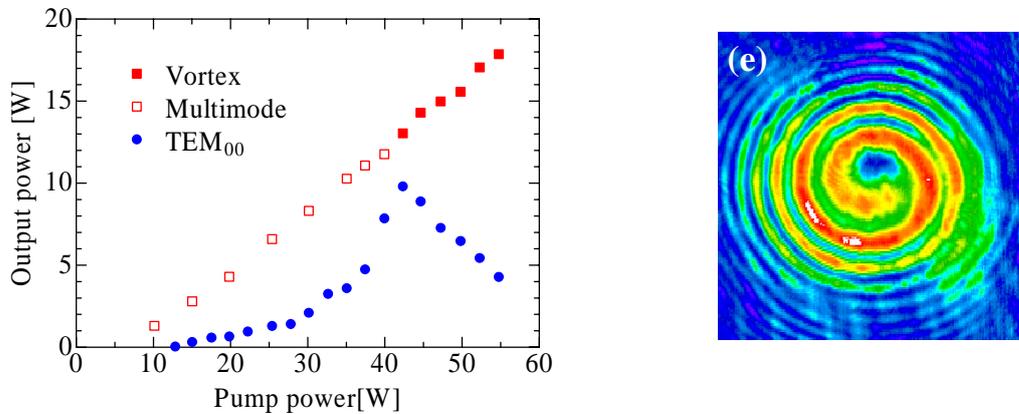


図 2 トポロジカルレーザーの出力特性と波面特性

この方法は、位相変調素子を一切必要としない。これまでに、従来の常識では不可能であると考えられていた 18W を超える高出カラゲールガウスモードの発生に成功した。

また、Yb ドープラージモードエリアファイバーへ軸外入射するとともに、ファイバーへの応力付加することによって、ガウスビームであるピコ秒レーザーをラゲールガウスビームへ変換すると同時に増幅して高出力化する新たな方法を提案し、平均出力 8W(パルス幅 4.5ps、パルス繰り返し周波数 150MHz)を超える高出力ピコ秒ラゲールガウスビームの発生に成功した。

2.位相共役光学を用いた高出力超短パルスレーザーの創成

高品位高出力高繰返しピコ秒パルスレーザーは、極紫外光やテラヘルツ波発生をはじめとする先端光科学を切拓く次世代標準光源として注目を集めている。

われわれは、フォトリフラクティブ結晶であるチタン酸バリウムの Rh イオン濃度 (400-1000ppm)、結晶方位 (c-cut、45 度 cut)、屈折率回折格子間隔(1-6 μ m)を最適化してピコ秒パルスに対して効率よく動作する位相共役鏡を構築して側面励起型 Nd ドープバナデートレーザー増幅器に導入し、平均出力 95W、ピークパワー>10MW の高出力高品位ピコ秒パルスレーザーを世界ではじめて開発した(図 3)。

位相共役波とは空間反転性を示す光であり、位相共役波を利用した光学システム設計を位相共役光学と呼ぶ。位相共役光学を高出力レーザー装置に応用できればレーザー装置に発生するいかなる熱収差も自動的に補償できるので、側面励起型 Nd バナデート増幅器の性能を最大限に引き出して高い

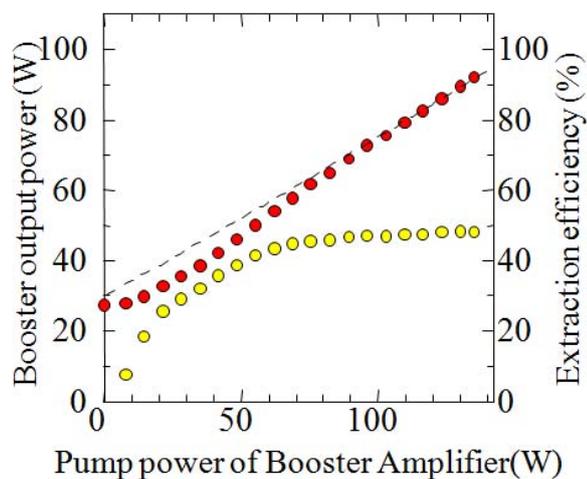


図 3 位相共役ピコ秒レーザーの出力特性

ビーム品質を維持したまま高出力レーザーが実現できる(図 4)。開発したピコ秒パルスレーザーの性能は市販されているピコ秒レーザーをはるかに凌駕する。

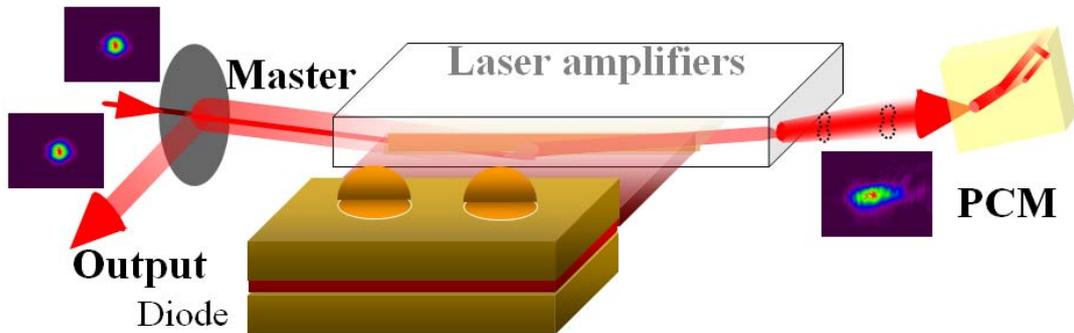


図 4 位相共役レーザーの概念図

3. 多重光渦による光マニピュレーション

光の作用場は波長で制限されるため、ナノ粒子の運動や配置を直接制御することを難しい。多重光渦とは、一つの波面に複数の位相特異点(光渦)を内在するトポロジカル光波である。個々の光渦によって捕捉されトルクを受け取るマイクロ微粒子群が生み出す流れの場を利用してナノ微粒子の運動制御・操作ができる。

実験には液晶空間変調器による波面変調法で発生させた3つの光渦を内在する3重光渦を用いた。図5に示したような3つの独立した光渦の次数、符号、強度を独立に制御することで、顕微鏡下のサブミクロン領域に任意の方向に水流を設計することができる。

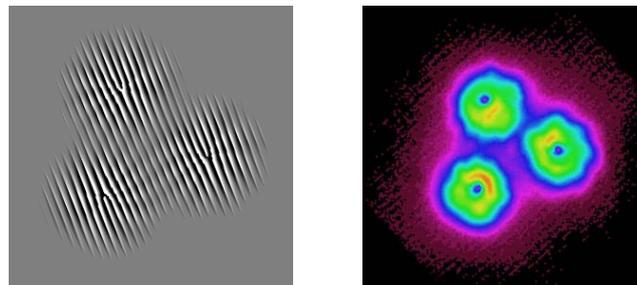


図 5 多重光渦発生用計算機プログラムと発生した多重光渦

それぞれの渦によって捕捉されるマイクロ微粒子に 800nm 径のラテックス微小球、流れによって操作するナノ微粒子に 170nm 径ラテックスナノ微小球を用いた。ナノ微小球にはローダミン系色素が含有されており、532nm のグリーンレーザーを照射することで、その動きを蛍光画像として可視化できる。ナノ微小球は二つの光渦が作り出す流れに沿って右から左へ移動し、3つ目の光渦の符号の違いで上方、あるいは、下方へ輸送される。(図6は下方へナノ微粒子が輸送された例)

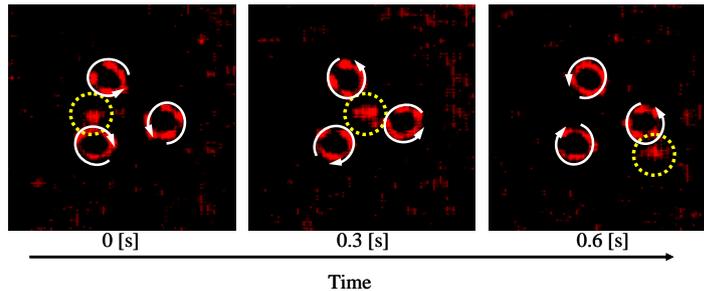


図 6 多重光渦によって輸送されたナノ微粒子。点線で囲っているのがナノ微粒子。白い矢印が渦の向きを示す。

これまでも光マニピュレーションは数多く報告されているが、多重光渦を用いてナノ微粒子を輸送したのはこの研究がはじめてである。

この他にも、トポロジカル光波を用いた光造形やレーザーアブレーションなど、研究成果が出始めている。

5. 自己評価

当初、狙いに掲げていた高出力・高強度トポロジカル光波の創製(デザイン)、高強度トポロジカル光波による物質構造制御のうち、前者に関しては、側面励起固体レーザーによる高出力ラゲールガウスレーザーやラージエリアモードファイバー増幅器を用いたピコ秒ラゲールガウスレーザーを含め、所定以上の成果が得られたものと確信している。これらの成果と位相共役レーザーシステムを融合することでさらにトポロジカル光波の高出力化と高強度化が狙える。

後者に関しては、光源開発に比べやや遅れていたが、今年度後半から漸く実験が進み成果が出始めた。特に、多重光渦によるナノ微粒子操作をはじめ、トポロジカル光波の示すトポロジカルチャージを利用することで初めて可能になる事例を実証することができた。さらには、高強度トポロジカル光波を用いたプラズマ制御やトポロジカル光波を用いた光造形の可能性も示すことができた。

今後、研究期間を通して開発してきた高出力・高強度トポロジカル光波を応用研究に導入することで、光によって物質のトポロジカルな構造制御を可能にする「トポロジカル光科学」へと展開できるものと確信する。

6. 研究総括の見解

非線形光学、レーザー工学を高度に駆使し、CW からフェムト秒に至る時間領域でトポロジカルチャージを有する高出力・高強度レーザー(トポロジカル光波)を、高効率でかつ自在に創製し、新しい光科学の創成に取り組んだ。主たる成果は次の3点である。

- ①高出力ピコ秒ラゲールガウスビーム(平均出力 8W、パルス幅 4.5ps、パルス繰り返し周波数 150MHz)の発生に成功。
- ②高出力高品位ピコ秒パルスレーザー(平均出力 95W、ピークパワー>10MW)を世界ではじめて開発。
- ③世界ではじめて多重光渦による光マニピュレーションでナノ微粒子を輸送。

研究期間を通して開発してきた高出力・高強度トポロジカル光波のいくつかは完成度も高く、実用光源として次世代のプラットフォームとなりうるもので高く評価できる。

研究成果は、16編の原著論文、16件の招待講演に纏められているが、著書・解説6件、プレス発表2件と精力的に発表を行っている。また、この研究成果に基づく特許出願も8件を数える。

今後、高出力ピコ秒レーザーはテラヘルツ波や OPCPA の励起光源として応用できるとともに、

シリコンやサファイアをはじめとする難加工材のアブレーション加工用光源として産業界にも大きく貢献すると期待される。また、プラズマ密度や再結合時間をトポロジカル光波で制御できれば、その応用に、EUV 光の発生効率改善、プラズマによる光学部品の損傷や汚染低減などの効果が期待できる。産業界に与えるインパクトが大きく、重要である。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表 論文(国際)

(1) 論文(原著論文)発表

- ・ "Characterization of 1.06 μm optical vortex laser based on a side-pumped Nd:GdVO₄ bounce oscillator", Masahito Okida, Yasushi Hayashi, Takashige Omatsu, Junichi Hamazaki, Ryuji Morita, Appl. Phys. B (in press)
- ・ "Direct production of high-power radially-polarized output from a side-pumped Nd:YVO₄ amplifier", Junichi Hamazaki, Akira Kawamoto, Ryuji Morita, Takashige Omatsu, Optics Express, **16** Issue 14, (2008) 16762-16768
- ・ "Direct generation of high power Laguerre–Gaussian output from a diode-pumped Nd:YVO₄ 1.3- μm bounce laser", Masahito Okida, Masahide Itoh, Toyohiko Yatagai, Takashige Omatsu, Optics Express, **15**, No.12 (2007) 7616-7622.
- ・ "Measurement of Contrast Transfer Function in Super-Resolution Microscopy using Two-color Fluorescence Dip Spectroscopy", Yoshinori Iketaki, Takeshi Watanabe, Nándor Bokor, Takashige Omatsu, Takashi Hiraga, Kimihisa Yamamoto, Masaaki Fujii, Applied Spectroscopy, **61**, No.1 (2007) 6-10.
- ・ "Highly efficient phase-conjugation of a 1 μm pico-second Laguerre-Gaussian beam", Gyeong Bok Jung, Keiichiro Kanaya, Takashige Omatsu, Optics Express **14** No. 6 (2006) 2250-2255.

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 8 件
国内特許 8 件(未公開)

(3) 受賞

- ・ 平成 18 年 5 月: 平成 18 年度ちばぎんひまわり賞
「位相共役光学を用いた高品位ラップトップ超短パルスレーザー」
- ・ 平成 19 年 9 月: 平成 19 年度千葉大学オープンリサーチ 2007 学長賞最優秀賞

(4) 著書

- ・ "ポロジカル光波の生成とその応用", トポロジカルデザイン ブッカーズ 尾松孝茂、森田隆二 (出版予定)
- ・ "Photorefractive materials and Applications vol.3", Springer, Series in Optical Sciences Chap.7, "Optical phase conjugation in laser technology", T.Omatsu, M.J.Damzen, A. Minassian, and

K.Kuroda

(5)招待講演

- ・ “100W 級高出力ピコ秒位相共役レーザーシステム”、尾松孝茂、レーザー学会学術講演会第29回年次大会(徳島大学、2009/1/12)
- ・ “光多重渦の発生と光マニピュレーションへの応用”、尾松孝茂、第69回応用物理学会学術講演会(中部大学、2008/9/3)
- ・ “High power vortex output from a diode-pumped solid-state laser”
T. Omatsu, The Topology and Singularity in Optical Physics (Sapporo, 23-24 July 2007)
- ・ ”Ultra-fast phase conjugate laser system”
K. Nawata, J. Hagiwara, T. Omatsu, CLEO-Europe 2007 (Munich, 17-22 June 2007)
- ・ “Power scalability of a Pico-second Nd:YVO₄ phase conjugate master-oscillator power amplifier”,
6th International conference Laser & Laser technologies:Fundamental problems & Applications (ILLA2006) (Smolyan, Bulgaria, Oct.4-7 2006)

(6)新聞発表

- ・ 2008.1.7. 化学工業日報 「100 ワットピコ秒パルスレーザー開発へ」
- ・ 2006.7.11. 日刊工業新聞 「位相共役鏡を用いた小型ピコ秒パルスレーザー アルネアラボラトリーとの共同開発」

(B)その他の主な成果

なし

研究課題別評価書

1. 研究課題名

分子光変調による超高繰り返し超短パルス光の発生

2. 氏名

桂川 眞幸

3. 研究のねらい

量子干渉をkeyとする(近共鳴)三準位系の光学過程は、電磁誘起透明化(Electromagnetically Induced Transparency)に始まり、超低速光伝搬や単一光子レベルでの量子コヒーレンス操作など、多くの魅力的な現象を生み出した。一方、このスキームを遠共鳴の三準位系に拡張すると、そこには、広帯域コヒーレント光の同軸発生や超短パルス光の生成など、光源としての様々な応用が開けてくる。

本研究は、この遠共鳴三準位系を基礎として、ほぼ完全にコヒーレントに振動/回転する高密度($\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)分子集団を形成すること、さらに、それを超高周波の光変調器として利用することで、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を生成することを目的とした。研究の開始時において、この原理に基づき、すでに、10 THz繰り返し、パルス幅 12 fs、ピーク強度 $> 2 \text{ MW}$ の超短パルス光列の発生技術が確立されていた。本研究ではこれを発展させ、この超高繰り返し超短パルス光列の光源としての性能を極限化することを目指した。具体的には、次の三点、高強度 10THz繰り返しモノサイクル光の発生、CEO (Carrier Envelope Offset), CEP (Carrier Envelope Phase) の制御、CW領域への拡張を柱として研究を進めた。

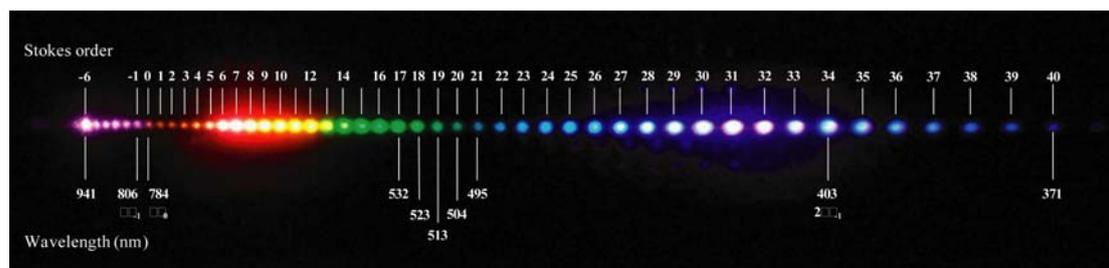
ここでの研究成果が礎となって、Rydberg励起状態の空間的量子局在、単色テラヘルツ波発生など、パルス光列の高精度高繰り返し性という軸での研究領域が切り開かれることを展望している。

4. 研究成果

研究の柱として掲げたテーマについて、それぞれ、その成果の要点を述べる。

1) 高強度 10THz 繰り返しモノサイクル光の発生

このテーマにおいては、生成される超短パルス光が高強度であるという特徴を失うことなく、極限的に短パルス化(モノサイクル)された超短パルス光を生成することを目指した。パルス幅を極限的に短くするためには、生成するコヒーレント光が1オクターブを遥かに超える帯域をもつものである必要がある。この要請を満たすために、ラマン遷移に近共鳴する二波長の基本波を用いる従来の方法から、さらに一方の倍波を加え三波長励起とする新しい方式を試みた。下図は、この方法で生成した 10 THz 間隔のラマンサイドバンド光スペクトルである。基本波の二波長(784 nm, 806 nm)を起点として広がるラマンサイドバンド光と基本波の一方の倍波(403 nm)を起点として広がるラマンサイドバンド光が互いに重なり合い、一オクターブを遥かに超える超広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルを生成できていることがわかる(論文リスト 1: Phys. Rev. Lett. **101** 243602 (2008))。



生成された広帯域ラマンサイドバンド光の一つ一つは、単色の光源として利用できるだけの

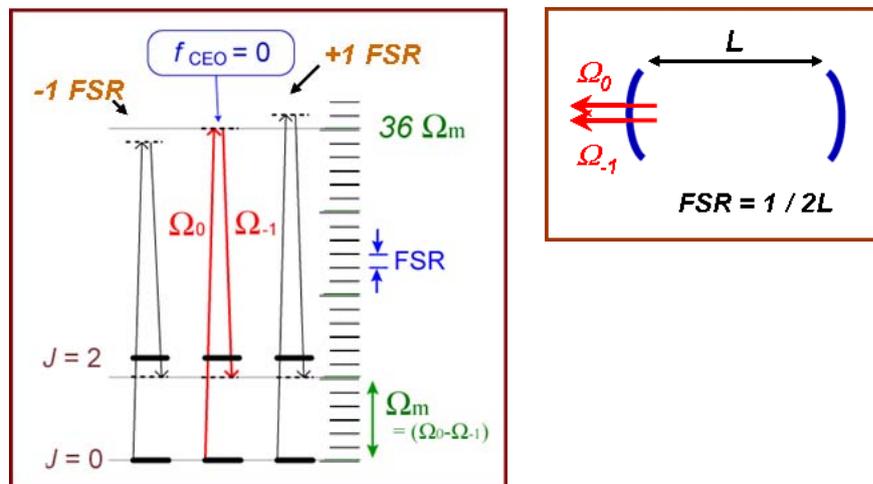
ビーム品質を持っている。また、すでに部分的に確認されているように、それらをフーリエ合成することで超短パルス光を形成することも可能と予想される。ただし、このように、極めて離散的で、かつ広帯域に渡るスペクトルから形成される超短パルス光の評価は、従来の方法では困難である。そこで、これらの要請に耐えうる新しい超短パルス評価法を本研究において開発した。一つは、FROG法の考えを変形した手法(T. Onose, M. Katsuragawa, *et al.*, in preparation)、もう一つは SPIDER 法の考えを変形した手法である(論文リスト 3: Optics Letters, **33**, 2809 (2008); 特許 2:特願 2008-076557)である。

これらの手法の開発によって、生成された広帯域ラマンサイドバンド光のスペクトル位相を定量的に評価することができるようになった。この成果をもとに、離散スペクトルに特有の新しいパルス圧縮法を見出した(T. Suzuki, M. Katsuragawa, in preparation; 特許 3:特願 2009-12229)。このパルス圧縮法は、高い光強度にも耐えうる光学部品で構成され、生成する超短パルス光源を様々な目的に利用する際に、現実的に有用な方法になると思われる。また、ラマンサイドバンド光の発生過程でスペクトル位相がどのように形成されるかを、理論と実験の双方から系統的に研究した。その結果、スペクトル位相が二光子離調、及び、励起強度をパラメータとしてデザイン可能であることを明らかにした。

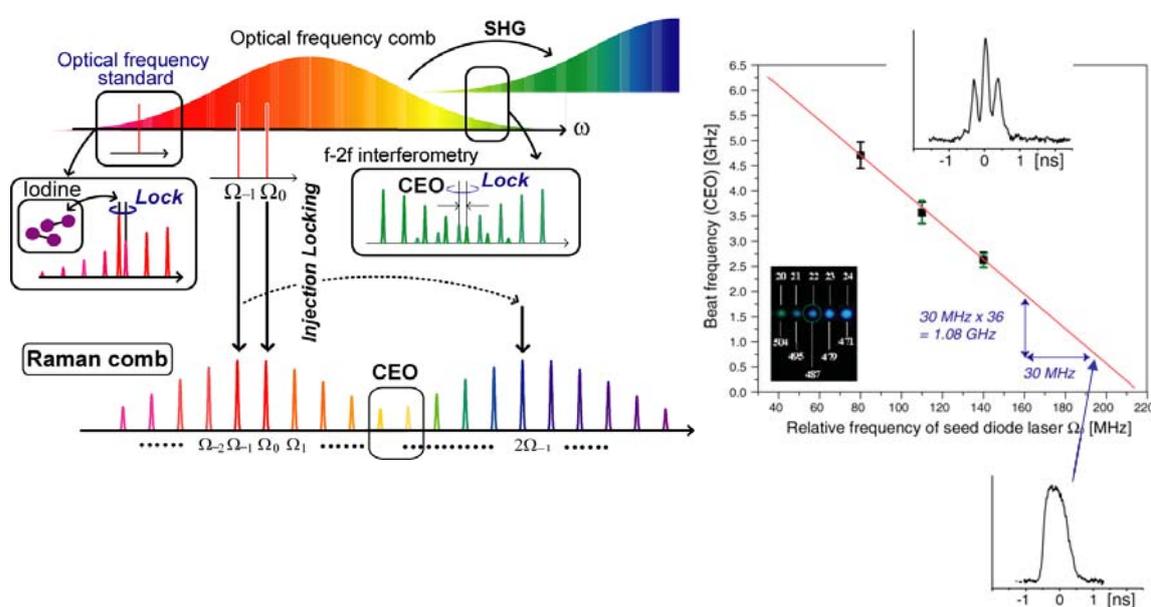
ラマンサイドバンド光の広帯域化とそのスペクトル位相の定量評価法を確立したので、ガラスプレート列空間位相変調器を用いた超短パルスの極限化に取り組んだ。少数のラマンサイドバンド光成分に対して、フーリエ変換限界のパルス形成が可能であることを確認した。この研究は、1 オクターブを超えるラマンサイドバンド光の成分(50 コンポーネント)全てに対するスペクトル位相の制御に向けた研究の途上にある。

2) CEO (Carrier Envelope Offset), CEP (Carrier Envelope Phase) の制御

このテーマでは生成した超高繰り返し超短パルス光を単に短パルス化だけでなく、その光振幅波形をも制御することを目指した。そのためには、CEO、及び、CEP を制御することが要請される。まず、最初のステップとして、CEO 周波数を検出することを試みた。下図は、生成するラマンサイドバンド光の CEO 周波数が、離散的に自動制御される様子を示している。これは、励起に用いる二波長の励起光が単一のレーザー共振器から生成される(論文 5: Optics Express **15**, 1600 (2007); Optics Letters. **30**, 2421 (2005))ことによる。光周波数コムの研究において確立した、 $f - 2f$ 自己参照法のコンセプトを応用し、CEO 周波数を時間領域で検出した。下図に示されるように、CEO 周波数が確かに励起レーザー共振器の Free Spectral Range の整数倍に制御されることが確認された(論文リスト 1: Phys. Rev. Lett. **101** 243602 (2008); 特許 1: 特願 2008-076556)。



次に、この技術をさらに極限化し、CEO周波数制御の高精度化と、さらに、CEPを制御することを目指した。下図はその手法の概略を示している。光周波数標準(ヨウ素安定化YAGレーザー、絶対周波数安定度: $> 8 \times 10^{-13}$)に安定化されたフェムト秒レーザー光周波数コムを絶対周波数の“ものさし”とし、広帯域ラマンサイドバンド光にその絶対周波数安定度を転写する概略を表している。二波長の励起光を生成する種光(外部共振器制御半導体レーザー光)を光周波数コムに位相同期し、さらに、それをもとに生成した注入同期ナノ秒パルス励起光としてラマン型光コムを発生させた。種光に用いた二波長の外部共振器制御半導体レーザー光が、ともに 4 mHz以下の精度をもってフェムト秒レーザー光周波数コムに位相同期されることが確認された。また生成されたラマン型光コムのCEO周波数が、種光の光コムへの位相同期ループに組み込まれた局部発振器によって高精度に制御可能なことも明らかになった(Ultrafast Phenomena XIV, *in press*)。CEO周波数の制御精度を上げ、さらにCEPを制御することは、まだ研究の途上にある。



5. 自己評価

断熱ラマン過程を通して生成した広帯域ラマンサイドバンド光をもとに超高繰り返し超短パルス光を生成する技術を発展させ、搬送波位相が制御されたモノサイクル光を実用レベルの質をもって生成するという目標を立てた。この大目標に対して、さらに研究の柱を三つ立て、それぞれの方針に従って研究を進めた。

上記のように、いずれの柱においても、三年間の研究期間において、目標を全て達成するには至らなかったが、当初の計画にかなり近い流れに沿って研究を進めることができた。三年間の研究を通して、当初、立てた研究の狙いとそれへの進め方が、かなり適切に近いものであったということと、遠くない将来に、大目標に至ることができるという確信がもてた点が貴重な成果だと自己評価している。

6. 研究総括の見解

本研究の目的は、遠共鳴三準位系技術を基礎として、ほぼ完全にコヒーレントに振動/回転する高密度($\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)分子集団を形成すること、さらに、それを超高周波の光変調器として利用することで、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を生成することである。主たる成果は次の3点である。

(1) 実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列において、一オクターブを遥かに超える超広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルの生成。

(2) 離散的・広帯域に渡るスペクトルから形成される超短パルス光の評価法、並びに、広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルの位相定量評価法の確立。

(3) 上記評価法により、離散スペクトルに特有の新しいパルス圧縮法の開発。

研究成果は、6編の原著論文、21件の招待講演に纏められ、この研究結果に基づく特許3件を出願している。また、(1)の成果は、高く評価され論文誌(Phys. Rev. Lett.)の表紙を飾っている。

理論的で独創的な研究手法により、超高周波の光変調器を開発し、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を得るという成果を得た。ここでの研究成果が礎となって、Rydberg 励起状態の空間的量子局在、単色テラヘルツ波発生など、パルス光列の高精度高繰り返し性という軸での研究領域が切り開かれることが期待される。更に、シンセサイザーのように、“光振幅波形”を制御した超短パルス列を単一周波数レーザー光から組み立てる新奇光源の実用化も望まれるところである。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- T. Suzuki, M. Hirai, and M. Katsuragawa, Octave-spanning Raman comb with carrier envelope offset control, Phys. Rev. Lett. Vol. 101, No. 24, 243602 - 243605 (2008). **Selected as a Cover page**
- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Generation of octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, Ultrafast Phenomena XIV. (*in press*) *Invited Paper*
- T. Suzuki, N. Sawayama, and M. Katsuragawa, Spectral phase measurements for broad Raman sidebands by using spectral interferometry, Optics Letters Vol. 33, No. 23, 2809–2811 (2008).
- R. Tanaka, T. Matsuzawa, H. Yokota, T. Suzuki, Y. Fujii, A. Mio, and M. Katsuragawa, Stable confinement of nanosecond laser pulse in an enhancement cavity, Optics Express Vol.16, No. 23, 18667–18674 (2008).
- T. Onose and M. Katsuragawa, Dual-wavelength injection-locked, pulsed laser with precisely predictable performance, Optics Express Vol. 15, No. 4, 1600–1605 (2007).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 3件

国内特許: 3件(未公開)

(3) 解説論文

- 桂川真幸: ラマン過程の断熱操作と超短パルス光発生制御技術への展開, 応用物理、2月号、(解説)、Vol. 76, No. 2, 125 – 132 (2007).
- 桂川真幸: レーザー光の新しい極限化軸と光科学, レーザー研究(レーザー学会誌)1月号、「若手研究者の描く光科学研究の展望」特集号、(解説)、Vol. 37, No. 1, 7 – 10 (2009).

(4)招待講演(国際会議)

- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, 39-th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, PQE-2009, Snowbird, Salt Lake City, Utah, USA, 4-8 January (2009). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, The 8th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, AISAMP2008, the University of Western Australia, Perth, Australia, 24-28 November (2008). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Generation of octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, Ultrafast Phenomena 2008, Stresa, Lago Maggiore, Italy, June 9-13, (2008). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, T. Suzuki, T. Hirai, M. Arakawa, and F. L. Hong: Adiabatic manipulation of Raman process and its application to novel coherent light source, First International Symposium on Interdisciplinary Materials Science (ISIMS-2008), Summary pp. 3, IL3, EPOCHAL TSUKUBA (Tsukuba International Congress Center), Tsukuba, Japan, March. 13-14(2008). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, T. Suzuki, F. L. Hong, and M. Suzuki: Octave-spanning Raman comb generation with absolute phase control, 38-th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, PQE-2008, Snowbird, Salt Lake City, Utah, USA, 6-10 January (2008). *Invited Paper*

(5)コロキウム講演 (Invited lecture)

- 桂川眞幸: 量子コヒーレンスの断熱操作と超短パルス光発生への応用、分子研コロキウム、自然科学研究機構 分子科学研究所、2008年3月26日。招待講演

(5)受賞等

- 2007年11月 科学技術の「美」パネル展における優秀作品への表彰; 科学技術館
出品者: 桂川眞幸、鈴木隆行
作品名: 「冷たい水素から放たれる50色のレーザー光」
- 2008年12月 研究成果図が、学会誌表紙図案に選定される。
Physical Review Letters Vol. 101 (2008), No.24

(6)製作装置一覧と共同研究

1. 二波長同時安定化外部共振器制御半導体レーザーシステム
2. SPIDER
3. FROG (農工大三沢教授)
4. 窒素温度 Cryostat (東北大学 理学部工場)
5. オルソ・パラ変換器
6. GHz ビート光注入同期レーザー
7. 光周波数標準と光コム (産総研 周波数標準 G 洪鋒雷博士)

(B)その他の主な成果

なし

研究課題別評価書

1. 研究課題名

ナノ光学素子中のプラズモンダイナミクスフェムト秒映像化

2. 氏名

久保 敦

3. 研究のねらい

表面プラズモン(SP)は金属自由電子のコヒーレントな集団振動であり、金属-誘電体界面に沿って伝搬する。SP を情報伝達の担い手とすることでサブ波長サイズの超高速・小型集積素子が実現すると目されている。SP 導波路、SP ミラー、SP レンズ、SP ビームスプリッター、SP 共鳴器等々の SP 光学素子類が、近年急速に開発されつつある。

本研究では、そのような素子中を伝搬する表面プラズモン波束を映像化する。SP のダイナミクスは時空間的に微細な領域で進行する。フェムト秒オーダーの時間分解能、100nm 以下の空間分解能が、計測法に要求される。本研究では、フェムト秒干渉型時間分解2光子光電子分光法(ITR-2PP)と光電子顕微鏡法(PEEM)の2技法を融合させた、干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM)により、この課題にあたる。

加えて、得られた時間分解映像から、SP の伝搬長、分散特性等を決定し、SP 波束の運動を再現するための解析手法を開発する。

また、SP 光学素子類の製作手法を確立し、計測手法に適合する試料製作を行う。

表面プラズモンは位相緩和、エネルギー緩和を経て、コヒーレンスを失ったホットエレクトロンへ崩壊すると考えられている。緩和ダイナミクスの解明のためには、SP/ホットエレクトロンのスペクトル(エネルギー)情報をも計測する必要がある。この目的のために、上記の ITR-PEEM に光電子スペクトル分解能を付与する改造を施し、空間分解光電子分光を行い、SP 励起サイトの局所光電子スペクトルを検討する。

また、位相緩和時間(10-100 fs 程度)の間、SP はいわば”光”の特殊状態とみなせ、外部光とコヒーレントに相互作用(干渉)する。この効果を用い、光位相による SP のコヒーレントコントロールを試みる。

4. 研究成果

i. 干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM)による表面プラズモンの顕微映像化

10fs, 400nm パルスレーザーを励起光源とする干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM)により、銀表面を伝搬する表面プラズモンの動画化に世界で初めて成功した。映像の時間分解能は10fs、コマ間隔 0.33fs(400nm 光の 1/4 周期)、空間分解能 50nm であり、凝縮系素励起の映像として最速の時間分解能である。

図.1 に銀薄膜のスリット端から伝搬するSPの映像から代表的なコマを抜き出して示す。ポンプ-

プローブ遅延(τ_d)の増大に伴い、波状の濃淡として見える空間パターンの突端(波面)が右方向に伸展している。波面の前進速度は光速の約 60%であり、表面プラズモン波束の群速度に一致する。また τ_d がSPの寿命を大きく超える領域($\tau_d = 46.7\text{fs}$)では、コヒーレンスの喪失に伴い、波状パターンの振幅の減衰が生じている。

後述の様にシミュレーションとの比較から、観察される波状パターンは、励起光による局所分極と表面プラズモンとの干渉で形成される、分極ビートである事が示される。ポンプ光励起のSP波束とプローブ光の局所分極との干渉に由来する成分が τ_d に伴い変化し、そのためITR-PEEM像が τ_d -依存性を示すことを明らかにした。

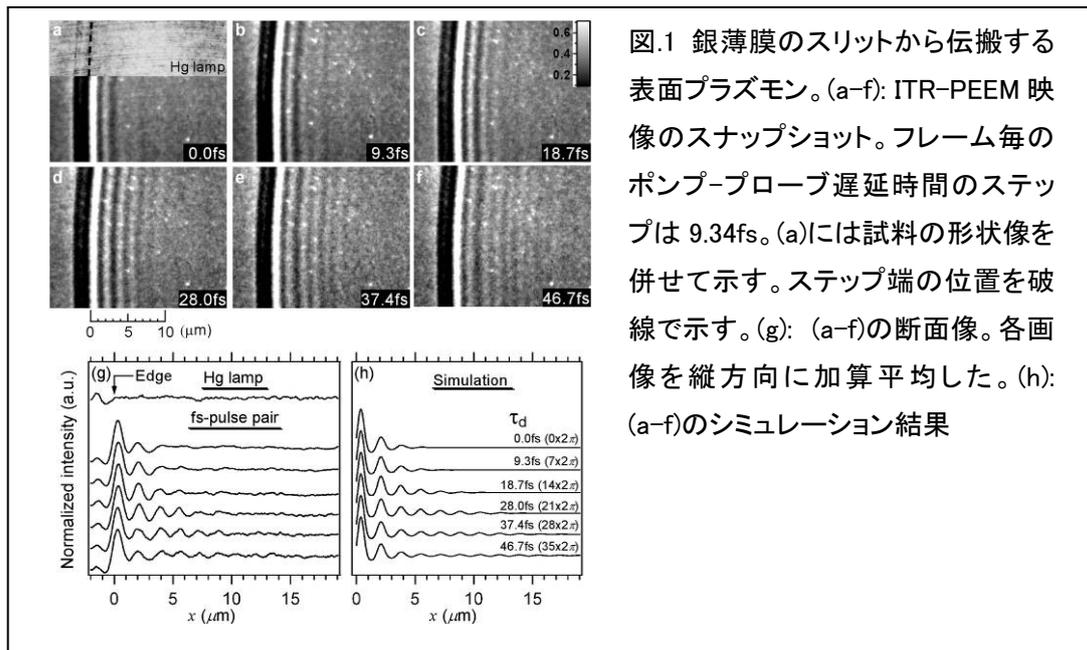


図.1 銀薄膜のスリットから伝搬する表面プラズモン。(a-f): ITR-PEEM 映像のスナップショット。フレーム毎のポンプ-プローブ遅延時間のステップは 9.34fs。(a)には試料の形状像を併せて示す。ステップ端の位置を破線で示す。(g): (a-f)の断面像。各画像を縦方向に加算平均した。(h): (a-f)のシミュレーション結果

ii. 表面プラズモン映像解析シミュレーションの開発

表面プラズモン波束のダイナミクスを規定する主要な物理パラメーターである、寿命、群速度、位相速度、分散特性を決定するためのシミュレーション方法を開発した。金属構造物の電磁波応答シミュレーション法として広く用いられている FDTD 法は、金属の誘電特性の表現に Drude モデルを使用しており、本研究で用いた銀の近紫外領域では誤差が大きくなる他、超短パルスの時間応答シミュレーションには必ずしも向かない面がある。

本研究では、光-SP結合が生じるポイント・ソースにおけるSPP波束をフーリエ変換し、各平面波成分の位相速度と減衰長、すなわち複素波数ベクトルの値を制御パラメーターとする事で、任意の分散特性を取り込めるようにした。その結果、Johnson & Christyの報告による銀の光学定数から導出される表面プラズモン複素波数ベクトルにより、SP波束の伝搬のダイナミクスが良く再現できることを示した。また、金属表面の分極をSP由来のものと光の局所分極場由来のものに分け、時空間座標におけるそれらの発展を検討することにより、実際のSP波束運動と観測されるITR-PEEM像との間の物理的対応関係を明確にした。図.1(h)はその様にして得られたSPの1次元的な伝搬のシミュレーションであり、実験結果を良く再現している。図.2に、 τ_d が 29.3fs (400nm光の

22.0x2 π 位相)、および 30.0fs (同 22.5x2 π 位相)の 2 つのケースについて、励起光による局所分極、表面プラズモン、そして両者の和である全分極、それぞれの時空間座標上での発展のシミュレーション結果を示す。局所分極とSPが時空間座標上で重なる領域に、分極のビートが生じている。2次元に拡張したシミュレーションにおいても、SP波同士の干渉や集光など実験結果を良く再現する事を確認している。

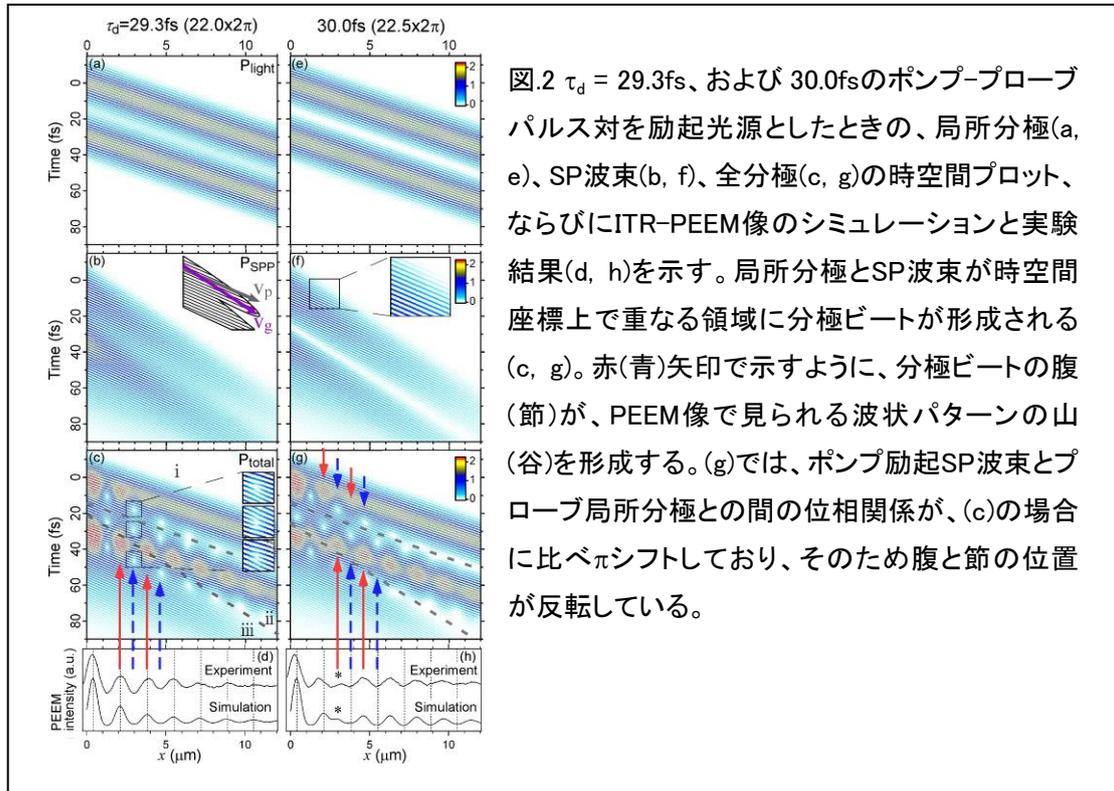


図.2 $\tau_d = 29.3\text{fs}$ 、および 30.0fs のポンプ-プローブパルス対を励起光源としたときの、局所分極(a, e)、SP波束(b, f)、全分極(c, g)の時空間プロット、ならびにITR-PEEM像のシミュレーションと実験結果(d, h)を示す。局所分極とSP波束が時空間座標上で重なる領域に分極ビートが形成される(c, g)。赤(青)矢印で示すように、分極ビートの腹(節)が、PEEM像で見られる波状パターンの山(谷)を形成する。(g)では、ポンプ励起SP波束とプローブ局所分極との間の位相関係が、(c)の場合に比べ π シフトしており、そのため腹と節の位置が反転している。

iii. SP 光学素子の開発

光-SP 結合は、金属膜表面に設けられた微細構造上で生じる。SP の集光レンズなど、SP 波干渉を利用した機能性構造を製作するには、光学パターンを 10nm 程度の精度で描く必要がある。また、パターン描画部以外の表面は荒さ数 nm 以下に抑える必要がある。しかしながら、最も長い SP 寿命を有する銀で試料を製作する場合、通常の蒸着装置等で成膜すると粒径 100nm 程度の多結晶膜となり平滑な表面が得られない。

本研究では、収束イオンビームにより高精度にパターンニングした半導体基板に、超高真空環境下で、基板温度・蒸着速度等の最適化により銀を擬エピタキシャル成長させ、上述の条件を満足する試料を製作した。

iv. 飛行時間型光電子顕微鏡(TOF-PEEM)による表面プラズモンの空間分解光電子分光

表面プラズモンのデコヒーレンスのダイナミクスの解明に、光電子のエネルギースペクトルは重要な知見を与える。通常の光電子顕微鏡(PEEM)は光電子の電流強度のみを測定するものであり、エネルギースペクトルは得られない。

本研究では、PEEM の検出部に、飛行時間(TOF)チューブおよび 2 次元ディレイラインディテクター(DLD)を設置する改造を行った。これにより、検出する光電子一つ一つについて、位置および運動エネルギー(x, y, E)の 3 次元データを取得することが可能になった。達成したエネルギー分解能は 100meV、空間分解能 80nm であり、(x, y, E)3 次元データ 1 セットの取得に要する時間は 10 分である。従来型のイメージインテンシファイアと CCD カメラによる画像取得法(空間分解 40nm、画像取得時間 10 秒)と切り替え式で使用できる構造とした。

銀単結晶、Ag(111)を試料にし、伝搬型表面プラズモン(SPP)励起部、局在型表面プラズモン(LSP)励起部、およびプラズモン励起のない平坦部からの光電子スペクトルを比較した。その結果、SPP 部のスペクトルは平坦部に類似し銀のバルクバンド構造を保存しており、一方、LSP 部ではバンド構造は完全に消失し、低エネルギー側(真空準位カットオフ)から高エネルギー側(フェルミ準位)にかけて一過的に減衰する事が見出された。LSP はその場で完全にコヒーレンスを失いホットエレクトロンに崩壊する一方、SPP の場合は伝搬中エネルギー的にもコヒーレンスが保たれていることが判明した。

v. 光位相による表面プラズモンのコヒーレントコントロール

ITR-PEEM の光源に用いたフェムト秒ポンプ-プローブパルス対の遅延時間は 50as(アト秒)の精度で制御されている。これは 400nm 光の約 1/25 周期に相当し、パルス対の相対位相差を厳密に決定できる事を意味する。

本研究では、ポンプ-プローブ位相により、金属表面分極の空間分布の制御が可能であることを示した。上記 ii で示したように、試料表面には励起光による局所分極とSPとの干渉により分極ビートが形成されるが、ビートの腹・節の位置は両者の位相差によって決まる。従って、ポンプ光励起したSPを、それと任意の位相差をつけたプローブ光と干渉させることにより、その結果現れるビートの空間的なパターンを任意にコントロールする事が可能である。図.3 にポンプ-プローブ遅延 τ_d を、 $22 \times 2\pi$ 位相(29.3fs)から、 $23 \times 2\pi$ 位相(30.7fs)まで、 $1/4 \times 2\pi$ 位相ずつシフトさせて得られた結果、ならびにそのシミュレーションを示す。位相シフトのステップ毎に、 $x > 4\mu\text{m}$ の領域で、波パターンの山が 1 周期の $1/4 (= 430\text{nm})$ ずつシフトしている。また、 τ_d をさらに大きくした $35.5 \times 2\pi$ 位相(47.4fs)では、4-6 μm の領域にプラトー領域が形成されている。このような表面分極の空間デザインは連続光では実現できない。位相変調超短パルス光を用いる事によりそれが可能になる事を初めて示した。

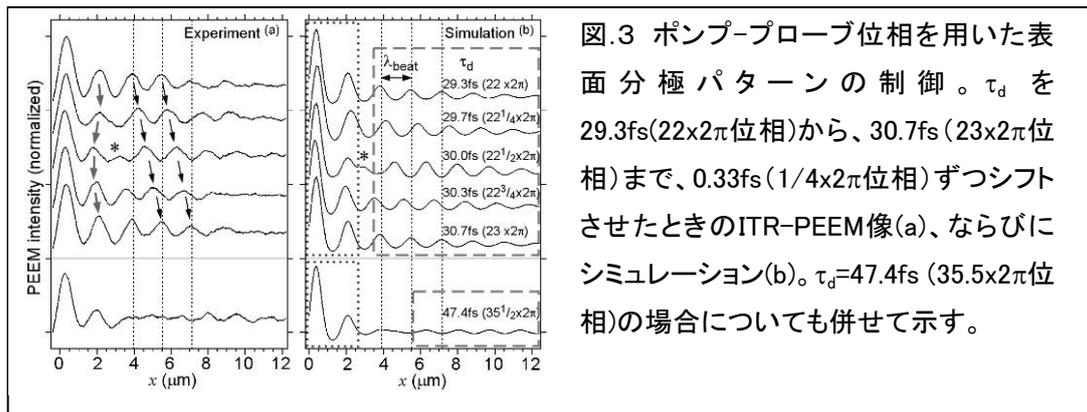


図.3 ポンプ-プローブ位相を用いた表面分極パターンの制御。 τ_d を 29.3fs($22 \times 2\pi$ 位相)から、30.7fs ($23 \times 2\pi$ 位相)まで、0.33fs($1/4 \times 2\pi$ 位相)ずつシフトさせたときのITR-PEEM像(a)、ならびにシミュレーション(b)。 $\tau_d=47.4$ fs ($35.5 \times 2\pi$ 位相)の場合についても併せて示す。

5. 自己評価

i. 干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM)による表面プラズモンの顕微映像化

本研究での中核となる実験技法であり、研究提案通り、表面プラズモン映像はすべてこの技法により取得された。

ii. 表面プラズモン映像解析シミュレーションの開発

研究提案の時点では伝播型表面プラズモンのプレリミナリーなデータが得られた段階であり、十分な解釈には到っていなかった。この成果により、ITR-PEEM 像の物理的意味が明確になり、SP ダイナミクスの定量的な議論や、SP 光学素子形状の最適化の検討等が可能になった。FDTD 法など、定評のある既存のシミュレーション法との比較を行えばより完全である。

iii. SP 光学素子の開発

伝播型 SP の光学素子に関しては well-defined な試料製作方法が確立し、ほぼ理想的なものを開発する事ができた。一方、同じく研究対象として計画していた局在型 SP については十分な進展に到らなかった。

iv. 飛行時間型光電子顕微鏡による表面プラズモンの空間分解光電子分光

研究提案で見込んだ通りの装置を製作することができた。しかしながら装置製作に時間が掛かり、さきがけ期間内で得られたデータはプレリミナリーなものにとどまった。

v. 光位相による表面プラズモンのコヒーレントコントロール

ポンプ-プローブパルス対の相対位相の制御による、空間的な分極パターンコントロールを実証する事ができた。一方、研究提案では、空間光変調素子による光パルス整形をも計画していたが、こちらについては研究を進めるに到らなかった。

6. 研究統括の見解

自ら考案した「干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM)」により、素子中を伝搬する表面プラズモン(SP)波束を映像化し、SP の運動を再現するための解析手法開発、並びに、SP 光学素子類の製作手法確立に取り組んだ。主たる成果は下記 5 点である。

- ① 干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM)による表面プラズモンの顕微映像化
- ② 表面プラズモン映像解析シミュレーションの開発

- ③ SP の集光レンズなど、SP 波干渉を利用した機能性構造を利用した SP 光学素子の開発
- ④ 飛行時間型光電子顕微鏡(TOF-PEEM)による表面プラズモンの空間分解光電子分光
- ⑤ 光位相による表面プラズモンのコヒーレントコントロール

ITR-PEEM による表面プラズモンの顕微映像化に成功し、表面プラズモン映像解析シミュレーションの開発に結びつけたことは大きな成果である。

研究成果は、6編の原著論文、15件の招待講演に纏められている。この研究結果に基づく特許1件を出願している。

SP の集光レンズなど SP 光学素子の製作手法を確立し試料試作に結びつけたことは特筆すべきことである。また、飛行時間型光電子顕微鏡による表面プラズモンの空間分解光電子分光の実現、光位相による表面プラズモンのコヒーレントコントロールの実証、などその手法の応用も幅広く成果を得ている。中長期的な展望として、さらに時間分解能を高めた、SP 波束そのものを観察する「アト秒 PEEM」への展開を期待したい。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文 (国際)

- **A. Kubo**, Y. S. Jung, H. K. Kim, and H. Petek, “Femtosecond microscopy of localized and propagating surface plasmons in silver gratings”, *J. Phys. B*, **40**, p. S259–S272 (2007). *Invited paper*.
- **A. Kubo**, N. Pontius, and H. Petek, “Femtosecond Microscopy of Surface Plasmon Polariton Wave Packet Evolution at the Silver/Vacuum Interface”, *Nano Lett.* **7**, p. 470–475 (2007).
- **A. Kubo**, N. Pontius, and H. Petek, “Femtosecond Microscopy of Surface Plasmon Propagation in a Silver Film”, *Ultrafast Phenomena XV*, p. 636–638 (2006), Proceedings of the 15th international conference on Ultrafast Phenomena.

論文 (国内)

- **久保敦**, ペテック・ハルヴォエ: “フェムト秒時間分解光電子顕微鏡による表面プラズモンダイナミクス研究”, *J. Vac. Soc. Jpn.(真空)*, **51**, (2008), p. 368–376. *invited paper*.

(2) 特許出願

累積件数: 1件

US Patent 1件(未公開)

(3) 著書

- **A. Kubo**, K. Onda, H. Petek, Z. Sun, Y. S. Jung, H. K. Kim: “Femtosecond imaging of surface plasmon dynamics”, SPIE Nanotechnology E-Newsletter, 8 December, p.3-4, (2005)

(4) 招待講演(国際会議)

- **A. Kubo** and H. Petek, “Control of surface plasmons with phase-correlated femtosecond light fields.”, SPIE Optics + Photonics, NanoScience + Engineering, San Diego Convention Center, USA, August 10, 2008
- **A. Kubo**, “Coherent manipulation of surface plasmon polaritons in nano-scale optics”, Workshop on PNU-UT Collaborated Research, Kyoto, Japan, June 21, 2008
- **A. Kubo**, “Femtosecond microscopic study of dynamics of surface plasmon polariton”, ISIMS-2008, Tsukuba, Japan, March 13, 2008
- **A. Kubo** and H. Petek, “Femtosecond Microscopy of Surface Plasmon Polariton Dynamics”, 46th IUUVSTA Workshop & 5th International Symposium on Ultrafast Surface Dynamics, Abashiri, Japan, May 24, 2006
- **A. Kubo**, N. Pontius, and H. Petek, “Femtosecond microscopy of surface plasmons in a structured silver film”, JSPS-UNT Joint Symposium on Nanoscale Materials for Optoelectronics and Biotechnology, Denton, Texas, USA, February 2, 2006

(5) コロキウム講演(Invited lecture)

- **A. Kubo** and H. Petek, “Femtosecond time-resolved microscopy of surface plasmon polariton dynamics at the silver/vacuum interface.”, Condensed matter colloquium, West Virginia University, West Virginia, USA, December 6, 2007

(6) 国際会議(口頭発表)

- **Atsushi Kubo**, and Hrvoje Petek, “Femtosecond Imaging of Surface Plasmon Polaritons by PEEM”, The 5th International Conference on LEEM/PEEM, Himeji, Japan, October 16, 2006.
- **Atsushi Kubo**, and Hrvoje Petek, “Femtosecond microscopy and coherent control of surface plasmon propagation”, SPIE Optics and Photonics, Plasmonics: Metallic Nanostructures and their Optical Properties IV, San Diego, USA, August 13, 2006
- **Atsushi Kubo**, N. Pontius, Hrvoje Petek, “Femtosecond Microscopy of Surface Plasmon Propagation in a Silver Film”, 15th International Conference on Ultrafast Phenomena, Pacific Grove, California, USA, August 3, 2006
- **Atsushi Kubo**, N. Pontius, Hrvoje Petek, “Femtosecond microscopy of surface plasmon propagation on a silver film”, American Physical Society, March Meeting, Baltimore, USA, March 15, 2006

(B) その他の主な成果

(1) 論文 (原著論文) 発表

論文 (国際)

- A. Winkelmann, V. Sametoglu, J. Zhao, A. Kubo, and H. Petek, “Angle-dependent study of a direct optical transition in the sp bands of Ag(111) by one- and two-photon photoemission”, Phys. Rev. B 76, p. 195428-1 – 11 (2007).

研究課題別評価書

1. 研究課題名

原子波回路を用いた物質波ソリトンの光学的制御

2. 氏名

熊倉 光孝

3. 研究のねらい

レーザー冷却によって実現される希薄原子気体の Bose-Einstein 凝縮体(BEC)では、ほぼ全ての原子が最低エネルギー準位に落ち込み、原子の量子力学的な波動性が巨視的スケールにまで拡大し、原子集団全体がコヒーレントな一つの波動として振舞う。BEC の示すこのような巨視的波動性に着目し、現在、原子レーザーや原子干渉計などへの応用が活発に研究されているが、一方、この BEC が持つもう一つの大きな特徴として、原子間相互作用に起因する原子波伝搬の非線形性が挙げられる。この非線形性は、原子数スクイズド状態の生成や量子トンネル効果における自己トラッピング現象など、これまでも新しい量子現象を可能とすることが知られており、巨視的波動性と相俟って、原子集団のコヒーレントな運動操作やその応用に重要な役割を果たすと考えられる。そこで本研究では、(1)長時間に亘って擾乱の少ない状態で原子波伝搬を観測・応用するため、“原子波の回路”を新たに実現して、(2)この回路上で非線形量子現象の一つである物質波ソリトンを光学的に生成・観測し、その運動特性や衝突相互作用などを明らかにすることによって新たな非線形量子現象の開拓や原子波を利用した新規デバイスの可能性を探ることを目指している。BEC 中のソリトンは、原子波の位相ステップとして特徴付けられ、原子間相互作用が斥力であるため原子密度の窪みとして安定に伝搬する。したがって、回路上の原子数密度分布を光学的に観測することにより、原子波の位相変化を直接検出することができると期待され、ソリトンを原子波位相のインジケータとして利用する新しい精密計測技術への展開が期待される。

4. 研究成果

原子波回路を実現するために必要な Bose 凝縮体は、その生成に極低温と高い原子数密度が要求されるため、トラップ中心で高密度となって凝縮体生成に有利な葉巻型として生成した。これまでに Bose 凝縮が実現された原子としては、アルカリ金属原子など様々な原子が挙げられるが、原子間相互作用や凝縮体の特性についてよく知られている基底超微細構造準位 $5s^2S_{1/2} (F=2, m_F=2)$ 状態の ^{87}Rb 原子を実験の対象とした。この原子での凝縮体生成には、これまでに光トラップや磁気トラップが用いられているが、直径数百 μm という大きなサイズのリング状凝縮体に変形を行うため、また、得られる凝縮体原子数が大きいことなどから、ここでは磁気トラップでの凝縮体生成法を採用した。

磁気トラップを用いる場合、一般にトラップの初期原子数密度が低いいため、凝縮体生成の最終段階で利用する蒸発冷却に1~2分程度の長い時間を要する。したがって、常温の残留ガスによる加熱を防ぐため、磁気トラップは 10^{-11} Torr 台の超高真空中で行う必要がある。そこで本研究では、二重磁気光学トラップ法によって、このような超高真空域に外部から Rb 原子の導入を行った。この二重磁気光学トラップには、出力 1W 程度の単一モード半導体レーザー光源と、自作した外部共振器型半導体レーザー装置を使用した。後者の自作レーザーは、回折格子による光帰還により単一モード動作するもので、20 mW 程度の出力を得ることができた。出力光の周波数は、両者とも飽和吸収分光と FM 分光を組み合わせて観測した Rb 原子の共鳴吸収線にそれぞれロックし、1 MHz 程度の周波数線幅に安定化した。

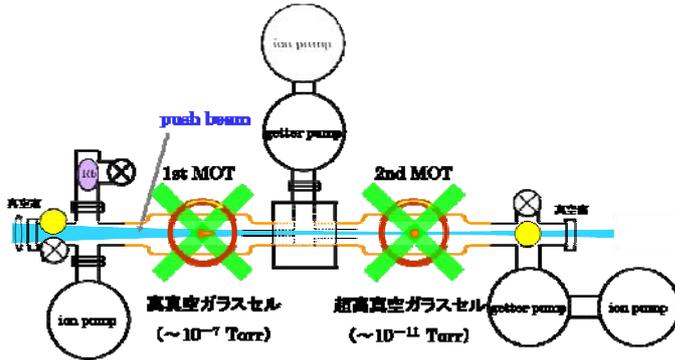


図 1. BEC 生成に用いた真空装置

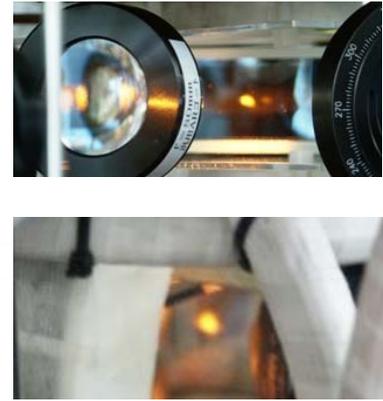


図 2. 磁気光学トラップ

上が低真空域、下が超高真空域

実験で製作・使用した真空装置は、常温のRb蒸気が充満する 10^{-6} Torr程度の低真空領域が、約 10^{-11} Torrの超高真空領域に差動排気部を介して接続された構造で(図 1)、始めに低真空領域において磁気光学トラップ(1st MOT)を行った。常温のRb原子をレーザー冷却により 1mK程度にまで冷却し、 5×10^8 個程度の原子を捕獲することができた(図 2 上段)。次に、この低温原子集団をトラップから解放し、レーザー光で加速して超高真空領域に導入した。超高真空領域では別の磁気光学トラップ(2nd MOT)によって再度、冷却・捕獲し、この原子導入を 100 回ほど繰り返すことで、超高真空中に 4×10^8 個程度の原子を 2 mK程度の温度でトラップできた(図 2 下段)。

この二重磁気光学トラップ法で捕獲した低温原子集団に、さらに偏向勾配冷却法によるレーザー冷却を行って約 110 μ Kにまで冷却した後、光ポンピングで原子スピンを偏極してから磁気トラップに導入した。製作・使用した磁気トラップはIoffe-Pritchard型の磁気トラップで、4本のIoffe barによる動径方向の四重極磁場(約 171 G/cm)と、curvature coilと呼ばれるHelmholtzコイルペアが発生する軸方向の調和型磁場によって原子をトラップする(図 3)。原子導入時のトラップ磁場の大きさは、最低磁場が 225 G程度、調和型磁場の曲率が約 148 G/cm²で、軸方向に $2\pi \times 11$ Hz、動径方向に $2\pi \times 10$ Hzのトラップ周波数を持ったほぼ等方的な磁気ポテンシャルによって低温原子をキャッチした。この磁気トラップへの導入後の原子数は約 3×10^8 個、温度は 270 μ K程度であった。

この磁気トラップ中で蒸発冷却を行ってBose凝縮体を生成するのであるが、蒸発冷却には原子集団の熱平衡化が本質的に重要で、蒸発冷却を効率的に行うためには原子数密度を増大し、衝突レートを大きくすることが必要である。そこで、原子導入後の磁気トラップにanti-bias coilによるほぼ均一な磁場を徐々に印加し、約 1 s で最低磁場を 1.9 Gにまで減少させることにより、磁気トラップした原子集団の断熱圧縮を行った。圧縮後の調和型磁場の曲率は約 205 G/cm²で、最終的に軸方向 $2\pi \times 18$ Hz、動径方向に $2\pi \times 157$ Hzのトラップ周波数を持つ異方的な磁気トラップに、約 2×10^8 個の原子を温度 660 μ Kで閉じ込めた。

Bose 凝縮体の生成は、この磁気トラップ中の原子集団に対して RF 蒸発冷却を適用することで行った。原子にある周波数のラジオ波(RF)を照射することによって、原子スピンの磁気遷移を利用し、特定のエネルギーを持つ原子のみを選択的にトラップから蒸発させることができる。そこで、印加する RF 周波数を高周波側から低周波側に掃引することにより、高温の原子から順にトラップから飛散させ、連続的に蒸発冷却を

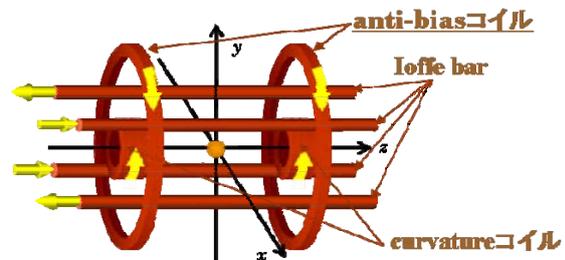


図 3. Ioffe-Pritchard 型磁気トラップ

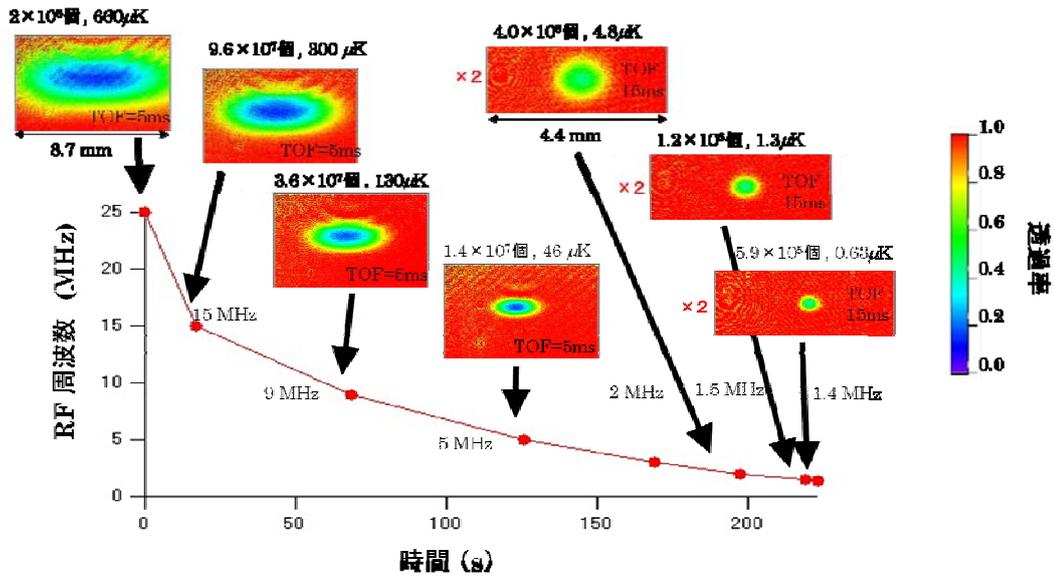


図 4. RF 蒸発冷却

印加 RF 周波数の時間変化と、各最終 RF 周波数で観測された原子集団の空間密度分布. 密度分布は磁気トラップから原子を解放して、各飛行時間 (TOF) 後に吸収イメージングによって測定された結果で、プローブ光の吸収率を画像にしたものである. 印加 RF 周波数を下げたがって、観測される原子分布が狭くなり、冷却が進んでいることが分かる.

行うことができる. RF 周波数はトラップ原子温度の約2倍の相当する 25 MHz 程度から掃引を開始し、原子集団が冷却される過程を観測した結果が図 4 である. 1.4 MHz で $0.63 \mu\text{K}$ 程度の温度にまで冷却され、更に下がった 1.355 MHz で Bose 凝縮体への相転移が確認された(図 5).

RF 最終周波数 1.380 MHz では、観測された空間密度分布は大きく広がり、ガウス関数でよくフィットできる古典的な分布を示している (約 $0.7 \mu\text{K}$). 一方、RF 最終周波数をここから下げると、原子が分布の中央に集中し始め、古典的に期待されるガウス分布から大きく外れ始める. 分布の中心は速度 0 の最低エネルギー状態に対応し、このことから原子気体が Bose 凝縮を起こしていることが分かる. 理論的考察からは、原子気体の位相空間密度が 2.6 を超えることが Bose 凝縮の条件とされており、これを確認するため各実験結果について古典原子気体を仮定して位相空間密度を求めた. その結果、Bose 凝縮が起こり始めたと考えられる最終 RF 周波数

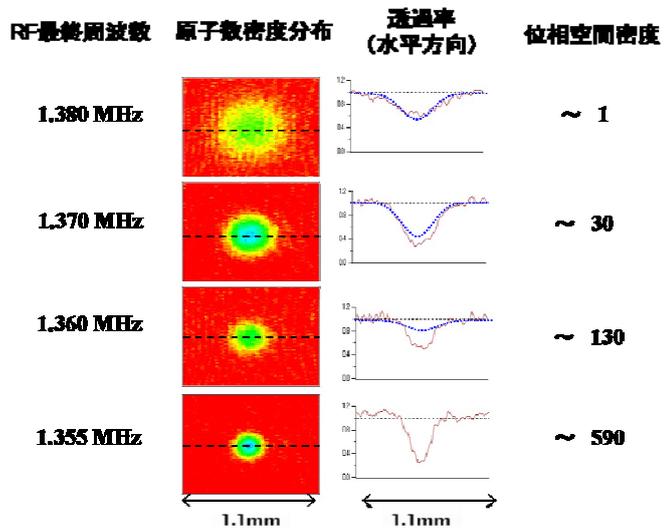


図 5. Bose 凝縮体への相転移

密度分布は 20 ms の TOF で測定された吸収イメージ (透過率分布) で、黒い点線に沿った分布を右側のグラフに赤線で示した. 青い線は分布の周辺でフィットしたガウス関数である. 位相空間密度は古典原子気体の場合に計算されるピーク値を示したものである.

1.370 MHzで始めて大きく 2.6 を超え、理論的な条件と一致していることも確認できた。1.355 MHzの最終RF周波数では、熱的な成分がほとんど消え、ほぼ純粋な凝縮体を生成することができた。この凝縮体の原子数は 1.8×10^6 個、化学ポテンシャルは 76 nKであった。

5. 自己評価

この研究期間で原子波回路の構築に必要な Bose 凝縮体を準備することができた。回路の構築に必要な光学系の検討や準備にも既に着手しており、具体的な計画の実現に向けて実験を進めることができた。当初は既に利用可能であった凝縮体生成装置を使用する計画であったが、異動により研究室の立ち上げから開始することとなり、レーザー冷却用のレーザー装置や超高真空装置、磁気トラップシステムなど、全てを新たに製作・準備した。国内では7ヶ所目の凝縮体生成装置で、今後、量子凝縮相を利用した実験研究を広く展開する新しい研究室として、凝縮体の基礎物理や応用研究に大きく貢献できる研究基盤を整えることができた。

6. 研究総括の見解

長時間に亘って擾乱の少ない状態で原子波伝搬を観測し、その応用を探るため、“原子波の回路”を実現して、新たな非線形量子現象の開拓や原子波を利用した新規デバイスの可能性を探ることに取り組んだ。主たる成果は次の3点である。

- ① 国内では7ヶ所目の Bose 凝縮体生成装置を開発。
- ② 開発装置を用い、Bose 凝縮が起こり始めたと考えられる最終 RF 周波数 1.370 MHz で、原子気体の位相空間密度が始めて大きく 2.6 を超え、理論的な条件と一致していることを確認。
- ③ 1.355 MHz の最終 RF 周波数では、熱的な成分がほとんど消え、ほぼ純粋な凝縮体生成を確認。

Base 凝縮体生成装置を開発し、今後、量子凝縮相を利用した実験研究を広く展開する新しい研究室として、凝縮体の基礎物理や応用研究に大きく貢献できる研究基盤を整えることができたことは大きな成果である。

研究成果は、10 編の原著論文に纏められている。

今後、さきがけ研究期間で準備できた Bose 凝縮体を利用して早急に原子波回路を構築し、静止ソリトンの発生、ソリトンの運動変化の観察、などを通じて原子波位相を利用した新たな計測デバイスとしての機能を実証してもらいたい。BEC 中のソリトンは、原子波の位相ステップとして特徴付けられ、ソリトンを原子波位相のインジケータとして利用する新しい精密計測技術への展開が期待される。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- M. Kumakura, T. Hirofani, M. Okano, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, “Topological formation of a multiply charged vortex in the Rb Bose–Einstein condensate: Effectiveness of the gravity compensation”, *Physical Review A*, 73 (6), 063605 (2006).
- M. Kumakura, T. Hirofani, M. Okano, T. Yabuzaki, and Y. Takahashi, “Topological creation of a multiply charged quantized vortex in the Rb Bose–Einstein condensate”, *Laser Physics*, 16 (2), 371 (2006).
- M. Okano, H. Yasuda, K. Kasa, M. Kumakura, and Y. Takahashi, “Splitting of a

quadruply quantized vortex in the Rb Bose-Einstein condensate”, *Journal of Low Temperature Physics*, 148 (3-4), 447 (2007).

- T. Isoshima, M. Okano, H. Yasuda, K. Kasa, J. A. M. Huhtamaki, M. Kumakura, and Y. Takahashi, “Spontaneous splitting of a quadruply charged vortex”, *Physical Review Letters*, 99 (20), 200403 (2007).

(2) 表彰

- 2006 年度、2007 年度、2008 年度の3年間、「福井大学重点研究・競争的配分経費」に採択
- 2006 年度-2007 年度に「さきがけ」の協力研究者として登録した大学院生が、2007 年度「福井大学大学院 工学研究科博士前期課程・物理工学専攻優秀学生」に選定される。
(研究テーマは「さきがけ」のテーマ)

(3) 学会発表 (口頭発表)

- 岡野真之, 安田英紀, 笠健太郎, 熊倉光孝, 高橋義朗, “ ^{87}Rb ボース凝縮体における高次量子渦の分裂”, 日本物理学会 2006 年秋季大会, 24aRB-5 (2006 年)
- M. Okano, H. Yasuda, K. Kasa, M. Kumakura, and Y. Takahashi, “Splitting of a quadruply quantized vortex in the Rb Bose-Einstein condensate”, *International Symposium on Quantum Fluids and Solids QFS2006*, PC27 (2006).
- 矢萩智彦, 小菅洋介, 熊倉光孝, 森田紀夫, “Rb 原子の磁気トラップと蒸発冷却”, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 20aZA-3 (2008 年).
- 小菅洋介, 矢萩智彦, 熊倉光孝, 森田紀夫, “ ^{87}Rb 原子のボース・アインシュタイン凝縮”, 日本物理学会第 64 回年次大会, 30pSD-2 (2009 年 3 月 30 日)

(B) その他の主な成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- T. Fukuhara, Y. Takasu, M. Kumakura, and Y. Takahashi, “Degenerate fermi gases of ytterbium”, *Physical Review Letters*, 98 (3), 030401 (2007).

(2) 学会発表 (口頭発表)

- 福原武, 高須洋介, A. Wasan, 熊倉光孝, 高橋義朗, “Yb 原子のフェルミ縮退に向けた冷却 II”, 日本物理学会第 61 回年次大会, 29pTA-4 (2006 年).

研究課題別評価書

1. 研究課題名

コヒーレント物質波制御による電子・光子の操作

2. 氏名

長谷宗明

3. 研究のねらい

フェムト秒(fs)パルスレーザーを半導体などの固体表面に照射すると、ラマン過程により位相が揃った格子振動(コヒーレントフォノン)を励起することができる。コヒーレントフォノンの特徴として、その周期的な振動によって試料表面近傍には 10^{-2} ~ 10^{-4} 程度の反射率(透過率)変化が起きている他、フォノンは電子を散乱して移動度を変化させたり、あるいはフォノンの凍結によって構造相転移が起こるといったように物性と深く関係がある。

以上のような背景の中で、最近の研究成果から、コヒーレント物質波(フォノン)は、その振動周期と同期した光パルス列を照射することによって光制御できることが分かってきた。しかし、コヒーレント物質波制御によって、物質波に機能を持たせるという研究は、まだほとんど行われていない。本研究では、コヒーレント物質波の振動振幅、周波数や位相を巧みに光制御する事により、この物質波と相互作用する電子や光子を操作する事を目的とした。具体的には、GaAs 等半導体におけるキャリア移動度を操作したり、テラヘルツフォノンによって変調される光の特性を操作したり、あるいは強誘電体等におけるソフトモードの格子変位によって引き起こされる変位型構造相転移を操作することを目指した。

4. 研究成果

(1)テラヘルツ繰り返しパルス列発生とFROGによる評価

コヒーレント物質波(フォノン)を制御するためには、強度と位相が精密に制御されたテラヘルツの繰り返しパルスの光パルス列を発生させなければならない。ここでは、主にマッハ・ツェンダー型干渉計により作成したダブルパルスの FROG(周波数分解光ゲート法)による評価について述べる。マッハ・ツェンダー型干渉計は、自作したステンレス板の上に、ミラーとピエゾステージを固定したものである。理論分解能は、ピエゾステージの分解能 10 nm で決まり、約 66 アト秒(as)であるが、現時点では干渉計のカバーや実験室の温度制御状況から考えて、おおよそ 660 as である。FROG 測定系には、厚さ 80 μm の BBO 結晶を用い、また時間遅延回路には高速スキャン型を採用した。

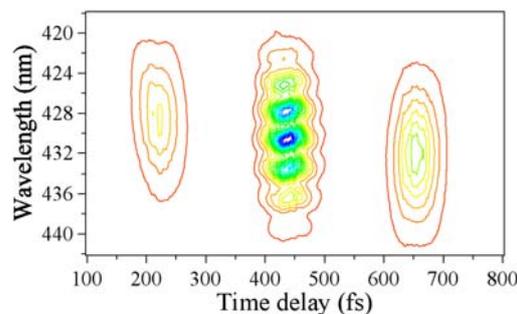


図 1. マッハ・ツェンダー干渉計により作成したダブルパルス(時間間隔 200 fs)の FROG 波形。

ダブルパルスについて得られた典型的な FROG 波形を図 1 に示すが、周波数領域でダブルパルスによるビートが見えているのが分かる。FROG 解析ソフトにより得たパルス幅はそれぞれ約 30 fs であった。本研究では、フォノンの周期(100 fs 程度)に同期させる為、ダブルパルスの位相を制御するところまでは行わなかったが、30 fs クラスのダブルパルスの FROG 波形を正確に測定した例は世界でもまだあまり例がない。

(2)半導体における電子移動度の同定と制御

半導体における移動度の測定をコヒーレントフォノン分光により行う試料として最初に、III-V 族半導体の n 型 GaAs を用いた。この極性半導体では、プラズモンと縦波光学(LO)フォノンとが結合して LO フォノン-プラズモン結合(LOPC)モードを生成することが知られている。この結合モードの

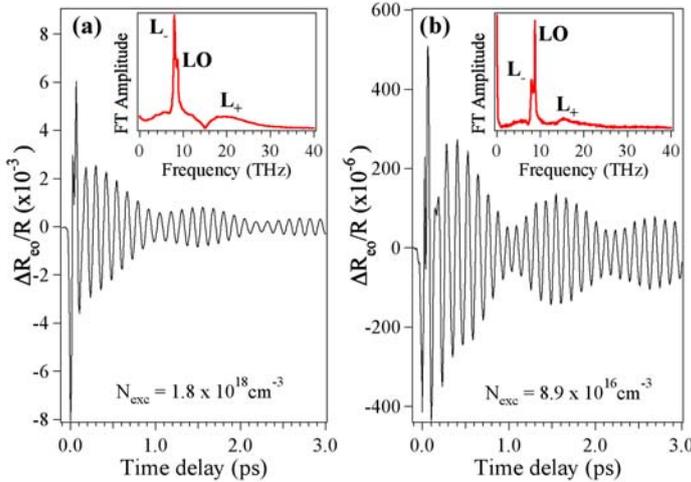


図 2. n型GaAs(ドーパ密度= $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)におけるコヒーレントLOPCモードの時間波形及びそのFTスペクトル。(a) 励起キャリア密度が $N_{\text{exc}} = 1.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の場合、(b) $N_{\text{exc}} = 8.9 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ の場合。

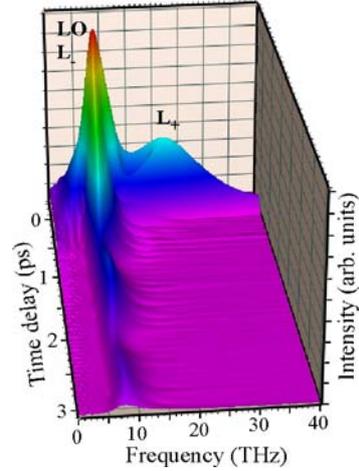


図 3. n型GaAs(ドーパ密度= $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)におけるコヒーレントLOPCモードのウェーブレット変換スペクトル。 $N_{\text{exc}} = 1.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の場合。

プラズモンライクモードの寿命を測定し、これを緩和時間 τ として、 $\mu = e\tau/m^*$ の式(e :電子電荷, m^* :有効質量)から移動度を求めることを試みた。ここで、光励起キャリアの移動度への影響を調べる為、GaAsのバンドギャップ(GaAs:1.43eV)以上の励起エネルギーで結合モードを励起し、ドーパキャリア及び光励起キャリアから生成したLOPCモードを観測することを狙った。実験は新たに導入したチタン・サファイヤレーザー(パルス幅約 20 fs, 中心波長 815 nm, 繰り返し 80 MHz)を用いて、ファーストスキャン方式による高速スキャンとポンプ-プローブ分光による時間分解反射率測定系を組み合わせた。これにより反射率変化にして $\Delta R/R \approx 10^{-7}$ の信号まで測定できる超高分解能を得ることができた。図2には、この測定によって得られたn-GaAsにおける反射率変化信号及びそのフーリエ変換(FT)スペクトルを示す。どちらの励起キャリア密度でも明確にLOPCモードの上の分枝(L_+ モード)が15~20 THz付近に観測されていることが分かる。この時間領域信号をさらにウェーブレット解析して得られた結果($N_{\text{exc}} = 1.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の場合)を図3に示すが、観測されたピークのうち、プラズモンライクなLOPCモード(L_+ モード)の緩和時間が $N_{\text{exc}} = 1.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の場合で約 79 fsであることが分かった。これから得られる移動度は、約 $2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であった。この値はホール測定による結果($2300 \text{ cm}^2/\text{Vs}$)に比べると若干小さいが、キャリア密度が高い領域での電子-正孔散乱により移動度が低下していると考えられる。

本研究ではさらに、コヒーレントLOフォノンの振幅を、テラヘルツ光パルス列を用いてコヒーレントに増強させたり、インコヒーレントに消滅させたりし、格子振動のコヒーレンスの電子移動度への影響を調べた。まず、図4は時間依存シュレーディンガー方程式をn-GaAsのLOPCモードに適用して得られたテラヘルツ繰り返し光パルス列励起の場合のコヒーレントLOPCモード信号のシミュレーションである。

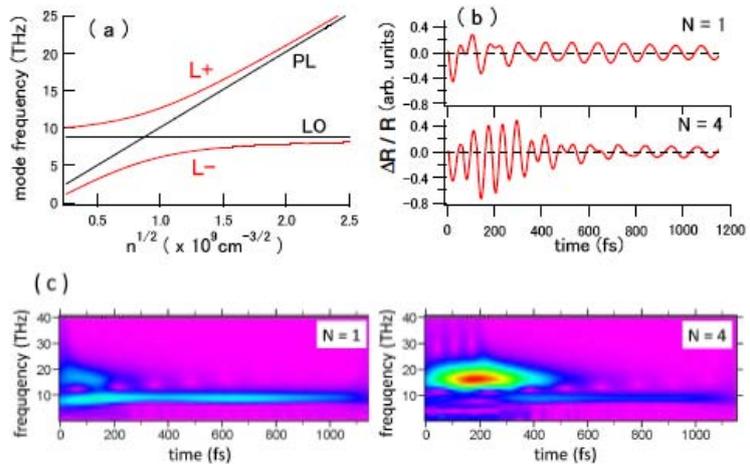


図 4. n 型 GaAs におけるコヒーレント LOPC モードのパルス列励起のシミュレーション。(a) LOPC モード周波数のキャリア密度依存性、(b) パルス数が $N=1,4$ の場合の時間依存シュレーディンガー方程式により計算した時間波形。(c)は(b)のウェーブレット変換スペクトル。

パルス列の時間周期が L_+ モードの周期に同期した時に、 L_+ モードの振幅の増強が起こり同時に若干であるが緩和時間の伸びが見て取れる。実際の実験では、まず、ダブルパルスをマッハ・ツェンダー型干渉計により作成して実験を行ったところ、シミュレーションと同様に L_+ モードの周期に同期した場合はLOフォノンの振動が抑制され非常に強い L_+ モードが観測された。しかし、このダブルパルス励起時の L_+ モードの緩和時間は、理論予測のように伸びるという結果にはならなかった。パルス列を最低でも4個程度作る必要があると考えられる。しかし、コヒーレントLOPCモードの寿命から移動度を見積もるという手法は確立できたと考えている。

(3) 強誘電体および光記録材料における構造相転移の制御

ここではまず、強誘電性半導体の $Pb_{1-x}Ge_xTe$ におけるコヒーレントソフトモードを光励起により生成させ、その転移温度(T_c)前後でのフォノンダイナミクス測定を試みた。試料は $Pb_{1-x}Ge_xTe$ ($x=0.07$)であり、測定は、フェムト秒再生増幅器(パルス幅約200 fs, 波長800 nm, 繰り返し100 kHz)を用いた時間分解反射率測定である。その結果、図5に示すように、コヒーレントソフトモードの温度依存性(8~200 K)が実時間波形として得られた。ここで、実験データは次式でフィットした。

$$\frac{\Delta R}{R_0} = H(t) \left[A e^{-t/\tau_A} + B e^{-t/\tau_B} + C e^{-\gamma t} \cos(\omega t + \phi) \right] \quad (1)$$

ただし $H(t)$ はHeaviside関数、 A , B , C は振幅、 τ_A , τ_B はキャリアバックグラウンドの緩和時間、 γ はフォノンの減衰定数、 ω は周波数、 ϕ は初期位相である。また、ソフトモードの周波数変化と電子応答成分の変化(図6)から転移温度が約 160 ± 5 Kであることが分かった。この物質では図5を見れば明らかのように、コヒーレントソフトフォノンの緩和時間が異常に短いことが分かる。この原因としては、不安定な混晶である $Pb_{1-x}Ge_xTe$ 中の格子欠陥によるフォノン散乱が考えられるが、パルス列励起を行うには緩和時間が短すぎると言える。すなわち、パルス列で励起してもすぐに減衰してしまう可能性が高いのである。

そこで、産総研近接場光応用工学研究センターで作製されたDVD記録膜材料($Ge_2Sb_2Te_5$)に焦点を移し引き続き構造相転移の操作に取り組んだ。試料にas-grown膜(アモルファス)及びanneal膜(結晶)であり、図7に示すように、結晶構造を良く反映した明確なコヒーレントフォノン信号をそれぞれの膜で観測した。ここで、3.66 THzのピークは $GeTe_4$ の正四面体構造による4.7 THzのピークはTe-Te鎖による A_1 モードである。

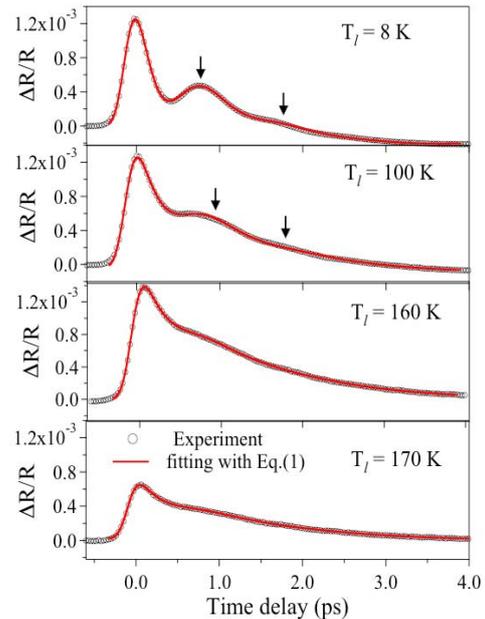


図5. 強誘電性半導体 $Pb_{1-x}Ge_xTe$ におけるコヒーレントソフトモード及び電子応答による反射率変化の温度依存性。赤線は式(1)によるフィットを示す。また矢印は振動成分を示す。

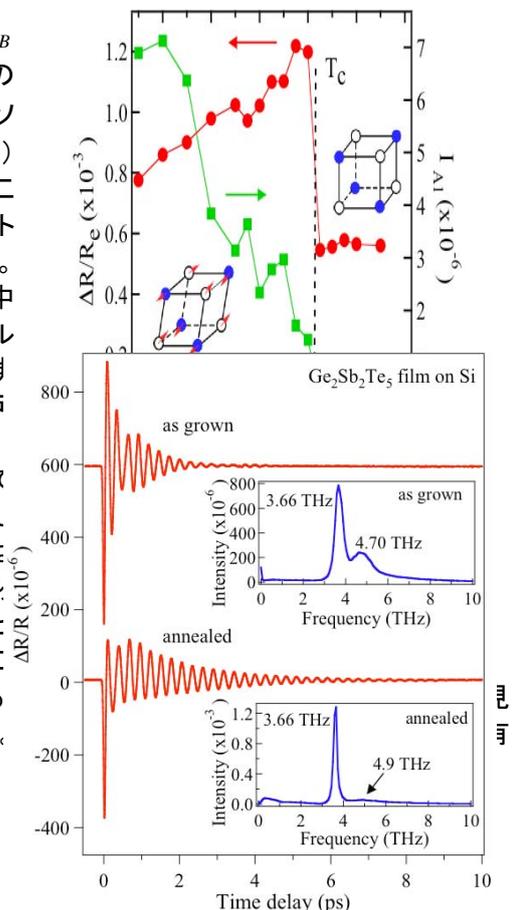


図7. $Ge_2Sb_2Te_5$ におけるコヒーレント A_1 モードの時間波形およびFTスペクトル(挿入図)。

望なGe₂Sb₂Te₅超格子試料におけるコヒーレント光学フォノンの実時間観測にも成功した。またこのGe₂Sb₂Te₅超格子におけるコヒーレントフォノンの温度依存性を測定したところ、フォノンの緩和時間が結晶状態では高温になるにつれて短くなり、従って非調和項による光学フォノン→音響フォノンのエネルギー緩和に支配されることが分かった。一方、アモルファス超格子では、フォノン緩和時間が温度によらず一定であり、従って非調和項の寄与がなくフォノン欠陥(空孔)散乱が支配的である事が分かった。この結果は、これまで分子動力学計算などでしか分からなかった、Ge₂Sb₂Te₅系相変化材料中に空孔が存在することを実験的に示したことになる。このGe₂Sb₂Te₅にもマッハ・ツェンダー型干渉計により作成したダブルパルス照射しコヒーレントフォノンの振る舞いを調べたが、フォノンの周期に同期したダブルパルスによりコヒーレントフォノンの振幅が制御できることを確かめた。アモルファス⇌結晶の相変化の光制御に関するより精密な測定は今後の課題としたい。これらの相転移物質以外の強誘電体LaAlO₃においてもコヒーレントフォノン信号が得られており、大振幅($\Delta R/R \sim 10^{-3}$)且つ、その寿命が100 ps以上と非常に長いことからフォノン・モジュレーターへの応用も期待できる。

5. 自己評価

さきがけの目標として、(1)半導体における電子移動度の制御、(2)強誘電体における構造相転移の制御、(3)フォノン・モジュレーターの開発の3つを掲げた。特に当初の目標としては第1項目の電子移動度の制御に重点を置くこととしていた。その意味では、(i)コヒーレントLOPCモードから電子移動度の同定を行ったこと(2本の論文と特許にて報告)、(ii)理論的にコヒーレントLOPCモードのパルス列励起によりL₊モードの緩和時間が変化しうることを予測したこと(1本の論文にて報告)、(iii)ダブルパルスを用いたコヒーレントLOPCモードの共鳴励起の実験を行い、少なくともL₊モードの増強は確認できたこと、等の結果から電子移動度の制御に向けて集中的に研究に取り組めたと感じている。しかし、当初、液晶変調素子として反射型のものLCOS(Liquid Crystal on Silicon)を利用したパルス波形整形方法の確立とコヒーレントフォノン制御への応用を目指していたが、本研究で用いた20 fsクラスのレーザーパルスでの波形整形はかなり難易度が高く、最後にマッハ・ツェンダー型干渉計により作成したダブルパルス列による実験を行うことになった。LCOSを用いた波形整形は応用範囲が広いと考えられるので、今後も引き続き研究していく。また、第2項目についても、既に実用化されている相変化材料Ge₂Sb₂Te₅に巡り会うことが出来、最後には、ダブルパルス励起によるコヒーレントフォノン制御に関するデータも取得できた。アモルファス⇌結晶の相変化の光制御に関する測定は今後の課題である。最後に第3項目のフォノン・モジュレーターについては、モジュレーターとしての候補(LaAlO₃)は発見したものの、研究を展開する時間が十分になかったことが悔やまれる。しかし、今後も引き続き研究を継続していく所存である。

6. 研究総括の見解

本研究では、コヒーレント物質波の振動振幅、周波数、位相を巧みに光制御し、この物質波と相互作用する電子や光子を操作する事を目的とした。主たる成果は次の3点である。

- ① コヒーレントLOPCモードから電子移動度の同定を行った。
- ② 理論的にコヒーレントLOPCモードのパルス列励起により、L₊モードの緩和時間が変化しうることを予測した。
- ③ ダブルパルスを用いたコヒーレントLOPCモードの共鳴励起にてL₊モードの増強を確認。

コヒーレントLOPCモードの寿命から移動度を見積もるという手法確立まで至ったことは意義あることである。

研究成果は、8編の原著論文、9件の招待講演に纏められている。この研究結果に基づく特許1件を出願している。

更に、強誘電体および光記録材料における構造相転移の制御にも範囲を広げ、次世代のDVD記録膜材料として有望なGe₂Sb₂Te₅超格子試料におけるコヒーレント光学フォノンの実時間観測にも成功した。また、フォノンの周期に同期したダブルパルスによりコヒーレントフォノンの振幅を制御する、などの成果を上げている。

これらの結果は、大振幅($\Delta R/R \sim 10^{-3}$)且つ、その寿命が100 ps以上と非常に長いことからフォノン・モジュレーターへの応用が期待できる。今後さらに、アト秒精度のコヒーレント物質波制御への展開を期待したい。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表 論文(国際)

- ・ M. Hase, “Carrier mobility in a polar semiconductor measured by an optical pump-probe technique”, Applied Physics Letters, Vol. 101, pp. 235501 (2008).
- ・ J. D. Lee and M. Hase, “Coherent optical control of the ultrafast dephasing of phonon-plasmon coupling in a polar semiconductor using pulse train of below-band-gap excitation”, Physical Review Letters Vol. **101**, pp. 235501 (2008).
- ・ R. Lu, M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima, and S. Sugai, “Ultrafast Critical Dynamics of a Ferroelectric Phase Transition in $\text{Pb}_{1-x}\text{Ge}_x\text{Te}$ ”, Physical Review B Vol. **75**, pp. 012107 (2007).
- ・ J. D. Lee, J. Inoue, and M. Hase, “Ultrafast Fano Resonance between Optical Phonons and Electron-Hole Pairs at the Onset of Quasiparticle Generation in a Semiconductor”, Physical Review Letters Vol. **97**, pp.157405 (2006).
- ・ M. Hase, J. Demsar, M. Kitajima, “Photoinduced Fano-resonance of coherent phonons in zinc”, Physical Review B Vol. **74**, pp.212301 (2006).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 1件

・特開 2008-2960

発明者: 長谷宗明、北島正弘

発明の名称: 固体のキャリア移動度測定方法

出願人: 独立行政法人 物質・材料研究機構

出願日: 平成 18 年 6 月 22 日

(3) 受賞

- ・ 2008 年 3 月 日本物理学会若手奨励賞(領域5)
「コヒーレント・フォノン分光による半金属・半導体の電子・格子ダイナミクスの研究」、(社)日本物理学会

(4) 著書

- ・ 長谷宗明、“コヒーレント物質波制御による電子・光子の操作”、レーザー研究, Vol. 37, No.1, pp.23-27 (2009).

(5) 学会発表

- ・ 甲斐健志、長谷宗明、“p-InAsにおけるプラズモン-フォノン結合モードのフェムト秒実時間観測”、日本物理学会 2008年秋季大会、2008年09月
- ・ 宮本恵信、長谷宗明、富永淳二、“ $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ 超格子における閉じ込めコヒーレント光学フォノンの実時間観測”、日本物理学会 2008年秋季大会、2008年9月。

- Yoshinobu Miyamoto, Muneaki Hase, and Junji Tominaga, "Ultrafast spectroscopy of coherent optical phonons in $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ superlattices", The 6th Conference on Ultrafast Surface Dynamics (USD6), 2008年7月.
- Muneaki Hase, "Ultrafast Dynamics of Plasmon-phonon Coupling: Estimation of Electron Mobility in GaAs", 15th International Conference on Nonequilibrium Carrier Dynamics in Semiconductors, 2007年7月.
- Muneaki Hase, Masahiro Kitajima, and Jure Demsar, "Femtosecond Dynamics of Fano-resonance in Zn", 15th International Conference on Ultrafast Phenomena, 2006年7月.

(6)招待講演

- 長谷宗明、“フェムト秒パルス波形整形とコヒーレントフォノン制御”、シンポジウム「フェムト秒レーザーパルス波形整形技術の基礎と新しい応用展開」、2009年3月.
- 長谷宗明、“コヒーレントフォノン分光による超光速格子ダイナミクスと物性制御への応用”、第7回理研・分子研合同シンポジウム エクストリームフォトニクス研究、2008年5月.
- 長谷宗明、“コヒーレントフォノン分光による半金属・半導体の電子・格子ダイナミクスの研究”、日本物理学会 第63回年次大会、2008年3月.
- 長谷 宗明、“固体中におけるコヒーレント THz フォノンの発生と制御”、第4回超高速光エレクトロニクス研究会、2006年3月.
- M. Hase, "Transient Fano-interferences of coherent optical phonons", Gordon Conference on Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems, Santa Ynez Valley Marriott Buellton, CA, USA, February 5-10, (2006).

(B)その他の主な成果

なし

研究課題別評価書

1. 研究課題名

光電子ホログラフィーによるレーザー場反応追跡

2. 氏名

菱川明栄

3. 研究のねらい

反応において刻一刻と変化する分子の挙動を捉え、その過程を理解することは化学における重要なテーマの一つである。光反応過程における超高速分子ダイナミクスの追跡は、ポンプ・プローブ法を用いた超高速レーザー分光が大きな成果を収めた。しかし、この手法によって観測されるものは、ポンプ・プローブ遅延時間に対する遷移強度の変化であり、分子内の核配置の情報を得るためにはプローブ光によって核波束が射影される終状態について先験的な知識が必要とされる。そこで本研究では、構造の変化として分子ダイナミクスを直接観測するために、分子内の特定のサイトから放出された電子波が、分子内で散乱された後、元の電子波と干渉することによって形成される光電子ホログラフィーを利用した新規手法を提案し、その実現に取り組むことを目的とした。

4. 研究成果

レーザー場における超高速反応過程を光電子ホログラムを用いて追跡するための要素技術として、(i)サブ 10 フェムト秒領域の高強度極短パルスレーザー光源、(ii)レーザー高次高調波を用いた深紫外・軟X線光源系、(iii)電子-イオンコインシデンス運動量画像計測系の開発を行い、その性能評価と応用研究を行った。

I. 高強度極短レーザーパルス発生と応用

希ガス非線形媒質のイオン化を抑制し、軟X線領域のレーザー高次高調波の高効率な発生を目指して、サブ 10 フェムト秒領域の極短パルス光源を構築した。チタンサファイアレーザー増幅器システムからの出力(パルス幅 35 fs)を、アルゴンガスを封入した中空ファイバーと分散補償ミラーからなるパルス圧縮器に導入し、9 fs レーザーパルス(0.4 mJ/pulse)の発生を行った。また、レーザー自己収束によるフィラメンテーションを利用することによってより高強度なパルス(1.5 mJ, 12 fs)を得ることができた。

こうした極短レーザーパルスを集光して得られた強レーザー場との相互作用によって生成した分子の多価イオンは、電荷間の強いクーロン反発によって速やかな解離=「クーロン爆発」を起こす。生成したフラグメントイオンの運動量が、爆発直前の分子構造を反映することを利用して、重水素化アセチレン2価イオンにおける異性化反応の追跡を行った。マイケルソン干渉計を用いて得た一対の高強度極短レーザーパルス(9 fs, 0.13 PW/cm²)をそれぞれポンプ光およびプローブ光として用いた。ポンプ光との相互作用によって生成したC₂D₂³⁺における水素移動ダイナミクスは、時間遅延 Δt をおいて導入したプローブ光によるC₂D₂³⁺へのイオン化、およびそれに伴うクーロン爆発過程:C₂D₂³⁺ → D⁺ + C⁺ + CD⁺をモニターすることによって調べた。計測には後述する

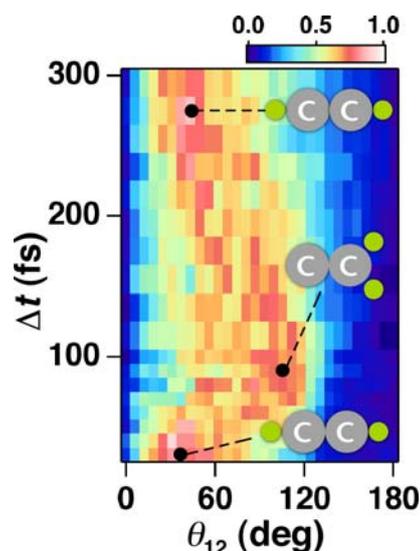


図1:水素移動反応の実時間可視化。重水素原子が分子内を回遊の様子がみとれる。

電子-イオンコインシデンス運動量画像計測系のイオン計測部を用いた。特に、 D^+ および C^+ の運動量ベクトルのなす角 θ_{12} が分子内における重水素原子の位置を鋭敏に反映することに着目し、その時間発展から水素移動過程の様子を探った(図1)。その結果、水素原子が片方の炭素サイトから他方へ極めて高速にシフトした後(～90 fs)、元の炭素サイトへ再移動することを見だし、これまで困難であった水素移動反応を可視化することに初めて成功した。

II. レーザー高次高調波を用いた深紫外・軟X線光源の構築と実時間反応追跡

超高速分子ダイナミクス追跡に必要な超短パルス深紫外・軟X線の発生を行うために、(i)レーザー高次高調波発生部、(ii)単一次数高調波を選別し集光するための誘電多層膜ミラーおよびポンプ・プローブ時間遅延部を備えたビームライン、(iii)発生した高調波評価を行う軟X線イメージング分光器からなる超短パルス深紫外・軟X線光源システムの構築(図2)を行った。希ガス非線形媒質圧、セル長、レーザー集光強度等を制御変数として最適化を行った結果、例えば基本波長790nmの第59次高調波(13.4nm = 92.5eV)として、光子フラックス 約 1×10^9 photon/sの高強度パルス軟X線を得ることが出来た。この光源の評価のために、磁気ボトル型電子分光器を用いた孤立原子・分子のイオン化過程の観測を行った。波長13.4nm(第59次)パルス軟X線を用いて得られたXeの光電子スペクトル(図3)には、内殻4d軌道からのイオン化による光電子およびこれに伴うオージェ電子が明瞭に観測された。隣接する他の高調波次数(第57および61次)からの寄与は無視できるほど小さく、単一次数の高調波が選別できていることが示された。基本波レーザー光を高調波と同時照射することで誘起される光電子スペクトルのサイドバンドを利用した相関計測を行い、得られた軟X線が光電子スペクトル幅から予想された10fs程度の極めて短いパルス幅を持つことがわかった。また、フィラメンテーションによって発生させた12fsレーザーパルスを用い、アト秒領域(～900as)に達する極めて広いスペクトル幅(2.2eV)を持つシングルパルス軟X線(13nm)の発生を行った。

Arを非線形媒質として発生させた第27次高調波(～30nm)をプローブとし、400nmフェムト秒レーザーパルスで励起した Br_2 $C^1 \Pi_u$ 状態における解離ダイナミクスの実時間追跡を行った。その結果解離生成物 $Br(^2P_{3/2})$ の収率が約100fsの時間スケールで立ち上がることが見いだされ、従来の手法に比べて高い時間分解能(～10fs)で反応追跡が可能であることが示された。

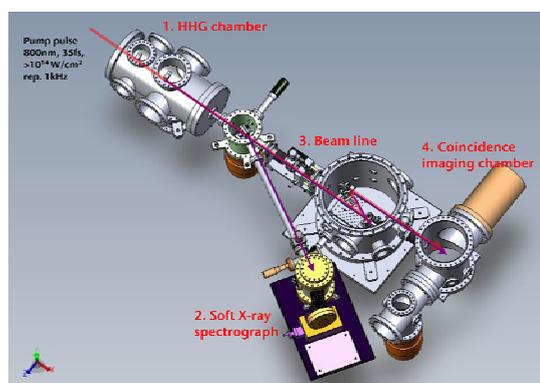


図2: レーザー高次高調波を用いた深紫外・軟X線光源システムの概要。

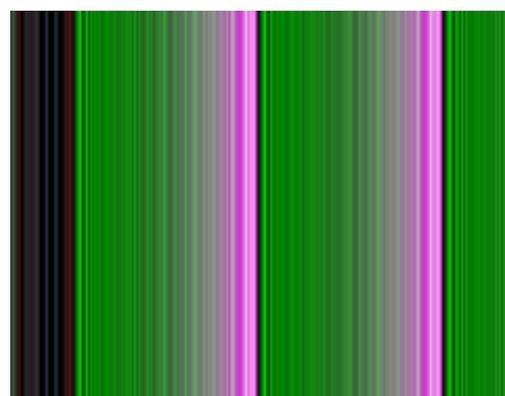


図3: 波長13.4nm(第59次)パルス軟X線を用いて得られたXeの光電子スペクトル。

III. 電子-イオンコインシデンス運動量画像法による分子座標系光電子散乱分布の観測

気相分子における光電子ホログラムの観測には、分子座標系における光電子散乱分布の計測が必要である。この目的のために、深紫外・軟X線パルスの照射によって単一分子から生成した光電子とイオンを同時に検出した上で、それぞれの持つ運動量を計測するコインシデンス運動量画像装置の開発を行った。この装置では、相互作用領域で生成した電子およびイオンを4枚の静電極板によってお互いに反対方向に引き出した後、位置敏感型粒子検出器(PSD)を

用いて検出した。イオンおよび電子のPSDにおける位置(x,y)および飛行時間(t)をもとに、イオンの運動量を3次元ベクトルとして、電子の運動量を2次元ベクトルとしてイオン化事象ごとに決定する。この装置を用いて超短パルス強レーザー場におけるCS₂の解離性イオン化過程を、生成イオン種を区別して光電子スペクトルの変化を観測した。解離を伴わないイオン化過程においては越閾イオン化過程を反映したピークが複数観測された。一方、解離性イオン化過程においては幅の広い分布が観測され、強レーザー場におけるCS₂分子のイオン化ダイナミクスの違いが光電子スペクトルに反映されることを示すことができた。また、H₂分子については、分子座標系における光電子散乱分布の測定を行い、分子軸に対するレーザー偏光方向のなす角に応じて角度分布に見られる節の数が増えることを初めて見いだすことに成功し、強レーザー場における分子のイオン化ダイナミクスが光電子散乱分布に反映されることを示した。

5. 自己評価

本研究で目指したゴールは、超高速で進行する孤立分子の反応ダイナミクスを追跡するために、従来の超高速分光法の枠を超えた新しい手法を開発し、その理解にもとづいて高精度反応制御への指針を与えることにあった。このために光電子ホログラムを用いた超高速実時間反応追跡手法を提案し、その実現を目指した。3年間の研究期間の間に、3つの要素技術、高強度極短パルスレーザー光源、レーザー高次高調波を用いた超短パルス深紫外・軟 X 線光源、電子-イオンコインシデンス計測系を構築し、分子座標系における光電子散乱分布の観測、および時間分解光電子分光を用いた光解離ダイナミクスの観測を行った。特に後者において、吸収断面積の極めて小さい深紫外光パルスをプローブとして、これまでに無い高い時間分解能での反応追跡を実現したことは大きな成果だといえる。また、研究開始よりゼロから立ち上げた超短パルス高次高調波光源は、グループメンバー全員の知力と体力の限りを尽くした数々の試行錯誤を経て、高時間分解能を有する世界的に見てもユニークな光源になったと自負している。また、クーロン爆発イメージングを用いた異性化反応の追跡によって水素移動過程を構造変化として可視化することが出来た。これは本研究の目的から派生したテーマであったが、当初の予想を超えた非常に大きな成果となった。一方で、本さがけ研究領域から多くのサポートを受けて研究を進めてきたにもかかわらず、最終目的である光電子ホログラムの時間分解計測は現時点で未だ実現できていないことは明らかな事実である。各要素技術の確立をステップを踏んで進めることに重心を置きすぎたこと、実験上の困難や装置のトラブルに際して適切な舵取りが十分でなかったことが、研究進捗に遅延をもたらした原因と反省している。しかし、立ちはだかったいくつかの問題を解決することによってすべての要素が整い、現在最終ゴールに向けてサポートをかけているところである。近い将来に、反応過程において姿を変える分子を高時間分解能および高空間精度で捉えるという夢を実現できると信じている。

6. 研究総括の見解

研究者独自の「光電子ホログラムを用いた超高速実時間反応追跡手法」を提案し、分子内の核配置の情報を得ることを目指した。主たる成果は次の3点である。

- ①高強度極短レーザーパルス発生を実現し、この装置を応用し、これまで困難であった水素移動反応を可視化することに初めて成功した。
- ②レーザー高次高調波を用いた深紫外・軟 X 線光源の構築と実時間反応追跡にて、高い時間分解能(~10fs)で反応追跡が可能であることを示した。
- ③本手法の一部である「電子-イオンコインシデンス運動量画像法」による分子座標系光電子散乱分布の観測により、強レーザー場における分子のイオン化ダイナミクスが光電子散乱分布に反映されることを示した。

クーロン爆発イメージングを用いた異性化反応の追跡によって、水素移動過程を構造変化として可視化することが出来たことは大きな成果だといえる。

研究成果は、6編の原著論文、15件の招待講演に纏められているが、論文掲載に先立つプレス発表も1件行っている。

今後、最終目的である「光電子ホログラムの時間分解計測」が実現できることを望む。更に、近い将来に、反応過程において姿を変える分子を高時間分解能および高空間精度で捉えられることを期待する。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- A. Hishikawa, E. J. Takahashi, and A. Matsuda, “Electronic and nuclear responses of fixed-in-space H_2S to ultrashort intense laser fields”, *Phys. Rev. Lett.* 97 (2006) 243002 (4 pages).
- A. Hishikawa, A. Matsuda, M. Fushitani, and E. J. Takahashi, “Visualizing recurrently migrating hydrogen in acetylene dication by intense ultrashort laser pulses”, *Phys. Rev. Lett.* 99 (2007) 258302 (4 pages).
- A. Hishikawa, A. Matsuda, E. J. Takahashi, and M. Fushitani, “Acetylene-vinylidene isomerization in ultrashort intense laser fields studied by triple-ion coincidence momentum imaging”, *J. Chem. Phys.* 128 (2008) 084302 (5 pages).
- A. Matsuda, M. Fushitani and A. Hishikawa, “Electron-ion coincidence momentum imaging of molecular dissociative ionization in intense laser fields: Application to CS_2 ”, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, 169 (2009) 97-101.
- M. Fushitani, A. Matsuda, E. J. Takanashi, and A. Hishikawa, “Time-resolved reaction imaging by intense few-cycle laser pulses and laser high-order harmonics”, *J. Phys. Conf. Ser.*, submitted.

(2) 著書・解説

- 菱川明栄, “アト秒ダイナミクス”, *パリティ* 2008年1月号
- 菱川明栄, 松田晃孝, 伏谷瑞穂, 高橋栄治, “クーロン爆発イメージングによる分子内水素移動反応の実時間可視化”, *レーザー加工学会誌*, 15 (2008) 46

(3) 招待講演(国際学会)

- A. Hishikawa, “Molecules in Sub-10fs Intense Laser Fields”, *International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 5*, Lijiang, China, Nov 2006
- A. Hishikawa, “Real-time reaction imaging by ultrashort intense laser pulses and high-order harmonics”, *International Symposium on Spectroscopy, Reaction Dynamics and Manipulation of Atoms and Molecule*, Sendai, Japan, Feb 2007
- A. Hishikawa, “Visualizing Recurrently Migrating Hydrogen in Acetylene Dication by Ultrashort Intense Laser Pulses”, *XXV International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (XXV ICPEAC)*, Freiburg, Germany, Jul 2007
- A. Hishikawa, “Visualizing Molecular Dynamics by Ultrashort Intense Laser Pulses”, 29th

International Symposium on Free Radicals, Montana, USA, Aug 2007

- ・A. Hishikawa, "Visualizing Chemical Reactions by Few-cycle Intense Laser Pulses", 11th International Conference on Multiphoton Processes (ICOMP11), Heidelberg, Germany, Sep 2008

(4) プレスリリース

- ・菱川明栄, 松田晃孝, 伏谷瑞穂, 高橋栄治, "『分子の花火』を用いて超高速で回遊する水素の可視化に成功", 2007年12月21日 (愛知東海新聞, 日刊工業新聞, 日経産業新聞他に掲載)

(5) 表彰

- ・2007年8月 公益信託分子科学研究奨励森野基金
「クーロン爆発イメージングによる強レーザー場中分子過程」

(B) その他の主な成果

なし