

戦略的国際科学技術協力推進事業（日本－フィンランド 研究交流）

1. 研究課題名：「超高速パルスの空間・時間・周波数制御のための金属－誘電体ハイブリッド材料」
2. 研究期間：平成22年 4月～平成25年 3月
3. 支援額： 総額 14,300,000 円
4. 主な参加研究者名：

日本側（研究代表者を含め6名までを記載）

	氏名	所属	役職
研究代表者	小林 孝嘉	電気通信大学先端超高速レーザー研究センター	特任教授
研究者	Jun Miyazaki	同上	特任助教
研究者	Du Juan	同上	特任助教
研究者	He Jinping	同上	研究員
参加研究者 のべ 4 名			

相手側（研究代表者を含め6名までを記載）

	氏名	所属	役職
研究代表者	Martti Kauranenn	Tampere University of Technology, Department of Physics	Professor
研究者	Goëry Genty	同上	講師
研究者	Fuxiang Wang	同上	研究者
研究者	Jouni Mäkitalo	同上	研究者
研究者	Jyrki Mäkelä	同上	講師
研究者	Mikko Aromaa	同上	研究者
参加研究者 のべ 6 名			

5. 研究・交流の目的

日本で開かれた日本・フィンランド二国間会議において、出席者の中で旧知の **Kauranen** 教授が行った講演のテーマである半導体量子ドットと、本研究の日本側代表者である私の講演における三次非線型光学効果であるカスケード四光波混合を用いて開発した多色レーザーについてが、これら二つの研究が結びつく可能性があることに気づき、共同研究を開始することになった。

フィンランドで開発した新しい半導体量子ドットをカスケード四光波混合用の非線型材料とする。量子ドットの量子閉じ込め励起子共鳴増強効果による四光波混合の増強効果を利用して、より弱い励起レーザーでも多色レーザー光源発生に用いることが出来る可能性について研究を行った。

6. 研究・交流の成果

6-1 研究の成果

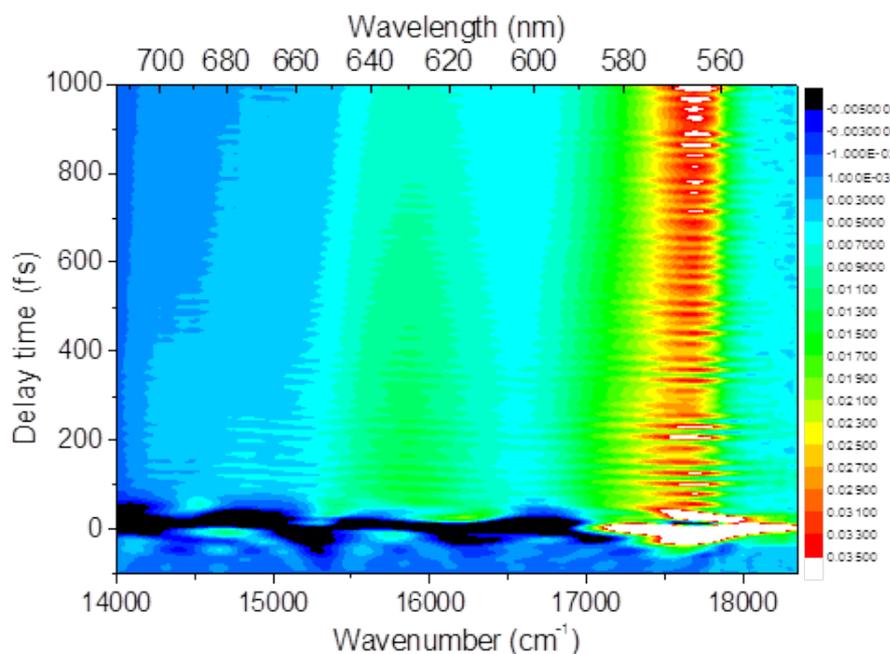
1. 電子メールで研究内容の打ち合わせを入念に行い、その結果 **CdSe** の量子ドットをドーブしたガラスを用いてファイバーを作って貰うこととした。しかしながら、フィンランドから送られてきた半導体 **CdSe** の量子ドットをドーブした試料は再吸収のため、励起子共鳴による非線型性の増強効果が、減衰してしまう事が判明した。そのために、量子ドットサ

イズのより小さくて、量子順位が短波長にある試料を送付して貰ったが、吸収損は減少するものの、共鳴効果が弱くなるために、やはり四光波信号検出は困難であった。

2. 半導体量子ドットと共に金属球状微粒子・コーン状微粒子試料も作成され日本に送られてきた。この金属球状微粒子・コーン状微粒子試料は、表面プラズモン共鳴による表面増強ラマン散乱と同様な現象を引き起こす可能性が有る。

3. これらの、表面プラズモン共鳴による超短パルスによるインパルス (impulsive 衝動的) 励起コヒーレント分子振動励起によって観測できる実時間分子振動の振幅に対して同様な増強が見られる可能性を期待できる。送られてきた金属球状微粒子・コーン状微粒子を配列形成した試料面上に、これ以前の我々の実験で振電結合由来による信号を示す事が知られている高分子や有機分子をスピコートしてプラズモン共鳴用の実験試料として作成した。

特に、三次の非線型材料として、光スイッチ、光メモリーとしての応用も考えられている共役高分子の中の代表的な poly-*p*-phenylenevinylene (PPV)スピコート膜について銀 (Ag) 微粒子をドープした試料としない試料についてフェムト秒ポンプ・プローブ実験を行った。その結果、我々の知る限り初めてその増強効果およびそのスペクトル依存性を測定することが出来た (図 1)。



(1) フィンランドの研究グループでは、エアロゾルを用いる新しい方法であり、その粒径制御方を含めて開発している。この試料を用いて、インパルス励起による高分子の振電相互作用由来のコヒーレント分子振動 (コヒーレントフォノン) の観測およびその測定波長依存性を初めて測定することに成功した。

(2) 三次の非線形効果によるカスケード四光波混合の量子閉じ込め励起子に誘起された励起子共鳴増強効果の測定は困難であったが、その原因を解明することは出来た。

さらに、予定しなかった実時間コヒーレント分子振動の増強効果、およびその測定プローブ波長依存性を明らかにすることが出来た。

このように、フィンランドグループの新しい作成法による高品質の試料、我々の持つ世界最高性能の最短パルス幅可視光レーザーと高感度広帯域マルチチャンネルロックイン増幅器を用いて、新現象を発見しその機構を解明することが出来た。これはまさに両者の持っている強力な部分を重ね合わせることによって得られた相手側との協力による研究への

相乗効果である。

今後は、さらに多くの系、半導体量子ドットのコヒーレントフォノンの実時間測定に発展させていく。また、実時間振動スペクトルの測定は、そのプローブ波長依存性を含めて、振動初期位相を測定できるので、複素感受率の増強効果を実部・虚部を分離して測定することが出来、増強ラマンスペクトルでは測定できなかった実部・虚部・位相について議論することが出来る。そのために、これまで強度すなわち感受率の絶対値の二乗のみで異論していた増強効果を初めて位相を含めて議論できるようになったので、非常に広く研究されてきたまた実用性も高い増強効果の解明に新しい道を開くことができる。

6-2 人的交流の成果

日本側の研究代表者がフィンランド研究グループを訪問し突っ込んだ議論をした。これにより、更なる研究の進展を進めることが出来た。その際に、セミナーを行い相手側の若手研究者に対して、レーザー物理・非線型光学の基礎的な講義も歩来ない人材育成に役立った。また、これまでプラズモン増強効果を初めて位相を含めて議論できるようになった。このような観点からさらに協力を進める。それと同時に、より良い試料を作ることをフィンランド側に要請して、三次の非線形効果によるカスケード四光波混合の量子閉じ込め励起子に誘起された励起子共鳴増強効果の研究とその応用研究を進めたい。

7. 主な論文発表・特許等（5件以内）

※相手側との共著論文についてはその旨備考欄に記載

論文 or 特許	・論文の場合： 著者名、タイトル、掲載誌名、巻、号、ページ、発行年 ・特許の場合： 知的財産権の種類、発明等の名称、出願国、出願日、 出願番号、出願人、発明者等	備考
論文	Juha Harra, Jouni M`akitalo, Roope Siikanen, Matti Virkki, Go`ery Genty, Takayoshi Kobayashi, Martti Kauranen, and Jyrki M. M`akel`a, Size-controlled aerosol synthesis of silver nanoparticles for plasmonic materials, the Journal of Nanoparticle Research, 14, 6, 870, 2012	共著
論文	Jinping He, Ph.D, Juan Du, Takayoshi Kobayashi, Low-threshold and compact multicolored femtosecond laser generated by using cascaded four-wave mixing in a diamond plate, Optics Communications, 290, 132-135, 2013	
論文	J. Liu, F. J. Li, Y. L. Jiang, C. Li, Y. X. Leng, T. Kobayashi, R. X. Li, and Z. Z. Xu, Transient-grating self-referenced spectral interferometry for infrared femtosecond pulse characterization, OPTICS LETTERS, 37,23, 4829-483, 2013	