

「量子効果等の物理現象」
平成9年度採択研究代表者

山下 幹雄

(北海道大学大学院工学研究科 教授)

「サイクル時間域光波制御と単一原子分子現象への応用」

1. 研究実施の概要

本研究の目標は、(A)光サイクル時間域の極限的な光波機能（光パルスのモノサイクル化、多波長同期整形ピーム発生）を開拓し、(B)その新光波機能と STM とを融合させた時空間域極限技術(整形極限光波 STM 融合技術)を開発すること、およびそれらを用いて時間的疎視化・空間的平均化・集団的統計化のために隠れている量子現象（時空間極限量子現象）を明らかにし、かつ制御することである。

2年目である本年度の成果は、(A)については、シングルモード石英ファイバー中の誘起位相変調を利用して、全周波数域で位相が確定した、近赤外から可視全域にわたる超広帯域コヒーレント光波の発生に初めて成功したこと、および(B)については、光 STM 装置の開発に着手し、光励起により STM 信号の増大が確認され、原子スケールの空間分解能下で光応答特性を解析できる新しい手法の創出が明らかとなったことである。

2. 研究実施内容

(1) 光パルスのモノサイクル化

光パルスのモノサイクル化実現のために開発すべき主要素技術は、①近赤外・可視・近紫外に渡る（位相乱れの少ない）超広帯域光波の発生と、②非線形チャープ補償である。

①については、我々は、同期した二つ（あるいは三つ）の異波長フェムト秒 (fs) 光パルスのシングルモード (SM) 石英ファイバー中の誘起位相変調を利用する手法を提案した。これに基づき、非線形伝播方程式の詳細な計算機解析を行い、入射パルスなどに対し最適条件（遅延時間、パワー、パルス幅、ファイバー長）を明らかにした。その結果、この方法で、 ~ 1.5 サイクル・ 2.5 fs (~ 650 THz 帯域幅) パルスまで得られることがわかった。このことを実証するため、 3 mm 長 SM 石英ファイバーを用いた超広帯域光波発生装置を試作し、多くの問題点（入射 fs ビームプロファイル高品質化、二異波長パルス分散・収差フリーファイバー入射、高精度遅延時間調整、短ファイバー高透過率化、ファイバーコア小径化、ファイバー

ダメージ低減化、ファイバー高非線形化)の解決をはかり基礎実験を進めた。その結果、120 fs・20 nJ・795 nm (第一)パルスと120 fs・20 nJ・640 nm (第二)パルスとを3 mmファイバーの中央で重なるように遅延時間調整し非線形伝播させた結果、480~900 nmの可視全域近くから近赤外域(290 THz帯域)のスペクトル光波発生(40 nJ出力)に初めて成功した。これは、フーリエ逆変換計算から明らかのように、以下②で述べるチャープ補償により4 fsの最短パルス発生が可能であることを示唆する。

②については、多様なチャープ(大きな位相シフト・超広帯域・複雑な位相シフト・位相シフトが未知・フィードバック制御・低損失)に対応可能な回折格子対(プリズム対)・球面鏡対・空間位相変調器・フィードバック系からなる非線形チャープ補償装置の検討設計・フィードバックプログラムの作成を行い、基礎実験に着手した。すなわち、単純な実験系から始めるために、10 fs・114 kW・795 nmパルスの2.5 mm SM石英ファイバー中の自己位相変調非線形伝播実験を行い、130 nmスペクトル拡がりチャープパルス発生を確認した。現在、この非線形チャープ補償実験を進めている。

(2) 多波長同期整形ビーム発生

異なった中心波長をもちかつそれぞれが独立に任意波形整形可能な同期 fs マルチビーム発生を可能にするには、①高出力超広帯域光波の発生、②超広帯域光波位相振幅計測、③超広帯域二次元空間位相振幅変調の手法・技術を開発する必要がある。

①については、上述の誘起位相変調法を、基本波(第一パルス)とその第二高調波(第二パルス)に対して希ガス充填 SM 中空ファイバーに応用することによって、ギカワットレベルの高出力超広帯域光波発生を試みる。この実験指針を得るために、群速度分散が極めて小さいアルゴン充填(3.3気圧)中空ファイバー(292 mm長、内径100 μm径)における損失を考慮した誘起位相変調の理論解析を行なった。ここでは、チタニウムサファイアレーザー増幅システムから得られる波長790 nm、パルス幅30 fs、パルスエネルギー1 mJの基本波と、それから得られる第二高調波の同時伝播を想定した。群速度分散を無視したときの、自己位相変調および誘起位相変調によって生じる非線形チャープの解析解を求めることにより、それぞれの光波間の最適遅延時間・パワーおよび実現可能な超広帯域スペクトル幅が初めて明らかになった。すなわち、上述のレーザー増幅システムから得られる光波を用いて、自己収束効果などによる光損傷が起きる限界パワー以下で、基本波と第二高調波(共に入射パワー1.29 GW、パルス幅30 fs)の間のスペクトル(333-1000 nm、600 THz帯域)をカバーする超広帯域光波発生が可能であることが見出された。ついで、この予測実証のため、30 fs基本波と第二高調波光学遅延系、アルゴンガ

ス充填 SM 中空ファイバーチャンバーを試作し、誘起位相変調による高出力超広帯域光波発生の実験に着手した。

②については、周波数分解光ゲート (FROG) 法の超広帯域化を試みる。この方法は、時間分解しながら、非線形信号スペクトルを計測することにより、光パルスの振幅と位相とを時間および周波数の関数として測定する方法である。現在用いられている第二高調波 FROG 法は、超広帯域測定には適さないため、三次非線形光学効果を利用する transient grating 法を基にした FROG 装置を試作した。基礎実験として、上記 30 fs チタンサファイアレーザー増幅システムから得られる基本波および第二高調波の同時測定を行い、これらの結果を、基本波は自己相関波形と、第二高調波は基本波との相互相関波形と比較することにより、良い一致を得ている。このときの時間分解能は 10 fs 程度であり、感度は 0.1-1 μJ であった。

③については、予備実験として一次元空間位相変調器を用いた波形整形実験を行い、チタニウムサファイアレーザーの ~ 100 fs のパルスから、4 THz の繰り返し周波数をもつパルス列の発生を確認した。さらに、単一波長光波の波形整形だけではなく多波長同時波形整形を行うため、それに必要な二次元空間位相変調器の試作を行っている。二次元変調器のピクセル数は 4×648 、ピクセルサイズは $2 \text{ mm} \times 100 \mu\text{m}$ である。

(3) 整形極限光波 S T M 融合技術の開拓

光励起が可能な S T M の開発を行い、基礎的なデータの解析を行った。続いて、光励起 S T M の適用例として、シリコンナノクラスターの観察を試みた。

シリコン自身は間接遷移で発光特性を持たない、しかし、クラスターを生成すると、広い波長範囲で発光することが見出され、注目を浴びてきた。このシリコンクラスターが発生する現象は、重要な結果として注目されており、幅広く研究が進められてきたにも関わらず、そのメカニズムは明らかになっていない。もっとも大きな問題点は、これらクラスターの解析が、多くのクラスターの平均化された情報を基にするしかなかったことによる。本研究では、ナノパーティクルはレーザーアブレーションで生成した。用いたレーザーは YAG, 526nm, パルス幅 5 - 10 nsec、パワーショットあたり 50 mJ、ショット数 50 - 5000 ショット、試料はターゲットに対し斜 45 度に保持 (正面、その他も検証) した。雰囲気はアルゴン、2 Torr (5 Torr)、雰囲気圧力でサイズ制御可能 (検証済み) である。

4 mW の He-Cd (442nm) で励起して測定を行った。光誘起トンネル電流は大きさ 10 pA 以下で、チョッピング周波数 300 Hz よりすこしばつ減衰、2 KHz で消失した。一方、スキャンに起因する信号は 150 Hz 以上で急激に減衰し、300 Hz で消失した。

トンネル電圧依存性をバイアス +50, +100, +200, -50, -100, -200 mV で観察した

ところ、トンネル電圧正の場合に大きな信号が見られ、バイアス負の場合と比較して2-3倍の値が得られた。光誘起された、ホールのナノパーティクル上での局在、減衰を観測しているものと考えられる。

以上の結果、光励起により、STM信号の増大が確認され、原子スケールの空間的な分解能を維持したまま、光応答特性を解析する可能性があることが明らかになった。また、バイアスを正負に変化させると信号強度が変化することから、光励起に起因した信号であることを確認した。

(4) 時空間極限量子現象の解明・制御

(BEDT-TTF)₂PF₆ は、297Kにおいて2 kF の電荷密度波を伴う金属-絶縁体転移を起こすことが知られている。低温STMをもちいることにより、同表面で、バルクとは異なるCDWの発現や、超構造の揺らぐ様子をとらえることに成功した。tight binding を用いたバンド計算により、上記構造が、表面層における band filling に依存したフェルミ面のネスティングにより説明が可能であることを示した。これまでも、Ta(S,Se)₂ や TTF-TCNQ 等の表面で Mott-Hubbard 転移やパイエルズ転移等が観察されてきたが、いずれも固体内部と同様の構造であることが確認されており、表面特有の構造を反映した2 kF 電荷密度波の発現を直接示した初めてのものである。また、表面層では、バルク内とは異なり、個々の分子が緩和して新たな構造を誘起することも見出した。フェムト秒レーザーの波形を制御して(BEDT-TTF)₂PF₆ において特定モードの励起を行い、コヒーレントフォノンを励起した結果、減衰が非常に早い振動の存在を確認した。異なるモードの存在や、揺らぎにより系が乱される様子を反映している可能性が高い。

現在、これら結果を基に、光STMを用いた解析を進めている。

3. 主な研究成果の発表 (論文発表)

○唐沢直樹、山下幹雄、「チャープ補償用多層膜」、オプトロニクス 7月号、195-201 (1998)。

○曾根宏靖、山下幹雄、「光パルスのモノサイクル化—手法の定量的提案」、光技術コンサルタント、36、317-327(1998)。

○M. Yamashita, H. Sone, R. Morita, H. Shigekawa " Generation of Monocycle-Like Optical Pulses Using Induced-Phase Modulation Between Two-Color Femtosecond Pulses with Carrier-Phase Locking " , IEEE J. Quantum Electron., QE-34, 2145-2149(1998)。

○N. Karasawa, R. Morita, L. Xu, H. Shigekawa, M. Yamashita " Theory of Ultra-Broadband Optical Pulse Generation by Induced-Phase Modulation in a Gas-Filled Hollow Waveguide " , J. Op. Soc. Am. B-16, 662-668(1999)。

- L. Xu, N. Karasawa, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita " Experimental Generation of an Ultra-Broad Spectrum Based on Induced-Phase Modulation in a Single-Mode Glass Fiber" , Opt. Commun. 162, 256-260(1999).
- M. Yamashita, S. Kikuma, Y. Yamaoka, H. Murakami, R. Morita, H. Shigekawa " Nonresonant Femtosecond Second Hyperpolarizabilities of Intramolecular Charge-Transfer Molecules with Great Excited- and Ground-State Dipole-Moment Differences" , Appl. Phys. Lett. 75, 28-30(1999).
- K. Miyake, K. Akutsu, T. Yamada, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa " Giant Superstructures Formed on Graphite Surface Treated with NaOH Solutions Studied by Scanning Tunneling Microscopy " , Ultramicroscopy. 73, 185-189 (1998).
- K. Hata, H. Shigekawa, R. Morita, M. Yamashita " Structure Transformation of the C Defects Observed at Low Temperature (80K)" , Jpn. J. Appl. Phys. 38, 3837 (1999).
- K. Miyake, H. Oigawa, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa " Stability and Nuclear Formation of Si(111)-7x7 Structure as Determined From Charge Redistribution in Surface Layers" , Surface Science 429, 260-273 (1999).
- K. Miyake, T. Kaikoh, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa " Intermediate Structures Appearing in the Phase Transition of Si(111)-7x7 to $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ Induced by HBO2 Molecular Irradiation" , Journal of Vacuum Science and Technology A 17, 1596-1601 (1999).
- T. Yamada, K. Miyake, M. Ishida, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa " Long Range Ordering in the Graphite Intercalation Compounds" , Synthetic Metals 103, 2653-2654 (1999).

他 13 件