

「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、多波長同期整形ビーム発生)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。

3年目である本年度の成果は、(A)については、独自の空間位相変調(SLM)法により4.9 fs・2.06サイクル・1 kHz 繰り返しパルス列発生に初めて成功したこと、および(B)については、BEDT-TTF系有機伝導体表面にフェムト秒パルスレーザーを照射した結果、異なる2種類の分子状態に対し、異なる光誘起トンネル電流が得られることを確認したことである。

### 2. 研究実施内容

#### I. 極限光波研究

##### 1. 超広帯域コヒーレント光波発生 ... 共通基盤課題

1 - 1 SM(シングルモード)短石英ファイバー中でのIPM(誘起位相変調)+SPM(自己位相変調)により、前年度の可視域に加えて、可視・近赤外域(670 ~ 1250 nm)超広帯域光波の発生に成功した(4.2 fs・1.5サイクルTLパルスに対応) さらにSVEAフリー非線形伝搬理論によりこの現象を解明した。

1 - 2 SM・Arキャピラリーファイバー中でのIPM + SPMにより、前年度発生に成功した300 ~ 1000 nm(= 700 THz: 1.5 fs・0.9サイクルパルスに対応)最広帯域コヒーレント光波現象のふるまいを、SVEAフリー非線形伝搬理論により明らかにした。

1 - 3 SM・Arキャピラリーファイバー中でのIPM特有のスペクトル振動現象の発見とその理論的解明およびIPM位相特性の実験的検討を行った。

##### 2. 光パルスのモノサイクル化

2 - 1 プリズム対 + 回折格子 - 1次元(SLM)による超広帯域非線形チャー

ブ補償を行い、4.9 fs・2.06サイクル・1 kHz繰り返しパルス発生に成功した  
SLM法としては世界最短パルスである。

2 - 2 プリズム対 + 回折格子 - 1次元SLMによる短石英ファイバー出力光の  
チャープ補償を行い、75 MHz繰り返し・7.1 fs・2.7サイクルTLパルス列発生  
に成功した。

2 - 3 プリズム対 + プリズム - 1次元SLMによる超広帯域非線形チャープ補  
償を行い、6.0 fs・2.5サイクル・1 kHz繰り返しパルス列発生に成功した。

### 3 . 多波長光波整形とその応用

3 - 1 2次元SLMを試作し、2つの異なった中心波長(670 nmと760 nm)の  
同時波形整形(1.3 THzと3.0 THz) THzパルス列の発生に成功した。

3 - 2 2異波長THzパルス列2重共鳴による高周波コヒーレントフォノンの  
高効率選択励起の理論的定量提案を行った。

### 4 . 極限光波計測 ... 共通基盤課題

4 - 1 SH-FROG計測装置を試作し、5.7 fs光パルスの位相変化 (t)・波形 I  
(t)計測に成功した。

## II . 光STM研究

### 1 . 整形極限光波STM融合技術の開拓

1 - 1 光励起が可能なSTMの開発を行い、基礎的なデータの解析を行った。  
光効果を熱膨張の影響と区別するために、外部変調を加え評価・解析する手  
法を導入した。

1 - 2 光励起STMの適用例として、シリコンナノクラスタの観察を試み  
た。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。バイアスを変化させると空間的に局在した信号強度が得られ、光励  
起に起因した内部構造に対応する信号であることを確認した。

### 2 . 時空間極限量子現象の解明・制御

2 - 1 STM測定とtight bindingを用いたバンド計算により、BEDT-TTF系有機  
伝導体表面で、結晶構造の緩和に加えて、分子自身の対称性が変化するとい  
う新しいメカニズムが存在することを見いだした。

2 - 2 同表面に対しfsレーザーを照射し光誘起トンネル電流の測定を行っ  
た。異なる二種類の状態の分子に対して異なる光誘起トンネル電流が得られ  
ることを確認し、fsレーザーとSTMを融合した固体表面の物性研究の可能性  
を示すことに成功した。

2 - 3 上記試料、及び、TTF-TCNQに対して、fsレーザーを照射し、相転移  
の応答を解析した。その結果、両試料で偏光依存性を解析することにより、

分子間の異方性が光誘起に影響していることを明らかにした。現在、STMと組み合わせた解析を進行中。THzパルス列による、特定モードの変調による制御・解析を進めている。

2 - 4 Si (111) 7 × 7 表面におけるHBO<sub>2</sub>分子の解離吸着過程については、原子種を区別して解析することに成功し、反応のサイト依存性、基板の歪みの影響などを確認した。今後、波形制御したTHzパルス列を照射して、特定モードを励起し、反応素過程を制御する試みを展開する。

### 3 . 主な研究成果の発表 (論文発表)

L. Xu, N. Karasawa, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Experimental generation of an ultra-broad spectrum based on induced-pulse modulation in a single-mode glass fiber" Optics Communications 162,256(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" Applied Physics Letters 75, 28(1999)

H. Murakami, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa "Aggregation effect on the third-order optical nonlinearity in 4-(N, N-diethylamino)-nitrostyrene-doped polymer films" Jpn. J. Appl. Phys, 38, 4056(1999)

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" Journal of the Optical Society of America B, 16, 662(1999)

Y. Yamaoka, R. Morita, M. Yamashita "Group-velocity dispersion effect on the femtosecond time-dependent, degenerative four-wave mixing signal near the absorption edge of 4-(N,N-diethylamino)-nitrostyrene (DEANST) solutions" Nonlinear Optics, 22, 381(1999)

H. Murakami, R. Morita, T. Watanabe, K. Asai, M. Yamashita, K. Ishigure, H. Shigekawa "Third-order nonlinear optical susceptibility measurement in 1-methyl-1'-octadecyl-2,2'-cyanine perchlorate langmuir-blodgett films by means of electroabsorption spectroscopy" Molecular Crystals and Liquid Crystals, 327, 31(1999)

R. Morita, H. Yanagisawa, M. Yamashita, K. Oka "Femtosecond optical nonlinearity through a two-photon process in carotenoid solutions" Nonlinear Optics, 22, 409(1999)

H. Murakami, R. Morita, M. Yamashita, "Concentration dependence study of the third-order nonlinearity in 4-(N,N-diethylamino)-nitrostyrene (DEANST) doped polymer films by use of electroabsorption spectroscopy" Nonlinear Optics, 22 385(1999)

山下幹雄「フェムト秒域の光波技術」量子工学ハンドブック(荒川泰彦、大津元一

編)、朝倉書店843-871(2000)

N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita"Generation of intense ultrabroadband optical pulses by induced-phase modulation in an argon-filled single-mode hollow waveguide"Optics Letters, 25, 183(2000)

M. Ishida, T. Mori, H. Shigekawa"Surface-charge density wave on the quasi-one dimensional conductor  $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{PF}_6$ "Physical Review Letters 83, 596-599(1999)

M. Ishida, T. Mori, H. Shigekawa"Modulation of  $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{PF}_6$  crystal surface structure induced by charge redistribution in surface layers"Surface Science 433-435, 147(1999)

M. Ishida, T. Mori, H. Shigekawa"Anomalous structural transition of the  $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{PF}_6$  surface observed by scanning tunneling microscopy"Synthetic Metals 103(1-3), 2105(1999)

K. Hata, S. Ozawa, H. Shigekawa"Metastable and excited states of the C defects of Si(001)"Surface Science 441, 140-148(1999)

K. Hata, S. Yasuda, H. Shigekawa"Reinterpretation of the scanning tunneling microscopy images of Si(100)"Physical Review B 60, 8164-8170(1999)

K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa"Structure transformation of the C defects observed at low temperature (80K)"Jpn. J. Appl. Phys. 38, 3837-3840(1999)

K. Hata, T. Kimura, Y. Sainoo, K. Miyake, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa"Spontaneous fluctuation between symmetric and buckled dimer domains of Si(100) at 80K"Jpn. J. Appl. Phys. 38, 2904-2909(1999)

M. Matsumoto, N. Tatsumi, K. Fukutani, T. Okano, T. Yamada, K. Miyake, K. Hata, H. Shigekawa"Adsorption structures of NO/Pt(111) investigated by scanning tunneling microscopy"J. Vac. Sci. Technol. A 17, 1577-1580(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 HBO<sub>2</sub> molecular irradiation"J. Vac. Sci. Technol. A 17, 1596-1601(1999)

K. Miyake, T. Kaikoh, Y.J. Li, H. Oigawa, H. Shigekawa"Si(111) surface under phase transitions studied by the analysis of inner layer structures using bias-dependent scanning tunneling microscopy"Jpn. J. Appl. Phys., 38, 3841-3844(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"Surf. Sci. 429, 260-273(1999)

S. Yasuda, K. Miyake, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa"Effect of the dipole-

dipole interaction on the self-assembly of cyclodextrin inclusion complexes" Jpn. J. Appl. Phys. 38, 3888-3891(1999)

Y. Sainoo, T. Kimura, R. Morita, M. Yamashita, K. Hata, H. Shigekawa "Electronic structure of the Si(100) surface A defects analyzed by scanning tunneling spectroscopy at 80K " Jpn. J. Appl. Phys. 38, 3833-3836(1999)

T. Imayoshi, H. Oigawa, H. Shigekawa, H. Tokumoto "Initial stage of nitridation of GaAs(001): Atomic Scale View" Jpn. J. Appl. Phys. 38, 3875-3878(1999)

H. Shigekawa, M. Ishida, K. Miyake, R. Shioda, Y. Iijima, T. Imai, H. Takahashi, J. Sumaoka, M. Komiyama "Extended X-ray absorption fine structure study on the cerium (IV)-induced DNA hydrolysis: implication to the roles of 4f Orbitals in the catalysis " Appl. Phys. Lett. 74, 460-462(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)

Hata, S. Ozawa, S. Sainoo, K. Miyake, H. Shigekawa "STM and STS of type-C defect of Si(100) at low temperatures" Surface Science 447, 156-164(2000)

Yasuda, I. Suzuki, T. Nakamura, M. Matsumoto, M. Komiyama, H. Shigekawa "Scanning tunneling microscopy on the formation of lipoamide-cyclodextrin monolayer on au(111) " Appl. Phys. Lett. 76, 643-645(2000)

K. Hata, S. Ozawa, S. Sainoo, K. Miyake, H. Shigekawa "STM and STS of type-C defect of Si(100) at low temperatures" Surface Science 447, 156-164(2000)

S. Yasuda, I. Suzuki, T. Nakamura, M. Matsumoto, M. Komiyama, H. Shigekawa "Scanning tunneling microscopy on the formation of lipoamide-cyclodextrin monolayer on au(111) " Appl. Phys. Lett. 76, 643-645 (2000)