

「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、多波長同時整形ビーム発生)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。

本年度の成果は、(A) については、昨年度開発したサブ10fs用の独自の4f-1次元空間位相変調(SLM)法を発展させ、4.1fs・1.78モノサイクル台・1kHz繰り返しパルス列の世界最高(4.0fs)レベルに達する光パルス発生に成功したこと、および(B) については、フェムト秒パルスレーザーとSTMを融合し、シェーカー法を導入することによって、光誘起による0.01%程度のトンネル電流の変調が測定可能である装置を開発した。

### 2. 研究実施内容

#### ・ 極限光波研究

##### 1. 光パルスのモノサイクル化

1 - 1 昨年度開発した4f-1次元SLMチャープ補償法について、試作SLMのピクセル数を5倍に増やし、かつ周波数 $\nu$ と各ピクセル位置 $x$ との非線形性を考慮した位相分散制御特性の改善をはかった。その結果、シングルモード(SM) Ar充填キャピラリーファイバー自己位相変調(SPM)光に対し、高効率化・システムのシンプル化を可能とする前置補償フリー超広帯域非線形チャープ補償を行うことができ、世界最高レベルの4.1fs・1.78サイクル・1kHz繰り返し光パルス発生に成功した。

1 - 2 SM短石英ファイバー誘起位相変調(IPM)+SPMにより発生した、超広帯域光波(700 - 1240nm)の位相分散基本特性を、独自のスペクトル分解強度自己相関法により、実験理論の両面から初めて明らかにした。

1 - 3 上記1 - 2のIPM+SPM超広帯域光波に対し、4f-1次元SLM法を用いて初めてのチャープ補償基礎実験実証に成功した。また、このIPMのような、複

数フェムト秒光波電場合成超広帯域光の場合には、従来の群速度分散補償・高次位相分散補償に加えて、群遅延時間制御が必須であることを見いだした。

- 1 - 4 ラマン応答・コア断面積分散をも考慮した現実的な緩包絡波近似フリー5.0fs光パルス非線形伝搬解析を、SM短石英ファイバーについて行い、実験可能な510アト秒光パルス発生法を定量提案した。

## 2．極限光波計測

- 2 - 1 SHG-FROG計測装置およびSPIDER計測装置を試作し、共に5.0fs光パルスの位相変化  $\phi(t)$ ・波形  $I(t)$  計測に成功した。後者については、これまでの最短パルス測定であり、オクターブを越えたスペクトルパルスの  $\phi(t)$ 、 $I(t)$  測定が可能となった。
- 2 - 2 チャープ参照光として高出力基本波シード入力パルスを利用する高感度変形SPIDER法を提案し、これまでのSPIDER法の欠点を克服する基礎実験実証に成功した。

## 3．多波長同時整形光波発生

- 3 - 1 昨年度開発した4f-2次元SLM（648ピクセルx3チャンネル）位相・振幅波形整形装置を改良し、3つの異なった中心波長（619nmと692nmと765nm）の同時波形整形（3.3THzと2.5THzと1.0THz）光パルス列（615～800nmまで独立に中心波長可変、3.5THzまで独立にパルス列周波数可変）の発生に初めて成功した。

## ．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。シェーカー法を導入することにより光誘起による0.01%程度のトンネル電流の変調が測定可能である装置の開発に初めて成功した。

### 2．時空間極限量子現象の解明・制御

- 2 - 1 光誘起構造を解析する対象試料の一つである、新規キラル  $\pi$  共役系ポリマーの直接観察に成功し、高次構造等の存在を確認した。現在、光誘起測定の為に単一分子レベルでの固定化等の基礎実験を進めている。
- 2 - 2 シクロデキストリンとフェロセンを用い、化学力顕微鏡の手法によって、単一分子レベルでホストゲスト相互作用の力を測定することに成功した。ファンデアワールス力、溶媒効果の分離に初めて成功し、水の場合のエントロピーの寄与による、特別な力の存在も明らかになった。今後、光励起による分子間相互作用変調の解析を進める。
- 2 - 2 その他試料として、 $\lambda$ DNAを1ミクロン間隔の電極に橋渡しした構造を作製し、光電流の測定を行った。基板を化学修飾して分子を固定することによ

り洗浄が可能になった。これにより、カウンターイオン等を取り除くこと等が可能になり、光誘起により、20%の電流増加が得られることを確認した。今後、アゾベンゼン等を付加した試料とあわせ、SPMによる光応答の測定を進める。

### 3 . 主な研究成果の発表 ( 論文発表 )

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 )

山下幹雄、松本賢一郎、許林「空間位相変調のモノサイクル光パルス発生への応用」レーザー研究、Vol. 28. No. 8. 492-499( 2000 )

N. Karasawa, S. Nakamura, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita "Comparison between theory and experiment of nonlinear propagation for 4.5-cycle optical pulses in a fused-silica fiber" Nonlinear Optics. 24, 133-138( 2000 )

Y. Yamaoka, R. Morita, M. Yamashita "Numerical analysis of femtosecond time-resolved degenerate four-wave mixing signal including group-velocity dispersion effect" Jpn. J. Appl. Phys. 39, 1170-1171( 2000 )

L. Xu, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita "Programmable chirp-compensation for 6-fs pulse generation with a prism-pair formed pulse shaper" IEEE J. Quantum Electron. 36, 893-899( 2000 )

L. Xu, L. Li, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita "Application of a spatial light modulator for programmable optical pulse compression to the sub-6-fs regime" IEEE Photonics Technol. Lett. 12, 1540-1542( 2000 )

H. Murakami, R. Morita, T. Watanabe, K. Asai, I. Honma, H. Zhou, M. Yamashita, K. Ishigure, H. Shigekawa "Determination of third-order optical nonlinearity dispersion for 1-methyl-1'-octadecyl-2, 2'-cyanine perchlorate Langmuir-Blodgett films using electroabsorption spectroscopy" Jpn. J. Appl. Phys. 39, 5838-5841 ( 2000 )

Y. Yamaoka, R. Morita, M. Yamashita "Femtosecond time-resolved third-order nonlinear response of 4-( N, N-diethylamino ) $\beta$ -nitrostyrene solutions in the nonresonant region -experimental evidence of group-velocity dispersion effect" Opt. Rev. 7, 489-494( 2000 )

S. Nakamura, L. Li, N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita "Extremely flexible and accurate chirp-compensation for 75-MHz bandwidth-generation of a few-optical-cycle transform-limited pulses-" Ultrafast Phenomena XII, 56-58( 2000 )

L. Xu, N. Nakagawa, R. Morita, M. Yamashita "A prism-pair-formed pulse shaper compresses optical pulses to the 6-fs regime" Ultrafast Phenomena XII, 68-70

( 2000 )

N. Karasawa, S. Nakamura, N. Nakagawa, M. Shibata, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita "Comparison between theory and experiment of nonlinear propagation for a-few-cycle and ultrabroadband optical pulses in a fused-silica fiber" IEEE J. Quantum Electron. 37, 398-404( 2001 )

山下幹雄 「1000兆分の1秒の量子光学の世界へ」( 招待論文 ) 電子科学研究、8巻、5-9( 2000 )

H. Shigekawa, K. Miyake, J. Sumaoka, A. Harada, M. Komiyama "The molecular abacus -STM manipulation of cyclodextrin necklace" J. Am. Chem. Soc. 122( 22 ) 5411-5412( 2000 )

J. Y. Park, U. D. Ham, S.-J. Kahng, Y. Kuk, K. Miyake, K. Hata, H. Shigekawa, "Modification of Surface-State Dispersion Upon Xe Adsorption: A Scanning Tunneling Microscope Study" Physical Review B 62, R16341-R16344( 2000 )

K. Hata, T. Kimura, S. Ozawa, H. Shigekawa "How to fabricate a defect free Si ( 100 ) surface" J. Vac. Sci. Technol. A 18( 4 ) 1933-1936( 2000 )

T. Kaikoh, K. Miyake, Y. J. Li, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa "Site preferences of oxygen and boron atoms during dissociative reaction of HBO<sub>2</sub> molecules onto the Si( 111 )-7 × 7 surface" J. Vac. Sci. Technol. A 18( 4 ) 1469-1472 ( 2000 )

K. Hata, H. Shigekawa, T. Ueda, M. Akiyama, T. Okano "Hydrogen as the cause of step bunching formed on vicinal GaAs( 001 )" Jpn. J. Appl. Phys. 39( 7B ) 4404-4407( 2000 )

K. Hata, T. Kimura, O. Takeuchi, H. Shigekawa "Origin, cause, and electronic structure of the symmetric dimers of Si( 100 ) at 80K" Jpn. J. Appl. Phys. 39( 6B ) 3811-3814( 2000 )

M. Ishida, O. Takeuchi, T. Mori, H. Shigekawa "Comparison of the Symmetry Breaking in the Surface Molecular Structures of One- and Two-Dimensional Bis ( ethylenedithio )tetrathiafulvalene Compounds" Jpn. J. Appl. Phys. 39, 3823-3826 ( 2000 )

M. Matsumoto, K. Fukutani, T. Okano, K. Miyake, H. Shigekawa, H. Kato, H. Okuyama, M. Kawai "Study of the Adsorption Structure of NO on Pt( 111 ) by Scanning Tunneling Microscopy and High-Resolution Electron Energy-Loss Spectroscopy" Surface Science 454-456, 101-105( 2000 )

K. Hata, S. Ozawa, S. Sainoo, K. Miyake, H. Shigekawa "STM and STS of type-C defect of Si( 100 ) at low temperatures" Surf. Sci. 447( 1-3 ) 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(5) 643-645(2000)

K. Hata, T. Makimura, K. Morita, K. Murakami, H. Shigekawa "High resolution scanning tunneling microscope observation of Si nanoparticles fabricated by laser ablation and sparsely deposited on HOPG" Transaction of Material Research Society of Japan 25, 821-824(2000)

S. Yasuda, I. Suzuki, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa "Structure and molecular recognition ability of thiolated-cyclodextrin monolayer on Au(111) surface" Transaction of Material Research Society of Japan 25, 853-856(2000)

H. Shigekawa, K. Miyake, J. Sumaoka, A. Harada, M. Komiyama "The Molecular Abacus-STM Manipulation of Cyclodextrin Necklace" J. Am. Chem. Soc. 122, 5411-5412(2000)

K. Shinohara, S. Yasuda, G. Kato, M. Fujita, H. Shigekawa "Direct measurement of the chiral quaternary structure in a  $\pi$ -conjugated polymer at room temperature" J. Am. Chem. Soc., 123, 3619-3620(2001)

K. Hata, Y. Sainoo, H. Shigekawa "Atomically resolved local variation of the flip-flop motif of single buckled dimers of Si(011)" Phys. Rev. Lett., 86, 3084-3087 (2001)