

「光の創成・操作と展開」研究領域 領域活動・評価報告書
—平成22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、などがあげられる。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」領域に設けた選考委員15名と研究総括で行う。
- 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。更に、全ての年度に1件、理論物理関連テーマを採択すること、及び、海外研究機関で活躍中の新進気鋭の研究者のテーマにも目を配った。

4. 選考の経緯

一応募課題につき領域アドバイザー4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	58名	21名	8名

5. 研究実施期間

平成19年10月～平成23年3月

6. 領域の活動状況(領域活動が今年度終了であるので、研究領域全期間の活動を記載)

研究者の研究テーマ遂行支援と共に、下記視点に重点を置き取り組んだ。

A: 研究者の研究視点拡大

- i) 関連領域研究者との交流
- ii) 似通った分野の研究者研究施設の視察
- iii) 巨大研究プロジェクト視察
- iv) 研究の産業応用現場視察
- B: さきがけ研究の認知度向上
 - i) 国内外へのさきがけ事業内容紹介
 - ii) 国内外の先達との交流促進
 - iii) 「研究終了報告会」を「さきがけフォーラム」として実施、アピールを図る。

この方針のもと次の施策を行なった。

- ① 領域会議開催(2回/年)・・・A に対応
- ② 領域会議における光関連研究施設見学・・・A に対応
- ③ 他領域研究者との交流・・・A に対応
- ④ 領域パンフレット作成と配布・・・B に対応
- ⑤ 研究総括の研究実施場所訪問・・・B に対応
- ⑥ 研究者の海外研究機関での先端研究実施支援・・・B に対応
- ⑦ 研究者主催の国際会議支援・・・B に対応
- ⑧ 「研究終了報告会」に外国研究者を招き、大規模学会内で開催・・・A, B に対応
- ⑨ さきがけ冊子「光科学の未来を拓く」発行・・・B に対応
- ⑩ 研究協力促進・・・A に対応

1) 領域会議: 10回開催

第1期から第3期までの研究テーマ採択を行なったが、各期の採択者ごとに研究ステージに合わせた全体テーマを決め、発表・討議を行なった。中間まとめ時には、今後の研究展開と規模拡大を睨んだ研究協力を推奨し、また、研究終了時期に向かっては、個人研究型のさきがけからグループ研究型のCREST等への発展を目指してグループ提案課題の模索を促した。領域内に多数の研究力が生まれ、研究期間終了者もその後の領域会議に毎回参加し活発な議論を繰り広げた。

以下に、研究期間3年半における研究者の研究ステージに合わせた会議運営を記載する。

(会議開催時期)

<10月研究開始>

初年度秋 研究内容紹介

第2年度春～第3年度春 進捗発表

第3年度秋 「中間まとめ、今後の進め方」討議 * 仲間集めの呼びかけ

第4年度春 進捗発表

第4年度秋 研究終了評価とさきがけ研究今後の展開討議

=> 研究終了報告会

2) 光関連研究施設見学会: 9回実施

“研究者の研究視点拡大”のために、領域会議に併設して、会議会場近隣の研究施設視察と見学先研究者との交流を実施。

[光関連の最先端研究施設視察]・・・研究総括、アドバイザーの所属機関を中心に選定。

平成18年 春 ① 東北大学: 枝松アドバイザー、横山アドバイザー
(電気通信研究所、東北大学未来科学技術共同研究センター)

② 理化学研究所(仙台): 伊藤研究総括

平成19年 春 九州大学(伊都キャンパス 工学部): 筒井アドバイザー

平成19年 秋 北陸先端科学技術大学院大学: 伊藤研究総括の紹介

平成20年 春 京都大学(桂キャンパス 工学研究科): 野田アドバイザー

平成21年 春 北海道大学(電子科学研究所、工学部): 笹木アドバイザー

平成 22 年 秋 産業総合研究所(つくば中央):桜井アドバイザー、富永アドバイザー
[光技術に関連する“巨大光科学プロジェクト”施設見学と見学先研究者との交流を行い、大きな視点で研究を考える。]

平成 20 年 秋 ①東京大学宇宙線研究所神岡宇宙素粒子研究施設

(スーパーカミオカンデ他)

②東北大学大学院理学研究科附属ニュートリノ科学研究センター

(カムランド)

平成 22 年 春 ①日本原子力研究開発機構「レーザー共同研究所」

②日本原子力研究開発機構「もんじゅ」

[研究の出口を常に意識して研究に取り組むために、産業化に向けての最先端研究施設見学と研究者交流を実施]

平成 21 年 秋 ①浜松ホトニクス中央研究所

②光産業創成大学院大学

3) 他領域研究者との交流

①CREST「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

CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」領域と、さきがけ「光の創成・操作と展開」研究領域は、文部科学省の同じ中期計画テーマの上に設定された兄弟研究領域である。

CREST 研究発表会への有志参加:2 回(計 12 名)

②さきがけ「物質と光作用」研究領域との領域交流

光関連研究領域双方の研究総括の申し入れで研究者の交流を行っている。

当領域から「物質と光作用」領域会議への有志参加 :5 回(計 10 名)

「物質と光作用」研究領域から当領域会議への有志参加 :5 回(計 11 名)

③研究者同士の希望によるとさきがけ領域会議への参加

「革新的次世代デバイス」研究領域:当領域研究者に要請があり参加(1 名)

「太陽光と光電変換機能」研究領域:研究者から要望があり当領域に参加(1 名)

4) 領域パンフレット作成と配布

各期の研究者採択毎に、研究内容の紹介を行う冊子、和文版、英文版 双方を発行した。さきがけ研究者の研究内容を 1 頁に紹介すると共に、研究領域概要・研究総括紹介、アドバイザー陣容など JST サポート体制を示したもので、研究総括訪問時に関係者にさきがけ制度をアピールした。

研究者が関係者に配布しさきがけ活動の理解を得るのに活用、各種イベントで自己紹介に活用し、領域事務所では領域の公開イベント時に活用するなど有効な活用を行なっている。

5) 研究総括(または技術参事/事務参事)の研究実施場所訪問

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、組織責任者へ先の領域パンフレットにて活動を紹介すると共に協力要請を行った。また、さきがけ研究期間内で異動した研究者にもその都度訪問し、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、研究総括訪問に技術参事が同行しているが、更に技術参事が別途研究者訪問を行い研究者の早期課題発見並びに相談、事務参事が研究設備の整備状況把握などの相談に出向いた。

当研究領域の特徴として、研究提案採択時に海外研究機関で研究を進めている研究者が 5 名を数えたが、研究テーマを更に発展するために、いずれもさきがけ研究期間内に国内研究機関への異動が叶っている。

また、研究を促進するため3名の研究者が海外研究機関に長期出張して研究を進めたが、これら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。訪問した海外研究所は下記であるが、平成20年、21年にはJST本部より関係者が同行し研究の実態把握と課題の対処ならびに、さきがけ事業紹介を行なった。

<採択時に海外研究機関に在籍していた研究者、研究機関名>

井戸哲也	研究者(第1期生):研究機関JILA
久保敦	研究者(第1期生):研究機関 University of Pittsburgh
木下俊哉	研究者(第2期生):研究機関 The Pennsylvania State University
板谷治郎	研究者(第3期生):研究機関 Ernest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory
前田はるか	研究者(第3期生):研究機関 University of Virginia

<研究総括の海外研究機関訪問先>

平成 18 年 ・University of Pittsburgh
・JILA、University of Colorado

平成 20 年 ・Ernest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory
・California Institute of Technology

平成 21 年 ・Massachusetts General Hospital

平成 22 年 ・Kansas State University

6) 研究者の海外研究機関での先端研究実施支援

研究の進展を受け、新たな取り組みで研究を促進するため海外研究機関に長期出張して研究を進めたい要望があり、実施を支援した。

青木貴朗研究者(2006/12-2008/11)

滞在研究機関: California Institute of Technology

研究テーマ : トロイド共振器キャビティQED系確立

櫛引俊宏研究者(2008-2010/3)

滞在研究機関: Harvard University Massachusetts General Hospital

研究テーマ : 幹細胞分化におよぼす光メカニズムの解明

森下亨研究者(2010/7-2011/3)

滞在研究機関: Kansas State University

研究テーマ : 量子ダイナミクス4次元時空イメージング研究

7) 研究者提案の国際会議支援

研究者の研究促進とJSTさきがけ活動の認知度向上を図るため、研究者提案の国際会議を執り行った。

① EXCON'08 (2008年励起子国際会議)とのジョイントシンポジウム開催(2008/6)

JST 主催のシンポジウム「超高速・テラヘルツ分光、光と物質の相互作用」国際シンポジウム”をジョイントで開催し、さきがけ研究内容をアピールすると共に招聘研究者との新たな研究連携の構築に成功した。

② “アト秒量子ダイナミクスの理論に関する滞在型国際ワークショップ”開催(2010/6)

森下亨研究者の研究場所(電気通信大学)に4週間に亘って5人の海外招待研究者が滞在し、セミナーと討論を行い、“滞在型ワークショップ”という、新しい仕組みによる国際協力関係の基盤構築に成功した。

8) 「研究終了報告会」に外国研究者を招き、大規模学会内で開催

・・・「さきがけフォーラム」開催(研究成果報告会)

研究終了報告会を該当研究者の領域活動集大成と位置づけ「さきがけフォーラム」として行なった。研究者が自分たちの今後の研究活動に役立つ企画を立案し、領域事務所が

その意を汲んで実施した。

＜企画のポイント＞

- ① さきがけ研究の国際的アピールと、さきがけ研究者の研究分野での認知度向上を図る。
- ② 国内外、世界の先達を招き交流促進を行なう。
- ③ 大規模学会のなかのシンポジウムとして開催し、広く研究者を招き入れる。
- ④ この機会を利用し、領域研究者全員のポスターセッション、オープンな交流会などを組み込む。

＜第1期生研究終了報告会＞

第1期生研究終了報告会を兼ねた「さきがけフォーラム」を下記内容で実施し、好評を得た。さきがけの公開成果報告会を、学協会講演会の場で国際的環境の中で行うのは初めての試みであったが、のべ320名もの方々に参加いただき、その熱気は講演者・会場を一体化し、ジャズで言う“Call and Response”を巻き起こした。

さきがけ「光の創成・操作と展開」研究領域 さきがけフォーラム

「光科学の未来を拓く」(Frontier and New Prospects in Optical Science)

(「2009年春季 第56回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム」特別企画)

開催日:2009年3月31日～4月1日 開催場所:筑波大学

(内容概要)

第1期生10名の研究終了にともなう成果報告会を、ノーベル物理学賞受賞者 John L. Hall 博士ら世界最高水準の学者4名に加わっていただき、2009年度春季応用物理学学会講演会のシンポジウムの1つとして開催した。

さきがけ研究成果を国際レベルで世に問うと共に、今後の技術的展望が熱く議論された。研究の内容が高く評価されると共に、講演の締めくくりとしてさきがけ研究者がパネラーを務めての総合討論が行われたが、Hall 博士、Corkum 博士から若手研究者への励ましと共に光科学の将来についての貴重な意見と展望を頂く事ができた。これらの意見、提言、そして、この経験は、若きさきがけ研究者にとって貴重な財産になるものと思われる。

＜第2期生研究終了報告会＞

第2期生の研究終了にともなう成果報告会を、第1期生同様“国際シンポジウム「さきがけフォーラム」”として開催した。今回は新しく下記コンセプトを盛り込んだ。

- i) 自分たちが、将来共付き合っただけの若手研究者を招き“光科学の今後”を議論する。
- ii) 研究実績のある方を基調講演に招き、自らの経験から若手研究者へのメッセージを頂く。

さきがけ「光の創成・操作と展開」研究領域 さきがけフォーラム

「光科学の未来を拓く」(Frontier and New Prospects in Optical Science)

(「2010年春季 第57回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム」特別企画)

開催日:2010年3月18日・19日 開催場所:東海大学

(内容概要)

文化功労者の霜田光一博士ならびに第2期生と親交が深い新進気鋭の海外研究者5名を招き、また、第1期生、第3期生もポスター講演を行い、領域全体で光科学の本質に基き、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据える討論を行った。

2010年度春季応用物理学関係連合講演会のシンポジウムの1つとして実施したが、成果報告という枠組みにとらわれず、光科学分野で活躍する若手研究者の研究発表を通して、光科学の最前線と新たな展開についての議論を深められる場をつくることを目指し

た。幅広い層から380名の参加者に恵まれ、多くのセッションで立ち見が出る活気溢れるフォーラムとなった。さきがけ研究成果を国際レベルで世に問うと共に、今後の技術的展望が熱く議論されたが、研究の内容が高く評価されると共に、講演の締めくくりとして研究者育成の為のさきがけ研究の仕組みが紹介され海外研究者から賛辞が聞かれた。

<第3期生研究終了報告会>

第3期生の研究終了にともなう成果報告会を、一昨年、昨年に引き続き、シンポジウム「光科学の未来を拓く」を開催するが、領域活動終了にむけ、さきがけ研究成果を踏まえ 10 年先の新規研究領域開拓を見据えたシンポジウムを企画した。

しかしながら「東北関東大震災」の影響で、「2011 年春季 第 58 回応用物理学関係連合講演会」の発表は成立するものの会場での講演発表が中止となった。

ここに企画内容を記し、その報告とする。

さきがけ「光の創成・操作と展開」研究領域 さきがけフォーラム
「光科学の未来を拓く」－10年先の新規研究領域開拓のために－
（「2011 年春季 第 58 回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム」特別企画）

開催日 : 2011 年 3 月 24 日・25 日 開催場所 : 神奈川工科大学

（企画概要）

本シンポジウムでは、関連各分野の現状と将来展望についてレビュー講演を計画すると共に、国内で活躍する新進気鋭の若手研究者7名を招待し、光科学の本質に基づき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討論を行う。さらに、最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム PD の加藤義章先生(光産業創成大学院大学学長)に、光ネットワーク拠点の取り組みをご紹介頂き、これらを通して人的ネットワーク構築の重要性についての提言と共に、「光科学」「光技術」に関する様々な分野で活躍する研究者間での分野横断的な議論と、10 年先の新規研究領域開拓を目指した討論を展開することとする。10年後の新しい光科学技術分野の開拓に向けて若手を中心とした異分野間の交流を図り、今後の人的ネットワークづくりに繋がる仕組みの構築を目指す。

9) さきがけ冊子「光科学の未来を拓く」発行・・・さきがけ研究成果の展開紹介冊子

研究終了後の展開を社会への貢献を意図した“夢”として綴り、今後の研究展開を判り易くアピールする冊子を発行。夢あふれる研究を推進している当領域さきがけ研究者に、今抱いている自らの研究の夢を語ってもらうという企画を一冊の本にし、発行した。現在の自分の研究テーマと、その延長線上に広がる科学技術の進展、社会へのインパクト、新しい生活の姿、等々、その夢をまとめたもの。ひとり一人の研究者にスポットをあて、その総和としての研究力をアピールすると共に、研究のつながりを内外に広める足がかりとする事を意図し、「さきがけフォーラム」で配布し、好評を得た。

10) 研究協力促進

さきがけの研究活動に於いては、領域活動を通じてメンバーと情報交換を行ったり、知己を得られるという利点があるが、更に「さきがけ内研究協力」に発展し成果に結び付けられることも期待できる。さきがけ領域会議はクローズドで、かなり詳細・中途段階の研究内容も披露されるのできっかけを掴みやすい。これは、さきがけ事業ならではの特徴である。

研究協力の内容は、新素材、実験装置等のハード面での研究者協力のみならず、理論研究者と“理論と実験融合”での協力が行なわれているのが当領域の特徴である。当領域で

は、毎年 1 名の理論研究者が採択されているが、領域会議で実験研究者の発表に触発され自らの理論を発展させ、互いの研究推進に寄与した。

7. 評価の手続き

まず、研究期間中間時点の領域会議(平成21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、領域会議(平成22年秋)「研究終了評価と今後の展開」討議、ならびに、研究者の課題別評価書(平成23年1月作成)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。

(評価の流れ)

平成21年11月	H21秋領域会議にて、特に第3期生に「中間まとめと今後の展開」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22年10月	H22秋領域会議にて、第3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23年 1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23年 3月	研究期間終了
平成23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23年 3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。

○ 板谷 治郎 研究者

本研究では、多電子相関やクーロンポテンシャルによる電子波束の変形などの影響を考慮した分子内の電子構造に関する実験手法を確立することを目指し、赤外域における高強度極短パルスレーザー光源の開発と、時間依存密度汎関数法による高次高調波発生シミュレーション手法確立に成功した。具体的な成果として、高次高調波のスペクトル強度と相対位相を精密に測定可能な軟 X 線ビームラインの開発、赤外域で1オクターブを越える超広帯域増幅に成功、基底状態に関して高い精度で分子軌道のイオン化ポテンシャルシミュレーション再現などを得た。これら成果により、分子軌道の形状、あるいは、異なる分子軌道からの高調波の寄与などの解明に道筋をつけたのは高く評価できる。

今後、より高い光子エネルギー領域(>100 eV)での高次高調波発生、電子相関の高調波スペクトルへの影響解析などを実現し、分子軌道のサブオングストロームスケールの電子構造解析まで発展することを期待する。

○ 清水 亮介 研究者

半古典近似を超えた単一光子レベルでの光と物質との相互作用を明らかにするために、光子-光子間の量子相関を周波数自由度においても制御した光(「周波数量子もつれ光子」)の光源開発と制御手法開発を目標に研究を行なった。周波数量子もつれを制御した光源を開発し、周波数量子もつれ光子と物質との相互作用で生ずる特異な非線形光学応答を実験的に観測することに成功した。偏光量子もつれ光子対生成には、2つの光子の交換に対して対称な2光子スペクトル形状が必要であることを実験、理論の両面から明らかにし、2光子干渉現象に統一的な理解を与えた。また、周波数無相関状態を直接生成する手法の提案と実証や、偏光量子もつれ光子生成の波長多重化に関する提案に結びつけたことは高く評価できる。

今後、通信波長帯における多量子ビット実験に、本研究で開発した周波数無相関光源を組み込むことで、従来可視帯域で行われてきた実験の精度の向上や、実験時間の大幅な短縮が見込まれる。本研究が多モード理論に立脚した、単一光子レベルでの光と物質との相互作用を取り扱う新たな実験研究分野の「さきがけ」となることを期待する。

○ 永井 正也 研究者

高強度の THz 電磁パルス光源開発と、高強度光源を用いた新しいスピン操作の方法論の確立を狙ったもので、オリジナルなアイデアで世界最高出力のテラヘルツ電磁波発生、ならびに、高強度テラヘルツ電磁パルスで分子ネットワーク操作を世界で始めて実現する成果を得た。テラヘルツ電磁波が発生する過程で EO 効果を用いた励起光のパルス圧縮を巧みに利用することで、「ファイバーレーザー」を用いたものでは世界最高出力(出力電場強度 8 kV/cm)・高帯域(2 THz) の THz 電磁波の発生に成功し、また、パルス幅1ps で、100kV/cm を超えるテラヘルツ電磁パルスの発生により結晶中の分子を大振幅で揺さぶり、熱平衡状態では実現できないような分子変位を実現することに世界で初めて成功した。

本技術の応用範囲は広く、超高速通信に必要な半導体デバイスの超高速スイッチ制御を実現するテラヘルツエレクトロニクスへの展開、高強度・高繰り返しの特徴を生かすことによる小型のテラヘルツ動画イメージングシステムへの展開、タンパク質などの巨大分子の運動制御による機能発現への展開などが挙げられる。今後本研究を発展させ、高強度 THz パルスを用いた超高速光技術における新しい物質操作の概念を切り開くことを期待する。

○ 早瀬 潤子 研究者

フォトンエコー法を用いた量子メモリの原理実証と、半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明に取り組み、歪補償半導体量子ドット集合体への高忠実度書き込み・読み出しに成功した。また、高い精度のフォトンエコー測定を基にラビ振動解析に必要な物理量を独立に求め励起子ラビ振動制御においても計算結果が実験結果を良く再現することを見出した。歪補償量子ドットが、従来にない高い精度の光物性測定を可能にする良質な量子ドットサンプルであり、半導体量子ドット実現に大きな可能性を与えたことは高く評価できる。

今後、原理実証実験から単一光子レベルの微弱光を用いた実験へと発展させ、本研究で提案した手法が、通信波長帯・広帯域・長時間帯域幅積・マルチモードパルスの適用を可能にする今までにない性能をもつ量子メモリ実現の可能性開拓へと発展することを期待する。

○ 前田 はるか 研究者

波束ダイナミクスの能動的制御において、デコヒーレンスフリーな非発散波束の生成と量子制御への応用に先駆的に取り組み、円形非発散波束を世界で初めて生成するという成果を得た。ここでは、発散しない波束が極端に長寿命であると同時に高度な制御も可能である特異な波束であることを明らかにしている。更に、非発散波束の運動が共鳴マイクロ波に位相同期されることを利用し、“原子の軸”の向きを自在に変化できることを見出し、非発散波

束を用いた原子の配向制御にも成功した。

日本で初めて非発散波束の研究に特化した実験装置の立ち上げに成功し、非発散波束研究の礎を築いたことは高く評価できる。今後の展開として、二つの電子に二つの非発散波束を同時に励起するなどの研究に取り組み、冷却粒子(=原子・分子・電子)同士が相互作用する反応のメカニズム解明と制御、あるいは冷却原子・分子の精密分光といった研究へ発展して行くことを期待する。

○ 宮丸 文章 研究者

これまでにない新たな光学特性を持つプラズモニック結晶、メタマテリアルなど人工的な金属微細構造作成技術を開発し、その特性解明と新しい物質の提案を目標に研究を行なった。

プラズモニック結晶異常透過現象の解明とセンシング技術の提案、電場と磁場の相互共鳴効果の観測などの成果を得ているが、中でも、金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象メカニズムの解明において、最後まで残されていた問題に対する解答を見出したのは大きな成果である。また、フラクタルに特異的な光学特性見出し、光伝導アンテナとしてマルチ周波数で共鳴放射するテラヘルツ放射素子を提案、作製した。この技術は、自己相似形によりマルチ周波数で共鳴が生じるというフラクタルの特性を利用して放射用の光伝導アンテナへの展開も実証しており、テラヘルツ放射素子のアンテナ設計の一つの指針となることが期待される。

今後、プラズモニック結晶での表面波特性制御、テラヘルツ領域で負屈折を示す3次元バルクメタマテリアルの作製、光伝導アンテナへのメタマテリアルユニットセル適用、など新光機能素子への応用を切り拓くことを期待する。

○ 三代木 伸二 研究者

超巨視的物体が「量子力学的振る舞い」をするのかどうか検証する事を究極の目標とし、レーザー干渉計における鏡と振り子の熱雑音の直接計測と揺動散逸理論の検証に取り組んだ。熱雑音の振る舞いを実験的に検証し、その特性が理論と一致する事を世界で初めて確認する成果を出し、論文は Classical and Quantum Gravity のハイライト論文に選出されるなど高い評価を受けた。更に、レーザー干渉計における鏡と振り子の低温化において、鏡や振り子の低温化により熱雑音の克服が可能であることの実証に成功し、Fabry-Perot 共振器の共振制御導入困難問題への解決法開発に結びつけたことは大きな成果である。

本研究成果の応用範囲は広く、今後、巨視的量子性の性質そのものの解明、宇宙の時空構造に関する新規な知識の提供、標準量子限界計測精度の精密計測手法の開拓、などに繋がることを期待する。

○ 森下 亨 研究者

原子・分子の新しい超高分解能実時間イメージングのための理論および計算手法の開発に取り組み、厳密計算に基づく時間依存シュレーディンガー方程式の直接解によってイメージングの基本原則となる再衝突過程における「分離公式」を見出した。また、2つの電子が同一の方向にイオン化される場合、後からイオン化した電子が先にイオン化した電子に追いついて衝突するという新現象を見出し、「再衝突電子分光法」ともいべき新しい分野を切り開くことができたのは大きな成果である。

本研究は実験研究に即した理論研究であり、研究推進のためには最先端の実験技術情報の獲得および他の研究者との議論が欠かせない。その為、さきがけメンバーとの協力の他に、最終年度の夏に「アト秒量子ダイナミクスの理論の関する滞在型国際ワークショップ」を開催している。また、高強度レーザー科学の実験および理論的研究で世界的水準であるカンザス州立大学に滞在し、今後の研究協力を見据えた長期的な視点に基づく研究協力を行っている。今後、こうした国内外の研究者交流によって得られたネットワークを生かして研

究を発展して行くことを期待する。

10. 評価者

研究総括 伊藤 弘昌 東北大学名誉教授
(独)科学技術振興機構 イノベーションプラザ館長

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 教授
 栖原 敏明 大阪大学大学院工学研究科 教授
 張 紀久夫 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
 九州大学名誉教授
 富永 淳二 産業技術総合研究所 ナノ電子デバイス研究センター
 主幹研究員
 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
 主幹研究員
 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

* 職位は 2011 年 2 月現在

(参考)

(1) 外部発表件数

	国内	国際	計
論文	4	64	68
口頭	94	57	151
その他	20	1	21
合計	118	122	240

(2) 特許出願件数

国内	国際	計
4	1	5

(3) 受賞等

- 永井 正也 研究者
 平成22年9月 第4回日本物理学会若手奨励賞
 表彰業績名; 領域5
 「Broadband and high power terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via $\chi(2)$ cascaded processes in LiNbO_3 ”, Optics Express 14, 11543 (2009).」他
 表彰主催団体; 日本物理学会

○ 早瀬 潤子 研究者

- (1) 平成21年4月 平成21年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞
表彰業績名;「通信波長帯における半導体量子ドット量子コヒーレンスの研究」
表彰主催団体;文部科学省
- (2) 平成22年9月 第4回日本物理学会若手奨励賞
表彰業績名;領域5
「"Ensemble effect on Rabi oscillations of excitons in quantum dots", Phys. Status
Solidi A 206, 952 (2009).」他
表彰主催団体;日本物理学会

○ 宮丸 文章 研究者

- (1)平成20年2月 画像科学奨励賞
表彰業績名;「金属の微細構造を用いたテラヘルツ領域の微量物質センシング感度の増大と病理診断イメージング技術への応用」
表彰主催団体;コニカミノルタ画像科学振興財団
- (2)平成20年10月 2nd THz Prize at EOSAM 2008
表彰業績名;「Highly sensitive terahertz imaging with plasmonic crystals」
表彰主催団体;European Optical Society
- (3)平成23年4月 平成23年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞
表彰業績名;「テラヘルツ帯プラズモニック結晶の研究」
表彰主催団体;文部科学省

(4)招待講演

国際 31件
国内 19件

別紙

「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)
板谷 治郎 (兼任)	高次高調波のコヒーレンスを利用した分子動画観測 (東京大学物性研究所<—Lawrence Berkeley National Laboratory)	東京大学物性研究所 准教授 (JST ERATO 腰原非平衡ダイナミクスプロジェクト研究員、グループリーダー)	46
清水 亮介 (兼任<—専任)	多光子波束による物質の非線形光学応答 (電気通信大学先端領域教育研究センター<—東北大学電気通信研究所)	電気通信大学先端領域教育研究センター 准教授 (JST CREST ナノテクデバイス研究員)	56
永井 正也 (兼任)	テラヘルツ電磁波による高速電子スピン操作 (大阪大学大学院基礎工学研究科<—京都大学大学院理学研究科)	大阪大学大学院基礎工学研究科 准教授 (京都大学大学院理学研究科 助教)	45
早瀬 潤子 (兼任<—専任)	量子ドットによる光・量子メモリの創出と高光非線形性の探求 (慶應義塾大学 理工学部 物理情報工学科<—電気通信大学先端領域教育研究センター<—(独)情報通信研究機構第一研究部門)	慶應義塾大学 理工学部 物理情報工学科 准教授 ((独)情報通信研究機構第一研究部門 新世代ネットワーク研究センター 専攻研究員)	65
前田 はるか (兼任)	デコヒーレンスフリーな非発散波束の生成と量子制御への応用 (青山学院大学理工学部 物理・数学科<—University of Virginia)	青山学院大学理工学部 物理・数学科 准教授 (University of Virginia Department of Physics Research Scientist)	81
宮丸 文章 (兼任)	フラクタル構造による光制御可能性の探索と光機能素子の創製 (信州大学理学部物理科学科)	信州大学理学部物理科学科 助教 (同上 助教)	64
三代木 伸二 (兼任)	重力波検出技術が拓く超巨視的量子性の物理 (東京大学宇宙線研究所)	東京大学宇宙線研究所 助教 (同上 助教)	56
森下 亨 (兼任)	強高度レーザーによる超高分解能4次元時空イメージング (電気通信大学大学院情報理工学研究科)	電気通信大学大学院情報理工学研究科 助教 (電気通信大学電気通信学部 助教)	64

研 究 報 告 書

「高次高調波のコヒーレンスを利用した分子動画観測」

研究期間：平成20年3月～平成23年3月

研究者：板谷 治郎

1. 研究のねらい

高強度超短パルスレーザーを用いて発生される高次高調波は、真空紫外から軟 X 線にわたる短波長域での超短パルス光である。高次高調波は時空間コヒーレンスという他の短波長光源にない性質をもっているが、その起源は、発生過程における強レーザー場中での光電子波束のコヒーレントな運動にある。この光電子波束は物質波としてオングストロームスケールの波長を持っているため、強レーザー場中での光と電子のコヒーレンスを利用することによって、原子分子などの微小な系に対して超高速イメージング(分子動画)を実現出来る可能性がある。本研究の目的は、高次高調波の軟 X 線スペクトルの精密測定によって、分子内の電子構造に関する知見を得る実験手法を確立するための知見を得ることである。

2. 研究成果

高次高調波の発生機構は、(i)強レーザー場による原子分子のトンネルイオン化、(ii)光電子のレーザー電場による加速、そして(iii)原子分子への衝突、という一連の過程を段階的に取り込んだ「スリーステップモデル」によって広く理解されている。「強レーザー場近似(Strong Field Approximation)」に基づいている最も単純なスリーステップモデルは、高調波スペクトルの大局的な構造についての説明を与えることに成功しており、強レーザー場中での原子分子のイオン化過程や高次高調波発生を考えるうえでの標準的な枠組みとなっている。また、近年のいくつかの実験における解釈において、この近似モデルを利用した議論が行われた結果、高次高調波のスペクトルは、発生源である原子分子の外殻電子の空間構造あるいはダイナミクスを反映していることが示されている。

しかしこのモデルでは、多電子相関やクーロンポテンシャルによる電子波束の変形などの影響が無視されているため、高調波スペクトルから電子構造を再構築する一般的な手法は確立したとは言い難い状況である。このような状況を踏まえ、以下のような装置開発と実験的研究を行った。

- 高次高調波発生用ビームラインの建設
- 時間依存密度汎関数法による高次高調波発生のシミュレーション
- 赤外域における高強度極短パルスレーザー光源の開発

【高次高調波発生用ビームラインの建設】

高次高調波を発生し、そのスペクトル強度と位相の精密計測を実現するために、大型真空チャンバー群からなる軟 X 線ビームラインを開発した。軟 X 線領域での位相計測を実現するためには、真空中に干渉計を配置する必要があり、光路長を 10nm 以下のオーダーで安定化する必要がある。その際に真空ポンプの振動が大きな問題となることを見出し、ポンプなどによって生じる振動が光路長に影響を与えないような構造をもつ真空装置を開発した。粗排気用スクロールポンプに対する振動対策としては、スクロールポンプを真空チャンバーの遠方に設置し、中間に大重量の振動ダンパーをおく構成とした。また、ターボ分子ポンプに対する振動対策として、真空チャンバーにベロースを介して接続する構造を考案した。さらに、真空チャンバー内の光学素子は、チャンバー外から支えられたブレッドボードに固定できる構造として、軟 X 線領域の干渉実験が可能な無振動真空プラットフォームを構築した。高次高調波の発生源としては、ピエゾ素子駆動によって繰り返し 1kHz 動作が可能なパルスバルブを開発し、良好な動作結果を得た。

高次高調波のスペクトル測定のためには、軟 X 線 CGD カメラを用いた軟 X 線分光器を開

発した。この分光器の特徴は、二次元検出器を用いることによって空間分解された軟 X 線スペクトルを測定できることである。これによって、二つの高調波ビームを同時に発生したときに得られる軟 X 線干渉を、空間軸上に現れるフリンジとして検出することが可能であり、高調波の相対位相測定が可能となる。図2に得られた高次高調波スペクトルの例を示す。検出器上での高調波のビームサイズは約 5mm(半値全幅)であり、CCD のピクセル数としては 500 ピクセルに相当する。そのため、干渉縞を計測するために十分な空間分解能があることが確認できた。

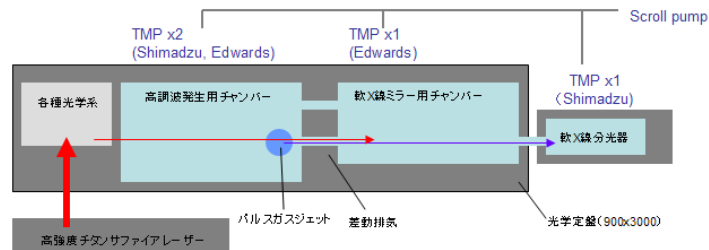


図1(左): 高次高調波発生用ビームライン(全長4m)の模式図。大型真空チャンバー二台が架台で支持され、光学素子を設置するために内部におかれた定盤は、真空チャンバー下の光学定盤によって支持されて、振動の影響を受けない構造となっている。

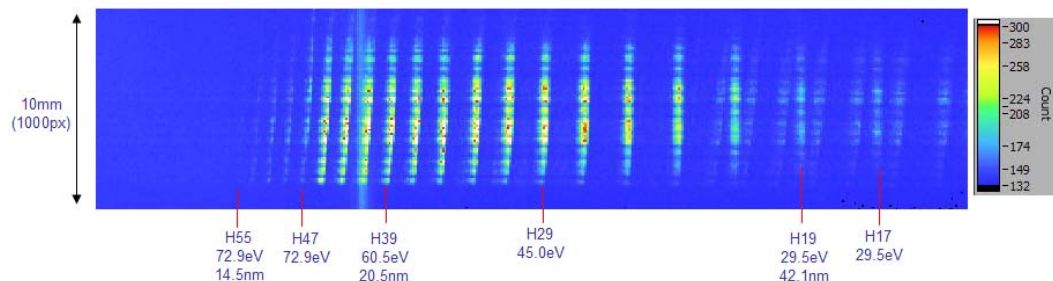


図2: 観測された高次高調波の軟 X 線スペクトル(Neon, 3atm)。横軸は光子エネルギーで、縦軸は空間に相当する。光子エネルギー73 eV までの高調波を確認できた。

【時間依存密度汎関数法による高次高調波発生シミュレーション】

高次高調波の軟X線スペクトルから、発生源である分子の電子構造についての知見を得るためには、高調波を定量的に理解するためのモデルを構築する必要がある。特に、分子軌道をつじつまのあった形で導入して、一電子近似やクーロンポテンシャルの無視といった実際の系には適用しがたい単純化をさけるためには、多電子相関をとりいれた時間発展シミュレーションを行うことが望ましい。このような観点から、多電子相関を比較的高い精度で再現できる密度汎関数法に基づいたシミュレーションコードを開発し、配向分子からの高次高調波発生過程についての計算を行った。本シミュレーションによって、基底状態に関しては高い精度で分子軌道のイオン化ポテンシャルを再現出来た(図3)。これらの分子軌道を初期状態としてシミュレーションを実施することにより、分子軌道の形状を考慮しながら self-consistentな時間発展を計算することが初めて可能となった。また、シミュレーションで得られた高調波スペクトルは、プラトーとカットオフと呼ばれる構造をよく再現していることと、 N_2 分子の配向方向に依存したスペクトル形状の変化が確認できた(図4)。

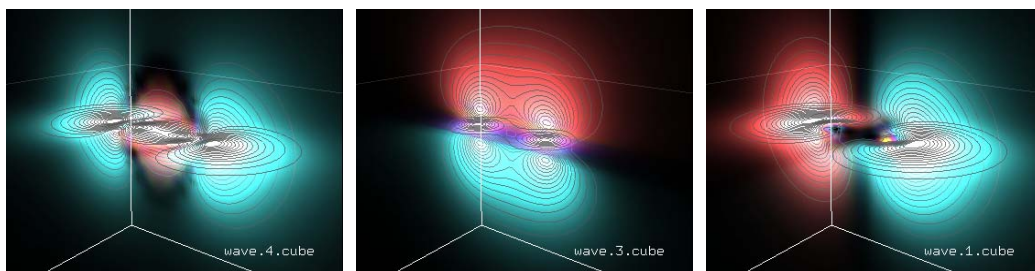


図3: シミュレーションで得られた N_2 分子の基底状態における軌道波動関数。(左)最外殻電

子軌道(HOMO, $I_p=10.70$ eV), (中)最外殻の一つ下の分子軌道(HOMO-1y, $I_p=12.28$ eV), (右)最外殻の二つ下の分子軌道(HOMO-2, $I_p=12.75$ eV).

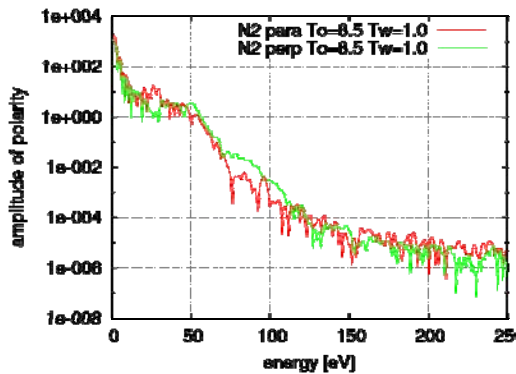


図4:シミュレーションで得られた N2 分子から発生する高次高調波の双極子スペクトル. 赤線は分子が電場に平行方向に配向した場合で, 緑線は垂直方向に配向した場合に相当する. 光子エネルギー60~100eV 付近のプラトー領域において, 顕著は配向依存性が見られる.

【赤外域における高強度極短パルスレーザー光源の開発】

中心波長 800nm のチタンサファイアレーザーによって配向分子からの高次高調波を発生する場合, 二つの問題がある. 一つは, 高調波のカットオフに相当する光子エネルギーが 100eV 以下であるため, 再衝突する電子のドブロイ波長が 0.1nm 以上となり, サブオングストロームスケールの電子構造に関する情報を得ることができない. また, パルス幅が通常30fs前後であるため, トンネルイオン化によって誘起される分子振動が, 高調波スペクトルに含まれる構造情報を平均化してしまう恐れがある. 800nm より長波長における極短パルス(パルス幅<10fs)で, 搬送波法絡線位相(CEP)の安定化した高強度超短パルスレーザーを実現出来れば, 高調波のカットオフ光子エネルギーはレーザー波長の二乗に比例して増大することから, 大きなブレークスルーにつながることを期待出来る.

以上の観点から, 赤外域における光パラメトリック増幅レーザー(OPCPA)の可能性を検討した結果, BIBO 結晶を非線形媒質とすることによって赤外域で1オクターブを越える超広帯域増幅が可能であることを見出した. 本手法の新規な点は, 通常の光パラメトリック増幅では広帯域化のために非平行配置をとるのに対して, ポンプ光とシグナル光・アイドラー光がほぼ平行な配置として, ポンプ光の波長を, シグナル光の群速度分散がゼロとなるよう条件にしたことである. この結果, 位相不整合は周波数の三次まで打ち消し合うため, 1オクターブを超える非常に広帯域なパラメトリック増幅が可能となる.

このような知見にもとづき, 本手法の原理実証の実験を行った. まず, チタンサファイア再生増幅器からの出力を希ガス充填されたセルに導入し, ファイラメンテーションによって広帯域の可視~近赤外光を発生した. この出力をチャープミラーで分散補償し, BBO 結晶中で差周波発生を行うことによって, 赤外域の白色光を発生した. このシード光を, チタンサファイア増幅器からの 800nm パルス光をポンプ光として, BIBO 結晶中でパラメトリック増幅した.

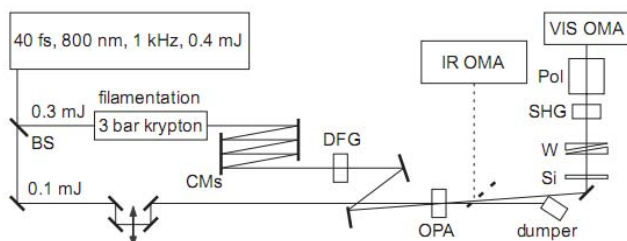


図5: BIBO 結晶を用いたオクターブ・光パラメトリック増幅実験の配置図. CM: チャープ補償ミラー, DFG: 差周波発生, OPA: BIBO 結晶による超広帯域パラメトリック増幅. 図右端は f-to-2f 干渉計であり, Si 窓で赤外光を選択した後, SHF をとり, 分光器で短波長側を測定する.

その結果, 波長域 1.1~2.2 μ m をカバーしながら, パルスエネルギー 10 μ J まで増幅することに成功した. この出力光は, 差周波発生を起源としているため, CEP が受動的に安定化している. それを確認するために被増幅光を f-to-2f 干渉計に導入し, 干渉光のスペクトルを測定した. f-to-2f 干渉計は, 広帯域スペクトルの長波長側で二倍波発生を行い, 短波長側の基本波と干渉させることによって, その干渉縞から CEP を測定するものである. 図6に

示したように、フィードバックのない状態で200秒以上にわたって安定した CEP での増幅が実現していることが確認できた。また、得られた被増幅パルスのスペクトルに対してフーリエ限界を仮定するとパルス幅としては6.8 fsとなるが、これは中心波長1.5 μm の1.2サイクルに相当する。また、一般的な f-to-2f 干渉計では、被測定パルスを一旦広帯域化してから二倍波発生を行うため、強度揺らぎが位相揺らぎにつながるという問題があった。本手法では、1オクターブを越える超広帯域増幅を実現出来たため、広帯域化せずに CEP を測定できるため、今後より精密な CEP 制御が可能になると考えられる。

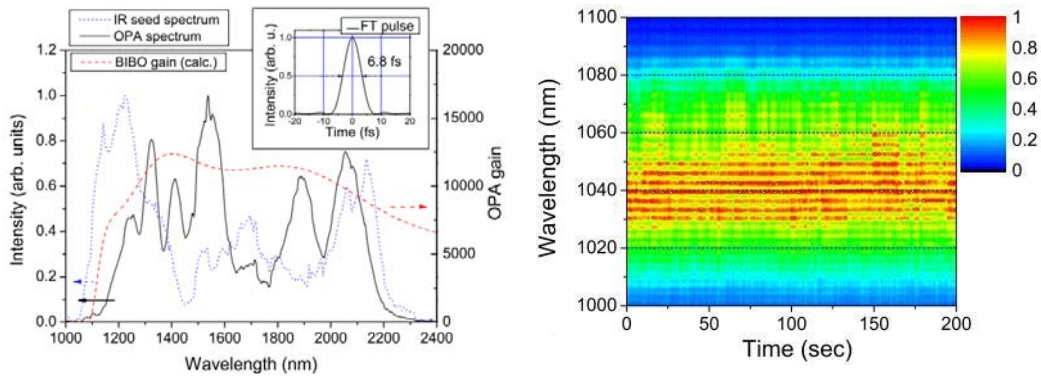


図6: (左)BIBO 結晶による OPA で得られた被増幅パルスのスペクトル(黒線), シード光のスペクトル(青点線), 計算によるパラメトリックゲイン(赤破線)。挿入図は、被増幅パルスのスペクトルから計算される最短パルスの強度波形。(右)200sec にわたって測定した f-to-2f 干渉計のスペクトログラム。フリーランでフリッジ位置が一定であることから、CEP が受動的に安定化していることがわかる。

3. 今後の展開

まず、高強度レーザー光を二分割して配向分子からの高次高調波の干渉実験を行い、高調波のスペクトル位相が分子配向と強レーザー場の電場強度にどのように依存するかを系統的に観測する。得られたスペクトル強度と位相を、密度汎関数法によるシミュレーションと比較することにより、分子軌道の形状、あるいは、異なる分子軌道からの高調波の寄与に関する情報がどの程度得られるかを詳細に検討する。シミュレーションに関しては、これまではすべての電子相関を含めた計算を行っていたが、電子相関を計算機上で ON/OFF することによって電子相関が高調波スペクトルにどのような影響を与えるかを検討して、実験の指針としたい。赤外 OPA に関しては、既存レーザーをベースにしながら開発をすすめ、高い光子エネルギー領域(>100 eV)での高次高調波発生実験を行い、分子軌道のサブオングストロームスケールの電子構造に関する知見を得ることを目指す。

4. 自己評価

高次高調波を発生し観測するビームラインを建設するという大目標はある程度達成できたと考えている。本研究の目標は、高強度レーザーをベースとして「分子動画」という新技術に挑戦することであり、そのためには実験結果と理論を比較することが不可欠である。この点に関しても、現時点でもっとも現実的と考えられる時間依存密度汎関数法によるシミュレーションを開発し、配向分子からの高調波のスペクトルを計算する目処が付いた。軟 X 線ビームラインという大きな装置を設計段階から一人で立ち上げる作業は、予想以上に困難であり、想定以上に時間がかかってしまったが、その分、柔軟に実験できるプラットフォームを構築することができた。赤外域における新型光源の開発は当初の計画には入っていなかったが、研究途中において必要性を痛感して着手した結果、予想以上に良い結果を得ることが出来た。

5. 研究総括の見解

高次高調波の軟 X 線スペクトルの精密測定によって、多電子相関やクーロンポテンシャルによる電子波束の変形などの影響を考慮した分子内の電子構造に関する知見を得る実験手

法を確立することを目指した。本研究では赤外域における高強度極短パルスレーザー光源の開発を行い、時間依存密度汎関数法による高次高調波発生シミュレーションを可能にした。

主たる成果は次の3点である。

- 1) 高次高調波発生用ビームラインの建設: 高次高調波のスペクトル強度と相対位相を精密に測定可能な、大型真空チャンバー群からなる軟X線ビームラインの開発に成功した。
- 2) 赤外域における高強度極短パルスレーザー光源の開発: 光パラメトリック増幅レーザーにてBIBO結晶を非線形媒質とすることによって赤外域で1オクターブを越える超広帯域増幅を実現し、波長域1.1~2.2 μm をカバーしながら、パルスエネルギー10 μJ まで増幅することに成功した。
- 3) 時間依存密度汎関数法による高次高調波発生シミュレーション手法の開発: 多電子相関をとりいれた時間発展シミュレーション手法を開発し、基底状態に関して高い精度で分子軌道のイオン化ポテンシャル再現が可能となった。

開発した装置では、1オクターブを越える超広帯域増幅を実現出来たため、広帯域化せずに搬送波法絡線位相(CEP)を測定でき、精密な CEP 制御が可能になる。また、シミュレーションでは分子軌道の形状を考慮しながら self-consistent な時間発展を計算することが初めて可能となっている。実験結果で得られるスペクトル強度、位相と、時間依存密度汎関数法シミュレーションとにより、実験結果と理論と合致した分子軌道の形状、あるいは、異なる分子軌道からの高調波の寄与に関する情報取得に目処をつけたのは大きな成果である。

今後、より高い光子エネルギー領域(>100 eV)での高次高調波発生、電子相関の高調波スペクトルへの影響解析などを実現し、分子軌道のサブオングストロームスケールの電子構造解析まで発展することを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1.	板谷治郎, 「高強度場近似と高次高調波」, レーザー研究, 36(1), p.332 (2008).
2.	板谷治郎, 沖本洋一, 腰原伸也, 「海外における超高速光誘起相転移研究の現状と観測装置」, レーザー研究, 36(6), p.332 (2008).
3.	板谷治郎, 「高次高調波による分子軌道イメージング」, 応用物理, 78(2), p.118 (2009).
4.	N. Ishii, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Carrier-envelope-phase-preserving, octave-spanning optical parametric amplification in the infrared based on BiB3O6 pumped by 800-nm femtosecond laser pulses," accepted in Applied Physics Express (2010/12).

(2) その他(主要な学会発表, 受賞, 著作物等)

【主要な学会発表】

[1] "Ultrafast Gifantic Photo-Response in Charge-Ordered Organic Salt (EDO-TTF)2PF6 on 10-fs time scales", J. Itatani, M. Rini, A. Cavalleri, K. Onda, T. Ishikawa, S. Koshihara, X. Shao, H. Yamochi, G. Saito, R. W. Schoenlein, XVI Conference on Ultrafast Phenomena, Stresa, Italy (June 2008).

[2] 「高次高調波を用いたナノスケールイメージング」, 板谷治郎, 第5回超高速エレクトロニクス研究会, 千歳(2008年8月)(招待講演).

[3] 「コヒーレント分子動画のための高次高調波ビームラインの開発」, 板谷治郎, 第56回応用物理学関係連合講演会, 筑波大学(2009年3月).

[4] 「10フェムト秒分光で探る強相関物質(EDO-TTF)2PF6の超高速光誘起相転移」, 板谷治郎, レーザー学会第29回年次大会, 愛媛大学(2009年3月)(招待講演)

[5] "Molecular orbital imaging using lasers", J. Itatani, 第4回日仏先端科学シンポジウム,

Poitier, France(2010年1月)(招待講演).

[6] 「コヒーレント分子動画のための高次高調波ビームラインの開発(II)」, 板谷治郎, 第57回応用物理学関係連合講演会, 東海大学(2010年3月).

[7] “Generation of ultrashort-pulse soft x-ray by high intensity laser and its applications”, 板谷治郎, 日本物理学会 2009年秋季大会, 岡山大学(2010年3月)(招待講演).

[8] 「超短パルス光による赤外差周波光発生と赤外広帯域パラメトリック蛍光の観測」, 石井順久, 北野健太, 金井輝人, 渡部俊太郎, 板谷治郎, 長崎大学(2010年9月).

【著作物等】

[1] 「光誘起相転移に有用な超高速分光実験手法の開発」板谷治郎, 「動的構造解析技術と非平衡物質開発の最前線」腰原伸也編(シーエムシー出版, 2009年).

[2] 「高次高調波を用いた分子イメージング実験手法の現状と展望」板谷治郎, 「光科学研究の最前線」(強光子場科学懇談会, 2009年).

研 究 報 告 書

「多光子波束による物質の非線形光学応答」

研究期間：平成19年10月～平成22年3月

研究者：清水 亮介

1. 研究のねらい

物質の内部状態を量子論で扱う一方で、光は古典的な物理量として扱う半古典論の枠組みでは、光と物質との非線形光学応答を実験的に調べるために超短パルス光が使用されてきた。光を波として扱う古典的波動光学の枠組みにおいて、超短パルス光の特性を決定するためにはそのスペクトル分布が重要であるが、光の量子性が顕著になる極微弱光領域ではスペクトル分布だけでなく、光パルス内部の光子数(光子統計性)や、光子間の量子相関といった自由度の制御を行うことも重要となる。光の量子性を扱う量子光学の分野では、これまでに量子情報通信技術への応用を目的として、光子統計性の制御や偏光自由度における量子相関制御が主として取り組まれてきているが、光計測技術において重要である周波数自由度の量子相関制御技術はほとんどなされてこなかった。

本研究では周波数自由度における光子-光子間の量子相関を制御した光(以後、「周波数量子もつれ光子」と呼ぶ)を用いることで、半古典近似を超えた単一光子レベルでの光と物質との相互作用を明らかにすることを目的とし、その制御手法の開発に取り組んだ。さらに、開発した光源を用いて周波数量子もつれ光子と物質との相互作用で期待される特異な非線形光学応答を実験的に観測することを目指した。

2. 研究成果

(1) 制御された周波数量子もつれ光子対光源の開発

本研究で着目した周波数量子もつれ光子対について簡単に説明する。まず、角周波数 ω_0 を中心に対称なスペクトル分布を持つ光パルスを想定し、さらに光パルス中には2つの光子のみを含む2光子状態を考える。この際、特徴的な二つの状態を考えることができる。第一に、2光子が ω_0 を中心に対称に分布する状態(図1(a))。このような2光子状態を周波数反相関状態と呼ぶ。次に考えられるのは、2光子が同一周波数上に存在する状態である(図1(c))。このような2光子状態を周波数相関状態と呼ぶ。これらの2光子の周波数分布を2つの光子の角周波数の関数として表すと図1(b)および(d)のように $\pm 45^\circ$ 方向に傾いた楕円形の分布として表される。ここでは、2光子の周波数分布を表すスペクトルを2光子スペクトルと呼ぶ。2光子スペクトルの長軸方向の分布は通常(古典的な意味での)スペクトル分布を表し、短軸方向の分布は2光子間の周波数相関の強さを表す。これら二つの状態は2次のコヒーレンス関数によって説明される2光子検出によってのみ識別可能であり、1次のコヒーレンス関数によって説明される従来の分光計測では識別不可能である。つまり、これら二種類の光源の性質の違いは古典的波動光学では説明できない。そこで、このような特徴を持つ二種類の光源を光計測へ適用し、光学応答の違いが現れれば、その光学応答の違いは光の非古典的性質である周波数量子もつれの性質の違いに由来する。これにより、光計測における周波数量子もつれの役割を実験的に明らかにすることが期待できる。そこで、この様な対照的な周波数量子相関をもつ2光子状態の生成方法の提案と開発を行った。

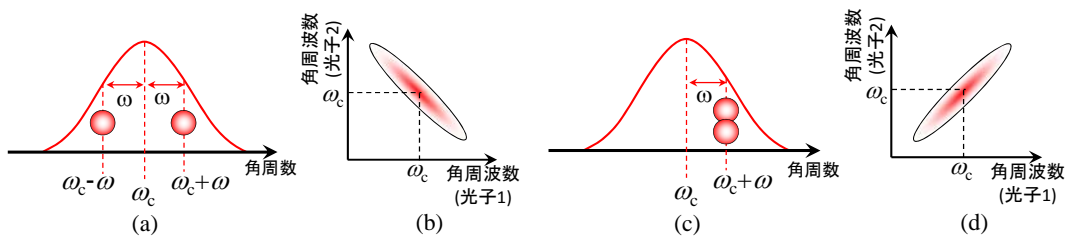


図1 周波数量子もつれ光子対の概念図。(a)、(b)周波数反相関状態および(c)、(d)周波数相関状態。

自発パラメトリック下方変換過程では一つのポンプ光(角周波数 ω_p 、波数ベクトル k_p)の入射に対し、位相整合条件を満たすようにシグナル光子(角周波数 ω_s 、波数ベクトル k_s)とアイドラー光子(角周波数 ω_i 、波数ベクトル k_i)の対が発生する。そのため、周波数反相関状態を伴った量子もつれ光子対は、2光子状態を構成する2つの光子の周波数和が一定になるように発生させれば良い。このような状態はCWレーザーをポンプ光として用いることで、容易に生成することができる。しかし、本研究では光計測技術への展開を目的としているため、光源の開発に当たっては、以下の三点を考慮した。①量子もつれ光子の操作を容易にするためtype-IIの位相整合条件を利用すること、②量子もつれ光子の生成効率を向上させるために素子長をできるだけ長くすること、③光計測における周波数量子もつれの役割を明らかにするために広帯域なスペクトルを伴った量子もつれ光子を発生させること。従来の非線形光学素子では、三つの条件を同時に満たすことは困難であるが、周期分極反転が可能かつ複屈折性の弱いLiTaO₃結晶では全ての条件を満たすことができる。そこで、我々はPPMgSLT (Periodically Poled MgO-doped Stoichiometric LiTaO₃)素子を採用し、その評価を行った。

一方で、周波数相関状態の生成には拡張位相整合条件を利用した。拡張位相整合条件では通常の位相整合条件に加え、群速度の整合条件が含まれる。2つの条件を満たした上で、超短パルスレーザーにより励起することで周波数相関状態の生成が可能になる。KTP結晶ではtype-IIの位相整合条件のもとで、ポンプ光波長 792nm、シグナル光、アイドラー光波長 1584nmにおいて群速度整合条件を満たす。そこで、群速度整合条件を満たす波長において位相整合条件を同時に満足させるために、分極反転周期 46.1 μ mを持つPPKTP素子を使用した。また、我々はフェムト秒Ti:sapphireレーザーをポンプ光源とし、過去に報告されている結晶長(10mm)よりもさらに長い結晶長(30mm)を持つ群速度整合PPKTP (Periodically Poled KTiOPO₄)素子による量子もつれ光子対の生成実験を行った。

図2に測定結果を示す。一般に、CWレーザーをポンプ光としてtype-II位相整合条件を利用して光子対を生成すると、相互作用長が長くなるにつれ、スペクトル分布は狭帯域化する。しかし、前述したように、複屈折性の弱いLiTaO₃結晶では 40mm長の結晶を使用しているにも関わらず、広帯域スペクトル($\Delta\lambda \sim 30$ nm)を伴った、負の周波数相関を持つスペクトルを生成可能なことが実験的に初めて観測された(図2(a))。また、図2(b)はPPKTP素子より発生した光子対の二光子スペクトルであり、正の周波数相関を伴った二光子が生成されていることを直接的に示した初めての実験結果である。

以上の実験により、波長 1584nm 付近で周波数量子もつれを制御した光源の作製に成功したことが確認できた。この光源はバルク型の type-II 位相整合による量子もつれ光源としては世界最高レベルの2光子生成レート(~ 60000 pairs/mW/sec.)を持つことや、生成された2光子が 90%を超える高い明瞭度を伴った量子干渉を示すことも確認した。また、開発した周波数量子もつれ光子光源を利用して偏光量子もつれ光子生成実験を行うことで、偏光量子もつれ光子対生成には2つの光子の交換に対して対称な2光子スペクトル形状が必要であることを実験、理論の両側面から明らかにした。

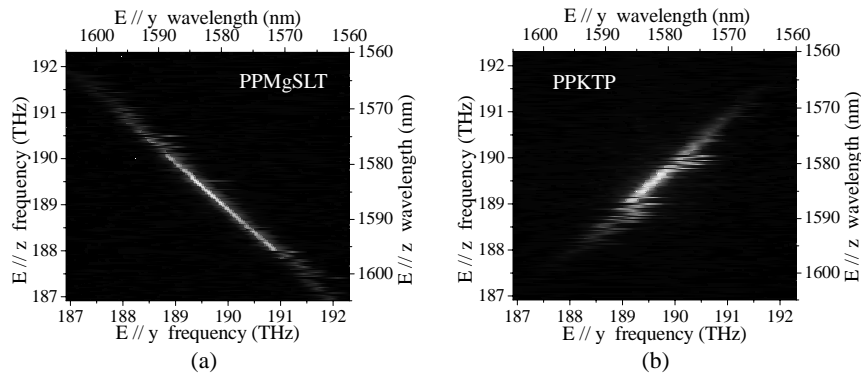


図2 (a)PPMgSLT 素子および(b)PPKTP 素子から生成された光子対の2光子スペクトル。

(2) 量子情報通信技術に向けた光源開発:周波数無相関状態の生成

周波数相関を持たない周波数無相関状態を生成することは、3光子以上を必要とする多量子ビットの量子情報通信プロトコルを実証するためには非常に重要な技術である。従来、このような状態の生成には、適当な周波数相関を持つ2光子状態を生成した後に、スペクトルフィルターを用いて観測する周波数帯域を制限することにより達成されていた。しかし、この方法では、スペクトルフィルターの帯域外に存在する光子を捨てることになるため、多光子生成効率の向上には難点があった。そのため、直接周波数無相関状態を生成する方法が切望されていた。

本研究では当初、周波数量子もつれ状態の制御を目指したが、研究を進めるにつれ、周波数無相関状態を持つ2光子状態を生成することも可能であることが分かった。群速度整合 PPKTP 素子により生成した周波数相関状態は長軸方向の分布は使用するポンプ光のスペクトル分布により決定される一方で、短軸方向の分布は結晶長によって決まる。つまり、長軸方向と短軸方向の分布は独立に決定することが出来る。そのため、結晶長で決まる短軸方向の分布とうまく整合するように、ポンプ光のスペクトル分布を決めることで、周波数無相関な円形の2光子スペクトル分布を持つ、2光子状態が得られるはずである。そこで、PPKTP の素子長30mmと整合するように、ポンプ光のバンド幅を0.4nmとして、2光子スペクトル計測の実験を行った。この実験から、周波数無相関状態に近い状態が得られていることが分かった。

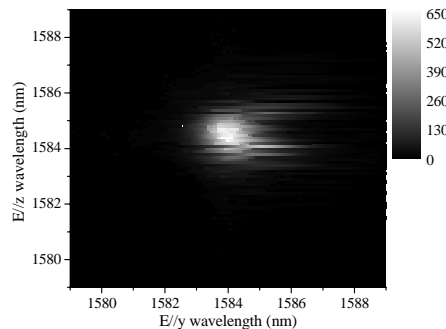


図3 PPKTP素子による周波数無相関状態の2光子スペクトル。

(3) 波長多重偏光量子もつれ光子対生成手法の提案

偏光量子もつれ光子対を生成させる従来の方法では、挟帯域のパラメトリック光子対を利用するために、任意の中心周波数を持つ透過帯域フィルターを使用することによりパラメトリック光子対のスペクトル帯域を制限していた。誘電体多層膜構造による干渉フィルターでは構造の設計により任意の中心波長、帯域幅の光を透過させることができるが、一度に透過できる波長帯は一種類に限られてしまう。そのため、透過帯域外のパラメトリック蛍光はフィルターによりブロックされ、偏光量子もつれ光子対の生成には使用されていなかった。しかし、フィルターによってブロックされ、従来利用されていなかったパラメトリック光子対も波長分割多重(WDM:

Wavelength Division Multiplexing)技術を用いることにより、偏光量子もつれ光子対として利用可能であり、偏光量子もつれ光子対の波長分割多重伝送技術へ応用できる。これにより、波長分割多重伝送技術を用いた偏光量子もつれ光子対の伝送に向けた周波数多重偏光量子もつれ光子対光源を作製する手法の提案を行った。

3. 今後の展開

古典光学では取り扱うことの出来ない非古典光を使うことで、単一光子レベルでの光と物質との相互作用において半古典近似を超えた光と物質との相互作用を実現させる取り組みはこれまでに行われている。しかし、従来の取り組みは光の非古典的性質のうち、光子統計性の違いを取り扱ったものばかりである。これら従来の研究では単一モード理論に基づいた研究が主体的であった。一方で、本研究で目指した光子間の量子相関により発現する現象は多モード理論を必要とする。そのため、本研究が多モード理論に立脚した、単一光子レベルでの光と物質との相互作用を取り扱う新たな実験研究分野の「さきがけ」となることが期待できる。本研究で開発した周波数量子もつれ光子光源は、現時点では世界最高レベルの2光子生成レートを持つものの、平均光強度に換算すると10pW程度が限界である。そこで、光源をより高強度化することにより、周波数量子もつれ光子を利用した光計測技術の適用範囲が広がるものと考えられる。実際に、擬似位相整合素子の導波路化や100GHz程度の高い繰り返しレートを持つポンプ光レーザーを導入することで、10nW程度まで平均光強度を向上することが可能である。

本研究の光源開発は通信波長帯を中心に行った。従来、通信波長帯では、光子検出器の性能の問題から、3光子以上を必要とする多量子ビットの実験は現実的ではなかった。しかし、単一光子検出器の進展が近年めざましく、通信波長帯においても超伝導体を利用した高い性能を持つ検出器が登場している。本研究で開発した周波数無相関光源と上述の検出器とを組み合わせることで、通信波長帯における多量子ビット実験が実現し、従来、可視帯域で行われてきた実験の精度の向上や、実験時間の大幅な短縮が可能になる。これにより、これまで6光子までに限られていた実験をさらに拡張することが期待出来る。

4. 自己評価

擬似位相整合素子の持つ波長分散とポンプ光のスペクトル分布を注意深く選択することで、パラメトリック下方変換過程より生成される2光子間の周波数相関を制御し、古典的なスペクトル計測識別できないが量子的には対照的な性質を持つ周波数相関状態と周波数反相関状態を生成することには成功した。さらに、開発した光源の狭帯域化を行い、目標としていた非線形光学応答を計測するための準備を進めたが、実際の観測にまで至らなかった点は残念である。しかし、開発した光源を利用して2光子スペクトル形状と2光子干渉波形との関係を明らかに出来たことで、これまでの量子光学実験に数多く利用されてきたHong-Ou-Mandel干渉やFranson干渉といった2光子干渉現象に統一的な理解を与えることが出来た点は、当初の研究計画にはなかった大きな成果であった。また、周波数無相関状態を直接生成する手法の提案と実証や、偏光量子もつれ光子生成の波長多重化に関する提案が出来たことも、複雑・高度化することが予想される今後の量子情報処理技術の原理実証実験を発展させるための有用な成果であったと考えている。

5. 研究総括の見解

光子-光子間の量子相関を周波数自由度においても制御した光(「周波数量子もつれ光子」)を用いることで、半古典近似を超えた単一光子レベルでの光と物質との相互作用を明らかにするための制御手法開発を目標に研究を行なった。周波数量子もつれ光子と物質との相互作用で生ずる特異な非線形光学応答を実験的に観測することに成功し、下記実験成果を得ている。

1)パラメトリック下方変換過程より生成される2光子間の周波数相関を制御し、量子的

に対照的な性質を持つ周波数相関状態と周波数反相関状態を生成することに成功。

- 2) 波長 1584nm 付近で周波数量子もつれを制御した光源の作製に成功し、量子もつれ光源としては世界最高レベルの2光子生成レート(~ 60000 pairs/mW/sec.)と、90%を超える高い明瞭度を達成。
- 3) 偏光量子もつれ光子対生成には、2つの光子の交換に対して対称な2光子スペクトル形状が必要であることを実験、理論の両面から明らかにした。

これらの成果から、2光子スペクトル形状と2光子干渉波形との関係を明らかにし、これまでの量子光学実験に数多く利用されてきた Hong-Ou-Mandel 干渉や Franson 干渉といった2光子干渉現象に統一的な理解を与えた。また、周波数無相関状態を直接生成する手法の提案と実証や、偏光量子もつれ光子生成の波長多重化に関する提案も行なった。波長分割多重伝送技術を用いた偏光量子もつれ光子対の伝送に向けた周波数多重偏光量子もつれ光子対光源を作製する手法の提案を行なったことは、複雑・高度化することが予想される今後の量子情報処理技術の原理実証実験を進展させるための有用な成果であったと言える。これらは主に2本の原著論文に纏められ1件の特許出願に結びついている。

今後、通信波長帯における多量子ビット実験に、本研究で開発した周波数無相関光源を組み込むことで、従来可視帯域で行われてきた実験の精度の向上や、実験時間の大幅な短縮が見込まれる。本研究が多モード理論に立脚した、単一光子レベルでの光と物質との相互作用を取り扱う新たな実験研究分野の「さきがけ」となることを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. R. Shimizu and K. Edamatsu, "High-flux and broadband biphoton sources with controlled frequency entanglement," <i>Optics Express</i> 17 , 16385-16393 (2009).
2. M. Nakatani, R. Shimizu, and K. Koshino, "Multimode theory of up-conversion of two photons," <i>J. Phys. Soc. Jpn.</i> 78 , 054401/1-7 (2009).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 1件

発明者: 清水 亮介、枝松 圭一

発明の名称: 偏光量子もつれ光子対の生成装置及びその生成方法

出願人: 科学技術振興機構

出願日: 特願 2009-134293 号 (2009.6.3)

(3) 招待講演

清水亮介: 周波数量子もつれ光子の生成と制御. 第14回 N2RC 拠点セミナー(最先端ナノ光科学による異分野融合と次世代技術の創出)、大阪府立大学、2010年6月。

研究報告書

「テラヘルツ電磁波による高速電子スピン操作」

研究期間：平成 19 年 10 月～平成 23 年 3 月

研究者：永井 正也

1. 研究のねらい

原子の内部電場に相当する 20MV/cm は非線形分光の目安となる電場強度であり、現在の超短パルスレーザーを用いれば容易に到達できる。しかし電磁波における磁場成分は 7T にも達し、スピンを容易に駆動するのに十分な磁場強度である。磁気共鳴は低周波数において一般に見られるのであるが、二価鉄や分子磁石などの偶数スピン系ではゼロ磁場分裂での磁気遷移が THz 領域に現れる。したがって高強度の THz 電磁パルスを用いればスピン操作を高速でかつ容易に行える可能性がある。

本提案では超短パルスレーザーの波長変換技術を駆使することで高強度の THz 電磁パルスを発生させ、また高感度検出技術を駆使することで線幅の狭い磁気遷移を高精度で分光を行う。そして、高強度光源を用いたスピンエコーなどの非線形応答を時間領域で計測し、新しいスピン操作の方法論の確立を狙う。このために簡便な高強度 THz 電磁パルス発生法と高いダイナミックレンジを持つ検出手法を開拓し、非線形分光の手法をまず大きな振動子強度を持つ電気双極子許容遷移を用いて確立する。そしてこれらを磁気共鳴のある系に適用する。

2. 研究成果

1) 光整流過程を用いた高強度 THz 電磁パルス発生法の確立

さきがけ研究を遂行するために必要な超短光パルスを用いた高強度 THz 電磁パルスの発生において、まず非線形結晶の光整流過程に注目した。反転対称性のない透明媒質に高強度光パルスを照射すると、光パルス強度の包絡線にその波形が対応する 2 次の非線形分極 $P^{(2)}(t)$ が媒質中に形成される。この非線形分極が輻射源となり、 $P^{(2)}(t)$ の 2 階微分の波形のモノサイクル THz パルスが放射される。LiNbO₃ など大きな $\chi^{(2)}$ を持つ誘電体は高い発生効率が期待できる。しかし屈折率の THz 領域と可視領域の不整合から位相整合条件がとりにくく、励起光に対して非同軸方向に THz 光が弱く放出される。逆に THz 光の伝播方向に対して非線形分極のパルス面が THz 光の位相と整合するように励起光の波面を空間制御すれば、高効率で THz パルスが発生できる。

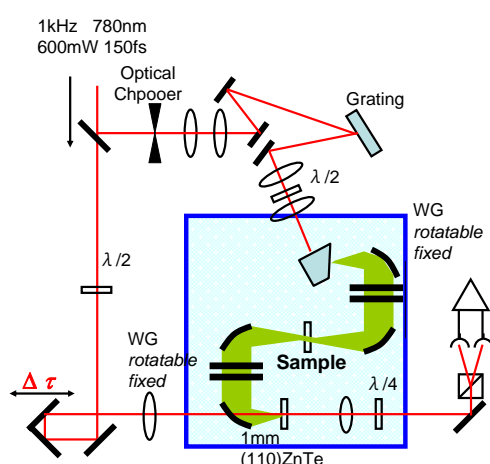


図 1: 高強度 THz パルス発生の実験配置。

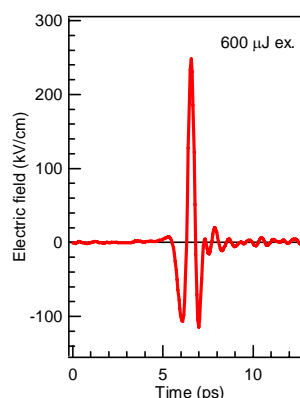


図 2: パルス面制御した光励起による LiNbO₃ 結晶から発生した THz パルスの電場波形。

図 1 に京都大学で行った高強度 THz パルス発生の実験配置を示す。再生増幅されたチタンサファイヤレーザー (1 KHz, 570 mW, 780 nm, 150 fs) からの光を THz 波発生用と検出用に無偏光ビー

ムスプリッターで二つに分ける。励起光はホログラフィック回折格子 1800 /mm とレンズ2枚を用いて波面の空間制御を行い、2×3mmのスポットサイズで結晶に照射した。ここで回折格子とレンズを用いることが、角度周波数分散も同時に制御することになる。非線形結晶はOXIDE社製の1.5 % MgドープされたLiNbO₃を5×5×5 mm³、62° の角度でカットしている。なお励起光が入射する面を近赤外無反射コートしている。発生したTHz電磁波は軸はずし放物面鏡でガイドし、検出用の(110)カットのGaP 結晶に照射した。そして電気光学過程によるサンプリング光の偏光回転の大きさから電場強度を評価した。

図 2 は室温におけるLiNbO₃結晶から放出したテラヘルツパルスの電場波形である。Ti:サファイヤレーザーからの光を入射すると発生するTHzパルスの最大電場強度は 250 kV/cm にも達する。これは磁場に換算すると 800 gaussである。この時間積分はエネルギー密度に対応し、33μJ/cm² となる。パイロエレクトリック検出器で検出したテラヘルツ光強度は 550nJであり、変換効率としては 9×10⁻⁴にも達する。

2) 再帰非線形過程を用いた THz パルス発生の高効率広帯域化の実現

高強度THzパルス発生の際に非線形結晶中には常に強い電場が当然のことながら存在している。この強い電場は非線形結晶内部で励起光の包絡線の波形を大いに歪調する。この条件を巧みに利用することで図3のように励起パルスのパルス幅を縮めることが可能であり、結果としてさらなるTHzパルスの発生を誘起し、また帯域に大幅に改善することができる。そこでサブピコ秒Ybドープファイバーレーザに注目し、広帯域で高強度のTHzパルス発生に成功した。このレーザーはエネルギー変換効率が非常に高いことから産業用途に用いられるものの、サブピコ秒程度のパルス幅しか得ることはできないため、THzパルス発生には不向きと考えられてきた。図 4aはこの光パルスをLiNbO₃結晶に照射することで発生したTHzパルスの電場の時間波形を示す。弱励起下ではパルス幅 0.6ps に対応するTHzパルスが放射している。しかし励起光強度とともに発生したTHzパルスの波形が変化している。図 3bは電場の最大最小の時間幅を示しており、これはおよそ励起光のパルス幅に対応している。したがって励起光のパルス幅が入射光強度とともに結晶中で変化していることが分かる。下に発生したTHzパルスの電場の最大値(図 3c)をあわせて示しており、パルス幅が短くなる入射光強度で出力電場強度が大きく増大する様子が見て取れる。これらの結果は、大面積THzイメージング用の汎用光源としても期待される。また再帰的非線形過程を考慮した位相制御を行うことでハーフサイクルに近いTHzパルス発生も可能であるとする。

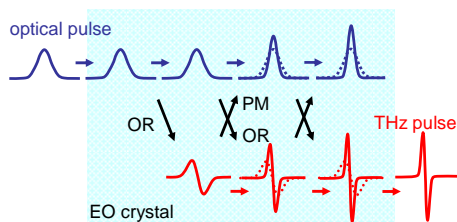
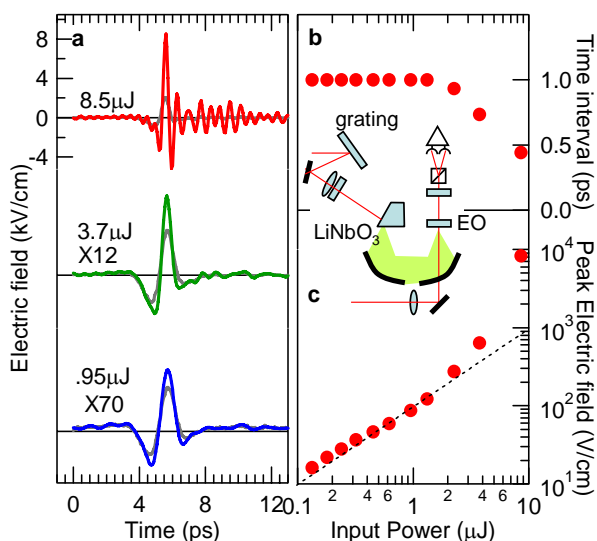


図 3: カスケード $\chi^{(2)}$ 過程によるパルス圧縮の概念図。

図 4: Yb ファイバーレーザを用いた異なる励起強度での THz パルス。(a)電場波形、(b) 電場の最大最小の時間幅、(c) 最大電場強度。



3) 有機結晶の分子間振動における量子準位の駆け上がりの観測

高強度 THz パルス光源を用いた非線形分光の手法を確立するために、まず巨大な振動子強度を持つ分子性結晶の THz 振動を用いて非線形分光を行った。たんぱく質などの巨大分子にお

る THz 振動には水素結合を介した非調和性があり、その大振幅運動によって分子の配位に関するような巨視的応答が見られる。図 5 は異なる電場強度でのアルギニンペレットの光学密度を示す。電場波形は挿図に示し、電場強度のみをワイヤグリッド偏光子対を用いて減衰させた。弱い電場領域では 1.0THz を中心とした吸収が見られる。この振動ピークは水溶液にすると見られないことから、分子間振動に起因する吸収と考えられる。この吸収は低温にすると徐々に高周波数側にシフトする。分子間振動における非調和ポテンシャルの離散準位を考え振動モードが熱的に分布することで、このようなスペクトルシフトを説明できる。すなわち低温ではモードが最低エネルギー状態に分布するのだが高温では励起状態にモードが分布する。この際に準位間隔は高い励起状態では狭くなるため、結果として吸収スペクトルは温度とともに低周波シフトする。このような非調和性を持つ振動子に強い THz 電場を印加すると、この吸収ピークは徐々に減少しそれに入れ替わるように 0.4 THz 以下の成分が増加していく。このような応答は最大電場強度が 25 kV/cm 以上でこのような非線形な応答が顕著に現れる。

これらの実験は大振幅振動を THz パルスでコヒーレントに駆動した結果大きな非線形性を得たと考える。得られたスペクトル形状はスペクトルの重みがより低周波数側に移行(すなわちソフト化)したように見える。これは非調和ポテンシャル中の振動モード分布がより高いエネルギーに駆け上がり、結果として誘起分極が大きくなったことを示唆している。

非調和振動については溶液系の光カー効果などの非線形現象を説明する古典モデルが数多く提唱されている。これらの系は熱浴との相関が強い非調和性があり、スペクトル形状のブロードニングを引き起こしてしまう。しかし、この試料は温度依存性から非調和ポテンシャルの形状を量子準位を仮定してある程度説明できる。それゆえに熱散逸を起こす前にインパルスの励起によるスペクトル形状の変化が起きると考えて議論できる。このようなコヒーレント過渡応答は 2 準位系では Bloch マスター方程式を用いて議論される。そこでこのモデルを多準位系に拡張して解析を行ったところ図4に示すように実験結果を再現できることを見出した。またそのスペクトル形状の変化から 20 段の量子準位の駆け上がりが見積られる。これは明らかに平衡状態からかけ離れたものである。このような多段の駆け上がりはモノサイクルパルスが持つ非常に広いスペクトル幅によって様々な遷移の周波数を網羅したものであるからである。

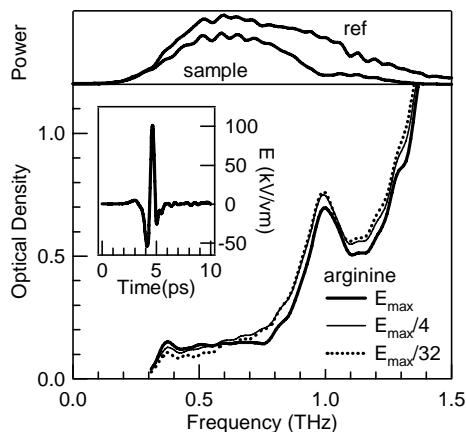


図 5: L-アルギニンペレットにおける異なる電場強度を持つ THz パルス(挿図に電場波形を示す)を入射し透過スペクトルを測定した際の光学密度スペクトル。上に入射光と透過光のスペクトルを示す。

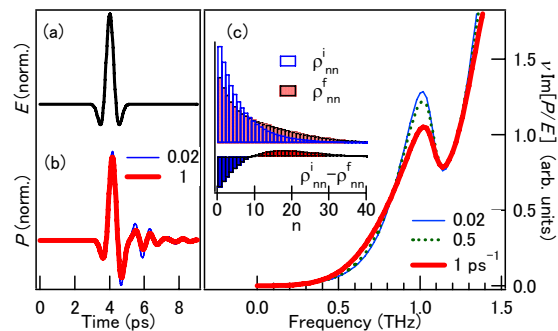


図 6: (a) 入射電場波形と(b) 誘導分極の時間依存性。(c) 異なる電場強度 $\mu^{(a)} E_0 / h = 0.02, 0.5, 1 \text{ ps}^{-1}$ におけるフーリエ変換したスペクトル $v P / E$ 。挿図は初期状態、過状態における ρ^{in}_{nn} と最大電場強度で入射した際の密度行列の変化 $\Delta \rho^{(a)}_{nn}$ 。

3. 今後の展開

本提案の狙いでも述べたように、原子の内部の電場である $e/\epsilon_0 a_B^2 = 20$ MV/cm強度以上のDC電場をかけると固体媒質はイオン化してしまう。これは非線形光学応答が顕著に発現する電場強度の目安でもあり、本研究で構築した光源はこの電場強度に近づいたといえる。また固体媒質の緩和時間の多くはピコ秒の時間スケールであり、THzパルスはこのピコ秒の時間だけ電場が持続するとみなせる。この場合、緩和時間が短い系では印加された準DC的な強電場として物質の内部電場を直接支配することができ、逆に緩和時間が長い系ではモノサイクルパルス励起でコヒーレントに電気双極子許容の巨視的運動を駆動させながら新しい物質の状態に到達することも期待できる。実際に世界各国の研究者がこのようなTHzパルスに注目しており様々な系での非線形信号が報告されている。このことから高強度THzパルスは超高速光技術における新しい物質操作の概念を切り開くものと考えられる。

THz電磁パルスを用いたスピン制御においては、既にTiO₂の反磁性共鳴において実験的に例示されている。しかし他の系に適用するためには、大きな非線形性を持つ電気双極子許容遷移の寄与を抑える必要がある。1Tを超える電磁パルスの磁場が実現したとしても、巨大な電場成分によって、電子系が大いに変調される可能性がある。今後は金属の周期構造を用いて電場と磁場の空間分布を分離し、またTHzパルスの波形を制御することで、磁気遷移だけを選択的に励起することが今後重要であると考えられる。

4. 自己評価

さきがけ研究では高強度 THz 電磁パルスの磁場成分を用いて磁気共鳴を駆動することを目的とした。限られた装置や耐震補強工事などの厳しい研究環境の中で光源開発を行ってきたが、研究者の持つ技術や知見を最大限に生かした装置開発は、当初の目的を達成できたと考えられる。また THz 領域の非線形分光の手法を確立するために、半導体、誘電体、有機結晶、水など振動子強度の大きな系で実験を行っており、THz 非線形分光と物質操作という新しい研究分野の構築につながる結果を見出した。この点は当初の計画以上の成果を挙げたと評価できる。

ただし研究期間の時間的制約からこれらの光源を分子磁石の系に適用することはできず、スピンエコーの実験まで至らなかった点が残念である。いくつかの研究グループでは高強度 THz パルスを用いたスピン操作に関連した現象が報告されており、今後も継続して研究を行っていきたい。

5. 研究総括の見解

高強度の THz 電磁パルス光源開発と、高強度光源を用いた新しいスピン操作の方法論の確立を狙ったもので、オリジナルなアイデアで世界最高出力のテラヘルツ電磁波発生を成功させ、更に、高強度テラヘルツ電磁パルスで分子ネットワーク操作を世界で始めて実現した。

主たる成果は次の3点である。

- 1) 光整流過程を用いた高強度 THz 電磁パルス発生法の確立
- 2) 再帰非線形過程を用いた THz パルス発生の高効率広帯域化の実現
- 3) 有機結晶の分子間振動における量子準位の駆け上がりの観測

テラヘルツ電磁波が発生する過程で EO 効果を介した励起光のパルス圧縮を巧みに利用することで、「ファイバーレーザー」を用いたものでは世界最高出力(出力電場強度 8 kV/cm)・高帯域(2 THz) の THz 電磁波の発生に成功した。これは半導体電子デバイス中に印加される電場強度に匹敵し、次世代の超高速エレクトロニクスの構築や高感度テラヘルツ電磁波イメージ検出への応用が大いに期待できる。

また、パルス幅1psで、100kV/cm を超える電場を持続させるテラヘルツ電磁パルスの発生にも成功し、結晶中の分子を大振幅で揺さぶり、熱平衡状態では実現できないような分子変位を実現することに世界で初めて成功した。これは、化学合成における反応促進や、創薬における有機分子結晶の精製での活用が考えられる。

研究成果は主に3編の原著論文に纏められ、その高い評価は、「日本物理学会 若手奨励賞」

受賞に結びついている。また、産業界へのインパクトも高く2件の新聞発表、1件の特許出願を行っている。

本技術の応用範囲は広く、超高速通信に必要な半導体デバイスの超高速スイッチ制御を実現するテラヘルツエレクトロニクスへの展開、高強度・高繰り返しの特徴を生かすことによる小型のテラヘルツ動画イメージングシステムへの展開、タンパク質などの巨大分子の運動制御による機能発現への展開などが挙げられる。今後本研究を発展させ、高強度 THz パルスを用いた超高速光技術における新しい物質操作の概念を切り開くことを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

	1. M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka, "Ladder Climbing on the Anharmonic Intermolecular Potential in an Amino Acid Microcrystal via an Intense Monocycle Terahertz Pulse", Physical Review Letters, 105 ,203003 (2010).
	2. M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka, "Enhancement of terahertz wave generation by cascaded $\chi^{(2)}$ processes in LiNbO ₃ ", Journal of Optical Society of America B, 26 , (9), A101 (2009).
	3. M. Nagai, M. Jewariya, Y. Ichikawa, H. Ohtake, T. Sugiura, Y. Uehara, and K. Tanaka, "Broadband and high power terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via $\chi^{(2)}$ cascaded processes in LiNbO ₃ " Optics Express, 17 ,(14) 11543 (2009).

(2)特許出願

研究期間累積件数:1件

発 明 者: 市川雄貴、大竹秀幸、永井正也、田中耕一郎
 発明の名称: "テラヘルツ波発生装置およびテラヘルツ波発生方法"
 出 願 人: アイシン精機株式会社、国立大学法人京都大学
 出 願 日: 2008/11/11

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

主要な学会発表 (国際会議 招待講演)

1. M. Nagai "Nonlinearity in terahertz photon physics", Advanced Photons and Science Evolution 2010 (2010年6月14日 大阪)
2. M. Nagai "THz nonlinear spectroscopy with intense monocycle THz pulse" The Asia Pacific Laser Symposium (APLS), APLS 2010 (2010年5月14日 済州島 韓国)
3. M. Nagai, "Molecules driven by intense THz pulses", Program of 14th East Asian Workshop on Chemical Dynamics (2010年5月11日 奈良)
4. M. Nagai, "Intense THz pulse generation and THz nonlinear spectroscopy", Asian Conference on Ultrafast Phenomena (ACUP), (Taipei, Taiwan, Jan. 10-13, 2010).
5. M. Jewariya, M. Nagai, K. Tanaka, "Terahertz nonlinear transmission spectroscopy of amino-acid microcrystals", 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW/THz2009), (Busan, Korea, Sep. 24, 2009).

受賞

永井正也 "高強度テラヘルツ電磁パルスと光物性への応用"
 日本物理学会 第4回若手奨励賞(2010年3月20日)

著作物

1. 永井正也, “3.4 角度波面整合放射(フェムト秒レーザー励起)”,3.5 ガスプラズマからの THz パルス発生”, テラヘルツ波新産業 (斗内政吉監修) シーエムシー出版 2011 年 1 月発刊
2. 永井正也, 田中耕一郎, “LiNbO ₃ を用いた高強度広帯域モノサイクルテラヘルツ電磁パルス発生”, レーザー研究, 37, (5) 350-354(2009).
3. 永井正也, “非線形光学結晶からのテラヘルツ発生:無機非線形結晶”, pp.117-119 “テラヘルツポンププローブ分光”, pp 423-425 “表面モード”, pp.517-519 テラヘルツテクノロジーフォーラム編 「テラヘルツ技術総覧」(2007 年 NGT 出版)

研究報告書

「量子ドットによる光・量子メモリの創出と高光非線形性の探求」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：早瀬潤子

1. 研究のねらい

光は最も安定に量子コヒーレンスを保持するため、量子情報通信・処理における情報伝達媒質として最も適している。その一方で光は止めておくこと(保存)ができない、互いに相互作用しにくい(量子ゲート操作が困難)といった欠点がある。従ってこれらの操作が可能な他の2準位系に、光のもつ量子情報(量子力学的重ね合わせ状態)を一旦転写・保存し、任意の時間に再生するといった量子メモリを実現することが必要不可欠な課題となっている。

本研究では、集積化・小型化に有利かつ光との結合効率のよい半導体量子ドット集合体を対象として、不均一性の影響を除去できるフォトンエコー法を用いた量子メモリの原理実証を行なうことを目的とする。具体的には、2つのコヒーレント光パルス間の相対位相・相対振幅として符号化された情報(量子コヒーレンス)を量子ドット集合体へ書きこみ・保存し、任意の時間にフォトンエコー信号として再生・読みだすことを試みる。また本研究では、量子メモリ動作において重要な役割を果たす、半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明を行なっていく。

2. 研究成果

本研究は、2007年10月から2008年7月まで独立行政法人情報通信研究機構、2008年8月から2010年3月まで電気通信大学、2010年4月以降慶應義塾大学で行なった。また本研究で用いた量子ドットサンプルは、情報通信研究機構フォトニックデバイスラボで作製していただいた。

歪補償量子ドット集合体における位相制御フォトンエコー測定

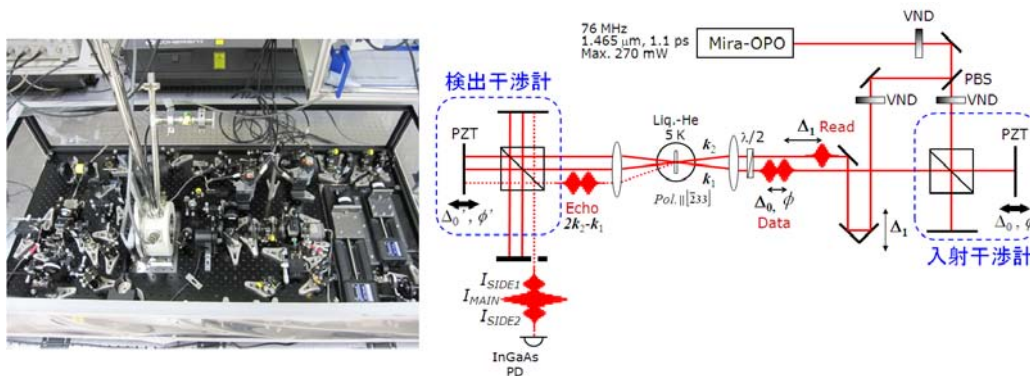


図1: 位相制御フォトンエコー測定系(左:写真、右:模式図)

図1に本研究で構築した位相制御フォトンエコー測定系を示す。光源は本研究費で購入したチタンサファイアレーザー励起OPO(パルス幅約1 ps)である。入射パルスの波長・偏光方向を制御することで、量子ドット中の励起子基底状態の内1つのみを共鳴励起する条件となっている。これにより量子ドット集合体を2準位系の集団とみなすことができる。レーザーをビームスプリッターで2つに分け、それぞれDataパルス、Readパルスとして用いる。Dataパルスはさらにマイケルソン干渉計(入射干渉計)を用いてパルス対にし、2つのパルス間の遅延時間(Δ_0)と相対位相(ϕ)を制御できるようになっている。クライオスタット内で極低温(5 K)に冷却された量子ドット集合体へDataパルス対を k_1 方向から入射した後、一定の遅延時間(Δ_1)をつけて k_2 方向からReadパルスを入射することで、 $2\Delta_1$ 後に $2k_2-k_1$ 方向へフォトンエコー信号を

発生させる。発生したフォトンエコー信号は入射干渉計と同じ遅延時間 ($\Delta_0' = \Delta_0$) をつけたマイケルソン干渉計 (検出干渉計) に入射する。この時入射もしくは検出干渉計の片方のアームの光路長を波長オーダーで掃引する (位相 ϕ' を掃引することに相当) ことで明瞭な干渉信号が得られれば、Dataパルス対の相対位相・相対振幅が半導体量子ドット集合体へ書き込み・保存・再生・読み取りできたことを意味する。本実験では、比較的実験の容易な高強度コヒーレント光を用いた実験を行なうことで、フォトンエコー量子メモリの原理実証を行なう。ここでDataパルス間の遅延時間はピコ秒オーダーであり検出器で時間分解できないため、同時に検出されてしまうバックグラウンド (I_{SIDE}) を差し引いた後、干渉信号 (I_{MAIN}) の干渉明瞭度を評価する。量子ドットサンプルには、歪補償法により作製したInP(311)B基板上InAs量子ドット集合体を用いた (図4(a)参照)。歪補償量子ドットを用いることで、応用上重要な通信波長帯での実験が可能となっている。また 150 層超積層構造を用いることで、フォトンエコー信号が増強され高S/Nで測定できる。

図2に実験結果の一例を示す。Dataパルス、Readパルスの平均パルス面積はそれぞれ $\pi/2$ 、 π となるよう入射光強度を調整している。入射Dataパルスの相対位相 ϕ を固定したまま、検出干渉計における位相 ϕ' を掃引すると、明瞭な干渉信号を得ることができた。干渉明瞭度は 95 %を超える高いものであり、Dataパルス対の相対位相・相対振幅が高い忠実度で再生され読み出し可能であることが示された。この結果は、従来の報告よりも数桁広い帯域の光パルス位相の書き込み・保存・再生・読み出しに成功したことを意味する。また Δ_1 を 500 ps、 Δ_0 を 100 ps 程度まで大きくしても干渉明瞭度は高い値を保っていることがわかった。これにより、我々の量子ドットは比較的長い時間に渡って量子コヒーレンスを保持することが可能であり、適用可能な光パルスの時間帯域幅積が 10^3 に迫ること、 10^2 個のマルチモードパルス列の適用が可能性であることを示唆された。

今回得られた結果は、高強度コヒーレント光 (古典光) による結果であり、単一光子やもつれ合い光子対といった非古典光に対する真の意味の量子メモリ実現への道のりはまだ遠い。しかしながら、量子メモリの原理実証となる光位相の書き込み・保存・再生・読み出しに成功したことは、量子メモリ実現に向けた大きな一歩である。本研究で提案した手法は、通信波長帯・広帯域・長時間帯域幅積・マルチモードパルスの適用を可能にする、今までにない性能をもつ量子メモリ実現の可能性を示唆するものであり、大きな成果であると言える。

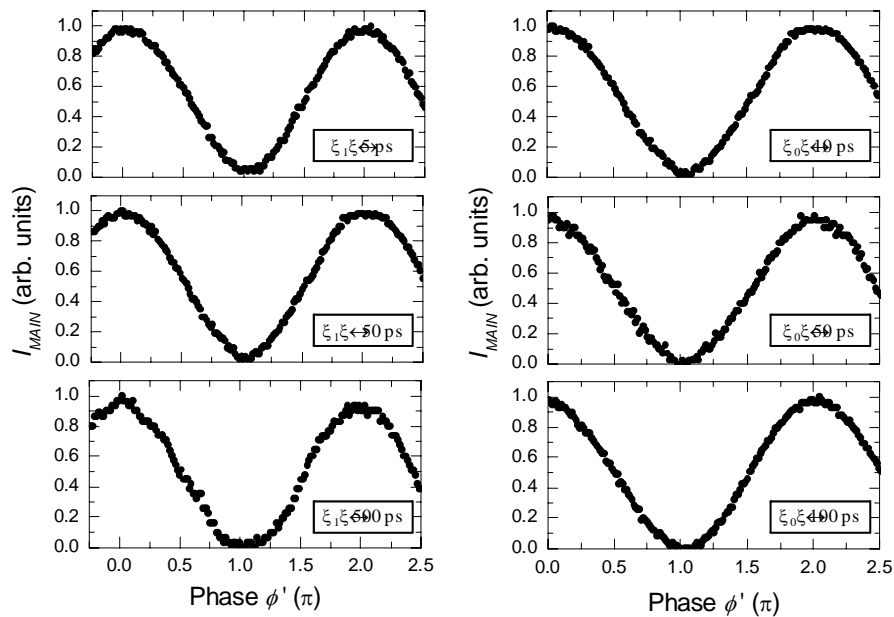


図2: 検出干渉計の位相 ϕ' 掃引時のフォトンエコー信号の干渉波形 ($\Theta_0 = \Theta_1 = \pi/2$, $\Theta_2 = \pi$)。左: Δ_1 依存性 ($\Delta_0 = 10$ ps)、右: Δ_0 依存性 ($\Delta_1 = 100$ ps)。

半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用—励起子ラビ振動制御—

光と2準位系との基本的な非線形コヒーレント相互作用であるラビ振動に関して研究を進めた。フォトンエコー信号の強度 I_{PE} は、理想2準位系の場合 $I_{PE} \propto \sin^2 \Theta_1 \sin^4(\Theta_2/2) \exp(-4\tau/T_2)$ と表すことができる。したがって、パルス面積 $\Theta_i = \int dt(\mu E_i(t)/\hbar) (i=1,2)$ を変化させることにより I_{PE} に振動構造が現れる。これは励起子分極のラビ振動を制御していることに相当する。図3左図に、 k_1 パルスの平均面積 Θ_1 依存性におけるフォトンエコー信号強度 $I_{PE} (\tau = 20\text{ps})$ を測定した結果を示す。 Θ_1 は k_1 パルスの強度を変化させることにより制御している。図3左図より I_{PE} に明瞭な振動構造が見られることがわかる。平均パルス面積を別の実験における結果を基にラビ振動実験とは独立に見積もってみると、観測された振動構造の周期はほぼ π となっており、ラビ振動特有の振る舞いを示すことがわかる。しかしパルス面積の大きな領域においてはラビ振動が大きく減衰しており、理想2準位系における結果と大きく異なる。

本研究では、パルス面積の不均一性を取り入れたラビ振動の解析を行ない、計算結果(図3右図)が実験結果を良く再現することを見出した。計算ではパルス面積の不均一性により生じるフォトンエコー信号の空間分布と、フォトンエコー信号が検出器に到達するまでの伝搬効果を取り入れた詳細な解析を行ない、入射光電場の空間分布と伝搬効果が、量子ドット集合体における巨視的ラビ振動の減衰に大きく影響することを初めて見出した。フォトンエコー信号の伝搬効果まで取り入れて解析をした報告は他になく、2準位系集団におけるラビ振動の基本的な振る舞いを理解する上で、重要な結果であると言える。このような詳細なラビ振動解析が可能となったのは、遷移双極子モーメントなど解析に必要な物理量がラビ振動実験とは独立に高い精度で求まっており、フィッティングパラメタを用いずにラビ振動の理論解析が行なえること、高い精度のフォトンエコー測定が可能であることによるものであり、本研究の独創的な点であると言える。一方でラビ振動に見られる3番目のピークや、時間領域にみられる振動構造など未だ説明できない興味深い現象も数多く観測されている。それら未解決の問題には、半導体量子ドット集合体の非線形コヒーレント相互作用に関する重要な物理が眠っているのではないかと考えており、今後も研究を継続していきたい。

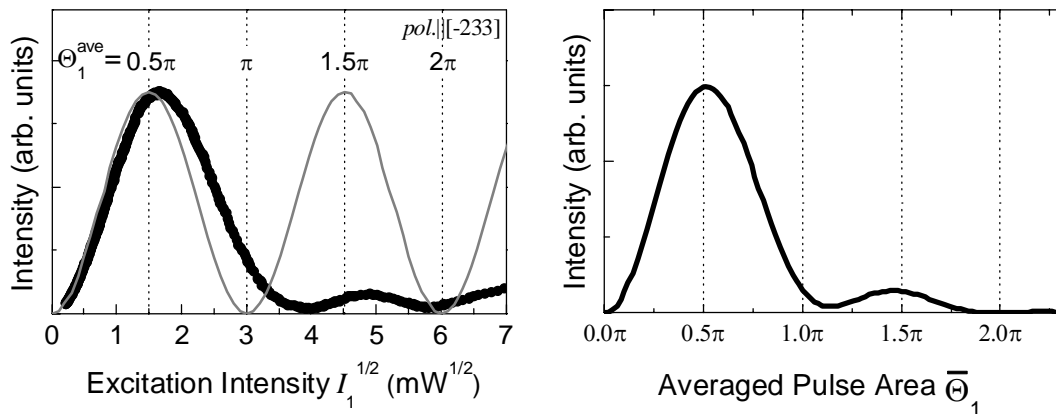


図3: フォトンエコー信号強度のパルス面積(入射光強度)依存性(温度 3 K)。左: 黒点は実験結果、実線は理想2準位系における計算結果。右: パルス面積の不均一性を取り入れた計算結果。入射光電場の空間分布により生じたフォトンエコー信号の空間分布およびフォトンエコー信号が検出器に至るまでの伝搬効果を考慮している。

歪補償量子ドットの位相緩和メカニズムの解明

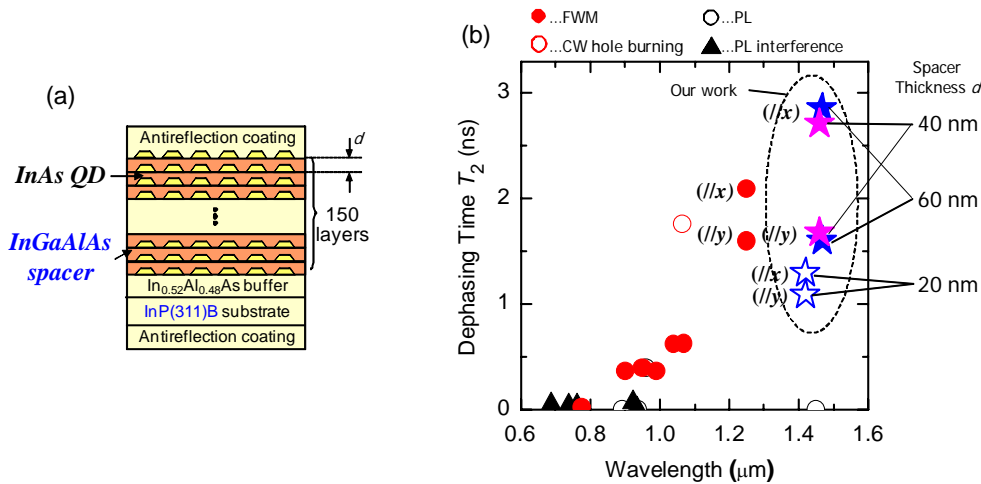


図4: (a)歪補償超積層 InAs 量子ドットサンプル構造の模式図。(b) In(Ga)As 自己形成量子ドットにおける位相緩和時間(温度3~10 K)。横軸は励起子基底状態の共鳴波長。

量子メモリの性能を決定する上で、半導体量子ドットの位相緩和やフォトンエコー変換効率などが重要な役割を果たす。本研究では、スペーサ層の厚さ d を変えた数種の歪補償量子ドットサンプル(図4(a))について、位相緩和メカニズムの比較を行なった。スペーサ層厚 d を変えることで積層方向の量子ドット間距離を変えることができるため、量子ドット間相互作用と位相緩和メカニズムとの関係を解明する情報を得ることができる。また d のより小さなサンプルにおいてはサンプル作製時間を短縮することができるため、作製条件最適化の点でも重要な情報を与える。

図4(b)に $d = 20, 40, 60$ nm の量子ドットサンプルにおける位相緩和時間を測定した結果を示す(温度 3 K)。比較のため、他のグループにより得られた位相緩和時間もプロットする。その結果、 $d = 40, 60$ nm のサンプルについては、位相緩和時間に大きな偏光依存性が見られ位相緩和時間が輻射寿命で決まる上限にほぼ達していること、位相緩和時間が非常に長いことが明らかとなった。また $d > 40$ nm のサンプルでは、全ての実験結果が孤立2準位モデルを用いて良く説明でき、量子ドット集合体が孤立した2準位系の集団として取り扱えることがわかった。一方 $d = 20$ nm のサンプルでは純位相緩和の寄与が大きく、他のサンプルと比較して位相緩和時間が短いことが明らかとなった。この結果は、何らかの量子ドット間相互作用が働いている可能性を示唆するものであり、興味深い結果である。

3. 今後の展開

さきがけ期間中に行なった実験は高強度コヒーレント光を用いたフォトンエコー量子メモリの原理実証実験であり、真の意味の量子メモリを実現するためには、単一光子レベルの微弱光領域において光位相の書き込み・保存・再生・読み出し実験を行なう必要がある。そのためには、通信波長帯における高時間分解能・高量子効率・低ノイズの単一光子検出技術を開発すること、高光非線形性を実現する新たな量子ドットサンプルを開拓することなどが必要となる。今後はこれらの研究を進展させ、微弱光領域での実験を行なっていきたいと考えている。歪補償量子ドット集合体におけるラビ振動制御や位相緩和メカニズムに関しては、一定の理解が得られたものの、未だ説明できていない現象も多々発見されている。これら未解決の問題には興味深い物理が眠っている可能性が高く、今後も研究を続けて未解決問題を解明していきたいと考えている。歪補償量子ドットは、従来にない高い精度の光物性測定を可能にする稀にみる良質な量子ドットサンプルであり、半導体量子ドットにおける物理を解明する上で大きな武器になると考えている。

4. 自己評価

本研究の目的は、(1)半導体量子ドットを用いたフォトンエコー量子メモリの原理実証、(2)半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明であった。(1)については、位相制御フォトンエコー測定系を新たに構築し、光パルス間の相対位相・相対振幅に符号化された情報を、歪補償半導体量子ドット集合体へ高い忠実度で書き込み・読み出しすることに成功した。この結果は、通信波長帯・広帯域・長時間帯域幅積・マルチモードパルスの適用を可能とする、今までにない性能をもつ固体量子メモリの実現可能性を示したものであり、十分評価できる。しかしながら、さきがけ期間中に行なうことが出来たのは高強度コヒーレント光を用いた原理実証実験であり、単一光子レベルの微弱光を用いた実験には至らなかった。その理由は、さきがけ期間中に2回研究場所を異動し、ほぼ1人で研究室を0から立ち上げなければならなかったことによるものであるが、一方でさきがけ期間中に自身の研究室をもち研究環境・基盤を整備することができたことは、さきがけ研究における大きな成果であったと言える。

(2)については、歪補償量子ドットにおける精度の高いフォトンエコー測定を進めることによって、励起子ラビ振動における新たな減衰メカニズムを解明したこと、位相緩和メカニズムのスペーサ厚依存性を明らかにしたことなどの成果を上げた。半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用に関して理解を深められたことは、意義のある成果であると言える。一方で、高光非線形をもつ量子ドットサンプルの探求まで至れなかったのは残念であり、今後研究を発展させていきたいと考えている。

5. 研究総括の見解

フォトンエコー法を用いた量子メモリの原理実証と、半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明に取り組み、従来の報告よりも数桁広い帯域の光パルス位相の書き込み・保存・再生・読み出しに成功した。また、励起子ラビ振動制御においても計算結果が実験結果を良く再現することを見出した。高い精度のフォトンエコー測定を可能とし、遷移双極子モーメントなど解析に必要な物理量をラビ振動実験とは独立に高い精度で求め、フィッティングパラメータを用いずにラビ振動の理論解析を行なったことが、本研究の独創的な点である。

主たる成果は次の3点である。

- (1)位相制御フォトンエコー系にて、歪補償半導体量子ドット集合体への高忠実度書き込み・読み出しに成功し、適用可能な光パルスの時間帯域幅積が 10^3 に迫ること、 10^2 個のマルチモードパルス列の適用可能性を確認した。
- (2)半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用解明において、励起子ラビ振動における新たな減衰メカニズムを解明し、入射光電場の空間分布と伝搬効果が、量子ドット集合体における巨視的ラビ振動の減衰に大きく影響することを初めて見出した。

研究成果は主に 5 編の原著論文に纏められているが、その高い評価は、「文部科学大臣表彰 若手科学者賞」受賞など多数の受賞、招待講演に結びついている。

今後、原理実証実験から単一光子レベルの微弱光を用いた実験へと発展させ、本研究で提案した手法が、通信波長帯・広帯域・長時間帯域幅積・マルチモードパルスの適用を可能にする今までにない性能をもつ量子メモリ実現の可能性開拓へと発展することを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

- ・ M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Optical Rabi oscillations in a quantum dot ensemble”, *Applied Physics Express* **3**, 092801 (2010).
- ・ J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, M. Kujiraoka, K. Ema, and M. Sasaki, “Exciton coherence in semiconductor quantum dots”, *physica status solidi (c)* **6**, 162 (2009).

Invited Paper

- M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Ensemble effect on Rabi oscillations of excitons in quantum dots”, *physica status solidi (a)* **206**, 952 (2009).
- J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, M. Kujiraoka, K. Ema, and M. Sasaki, “Correlation effect of Rabi oscillations of excitons in quantum dots”, *Journal of Luminescence* **128**, 1016 (2008).
- M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Radiative and non-radiative relaxation of excitons in strain-compensated quantum dots”, *Journal of Luminescence* **128**, 972 (2008).

(2)受賞

- 2008年7月 ICOOPMA08 Poster Prize
受賞者: M. Kujiraoka, J. Ishi-Hayase, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki
表彰業績名: 「Ensemble effect on Rabi oscillations of exciton in quantum dots」
表彰主催団体: Third International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA08)
- 2009年4月 平成21年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞,
表彰業績名: 「通信波長帯における半導体量子ドット量子コヒーレンスの研究」
表彰主催団体: 文部科学省
- 2010年3月 第4回 日本物理学会若手奨励賞(領域5)
表彰業績名: 「歪補償半導体量子ドットにおける励起子量子コヒーレンスの研究」
表彰団体名: (社)日本物理学会

(3)著書・解説論文

- 早瀬潤子, “「量子ドットエレクトロニクスの最前線」第2編第3章第4節「通信波長帯における歪補償量子ドットの励起子コヒーレンス」”(分担執筆), 株式会社エヌ・ティー・エス (2011).
- 早瀬潤子, “松岡正浩・平野琢也・岩本敏監修「基礎からの量子光学」第3部第14章「量子ドットの基礎と量子情報分野への応用」”(分担執筆), オプトロニクス社(2009).
- 早瀬潤子, “光-量子ドット相互量子制御-量子メモリの実現に向けて-”, *レーザー研究* **37**, 38 (2009).
- 早瀬潤子, “量子ドットの基礎と量子情報分野への応用展開”, *オプトロニクス* 2008年6月号 (2008).

(4)招待講演

- 早瀬(伊師)潤子, “歪補償半導体量子ドットにおける励起子量子コヒーレンスの研究”, 日本物理学会 第65回年次大会, 岡山大学津島キャンパス (2010. 3.).
- 早瀬(伊師)潤子, “量子ドット集合体における励起子コヒーレンスの物理と制御”, 第7回先端光量子科学アライアンスセミナー, 慶應義塾大学日吉キャンパス (2010. 3.).
- J. Ishi-Hayase, “Exciton coherence in semiconductor quantum dots”, EXCON'08, Kyoto University, Kyoto, Japan (2008. 6. 25). *Plenary Talk*
- J. Ishi-Hayase, “Coherent dynamics of exciton qubits in strain-compensated quantum dots”, First International Symposium on Interdisciplinary Materials Science (ISIMS-2008), Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan (2008. 3.).
- 早瀬(伊師)潤子, “歪補償量子ドットにおける励起子コヒーレンスと光波・量子通信への応用”, 特定領域研究「新世代光通信へのイノベーション」第2回量子情報ミニ研究会, 地方職員共済組合有馬保養所瑞宝園 (2008. 7.).

(5) 学会発表(国際会議)

- J. Ishi-Hayase, M. Kujiraoka, S. Mitsutake, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Excitonic Rabi oscillations in a strain-compensated quantum dot ensemble”, 30th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2010), COEX, Seoul, Korea (2010. 7.).
- J. Ishi-Hayase, M. Kujiraoka, S. Mitsutake, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Effect of Inhomogeneity on excitonic Rabi oscillations in a quantum dot ensemble”, The 9th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials (EXCON’10), Novotel Hotel, Brisbane, QLD, Australia (2010. 7.).
- J. Ishi-Hayase, S. Mitsutake, M. Kujiraoka, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Multi-Wave-Mixing Photon-Echo in Strain-Compensated Quantum Dots”, International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics (ISQNN2009), Kamaba Research Campus, The University of Tokyo, Japan (2009. 11.).
- J. Ishi-Hayase, M. Kujiraoka, K. Akahane, N. Yamamoto, K. Ema, and M. Sasaki, “Multi-wave mixing in strain-compensated quantum dots”, The 16th international conference on Electron Dynamics In Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON 16), Le Corum de Montpellier, Montpellier, France (2009. 8.).

研 究 報 告 書

「デコヒーレンスフリーな非発散波束の生成と量子制御への応用」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：前田 はるか

1. 研究のねらい

発散しない量子波束は古典論との対応原理の問題として量子論の正当性が議論されはじめた当初からの原理的テーマである。その当時既に Schrödinger は調和振動子の波動関数をコヒーレントに重ね合わせた波束の時間発展が古典的な粒子の運動に対応することを示したが、一方自然界の物質系では非調和ポテンシャルが普通であるため、その様な系で運動する波束は通常時間と共に発散してしまうことも早くから指摘されていた。近年モードロック短パルスレーザーの出現及びパルス波形整形技術などの著しい発展に伴い、我々の量子波束に対する理解が飛躍的に深まった。と同時に、波束のダイナミクスを能動的に制御する試みが物理や化学の枠組みを超えて急速に展開され、今日では量子制御の中心的技術の一つとして利用されているのみならず、量子情報処理に応用しようとする試みも行われている。しかるに、本質的に位相の擾乱に対して脆弱な波束を長時間にわたり保持し制御する決定的な方法はいまだ確立されておらず、その類の波束の生成機構の解明並びにその制御の方法論の開拓は新しい量子制御の展開をもたらすことが期待されるテーマである。

近年、本さきがけ研究者らは、世界に先駆けて生成・観測に成功した発散しない波束が、極端に長寿命であると同時に高度な制御も可能である特異な波束であることを明らかにした。本さきがけ研究では、この新奇な非発散波束及びそれが関わる物理現象を迅速且つ高い精度で検出、或いは観測するための装置を開発し、非発散波束の物理を深く理解するための幾つかの原理的実験を行うと共に、非発散波束を用いた“最も古典的”な原子状態の生成、非発散波束の関わる多準位系の多光子吸収現象に関する幾つかの実験、より複雑な系における非発散波束の励起の試み、極低温リユードベリガス中に非発散波束を励起することを試みる実験などを行うことを通じて、学術的には我々の量子力学と古典力学の対応原理に対する理解を一層深める新たな契機を提供すると共に、非発散波束の特徴を利用したこれまでにない量子制御や量子情報操作の技術の開拓を行うことを、当初の研究のねらいとした。

2. 研究成果

(1)最も古典的な原子状態＝円形非発散波束の生成と検出

本さきがけ研究者が初めて観測した非発散波束は、高励起(リユードベリ)状態にあるリチウム(Li)原子に直線偏光した微弱な共鳴マイクロ波を照射することで生成した、線形の波束であった(図1参照)。そこでは共鳴マイクロ波に電子波束が位相同期され、少なくとも数万回も周期的な軌道運動を行うことが観測された。本さきがけ研究ではこれを発展させ、“最も古典的”な原子状態、即ちボーア原子の如くに振る舞う円形非発散波束(図2参照)の励起と観測を行い、これに世界で初めて成功した。

実験では、高真空中で基底状態のLi原子を数種類のパルス波長可変レーザーを用いてリユードベリ状態に励起し、その後直線偏光した微弱な共鳴マイクロ波(周波数17.5 GHz)を照射して線形の非発散波束を生成し、更に照射するマイクロ波の偏光を断熱的に直線から円に変化させることで円形の非発散波束を励起する方法を適用した。円形非発散波束の検出

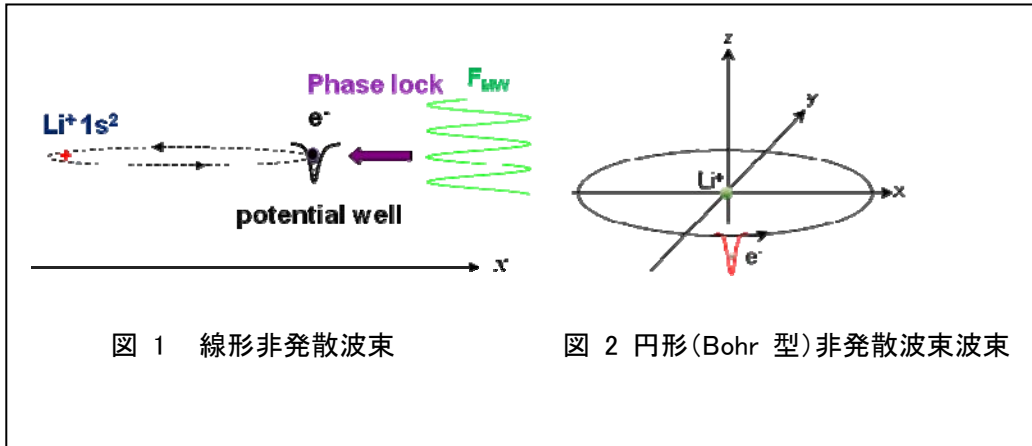


図 1 線形非発散波束

図 2 円形(Bohr 型)非発散波束波束

には、マイクロ波に位同期した二つのサブピコ秒のテラヘルツ ハーフサイクルパルスを用いて撃力を(例えば図 1 の x 軸及び y 軸方向から)与えることで、波束の(xy 平面上での)二次元的な運動を検出している。さらに、この円形波束は線形非発散波束と同様、極めて長い時間の間発散せずに軌道運動することも確かめた。この結果は米国物理学会の web Journal, Physics に紹介された(Physics 2,19 (2009))。

(2) 非発散波束を用いた原子の配向制御の実現

本実験では、非発散波束の運動が共鳴マイクロ波に位同期されることを利用すると“原子の軸”の向きを自在に変化できることも明らかにした。図 3 ではリュードベリ状態にあるリチウム原子(図 3(1))に y 軸方向に偏向した共鳴マイクロ波を照射することで y 軸方向に“軸”を持つ線形非発散波束((2))を励起し、その後マイクロ波の偏向を直線から円偏向にすることで円

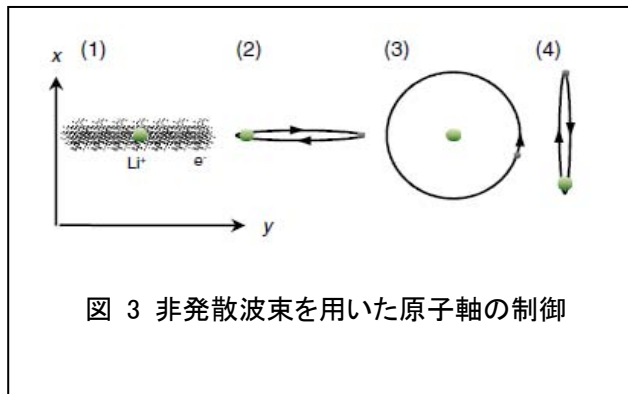


図 3 非発散波束を用いた原子軸の制御

形非発散波束を生成((3))した後、さらにゆっくりと共鳴マイクロ波の y 偏光成分を減衰させて x 軸方向に沿った偏光成分のみを残すことで、最終的には x 軸方向に“軸”を持つ原子状態((4))を生成できる様子を示している。実験ではこの様子をハーフサイクルパルスを用いて観測した。位同期を用いた原子・分子の軸制御の実験研究は、本研究者の知る限りでは報告されていない。特に強調すべき点は、本手法では非発散波束を利用していることからデコヒーレンスに対してロバストであるという特徴をもつことである。

(3) 非発散波束生成制御実験装置の開発

通常、非発散波束の実験はリュードベリ原子を用いて行う。これはリュードベリ原子の構造が極めて単純明快であること、及びリュードベリ原子の共鳴周波数がミリ波マイクロ波の領域にあることに起因する。非発散波束は多準位系に共鳴電磁波を照射することで生成出来ると考えられ、従って非発散波束を深く理解するための実験研究を行う場合にはリュードベリ原子をもちいることが最も適切である。本さきがけ研究では、日本で初めて非発散波束の研究に特化した実験装置の開発を行い、その立ち上げに成功を修めた。特筆すべき点は、使用するパルスレーザーすべてが高い繰り返し数(kHz)のもので構成されている点である。特に、リュードベリ原子を励起するために用いる波長可変 kHz レーザーシステムは、本さきがけ研究者が中心となって独自に開発したものを採用している(図 4 参照)。励起レーザーには kHz 発振のパルス Nd:YLF レーザーを用い、レーザーパルスを二つのポッケルズセルに

よって 3 つに時間分割し、分割したビームをそれぞれ Littman 型の色素レーザーの励起用光源として用いている。この結果、少なくとも 4 台の色素レーザーを同時に発振させることに成功した。このことは、本装置が Li のみならず多くの原子の励起に対して十分な性能を持っていることを意味する。

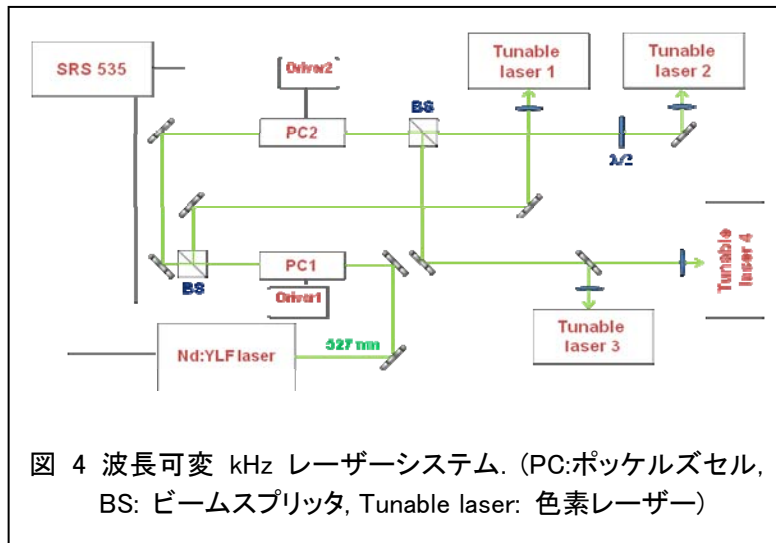
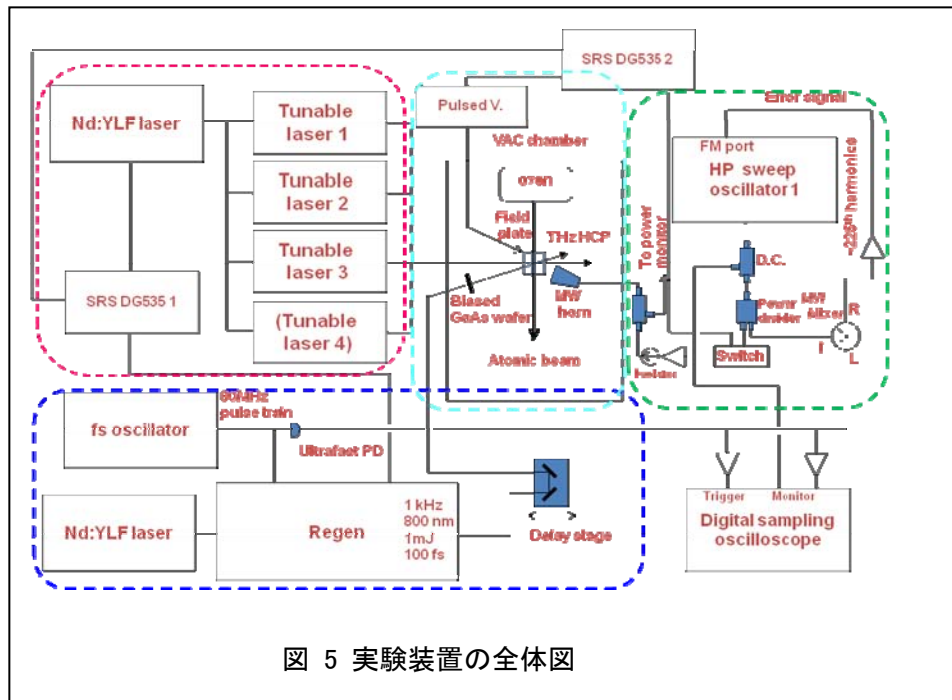


図 5 には開発した装置の全体図を示す。装置は大別して上述の波長可変 kHz レーザーシステム、再生増幅フェムト秒レーザーシステム、マイクロ波システム、及び真空装置から成り立っている。フェムト秒レーザーシステムは高繰り返しのコマーシャル製品を使用している。マイクロ波システムではフェムト秒レーザーに位同期した CW マイクロ波をパルス化し



てから増幅し、それを真空容器内に導入して原子に照射することを行っている。真空装置内ではフェムト秒パルスを変調した GaAs 半導体に照射してハーフサイクルパルスを生成し、それを原子に照射している。Li 原子は真空装置内で抵抗加熱により蒸気化し、ビーム状に整形している。ハーフサイクルパルスによってイオン化された原子波束は電場によりマイクロチャンネルプレートに加速して検出している。原子に非発散波束が生成されている場合、照射するハーフサイクルパルスのタイミングを変化させてイオン化信号を検出すると図 6 の様に sinusoidal な信号が観測されることとなる。図には 17.3 GHz のマイクロ波を主量子数 $n = 72$ の Li 原子に照射した場合の例が示されており、信号のピークとピークの間隔が

ちょうど 17.3-GHz マイクロ波の一周期、即ちほぼ 60 ピコ秒に相当していることが認められる。本測定にかかる時間は高々1分程である。

以上、本装置では励起・イオン化のレーザーがすべて 1 kHz の高繰り返しで稼働し、データの取得が極めて短い時間で終了するという一大特徴がある。これを利用することで今後多くの実験を迅速に行うことが期待される。

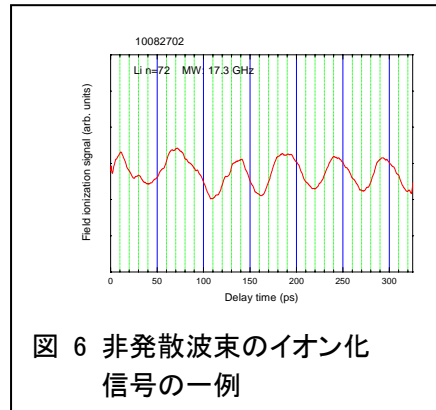


図 6 非発散波束のイオン化信号の一例

(4)量子ラダーシステムの多光子遷移・イオン化の観測

現在我々の、多準位系が介する非線形多光子現象に対する理解度は十分とは言い難く、そこには研究すべきテーマが山積する。本さきがけ研究者は、特にラダーシステム(ここではリュードベリ原子)、即ち隣接する準位の間隔が少しずつ異なる様な準位構造をもつ多準位系に共鳴電磁波(ここではマイクロ波)を照射することが、非発散波束を生成することに他ならないことを明らかにした。これを発展させて、本さきがけ研究ではマイクロ波によるリュードベリ原子の多光子遷移・イオン化に関する幾つかの実験を行った。その結果、原子の多光子イオン化が光電効果によるイオン化に移行する様子をはじめて観測することに成功した(図 7 参照)。図中に示されているグラフには、17 GHz のマイクロ波をリュードベリ原子に照射した時の原子のイオン化の確率を、原子のエネルギーに対してプロットしており、明らかにイオン化限界付近で 1 ~ 数光子イオン化を示す規則的なピークが認められる。もちろんピークの間隔はマイクロ波のエネルギーに相当している。もう一つの驚くべき結果は、一般的に N 光子イオン化(N はイオン化するために原子が吸収する光子数)の確率は光の強度の N 乗に比例すると見積もるのが妥当とされているが、この場合にはその規則が全く当てはまらないという観測結果である。本研究ではこれが多準位系の光イオン化に特有の現象であることを明らかにした。

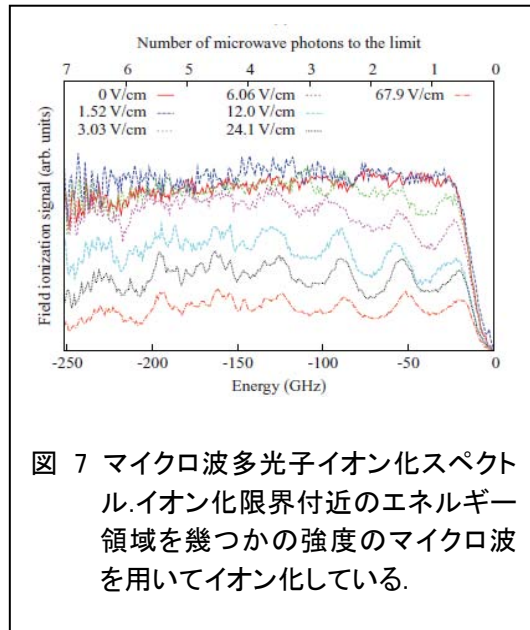


図 7 マイクロ波多光子イオン化スペクトル.イオン化限界付近のエネルギー領域を幾つかの強度のマイクロ波を用いてイオン化している.

さらに、マイクロ波によるリュードベリ原子の多光子イオン化現象は量子カオスを研究する上で最も簡単な例の一つとして長い間研究されてきた。その過程で、照射するマイクロ波の周波数が原子の内部(古典的)周波数とほぼ同等か或いは大きい場合には、原子が“イオン化されにくくなる”現象が実験的に確かめられた。これは量子干渉効果に基づく局在現象のあらわれと理解されている。本さきがけ研究者は、ラダーシステムのイオン化に周波数チャープを持つ電磁波を用いることで量子局在効果を低減できることを実験的に明らかにした。これに関連して興味深い実験は、一度ラダーシステムに非発散波束を生成し、続いて照射する電磁波の波長をゆっくりと長波長側に変化させ、最終的にはたかだか非発散波束を“保持”するのに必要な電場強度でラダーシステムをイオン化する実験であろう。例えば $n = 70$ 程度

の原子状態は 10 V/cm 以上の強度の 18-GHz マイクロ波がそのイオン化に必要と見積もられるが、一方 $n = 70$ に非発散波束を生成し保持するにはたかだか 1 V/cm 程度の 18-GHz のマイクロ波が必要となるだけである。よって、1-V/cm, 18-GHz のマイクロ波を原子に照射し非発散波束を生成してから、マイクロ波周波数を徐々に小さくしていくだけで原子のイオン化が可能と見積もられる。ただし、これを実験で確かめることは今後の課題である。

3. 今後の展開

非発散波束を用いて量子系を制御する方法を、量子位同期法＝量子系の持つ固有の内部周波数を外部クロックに同期させることで量子系の制御を行う方法、と名付けた場合、本研究の今後はまず、量子位同期法の可能性をより具現化する方向に展開させていくことが考えられる。この場合、研究はビームを用いた研究とトラップされた原子を用いて行う研究の二種類を考えている。

前者の研究の利点は比較的实验を簡単に行える点、及び多種多様の原子、或いは分子を用いた実験が可能である点である。例えば、早急に試みるべき実験として、非発散 angular 波束の励起を挙げることが出来る。これはこれまで行ったものと同様の実験を電場中で行うことで遂行できると考えられる。更に、既述した様に二つの電子に二つの非発散波束を同時に励起する実験も興味深い。二つの電子波束を励起しそれらを制御する試みはこれまで全くといっていいほど報告されておらず、一般に行われてきた原子・分子の量子制御研究の枠組みを超えた実験研究となり得る可能性を秘めている。更に、非発散波束の重ねあわせ状態を励起することを試みる実験は、原子の内部状態を制御する強力な手法を追求するための意義深い実験である。

また、分子を対象とした実験研究も考えられる。実際、全く同じ物理の枠組みで、例えば二原子分子をモーターのように自在に回転出来ることが示唆されており、これを実証することは有意義である。当然、多原子分子や巨大分子への適用は最も興味深い。従来法とは異なる量子操作技術である量子位同期法を用いた原子・分子のデバイス化、あるいは原子・分子反応の制御の実用化をめざすものである。

このことを踏まえた場合、これまでビームで行ってきた実験は、次の段階ではトラップされた原子を用いて再現することが自然な流れであろう。その他のモチベーションを記するならば、例えば極低温リユードベリガス中に二準位非発散波束を励起することは、そこにリユードベリブロケイド効果を期待することができ、中性原子を用いた量子情報処理を行う上で大切な基礎技術となり得る。また、極低温プラズマの再結合、リユードベリ原子のエネルギー制御などは反水素原子の物理と密接に関わるテーマであり、そこで非発散波束や共鳴マイクロ波の果たす役割は大きいであろう。また、トラップされた極低温原子ガスに非発散波束を励起することは巨大な振動双極子を生成することに他ならず、それによる多体効果・巨視的效果(例えば超放射など)の研究も興味深い。

ところで、磁気光学トラップ中に生成される極低温原子ガスには、条件を精密に変化させることによって、原子間、原子－電子間、原子－分子間、あるいは分子－分子間での極低温相互作用に基づく多種多様の物理化学反応が発現することが理解されつつある。例えばトラップ原子をリユードベリ状態に励起した場合、原子間に働く双極子・双極子相互作用やファンデルワールス相互作用によるブロケイド効果の他に、自発的イオン化、多原子分子的挙動あるいはアモルファスガスとしての挙動などを示すことが実験的・理論的な研究により明らかにされている。

近年我が国でも、冷却中性原子を用いた実験的・理論的研究が盛んに行われており、ボーズアインシュタイン凝縮を対象とした研究はその端的な一例である。ところが本さがけ研究者の知り得る限りでは、これら多くの研究は例えば原子干渉や量子相転移、量子反射、光格子を用いた量子コンピュータをはじめとする量子デバイスの原理研究といったテーマを対

象とする、どちらかという物理的な興味に基づいた、あるいは物理的観点から俯瞰した研究がその大半を占めていると見受けられる。

一方、冷却粒子(=原子・分子・電子)同士が相互作用する反応のメカニズムの研究やその制御、あるいは冷却原子・分子の精密分光といった物理化学的な立場からの研究は、我が国ではどちらかというところ盛んには行われていない様子である。

この様な背景を鑑み、本さがけ研究の更なる展開のもう一つの方向として、冷却粒子(=原子・分子・電子)同士が相互作用する反応のメカニズムの研究やその制御、あるいは冷却原子・分子の精密分光といった、物理化学的な立場からの研究を行うことを考えている。そのために必要となる磁気光学トラップ装置は本さがけ研究期間中に作成を完了することが予定されており、さがけ終了後の研究の大きな柱の一つと考えている。

4. 自己評価

当初にかかげた目標に対して本さがけ研究で達成できたテーマの数は決して多くはないが、円形非発散波束を世界で初めて実験室で生成出来たことは十分に評価されるべき結果であると自負している。

また、我が国で初めて非発散波束の研究に特化した実験装置を立ち上げることができ、またその性能が他国のものと比べて格段に優れている点が、これも十分に評価に値するものであると共に、今後の非発散波束研究の発展を約束するものであると自負している。

さらに、さがけ期間中には成果として発表できなかったものの、今後の研究の発展に寄与するであろう数々の興味深い研究の芽を育む事が出来た自負する。また、今後の研究の展開を期待できる装置の立ち上げもほぼ達成することが出来たと考えている。

今後はこれらさがけ研究で得られた有形無形の財産を決して無駄にせぬよう切磋琢磨し続けることが大切であると考えている。

5. 研究総括の見解

位相の擾乱に対して脆弱な波束を長時間にわたり保持し、波束ダイナミクスを能動的に制御するというフィールドに先駆的に取り組み、オリジナルなアイデアで円形非発散波束を世界で初めて生成するという成果を得た。

主たる成果は次の4点で、非発散波束研究の礎を築いたと言える。

- 1) “最も古典的”な原子状態、即ちボーア原子の如くに振る舞う円形非発散波束の励起と観測に世界で初めて成功した。
- 2) 非発散波束の運動が共鳴マイクロ波に位相同期されることを利用し“原子の軸”の向きを自在に変化できることを明らかにし、非発散波束を用いた原子の配向制御に成功した。
- 3) 非発散波束研究にはリユードベリ原子をもちいることが最も適切であるが、日本で初めて非発散波束の研究に特化した実験装置の開発を行い、その立ち上げに成功を修めた。
- 4) 隣接する準位の間隔が少しずつ異なる様な準位構造をもつ多準位系に共鳴電磁波を照射することが、非発散波束を生成することに他ならないことを明らかにし、原子の多光子イオン化が光電効果によるイオン化に移行する様子をはじめ観測することに成功した。

今後の展開として、二つの電子に二つの非発散波束を同時に励起する実験が述べられているが、二つの電子波束を励起しそれらを制御する試みは原子の内部状態を制御する強力な手法開発に繋がる。冷却粒子(=原子・分子・電子)同士が相互作用する反応のメカニズム解明と制御、あるいは冷却原子・分子の精密分光といった研究へ発展して行くことを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1.	H. Maeda, J.H. Gurian, and T.F. Gallagher, “Nondispersing Bohr wave packets”, Phys. Rev. Lett. 102 , 103001 (2009); <i>ibid.</i> , 103 , 149302 (2009).
2.	J.H. Gurian, H. Maeda, and T.F. Gallagher, “KHz dye laser system for high resolution spectroscopy”, Rev. Sci. Instrum. 81 , 073111 (2010).
3.	J.H. Gurian, K.R. Overstreet, H. Maeda, and T.F. Gallagher, “Connecting field ionization to photoionization via 17- and 36-GHz microwave fields”, Phys. Rev. A. 82 , 043415 (2010).

研 究 報 告 書

「フラクタル構造における光制御可能性の探索と光機能素子の創製」

研究期間：平成 19 年 10 月～平成 23 年 3 月

研究者：宮丸 文章

1. 研究のねらい

人工的に作製した金属微細構造によって、これまでにない新たな光学特性をもつ物質を創製することが本研究の目的である。また新たな特性を用いた光機能素子への応用を目指す。具体的には、金属の微細構造として大きく分けて次の 3 つの構造を用いる。

(1) プラズモニック結晶

プラズモニック結晶は、波長と同程度の間隔の周期構造を持った物質である。金属薄膜に周期的に開口を空けた構造において、ある周波数に特異的な透過ピークが現れる、“異常透過現象”が観測される。1998 年に Ebbesen らによって発表されたこの現象は、10 年以上経った後でも、そのメカニズムが明確に解明されていなかった。本研究では、この異常透過現象のメカニズムを解明し、さらにその特性を応用展開することが目的である。特に異常透過のメカニズム解明に関しては、長い間世界中で論戦が繰り広げられてきた、異常透過の担い手としての表面波の特性とその生成過程に関する知見を得ることが最大の目的である。

(2) メタマテリアル（微細構造のサイズがサブ波長サイズ）

メタマテリアルは、波長よりも十分に小さなサブ波長構造によって、有効誘電率と有効透磁率を自在に制御し、自然界には存在しない光学特性をもつ物質を実現しようとするのが目的である。現在のメタマテリアル研究において、最大の問題は 3 次元の試料を作製することが困難なことである。メタマテリアル研究でよく使用される構造として、金属円環の一部にギャップが存在する形状の分割リング共振器(SRR)がある。磁場ベクトルを、円環面を貫く方向に向けた電磁波を入射すると、分割リング共振器が高周波の LC 回路として働き、ある周波数で磁気共鳴が起きる。その磁気共鳴によって有効透磁率を変調させる。テラヘルツ波領域では、これまでフォトリソグラフィ技術によって 2 次元面上の SRR が作製されていた。しかし 2 次元の SRR では、磁場ベクトルを円環面に垂直に向ける実験が非常に困難であり、電場による磁気共鳴のような間接的な方法で、SRR の磁気共鳴の存在が確認されていた。そこで本研究では、3 次元の SRR メタマテリアルを作製することにより、テラヘルツ領域において、純粋な磁気共鳴を観測することを目指す。さらに、その作製技術を用いて、テラヘルツ領域の 3 次元負屈折率物質を作製することを目指す。

(3) フラクタルメタマテリアル

フラクタルは、自己相似形の微細構造であり、目的とする波長よりも小さなサイズから、波長よりも大きなサイズまでをすべて含んだ構造である。本研究では、フラクタルをメタマテリアルのユニットセルのデザインとして使用した際の、フラクタル特有の光学特性を発見することを目的とする。またその光学特性を、テラヘルツ波放射用の光伝導アンテナに適用することによって、新規の有用なテラヘルツ波放射素子の開発を目指す。

2. 研究成果

(1) プラズモニック結晶

本研究では、金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象のメカニズムを解明し、最後まで残されていた問題に対する解答を見いだした。さきがけ研究における、重要な成果は次の2点である。

1 つめは、開口サイズによって表面波励起メカニズムから局所共鳴メカニズムへ移り変わることを実験により見いだした。図 1(a)の挿入図に本実験で使用した、正方開口アレイの模式図を示す。正方開口の間隔は 500 ミクロンで固定し、入射電磁波の電場成分に垂直な方向の開口サイズを 190 ミクロンから 450 ミクロンまで段階的に変化させた。そのときの透過スペクトルを図 1(a)に示す。開口サイズが大きくなるに従って、透過ピークが低周波数シフトしているのがわかる。このような開口サイズによる透過スペクトルの影響は、それまえ主なメカニズムと考えられてきた表面波励起メカニズムでは説明できないものであった。しかし、ピーク周波数を、開口サイズの関数としてプロットすると、この特性の原因が明らかになる(図 1(c))。図 1(c)の○が実験で得られた透過ピーク周波数をプロットしたものである。赤い実線が、正方開口のサイズから計算される、局所共鳴(金属スロットの半波長共鳴)の共鳴周波数である。また黒の点線が、表面波の励起周波数である。今、開口の間隔は固定しているため、表面波の励起周波数は開口のサイズによらず一定である。もし透過ピークの原因が、表面波励起によるもののみであれば、透過ピークの周波数は変化しない。しかし実際には、開口サイズが小さいときは表面波の励起周波数付近にあったピーク周波数が、開口サイズが大きくなるに従って、ピーク周波数は低周波数側にシフトし、赤の実線に一致するようになる。この結果は、これまで1つのメカニズムで考えられてきた透過ピークの原因が、実は2つのメカニズムによるものであることを意味している。どちらのメカニズムがより支配的になるかは、開口のサイズによって決定され、中間のサイズでは、2つのメカニズムが競合し混じり合った状態になる。局所共鳴は、最近研究が盛んに行われているメタマテリアルの分野で頻繁に使用される基本原理であるので、本結果は、物質の特性がプラズモニック結晶からメタマテリアルへ移り変わる状態を観測したとともらえることができる。

2 つめの成果として、完全導体の開口アレイにおける表面波励起メカニズムの解明を行った。表面プラズモン励起によって金属表面に電磁波が局在することが、異常透過のメカニズムとして重要であることがわかっていたが、平坦な完全導体上では、理論上表面プラズモンが励起されない。テラヘルツ波やミリ波では、金属はほとんど完全導体と考えられるため、その領域で観測される異常透過には、表面波が本当に励起されているかどうか不明であった。また従来の周期的な開口アレイでは、波長と同じ周期で開口が存在するため、それまでシミュレーションなどで観測されていた金属表面での局在電磁波が、本当に表面波かどうか判断できなかった。その問題を解決するため、図 2(a)に示すようなカゴメ格子の金属開口構

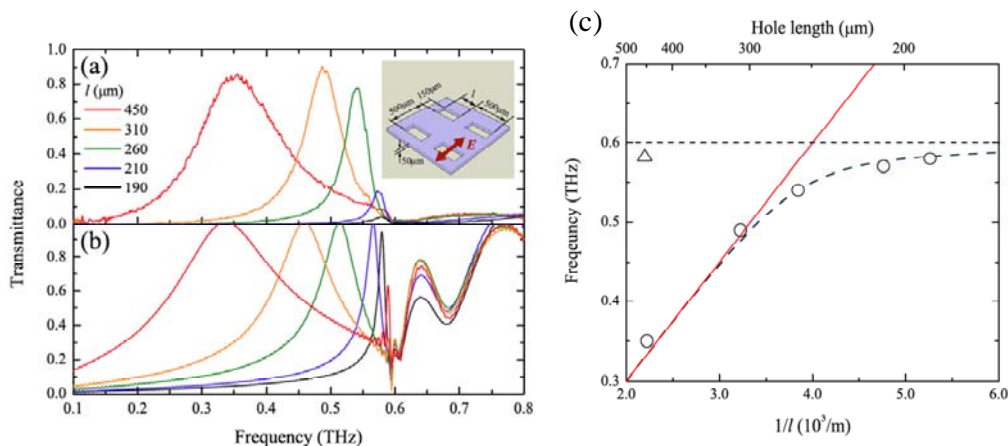


図1 (a) 方形開口アレイの透過スペクトル(実験), (b) 同透過スペクトル(シミュレーション), (c) 開口サイズに対する透過ピーク周波数

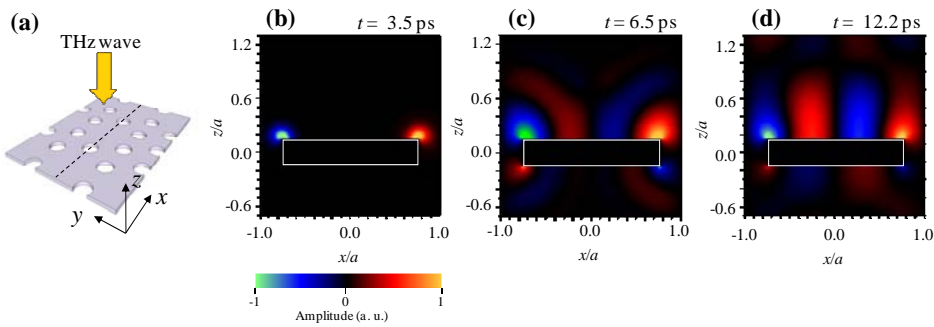


図2 (a) カゴメ格子開口構造, (b)-(d) 時刻3.5, 6.5, 12.2ps後の電場振幅分布

造を作製し、異常透過ピークを観測すると同時に、表面波の状態をシミュレーションにより解析した。その結果、平坦な完全導体表面にも電磁波が局在することを見いだした。さらに、その表面波の励起メカニズムも明らかにした。図 2(b)-(d)はカゴメ格子のユニットセルを断面から見た電場分布を示している。電磁波が入射した初期の時刻では(図 2(b))開口の外周エッジに、エッジモードと呼ばれる電磁波の局在が観測される。そのエッジモードが散乱され、導体表面に伝搬していき(図 2(c))、最終的に平坦な導体表面に表面波が励起される(図 2(c))。このような励起過程は、従来の周期開口アレイにも適用されるべきものであり、ミリ波から可視光領域までの非常に幅広い周波数領域で観測される異常透過現象に共通するメカニズムを提供するものであると考えている。

プラズモニック結晶における異常透過現象のメカニズム解明に加え、異常透過現象を利用した高感度センサへの応用展開も行った。表面波は、金属表面の状態に敏感に反応する。そのため、金属表面に付着させた微量な試料の状態変化や、付着量の変化を高感度でセンシングすることができる。このような方法は、可視光領域で表面プラズモンセンサとして利用されているが、共鳴周波数を任意に制御することは難しく、テラヘルツ波のような長波長領域での適用は困難であった。金属開口アレイでは、開口間隔によって共鳴周波数を任意に制御することができるので、センシング対象に適した周波数を選択することができ、そのため共鳴吸収のある試料などでは、非常に高感度なセンシングが可能となるメリットがある。この金属開口アレイを用いたセンシングに関する成果は、コニカミノルタ画像科学奨励賞とThe 2nd THz Awardを受賞している。

(2) メタマテリアル

現在のメタマテリアル研究において、最大の問題は 3 次元の試料を作製することが困難なことである。本研究では、3 次元の SRR メタマテリアルを作製することにより、入射磁場による純粋な磁気共鳴の観測に成功した。図 3(a)に、ユニットセルとして用いた分割リング共振器 (SRR) の模式図を示す。磁場ベクトルを、円環面を貫く方向に向けた電磁波を入射すると、分割リング共振器が高周波の LC 回路として働き、ある周波数で磁気共鳴が起きる。その磁気共鳴によって有効透磁率を変調させる。この SRR を 2 次元基板上に作製し、2 次元のメタマテリアルシートを積層させることによって 3 次元のメタマテリアルの作製を行った。その際、積層間隔は波長よりも短くする必要がある。そこで、本研究では図 3(b)に示すような、厚さ 100 ミクロンの PET フィルム基板を用いた。図 3(c)に、作製した 3 次元メタマテリアルの写真を示す。赤色の矢印の方向に、2 次元メタマテリアルシートを約 100 枚程度積層している。この試料において、約 18 万個ほどの SRR のユニットセルが使用されている。この試料の透過スペクトルを図 3(d)に示す。磁場ベクトルを SRR 面に垂直に向けた配置の場合(実線)、0.35THz 付近に共鳴ディップが観測されているのがわかる。この共鳴ディップが、SRR に対する純粋な磁気共鳴である。一方、磁場ベクトルを SRR 面に水平に向けた配置の場合(破線)、共鳴ディップが観測されていないことも、裏付けとなっている。またこの実験結果は、理論シミュレーション(図 3(e))ともよく一致している。

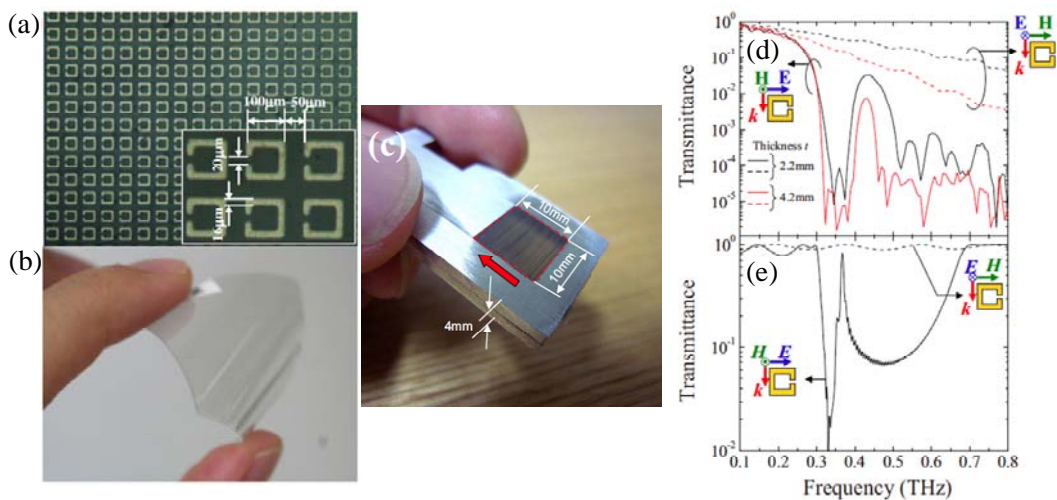


図3 (a) 分割リング共振器, (b) PETフィルム基板を用いたメタマテリアルシート, (c) メタマテリアルシートを積層した3次元メタマテリアル, (d) 3次元メタマテリアルの透過スペクトル, (e) メタマテリアルの透過スペクトルシミュレーション

上記とは異なるメタマテリアルの作製方法として、スーパーインクジェットプリンタ(SIJ)法を大阪大学との共同研究で行った。この方法では、1 フェムトリットル単位で液滴を吐出することができ、それにより約 1 ミクロンの精度で描画することができる。インクとして、金属微粒子含有インクを用いることができ、そのため本研究の目的であるメタマテリアルを作製することができる。SIJ のメリットは、フォトリソグラフィよりも簡単に複雑な形状の試料を作製することができる点である。

(3) フラクタルメタマテリアル

フラクタル構造をメタマテリアルのユニットセルとして使用することによって、SRR には無い特性が表れることを見いだした。図 4(a)に、作製したフラクタルメタマテリアルの模式図を示す。H 型の形状の相似形が、各 4 隅に取り付けられることによってフラクタルを形成している。透過スペクトルには、このフラクタル形状による共鳴透過ピークが観測される。ユニークな点として、フラクタルレベルが増加していくと、透過ピークの周波数が低周波数側にシフトしていくことが観測された(図 4(b))。さらに、共鳴周波数での電場分布を観測すると(図 4(c)), 共鳴モードに起因する電場局在が観測されるが、その局在形状がフラクタルレベルに関わらずほぼ等しくなっている。これは、共鳴波長に対する局在面積がより小さくなっていることを意味しており、高効率な近接場プローブなどへの応用展開が期待される結果であると考えている。

また自己相似形により、マルチ周波数で共鳴が生じるというフラクタルの特性を利用して、テラヘルツ波放射用の光伝導アンテナを作製

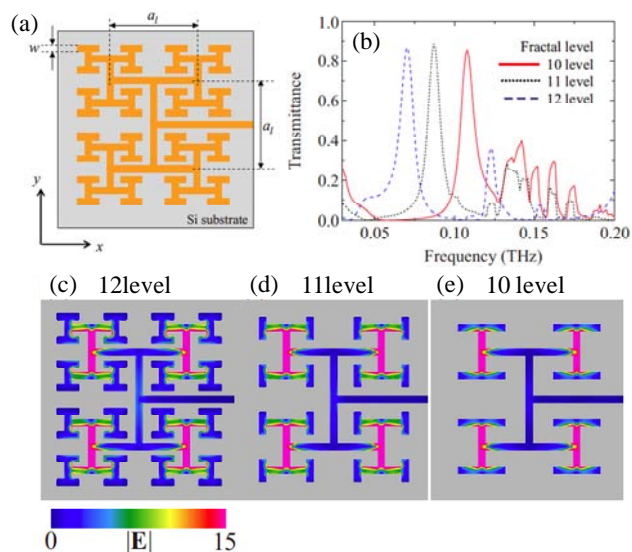


図4 (a) フラクタルメタマテリアルのユニットセル, (b) フラクタルメタマテリアルの透過スペクトル, (c)-(e) 各ピーク周波数における電場分布

した。図 5(b)の挿入図に、作製したフラクタル光伝導アンテナを示す。図 5(a)と(b)に、フラクタル光伝導アンテナからの、放射波形とその周波数スペクトルを示す。通常のダイポール型の光伝導アンテナとは異なり、幾つかの特定の周波数において共鳴的な放射ピークが観測されている。これらの放射ピークは、図 4(b)で観測されたフラクタルの電気共鳴に対応するものである。また、一般的に放射強度が強いと言われているボウタイアンテナと比較すると、共鳴ピークの強度で 2 倍程度大きくなることが観測された。テラヘルツ波技術の応用展開として、必ずしもブロードな周波数領域が必要なものばかりでなく、ある特性の周波数またはある特性の複数の周波数のテラヘルツ波のみが必要となることも考えられる。本研究成果は、そのような応用展開において、テラヘルツ放射素子のアンテナ設計の一つの指針となることが期待される。

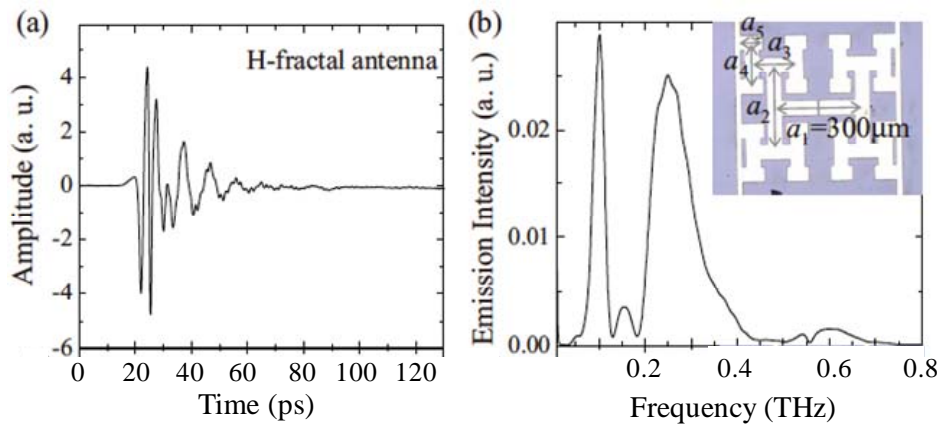


図5 フラクタル光伝導アンテナから放射されたテラヘルツ波の (a) 時間波形と (b) 放射スペクトル

3. 今後の展開

- (1) プラズモニック結晶において、今後は完全導体上に励起される表面波の特性を制御していこうと考えている。そのための方法の一つとして、擬似的な表面プラズモン(Spoof SPP)と呼ばれる概念が挙げられる。この概念では、波長よりも十分に小さなサブ波長の開口構造によって、金属面全体の有効誘電率を変化させることができる。それにより、表面波の金属面内での分散関係を制御することが可能になり、共鳴周波数や群速度、表面広がり長などの特性を制御することができると考えられる。
- (2) 3次元メタマテリアルにおいて、まだ負屈折率物質の作製には成功していない。今後は、テラヘルツ領域で負屈折を示す、3次元バルクメタマテリアルの作製を目指す。そのために、本研究で作製した SRR の 3次元メタマテリアルを有効透磁率の制御用として利用する。SRR の 3次元メタマテリアルの有効透磁率パラメータを測定することにより、負の透磁率を明確に示す試料の作製を行い、最終的に負の誘電率物質と組み合わせることにより、負屈折率物質の実現を目指す。
負屈折率物質以外に、メタマテリアルの 3次元化が要求されるものが幾つかある。その一つとして透明マントに代表される座標変換媒質がある。本研究では、負屈折率物質以外に、未だ実現されていないテラヘルツ領域の座標変換媒質の作製を行っていく予定である。
- (3) 光伝導アンテナにメタマテリアルのユニットセルを適用するというアイデアを今後も発展させ、従来のテラヘルツ波放射用光伝導アンテナではできなかったような特性を持つ、放射素子の開発を行っていく。

4. 自己評価

- (1) プラズモニック結晶に関しては、当初の目的である異常透過現象のメカニズムの解明を行い、長い間論戦が行われていた議論に、明確な解答のひとつを与えたものと考えている。また、この異常透過の応用展開の目的に対しては、微量物質の高感度なセンシング応用を提案・実証した。この成果は、2件の賞を受賞しており、対外的にも重要であるといえると考えている。
- (2) 3次元のメタマテリアルを作製し、テラヘルツ領域において純粋な磁気共鳴を観測する目的は果たしたと考えている。しかし、その次の目標であった、負屈折率物質の実現は残念ながら達成されていない。これに関しては、現在幾つかのメタマテリアル構造を作製し、試作している段階であり、今後早急に推進していくべき課題である。
- (3) フラクタル構造を用いたメタマテリアルにおいて、当初の目的である、フラクタルに特異的な光学特性を見いだしており、かつ光伝導アンテナに応用することによってマルチ周波数で共鳴放射するテラヘルツ放射素子を作製した。

5. 研究総括の見解

これまでになかった新たな光学特性を持つプラズモニック結晶、メタマテリアルなど人工的な金属微細構造作成技術を開発し、その特性解明と新しい物質の提案を目標に研究を行なった。下記3点の成果を得たが、特に、金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象のメカニズム解明は、高い評価を得て2件の賞を受賞している。

(1) プラズモニック結晶異常透過現象の解明とセンシング技術の提案:

金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象は、表面波励起メカニズムと局所共鳴メカニズムにより構成され開口サイズによってそのメカニズムが移り変わることを実証

し、完全導体の開口アレイにおける表面波励起メカニズムの解明に成功した。また、この異常透過を用いた“微量物質の高感度なセンシング応用”を提案しカゴメ格子ユニットセルとして実証した。

(2)メタマテリアル:

微細構造のサイズがサブ波長サイズの2次元メタマテリアルシートを積層する構造で3次元の分割リング共振器(SRR)メタマテリアルを作製し、これまで観測することが出来なかった入射磁場による純粋な磁気共鳴の観測に成功した。

(3)フラクタルメタマテリアル:

光伝導アンテナとして用いることの可能なフラクタルに特異的な光学特性見出し、マルチ周波数で共鳴放射するテラヘルツ放射素子を作製した。また自己相似形により、マルチ周波数で共鳴が生じるというフラクタルの特性を利用して、テラヘルツ波放射用の光伝導アンテナも作製した。テラヘルツ放射素子のアンテナ設計の一つの指針となることが期待される。

研究成果は幅広く、15編もの原著論文に纏められているが、その高い評価は2件の受賞、多数の招待講演に結びついている。

今後、プラズモニック結晶での表面波特性制御、テラヘルツ領域で負屈折を示す3次元バルクメタマテリアルの作製、光伝導アンテナへのメタマテリアルユニットセル適用、など新光機能素子への応用を切り拓くことを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1.	F. Miyamaru, Y. Saito, M. W. Takeda, B. Hou, L. Liu, W. Wen, and P. Sheng, "Terahertz electric response of fractal metamaterial structures", Physical Review B, vol. 77, p. 045124 (2008).
2.	F. Miyamaru and M. W. Takeda, "Coupling between localized resonance and excitation of surface waves in metal hole arrays", Physical Review B, vol. 79, p. 143405 (2009).
3.	F. Miyamaru, Y. Saito, M. W. Takeda, L. Liu, B. Hou, W. Wen, and P. Sheng, "Emission of terahertz radiations from fractal antennas", Applied Physics Letters, vol. 95, p. 221111 (2009).
4.	F. Miyamaru, S. Kubota, K. Taima, K. Takano, M. Hangyo, and M. W. Takeda, "Three-dimensional bulk metamaterials operating in the terahertz range", Applied Physics Letters, vol. 96, p. 081105 (2010).
5.	F. Miyamaru, M. Kamijyo, K. Takano, M. Hangyo, H. Miyazaki, and M. W. Takeda, "Characteristics and generation process of surface waves excited on a perfect conductor surface", Optics Express, vol. 18, p. 17576 (2010).

(2)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

受賞

1. コニカミノルタ画像科学奨励賞, “テラヘルツ光による癌診断イメージングシステムの開発” (団体名:コニカミノルタ画像科学振興財団)
2. The 2nd THz Award, “Highly sensitive terahertz imaging with plasmonic crystals” (団体名:European Optical Society)

研 究 報 告 書

「重力波検出技術が拓く超巨視的量子性の物理」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：三代木伸二

1. 研究のねらい

原子のサイズの世界と、それが莫大な数集合して形成されている日常我々がよく接する物体(超巨視的物体)では、その運動の見え方が大きく異なっている。その運動は、原子の世界では「量子力学」、日常生活では「ニュートン力学」で表現できる。ただし、極低温状態では、大きいスケールでも、量子渦など量子力学的世界の観測例はいくつかある。量子力学の世界では、ニュートン力学にはない様々な奇妙な現象が現れ、その応用は、現代科学技術の発展そのものである。本研究では、超巨視的物体でありながら、その動きを 10^{-18} [m/rHz] という極限的精度でその運動を観測し、かつ制御する事で、その超巨視的物体が「量子力学的振る舞い」をするのかどうか検証する事を究極の目標としている。もし、観測できれば、逆に、超巨視的物体を、日常生活の常識ではありえない、量子力学的にふるまわせる全く新しい手法が開発されるかもしれない。その超巨視的物体がどの程度、量子力学の世界に近づいたかを示すのが、「量子数」で定義される値であり、この値が1に近いほどよい。何もしない超巨視的物体の「量子数」は、はるか1億以上であり、量子力学の世界はかきけされて見えない。本実験では、まずは、「実験装置は常温のまま」でこの「量子数」を下げることを目指している。

2. 研究成果

本研究では、巨視的物体として、超精密長さ計測でよく利用されるレーザー干渉計で利用される、グラム～キログラムスケールの「鏡」を観測対象に設定している。そのために、周波数100Hz付近において、 10^{-18} ～ 10^{-19} [m/rHz]という極限的に小さな鏡の変位を検出しなければならないが、これを実現するために、レーザー干渉計を重力波望遠鏡として運用するために開発されてきた技術群を応用する。その経験によれば、この極限的に小さな感度を達成するために、残留ガス雑音、レーザー周波数雑音、レーザー強度雑音、レーザービームジッター雑音、地面振動雑音、制御にかかわる電気雑音、そして、鏡やそれを懸架する振り子の熱雑音など、様々な雑音源を除去し、光の量子性に起因する原理的な雑音である光のショット雑音と輻射圧雑音のみで決定される極限感度、つまり標準量子限界感度を目指さねばならない。その雑音の中でも、標準量子極限感度達成の最後の壁となるのが「熱雑音」である。しかし、このレーザー干渉計における「鏡」と「振り子」の熱雑音は、理論的考察はされているものの、鏡や振り子の機械的なロスが十分小さいレベルで直接的に観測し検証された例はあまりない。よって、まず、レーザー干渉計において発生する熱雑音を直接観測し検証し、その特性を熟知することは、本実験を進めるうえで非常に重要なステップである。

(1)レーザー干渉計における鏡と振り子の熱雑音の直接計測と揺動散逸理論の検証

そこで、低温レーザー干渉計CLIO(マイケルソン腕部分にFabry Perot共振器を内包するレーザー干渉計スタイルを採用)を利用し、常温における鏡と振り子の熱雑音の直接検出をめざし、レーザー干渉計の高感度化実験を行った結果、ついに2008年12月に、世界で初めて、レーザー干渉計において、機械的なロスの少ない系での鏡と振り子の熱雑音の直接観測に成功した(図1:Structure Damping起因の熱雑音と鏡のThermoelastic Noiseが顕在化されたCLIOの変位感度度)。図の青実線のなかで、20Hz～80Hzの間が、機械的ロスが 10^{-5} レベルの振り子のStructure Dampingによる熱雑音(水色破線)、80Hz～250Hzの間が、サファイア鏡のThermoelastic Noise(緑点線)であり、これらは、理論的な予測レベルとほぼ一致する。この成果は、“Underground Cryogenic Laser Interferometer CLIO”, S.Miyoki and LCGT, CLIO

Collaboration, Journal of Conference Series (TAUP2009) 203 012075 (2009)として報告された。この振り子の Structure Dampingによる熱雑音に到達する過程において、同時にViscous Dampingによる振り子の熱雑音の直接計測にも成功した。これは、揺動散逸理論から予測される“機械系調和振動子”の共振周波数より上の幅広い周波数領域におけるViscous Dampingによる熱雑音の振る舞いを実験的に検証し、その特性が理論と一致する事を世界で初めて確認し(図 2: Viscous Damping起因の振り子の熱雑音の検証)、

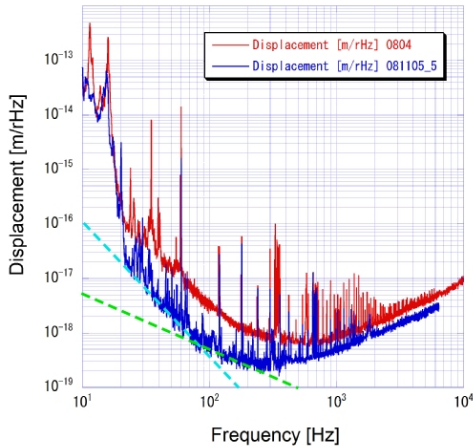


図 1: Structure Damping 起因の熱雑音と鏡の Thermoelastic Noise が顕在化された CLIO の変位感度

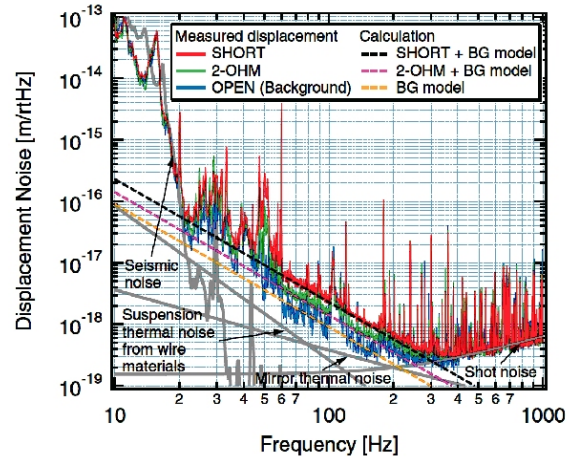


図 2: Viscous Damping 起因の振り子の熱雑音の検証

“Direct Measurement of Thermal Fluctuation of High-Q Pendulum”, Kazuhiro Agatsuma, Takashi Uchiyama, Kazuhiro Yamamoto, Masatake Ohashi, Seiji Kawamura, Shinji Miyoki, Osamu Miyakawa, Souichi Telada, and Kazuaki Kuroda, Phys. Rev. Lett. **104** 040602 (2010) として発表された。以上の成果は、“Thermal-noise-limited underground interferometer CLIO”, K.Agatsuma, K.Arai, M-K.Fujimoto, S.Kawamura, K.Kuroda, O.Miyakawa, S.Miyoki, M.Ohashi, T.Suzuki, R.Takahashi, D.Tatsumi, S.Telada, T.Uchiyama, K.Yamamoto and CLIO collaborators, Class. Quantum Grav. **27** 084022 (2010) としてまとめて発表され、この論文は、学術雑誌・Classical and Quantum Gravity のエディターにより、2009～2010 のハイライト論文に選出された。この成果は、“機械系調和振動子”の共振周波数より上の幅広い周波数領域における熱雑音」を克服することが必須な本実験において画期的な進歩であると同時に、物性物理学の見地から「熱雑音の研究」そのものに大きく貢献している点で有意義である。さらに、近年では、「光周波数標準」という究極的な時刻基準を作る工学的、実用的見地からも、その「熱雑音の克服」は重要課題であり、これらテーマ達成のための重要な指針を提示している。その最たるものは、まさに、この熱雑音がその性能限界を決めていることが判明している「光子時計」であろう。

(2) レーザー干渉計における鏡と振り子の低温化による変位感度向上の実現

さて、本実験の最終目標達成のためには、このように特性が判明した熱雑音をさらに低減し、レーザーの量子性のみで感度が決定される標準量子限界感度を達成しなければならず、さらなる技術的飛躍が必要である。熱雑音を低減するには、鏡やその振り子を冷却する方法と、鏡基材の機械的ロス、その鏡に蒸着されている誘電多層膜の機械的ロス、そして振り子の機械的なロスのすべてをより低減する方法の二つが存在する。後者は、ほとんど選択肢がない中で、より機械的ロスの少ない素材選びや鏡の懸架方法の発案という多くの試行錯誤が必要で、かつ、得られた各要素のわずかな改良の合わせ技で、やっと熱雑音がファクタ一程度改善されることが理論的に予想されている。一方、前者冷却法は、鏡の反射性能を維

持するために、鏡を振り子状に懸架しているループ状に巻いた2本のワイヤーの熱伝導のみでしか鏡の熱を奪うことがなく、かつそこから新たな振動を導入してはならないという、相反する要求を満たさなくてはならない厳しい技術的制限があるが、成功すれば、オーダーレベルの熱雑音の改善が見込まれる。どちらもいばらの道であることには変わらないが、本研究では、成功した時の熱雑音低減効果の大きさを鑑み、前者冷却法を選択した。鏡の冷却装置としては、すでに、超低振動型パルスチューブタイプ冷凍機によって、純アルミ金属素材の熱伝導だけで真空タンク内部を10ケルビン程度まで冷却するクライオスタットという装置が開発されていたので、それを利用した。鏡への地面振動の影響を低減するために、六段という多段の振り子を設計し、鏡を最終端に懸架した。その鏡を20ケルビン程度まで冷却するために、振り子下三段分(鏡が下三段の一番下に位置し、その上の段をアッパーマス、さらにその上の段をクライオベースと呼ぶ)は、その低温化されたクライオスタット内の空間に位置するようにしている。そのクライオベースと10ケルビンまで冷却されたクライオスタットの内壁の間に1本、クライオベースとアッパーマスの上に1本の直径1mmでU字に整形した99.999%の純度を持つアルミ線を接続し、それで熱接触と熱伝導を持たせ、最終端の鏡は、ニループの純アルミ線で懸架させることで、振り子としての機能と、熱伝導体としての機能を持たせる設計を行った。現状では、Fabry Perot 型レーザー干渉計を構成する4枚の鏡のうち、ビームスプリッターに近い側の2枚の鏡しか冷却できていないが、結果、まず、確かに、振り子の熱雑音が、振り子の温度の低減に合わせて振り子の熱雑音も低減されることを世界で初めて検証した(図3:振り子の熱雑音の低下の様子)。さらに、170Hz付近においては、鏡基材のThermoelastic Noiseの低減も確認し、わずかではあるが、常温熱雑音レベルをさらに低減することに成功した(図4:鏡の低温化によるThermoelastic Noiseの低減)。これらの成果は、鏡や振り子の低温化により熱雑音の克服が可能であることを実証した点で画期的である。現状、まだ、巨視的量子性が観測できる目標の標準量子限界感度には到達していないが、設計目標感度の3倍上の変位感度レベルまで肉薄している。

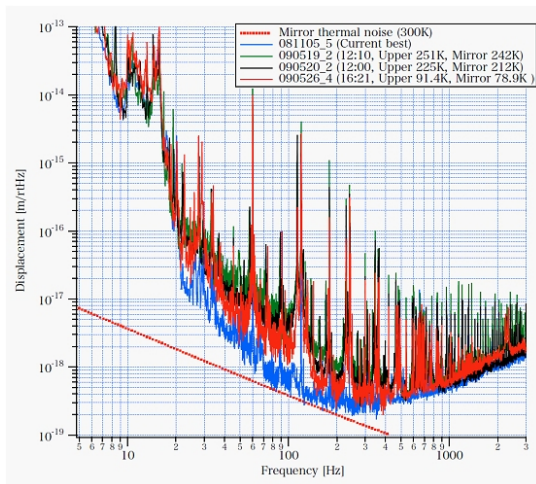


図3: 振り子の熱雑音の低下の様子。緑線、黒線、赤線は、振り子がそれぞれ251K、212K、79Kに相当する。

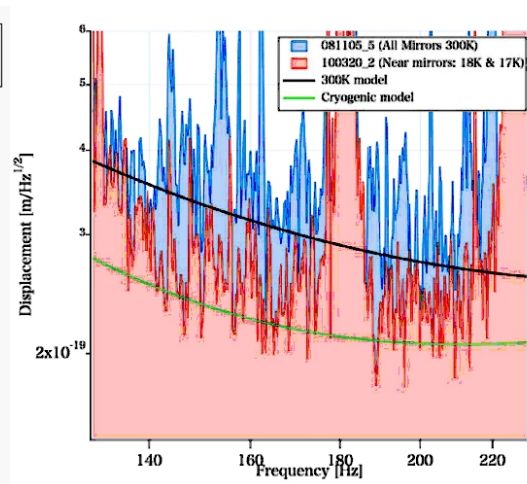


図4: 鏡の低温化による Thermoelastic Noise の低減。青が常温感度。赤が低温感度。

(3) 光滞在時間が長いFP共振器の共振制御導入困難問題への解決法の開発

本研究の副産物として、重力波望遠鏡で使用される Fabry-Perot 型レーザー干渉計のように、Fabry-Perot 共振器を構成する鏡が100nm/秒ほどの速度を持ち、かつその Fabry-Perot 共振器の光の滞在時間が10ミリ秒もあるような状態で特異的に問題になる、Fabry-Perot 共振器の共振制御導入の困難化問題を解決するのに補助となる全く新規なアイデアを考案し、それは、“Expansion of linear range of the Pound-Drever-Hall signal”, S.Miyoki, S.Telada and T.Uchiyama, Applied Optics, **49**, pp 5217-25 (2010)として発表された。従来の Fabry-Perot 共

振器制御で利用される Pound-Drever-Hall 法によって取得される線形信号の線形領域は、共振線幅程度に限られ、また、鏡が動くことによる光の周波数のドップラーシフトによって、この線形性が大幅に大きな乱れ、かつ、オフセットがのることにより、Fabry-Perot 共振器の共振制御に全く使えない。本提案では、従来の Pound-Drever-Hall 法では、いわゆる In-Phase で復調することで信号を取得していたのを、Q-Phase 付近に調節することや、あるいは、変調周波数の奇数倍 In-Phase 復調信号同士の適切な加算により、線形領域を約 10 倍に、理論的には、変調周波数幅を超えて拡大できるとともに、ドップラーシフトによる線形性の乱れもより小さくし、かつ、オフセットがのりにくい制御信号を取得することが可能であることを示し、問題のほとんどを解決できることも示した。これにより、従来はその制御さえ不可能であると思われた極めて長い光の滞在時間を持つ、一定の初期速度を持つ鏡で構成される Fabry-Perot 共振器の共振制御実現の可能性を広げることができると思われる。

3. 今後の展開

今後は、標準量子限界レベルを意図的に大きくしながらも、熱雑音を悪化させない程度に機械的なノイズを維持させることのできる鏡の最適な重さ 200 グラムを設定し、レーザー干渉計を構成する鏡を交換することと、本研究で開発された鏡の冷却技術による熱雑音そのものの低減を行うことで、標準量子限界感度の達成を目指す。

本研究の科学技術に与えるインパクトとしては、極限時空計測研究分野のうち、新しい研究分野「超巨視的量子性顕在化実験」の発展、新しい研究分野「巨視的物体の標準量子限界精度での精密位置計測実験」開拓、新しい研究分野「(未踏の)極限的光周波数安定化実験」の開拓が期待できるまた、応用分野を含めた科学技術に与えるインパクトとしては、巨視的量子性の性質そのものの解明(または、デコヒーレンス過程の実時間計測とその性質の解明)、重力波検出を通じた、強重力場の物理、余剰次元の可能性、宇宙誕生初期の様子、宇宙の時空構造に関する新規な知識の提供、光格子時計の理論的極限性能達成に関する熱雑音克服手法の開拓、標準量子限界計測精度をさらに打破する精密計測手法の開拓、などが期待される。さらに、産業応用に対しては、量子情報通信用の強力な量子相関ビームの生成技術開発、超精密長さ計測技術の提供、超精密時刻基準の提供、超精密長さ計測技術を用いた地球地殻ひずみの精密測定による、地震予知・防災への応用や、地殻内水圧変動計測による環境変動予想精度の向上などが期待される。

4. 自己評価

レーザー干渉計における超巨視的物体としての鏡の巨視的量子性の直接観測には至っていないが、それに至るに必須の熱雑音に関する知識の検証、および、低温化技術による熱雑音低減の実証という極めて重要かつ世界に類のない技術的飛躍を達成でき、事実この成果は、学術誌 Classical and Quantum Gravity において、2009-2010 のハイライト論文に選出されるなど、客観的にも高く評価されており、目標達成へのステップを確実に歩んでいると考える。

5. 研究総括の見解

超巨視的物体の動きを極限的精度で観測することによる「量子力学的振る舞い」の検証に取り組み、熱雑音に関する知識の検証、および、低温化技術による熱雑音低減の実証という極めて重要かつ世界に類のない技術的飛躍を達成した。主な研究成果は下記3点であるが、近年では、光周波数標準などでも「熱雑音の克服」は重要課題であり、本研究成果は重要な指針を提示している。

(1) レーザー干渉計における鏡と振り子の熱雑音の直接計測と揺動散逸理論の検証

熱雑音の振る舞いを実験的に検証し、その特性が理論と一致する事を世界で初めて確認したもので、論文は学術雑誌・Classical and Quantum Gravity のハイライト論文に選出された。

(2) レーザー干渉計における鏡と振り子の低温化による変位感度向上の実現

振り子の温度の低減に合わせて振り子の熱雑音も低減されることを世界で初めて検証し、鏡や振り子の低温化により熱雑音の克服が可能であることの実証に成功した。

- (3) 光滞在時間が長い Fabry-Perot 共振器の共振制御導入困難問題への解決法の開発
全く新規なアイデアを考案し、従来はその制御さえ不可能であると思われた、一定の初期速度を持つ鏡で構成される Fabry-Perot 共振器の共振制御実現の可能性を開いた。

本研究成果の応用範囲は広く、今後、巨視的量子性の性質そのものの解明、宇宙の時空構造に関する新規な知識の提供、標準量子限界計測精度の精密計測手法の開拓、などに繋がることを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Kazuhiro Agatsuma, Takashi Uchiyama, Kazuhiro Yamamoto, Masatake Ohashi, Seiji Kawamura, Shinji Miyoki, Osamu Miyakawa, Souichi Telada, and Kazuaki Kuroda, "Direct Measurement of Thermal Fluctuation of High-Q Pendulum", <i>Physical Review Letters</i> , 104 , 040602 (2010)
2. Kazuhiro Agatsuma, Koji Arai, Masa-Katsu Fujimoto, Seiji Kawamura, Kazuaki Kuroda, Osamu Miyakawa, Shinji Miyoki, Masatake Ohashi, Toshikazu Suzuki, Ryutaro Takahashi, Daisuke Tatsumi, Souichi Telada, Takashi Uchiyama, Kazuhiro Yamamoto and CLIO collaborators, "Thermal-noise-limited underground interferometer CLIO", <i>Classical and Quantum Gravity</i> , 27 , 084022 (2010)
3. S.Miyoki, S.Telada and T.Uchiyama, "Expansion of linear range of the Pound-Drever-Hall signal", <i>Applied Optics</i> , 49 , pp 5217-25 (2010)

(2) その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

S.Miyoki and LCGT, CLIO Collaboration, "Development of Cryogenic Laser Interferometer in the Kamioka mine", *Gravitational Wave Advanced Detector Workshop (Isola d' Elaba, Italy)* May 2008.

S.Miyoki and LCGT, CLIO Collaboration, "Knowledge about ground motion around the Kamioka mine from geophysical instruments data", *Gravitational Wave Advanced Detector Workshop (Isola d' Elaba, Italy)* May 2008.

三代木伸二と CLIO Collaboration, "低温レーザー干渉計 CLIO (18)", 日本物理学会 (立教大学, 東京) 3 月 2009 年.

(招待講演) S.Miyoki, M.Ohashi, T.Uchiyama and CLIO Collaboration, "Status of CLIO", 12th Marcel Grossmann Meeting (France : Paris) July 2009.

三代木伸二, "重力波検出技術による極限時空計測への挑戦", 大阪府立大学ナノ科学・材料研究センター・第 9 回 N2RC 拠点セミナー (大阪府立大学, 大阪) 9 月 2009 年.

三代木伸二と CLIO Collaboration, "低温レーザー干渉計 CLIO (21)", 日本物理学会 (甲南大学, 兵庫) 9 月 2009 年.

三代木伸二と CLIO Collaboration, "低温レーザー干渉計 CLIO (27)", 日本物理学会 (岡山大学, 岡山) 3 月 2010 年.

S.Miyoki, M.Ohashi and CLIO Collaboration, “CLIO Introduction and Overview”, Gravitational Wave Advanced Detector Workshop (Kyoto, Japan) May 2010.

(招待講演) S.Miyoki and CLIO Collaboration, “CLIO Experiment and Reconstruction for MQM”, CLIO-MQM Workshop (Tokyo, Japan) May 2010.

(招待講演) S.Miyoki and CLIO Collaboration, “CLIO Experiment Result”, 19th international conference general relativity and gravitation (Mexico city, Mexico) July 2010.

三代木伸二, 内山隆, 宮川治, 宗宮健太郎, Yanbei Chen, “重力波検出器プロトタイプ CLIO によるマクロな物体の量子計測研究”, 日本物理学会 (九州工業大学, 福岡) 9 月 2010 年.

三代木伸二 と LCGT Collaboration, “LCGT 計画: 重力波の直接検出を目指して”, 重力と水のワークショップ (東京大学宇宙線研究所・神岡宇宙素粒子研究施設, 岐阜県) 9 月 2010 年.

(招待講演) S.Miyoki and LCGT, CLIO Collaboration, “Large-scale Cryogenic Gravitational wave Telescope Project”, Gravitational Wave 2010 (Minneapolis, USA) October 2010.

研 究 報 告 書

「高強度レーザーによる超高分解能4次元時空イメージング」

研究期間：平成20年10月～平成23年3月

研究者：森下 亨

1. 研究のねらい

X線回折や電子顕微鏡の実用化によって、原子サイズの分解能で物質の構造解析が容易に行われるようになって久しい。近年、空間的情報に加えて、物質の遷移を分析するため時間軸についても高分解能を持った方法が数多く考案されている。高強度レーザー発生装置、および光や荷電粒子の測定技術の進歩によって、超高速現象の研究の対象は、今や数フェムト秒からアト秒領域に突入した。そこで本研究では、テーブルトップで得られる高強度近赤外レーザーパルスを用いた原子・分子の新しい超高分解能実時間イメージングのための理論および計算手法の開発を行った。

レーザーにより誘起されるイオン化電子の再衝突過程を利用して、空間的には原子サイズ(オングストローム)、時間的には分子内電子の軌道周期(アト秒)程度の超高分解能を与えるイメージング法の開発を目標とした。そして、電子状態まで含めた原子レベルでの物質の状態遷移の研究という新しい分野の開拓をすると共に、光と物質の相互作用についての深い理解を目指して研究を進めた。

2. 研究成果

本研究では、4つのサブテーマ「A. シュレーディンガー方程式の直接解による分析」、「B. 簡便な分析手法の開発」、「C. 物質構造の再構築アルゴリズム」、「D. 高強度レーザーによる量子ダイナミクス」を柱として、超高分解能イメージング法のアルゴリズムの完成を目指して研究を推進した。以下に各サブテーマに関する研究成果を報告する。

「A. シュレーディンガー方程式の直接解による分析」

厳密計算に基づく時間依存シュレーディンガー方程式の直接解によって、イメージングの基本原則となる再衝突過程における「分離公式」を見出し、その妥当性を示した。以下にこの分離公式について簡単に説明する。

高強度レーザーを原子や分子に照射すると、レーザーの電場成分がピークとなる時刻(図1(a)のX)では、電子と残留イオン核とのクーロンポテンシャルがレーザー電場によって大きく歪められ、ポテンシャル障壁を貫いてトンネルイオン化する。トンネルイオン化した電子は、レーザー電場によって偏光方向(図1(b)の右方向)に加速される。そして電場の符号の反転に伴って元の残留イオンに戻ってきて、再び衝突する。この際、弾性散乱の後方散乱成分が高エネルギー超関イオン化電子として、また、電子が残留イオンと結合して衝突エネルギーを光に変換したものが高次高調波発生として観測される。本研究でのイメージングでは、こうした超関イオ

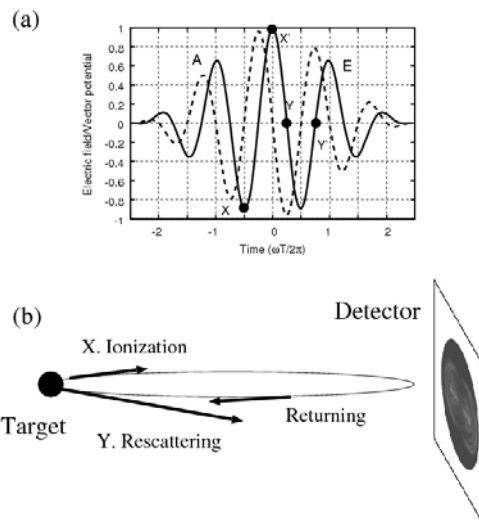


図1 (a) 実線は、5サイクル赤外レーザーパルスの電場(E)。破線は、ベクトルポテンシャル(A)。(b) 再衝突過程の後方散乱成分による分子の超高速イメージングの概念図。

ン化や高次高調波発生といった再衝突過程による実験データから原子分子の構造を抽出する。高エネルギー超閾イオン化の場合、イオン化した電子の運動量スペクトル S が、物質固有の物理量である標的イオンによる自由電子の弾性散乱微分断面積 σ を使って

$$S = \sigma W$$

と表せることを、厳密数値計算により示した。上の分離公式において、 W は再衝突電子波束の運動量分布であり、強度やパルス幅等のレーザーのパラメーターにのみ依存する量であり、標的物質の微細な構造に依存しない。ここで重要なことは、超閾イオン化という強い非線形を示す複雑な過程が、物質固有の物理量である散乱微分断面積 σ と、レーザーのパラメーターにのみ依存する再衝突電子波束 W の積の形に分離できるということである。最衝突電子波束の運動量分布は物質に依存しないので、参照物質を使った既知のデータから一旦求めておけば、未知の物質についての実験スペクトル S から分離公式を使って散乱断面積 σ を求めることが容易である。さらに散乱逆問題を解くことによって、断面積から標的物質の電荷分布といった情報を抽出することが可能となるのである。

これまでに開発した時間依存シュレーディンガー方程式の厳密計算プログラムを高速化し、得られた高精度の数値計算結果に基づいて分離公式の妥当性や適用範囲等の詳細について検討した。分離公式中の再衝突電子波束を分析することによって、数サイクルの高強度レーザーパルスの絶対測定が高精度で可能であることを示した。さらに、超閾イオン化だけでなく、高次高調波発生過程といった他の再衝突電子による非線形過程についても同様の分離公式で表すことができることを示した。厳密数値計算結果に基づいた研究に加えて、国内外の実験研究者と協力して、分離公式に基づいて断面積が高精度で抽出できることを実験的に検証した。これらの結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。

「B. 物質構造の再構築アルゴリズム」

分離公式に基づいて実験データから抽出された微分散乱断面積から、電荷分布等の物質構造を得るためのアルゴリズムの開発を行った。通常の散乱問題では、まず電荷分布、すなわち入射電子に対するポテンシャルの空間分布が与えられ、それに対する散乱微分断面積を求める。一方、イメージングを行うためには、散乱微分断面積からポテンシャルを求めるという、量子力学的逆散乱問題を解くことになる。本研究では、原子の電荷の空間分布を複数のパラメーターを使って表し、実験結果を最もよく再現する電荷分布パラメーターをフィッティングによって求めるというアルゴリズムを開発した。

電荷分布のパラメーターにはトーマス・フェルミ模型に基づくものを使用し、最良パラメーターの検索には遺伝アルゴリズムおよびパウル法を使用し、そのための高速計算コードを開発した。希ガス原子について、既存

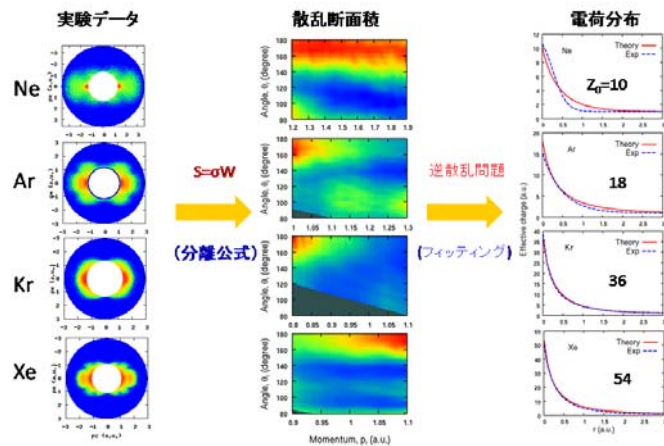


図2 (左) 高強度レーザーによる光電子スペクトルの実験データ、(中) 実験データより抽出した散乱部分断面積、(右) 実験データより抽出した希ガス原子の電荷分布と理論値の比

電荷分布のパラメーターにはトーマス・フェルミ模型に基づくものを使用し、最良パラメーターの検索には遺伝アルゴリズムおよびパウル法を使用し、そのための高速計算コードを開発した。希ガス原子について、既存

の高強度レーザーによる光電子スペクトルの実験データから、実際に電荷分布を高い精度で決定できることを示した(図2)。これらの結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。現在、2原子分子についてのアルゴリズムの拡張と、計算コードの高速化を進めており、近く学術論文として発表の予定である。

「C. 簡便な計算手法の開発」

時間依存シュレーディンガー方程式の厳密数値計算は、高強度レーザー場中での原子・分子の振る舞いについて様々な知見を与える強力な理論研究手法である。しかし、扱う粒子数が増える等、系が複雑になると計算時間が莫大なものとなる。また、少しだけ入力パラメータを変えただけでも、繰り返し同様の長時間計算が必要となるため、適用範囲が限られている。物理現象をより深く理解するためには、厳密数値計算に加え、適切な問題設定に基づいた理論体系を構築する必要がある。

従来より高強度レーザー場中の原子・分子ダイナミクスの解析には、原子・分子内の電子と核とのクーロン相互作用がレーザー場との相互作用に比べて小さいとした、強光子場近似が使用されてきた。強光子場近似は、高次高調波スペクトルや高エネルギー超閾イオン化スペクトルに現れる、プラトー領域やカットオフ次数といった大まかな構造を説明するが、観測量の絶対値が100倍以上も異なるといった定量的な議論には問題点が多いことが知られている。また、レーザー強度が高いとした理論であるにもかかわらず、超障壁イオン化等といった高強度レーザーに対する物質の反応については定性的にも誤った結果を与える場合が多く、近似の適用範囲に不明な点が残る。そこで本研究では、外場であるレーザー電場の周期(数フェムト秒)が、原子・分子内の電子の運動の時間スケール(数十アト秒)にくらべて十分に長いという事実に基づいた、「断熱理論」という新しい理論体系の構築を進めた。

断熱理論では、電子の運動時間スケールとレーザー周期の比 ε を定義し、 $\varepsilon \rightarrow 0$ の漸近展開によって時間依存シュレーディンガー方程式の解を記述する。 $\varepsilon \rightarrow 0$ の極限で断熱理論の結果は厳密解に一致し、有限の場合でも非常に精度の高い近似値を与える。まず1次元系の模型によって理論体系の詳細を吟味した。そして、高強度レーザーの研究に頻繁に使用されるチタンサファイアの800nm(周期2.6フェムト秒)のレーザーパルスの場合でも、厳密計算結果に絶対値を含めて非常によく一致することを確認した(図3)。また、断熱理論に基づいて、本研究の基本原理解である分離公式が、シュレーディンガー方程式から自然な形で得られることを数学的に証明することに成功した。さらに、再衝突電子波束について、トンネルイオン化および振動レーザー場中の電子波束の伝播といった詳細な構造について明らかにした。現在、実在の3次元系についての計算コードの開発と計算結果の解析を進めている。

断熱理論において、電子の量子力学的状態は、ゆっくりと振動するレーザー電場に追従して変化し、静電場中での時間に依存しない静的なシュレーディンガー方程式の解によって記述される。静電場が弱い場合、これはシュタルク効果としてよく知られているように摂動論によって近似されるが、本研究で取り扱う強電場の場合、摂動論を超えた新しい理論を構築する必要がある。そこで、シーガート境界条件という数学的に無矛盾の境界条件を導入することによって、強い静電場によってイオン化される原子・分子の完全な定式化と高精度の計算

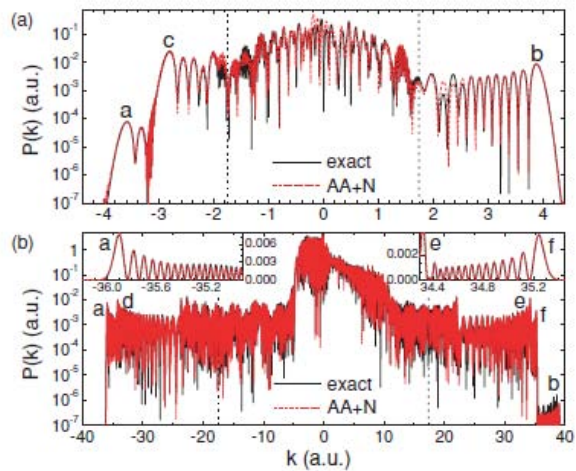


図3 高強度レーザーパルスによる光電子スペクトルの計算。断熱理論による近似計算と厳密計算との比較。

手法を開発した。そして、原子・分子のイオン化運動量分布の静電場ベクトルに対する垂直成分 (Transverse Momentum Distribution) という、今までにない新しい観測量の定式化を行い、その実験的観測法を提案した。これらの結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。

「D. 量子ダイナミクス」

水素原子以外の原子・分子は、複数の電子を含む量子多体系であるが、上述の研究では、こうした多電子のうち、最外殻の1電子にのみ着目し、残りの電子による影響は平均化して有効電荷として取り扱った。しかしながら、さきがけ研究を開始したころより、最外殻以外の内殻の電子による再衝突過程や、再衝突電子が親イオン中の別の電子をイオン化する非逐次2電子イオン化の詳細な結果等、多様な研究結果が報告された。そこで、2009年夏に、強レーザーによる多電子ダイナミクスの研究を新たなサブテーマとして加え、さきがけ研究の更なる発展を目指した。まず、高強度レーザー場中の多電子ダイナミクスの基本的な理解のため、レーザー偏光方向にのみ運動する2電子系をとりあげ、高強度紫外線アト秒超短パルスの多光子吸収による2電子イオン化の理論的研究を行った。2つの電子が同一の方向にイオン化される場合、後からイオン化した電子が、先にイオン化した電子に追いついて衝突するという、新現象を見出した。こうした結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。今後は得られた知見をもとに、多電子遷移過程を利用したイメージング法の開発を進めていく予定である。

3. 今後の展開

高強度レーザーによって誘起される再衝突電子を利用した原子・分子のイメージング法の骨格がほぼ完成したといえる。今後は、イメージング法の更なる精密化や適用範囲の拡大といった展開を目指す。本研究は実験研究に即した理論研究であり、研究推進のためには最先端の実験技術情報の獲得および他の研究者との議論が欠かせない。総括の伊藤先生をはじめ、アドバイザーの先生方からのご助言、領域の研究者の方々との議論そして、JSTの様々なサポートによって、さきがけ研究を大いに加速させ、また広がりを持つことができた。最終年度の夏には「アト秒アト秒量子ダイナミクスの理論の関する滞在型国際ワークショップ」を開催し、高強度レーザー科学で活躍する国内外の気鋭の理論研究者とともに今後の展開を含めて議論した。さらに、夏以降は高強度レーザー科学の実験および理論的研究で世界的水準であるカンザス州立大学に滞在し、さきがけ研究のまとめを行うとともに、他の研究者とともに今後の研究協力を見据えた長期的な視点に基づく議論を行った。今後、こうした国内外の研究者交流によって得られたネットワークを生かして研究を展開していきたい。

4. 自己評価

高強度レーザーによって誘起される再衝突電子を利用した超高分解能イメージングについて、厳密数値計算、解析的理論、実験的研究といった観点から多面的に研究を進めた。そして、「再衝突電子分光法」ともいべき新しい分野を切り開くことができ、当初の研究目標をほぼ達成できたといえる。本研究期間中に実施できなかったものとしては、再衝突過程の最中に引き起こされる分子内部構造の変化に関する詳細な分析がある。これについては、分子内の複数の原子核と電子の複雑な運動の精確な記述が必要であり、「D. 量子ダイナミクス」のサブテーマで得られた知見を発展させることによって、達成させていくつもりである。一方、「C. 簡便な計算手法の開発」での断熱理論においては、静電場中の原子・分子についての量子力学的に完全な記述という、計画当初は予期していなかった結果を得ることができた。これは原子・分子物理学の教科書の新たな章に加えることができるほどの基礎物理学における貴重な成果であると自己評価している。

5. 研究総括の見解

原子・分子の新しい超高分解能実時間イメージングのための理論および計算手法の開発

に取り組み、高強度レーザーによって誘起される再衝突電子を利用した原子・分子のイメージング法の骨格を完成させた。「再衝突電子分光法」ともいべき新しい分野を切り開くことができたのは大きな成果である。主たる成果は次の4点である。

- 1) 厳密計算に基づく時間依存シュレーディンガー方程式の直接解によって、イメージングの基本原理となる再衝突過程における「分離公式」を見出した。加えて、国内外の実験研究者と協力して実験的に検証し、その妥当性を示した。
- 2) 原子の電荷の空間分布を複数のパラメーターを使って表し、実験結果を最もよく再現する電荷分布パラメーターをフィッティングによって求める、という物質構造の再構築アルゴリズムを開発した。
- 3) 断熱理論に基づいて、本研究の基本原理である「分離公式」がシュレーディンガー方程式から自然な形で得られることを数学的に証明することに成功した。さらに、再衝突電子波束について、トンネルイオン化および振動レーザー場中での電子波束の伝播といった詳細な構造について明らかにした。
- 4) 2つの電子が同一の方向にイオン化される場合、後からイオン化した電子が先にイオン化した電子に追いついて衝突するという、新現象を見出した。

本研究は実験研究に即した理論研究であり、研究推進のためには最先端の実験技術情報の獲得および他の研究者との議論が欠かせない。その為、さきがけメンバーとの協力の他に、最終年度の夏に「アト秒量子ダイナミクスの理論の関する滞在型国際ワークショップ」を開催している。また、高強度レーザー科学の実験および理論的研究で世界的水準であるカンザス州立大学に滞在し、今後の研究協力を見据えた長期的な視点に基づく研究協力を行っている。今後、こうした国内外の研究者交流によって得られたネットワークを生かして研究を発展して行くことを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

"Accurate retrieval of structural information from laser-induced photoelectron and high-harmonic spectra by few-cycle laser pulses"

T. Morishita, A.-T. Le, Z. Chen, and C.D. Lin

Phys. Rev. Lett. 100, 013903 (2008)

"Potential for ultrafast dynamic chemical imaging with few-cycle infrared lasers"

T. Morishita, A.-T. Le, Z. Chen, and C.D. Lin

New J. Phys. 10, 025001 (2008) [13 pages]

"Retrieval of experimental differential electron-ion elastic scattering cross sections from high-energy ATI spectra of rare gas atoms by infrared lasers"

T. Morishita, M. Okunishi, K. Shimada, G. Prümper, K. Shimada, Z. Chen, S. Watanabe, K. Ueda, and C. D. Lin,

J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 105205 (2009) [6 pages]

"High-resolution spatial and temporal microscopy with intense-laser-induced rescattering electrons"

T. Morishita, T. Umegaki, S. Watanabe, and C. D. Lin,

J. Phys.: Conf. Ser. 194 012011 (2009) [8 pages]

"Adiabatic theory of ionization of atoms by intense laser pulses: One-dimensional zero-range-potential model"

O.I. Tolstikhin, T. Morishita, and S. Watanabe,

Phys. Rev. A 81, 033415 (2010) [27 pages]

"Momentum space analysis of multiphoton double ionization of helium by intense attosecond xuv pulses"

Z. Zhang, L.-Y. Peng, Q. Gong, and T. Morishita,
Opt. Express 18, 8976-8989 (2010)

"Extracting Electron-Ion Differential Scattering Cross Sections for Partially Aligned Molecules by Laser-induced Rescattering Photoelectron Spectroscopy"

M.Okunishi, H. Niikura, R.R. Lucchese, T. Morishita, and K. Ueda,
Phys. Rev. Lett. in press (2011)

(2)特許出願

研究期間累積件数: 2件

高次高調波スペクトルからの原子・分子構造の抽出方法とイメージング装置

梅垣敏仁、森下亨、渡辺信一、

特願 2009-167822

赤外レーザー照射による物質の超高精度・実時間顕微鏡

森下亨、梅垣敏仁、渡辺信一、

特願 2010-092760

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

<国際会議招待講演>

"Accurate retrieval of structural information from laser-induced photoelectron and high-order harmonic spectra by few-cycle intense laser pulses"

T. Morishita,

RIKEN International Symposium on Attosecond Science

April 3, 2009, Wako, Saitama, Japan

"High-resolution Spatial and Temporal Microscopy with Intense-laser-induced Rescattering Electrons"

T. Morishita,

26 th International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions,

July 23, 2009, Kalamazoo, USA

"Ultra High-Resolution Imaging of Atoms and Molecules Using Intense Laser Pulses"

T. Morishita

KITP Conference: X-ray Science in the 21st Century,

August 2-6, 2010, Santa Barbara, USA

"Ultra High-Resolution Imaging of Atoms and Molecules Using Intense Laser Pulses"

T. Morishita

4th Asian Workshop on Generation and Applications of Coherent XUV and X-ray Radiation

Jan 20 - 21 Jan, 2011, Pohang, Korea

<総説>

"超高分解能原子・分子実時間イメージングへの挑戦"

森下亨、

日本物理学会誌、第 64 巻、第 7 号、p. 544-549 (2009)

“アト秒パルスで見るヘリウム原子の2電子ダイナミクス”

森下亨、

応用物理、第 78 巻、第 2 号、p. 0125-0129 (2009)

“高強度レーザーを用いた原子・分子イメージング理論の現状と展望”

森下亨

光科学の最前線2 (「光科学の最前線2」編集委員会、Dec. 2009)、pp 127。