

## 研究課題別 事後評価結果

1. 研究課題名： 電子系の多体量子相関とその光制御機能

2. 研究代表者： 五神 真(東京大学 大学院工学系研究科 教授)

### 3. 研究内容及び成果

本研究は、1)量子縮退した電子正孔系の物理学と光制御機能、2)電子間相関および協同励起現象を利用した光エレクトロニクス機能、3)テラヘルツ電磁波パルスによる物性評価と制御、4)磁氣的性質と光学応答の結合効果を利用した光制御機能の探求、5)ナノ空間における光波制御という課題に大別して研究を進めた。

以下に研究の概要をまとめる。

#### 1) 量子縮退した電子正孔系の物理学と光制御機能

原子気体においては、精緻に周波数制御されたレーザー光と原子の相互作用を利用して、マイクロケルビン以下の極低温の状態を作り出すことが可能となっている。これは、レーザー光の光子エネルギーを熱エネルギーに転換させることを厳密に排除し、レーザーから出射される光子群の低エントロピー性を利用している。この概念は、原理的には固体にも適用可能であるが、固体は光と相互作用する電子以外にも格子振動等大きな自由度を内包していることから、温度換算で数万度にも及ぶ高いエネルギーを持った光子のエネルギーが熱エネルギーに転化することを厳密に排除するのは困難である。したがって、この方法を固体に持ち込むためには、対象とするシステムを厳選することが必要となるとともに、励起方法についても工夫を要する。

[位相空間圧縮法] 塩化第一銅の励起子分子状態は2光子遷移で許容となることは良く知られている。励起子分子準位は格子系との相互作用が小さく、準位幅は励起子分子の輻射緩和による崩壊過程によって支配されており、位相緩和時間が数十ピコ秒以上であり、準位幅はマイクロエレクトロンボルト程度と極めて狭い。通常の光吸収でこのような狭い線幅の準位を効率良く励起するためには、連続発振光源が適しており、パルス光によって瞬間的に高密度励起することは難しい。本研究では、フェムト秒やピコ秒のパルス光による2光子励起法を使い、周波数の大きなパルス光源を用いた場合においても励起子分子が瞬時に狭い分布の状態に生成されることを見出し、「位相空間圧縮法」と名付けた。これは、ボーズ縮退したコヒーレントな励起子分子を直接励起する方法であり、これを用いて励起子分子波を2つのパルスで独立に励起し、それらが干渉効果を示すことを実証した。また、このように量子縮退した励起子分子波は、光と相互作用すると

高効率の2光子パラメトリック増幅機能を持つことを実証した。この手法は、亜酸化銅の黄色系列1sオルソ励起子にも適用された。1sオルソ励起子は、4重極遷移許容で3重縮退していると考えられていたが、電子正孔交換相互作用における長距離項を厳密に取り込むと、励起子の並進運動の運動量に依存した準位分裂が生じることがわかった。これを考慮すると、2光子許容で4重極禁制の準位と2光子禁制4重極許容の準位に分かれる。このような状況で、ピコ秒パルス光源を用い、位相空間圧縮法により2光子許容のオルソ励起子の励起を行った結果、ダブルパルス法により励起子波の干渉効果を高い精度で実証することが出来た。また、亜酸化銅の1sオルソ励起子はレーザー光の2光子コヒーレンスを250ピコ秒という長時間に亘り保持出来ることが示された。

〔励起子ライマン分光法〕 励起子は、フェルミ粒子である電子と正孔が対をなす準粒子でありボーズ統計に従うことから、そのボーズ・アインシュタイン凝縮の可否を巡る議論が40年来続いている。特に、亜酸化銅の黄色系列励起子中のスピン禁制状態であるパラ励起子は寿命が特異的に長いことから、励起子ボーズ凝縮観測の最有力候補として長年注目を集めてきた。我々はERATO研究でパラ励起子を定量的に検出する手法となり得るライマン分光法を見いだした。これは励起子の内部遷移を利用し、1s状態から、np状態への双極子遷移を利用するものである。この遷移は電子正孔の相対運動とプローブ光の相互作用を利用するため、電子正孔のスピン配置によらず強い光学吸収が生じる。この手法は、励起子数の定量評価が可能であること、励起子分布関数を評価出来ること等、励起子ボーズ・アインシュタイン凝縮(BEC; Bose-Einstein Condensation)の検証に不可欠な情報を得ることが出来る。そこで、測定の数量化、高分解能化、ダイナミックレンジの確保等を工夫して励起子ライマン分光法を亜酸化銅1s励起子系に対して行い、下記の基礎情報を得ることに成功した。

①ライマン系列の振動子強度分配を定量的に評価し、1s励起子の波動関数を決定して、ボーア半径、1s-2p遷移強度を確定した。

②位相空間圧縮法で励起したオルソ励起子が、格子温度より低温の過冷却状態にあることを実証した。

③低温のオルソ励起子が衝突によって高効率にパラ励起子に転換すること、この転換効率はいわゆるAuger効果による損失を上回ることを確認した。さらに、連続波発振レーザーを用いることでこの分光法を高感度化し、励起子の重要なパラメータを決定して、励起子ボーズ凝縮の実現が期待される極低温環境での測定準備を整えた。

## 2) 電子間相関および協同励起現象を利用した光エレクトロニクス機能

ERATO研究で、強相関電子系として知られる1次元銅酸化物に注目し、電子相関に

よって生じた励起状態への2光子遷移強度が大きくなることを利用すると、超高速の光制御が可能であることを示した。本研究ではその発展として、同様な概念による新たな材料探索や光制御の実証実験を進めた。

まず、有機1次元共役高分子であるポリジアセチレンに着目した。ポリジアセチレンは強い光学応答を示し、また光励起によって相転移が生じる物質として知られるとともに、巨大な3次非線形感受率を示すことも報告されている。一方、ポリマー材料を光学素子に応用する場合の一般的な問題として、粘性の高さがある。また、ポリジアセチレンの優れた光学特性を活かすためには一定量の分子量は必要であるが、適度な鎖長に制御されていることが望ましい。そこで、パルス光照射による分子量制御について検討を行った結果、ある条件でパルス光を照射するとポリマーが切断され、分子量分布の小さなオリゴマーが得られることを発見した。

### 3) テラヘルツ電磁波パルスによる物性評価と制御

テラヘルツ領域での高感度な偏光分光法、および磁気光学定数やホール係数を非接触で検出する方法を開拓した。また、テラヘルツ電磁波を用いた反射測定で問題となっていた、サンプル位置設定の誤差問題を解決する新しい手法を提案した。テラヘルツ時間領域分光では電場の時間波形が直接計測出来ることに着目し、応答関数の因果律を利用して時間波形の解析的拘束条件から反射位置を推測するという手法である。この手法の拡張として、試料の凹凸を検出するトポグラフィ法を開拓し実証した。

### 4) 磁氣的性質と光学応答の結合効果を利用した光制御機能の探求

強相関電子系においては、スピン自由度と電荷自由度が強く結合することから、電荷自由度に敏感な光学過程を用いて、磁性の制御を行える可能性がある。この観点から、いくつかの材料に対して光による磁化の高速制御に向けた研究を進めた。特に、スピントロニクス応用が注目される磁性半導体系材料を中心に、時間分解磁気光学効果、中赤外ポンプ・プローブ分光、テラヘルツ放射計測の実験を進めた。結果、磁性の発現および光励起効果において、磁気ポーラロンの寄与が重要であることを見出した。また、光励起によって高効率なテラヘルツ電磁波発生を観測するとともに、電磁波の偏光特性や磁場依存性等から、発生の機構を解明した。

### 5) ナノ空間における光波制御の研究

高度な光技術をナノテクノロジーやそれを用いた量子情報技術とをつなぐためには、波長以下のスケールで光学応答を制御する技術の開拓が必要となる。本研究では、これまでの研究成果を踏まえ、サイズ制御された微小球を用いた光波操作の実証実験を進めた。サイズを0.05%以下の精度で揃えた直径数ミクロンのポリマー微小球を用いて連

結微小球構造による光導波路を作製し、端点から入射した光が共鳴するかのようには伝搬の様子を観測することに成功した。また、単一光子光源への応用が期待される電荷移動錯体分子対を用いて注意深くバックグラウンドの発光を除去することにより、単一分子からの発光の検出に成功した。

また、微細加工技術の進歩に伴って、光の波長と同程度の人工ナノ構造体を用いた光波制御技術の研究が盛んに行われている。研究代表者らは、キラル構造を有する人工金属薄膜を用いることによって、自然界に存在する物質の1000倍以上に達する巨大光学活性の発現に成功するとともに、その効果は3次元的な対称性の破れに起因するものであることを明らかにした。

#### 4. 事後評価結果

##### 4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

外部発表、特許等の実績を示す。

発表論文: 35 件

口頭発表: 105 件

特許出願: (国内) 7 件 (海外) 3 件

凝縮系の励起子分子の基本的な光学物性やナノ構造材料において、光学システムに応用出来る可能性のある現象を緻密に追求し、全体的に良い成果を上げており、極めて高く評価出来る。光励起した半導体中の多励起子ダイナミクスとBECの研究は、半導体物理学の積年の夢であった励起子ボーズ凝縮の実験的確認に肉薄している。特に、位相空間圧縮法を用いてCuClでの励起子分子を高密度に生成した点は非常に素晴らしい。これは、今後の光物性や光エレクトロニクス、光量子情報処理の進歩へとつながる成果である。また、Cu<sub>2</sub>Oのオルソ・パラ励起子に関するライマン分光法の開発と、それを用いた励起子ダイナミクスの研究は、半導体中の多励起子のBEC凝縮ダイナミクスを明らかにするために非常に有用であり、オルソ励起子を過冷却状態で生成した点も含めて特筆すべき成果である。周辺技術を固める等、当該研究の推進とともに新たな知見が得られていることも評価出来る。情報通信等への技術応用を念頭に置いた研究にも精力的に取り組み、国内外で脚光を浴びつつある分野で成果を上げている点も良い。先駆的研究項目が多い上に物理現象自体を解明しようとする姿勢が強く、学術的意義も大きい。各研究項目の成果は、発行部数の多い学会誌に十分な成果発表が行われ、多数の招待講演を含めて口頭発表も多く行われた。今後は、理論的研究グループとの連携を強めることを期待する。

#### 4-2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

光励起した半導体中の多励起子ダイナミクスとBECの実現・解明は、半導体物理学の積年の夢であり挑戦である。しかし、冷却原子系でのBEC実現の成功の陰に隠れ、近年は若干の閉塞感があった。しかし、本研究で開発されたライマン分光法と位相空間圧縮法は、ブレークスルーになり得る画期的な実験手法である。とりわけ、理論物理学も含めて、量子凝縮や相転移物理学等の基礎物性物理学分野へのインパクトは大きい。

微小球や、テラヘルツ電磁波の物性応用、キラル構造による偏光制御等、話題性、応用可能性に富む課題に取り組み、有望な結果を得ている。極低温条件や形状加工効率に囚われないこれらの成果が、直ちに光応用システムとして産業的なインパクトを与える可能性は低いですが、現象を定量的に評価し理解することが実用化の前提となるという意味ではさらなる展開が期待出来る。特に、ポリマー材料で有効な物性が発見されることが期待される。

#### 4-3. その他の特記事項(受賞歴等)

新聞発表を行っており、研究活動の社会的な説明責任を果たす努力は評価出来る。近年、長期的な視点に立った基礎研究が継続しにくくなっているが、安易に応用の可能性を強調するよりも、基礎研究の重要性、面白さを継続して主張して欲しい。