

戦略的創造研究推進事業
発展研究（SORST）

研究終了報告書

研究課題
「電子系の多体量子相関とその光制御機能」

研究期間：平成14年10月 1日～
平成19年 3月31日

五神 真
(東京大学、教授)

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. 研究実施の概要

レーザーの誕生と共に飛躍的な発展をとげた光技術は、20世紀後半に光通信によるインターネット、半導体レーザーを用いた種々のデバイスなど社会の大きな変革をもたらした。21世紀に入り、レーザー技術はさらに精緻で高度なものとして発展しており、光科学技術の発展の勢いは一段と加速している。(岩波、科学2006年10月号特集参照)。例えば、フェムト秒レーザーを用いた、レーザー微細加工技術は産業応用も視野にいたした展開をしめている。また、2005年のノーベル物理学賞受賞対象となった、モード同期レーザーの絶対位相制御技術は、物理基本定数の評価といった基礎科学だけでなく、GPSの高精度化、新たな概念に基づくコンパクトな紫外線光源など、近未来の我々の生活や社会を変えうる潜在力のある新技術である。我々は、このように大きく展開を見せる光科学とそこから生まれる技術のさらなる開拓の為には、未利用の物理現象の探索とそこに見られる光機能の開拓が重要であると考えた。本研究ではその中で、光学応答という観点から検討が不十分と考えられる、多体の量子効果に注目し、光と物質の相互作用や光応答性とどのように関わるかということについて、いくつかの側面を抽出してその探求を進めた。

本SORSTプログラムはERATO五神協同励起プロジェクトの発展継続課題である。ERATOでは、「レーザー光を巧みにコントロールして光で物質系に集団の量子効果を発現させ、その物理学と応用の道筋を探る」という主題のもとで、気体原子から半導体、有機化合物、遷移金属酸化物と様々な物質系に対して幅広い研究を展開した。SORSTプログラムではその中で、凝縮系を対象とする研究に焦点を絞り、光による固体中での多体量子現象の発現方法の探求と、それによる特異な光機能の研究をさらに進め、量子力学的多体相関効果の光科学・光技術分野への応用の道筋を明らかにすることを狙いとした。尚、原子系による多体量子物理現象の研究が物質科学の基礎原理解明という視点から、世界的に進展を見せていることを鑑み、これらの動向にも目を離さず検討を続けることとした。

本研究は、上記の狙いのもとに、[1]量子縮退した電子正孔系の物理学と光制御機能、[2]電子間相関及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の研究を進めた。これらはいずれもERATO五神協同励起プロジェクトできっかけを掴んだ課題であったが、これらの研究を本SORST研究において、発展させることができた。またそこからさらに新しい研究の方向を見いだすことが出来た。この新しい方向性のもとで昨年10月からCRESTプログラムのもとで研究をすすめている。これらの研究と並行して、ERATO以来すすめている一連の研究を学問体系として整理する作業を進めた。固体の電子正孔系の実験のまとめを行いKeldysh教授の75歳記念出版にレビュー論文を寄稿、2005年1月には北京の中国科学アカデミーのWinter Schoolで講義、2006年10月岩波書店出版の「科学」において光科学特集号の監修およびレビュー記事の執筆、などの活動をおこなった。

以下に上記5つの項目について課題別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力学効果を通して活用するという仕組みを利用している。この概念は、原理的には固体にも適用可能である。しかし、固体系は光と相互作用する電子系以外にも格子振動など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を熱エネルギーに転化させることを厳密に排除することは容易ではない。従って、このアイデア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。また、励起方法についても工夫が必要である。このような観点から、本研究においては2つの半導体に的を絞って研究を進めた。すなわち、亜酸化銅の黄色系列励起子、塩化第一銅の励起子分子状態を対象とした。

【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。通常の光吸収では、このような狭い線幅の準位を効率よ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。しかし、2光子励起過程においては、状況がことなる。我々は、フェムト秒やピコ秒のパルス光による2光子励起法においては、運動量とエネルギーの保存則の要請により、周波数広がりの大きなパルス光源を用いた場合でも、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いだした。この方法を「位相空間圧縮法」と名付けた。これは、ボース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、この手法を用いて、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もつことを見いだし実証した。これは、高効率のスクイーズド光や量子相関光子対発生源として作用することと等価である。実際、手法を用いて、エンタングル光子発生の実証が枝松等によっておこなわれている。この手法は亜酸化銅の黄色系列1 s オルソ励起子にも適用された。1 s 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てきた。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。このような状況において、ピコ秒パルス光源を用いて、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。この場合もダブルパルス法により励起子波の干渉効果を高いビジビリティで実証することが出来た。この実験において、亜酸化銅の1 s 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わたり保持できることが示された。

【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、ボース統計に従うことから、そのボース・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の中のスピン禁制状態である、パラ励起子はその寿命が特異的に長いことから、励起子ボース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E R A T Oの終了間際にこのパラ励起子を定量的に検出する手法となりう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するもので、1 s 状態からn p 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できることなど、励起子B E Cの検証に不可欠な情報を得ることができる。亜酸化銅の場合この吸収系列は中赤外領域に現れる。我々はフェムト秒レーザーシステムを用いて、中赤外領域のポンプ・プローブ分光法を開拓し、亜酸化銅1 s 励起子系に対し、励起子ライマン分光法を提案し実証した。測定の定量化、高分解能化、ダイナミックレンジの確保などに工夫をこらし、励起子系の基礎情報をえることに成功した。(1) ライマン系列の振動子強度分配を定量的に評価し、1 s 励起子の波動関数を決定し、ボーア半径、1 s — 2 p 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A u g e r 効果によるロス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、励起子ボース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。

一方、間接型ワイドギャップをもつ半導体ダイヤモンドにおいて光励起される高密度電子正孔系のダイナミクスを詳しく調べ、外場印加による絶縁体-金属相転移の制御に挑戦した。

[2] 電子間相関及び協同励起現象を利用した光エレクトロニクス機能

E R A T O 研究において、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系として、同様な概念による新たな材料系の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、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。また巨大な3次非線形感受率を示すことも報告されている。我々は、ポリジアセチレンの基礎光学吸収を光子のエネルギースケールで眺めると、1次元の遷移金属酸化物と同様に、電子相関に起因する励起状態への遷移と見なすことが可能であると考えた。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、その粘性の高さがある。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。ある条件でパルス光を照射すると、ポリマーが切断され、分子量分布広がり小さなオリゴマーが得られることを見いだした。本研究では、微視的機構解明と制御性の向上を目的とした実験を進めた。この基礎原理について、国内外の特許を申請した。現在結果を論文にまとめる作業を進めている。これと並行して、酸化物系の材料探索も進めた。通信波長帯のスイッチングデバイスの実現を念頭に **Fe-O** 系酸化物を対象とした実験を進めた。

[3] テラヘルツ電磁波パルスによる物性評価と制御

超伝導体のBCSギャップなどの多体量子相関に関係した様々な協同励起が存在するテラヘルツ領域の電磁波を用いて、定量的物性評価法の確立に向けた実験を進め成果を上げることができた。まず、テラヘルツ領域での高感度な偏光分光法を開拓し、テラヘルツ領域での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、特許申請を行った。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、サンプル位置設定誤差の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できることに着目し、応答関数の因果律を利用し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などの実験を進めた。その結果、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いだした。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した。電磁波の偏光特性、磁場依存性等からこのテラヘルツ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繋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、E R A T O 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的に伝搬する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、近年の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。我々は、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した。また、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。

3. 研究構想

大きく展開を見せる光科学とそこから生まれる技術について、新しい物理概念として多体の量子系に注目し、物理現象と光制御機能の追求をしてきた。ERATO五神協同励起プロジェクトでは、「レーザー光を巧みにコントロールして光で物質系に集団の量子効果を発現させ、その物理学と応用の道筋を探る」というやや抽象的な主題のもとで、原子系から半導体、有機化合物、遷移金属酸化物と非常に広い物質系に対して研究を進めた。プロジェクトでは、(1) スピン禁制冷却法によるストロンチウム原子の急速冷却(2) 凝縮系を対象として多体量子効果に起因する光学現象の2つを軸として研究を進め大きな成果を得た。(1)は原子系の多体量子効果の発現のための方法論として開拓したものであるが、ERATOプロジェクトの期間中に、精密周波数計測法としての大きな可能性をもつことを見いだした為、その基盤技術開拓に軸足を移し研究を終了した。その後、この課題は、基礎グループリーダーであった香取秀俊氏が中心となり、周波数標準技術に向けた研究を進めている。同じく基礎グループのメンバーであった、井戸哲也氏はこの技術を、標準研究のメッカである米国NISTに持ち込み、ERATOで開拓した技術を普及発展させている。そこで、SORSTプログラムでは、(2)を中心とした研究に焦点をあてることとした。

光による固体中での多体量子現象の発現方法の探求と、それによる特異な光機能の研究を進める戦略として、ERATO時代に培ったレーザー分光技術を固体分光により深く活用するという狙いを狙った。従来原子分光は量子エレクトロニクスおよびレーザー科学の分野、固体分光は光物性分野と分かれて研究が進められてきた。我々の研究グループはこの両者をつなぐ世界でも唯一のグループであり、そのモデルとして原子分光量子エレクトロニクス分野の技術および研究文化を物性科学に持ち込むことを意図的に狙った。

この為、特に分光技術の定量的高度化、連続発振レーザーの活用など従来光物性研究では見られなかった手法の開拓を進めることとした。また、学術的には、従来超伝導や磁性といった低エネルギー物性において注目されている、量子力学的多体相関効果が光科学・光技術分野への応用においても重要な役割を果たすことを、具体例を持ってアピールすることを狙った。

本研究は、上記の狙いと戦略のもとに研究をすすめた。項目としては2で述べたように、次の5つの項目にまとめたが、この区分けは便宜的なものであり、ここの研究課題は相互に深く関連している。[1]量子縮退した電子正孔系の物理学と光制御機能、[2]電子間相関及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。

また、研究の推進において、人材育成の観点にも格別な配慮を行った。本課題に関連して研究に取り組む、学部学生、大学院修士学生、博士課程学生、博士研究員や助手といったスタッフがそれぞれ主体的に問題に取り組むと共に、広範にわたる研究テーマ間の関連を学ぶことで俯瞰的な視点を身につけることができるように配慮した。このため、研究推進運営においては、卒業論文発表や学位論文など学事のスケジュールを尊重してすすめることとした。これはERATOからSORSTへの移行に伴い、研究の主体が大学の中に移ったことに対する対応である。これらの研究と並行して、ERATO以来すすめている一連の研究を学問体系として整理する作業を代表者が中心となって進めた。英文のレビュー論文、中国科学アカデミーのWinter Schoolでの講義、高校生を対象とした講義、2006年10月岩波書店出版の「科学」において光科学特集号の監修およびレビュー記事執筆などの形で作業を進めた。

4. 研究実施内容

4. 1 本郷グループ

(1)実施の内容

前述の構想のもとに、①量子縮退した電子正孔系の物理学と光制御機能、②電子間相関及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、を進めた。

①では、励起子ボース凝縮系、フェルミ縮退した電子正孔系に注目し、光によって高密度低温の量子縮退した状態を創り出す方法の研究、そのための光源や励起方法の開発、励起子時空間ダイナミクスの観測、励起子の高感度検出法の開発を進めた。また、量子縮退した励起子や励起子分子のコヒーレント制御およびその量子光学的な光機能の探索を進めた。

②では、能動光素子のための材料開拓を念頭に、有機光材料として有望な共役高分子系の光照射分子量制御とその微視的機構解明の実験を進めた。

③では超伝導体のBCSギャップなどの多体量子相関に関係した様々な協同励起が存在するテラヘルツ領域の電磁波を用いて、偏光解析法および誘電分散決定法に注目し、定量的物性評価法の開拓を進めた。

④ではスピントロニクス応用が注目される半導体系材料を中心に、時間分解磁気光学分光、中赤外領域ポンプ・プローブ分光、テラヘルツ磁気光学分光などの実験を進めた。

⑤では連結微小球を用いた微小領域での光波操作、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の単一分子分光の実験を進めた。また、人工キラルナノ金属格子を用いた巨大光学活性観測の実験を進めた。

(2)得られた研究成果の状況及び今後期待される効果

実施の内容の項目で掲げた研究項目ごとにこれまで得られた成果を以下にまとめる。

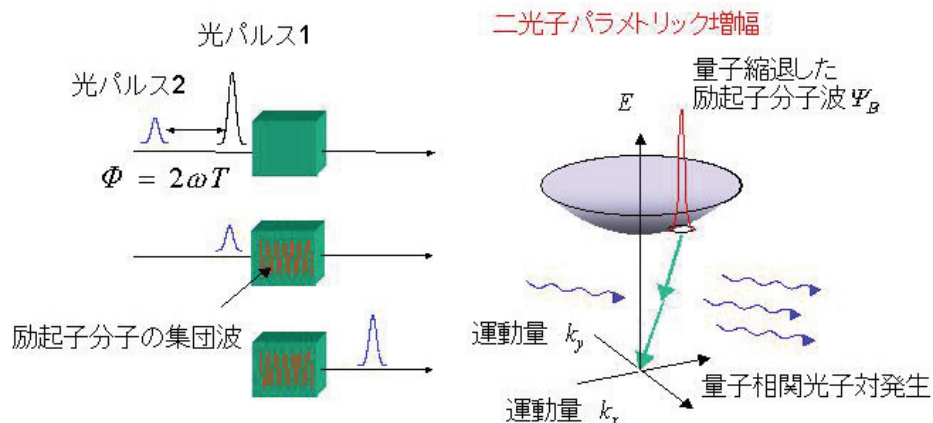
① 量子縮退した電子正孔系の物理学と光制御機能

①-1 位相空間圧縮法と高効率量子相関光対発生の実証（論文発表-1,14,30,32）

励起子や励起子分子をそろった状態で高密度に作ることが、巨視的量子現象の発現のための必要条件である。原子系と異なり、固体の中の準粒子はその寿命が短いため、光励起で粒子を高密度に作り、その自然な冷却を待つという方法では、このような状態を得ることが通常はできない。我々はパルス光による共鳴二光子励起過程における、エネルギーと運動量の選択則によって、作られる粒子の運動量分布が極端に小さくなることを発見し、これを位相空間圧縮法として提案した。この原理をまず、CuClの励起子分子に適用した。量子縮退した励起子分子の集団は波として振る舞う。これを実証するために、時間差を付けたパルス光で2つの波を生じさせ、その相対的な位相をコントロールし、きれいな干渉が起こることを確認した。このような位相のそろった波となった励起子分子集団は光子場との相互作用によって、2対の量子相関を持った光子発生源となる。これを実証するために、励起子分子のほぼ半分のエネルギーを持つ光を照射し、巨視的な励起子分子波が存在する状況での2光子パラメトリック増幅を観測した。その結果極めて高い効率で量子相関光子対を発生できることが実証された。

この手法は、亜酸化銅の1sオルソ励起子にも応用可能である。この手法を用いて、1sオルソ励起子を極低温高密度の状態に励起すること、オルソ励起子を2光子コヒーレンス

の保持に使えることなどの研究を進めた。特に、1s オルソ励起子は非局所的な電子正孔交換相互作用によって、4重極放射許容な準位と禁制のダーク励起子準位に分裂することが最近明らかになった。2光子励起による位相空間圧縮法によって、光のコヒーレンスをダーク励起子に転写できることを見だし、その実証に成功した。この原理を用いて固体による電磁誘導透過への応用など、多体電子系による光遅延・凍結への応用を提案した。



①-2 励起子ライマン分光法の開拓と励起子ボース凝縮相の解明（論文発表-13,18,20,21,34,35）

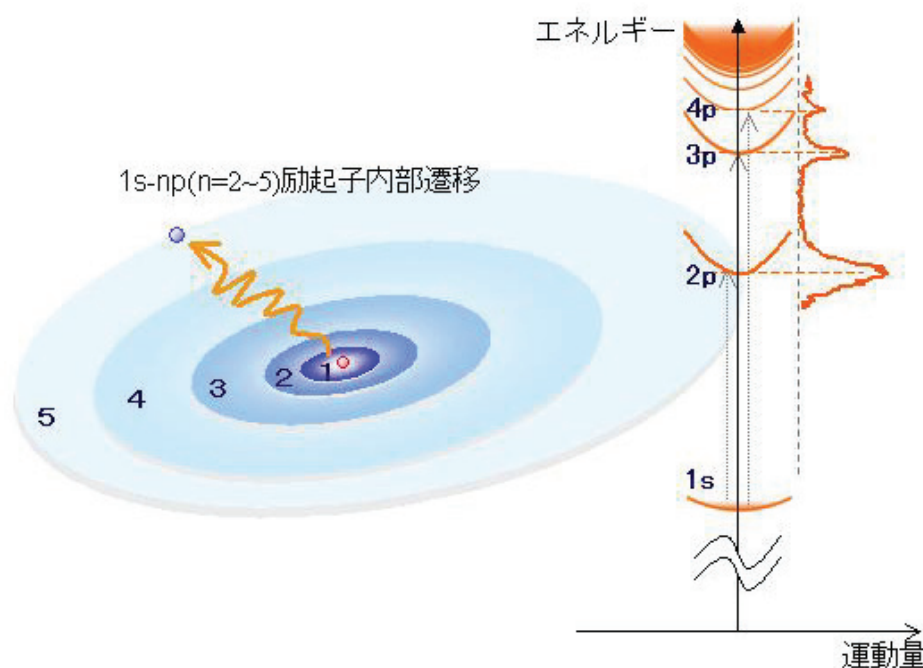
励起子は電子・正孔という二つのフェルミ粒子から構成される複合ボース粒子であり、低温高密度でボース・アインシュタイン凝縮が起こることが予想されている。しかし、その存在は理論的にも実験的にも明らかではない。亜酸化銅のスピンの禁制パラ励起子は、その寿命が特異的に長く、ボース・アインシュタイン凝縮の検証には最適であるとされてきた。しかし、スピン禁制パラ励起子はスピン三重項状態で、直接の光学遷移が禁制であり検出が困難であった。我々は、励起子の内部遷移(1s $\Rightarrow$ 2p)を検出するフェムト秒中赤外誘導吸収測定法により、オルソ励起子とパラ励起子を分離してその運動分布、密度などの挙動を捉える方法を世界で初めて確立した。その結果、オルソ励起子を低温高密度に生成すると、高効率にパラ励起子が生成されることを初めて見いだした。また、高次の励起子ライマン系列(n=1 $\Rightarrow$ n=2 $\sim$ 5)の検出に成功し、そのスペクトル系列の解析から1s励起子の波動関数の詳細な情報が得られることがわかった。さらに、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、この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効果によるロスを上回ることを確認した。また、中赤外光源であるCW炭酸ガスレーザーによるスピン禁制励起子のプローブ法の開発も合わせて進めた。これによりスペクトル幅の広いパルス光を用いたプローブでは困難な、スピン禁制励起子の高感度分光が可能となり、ボース・アインシュタイン凝縮の議論にきわめて重要な励起子の有効質量や寿命といったパラメータの決定を実現した。

一方で、パラ励起子を空間的にトラップすることはBEC実現の鍵となる可能性がある。励起子内遷移(1s $\Rightarrow$ 2p)の近共鳴にある中赤外光による光シュタルクシフトを利用した光トラップ法、局所的に歪ポテンシャルによるトラップ法の検討を進めた。励起子の長い輻射寿命は結晶試料の質に大きく依存するため、良質の結晶試料を用いる必要がある。そこで本研究においては天然単結晶試料を用いている。一方で、より制御された実験系の構築のためにも、人工的に単結晶を作製する必要がある。そこで本研究では、並行して人工単結晶作製法について検討を行い、作製された人工結晶について分光学的手法による試料評

価も行った。

これらの研究により、励起子 BEC の観測の条件をより絞り込むことができた。BEC の観測は粒子密度と温度のかねあいでは決まるが、生成効率、冷却効率、衝突誘起損失などの兼ね合いから、励起子 BEC の観測は比較的低密度領域を狙うべきであることがわかってきた。これは、通常の液体ヘリウム温度 (1.6K) 以下の条件を探る必要を意味する。そこで、1K 以下の温度を用意するために、無冷媒式のコンパクトなヘリウム3冷凍機を導入し、熱流入による温度の上昇を最小限に抑え中赤外レーザー分光を実現するための準備を進めた。

①-3 量子縮退電子正孔系の光機能特性評価と光閉じこめ (論文発表・2,5,7,8,19)



励起子を低温で高密度に生成すると、電子正孔液滴相に凝縮することが期待される。本研究では、広いエネルギー範囲においてダイナミクスを追跡することが可能であるワイドギャップ間接半導体 (ダイヤモンド) について、その電子正孔系のダイナミクスを明らかにすることを目的とした。高密度励起下における電子正孔液体の生成、消滅のダイナミクスについて時間分解発光スペクトル測定を行い、光励起により励起子が高密度に形成され、その後に過冷却状態にある励起子からモット転移を経て電子正孔液滴が形成されることを明らかにした。また、理論的研究によって、その低温における電子正孔液滴のダイナミクスは簡単なマスター方程式によって再現され、低温においては直接遷移半導体に類似したダイナミクスを示していることを示した。一方、この理論によると、高温において電子正孔液滴状態は準安定状態となることが示された。さらに、圧力印加によるバンドの縮退解除により液滴状態に対して励起子状態を安定化させることに成功し、液滴形成の臨界温度が外場により制御可能であることを実証した。

②電子間相関及び協同励起現象を利用した光エレクトロニクス機能

②-1 レーザー光照射によるジアセチレンオリゴマーの分子量、分子量分布の制御

有機の共役高分子系材料は、ERATOプログラムで着目した、1次元銅酸化物と同様な電子構造を持ち、非線形光学材料としての潜在力が期待できる。特にポリジアセチレンは三次非線形光学感受率が大きな材料として有名な材料である。ERATOプログラムの研究において、可溶性ポリジアセチレンの溶液に、二光子励起波長領域のレーザー光を照射すると、従来、重合過程では分離が極めて困難とされていた大きな分子量のオリゴマーを小さな分子量分布で調製することが可能であることを見出した。そこで、このような光

解合過程のメカニズムを明らかにする研究を進め調整の効率化や非線形素子への応用を検討した。様々な光強度、照射時間の条件で生成されたポリジアセチレンについて、高速液体クロマトグラフィー、NMR スペクトル、IR スペクトル、可視、紫外線吸収スペクトル、元素分析等の測定を行った。それらの実験結果に基づいて、オリゴマー生成のメカニズムを解明した。ポリジアセチレン及び光分解反応で得られる共役系オリゴマーについて、微小球共振器との組み合わせからなる微小光素子の開発を目指した検討を行った。

②-2 赤外域能動光素子のための強相関電子材料の開拓

光通信帯域 ($1.5 \mu\text{m}$) において非線形光学効果や光増幅機能を発現する物質の開発が必要とされている。特に、材料の廉価性、フレキシビリティなどの理由からも、有機系材料での材料が探索されている。本研究では、光通信帯域で機能する有機系材料の開拓を目的とした。主鎖と共役した側鎖基を有するポリジアセチレンを調製することを目的として、テトラアセチレン化合物の合成を行い、初期モノマーの前駆体を合成した。モノマーの化学構造の最適化を図った後、放射線重合で得られる共役系ポリマーの非線形光学特性の評価を行い、微小球共振器への導入を検討した。また有機共役系ポリマー以外の希土類元素化合物については、エルビウム、ユウロピウムの二種類の元素と、ジベンゾイルメタン、アセチルアセトンの二種類の配位子との組み合わせからなる錯体を合成し、マトリックスポリマーとの相溶性が良好であることを確認した。

②-3 通信波長帯域での光制御実証実験

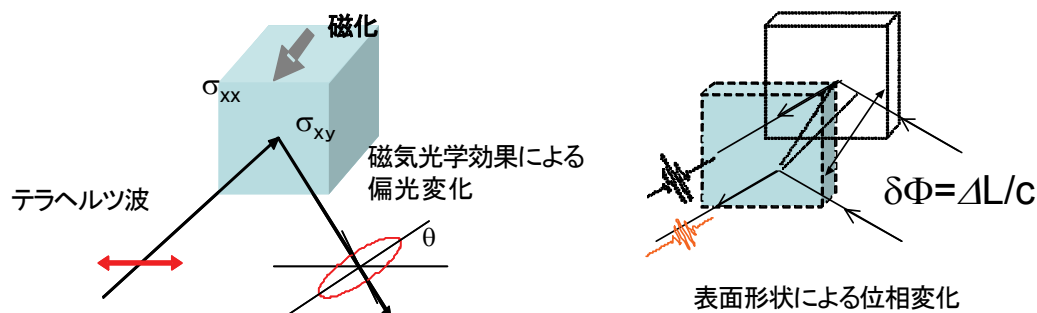
光ファイバーネットワークにおける光ルーターへの応用などの観点から、光通信帯域において超高速光スイッチング機能をもったデバイスの実現が望まれている。本研究では、そのような将来的な光スイッチングデバイスの実現を念頭に、それらのデバイスの評価する実験技術を構築することを目的とした。そのために通信波長帯域 $1.5 \mu\text{m}$ の光源、およびそれらの光源を用いた実験系の整備をおこなった。光パラメトリック増幅による $1.5 \mu\text{m}$ 光源の整備、より実用に近い光源であるファイバーレーザーの導入を行った。特に高繰り返し (50 MHz) 光源を用いた光スイッチング実験においては、パルス光あたりのパワーが小さくなるために、高感度の検出システムの構築が必要になる。そのために、干渉計をもとにした、ポンプによって生じるプローブ光の僅かな位相シフトを検出するような時間分解フェムト秒干渉計の構築をおこなった。

また、通信帯域光で光スイッチング機能を発現する物質の候補物質の一つとして鉄系強相関物質 Fe-O 系物質について光スイッチング特性の評価を行った。

③ テラヘルツ電磁波パルスによる物性評価と制御 (論文発表-15,16,25,28,29,33)

テラヘルツ領域と呼ばれ、これまで未開拓のエネルギー領域であり近年盛んに研究が行われているエネルギー領域(数meV)には、超伝導体のBCSギャップなどの多体量子相関に関係した様々な協同励起が存在する。しかし、そのエネルギー領域では、これまでに用いられてきた様々な仮定・近似の妥当性が成立しなくなるなどの理由によって、未だにその物性評価方法が確立されていない。本研究では、伝導物性と光物性をつなぐ為に、テラヘルツ電磁波パルスを用いた定量的物性評価法の確立を目的とした。最大エントロピー法やクラマース・クロニッヒ法等の数理解析手法を駆使し、テラヘルツ領域での物性応答とサンプル位置を同時に決定する手法を開発した。この手法をイメージング測定に適用し、試料の物性パラメータ分布と表面形状を同時に決定するイメージング測定手法を考案した。実際に金属と半導体が混合した試料に対してこの測定手法を適用し、物性応答の分布と表面形状を同時に決定した。また、高周波で動作する光電素子の特性評価、機能探索に必要な計測手法として、テラヘルツ時間領域分光法に着目し、テラヘルツ周波数帯の電気伝導度スペクトルを定量的に決定する手法の開発を進めた。特に、ホール伝導度を非接触で計測する手法として、THz周波数帯での反射型磁気光学分光法を開拓した。反射型であることにより、不透明材料の高周波THz伝導度評価の道が開けた。高感度な反射型テラヘルツ偏光分光法の開発に成功し、極微弱な磁気光学効果の検出が可能となった。得られた磁気

光学信号から、電気伝導度を導出する数値計算アルゴリズムの構築を行った。本手法を、半導体InAsに適用し、非接触ホール測定の実証実験に成功した。



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（論文発表・11,12,31）

強磁性の発現は、基底状態において多体量子相関が顕著に現れた典型的な現象である。最近、遷移金属をドーピングしてゆくことによって強磁性が発現する希釈磁性半導体が発見された。しかし、このIII-V族希薄磁性半導体GaMnAsにおいては、その強磁性発現機構がよくわかっていない。本研究ではそのメカニズムを解明する為に、その機構に強く関与していることが示唆されているアクセプタバンドの役割を明らかにすることを目的とした。アクセプタバンドに関わる遷移には、中赤外域吸収スペクトルが対応する。この中赤外域のスペクトルと近赤外域の磁気カースペクトルについて、その時間変化を測定し、これらを磁化の応答と比較した。その結果、観察された時間変化がアクセプタ束縛磁気ポーラロンモデルに基づいて説明されることが見出された。この結果は強磁性発現においてアクセプタバンドの存在と磁気ポーロン効果が重要であることが示している。また、強磁性転移温度以下において、光パルス照射を行うと、磁化に依存した強いテラヘルツパルスが発生することを見いだした。このテラヘルツパルス信号は強磁性相の内部磁化と強い相関のあることを明らかにした。テラヘルツ放射光の偏光特性などの解析を進め、放射機構を明らかにするための実験を行い、高効率なテラヘルツ電磁波制御法への応用を検討した。

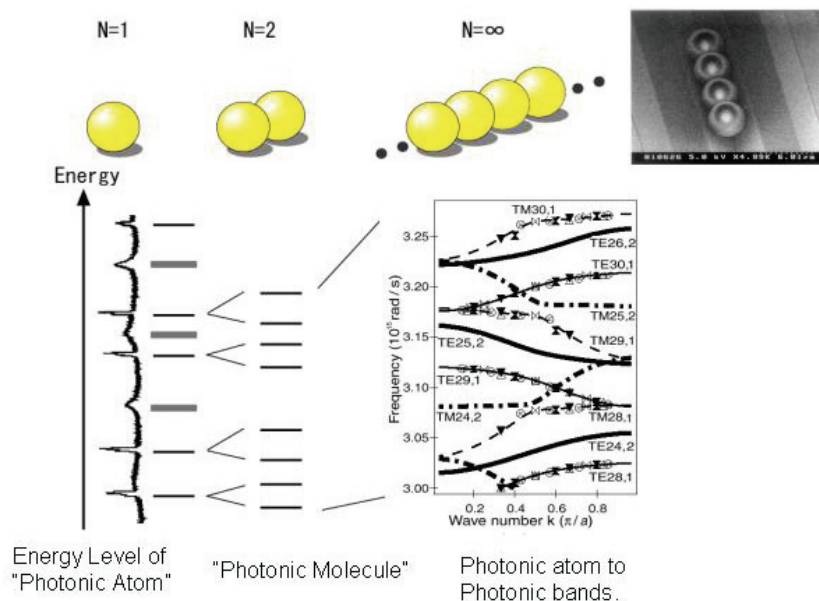
⑤ ナノ空間における光波制御

⑤-1 微小光共振器を用いたナノ光学素子（論文発表・3,9,10,23,24,27）

微小領域における光操作の手法はいくつか提案されているが、その中で近年議論されているものとして連結共振器導波路がある。これは光を強く閉じ込めることができる微小共振器を共鳴的に連結させることで、各共振器内に強く閉じ込められながら隣接する共振器間の弱い結合を介して光を導波させるものである。この構造を実現するために、Fabry-Perot 共振器やフォトニック結晶中の欠陥構造による共振器などが構成要素として提案されているが、現在の技術精度では、高い閉じ込め効率を持つ共振器を、共鳴モードをそろえた状態で作成することは極めて困難である。そこで本研究は、球径数ミクロンのポリマー微小球共振器の連結構造を用いた導波路に注目した。共鳴的連結構造を作るためには共鳴のそろった微小球を選別する必要があるが、微小球が非常に高い閉じ込めを実現する共振器であるためにその要求される精度も球径の0.05%と非常に高い。そこで我々は微小球中にドーピングされた色素の蛍光スペクトルを測定し、そこに現れる共鳴位置から非常に高い精度で球径のそろった微小球を選び出す技術を開発した。それにより8連球までの系において共鳴モードの観測に成功した。さらに球の数を増やし、現実的なデバイスの実現の検討を行うために光ピンセットによる微小球の操作とそれを用いた微小球の選別機の開発に進め、光ピンセットによって微小球を水溶液中において操作することに成功した。

また、通信波長帯域での光制御機能素子として機能の発現について基礎実験を開始した。希土類イオンドーピングガラス微小球共振器に着目し、1.5μm帯での光閉じ込め特性を調べた。特に室温からヘリウム温度まで温度を変えてイオンの蛍光寿命を詳細に調べることに

より、微小球の共振器量子電気力学効果についての検証を行った。またこの微小球共振器においてレーザー発振を観測し、光励起状態を利用した特異な光制御の可能性について検討した。



⑤-2 電荷移動錯体分子対を用いた単一光子光源とナノプローブ法

電荷移動錯体はドナー分子とアクセプタ分子の組み合わせによってその物性が多彩に変化することから、化学や物性物理学の研究対象として長く研究されている系であり、特に錯体分子対は個々の分子内の遷移よりも低エネルギーの光子を発生するために褪色寿命が著しく延びることが期待できる。さらにこの系は多様な分子の組み合わせによって簡便な単一光子発生源の開発の道が開かれるとともに、分子対の配置の制御などにより外的に制御可能な単一光発生源とすることが可能となる。本研究では有機電荷移動錯体における電子スピンの依存した電子状態を利用し、ナノスケールの空間分解能をもつ光学的プローブや長寿命な単一光子発生源の実現に向けて、実験を行った。特に本研究では孤立分子の観測を行うために希薄に分散した試料を作成し、バックグラウンドの発光を注意深く除去することにより電荷移動遷移による輝点状の発光を観測することに成功した。またその発光点滅の明状態、暗状態の寿命の比較から点滅現象がドナー励起三重項状態とポリマー中の分子配向変化によるものであることを明らかにした。

⑤-3 人工キラルナノスケール回折格子による光の偏光操作（論文発表・22,26）

光の波長と同程度の周期構造を持つ微小な擬二次元人工媒質においては、媒質の表面プラズモンと光の相互作用により異常に高い透過率が観測される事が知られており、更に近年、周期構造体の単位構造としてキラリティーを持った構造を用いる事により、透過率のみならず透過光の偏光が変化する可能性が示唆されている。本研究ではこのような人工キラル周期構造体に注目し、その様々な光学特性を調べることで、透過率・偏光に異常が生じる起源の解明を目指している。はじめに、広いスペクトル領域に渡って透過率スペクトル・偏光回転スペクトルを決定した。結果、観測された偏光回転スペクトルにおいては、表面プラズモン共鳴近傍で特異な振舞が見られ、この現象が光と表面プラズモンの相互作用と強く相関している事が見出された。また偏光回転スペクトルは周期構造のキラリティーに従って符号を変えており、この偏光回転が周期構造単位構造のキラリティーに起因している事が分かった。得られた偏光回転の大きさをキラル周期構造体の膜厚で規格化すると $10^4 / \text{mm}$ に達し、自然界のキラル物質(水晶: $\sim 10^2 / \text{mm}$)が有する旋光能と比較すると極めて大きな値が得られた。更にこの偏光回転の生じる機構について探る為に、キラル周期構造体の表面から光を入射した場合と裏面から光を入射した場合について偏光回転スペク

トルの比較する実験を行ったところ、ここで観測された偏光回転は自然界の三次元媒質において観測されるキラリティーと全く同じ対称性を有しており、擬二次元周期構造体の持つ僅かな3次元方向性が偏光回転において重要である、と言う事が明らかになった。また、対称性に基づいた考察の結果、観測された光学現象の次元性は電磁場方程式が満たす対称性からも保証されることが分かった。

5. 類似研究の国内外の研究動向・状況と本研究課題の位置づけ

物質粒子を高密度で極低温の状態にすると、量子統計性が顕在化し巨視的な量子現象が出現する。超伝導や超流動、原子気体のボース・アインシュタイン凝縮などはその実例である。このような集団の量子現象を探ることは、現代の物性物理学や低温物理学研究の中心課題であり、世界中で様々な研究が進められている。特に、原子系を用いた研究が活況を呈している。原子系ではボース原子気体のボース・アインシュタイン凝縮（1995年、2001年ノーベル物理学賞）に始まり、現在ではフェルミ粒子、さらにはその複合系の極低温分子系などの実験が盛んになっている。

原子系の研究の基礎となるレーザー冷却技術の開拓においては、我が国は大きな貢献をしてきた。しかし、その後の量子物理学研究においては、残念ながら遅れをとっていた。本SORS T研究において、主要課題ではないが、その重要性に鑑み、フェルミ原子系の研究舞台を整えるためにリチウム原子の冷却トラップ法の開拓をすすめた。行った。この研究はSORS T研究の途中段階で、ERATO上田プロジェクトが発足したことから、より集中して原子系による量子物理学の研究がスタートしたことから、そこに集約すべきと判断し本プログラム内での研究を終了した。

本研究の主題である固体系の研究は、近年活発さを増している。励起子ボース・アインシュタイン凝縮の問題は、Butov 等による結合量子井戸系での励起子や、Eisenstein 等による二次元二重電子層の半充填量子ホール系での励起子について、量子凝縮を主張する実験が報告され、世界の研究者から再び注目を集めた。それに刺激される形で、本研究で取り上げた、亜酸化銅単結晶のスピンの禁制パラ励起子系の検出やそのボース凝縮の議論も活発化している。Loosdrecht 等[Groningen, Netherland]や Klingshirn 等[Karlsruhe, Germany]らが我々の開拓した時間分解ライマン分光法と同種の方法によってスピン禁制パラ励起子の検出実験を進めている。我々の手法は従来のルミネッセンス測定によるものと比べ、スピン禁制の励起子を定量的に捉えることができることが特徴であり、励起子ボース・アインシュタイン凝縮の議論を従来の定性的レベルの議論から定量的議論へと高めたことが大きな成果である。この結果に基づく定量評価によると、40 年来の懸案である励起子ボース・アインシュタイン凝縮の問題に決定的な進展をもたらす可能性が極めて高い。

超高速光制御に関する研究は、ここ 4、5 年小康状態が続いている。これは IT バブル崩壊による、超高速光通信部品需要の一時的減少によって主に企業での開発が停滞したことによる。しかし、IT バブル崩壊からのリカバリーは進んでおり、新規光技術需要は再び伸び始めている。特に、センサ応用に向けた中赤外から遠赤外の光源および検出技術、大容量メモリーや量子情報技術への展開を視野に入れた光制御機能に関する研究は活発になっており、引き続きのばすべき研究テーマである。本研究で進めた中赤外分光技術開拓やテラヘルツ計測技術はこれらの動向ともマッチする基礎研究となっており、今後の展開が期待できる。

一方、フォトニック結晶の開発やその応用研究が活発化している。これは光通信システムでネックとなる光バッファや、単一光子制御で必要となる究極的な電磁場制御を実現できる可能性があることと、加工技術の進歩によって、様々な応用が視野に入ってきたからである。本研究で進めている、微小球を利用する方法は極限的な制御の実現に向けた技術として、これらとは相補的な手法として、今後広がりを見せる可能性があると考えている。実際、量子情報技術のメッカとも言えるフランスエコールノルマルグループと米国カリフォルニア工科大学で、研究が進められている。サイズ制御された微小球の製造方法などの展開があれば大きく発展する可能性があり、今後発展させるべきであると考えている。

本研究の後半で進めた、ナノキラル格子の研究は金属微細構造による特異な光学応答を活用するプラズモニクスと呼ばれる研究分野およびメタマテリアルと呼ばれる研究とのつながりがあり、注目を集めている。表面プラズモン共鳴を積極的に利用するプラズモニクスは、Ebbesen 等による金属薄膜二次元ホールアレイにおける異常透過率増大の発見を契機として、新しい光波制御技術として研究が急速に広がっている。これは、微細加工技術の進歩によって、光の波長程度の人工構造の作製が可能になっているということも大きな

要因である。一方、Pendry 等によってその指針が提案された、誘電率のみならず透磁率も設計可能な人工構造体はメタマテリアルと呼ばれている。これまでは主にマイクロ波の領域で研究が行われてきたが、近年 Wegener 等によって、可視光も視野に入る領域まで短波長化が進められている。本研究では、これまでプラズモニクスの分野ではあまり注目されていなかった、擬二次元構造を用いた偏光操作と、周期構造の単位構造に注目し、巨大な光学活性を人工構造で実現したという点で意義深い。この物理現象のメカニズム解明は現在進行中の課題であるが、人工構造体の実効的な誘電率及び透磁率をどう考えるのが妥当かという問題は現在メタマテリアルの分野で議論されている問題とシームレスにつながるべきものであり、本研究で発見した現象を逆に長波長域に展開していくことによって、新たな知見が開けてくる可能性があると考えている。

6. 研究実施体制

(1)メンバー表

①本郷グループ

①研究者名（所属、役職、機構が雇用・派遣した研究者を含む。）

氏 名	所 属	役 職	参加時期
五神 真（代表）	東京大学	教授	平成 14 年 10 月～（平成 19 年 03 月）
竹田 研爾	東京大学	SORST 研究員	平成 14 年 10 月～（平成 19 年 03 月）
大門 正博	東京大学	SORST 研究員	平成 15 年 04 月～（平成 15 年 11 月）
太野垣 健	東京大学	SORST 研究員→助手 (H17.8-)	平成 16 年 02 月～（平成 19 年 02 月）
中 暢子	東京大学	特任講師	平成 16 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
島野 亮	東京大学	助手→助教授(H15.3-)	平成 14 年 10 月～（平成 19 年 03 月）
向山 敬	東京大学	助手	平成 16 年 04 月～（平成 18 年 03 月）
J. Heroux	東京大学	外国人特別研究員→ SORST 研究員(H17.10-) →助手(H18.4-)	平成 15 年 10 月～（平成 19 年 03 月）
小嶋 映二	東京大学	大学院生	平成 14 年 10 月～（平成 16 年 03 月）
原 佳子	東京大学	大学院生	平成 14 年 10 月～（平成 17 年 03 月）
井野 雄介	東京大学	大学院生	平成 14 年 10 月～（平成 18 年 03 月）
山本 健策	東京大学	大学院生	平成 14 年 10 月～（平成 15 年 03 月）
窪内 源宜	東京大学	大学院生	平成 14 年 10 月～（平成 19 年 03 月）
齋藤 信美	東京大学	大学院生	平成 15 年 04 月～（平成 16 年 03 月）
財満 康太郎	東京大学	大学院生	平成 15 年 04 月～（平成 17 年 03 月）
吉岡 孝高	東京大学	大学院生→助手 (H19.3-)	平成 15 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
稲田 安寿	東京大学	大学院生	平成 16 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
清水 真理子	東京大学	大学院生	平成 16 年 04 月～（平成 18 年 03 月）
小西 邦昭	東京大学	大学院生	平成 17 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
宮戸 泰三	東京大学	大学院生	平成 17 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
大石 宏晶	東京大学	大学院生	平成 17 年 04 月～（平成 19 年 03 月）

大間知 潤子	東京大学	大学院生	平成 17 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
井手口 拓郎	東京大学	大学院生	平成 18 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
島崎 敏彦	東京大学	大学院生	平成 18 年 04 月～（平成 19 年 03 月）
芦田 昌明	大阪大学	助教授	平成 14 年 10 月～（平成 19 年 03 月）
松家 百子	東京大学	SORST 技術員	平成 14 年 10 月～（平成 16 年 09 月）
白濱 昌子	東京大学	SORST 技術員	平成 14 年 10 月～（平成 19 年 03 月）
吉田 彩子	東京大学	研究補助員	平成 14 年 10 月～（平成 15 年 09 月）
真鍋 尚子	東京大学	研究補助員	平成 15 年 04 月～（平成 16 年 03 月）
佐藤 由美子	東京大学	研究補助員	平成 16 年 04 月～（平成 17 年 08 月）
浅川 史	東京大学	研究補助員	平成 17 年 10 月～（平成 19 年 03 月）

7. 研究期間中の主な活動

(1) ワークショップ・シンポジウム等

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成 15 年 9 月 16 日	Symposium on “Quantum Correlation and Coherence”	山上会館 (東京大学 本郷キャン パス内)	約 100 名	光と物質の相互作用によって 極低温に冷却された原子系や 電子正孔系、および、量子光学 的に制御された光を用いて量 子力学的な非局在相関を発現 させる原理とその実験技術に ついての最新の結果をもとに 討論を行われた。

(2) 招聘した研究者等

氏 名 (所属、役職)	招聘の目的	滞在先	滞在期間
Yuri Svirko (Joensuu 大学, 教授)	実験結果の検証・ディスカッショ ン・研究打ち合わせ・今後の方針等 議論	本郷	H15.04.12-23
〃	〃	〃	H15.12.18-28
〃	〃	〃	H16.07.13-25
〃	〃	〃	H17.07.02-16
〃	〃	〃	H18.11.18-29
Serge Haroche (Ecole Normale Supérieure, 教授)	研究討論	本郷	H15.09.15-21
Peter Zoller (Innsbruck 大学, 教授)	研究討論	本郷	H15.09.15-21
Sean Xiang Peng (Arizona 大学, 大学院生)	共同実験	本郷	H15.10.12-24
Andre Mysyrowicz (Ecole Polytechnique、研究部長)	実験結果の検証・ディスカッショ ン・研究打ち合わせ・今後の方針等 議論	本郷	H15.11.15-29
〃	〃	〃	H16.04.28-05.14
〃	〃	〃	H16.11.06-17
〃	〃	〃	H17.07.02-16
芦田 昌明 (大阪大学、助教授)	実験結果の検証・ディスカッショ ン・研究打ち合わせ・今後の方針等 議論	本郷	H16.07.01-03
〃	〃	〃	H16.10.18-20
〃	〃	〃	H17.08.08-10
Ming-Wei Wu (中国科学技術大学、教授)	研究討論	本郷	H17.07.16-31

8. 発展研究による主な研究成果

(1)論文発表（英文論文 35 件 邦文論文 0 件）

”著者、発表論文名、掲載誌（巻、号、発行年）等。”

（「発展研究」の成果として対外的に言えるものをリストアップ。公表済み論文だけでなく、*in press* の論文も記載可。これらのうち主要と思われる論文5報については、行頭に○を付けること。）

1. R. Shimano, Yu. P. Svirko, A. Mysyrowicz, M. Kuwata-Gonokami, Efficient Two-Photon Light Amplification by a Coherent Biexciton Wave, *Phys. Rev. Lett.*, 89, (23) 233601 (2002).
2. M. Nagai, M. Kuwata-Gonokami, Electron-hole liquid formation by exciton and biexciton resonant excitation in CuCl, *J. Lumin.*, 100, (1-4) 233-242 (Dec. 2002).
3. X. Peng, F. Song, S. Jiang, N. Peyghambarian, M. Kuwata-Gonokami, Fiber-taper-coupled L-band Er^{3+} -doped tellurite glass microsphere laser, *Appl. Phys. Lett.*, 82, (10) 1497-1499 (Mar. 2003).
4. T. Mukaiyama, H. Katori, T. Ido, Y. Li, M. Kuwata-Gonokami, Recoil-Limited Laser Cooling of ^{87}Sr Atoms near the Fermi Temperature, *Phys. Rev. Lett.*, 90, (11) 113002-1-4 (Mar. 2003).
5. M. Nagai, R. Shimano, K. Horiuchi, M. Kuwata-Gonokami, Phase diagram of the quantum degenerate electron-hole system in diamond, *Phys. Stat. Sol. (b)*, 238, (3) 509-512 (July, 2003).
6. T. Aoki, Yu. P. Svirko, M. Kuwata-Gonokami, Biexcitonic effects in the time integrated four-wave mixing with picosecond pulses, *Sol. Stat. Comm.*, 127, (3) 197-201 (July, 2003).
7. L. Jiang, M. W. Wu, M. Nagai, M. Kuwata-Gonokami, Formation and Decay of Electron-Hole Plasma Clusters in Direct-Gap Semiconductor CuCl, *Chin. Phys. Lett.*, 20, (10) 1833-1835 (Aug. 2003).
8. M. Nagai, R. Shimano, K. Horiuchi, and M. Kuwata-Gonokami, Creation of supercooled exciton gas and transformation to electron-hole droplets in diamond, *Phys. Rev. B*, 68, (8) 081202 (R)-1-4 (Aug. 2003).
9. X. Peng, F. Song, M. Kuwata-Gonokami, S. Jiang, and N. Peyghambarian, Temperature dependence of the wavelength and threshold of fiber-taper-coupled L-band Er^{3+} -doped tellurite glass microsphere laser, *Appl. Phys. Lett.*, 83, (26) 5380-5382 (Dec. 2003).
10. Y. Hara, T. Mukaiyama, K. Takeda, and M. Kuwata-Gonokami, Photonic molecule lasing, *Optics Letters*, 28, (24) 2437-2439 (Dec. 2003).
11. T. Ogasawara, M. Matsubara, Y. Tomioka, M. Kuwata-Gonokami, H. Okamoto, and Y. Tokura, Photoinduced spin dynamics in $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ observed by time-resolved magneto-optical Kerr spectroscopy, *Phys. Rev. B*, 68, (18) 180407 (R)-1-4 (Nov. 2003).
12. E. Kojima, R. Shimano, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, Y. Iye, and M. Kuwata-Gonokami, Observation of the spin-charge thermal isolation of ferromagnetic $\text{Ga}_{0.94}\text{Mn}_{0.06}\text{As}$ by time-resolved magneto-optical measurement, *Phys. Rev. B*, 68, (19)193203-1-4 (Nov. 2003).
13. M. Kuwata-Gonokami, M. Kubouchi, R. Shimano, A. Mysyrowicz, Time-resolved Excitonic Lyman Spectroscopy of Cu_2O , *J. Phys. Soc. Jpn.*, 73, (4) 1065-1069 (April 2004).
14. Y. Svirko and M. Kuwata-Gonokami, Nonlinearity of biexciton wave in CuCl, *J. Phys.: Condens. Matter*, 16, S3721-S3726 (2004).
15. Y. Ino, R. Shimano, Y. Svirko, and M. Kuwata-Gonokami,

- Terahertz time domain magneto-optical ellipsometry in reflection geometry,
Phys. Rev. B, 70, (15) 155101-1-9 (Oct. 2004).
16. E. M. Vartiainen, Y. Ino, R. Shimano, M. Kuwata-Gonokami, Y. P. Svirko, K.-E. Peiponen,
Numerical phase correction method for terahertz time-domain reflection spectroscopy,
J. Appl. Phys., 96, (8) 4171-4175 (Oct. 2004).
 17. R. Takayama, N. H. Kwong, I. Rumyantsev, M. Kuwata-Gonokami, R. Binder,
Material and light-pulse parameter dependence of the nonlinear optical susceptibilities in
the coherent $\chi^{(3)}$ regime in semiconductor quantum wells,
J. Opt. Soc. Am. B, 21, (12) 2164-2174 (Dec. 2004).
 18. ○M. Kubouchi, K. Yoshioka, R. Shimano, A. Mysyrowicz, and M. Kuwata-Gonokami, Study
of orthoexciton-to-paraexciton conversion in Cu₂O by excitonic Lyman spectroscopy,
Phys. Rev. Lett., 94, (1) 016403-1-4 (Jan. 2005).
 19. J. H. Jiang, M. W. Wu, M. Nagai, M. Kuwata-Gonokami,
Formation and decay of electron-hole droplets in diamond,
Phys. Rev B, 71, (3) 035215-1-6 (Jan. 2005).
 20. Makoto Kuwata-Gonokami,
Observation of ortho and para-excitons by time-resolved excitonic Lyman spectroscopy,
Solid State Commun., 134, (1-2) 127-133 (April 2005).
 21. ○T. Tayagaki, A. Mysyrowicz, and M. Kuwata-Gonokami,
The Yellow Excitonic Series of Cu₂O Revisited by Lyman Spectroscopy,
J. Phys. Soc. Jpn. 74 (5) 1423-1426 (May 2005).
 22. K. Jefimovs, N. Saito, Yu. Ino, T. Vallius, P. Vahimaa, J. Turunen, R. Shimano,
M. Kauranen, Yu. Svirko, M. Kuwata-Gonokami,
Optical activity in chiral gold nan gratings,
Microelectronic Engineering, 78-79, 448-451, (2005).
 23. ○Y. Hara, T. Mukaiyama, K. Takeda, and M. Kuwata-Gonokami,
Heavy Photon States in Photonic Chains of Resonantly Coupled Cavities with
Supermonodispersive Microspheres,
Phys. Rev. Lett. 94 (20), 203905-1-4 (May 2005).
 24. X. Peng, F. Song, M. Kuwata-Gonokami, S. Jiang. N. Peyghambarian,
Er³⁺-doped tellurite glass microsphere laser: optical properties, coupling scheme, and lasing
characteristics.
Opt. Eng., 44, (3) 034202 (2005).
 25. V. Lucarini, Y. Ino, K.-E. Peiponen, M. Kuwata-Gonokami,
Detection and correction of the misplacement error in terahertz spectroscopy by application
of singly subtractive Kramers-Kronig relations,
Phys. Rev. B 72, 125107-1-6 (2005)
 26. ○ M. Kuwata-Gonokami, N. Saito, Y. Ino, M. Kauranen, K. Jefimovs, T. Vallius, J. Turunen,
and Y. Svirko,
Giant Optical Activity in Quasi-Two-Dimensional Planar Nanostructures
Phys. Rev. Lett., 95, 227401 (2005)
 27. J. Wu, S. Jiang, T. Qua, M. Kuwata-Gonokami, N. Peyghambarian,
2 μ m lasing from highly thulium doped tellurite glass microsphere.
Appl. Phys. Lett., 87, 211118-1-3 (2005)
 28. K.-E. Peiponen, E. Gornov, Y. Svirko, Y. Ino, M. Kuwata-Gonokami, and V. Lucarini,
Testing the validity of terahertz reflection spectra by dispersion relations
Phys. Rev. B 72, 245109-1-5 (2005)
 29. Y. Ino, J. B. Heroux, T. Mukaiyama, M. Kuwata-Gonokami,
Reflection-type pulsed terahertz imaging with a phase-retrieval algorithm
Appl. Phys. Lett., 88, 041114 (2006)
 30. K. Yoshioka and M. Kuwata-Gonokami,
Dark excitons in Cu₂O crystals for two-photon coherence storage in semiconductors
Phys. Rev. B, 73, 081202(R) (2006)
 31. ○J. B. Heroux, Y. Ino, M. Kuwata-Gonokami, Y. Hashimoto and S. Katsumoto, "Terahertz
radiation emission from GaMnAs.", Appl. Phys. Lett., 88, 221110 (2006)
 32. K. Yoshioka and M. Kuwata-Gonokami, "Two-photon coherent control of dark

- orthoexcitons in Cu₂O." Phys. Stat. Sol (c) 3 (7), 2465 (2006)
33. E. Gornov, K.-E. Peiponen, Y. Svirko, Y. Ino and M. Kuwata-Gonokami, "Efficient dispersion relations for terahertz spectroscopy.", Appl. Phys. Lett., 89, 142903 (2006)
 34. T. Tayagaki, A. Mysyrowicz, and M. Kuwata-Gonokami, "Collisions between supercooled excitons in Cu₂O studied by time-resolved Lyman spectroscopy", Phys. Rev. B 74, 245127 (2006).
 35. M. Kuwata-Gonokami, "Dynamics of cold excitons and electron-hole ensembles in direct-gap semiconductors studied by mid-infrared pump and probe spectroscopy", in "Problems of Condensed Matter Physics" CLARENDON PRESS, OXFORD (2006) (in print).

(2)口頭発表

①学会

国内 55 件（内招待講演 23 件）， 海外 50 件（内招待講演 24 件）

②その他

国内 0 件， 海外 0 件

(3)特許出願（本研究に係わり、JST から出願したものとして研究機関から出願したもの）

出願元	国内（件数）	海外（件数）
JST	4	3
研究機関	3	0
計	7	3

(4)その他特記事項

「ナノメートルの精度で揃えた微小球列で光を減速することに成功」

- ・読売新聞 2005/05/29
- ・日刊工業新聞 2005/05/31
- ・日経産業新聞 2005/06/03
- ・朝日新聞 2005/06/21

「ボース・アインシュタイン凝縮に新知見」

- ・科学新聞 2005/06/03

「ナノ加工を施した金属薄膜で光の偏光を大きく回転させる素子をつくることに成功」

- ・日刊工業新聞：2005/11/14
- ・日経産業新聞：2005/11/25
- ・朝日新聞：2005/12/06
- ・読売新聞：2005/12/14

9. 結び

本SORS T研究は、ERATOプロジェクトの成果を踏まえて、そのなかで新しく伸ばすべき研究をピックアップして比較的小規模で進めることを提案した。通常のSORS Tプログラムでは、その前の事業の50%程度の規模を標準としているが、本研究では20%以下の規模で進めることを提案し、採択されたものである。

本研究の提案時には、ERATOの成果を生かしつつ自律的に発展が可能なものは極力切り離すという方針のもとにスリム化を行った。例えば、ERATOプログラムにおいて中核的な施設となった神奈川サイエンスパークに設置した、原子系の実験室は完全にクローズし、その研究設備は、参加した研究者にすべて移管した。原子グループリーダーの香取秀俊氏は東京大学での研究に専念し、ERATOでの装置をすべて引き継いだ状態で、さがけプログラムや科研費、CREST研究などの支援を得て効率よく次のステップに進むことができている。メンバーの井戸哲也氏は本分野のメッカともいえるべき、米国JILAにおいて、ERATO時代の技術を発展させた研究の中核となって活躍した。また、アリゾナチームの理論チームとはその後も連携をとりつつ研究をすすめることができた。このようなスリム化は、研究テーマの弾力的発展を促すという意味で極めて効果的であった。

本研究終了報告書に述べたように、本研究は順調に進み、継続研究での予算を十二分に活用できた。単なるとりまとめではなく、新たな研究の手がかりとなる進展が多数出てきた。テラヘルツ偏光計測、磁性半導体によるテラヘルツ放射の観測、モルフォロジー制御による光学活性の発現などがその例である。

このように本SORS T研究により、ERATO研究による成果と新しい課題の芽を育て発展させることに大いに役だった。本事業の中でも、大学院学生の育成や、新しいリーダーとなる人材の育成が効果的に行われた。それは本事業と連携して行った卒業研究や大学院修士および博士論文研究に大いに活かされた。

