

「量子効果等の物理現象」
平成9年度採択研究代表者

山下 幹雄

(北海道大学大学院工学研究科 教授)

「サイクル時間域光波制御と単一原子分子現象への応用」

1. 研究実施の概要

本研究の目標は、(A)光サイクル時間域の極限的な光波機能(光パルスのモノサイクル化、多波長同時整形ビーム発生)を開拓し、(B)その新光波機能と STM とを融合させた時空間域極限技術(整形極限光波 STM 融合技術)を開発すること、およびそれらを用いて時間的疎視化・空間的平均化・集団的統計化のために隠れている量子現象(時空間極限量子現象)を明らかにし、かつ制御することである。

本年度の主たる成果は、(A)については、オクターブを越える超広帯域コヒーレント光パルスの光電場位相振幅を、高感度(従来法の 100 倍)でかつその場計測した結果をフィードバックして自動チャープ補償できる、計測・チャープ補償一体化装置を開発した。さらに、これを用いて、オクターブを越えるスペクトルを有する 3.7fs の最短光パルス発生を確認した。(B)については、フェムト秒時間分解STM装置の試作を完成し、基礎的な性能を測定した。STM の空間分解能($\sim 0.01\text{nm}$)を継承し、2つのパルス光間隔を 1fs 程度の精度で制御することで実効的なパルス幅(現状 25fs)と同程度の時間分解能を実現。パルス光間隔を変調することで探針の熱膨張によるトンネル電流変化を極限まで除去しつつ、時間分解信号を精度良く検出(トンネル電流感度 1pA)することが可能なシステムであることを確認した。

2. 研究実施内容

I. 極限光波研究

1. 極限的な高出力光電場波束の発生と計測一汎用的なサイクル光波束源への道
 - A. 昨年度成功した 4.1 fs モノサイクル光パルス発生の際のさらなる短パルスのために、大別して以下の2つの課題に注目して研究を進めた。第1は、非常に困難な未踏課題であるが、次の5つの条件を同時に満足する計測技術の開発である。即ち、①オクターブを越える超広帯域コヒーレント光パルスの②全体域に渡る光電場振幅位相を、③高感度でかつ、④その場計測した結果を⑤フィードバックして自動チャープ補償ができる、コンピュータ結合計測・チャープ補償一体化技術の開発を進めた。その結果、以下の成果を得た。
 - 1.1 前年度提案基礎実験に成功した、チャープ参照パルスとして高出力基本波シード光を利用する変形 SPIDER 法により、通常の SPIDER 法に比べて 100 倍以上の感度で光電場振幅位相を

準実時間計測する装置を開発した。

1.2 既に独自に開発したプログラマブルで広帯域なチャープ補償装置と1.1の変形 SPIDER 装置とをコンピュータフィードバック結合させ、自動チャープ補償・計測一体化技術を開発した。これを用いて、低出力石英ファイバー自己位相変調光のスペクトル位相を計測しつつ、その 350 fs パルスを 22 fs まで自動的に圧縮できることを確認した。

1.3 1.1の成果を基にして、10 μm 厚 -type II -BBO 結晶、超広帯域反射・分散特性を有する全光学素子および高感度広帯域高波長分解分光器を組み合わせた超広帯域変形 SPIDER 装置を試作し、1オクターブを越える、460-1000nm コヒーレントフェムト秒光パルス(キャピラリーファイバー自己位相変調光)の電場位相・振幅が準実時間で計測可能であることを初めて実証した。

1.4 1.3の装置を超広帯域化したプログラマブルチャープ補償装置とコンピュータフィードバック結合させ、サイドロブを伴った 3.7 fs の最短光パルス発生に成功した。現在、サイドロブのない transform limited パルス(2.4 fs)化をはかるため、チャープ補償装置内の空間位相変調器の高変調化および 4-f 系の最適化を進めている。

B. 一方、第2の課題として、キャリア位相が一定関係な2色フェムト秒光パルスを利用した誘起位相変調(IPM)光のプログラマブルチャープ補償技術の確立をめざした研究を行った。

1.5 その結果、800 nm・80 fs・64 nJ と 670 nm・80 fs・65 nJ との2色入力光パルス(両者のキャリア位相差は一定)を 4 mm 長石英ファイバーに伝播させて発生された IPM 光(200 fs パルス幅、560-870 nm 帯域)に対し、1.2の成果を基にした、初のフィードバック自動制御チャープ補償を行い、13 fs の IPM 光パルス圧縮を初めて実証した。現在、この技術を上述の1.3および1.4に活かし、夢の課題である汎用的な高出力モノサイクル光波束源の研究を進めている。

2. 高繰り返し極限光パルスの発生と計測 - 400 Tbits デジタル IT への道

2.1 テーパーファイバー自己位相変調光(75 fs パルス幅、600-900 nm 帯域、100 MHz 繰り返し)の複雑なスペクトル位相を1.1で開発した変形 SPIDER 装置により初めて計測した。さらにその結果を基にプログラマブルチャープ補償装置を用いて、テーパーファイバーとしては初めての 18 fs の光パルス圧縮に成功した。

2.2 4.5 fs サイクル光パルスのフォトニッククリスタルファイバー非線形伝播実験を行い、緩包絡波近似を越えた波動方程式による理論解析により、多数の非線形現象の結果生じる複雑な伝播特性が説明可能であることを、初めて明らかにした。

3. フェムト秒光パルス多波長波形整形とその応用

3.1 フェムト秒光パルス波形整形とチャープ補償同時実現

チタニウムサファイアレーザー増幅器からの ~ 30 fs の光パルスを、アルゴンガス充填キャピラリーファイバーに伝播させることにより、自己位相変調効果を用いて帯域を $\sim 700-900$ nm に広げ、これを空間位相変調器をともなった 4-f パルス整形装置により、チャープ補償と同時にパルス列を形成するための位相変調をも行い、パルス圧縮(圧縮比 $\sim 1/2$)をともなった最高繰り返し ~ 10 THz までのパルス列発生に成功した。

3.2 超広帯域空間位相変調の解析ならびに空間位相変調器による振幅変調効果の解析従来の波形整形理論の限界を明らかにし、この限界を超えるような超広帯域スペクトルを有する光パルスに対しても有効な波形整形理論の厳密化を行った。また、Kramers-Kronig 関係式から生じる空間位相変調器によるスペクトル振幅変調を考慮したチャープ補償解析を行い、振幅変調により被補償パルスのスペクトルが著しく変調される場合でも、パルス圧縮結果には大きな影響を及ぼさないことを明らかにした。

3.3 フェムト秒整形光パルスを用いた Si(111)7×7 表面におけるアド原子選択脱離

光パルスによるアド原子の選択脱離ならびに低次元ナノ構造形成を可能にすることを目的として、空間位相変調器を用いたフェムト秒整形光パルス(波長~400 nm)を Si(111)7×7 表面に照射する実験を行っている。従来報告されているより 10^{-5} 倍低いパルスエネルギーを用いた実験(400 nm、75 MHz 繰り返し、~200 fs 光パルスの長時間照射)を行ったところ、選択脱離原子比はセンターアド原子:コーナーアド原子 \square 0.31 となり、従来の高パルスエネルギーによる実験の 3.1 とは異なっていることを明らかにした。

II. 光 STM 研究

ナノスケールで構造を制御して、新しい機能を有する次世代デバイスを開発する試みが進められている。しかし、局所的な物理現象を過渡応答まで含めて評価するためには、新しい技術の開発・導入が必要不可欠である。走査トンネル顕微鏡 (STM) 及びその関連技術は、実空間で原子レベルの空間分解能を持つ非常に有用な手法であるが、外部回路の測定バンド幅は数 10kHz 程度で、時間分解能は充分とは言えない。一方、光を用いた測定法は、広領域に渡る分光を可能にするだけでなく、本プロジェクトで見られるように、時間的にも極限領域の測定を可能としている。しかし、一般には、光波長による空間的な分解能の制約を受ける。そこで、我々は、STMの空間的な分解能と光励起によるエネルギー及び時間領域での選択性・分解能を組み合わせることにより、これら両極限領域での物性実験の可能性を追求する試みを展開してきた。さらに、整形パルス光励起を用い、電子状態に加えてフォノンを制御すると、電子系の量子過程の超高速な過渡応答を解析するだけでなく、各振動モードの影響や素過程を含めて原子スケールで直接解析し制御する可能性も開けるものと期待される。この様な視点で行った本年度の主な成果を以下にまとめる。

1.1 フェムト秒時間分解STM装置の試作を完成し、基礎的な性能を評価した結果、(1)トンネル電流を検出することで STM の空間分解能 (~0.01nm) を継承し、(2)2つのパルス光間隔を 1fs 程度の精度で制御することで実効的なパルス幅(現状 25fs、将来的に北大に移行すれば、~5fs まで)と同程度の時間分解能を実現、(3)パルス光間隔を変調することで探針の熱膨張によるトンネル電流変化を極限まで除去しつつ、時間分解信号を精度良く検出(トンネル電流感度 1 pA) することが可能なシステムであることを確認した。

1.2 また、半導体表面の局所構造(原子欠陥、ドーパント、Ag/Si 構造等)からのトンネル電流が、光励起により変調されることを初めて確認。現象の解析と、過渡応答の測定に向けて準備を進めるとともに、安定してデータを得ることが可能な、アトムトラッキング法の開発・導入を準備中。

1.3 非弾性トンネル分光は、原子の種類や分子構造を詳細に調べることが可能な、非常に有力な

手法である。振動モードが測定対象であることから、光誘起による変調が期待される。Pd 上に吸着させたトランス、シスブタンを対象として、(1)異性体の吸着構造を同定、(2)特定モードの励起による、回転モードの誘起を初めて成功した。

1.4 分子の電気的性質と合わせて力学的な性質への光励起の効果を調べる目的で、10pN程度の微弱な分子間力を測定する手法を確立した。

3. 研究実施体制

(1) フェムト秒光子ファクトリーグループ

①研究分担グループ長:山下幹雄(北海道大学、教授)

②研究項目:フェムト秒光子ファクトリーの構築とその応用

(2) 時空間極限量子現象グループ

①研究分担グループ長:重川秀実(筑波大学、助教授)

②研究項目:整形光波 STM 融合と時空間極限量子現象の解明制御

4. 主な研究成果の発表

(1) 論文発表

- 森田隆二、山下幹雄、「モノサイクル光パルス発生をめざして」光学 30、600--601 (2001).
- N. Karasawa, L. Li, A. Suguro, H. Shigekawa, R. Morita, M. Yamashita, "Optical pulse compression to 5.0 fs by use of only a spatial light modulator for phase compensation" J. Opt. Soc. Am., B18, 1742-1746 (2001).
- L. Li, S. Kusaka, N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Amplitude and phase characterization of 5.0 fs optical pulses using spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction" Jpn. J. Appl. Phys., 40, L684-L687 (2001).
- R. Morita, M. Yamashita, A. Suguro, H. Shigekawa, "Femtosecond-time-resolved highly-selective molecular-vibration excitation using a novel vibrationally-synchronized pumping technique with frequency-difference resonance" Opt. Commun., 197, 73-81 (2001).
- N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Characteristics of the oscillatory spectrum due to only induced-phase modulation in an argon-filled hollow waveguide accompanied with intense self-phase modulation" Opt. Commun., 197, 475-480 (2001).
- S. Nakamura, L. Li, N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Measurements of third-order dispersion effects for generation of high-repetition-rate, sub-three-cycle transform-limited pulses from a glass fiber" Jpn. J. Appl. Phys., 41, 1369-1373 (2002).
- 山下幹雄、重川秀実、森田隆二、唐沢直樹、武内修、平澤正勝、「サイクルパルス光波技術と走査トンネル顕微分光への応用—光ミュージック“光楽”を創ろう—」応用物理学会誌、71 巻、2 号、173-181(2002).
- Y. J. Li, O. Takeuchi, D. N. Futaba, H. Oigawa, K. Miyake, Y. Kuk, H. Shigekawa, "Characteristic adsorption of Xe on a Si(111)-(7x7) surface at low temperature" Physical

Review, B 65, 113306 (2001).

- K. Hata, Y. Shibata, H. Shigekawa, “Fine electronic structure of the buckled dimers of Si(100) elucidated by atomically resolved scanning tunneling spectroscopy and bias-dependent imaging” Physical Review, B 64, 235310 (2001).
- K. Hata, S. Yoshida, M. Fujita, S. Yasuda, T. Makimura, K. Murakami, H. Shigekawa, “Self-assembled monolayer as a template to deposit silicon nanoparticles fabricated by laser ablation” J. Phys. Chem., B105(44), 10842–10846(2001).
- M. Ishida, O. Takeuchi, T. Mori, H. Shigekawa, “Intermolecular relaxation observed in the surface of the quasi-one-dimensional organic conductor β (BEDT-TTF)2PF6” Physical Review, B 18, 153405(2001).
- K. Hata, M. Fujita, S. Yoshida, S. Yasuda, T. Makimura, K. Murakami, W. Mizutani, H. Tokumoto, H. Shigekawa, ” Selective adsorption and patterning of Si nanoparticles fabricated by laser ablation on functionalized self-assembled monolayer” Appl. Phys. Lett., 79, 692–694 (2001).
- K. Miyake, S. Okawa, D. N. Futaba, O. Takeuchi, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, “Characteristic structures of the Si(111)-7x7 surface step studied by scanning tunneling microscopy” J. Vac. Sci. Technol., A 19(4), 1549–1552(2001).
- S. Yasuda, D. N. Futaba, O. Takeuchi, I. Suzuki, K. Yase, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa, ”Monolayer formation of 6-deoxy- β -cyclodextrin on a Au(111) surface studied by scanning tunneling microscopy” J. Vac. Sci. Technol., A 19(4), 1266–1269(2001).
- S. Oyama, K. Miyake, S. Yasuda, O. Takeuchi, J. Sumaoka, M. Komiyama, D. N. Futaba, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, “Interactive force between cyclodextrin inclusion complexes studied by atomic force microscopy” Jpn. J. Appl. Phys., 40, 4419–4422(2001).
- Y. J. Li, K. Miyake, O. Takeuchi, D. N. Futaba, M. Matsumoto, T. Okano, H. Shigekawa, “Adsorption and wetting Structures of Kr on Pt(111) at 8K and 45K studied by scanning tunneling microscopy” Jpn. J. Appl. Phys., 40, 4399–4402(2001).
- K. Shinohara, S. Yasuda, G. Kato, M. Fujita, H. Shigekawa, “Direct measurement of the chiral quaternary structure in a p-conjugated polymer at room temperature” J. Am. Chem. Soc., 123 3619–3620(2001).
- K. Hata, Y. Sainoo, H. Shigekawa, ” Atomically resolved local variation of the flip-flop motif of single buckled dimers of Si(100)” Phys. Rev. Lett., 86, 3084–3087 (2001).
- M. Ishida, O. Takeuchi, K. Miyake, T. Mori, H. Shigekawa, “Characteristic structures and charge density wave observed on the surface of low dimensional organic conductors” Butsuri, in Japanese, 56 431–435(2001).

(3) 特許出願

国内3件、外国1件