

「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」
平成 18 年度採択研究代表者

五神 真

東京大学大学院工学系研究科 教授

時空間モルフォロジーの制御による能動メゾ光学

1. 研究実施の概要

(ねらい)

本研究では、東京大学グループが進めてきた微小球やナノキラル構造研究などのモルフォロジー依存光学の研究、電子系や励起子系の巨視的量子状態の研究と農工大グループが積み上げてきた極超短パルス分光技術研究を融合させ、物質系の新たな知見を得ると共に、新しい光制御技術-能動メゾ光学-を確立する。この為以下の2つの研究課題を東京大学と農工大学で分担し、互いに連携させながら研究を進める。連携を実質化するために、共同で進める課題を設け実験を東京大学において一緒に行う。

(概要)

第2年度である本年度において、研究は当初の計画通り順調に進んでいる。当初の計画と比べ、さらに進んだ成果も得られており、進捗状況は良好である。まず、本研究で主題として掲げた、モルフォロジーに依存した光制御の典型例である、金属ナノキラル格子構造による巨大旋光性の研究において、その機構が解明されたことは大きな成果である。さらに誘電体による試料について実験と考察を進め、巨大旋光性の発現を実証しつつあり、研究は加速している。また、THz 波長帯への応用により、THz 波の偏光制御素子につながる成果も得られている。励起子系における巨視的量子状態を光波操作によって制御する研究において、パルス光位相を用いた実験に成功し、論文投稿中である。この成果は東大グループと農工大グループが本 CREST 研究を期に密接な連携を行ったことの結果である。これは、光の精緻な制御を固体系の分光に応用した例として注目を集めることが予想される。農工大グループにおける光源開発も順調に進んでおり、さらに時間領域での偏光制御技術や時間領域偏光観測法も確立しつつある。フェムト秒波形整形技術は有機分子の光異性化制御にも生かされるなど、レーザー光の自在な制御による成

果が徐々に生まれつつある。両グループの定期的ミーティングなどを通じ連携体制が構築され、参加している大学院学生間の交流も深まり、人材育成面でも効果が上がっている。

2. 研究実施内容

(文中にある参照番号は 4. (1)に対応する)

東大チーム：巨大光応答物質相探索とモルフォロジー制御光機能開拓

研究項目① モルフォロジー制御による光機能発現

①-1：形態に依存する光学応答の原理解明

(目的)

サブ波長スケールのパターンを周期的に並べた金属薄膜格子において見いだされた巨大旋光性の起源を系統的实验により明らかにする。表面プラズモンモードなどの電磁結合モードとメゾ構造の関わりについて、物理的モデルを構築し、効果の設計予測に活用する。

(実施内容)

昨年度は入射光角度依存性測定によりプラズモン共鳴構造を明らかにし、また偏光分光において試料角度依存性の計測自動化を行った。さらに、Joensuu 大学グループと共同でのモデル計算により巨大旋光性の起源解明の指針を得た。

本年度はこれに基づき、測定、データ解析、数値計算を集中的に進めることで、金属ナノキラル格子における巨大旋光性の発現機構について、近接場の電磁場分布に起因する非局所的相互作用が構造のカイラリティによって発現し、その効果がプラズモン共鳴によって増大されるという巨大旋光性発現のメカニズムを解明することに成功した。この成果は、論文にまとめ掲載された[1]。

さらに、本年度は、これまでの金属に代わって、誘電体のみを用いた構造でも、導波路共鳴を効果的に利用する構造(カイラルフォトニック結晶構造)を用いることによって、ゼロ次透過光において金属キラルナノ格子の10倍以上にも達する巨大な旋光性発現が可能であることを初めて実験的に示すことに成功した(論文投稿中)。

また、可視光域における巨大旋光性発現のアイデアを、未開拓の電磁波領域として近年非常に注目の高まっている THz 領域に展開した。可視光域よりはるかに波長の長い THz 領域において非局所的相互作用を増大させるための手法として、バビネの定理を応用した相補的二層構造という独自の構造を提案し、実際に巨大旋光性の発現に非常に有効であることを実験的に示すことに成功した。これは、可視光域にくらべて光学素子が少ない THz 領域における人工構造を利用した新しい偏波制御素子への応用を開くものであ

る。この成果を論文にまとめ掲載された[2]。さらに、年度の後半より導入した高性能計算機を用いたシミュレーションによって、この実験結果を再現することに成功しており、現在さらにこの物理的機構についての探索を進めている。

①-2：モルフォロジー制御による非相反光学応答の発現

(目的)

磁性金属や半導体等を対象とし、空間モルフォロジーの最適化された人工物質系を用いて磁気光学と旋光性の複合による非相反的光学応答の発現を狙う。超低ノイズ光パルスプローブとした分光により、精密高感度検出を行う。ニッケルやパーマロイなどの強磁性金属や磁性半導体等を用いて、人工キラル構造によって旋光性を発現させることにより、磁気光学と旋光性の複合による非相反的光学応答の発現を狙う。

(実施内容)

昨年度導入したヘルムホルツコイルを用いた測定系を構築し、ファラデー効果の観測を通じて、強磁性金属ナノ格子の内部磁化の制御が可能であることを確認した。さらに、磁気光学応答を高感度に検出するための、磁場変調測定系を新たに構築した。また、放射光を用いたPEEM測定によって、カイラリティーを有するような特異な形状の微小構造体において、磁区構造が外部磁場によってどのように変化するかを可視化することに成功した。

懸案となっていた、磁性半導体における強磁性発現機構の解明における研究も進捗があった。時間分解磁気光学分光と中赤外領域の過渡誘導吸収信号の相関を解析し、磁性に起因する成分が共通に含まれることを確認し、論文として発表した[5]。これは強磁性発現が束縛磁気ポーラロンによることを強く示唆する結果であり、重要な成果である。また、光制御による磁性制御の方策を絞り込む上でも重要な成果である。

研究項目②：巨大光応答物質相の制御と探索

②-1：極低温状態励起子系の光生成手法の高度化

(目的)

励起パルスの時空間での精緻な制御により、励起子や電子正孔系を極低温高密度状態とする手法を開拓する。時空間でこれらのマクロな位相情報を可視化し量子物性を探る。4重極励起子などの内部スピン自由度にも着目し、多体効果によるスピン緩和の基礎原理探求や特異光応答の発現についても検討を行う。

(実施内容)

本年度の実施目標は、昨年度に農工大チームの協力を得て実現したフェムト秒パルスの波形制御技術により、亜酸化銅における極低温1sオルソ励起子の高密度化を進め、系統的実験を行うことであった。

今年度は近赤外フェムト秒パルスに対して周波数空間において π 位相ステップの位置

を系統的に変化させ、極低温オルソ励起子への2光子吸収確率を劣化させずに、不要な高温励起子生成の原因となる3光子吸収過程を抑制する条件を見出した。その上で、光位相制御パルスを用いた励起強度依存性を測定し、フーリエ変換限界パルスを用いると高温励起子が大量に生成される励起強度においても、極低温高密度1sオルソ励起子を支配的に生成できることを確かめた(論文査読中)。

また、亜酸化銅パラ励起子の検出法として連続波レーザーに基づく励起子ライマン分光法を確立し、中赤外領域において0.001%の微小な変化量検出を実現した。これにより熱平衡状態にある低密度極限のパラ励起子をとらえ、従来の発光測定では不可能であった詳細な測定を行うことが可能となり、ボース・アインシュタイン凝縮の実現に重要な有効質量の決定や、マイクロ秒の極めて長い寿命の測定を行うことに成功した[3]。

②-2：光と物質の相互作用を巨大化する物質相の探索

(目的)

本研究で開拓する原理をより広い物質系に適用するために、特異な光機能発現が期待できる物質系の探索を進める。

(実施内容)

ダイヤモンドにおける励起子-電子正孔プラズマの相転移閾値近傍は大きな光学応答の変化が期待できる系である。ヘルチアンストレス印加下でのスペクトル測定、時間分解測定、温度依存性測定などを進め、その結果、歪によるバンド構造の変化に伴い電子正孔系の相制御が可能であることが明らかとなり、論文発表を行った[4]。次に、ダイヤモンドにおける励起子-電子正孔プラズマの相転移閾値近傍で大きな光学応答を探るため、真空紫外波長域で低温光学測定が可能なヘリウムクライオスタットと真空紫外域高感度CCDカメラの導入を進めた。これを用いて、結晶中で空間制御した励起子系の光励起を行うための2光子励起等の基礎的実験を進め、また、ダブルパルス相関法による相転移近傍の大きな光応答観測の実験を立ち上げた。

②-3：光と物質の非局所相互作用の原理と応用

(目的)

電気四重極・磁気双極子相互作用は通常微弱であるが、非局所相互作用であるため空間モルフォロジー制御により劇的に増強されることが期待できる。双極子遷移が禁止されこれらの高次項が支配的になる系で非局所相互作用の本質を探る。

農工大チーム：時空間光波束操作による3次元構造の動的制御

研究項目①：時空間波形制御技術の開拓

(目的)

本研究の目的は、パルス列間の電場波形を完全に揃えたキャリアエンベロープ位相制御光源を開発することである。さらに、電場波形が制御されたパルス列を受動共振器と組み合わせることにより、位相敏感な非線形光学応答の測定に応用する。また、光波の2次元横モードの波面整形、時間領域偏光制御を施し、3次元時空間制御されたパルス光源を開発し、3次元時空間構造形成に応用する。

(実施内容)

本年度は、モード同期チタンサファイアレーザーからの出力パルスを、スペクトル干渉法によりキャリアエンベロープ位相をモニターしながら、同期励起パラメトリック共振器の励起に用いた。スペクトル干渉に必要なフォトリソグラフィからファイバからの広帯域光発生を最適化し、キャリアエンベロープ位相の安定化を試みた。同期励起パラメトリック共振器からの波長変換パルスのキャリアエンベロープ位相を測定するために新たな干渉計を製作した。

農工大と東大の両チームですでに定常稼働している位相制御装置をさらに発展させ、時間領域偏光制御装置を製作した。フェムト秒パルスの独立な2偏光成分をそれぞれ位相変調し、その後に合波することで、ねじれ偏光などの任意の偏光パルスを生成した。さらに、偏光制御パルスの波形を測定するための偏光分割相互相関測定装置を製作した。

研究項目②：能動的3次元時空間構造形成法の開拓

(目的)

本研究の目的は、パルス整形技術を用いて、3次元誘電率分布を動的に書き込む手法を開拓することである。偏光整形により、等方媒質中にも光学活性を能動的に誘起するなどして、位相制御パルスによるモルフォロジー制御を実証する。モルフォロジー制御の対象として、農工大チームの得意とする有機分子の選択的異性化を用い、新しいパターン形成法を開拓する。また、近赤外波長域に対応させたフェムト秒波形整形装置を東大チームでの亜酸化銅中における低温の励起子生成などに応用する。

(実施内容)

液晶空間光変調器を用いたフェムト秒波形整形装置と、農工大チームの特許技術であるラピッドスキューン型時間分解分光計を組み合わせ、適応制御システムを用いて、有機分子の光異性化ダイナミクス制御を行った。シアニン系色素分子のねじれ振動と曲がり振動とを励起パルスの位相だけで選択的に誘起することに成功した[7]。

モルフォロジー制御の対象として選択的異性化反応の一例である、レチナール分子の異性化を位相ロックパルス対で誘起し、その生成効率をクロマトグラフィーで分析する

実験を行った。レチナール分子の励起効率が、パルスの位相に敏感であるかの検証を行った[8]。

近赤外波長域に対応させたフェムト秒波形整形装置を東大チームでの亜酸化銅中における低温の励起子生成に適用した。農工大チームは、位相制御装置の技術的なノウハウの面から貢献した。

3. 研究実施体制

(1)「東大」グループ

①研究分担グループ長：五神 真（東京大学大学院、教授）

②研究項目

研究課題：「巨大光応答物質相探索とモルフォロジー制御光機能開拓」

研究項目① モルフォロジー制御による光機能発現

①-1：形態に依存する光学応答の原理解明

①-2：モルフォロジー制御による非相反光学応答の発現

研究項目②：巨大光応答物質相の制御と探索

②-1：極低温状態励起子系の光生成手法の高度化

②-2：光と物質の相互作用を巨大化する物質相の探索

(2)「東京農工大」グループ

①研究分担グループ長：三沢 和彦（東京農工大学共生科学技術研究院、教授）

②研究項目

研究課題：「時空間光波束操作による3次元構造の動的制御」

研究項目①：時空間波形制御技術の開拓

研究項目②：能動的3次元時空間構造形成法の開発

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

- [1] K. Konishi, T. Sugimoto, B. Bai, Y. Svirko, and M. Kuwata-Gonokami, "Effect of surface plasmon resonance on the optical activity of chiral metal nanogratings," *Opt. Ex.*, **15** (15) 9575 (2007).
- [2] N. Kanda, K. Konishi, and M. Kuwata-Gonokami, "Terahertz wave polarization rotation with double layered metal grating of complimentary chiral patterns," *Opt. Ex.*, **15** (18) 11117 (2007).

- [3] K. Yoshioka, T. Ideguchi, and M. Kuwata-Gonokami, "Laser-based continuous-wave excitonic Lyman spectroscopy in Cu_2O ," *Phys. Rev. B*, **76**, 033204 (2007).
- [4] N. Naka, J. Omachi, and M. Kuwata-Gonokami, "Suppressed formation of electron-hole droplets in diamond under a strain field," *Phys. Rev. B* **76**, 193202 (2007).
- [5] E. Kojima, J. B. Héroux, R. Shimano, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, Y. Iye and M. Kuwata-Gonokami, "Experimental investigation of polaron effects in GaMnAs by time-resolved and continuous wave mid-infrared spectroscopy," *Phys. Rev. B*, **76**, 195323 (2007).
- [6] Kengo Horikoshi, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "20-fps motion capture of phase-controlled wave-packets for adaptive quantum control," *Ultrafast Phenomena XV*, 175-177 (2007).
- [7] Kengo Horikoshi, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "Rapid motion capture of mode-specific quantum wave packets selectively generated by phase-controlled optical pulses," *J. Chem. Phys.* **127**, 054104 (2007).
- [8] Takashi Kojiri, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "Photoisomerization of all-trans retinal triggered with femtosecond phase-locked pulse pairs," *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 014708 (2008).