

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3年度である本年度において、研究は当初の計画に従ってほぼ順調に進んでいる。モルフォロジーに依存した光制御の基礎となる、ナノキラル格子構造による巨大旋光性については理解が進み、旋光性をいかにして増大するか、また所望の波長で旋光性をもたらすにはどのような構造にすべきかを設計できる段階に入った。またテラヘルツ帯においては、単層のキラルナノ格子に対して光照射することで旋光性が発現することを確認しており、マイルストーンとして掲げた光励起による偏光制御実現の大きな第一歩を踏み出したといえる。光波操作による励起子系の低温高密度状態生成は、昨年度の成果により所望の状態を生成可能となり新奇な現象をとらえつつあるものの、より高いパルスエネルギーを得る必要が出てきており、波形制御系の改良を進めている。農工大グループにおいては時間領域での偏光制御技術、時間領域偏光観測法がほぼ完成し、いよいよ物質系の応答操作に応用可能という段階にまで到達している。また東大グループ、農工大グループともにモード同期ファイバーレーザーを中心とする光源開発が進んでおり、双方の密接な情報交換を継続することで次世代の分光技術開発が急速に進むものと考えている。

以上のように光の波形制御技術とモルフォロジー敏感な光学応答の理解が成熟しつつあり、本研究が掲げる時空間モルフォロジーの制御、及びその特異光学応答の原理実証を

進める舞台が整ったといえるだろう。両グループの定期的ミーティングでの研究報告会は積極的に継続しており、大学院学生間の交流も深まり、効果的な人材育成の場となっている。

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

①-1：形態に依存する光学応答の原理解明

(目的)

金属キラルナノ格子のモルフォロジーに依存した偏光特性及び実効的物質定数について実験と計算の両方を駆使した更なる探索を行う。また、新たに透明誘電体材料を用いたカイラルフォトニッククリスタルについて研究を進める。予備実験で見出された巨大旋光性発現のメカニズム探索と偏光回転の超高速光制御の実現を目指す。さらに、金属、誘電体に加えて半導体を用いた構造設計を検討する。また、THz 領域においては、透磁率の計測を行うため、これまでの透過スペクトル測定に加えて反射スペクトル測定系を構築する。平行して、光励起キャリア擬 2 次元人工キラル格子の形成とテラヘルツ偏光制御を進める。半導体基板に光キャリアの空間構造を生成し、プラズマ共鳴近傍のテラヘルツ波をプローブに用いて、その光学活性の発現を確認することを試みる。

(実施内容)

昨年度は測定、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の解明に成功した。さらに、これまでの金属に代わって誘電体を用いた構造においても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。また、THz 領域において、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、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。

本年度は、これに基づき、誘電体キラルフォトニック結晶における巨大旋光性について、実験、計算の両方からその発現機構についての解明を進めた。その結果、誘電体構造における導波路共鳴が、巨大旋光性の発現に関して重要な役割を担っていることを明確に示すことに成功した。この成果は、論文にまとめ掲載された[1]。さらに、超高速偏光制御素子や円偏光レーザーなどのアクティブ応用へ向けて、光デバイスに用いられる代表的な半導体であるガリウムヒ素でキラルフォトニック結晶構造を作製し、通信波長帯において 15 度を越える巨大旋光性を観測することに成功した。

また、光励起キャリア擬 2 次元人工キラル格子の形成とテラヘルツ偏光制御に向けた取り組みとして、高抵抗 Si 基板上的単層キラルナノ格子に対する光照射により、光励起キャリアによって旋光性を発現させることに成功した。これは、光励起によって THz 波に対する旋光性の制御が可能であることを示した初めての結果である(論文投稿準備中)。また、昨年度に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、より大きな旋光性を有する構造の設計や局所電場分布の計算が可能になり、研究の加速につながっている。

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)

光学測定における磁気カイラル効果の系統的観測を行い、その効果を最大化する構造の設計指針を得る。

(実施内容)

ヘルムホルツコイルを用いた磁場変調測定系を構築し、磁気光学応答の高感度検出が可能となったが、透過光における強磁性人工キラルナノ構造における磁気カイラル効果は観測することが出来なかった。この結果をふまえて、非相反光学応答の観測を実現するためにより適した試料構造および光学配置の検討を進めている。

また、THz 電磁波の磁場成分を用いた、物質中の磁化制御の実現に向けて、ニッケルを用いて人工構造を作製し、予備実験を行った。

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)

亜酸化銅における 1 s オルソ励起子に適用し、光位相制御により、高温励起子を生成する不要な 3 光子吸収過程を抑制し極低温高密度励起子生成のための 2 光子吸収過程を支配的にできることを光位相変調依存性や励起強度依存性から実証した[2]。この効果について定量的解析を進め、2 光子吸収係数の決定を行う。また、最適な光位相変調を加えたフェムト秒パルスを用いて、亜酸化銅の励起子系を対象にして多体効果によるスピン変換の基礎原理探求を引き続き行い、さらに、昨年度導入した高感度 CCD カメラを利用して励起子モット転移とその光機能の観測可能性を検討する。スピン禁制励起子の密度に依存した微小な効果を敏感にとらえるため量子カスケードレーザーをプローブ光源とする検出系を立ち上げる。また、光位相を制御した励起法を第一塩化銅のポラリトン系にも応用し、凝縮系特有の分散を生かした特異応答や光機能観測を行う。

一方、新現象を確実に捕らえるため、高確度低雑音検出のための安定化レーザー光源の開発に着手する。

亜酸化銅において、反転分布状態の縮退オルソ励起子からパラ励起子への遷移を利用した誘導テラヘルツ放出を検出するために、ボロメータによるテラヘルツ電磁波高感度検出システムの立ち上げを引き続き検討する。

(実施内容)

本年度は、昨年度確立した位相制御パルスによる極低温励起子の選択的生成法を活用し、高密度励起下でのスピン変換の基礎原理探求や励起子モット転移観測の準備を行った。これまでは空間光変調器を用いた光位相の制御を行っていたが、これら高密度現象の観測および正確な 2 光子吸収係数決定のためには光パルスエネルギーが空間光変調器の損傷閾値を越える可能性があることが判明した。そこで現在、光音響分散フィルタ (AOPDF) の導入を

進めており、同時に、 π 位相ステップ変調よりも効果的に励起子系の加熱を防ぐ光位相の設計を進めている。また、これが完成すると、オルソ励起子からパラ励起子への遷移に伴う誘導テラヘルツ放出の検出可能性を実際に検討可能となる。第一塩化銅のポラリトン系については、項目 2-3 に記載する内容の展開が見られたため、位相制御パルス応用の年度に移行する予定である。

一方、cw 可視・中赤外レーザーを用いた高感度励起子ライマン分光法によって、亜酸化銅 1s パラ励起子の密度を励起強度や温度の関数として詳細な測定を行った。その結果、極低温高密度励起子系の安定性を決定付ける 2 体衝突ロスが、レーザー冷却原子気体や原子核物理学と同様に量子力学的取り扱いが必要な領域にあることを励起子系において初めて明らかにした（論文投稿中）。スピン禁制励起子の高感度検出のためにパルス動作の量子カスケードレーザーを導入していたが、発振モードのモードホップに起因してサンプルの透過率変化の検出感度が低くなることが判明した。そこでモードホップフリーの動作への改良を進めており、まもなく使用可能になる予定である。

また、新現象の高精度低雑音検出のための安定化レーザー光源開発に着手した。フェムト秒エルビウム添加モード同期ファイバーレーザーの開発に成功し、さらにその増幅器の製作を進めている。さらに、フェムト秒イッテルビウム添加モード同期ファイバーレーザーの開発も完了した。これらのフェムト秒レーザーと、既存のフェムト秒チタンサファイアレーザーの同期やこれによる 2 波長ポンプ・プローブ実験の検討を進めている。

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）

ダイヤモンドにおける励起子-電子正孔プラズマ転移近傍で真空紫外域における光学応答の系統的な実験を行う。また酸化亜鉛量子井戸発光の励起強度依存性や赤外応答を詳細に調べ、高密度領域での赤外機能を探る。また歪や磁場など外場印加による制御の可能性も追求する。特異光機能が期待できる新物質系の基礎光学物性評価など探索も引き続き行う。

（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。チタンサファイア再生増幅器出力の 4 倍波を用いたダブルパルス相関法により相転移近傍の応答を探った。メインパルス照射後、電子正孔液滴の生成時間内に弱いコントロールパルスを照射すると、液滴生成が急激に加速し液滴からの発光信号量が増強することを見出した。この増強の温度依存性を測定すると、低温よりもむしろ液滴形成の臨界温度に近い高温ほど強い増強が得られることがわかった。これは相転移の臨界温度付近で大きな光応答が期待できることに加えて、従来観測されてこなかった新たな電子正孔系の相が低温において出現している可能性を示唆している [3]。現在、より詳細な系統的实验を進めている。また、ダイヤモンドにおける低温電子正孔系はシリコンやゲルマニウムと比較して非常に密度が高いことが特徴であり、その特異な光機能を見出すため中赤外領域におけるポンプ・プローブ分光実験を立ち上げている。一方、チタンサファイア再生増幅器出力の 3 倍波を用いた 2 光子励起法を用いると、4 倍波による 1 光子

励起法と比較して余剰エネルギーが遥かに大きいにも関わらず、前者より低温の格子温度程度まで冷却された励起子ガスを生成できることを見出している[4]。

②-3：光と物質の非局所相互作用の原理と応用

(目的)

亜酸化銅における電気四重極遷移許容励起子状態や原子ガスの s-d 遷移など物質の非局所共鳴と、サブ波長スケールのパターンを組み合わせることで、物質-光の相互作用の増強や巨大旋光性の発現等の実証を進める。(実施内容)

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位相制御光源を開発することである。特に、時間領域に対応した光波の進行方向 (z 軸) に沿ってパルス波形整形を施す従来の方法に加えて、時間とともに xy 平面内の偏光方向が任意に変化する 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。また、光波の 2 次元横モードの波面整形も施す。

(実施内容)

本年度は、昨年度より開発を進めてきた時空間波形制御装置を完成させた。この時空間波形制御装置は、フェムト秒パルスの独立な 2 偏光成分にそれぞれ位相変調を施し、電場波形の位相をそろえたまま合波する。主に、モルフォロジー制御の目的で、ねじれ偏光などの任意の偏光パルスを生成した。

新たに開発した偏光分割相互相関測定装置を用いて、この時空間制御パルスの波形を測定した。この測定により、光波の進行方向および 2 つの偏光方向の xyz 空間における 3 次元パルス波形の可視化に成功した。2 偏光成分の位相変調と 3 次元時空間制御波形との相関を調べた結果、モルフォロジー制御に有効なねじれ偏光パルスの生成には、位相固定された 2 色のパルスを互いに逆回りの円偏光に変調して合波するのが本質的であるとの知見を得た。

時空間波形制御パルスは、合波する 2 つの独立な偏光成分の位相差が安定しないと、偏光制御波形そのものが大きく変化してしまう。そこで、2 つの偏光成分の位相差を固定するための能動制御装置を組み込んだ。これにより、位相差ゆらぎを ± 4 度にまで低減することができた。

チタンサファイアレーザーに替わる次世代の分光光源としての Yb ファイバーレーザーの製作は終了したので、今後は Yb ファイバー増幅器と組み合わせて、非線形光学過程の誘起に必要な位相制御光源システムを完成させる。

研究項目②：能動的 3 次元時空間構造形成法の開発

(目的)

本研究の目的は、時空間パルス波形整形技術を用いて、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。

3次元時空間構造形成の材料探索として、様々な感光性有機分子の非線形光学特性を波形整形パルスによって誘起する実験を系統的に行う。

(実施内容)

フェムト秒時間波形整形装置と高速掃引型波束分光計を組み合わせた、自動制御システムを用いて、感光性有機分子における光異性化ダイナミクス of 分子構造依存性を測定した。昨年度までは、対称型シアニン系色素分子の DTTCI におけるねじれ振動と曲がり振動を選択的に誘起することに成功しているが、今年度は、DTTCI 分子の炭素直鎖に架橋をかけて非対称型にした DNTTCI 分子についても同様の光位相による構造変化の制御を試みた。その結果として、DNTTCI では、分子構造の違いを反映して、DTTCI と異なるモード周波数の分子振動が確認された。

さらに、DNTTCI 分子についても、複数の振動モードの中から、光位相によって特定の振動だけを選択的に誘起することに成功した。分子軌道計算により、DTTCI と DNTTCI の分子振動解析を行い、DNTTCI 特有のモードの同定を試みた結果、選択的誘起に成功した振動モードは、DTTCI 分子と DNTTCI 分子とで共通に主鎖の形を変えず両端にある2つのベンゾチアゾール環のねじれ角が変化する分子運動であることが明らかになった。

3. 研究実施体制

(1)「五神」グループ

①研究分担グループ長:五神 真(東京大学、教授)

②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、教授)

②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, B. Bai, X. Meng, P. Karvinen, J. Turunen, Y. P. Svirko, and M. Kuwata-Gonokami, "Observation of extraordinary optical activity in planar chiral photonic crystals," *Optics Express*, **16**, 7189-1-8 (May 2008).
2. T. Ideguchi, K. Yoshioka, A. Mysyrowicz, and Makoto Kuwata-Gonokami, "Coherent Quantum Control of Excitons at Ultracold and High Density in Cu_2O with Phase Manipulated Pulses," *Phys. Rev. Lett.* **100**, 233001-1-4 (June 2008).
3. J. Omachi, N. Naka, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami, "Formation control of electron-hole droplets in diamond by a weak pulse injection," *J. Phys. C* **148**, 012051 (March 2009).
4. N. Naka, T. Kitamura, J. Omachi, and M. Kuwata-Gonokami, "Low-temperature excitons produced by two-photon excitation in high-purity diamond crystals," *Phys. Stat. Sol. (b)* **245**, 2676-2679 (October 2008).
5. K. Misawa and K. Horikoshi, "Real-time wave-packet engineering using a sensitive wave-packet spectrometer and a pulse-shaper," *Ultrafast Phenomena XVI* (2008).

(未発行)

1. K. Horikoshi and K. Misawa, "Wave-packet engineering by the full capture of phase-controlled vibrational motions in organic dye molecules", *Phys. Rev. A* (submitted).

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数 : 0 件 (CREST 研究期間累積件数 : 0 件)