

「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4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。これまでに得たモルフォロジーに依存した光制御についての知見に基づき、今年度は特異モルフォロジーによる発光現象の制御に成功した。キラルフォトリック構造の内部において、真空場分布が円偏光異方性を有することを数値計算によって検証し、実験によって円偏光放射を観測することに成功した。テラヘルツ帯においては、Si 基板上のキラル格子に対して光照射することで、光励起キャリアによる三次元モルフォロジーを誘起し、それによって旋光性をアクティブ制御することに成功した。これは、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に向けた重要な成果であるといえる。

光波操作による励起子系の低温高密度状態生成は、より高いパルスエネルギーによる新奇現象開拓を目指し、光音響分散フィルタを用いた波形制御系の改良を進めている。また、中赤外領域において期待される電子正孔液滴の強い応答を観測するため、中赤外フェムト秒パルスプローブ光として用いるポンプ・プローブ分光のセットアップを構築した。その上でストリークカメラを用いた時間分解発光測定と組み合わせることで、ダイヤモンド中における電子正孔液滴の中赤外領域における誘導吸収スペクトルを観測することに成功し、シリコンやゲルマニウムと比較して桁違いに高密度の液滴が自然に形成されていることを証明した。

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を確立させ、当初の計画通り、偏光面が任意の速さで回転する“ねじれ偏光パルス”の生成を実証した。

また、昨年引き続き東大グループ、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。

以上のようにモルフォロジー敏感な光学応答の理解とその応用、及び光の波形制御技術については、当初の目的どおりに順調に研究が進んでおり、今後これらの要素技術を直接的に融合し、新たなモルフォロジー依存光効果の実現を目指して行く。また、両グループの定期的ミーティングでの研究報告会も継続しており、大学院学生間の交流等を通じて効果的な人材育成の場が形成されている。

## § 2. 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、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

## § 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(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)

本年度は、これまでに得られた知見を活かして、モルフォロジー制御による新光機能探索を更に推進する。これまでは透過光のみに対して行っていたキラルモルフォロジーによる偏光制御機能を、発光素子と組み合わせることにより、出射光の偏光状態を構造モルフォロジーによって制御可能な新規発光デバイスの実現を目指す。一方、THz 領域においては、THz 電磁波に対する等方的偏光アクティブ制御素子としての可能性を有する、人工キラル構造に対する光励起による旋光性制御手法について、更なる高度化を試みる。一方、これまでのリソグラフィ技術とは異なる、新たなモルフォロジー特異構造の作製方法の検討を進める。例えば、インクジェットプリンティング技術等の新技術を導入することで、高機能かつ安価な構造の実現を目指す。

(実施内容)

昨年度は、我々が発見した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、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。

今年度我々は、巨大旋光性を有する人工キラルナノ構造では、その特異モルフォロジーの効果により、構造内部における真空場分布に左右円偏光の非対称性を生じさせることが可能であることを見出した。これは、構造内部に置かれた発光体からの自然放出は、その左右円偏光成分に差が生じることを意味する。我々は、この点を実験的に検証するため、ガリウムヒ素系半導体を用いてキラルフォトニック結晶を作製した。この構造は、導波路層内部に、発光層としてインジウムヒ素量子ドット層を有することを特徴とする。この構造のフォトルミネッセンスを観測したところ、確かに異なる左右円偏光成分を有する発光が観測された。また、上記の円偏光異方性真空場の状態を、数値計算によって明らかにすることに成功した(現在論文投稿中)。このように、人工キラルナノ構造は、発光過程の制御にも応用できることを明らかにし、新たな円偏光発光素子としての観点からの研究を進展させた。

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 基板上の単層キラルナノ格子に対する光照射により、光励起キャリアの効果によって三次元キラリティを誘起し旋光性を発現させることに成功した<sup>3</sup>。また、この光学活性の緩和時間は、キャリアの寿命よりも短く、キャリアの拡散効果によって支配されることが確認された。これは、光誘起キャリアの三次元キラルモルフォロジーの効果によって旋光性が発現したことを示すものである。

THz 領域における新たな人工キラル構造作製方法として、プラスチック基板に対するインクジェットプリンティング技術等のナノプリント技術の適用可能性についての検討を進めた。インクジェットプリンティング法を用いて作製した試料でこれまでの 10 倍以上の旋光性を観測することに成功した。また、インクジェットプリンティングにおける構造の書き順が異方性に大きく影響することを見出し、除去するための最適構造の検討を進めた。

## 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を探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)

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。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。

## 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。

本年度は光音響分散フィルタ(AOPDF)を用いた波形制御システムを完成させる。これを用いて、

近赤外フェムト秒パルスの最適化を行い高温励起子の生成を回避し、極低温 1s オルソ励起子のさらなる高密度化をはかる。これにより、多体効果によるスピン転換の基礎原理探求や励起子モット転移の観測、さらにはその特異光応答の観測をねらう。一方、量子カスケードレーザーを用いたスピン禁制励起子の高敏感検出法を完成させる。

さらに、新現象の高精度低雑音検出のために開発したエルビウム添加およびイッテルビウム添加モード同期ファイバーレーザーについて、農工大グループと密接に連携を取りつつ特性評価や低雑音化、既存のチタンサファイアレーザー等との同期による2波長ポンプ・プローブ実験の開発を進める。制御性を高め安定化を容易にするために、フェムト秒レーザーの新規購入は控え、自作による性能の最適化をはかる。

#### (実施内容)

昨年度までに、空間光変調器(SLM)を用いたフェムト秒パルス光の光位相制御によって共鳴 2光子吸収効率を損なわずに 3 光子バンド間遷移の効率を下げることで、高密度かつ極低温の励起子生成を実現してきた。本年度は、さらに高密度化するため、より損傷閾値の低い SLM に代えて高強度のパルスに対応できるよう光音響分散フィルタ(AOPDF)を実験に組みこんだ。1.2 マイクロメートル付近のフェムト秒パルスについて、実際に設計どおりの位相変調を加えられることを FROG 法により確かめた。この上で、亜酸化銅における 1s オルソ励起子の更なる高密度化を進めている。昨年度までに行った、 $\pi$ 位相ステップの印加方法では 3 光子バンド間遷移の抑制が十分ではなく、強励起を行うと高温の励起子が生成されることが判明したため、より最適な位相変調パターンを設計し、実験を進めており量子縮退領域の励起ガス生成が可能となる見込みである。一方、CW 可視・中赤外レーザーを用いた励起子ライマン分光法により中赤外領域において  $10^{-6}$  台の微小な微分透過信号検出を実現することで昨年度までに観測した、亜酸化銅 1s パラ励起子系の量子力学的な非弾性散乱の観測について論文をまとめた。さらなる高感度かつ波長連続掃引可能な分光のため、外部共振器型中赤外量子カスケードレーザーを用いた実験も立ち上げを進めている。

ファイバーレーザーを用いた高精度で高効率な分光測定開発も進めており、特にエルビウム添加モード同期ファイバーレーザーの増幅によるハイパワー化・短パルス化が進み、THz パルス波発生も視野に入れた分光用途に使用可能な光源となった。また、微小共振器を用いたモード同期レーザーの高繰り返し化も検討を進めている。

## 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)

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。

本年度は、高密度電子正孔系の光による制御性を確認するため、ダイヤモンドにおける深紫外ダブルパルス相関測定法による系統的实验結果をまとめる。また、ダイヤモンド特有の高密度な電子正孔系を生かして中赤外領域における強い光学応答を探るとともに、低温で見られた特異電子正孔相の解明を進める。酸化亜鉛量子井戸ではポンププローブ分光を進め、量子構造に起因した紫外域での強い非線形性を確認する。ダイヤモンドで立ち上げる中赤外分光を酸化亜鉛量子井戸にも適用し、赤外域の機能素子としての応用も探る。特異光機能が期待できる新物質系の探索も引き続き行う。

### (実施内容)

昨年度にダイヤモンドにおいて、紫外フェムト秒パルスを用いた 2 光子励起によって低温の電子正孔系生成が可能であることを示した。中赤外領域において期待される電子正孔液滴の強い応答を観測するため、中赤外フェムト秒パルスをプローブ光として用いるポンプ・プローブ分光のセットアップを構築した。その上でストリークカメラを用いた時間分解発光測定と組み合わせること

で、電子正孔液滴の中赤外領域における誘導吸収スペクトルを観測することに成功した。さらに、誘導吸収量から定量的に電子正孔液滴内の電子正孔密度を求め、理論予測との比較を行った結果、実際にシリコンやゲルマニウムと比較して桁違いに高密度の液滴が自然に形成されていることを証明した。一方、低温において2光子励起を行うと、電子正孔液滴が生成されるよりもやや弱励起の条件で離散的なスペクトルを示すポリエキシトン状の信号を発見し、時間分解発光測定等からこの起源を探っている。

## 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ロ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。

本年度は、昨年度に引き続き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的共鳴と、ナノキラル格子を組み合わせ、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。また、農工大グループが開発した時空間制御パルスとの融合による非局所相互作用の増強についても検討を進める。

## 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。これにより3次元時空間内で任意のベクトル波形を持つフェムト秒パルスを生成できるようになった。波形制御では光位相レベルの安定性が必要となるが、新たに連続発振半導体レーザーを用いたフィードバック機構を取り入れることで、目的のパルスを長時間安定的に保持できるようになった。実際、幾何的な光学配置由来の位相の不安定度は $\pm 4^\circ$ にまで抑制することが出来ている。さらに、本プロジェクトの大きなテーマであるモロロジー制御のために、光パルス自体にキラリティーを付与することを目的とし、パルス内で偏光状態が時間とともに向きを変える“ねじれ偏光パルス”の生成も行った。

ねじれ偏光パルスの詳細な解析から、光パルスのキラリティーには異なる周波数成分を持つ光パルスを合波することが本質的であり、不可欠であることが示された。これは並行して進めている位相制御2波長光源開発の重要性を強く示している。位相制御された2色のフェムト秒パルスを生成するには光パラメトリック過程を利用することが有望であり、内部搬送波を制御した光パルスと受動共振器を組み合わせると高効率で非線形過程を誘起しなければならない。本年度は、チタンサファイアフェムト秒パルス発振器の搬送周波数を測定する機構を構築し、その時間変化を観測することに成功した。観測した搬送周波数をレーザー共振器にフィードバックすることにより、光パルスの内部位相を安定化することができるようになった。<sup>4)</sup>

一方で、位相制御パルスが実効的多色コヒーレント光源として機能できるということがわかってきた。そこで複数の周波数成分を必要とするコヒーレント分光に位相制御パルスを応用することを

試みた。コヒーレントアンチストークスラマン散乱(CARS)分光は、異なる 3 種類のコヒーレント光を用い、特定の分子振動のコヒーレントに励起し観測する手法である。単一のフェムト秒パルスに位相制御を施すことで、CARS 分光を高分解能で実現できることを示した。ハロゲン化炭化水素であるクロロフォルムやジブロモクロロメタンを対象として観測したところ、単一のフェムト秒パルスの帯域がカバーできる  $1000\text{cm}^{-1}$  以下の範囲の振動モード由来の信号を高い周波数分解能で観測できた。

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を完了した。増幅後のパルス波形を測定する自己相関光学系を立ち上げ、パルス幅の定量的評価を行った。さらに、回折格子対を用いた分散補償光学系も構築し、パルス圧縮に成功した。

## 研究項目②:能動的3次元時空構造形成法の開発

(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の分子構造依存性を測定した。<sup>5)</sup>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 DNNTCI 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、DNNTCI 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、DNNTCI 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 DNNTCI の分子振動解析を行い、DNNTCI 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 DNNTCI 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。

## § 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

### ● 論文詳細情報

1. N. Naka, J. Omachi, H. Sumiya, K. Tamasaku, T. Ishikawa, M. Kuwata-Gonokami, "Density-dependent exciton kinetics in synthetic diamond crystals," *Phys. Rev. B* **80**, 035201 (2009). DOI: 10.1103/PhysRevB.80.035201
2. K. Konishi, N. Kanda, B. Bai, Xiangfeng Meng, Petri Karvinen, J. Turunen, Y. P. Svirko, M. Kuwata-Gonokami, "Optical activity in metal and dielectric planar chiral gratings," *Proceedings of SPIE*, **7395**, 73951F (2009). DOI:10.1117/12.827004  
N. Kanda, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, "Light-induced terahertz optical activity,"
3. Masaaki Sato, Takayuki Suzuki, and Kazuhiko Miawa, "Interferometric polarization pulse

shaper stabilized by an external laser diode for arbitrary vector field shaping”, Rev. Sci. Inst., **80**, 123107 (2009). DOI:10.1063/1.3270254

4. Kazuhiko Misawa and Kengo Horikoshi, "Vibrational wave-packet engineering by rapid-scanning wave-packet spectroscopy", Review of Laser Engineering, **38**(2), 125 (2010)