

北海道大学大学院工学研究科 教授

山下 幹雄

「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

高速性の追求はいつの時代にも科学技術の飛躍的発展のための原動力の一つである。レーザーをベースとしたフェムト秒 ($1\text{ fs}=10^{-15}$ 秒) 光技術はその最先端にあり人類が創り出した最高速技術である。また、時間 t があらゆる現象を記述する基本パラメータであるため、この技術は、自然科学の全分野でこれまで未知であった超短時間域の現象の解明と制御の研究に唯一の強力な手段を提供し、新しい学問と産業を生み出す革新的な力を持っている。すなわちその特徴は、①時間域の顕微鏡、②時系列ダイナミクス制御性、③巨大尖頭出力性、④超高密度信号性、に加えて⑤学際分野横断性にある。このような背景の下、本プロジェクトは以下の視点で研究を進めた。

例えば 800 nm の光は 375 THz の電場振動周波数を有し、その1サイクルの時間 (T_c : 1周期) は 2.67 fs である。その光電場が1サイクル振動する時間のみ光強度を有する究極の光パルス (その半値全幅 $t_p=T_c$) をモノサイクル光という。このプロジェクトでは、この長い間不可能とされてきた極限光波の実現・機能応用化に向けて多面的な視点から研究を展開した。即ち、1) 帯域が 550 THz を越える超広帯域な高出力コヒーレント光パルスの発生、2) 全周波数帯域に渡って光波位相をそろえる、非線形で複雑なチャープの補償、3) 2サイクル以下以下の光電場波束の位相・振幅計測、4) 超広帯域コヒーレント光波の任意帯域幅毎に独立に位相・振幅を制御することによって可能となる多波長同時光波整形、5) 汎用利用を可能にする極限光波制御と計測の結合一体自動化、6) シングルモードファイバー中での極限光波の非線形伝播現象の理論・実験両面からの解明など、理論・基礎的要素手法から技術・デバイス・システム化まで系統的に行った。このテーマが1つの柱である。

もう1つの柱は、この極限光波の応用を念頭においた光走査トンネル顕微鏡 (光STM) に関する研究である。即ち、時空間極限技術を開拓し、それ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1原子分子レベルの量子現象ダイナミクスを解明・制御することである。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、外部回路の典型的な測定バンド幅は数 10 kHz 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、時間的にも極限領域の測定を可能とする。しかし、一般には、波長 (数 100 nm) による空間的な分解能の制約を受けている。そこで、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を可能にする。電子励起に加え、波形制御によりフォノン励起を制御すると、量子過程の超高速な過渡応答を解析するだけでなく、各モードの影響や素過程を原子スケールで直接解析し制御する可能性も開ける。

この2つのテーマ研究は、北海道大学チームと筑波大学チームとの構成で進められた。すなわち、極限光波の研究を主に担当した北海道大学大学院工学研究科量子物理工学専攻チームは、さらに山下幹雄グループと森田隆二グループとで分担しあい、前者は計測や光

制御との一体自動化を含む光パルスのモノサイクル化、後者は多波長光波形整形とその STM への応用の研究を展開した。光 STM の研究を主に担当した筑波大学物理工学系の重川秀実チームは、CW レーザー励起 STM・フェムト秒光パルス励起 STM の開発を進めると共に、それらを用いた半導体・有機分子・DNA などの 1 原子分子ダイナミクスの解明に関する研究を行った。プロジェクト後半では、両チームの開発した技術・装置の相互交換およびメンバーの相互乗り入れを行い、共同研究を活発に進めた。両チームとも、事業団ポスドクおよび客員研究員・大学院生・学部生・民間会社研究員と多くのメンバー参加を得て精力的に研究を展開した。

以下に、上記の要素課題に沿って進めた研究成果の概要を簡単に記す。

A. 極限光波の研究

1. 高出力超広帯域化の研究において、独自の誘起位相変調法により 300~1000 nm、 $\Delta \nu = 700$ THz 帯域高出力コヒーレント光波の発生に初めて成功した。
2. モノサイクル光化の研究において、(1)超広帯域でかつ任意の分散補償が可能な空間光位相変調法により 3.6 fs・1.67 サイクルの可視近赤外域では最短の光パルス発生に成功した。また、(2)フォトニッククリスタルファイバー、テーパファイバーの初の光パルス圧縮に成功した。さらに、(3)誘起位相変調光パルス圧縮にも初めて成功した。
3. 極限光電場波束計測の研究においては、従来法に比し 100 倍の高感度でかつ初の 1 オクターブを越える超広帯域性を有する独自の変形 SPIDER 法を開発した。
4. 汎用性の極めて高いモノサイクル光パルス自動圧縮の研究において、計算機プログラム制御可能な超広帯域チャープ補償法と極限光電場波束計測法とを結合させ、サイクル光波束の一体フィードバック自動制御に初めて成功した。
5. 多波長同時波形整形とナノ STM 技術への応用の研究において、3 異波長でかつ繰り返し THz 光パルス列周波数が互いに異なった光波発生に成功し、その応用として 1 原子レベルでの Si 選択脱離を初めて実現した。
6. 極限光波束の非線形伝播の研究においては緩包絡波近似のない独自のフーリエ直接法などにより、モノサイクル光波束のガラスファイバー非線形伝播でのスペクトル・時間波形ふるまいを初めて解明した。

B. 光 STM の研究

1. CW レーザー励起 STM における光変調構造の解析に関する研究については、(1) 光励起変調トンネル分光技術を確立し、局所光変調バンド構造を初めて観察した。さらに、原子分子吸着系のフォトルテージ効果を明らかにすると共にその反応制御を行った。加えて、(2) 単一分子制御を実現し直接観察を可能にした。また、(3) Si 表面低温相構造のドーパ依存性と光変調特性を明らかにした。

2. 超高時間分解光 STM 技術の開発に関しては、(1) fs 時間分解 STM (FR-STM) の開発に成功した。さらに、(2) FR-STM を用いた時間分解測定に成功 (GaNAs) した。

3. ダイナミクス測定・制御の研究において、(1) BEDT-TTF 系低次元有機伝導体の相緩和とコヒーレントフォノン緩和を初めて観察した。また、(2) 単一分子操作 (cis-2-butene の回転モード、化学反応制御) に成功した。ついで、(3) 分子性結晶表面での分子構造緩和の存在を確認した。加えて、(4) ナノ粒子、DNA 分子のパターニング技術の開発と電流計測を可能にした。さらに、(5) 単一分子間力測定におけるブラウン運動を初めて観測した。

2. 研究構想

プロジェクト開始時に設定した本研究目標は、光サイクル時間域の極限的な光波機能 (550 THz を越える超広帯域コヒーレント光波発生、光パルスのモノサイクル化、多波長同期整形ビーム発生) を開拓し、その新光波機能と走査トンネル顕微鏡 (STM) とを融合させた時空間極限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を明らかにしかつ制御することである。

この目標を達成するために、プロジェクト開始直後に、山下幹雄 (北大)、重川秀実 (筑波大)、森田隆二 (北大) 3 者で具体的研究課題・進め方などを議論した。その結果、極限光波研究については主に北大チームが、光 STM 研究については重い主に筑波大チームが担当することとした。さらに前者は、超広帯域光波発生、モノサイクル光化、光パルス電場振幅・位相計測、サイクル光波非線形伝播の理論・実験の両面からの解明については、山下グループ、多波長波形整形ビーム発生とその STM などへの応用については、森田グループが、分担しあった。

本プロジェクトで取り組んだ要素課題と、その年次進行の概要を次表に示す。次節以降で詳述するように、本プロジェクトで取り組んだ研究要素課題は、

A 極限光波の研究

- [1] 超広帯域コヒーレント光波発生
- [2] モノサイクル光化
- [3] 極限光波束計測
- [4] 極限光波束自動制御
- [5] 多波長光波整形とその応用

[6] 極限光波束非線形伝播

B STM の研究

[7] 光 STM 融合技術と極限計測

[8] 単一原子・分子レベルの物性解析・制御

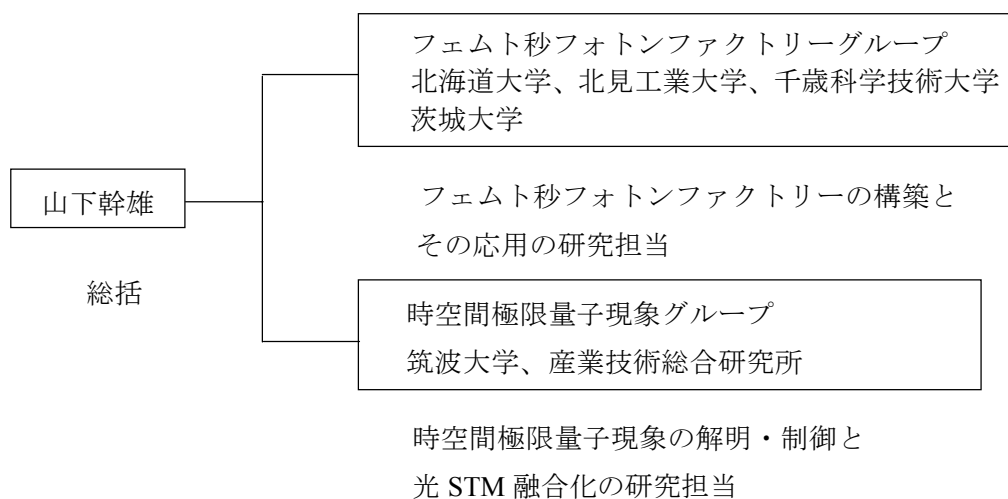
という項目に整理することができる。

	H9.11	H10	H11	H12	H13	H14.10
	1997	1998	1999	2000	2001	2002
A. 極限光波						
1. 超広帯域コヒーレント光波発生	ガラスファイバー誘起位相変調超広帯域光発生	キャピラリーファイバー誘起位相変調超広帯域光発生				
2. モノサイクル光化		前置+SLMチャープ補償		超広帯域SLMチャープ補償	誘起位相変調光チャープ補償	フォトニックファイバー・テーパファイバー光パルス圧縮
3. 極限光波束計測		2サイクル台以下のFRAC計測	光パルス波形FROG計測	準実時間光パルス波形SPIDER計測	高精度・オクターブ越え光パルス波形M-SPIDER	
4. 極限光波束自動制御		ガラスファイバーフィードバック光パルス圧縮基礎実験			極限光パルスフィードバック自動チャープ補償	
5. 多波長光波整形とその応用		2異波長光波整形	3異波長光波整形	高周波ラマン選択励起理論提案	波形整形・チャープ補償同時実現	
6. 極限光波束非線形伝播	誘起位相変調光パルス圧縮理論		モノサイクル光非線形伝播 (SEWA)		モノサイクル光非線形伝播 (FDM)	一原子レベル選択励起制御
B. 光STM						
1. 光STM融合技術と極限計測	光・STM融合システム		光変調トンネル分光法開発と応用		フェムト秒時間分解STM開発と応用	フェロセン分子を用いた極限計測の準備
2. 単一原子・分子レベルの物性解析・制御	シリコンナノ粒子の解析	低次元有機伝導体・表面構造・相転移の解析	DNAの光誘起伝導測定	非弾性トンネル過程による単一原子分子反応制御・単一分子光スイッチ	GaN試料を用いた極限計測	Si(100)表面構造相転移と光制御
		Si(100)表面の制御技術と構造相転移				

3. 研究実施体制

極限光波の研究を主に担当した北海道大学大学院工学研究科チームは、山下グループと森田グループとで分担しあい、前者は計測を含む光パルスのモノサイクル化、後者は多波長光波整形とその STM への応用の研究を展開した。光 STM の研究を主に担当した筑波大学物理工学系の重川チームは、CW レーザー励起 STM・フェムト秒光パルス励起 STM の開発を進めると共に、それらを用いた半導体・有機分子・DNA などの 1 原子分子ダイナミクスの解明に関する研究を行った。プロジェクト後半では、両チームが開発した技術・装置の相互交換利用およびメンバーの相互乗入れを行い、共同研究を活発に進めた。両チームとも、事業団ポスドク研究員・大学院生・学部生・民間会社研究員と多くのメンバー参加を得て精力的に研究を展開した。

(1) 体制



4. 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
1998年6月 18-19日	第1回チーム研究会	筑波大学ベンチャービジネ斯拉ボラトリー	27名	外部招聘講演者3名を含む第1回チーム研究会。研究構想、研究成果発表、討論を行った。
1999年9月 9-11日	第2回チーム研究会	北海道大学 学術交流会館	43名	招待講演者1名、外部からの講演者8名、そのほか外部からの関連領域領域研究者9名参加。研究成果発表、討論を行った。
2000年9月 7-9日	第3回チーム研究会	北海道大学 学術交流会館	46名	招待講演者1名、外部からの講演者7名、そのほか外部からの関連領域領域研究者10名参加。研究成果発表、討論を行った。
2001年11月 1-3日	第4回チーム研究会	筑波大学ベンチャービジネ斯拉ボラトリー	54名	招待講演者5名、外部からの講演者12名、そのほか外部からの関連領域領域研究者10名参加。研究成果発表、討論を行った。
2002年11月 21-22日	第5回チーム研究会	支笏湖国民休暇村	33名	招待講演者3名、外部からの講演者2名、そのほか外部からの関連領域領域研究者9名参加。研究成果発表、討論を行った。

5. 主な研究成果

(“1章に記載の通り、6章についても別冊としての公開を予定しています。”)

(1) 論文発表 (113 篇)

1997 年

(1) 論文発表

- 1 Y. Sato, R. Morita, M. Yamashita, “Study on ultrafast dynamic behaviors of different nonlinear refractive index components in CS₂ using a femtosecond interferometer” Jpn. J. Appl. Phys., 36 Part 1, 2109-2115 (1997).
- 2 T. Suemura, M. Ohtani, R. Morita, M. Yamashita, “Femtosecond refractive-index nonlinearities in a flint glass single-mode fiber” Jpn. J. Appl. Phys., 36(10A), L1307-L1310 (1997).
- 3 Y. Sato, R. Morita, M. Yamashita, “Femtosecond optical pulse self compressor using CS₂ liquid-core fiber with negative delayed nonlinear response” Jpn. J. Appl. Phys., 36, Part 1, 6768-6774 (1997).
- 4 T. Fujiwara, Y. Kamoshida, R. Morita, M. Yamashita, “Temporally-separated ultrafast-emission dynamics of neutral and cationic molecules in guanine and its derivative aqueous solutions” J. Photochem. Photobio. B: Biol., 41, 114-121 (1997).
- 5 S. Umeuchi, Y. Nishimura, I. Yamazaki, H. Murakami, M. Yamashita, N. Ohta, “Electric field effects on absorption and fluorescence spectra of pyrene doped in a PMMA polymer film” Thin Solid Film, 311, 239-245 (1997).
- 6 M. Ishida, K. Hata, T. Mori, K. Nakamoto, M. Iwatsuki, R. Yoshizaki and H. Shigekawa, “Surface Superstructures Fluctuating in a Quasi-One-Dimensional Organic Conductor” Jpn. J. Appl. Phys. vol36, 3894-3897(1997).
- 7 K. Hata, H. Shigekawa, T. Ueda, M. Akiyama, T. Okano, “How annealing conditions influence the fluctuation of step-edges of step bunching on vicinal GaAs(100) formed by annealing in AsH₃ and H₂ ambient” J. Vacuum Sci. Technol. A15(3), 1269-1274(1997).
- 8 H. Shigekawa, K. Hata, K. Miyake, M. Ishida, and S. Ozawa, “Origin of the Symmetric Dimers in the Si(100) Surface” Phys. Rev. B55, 15448(1997).
- 9 H. Shigekawa, K. Miyaka, M. Ishida, S. Ozawa, K. Hata, “Phasons Formed on Si(100) Dimer Rows Observed by Scanning Tunneling Microscopy” Sci. Rep. RITU A44, p.67-69 (1997, March).
- 10 H. Shigekawa, K. Miyaka, M. Ishida, K. Hata, “Dynamics of Phase Defects on Dimer Rows and Related Structural Changes of the Si(100) Surface at 80K Studied by Scanning Tunneling Microscopy” Jpn. J. Appl. Phys. 36, L294-L297 (1997).

- 11 K. Hata, H. Shigekawa, T. Okano, T. Ueda, M. Akiyama, "Modeling Step Bunching Formed on vicinal GaAs(001) annealed in AsH₃ and Hydrogen Ambient" Phys. Rev. B, 55 7039-7046 (1997).
- 12 M. Ishida, K. Hata, T. Mori, H. Shigekawa, "Surface reconstruction formed by ordered missing molecular rows observed on quasi-one-dimensional organic conductor b-(BEDT-TTF)₂PF₆" Phys. Rev. B55, 6773-6777(1997).
- 13 K. Miyake, K. Hata, H. Shigekawa, "Role of Corner Holes in Si(111)-7x7 Structural Formation Studied by HBO₂ Molecular Irradiation and Quenching" Phys. Rev. B55, 5360-5363 (1997).

1998 年

(1) 論文発表

- 1 曾根宏靖、山下幹雄、「光パルスのモノサイクル化—1手法の定量的提案」光技術コンサルタント、36、317-327 (1998)。
- 2 M. Yamashita, H. Sone, R. Morita, H. Shigekawa, "Generation of monocycle-like optical pulses using induced-phase modulation between two-color femtosecond pulses with carrier-phase locking" IEEE J. Quantum Electron., QE-34, 2145-2149(1998).
- 3 唐沢直樹、山下幹雄、「チャープ補償用多層膜」「オプトロニクス」7月号、195-201 (1998)。
- 4 K. Hata, S. Okawa, K. Miyake, H. Shigekawa, "How the down step edges influence formation of the 7x7 structure of Si(111)" Scanning 20, 398-402 (1998).
- 5 K. Hata, M. Ishida, K. Miyake, H. Shigekawa, "Surface dynamics studied by perturbing the surface with the tip of scanning tunneling microscopy -Si(001) at 80K-" Appl. Phys. Lett. 73, 40 (1998).
- 6 K. Miyake, H. Shigekawa, "Self organised network structure appearing in the B/Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ phase formation process studied by scanning tunneling microscopy" Applied Physics A 66, S1013-S1016 (1998).
- 7 K. Miyake, K. Akutsu, T. Yamada, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, "Giant superstructures formed on graphite surface treated with NaOH solutions studied by scanning tunneling microscopy" Ultramicroscopy, 73, 185-189 (1998).
- 8 K. Miyake, M. Ishida, H. Shigekawa, "Selective chemical reaction of HBO₂ molecules on the Si(111)-7x7 surface studied by scanning tunneling microscopy" Applied Surface Science 130-132, 78-83 (1998).
- 9 三宅晃司、重川秀実、「HBO₂照射によるSi(111)表面へのB原子吸着 —特異的な反応過程

とネットワーク構造の形成—」応用物理学会薄膜・表面物理分科会 News Letter, 103, 29 (1998)。

- 10 S. Yasuda, K. Miyake, Y. Goto, M. Ishida, K. Hata, M. Fujita, M. Yoshida, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa, “Scanning tunneling microscopy on ordered self-assemblies of cyclodextrin inclusion complexes formed by substrate-induced two-dimensional crystal growth” Jpn. J. Appl. Phys. 37, 3844-3848 (1998).
- 11 H. Shigekawa, K. Miyake, M. Ishida, S. Ozawa, K. Hata, “Phase Defects on Si(100) Surface, Studied by Scanning Tunneling Microscopy” Defect and Diffusion Forum 160-161, 57-64(1998)
- 12 K. Hata, H. Shigekawa, T. Ueda, M. Akiyama, T. Okano, “Step Bunching caused by annealing vicinal GaAs(001) annealed in AsH₃ and Hydrogen ambient in its stationary state” Phys. Rev. B57, 4500-4508(1998)

1999 年

(1) 論文発表

- 1 N. Karasawa, R. Morita, L. Xu, H. Shigekawa, M. Yamashita, “Theory of ultra-broadband optical pulse generation by induced-phase modulation in a gas-filled hollow waveguide” Journal of the Optical Society of America B, 16, 662-668 (1999).
- 2 L. Xu, N. Karasawa, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, “Experimental generation of an ultra-broad spectrum based on induced-pulse modulation in a single-mode glass fiber” Optics Communications 162, 256-260 (1999).
- 3 M. Yamashita, S. Kikuma, Y. Yamaoka, H. Murakami, R. Morita, H. Shigekawa, “Nonresonant femtosecond second hyperpolarizabilities of intramolecular charge-transfer molecules with great excited- and ground-state dipole-moment differences” Applied Physics Letters 75, 28-30 (1999).
- 4 H. Murakami, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, “Aggregation effect on the third-order optical nonlinearity in 4-(N, N-diethylamino)- β -nitrostyrene-doped polymer films” Jpn. J. Appl. Phys, 38, 4056-4064 (1999).
- 5 Y. Yamaoka, R. Morita, M. Yamashita, “Group-velocity dispersion effect on the femtosecond time-dependent, degenerative four-wave mixing signal near the absorption edge of 4-(N, N-diethylamino)- β -nitrostyrene (DEANST) solutions” Nonlinear Optics, 22, 381-384 (1999).
- 6 H. Murakami, R. Morita, T. Watanabe, K. Asai, M. Yamashita, K. Ishigure, H. Shigekawa, “Third-order nonlinear optical susceptibility measurement in 1-methyl-1'-octadecyl-2, 2'-cyanine perchlorate langmuir-blodgett films by means of electroabsorption spectroscopy” Molecular Crystals and Liquid Crystals, 327, 31-35 (1999).

- 7 R. Morita, H. Yanagisawa, M. Yamashita, K. Oka, "Femtosecond optical nonlinearity through a two-photon process in carotenoid solutions" *Nonlinear Optics*, 22, 409-412 (1999).
- 8 H. Murakami, R. Morita, M. Yamashita, "Concentration dependence study of the third-order nonlinearity in 4-(N, N-diethylamino)- β -nitrostyrene (DEANST) doped polymer films by use of electroabsorption spectroscopy" *Nonlinear Optics*, 22 385-388 (1999).
- 9 M. Ishida, T. Mori, H. Shigekawa, "Surface-charge density wave on the quasi-one dimensional conductor β -(BEDT-TTF)2PF6" *Physical Review Letters* 83, 596-599 (1999).
- 10 M. Ishida, T. Mori, H. Shigekawa, "Modulation of β -(BEDT-TTF)2PF6 crystal surface structure induced by charge redistribution in surface layers" *Surface Science* 433-435, 147 (1999).
- 11 M. Ishida, T. Mori, H. Shigekawa, "Anomalous structural transition of the β -(BEDT-TTF)2PF6 surface observed by scanning tunneling microscopy" *Synthetic Metals* 103(1-3), 2105(1999).
- 12 K. Hata, S. Ozawa, H. Shigekawa, "Metastable and excited states of the C defects of Si(001)" *Surface Science* 441, 140-148 (1999).
- 13 K. Hata, S. Yasuda, H. Shigekawa, "Reinterpretation of the scanning tunneling microscopy images of Si(100)" *Physical Review B* 60, 8164-8170 (1999).
- 14 K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, "Structure transformation of the C defects observed at low temperature (80K)" *Jpn. J. Appl. Phys.* 38, 3837-3840 (1999).
- 15 K. Hata, T. Kimura, Y. Sainoo, K. Miyake, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, "Spontaneous fluctuation between symmetric and buckled dimer domains of Si(100) at 80K" *Jpn. J. Appl. Phys.* 38, 2904-2909 (1999).
- 16 M. Matsumoto, N. Tatsumi, K. Fukutani, T. Okano, T. Yamada, K. Miyake, K. Hata, H. Shigekawa, "Adsorption structures of NO/Pt(111) investigated by scanning tunneling microscopy" *J. Vac. Sci. Technol.* A17, 1577-1580 (1999).
- 17 K. Miyake, T. Kaikoh, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, "Intermediate structures appearing in the phase transition of Si(111)-7x7 to ($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30^o induced by HBO₂ molecular irradiation" *J. Vac. Sci. Technol.* A17, 1596-1601 (1999).
- 18 K. Miyake, T. Kaikoh, Y.J. Li, H. Oigawa, H. Shigekawa, "Si(111) surface under phase transitions studied by the analysis of inner layer structures using bias-dependent scanning tunneling microscopy" *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38, 3841-3844 (1999).

- 19 K. Miyake, H. Oigawa, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, "Stability and nuclear formation of Si(111)-7x7 structure as determined from charge redistribution in surface layers" Surf. Sci., 429, 260-273 (1999).
20. S. Yasuda, K. Miyake, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa, "Effect of the dipole-dipole interaction on the self-assembly of cyclodextrin inclusion complexes" Jpn. J. Appl. Phys., 38, 3888-3891 (1999).
21. Y. Sainoo, T. Kimura, R. Morita, M. Yamashita, K. Hata, H. Shigekawa, "Electronic structure of the Si(100) surface A defects analyzed by scanning tunneling spectroscopy at 80K" Jpn. J. Appl. Phys., 38, 3833-3836 (1999).
22. T. Imayoshi, H. Oigawa, H. Shigekawa, H. Tokumoto, "Initial stage of nitridation of GaAs(001):Atomic Scale View" Jpn. J. Appl. Phys., 38, 3875-3878 (1999).
23. H. Shigekawa, M. Ishida, K. Miyake, R. Shioda, Y. Iijima, T. Imai, H. Takahashi, J. Sumaoka, M. Komiyama, "Extended X-ray absorption fine structure study on the cerium (IV)-induced DNA hydrolysis: implication to the roles of 4f Orbitals in the catalysis" Appl. Phys. Lett., 74, 460-462 (1999).
24. T. Yamada, K. Miyake, M. Ishida, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, "Long range ordering in the graphite intercalation compounds" Synthetic Metals, 103, 2653-2654 (1999).
24. 石田真彦、重川秀実、「極性有機結晶表面における表面電荷密度波」応用物理学会薄膜・表面分科会 News letter105, 37-42 (1999)。
25. 重川秀実、「光励起 STM」表面科学 20, 5, 337-343 (1999)。

2000年

(1) 論文発表

- 1 山下幹雄、「フェムト秒域の光波技術」量子工学ハンドブック (荒川泰彦、大津元一 編)、朝倉書店 843-871 (2000)。
- 2 山下幹雄、松本賢一郎、許林、「空間位相変調のモノサイクル光パルス発生への応用」レーザー研究、Vol.28. No.8. 492-499 (2000)。
- 3 N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Generation of intense ultrabroadband optical pulses by induced-phase modulation in an argon-filled single-mode hollow waveguide" Opt. Lett., 25, 183-185 (2000).
- 4 N. Karasawa, S. Nakamura, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Comparison between theory and experiment of nonlinear propagation for 4.5-cycle optical pulses in a fused-silica

- fiber” *Nonlinear Optics*, 24, 133-138 (2000).
- 5 Y. Yamaoka, R. Morita, M. Yamashita, “Numerical analysis of femtosecond time-resolved degenerate four-wave mixing signal including group-velocity dispersion effect” *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 1170-1171 (2000).
 - 6 L. Xu, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, “Programmable chirp-compensation for 6-fs pulse generation with a prism-pair formed pulse shaper” *IEEE J. Quantum Electron.*, 36, 893-899 (2000).
 - 7 L. Xu, L. Li, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, “Application of a spatial light modulator for programmable optical pulse compression to the sub-6-fs regime” *IEEE Photonics Technol. Lett.*, 12, 1540-1542 (2000).
 - 8 H. Murakami, R. Morita, T. Watanabe, K. Asai, I. Honma, H. Zhou, M. Yamashita, K. Ishigure, H. Shigekawa, “Determination of third-order optical nonlinearity dispersion for 1-methyl-1'-octadecyl-2, 2'-cyanine perchlorate Langmuir-Blodgett films using electroabsorption spectroscopy” *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 5838-5841 (2000).
 - 9 Y. Yamaoka, R. Morita, M. Yamashita, “Femtosecond time-resolved third-order nonlinear response of 4-(N, N-diethylamino)- β -nitrostyrene solutions in the nonresonant region -experimental evidence of group-velocity dispersion effect” *Opt. Rev.*, 7, 489-494 (2000).
 - 10 S. Nakamura, L. Li, N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, “Extremely flexible and accurate chirp-compensation for 75-MHz repetitive glass-fiber output of a more-than 100 THz bandwidth—generation of a few-optical-cycle transform-limited pulses-” *Ultrafast Phenomena XII*, 56-58 (2000).
 - 11 L. Xu, N. Nakagawa, R. Morita, M. Yamashita, “A prism-pair-formed pulse shaper compresses optical pulses to the 6-fs regime” *Ultrafast Phenomena XII*, 68-70 (2000).
 - 12 山下幹雄、「1000 兆分の 1 秒の量子光学の世界へ」(招待論文) *電子科学研究*, 8 巻、5 - 9 (2000)。
 - 13 H. Shigekawa, K. Miyake, J. Sumaoka, A. Harada, M. Komiyama, “The molecular abacus -STM manipulation of cyclodextrin necklace” *J. Am. Chem. Soc.*, 122(22), 5411-5412 (2000).
 - 14 M. Ishida, O. Takeuchi, T. Mori, H. Shigekawa, “Comparison of the symmetry breaking in the surface molecular structures of one- and two-dimensional Bis(ethylenedithio)tetrathiafulvalene compounds” *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 3823-3826 (2000).
 - 15 M. Matsumoto, K. Fukutani, T. Okano, K. Miyake, H. Shigekawa, H. Kato, H. Okuyama, M. Kawai, “Study of the adsorption structure of NO on Pt(111) by scanning tunneling microscopy

- and high-resolution electron energy-loss spectroscopy” *Surface Science*, 454-456, 101-105 (2000).
- 16 K. Hata, T. Kimura, O. Takeuchi, H. Shigekawa, “Origin, cause, and electronic structure of the symmetric dimers of Si(100) at 80K” *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 3811-3814 (2000).
 - 17 K. Hata, T. Makimura, K. Morita, K. Murakami, H. Shigekawa, “High resolution scanning tunneling microscope observation of Si nanoparticles fabricated by laser ablation and sparsely deposited on HOPG” *Transaction of Material Research Science of Japan*, 25, 821-824 (2000).
 - 18 S. Yasuda, I. Suzuki, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa, “Structure and molecular recognition ability of thiolated-cyclodextrin monolayer on Au(111) surface” *Transactions of Material Research Science of Japan*, 25, 853-856 (2000).
 - 19 K. Hata, H. Shigekawa, T. Ueda, M. Akiyama, T. Okano, “Hydrogen as the cause of step bunching formed on vicinal GaAs(001)” *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 4404-4407 (2000).
 - 20 T. Kaikoh, K. Miyake, Y.J. Li, R. Morita, M. Yamashita, H. Shigekawa, “Site preferences of oxygen and boron atoms during dissociative reaction of HBO₂ molecules onto the Si(111)-7x7 surface” *J. Vac. Sci. Technol.*, A18, 1469-1472 (2000).
 - 21 K. Hata, T. Kimura, S. Ozawa, H. Shigekawa, “How to fabricate a defect free Si(100) surface” *J. Vac. Sci. Technol.*, A18, 1933-1936(2000).
 - 22 K. Hata, S. Ozawa, S. Sainoo, K. Miyake, H. Shigekawa, “STM and STS of type-C defect of Si(100) at low temperatures” *Surf. Sci.*, 447(1-3), 156-164 (2000).
 - 23 S. Yasuda, I. Suzuki, T. Nakamura, M. Matsumoto, M. Komiyama, H. Shigekawa, “Scanning tunneling microscopy on the formation of lipoamide-cyclodextrin monolayer on Au(111)” *Appl. Phys. Lett.*, 76(5), 643-645 (2000).
 - 24 K. Hata, T. Makimura, K. Morita, K. Murakami, H. Shigekawa, “High resolution scanning tunneling microscope observation of Si nanoparticles fabricated by laser ablation and sparsely deposited on HOPG” *Transaction of Material Research Society of Japan*, 25, 821-824 (2000).
 - 25 S. Yasuda, I. Suzuki, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa, “Structure and molecular recognition ability of thiolated-cyclodextrin monolayer on Au(111) surface” *Transaction of Material Research Society of Japan*, 25, 853-856 (2000).
 - 26 重川秀実、小宮山真、「分子シャトルの実現-走査トンネル顕微鏡による分子操作」*科学と教育* 48,11,725 (2000)。

2001 年

(1) 論文発表

1. S. Nakamura, Y. Koyamada, N. Yoshida, N. Karasawa, H. Sone, M. Ohtani, Y. Mizuta, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, “Finite-difference time-domain calculation with all parameters of sellmeier's fitting equation for 12-fs laser pulse propagation in a silica fiber” IEEE Photonics and Technology Letters, (2002) in press.
2. N. Karasawa, S. Nakamura, N. Nakagawa, M. Shibata, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, “Comparison between theory and experiment of nonlinear propagation for a-few-cycle and ultrabroadband optical pulses in a fused-silica fiber” IEEE J. Quantum Electron., 37, 398–404 (2001).
3. 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)。
4. 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).
6. 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).
7. 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” Optics Communications, 197, 73-81 (2001).
8. 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” Optics Communications, 197, 475-480 (2001).
- 9 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).
- 10 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).
- 11 M. Ishida, O. Takeuchi, T. Mori, H. Shigekawa, “Intermolecular relaxation observed in the surface of the quasi-one-dimensional organic conductor $-\beta(\text{BEDT-TTF})_2\text{PF}_6$ ” Physical Review

B 18, 153405(2001).

- 12 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).
- 13 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).
- 14 S. Yasuda, D. N. Futaba, O. Takeuchi, I. Suzuki, K. Yase, J. Sumaoka, M. Komiyama, H. Shigekawa, "Monolayer formation of 6-deoxy-6-thiol- β -cyclodextrin on a Au(111) surface studied by scanning tunneling microscopy" *J. Vac. Sci. Technol. A* 19(4), 1266-1269 (2001).
- 15 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).
- 16 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).
- 17 K. Shinohara, S. Yasuda, G. Kato, M. Fujita, H. Shigekawa, "Direct measurement of the chiral quaternary structure in a π -conjugated polymer at room temperature" *J. Am. Chem. Soc.*, 123, 3619-3620 (2001).
- 18 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).
- 19 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).
- 20 重川秀実、石田真彦、武内修、三宅晃司、森健彦、「低次元有機伝導体表面の構造相転移と表面電荷密度波」*物理学会誌：最近の研究から* 56, 6, 431-435 (2001)。

2002年

(1) 論文発表

- 1 R. Morita, M. Hirasawa, N. Karasawa, S. Kusaka, N. Nakagawa, K. Yamane, L. Li, A. Suguro, M. Yamashita, "Sub-5 fs optical pulse characterization", *Meas. Sci. Technol.* 13 (2002) 1710-1720.

- 2 S. Nakamura, Y. Koyamada, N. Yoishida, N. Karasawa, H. Sone, M. Ohtani, Y. Mizuta, R. Morita, M. Yamashita, "Finite-difference time-domain calculation with all parameteres of Sellmeier's fitting equation for 12-fs laser pulse propagation in asilica fiber", IEEE Photonics Technol. Lett., 14 (2002) 480--482.
- 3 山下幹雄、「色素レーザー」、「超短光パルス発生」応用物理学ハンドブック(田幸敏治、金原榮 編)、丸善書店、92-94, 129-132 (2002)。
- 4 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).
- 5 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)。
- 6 M. Shibata, M. Hirasawa, N. Nakagawa, R. Morita, A. Suguro, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Experimental demonstration of phase-dispersion compensation for ultra-broadband femtosecond optical pulses generated by induced-phase modulation" Appl. Phys. B, 74, S291-S294 (2002).
- 7 水田洋、長澤稔、大谷守正、森田隆二、山下幹雄、「モノサイクル領域光パルス非線形伝播解析のためのフーリエ直説法」レーザー研究 Vol.30.435-442 (2002)。
- 8 M. Hirasawa, N. Nakagawa, K. Yamamoto, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, "Sensitivity improvement of spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction for the characterization of low-intensity femtosecond pulses" Appl. Phys., B74, S225-S229 (2002).
- 9 M. Fujita, W. Mizutani, M. Gad, H. Shigekawa, H. Tokumoto, "Patterning DNA on μ m scale on mica" Ultramicroscopy 91, 281-285 (2002).
- 10 T. Komeda, H. Fukidome, Y. Kim, M. Kawai, Y. Sainoo and H. Shigekawa, "Scanning Tunneling Microscopy Study of Water Molecules on Pd(110) at Cryogenic Temperature" Jpn. J. Appl. Phys. 7B, 4932-4935 (2002).
- 11 Osamu Takeuchi Ryuji Morita, Mikio Yamashita and Hidemi Shigekawa, "Development of time-resolved scanning tunneling microscopy in femtosecond range" Jpn. J. Appl. Phys. 7B, 4994-4997 (2002).
- 12 Y. Sainoo, Y. Kim, H. Fukidome, T. Komeda, M. Kawai and H. Shigekawa, "Characteristic Configuration of Cis-2-butene Molecule on Pd(110) Determined by Scanning Tunneling Microscopy" Jpn. J. Appl. Phys. 7B, 4976-4979 (2002).

- 13 S. Yoshida, O. Takeuchi, K. Hata, R. Morita¹, M. Yamashita and H. Shigekawa “Pseudo-Real Time Observation of the Dynamics of Phase Defect on Si(100) Surface”
Jpn. J. Appl. Phys. 7B, 5017-5020 (2002).
- 14 Y. J. Li, O. Takeuchi, D. N. Futaba, H. Oigawa, K. Miyake, Y. Kuk and H. Shigekawa
“Characteristic adsorption of Xe on a Si(111)-(7x7) surface at low temperature” Physical Review B 65, 113306 (2002).
- 15 X.Fang, N.Karasawa, R.Morita, R.S.Windeler, M.Yamashita, “ Nonlinear propagation of a-few-optical-cycle pulses in a photonic crystal fiber—experimental and theoretical studies beyond the slowly-varying-envelope approximation—” IEEE Photonics Tech. Lett., (2003) in press.
- 16 X. Fang, N.Karasawa, R.S.Windeler, R.Morita, M.Yamashita, “Experimental and theoretical supercontinuum generation in a photonic crystal fiber by use of a-few-cycle optical-pulse propagation”, Ultrafast Phenomena XIII,(Springer, 2002) in press.
- 17 M. Adachi, M. Hirasawa, A. Suguro, N. Karasawa, S. Kobayashi, R. Morita and M. Yamashita, “Spectral-Phase Characterization and Adapted Compensation of Strongly Chirped Pulses From a Tapered Fiber”, Jap. J. Appl. Phys, (2003) in press.

(2) 特許出願 (国内 8件、海外 2件)

発明者	発明の名称	出願人	出願日
中村真毅 山下幹雄	超短パルス広帯域光波発生装置	科学技術振興事業団	1999. 8. 15
唐沢直樹 森田隆二 山下幹雄	超広帯域光パルス発生装置	科学技術振興事業団	1999. 9. 14
森田隆二 山下幹雄 勝呂彰 諸川滋	超広帯域可変波長多重パルス波形整形装置	科学技術振興事業団	1999. 12. 14
唐沢直樹 森田隆二 山下幹雄	超広帯域光パルス発生方法	科学技術振興事業団	2000. 8. 29 (EP, 加国、 米国)
森田隆二 山下幹雄 勝呂彰 諸川滋	超広帯域可変波長多重パルス波形整形装置	米国以外:科学技術振興事業団、シチズン時計株式会社 米国のみ:森田隆二、山下幹雄、勝呂彰、諸川滋	2000. 11. 1 (EPO, 米国)
重川秀実 武内修 山下幹雄 森田隆二	遅延時間変調型フェムト秒時間分解走査プローブ顕微鏡装置	科学技術振興事業団	2001. 11. 26
重川秀実 村上浩一 畠賢治 牧村哲也	シリコンナノパーティクルのパターニング方法及びこの方法に用いる有機分子	科学技術振興事業団	2001. 6. 26
平澤正勝 山下幹雄	自律型超短パルス圧縮・位相補償・波形整形装置	科学技術振興事業団	2002. 5. 17

(3) 新聞報道等

①新聞報道 なし

②受賞 なし

③その他 なし

(4) その他特記事項