

## 「場と反応」研究領域延長研究者 事後評価報告書

- 平成 13 年度終了研究課題 -

領域総括 吉森 昭夫

### 1. 研究領域の概要

この研究領域は、分子や原子をとりまく物質的、エネルギー的な環境としての「場」と原子や分子の相互作用およびそれに伴う物質の生成・変化の過程（反応）との関係に着目するものである。すなわち、反応の各過程におけるエネルギー状態、スピン状態、あるいは物質の相の変化などが場からどのような影響を受けているのか、さらには、その影響が、物質の生成・変化の過程での選択性、活性化、応答性、構造の秩序化や安定性などにどのように寄与しているのかを探求するものである。具体的には、物理的、化学的な場、生体の場などにおける原子や分子の挙動、状態変化、相互作用の解明、さらには場を用いた反応の時空間的制御および物質選択性の検討、機能的な場の設計および創出などの研究を含む。

### 2. 延長研究課題・延長研究者名

| 研究者名<br>(参加形態) | 研究課題名<br>(研究実施場所)                    | 現職<br>(延長時所属)   | 研究費*<br>(百万円) |
|----------------|--------------------------------------|---|---------------|
| 石田 昭人<br>(兼任)  | 電子とエネルギーで分子の姿を見る<br>(大阪大学産業科学研究所)    | 京都府立大学人間環境部<br>助教授<br>(大阪大学産業科学研究所 助手)  | 16            |
| 小森 和弘<br>(兼任)  | フェムトの時間域で電子を操作する<br>(工業技術院電子技術総合研究所) | 産業技術総合研究所 光<br>技術研究部門 光電子制<br>御デバイスグループ グル<br>ープリダー<br>(工業技術院電子技術総<br>合研究所 主任研究官) | 9             |

\*：研究費には研究者の人件費は含まず。

### 3. 延長研究について

事後評価を行って、領域総括から「3年間の研究結果を踏まえた上で、さらに一定期間の研究を行えば一層の展開が期待され、我が国の科学技術に大きな貢献をされると考えられる」との考察(別紙8)をもとに、事後評価の対象となった研究課題の一部について、研究期間の延長を試行的に行うこととした。具体的には、領域総括が必要に応じ領域アドバイザーの協力を得て選考を行い、事業団が引き続き研究を支援することとした。これらの課題についてはあらかじめ具体的な研究目標を明確化することとし、追加する研究期間は最長2年間とした。

#### 4. 研究実施期間

平成 12 年 3 月～平成 14 年 2 月

#### 5. 研究状況

各研究者は、各自研究を実施するとともに、関連する進行中の研究領域「状態と変革」の領域会議、さきがけの研究報告会に積極的に参加し、研究進捗状況の報告と討論、研究交流を図るよう努めた。

#### 6. 評価の手続き

領域総括が各研究者からの報告・自己評価を基に必要なに応じて領域アドバイザーの協力を得て行った。

(評価の流れ)

|               |               |
|---------------|---------------|
| 平成 14 年 2 月   | 研究終了          |
| 平成 14 年 4 月まで | 研究報告書及び自己評価提出 |
| 平成 14 年 6 月   | 領域総括等による評価    |

#### 7. 評価項目

- (1) 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じた新たな知見の取得など、研究成果の状況
- (2) 得られた研究成果の科学技術への貢献

#### 8. 研究結果

平成 12 年 3 月より平成 14 年 2 月までの延長期間に一人は光ナノ化学の分野でもう一人は量子細線を舞台にしたフェムト秒ダイナミックスの分野でそれぞれフロントランナーとして、延長前と同様あるいはさらに上回る努力を続けた。その間研究環境の変化はあったが、期待された成果はあがったといえる。それぞれさきがけ研究 21 らしい夢のあるゴールを見据えての展開であった。領域総括としては、延長研究費がもっとも延長期間中に効果的であると思われる研究者を選ぶというのが選択要項の一つであったので、その点も満たされたといえよう。

#### 9. 評価者

領域総括：吉森 昭夫          岡山理科大学総合情報学部 教授

##### 領域アドバイザー

|       |                 |      |
|-------|-----------------|------|
| 安保 正一 | 大阪府立大学大学院 工学研究科 | 教授   |
| 井上 頼直 | 理化学研究所          | 理事   |
| 潮田 資勝 | 東北大学電気通信研究所     | 教授   |
| 北澤 宏一 | 科学技術振興事業団       | 専務理事 |
| 小林 誠  | 高エネルギー加速器研究機構   | 教授   |
| 関 一彦  | 名古屋大学大学院 理学研究科  | 教授   |
| 堀越 佳治 | 早稲田大学理工学部       | 教授   |
| 八木 克道 | 大学評価・学位授与機構     | 教授   |
| 米山 宏  | 国立阿南工業高等専門学校    | 校長   |

(参考)

(1) 外部発表件数

|     | 国内 | 国際 | 計  |
|-----|----|----|----|
| 論文  | 1  | 18 | 19 |
| 口頭  | 10 | 0  | 10 |
| その他 | 0  | 0  | 0  |
| 合計  | 11 | 18 | 29 |

(2) 特許出願件数

| 国内 | 外国 | 計 |
|----|----|---|
| 5  | 2  | 7 |

(3) 受賞等  
なし

(4) 招待講演  
国際 1件  
国内 0件

## 研究課題別研究評価

### 1. 研究課題名：

電子とエネルギーで分子の姿を見る

### 2. 研究者名：

石田昭人

### 3. 研究のねらい：

本研究は金表面に形成・固定化した光機能性分子集合体を光近接場の一つである表面プラズモン場により励起する系において、従来の表面プラズモン分光ではガラスプリズム表面に蒸着した平滑な金薄膜を用いていたのに対し、金表面に光波長サイズの微細構造を構築することにより表面プラズモンの電場を散乱・局在させてそのエネルギーを効果的に分子に伝達する方法論を開拓し、これを高感度蛍光分析や分子集光システムなどへ応用することをねらいとした。

### 4. 研究結果：

金表面に形成・固定化した光機能性分子集合体を表面プラズモンの電場で励起する際、平滑な金薄膜の場合、可視光で励起された表面プラズモンの電場は数 $\mu\text{m}$ も伝播するが、金薄膜に光波長サイズの孔を穿けておけばその電場が散乱され、孔の内部に電場が局在することが分光系の研究者により報告された。そこで、微小構造体としてプロジェクション法およびフォトリソグラフィにより金薄膜に直径200nm-3 $\mu\text{m}$ の孔と幅500nm-20 $\mu\text{m}$ の溝を形成した。孔や溝の周囲の金表面あるいは底面に蛍光性分子を選択修飾する方法、および、孔や溝の内部に蛍光性分子を充填する方法についても独自に開拓した。ついで、直接光照射またはプリズムによる全反射照明を行い、近接場顕微鏡および蛍光顕微鏡による蛍光強度分布から表面プラズモン電場の観測を試みた。

得られた結果は 1)従来表面プラズモン励起に不可欠であったプリズムを用いない直接光励起による表面プラズモン増強電場の形成の実証、2)孔の周縁部への電場の局在化の観測、3)微細構造内における免疫反応の実証の3点である。1)については、透過顕微鏡像では観測不可能な励起光波長以下のサイズの孔や溝の場合であっても強い蛍光が観測できたことから、微小構造体を用いることにより、従来は表面プラズモン励起に不可欠であったプリズムを用いないでも表面プラズモンの増強電場を形成可能であることが示唆された。2)については、直径数百nmの丸孔の場合、表面修飾および底面修飾ともに孔の周縁部が強い発光を示し、表面プラズモンの電場が孔の周縁部に強く局在化されることが明らかになった。3)については、免疫反応のモデル系であるストレプトアビジン-ビオチンの結合反応において、直径3 $\mu\text{m}$ の孔および幅1 $\mu\text{m}$ の溝の内部で逐次修飾と蛍光検出に成功し、金表面に形成した微小構造体を蛍光免疫分析用の超高密度ウェルとして応用可能なことを示唆した。

### 5. 自己評価

言い訳から始めねばならないのが残念であるが、延長研究を開始した平成12年4月に現任地である京都府立大学から内定をもらうことができたものの、前任地の特殊事情のために新たな実験が全く不可能な状況に追い込まれてしまった。さらに平成13年4月に現任地へ着任したものの、肝心の研究棟が建設中で木造の実験室への仮住まいを強いられることとなった。このため、私の主力研究設備である走査プローブ顕微鏡や表面プラズモン共鳴分光装置が全く使用できなかった。やむを得ず今後研究を展開するための新概念の創出に勤めることとし、わずかに行うことができた最小限の予備実験によってこれを実証して、とりあえず特許化することにした。し

たがって、論文化できたデータは非常に少ない。他の延長研究者と比ぶるべくもなく、心底情けない限りである。内定をいただいた時点で建物に関する説明は受けていたが、正直のところ楽観し過ぎていたのは確かである。埃が5 mm ほども積もった居室を掃除して自分でペンキを塗り、なんとか実験室に仕立ててみたものの、暗室設備もないため、深夜、周囲の灯が消えるのを待って蛍光顕微鏡観測を行う有り様であった。この4月ようやく新館が完成して引っ越し、研究室を立ち上げたところである。2年間待ちに待ち続けていたプローブ顕微鏡がようやく動き始め、早速実験を開始している。納税者に対する説明としては恐縮至極であるが、特許化した内容についてはいずれもかなりの自負を持っている。今後データを積み重ね、質の高い論文とすることで遅ればせながらこの制度に対する恩返しをすることを誓わせていただく。

#### 6. 領域総括の見解：

予期しなかった研究環境の問題にかかわらず、延長の2年間にあげた成果には見るべきものがある。特にナノスケール細孔による表面プラズモン電場の増強の発見（特許 1）-4）は最近になって調節可能なナノスケールスリットにおいても表面プラズモン電場の増強が見出され、応用への展開の可能性に期待されるものがある。

#### 7. 主な論文等：

- 1) Akito ISHIDA, Surface Plasmon Excitation of Photofunctional Molecules on Constructed Gold Surfaces, RESEARCH TRENDS IN PHYSICS (IAPS Press, La Jolla, CA) (投稿中)
- 2) 石田昭人, ナノ構造化金表面における光の局在化と光化学への応用, レーザー研究, 29, 739 (2001)
- 3) A. Ishida, T. Majima, Photocurrent Generation of a Porphyrin Self-Assembly Mono-layer on a Gold Film Electrode by Surface Plasmon Excitation using Near-IR Light. Chem. Phys. Lett., 322, 242

（特許、受賞、招待講演等）

- 1) 金属ナノウェルを用いた蛍光分析用素子及びその製造方法, 特願 2001-5041
- 2) 同上, PCT/JP02/00026 号
- 3) 金属カルコゲナイド超微粒子の作製方法, 特願 2001-358707
- 4) 同上, PCT/JP01/10264 号
- 5) 走査光電気化学顕微鏡, 特願 2001-39315
- 6) Akito ISHIDA, Surface Plasmon Excitation of Photofunctional Molecules on Constructed Gold Surfaces, FRONTIER-SCIENCE RESEARCH CONFERENCES, LUMINESCENT MATERIALS 2002, La Jolla, CA

## 研究課題別研究評価

### 1. 研究課題名：

フェムトの時間域で電子を操作する

### 2. 研究者名：

小森和弘 産業技術総合研究所

### 3. 研究のねらい：

本研究は、ピコ秒以下の時間域で動作可能な超高速光・電子素子の実現に向けて、新しい動作原理として超高速コヒーレント現象の光位相制御（コヒーレント量子制御）を取り上げ、半導体中のキャリアを超高速光制御する為の基盤技術の確立を目指している。その為、新しい動作原理に適した素子構造の提案とコヒーレント現象の人工操作法に関する提案を行い、実際に基礎実験を通してフェムト秒時間域での半導体中キャリアの超高速人工操作の実証を行うことを目標にした。

### 4. 研究結果：

さきがけ延長期間では、光位相制御に適していると考えられる量子ナノ（量子細線）構造中の励起子を用いて、フェムト秒時間域での半導体中キャリアの超高速光制御に関する研究を行い以下の成果を得た。

1)超高速分光法を用いて三日月形状量子細線としては初めて、超高速励起子ダイナミクスを明らかにした。また、電気光学サンプリング法を用いて量子細線構造中でのコヒーレント量子振動の観測に成功した。（2）

2）テラヘルツ分光法を用いて量子細線を超短光パルス励起した際に発生するキャリア振動（主に自己分極形成に伴うテラヘルツ電磁波放射）の観測に成功した。（3、6）

3)位相ロック分光法を用いて量子ナノ構造の励起子の光制御実験を行ない、単一量子細線中の励起子のコヒーレント制御の初期実験に成功した。（4、5）

4）液晶マスクの波長制御系を含む改良型波形整形装置を開発して量子ナノ構造中の励起子のコヒーレント制御実験を行い、従来に比べて1桁以上の高い位相制御性（0.003の制御性）を有する励起子密度制御が可能になった。（1）

### 5. 自己評価

延長期間においては、1）半導体量子細線中の超高速キャリアダイナミクスの研究と、2）量子細線励起子のコヒーレント量子制御の研究を重点的に行った。1）については、三日月形状量子細線構造における、低密度や不均一性の問題等、実験上のいくつかの困難が予想されたが、新しい計測技術と超高速分光に適した素子構造を開発したことによって、三日月形状量子細線としては初めてフェムト秒時間域の超高速励起子ダイナミクスに関する実験結果が得られ、量子ナノ構造をコヒーレント量子制御デバイスに利用するための指針が得られた。2）については、改良型の光位相制御装置を開発することで量子位相制御の精度向上について進展が得られ、また、単一量子細線中の励起子のコヒーレント制御の初期実験に成功した。今後は、量子細線構造よりも光位相制御により適している量子ドット構造を用いた素子を開発し、超高速光 光制御素子、テラヘルツ電磁波発生素子、量子情報素子等の全く新しい超高速デバイスやナノデバイスを創出するところまでに仕上げるのが課題である。

6. 領域総括の見解：

2年間にあげた成果の中で、特にフェムト秒時間域の超高速励起子ダイナミクスと量子位相制御に関するものは量子計算素子技術の基礎として注目されるものである。量子細線で得られたさきがけ研究21の成果の延長として量子ドット構造での発展を含んだ提案が昨年度の戦略的基礎研究推進事業の研究領域「物理的手法を用いたナノデバイス等の創製」で採択されたのはその表れといえよう。

7. 主な論文等：

論文

主要6件

- 1) K. Komori, T. Sugaya, M. Watanabe, T. Hidaka, "Ultrafast coherent control of excitons using pulse shaping technique", Jpn. J. of Appl. Phys, vol. 39, no.4, April 2000
- 2) K. Komori, M. Foerst, T. Yasuhira, X. L. Wang, M. Ogura, M. Watanabe, T. Dekorsy and H. Kurtz, "Ultrafast Carrier Dynamics in Crescent Shaped AlGaAs/GaAs Quantum Wires", Proceedings of 25th int. conf. on phys. of semicond. 87 Springer Proceedings in Physics p.1277-1278 (Sept. 2000)
- 3) I. Morohashi, K. Komori, T. Hidaka, T. Sugaya, X. L. Wang, M. Ogura, T. Nakagawa and C. S. Son, "Terahertz Electromagnetic Wave Generation from Quantum Nanostructure", Jpn. J. Appl. Phys. vol. 40, Part 1, no. 4B, 3012-3017, April 2001
- 4) K. Komori, "Ultrafast phase locked spectroscopy of quantum nanostructures" Physica Status Solidi, 190, 3, pp. 855-859, April 2002.
- 5) K. Komori, G.R. Hayes, T. Okada, B. Deveaud, X. L. Wang, M. Ogura, and M. Watanabe, "Ultrafast coherent control of exciton in quantum nanostructures" Jpn. J. Appl. Phys. vol.41, no.4B, April 2002 in press.
- 6) I. Morohashi, K. Komori, T. Hidaka, X. L. Wang, M. Ogura, and M. Watanabe, "Excitation Wavelength dependence of Terahertz Electromagnetic Wave Generation from Quantum Wire", Jpn. J. Appl. Phys. April. vol.41, no.4B, April 2002 in press.

その他10件

- 7) K. Komori, T. Yasuhira, M. Watanabe, T. Sugaya, and T. Hidaka, "Phase control of coherent excitons in quantum wells using modified pulse shaping technique", the 7th inter. workshop on femtosecond technology, June 29, Tsukuba, Japan, FC-20, p.170 (June, 2000)
- 8) I. Morohashi, K. Komori, T. Hidaka, T. Sugaya, X. L. Wang, M. Ogura, and T. Nakagawa, "Terahertz Electromagnetic Wave Generation from Quantum Nanostructure" Extended Abstracts of the 2000 International Conference on SOLID STATE DEVICES AND MATERIALS #212 Sept. 2000.
- 9) K. Komori, M. Watanabe, T. Sugaya, Y. Fukunaga, and T. Hidaka, "Fine phase control of coherent exciton using pulse shaping technique", 2000 inter. quantum. electronic. conference, IQEC 2000, QtuF4, Nice, France (Sept. 2000)
- 10) K. Komori, M. Foerst, T. Yasuhira, X. L. Wang, M. Ogura, M. Watanabe, T. Dekorsy and H. Kurtz, "Ultrafast Carrier Dynamics in Crescent Shaped AlGaAs/GaAs Quantum Wires", 25th int.

conf. on phys. of semicond., D-197, p.218, Osaka, Japan, (Sept. 2000)

11) K. Komori, T. Yasuhira, X. L. Wang, M. Ogura, M. Watanabe, M. Foerst, T. Dekorsy, and H. Kurz, "Ultrafast Dynamics of Excitons in Crescent-Shaped GaAs Quantum Wires", Quantum Electronics and Laser Science Conference, (QELS2001), Technical Digest, QTh17, p. 205, Baltimore, MD, USA, (May, 2001)

12) Y. Yasuhira, K. Komori, X.L. Wang, M. Ogura, M. Watanabe, M. Foerst, T. Dekorsy, and H. Kurz, "Ultrafast Pump-probe measurement of crescent-shaped GaAs quantum-wires", The 8th International Workshop on Femtosecond Technology (FST 2001), technical digest TD-8 (June, 2001)

13) K. Komori, G.R. Hayes, B. Deveaud, M. Watanabe, " Ultrafast Phase-Locked Spectroscopy of Multi-Quantum-Well-Bragg Structure", The 8th International Workshop on Femtosecond Technology (FST 2001), TD-7, (June, 2001)

14) I. Morohashi, K. Komori, T. Sugaya, X. L. Wang, T. Hidaka, M. Ogura, and M. Watanabe, "Terahertz Electromagnetic Wave Generation from Quantum Nanostructure", First International Workshop on Quantum Nonplanar Nanostructures & Nanoelectronics '01, p. 113, July 2001

15) K. Komori, G.R. Hayes, B. Deveaud, X. L. Wang, M. Ogura, and M. Watanabe, "Ultrafast phase-locked spectroscopy of excitons in quantum nano-structures", 7th International Conference on Optics and Excitons in Confined Systems (OECS7), Tu-P25, Montpellier, France (Sept. 2001)

16) K. Komori, G.R. Hayes, T. Okada, B. Deveaud, X. L. Wang, M. Ogura, and M. Watanabe, "Ultrafast coherent control of excitons in quantum nano-structures", 2001 inter. conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM 2001), tech. digest. P-2-5, p.662, Tokyo, Japan, (Sept. 2001)

( 特許、受賞、招待講演等 )

口頭発表

招待講演 1 件

1) 波形整形パルス列による AlGaAs 量子井戸励起子のコヒーレント制御

渡辺正信、小森和弘 電子情報通信学会 第4回量子情報技術研究会 セッション：量子デバイス・量子光学、No.2 (招待講演) 東京工業大学 国際交流会館 11月29日 2000年

その他、 一般講演 10 件

特許出願等

特許登録 1 件、「電界効果テラヘルツ電磁波発生素子」特許第 3 2 4 3 5 1 0 号 小森和弘、2001 年 10 月 2 6 日登録、産総研

特許出願 1 件、特願 2001-298076 小森和弘、産総研