

「光の創成・操作と展開」研究領域 領域活動・評価報告書  
—平成21年度終了研究課題—

研究総括 伊藤 弘昌

1. 研究領域の概要

本研究領域は、光の本質の理解、光に関わる新しい現象・物性の解明、光の制御や光による物質の制御に関する新しい概念・手法の探求などに関して研究を進めるもので、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据え、個人の独創的な発想に基づいたこれまでにない研究を対象とするものである。

具体的には、赤外、可視、紫外のみならず広範な領域を対象とした、光の発生・伝搬・検知の手法・技術に関する研究、それらに対応する素子等の研究、光と物質の局所的相互作用に関する研究、光による原子・分子の制御手法の研究、光の波長・振動数、位相、エネルギー密度計測手法などの光の本質の理解に関する研究、などがあげられる。これらの研究によって、新たな原理の発見、方法論の創出が成され、革新的な技術展開の契機となることが期待される研究を対象とする。

2. 研究課題・研究者名

別紙一覧表参照

3. 選考方針

選考の基本的な考えは下記の通り。

- 1) 選考は「光の創成・操作と展開」領域に設けた選考委員15名と研究総括で行う。
- 2) 選考方法は、書類選考、面接選考及び総合選考とする。
- 3) 選考の基本的な考え方は、研究課題が戦略目標「光の究極的及び局所的制御とその応用」に合致した新しい概念・手法の探求などに関して研究を進めるもので、これらの研究によって、新たな原理の発見、方法論の創出が成され、革新的な技術展開の契機となることが期待される研究を対象とした。また、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据え、個人の独創的な発想に基づいたこれまでにない研究であることも重視した。

4. 選考の経緯

一応募課題につき領域アドバイザー4名が書類審査し、書類選考会議において面接選考の対象者を選考した。続いて、面接選考および総合選考により、採用候補者を選定した。

選 考	書類選考	面接選考	採用者
対象者数	39 名	12 名	6 名

5. 研究実施期間

平成 18 年 10 月～平成 22 年 3 月

6. 領域の活動状況

(平成21年度終了研究課題研究者(第2期生)の活動を中心に記載)

1) 領域会議: 6 回

<主な内容>

平成 19 年春 第 2 期生さきがけ研究内容紹介・進捗発表

平成 20 年秋 第 2 期生「中間まとめと今後の展開」討議  
平成 21 年秋 第 2 期生「研究終了評価と今後の展開」討議

2) 光関連研究施設見学会: 6 回・・・領域会議に併設して、会議会場近隣の研究施設を視察  
平成 19 年 春 九州大学(伊都キャンパス工学部)

秋 北陸先端科学技術大学院大学

平成 20 年 春 京都大学(桂キャンパス)

秋 ① 東京大学宇宙線研究所神岡宇宙素粒子研究施設  
(スーパーカミオカンデ他)

② 東北大学大学院理学研究科附属ニュートリノ科学研究センター  
(カムランド)

平成 21 年 春 北海道大学(電子科学研究所、工学部)

秋 ① 浜松ホトニクス中央研究所

② 光産業創成大学院大学

3) 領域交流・・・光関連研究領域双方の研究総括の申し入れで研究者の交流を行っている。

① CREST「光の究極的及び局所的制御とその応用」研究領域との交流

CREST 研究発表会への有志参加: 2 回(計 12 名)

② さきがけ「物質と光作用」研究領域との領域交流

当領域から「物質と光作用」領域会議への有志参加 : 5 回(計 10 名)

「物質と光作用」研究領域から当領域会議への有志参加 : 4 回(計 10 名)

4) 研究総括(または技術参事/事務参事)の研究実施場所訪問: 76 回

研究開始時に研究現場を訪問し、研究環境、設備等の確認及び研究費、研究の進め方のヒアリングを行った。併せて、組織責任者への協力依頼を行った。特に、外国研究機関にて研究を進めている研究者に対しても現地を訪問し、きめ細かなフォローを行った。また、研究期間内で異動した研究者をその都度訪問し、研究環境を確認した上で、新組織責任者への協力依頼、研究継続に必要な支援の決定を行った。訪問については、研究総括訪問に技術参事が同行するとともに、技術参事が別途研究者訪問を行い研究者の課題早期発見並びに相談を行った。また、研究設備の整備状況把握、相談に事務参事が訪問を行った。

5) 国際シンポジウム「さきがけフォーラム」開催(研究成果報告会): 2010 年 3 月

第 2 期生の研究終了にともなう成果報告会を、“国際シンポジウム「さきがけフォーラム」”として開催した。文化功労者の霜田光一博士ならびに第 2 期生と親交が深い新進気鋭の海外研究者 5 名を招き、また、第 1 期生、第 3 期生もポスター講演を行い、領域全体で光科学の本質に基づき、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据える討論を行った。

2010 年度春季応用物理学関係連合講演会のシンポジウムの 1 つとして実施したが、成果報告という枠組みにとらわれず、光科学分野で活躍する若手研究者の研究発表を通して、光科学の最前線と新たな展開についての議論を深められる場をつくることを目指した。幅広い層から 380 名の参加者に恵まれ、多くのセッションで立ち見が出る活気溢れるフォーラムとなった。霜田博士から若手研究者への励ましと共に、参加者の方々から光科学の将来についての貴重な意見と展望を頂く事ができたが、これらの意見、提言、そして、この経験は若きさきがけ研究者にとって貴重な財産になるものと思われる。

6) 研究内容・成果への高い社会的評価

研究内容・成果に対する社会の期待感が高く、マスコミで数多く取上げられた。全国紙に幾度と無く取上げられると共に、世界紳士録である *Marquis Who's Who* に掲載される研究者も現れた。

青木隆朗研究者:毎日新聞「理系白書 '90“次代を築く若手研究者たち”」に選定される。  
櫛引俊宏研究者:「*Marquis Who's Who in the World*」に選ばれる。  
田中拓男研究者:卓越した研究成果と判りやすい実世界での応用が評価され、全国紙に数多く取上げられる。「“透明人間”姿をみせた」(日本経済新聞)等9回。

## 7. 評価の手続き

まず、研究期間中間時点の領域会議(平成20年秋)で「中間まとめと今後の展望」を特別テーマとして実施し、研究総括、アドバイザーの意見を頂いた。次に、研究期間最終年度に、領域会議(平成21年秋)「研究終了評価と今後の展開」討議、ならびに、研究者の課題別評価書(平成22年2月作成)を基に領域アドバイザーの意見を参考にして研究総括が評価を行った。

また、研究終了時に科学技術振興機構が開催する、一般公開である研究終了報告会の参加者の意見を参考とした。特に、研究終了報告会には、2008年度文化功労者で、レーザーの黎明期からご活躍され日本の光科学を牽引してこられた霜田光一博士を始めとし、新進気鋭の海外研究者5名にも参加頂き、活発な意見のもと、その研究成果評価と共に研究の将来性に有用な意見を頂いた。

### (評価の流れ)

平成20年11月	H20秋領域会議にて、特に第2期生に「中間まとめと今後の展開」をテーマ設定し、総括・アドバイザーによる進捗評価とアドバイスを実施。
平成21年10月	H21秋領域会議にて、第2期生に「研究終了評価と今後の展開」をテーマ設定し、総括・アドバイザーによる進捗評価とアドバイスを実施。
平成22年 2月	研究報告書及び研究課題別評価書提出(研究者作成)
平成22年 3月	研究報告会開催(研究総括、アドバイザー、海外招聘研究者、一般公開報告会参加者による評価の実施)
平成22年 3月	研究期間終了
平成22年 3月	領域活動・評価報告書及び研究課題別評価書提出
平成22年 4月	研究報告書提出

## 8. 評価項目

- (1) 研究計画書の目標に対する研究課題の達成度
- (2) 得られた研究成果の科学技術への貢献
- (3) 計画外成果の科学技術への貢献
- (4) 外部発表(論文、口頭発表、等)、発明出願など研究成果の発信状況
- (5) 表彰・招待講演など外部からの評価状況

## 9. 研究結果

当領域では、光の本質の探究から光の応用に至る幅広い研究課題が採択されている。本質の探究には、原子・光子の量子操作、分子構造のイメージングなどがあり、応用は、光の制御から始まり光による物質の制御、新奇な物質の創成に至っている。これらの研究には、光科学に関する様々な分野の協力が必要であるが、当領域の幅広い専門分野の研究者、並びにアドバイザーの交流により多くの研究課題発展が図られた。その結果、研究成果に、将来もたらされると期待される新パラダイムを見据えた、新たな原理の発見、方法論の創出、並びに、革新的な技術展開の契機が示された。研究者別にそれらの研究目的と結果、及び評価を記述する。

### ○ 青木 隆朗 研究者

共振器に閉じ込められた光と原子が相互作用する系であるキャビティQED系において、新しい共振器としてトロイド型微小共振器を用いて系を構築し、原子と光の量子状態を操作す

る技術を確認することを目標に研究を行った。

トロイド共振器キャビティQED系を確認し、過結合条件下キャビティQED系の実現と光子タールスタイル効果の観測という成果を得た。さらに超低損失テーパードファイバーの作製に成功したことと合わせ、外部導波路まで含めた全系で低損失なキャビティQED系による忠実度の高い量子状態の取り出しと複数のキャビティQED系の結合へ道を開いたことは大きな成果である。

今後、本研究によって実現した過結合条件下キャビティQED系と超低損失テーパードファイバーをもとに、これまで小規模な原理実証実験に留まっていた光学的量子情報処理の研究を、有意義な規模にまで拡張することを期待する。

#### ○ 蘆原 聡 研究者

広帯域なスペクトルと短い時間幅をもつ中赤外パルスを発生する技術を開発し、超高速分光およびコヒーレント制御へ適用することを試みた。特に、凝縮相の分子ダイナミクスを追跡し、水の分子振動エネルギーの移行ダイナミクスの観測することを目標に研究を行った。

中赤外超短パルスによる分子および格子のダイナミクス制御というフィールドに先駆的に取り組み、オリジナルなアイデアで、波長 3 ミクロン帯での 4 サイクルパルスの発生、波長 5 ミクロン帯での 3 サイクルパルスの発生、など従来法を凌ぐバンド幅の中赤外パルスの発生を実現したことは特筆すべき成果である。これら装置により、水分子の水素結合が、一分子から水素結合ネットワークへとエネルギーを放出するダイナミクスに与える影響を明らかにした点が評価される。

今後、開発した高度に制御された中赤外光を、電子的基底状態でのコヒーレント制御ツールへと展開し、分子の解離や異性化、分子性結晶の相転移などを誘導する新手法を確認する等、中赤外超短パルスによる分子および格子のダイナミクス制御というフィールドを切り拓くことを期待する。

#### ○ 木下 俊哉 研究者

情報の媒体として冷却原子を利用する新技術の開発が期待され、本研究では光格子中の冷却原子の流れや輸送に関する物理を探求することに取り組んだ。具体的には、欠陥などを含まない極めてクリーンな物質波の導波路としての1次元ボース気体の、非平衡ダイナミクスの物性現象観測を目標に研究を行った。

接触型相互作用を行う純粋な1次元ボース気体において、この系が可積分系とみなしてよいことを見出し、一方、トンネリングが起こる場合は、トンネリングにより平衡状態への緩和が誘発されることを見出した。光格子に関する研究は多くの可能性をもっているが、本研究のように系の可積分性に着目し、非可積分項の印加と操作によって非平衡過程の解明を目指した研究例はなく、熱平衡から遠く離れた状態という物理の未開拓分野に、新たな実験的アプローチがあることを示せたのは意義あることである。

現在立ち上げている実験系にて、BEC 後に原子集団を光格子中に誘導し、そこで発現する物性現象の研究成果に期待する。

#### ○ 櫛引 俊宏 研究者

再生医療において、幹細胞などが有する機能を非侵襲的に制御し安全に“指示”を与える方法として光技術を応用する事を目標に研究を行った。

本研究では、赤外、可視光、紫外のみならず広範な領域の光を用いた幹細胞への“指示”とそのメカニズムの解明を行い、再生医療実現化へブレークスルーとなる光技術を創成し提案している。研究成果として、レーザーを用いた細胞の分化制御(促進)、生理活性物質の発現制御という新しい細胞機能制御プロセスを提案することができた。中でも、軟骨細胞への分化促進効果確認、骨髄間葉系幹細胞にレーザー照射した後の骨芽細胞への分化確認など、レーザーを用いた幹細胞分化の促進効果の確認と光条件の抽出は特筆すべき成果

である。

細胞生理機能をレーザー照射により制御することができれば、疾病の新しい治療方法としてだけでなく、細胞機能の役割解明にレーザーが有用なツールとなると考えられる。光技術を安全に生体に適応できることを目標に、細胞内に存在する光受容体に適応した光技術応用開発を期待する。

○ 越野 和樹 研究者

光子の光学応答、特に非線形応答を定量的に解析するための「量子非線形光学理論」での厳密解において、光子場の連続多モード性、ならびに、光・物質双方の量子化、を具備した新解析手法開拓、ならびに、それに基づく光子操作諸技術の理論的提案を目標に研究を行った。

数値計算量を劇的に減らして解析可能な問題の対象を拡げた事に加え、長年に亘り蓄積されてきた非線形光学の知見を量子光学領域へスムーズに転用できる実用的価値の高い手法を提案したことは意義あることである。更に、光子操作技術の提案として、「共振器QED系を用いた単一光子フィルタ」及び、「二光子量子ゲートとその制御方法」などのアイデアを世界にさきがけて発信し、その有用性の検証も行っている。

本研究で開発、提案された手法は実用化に向けて有利な点も多く、国内外の実験チームとの共同研究などを通じて、新奇量子デバイスの開発に結びつけて行くことを期待する。

○ 田中 拓男 研究者

人工的に導入したナノサイズの金属構造によって、物質の光学的な性質を操作する技術と、それを用いた全く新しい人工光学材料である“プラズモニック・メタマテリアル”の創製を目指した研究を行った。

直面した技術的課題はメタマテリアルを構成する金属構造加工の難しさであり、3次元的なナノサイズの新しい金属ナノ加工技術開発に成功した。この3次元ナノ金属加工技術はその有効性が確認され、世界的に見てもオンリーワンの技術として評価されている。得られた金属ナノ構造プラズモニック・メタマテリアルが、自然界には存在しない全く新しい光機能性材料として動作し、これまでの光学理論では説明できない新たな光学現象を発現させることに成功している。

今後、可視光域で動作するメタマテリアルを実現するためには、更なる微細金属加工技術が必要であり化学的な合成手段などを取り入れメタマテリアルによってのみ実現できる新奇な光学現象・効果の探究も継続して続けて行くことを期待する。

10. 評価者

研究総括 伊藤 弘昌 東北大学大学院工学研究科 客員教授／東北大学名誉教授  
(独)科学技術振興機構 イノベーションプラザ館長

領域アドバイザー氏名(五十音順)

伊澤 達夫	東京工業大学 理事・副学長
占部 伸二	大阪大学大学院基礎工学研究科 教授
枝松 圭一	東北大学電気通信研究所 教授
江馬 一弘	上智大学理工学部物理学科 教授
桜井 照夫	産業技術総合研究所 光技術研究部門 招聘研究員
笹木 敬司	北海道大学電子科学研究所 教授
栖原 敏明	大阪大学大学院工学研究科 教授
張 紀久夫	豊田理化学研究所 フェロー／大阪大学名誉教授
筒井 哲夫	九州大学 名誉教授
富永 淳二	産業技術総合研究所 近接場光応用工学研究センター

	センター長
納富 雅也	NTT 物性科学基礎研究所 グループリーダー(主幹研究員)
野田 進	京都大学大学院工学研究科 教授
緑川 克美	理化学研究所基幹研究所 緑川レーザー物理工学研究室 主任研究員
横山 弘之	東北大学未来科学技術共同研究センター 教授
覧具 博義	東京農工大学 名誉教授

(参考)

(1)外部発表件数

	国内	国際	計
論文	2	41	43
口頭	39	25	64
招待講演	63	38	101
著書・解説	30	1	31
プレス発表・メディア発表	22	4	26
合計	156	109	265

※平成22年3月現在

(2)特許出願件数

国内	国際	計
5	1	6

(3)受賞等

- 青木 隆朗 研究者  
2008年4月 平成20年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞  
表彰業績名:「量子光学分野における量子情報処理技術の研究」  
表彰主催団体:文部科学省
- 蘆原 聡 研究者  
2009年4月 平成21年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞  
表彰業績名:「中赤外超短パルスを利用した分子振動ダイナミクスの研究」  
表彰主催団体:文部科学省
- 櫛引 俊宏 研究者  
2008年4月 平成20年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞  
表彰業績名:「ドラッグデリバリーシステムと光技術による生体幹細胞の分化制御に関する研究」  
表彰主催団体:文部科学省  
2007年5月 第31回レーザー学会奨励賞  
表彰業績名:「レーザーによる生体幹細胞の分化制御とそのメカニズム」  
表彰主催団体:(社)レーザー学会  
2006年11月 平成18年度日本レーザー医学会総会賞  
表彰業績名:「レーザーによる生体幹細胞の分化制御とそのメカニズム」  
表彰主催団体:日本レーザー医学会
- 越野 和樹 研究者  
2007年9月 日本物理学会第1回若手奨励賞

表彰業績名;「量子ゼノ効果と測定問題の理論的考察」  
表彰主催団体;(社)日本物理学会

○ 田中 拓男 研究者

2009年10月 ISOM09 Best Academic Paper Award

受賞者;Takuo Tanaka, Takanobu. Higuchi, Tetsuro. Koga, and Ayumi. Mitsumori

表彰業績名; “Plasmonic three-dimensional optical disk with ten recording layers”

表彰主催団体;INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON OPTICAL MEMORY 2009  
“ ISOM (2009).”

2008年10月 第14回 東京テクノ・フォーラム21 ゴールド・メダル賞

表彰業績名;「メタマテリアルを駆使したプラスチックレンズの先端的基盤技術の開発」

表彰主催団体; 東京テクノフォーラム21

2008年3月 第11回 2007年度 丸文研究奨励賞.

表彰業績名;「プラズモニック・メタマテリアルの創製と新奇光デバイスへの展開,」

表彰主催団体;財団法人 丸文研究交流財団

2007年3月 平成18年度 第48回光学論文賞

表彰業績名; “Unattenuated light transmission through the interface between two materials with different indices of refraction using magnetic metamaterials, Physical Review B 73, 12, 125423 (2006),”

表彰主催団体;応用物理学会分科会 日本光学会

(4)招待講演

国際 38件

国内 63件

別紙

「光の創成・操作と展開」領域 研究課題名および研究者氏名

研究者氏名 (参加形態)	研究課題名 (研究実施場所)	現職 (応募時所属)	研究費 (百万円)
青木 隆朗 (兼任)	キャビティ QED による原子と光子の量子操作 (京都大学大学院理学研究科物理学第一教室 GCOE 特別講座)	京都大学大学院理学研究科 特定准教授 (東京大学大学院工学系研究科助手)	68
蘆原 聡 (兼任)	赤外サイクルパルス光波による分子振動ダイナミクスの追跡 (東京農工大学大学院共生科学技術研究院)	東京農工大学大学院共生科学技術研究院 特定准教授 (東京大学生産技術研究所 助手)	57
木下 俊哉 (兼任)	光格子によるアトムトロニクスのためのデバイス開発 (京都大学大学院人間・環境学研究科)	京都大学大学院人間・環境学研究科 准教授 (ペンシルベニア州立大学(米国) Post-doctoral fellow)	52
櫛引 俊宏 (兼任)	光技術による生体幹細胞の分化制御-再生医療実現化に向けた光技術の創成- (大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻)	大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻 特任講師 (同上 特任助手)	66
越野 和樹 (兼任)	光子数確定パルスの空間制御理論 (東京医科歯科大学教養部)	東京医科歯科大学教養部 准教授 (和歌山大学システム工学部 助手)	18
田中 拓男 (兼任)	プラズモニック・メタマテリアルの創製と新奇光デバイスへの展開 (独)理化学研究所基幹研究所田中メタマテリアル研究室)	(独)理化学研究所基幹研究所准主任研究員 (独)理化学研究所中央研究所前任研究員)	54

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

「キャビティ QED による原子と光子の量子操作」

### 2. 氏名

青木 隆朗

### 3. 研究のねらい

共振器に閉じ込められた光と原子が相互作用する系であるキャビティQED系の強結合領域では、原子と光子のコヒーレントな相互作用があらゆる散逸に対して支配的となる。このような系では、単一原子が単一光子レベルの入力光に対して大きな非線形性と非古典統計性をもたらす一方で、単一光子レベルの光が単一原子の量子状態に大きな影響を及ぼす。

これまで、このようなキャビティQED系の研究にはファブリーペロー共振器が用いられてきたが、高Q値化・微小化の技術的限界、ファイバー光学系との整合性の低さ、スケーラビリティの低さといった欠点があった。

そこで本研究では、これらの欠点を克服する新しい共振器としてトロイド型微小共振器を用いてキャビティQED系を構築し、原子と光の量子状態を操作する技術を確立することを目指す。

### 4. 研究成果

[A] カリフォルニア工科大学における成果

本研究は、2008年11月までの期間、カリフォルニア工科大学キンブル研究室において実施した。また、研究に用いたトロイド共振器は同大学バハラ研究室より提供いただいた。

#### (1) 単一セシウム原子とトロイド型微小共振器の強結合の観測

図1に示すように、真空槽内にトロイド共振器とテーパードファイバーを配置し、トロイド共振器の上方10mmの位置に磁気光学トラップによりセシウム原子集団を捕獲・冷却する。さらに偏光勾配冷却により10 $\mu$ Kまで冷却した後、原子をトラップから解放して自由落下させる。このとき、一部の原子はトロイド共振器のモードのエヴァネッセント成分中を通過し、共振器モードとの結合が発現する。

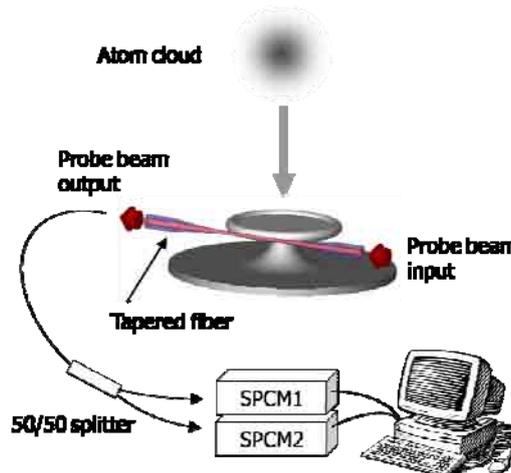


図1: 単一セシウム原子とトロイド型微小共振器の強結合測定系

この結合を検出するため、テーパードファイバーとトロイド共振器の結合条件を臨界条件に保持し、共振器に共鳴したプローブ光の出力を単一光子検出器で測定した。その結果を図2(a)(b)に示す。原子を落としたときのみ観測された、検出光子数の増加が原子と共振器の結合に起因する信号である。さらにプローブ光と共振器の離調 $\Delta_{AC}$ を変えて測定し、原子と共振器の結合信号を

$\Delta_{AC}$  の関数としてプロットしたのが図2(c)である。理論計算との比較から、原子と共振器の結合強度として 50MHz が得られ、強結合系の実現が示された。

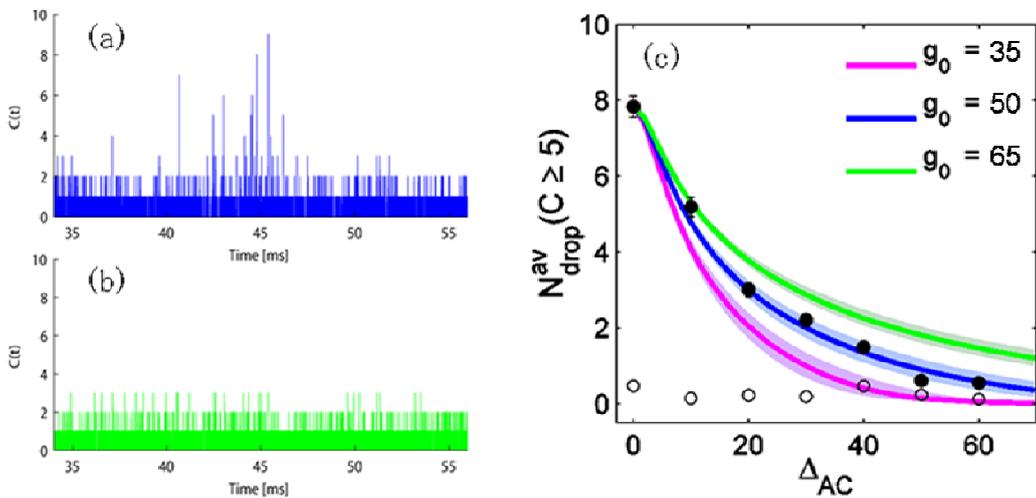


図2: 測定結果 (a)原子がある場合と(b)原子がない場合の単一光子検出器の出力  
(c)原子と共振器の結合信号の離調依存性

### (2) 臨界結合条件下キャビティQED系における単一原子の共鳴蛍光の観測

(1)と同じ実験系において、テーパー・ファイバーと臨界結合条件下にあるトロイド共振器と単一原子との結合が1次元原子領域にある場合、テーパー・ファイバーの透過光はPurcell効果によって増強された単一原子の共鳴蛍光と考えることができる。そこで、この系においてコヒーレント光を入力したときの透過光の光子統計を測定した結果、2次の相関関数の振る舞いとして  $g^{(2)}(\tau) > g^{(2)}(0)$  (光アンチバンチング) および  $g^{(2)}(0) < 1$  (サブポアソン統計) が観測された。

### (3) 過結合条件下キャビティQED系の実現と光子ターンスタイル効果の観測

上記のトロイド共振器キャビティQED系で研究者は、従来のファブリーペロー共振器キャビティQED系と比較しても高い内部結合効率を達成したが、さらにトロイド共振器の持つスケラビリティやファイバー光学系への整合性の高さを活かすためには、外部導波路としてのテーパー・ファイバーへの外部結合効率を高める必要がある。これは、テーパー・ファイバーを過結合条件下に保持することで可能となる。そこで、このような系の実現のために、上記の実験系とは独立にトロイド共振器キャビティQED系を立ち上げた。この系では(i)原子の冷却・捕獲とキャビティQED系に個別の真空槽を割り当てた2槽式真空槽を差動排気によって接続することによる、捕獲原子数の増加、キャビティQED系の真空度の向上、キャビティ性能の劣化を引き起こす不純物原子のキャビティ表面への吸着の抑制、(ii)光ベルトコンベヤーに基づく2槽間の原子の安定な輸送、(iii)超高真空対応3軸ピエゾステージの導入によるテーパー・ファイバーの高安定・高精度駆動を実現した。この系を用いて、過結合条件下キャビティQED系を初めて実現した。

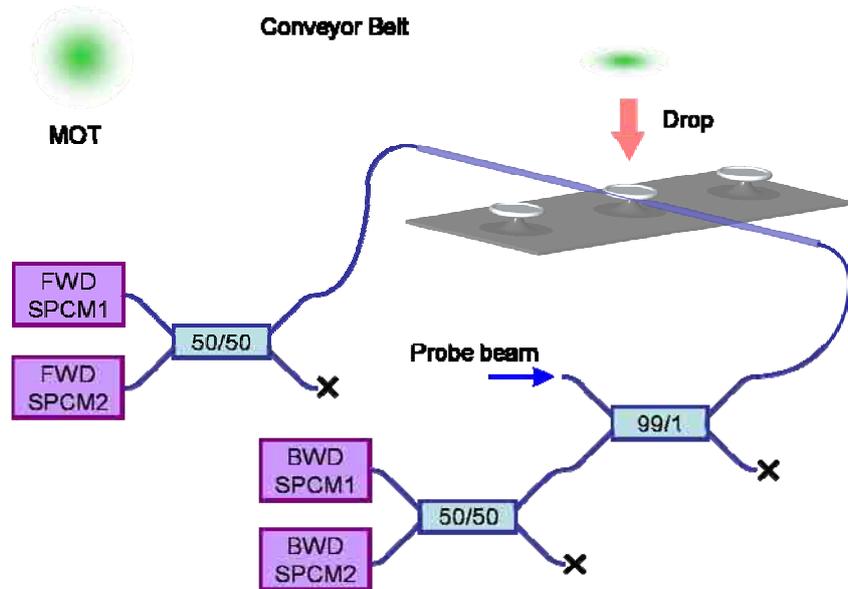


図3: 過結合条件下キャビティQED系の実験セットアップ

図3に示すように、光ベルトコンベヤーによって原子槽からキャビティQED槽へと冷却原子を輸送し、テーパー・ファイバーと過結合条件下にあるトロイド共振器へと落下させた。コヒーレント光を入力し、原子がトロイド共振器のモードを通過する間の透過光と反射光の両方について出力光子数および光子統計を測定した。

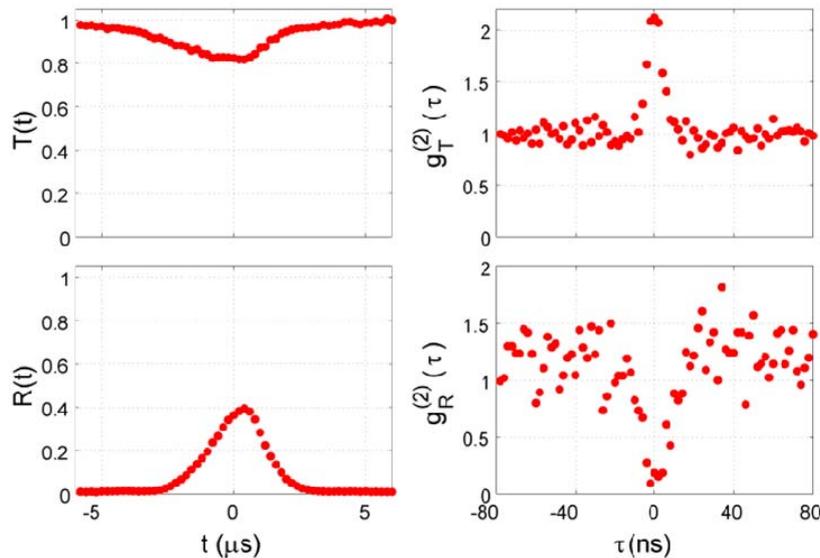


図4: 測定結果

図4に示すように、原子と共振器の結合の結果、透過光強度の減少と反射光強度の増加、さらに透過光における光バンチング ( $g^{(2)}(\tau) < g^{(2)}(0)$ ) とスーパーポアソン統計性 ( $g^{(2)}(0) > 1$ )、反射光における光アンチバンチング ( $g^{(2)}(\tau) > g^{(2)}(0)$ ) とサブポアソン統計性 ( $g^{(2)}(0) < 1$ ) が得られた。これは、大きなPurcell効果によって単一原子が共振器モードに対して選択的に光子を放射し、励起光とコヒーレントに量子干渉する結果、入射した光子のうち最初の光子は反射され、残りの光子は透過する(光子ターンスタイル効果)ことを示している。

上記で実現した過結合領域の大きな特徴は、共振器内部損失が導波路への外部結合と比較して無視できるため、共振器内部の光の量子状態を、忠実度を損なうことなく外部導波路に取り

出すことができることにある。これは、光を用いた量子情報処理において必須の性質であり、またトロイド共振器のスケラビリティと組み合わせることで、これまで小規模な原理実証実験に留まっていた光学的量子情報処理の研究を、有意義な規模にまで拡張できることが期待される。

#### [B] 京都大学における成果

本研究は、2008年12月より研究終了までの期間は京都大学にて実施した。

##### (1) 超低損失テーパー・ファイバーの作製

上記で実現した過結合条件下キャビティQED系の低損失性を活かすには、共振器と結合している外部導波路としてのテーパー・ファイバーの損失を抑制することが必要である。そこで、テーパー・ファイバーの本質的な損失機構である放射モードへの結合について検討し、それを抑制することで透過率が99%を超える超低損失なテーパー・ファイバーの作製に成功した。これは、真空クラッド・サブ波長ファイバーの透過率としては世界最高のものである。

##### (2) トロイド共振器の作製

カリフォルニア工科大学において実施した研究に用いたトロイド共振器は、同大学バハラ研究室に提供いただいたが、京都大学においては研究者自ら作製した。その結果、セシウム原子のD2線に対応する852nmにおいて約 $3 \times 10^8$ という、比較的高いQ値を実現した。これは、世界の複数のグループで作られているトロイド共振器の中でも最も高い値の一つである。

#### 5. 自己評価

トロイド共振器キャビティQED系を確立し、さらに古典的な光であるコヒーレント光の入力に対して光子ターンスタイル効果を観測したことで、光子の量子操作については当初の目的を達成したといえる。しかし、研究期間中に京都大学への異動があったこともあり、研究計画にあった共振器モード中への単一原子トラップの実現には至らなかった。本研究で実施した実験では、原子はトロイド共振器のモード中を自由落下しているため、原子のモード内滞在時間が短く、原子の量子操作については不完全なものとなった。

一方、当初の研究計画にはなかったが、キャビティQED系における外部結合効率の重要性に着目し、世界に先駆けて過結合条件下キャビティQED系を実現したこと、さらに超低損失テーパー・ファイバーの作製に成功したことと合わせ、外部導波路まで含めた全系で低損失なキャビティQED系による忠実度の高い量子状態の取り出しと複数のキャビティQED系の結合へ道を開いたことは大きな成果である。

#### 6. 研究総括の見解

共振器に閉じ込められた光と原子が相互作用する系であるキャビティQED系において、新しい共振器としてトロイド型微小共振器を用いて系を構築し、原子と光の量子状態を操作する技術を確立することを目標に研究を行った。

下記3点の観測成果を得、トロイド共振器キャビティQED系を確立したと言える。これらの成果は、Nature, Scienceの論文に纏められるとともに、高い評価を受け「文部科学大臣表彰 若手科学者賞」を受賞している。

- 1) 単一セシウム原子とトロイド型微小共振器の強結合において、従来のファブリーペロー共振器キャビティQED系と比較しても高い内部結合効率を達成。
- 2) 臨界結合条件下キャビティQED系における単一原子の共鳴蛍光の観測
- 3) 過結合条件下キャビティQED系を世界で始めて実現し、光子ターンスタイル効果の観測に成功。

さらに下記2点の研究成果により、外部導波路まで含めた全系で低損失なキャビティQED系による忠実度の高い量子状態の取り出しと、複数のキャビティQED系の結合へ道を開いたことは大きな成果である。

- 1) テーパー・ファイバーの放射モード結合損失機構を抑制することで透過率が99%を超える超低損失なテーパー・ファイバーの作製に成功し、真空クラッド・サブ波長ファイバーの透過率として

は世界最高性能を実現。

2)セシウム原子のD2線に対応する852nmにおいて、世界で作られているトロイド共振器の中で最も高いQ値(約 $3 \times 10^8$ )を実現。

今後、本研究によって実現した過結合条件下キャビティQED系と超低損失テーパードファイバーをもとに、これまで小規模な原理実証実験に留まっていた光学的量子情報処理の研究を、有意義な規模にまで拡張することを期待する。

## 7. 主な論文等

(A)さきがけ個人研究者主導で得られた成果で主なもの

(1)論文(原著論文)発表

・Takao Aoki, A. S. Parkins, D. J. Alton, C. A. Regal, Barak Dayan, E. Ostby, K. J. Vahala, and H. J. Kimble, "Efficient Routing of Single Photons by One Atom and a Microtoroidal Cavity", Phys. Rev. Lett. 102, 083601 (2009).

・Takao Aoki, Barak Dayan, E. Wilcut, W.P. Bowen, A.S. Parkins, T.J. Kippenberg, K.J. Vahala, and H.J. Kimble, "Observation of strong coupling between one atom and a monolithic microresonator", Nature 443, 671 (2006).

(2)著書

・青木隆朗「基礎からの量子光学」第2部第6章(分担執筆)、オプトロニクス社 2009年11月30日発行

(3)受賞

・2008年4月 平成20年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞  
表彰業績名:「量子光学分野における量子情報処理技術の研究」  
表彰主催団体名:文部科学省

(B)本研究課題に関連した成果で主なもの

・Barak Dayan, A.S. Parkins, Takao Aoki, E.P. Ostby, K.J. Vahala, and H.J. Kimble, "A Photon Turnstile Dynamically Regulated by One Atom", Science 319, 1062 (2008).

研究課題別評価書

1. 研究課題名

「赤外サイクルパルス光波による分子振動ダイナミクスの追跡」

2. 氏名

芦原 聡

3. 研究のねらい

波長 3-30 ミクロン(周波数 10 - 100 THz)の電磁波を中赤外光とよぶ。多くの分子振動モードがこの周波数領域に存在するため、短い時間幅をもつ中赤外パルスを使うと、化学反応が起こる過程で、分子の構造や振動状態が変化する様子を時間分解観察できる。また、中赤外光の波形整形により、特定の分子振動モードを選択的に励起し、電子的基底状態で分子反応を誘導することが可能となる。これら非線形分光において、時間分解能や波形整形の自由度を向上させるためには、広帯域なスペクトルをもつコヒーレント中赤外光の発生と、その分散制御が必要である。

本研究では、非線形光学を駆使して、広帯域なスペクトルと短い時間幅をもつ中赤外パルスを発生する技術を開発することを第一の狙いとする。特に、超高速分光およびコヒーレント制御への適用を念頭に置き、マイクロジュール以上のエネルギーをもつパルス発生に特化する。また、中赤外超短パルスを利用して、凝縮相の分子ダイナミクスの追跡を第二の狙いとする。特に、生命現象と関わりが強い水に注目し、分子振動エネルギーの移行ダイナミクスの観測を行う。水は分子内・分子間でのエネルギー移行を非常に高速に起こす物質であり、そのダイナミクス解明には、時間幅の短い中赤外パルスが必要となる。

4. 研究成果

4-1. 波長 3 ミクロン帯での 4 サイクルパルスの発生

光パラメトリック増幅と差周波発生を用いる従来法によって、マイクロジュール以上のエネルギーをもつ中赤外パルスが得られる。しかし、そのスペクトル幅は  $200\text{ cm}^{-1}$ 、時間幅は 100 fs に限られる。われわれは、周期分極反転ニオブ酸リチウムを非線形光学媒質とする光パラメトリック増幅器を開発し、中赤外波長域 3-4 ミクロンにおいて広帯域なスペクトルをもつ中赤外パルスの発生を行った。この波長域には、分子振動モードの中で最も振動数の高い、OH基やNH基などの伸縮振動モードの共鳴線が存在する。

光パラメトリック増幅では、通常、位相整合条件によって発生するシグナルおよびアイドラ光の波長が制限される。これに対し、酸化マグネシウム添加ニオブ酸リチウム結晶 ( $\text{MgO: LiNbO}_3$ ) においては、ポンプ光波長 800 nm の場合、

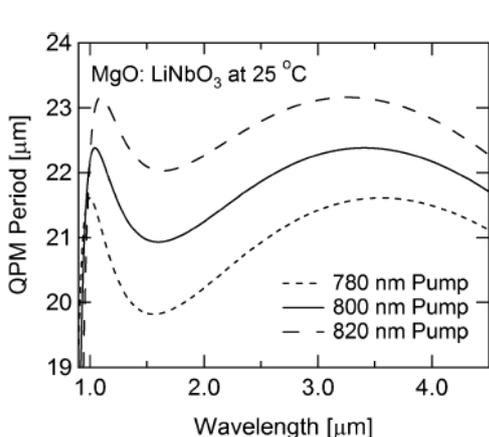


図1 MgO: LiNbO<sub>3</sub>を利用した光パラメトリック増幅における擬位相整合条件

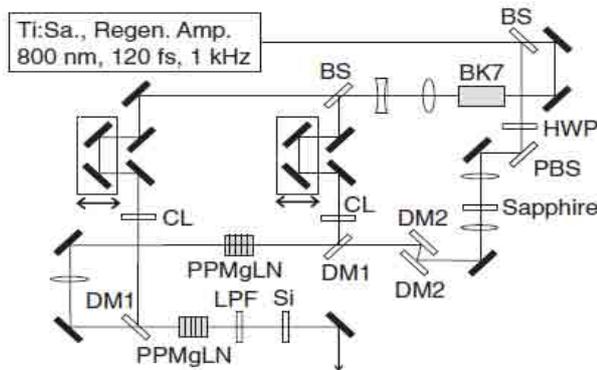


図2 周期分極反転MgO:LiNbO<sub>3</sub>を利用した光パラメトリック増幅器

波長 3-4 ミクロンのアイドラ光を発生するための擬似位相整合条件を満たす分極反転周期が、ほぼ一定となる(図1)。つまり、単一の周期をもつ分極反転素子を利用して、広帯域な擬似位相整合条件を達成できるようになる。

研究提案者は図2に示す光パラメトリック増幅器を開発した。励起光源はチタン・サファイアレーザーの再生増幅パルス(時間幅 120 fs)である。サファイア板によって白色光を発生し、それに続けて周期分極反転MgO: LiNbO<sub>3</sub>素子(分極反転周期 22.2 ミクロン、素子厚 1 mm、相互作用長 2 mm)を利用して二段階の光パラメトリック増幅を行った。

発生したスペクトルを図 3(a)に示す。波長 3-4 ミクロン帯でスペクトル半値全幅 600 nm (振動数幅 > 500 cm<sup>-1</sup>)をもつコヒーレント中赤外パルスの発生に成功した。次に、厚み 1 mm のシリコン窓を透過させることで二次分散補償を行った。このときのSHG-FROGによる波形評価の結果を図 3(a) (b)に示す。このように、時間幅 45 fs のパルス発生(パルス中の電場振動が 4 サイクル)を実現した [Jpn. J. Appl. Phys. Vol.48, No. 4, 042501 (2009)]。

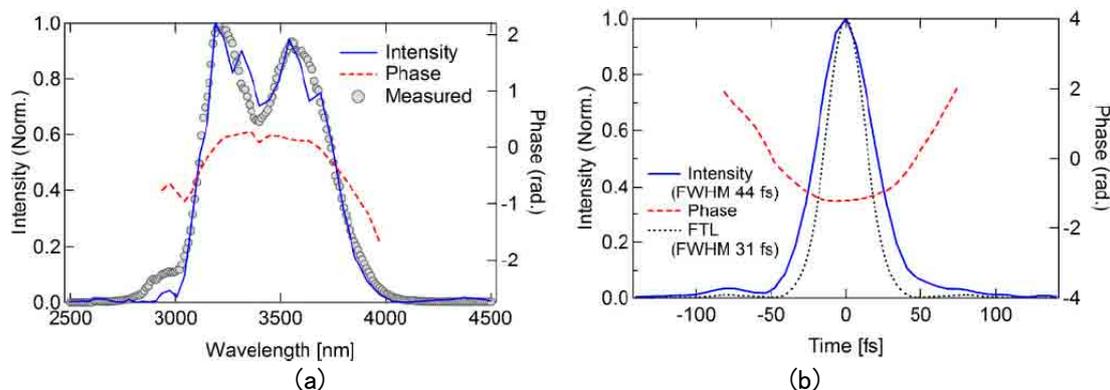


図3 (a) 測定された広帯域中赤外パルスのスペクトル(マーカー)および SHG-FROG 法によって再構築されたスペクトル強度と位相 (b) 再構築された時間領域での振幅と位相

#### 4-2. 波長 5 ミクロン帯での 3 サイクルパルスの発生

先述の広帯域擬似位相整合法を利用して発生できる中赤外光は、波長 4.5 ミクロン以下に制限される。5 ミクロン以上の長波長域で、広帯域中赤外パルスが発生する手法として、われわれは半導体結晶中の自己位相変調の利用を考案し、その有効性を実証した(Ashihara et al., Opt. Lett. 34, 3839, 2010)。自己位相変調とは、3次の非線形光学効果により、光パルスのスペクトルが広帯域化する現象であり、可視~近赤外で広く利用されている。本研究では、波長域 1-20 ミクロンでの十分な透明性と、極めて大きな非線形性(非線形屈折率  $n_2 = 10^{-3}$  cm<sup>2</sup>/W)を併せ持つGaAs結晶に着目した。

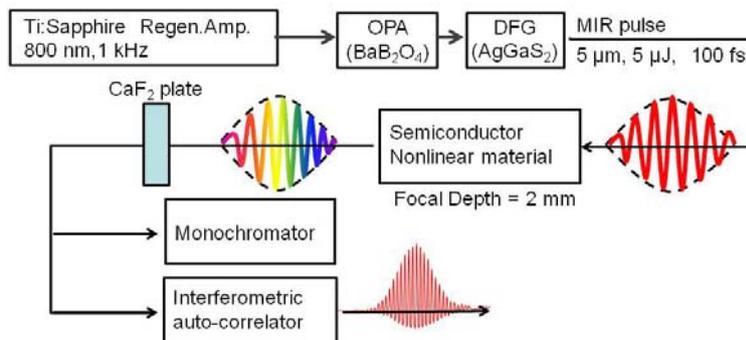


図 4 中赤外自己位相変調の実験装置図

図4に実験概略図を示す。光パラメトリック増幅と差周波発生により、中心波長 5ミクロン、時間幅100 fs、の中赤外光パルスが発生させ、その光パルスをGaAs結晶に集光して自己位相変調を起こした。集光条件などを最適化することにより、図5(a)に示す通り、オリジナルパルスのスペクトル幅540 nm (振動数幅 $220\text{cm}^{-1}$ )を、2060 nm ( $910\text{cm}^{-1}$ )へ広帯域化することに成功した。このスペクトルから計算されるフーリエ限界パルスの時間幅は、28 fs(光電場振動に換算すると1.7サイクル)であった。

GaAs結晶中の分散性伝播と自己位相変調の結果、広帯域化したパルスは正チャープを伴って200 fsに伸張する。負の二次分散をもつCaF<sub>2</sub>窓を利用して2次分散補償を行った結果、時間幅50 fsまで短パルス化することに成功した。図5(b)はこのときの干渉性強度自己相関信号である。ここで、スペクトル測定データを利用し、自己相関信号によくフィッティングするようにスペクトル位相を決定することで、波形評価を行った。得られた時間幅は、波長5μmの光電場振動に換算すると、3サイクルに相当する。

本手法は、非共鳴な非線形性を利用するため、動作波長を選ばない。そのため、二光子吸収が起こらず、材料が透明な波長域 2-20 ミクロンで一般的に有効な手法であるといえる。

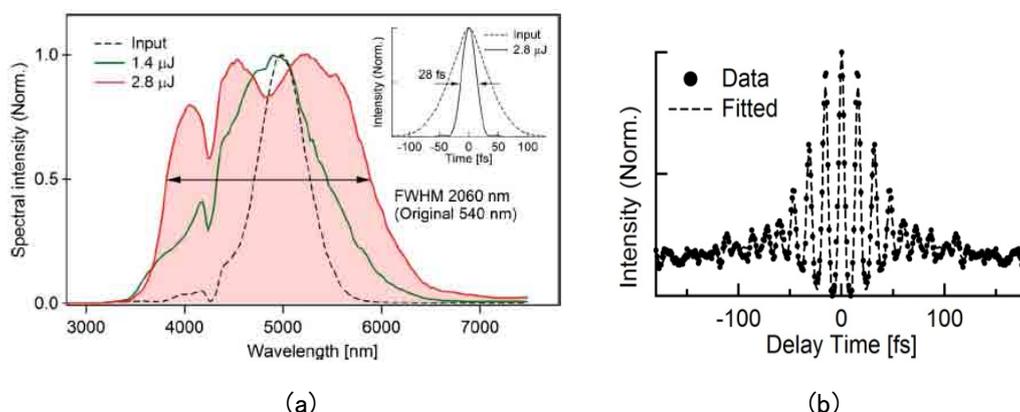


図 5 (a) 中赤外スペクトル広帯域化の実験結果(挿入図は計算されたフーリエ限界パルス)  
(b) 分散補償を施した広帯域化パルスの干渉性強度自己相関信号とフィッティング結果

#### 4-3. 中赤外ポンプ・プローブ分光装置の開発による水の振動エネルギー緩和の観測

分子ダイナミクスを観測へ向け、中赤外フェムト秒パルスを利用したポンプ・プローブ分光計測システムを立ち上げた(図6)。ポンプ光が試料を励起したのち、時間遅延をもって入射したプローブ光が分子の過渡吸収変化、ひいては分子の振動状態を観測する。マルチチャンネルHgCdTe検出器を利用して測定精度の向上を図り、ノイズレベルを 0.1 mOD以下に抑えた。相互相関測定を用い、装置の時間分解能を120 fsと評価した。

純水のOH変角振動モードのエネルギー緩和ダイナミクスの測定を行った(17th International Conference on Ultrafast Phenomena, submitted.)。変角振動モードは、分子内振動の中で最低の振動数をもつため、その励起寿命は、一分子から水素結合ネットワークへエネルギーを移行する速度を決定している。

温度制御水薄膜セルを作製し、液相水のOH変角振動エネルギー緩和の温度依存性を測定した。測定された室温および摂氏80度での過渡吸収スペクト

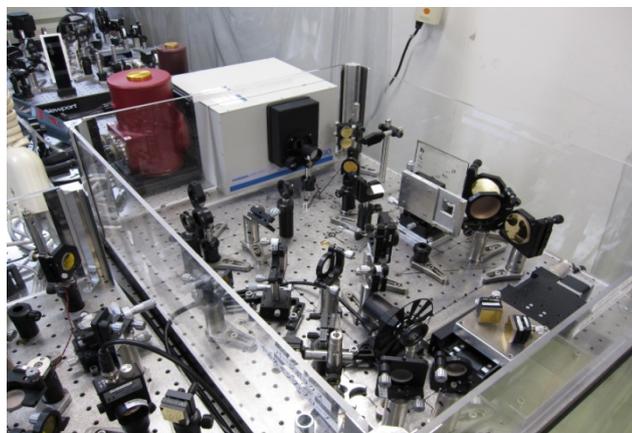


図 6 中赤外ポンプ・プローブ分光システム

ルをそれぞれ図7 (a) (b) に示す。誘導放出および吸収飽和による吸収の減少(1650  $\text{cm}^{-1}$ 付近)と、励起状態吸収による吸収の増加(1560  $\text{cm}^{-1}$ 付近)が瞬時的に立ち上がり、200–300 fs程度で減衰する様子が観測された。ピコ秒オーダーの吸収変化は、エネルギーの熱平衡化、すなわち温度上昇に伴う信号と解釈できる。

まず、温度上昇にともなうスペクトル変化は、高温で小さくなることがわかった。水には水素結合状態の異なる二成分が存在するといわれ、温度上昇に伴う吸収変化は、この二成分の比が変化することによって生じる、と考えられる。実験結果は、二成分比の温度による変化が、高温へ近づくと飽和する傾向を示唆している。数値解析の結果、エネルギーの緩和時間は21度で約200 fs、80度では約280 fsとなり、温度上昇とともに励起寿命が延びることがわかった。これは、水素結合が弱くなるにつれ、変角振動モードと分子間振動モードの非調和カップリングが弱くなることを示唆する。以上の通り、水の一分子に局在化したエネルギーが、水素結合ネットワークへ放出されるダイナミクスが、水素結合によって加速されていることを明らかにした。

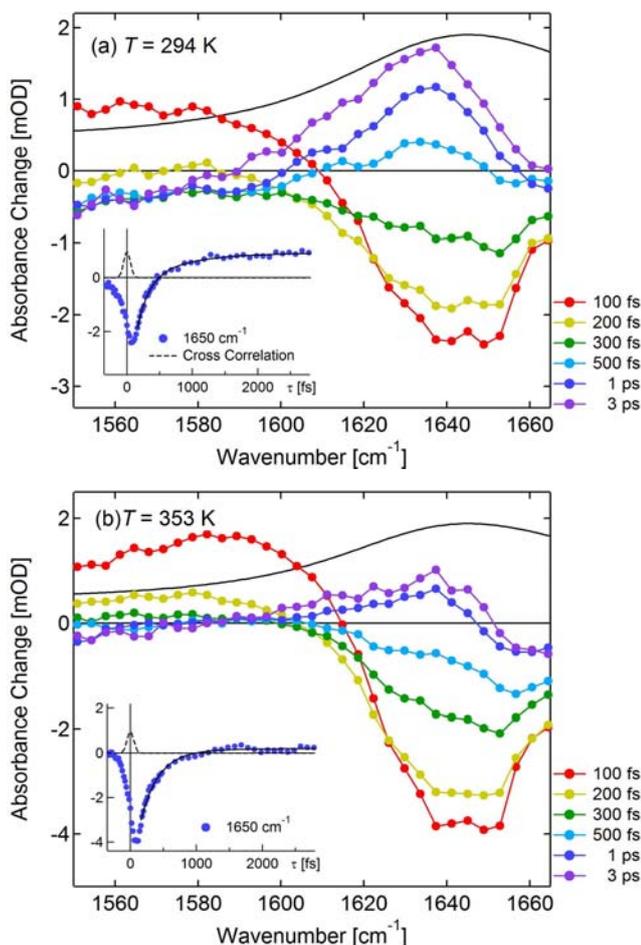


図7 中赤外ポンプ・プローブ分光システム

## 5. 自己評価

OH基やNH基の伸縮振動モードが存在する波長3ミクロン帯において、スペクトル幅500  $\text{cm}^{-1}$ を超す広帯域中赤外パルスの発生に成功し、パルス内の電場振動が4サイクルの短パルス化に成功した。次に、長波長領域でも有効な中赤外パルスのスペクトル広帯域化の手法を開発し、波長5ミクロンにおいて、900  $\text{cm}^{-1}$ を超すスペクトル広帯域化と電場振動4サイクルへの短パルス化に成功した。これら二項目は、オリジナルなアイデアに基づいて行われ、従来法を凌ぐバンド幅の中赤外パルスの発生を実現したという点で、十分評価できる。研究期間中に波形整形器を開発したが、時間の制約から、これを広帯域パルスの分散補償に適用することはできず、3サイクルを切る極短パルス化に至らなかった点が残念である。

研究期間の後半から、中赤外時間分解分光測定装置を立ち上げた。この装置は、凝縮相で起こる分子振動のエネルギー緩和ダイナミクスを調べる上で、十分な時間分解能と測定精度を有する。この装置を利用して、純水のOH変角振動モードのエネルギー緩和現象に関して、その温度依存性を初めて観測した。そして、水素結合が、一分子から水素結合ネットワークへとエネルギーを放出するダイナミクスに与える影響を明らかにした点には一定の評価ができる。

## 6. 研究総括の見解

中赤外超短パルスによる分子および格子のダイナミクス制御というフィールドに先駆的に取り

組み、オリジナルなアイデアで、従来法を凌ぐバンド幅の中赤外パルスの発生を実現し、水分子の水素結合が、一分子から水素結合ネットワークへとエネルギーを放出するダイナミクスに与える影響を明らかにした。

主たる成果は次の3点である。

- 1) 周期分極反転ニオブ酸リチウムを非線形光学媒質とする光パラメトリック増幅器を開発し、中赤外波長域 3-4 ミクロンにおいて広帯域なスペクトルをもつ中赤外パルスの発生に成功した。
- 2) 半導体結晶中の自己位相変調の利用し波長5ミクロン帯での3サイクルパルスの発生に成功しているが、本手法は、非共鳴な非線形性を利用するため、動作波長を選ばない。そのため、二光子吸収が起こらず、材料が透明な波長域 2-20 ミクロンで使える有用な手法である。
- 3) 中赤外ポンプ・プローブ分光装置の開発による水の振動エネルギー緩和の観測を行い、水素結合が、一分子から水素結合ネットワークへとエネルギーを放出するダイナミクスに与える影響を始めて明らかにした。

研究成果は主に 5 編の原著論文に纏められているが、その高い評価は、「文部科学大臣表彰若手科学者賞」受賞、多数の招待講演に結びついている。

今後、開発した高度に制御された中赤外光を、電子的基底状態でのコヒーレント制御ツールへと展開し、分子の解離や異性化、分子性結晶の相転移などを誘導する新手法を確立する等、中赤外超短パルスによる分子および格子のダイナミクス制御というフィールドを切り拓くことを期待する。

## 7. 主な論文等

(A) ささきがけ個人研究者主導で得られた成果で主なもの

### (1) 論文(原著論文)発表

- S. Ashihara, S. Fujioka, K. Shibuya, “Temperature Dependence of Vibrational Energy Relaxation of H<sub>2</sub>O Bending Excitation in Neat Water”, 17 th International Conference on Ultrafast Phenomena (submitted).
- S. Ashihara and Y. Kawahara, “Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in GaAs,” Opt. Lett., Vol. 34, No.24, 3839-3841 (2009).
- S. Ashihara and Y. Kawahara, “Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in semiconductor materials,” Nonlinear Optics, JWA21 (2009).
- S. Ashihara, T. Mochizuki, S. Yamamoto, T. Shimura, and K. Kuroda, “Generation of Sub 50-fs Mid-Infrared Pulses by Optical Parametric Amplifier Based on Periodically-Poled MgO:LiNbO<sub>3</sub>”, Jpn. J. Appl. Phys. Vol.48, No.4, 042501 (2009).
- S. Ashihara, N. Huse, A. Espagne, E.T.J. Nibbering, T. Elsaesser, “Ultrafast Structural Dynamics of Water Induced by Dissipation of Vibrational Energy” J. Phys. Chem. A. Vol.111, No. 5, pp.743-746 (2007).

### (2) 受賞

- 2009年4月 平成21年度 文部科学大臣表彰若手科学者賞  
表彰業績名;「中赤外超短パルスを利用した分子振動ダイナミクスの研究」  
表彰主催団体名;文部科学省

### (3) 解説記事

- 芦原聡, “中赤外フェムト秒パルスによる水分子ダイナミクスの追跡,” レーザー研究 「時間分解レーザー計測の最近の進展」38-2, pp.101-105 (2009).

- ・ 芦原聡, “中赤外高速分光法で観る水の分子振動緩和現象” 分光研究 57-6, p.288 (2008).

(4) 招待講演

- ・ S. Ashihara, “Ultrafast vibrational relaxation and structural dynamics in liquid water,” The 6th Asian Conference on Ultrafast Phenomena (Taipei, 2010.01.10-13).
- ・ 芦原聡, “振動遷移による分子振動のコヒーレント制御へ向けて,” 「超高速過程における量子コヒーレンスの観測と制御」～量子情報処理から固体・生体分子ダイナミクス～ (東北大学, 2009.12.03-04).
- ・ 芦原聡, “広帯域赤外パルス発生と波形整形技術” 先端光量子科学アライアンスセミナー「フェムト秒レーザーパルス波形整形技術の基礎と新しい応用展開」(慶応義塾大学, 2009.03.29).
- ・ S. Ashihara, “Broadband pulse generation and pulse shaping in the mid-infrared,” Advanced Lasers and Their Applications 2009, pp.52-53 (Jeju, 2009.05.07-09).
- ・ 芦原聡, “中赤外高速分光法でみる水の分子振動緩和,” 日本レーザー学会年次大会 (名古屋, 2008.1.31-2.01).

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

「光格子を利用したアトムロニクスのためのデバイス開発」

### 2. 研究者

木下 俊哉

### 3. 研究のねらい

情報の媒体として冷却原子を利用する新技術の開発が期待されている。冷却された原子は波として振る舞うので、原子波の位相に物理量を含む情報を載せ、原子波どうしを干渉させて位相差を検出し、従来にはないほどの精度で例えば重力加速度などの物理量が測定できる。量子計算や量子情報の場合は、原子の内部状態どうしを絡み合わせその中に情報を担わせかつ処理する。どちらの場合も、単一原子や多数の原子集団の動きや流れをいかに操作するか、物質波の輸送に最適な環境をいかに作り出すか、がかなめとなる重要な技術である。しかしながら、固体デバイスでの電子の制御と違って、冷却原子の輸送に関する制御技術は確立しておらず、輸送や流れに関する現象の研究すら十分に行われていない。本研究の目的は、将来、原子の動きを制御する機能をもつデバイスを光格子内に作り出すための基盤となる、光格子中の冷却原子の流れや輸送に関する物理を探求することである。当初の計画では、2次元光格子によって形成された1次元チューブ内のボース気体のダイナミクス、内部自由度をもったボース＝アインシュタイン凝縮(スピノール BEC)でのジョセフソン振動のセルフトラッピング現象およびそれを利用した原子のトランジスタ作用の観測に着目して研究にとりくんだ。

### 4. 研究成果

(1) 1次元ボース気体の非平衡ダイナミクス(ペンシルベニア州立大学滞在中および帰国後)

2次元光格子によって形成された1次元チューブは、欠陥などを含まない極めてクリーンな物質波の導波路となる。閉じた導波路内を伝搬させる干渉計では、干渉後に冷却原子を一旦回収しすぐに再利用できるので、実用的にもより優れた干渉計となりうる。また、接触型相互作用を行う1次元ボース気体は可積分系であり、初期の運動量分布は散逸することなく持続的に保存される。この散逸がおこらないという特質は、1次元導波型原子波干渉計など原子波を利用した超精密なセンサーの開発には本来非常に適したものである。しかし、この特質は現実の物質で作った1次元系において、どのような場合でも本当に正しいと言えるのかは自明ではない。また、2重井戸(あるいは2つの1次元チューブ)による量子気体の分裂および両チューブ間のトンネリングなどは、実際に干渉や輸送を行う際には重要なツールになるが、トンネリング自体は系の可積分性を崩してしまう。そこで、可積分性が破れた1次元ボソン系で散逸が起きるのかどうかを調べるため、1次元ボース気体にはじめ熱的に非平衡な運動量分布を与え、時間の経過とともに運動量分布がどのような変化を示すか詳細に調べた。

我々自身の先行研究では、接触型相互作用を行う純粋な1次元ボース気体では、最初に生成した熱的に非平衡な運動量分布は極めて長時間にわたり変化することなく維持されており、系は熱平衡状態には至ることはないという結果が得られていた。これはこの系が可積分系とみなしてよいことを示している。そこで系がもつ可積分性を崩す非可積分項として、1次元チューブ間にトンネリングを誘起させ、その後のダイナミクスを観測した。実験では、まず2次元光格子の節に相当する軸状のチューブ内に BEC を誘導し1次元系を生成した。次に、チューブ軸に沿って別の光格子ビームを2回、短時間のパルスを適当な時間間隔をあけて照射し、原子集団を2度回折させて、 $\pm 2\hbar k$  ( $k$  は定在波の波数)の運動量をもつ熱平衡から極めて遠く離れた非平衡状態を生成した。その後、各原子は軸に沿った弱い閉じ込めポテンシャルの中で周期運動を行いながら、他原子との衝突(区別は出来ないが反射と透過を含む)を繰り返す。この周期運動の際、チューブ間にトンネリングが起こりうるようチューブ内への閉じ込めを弱め、1周期平均した運動量分布が時間の経過とともにどのように変化していくかを調べた結果が図1の(b)～(d)である。トンネリングが無視で

きる純粋な1次元系の場合(図1 a))には、 $15\tau$ 後の運動量分布から粒子のロスなどを考慮し $40\tau$ 後の分布を計算すると、実測した分布と極めてよく一致し熱平衡化は起こらないと判断できる。一方、トンネリングが起こる場合は、各原子が周期運動を重ねるにつれて、運動量分布が熱平衡時に得られる幅の狭いガウス関数形に近づき、明らかに緩和していることがわかる。

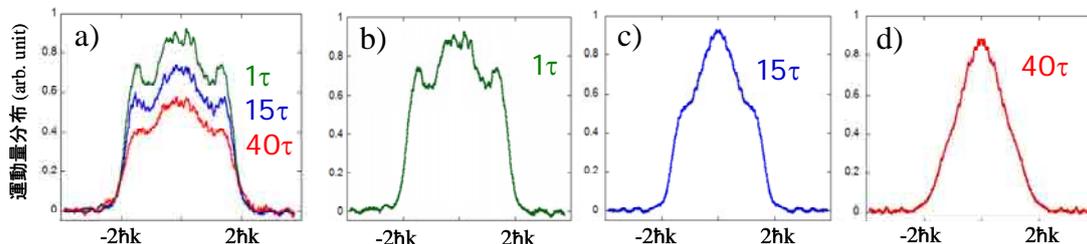


図1 非平衡な運動量分布を与えた後の運動量分布の時間経過。 $\tau$ は1次元の軸方向の運動の周期を表す。a) トンネリングが無視できる純粋な1次元系。閉じ込めの深さ $11\mu\text{K}$ 、b)-d) 閉じ込めが弱く( $3.8\mu\text{K}$ )、1次元チューブ間にトンネリングが起こる場合。

熱平衡状態へのレートは、1次元への閉じ込めを弱くしトンネリングを起こしやすくするほど大きくなり(図2)、閉じ込めを弱くした極限では、最初1次元方向にのみ保持していたエネルギーは、3次元方向に均等に分配されている。

トンネリングにより平衡状態への緩和が誘発されることが明白になったが、その緩和機構そのものは完全には解明されていない。我々の実験条件下では、2体の原子の衝突のみでは、チューブ間のトンネリングレートを増大させるほど十分なエネルギーは解放されず、従って、現時点では、2体の衝突ではなく3体の衝突とトンネリングが関与している、という結論に達した。このシナリオを確かめるには、より複雑な理論計算が必要であり、現在もなお理論グループとの共同研究が続いている。また、実際の実験では閉じ込めの深さがおよそ $8\mu\text{K}$ (トンネリングエネルギー  $< \sim 10\mu\text{K}$ )より大きくなると、運動量分布の変化は非常に小さく、装置系の分解能と同じレベルになるため、本当に熱平衡状態に向かっているのかどうかの判定が難しくなる。そのため、現時点では $8\mu\text{K}$ という値を閾値とみなせるかどうかは結論が下せていない。閾値の有無は、古典論でのKAM理論の重要な帰結が、実際の量子多体系にも適用できるかを定める重要な問題であり、この問題も引き続き検討中である。

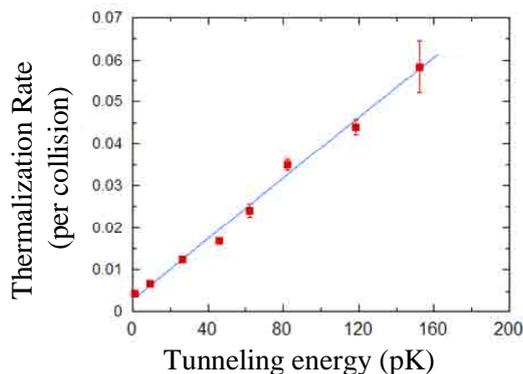


図2 熱平衡状態への緩和レート/衝突とトンネリングエネルギー $J$ の関係。 $J$ と閉じ込めの深さ $U$ とは、 $J \propto e^{-U}$ の関係がある。

## (2) 純光学的ボース=アインシュタイン凝縮(BEC)の生成への準備

米国より帰国後、光格子中の冷却原子気体を中心テーマとした自らの実験グループを立ち上げ、必要な装置系の再構築を行っている。BECの高速生成による測定の高効率化とスピノールBECへの展開、さらに高分解能のイメージングを可能にするために、光学ガラスセル中での純光学的手法によるBECの生成をまず目指した。ガラス製キャピラリープレートによりコロレートされたRb原子ビームを生成、これを周波数チャープによりドップラー冷却して光学セルに誘導し、磁気光学トラップ(MOT)内に捕獲した(図3)。MOT内へは $10^8$ 個/sのレートで、およそ $80\mu\text{K}$ に冷却された原子集団が捕獲できた。さらに、MOTを圧縮した後、3次元の光格子内へと送り込み、そこで偏光勾配冷却を行うことを予定している。必要な高出力光源の製作と光双極子トラップへの準備も終えており、現在、実験を進行中である。

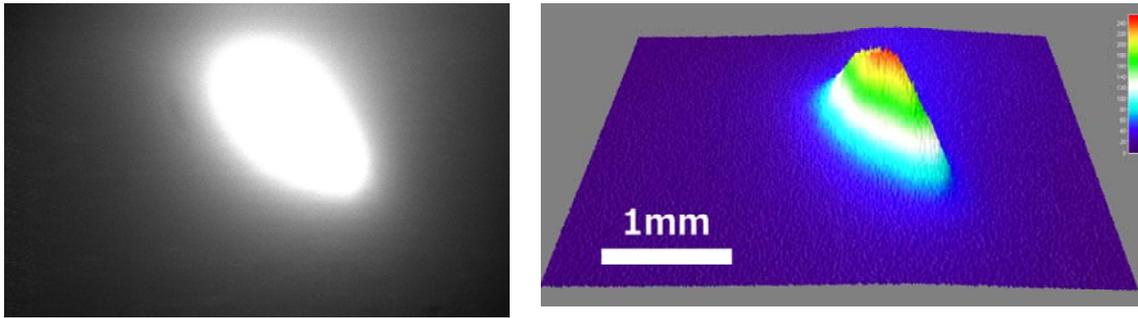


図3 強光度蛍光イメージングによるMOTの観測

## 5. 自己評価

本研究課題は BEC 後に原子集団を光格子中に誘導し、そこで発現する物性現象を研究するもので、当然 BEC の生成が前提となっている。米国から帰国後、実験を一から再び立ち上げる必要があったため、当初予定していた研究課題を軌道修正してもさきがけ期間内に遂行するには、困難になってしまった。立ち上げを行いながら、米国でやり残した仕事を完成させたかったが、解析は複雑かつ難しく、学会や会議などで発表は行っているが、論文としてまとめ上げるまでには現時点でも至っていない。ただ、光格子に関する研究は多くの可能性をもっているが、本研究のように系の可積分性に着目し、非可積分項の印加と操作によって非平衡過程の解明を目指した研究例はなく、熱平衡から遠く離れた状態という物理の未開拓分野に、新たな実験的アプローチがあることを示せたのではないかと考えている。

## 6. 研究総括の見解

情報の媒体として冷却原子を利用する新技術の開発が期待され、本研究では光格子中の冷却原子の流れや輸送に関する物理を探求することに取り組んだ。具体的には、欠陥などを含まない極めてクリーンな物質波の導波路としての1次元ボース気体の、非平衡ダイナミクスの物性現象観測を目標に研究を行った。

接触型相互作用を行う純粋な1次元ボース気体において、最初に生成した熱的に非平衡な運動量分布は極めて長時間にわたり変化することなく維持されこの系が可積分系とみなしてよいことを見出し、一方、トンネリングが起こる場合は、各原子が周期運動を重ねるにつれて、運動量分布が熱平衡時に得られる幅の狭いガウス関数形に近づき、トンネリングにより平衡状態への緩和が誘発されることを見出した。今後、この緩和機構の解明、閉じ込め深さの閾値検討などが必要であるが、解析は複雑かつ難しく、学会や会議などで発表は行っているが、論文としてまとめ上げるまでには至っていない。ただ、光格子に関する研究は多くの可能性をもっているが、本研究のように系の可積分性に着目し、非可積分項の印加と操作によって非平衡過程の解明を目指した研究例はなく、熱平衡から遠く離れた状態という物理の未開拓分野に、新たな実験的アプローチがあることを示せたのは意義あることである。

現在立ち上げている実験系にて、BEC 後に原子集団を光格子中に誘導し、そこで発現する物性現象の研究成果に期待する。

## 7. 主な論文等

(A) さきがけ個人研究者主導で得られた成果で主なもの

(1) 論文(原著論文)発表

- ・木下俊哉、“光格子を利用したアトムロニクスのためのデバイス開発”  
レーザー学会誌 レーザー研究、2009年1月号

(2) 学会発表

- ・木下俊哉, Trevor Wenger, Jean-Felix Riou, Zhongyao Sun, David S. Weiss、 “可積分性が破られた1次元ボーズ気体の振る舞い”、日本物理学会 第62回年次大会 2007年 9/21 - 24 北海道大学

(3) 招待講演

- ・Toshiya Kinoshita、 “Experiment with One Dimensional Bose Gases” (Invited Talk)  
Nagoya Workshop on “Superfluidity and microscopic properties on quantum atomic assembly”  
October 10, 2008 at Nagoya University, Nagoya
- ・木下俊哉、 “Experimental Studies of One Dimensional Bose Gases” (Invited Talk)、特定領域研究「スーパークリーン物質で実現する新しい量子相の物理」、平成20年度研究成果報告会、December 19 - 21, 2008 奈良県新公会堂(奈良市)
- ・木下俊哉、 “Non-Equilibrium 1D Bose Gases” (レビュー招待講演)、基礎物理学研究所研究会「熱場の量子論とその応用」、2009年9月3 - 5日 京都大学 基礎物理学研究所
- ・木下俊哉、 “Non-Equilibrium 1D Bose Gases” (招待講演)、第2回『アインシュタインの物理』でリンクする研究・教育拠点研究会、2009年 10月23 - 24日 大阪市立大学 学術情報センター

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

「光技術による生体幹細胞の分化制御 ―再生医療実現化にむけた光技術の創成―」

### 2. 氏名

櫛引 俊宏

### 3. 研究のねらい

再生医療で話題となる幹細胞は、生体組織や臓器に成長する元となる細胞であり、幹細胞を利用した再生医療の実現化は21世紀の臨床医学における悲願の一つである。幹細胞は、ある細胞に変化するようという“指示”を受けると特定の細胞に変身、すなわち分化する能力を持っている。また、変化を遂げる前の未分化の状態でも長期間にわたって自らを複製、再生する能力も備えている。胚からは胚性幹細胞(ES細胞)、成人からは成体幹細胞を採り出すことができ、最近ではiPS細胞が話題となっている。幹細胞は様々な細胞へ分化する能力と高い増殖能力を持つため、失われた細胞を再生して補うという治療法(再生医療)への応用が期待されている。パーキンソン病、心筋梗塞、脊椎損傷、白血病、糖尿病、肝臓病など様々な病気の治療への応用が期待され、一部は既に臨床治験が始まっている。しかしながら、再生医療があと一歩で現実的なものにならない理由の一つとして、幹細胞をそのまま患者に移植してもほとんど効果が無いことがあげられる。治療効果が無いだけでなく、移植前に長期間培養した幹細胞が癌細胞化したという報告もある。現在、細胞機能の制御方法として、トランスジェニックやノックアウトをはじめとした遺伝子工学技術や薬剤添加による方法などが行われている。再生医療に有望な幹細胞などが有する機能を非侵襲的に制御することは、疾病の治療・予防にとどまらず、基礎生物医学実験などにも有用なツールとなる。そこで、この幹細胞に安全に“指示”を与える方法として光技術を応用することが本研究の目的である。本研究では、これまでに得られている結果をもとに、赤外、可視光、紫外のみならず広範な領域の光を用いた幹細胞への“指示”とそのメカニズムの解明を行い、再生医療実現化へブレークスルーとなる光技術を創成し提案する。

### 4. 研究成果

波長 405 nmの半導体レーザーを用い、培養骨髄間葉系幹細胞株へレーザー照射を行った。プレート底面に接着している細胞へ直接レーザーを照射するため、本実験ではプレート底面からレーザーを照射する光学系を作製した。培養骨髄間葉系幹細胞に0、100、200、300 mW/cm<sup>2</sup>で3分間、波長 405 nm半導体レーザー(連続波)を照射した後、培地を骨分化培地(10 nMデキサメタゾン、2 mM  $\alpha$ -グリセロリン酸、50  $\mu$ g/mLアスコルビン酸および10%FCSを含む)に交換し、5日間培養した。Fig. 1 に種々のエネルギーで骨髄間葉系幹細胞に照射した後の骨芽細胞への分化を確認した結果を示した。波長 405 nmレーザーを培養骨髄間葉系幹細胞へ照射した結果、レーザー未照射群と比較してレーザー照射群の骨芽細胞への分化が促進された。すなわち、アリザリンレッドS染色によりカルシウムの沈着が認められた。またリン酸カルシウムの染色方法であるvon Kossa染色を行なった結果についても同様に、レーザー照射群にリン酸カルシウムの沈着が認められた。さらに骨芽細胞分化マーカーであるアルカリフォスファターゼおよびオステオカルシンの免疫染色においても同様の結果を得た。また、各培養ウェル中のカルシウム濃度を定量した結果を示した結果、照射するレーザーエネルギーに依存してカルシウム量が増加した(Fig.2)。

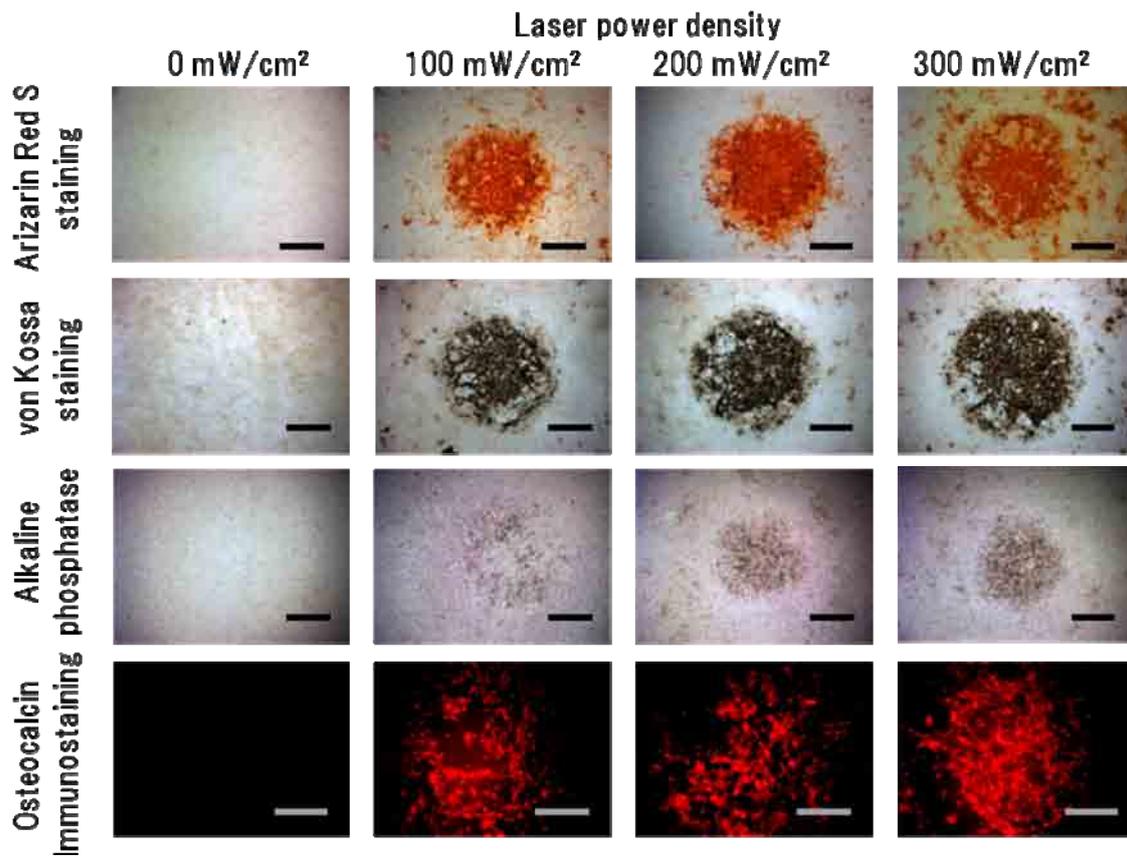


Fig.1 Histochemical analysis of laser irradiated mesenchymal stem cells (MSCs). Calcium deposition was evaluated by alizarin red-S staining (magnification: x50) at 5 days post-irradiation. Calcium deposition had increased around the cells in a dose-dependent manner. Calcium phosphate deposition was evaluated by von Kossa staining (magnification: x50). At 5 days after treatment, staining increased with increased laser energy. The area expressing alkaline phosphatase (ALP) activity was stained (magnification: x50). Laser irradiated samples displayed immunopositive staining for osteocalcin, a marker of osteoblast differentiation (magnification: x100). Scale bars = 200 (for Alizarin red-S, von Kossa, and ALP staining) and 100 $\mu$ m (for osteocalcin immunostaining).

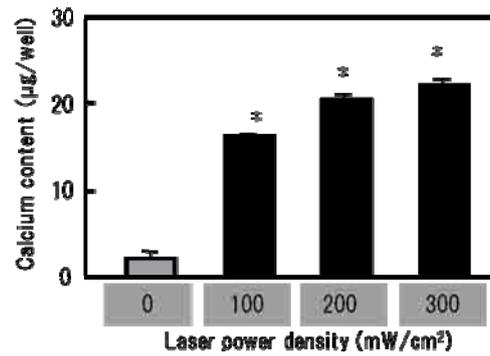


Fig.2 The quantitative calcium content increased after laser irradiation relative to non-irradiated cells. Calcium content increases varied with laser energy. \*, p<0.01: significant difference between the calcium content of laser-irradiated MSCs and controls.

さらにレーザーを用いた幹細胞分化の促進効果として、軟骨細胞への分化促進効果についても確認した(Fig.3)。すなわち、軟骨前駆細胞へレーザー照射後、軟骨分化に伴い増加するコラーゲン量の増加が認められ(Fig.3a)、軟骨分化に関与する各種 mRNA の発現増加が観察された(Figs.3b-e)。一方、脂肪細胞への分化はレーザー照射により抑制されるという結果を得た(Fig.4)。

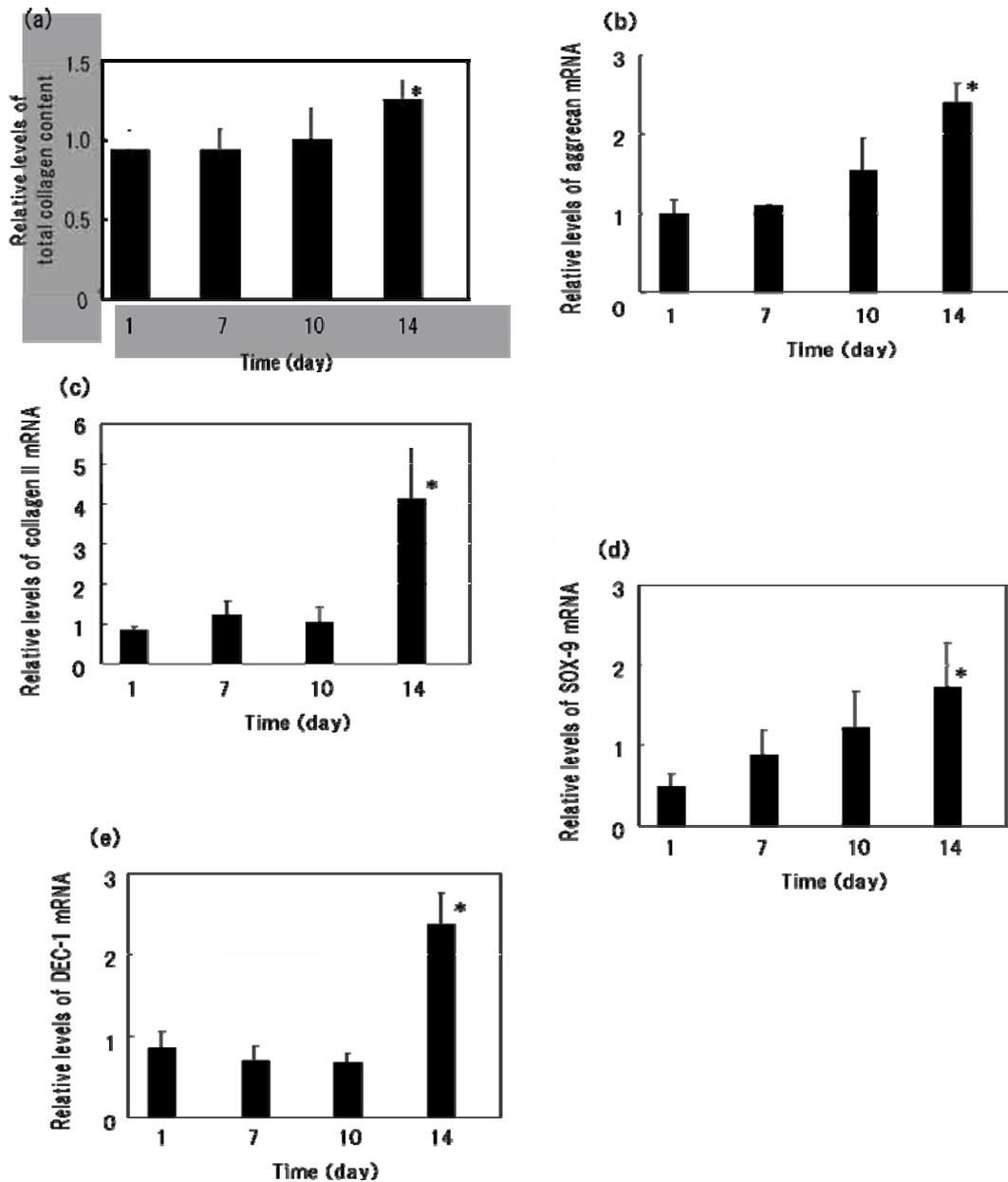


Fig. 3 (a) Laser irradiation enhanced the total collagen contents in ATDC5 cells 14 day after laser irradiation. \*,  $p < 0.01$ : significant difference between the total collagen contents of laser irradiated cells and non-laser irradiated cells. (b-e) Increased mRNA expression of early and mature chondrocyte matrix gene [aggrecan (b) and collagen type II (c)] and positive transcription factors for chondrogenesis [SOX-9 (d) and DEC-1 (e)] by laser irradiation on chondrogenesis. \*,  $p < 0.01$ : significant difference between the relative mRNA levels of laser irradiated cells and non-laser irradiated cells.

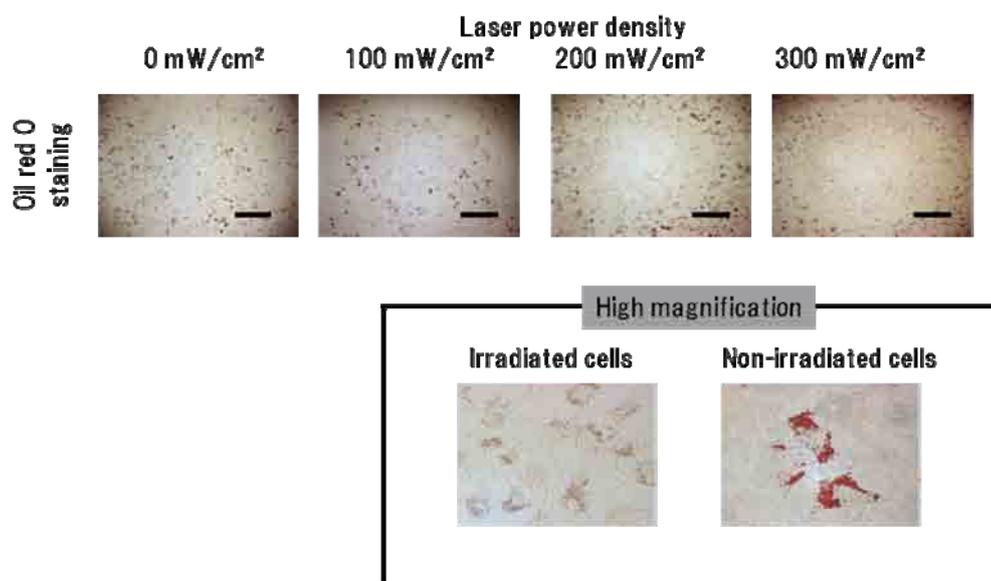


Fig. 4 Staining with oil red O demonstrates that laser irradiation decreased adipogenesis relative to non-irradiated areas (magnification: x50). Higher magnification (x400) is shown in frame. Scale bars = 200  $\mu$ m.

現在、そのメカニズムを司る因子として、青色光を受容することが知られている細胞内体内時計タンパク質・クリプトクロムについて着目し詳細な解析を進めている。さらに、レーザー照射による細胞内活性酸素種の発生がクリプトクロムなどの細胞内生理活性タンパク質を制御していることも明らかにしつつある。

#### 幹細胞以外へのレーザー照射による細胞機能制御

上述の幹細胞だけではなく、種々の細胞種に対してレーザー照射を行い、その機能制御を試みた。ヒスタミンは生体内で過剰分泌されるとアレルギー反応を引き起こす一方で、血管透過性亢進作用や血管拡張作用などの薬理作用も有する。そこで、波長 405 nm のレーザー照射後の肥満細胞からのヒスタミン分泌促進作用について研究を行った。その結果、レーザー照射 30 分後の上清中のヒスタミン濃度は照射パワー密度及び照射時間依存的に上昇することが分かった (Fig.5)。そこで肥満細胞のヒスタミン分泌に関わる細胞内カルシウムイオン濃度を測定したところ、レーザー照射群は非照射群と比較して細胞内カルシウム濃度が有意に増加していた (Fig.6)。カルシウムイオンの細胞内流入を促進する因子の一つとして活性酸素種 (Reactive Oxygen Species; ROS) が関わっていることから、細胞外に発生している ROS の発生量を測定した結果、レーザーを照射すると非照射群と比較して有意に ROS 発生量が増加していることが明らかになった (Fig.7)。これらの結果から、レーザー照射により発生した ROS がカルシウムイオンチャンネルに酸化作用を及ぼし、カルシウムイオンの流入促進と脱顆粒によりヒスタミン分泌が促進されている可能性が考えられた。

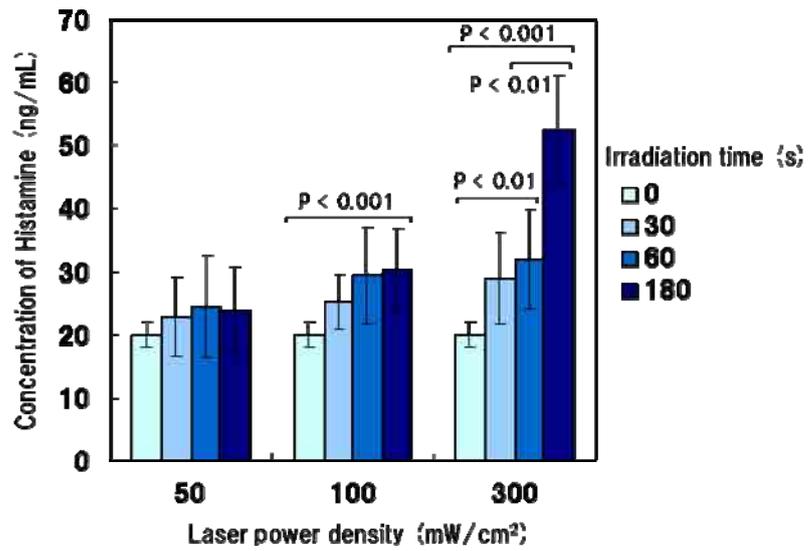


Fig. 5 The histamine secretion from mast cells were increased after laser irradiation.

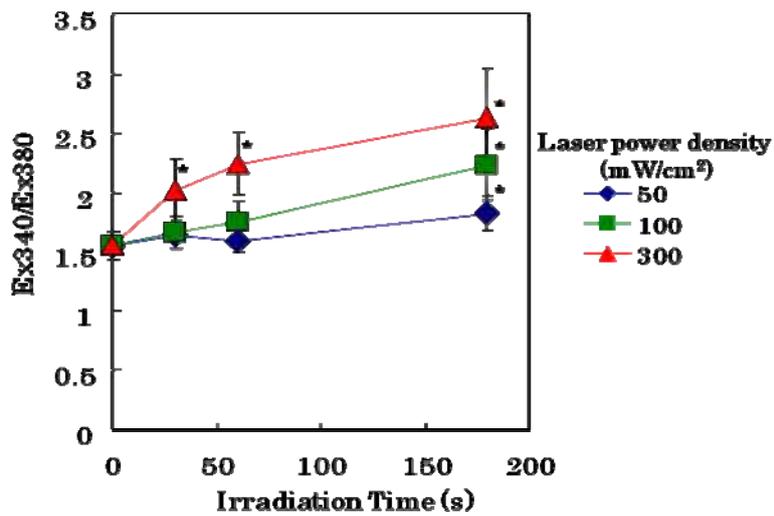


Fig. 6 Intracellular calcium level was increased after laser irradiation.

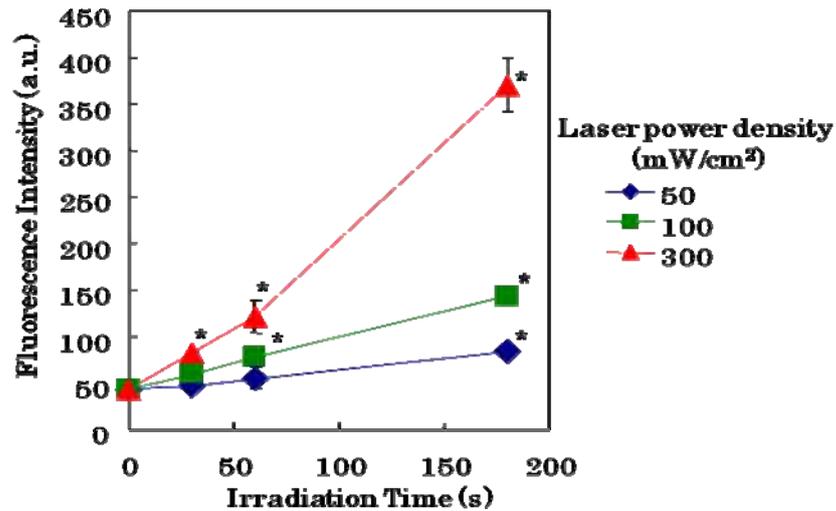


Fig. 7 Reactive oxygen species were generated after laser irradiation.

一方、膵β細胞からのインスリン分泌量低下によるⅡ型糖尿病に対して食事・運動療法や薬剤またはインスリン投与による治療が行われているが、本研究では、培養膵β細胞に、波長の異なる可視域波長のレーザーを照射し、レーザー照射後のインスリン分泌量を測定した。レーザー光は波長405 nm、664 nm、808 nmの3種類を用いた。グルコース濃度応答性を示すマウスインスリン分泌性膵β細胞株にレーザー照射1時間後に上清を回収し、インスリン濃度をELISA法により測定した。その結果、波長405 nmのレーザーを照射した場合、レーザー未照射群に対して、照射パワー密度の増加に伴い上清のインスリン濃度は減少した。一方、波長664 nm及び808 nmレーザーを照射した場合、レーザー未照射群に対して、上清中のインスリン濃度は増加した(Fig.8)。

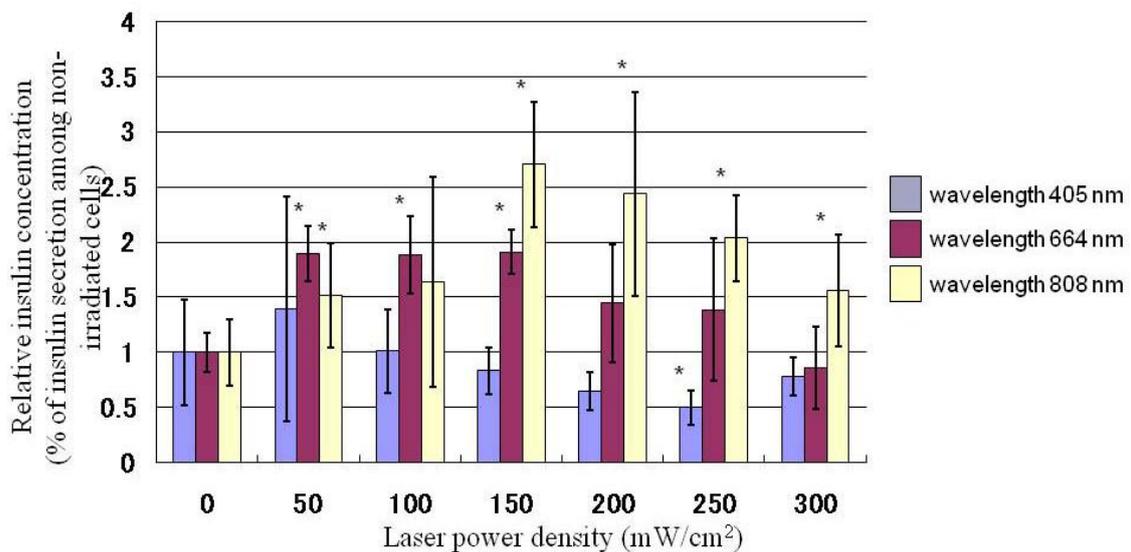


Fig. 8 Insulin secretion was enhanced when the laser (wavelength; 664 and 808 nm) was irradiated. On the other hand, insulin secretion was inhibited when the laser (wavelength; 405 nm) was irradiated to mouse islet of Langerhans β cells.

さきがけ研究期間ではレーザー照射による細胞機能変化について幾つかの結果を得ることが

できたが、その詳細なメカニズムは現在も解析中である。本研究ではレーザーを用いた細胞の分化制御(促進)またはサイトカインや生理活性物質の発現制御という新しい細胞機能制御プロセスを提案することができている。これら細胞生理機能をレーザー照射により制御することができれば、疾病の新しい治療方法としてだけでなく、細胞機能の役割解明にレーザーが有用なツールとなると考えている。

## 5. 自己評価

本研究期間においては、幹細胞だけではなく、肥満細胞や膝・細胞といった幅広い細胞種を取り扱い、その機能変化の研究を行うことができた。本研究期間中にできなかったことは光側の条件を多く用いることである。光照射後の生理活性解析量が莫大であったため、主に波長 405nm の連続波レーザーを用いた研究を行ってきたが、今後は、幅広い波長の光だけではなく、レーザーのパルス幅や照射タイミングについての検討も行いたい。本研究期間中ではヒトへの応用に向けた研究を行うことができ、研究開始当初の予想よりも早いスピードで研究が進んだ。このことは、研究総括・アドバイザーの先生方からの的確なご指導や JST の強力なバックアップとご支援があって達成できていることは疑いない。本研究において強く感じたことは、細胞は必ず光に反応する(遺伝子またはタンパク質の発現レベルで変化が起きる)ということである。勿論、光照射条件や解析方法により得られる結果や解釈は異なるが、生命誕生当初より生物が利用してきた光エネルギーを人類の疾病診断・治療に用いることを今後の目標として研究を進めたい。

## 6. 研究総括の見解

再生医療において、幹細胞などが有する機能を非侵襲的に制御し安全に“指示”を与える方法として光技術を応用する事を目標に研究を行った。

本研究では、これまでに得られている結果をもとに、赤外、可視光、紫外のみならず広範な領域の光を用いた幹細胞への“指示”とそのメカニズムの解明を行い、再生医療実現化へブレークスルーとなる光技術を創成し提案している。理論的で緻密な研究手法により、研究成果としてレーザーを用いた細胞の分化制御(促進)、生理活性物質の発現制御という新しい細胞機能制御プロセスを提案することができている。中でも、軟骨細胞への分化促進効果確認、骨髄間葉系幹細胞にレーザー照射した後の骨芽細胞への分化確認など、レーザーを用いた幹細胞分化の促進効果の確認と光条件の抽出は特筆すべき成果である。

研究成果は主要論文5件に纏められており、「文部科学大臣表彰 若手科学者賞」、「日本レーザー医学会総会賞」などを受賞している。また、成果への注目度も高く、招待講演、解説論文も多数に上り、*Marquis Who's Who in the World*にも選ばれている。

細胞は光に反応し、光照射により遺伝子またはタンパク質の発現レベルで変化が起きることが本研究で確認されたが、細胞生理機能のレーザー照射制御は新しい疾病治療方法であると共に、細胞機能の役割解明ツールとしても期待できる。光技術を安全に生体に適応できることを目標に、細胞内に存在する光受容体に適応した光技術応用開発を期待する。

## 7. 主な論文等

(A)さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1)論文(原著論文)発表

- ・ **Kushibiki, T.**, Tajiri, T., Ninomiya, Y., Awazu, K.: Chondrogenic mRNA expression in prechondrogenic cells after blue laser irradiation. *J Photochem Photobiol*. In press (2010)
- ・ **Kushibiki, T.**: Photodynamic therapy induces microRNA-210 and -296 expression in HeLa cells. *J Biophotonics*. In press (2010).
- ・ **Kushibiki, T.**, Awazu, K.: A blue laser irradiation enhances extracellular calcification of primary mesenchymal stem cells. *Photomed Laser Surg*. **27**: 493-498 (2009).
- ・ **Kushibiki, T.**, Awazu, K. Controlling osteogenesis and adipogenesis of mesenchymal stromal cells by regulating a circadian clock protein with laser irradiation. *Int J Med Sci*. **5**:319-326 (2008).
- ・ **Kushibiki, T.**, Awazu, K.: Enhancement of osteoblast differentiation by regulating circadian clock protein, Cryptochrome, with blue-violet laser irradiation to mesenchymal stromal cells. *Jpn J Laser Surg Med*. **28**: 91-96 (2007).

## (2) 総説・解説論文

- ・ **櫛引俊宏**. 光が働きかける細胞機能. *レーザー治療学会誌* **8**: 10-14 (2010).
- ・ **櫛引俊宏**. 生体への低出力レーザー光照射がおよぼす作用. *オプトニュース* **3**: 26-31 (2009).
- ・ **櫛引俊宏**, 栗津邦男. レーザーによる生体細胞・組織の再生と制御. *光アライアンス*(日本工業出版): 19-4 (2007).
- ・ **櫛引俊宏**, 栗津邦男. レーザーによる骨髄幹細胞の分化促進とそのメカニズム. *日本レーザー医学会誌* **28**: 117-121 (2007).
- ・ **櫛引俊宏**, 栗津邦男. レーザーによる骨分化促進作用とそのメカニズム解明へのアプローチ. *医学のあゆみ* **227**: 602-603 (2007).

## (3) 受賞

- ・ 2008年4月 平成20年度 文部科学大臣表彰 若手科学者賞  
表彰業績名; ドラッグデリバリーシステムと光技術による生体幹細胞の分化制御に関する研究  
表彰主催団体名; 文部科学省
- ・ 2007年5月 第31回レーザー学会奨励賞  
表彰業績名; 「レーザーによる生体幹細胞の分化制御とそのメカニズム」  
表彰主催団体名; (社)レーザー学会
- ・ 2006年11月 平成18年度日本レーザー医学会総会賞  
表彰業績名; 「レーザーによる生体幹細胞の分化制御とそのメカニズム」  
表彰主催団体名; 日本レーザー医学会

## (4) 新聞・広報誌

- ・ *Marquis Who's Who in the World* 27<sup>th</sup> Edition
- ・ *Marquis Who's Who in Medicine and Healthcare* 2009-2010 Edition
- ・ *Marquis Who's Who in the World* 26<sup>th</sup> Edition

## (5) 招待講演

- ・ 櫛引俊宏: 光が働きかける細胞機能－生命科学・医学とのかかわり－. 第21回日本レーザー治療学会 (2009.7.4-5 神戸).

- ・櫛引俊宏: 光技術を用いた細胞機能制御. 第 29 回日本レーザー医学会総会 (2008.11.15-16 東京).
- ・櫛引俊宏: レーザーによる生体細胞・組織の再生と制御. Laser EXPO 2007 (2007.4 横浜)
- ・櫛引俊宏: 光技術による生体幹細胞の分化制御. 第 3 回次世代バイオマテリアル若手研究会 (2007. 2.2 京都).
- ・櫛引俊宏: 生体幹細胞分化制御のための光技術の創成. レーザー学会学術講演会第 27 回年次大会 (2007.1.17-18 宮崎).

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

「光子数確定パルスの空間制御理論」

### 2. 氏名

越野 和樹

### 3. 研究のねらい

光子は量子コヒーレンスを長時間保持することができるため、量子情報処理をはじめとする次世代量子技術の実装に最適の物理系である。よって、光子を意のままに操作する諸技術(オンデマンド生成, 光子による光子の制御, 高効率検出)の開発が急務である。本研究では、物質の有する光学非線形性を活用した光子操作技術の可能性を、理論面から追求する。

光子群の非線形光学応答を定量的に評価するための理論には、次の二点が必須である。(i) 一般に非線形光学効果は、電場すなわち光子パルスの時空間形状に敏感である。よって、光子場の連続多モード性を厳密に導入する。(ii) 単一光子のような光子数確定状態は、古典光学の枠を超えた純量子力学的状態である。よって、物質系のみならず光も量子論的に扱う。これら二点を具備した『量子非線形光学理論』を展開し、量子多体問題の観点から従来の光学応答理論を見つめなおすとともに、次世代量子技術に直結する光子操作手法の提案を目標とする。

### 4. 研究成果

#### I. 光子非線形動力学の新解析手法の開発 —古典パルス光の活用—

光子の光学応答、特に非線形応答を定量的に解析するための『量子非線形光学理論』には、「光子場を連続多モード場として取り扱うこと」「光・物質双方を量子力学的に扱うこと」の二点が必須である。しかし、この厳密な枠組みには「光子数の増加に伴い、ファインマン図形や数値計算量が指数関数的に増加する」という困難があり、これまで着手不能であった。一方で、古典光パルスの光学応答を解析する際には、光を古典電磁場として扱い物質のみを量子力学的に扱う『半古典理論』が有効であり、前者に比べて遥かに数値的負担が少なく済む。そこで本研究では、二つの理論の関係を考察し、数値的負担の少ない『半古典理論』の拡張として『量子非線形光学理論』を遂行するための処方箋を示した。

古典光は、量子力学的には様々な光子数の重ね合せ状態(コヒーレント状態)として記述される。よって、量子光学の観点からは、半古典理論は「様々な光子数での動力学を同時進行させ、電場期待値を評価している理論」と解釈される(図1)。また、動力学に関与している光子数は、摂動次数に反映される。これらの事実を組み合わせると、二光子が非線形媒質を透過する際に獲得する『非線形位相シフト』を次の方法で評価することができる: 古典パルス入射に対して、半古典理論により出力パルスの線形成分・三次非線形成分を求め、両者の重なり積分の位相を求める。この方法では、二光子という非古典状態を取り扱うにも関わらず、古典光の光学応答を計算することによって、興味ある物理量を厳密に抽出できるという面白みがある。

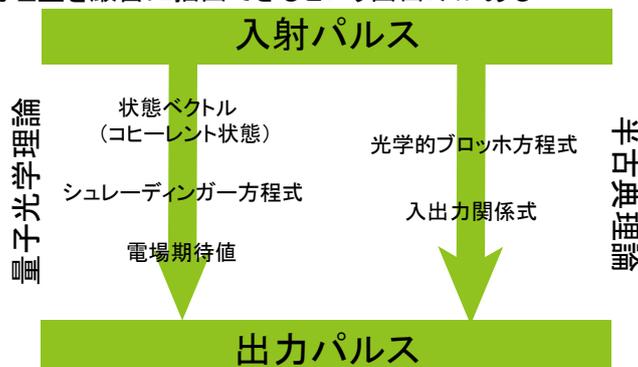


図1 古典パルス光入射に対する、量子光学理論と半古典理論の流れの比較。

一方、半古典理論では、光子群の完全な情報(多体波動関数)を電場振幅(一点相関関数)に縮約してしまっているため、上述のアイデアが適用できる対象は、非線形位相シフトなど僅かな種類の物理量に限定されてしまう。そこで、計算対象を一点相関関数から多点相関関数に拡張することにより、光子群の完全な情報である多体波動関数を、次のようにして求めることができる:古典パルス入射に対して、出力パルスの多点相関関数を最低次摂動により求め、規格化する。この手法は、二次非線形過程など光子数が非保存の状況も含め、一般的な光学過程にも適用可能であり汎用性が高い。

この手法の応用例として、 $N$ 光子が同時にカー媒質(ここでは二準位量子系)に入射した場合の解析結果を示す。既存の現象論では、光子パルス形状は不変のまま、光子数の2乗 $\sim N(N+1)$ に比例する非線形位相シフトが得られると予言する。一方、本手法による厳密解析のもとでは、現象論の予想よりも小さな位相シフトしか得られないことや、光子数増加に伴うパルス形状乱れを正確に評価することができる(図2)。これらの結果は、光子デバイス設計の際の定量的指針としての、本手法の有用性をデモンストレーションしている。

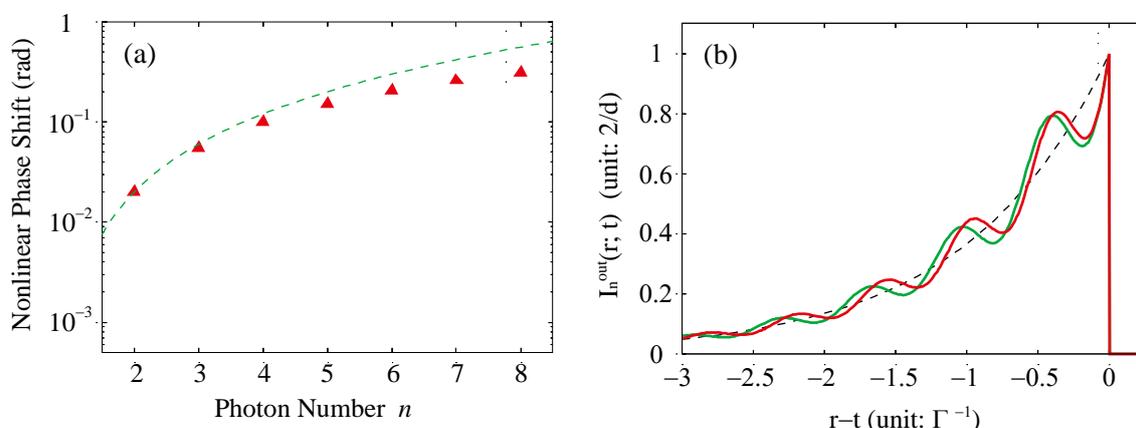


図2 (a)入射光子数の関数としての、非線形位相シフト。緑点線は現象論による予想 $\sim N(N+1)$ ], データ点は厳密理論による値。(b)光子パルス形状の乱れ。点線:入射パルス, 赤実線:1光子出力, 緑実線:8光子出力。

古典パルス光に含まれる光子群は、時間的相関を持たない。よって、上述の方法は、入射光子群が古典パルス対応を持つ無相関光である場合にのみに有効であり、時間相関のある光子群(例:パラメトリック下方変換光子対など)に対しては使えないように見える。しかし、「時間相関のある光子群は、 $\delta$ 関数的に時間的に局在した光子群の重ねあわせとみなせる」「 $\delta$ 関数的光子には古典対応がある」といった事実から、 $\delta$ 関数的古典パルスの光学応答の解析が、光子群の伝播関数計算に活用できることがわかる。

## II. 単一光子フィルタ

光子を意のままに生成することは、古典パルス生成と比較すると圧倒的に難しい技術であるため、単一光子レベルにまで弱めた古典パルスを光子の代替品として用いることが多い。しかしながら、量子情報処理においては、古典パルスに含まれる多光子成分が盗聴など誤作動の原因となる。よって、古典パルスから、一光子成分を高く保ちつつ多光子成分のみを効率的に除去する必要が生じる。本提案では、共振器と二準位量子系とを結合させた『共振器QED系』により、上記機能を有する『単一光子フィルタ』を提案した。

二準位系からの輻射には高々1個の光子しか含まれないため、「古典パルス入射により二準位系を励起し、入射光との隔離を保ちつつ、二準位系からの輻射を高効率で取り出す」ことが単一光子フィルタの設計指針となる。本装置のセットアップは図3(a)のとおりである:二準位系を内包した両側共振器の片側から古典パルスを入射し、反射側を出力ポートとする。共振器からの散逸

レートがラビ振動数よりも大きな「弱結合領域」においては、入射パルスのほとんどが透過方向に抜け二準位系からの輻射のみが反射方向に出力される、という状況が実現されるので、出力ポートには高々一個の光子しか放出されない。図3(b)に、平均光子数1の古典パルスを入射した場合の、入出力パルスの光子統計を示す。入射パルスにおいては、1光子確率 $P_1$ と多光子確率 $P_m (=P_2+P_3+\dots)$ はそれぞれ(0.37, 0.26)であるが、出力パルスでは(0.32, 0.01)となり、1光子成分を保持したまま多光子成分のみを効率的に除去していることがわかる。

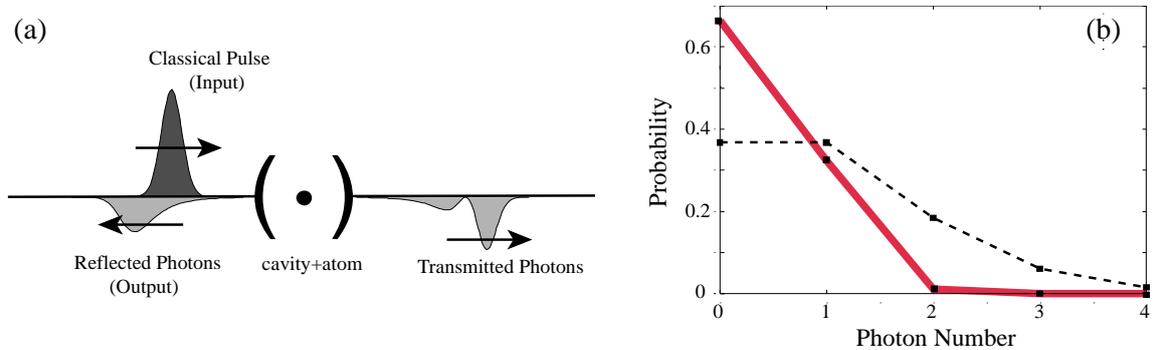


図3 (a)単一光子フィルタのセットアップ。二準位系を内包する両側共振器の片側から古典光パルスを入射し、反射側を出力とする。(b)入力・出力パルスの光子統計。出力(赤実線)では、入力(細点線)に比べ多光子成分が大きく抑えられている。

### Ⅲ. 光子による光子の制御 —決定論的な二光子量子ゲート—

光子により光子を制御し「二光子量子ゲート」を実現することは、量子情報処理においてここ20年間最も期待されている要素技術であるが、非線形効果を介した光子間相互作用が極めて弱いために、大変難しいと思われてきた。これまでに、線形光学素子のみを用いて確率的にゲート動作させる提案がなされてはいるが、その確率的性格のためにスケーラブルな量子回路への拡張が原理的に不可能である。ここでは、現実的な物理系を使い、決定論的な(効率1の)二光子制御ゲートを実装する手法を提案した。

用いる物理系は、一次元的に伝播する光子と、反射型配置で相互作用する縮退 $\Lambda$ 型三準位量子系である[図4(a)]。この物理系の特筆すべき点は、 $\Lambda$ 系の2つの崩壊レート( $|2\rangle \rightarrow |0\rangle$ ,  $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ )が等しい場合に、決定論的なラマン過程を誘起しうる点である。すなわち、状態 $|0\rangle$ の $\Lambda$ 系が縦偏光光子を吸収し、横偏光光子を放出して状態 $|1\rangle$ に緩和する(或いはその逆)という過程が、確率1で起こる。この現象の原理は、両側共振器における共鳴トンネリングと同様の「入射光と $\Lambda$ 系からの輻射の負の干渉」であり、一次元光子に特有のものである。

この系は、光子- $\Lambda$ 系間の『量子状態交換ゲート』として活用可能である。 $\Lambda$ 系が状態 $|0\rangle$ ( $|1\rangle$ )のときには横(縦)偏光光子と相互作用しないことと、上述の決定論的ラマン過程に注意すると、光子の偏光qubitと $\Lambda$ 系の基底状態qubitとが、反射により完全に交換することが容易に確認できる。また、入射光子のエネルギーが $\Lambda$ 系の共鳴から若干ずれている場合には、量子状態を「半分だけ」交換させることもできる。これらを組み合わせ、図4(b)のように三つの光子を共鳴→非共鳴→共鳴の順に連続して入射させることによって、二光子間の『(SWAP) $^{1/2}$ ゲート』を構築することも可能である。(SWAP) $^{1/2}$ ゲートは、構築のきわめて容易な一光子ゲートと併せて、あらゆるユニタリ変換を構築できることが知られている(ユニバーサルゲートセット)。よって、光子qubitのみで量子計算を行うための鍵となる『二光子制御ゲート』を、現実的な物理系で実装することができる。

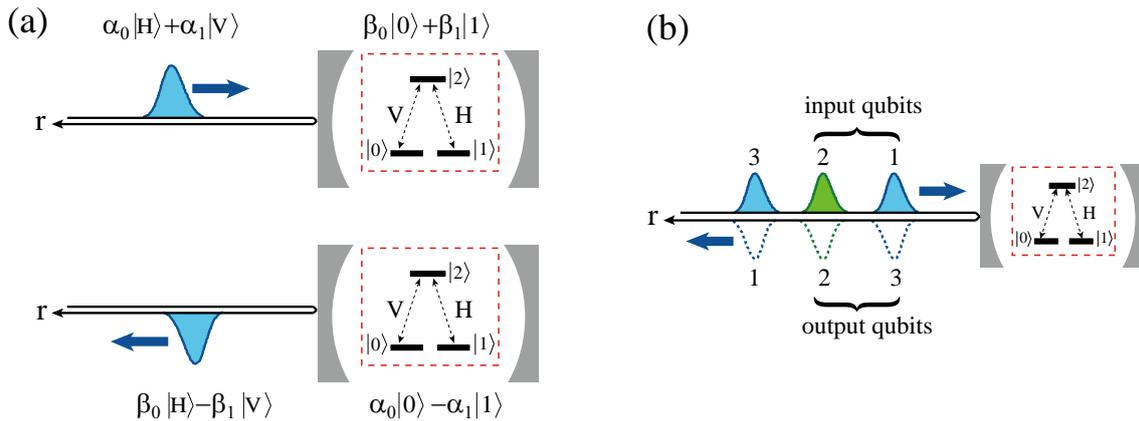


図4 (a) 光子— $\Lambda$ 系間の『量子状態交換ゲート』。一次元的に伝播する光子と、縮退 $\Lambda$ 型三準位量子系とが反射型配置で相互作用する。一回の反射により、光子の偏光qubitと $\Lambda$ 系の基底状態qubitとが完全に入れ替わる。(b)二光子間『(SWAP) $^{1/2}$ ゲート』。光子1・3は $\Lambda$ 系に共鳴、光子2は非共鳴。入力qubitは光子1・2、出力qubitは光子2・3。

## 5. 自己評価

本研究の目的は(i)「光子場の連続多モード性」「光・物質双方の量子化」を具備した『量子非線形光学』の解析手法の開拓、および(ii)それに基づく光子操作諸技術の理論的提案、であった。それぞれの課題に対する自己評価は以下のとおりである。

(i)に関して:本研究では、古典光に対する非線形光学理論の拡張(電場=1点相関関数から、多点相関関数へ)という着想を活用し、量子非線形光学理論に付随する技術的困難を解決することができた。提案した方法は、「数値計算量を劇的に減らして解析可能な問題の対象を拡げた」という直接的な利点に加え、「長年に亘り蓄積されてきた非線形光学の知見を、量子光学領域へスムーズに転用できる」という長所を併せ持つ実用的価値の高い手法であり、『量子非線形光学理論』に対する壁を取り払った独創的貢献であると自負している。

(ii)に関して:次世代量子技術、特に量子情報処理に必須の光子操作技術である「単一光子フィルタ」「決定論的な二光子間量子ゲート」を提案した。これまでの決定論的な二光子ゲートの探索の基本方針は、「光子間の微弱な非線形効果を最大限に活用する」であった。しかしながら、この方針では、光子パルス形状の歪みのために、忠実度の高いゲート構築が原理的に不可能である。そこで、本研究において、「光子の量子状態を物質に転写することによって、非線形性を使わずに光子間相互作用をもたらす」というアイデアを世界にさきがけて発信した。この方法では、光子パルス形状の歪みが原理的に問題にならない、物質の初期化が自動的に行われる、など実用化に向けて有利な点が多く、今後の量子ゲート構築の新しい潮流に成長する可能性があるかと自負している。

## 6. 研究総括の見解

光子の光学応答、特に非線形応答を定量的に解析するための「量子非線形光学理論」での厳密解において、光子場の連続多モード性、ならびに、光・物質双方の量子化、を具備した新解析手法開拓、ならびに、それに基づく光子操作諸技術の理論的提案を目標に研究を行った。

主たる成果は下記2点である。

- 1)新解析手法開拓:厳密解は数値計算量が指数関数的に増加する為これまで着手不可能であったが、本研究では数値的負担の少ない「半古典理論」の拡張として計算を遂行するための処方箋を示した。本手法は、数値計算量を大きく減らし解析可能な対象を拡げた事に加え、従来の非線形光学理論を量子光学領域へ適用可能な実用的価値の高い手法となっている。
- 2)光子操作技術の提案:「光子の量子状態を物質に転写することによって、非線形性を使わずに光子間相互作用をもたらす」というアイデアを世界にさきがけて発信し、次の2案の有用性検

証を行った。

①光子を意のままに生成する「単一光子フィルタ」

②光子により光子の制御を行う「二光子量子ゲートとその制御方法」

理論的で独創的な研究手法により、実用的価値の高い手法ならびに実用化を見据えた操作技術を提案する成果を得たことは高く評価できる。研究成果は、主に 10 件の原著論文に纏められ、日本物理学会若手奨励賞受賞の評価を受けている。

本研究で開発、提案された手法は実用化に向けて有利な点も多く、国内外の実験チームとの共同研究などを通じて、新奇量子デバイスの開発に結びつけて行くことを期待する。

## 7. 主な論文等

(A) さきがけ個人研究者主導で得られた成果で主なもの

(1) 論文(原著論文)発表

- K. Koshino: "Novel Method for Solving the Quantum Nonlinear Dynamics of Photons: Use of a Classical Input", Phys. Rev. Lett. **98**, 223902 (2007).
- K. Koshino, "Single-photon filtering by a cavity quantum electrodynamics system", Phys. Rev. A **77**, 023805 (2008).
- K. Koshino: "Multiphoton wave function after Kerr interaction", Phys. Rev. A **78**, 023820 (2008).
- K. Koshino: "Down-conversion of a single photon with unit efficiency", Phys. Rev. A **79**, 013804 (2009).
- K. Koshino: "Conditional sign flip of two photons without pulse distortion", Phys. Rev. A **80** 023813 (2009).

(2) 受賞

- 2007年9月 日本物理学会第1回若手奨励賞  
表彰業績名; 「量子ゼノ効果と測定問題の理論的考察」  
表彰主催団体; (社)日本物理学会

(3) 招待講演

- 越野和樹: "一般的量子測定による量子ゼノ効果 ~射影測定を超えて~", 日本物理学会, 2007.09.23.
- K. Koshino: "Translation of semiclassical optical-response theory into quantum-optics theory", 2008 International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, 2008.06.25.

(4) 学会発表(国際会議講演)

- K. Koshino: "Use of classical input for solving two-photon nonlinear dynamics", CLEO/Europe IQEC 2007, 2007.06.19.
- K. Koshino: "Single-photon filtering using a two-level system in a two-sided cavity", 8th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures, 2008.04.10.
- K. Koshino: "Extraction of Single Photons by a Cavity-QED System", Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS 08), 2008.05.06.
- K. Koshino: "Conditional sign flip of a two-photon pulse with unit fidelity", CLEO Pacific RIM 2009, 2009.08.31.

## 研究課題別評価書

### 1. 研究課題名

「プラズモニック・メタマテリアルの創製と新奇光デバイスへの展開」

### 2. 氏名

田中 拓男

### 3. 研究のねらい

従来の光学や電磁気学理論では、物質の光学的、電磁気学的性質は、物質そのものに固有のものであって、物質が決まればその特性も自動的に決まってしまうというのが常識であった。本プロジェクトでは、この常識を覆し、物質の光学的な性質を、人工的に導入したナノサイズの金属構造によって操作する技術と、それを用いた全く新しい人工光学材料の創製を目指す。

このような人工光学材料が“プラズモニック・メタマテリアル”であり、この技術を利用すると、可視光の磁場成分と直接相互作用する物質のように、自然界には存在しない物質を作り出すことが可能となる。そして、光の世界における物質の多様性を飛躍的に拡大することができる。

このメタマテリアルを実現する上で、現在直面している技術的課題は、メタマテリアルを構成する3次元的なナノサイズの金属構造を加工するのが難しい事である。本プロジェクトでは、この問題を解決する新しい金属ナノ加工技術の開発にフォーカスを絞り、さらにメタマテリアルによって生み出される新奇な光学現象の探究と、それらを利用した全く新しい光制御素子の提案・実現を目指す。

### 4. 研究成果

#### (1) 3次元ナノ金属構造の作製技術の開発—2光子還元法

プラズモニック・メタマテリアルは、波長より小さな金属共振器を基本素子とし、これを3次元的にアレイ化させた一種の光共振器アレイである。これを作製するには、(i)高い導電率を持つ金属を、(ii)ナノサイズでデザインされた共振器の形状に加工し、(iii)これを3次元的なアレイ構造としてホスト材料中に集積化させなければならない。これら3つの要求は今日の微細加工技術にとっても困難な要求であり、それら全てを満足する技術は未だ存在しない。そこで、これら3つの要求全てに対応できる手段として、レーザーを用いて立体的な微細金属構造を3次元空間中に直接作りだす新しい加工技術の提案とその開発を行った。

研究提案者が開発した手法では、図1に示すように金属イオンをホストとなる物質中に分散させ、この材料中に近赤外の波長を持つフェムト秒チタンサファイアレーザー(波長 800nm)を集光照射する。金属イオンとは、具体的には銀イオン( $\text{Ag}^+$ )や金イオン( $\text{Au}^{3+}$ )である。これらのイオンはチタンサファイアレーザーの波長に吸収を持たないが、レーザーを集光して光子密度が高い状態を作ると、2つの光子を同時に吸収して2倍のエネルギーギャップ間を電子が遷移する2光子吸収が起こる。そして吸収された光のエネルギーは金属イオンを還元させて金属の析出が起こる。2光子吸収によって還元されるイオンの量は、光の強度分布の2乗に比例するので、結果的にレーザースポット部において局所的に金属還元が起こる。そして、このレーザースポットを3次元的に走査すれば、3次元的な金属構造を自在に描画することができる。

図2に本手法で作製した金属構造体の例を示す。図(a)、(b)は、銀イオンの水溶液中にレーザー光を集光して、それぞれゲート構造と斜めに傾いたロッドの2つの3次元マイクロ構造体を作製

し、それを電子顕微鏡にて観察した結果である。どちらもガラス基板上に自立しており、物理的な強度も十分であることがわかる。図(c)はAu<sup>3+</sup>をドーピングしたPoly-methyl-methacrylate(PMMA)をガラス基板上にフィルム状に塗布した後、その中に作製した金のメタマテリアル構造である。宿主材料は、単に作製した金属構造を保持するだけでなく、2光子還元法の加工分解能といった加工特性にも影響を及ぼし、材料をうまく選定すると、空間分解能を向上できる事を明らかにした。これは、特に宿主材料中における金属イオンの移動度が、レーザースポット部で消費されるイオンの量とスポット周辺部から拡散によって流入するイオンの量との関係を決定し、これが最終的な加工分解能を決めるからである。

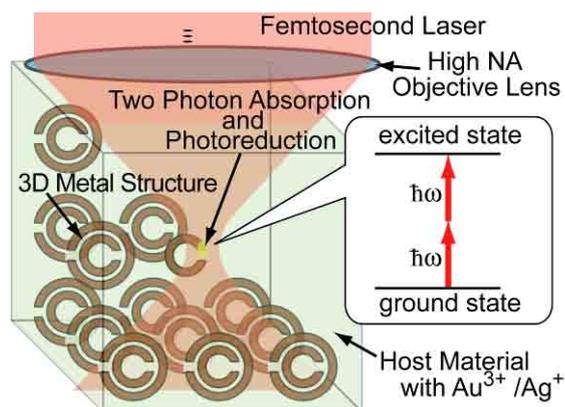


図1 金属イオンの2光子光還元を用いた3次元微細金属構造体の加工法。

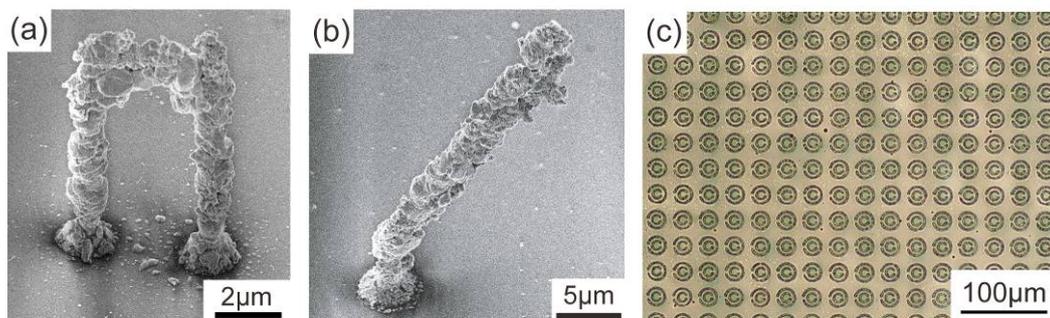


図2 2光子還元法によって作製した金属構造体。

2光子還元法では金属結晶の成長がその加工分解能を大きく左右した。レーザー照射によって金属イオンが還元されて核が生成されると、その核を中心に金属の結晶が急速に成長する。この結晶はレーザーの照射を止めてもわずかに成長を続けるため、レーザー照射部位には約1 μm程度にまで成長した金属結晶が生成され、これが加工分解能を低下させると共に、作製した金属構造の表面の凹凸の原因にもなる。この問題を解決して加工分解能の向上と加工物の表面形状の平滑化を行うことを試みた。

研究提案者は、金属イオンを含む加工材料中に n-decanoylsarcosine sodium(以下 NDSS)という界面活性剤を添加して、金属核が生成されるとすぐにこの界面活性剤の分子が核表面を覆うことで、それ以降の結晶成長を抑制し、結果として加工分解能を向上させると同時に、生成物の表面の凹凸も低下させるという手法を考案した。図3は本手法を用いて作製した銀構造のSEM写

真である。図3(a)はガラス基板表面に描画した銀ラインで、最小線幅で120nmまで細線化された。図3(b)は、それぞれ4本の銀ロッドから構成されるピラミッド構造をガラス表面にアレイ状に加工したものである。各銀ロッドの線幅は約200nmであった。これらの結果が示すように、波長800nmの近赤外フェムト秒レーザーを用いた2光子還元法において、その回折限界を超える100nmの空間分解能で立体的な金属構造を作製できる新しい加工技術の開発に成功した。

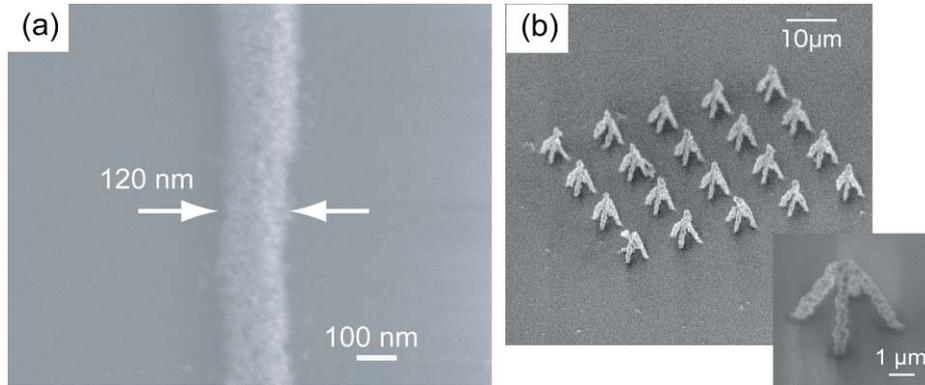


図3 界面活性剤を利用した2光子還元法で作製した3次元ナノ金属構造体

## (2) THz領域メタ実験実証

2光子還元法を利用してメタ材料構造を作製し、これが実際に光の磁場成分と相互作用するかどうかの検証実験を行った。作製したメタ材料構造は図4のように銀製のロッドペアがアレイ状に集積化されたものである。サファイア基板上に作製したロッドペアアレイに対して、光波の磁場成分がロッドペアを垂直に貫くようにs偏波成分の光を入射させ、その反射スペクトルを測定した(図5)。その結果、16.77THzに光波との相互作用に伴う共鳴吸収を観測した。次にこの周波数に測定周波数をセットし、光波の入射角を変化させることで、メタ材料構造を垂直に貫く磁場成分の大きさを変化させて、透過率の入射角度依存性を調べた。この実験では、メタ材料構造と電場成分との相互作用の影響を除去するために、銀ロッドがペアになっていない構造を比較サンプルとして用いて比較実験を行った。測定結果を図6に示す。この結果に示すように、ロッドペアアレイ構造を持つメタ材料の透過光強度のみが入射角の変化(磁場の垂直成分の変化)に応じて変化した。この結果から、2光子還元法を用いて作製したメタ材料構造が、光波の磁場成分と相互作用している事を実験的に確認した。

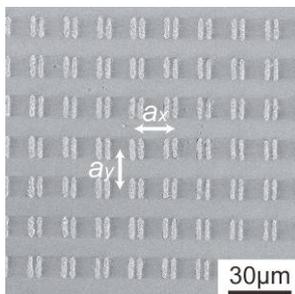


図4 ロッドペアアレイ

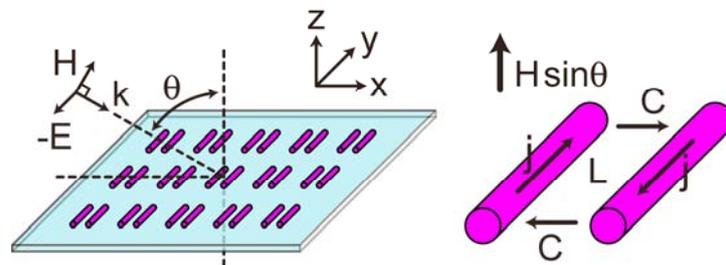


図5 光学測定配置

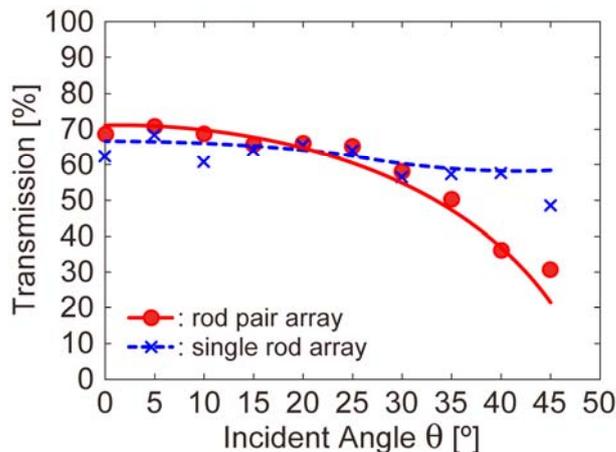


図6 試作したメタマテリアルの磁気応答

### (3) プラズモニック・メタマテリアルを用いた無反射光学素子の提案と設計

メタマテリアルの分野は、2000年頃に提案された負の屈折率媒質とそれを用いた完全レンズのアイデアの報告をきっかけとして活発化したという経緯がある。そのため、メタマテリアルが負の屈折率物質そのものであるとの誤解も多々ある。確かに負の屈折率を持つ物質は自然界には存在しないため、メタマテリアルのような人工物質でしか実現することはできず、メタマテリアルは負屈折率物質を実現する手段の1つである。しかし、提案者は本研究を通してメタマテリアルの可能性は負の屈折率物質の実現だけではなくもっと広いということを再確認し、それを実証する提案を行った。

本プロジェクトで研究したメタマテリアルは狭義には共振型メタマテリアルと呼ばれるもので、共振器と光波との共振現象を利用して物質の誘電率や透磁率を制御するものである。このメタマテリアルは、その共振周波数の高周波数側では透磁率が減少するが、低周波数側では逆に透磁率が上がる。つまり、メタマテリアルを使えば透磁率を下げることも上げることも可能になる。研究提案者は、この正方向に透磁率を制御した材料を利用すれば、p偏光のみならずs偏光に対してもブリュースター(Brewster)現象を発現させることができることを見出し、この現象を利用した光機能素子を提案した。

研究提案者は、図7(a)のように、ある特定の平面内(例えばx-y面)にのみ共振器が配列された異方性メタマテリアルという構造を考案し、これを利用することで、p、s両偏光に対して同時にブリュースター現象を発現させる新しいブリュースター素子を考案した。この素子を利用すれば、屈折率の異なる媒質間を光の反射ロスなく光を透過させることができるようなバッファ素子を実現できる。図7(b)はその一例である。真空中からガラスに向かって光が伝搬している状況で、その界面にメタマテリアルを挿入する。すると偏光に依存せずに光が真空中からガラスへと完全に透過する。これは物質の屈折率の違いによって生じる光子に対するポテンシャル障壁を除去したとも解釈できる。このように、本研究を通して、メタマテリアルは、古典光学では説明できないような未知の光学現象を生み出し、全く新しい光技術の創出へ繋がるものであることを明らかにすることができた。

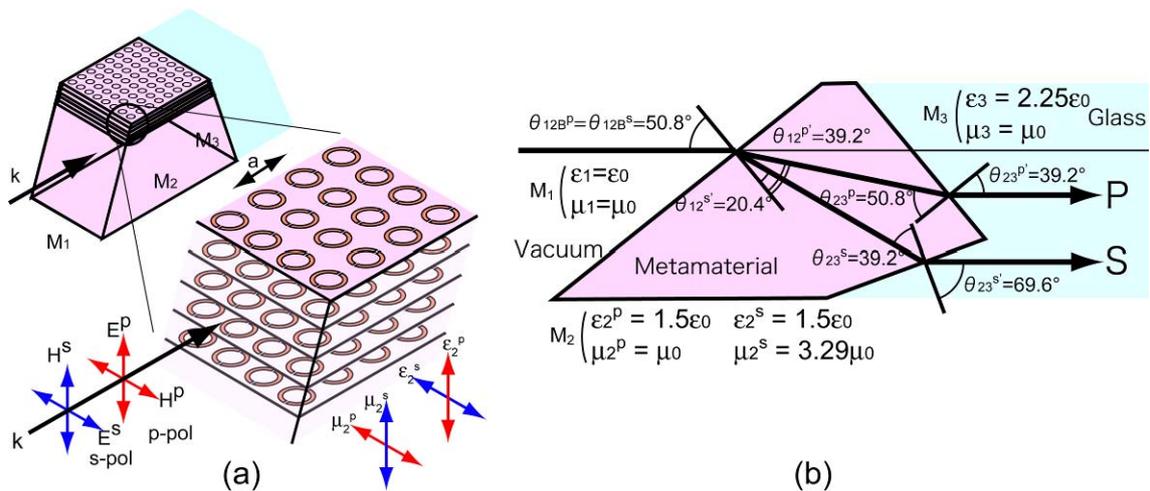


図7 異方性メタマテリアルを用いた偏光無依存ブリュースター素子

#### (4) メタマテリアルの屈折率制御への応用

メタマテリアルの応用として、人工的に透磁率を制御したメタマテリアルが、物質の屈折率を制御する全く新しい手段として利用できることを明らかにした。

物質の屈折率は、比誘電率  $\epsilon$  と比透磁率  $\mu$  のそれぞれの平方根の積で与えられるが、実際には、可視光の周波数領域では、物質の比透磁率  $\mu$  は1.0に固定されているので、屈折率は  $\epsilon$  だけで決定される。すなわち、物質の屈折率を人工的に制御しようとする場合、これまでは  $\epsilon$  しか制御できなかったもので、極めて自由度が小さかった。しかし、メタマテリアル技術を用いて  $\mu$  も変化させることができれば、結果的に高い屈折率や低い屈折率など、より自在に屈折率を制御できるようになることを見出した。

例えば、現在プラスチックレンズに利用されている樹脂の屈折率は1.76程度止まりである。この屈折率を0.04から1.80に上げようとする、 $\epsilon$  に換算して0.14も上げなければならず、これは今日の技術では困難な課題である。しかし、これを  $\mu$  の変化で補助すると状況は変わる。 $\mu$  の変化は  $\epsilon$  に対して掛け算で効くので、もともと1.0である  $\mu$  の値を僅か0.046だけ上げて1.046にするだけで、屈折率は1.76から1.80に変化する。0.046の変化で良ければ、大きなQ値を持つ共振器を作る必要はないので、可視光全域にわたるような広い帯域を実現することも可能である。このように、これまで利用することができなかった透磁率というパラメータを制御できるメタマテリアル技術を使えば、これまでとは全く異なる屈折率制御技術を生み出すことができることを理論的に明らかにした。

#### 5. 自己評価

本研究を通して、人工的に作製した金属ナノ構造で構成されたプラズモニック・メタマテリアルが全く新しい光機能性材料として動作し、これまでの光学理論では説明できない新たな光学現象を発現させることができることを明らかにできた。

さらに、このメタマテリアルを実現する上で1つのブレークスルーとなる3次元ナノ金属加工技術を提案・開発し、実際に実験を通してその有効性を確認することができた。この技術は、世界的に見ても研究提案者のみが持つオンリーワンの技術として、このコミュニティ内で認識されており、本研究プロジェクトの成果の中でもビジビリティの高い成果として一定の結果を示すことができたと考えている。

また、研究開始当初は可視光域で動作するメタマテリアルにターゲットを絞っていたが、研究が進むと同時に最近では THz波や紫外光域におけるメタマテリアルの検討も進み、周波数帯域においても幅広く拡張することができた。この成果は、メタマテリアルという研究テーマの幅の広さ、奥の深さを具体的に示すことに繋がり、本さきがけ研究成果が今後の研究テーマの基盤になると確信するに至った。

一方で、可視域のメタマテリアルの実現に関しては、未だ試作実験を続けている段階であり、研究プロジェクト期間内に目に見える形のサンプルを作る事はできなかった。これは、可視光域で動作するメタマテリアルを実現するためには、50nm 程度の空間分解能を持つ金属加工技術が必要であり、さらなる加工分解能の向上が必要であることに加え、その極微小の基本素子を膨大な数集積化しなければならないという、基本素子のサイズとメタマテリアル全体のサイズとのスケールの違いに対応できる高速性、大量生産性を実現できなかった事が原因である。これらの課題については今後も研究を継続する予定である。

## 6. 研究総括の見解

人工的に導入したナノサイズの金属構造によって、物質の光学的な性質を操作する技術と、それを用いた全く新しい人工光学材料である“プラズモニック・メタマテリアル”の創製を目指した研究を行った。

主たる成果は次の3点である。

### 1) 3次元ナノ金蔵構造の作製技術の開発—「2光子還元法」の開発

波長800nmの近赤外フェムト秒レーザーを用いた2光子還元法において、その回折限界を超える100nmの空間分解能で立体的な金属構造を作製できる新しい加工技術の開発に成功した。

### 2) プラズモニック・メタマテリアルを用いた無反射光学素子

異方性メタマテリアルという構造を提案し、p, s両偏光に対して同時にブリュースター現象を発生させる新しいブリュースター素子を考案した。これは、メタマテリアルは古典光学では説明できないような未知の光学現象を生み出し、全く新しい光技術の創出へ繋がるものであることを明らかにしている。

### 3) メタマテリアルの屈折率制御への応用

メタマテリアルの応用として、人工的に透磁率を制御したメタマテリアルが、物質の屈折率を制御する全く新しい手段として利用できることを明らかにした。

理論的で独創的な研究手法で金属ナノ構造を実現させ、3次元的なナノサイズの新しい金属ナノ加工技術開発を世界にさきがけて成功したことは高く評価できる。

研究成果は、13件の原著論文、特許出願6件、学会発表19件に纏められ、“ISOM09 Best Academic Paper Award”、第14回 東京テクノ・フォーラム21 ゴールド・メダル賞などを受賞している。更に特筆すべきは反響の大きさであり、招待講演74件、著書・解説論文22件、メディア発表21件を数えている。判りやすい実世界での応用を示し、社会からの期待の大きさを表している。

今後、可視光域で動作するメタマテリアルを実現するために、微細金属加工技術の積み上げと化学的な合成手段など別手法を取り入れ、メタマテリアルによって実現できる新奇な光学現象・効果を探究して行くことを期待する。

## 7. 主な論文等

(A) さきがけ個人研究者主導で得られた成果で主なもの

(1) 論文(原著論文)発表・・・重要なもの5件を記載、全13件。

- Yao-Yu Cao, Nobuyuki Takeyasu, Takuo Tanaka, Xuan-Ming Duan, and Satoshi Kawata, "3D Metallic Nano-Structure Fabrication By Surfactant-Assisted Multi-Photon-Induced Reduction," *Small* **5**, pp. 1144-1148 (2009).
- Atsushi Ishikawa, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata, "Magnetic Excitation of Magnetic Resonance in Metamaterials at Far-Infrared Frequencies," *Applied Physics Letters* **91**, 113118 (2007).
- Atsushi Ishikawa, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata, "Frequency dependence of the magnetic response of split-ring resonators," *Journal of the Optical Society of America B* **24**, pp. 510-515 (2007).
- Atsushi Ishikawa, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata, "Improvement in the reduction of silver ions in aqueous solution using two-photon sensitive dye," *Applied Physics Letters* **89**, 113102 (2006).
- Takuo Tanaka, Atsushi Ishikawa, and Satoshi Kawata, "Unattenuated light transmission through the interface between two materials with different indices of refraction using magnetic metamaterials," *Physical Review B* **73**, 125423 (2006).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 6件

- 発明者: Takuo Tanaka and Satoshi Kawata,  
発明の名称: "OPTICAL MATERIAL, OPTICAL DEVICE FABRICATED THEREFROM, AND METHOD FOR FABRICATING THE SAME",  
出願人: 理化学研究所  
出願日: 11/455092 (2006/6/19), US2007-0140060-A1 (2007.1.18), US 7532397 (2009.5.12).
- 発明者: 田中拓男, 武安伸幸, 河田聡  
発明の名称: "パルスレーザー発生装置およびパルスレーザー発生方法"  
出願人: 理化学研究所  
出願日: 特願 2008-111610 (2008.4.22).
- 発明者: 田中拓男, 武安伸幸, 河田聡,  
発明の名称: "3次元ナノ金属構造体の光還元加工方法"  
出願人: 理化学研究所  
出願日: 特願 2008-077913 (2008.3.25).
- 発明者: 田中拓男, 武安伸幸, 河田聡  
発明の名称: "微粒子表面への金属コーティング方法および該方法によって金属コーティングされた微粒子"

出願人: 理化学研究所  
出願日: 特願 2007-174981 (2007.7.3).

- ・ 発明者: 武安伸幸, 田中拓男, 河田聡  
発明の名称: “金属コーティング方法および金属リングの製造方法”  
出願人: 理化学研究所  
出願日: 特願 2007-174980 (2007.7.3).

(3) 解説論文・・・直近のもの5件を記載、全14件。

- ・ 田中拓男, “プラズモニク・メタマテリアル,” 工業材料 **58**, pp. 68-69 (2010).
- ・ 田中拓男, “プラズモニク・メタマテリアル,” NEW GLASS (2010) (in printing).
- ・ 田中拓男, “2光子還元法を用いた3次元ナノ金属構造のレーザー加工,” レーザ加工学会誌 (2010) (in printing).
- ・ 田中拓男, “プラズモニク・メタマテリアルを用いた人工磁気光学材料,” 未来材料 **9**, pp. 22-28 (2009).
- ・ 田中拓男, “メタフォトンクスー限界を超える光学材料を目指して,” 日本磁気学会会報「まぐね」 **4**, pp. 476-483 (2009).

(4) 著書・・・直近のもの5件を記載、全8件。

- ・ Takuo Tanaka, “Using metamaterials to defy our common understanding of light,” RIKEN RESEARCH, pp. 13-16 (2009).
- ・ 田中拓男(取材:井上憲人), “メタマテリアルをデザインする3D レーザ加工技術,” Laser Focus World JAPAN, pp. 44-46 (2009).
- ・ 田中拓男, “金や銀などの金属イオンに光を当てて結晶化させる方法で金属の立体構造をナノスケールで自在に形成する技術を確立!,” JST News, p. 4 (2009).
- ・ 田中拓男, “次世代光メモリとシステム技術 第4章1「ホログラフィックメモリその技術と課題」,” (株)シーエムシー出版, pp. 166-179 (2009).
- ・ 田中拓男, “光学材料の屈折率制御技術の最前線(仮) 第3章 プラズモニク・メタマテリアル,” (株)シーエムシー出版 (2009).

(5) 招待講演(国際会議)・・・直近のもの5件を記載、全32件。

- ・ Takuo Tanaka, “Plasmonic metamaterials: their properties, fabrication technique, and applications,” RIKEN-Lund-Harverd Joint Symposium (理研, 和光キャンパス, Japan) (2009.11.17) (2009) (Invited).
- ・ Takuo Tanaka, “Plasmonic Metamaterials,” Japan-America Frontiers of Engineering Symposium (UC Irvine, US, US) (2009.11.9) (2009) (Invited).
- ・ Takuo Tanaka, “Two-photon fabrication of three-dimensional metal structures for isotropic metamaterials,” The 4th International Symposium on Integrated Molecular/Materials Engineering (Sichuan Univ. Chengdu, China) (2009.10.27) (2009) (Invited).
- ・ Takuo Tanaka, “Nano-scale fabrication technique of three-dimensional metal structures for plasmonic metamaterials,” SPIE International Symposium on

- NanoScience+Engineering (SanDiego Convention Center, SanDiego, U.S.A.) (2009.8.2) (2009) (Invited).
- Nobuyuki Takeyasu, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata, "Enhancement of spatial resolution with high sensitive photo-initiators in two-photon induced polymerization," SPIE International Symposium on NanoScience + Engineering (SanDiego, USA) (2009.8.3) (2009) (Invited).
- (6) 招待講演(国内会議)・・・直近のもの5件を記載、全42件。
- 田中拓男, "プラズモニク・メタマテリアル," 日本オプトメカトロニクス協会セミナー 基礎からよく分かる「ナノ領域の光学」入門 (機会振興会館, 東京) (2010.2.5) (2010) (Invited).
  - 田中拓男, "プラズモニク・メタマテリアル[Tentative]," 日本磁気学会 第170回研究会 (化学会館) (2010.1.29) (2010) (Invited).
  - 田中拓男, "プラズモニク・メタマテリアルとは," 日本科学未来館 サイエンスクロスロード(Closed) (日本科学未来館) (2010.1.25) (2010) (Invited).
  - 田中拓男, "Plasmonic Metamaterials and their related topics," 東北大学多元物質研究所 中川研セミナー(Closed) (東北大学, 仙台) (2010.1.18) (2010) (Invited).
  - 田中拓男, "メタマテリアル," (株)日立製作所 「光学応用装置の基礎技術(応用編)」 (Closed) (日立研修所, 東京) (2009.12.18) (2009) (Invited).
- (7) 学会発表(国際会議)・・・直近のもの5件を記載、全12件。
- Takuo Tanaka, Takanobu Higuchi, Tetsuro Koga, and Ayumi Mitsumori, "Plasmonic three-dimensional optical disk with ten recording layers," International Symposium on Optical Memory 2009 (Nagasaki Brick Hall, Nagasaki, Japan), (2009.10.8) (2009).
  - Nobuyuki Takeyasu and Takuo Tanaka, "Analysis of Spatial Resolution on Two-Photon Polymerization," International Symposium on Engineering Micro-/Nano-Materials based on Self-Assembling and Self-Organization (ISEM2008 Returns) (Miraikan, Japan), (2008.12.9) (2008).
  - Takuo Tanaka, "Nano-scale fabrication of three-dimensional metallic structures for plasmonic metamaterials," Gordon Research Conference, Plasmonics (Tilton, NH, USA), (2008.7.27) (2008).
  - Xuan-Ming Duan, Yao-Yu Cao, Wei-Kang Wang, Xian-Zi Dong, Wei-Qiang Chen, Nobuyuki Takeyasu, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata, "Metallic Structures with Nanometer Scale Resolution Fabricated by Direct Laser Photoreduction and Selected Surface Metallization," PIREs (2007).
  - Nobuyuki Takeyasu, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata, "Two-photon Initiators with High Initiating Efficiency for Fabrication of Nanophotonic Devices," 2008 MRS (Material Research Society) Meeting (San Francisco, CA, USA), (2008.3.25) (2008).
- (8) 学会発表(国内会議)・・・直近のもの5件を記載、全8件。
- 田中拓男, "プラズモニク・メタマテリアル," 第10回エクストリーム・フォトニクス研究会 (蒲郡, 愛知県), pp. 3-5 (2009.11.4) (2009).
  - 田中拓男, "プラズモニク・メタマテリアル," 第56回応用物理学関係連合学術講演会

- (つくば大学), 0, p. 139 (2009.3.31) (2009).
- ・ 田中 拓 男, “Nanofabrication technique of 3D metal structures for plasmonic metamaterials,” 理研シンポジウム 第7回ナノフォトニクス&メタマテリアルシンポジウム (理研, 埼玉), (2008.11.7) (2008).
  - ・ 武安伸幸, 田中拓男, 河田聡, “サイト選択金属コーティング法とその3次元機能デバイスへの応用,” レーザー学会第 28 回年次大会 (名古屋国際会議場, 名古屋) (2008.1.31) (2008).
  - ・ 田中拓男, 武安伸幸, 河田聡, “共振型プラズモニック・メタマテリアル,” 第 53 回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム「電磁メタマテリアル」講演予稿集 (青山学院大学相模原キャンパス) (2007.3.27) (2007).

(9)メディア発表・・・直近のもの5件を記載、全21件。

- ・ 田中拓男 (取材 サイテック・コミュニケーションズ 池田亜希子), “もっと光を有効利用するために 光工学を変えるプラズモニクス”, 化学と工業.
- ・ 田中拓男, “透明人間”姿を見せた”, 日本経済新聞 2009 年 7 月 19 日 朝刊 13 面.
- ・ 田中拓男, “金や銀などの金属イオンに光を当てて結晶化させる方法で金属の立体構造をナノスケールで自在に形成する技術を確立!”, JST News 2009 年 5 月号.
- ・ 田中拓男 (取材:Newton 編集部土屋健), “立体ナノ構造を”生み出す”レーザー”, Newton 2009 年 7 月号.
- ・ 田中拓男, “光を手なずけ・・・目標は「透明人間」”, 産経新聞 2009 年 3 月 17 日 朝刊 22 面.

(10)受賞

- ・ ISOM2009, Takuo Tanaka, Takanobu. Higuchi, Tetsuro. Koga, and Ayumi. Mitsumori, “ISOM09 Best Academic Paper Award “Plasmonic three-dimensional optical disk with ten recording layers”, ISOM (2009) .
- ・ 第 14 回 東京テクノ・フォーラム21 ゴールド・メダル賞, 田中拓男, “メタマテリアルを駆使したプラスチックレンズの先端的基盤技術の開発”, 東京テクノフォーラム21 (2008) .
- ・ 第 11 回 2007 年度 丸文研究奨励賞, 田中拓男, “プラズモニック・メタマテリアルの創製と新奇光デバイスへの展開”, 財団法人 丸文研究交流財団 (2008) .
- ・ 平成 18 年度 第 48 回光学論文賞 , 田中拓男, “Unattenuated light transmission through the interface between two materials with different indices of refraction using magnetic metamaterials, Physical Review B 73, 12, 125423 (2006),” 応用物理学会分科会 日本光学会 (2007) .