戦略的創造研究推進事業 個人型研究(さきがけ) 追跡評価用資料

研究領域 「光の創成・操作と展開」 (2005 年度~2010 年度)

研究総括:伊藤 弘昌

2019年3月

要旨	∄		.1
第1	自章 追	跡調査概要	. 3
1	.1 研究	帘領域概要	. 3
	1.1.1	戦略目標	. 3
	1.1.2	研究領域概要	.4
	1.1.3	研究総括	.4
	1.1.4	領域アドバイザー	. 5
	1.1.5	研究課題及び研究者	. 6
1	.2 研究	光領域終了後の発展と波及効果	.8
	1.2.1	研究成果の発展状況や活用状況	.8
	1.2.2	研究成果から生み出された科学技術や社会経済への波及効果	. 8
1	.3 研究	光領域の展開状況(系譜図)	10
第2	2章 追	跡調査(研究領域全体動向)	13
2	.1 追助	亦調査について	13
	2.1.1	調査の目的	13
	2.1.2	調査の対象	13
	2.1.3	調査方法	13
2	.2 研究	究成果概要	16
	2.2.1	研究助成金	16
	2.2.2	論文	22
	2.2.3	特許	24
2	.3 科学	学技術や社会・経済への波及効果	26
	2.3.1	科学技術への波及効果	26
	2.3.2	社会・経済への波及効果	28
第3	3章 各	研究課題の主な研究成果及び波及効果	30
3	. 1 200	5年度採択研究課題	30
	3. 1. 1	光伝導アンテナによる光電場の直接検出(芦田昌明)	30
	3.1.2	高強度超短パルス短波長光中の原子分子ダイナミクス(石川顕一)	35
	3.1.3	位相コヒーレント真空紫外パルスによる精密原子分光(井戸哲也)	41
	3.1.4	位相制御光による量子的分子操作と極限計測技術への展開(大村英樹)	46
	3.1.5	トポロジカル光波シンセシス(尾松孝茂)	52
	3.1.6	分子光変調による超高繰り返し超短パルス光の発生(桂川眞幸)	57
	3.1.7	ナノ光学素子中のプラズモンダイナミクスのフェムト秒映像化(久保敦)	62
	3. 1. 8	原子波回路を用いた物質波ソリトンの光学的制御(熊倉光孝)	68
	3.1.9	コヒーレント物質波制御による電子・光子の操作(長谷宗明)	73

目次

3.1.	10 光電子ホログラフィーによるレーザー場反応追跡(菱川明栄)	. 79
3.2 20	006 年度採択研究課題	. 86
3. 2.	1 キャビティ QED による原子と光子の量子操作(青木隆朗)	. 86
3. 2. 2	2 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(蘆原聡)	. 91
3. 2. 3	3 光格子によるアトムトロニクスのためのデバイス開発(木下俊哉)	. 96
3. 2.	4 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	
	-(櫛引俊宏)	100
3. 2. 5	5 光子数確定パルスの空間制御理論(越野和樹)	104
3.2.0	6 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(田中拓男)	
		109
3.3 20	007 年度採択研究課題	114
3. 3. 1	1 高次高調波のコヒーレンスを利用した分子動画観測(板谷治郎)	114
3. 3. 2	2 多光子波束による物質の非線形光学応答(清水亮介)	119
3. 3. 3	3 テラヘルツ電磁波による高速電子スピン操作(永井正也)	124
3. 3. 4	4 量子ドットによる光・量子メモリの創出と高光非線形性の探求(早瀬潤子)	129
3. 3. 5	5 デコヒーレンスフリーな非発散波束の生成と量子制御への応用(前田はるか)	133
3. 3. 6	6 フラクタル構造による光制御可能性の探索と光機能素子の創製(宮丸文章)	138
3. 3. 7	7 重力波検出技術が拓く超巨視的量子性の物理(三代木伸二)	141
3. 3. 8	8 強高度レーザーによる超高分解能4次元時空イメージング(森下亨)	145
第4章	科学技術イノベーションの創出に資する研究成果	150
4.1 F	、ポロジカル光波シンセシス(尾松孝茂)	150
4.1.1	1 研究の概要	150
4. 1. 2	2 研究成果の波及と展望	154
4.2 キ	テャビティ QED による原子と光子の量子操作(青木隆朗)	156
4.2.1	1 研究の概要	156
4. 2. 2	2 研究成果の波及と展望	161
4.3 高	哥次高調波のコヒーレンスを利用した分子動画観測(板谷治郎)	163
4.3.1	1 研究の概要	163
4. 3. 2	2 研究成果の波及と展望	167

本資料は、戦略的創造研究推進事業のさきがけ(個人型研究)の研究領域「光の創成・操作 と展開」(2005年度~2010年度)において、研究終了後一定期間を経過した後、副次的効果 を含めて研究成果の発展状況や活用状況を明らかにし、国立研究開発法人科学技術振興機 構(JST)の事業及び事業運営の改善などに資するために、追跡調査を実施した結果をまとめ たものである。

本研究領域では、「光の究極的及び局所的制御とその応用」が戦略目標として設定され、 我が国が比較的優位に立っている光・光量子科学技術を核にした次世代基盤技術の早期開 拓に資する研究が行われた。

光·光量子科学技術は、非常に幅広い多様な研究分野に関わりを持つ、横断的で重要な基 盤となる分野である。本領域では、新たな光の創成につながるものとして、光による原子・ 分子の制御、光の波長・振動数、位相、エネルギー密度などの光の本質の理解に関する研究、 光の操作・展開に発展するものとして、赤外・可視・紫外の広範な波長領域の光の発生・伝搬・ 検知の手法・技術や素子等に関する研究、光と物質の局所的相互作用に関する研究、並びに、 光技術の医療に向けた研究を対象とした。これらの研究を通して、新たな原理の発見、方 法論の創出がなされ、革新的な技術展開につなげることを希求して、本研究が行われた。

これらの研究成果として、学術論文においては研究期間中に 247 報、研究領域終了後に は 413 報が、また、終了後の国際学会への招待講演が合計で 280 件に達した。特許におい ては研究期間中に国内出願が 29 件、海外出願が 7 件、研究領域終了後に国内出願が 26 件、 海外出願が 12 件行われており、実用化につながる活動が行われた。さらに、JST 戦略的創 造研究推進事業において個人研究型のさきがけから、グループ研究型の CREST へ発展させ たものが 3 件、科学研究費助成事業(科研費)新学術領域研究の研究課題に発展させたもの が 4 件、さらに、独創的・先駆的な研究である科研費基盤研究(S)、内閣府最先端・次世代 研究開発支援プログラム(NEXT)に発展したものが各 1 件あった。これらは研究助成金が 1 億円を超える大型の研究プロジェクトである。また、JST 研究成果展開事業の産学共創基礎 基盤研究プログラムへ発展したものが 2 件、総務省の SCOPE、防衛省研究開発事業が各 1 件 あった。本研究領域で得られた研究成果は研究終了後も継続的に発展、進化し、現在も取 り組まれている。

代表的な研究成果の事例として「トポロジカル光波シンセシス」の尾松孝茂、「キャビテ ィ QED による原子と光子の量子操作」の青木隆朗が挙げられ、基礎研究から応用を目指し た研究開発を推進している。「高強度超短パルス短波長光中の原子分子ダイナミクス」の石 川顕一、「高次高調波のコヒーレンスを利用した分子動画観測」の板谷治郎らは、アト秒科 学の基盤技術の研究開発を発展させている。また、「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」の田中拓男、「テラヘルツ電磁波による高速電子スピン操作」 の永井正也は、異分野連携や共同研究による基礎研究から応用を目指した研究開発を推進

1

している。

上記のようなその後の研究進展を、以下の構成に沿って、本報告書をまとめる。

第1章は、本追跡調査の概要であり、研究領域の戦略目標、領域概要、研究総括、領域 アドバイザー、研究課題と研究者を記載するとともに、研究領域終了後にどのように研究 が発展したか、どのような新たな科学技術上の成果が生み出されたか、あるいは得られた 成果が社会や経済にどのような影響を及ぼしたか、また及ぼす可能性があるかの概要を記 述した。

第2章では、各研究者について研究期間中及び終了後の一連の研究成果やその展開状況 を調査した結果をまとめた。2.1項で本調査の目的と対象、調査方法を記載した。2.2項は 研究成果概要で、各研究者が本研究開始後に獲得した研究助成金、研究開始後に発表した 原著論文の数、出願及び登録された特許の数をまとめた。2.3項は科学技術や社会・経済へ の波及効果として、各研究者の受賞、学会・研究会などへの貢献、共同研究、その他の活 動状況を調査した結果をまとめた。

第3章では、研究者ごとに、研究期間中の達成状況とともに、研究終了後の研究の継続 と発展状況についてまとめた。特に、科学技術の進歩への貢献及び社会的、経済的な波及 効果の観点から記述し、あわせて研究成果に関連した代表的な成果論文を提示した。

第4章では、本研究終了後、特徴ある成果を上げている研究者のうち、3名の研究者にインタビューを行い、本研究領域の期間中から現在に至る研究課題に関わる国内の状況、海外での共同研究の状況、さらに、科学技術や社会・経済への波及と展望をまとめた。

第1章 追跡調査概要

1.1 研究領域概要

1.1.1 戦略目標

戦略目標「光の究極的及び局所的制御とその応用」

文部科学省は2005年度に「光の究極的及び局所的制御とその応用」という戦略目標を設 定した。光・光量子科学技術は、非常に幅広い多様な研究分野に関わりを持つ横断的で重 要な基盤となる分野である。また、天然資源に乏しい我が国は、人的資源の活性化を基に 新規産業を世界に先駆けて創出し、産業面での国際競争力を確保・持続していく必要があ る。このため、我が国が比較的優位に立っている光・光量子科学技術を核にした次世代基 盤技術を早期に開拓することを戦略目標に据えたものである。

具体的な達成目標は、以下のとおりとした。

①光による原子の量子的制御と量子極限光の開拓

・ボース・アインシュタイン凝縮やフェルミ凝縮などを利用した光による原子の精密制御の開拓や光の本質に基づく新たな物質科学の創出

②光と物質の局所的相互作用に基づく新技術の創出

- ・近接場光などを活用した回折限界を超えた超微細加工技術の高度化
- ・非線形光学や近接場光などのナノ構造・生体物質の観察・分析技術への展開 ③究極的な光の発生技術とその検知技術の創出
- ・究極的に高品質な光源及び超小型光情報処理素子の実現を目指した量子ドット、フォトニック結晶、非線形光学などの飛躍的発展
- ・量子通信や極限計測技術の飛躍を目指した単一光子光源や単一光子検出技術の創出

目標設定の背景及び社会経済上の要請は以下のとおりである。

- ・量子ドット、フォトニック結晶、非線形光学などの研究開発による高品質の光発生及び近接場光を始めとする光と物質との局所的相互作用の解明と利活用は極めて重要であり、我が国において最先端の研究を進めている。これらの研究開発は基礎科学への貢献のみならず、産業界への応用など多様な波及効果も期待されることから、今後も我が国が世界をリードしていくために、更に強化を図る必要がある。
- ・原子の量子制御技術や量子極限光の研究は、光と物質の相互作用や光の本質を解明することによって、光に関する研究開発全体の基礎となるものであり、中長期的な観点から研究開発に取り組んでいく必要がある。

目標設定の科学的裏付けは以下のとおりである。

- ・我が国が主導的に研究開発を行って世界をリードしてきた量子ドットやフォトニック 結晶などについては、その利活用が望まれる段階に至っている。また、非線形光学効 果活用は材料面での地道な努力などにより、更なる進展が期待される。
- ・光・光量子科学技術のいまだ十分に解明されていない本質的な課題である量子レベルでの物質との相互作用や非線形性の起源などを探究することは、今後の科学技術の展開に必須のものであり、学術的に大きな意義を有する。

1.1.2 研究領域概要

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した。

具体的には、赤外、可視、紫外のみならず広範な波長領域を対象とした、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、などが挙げられる。これら の研究によって、新たな原理の発見、方法論の創出がなされ、革新的な技術展開の契機と なることを期待したものである。

1.1.3 研究総括

伊藤 弘昌 (国立研究開発法人理化学研究所客員主管研究員、東北大学名誉教授)

1.1.4 領域アドバイザー

本研究領域の幅広い技術範囲をカバーするため、専門分野や研究テーマのバランスを十 分に考慮し、物理、工学の分野で豊富な知識と経験をする研究者 15 名を、領域アドバイザ ーとした。表 1-1 に本研究領域の領域アドバイザーを示す。このうち、2006 年度に発足し たさきがけ研究領域「物質と光作用」の筒井哲夫研究総括も領域アドバイザーとして加わ っている。

研究者にとっては、専門分野からの助言とともに、多彩なアドバイザー陣による多方面 からの指摘が大きなインパクトとなり研究推進に役立った。また、研究領域「物質と光作 用」とは、有志による領域相互交流に発展し、研究者の研究分野を広げるのに大きく役立 った。

領域アドバイザー	所属	役職	任期
伊澤 達夫	NTT エレクトロニクス(株)	取締役・相談役	2005年4月~2011年3月
占部 伸二	大阪大学	教授	2005年4月~2011年3月
枝松 圭一	東北大学	教授	2005年4月~2011年3月
江馬 一弘	上智大学	教授	2005年4月~2011年3月
桜井 照夫	産業技術総合研究所	シニアアドバイザー	2005年4月~2011年3月
笹木 敬司	北海道大学	教授	2005年4月~2011年3月
栖原 敏明	大阪大学	教授	2005年4月~2011年3月
張 紀久夫	大阪大学	名誉教授	2005年4月~2011年3月
筒井 哲夫	九州大学	教授	2006年4月~2011年3月
富永 淳二	産業技術総合研究所	センター長	2005年4月~2011年3月
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	2005年4月~2011年3月
野田 進	京都大学	教授	2005年4月~2011年3月
緑川 克美	理化学研究所	主任研究員	2005年4月~2011年3月
横山 弘之	東北大学	教授	2005年4月~2011年3月
覧具 博義	東京農工大学	教授	2005年4月~2011年3月

表 1-1 領域アドバイザー

注)所属と役職はさきがけ終了時点を記載

1.1.5 研究課題及び研究者

2005年10月に第1期研究者10名の精鋭を集めて発足し、2006年10月に第2期研究者6 名、2007年10月に第3期研究者8名を加え、計24名のバーチャルラボを形成した。本追 跡調査で対象とする研究者名と研究課題、及び採択時、終了時、追跡調査時(現在)の所属 と役職を表1-2に示す。第3期には1名の女性研究者が採択されている。

表 1-2 研究課題と研究者(第1期、第2期、第3期)

期 (採択年度)	研究課題	研究者	採択時の 所属・役職	終了時の 所属・役職	追跡調査時の 所属・役職
	光伝導アンテナによる光電 場の直接検出	芦田 昌明	大阪大学大学院基 礎工学研究科 助 教授	大阪大学大学院基 礎工学研究科 助 教授	大阪大学大学院基 礎工学研究科 教 授
	高強度超短パルス短波長光 中の原子分子ダイナミクス	石川 顕一	東京大学大学院工 学系研究科 助教 授	(国研)理化学研究 所次世代計算科学 研究開発プログラ ム 上級研究員	東京大学大学院工 学系研究科(工学 部) 教授
	位相コヒーレント真空紫外 パルスによる精密原子分光	井戸 哲也	JILA(米国) Research associate	(国研)情報通信研 究機構光・時空標準 グループ 主任研 究員	(国研)情報通信研 究機構電磁波研究 所時空標準研究室 研究室長
	位相制御光による量子的分 子操作と極限計測技術への 展開	大村 英樹	(国研)産業技術総 合研究所計測フロ ンティア研究部門 研究員	(国研)産業技術総 合研究所計測フロ ンティア研究部門 主任研究員	(国研)産業技術総 合研究所機能化学 研究部門 主任研 究員
第1期 (2005年10 月~2009年	トポロジカル光波シンセシ ス	尾松 孝茂	千葉大学工学部 助教授	千葉大学工学部 教授	千葉大学大学院融 合科学研究科 教 授
3月)	分子光変調による超高繰り 返し超短パルス光の発生	桂川 眞幸	電気通信大学電気 通信学部 助教授	電気通信大学電気 通信学部 准教授	電気通信大学大学 院情報処理工学研 究科 教授
	ナノ光学素子中のプラズモ ンダイナミクスのフェムト 秒映像化	久保 敦	さきがけ専任: University of Pittsburgh Postdoctoral fellow	筑波大学大学院数 理物質科学研究科 助教	筑波大学数理物質 系物理学域 講師
	原子波回路を用いた物質波 ソリトンの光学的制御	熊倉 光孝	京都大学大学院理 学研究科 助手	福井大学大学院工 学研究科 准教授	福井大学大学院工 学研究科 准教授
	コヒーレント物質波制御に よる電子・光子の操作	長谷 宗明	(国研)物質・材料研 究機構材料研究所 主任研究員	筑波大学大学院数 理物質科学研究科 助教授	筑波大学数理物質 科学研究科 教授
	光電子ホログラフィーによ るレーザー場反応追跡	菱川 明栄	自然科学研究機構 分子科学研究所 准教授	自然科学研究機構 分子科学研究所 准教授	名古屋大学大学院 理学研究科物質理 学専攻 教授
	キャビティ QED による原子 と光子の量子操作	青木 隆朗	東京大学大学院工 学系研究科 助手	京都大学大学院理 学研究科 准教授	早稲田大学理工学 術院応用物理学科 教授
第2期 (2006年10 日~2010年	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	蘆原 聡	東京大学生産技術 研究所 助手	東京農工大学大学 院共生科学技術研 究院 特任准教授	東京大学生産技術 研究所 准教授
3)	光格子によるアトムトロニ クスのためのデバイス開発	木下 俊哉	The Pennsylvania State University(米国) Post-doctoral fellow	京都大学大学院人 間・環境学研究科 准教授	京都大学大学院人 間・環境学研究科 准教授

期 (採択年度)	研究課題	研究者	採択時の 所属・役職	終了時の 所属・役職	追跡調査時の 所属・役職
第2期	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-	櫛引 俊宏	大阪大学大学院工 学研究科環境・エネ ルギー工学専攻 特任助手	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	防衛医科大学校医 学教育部医学科 准教授
(2006年10 月~2010年	光子数確定パルスの空間制 御理論	越野 和樹	和歌山大学システ ム工学部 助手	東京医科歯科大学 教養部 准教授	東京医科歯科大学 教養部 准教授
3月)	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	田中 拓男	(国研)理化学研究 所中央研究所 先 任研究員	(国研)理化学研究 所基幹研究所 准 主任研究員	(国研)理化学研究 所 主任研究員 田中メタマテリア ル研究室長
	高次高調波のコヒーレンス を利用した分子動画観測	板谷 治郎	JST ERATO 腰原非平 衡ダイナミクスプ ロジェクト 研究 員・グループリーダ ー	東京大学物性研究 所 准教授	東京大学物性研究 所 准教授
	多光子波束による物質の非 線形光学応答	清水 亮介	JST CREST ナノテク デバイス 研究員	電気通信大学先端 領域教育研究セン ター 特任准教授	電気通信大学 准 教授
	テラヘルツ電磁波による高 速電子スピン操作	永井 正也	京都大学大学院理 学研究科 助教	大阪大学大学院基 礎工学研究科 准 教授	大阪大学大学院基 礎工学研究科 准 教授
第3期 (2007年10	量子ドットによる光・量子 メモリの創出と高光非線形 性の探求	早瀬 潤子	(国研)情報通信研 究機構第一研究部 門新世代ネットワ ーク研究センター 専攻研究員	慶應義塾大学理工 学部 物理情報工学 科 准教授	慶應義塾大学理工 学部 准教授
月~2011年 3月)	デコヒーレンスフリーな非 発散波束の生成と量子制御 への応用	前田 はるか	University of Virginia Department of Physics Research Scientist	青山学院大学理工 学部物理・数理学科 准教授	青山学院大学理工 学部物理・数理学科 教授
	フラクタル構造による光制 御可能性の探索と光機能素 子の創製	宮丸 文章	信州大学理学部物 理科学科 助教	信州大学理学部物 理科学科 助教	信州大学学術研究 院理学系 准教授
	重力波検出技術が拓く超巨 視的量子性の物理	三代木 伸二	東京大学宇宙線研 究所 助教	東京大学宇宙線研 究所 助教	東京大学宇宙線研 究所 准教授
	強高度レーザーによる超高 分解能4次元時空イメージ ング	森下 亨	電気通信大学電気 通信学部 助教	電気通信大学大学 院情報理工学研究 科 助教	電気通信大学コヒ ーレント光量子科 学研究機構量子科 学研究センター 教授

1.2 研究領域終了後の発展と波及効果

1.2.1 研究成果の発展状況や活用状況

研究終了後、総額1億円以上の研究助成金を得て研究成果を発展させたものとして以下 のものがある。JST戦略的創造研究推進事業の個人研究型のさきがけから、グループ研究型 のCRESTへ発展させたものが3件あり、研究代表者として尾松、石川、青木が採択された。 また、科学研究費助成事業(科研費)新学術領域研究の研究課題に発展させたものが4件、 研究代表者として芦田、田中、永井、尾松が採択された。さらに、比較的少人数研究者に よる独創的・先駆的な研究である科研費基盤研究(S)の研究代表者に板谷が、内閣府最先 端・次世代研究開発支援プログラム(NEXT)に早瀬がそれぞれ採択され、研究を継続的に発 展させた。

新産業育成へ向かって高額の公的研究助成金(6 千万円以上)を獲得した研究者としては、 永井が JST 研究成果展開事業の産学共創基礎基盤研究プログラムを、青木が総務省の SCOPE を、田中が防衛省研究開発事業の採択をそれぞれ得て、研究を継続・発展させた。

1.2.2 研究成果から生み出された科学技術や社会経済への波及効果

(1)研究成果の科学技術の進歩への貢献

以下に、研究成果の科学技術への貢献について、幾つかの事例を示す。

芦田は、時間領域分光法の広帯域化に関する研究を行い、サブ・テラヘルツ(THz)から 200THz に至る超広帯域赤外光パルスの生成に世界で初めて成功し、光伝導アンテナにより 発生した赤外光パルスがコヒーレントであることを実証した。また、超流動ヘリウムとい う極低温かつ粘性が極めて小さな溶媒中で、レーザーアブレーション法により、世界で初 めて、様々な半導体でミクロンサイズで真球状の単結晶を得ることに成功した。

石川は、高強度場中の多電子ダイナミクスを記述する方法について研究を行い、 TD-CASSCF(Time-Dependent Complete-Active-Space Self-Consistent-Field:時間依存完全 活性空間自己無撞着場)法を開発し、多電子系における電離ダイナミクスをコンパクトかつ 正確に記述することを可能にした。その後も、光と原子・分子中の電子がお互いに及ぼす 作用を、理論的に、量子力学に基づいた第一原理計算で継続的に研究している。

尾松は、高出力なトポロジカル光源の開発を行い、光渦パルスレーザーを金属に照射す ると、光の角運動量が金属を螺旋の針(キラル金属ニードル)に変形すること、螺旋の巻き 数は全角運動量で決まることなどを明らかにした。これらの研究により、トポロジカル光 波の波面構造が物質に転写されることを、世界に先駆けて実証した。

青木は、テーパーファイバー(TOF)の光透過率の改善を行い、この TOF を利用してナノフ ァイバー共振器の開発を進め、全ファイバーでキャビティ QED を世界で初めて開発した。 このナノファイバー共振器は、光ファイバーそのものに作り込まれた全ファイバー共振器 であり、光ファイバーを用いて複数の共振器を低損失に接続できることから、近い将来、 多数のキャビティ QED をネットワーク化することが実現できると期待されている。

田中は、3次元的な金属構造のメタマテリアルを所望の形に作製する際において、自己組 織化現象を利用して高効率に加工できる技術を開発した。このメタマテリアルにより、可 視光全域をカバーする色を作り出すことにも成功した。開発したメタマテリアルはナノ構 造が破壊されない限り半永久的に退色することがなく、塗料に比べて格段に薄くて軽い特 徴を有していることから、今後応用が期待される。

板谷は、光パラメトリックチャープパルス増幅法に基づく高強度極短パルス赤外光源を 開発し、この光源を用いた高次高調波発生の実験で、軟 X 線の振る舞いから、孤立アト秒 パルスが発生していることを世界で初めて示した。また、波長領域を赤外~THz 領域へと拡 大し中赤外パルス(~40THz)の光を得ることにも成功した。軟 X 線を用いて、特定元素の電 子状態の時間分解イメージングへの大きな期待が寄せられる技術である。

早瀬は、ダイヤモンド中の窒素-空孔中心を対象として、量子センシング技術の開発を行い、窒素ドープ同位体制御化学気相成長法を開発し、ダイヤモンド基板表面から 5nm 以内 への窒素-空孔中心生成や、その生成位置・密度・配向軸の同時制御を世界で初めて可能とした。

(2)研究成果の応用に向けた発展状況

尾松が開発した光渦レーザーという新しいレーザー加工技術は、インスリン注入用無痛 注射針の実用に向けた中空マイクロニードルの製造に活用され、ベンチャー企業(シンクラ ンド(株))において製品開発が進められている。

青木は、超低損失ナノファイバー共振器を開発し、光学的量子計算の要素技術をナノフ ァイバー共振器 QED 系で実現することを目指している。室温動作が可能で、ファイバーネ ットワーク化による拡張性が高い光学的量子計算の実装へつながる研究である。

田中は、世界的に見てもオンリーワンの技術として注目される 3 次元ナノ金属加工技術 を開発し、3 次元構造メタマテリアルに赤外光を反射しない技術や、メタマテリアルで可視 光全域をカバーする色の作成に成功した。特許活動も精力的に進めており、将来、高解像 度ディスプレイやカメラのカラーフィルタとしての利用や、光の散乱を避けたい光学機器 の内壁、大型望遠鏡の黒色塗料などへの応用が期待されている。

石川は、重粒子線の線量を評価する研究を国立研究開発法人理化学研究所(理研)と共同 で進めている。重粒子線がん治療には、標的周囲の正常組織に対して可能な限り影響を与 えない治療計画が必要で、シミュレーションの精度を評価する重粒子線がん治療のための3 次元線量計の研究を進展させており、量子力学の基礎的研究成果を、がん治療などの医療 分野に適用させ、着実な成果を上げている。

永井は、研究期間中に産業用光ファイバーレーザーを用いた高強度 THz 電磁波発生装置 を開発し、終了後も研究を継続発展させて開発した金属製位相板は、シンプルな構造で THz 帯の偏光が制御できることを実証し、THz 周波数帯のアイソレータや偏光に敏感な高感度赤 外光センシングなどへの応用が期待される。

1.3 研究領域の展開状況(系譜図)

本研究領域では、2005 年度に設定された「光の究極的及び局所的制御とその応用」とい う戦略目標の下に、2005 年度から 2007 年度にかけて合計 24 件の研究課題を採択し、研究 を遂行した。また、同じ戦略目標の下で、2005 年度に CREST「新機能創成に向けた光・光量 子科学技術」が、2006 年度には、さきがけ研究領域「物質と光作用」がスタートした。

以下に本研究領域の展開と発展の様子を図 1-1 の系譜図に示し、概要を説明する。

第1期研究者の尾松は、期間中に開発した高出力高強度のトポロジカル・ファイバーレ ーザーやトポロジカル光波を用いるレーザーアブレーション加工技術を、CREST(伊藤正研 究総括)において発展させ、トポロジカル光波を照射すると、「全角運動量」の作用によっ て物質がキラル構造体へと変形することを世界で初めて発見した。その研究成果は、CREST 研究期間中に国際会議18件の招待講演を行うなど、世界の注目を集めている。さらに尾松 は、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)において、光圧によるキラル結晶化などの多 粒子相互作用によるナノ物質の選択的・局所的制御の研究を展開している。石川は期間中に アト秒科学の重要な潮流である高次高調波の基本波長依存性の詳細な理論的研究を世界に 先駆けて行い、さらに CREST(北山研一研究総括)において実時間第一原理計算、高強度アト 秒パルスレーザーをベースに化学反応を光で自在に制御する研究を継続的に進めている。

第2期研究者の青木は、さきがけ研究テーマの開発加速のためカリフォルニア工科大学 に2年間滞在して研究を進め、微小トロイド共振器とテーパーファイバーの結合によるキ ャビティ QED 系の構築に成功した。その後、総務省 SCOPE において超低損失テーパーファ イバーに単一半導体量子ドットを直接、高効率に結合する技術を本領域メンバーの越野と 共同開発した。さらに CREST (荒川泰彦研究総括)において、光学的量子計算に向けた超低損 失ナノファイバー共振器 QED 系の開発を目指す研究へ発展させている。田中は、期間中に3 次元的なナノサイズの金属加工技術を開発し、光学技術における常識を打ち破る全く新し い機能を持つ光学材料・デバイスを作り出した。その後、科研費新学術領域研究(研究領域 提案型)において共振型3次元メタマテリアルの開発、さらに防衛省研究開発事業において ダークマテリアルを用いた等方的広帯域光吸収体の研究へと、独創的な研究を発展させて いる。

第3期研究者の板谷は、光パラメトリックチャープパルス増幅法に基づく高強度極短パルス赤外光源を開発し、この光源を用いた高次高調波発生の実験で孤立アト秒パルスが発生していることを世界で初めて示した。その後、科研費基盤研究(S)において波長領域を赤外~THz領域へと拡大する研究、高強度パルスレーザー光源技術を開発し、アト秒からフェムト秒領域での超高速現象に関する実験的研究を継続的に発展させている。永井は、研究終了後もファイバーレーザーを用いて高効率のTHzパルス発生技術研究を発展させた。2010

年度以降は本領域メンバーであった芦田(第 1 期採択)のグループに合流し、産学共創基礎 基盤研究プログラムにおいて高効率・高強度の THz 光源と応用に関する研究を展開してい る。早瀬は、研究終了後、内閣府の最先端・次世代研究開発支援プログラム(NEXT)において 量子センシング技術の開発を行い、窒素ドープ同位体制御化学気相成長法を開発し、ダイ ヤモンド基板表面から 5nm 以内への窒素-空孔中心生成や、その生成位置・密度・配向軸の同 時制御を世界で初めて可能とした。これを用いたダイヤモンド量子センシング技術は、小 型かつ室温動作が可能で、感度・分解能の計測限界を打破する新技術として、将来の可搬 型 NMR (Nuclear Magnetic Resonance: 核磁気共鳴)装置の実現へつながる研究として期待さ れる。

これらのほか、各研究者は数多くの科学研究費などの研究助成金を利用し、本研究領域で得られた研究成果を継続的に展開・発展させている。



図 1-1 研究領域(CREST、さきがけ)との系譜図

第2章 追跡調査(研究領域全体動向)

2.1 追跡調査について

2.1.1 調査の目的

追跡調査は研究終了後、一定期間を経過した後、副次的効果を含めて研究成果の発展状況や活用状況を明らかにし、JST(科学技術振興機構)の事業及び事業運営の改善に資するために行うもので、研究領域終了後の研究者の研究課題の発展状況等を調査した。

2.1.2 調査の対象

本追跡調査は、さきがけ研究領域「光の創成・操作と展開(2005 年度~2010 年度)」の研 究者全員を対象とする。表 2-1 に調査対象と調査対象期間を示す。なお、表 2-2 に参考と して実際の研究領域の研究期間も示す。

表 2-1 調査対象と調査対象期間

	さきがけ調査対象期間	さきがけ終了後の調査対象期間	研究課題数
第1期	2006年1月~2009年12月	2010年1月~2017年調査終了月	10
第2期	2007年1月~2010年12月	2011年1月~2017年調査終了月	6
第3期	2008年1月~2011年12月	2012年1月~2017年調査終了月	8

(注):研究は採択年の10月から開始されているが、その年の成果論文は実質上ないと見なし、翌年からの 調査とした。

表 2-2 (参考)実際のさきがけ「光の創成・操作と展開」研究領域の研究期間

	さきがけ研究期間	研究課題数
第1期	2005年10月~2009年3月	10
第2期	2006年10月~2010年3月	6
第3期	2007年10月~2011年3月	8

2.1.3 調査方法

(1)研究助成金

助成金総額が1千万円/件以上のものを表2-3に示した。研究助成金の獲得状況の調査に おいては、主に下記のウェブサイトを利用した。

- ・研究者の研究室、若しくは所属している研究室のウェブサイト
- ・競争的研究資金の担当機関のウェブサイト
- ・競争的研究資金の担当機関データベース検索(科学研究費助成事業データベース、

NEDO ライブラリ成果報告書データベースなど)

研究助成金の一覧表は以下のような手順で作成した。

- 手順1:JST 戦略的創造研究推進事業、JST 研究成果展開事業、科研費(特別推進研究、新 学術領域研究、基礎研究で1千万円/件以上)、最先端・次世代研究開発支援プロ グラム、ImPACT、FIRST、NED0 プロジェクトなど比較的大型の外部研究資金の獲 得状況を調査する。
- 手順2:さらに研究代表者となっているもののみを抽出する。
- 手順3:データベース等で内容を確認する。

手順4:一覧表を作成する。

(2)論文

論文の抽出は、研究者が特定できる論文データベースである Scopus (エルゼビア社)を用 い、研究者の所属機関と著者名検索により論文リストを出力し、article と review に絞り 込み、表 2-1 に記載の調査対象期間を参照し、研究期間中及び研究終了後の論文に対して、 以下の分類を行った。

①さきがけの成果と認められるもの

②さきがけの継続・発展と認められるもの

③さきがけと無関係と考えられるもの

①は、原則として研究者の課題事後評価書に記載の論文、また著者所属機関に「さきが け・PRESTO」を含むものとした。論文の区分けは、各研究者に提示して、確認してもらう ことによって決定した。なお、研究期間は採択年の10月から始まったが、採択年には、さ きがけの成果としての論文が発表されないとみなし、採択年の翌年1月から集計した。

また、各論文の書誌 ID を入手し、調査時点での被引用数、被引用数の当該分野における Top0.1%、Top1%、Top10%、10%圏外のランク情報を入手した。

なお、データベースにおいては、まれに、論文が収録されていない場合、Top%が算出されていないこともあることを付記しておく。

さらに、②の論文について責任著者として、研究者が First 又は Last Author、あるいは 連絡先著者となっている論文を調べた。

なお、著者名からは絞り込みできない研究者については、さきがけ研究のキーワードで、 絞り込み検索を行った。

なお、本調査は研究者全員に対し一定の時期に行っているが、その後の研究者の確認で、 重要と思われる直近の論文なども本追跡調査のリストの中に記載の場合もある。

(3)特許

特許出願及び登録状況は、特許データベース Shareresearch(株式会社日立製作所)を用い て調べた。まず、研究者が発明者となっているものをピックアップし、次に、その中から、 出願人名や発明の名称からそれぞれの研究課題と関連していないと思われるものを除いた。

(4)受賞、招待講演、ベンチャー、報道

受賞、国際会議の招待講演、ベンチャー、報道について、ウェブ検索を行い、各研究者 の研究室ホームページ、科研費ホームページ等を参考にし、それぞれのリストを作成した。 さらに研究者の確認により上記情報を追加した。なお、これらの調査項目は研究終了後を 対象とした。

なお、追跡調査にあたっては、研究者に依頼して各リスト(研究助成金、論文、特許、受 賞、招待講演、ベンチャー、報道)及び調査報告書の草稿の確認を可能な限りご協力いただ いている。

ただし、24 名中の1 名の研究者(早瀬潤子)からは、本追跡調査に関するご回答を頂けて いない状況である。この研究者に関しては、事務局側で調査した範囲での報告である旨を ここに記しておく。

2.2 研究成果概要

2.2.1 研究助成金

さきがけ研究領域開始以降に開始し、研究者が研究代表者として獲得した研究助成金で、 助成金総額が1件で1千万円以上のものを表2-3に示す。そのうち、総額1億円以上の大 型プロジェクトを含む複数の研究助成金を得た研究者は8名(尾松、青木、芦田、永井、田 中、早瀬、石川、板谷)に上り、中でも尾松は2件獲得している。なお、菱川は、JSPS 頭脳 循環を加速する戦略的国際研究ネットワーク推進プログラムの研究課題(2014 年度~2016 年度)において、2016年度の主担当研究者となった。

研究者は、これらのほかにも助成金(研究分担者として、あるいは研究代表者であるが 1 件1千万円未満)を獲得して研究を進めている。

表 2-3 研究者の研究助成金獲得状況

JST	科研費 経済産業省	総務省	文部科学省	内閣府
防衛省	その他民間財団等			

さきがけ採択以降に開始されたプロジェクトで、助成金総額が1千万円/件以上のもののみを記載。

研究者	研究 期間 (年 度)	研究種目	研究課題	2 0 0 5	2 0 0 6	2 0 0 7	2 0 0 8	2 0 0 9	2 0 1 0	2 0 1 1	2 0 1 2	2 0 1 3	2 0 1 4	2 0 1 5	2 0 1 6	2 0 1 7	2 0 1 8	2 0 1 9	2 0 2 0	2 0 2 1	2 0 2 2	金額 (百万 円)
	2005 ∼ 2008	さきがけ	光伝導アンテナによる 光電場の直接検出																			52.0
-#-	2007 ~ 2009	科研費 基盤研究(B)	超流動ヘリウム中にお ける量子ドットの作製 と光マニピュレーショ ン																			18.9
戶田 昌明	2008 ∼ 2012	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	新規絶縁体材料におけ る高密度光励起と相転 移現象のダイナミクス																			114.4
	$\begin{array}{c} 2011\\ \sim\\ 2013 \end{array}$	科研費 基盤研究(B)	超流動ヘリウム中にお けるナノ微粒子の光に よる作製と配列制御																			19.8
	2016 \sim 2018	科研費 基盤研究(B)	極低温下でのレーザー 照射による単結晶微小 物質の作製																			16.5
	2005 \sim 2008	さきがけ	高強度超短パルス短波 長光中の原子分子ダイ ナミクス																			38.0
石川 顕一	2015 ~ 2019	CREST	アト秒反応ダイナミク スコントローラーの創 生																			150.0
	2016 ∼ 2018	科研費 基盤研究(B)	第一原理計算を用いた アト秒光電子放出遅延 現象の解明																			10.7
井戸 哲也	2005 ~ 2008	さきがけ	位相コヒーレント真空 紫外パルスによる精密 原子分光																			42.0

研究者	研究 期間 (年 度)	研究種目	研究課題	2 0 0 5	2 0 0 6	2 0 0 7	2 0 0 8	2 0 0 9	2 0 1 0	2 0 1 1	2 0 1 2	2 0 1 3	2 0 1 4	2 0 1 5	2 0 1 6	2 0 1 7	2 0 1 8	2 0 1 9	2 0 2 0	2 0 2 1	2 0 2 2	金額 (百万 円)
大村 英樹	2005 ∼ 2008	さきがけ	位相制御光による量子 的分子操作と極限計測 技術への展開																			41.0
	2008 ∼ 2010	科研費 若手研究(A)	位相制御レーザーによ る固体表面粒子放出現 象の量子制御																			22. 1
大村	2011 ~ 2012	経済産業省 地域イノベーシ ョン創出研究開 発事業	LIBWE 加工法を用いた 硬脆透明材料用レーザ ー加工装置の研究開発																			27.0
英樹	2012 ~ 2014	科研費 基盤研究(B)	分子トンネルイオン化 の量子制御を利用した レーザー場フーリエ合 成																			19.6
	2016 ~ 2018	科研費 基盤研究(B)	サブ10フェムト秒位相 制御光による非熱的原 子レベルレーザーカー ヴィング技術の開発																			17.2
	$\begin{array}{c} 2005 \\ \sim \\ 2008 \end{array}$	さきがけ	トポロジカル光波シン セシス																			42.0
	2006 ~ 2008	科研費 基盤研究(B)	無秩序結晶バナデート 混晶の利得飽和効果を 用いた超短パルス領域 位相共役光学																			15.5
	2009 ~ 2011	科研費 基盤研究(B)	フェロエレクトリック 半導体による近中赤外 超短パルス位相共役光 学																			17.7
尾松 孝	$\begin{array}{c} 2010 \\ \sim \\ 2014 \end{array}$	CREST	トポロジカル光波の全角運動量による新規ナノ構造・物性の創出																			244.0
茂	2012 ~ 2014	科研費 基盤研究(B)	非整数量子数光渦レー ザーの創成とテラヘル ツ波光渦シンセシスへ の展開																			18.3
	2015 ~ 2017	科研費 基盤研究(B)	 光渦励起パラメトリックレーザーに立脚する トポロジカル非線形光 学 																			17.0
	2016 ~ 2020	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	光圧で拓く:多粒子相 互作用の選択的制御に よる構造と現象の創造																			275. 1
	2005 \sim 2008	さきがけ	分子光変調による超高 繰り返し超短パルス光 の発生																			55.0
桂川	2009 ∼ 2011	科研費 基盤研究(B)	連続波レーザー励起に よる超高繰り返し超短 パルス光列の発生																			19.5
「眞幸	$\begin{array}{c} 2012\\ \sim\\ 2015 \end{array}$	科研費 基盤研究(A)	周波数標準の精度をも つ真空紫外広帯域波長 可変レーザー																			47.2
	2016 ~ 2019	科研費 基盤研究(A)	波長変換の任意操作に よる超広帯域単一周波 数波長可変レーザーの 開発																			45.1

研究者	研究 期間 (年 度)	研究種目	研究課題	2 0 0 5	2 0 0 6	2 0 0 7	2 0 0 8	2 0 0 9	2 0 1 0	2 0 1	2 0 1 2	2 0 1 3	2 0 1 4	2 0 1 5	2 0 1 6	2 0 1 7	2 0 1 8	2 0 1 9	2 0 2 0	2 0 2 1	2 0 2 2	金額 (百万 円)
	2005 \sim 2008	さきがけ	ナノ光学素子中のプラ ズモンダイナミクスの フェムト秒映像化																			62.0
久保	2014 \sim 2017	科研費 若手研究(A)	通信帯フェムト秒表面 プラズモン波束の顕微 映像化と非線形増幅																			24.4
敦	2016	科研費 国際共同研究加 速基金	高空間分解・時間分解 イメージング法による メタマテリアルの新奇 な波東伝搬機構の解明 (国際共同研究強化)																			13.3
熊倉	2005 \sim 2008	さきがけ	原子波回路を用いた物 質波ソリトンの光学的 制御																			54.0
光孝	2010 ∼ 2013	科研費 基盤研究(B)	原子波回路の構築と物 質波ソリトンへの応用																			16.6
	2005 \sim 2008	さきがけ	コヒーレント物質波制 御による電子・光子の 操作																			46.0
	2010 ∼ 2012	科研費 基盤研究(B)	相変化光記録膜材料に おけるテラヘルツスイ ッチング機構の解明と 応用																			19.8
長谷 宗明	2011 ∼ 2012	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	超高速レーザー分光に よるカーボンナノチュ ーブ・蛋白質複合体の 実時間ダイナミクス																			11.7
~1	2012 ~ 2015	文部科学省 X線自由電子レ ーザー重点戦略 研究課題	相変化記録膜材料の X 線回折プローブによる 格子ダイナミクス																			33.9
	2017 ~ 2019	科研費 基盤研究(B)	トポロジカル絶縁体に おけるコヒーレント表 面フォノン誘起量子相 転移の研究																			18.9
	2005 \sim 2008	さきがけ	光電子ホログラフィー によるレーザー場反応 追跡																			41.0
	2011	東レ 科学技術研究助 成	コヒーレントレーザー 反応場における化学過 程の解明																			10.0
菱川	2012 ~ 2014	科研費 基盤研究(B)	 強レーザー反応場中分 子の「その場」観測: 超高速光電子分光法に よるアプローチ 																			18.3
明栄	2014 ~ 2016	JSPS 頭脳循環を 加速する戦略的 国際研究ネット ワーク推進プロ グラム	統合イメージングサイ エンス研究拠点:サブ アトムダイナミクスか ら脳機能までを捉える																			105.0
	2016 ~ 2018	科研費 基盤研究(B)	レーザートンネルイオ ン化の理解に立脚した 電子ダイナミクス可視 化法の開拓																			17.9
青水隆	2006 ~ 2009	さきがけ	キャビティ QED による 原子と光子の量子操作																			68.0

研究者	研究 期 (年 度)	研究種目	研究課題	2 0 0 5	2 0 0 6	2 0 0 7	2 0 0 8	2 0 0 9	2 0 1 0	2 0 1 1	2 0 1 2	2 0 1 3	2 0 1 4	2 0 1 5	2 0 1 6	2 0 1 7	2 0 1 8	2 0 1 9	2 0 2 0	2 0 2 1	2 0 2 2	金額 (百万 円)
	2009 ~ 2010	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	半導体量子ドット-微 小共振器結合系のコヒ ーレント量子分光																			11.7
	2011 ∼ 2013	総務省 SCOPE	単一モード共鳴光散乱 過程による高純度単一 光子源の研究開発																			60.0
	$\begin{array}{c} 2014 \\ \sim \\ 2016 \end{array}$	科研費 若手研究(A)	ナノ光ファイバー端を 用いた導波路量子電気 力学の研究																			24. 1
	2016 ~ 2017	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	共振器量子電気力学系 の非局所コヒーレント 結合の研究																			23. 7
	2017 ~ 2022	CREST	スケーラブルな光学的 量子計算に向けた超低 損失ナノファイバー共 振器 QED 系の開発																			498.0
	2006 ∼ 2009	さきがけ	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																			57.0
蘆原	2006 \sim 2007	科研費 若手研究(A)	中赤外サイクルパルス 光波の発生と波形制御																			21.7
聡	2008 ∼ 2010	科研費 若手研究(A)	分子ダイナミクス制御 へ向けた中赤外任意波 形発生システムの開発																			24. 2
	2011 ~ 2013	科研費 若手研究(A)	中赤外波形整形を利用 した分子のコヒーレン ト制御																			27.6
木下	$\begin{array}{c} 2006 \\ \sim \\ 2009 \end{array}$	さきがけ	光格子によるアトムト ロニクスのためのデバ イス開発																			52.0
俊哉	2008 ∼ 2010	科研費 基盤研究(B)	2 次元アンチドット型 光格子中の量子気体の ダイナミクス																			19. 1
	2006 ~ 2009	さきがけ	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-																			66.0
櫛引	2009 ~ 2011	科研費 若手研究(A)	光技術を用いた細胞機 能制御に関する研究																			25.7
俊宏	$\begin{array}{c} 2013 \\ \sim \\ 2015 \end{array}$	科研費 若手研究(A)	細胞機能および細胞分 化制御のための光技術 の創製																			23.9
	2014 ∼ 2015	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	オプトジェネティクス による転写環境制御																			17.7
越野 和樹	2006 ~ 2009	さきがけ	光子数確定パルスの空 間制御理論																			18.0
田 男 中 拓	2006 ~ 2009	さきがけ	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																			54.0

研究者	研究 期間 (年 度)	研究種目	研究課題	2 0 0 5	2 0 0 6	2 0 0 7	2 0 0 8	2 0 0 9	2 0 1 0	2 0 1 1	2 0 1 2	2 0 1 3	2 0 1 4	2 0 1 5	2 0 1 6	2 0 1 7	2 0 1 8	2 0 1 9	2 0 2 0	2 0 2 1	2 0 2 2	金額 (百万 円)
	$\begin{array}{c} 2010 \\ \sim \\ 2012 \end{array}$	科研費 基盤研究(A)	紫外プラズモニック・ メタマテリアル																			47.3
	2010 ~ 2014	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	共振型3次元メタマテ リアルの作製と機能評 価																			207.2
	$\begin{array}{c} 2015 \\ \sim \\ 2017 \end{array}$	防衛省 研究開発事業	ダークメタマテリアル を用いた等方的広帯域 光吸収体																			90.0
板谷	2007 ~ 2009	さきがけ	高次高調波のコヒーレ ンスを利用した分子動 画観測																			46.0
治郎	$\begin{array}{c} 2011\\ \sim\\ 2015 \end{array}$	科研費 基盤研究(S)	1keV 領域での高次高調 波発生とアト秒軟 X 線 分光への展開																			145.3
清水 亮介	2007 ∼ 2009	さきがけ	多光子波束による物質 の非線形光学応答																			56.0
	$\begin{array}{c} 2007 \\ \sim \\ 2009 \end{array}$	さきがけ	テラヘルツ電磁波によ る高速電子スピン操作																			45.0
	2010 ∼ 2014	科研費 新学術領域研究 (研究領域提案 型)	構造共鳴を利用したテ ラヘルツ波メタマテリ アルの作製と機能																			147.4
永井 正也	2011 ~ 2013	産学共創基礎基 盤研究プログラ ム	極限的高効率 THz パル ス発生技術の確立と高 性能物質-THz 結合デ バイスとの融合と応用																			90. 0
	2015 ~ 2017	科研費 基盤研究(B)	高強度テラヘルツパル スによるソフトな脱離 イオン化と質量分析へ の展開																			16.8
	2015 \sim 2017	産学共創基礎基 盤研究プログラ ム	テラヘルツレーザー脱 離イオン化法の開拓																			90.0
	2007 \sim 2009	さきがけ	量子ドットによる光・ 量子メモリの創出と高 光非線形性の探求																			65.0
早瀬	2009 ~ 2010	科研費 若手研究(A)	不均一量子ドット集合 体におけるラビ振動ダ イナミクスの解明と集 団コヒーレンスの生成																			26. 5
潤子	2010 ~ 2013	内閣府 最先端・次世代研 究開発支援プロ グラム(NEXT)	単一光子-半導体量子 ドット電子スピン集団 励起間の革新的量子イ ンターフェースの実現																			161.2
	2015 ~ 2017	科研費 基盤研究(B)	ダイヤモンド量子制御 による高感度核磁気共 鳴イメージング																			16.3
前田 はるか	2007 ~ 2009	さきがけ	デコヒーレンスフリー な非発散波束の生成と 量子制御への応用																			81. 0

研究者	研究 期間 (年 度)	研究種目	研究課題	2 0 0 5	2 0 0 6	2 0 0 7	2 0 0 8	2 0 0 9	2 0 1 0	2 0 1 1	2 0 1 2	2 0 1 3	2 0 1 4	2 0 1 5	2 0 1 6	2 0 1 7	2 0 1 8	2 0 1 9	2 0 2 0	2 0 2 1	2 0 2 2	金額 (百万 円)
宮日	2007 \sim 2009	さきがけ	フラクタル構造による 光制御可能性の探索と 光機能素子の創製																			64.0
九 文章	2013 ∼ 2015	科研費 若手研究(A)	テラヘルツ波による超 解像リアルタイムイメ ージングシステムの開 発																			21.5
11	2007 ~ 2009	さきがけ	重力波検出技術が拓く 超巨視的量子性の物理																			56.0
代木 伸二	2013 ~ 2016	科研費 基盤研究(B)	第三世代重力波望遠鏡 における超長光滞在時 間を持つFP 共振器共振 導入制御																			17.9
	$\begin{array}{c} 2017 \\ \sim \\ 2020 \end{array}$	科研費 挑戦的研究	第三世代重力波望遠鏡 用の新素材鏡開発																			25. 7
森下 亨	2007 ~ 2009	さきがけ	強高度レーザーによる 超高分解能 4 次元時空 イメージング																			64.0

2017年9月8日調査、及び研究者からの申出による。

2.2.2 論文

一般的に研究者は、研究成果を学会誌などへ論文を投稿し、それを公表する。したがって、論文数は研究者の研究活動状況を示す一つの指標と考えられる。

研究者が著者となってさきがけの研究成果を論文発表した件数、さきがけの研究成果を 継続・発展させた成果を論文発表した件数と、その中で研究者が責任著者となっている論 文数を表 2-4 に示す。

さきがけの研究成果の論文を最も多く発表したのは、第3期研究者の森下で25件、次いで第1期研究者の尾松の21件であった。また、さきがけの研究成果の継続と発展に関しては、第1期研究者の尾松で53件、次いで第1期研究者の芦田の44件であった。

期 (採択年度)	研究課題	研究者	 ①さきが けの研究 成果の論 文数 	 ②け成果と関す 総属 総属 総属 総属 (1) (1)	 ③左記② の論文の うち責任 著者の論 文数
	光伝導アンテナによる光電場の直接検 出	芦田 昌明	13	44	20
	高強度超短パルス短波長光中の原子分 子ダイナミクス	石川 顕一	9	36	15
	位相コヒーレント真空紫外パルスによ る精密原子分光	井戸 哲也	7	19	12
	位相制御光による量子的分子操作と極 限計測技術への展開	大村 英樹	6	6	5
第1期	トポロジカル光波シンセシス	尾松 孝茂	21	53	42
(2005)	分子光変調による超高繰り返し超短パ ルス光の発生	桂川 眞幸	5	12	8
	ナノ光学素子中のプラズモンダイナミ クスのフェムト秒映像化	久保 敦	6	8	0
	原子波回路を用いた物質波ソリトンの 光学的制御	熊倉 光孝	13	2	0
	コヒーレント物質波制御による電子・ 光子の操作	長谷 宗明	13	20	16
	光電子ホログラフィーによるレーザー 場反応追跡	菱川 明栄	6	20	16
	キャビティ QED による原子と光子の量 子操作	青木 隆朗	6	19	13
	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	蘆原 聡	10	8	8
	光格子によるアトムトロニクスのため のデバイス開発	木下 俊哉	1	1	1
弗 2 期 (2006)	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 -	櫛引 俊宏	10	8	8
	光子数確定パルスの空間制御理論	越野 和樹	11	19	12
	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	田中 拓男	8	35	18
第3期 (2007)	高次高調波のコヒーレンスを利用した 分子動画観測	板谷 治郎	7	24	13

表 2-4 研究者の論文(原著論文)数

期 (採択年度)	研究課題	研究者	 ①さきが けの研究 成果の論 文数 	 ②さの研究 はの研究 成果の経 に関する 論文数 	 ③左記② の論文の うち責 著者の論 文数
	多光子波束による物質の非線形光学応 答	清水 亮介	11	15	1
	テラヘルツ電磁波による高速電子スピ ン操作	永井 正也	15	27	6
	量子ドットによる光・量子メモリの創 出と高光非線形性の探求	早瀬 潤子	10	4	0
	デコヒーレンスフリーな非発散波束の 生成と量子制御への応用	前田 はるか	5	3	3
	フラクタル構造による光制御可能性の 探索と光機能素子の創製	宮丸 文章	16	19	6
	重力波検出技術が拓く超巨視的量子性 の物理	三代木 伸二	18	5	0
	強高度レーザーによる超高分解能4次 元時空イメージング	森下 亨	25	42	21
	領域全体	247ª	413 ^b	239°	

2017年8月10日調査及び研究者の申出による。

【備考】研究者同士の共著論文について

当該研究領域内の研究者 2 名以上が共同で論文を発表した場合は、各研究者の論文数は それぞれ 1 件とカウントし、領域全体の論文数は共著論文数を差し引いた値とした。①さ きがけの研究成果では 5 報の重複があった。②さきがけ研究成果の継続と発展においては 36 報の重複があった。このうち③責任著者の論文においては 5 報の重複があった。

- a:研究期間中に越野和樹と清水亮介の間に2報、菱川明栄と森下亨、大村英樹と森下亨、田中拓男と 三代木伸二の間にそれぞれ1報の共著論文有り(5報重複)。
- b:研究終了後に芦田昌明と永井正也の間に20報、菱川明栄と森下亨の間に4報、桂川眞幸と長谷宗明、青木隆朗と越野和樹の間にそれぞれ2報、芦田昌明と熊倉光孝、尾松孝茂と桂川眞幸、尾松孝茂と熊倉光孝、菱川明栄と田中拓男、青木隆朗と清水亮介、板谷治郎と森下亨、長谷宗明と田中拓男、大村英樹と森下亨の全ての組合せ(8組)の間にそれぞれ1件の共著論文有り(36報重複)。
- c:研究終了後に共著者が責任著者の論文は、芦田昌明と永井正也及び青木隆朗と越野和樹の間にそれ ぞれ2報、芦田昌明と永井正也の間に1報の共著論文有り(5報重複)。

2.2.3 特許

特許出願及び登録は、研究目的とその研究のステージによりその数は異なるが、当該研 究が最終的に一定の成果を収め、実用化を目指した社会貢献につながる一定の可能性を示 す重要な指標である。

本研究領域の研究者による特許出願件数及び登録件数の結果を表 2-5 に示す。

			研究其	月間 中		研究終了以降						
		出願	件数	登録	件数	出願	件数	登録件数				
期 (採択年度)	研究者	国内	海外 (国際)	国内	海外 (国際)	国内	海外 (国際)	国内	海外 (国際)			
	芦田 昌明	1	0	1	0	0	0	0	0			
	石川 顕一	0	0	0	0	1	2	0	1			
	井戸 哲也	0	0	0	0	2	1	2	0			
第1期	大村 英樹	1	0	1	0	2	0	2	0			
(2005)	尾松 孝茂	8	1	6	1	9	4	6	1			
	桂川 眞幸	3	0	3	0	1	1	0	1			
	熊倉 光孝	1	0	1	0	0	0	0	0			
	長谷 宗明	2	0	1	0	1	1	1	0			
	青木 隆朗	0	0	0	0	4	0	0	0			
第2期 (2006)	櫛引 俊宏	1	1	1	1	0	0	0	0			
	田中 拓男	5	1	5	1	4	2	2	0			
	清水 亮介	2	2	2	2	0	0	0	0			
第3期	永井 正也	3	2	3	2	1	1	0	0			
(2007)	早瀬 潤子	0	0	0	0	1	0	1	0			
	森下 亨	2	0	0	0	0	0	0	0			
	領域全体	29	7	24	7	26	12	14	3			

表 2-5 研究領域期間中・終了後の特許の出願と成立状況

2017年8月30日調査

研究期間中あるいは終了以降における PCT 出願された特許は、出願件数は PCT 出願の1件のみを計上し、 各国展開分は含めない。海外の登録件数は、いずれかの国で登録されていれば1件とする。

研究期間中に最も多く出願し、かつ登録されているのは、第1期研究者の尾松で、国内 に8件、海外に1件出願し、それぞれ6件、1件が登録されている。尾松は研究終了以降も 最も多く出願し、かつ登録がなされており、国内に9件、海外に4件出願し、それぞれ6件、1件が登録されている。次いで多く出願、登録されているのは、第2期研究者の田中である。

また、研究期間中、特許を全く出願していなかった第1期研究者の石川と井戸、第2期 研究者の青木、第3期研究者の早瀬は、研究終了後、特許出願している。

2.3 科学技術や社会・経済への波及効果

2.3.1 科学技術への波及効果

(1)受賞

科学技術の進歩への貢献や研究成果に関する評価を示す指標の一つとして、受賞が挙げ られる。表 2-6 に、研究領域終了後の各研究者の受賞歴を示す。

尾松は文部科学大臣表彰の科学技術賞、並びに応用物理学会及び米国光学会(The Optical Society)のフェロー表彰を受賞している。久保は文部科学大臣表彰の若手科学者賞、並び に日本放射光学会放射光 Most Voted Presenter 賞、2014 年応用物理学会秋季学術講演会 Poster Award を受賞している。森下は松尾学術振興財団宅間宏記念学術賞を受賞し、さら に、所属する電気通信大学が国際交流協定を結ぶモスクワ物理工科大学(MIPT)(ロシア)と の共同研究を継続的に発展させ、MIPT Adjunct Professor の称号を受賞している。

表 2-6	受賞リスト	

No	受賞者	賞の名称	授与機関	受賞年
1	井戸 折山	応用物理学会論文賞(優秀論文賞)	応用物理学会	2012
2	开户 習也	2013 年度(第46回)市村学術賞 貢献賞	新技術開発財団	2013
3	→ <u>+</u> ++	第4回分子科学会奨励賞	分子科学会	2010
4	入竹 央樹	2010年度文部科学大臣表彰 若手科学者賞	文部科学省	2010
5		応用物理学会フェロー表彰	応用物理学会	2013
6		2013 年度(第 12 回) APEX・JJAP 編集貢献賞	応用物理学会	2014
7		2016年度文部科学大臣表彰 科学技術賞	文部科学省	2016
8	尾松 孝茂	米国光学会(The Optical Society, OSA)フェ ロー表彰	米国光学会	2016
9		2016年度双葉電子記念財団賞(衛藤細矢記念 財団賞)	双葉電子記念財団	2016
10	桂川 眞幸	2012 年度(第 45 回)市村学術賞 貢献賞	新技術開発財団	2012
11		2010年度文部科学大臣表彰 若手科学者賞	文部科学省	2010
12		筑波大学 筑波大学学長表彰	筑波大学	2010
13	九 4日 前	日本放射光学会 放射光 Most Voted Presenter 賞	日本放射光学会	2010
14	久休 我	2013年度 日本表面科学会 第19回技術賞	日本表面科学会	2013
15		2014 年応用物理学会秋季学術講演会 Poster Award	応用物理学会	2014
16		筑波大学 若手教員奨励賞	筑波大学	2014
17	長谷 宗明	Outstanding Poster Award(E\PCOS 2010)	The European Symposium on Phase Change and Ovonic Science 2010	2010
18	菱川 明栄	学術賞	日本化学会	2017
19	田中 拓男	5th Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP5) Best Poster Paper Prize	5th Conference on Surface Plasmon Photonics	2011

No	受賞者	賞の名称	授与機関	受賞年
20		2012 Taiwan-Japan Nanophotonics and Plasmonic Metamaterials Workshop Best Poster Paper Award	Taiwan-Japan Nanophotonics and Plasmonic Metamaterials Workshop	2012
21	板谷 治郎	レーザー学会学術講演会第 33 回年次大会招待 講演 奨励賞	レーザー学会	2013
22	清水 亮介	2015年度衛星通信研究賞	電子情報通信学会 衛星通信 研究会	2016
23		第2回大阪大学総長奨励賞	大阪大学	2013
24	永井 正也	日本赤外線学会 第1回(平成26年度)研究奨 励賞	日本赤外線学会	2014
25		第3回大阪大学総長奨励賞	大阪大学	2017
26		MIPT, Adjunct Professor	モスクワ物理工科大学	2013
27		第1回AMO 討論会ポスター発表賞	原子・分子・光科学(AMO)討論 会	2013
28	森卜 亨	宅間宏記念学術賞	松尾学術振興財団	2013
29		MIPT Adjunct Professor	モスクワ物理工科大学	2014
30		MIPT Adjunct Professor	モスクワ物理工科大学	2015

2017年9月12日調査、及び研究者からの申出による。

(2) 学会・研究会等への貢献

研究者の研究成果を、国際学会における招待講演として発表した実績が、研究終了後、 合計 280 件に上った。特に、田中が 53 件、尾松が 41 件、菱川が 29 件、石川が 27 件、桂 川が 24 件、森下が 23 件と多かった。

田中は、3次元メタマテリアル加工技術とその応用に関する講演が多かった。また、尾松の開発したレーザー加工技術は、光関連学会のみならず、材料科学学会やレーザー加工学 会/業界からの要望も多く、研究成果などの講演を行った。

(3) 研究人材の広がりと共同研究

本さきがけ研究領域では、伊藤研究総括が実験と理論の協調を目指し、毎年度1名の理 論研究者を採択した(第1期の石川、第2期の越野、第3期の森下)。また、研究提案採択 時に海外研究機関で開発を進めていた研究者5名を採択した(第1期の井戸、久保、第2期 の木下、第3期の板谷、前田)。さらに、新テーマの研究取組を加速するために、3名の研 究者を海外研究機関に長期出張させて(第2期の青木、櫛引、第3期の森下)研究を進める 取組を行った。その他の領域運営の効果もあって、さきがけ研究領域研究者間の、さらに は研究者と領域アドバイザー間の研究協力が活発に行われた。

終了後も、このような研究者ネットワークが活用され、さきがけメンバーの共著論文が 多く発表されている。上記の理論研究者は活発に実験研究者と共同研究を行っている。例 えば、森下の研究は最新実験結果を取り込む理論研究であるため、世界の研究者とネット ワークを張りながら、国内外の実験研究者と共同作業で相乗効果をねらう研究を行い、成 果を上げている。具体的には、オーフス大学(デンマーク)L. B. Madsen 教授やモスクワ物 理工科大学(ロシア)0. I. Tolstikhin 教授、さきがけ研究領域メンバーであった菱川、大 村、板谷との共著論文がある。

また、永井は、研究開始時は京都大学大学院助教であったが、研究最終の2010年度に本 さきがけ研究領域メンバーであった芦田(大阪大学大学院基礎工学研究科教授)のグループ に合流して、活発な研究活動を行い多くの共著論文を発表している。

2.3.2 社会・経済への波及効果

尾松は、研究成果を積極的に特許出願しており、さきがけ研究期間中に7件(国内6件、 海外1件)、研究終了後においても7件(国内6件、海外1件)が登録されている。その内容 は、高強度パルスレーザー生成、光渦レーザー発振装置、光増幅システムやレーザー加工 装置などに関するものである。2014年設立のベンチャー企業のシンクランド株式会社は、 尾松らが開発した光渦レーザーという新しいレーザー加工技術を活用した中空マイクロニ ードルを用いて、インスリン注入用無痛注射針の実用化に向けた開発を進めている。尾松 は現在も、シンクランドと共同研究を行っている。

青木は、超低損失ナノファイバー共振器を開発し、光学的量子計算の要素技術をナノフ ァイバー共振器 QED 系で実現することを目指している。また、各要素技術を組み合わせて 構築される誤り耐性量子計算のアーキテクチャーの最適化に関する理論的研究も進めてい る。本提案のアプローチは、室温動作が可能で、ファイバーネットワーク化による拡張性 が高い点などの特徴を有しており、光学的量子計算の実装へ向けた道を拓くことを狙いと している。

板谷は、光パラメトリックチャープパルス増幅法に基づく高強度極短パルス赤外光源を 開発し、この光源を用いた高次高調波発生の実験で、軟 X 線の振る舞いから孤立アト秒パ ルスが発生していることを世界で初めて示した。また、元素選択性の高い超高速軟 X 線分 光を実現することを目標に、光電子分光研究者らと極端紫外領域のフェムト秒パルスを用 いた超高速角度分解光電子分光の共同研究に取り組んでいる。軟 X 線は、物質との相互作 用が強いため、特定の元素の電子状態を直接観測するのに好適であり、時間分解技術を導 入することで、その動きを的確にイメージとして把握することができると期待されている。

田中が開発した 3 次元ナノ金属加工技術は、世界的に見てもオンリーワンの技術として 注目されている。3 次元構造メタマテリアルに関する赤外光を反射しない技術や、メタマテ リアルを用いて、可視光全域をカバーする色の作成に成功し、多くの報道機関に「透明マ ントも夢じゃない」などと取り上げられている。

石川は、重粒子線の線量を評価する研究を国立研究開発法人理化学研究所(理研)と共同 で進めている。重粒子線がん治療には、標的組織における 3 次元的な線量分布を生成する とともに、標的周囲の正常組織に対して可能な限り影響を与えない治療計画が必要で、シ ミュレーションの精度を評価する重粒子線がん治療のための 3 次元線量計の研究を進展さ せている。石川は研究終了後に3件の3次元線量計(ゲル線量計)に関する特許出願を行っている。2件については出願人が理研であり、他の1件については、理研と日産化学工業株式会社の共同出願である。

永井は、研究期間中からアイシン精機株式会社との共同研究を活発に行い、アイシン精 機が開発した産業用光ファイバーレーザーを用いた高強度 THz 電磁波発生装置の共同開発 を行い、2008 年に3 件の特許出願を行い登録された。研究終了後もアイシン精機との共同 研究を発展させ、共同開発した金属製位相板はシンプルな構造で THz 帯の偏光が制御でき ることを実証しており、THz 周波数帯のアイソレータや偏光に敏感な高感度赤外光センシン グなどへの応用が期待される。

第3章 各研究課題の主な研究成果及び波及効果

3.1 2005 年度採択研究課題

3.1.1 光伝導アンテナによる光電場の直接検出(芦田昌明)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

半導体基板上に作製されたアンテナ構造に超短パルスレーザーを照射すると、パルス光 が当たった瞬間にキャリアが発生する。この光伝導アンテナにおいて、パルス光を照射す る時間を少しずつ走査し、ストロボ写真を撮るように、被測定電磁波の電場の瞬間値を記 録していく。その結果をパルス光がアンテナに照射される時間を横軸にして描くことで、 時間波形を再現できる。このような光伝導アンテナを用いる光検出では、強度のみしか検 出できないこれまでの分光法と比べて、位相情報も得られるのが特徴である。本研究では、 テラヘルツ領域をはるかに超えた、光通信波長帯を含む近赤外域、いわゆる光の領域にま でこの手法を拡張することを目指した。

②期間中の研究成果

非線形性が非常に大きな有機非線形光学結晶 DAST¹を使用して、光整流過程によって超広 帯域赤外パルス光を発生させ、その結果、コヒーレント赤外光として世界で最も広い帯域、 すなわち 0.5THz から 200THz に至るパルス光の発生に成功した。

このようにして得られた赤外線パルスを光伝導アンテナに照射し、得られた信号をフー リエ変換することにより、170THz に至る光の検出を確認した²。それ以前に、GaSe 結晶を用 いるなどして 0.1-100THz の検出に成功していたので、期間中の成果と合わせ、1 個の光伝 導アンテナで 0.1-170THz の広帯域をカバーできる可能性を示した。また、光伝導アンテナ の感度を評価し、光伝導アンテナのスペクトル感度を的確に再現できる数式モデルを導く とともに、高帯域検出において、レーザーパルス幅の狭窄化が重要であることを見いだし た^[1]。

さらに、横浜国立大学との共同研究において、チタン酸ストロンチウム(SrTiO₃)薄膜のテ ラヘルツ電磁波応答を広帯域で測定し、誘電特性を決定しているソフトモードの誘電分散 を明らかにした^[2]。これにより、テラヘルツ領域の測定が相転移を示す物質のモニタリング

¹ DAST : (4-(4-dimethylaminostyryl)-1-methylpyridinium tosylate)

² Ashida M., Akai R., Shimosato H., Katayama I., Miyamoto K., Ito H. "Ultrabroadband THz Field Detection beyond 170THz with a Photoconductive Antenna", Conference on Lasers and Electro-Optics 2008, Technical Digest, CtuX6. https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=CLE0-2008-CTuX6

手法として適していることを示した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Ashida M. "Ultra-broadband terahertz wave detection using photoconductive antenna", Japanese Journal of Applied Physics, 2008, 47(10 PART 2), 8221-8225.
- [2] Katayama I., Shimosato H., Rana D.S., Kawayama I., Tonouchi M., Ashida M. "Hardening of the ferroelectric soft mode in SrTiO₃ thin films", Applied Physics Letters, 2008, 93(13), 132903.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「新規絶縁体材料における高密度 光励起と相転移現象のダイナミクス」(2008 年度~2012 年度)において、時間領域分光法の 広帯域化に関する研究を行い、0.1THz(ミリ波領域)から 200THz(近赤外領域)までカバーす ることに成功した。

また、科研費基盤研究(B)「超流動ヘリウム中におけるナノ微粒子の光による作製と配列 制御」(2011 年度~2013 年度)、科研費挑戦的萌芽研究「超流動ヘリウム中におけるレーザ ーアブレーション³による半導体の単結晶真球化」(2014 年度~2015 年度)において、様々な 物質の真球形状の単結晶を作製することに成功している。

現在、科研費基盤研究(B)「極低温下でのレーザー照射による単結晶微小物質の作製」 (2016 年度~2018 年度)に取り組んでいる。

①科学技術の進歩への貢献

研究終了後も、光と電波の境界領域であるテラヘルツ電磁波から近赤外領域に至るコヒ ーレントな電磁波の生成と、その光伝導アンテナによる検出に関する研究を継続している。 その代表的な成果について、主要な論文の内容を基に以下に示す。

幅 10fs の高強度パルスとその第2高調波により生成されたプラズマを用いて、遠赤外から 200THz に至る超高帯域赤外線パルスを発生させ、それを 100THz までコヒーレントに E0 サンプリング(光伝導アンテナ)によって検出した。また 100-200THz の範囲で、その強度の 第2高調波結晶 (BBO: β-BaB₂0₄)の方向に対する依存性を HgCdTe 検出器により明らかにした^[11]。図 3-1(a)に実験系の構成と、図 3-1(b)に測定された超高帯域コヒーレント赤外線パル スのスペクトルを示す。さらに芦田は、LiNbO₃を発生源とした発生方式の最適化を行い、エ ネルギー変換効率 0.21%の高効率テラヘルツパルスの発生に成功した^[2]。本研究の進展により、光と電波の境界領域である(従来適切な検出法がなかった)テラヘルツ領域での検出方 法が確立され、同時に超広帯域コヒーレント光のパルス発生が可能となった。

³レーザーアブレーション(Pulsed Laser Ablation)法:高強度光を物質へ照射して表面を破壊し、微小な粒子を作製する方法。

(a)実験系構成

(b) スペクトル



図 3-1 超高帯域コヒーレント赤外線パルス生成・検出[1]

芦田は、科研費基盤研究(B)「超流動ヘリウム中におけるナノ微粒子の光による作製と配 列制御」(2011年度~2013年度)、科研費挑戦的萌芽研究「超流動ヘリウム中におけるレー ザーアブレーションによる半導体の単結晶真球化」(2014年度~2015年度)において、超流 動ヘリウムという極低温かつ粘性が極めて小さな溶媒中で、レーザーアブレーション法に より、世界で初めて、様々な半導体をミクロンサイズで単結晶真球化することに成功した^[3]。

2社会・経済への波及効果

芦田は、サブ THz から 200THz に至る超高帯域赤外光パルスの生成に世界で初めて成功し、 光伝導アンテナにより発生した赤外光パルスがコヒーレントであることを実証した論文を 2010 年に発表した^[4]。図 3-2 に観測された位相スペクトル、テラヘルツ波形、強度スペク トルを示す。光源の分散補償用プレート(BaF₂)の厚さをパラメータ(0mm, 2mm, 4mm)とした 測定値が示されている。なお、210THz 以上の強度スペクトルはレーザーの低周波テールで ある。この発表は、注目論文を選抜している米国物理学協会 Virtual Journal of Ultrafast Science に採択されるなど、高く評価された。

テラヘルツ波の検出器には、半導体量子井戸を用いたもの、超電導トンネル接合素子を 用いたものなど、様々な方式があるが、本研究のテーマとなった光伝導アンテナによる方 法には、テラヘルツ波の振幅と位相を同時に独立して検出することができるという特徴が ある。芦田は、光伝導アンテナによるテラヘルツ波検出器の帯域を拡張する技術に関する 特許を 2009 年に出願し、同出願は 2013 に登録されている⁴。

⁴ 特許 05413899「電磁波形状検出方法及び装置」


図 3-2 DAST 結晶を用いた超高帯域コヒーレントパルスの(a)位相スペクトル、 (b)テラヘルツ波形、(c)強度スペクトル^[4]

これらの研究により実現した光源及び検出方法は、時間領域分光技術の発展に寄与し、 従来は光源及び検出方法が未発達であったために進まなかった、物理現象・生命現象・物 質構造の解明など、幅広い応用分野の発展につながると期待される。特に近年テラへルツ 波に関する研究が活発化し、通信、イメージング、環境計測、バイオや医学などへの応用 が検討されており、本研究の成果が活用される可能性がある。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Matsubara E., Nagai M., Ashida M. "Ultrabroadband coherent electric field from far infrared to 200 THz using air plasma induced by 10 fs pulses", Applied Physics Letters, 2012, 101(1), 01105.
- [2] Nagai M., Matsubara E., Ashida M. "High-efficiency terahertz pulse generation via optical rectification by suppressing stimulated Raman scattering process", Optics Express, 2012, 20(6), 6509-6514.
- [3] Okamoto S., Inaba K., Iida T., Ishihara H., Ichikawa S., Ashida M. "Fabrication of single-crystalline microspheres with high sphericity from anisotropic materials", Scientific Reports, 2014, 4, 5186.
- [4] Katayama I., Akai R., Bito M., Shimosato H., Miyamoto K., Ito H., Ashida M. "Ultrabroadband terahertz generation using 4-N, N-dimethylamino- 4' -N' -methyl-stilbazolium tosylate single crystals", Applied Physics Letters, 2010, 97(2), 021105.

④その他

芦田は、現在、新たな光技術の創成(半導体真球作成技術、テラヘルツ光源の超広帯域化・ 高強度化・高効率化)、物質の光制御(量子ドットの光マニピュレーション、高強度ピコ秒 パルスによる物質制御)、光で探る量子効果(超高速・超高効率の光学応答、強相間物質の 光物性)など広範囲の光技術研究に取り組んでいる。

2010 年度、さきがけ「光の創成・操作と展開」3 期の永井正也を、大阪大学大学院基礎 工学研究科の芦田グループに准教授として迎え入れ、研究領域を発展拡大させている。ま た、テラヘルツ時間領域分光の分野で、横浜国立大学の武田淳グループとの共同研究を活 発に行っている。

芦田は、さきがけ終了時は大阪大学大学院基礎工学研究科准教授であったが、2010 年度 に教授に就任し現在に至っている。

3.1.2 高強度超短パルス短波長光中の原子分子ダイナミクス(石川顕一)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

革新的な光技術開発につながると期待されている高強度・超短パルス光においては、非 線形光学効果や複数の電子の相互作用が重要な役割を果たしている。このような現象を理 論的に究明するには、摂動論的な取扱いやその他の近似的な手法だけでは不十分である。 そこで本研究では、時間依存シュレーディンガー方程式(Time-Dependent Schrödinger Equation:TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミク スを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・操る革新的な方法を創出することを ねらいとした。

②期間中の研究成果

量子系のダイナミクスは、TDSE によって原理的に正確に記述することができる。水素、 ヘリウム、リチウムは、実際にTDSE によってダイナミクスを計算することができ、高次高 調波発生やアト秒現象は主に、TDSE 数値シミュレーションによって研究されている。石川 は、高次高調波発生で得られるアト秒軟 X 線のトリプルパルスで水素原子をイオン化する と同時に、波長 800nm のレーザーパルスを照射した場合の、0 度方向のスペクトルを TDSE 計算で求めた。そこでは、第1、3 パルスによって放出された電子のエネルギーは増加し、 第2 のパルスによって放出された電子のエネルギーは減少した。この結果は、同じ一つの 電子が、シングルスリットとダブルスリットの両方を同時に通過し、その結果が同じ方向 で一つのエネルギースペクトルとして得られるという「アト秒2重・3 重スリット実験」の 提案と位置付づけられ、評価を得た^[1]。

また、アト秒パルス列を特定の量子経路を取り出すゲートとして利用し、アト秒シング ルパルス発生に応用できる可能性を示した。パルス幅 15fs 程度のマルチサイクルレーザー で発生できるシードパルス列を想定すると、パルス列は駆動光のほぼ 1 周期に収まること から、この1 周期の間だけ高調波発生が起こると考えられる。実際に、Ne を標的原子とし て TDSE 計算を行い、パルス幅 800 アト秒の単独パルスが得られることを示した^[2]。

さらに、高次高調波発生の詳細な基本波長依存性のパイオニア的研究を行い、高調波収 量において高次のトラジェクトリー⁵からの寄与も重要であり、基本波が長波長の場合に特 にその傾向が顕著であることを明らかにした^[3]。上記のように研究期間中、アト秒科学の重 要な潮流である「高次高調波の基本波長依存性」の詳細な検討を、世界に先駆けて行い成 果を上げ、一定の評価を得た。

⁵ トラジェクトリー:高次高調波発生の3ステップモデル、Lewensteinモデルで、トンネルイオン化から再 結合までの間に電子がとる経路のこと。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Ishikawa K.L. "Temporal Young's interference experiment by attosecond double and triple soft-x-ray pulses", Physical Review A, 2006, 74(2), 023806.
- [2] Ishikawa K.L., Takahashi E.J., Midorikawa K. "Single-attosecond pulse generation using a seed harmonic pulse train", Physical Review A, 2007, 75(2), 021801(R).
- [3] Ishikawa K.L., Schiessl K., Persson E., Burgdörfer J. "Fine-scale oscillations in the wavelength and intensity dependence of high-order harmonic generation: Connection with channel closings", Physical Review A, 2009, 79(3), 033411.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

現在、JST 戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域「新たな光機能や光物性の発現・利活 用を基軸とする次世代フォトニクスの基盤技術」(2015 年度~2019 年度、北山研一研究総 括、光産業創成大学院大学特任教授)において、研究課題「アト秒反応ダイナミクスコント ローラーの創生」の研究代表者として、実時間第一原理計算、高強度アト秒パルスレーザ ーをベースに化学反応を光で自在に制御する研究に取り組んでいる。

また、科研費基盤技術(B)「第一原理計算を用いたアト秒光電子放出遅延現象の解明」 (2016 年度~2018 年度)における代表者としても、研究を進めている。

①科学技術の進歩への貢献

石川は、TDSEの数値解をベースとした研究をさきがけ研究期間終了後も継続し、高強度・ 超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを次々に明らかにするとともに、新規なシミ ュレーション手法を創出している。

本研究終了後の具体的な成果の例を、被引用数の多い主要な論文の内容を基に以下に示す。

原子や分子の構造のプローブとして近年関心が高まっているトンネル電離に関して、極 超短パルスの1サイクルの間でのみ起こる電離と、サイクルごとに起こる電離における干 渉について検討した。その結果、超閾電離⁷(ATI)スペクトルの形状は、サイクル間干渉によ る離散的ピークの包絡線が、サイクル内干渉による変調を受けたものであることを明らか にした^[1]。この事情は結晶のX線回折と等価で、「時間領域の回折格子」と捉えることがで きる。図 3-3 は、クーロンポテンシャルを取り込んで計算した光電子スペクトルの比較で ある。光電子スペクトルは、等間隔の ATI ピーク(サイクル間の干渉)がサイクル内の干渉 によって変調されていること、クーロンポテンシャルの効果でシフトすることを明確に示 している。

⁶トンネル電離:トンネルイオン化(tunneling ionization)とも呼ばれ、光の強い電場によるイオン化を指 す。高強度レーザーが照射された原子や分子の中の電子は、レーザー照射によって形作られたポテンシ ャル障壁を、量子力学的なトンネル効果によって通り抜けて原子や分子の外に出ることができるため、 イオン化が起こる。

⁷ 超閾電離:原子や分子が光子を一度に複数吸収してイオン化する多光子電離の一種で、イオン化に最低限 必要な数より多くの光子を吸収してイオン化する現象。



図 3-3 クーロンポテンシャルを取り込み計算した光電子スペクトルの比較[1]

また、高強度場中の多電子ダイナミクスを記述する方法について研究を行い、 TD-CASSCF (Time-Dependent Complete-Active-Space Self-Consistent-Field:時間依存完全 活性空間自己無撞着場)法を開発した。TD-CASSCF 法のポイントは、全電子が強く束縛され 物理的に不活性なコア電子を frozen-core 軌道、強く束縛されているが外場に応答し得る 電子を dynamical-core 軌道としてそれぞれモデル化し、電離電子は active 軌道内で完全 相関させるというものである。frozen-core 軌道を導入した TD-CASSCF 法によって初めて 18電子系までの精緻な計算が可能になった^[2]。図3-4に、TD-CASSCF 法のコンセプトを示す。 これにより、多電子系における電離ダイナミクスをコンパクトかつ正確に記述することを 可能にした。



図 3-4 TD-CASSCF 法の概念図。二つの frozen-core 軌道(φ1、φ2)、二つの dynamical-core 軌道(φ3、φ4)、及び四つの active 軌道(φ5~φ8)を有する 12 電子系^[2]

さらに石川は、より柔軟に重要な配置のみ取り込むことのできる TD-ORMAS(TD occupation-restricted multiple active-space)法と呼ぶ計算手法を開発した。TD-ORMAS

法では、active 軌道を更に任意の数のグループに分割し、各グループの占有数に制限を与 えることで重要な配置のみ取り込むことにより、より大きな系の計算を可能にした^[3]。

また石川は、垂直入射するテラヘルツ光パルスによるグラフェンの非線形光学応答を無 質量ディラックフェルミオン(MDF)描画で理論的に研究し、物理的に明快なグラフェンブロ ッホ方程式⁸(GDE)を導いた^[4]。

高強度レーザーと原子・分子の相互作用は、超高速分光の新しいツールとして重要度が 高まっているものの、実験結果の解釈が難しく、理論がそれを支援し実験を先導すること が強く望まれている。石川は、光と原子・分子中の電子がお互いに及ぼす相互作用を、理 論的に、量子力学に基づいた第一原理計算で継続的に研究している。

2社会・経済への波及効果

石川は、重粒子線の線量を評価する研究を理化学研究所(理研)と共同で進めている。重 粒子線がん治療には、標的組織における 3 次元的な線量分布を生成するとともに、標的周 囲の正常組織に対して可能な限り影響を与えない治療計画が必要で、シミュレータに対す るニーズが存在する。また同時に、シミュレーションの精度を評価する 3 次元の線量計が 必要となる。石川は、重粒子線がん治療のための 3 次元線量計の研究を進展させている。 図 3-5 は、線量計に照射された重粒子線(炭素イオンを加速してできるビーム)の侵入深さ 分布を示しており、図 3-5 a は、計算値と電離箱による実測値の比較、図 3-5 b は、ポリ マー線量計の MRI による測定値である⁹。

⁸ブロッホ方程式:磁場中に置かれた原子核の集団の磁気的性質を調べるため、1946年に F. ブロッホが提案 した磁気共鳴の現象論的記述をする方程式を指す。

⁹ Maeyama T., Fukunishi N., Ishikawa K.L., Furuta T., Fukasaku K., Takagi S., Noda S., Himeno R., Fukuda S. "Radiological characteristics of MRI-based VIP polymer gel under carbon beam irradiation", Radiation Physics and Chemistry, 2015, 107, pp. 7-11.



図 3-5 粒子の侵入深さ分布(実測値と計算値の比較)。

石川は、本研究領域終了後に3件の特許を出願している。いずれも、3次元線量計(ゲル 線量計)に関する出願である。2件¹⁰については出願人が理研であり、他の1件¹¹については、 理研と日産化学工業の共同出願である。このように、量子力学の基礎的な領域の研究成果 にとどまらず、がん治療という社会への波及効果の大きな医療分野でも着実な成果を上げ ている。また線量計に関する企業との共同出願事例から、量子物理の概念を実際に役に立 つ医療の分野へ適用しようとする意思が伝わってくる。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Arbó D.G., Ishikawa K.L., Schiessl K., Persson E., Burgdörfer J. "Intracycle and intercycle interferences in above-threshold ionization: The time grating", Physical Review A, 2010, 81(2), 021403(R).
- [2] Sato T., Ishikawa K.L. "Time-dependent complete-active-space self-consistentfield method for multielectron dynamics in intense laser fields", Physical Review A, 2013, 88(2), 023402.
- [3] Sato T., Ishikawa K.L. "Time-dependent multiconfiguration self-consistent-field method based on the occupation-restricted multiple-active-space model for multielectron dynamics in intense laser fields", Physical Review A, 2015, 91(2), 023417.
- [4] Ishikawa K.L. "Nonlinear optical response of graphene in time domain", Physical Review B, 2010, 82(20), 200402(R).

¹⁰ 特開 2014-209093「放射線線量測定用のゲル線量計及びその製造方法」、US9213105B2「GEL DOSIMETER FOR MEASURING RADIATION DOSAGE AND MANUFACTURING METHOD THEREFOR」

¹¹ W02016098888A「放射線量測定ゲル、及びそれを放射線量の計測材料として備える放射線量計」

④その他

石川は、さきがけ終了時は理化学研究所上級研究員であったが、2014年2月に東京大学 大学院工学系研究科原子力国際専攻の教授に就任している。現在は、東京大学大学院工学 系研究科原子力国際専攻を本拠地としながら、東京大学大学院工学系研究科附属光量子科 学研究センター及び大学院理学系研究科物理学専攻にまたがって活動している。さらに石 川は、理研の客員研究員でもあり、光量子工学研究領域アト秒科学研究チームと仁科加速 器研究センター運転技術チームに属し、それぞれ、アト秒科学、重粒子線の線量評価で、 密な共同研究を進めている。

また、ウィーン工科大学(オーストリア)、自由電子レーザーFERMI(イタリア)、ミュンヘン大学(ドイツ)、東北大学、国立研究開発法人・量子科学技術研究開発機構、放射線医学総合研究所、本さきがけ研究領域メンバーであった板谷治郎、同じく蘆原聡など、国内外の大学・研究機関及び研究者と共同研究を活発に行っている。

3.1.3 位相コヒーレント真空紫外パルスによる精密原子分光(井戸哲也)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

真空紫外域には、水素やヘリウム等の構成が簡単な原子において、励起状態から基底状態への遷移¹²が多数ある。この波長域の精密分光は、ラムシフト¹³の測定精度の向上等で、物理学の根本部分に大きなインパクトを与える。また、ごく一部の原子においてはこの波長域に、周波数標準を実現するには理想的であるといわれている核遷移を見いだすことができる。

本研究は、オシレータからの近赤外パルスを受動光共振器に蓄積してパルス強度を上げ、 そこから高次高調波を取り出すことによって、厳密に位相が制御された真空紫外光を発生 させ、これを利用して原子分光を行うことを狙いとした。

②期間中の研究成果

井戸は、米国の JILA (Joint Institute for Laboratory Astrophysics) において、⁸⁷Srの 光格子時計及び⁸⁸Sr の光結合の分光実験を行った。光格子時計においては、400THz の光学 遷移で僅か 2Hz (Q 値 2×10¹⁴)のスペクトル幅の分光に成功した^[1,2]。

帰国後、井戸は、繰り返し周波数 110MHz、パルス幅 60fs、バンド幅 30nm、平均出力 550mW のチタンサファイアパルスレーザーを製作し、真空槽内に組み込んだ光共振器に安定して パルスをロックすることに成功した。それによって、光共振器内に 330 倍のパルス強度を 実現することができた¹⁴。また、この光共振器に Xe ガスを供給することで、Xe 原子のプラ ズマイオン化が起きることを確認した。

高次高調波を発生させる非線形媒質として使用した Xe ガスが真空槽内に残留するため、 その影響を定量的に評価することが重要である。研究期間中に井戸は、ストロンチウム原 子の ¹S₀-³P₁遷移の精密飽和分光で、真空槽内に多種類の希ガスを mTorr レベルの分圧で導 入したときの周波数シフトとブロードニングを測定した。その結果、He ではブルーシフト、 Ne、Ar、Xe においてはレッドシフトが生じることが分かった^{[3],15}。ただし、目標とした真 空紫外光の発生に関しては、研究期間中でのレーザー光学測定系では、達成し得ず、今後 に持ち越す課題となった。

¹² 例えば、水素の励起状態(n=2)から基底状態(n=1)への遷移は波長 121.57nm に、n=3 から n=1 への遷移は 波長 102.57nm の真空紫外光に対応する。

¹³ ラムシフト:ディラックの電子論によれば縮退している水素原子の ²S_{1/2}準位と ²P_{1/2}準位間に存在するエネルギー差。

¹⁴ 井戸哲也、「外部光共振器によるチタンサファイアレーザーのパルス増強」、応用物理学会秋期関係連合 講演会、2008 年 9 月。

¹⁵ コペルニクス大学(ポーランド)との共同研究。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Boyd M.M., Zelevinsky T., Ludlow A.D., Foreman S.M., Blatt S., Ido T., Ye J. "Optical atomic coherence at the 1-second time scale", Science, 2006, 314(5804), 1430-1433.
- [2] Boyd M. M., Ludlow A. D., Blatt S., Foreman S. M., Ido T., Zelevinsky T., Ye J. "Sr87 lattice clock with inaccuracy below 10⁻¹⁵", Physical Review Letters, 2007, 98(8), 083002.
- Shiga N., Li Y., Ito H., Nagano S., Ido T., Bielska K., Trawiåski R.S., CiuryÅo R. "Buffer-gas-induced collision shift for the ⁸⁸Sr ¹S₀ ³P₁ clock transition", Physical Review A, 2009, 80(3), 030501.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

少額のため研究助成金リストの表に記載していないが、現在井戸は、科研費特別奨励費 「単結晶シリコンによる高安定光共振器の研究」(2017年度~2018年度)に取り組んでいる。

①科学技術の進歩への貢献

井戸は、研究終了後、研究期間中には達成できなかった高次高調波による真空紫外光の 発生に成功した^[1]。すなわち、波長 795nmのモード同期チタンサファイア(Ti:S)レーザーを、 レーザー共振器と同一の光路長を持つ外部共振器に蓄積して増強し、ノズルから噴出させ た Xe ガスを非線形媒質として 5 次高調波の 159nm 光を共振器内に発生させた。この 159nm 光を、フッ化物(低屈折率の AlF₃ と高屈折率の GdF₃ を用いた多層膜)でコーティングした VUV-0C(Vacuum Ultraviolet - 0utput Coupler)を用いて、共振器外に取り出した。これに より、159nm の真空紫外に位置する In⁺の ¹S0⁻¹P1遷移に対応する量子状態を高速に観測する 可能性が示された。In⁺の量子状態の測定には、これまで 231nm の ¹S0⁻³P1遷移が用いられて いたが、蛍光強度が低く測定に長時間を要していた¹⁶。図 3-6 に、VUV-0C を用いた 5 次高調 波発生の実験系の構成を示す。この成果は、精度 10⁻¹⁸のイオン光時計の実現とともに、精 密な物理定数の決定、基礎物理理論の検証等に寄与すると期待されている。

¹⁶ [1]の結果では In⁺の ¹S₀⁻¹P₁遷移で生成可能な光子数は毎秒 550 個と見積もられ、¹S₀⁻³P₁遷移における毎 秒 500 個と同程度であるが、長期動作の安定化、イオントラップへの導入光学系の実装などにより、¹S₀⁻¹P₁ 遷移で生成可能な光子数の増大が見込める。



図 3-6 VUV-OC を用いた 5 次高調波発生の実験系^[1]

②社会・経済への波及効果

井戸は、JST 戦略的創造研究推進事業 CREST 戦略領域「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」(2008 年度~2015 年度 伊藤正研究総括)における研究課題「超狭線幅光源を駆使した量子操作・計測技術の開発」(高橋義朗研究代表者、京都大学大学院理学研究科教授)の共同研究者として、冷却原子の生成、大型共振器の開発、Sr 光格子時計の開発などの研究を行った。2010 年度に Sr 光格子時計の動作を確認し、その後、国立研究開発法人情報通信研究機構(NICT)で運用している Ca⁺単一イオン型光時計と周波数の比較を行った。 NICT の Sr 光時計の確度は 5×10⁻¹⁶、同 Ca⁺単一イオン型光時計の確度は 2×10⁻¹⁵ である。井戸は、この二つの光時計間の周波数比を(Ca⁺遷移周波数)/(Sr 遷移周波数) = 0.957 631 202 358 049 9 と決定した(確度 2.3×10⁻¹⁵)^[2]。図 3-7 にその結果を示す。これは、国際度量衡委員会(Comite International des Poids et Mesures(CIPM))に報告し、同委員会における両遷移の推奨周波数の設定に寄与した。



図 3-7 半年間で取得した (Ca⁺遷移周波数) / (Sr 遷移周波数)の値^[2]

また、井戸は、離れて設置されている光格子時計において光ファイバーリンクによって 直接周波数を比較する実験を行った。光リンクとして、NICT が運用する小金井-大手町間 の光ネットワークテストベッド JGN2plus (現 JGN-X)を利用した。NICT と東京大学間のファ イバー長は 60km である。まず、NICT の光格子時計にコヒーレントにリンクされた光周波数 コム¹⁷を東京大学側で立ち上げ、東京大学の光格子時計が生成する光周波数とこの周波数コ ムのビート周波数を測定することにより二つの時計の相対的な周波数差をリアルタイムに 測定した^{[3,4],18}。図 3-8 にこのような実験系の構成を、図 3-9 に二つの時計の周波数差を示 す。図 3-9 のとおり、NICT の時計の周波数が 3~4Hz 東京大学側より高いことが明瞭に観測 された。しかし、この周波数差は主として NICT、東京大学の 56m の標高差に起因しており、 それを補正すると、NICT と東京大学の時計の原因不明の周波数差は 430THz のうち僅か 0.04±0.31Hz(6,500 万年に1秒)であった。これらは、日本発アイディア¹⁹の光格子時計の 普遍性と、周波数標準の遠距離伝送が可能であることを明確に示す結果である。井戸は、 この実験成果により、第46回(2013 年度)市村学術賞貢献賞を受賞した。



図 3-8 ファイバーリンクを用いた光格子時計の周波数比較の実験系20

¹⁷ スペクトルが離散的で等間隔に並んだ周波数線から成るレーザー光源。

¹⁸ Yamaguchi A., Shiga N., Nagano S., Li Y., Ishijima H., Hachisu H., Kumagai M., Ido T. "Stability transfer between two clock lasers operating at different wavelengths for absolute frequency measurement of clock transition in ⁸⁷Sr" Applied Physics Express, 2012, 5(2), 022701.

¹⁹ 東京大学の香取秀俊教授は、次世代原子時計を目指して 2001 年に光格子時計の理論を発表し、2003 年に その基礎実験に成功した。

²⁰ NICT NEWS http://www.nict.go.jp/publication/NICT-News/1110/01.html



図 3-9 NICT 及び東大の光格子時計の周波数差¹⁸

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Wakui K., Hayasaka K., Ido T. "Generation of vacuum ultraviolet radiation by intracavity high-harmonic generation toward state detection of single trapped ions", Applied Physics B, 2014, 117(3), 957-967.
- [2] Matsubara K., Hachisu H., Li Y., Nagano S., Locke C., Nogami A., Kajita M., Hayasaka K., Ido T., Hosokawa M. "Direct comparison of a Ca⁺ single-ion clock against a Sr lattice clock to verify the absolute frequency measurement", Optics Express, 2012, 20(20), 22034-22041.
- [3] Yamaguchi A., Fujieda M., Kumagai M., Hachisu H., Nagano S., Li Y., Ido T., Takano T., Takamoto M., Katori H. "Direct comparison of distant optical lattice clocks at the 10⁻¹⁶ uncertainty", Applied Physics Express, 2011, 4(8), 082203.
- [4] Fujieda M., Kumagai M., Nagano S., Yamaguchi A., Hachisu H., Ido T. "All-optical link for direct comparison of distant optical clocks", Optics Express, 2011, 19(17), 16498-16507.

④その他

井戸は、"Direct comparison of distant optical lattice clocks at the 10⁻¹⁶ uncertainty" ^[3]と題する論文で、2012 年度応用物理学会優秀論文賞を受賞した。また、NICT と東京大学 の光格子時計において光リンクによって直接周波数を比較する実験^[3,4]で、第46回(2013 年 度)市村学術賞貢献賞を受賞した。

井戸は、さきがけ採択時は JILA のポストドクで、2006 年度に帰国して NICT の研究員と なり継続して研究を進めた。終了時には NICT の主任研究員であったが、現在は同研究機構 電波研究所時空標準研究室長に就任している。

3.1.4 位相制御光による量子的分子操作と極限計測技術への展開(大村英樹)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

波長の異なるフェムト秒光パルスを重ね合わせ、その相対位相を精密に制御した位相制 御光は、従来の光とは本質的に異なった性質を持っているため、光の位相に関わる新しい 量子現象の観測、さらに位相制御光を用いた物質制御の新しい方法論を提示できる可能性 がある。本研究の目的は、(1)位相制御光と分子との相互作用によって引き起こされる量子 効果を系統的に探索・分類し、総合的な理解をすること、(2)位相制御光を用いた新しい方 法論に基づく極限計測手法として、位相制御光により配向分子をイオン化して検出するこ とにより、分子の質量と立体構造を同時に決定できる配向分子質量分析装置の開発を行う ことである。

②期間中の研究成果

レーザー光の基本波とその第2高調波の相対位相差 ϕ をゼロ又は π に固定して重ね合わせた場合(以下、「(ω +2 ω)位相制御レーザー光」と表記)、その光電場波形は正負に対して非対称な形状となる(図 3-10)。(ω +2 ω)位相制御レーザー光においては、正負を区別できない通常の光電場とは異なり、静電場的な方向性が生じる。この非対称性は、相対位相差 ϕ をゼロから π に変えると反転する。



図 3-10 (ω+2ω)位相制御レーザー光の波形と、方向性を持つ分子の例^{[1,21}

無極性分子である 1-ブロモ-2-クロロエタン(Br(CH₂)₂C1)に(ω+2ω)位相制御フェムト秒

²¹ 1-ブロモ-2-クロロエタンの HOMO(Highest Occupied Molecular Orbital)を示している。

光パルスを照射すると、解離性イオン化反応によって TOF スペクトル²²には親分子イオン、 臭素イオン、塩素イオン、親分子からそれぞれのハロゲン原子が取れたカチオンが観測さ れる(図 3-11(a))。光解離生成物の If/Ib(前方放出成分と後方放出成分の比)を相対位相差 φ の関数としてプロットすると、解離生成物イオンは明瞭な 2π の振動を示し、塩素イオ ンとその反対側に位置するカチオン、臭素イオンとその反対側に位置するカチオンがお互 いに逆位相の関係にあることから、配向分子が検出されることが分かった(図 3-11(b))。さ らに塩素イオンと臭素イオンの間でも If/Ib は互いに逆位相であることから、Br(CH₂)₂Cl 分 子の構造をほぼ反映したフラグメンテーションが起こることが分かった。Br(CH₂)₂Cl 分子の 永久双極子モーメントがほぼゼロであることから、この実験結果は、動的配向²³ではなく純 粋に配向分子の選択イオン化²⁴の効果であることを示すものである^[1]。



図 3-11 1-ブロモ-2-クロロエタンの TOF スペクトルと前方放出成分/後方放出成分^[1]

また、同様の実験を、極性分子であるヨウ化ヘキサンに対して行い、明瞭な配向分子の 振る舞いを観測した。ヨウ化ヘキサンは比較的大きな分子で動的配向が困難と考えられ、 この場合も配向分子検出のメカニズムは配向分子選択イオン化であることを示す結果であ る^[2]。

さらに、四つのハロゲン化メチル(CH3X;X=F,Cl,Br,I)を用いて同様の実験を行い、永久 双極子と波動関数の非対称性が共存するような系でも、(ω+2ω)位相制御レーザーパルス の異方性光トンネルイオン化に基づく配向分子選択イオン化が主要な効果であるというこ とを示した^[3]。

続いて極性分子である硫酸カルボニル(OCS)を用いて同様の実験を行った。この実験では、

²² TOF スペクトル: Time of Flight Mass Spectrometer で得られるスペクトル。

²³ 動的配向:分子の分極と光電場との相互作用によるトルクのため、光電場が最大の方向に分子が配向す ること(Dynamic Molecular Orientation)。

²⁴ 束縛電子のポテンシャルが光電場で歪むことによってその障壁が下がり、電子がポテンシャル障壁をト ンネルすることによりイオン化する(トンネルイオン化)。

ピコ秒パルスではなくナノ秒パルスを用いた。その結果、配向分子が観測され、次に行った OCS(硫化カルボニル)と CH₃Br(臭化メチル)の混合ガスを用いる実験により、検出される 配向分子が永久双極子モーメントではなく、HOMO(Highest Occupied Molecular Orbital) の非対称性に相関があることを確認した²⁵。これは動的配向効果が十分期待されるナノ秒パ ルスでさえも、配向分子選択イオン化が主要な効果であることを示す結果である。

以上のように、大村は相対位相を精密に制御した位相制御光による分子配向技術を世界 に先駆けて実現した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Ohmura H., Saito N., Tachiya M. "Selective ionization of oriented nonpolar molecules with asymmetric structure by phase-controlled two-color laser fields", Physical Review Letters, 2006, 96(17), 173001.
- [2] Ohmura H., Saito N., Nonaka H., Ichimura S. "Dissociative ionization of a large molecule studied by intense phase-controlled laser fields", Physical Review A, 2008, 77(5), 053405.
- [3] Ohmura H., Ito F., Tachiya M. "Phase-sensitive molecular ionization induced by a phase-controlled two-color laser field in methyl halides", Physical Review A, 2006, 74(4), 043410.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

本研究期間中から、科研費若手研究(A)「位相制御レーザーによる固体表面粒子放出現象の量子制御」(2008年度~2010年度)における研究代表者として、位相制御レーザーパルスと固体表面に存在する分子との相互作用に関する研究を行った。

本研究終了後、科研費基盤研究(B)「分子トンネルイオン化の量子制御を利用したレーザ ー場フーリエ合成」(2012 年度~2014 年度)における研究代表者として、フーリエ合成され たレーザー光電場波形の計測や制御に関する研究を行った。

現在、科研費基盤研究(B)「サブ 10 フェムト秒位相制御光による非熱的原子レベルレー ザーカーヴィング技術の開発」(2016 年度~2018 年度)に、研究代表者として取り組んでいる。

大村は、さきがけ「光の創成・操作と展開」の研究者であった電気通信大学の森下亨と 同研究課題の中で共同研究を行った。また、科研費基盤研究(B)「分子トンネルイオン化の 量子制御を利用したレーザー場フーリエ合成」において森下亨、Aarhus 大学(デンマーク) のL. B. Madsen 教授と共同研究を行った。現在、科研費基盤研究(B)「サブ10フェムト秒 位相制御光による非熱的原子レベルレーザーカーヴィング技術の開発」において森下亨と 共同研究を行っている。

²⁵ Ohmura H., Tachiya M. "Robust quantum control of molecular tunneling ionization in the space domain by phase-controlled laser fields", Physical Review A, 2008, 77(2), 023408.

①科学技術の進歩への貢献

大村は研究期間中、非対称な光電場を持つ2色(ω+2ω)位相制御光(基本波とその第2高 調波を、相対位相差ゼロ又はπに固定して重ね合わせたもの)により、気体中の特定配向分 子が選択的にトンネルイオン化される手法を実証した。研究終了後も、2色位相制御光によ る気体分子のトンネルイオン化の研究を続け、HOMOの非対称性が大きい CO(一酸化炭素)を 用いて、トンネルイオン化における光電子発生方向の非対称性を観測した^[1]。また、OCS を 用いた同様の実験を行い、イオン化した分子の配向と HOMO の幾何学的構造には密接な関係 があり、実験結果は two-step モデルで説明できることを示した^[2]。研究期間中、四つのハ ロゲン化メチル(CH3X; X=F, C1, Br, I)を用いて、分子の選択的トンネルイオン化の HOMO の構 造に対する依存性を詳細に検討したが、研究終了後には、四つのハロゲン化アリル (C3H5X; X=F, C1, Br, I)を用いて同核存性を検証した^[3]。

一方、科研費「分子トンネルイオン化の量子制御を利用したレーザー場フーリエ合成」 (2012 年度~2014 年度)においては、多色(ω+2ω+3ω+4ω)位相制御光を用いて、配向分子 がイオン化されて検出されることを確認した。また、2 色、3 色、4 色と順次重ね合わせる 波長の数を変化させて、それぞれの場合について If/Ib の最大点を見いだすことにより、 相対位相差のキャリブレーションを行った。その結果、四つの周波数の重ね合わせの場合 において、任意の光電場波形(フーリエ合成)のレーザーを創成することに成功した^[4]。図 3-12 に多色位相制御光を発生させる、マッハツェンダー型干渉計の構成を示す。



図 3-12 4 色マッハツェンダー型干渉計の構成[4],26

この成果は、フーリエ合成レーザー分野において新たな方法論を創成する道を拓き、光 波工学だけでなく、物質制御の研究進展にも大きく寄与するものと期待される。

 $^{^{26}}$ TS(n ω) : Translation stage, HW(n ω) : Half wave plate, M(n ω) : dielectric reflector, BBO(n ω) : Nonlinear optical crystal, DW : Dual-wavelength wave plate, P : Polarizer

2社会・経済への波及効果

分子を光(電場)により配向させた状態でイオン化し、その運動状況に基づいて構造を推 定する配向分子質量分析法の基本特許を研究開始前に出願し、研究終了後に登録されてい る²⁷。大村は、この特許を基礎として、継続して3件の特許を出願しており、3件とも登録 されている。1件は「位相安定化光学装置」に関するもので、本研究に用いた2色法(ω+2 ω)により、同軸2光束が同一光学系を経由する形式の干渉計の具体的構成を提示している ²⁸。従来の干渉計のようにビームスプリッターによる光の空間的分割がないため、空気のゆ らぎ、構成部品の温度揺らぎ、振動による揺らぎを回避でき、干渉計を応用した物体の形 状や表面状態の測定、光通信用パルス発生等の分野における技術革新につながる出願であ る。

2 件目は、「レーザー光フーリエ合成法及び装置」に関するもので、各周波数成分の相対 位相を、数学的にではなく簡便に決定して位相制御部を調整又は校正して、レーザー光を フーリエ合成する方法及び装置を提示している²⁹。図 3-13 に、同特許(特許 6176661)の代表 図を示す。同特許は、科研費「分子トンネルイオン化の量子制御を利用したレーザー場フ ーリエ合成」の研究に用いた技術の産業分野への応用を目指して出願されたと考えられ、 次世代光通信に向けたテラヘルツ以上の周波数の高繰り返しパルス発生や、光化学合成へ の応用が期待される。



図 3-13 特許 06176661 の代表図 29

3 件目は、NEDO の委託研究「低炭素社会を実現する革新的カーボンナノチューブ複合材 料開発プロジェクト」に関連した出願で、レーザー技術を応用した「グラフェン膜の欠陥 修復方法及びグラフェン膜の透過率測定装置」を提供するものである³⁰。

²⁷ 特許 4423388「配向分子質量分析法」

²⁸ 特許 5273517「位相安定化光学装置」

²⁹ 特許 6176661 「レーザー光フーリエ合成法及び装置」

³⁰ 特許 6176711「グラフェン膜の欠陥修復方法及びグラフェン膜の透過率測定装置」

このように大村は、量子的分子操作に用いるレーザー技術を特許出願によって開示し、同技術の産業分野への波及を目指している。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Ohmura H., Saito N., Morishita T. "Quantum control of molecular tunneling ionization in the spatiotemporal domain", Physical Review A, 2011, 83(6), 063407.
- [2] Ohmura H., Saito N., Morishita T. "Molecular tunneling ionization of the carbonyl sulfide molecule by double-frequency phase-controlled laser fields", Physical Review A, 2014, 89(1), 013405.
- [3] Ohmura H., Saito N. "Molecular tunnelling ionization of allyl halides induced by phase-controlled two-colour laser fields", Journal of Physics B, 2014, 47(20), 204007.
- [4] Ohmura H., Saito N. "Quantum control of a molecular ionization process by using Fourier-synthesized laser fields", Physical Review A, 2015, 92(5), 053408.

④その他

大村は、フーリエ合成レーザー分野において、新たな方法論を創成する道を拓き、光波 工学だけでなく、物質制御の研究進展にも大きく寄与する新たな物質科学の潮流を作りつ つある。また、さきがけ応募時、産業技術総合研究所計測フロンティア研究部門研究員で あった大村は、さきがけ終了時には同部門主任研究員、今回の追跡調査時には産業技術総 合研究所機能化学研究部門光材料化学グループ主任研究員に就任している。

3.1.5 トポロジカル光波シンセシス(尾松孝茂)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

レーザー共振器の固有モードであるガウスビームとは異なる螺旋波面を持つ光渦³¹、円偏 光や直線偏光とは異なる動径方向(あるいは方位方向)に沿った偏光を示す径偏光(あるい は方位偏光)ビームなど、波面や偏光のトポロジカルな構造を制御することで発生する光波 を、トポロジカル光波と総称する。トポロジカル光波の代表的なものにラゲールガウスビ ームがあり、円筒座標系における方位方向の周期的境界条件から現れる量子数(トポロジカ ルチャージ)と、動径方向の量子数で特徴付けられる。ラゲールガウスビームの特徴である 軌道角運動量を決めるのは、方位方向の量子数トポロジカルチャージである。このトポロ ジカルチャージを効率良く利用することにより、液中やガス中に浮遊するサブミクロンレ ベルの極微粒子の光照射だけによる駆動や、アブレーション過程で発生するプラズマの空 間密度分布の制御など、新しい量子光学、物性工学を生み出す可能性がある。本研究では、 非線形光学、レーザー工学を高度に駆使し、CW(Continuous Wave)からフェムト秒に至る時 間領域でトポロジカルチャージを有する高出力・高強度レーザー(トポロジカル光波)を高 効率でかつ自在に創製(デザイン)することにより、新しい光科学の創成を目指した。

②期間中の研究成果

尾松は、側面励起型固体レーザーにおいて、共振器の安定性を決定するレーザー結晶の 熱光学効果(主にレンズ効果)が、ガウスモードよりラゲールガウスモードに対しては有利 に作用すること及びレーザー素子の利得空間ホールバーニングにより 3 次非線形性が発生 することから、ラゲールガウスモードがレーザー共振器の固有モードとして存在できるこ とを世界で初めて発見した。この方法は、位相変調素子を一切必要としない^[1]。実際に、18W を超える高出力ラゲールガウスモードの発生に成功した。また、ガウスビームであるピコ 秒レーザーをラゲールガウスビームへ変換すると同時に、増幅して高出力化する新たな方 法として、ファイバー内で光渦を発生させると同時にレーザー増幅によって結合損失を上 回る実効的な光増幅が可能な Yb 添加ラージモードエリアファイバー増幅器(ファイバー増 幅器)をモード変換器として用いる方法を提案し、平均出力 8W を超える高出力ピコ秒ラゲ ールガウスビームの発生に成功した^[2]。

また、フォトリフラクティブ結晶であるロジウムドープのチタン酸バリウムの Rh イオン 濃度、結晶方位、屈折率回折格子間隔を最適化して構築したピコ秒パルスに対して、効率 良く動作する位相共役鏡を側面励起型 Nd ドープバナデートレーザー増幅器に導入し、平均

³¹ 位相特異点を内在するトポロジカル光波。

出力 95W、ピークパワー10MW 以上の高出力高品位ピコ秒パルスレーザーを、世界で初めて 開発した^[3]。

さらに、一つの波面に複数の位相特異点(光渦)を内在するトポロジカル光波である多重 光渦を用いて、ナノ微粒子を輸送できることを示した。光の作用場は波長で制限されるた め、ナノ粒子の運動や配置を直接制御するのではなく、個々の光渦によって捕捉されトル クを受け取るマイクロ微粒子群が生み出す流れの場を利用することによって、ナノ微粒子 の運動制御・操作を実現した。光マニピュレーションの報告は数多いが、多重光渦を利用 したナノ粒子の輸送は、この研究が世界で最初である。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Okida M., Omatsu T., Itoh M., Yatagai T. "Direct generation of high power Laguerre-Gaussian output from a diode-pumped Nd:YVO₄ $1.3-\mu$ m bounce laser", Optics Express, 2007, 15(12), 7616-7622.
- [2] Tanaka Y., Okida M., Miyamoto K., Omatsu T. "High power picosecond vortex laser based on a large-mode-area fiber amplifier", Optics Express, 2009, 17(16), 14362-14366.
- [3] Nawata K., Okida M., Furuki K., Miyamoto K., Omatsu T. "Sub-100 W picosecond output from a phaseconjugate Nd:YVO₄ bounce amplifier", Optics Express, 2009, 17(23), 20816-20823.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

本研究終了後、科研費基盤研究(B)「フェロエレクトリック半導体による近中赤外超短パルス位相共役光学」(2009年度~2011年度)において、フェロエレクトリック半導体の一つである Sn₂P₂S₆(SPS)結晶の性能(高反射率、超広帯域、超高速応答、高光損傷閾値)を極限まで引き出し、近中赤外(1~1.6µm)の超短パルス光に対する革新的な位相共役鏡を創成する研究を行った。続いて、科研費基盤研究(B)「非整数量子数光渦レーザーの創成とテラヘルツ波光渦シンセシスへの展開」(2012年度~2014年度)において、光渦励起パラメトリックレーザーを用いて非整数のトポロジカルチャージを有する中赤外光渦の発生を観測する研究を行った。

また、JST 戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域「先端光源を駆使した光科学・光技術 の融合展開」(2010 年度~2014 年度、伊藤正研究総括大阪大学名誉教授)において、研究課 題「トポロジカル光波の全角運動量による新規ナノ構造・物性の創出」の研究代表者とし て、光波の「全角運動量」が様々な物質に及ぼすコヒーレント相互作用について研究を進 めた。尾松チームは、光の全角運動量(J)を有するトポロジカル光波を物質に照射すると、 物質が溶融すると同時にトポロジカル光波の「全角運動量」を受け取り、螺旋状のナノ構 造体(キラル構造体)へ変形する新規現象を発見し、物理的原理を含めたメカニズムを解明 した。また、その原理を金属やSi のナノニードル創成等へ応用することに成功するととも に、トポロジカル光波の自在発生技術を確立した。 現在は、科研費基盤研究(B)「光渦励起パラメトリックレーザーに立脚するトポロジカル 非線形光学」(2015年度~2017年度)における研究代表者として、光渦パラメトリックレー ザーにおいてトポロジカルチャージ分配則で決まる光の軌道角運動量の本質を解明する研 究を進めている。また 2016年度からは、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「光圧に よるナノ物質操作と秩序の創生」(2016年度~2020年度)の研究領域において、研究課題「光 圧で拓く:多粒子相互作用の選択的制御による構造と現象の創造」に、研究代表者として取 り組み、主に高濃度系における微粒子の相互作用を選択的に制御し、結晶化や化学反応な どを物理的に制御する研究を行っている。

一方、海外との共同研究においては、1.3µm側面励起レーザーに関して Imperial College London(英国)と、2波長同時発振小型固体レーザーに関して Macquari 大学(オーストラリア) と、中赤外メタマテリアルに関してニューヨーク州立大学バッファロー校(米国)と、国際 共同研究を行った。また、さきがけ「光の創成・操作と展開」の研究者であった芦田昌明、 熊倉光孝と同研究課題の中で、共同研究を行っている。

①科学技術の進歩への貢献

研究終了後も、トポロジカルチャージを有する高出力・高強度レーザー及び、その光源 を用いた物質の構造制御などの研究を継続している。

本研究領域終了後の科学技術の進歩に寄与する研究成果の例を、被引用数の多い主要な 論文の内容を基に以下に示す。

研究終了後、角運動量を持つトポロジカル光波を用いて、ナノ構造体である金属針(ナノ ニードル)を形成できることを報告し、さらに、角運動量を持つトポロジカル光波により形 成されたナノニードルは、ねじれた円錐形でありキラル構造体であることを発見した。ま た、そのキラリティは角運動量の符合により制御できることを明らかにした^[1]。図 3-14 に ナノ構造体形成の原理と、形成されたナノニードルの SEM 像を示す。



図 3-14 光渦(位相特異点を内在するトポロジカル光波)によるナノ構造体の形成[1]

さらに、様々な角運動量を用いて、ナノニードルの形成を試み、光渦の軌道角運動量が ナノ構造体のキラリティを決定することを明らかにした。すなわち軌道角運動量が 0 であ れば、ナノニードルのような構造体は形成されない。一方、トータル角運動量(軌道角運動 量+スピン角運動量³²)が0であっても、軌道角運動量が0でなければナノニードルは形成される^[2]。

②社会・経済への波及効果

研究期間を通して開発をしてきた高出力・高強度トポロジカル光波は、実用光源として 次世代のプラットフォームになり得るもので、特に高出力ピコ秒レーザーはテラヘルツ波 や OPCPA (Optical Parametric Chirp Pulse Amplification)の励起光源として応用できると ともに、シリコンやサファイアを始めとする難加工材のアブレーション加工光源として利 用できると期待され、産業界に大きく貢献する可能性がある。

また、トポロジカル光波の金属アブレーションへの応用が注目される。その一つは、金属表面にスポット系 130 µm のトポロジカル光波を照射すると、金属加工痕の中央部に、高さ 10 µm 以上、直径数 100nm の非常に鋭い針状構造体(ナノニードル)が形成されるという、 世界で初めて実証された技術である^[3]。図 3-15 にレーザーアブレーションによるナノニー ドルの形成概念図を示す。



図 3-15 レーザーアブレーションによるナノニードル形成の概念図^[3]

このようなナノニードルは、電界放射電極、プラズモンプローブ、近接場光プローブ、 超改造顕微鏡、メタマテリアル、バイオ MEMS などの高性能デバイスへ展開できる可能性が ある。

トポロジカル光波の金属アブレーションへのもう一つの応用として、穴(ドーナツ状)の 形成(Drilling)がある。尾松は、ナノ秒光渦パルスを用いてタンタル(Ta)に穴を開ける実 験を行い、光渦のないドーナツ状ガウスビームのパルスと比較して、加工面はより平滑で、 穴が深くなることを、世界で初めて実証した^[4]。これは、ドーナツ状のアブレーションによ るマイクロピラー、ピラーベースのフォトニック結晶、メタマテリアルなどの形成プロセ ス実現の可能性を示唆する成果である。

³² スピン角運動量: 偏光のトポロジカルな構造によって現れる角運動量。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Toyoda K., Miyamoto K., Aoki N., Morita R. Omatsu T. "Using optical vortex to control the chirality of twisted metal nanostructures", Nano Letters, 2012, 12(7), 3645-3649.
- [2] Toyoda K., Takahashi F., Takizawa S., Tokizane Y. Miyamoto K., Morita R., Omatsu T. "Transfer of light helicity to nanostructures", Physical Review Letters, 2013, 110(14), 143603.
- [3] Omatsu T., Chujo K., Miyamoto K., Okida M., Nakamura K., Aoki N., Morita R. "Metal microneedle fabrication using twisted light with spin", Optics Express, 2010, 18(17), 17967-17973.
- [4] Hamazaki J., Morita R., Chujo K., Kobayashi Y., Tanda S., Omatsu T. "Optical-vortex laser ablation", Optics Express, 2010, 18(3), 2144-2151.

④その他

光の等位相面が螺旋を示す光渦や、光ビーム断面内でその偏光が空間依存性を示す偏光 渦の状態を総称して、トポロジカル光波といわれている。この光の特異な現象を、世界に 先駆けて分かりやすい形で実験実証してきたのが、尾松である。この興味深い新奇な現象 の理解には、ラゲールガウスモード光への理論の追随が今後重要と思われるが、それと同 時に、レーザー加工のみならず、先進的な医療ツールや、新規な光多重通信への応用展開 も非常に期待される。

尾松は、2013 年度(第12回) APEX・JJAP 編集貢献賞、2016 年度双葉電子記念財団賞(衛藤 細矢記念財団賞)、2016 度文部科学大臣表彰 科学技術賞を受賞した。また、応用物理学会 フェロー表彰、米国光学会(The Optical Society, OSA)フェロー表彰を受けた。尾松は、 さきがけ採択時は千葉大学工学部助教授であったが、2008 年度に同大学教授に就任し現在 に至っている。

3.1.6 分子光変調による超高繰り返し超短パルス光の発生(桂川眞幸)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

近共鳴三準位系の光学過程を遠共鳴三準位系に拡張すると、広帯域コヒーレント光の同 軸発生や超短パルス光の発生など、光源として様々な用途が広がる。この遠共鳴三準位系 を用いて、ほぼ完全にコヒーレントに振動/回転する高密度(~10²⁰cm⁻³)分子集団を形成させ、 それを超高周波の光変調器として利用して、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を 生成させることを目的とした。本研究開始時には、この原理に基づき、既に、10THz 繰り返 し、パルス幅 12fs、ピーク強度>2MW の超短パルス光列の発生技術が確立されていた。この 技術を更に発展させ、極限的に短パルス化(モノサイクル)された高強度 10THz 繰り返し光 の発生、キャリアエンベロープオフセット(Carrier Envelope Offset:CEO)及びキャリアエ ンベロープ位相(Carrier Envelope Phase:CEP)の制御を目指した。

②期間中の研究成果

桂川は、生成される超短パルス光が高強度であるという特徴を失うことなく、極限的に 短パルス化(モノサイクル)された超短パルス光を生成するため、ラマン遷移に近共鳴する2 波長の基本波を用いる従来の方法に対して、更に一方の倍波を加えた3 波長励起とする新 しい方式を試みた。その結果、基本波の2 波長(784nm、806nm)を起点として広がるラマン サイドバンド光と、基本波の一方の倍波(403nm)を起点として広がるラマンサイドバンド光 が重なり合い、一オクターブをはるかに超える超広帯域ラマンサイドバンド光スペクトル (図 3-16)を生成させることができた^[1]。このように、極めて離散的で、かつ広帯域にわた るスペクトルから形成される超短パルス光に対する新しい評価法を開発した。それによっ て、生成された広帯域ラマンサイドバンド光のスペクトル位相を定量的に評価することが できるようになった^[2]。さらに、離散スペクトルに特有の新しいパルス圧縮法を開発した³³。

³³ 特許 5354653「スペクトル位相補償方法及びスペクトル位相補償装置」



図 3-16 3 波長のレーザーにより生成されたラマンサイドバンド光スペクトル[1]

桂川は、生成した超高繰り返し超短パルス光を単に短パルス化するだけでなく、その光振幅波形をも制御することを目指し、励起に用いる 2 波長の励起光が単一のレーザー共振器から生成されることにより、ラマンサイドバンド光の CEO 周波数が、離散的に自動制御されることを明らかにした^[3]。次に、CEO 周波数制御の高精度化と CEP 制御のため、光周波数標準(ヨウ素安定化 YAG レーザー、絶対周波数安定度:>8 ×10⁻¹³)に安定化されたフェムト秒レーザー光周波数コムを絶対周波数の"ものさし"とし、広帯域ラマンサイドバンド光にその絶対周波数安定度を転写する手法を試みた。その結果、種光に用いた 2 波長の外部共振器制御半導体レーザー光が、共に 4mHz 以下の精度をもってフェムト秒レーザー光周波数コムに位相同期されることを確認した³⁴。また、生成されたラマン型光コムの CEO 周波数が、種光の光コムへの位相同期ループに組み込まれた局部発振器によって高精度に制御可能なことを明らかにした。これらは、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を生成するという目標のマイルストーンとなる成果である。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Suzuki T., Hirai M., Katsuragawa M. "Octave-spanning Raman comb with carrier envelope offset control", Physical Review Letters, 2008, 101(24), 243602.
- [2] Suzuki T., Sawayama N., Katsuragawa M. "Spectral phase measurements for broad Raman sidebands by using spectral interferometry", Optics Letters, 2008, 33(23), 2809-2811.
- [3] Onose T., Katsuragawa M. "Dual-wavelength injection-locked pulsed laser with highly predictable performance", Optics Express, 2007, 15(4), 1600-1605.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

本研究終了後、科研費基盤研究(B)「連続波レーザー励起による超高繰り返し超短パルス 光列の発生」(2009 年度~2011 年度)における研究代表者として、単一周波数連続波レーザ

³⁴ Katsuragawa M. et al. "Ultrahigh-repetition-rate pulse train with absolute-phase control produced by an adiabatic Raman process", Proceedings of the XIX International Conference, Kussharo, Hokkaido, Japan, 7 - 12 June 2009.

ー光を出発点として、THz を超える超高繰り返しを持ち、かつ、絶対位相が制御された超短 パルス列や任意波形光列の生成を目指して研究を行った。また、科究費基盤研究(A)「周波 数標準の精度をもつ真空紫外広帯域波長可変レーザー」(2012 年度~2015 年度)における研 究代表者として、真空紫外域において高帯域に連続波長可変なレーザー光源を実現する研 究を行った。

現在、科研費基盤研究(A)「波長変換の任意操作による超広帯域単一周波数波長可変レー ザーの開発」(2016年度~2019年度)を推進している。

①科学技術の進歩への貢献

本研究終了後も、桂川は超高繰り返し超短パルス光列の発生技術を連続波領域に拡張す る研究を精力的に進めている。

科研費基盤研究(B)「連続波レーザー励起による超高繰り返し超短パルス光列の発生」に おいては、任意の二周波数で同時"連続発振"する注入同期チタンサファイア(Ti:S)レー ザーを新たに開発した^[1]。図 3-17 に、開発したレーザーシステムの構成を示す。



図 3-17 二周波数発振注入同期連続波レーザーシステムの構成^[1]

この光源を用いて、連続領域におけるラマンサイドバンド発生実験を何度も繰り返した 結果、励起強度又は閉じ込めをあと一桁高くすることで、サイドバンドを十分高帯域に発 生させるコヒーレンス生成の可能性があることを明らかにした。

科研費基盤研究(A)「周波数標準の精度をもつ真空紫外広帯域波長可変レーザー」においては、誘導ラマン散乱過程を断熱的に操作するためのレーザー光源として、実用的な2波 長連続発振注入同期Ti:Sレーザーシステムを完成させた^[2]。図 3-18 にそのシステムの構成 を示す。



図 3-18 2 波長連続発振注入同期 Ti:S レーザーシステムの構成^[2]

このレーザーシステムに、周波数標準の精度を付加するため、周波数分割の手法を光領 域に拡張する技術を開発し^[3]、それから得られる高品質レーザー光を用いて、高次誘導ラマ ン散乱光系列を発生させて、真空紫外域に良質の単一周波数波長可変レーザーを発振させ る研究を行った。

図 3-19 は、高次誘導ラマン散乱光発生過程に関与する複数の光の間の相対位相を操作す ることで、特定の散乱光モードにエネルギーを集中できることを示す計算結果である^[4]。こ れは、真空紫外全域で精密分光に適用できるレーザーが実現可能であることを示唆してい る。





図 3-19 高次誘導ラマン散乱光発生過程における相対位相の操作(計算結果)[4]

②社会・経済への波及効果

桂川による一連の研究は、従来のような光の周波数と物質の相互作用ではなく、「光パル ス列の繰り返し周波数」と物質の素励起の固有周波数を共鳴させた形の光と物質の相互作 用を探求することで、新たな科学領域を創出しようとするものである。それは、産業や医 療など社会生活に関わる領域においても技術革新を促す可能性を持っている。例えば、フ ェムト秒超短パルス光は、非線形光学応答を利用した非破壊かつ非侵襲の物質測定、ガラ ス・金属・半導体の超精細加工、細胞の切削や操作などに利用できる。さらに、光の干渉 性を利用して物体内部を撮像する 0CT (Optical Coherence Tomography) や多光子顕微鏡の光 源、X 線に代わる検査用電磁波となる波長 30 μ m~3nm のテラヘルツ波発生装置などへの応 用が想定される。

桂川は4件の特許を出願し、そのうち3件が登録されている。研究期間中の顕著な成果 である、オクターブを超える超高帯域ラマンサイドバンド光スペクトルの生成に関しても、 「広帯域離散スペクトル発生装置、及び、その周波数測定方法」³⁵として特許出願され、登 録されている。論文発表だけでなく特許出願もしていることは、研究成果を様々な応用分 野で活用する期待に応えていこうとしていることの表れである。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Nakano T., Koizumi K., Onose T., Abe K., Katsuragawa M. "Dual-frequency injection-locked nanosecond pulsed laser with arbitrary combination of two oscillation frequencies", Optics Express, 2010, 18(25), 26409-26416.
- [2] Gavara T., Ohashi T., Sasaki Y., Kawashima T., Hamano H., Yoshizaki R., Fujimura Y., Yoshii K., Ohae C., Katsuragawa M. "Dual-frequency injection-locked continuous-wave near-infrared laser", Optics Letters, 2016, 41(13), 2994-2997.
- [3] Suhaimi N.S., Ohae C., Gavara T., Nakagawa K.I., Hong F.-L., Katsuragawa M. "Generation of five phase-locked harmonics by implementing a divide-by-three optical frequency divider", Optics Letters, 2015, 40(24), 5802-5805.
- optical frequency divider", Optics Letters, 2015, 40(24), 5802-5805.
 [4] Zheng J., Katsuragawa M. "Freely designable optical frequency conversion in Raman-resonant four-wave-mixing process", Scientific Reports, 2015, 5, 8874.

④その他

桂川は、物質を構成する全ての分子がコヒーレントに非線形分極した状態(最大コヒーレンス状態)を実現させて、超広帯域高品質のコヒーレント離散スペクトル群を位相整合の制約を受けることなく発生させた研究に対し、第45回市村学術賞を受賞した。

桂川は、さきがけ採択時は電気通信大学情報理工学部助教授であったが、2011 年度に電 気通信大学大学院情報理工学研究科教授に就任している。

³⁵ 特許 5099696「広帯域離散スペクトル発生装置、及び、その周波数測定方法」

3.1.7 ナノ光学素子中のプラズモンダイナミクスのフェムト秒映像化(久保敦)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

表面プラズモン(SP: Surface Plasmon)は金属自由電子のコヒーレントな集団搖動であり、 スリットやグレーティング(回折格子)などのナノ構造の表面に光を照射すると励起される。 表面プラズモンポラリトン(SPP: Surface Plasmon Polariton)は、SP と外部から与えた電 磁波が結合した系である。金属-誘電体界面に沿って伝搬する表面電磁波である SPP の波を 信号伝送に用いることにより、エレクトロニクスデバイスよりも高速で、フォトニックデ バイスよりも小型・高集積の情報処理デバイスが実現する可能性があると考えられている³⁶。 このように、表面プラズモンを制御・利用する技術はプラズモニクスと呼ばれ、近年注目 を集めている。そのようなナノ光学素子の中を SPP の波束が伝搬する様子を映像化するこ とは、SPP のコヒーレントなダイナミクスの解明において大きな意義がある。

本研究は、干渉型時間分解光電子顕微鏡法(ITR-PEEM³⁷)により、ナノ光学素子中を伝搬する SPP 波束を映像化することを狙いとした。また、研究に必要なナノ光学素子の製作手法確立、SPP の緩和ダイナミクス解明のための ITR-PEEM 装置の改造、光位相による SPP のコ ヒーレント制御を目指した。

②期間中の研究成果

久保は、パルス幅 10fs、波長 400nm のパルスレーザーを励起光源とする ITR-PEEM により、 銀表面を伝搬する SPP の動画化に成功した^[1]。また、SPP 波束のダイナミクスを規定する主 要な物理パラメータである、寿命、群速度、位相速度、分散特性を決定するためのシミュ レーション方法を開発した。開発したシミュレーションの結果によると、励起光による局 所分極と SP による分極が時空間座標上で重なる領域に生じる分極ビートが、ITR-PEEM によ って得られる波状のパターンに対応することが明らかになった。図 3-20 に、Ag 薄膜のスリ ット端から伝搬する SPP の映像(動画中の代表的なコマ)と、シミュレーション結果を示す。 励起光にポンププローブパルス対をてdステップで印加すると、励起された SPP 波束が後続 のパルスと干渉しビートパターンが現れる。てdを暫時増加させながら FEEM 像を取得するこ とで、SPP 波束の動きを可視化することができた。(a)~(f)は、ITR-PEEM で得た画像のス ナップショット、(g)はシミュレーション結果と比較するために、(a)~(f)の画像から得た

³⁶ Barnes W. L., Dereux A., Ebbensen T. W., "Surface plasmon subwavelength optics", Nature, 2003, 424, 824-830.

³⁷ ITR-PEEM: Interferometric Time-Resolved Photo Emission Electron Microscope、干渉型時間分解二光 子光電子分光 (ITR-2PP:Interferometric Time-Resolved 2-Photon Photoemission) と光電子顕微鏡 (PEEM:Photo Emission Electron Microscope)を組み合わせ、時間分解能 10fs、空間分解能 50nm で SPP の振動/伝搬等のダイナミクスを観察できるようにしたシステム(久保が考案)。

強度を縦方向に加算平均したもので、(h)は(a)~(f)に対応するシミュレーション結果である。シミュレーション結果は、実験結果をよく再現している。



図 3-20 銀薄膜のスリット端から伝搬する SPP の映像とシミュレーション結果[1]

SP には、大きく分けて局在型プラズモン(LSP)と伝搬型プラズモンの二つのタイプがあり、 伝搬型は前記した SPP と同一のものである。LSP は、ナノメートルスケールの領域に光を数 フェムト秒の間閉じ込めることにより大きな電場強度を生み出す。久保は、銀のグレーテ ィング構造において光学顕微鏡を大幅に上回る約 50mm の空間分解能で、LSP のフェムト秒 時間領域における励起と振動緩和の様子を映像化することに成功した。また、同グレーテ ィング構造に LSP・SPP 両タイプの SP を同時に励起し、顕微鏡画像の解析から、両者に相 互作用がありその強さを制御することでどちらか一方のモードを選択的に励起することが 可能であることを示した^[2]。

また久保は、銀の単結晶表面を用い、詳細な角度分解光電子分光の解析により、光電子 放出を定量的に記述できる物理モデルの検討を行った。その結果、励起電場強度の算出に Fresnel モデルを、金属電子バンドの記述に Nearly free electron モデルを、バンド間遷 移の強度算出に双極子遷移行列をそれぞれ適用させることにより、二光子光電子放出の定 量的な記述が可能であることを示した^[3]。

これらは、ナノ光学素子(SP素子、SPP素子)中の信号伝達や、金属/半導体複合材料中の 電磁的エネルギー移動の評価に新しい道を拓き、プラズモニクス分野の研究進展に寄与す る成果となった。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Kubo A., Pontius N., Petek H. "Femtosecond microscopy of surface plasmon polariton wave packet evolution at the silver/vacuum interface", Nano Letters, 2007, 7(2), 470-475.
- [2] Kubo A., Jung Y.S., Kim H.K., Petek H. "Femtosecond microscopy of localized and propagating surface plasmons in silver gratings", Journal of Physics B, 2007, 40(11), S02, S259-S272.
- [3] Winkelmann A., Sametoglu V., Zhao J., Kubo A., Petek H. "Angle-dependent study of a direct optical transition in the sp bands of Ag(111) by one- and two-photon photoemission", Physical Review B, 2007, 76(19), 195428.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

本研究終了後、科研費国際共同研究加速基金(国際共同研究強化)「高空間分解・時間分 解イメージング法によるメタマテリアルの新奇な波束伝搬機構の解明」(2016 年度)に、研 究代表者として取り組んだ。

現在、科研費若手研究(A)「通信帯フェムト秒表面プラズモン波束の顕微映像化と非線形 増幅」(2014 年度~2017 年度)における研究代表者として、1.55µm フェムト秒レーザーを 始めとする実験装置の構築と、それを用いた SP 波束の映像化及び表面プラズモンの非線形 増強現象の観察に関する研究を継続して行っている。

海外との共同研究については、SPP の顕微映像化に関して、ピッツバーグ大学(米国)、国 立交通大学(台湾)などと共同研究を行った。国内においては、SPP の顕微映像化に関して北 海道大学などと共同研究を行った。

①科学技術の進歩への貢献

久保は研究期間中に、パルス幅 10fs、波長 400nm のパルスレーザーを励起光源として、 Ag 表面に設けた溝(Groove)のエッジから伝搬する SPP 波束の映像化を実現したが、研究終 了後はその技術を更に発展させて、同じ励起光源を用い、Ag に設けた単一スリットの幅を、 励起光の波長以下から波長の数倍に至る範囲で変化させ、SPP 波束の映像化を試みた。その 結果、励起光電子顕微鏡像によって、励起された SPP 波束と入射光パルスのコヒーレント な干渉を確認した。また、スリット幅を 80nm から 1420nm の範囲で大きくする (200nm ステ ップ)に従って干渉信号は増大することを明らかにした^[1]。

また、Au で形成した4種類のナノ構造(ナノロッド、ナノディスク、ダイマー、ナノブロ ック)³⁸に対して、近赤外フェムト秒レーザー励起の MP-PEEM(multiphoton photoemission electron microscopy)により、局在化表面プラズモン共鳴(LSPR: Localized surface

³⁸4種類のナノ構造:全て電子ビーム露光とリフトオフプロセスによって形成された Au パターンで、平面 形状はそれぞれ、ナノロッド/長方形、ナノディスク/円形、ダイマー及びナノブロック/正方形である。 ダイマーは、正方形が頂点同士を向かい合わせてペアとなった構造。

plasmon resonance)における近接場の性質を検討した。その結果、近赤外領域における LSPR 電界の振動と位相緩和を、MP-PEEM によって直感的に示すことに世界で初めて成功した^[2]。 図 3-21 に、ナノ構造の SEM 像、入射光のセットアップ、MP-PEEM 像を示す。a はナノ構造(ナ ノロッド)の SEM 像、b は入射光のセットアップ(レーザーパルスの入射角度)、c は水銀ラ ンプ励起の MP-PEEM 像、d は近赤外フェムト秒レーザー励起の MP-PEEM 像である。



図 3-21 近赤外フェムト秒レーザー励起の MP-PEEM による LSPR の観察^[2]

さらに、LSPR の二つの固有モードである双極モードと四重極モードに着目し、対称ナノ 構造(ナノブロック)にs偏光³⁹の光(波長可変 720-920nm フェムト秒レーザー)を斜めに照射 して、LSPR を時間分解 PEEM で観測する研究を行った(図 3-21 a 参照)。その結果、双極モ ードと四重極モードは、光の偏光を操作することにより選択的に励起できることを明らか にした。また、対称ナノブロックにおいて、四重極モードの位相緩和時間は、双極モード のそれより長いことを実験的に明らかにした^[3]。図 3-22 に、実験系の構成と得られた時間 分解 PEEM の信号を示す。(a)は、時間分解 PEEM 観測装置の構成、(b)は横軸を位相遅延と した時間分解 PEEM 信号、(c)は、双極モードにおいて横軸を遅延時間とした時間分解 PEEM 信号、(d)四重極モードにおいて横軸を遅延時間とした時間分解 PEEM 信号である。

³⁹ s 偏光:入射面に垂直に電界が振動する偏光。入射面に平行に電界が振動するものは p 偏光と呼ぶ。



図 3-22 双極モードと四重極モードに着目した LSPR の時間分解観察^[3]

また、波長可変 720-920nm フェムト秒レーザーを用いた PEEM により、表面プラズモン結合した Au ナノ構造(Dolmen Structure:ドルメン構造⁴⁰)における近接場について研究を行い、励起光の波長の変化に伴って、ホットスポットの分布(すなわち近接場強度の分布)が明確 に変化することを示した^[4]。

久保は、最新の PEEM 測定手法を駆使して金属ナノ構造体に結合した表面プラズモンの挙動を映像化すると同時に、シミュレーションにより PEEM イメージ形成のメカニズム解明に向けて、研究に拍車をかけている。

②社会・経済への波及効果

久保が研究開発した SPP 波映像化の手法は、ナノスケールの分解能とフェムト秒の時間 分解能を備えており、観察対象に適した波長のパルス光源と組み合わせることにより、複 雑な導波路の開発や、電子デバイスとのハイブリッド構造の設計に対して有用な情報を与 えると考えられる。また、SPP 波の伝搬距離の短さ(ミリメートル以下)など、プラズモニク スの応用に対する課題解決のためにも、久保の研究成果である SPP 波の映像化及びその理 論解析の手法が有用である。プラズモニクスを利用した情報処理デバイスが実現すると、 厚さが数十 nm の金属細線構造で SPP 導波路を構成することができ、素子の大幅な小型化・ 高集積化が可能になると考えられる。

⁴⁰ 巨石記念物のドルメンのように、三つのナノロッドを平面上に配置した構造。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Zhang L., Kubo A., Wang L., Petek H., Seideman T. "Imaging of surface plasmon polariton fields excited at a nanometer-scale slit", Physical Review B, 2011, 84(24), 245442.
- [2] Sun Q., Ueno K., Yu H., Kubo A., Matsuo Y., Misawa H. "Direct imaging of the near field and dynamics of surface plasmon resonance on gold nanostructures using photoemission electron microscopy", Light: Science and Applications, 2013, 2, e118.
- [3] Sun Q., Yu H., Ueno K., Kubo A., Matsuo Y., Misawa H. "Dissecting the Few-Femtosecond Dephasing Time of Dipole and Quadrupole Modes in Gold Nanoparticles Using Polarized Photoemission Electron Microscopy", ACS Nano, 2016, 10(3), 3835-3842.
- [4] Yu H., Sun Q., Ueno K., Oshikiri T., Kubo A., Matsuo Y., Misawa H. "Exploring Coupled Plasmonic Nanostructures in the Near Field by Photoemission Electron Microscopy", ACS Nano, 2016, 10(11), 10373-10381.

④その他

久保は、2010年度科学技術分野の文部科学大臣表彰若手科学者賞、2010年度日本放射光 学会放射光 Most Voted Presenter 賞、2013年度日本表面科学会第19回技術賞、2014年度 筑波大学 若手教員奨励賞、さらに、「フェムト秒レーザーにより局所的に励起された表面 プラズモンの観察」にて2014年応用物理学会秋季学術講演会 Poster Award を受賞した。

久保は、さきがけ採択時はピッツバーグ大学のポストドクであったが、さきがけ専任研 究員として、同大学訪問研究員(2005年10月~2007年12月)になり研究を進めた。2008年 1月に筑波大学大学院数理物質科学研究科助教、その後、筑波大学数理物質系講師に就任し ている。

3.1.8 原子波回路を用いた物質波ソリトンの光学的制御(熊倉光孝)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

近年、希薄原子気体において実現されたボース・アインシュタイン凝縮(Bose-Einstein condensation: BEC)という新しい物質相では、原子の量子力学的な波動性が巨視的なスケールにまで拡大し、原子集団がコヒーレントな一つの波、"原子波"として振る舞う。

現在、BECの示すこのような巨視的波動性に注目した研究が活発に行われている⁴¹。一方、 この BEC の持つもう一つの大きな特徴として、原子間の相互作用に起因する原子波の非線 形性が挙げられる。この BEC の示す非線形性は、新しい量子現象の発現を可能とするもの で、巨視的波動性とあいまって、原子集団のコヒーレントな運動操作に重要な役割を果た すことが期待される。そこで本研究では、長時間にわたって擾乱の少ない状態で原子波伝 搬を観測・応用するため、"原子波の回路"(図 3-23)を新たに開発して、この回路上で非 線形量子現象の一つである物質波ソリトン⁴²を光学的に生成・観測し、その運動特性や衝突 相互作用などを明らかにすることによって、新たな非線形量子現象の開拓や原子波を利用 した新規デバイスの可能性を探ることを目指した。



図 3-23 原子波回路上の物質波ソリトン⁴²

②期間中の研究成果

熊倉は、原子波回路を実現するために磁気トラップを用いてルビジウム(Rb)同位体 ⁸⁷Rb の BEC の生成を試みた。実験で製作・使用した真空装置は、常温のルビジウム蒸気が充満 する 10⁻⁶Torr 程度の低真空領域が、約 10⁻¹¹Torr の超高真空領域に差動排気部を介して接続 された構造で、まず低真空領域で磁気光学トラップ(Magneto-optical trap: MOT)を用いた レーザー冷却を行い、次に超高真空領域で MOT を用いたレーザー冷却を行うという 2 段階

⁴¹ 例えば、原子レーザーや原子干渉計の開発、原子波動光学への応用などが活発に研究されている。

⁴² ソリトン:エネルギーをほとんど失うことなく伝搬し、同種の他の波と衝突した後も、その波形と速度 を維持する孤立波。
の操作を約 100 回繰り返すという、二重磁気光学トラップ法を採用した。次に、超高真空 領域において、MOT を用いてレーザー冷却された低温原子集団を磁気トラップに導入し、RF 蒸発冷却⁴³を適用することで BEC の生成を実現した。また、このようにして生成した BEC 中 に、高次量子渦(循環量子数⁴⁴4)を生成する研究を行った。その結果、BEC 生成に用いた磁気 トラップの磁場を反転させることにより、Rb の BEC 中に高次の量子渦を生成することがで きた^[1]。さらに、量子渦発生のウインドウが小さい(「磁場の大きさ」と「磁場反転時間」 の組合せの条件が狭い)ことは、Rb の原子集団が重力方向に引き寄せられる(重力サグ)ため と推定し、それを青色レーザーの光双極子力(Optical Dipole Force)で補償できることを 示した。

熊倉は続いて、RbのBEC中に、重力サグを補償した反転磁場法により発生させた循環量 子数4の量子渦について、その崩壊過程の観測に成功し、また理論計算との比較からその 崩壊モードについて検討した^[2]。

さらに、基底状態において電子スピンも核スピンも持たないフェルミ粒子であるイッテ ルビウム同位体¹⁷³Ybを、光双極子トラップを用いて蒸発冷却する実験を行った。その結果 フェルミ縮退を実現した^[3]。それまでフェルミ縮退が確認された原子気体は、電子スピンを 持つアルカリ原子の同位体に限られていた。スピンを持たない¹⁷³Ybの量子縮退状態は、ア ルカリ原子とは原子間相互作用が大きく異なり、量子現象の研究における新たな展開につ ながると期待されている。

熊倉が開発した BEC 生成装置は国内では 7 か所目となる。凝縮固体の基礎物理や応用研 究に大きく貢献できる研究基盤を構築できたと評価される。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Kumakura M., Hirotani T., Okano M., Takahashi Y., Yabuzaki T. "Topological formation of a multiply charged vortex in the Rb Bose-Einstein condensate: Effectiveness of the gravity compensation", Physical Review A, 2006, 73(6), 063605.
- [2] Isoshima T., Okano M., Yasuda H., Kasa K., Huhtamäki J.A.M., Kumakura M., Takahashi Y. "Spontaneous splitting of a quadruply charged vortex", Physical Review Letters, 2007, 99(20), 200403.
- [3] Fukuhara T., Takasu Y., Kumakura M., Takahashi Y. "Degenerate fermi gases of ytterbium", Physical Review Letters, 2007, 98(3), 030401.

⁴³原子に RF 波を照射することにより、原子スピンの磁気遷移を利用して特定のエネルギーを持つ原子を選 択的に蒸発させることができる。ここでは、RF 波の周波数を 25MHz から低周波方向にスキャンし、 1.355MHz で BEC への相転移を確認した。

⁴⁴ 循環量子数:ボーズ粒子が極低温でボース・アインシュタイン凝縮と呼ばれる相転移を起こすことによっ て発現する超流動現象において、流体内部の超流動になっていない部分は量子渦である。超流体中の量 子渦は、量子化された(離散値しかとらない)循環を持つ。循環とは流体中の渦糸を囲む閉曲線にそって 速度場を線微分した量である。

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

科研費基盤研究(B)「原子波回路の構築と物質波ソリトンへの応用」(2010年度~2013年度)における研究代表者として、BEC におけるソリトンなどの非線形波動の観測・操作に関する研究を行った。

①科学技術の進歩への貢献

熊倉は、科研費基盤研究(B)「原子波回路の構築と物質波ソリトンへの応用」(2010 年度 ~2013 年度)において、本研究期間中に開発した BEC 生成装置を用い、リング状 BEC(原子 波回路)を形成するための凝縮体形状操作システムの開発を行った。その結果、凝縮体形状 制御用レーザーシステムを完成させることができた。また、BEC 生成時間短縮のための BEC 生成装置の改良を行い、原子回路形成につながる実験系を整備した⁴⁵。これは、ソリトンを 原子波インジケータとして利用するという熊倉の構想を、新しい計測技術として具体化す る道を拓き、量子科学の進歩に貢献する成果と考えられる。

②社会・経済への波及効果

熊倉は、リング状 BEC の生成方法とその応用に関して 2009 年に特許を出願し、その出願 は 2014 年に登録されている⁴⁶。同特許の請求項には、リング状 BEC とソリトンの生成方法 及び、それらを用いた電場、磁場、重力場の測定方法が具体的に示されている。今後技術 の進歩に伴って BEC のサイズや BEC を構成する原子数が増加しても、同特許の本質は修正 することなく適用されることから、将来学術分野のみならず、産業分野への応用にも適応 されると考えられる。

現在熊倉は、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「光圧によるナノ物質操作と秩序の創生」(2016年度~2020年度、石原一領域代表者、大阪府立大学工学研究科教授)における計画研究 A02「光圧を創る:物質自由度を活用した操作の高度化」において、本さきがけのメンバーであった芦田昌明と共同研究を行っている。その成果として、サブミクロンサイズの球状超伝導体(In と Re)をレーザーアブレーションにより、超流動へリウム中に生成し、それを4重極磁場を用いてトラップすることに成功した^[1]。図 3-24 に用いた実験系の構成を示す。

また、同研究の計画研究 A04「光圧で拓く:多粒子相互作用の選択的制御による構造と現象の創造」において本さきがけ研究領域のメンバーであった尾松孝茂とも共同研究を行っており、光照射によるアゾ・ポリマー表面のレリーフ形成について報告している^[2]。図 3-25 に、アゾ・ポリマー表面に、スピン角運動量を持ち軌道角運動量を持たない円偏光の光を

⁴⁵ 熊倉光孝、「原子回路を用いた物質波ソリトンの光学的制御」、第58回応用物理学関係連合講演会、2011 年3月24日、神奈川工科大学

⁴⁶ 特許 5561717「リング状ボース・アインシュタイン凝縮体とこれに生成するダーク・ソリトン、その生成 方法及びこれらを用いた外場の測定方法」

照射して形成した螺旋形状を持つレリーフの原子間力顕微鏡像を示す。この結果は、光に よる均質な物質の変形に対する理解を深めるとともに、新奇なメタマテリアルや、カイラ ル構造を持つ微小な化学反応室(マイクロリアクター)などの創成につながると期待される。



図 3-24 サブミクロンサイズの球状超伝導体生成とトラップに用いた実験系[1]



図 3-25 アゾ・ポリマー表面上に形成したレリーフの原子間力顕微鏡像と断面形状^[2]

熊倉は研究終了後も、光による操作を駆使して、原子集団のレーザー冷却を行い、量子 現象の研究を続けてきたが、現在は「ナノ物質の光による操作」という領域にも研究対象 を拡大させており、今後の研究成果は学術領域を越えて、社会・経済に寄与するものと期 待される。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Takahashi Y., Suzuki J., Yoneyama N., Tokawa Y., Suzuki N., Matsushima F., Kumakura M., Ashida M., Moriwaki Y. "Magnetic trapping of superconducting submicron particles produced by laser ablation in superfluid helium", Applied Physics Express, 2017, 10(2), 022701.
- [2] Masuda K., Nakano S., Barada D., Kumakura M., Miyamoto K., Omatsu T. "Azo-polymer film twisted to form a helical surface relief by illumination with a circularly polarized Gaussian beam", Optics Express, 2017, 25(11), 12499-12507.

④その他

熊倉は、さきがけ採択時は京都大学理学研究科助手であったが、2006 年度に福井大学大 学院工学研究科准教授に就任している。

3.1.9 コヒーレント物質波制御による電子・光子の操作(長谷宗明)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

コヒーレント物質波(フォノン)は、その振動周期と同期した光パルス列を照射すること によって光制御できることが最近の研究で分かってきたが、コヒーレント物質波を制御す ることによって物質波に機能を持たせるという研究は、進んでいない。本研究では、コヒ ーレント物質波の振幅、周波数、位相などを光制御することにより、この物質波と相互作 用する電子や光子を操作することを目的とした。具体的には、半導体におけるキャリア移 動度の操作、テラヘルツフォノンによって変調される光の特性の操作、あるいは強誘電体 等におけるソフトモード⁴⁷の格子変位による相転移の操作などを目指した。

②期間中の研究成果

長谷は、ポンプ-プローブ分光法⁴⁸により n 型 GaAs の電子移動度を測定・制御する研究を 行った。GaAs では、レーザーパルスを照射するとプラズモンと縦波光学フォノン(LO フォ ノン⁴⁹)が結合したLOフォノン-プラズモン結合モード(LOPCモード⁵⁰)が生成される。そこで、 この結合モードにおけるプラズモンライクモードの緩和時間 τを測定し、それを近似的に キャリア(電子)の緩和時間とみなして、 $\mu = \epsilon \tau / m^*$ の式(μ :電子移動度、e:電子の電荷、τ: キャリアの緩和時間、m*:電子の有効質量)から移動度を求める手法を提案した。また、電子 移動度を制御する方法を理論的に検討した^[1]。図 3-26 は、同手法における LOPC モードの理 論計算値である。図 3-26 (a) は、反射率変化 (ΔR/R)の時間波形における LOPC モードの分枝 L+、L-の周波数とキャリア密度の関係を示し、図中の A 及び B の部分がプラズモンライク モードに相当する。図中の E は、フォノンと結合していないプラズモンの周波数とキャリ ア密度の関係であり、分枝のC及びDの部分は、フォノンライクモードに対応する。また、 図 3-26(b)は、ΔR/R が時間とともに変化していく様子を示している。次に実際にΔR/R を 測定し、そのプラズモンライクモードに対応する時間波形から緩和時間τを求めた。その τを用いて計算したn型 GaAsの電子移動度は、Si ドープしたn型 GaAs(ドープキャリア密 度(N_{don})=1. 0x10¹⁸cm⁻³)にポンプ光による励起キャリア密度(N_{exe})を増加させるに伴って減少 することが分かった。また、トータルのキャリア密度 Ntot=Ndop+Nexc が 1.8×10¹⁸ cm⁻³ 以上では

⁴⁷ ソフトモード:原子変位に伴って復元力が働き、元の原子位置に戻す力が働くことにより振動する通常の格子振動モードとは異なり、原子変位に伴う復元力が働かず、原子が元の位置には戻らずに新しい位置に変位してしまう格子振動モード。

⁴⁸ ポンプ-プローブ分光法:物質の励起状態の寿命(緩和時間)を求める方法。一般にはレーザーパルスをビ ームスプリッターで二つに分け、一方をポンプ光(励起光)、他方をポンプ光に対して時間遅延を持つプ ローブ光として用いる。

⁴⁹LO フォノン: Longitudinal Optical Phonon

⁵⁰LOPC モード: Longitudinal Optical Phonon-plasmon Coupled Mode

電子移動度が約2000cm²/Vs で一定となった^[2]。この値は、ホール測定による値(2300cm²/Vs) より若干小さいが、キャリア密度が高い領域では電子-ホール散乱により移動度が低下して いるためと推定される。このようにして長谷が確立したポンプ-プローブ分光法による移動 度の測定は、ホール効果を用いる方法とは異なり、半導体単結晶に限らず金属などプラズ モンを有する全ての固体に適用可能であり、またナノ構造における移動度を直接測定でき るという特徴を持っている。



図 3-26 n型 GaAs における LOPC モード(理論計算値)^{[1],51}

長谷はまた、光記録膜や省電力型相変化メモリの材料として注目されている GeTe/Sb₂Te₃ 超格子のフォノンダイナミクスについて研究を行った。ポンプープローブ分光法により、反 射率変化の時間波形を、格子温度を変化させて測定したところ、GeTe/Sb₂Te₃ 超格子が結晶 の状態では、フォノン緩和時間が強い温度依存性(高温で短くなる)を示し、アモルファス の状態では、フォノン緩和時間が温度によらず一定であることが分かった^[3]。このことから、 アモルファス状態においては、フォノンの減衰が欠陥(空孔)による散乱に支配されている ことが推定される。これは、GeTe/Sb₂Te₃ 超格子における格子振動の超高速位相緩和のダイ ナミクスを明確に提示するとともに、同超格子中の空孔の存在を実験的に裏付けた研究成 果である。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Lee J.D., Hase M. "Coherent optical control of the ultrafast dephasing of phonon-plasmon coupling in a polar semiconductor using a pulse train of below-band-gap excitation", Physical Review Letters, 2008, 101(23), 235501.
- [2] Hase M. "Carrier mobility in a polar semiconductor measured by an optical pump-probe technique", Applied Physics Letters, 2009, 94(11), 112111.
- [3] Hase M., Miyamoto Y., Tominaga J. "Ultrafast dephasing of coherent optical phonons in atomically controlled GeTe/Sb₂Te₃ superlattices", Physical Review B,

⁵¹ 特許 4831482 「固体のキャリア移動度測定方法」

2009, 79(17), 174112.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

本研究終了後、科研費基盤研究(B)「相変化光記録膜材料におけるテラヘルツスイッチン グ機構の解明と応用」(2010年度~2012年度)における研究代表者として、カルコゲンにお ける相変化のフェムト秒~ピコ秒実時間領域格子ダイナミクスの研究を行った。同研究課 題においては、産業技術総合研究所と共同研究を行った。

また、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「超高速レーザー分光によるカーボンナ ノチューブ・蛋白質複合体の実時間ダイナミクス」(2011 年度~2012 年度)における研究代 表者として、フェムト秒パルスレーザーを用いたカーボンナノチューブとタンパク質複合 体の光励起状態のダイナミクスに関する研究を行った。

さらに、文部科学省 X 線自由電子レーザー重点戦略研究課題「相変化記録膜材料の X 線 回折プローブによる格子ダイナミクス」(2012 年度~2015 年度)における研究代表者として、 相変化記録膜材料の時間分解 X 線回折による実時間観測の研究を行った。同研究課題にお いては、産業技術総合研究所、弘前大学、理化学研究所、Paul Drude-Institute(ドイツ)、 Institute of Photonic Sciences(スペイン)、Argonne National Laboratory(米国)と共同 研究を行った。

現在、科研費基盤研究(B)「トポロジカル絶縁体におけるコヒーレント表面フォノン誘起 量子相転移の研究」(2017年度~2019年度)に、研究代表者として取り組んでいる。

①科学技術の進歩への貢献

長谷は、科研費基盤研究(B)「相変化光記録膜材料におけるテラへルツスイッチング機構 の解明と応用」において、GeTe/Sb₂Te₃薄膜超格子の、結晶-アモルファス間相変化をポンプ -プローブ法によるコヒーレントフォノン分光により解明する研究を行った。その結果、ダ ブルポンプパルスのパルス間隔(Δ t)依存性より、アモルファス相から結晶相への非熱的な 超高速相変化(1 ピコ秒以内)を観測することに成功した^[1]。図 3-27 の右下の図はフーリエ 変換スペクトルから求めたピーク周波数の時間変化を示し、 Ω_A は A_1 モード⁵²のアモルファ ス相に対応する周波数、 Ω_c は A_1 モードの結晶相に対応する周波数である。

⁵² A₁モード: 群論を用いて区分したフォノンモードの一つ。



図 3-27 コヒーレント A₁モードのパルス間隔依存性(左、右下)とフーリエ変換スペクトル から求めたピーク周波数の時間変位^{[1],53}

また、GeTe/Sb₂Te₃ 薄膜超格子を用いた同様の実験において、励起光の偏光依存性を検討 し、励起パルス強度が小さい(16mJ/cm²)と可逆的なA₁フォノン周波数のレッドシフト(周波 数が小さくなる方向へのシフト)が見られ、大きい(78mJ/cm²)と不可逆的なA₁フォノン周波 数のレッドシフトが生じることを見いだした^[2]。さらに、ダブルポンプパルスとシングルポ ンプパルスによる励起過程を詳細に検討し、非熱的な高速相変化は、ダブルポンプパルス を用いた場合のみに起こることを見いだした^[3]。

さらに、文部科学省 X 線自由電子レーザー重点戦略研究課題「相変化記録膜材料の X 線 回折プローブによる格子ダイナミクス」おいて、Ge₂Sb₂Te₅の単結晶薄膜を用い、近赤外パ ルス照射により電子励起した後の原子の位置変位を XFEL⁵⁴パルスで捉える研究を行った(電 子励起による原子の位置変位はサブ nm であるため、通常の分光学的手法は使えない)。そ の結果、X 線回折スポットの位置変化として、原子がピコ秒スケールで運動する軌跡を捉え ることができた^[4]。図 3-28 に XFEL を用いた時間分解 X 線回折の実験系を示す。赤は近赤外 励起光パルス、青は XFEL パルス、MPCCD はマルチポート CCD である。また、図 3-29 に X 線 回折の結果を示す。横軸(散乱スペクトル)の変化は X 線回折スポットの変化であり、原子 位置の変化に対応する。換算した原子位置の変化は最大 2pm であった。

⁵³ 科研費助成金事業研究成果報告書(課題番号:22340076)

⁵⁴ XFEL:X-ray Free Electron Laser(X 線自由電子レーザー)



図 3-28 XFEL を用いた時間分解 X 線回折の実験系^[4]



図 3-29 XFEL を用いた時間分解 X 線回折の結果^[4]

本研究の結果は、Ge₂Sb₂Te₅の相変化がピコ秒オーダーの時間で起こり得ることを示唆するとともに、ナノメートル以下・ピコ秒以下の空間・時間分解能における様々な物質の相転移について XFEL を用いて解析するという、新たな研究手法の意義を示す成果である。

②社会・経済への波及効果

長谷は、Ge-Sb-Te 系材料の相変化を、ポンプ-プローブ法によるコヒーレントフォノン分 光により解明する研究を続けており、その知見に基づく技術は特許登録されている⁵⁵。この 技術は、フェムト秒パルスレーザーをパルス列に整形し、該パルス列の時間間隔を、相変 化記録膜の材料の格子振動の時間周期に一致させて照射することによって相変化を誘起す ることを特徴としている。現在実用化研究が進められている相変化メモリは、電流パルス による熱で相変化を誘起し、相変化時間はナノ秒のオーダーであるが、同特許が提示する 方法によれば、非熱的過程により相変化が誘起され、その時間は1 ナノ秒以下と予想され る。

長谷は、Ge-Sb-Te 系材料として、Ge₂Sb₂Te₅とともに GeTe/Sb₂Te₃ 薄膜超格子に関してもフェムト秒パルスレーザーによる相変化の研究を続け、高速な相変化のダイナミクスの知見

⁵⁵ 特許 5641485「相変化記録膜を有する相変化装置、及び相変化記録膜の相変化スイッチング方法」

を深めている。その成果は次世代高速不揮発メモリの開発を通して、データセンターの省 電力化等の面で社会・経済に大きく貢献すると期待される。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Makino K., Tominaga J., Hase M. "Ultrafast optical manipulation of atomic arrangements in chalcogenide alloy memory materials", Optics Express, 2011, 19(2), 1260-1270.
- [2] Makino K., Tominaga J., Kolobov A.V., Fons P., Hase M. "Polarization dependent optical control of atomic arrangement in multilayer Ge-Sb-Te phase change materials", Applied Physics Letters, 2012, 101(23), 232101.
- [3] Hase M., Fons P., Mitrofanov K., Kolobov A.V., Tominaga J. "Femtosecond structural transformation of phase-change materials far from equilibrium monitored by coherent phonons", Nature Communications, 2015, 6, 8367.
- [4] Mitrofanov K.V., Fons P., Makino K., Terashima R., Shimada T., Kolobov A.V., Tominaga J., Bragaglia V., Giussani A., Calarco R., Riechert H., Sato T., Katayama T., Ogawa K., Togashi T., Yabashi M., Wall S., Brewe D., Hase M. "Sub-nanometre resolution of atomic motion during electronic excitation in phase-change materials", Scientific Reports, 2016, 6, 20633.

④その他

長谷は、さきがけ応募時には物質・材料研究機構材料研究所主任研究員であったが、さ きがけ研究終了時に筑波大学大学院数理物質科学研究科助教授となり、現在は筑波大学数 理物質系教授に就任している。

また、2010 年 9 月にイタリア・ミラノ工科大学にて開催された"The European Symposium on Phase Change and Ovonic Science 2010(E\PCOS 2010)"において、"Ultrafast phase change in Ge₂Sb₂Te₅ superlattices monitored by coherent phonon spectroscopy"と題し たポスター講演を行い、"Outstanding Poster Award"を受賞している。

3.1.10 光電子ホログラフィーによるレーザー場反応追跡(菱川明栄)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

反応過程において刻一刻と変化する分子の姿を捉えることは、化学反応を理解し制御す る上で、基本的かつ重要な課題である。フェムト秒超短パルスレーザーを用いた超高速分 光法は反応追跡手法として広く用いられ、これまでに様々な系において成果を収めている。 一方、標準的なスキームにおいて観測される物理量は主としてプローブ光による光学遷移 強度の時間変化であり、どのように分子の形が変化しているかを観測データから理解する ためには、観測対象についてポテンシャル曲面の形状などの知識が必要である。本研究で は、分子ダイナミクスを構造の変化として直接観測するために、光電子ホログラフィーな ど強レーザー場原子分子過程を利用した超高速実時間反応追跡手法を提案し、その実現に 取り組むことを目的とした。

②期間中の研究成果

多原子分子の光反応過程おいて、分子座標系でのレーザー電場の方向によりそのダイナ ミクスが異なることを確認するため、菱川は強レーザー場(12fs、2×10¹⁴W/cm²)中のH₂S分子 の電子・核応答がレーザー偏光方向によってどのように変化するかを、クーロン爆発⁵⁶過 程:H₂S³⁺→H⁺+S⁺+H⁺に着目して調べた。その結果レーザー電場が分子平面に対して垂直である 場合、レーザー場中で分子構造はほとんど変化しないが、分子平面に平行な場合、S-H 結合 の距離が変化することを見いだした^[1]。

また、光反応過程における分子の構造変化を直接観測するというテーマにおいて、重水 素化アセチレン 2 価イオン(C₂D₂²⁺)における異性化反応の追跡を行った。高強度極短レーザ ーパルス発生装置を構築し、マイケルソン干渉計により形成した一対の高強度極短レーザ ーパルス(9fs、0.13PW/cm²)をそれぞれポンプ光及びプローブ光として用いて、C₂D₂²⁺から C₂D₂³⁺へのイオン化と、それに伴うクーロン爆発過程:C₂D₂³⁺→D⁺+C⁺+CD⁺をモニターするとい う手法を採用した。その結果、水素原子が片方の炭素サイトから他方へ極めて高速にシフ トした後(~90fs)、元の炭素サイトへ再移動することを見いだすとともに、これまで困難 であった水素移動反応を可視化することに成功した^[2]。

続いて、光電子ホログラフィーに必要な超短パルス深紫外・軟 X 線光源システムの構築 を進め、Br₂における解離ダイナミクスの実時間追跡を行った。その結果、解離生成物の時 間軸における収率変化を捉えることにより、従来の手法に比べて高い時間分解能(~10fs) で反応追跡が可能であることを示した。また電子-イオンコインシデンス運動量画像装置を

⁵⁶ 分子の多価イオンが、電荷間の強いクーロン反発によって速やかに解離する現象。

開発し、その装置を用いて分子座標系における光電子散乱分布の測定を行った。その結果、 強レーザー場における分子のイオン化ダイナミクスが光電子散乱分布に反映されることを 見いだした^[3]。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Hishikawa A., Takahashi E. J., Matsuda A. "Electronic and nuclear responses of fixed-in-space H₂S to ultrashort intense laser fields", Physical Review Letters, 2006, 97(24), 243002.
- [2] Hishikawa A., Matsuda A., Fushitani M., Takahashi E.J. "Visualizing recurrently migrating hydrogen in acetylene dication by intense ultrashort laser pulses", Physical Review Letters, 2007, 99(25), 258302.
- [3] Matsuda A., Fushitani M., Hishikawa A. "Electron-ion coincidence momentum imaging of molecular dissociative ionization in intense laser fields: Application to CS₂", Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 2009, 169(2-3), 97-101.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

本研究終了後、文部科学省科学技術共通基盤強化促進事業「シングルショット光電子分 光による XFEL 計測」(2011 年度)、東レ科学振興会東レ科学技術研究助成「コヒーレントレ ーザー反応場における化学過程の解明」(2011~2012 年度)の研究を行った。また、科研費 基盤研究(B)「強レーザー反応場中分子の「その場」観測:超高速光電子分光法によるアプ ローチ」(2012 年度~2014 年度)の研究代表者として、超高速光電子分光システムを用いた 分子における電子波東ダイナミクスの研究を行った。頭脳循環を加速する戦略的国際研究 ネットワーク推進プログラム「統合イメージングサイエンス研究拠点:サブアトムダイナ ミクスから脳機能までを捉える」(2014 年度~2016 年度⁵⁷)において、超高速反応イメージ ング法の発展と国際ネットワークの構築を進めた。現在、分子ダイナミクスから電子ダイ ナミクスのイメージング法の開拓に研究を展開し、科研費基盤研究(B)「レーザートンネル イオン化の理解に立脚した電子ダイナミクス可視化法の開拓」(2016 年度~2018 年度)に研 究代表者として取り組んでいる。

①科学技術の進歩への貢献

菱川は研究期間終了後、近赤外領域(NIR)だけでなく極紫外(XUV)領域の非線形原子分子 過程にも注目し、理化学研究所の SCSS⁵⁸自由電子レーザー(FEL:Free Electron LASER)を用

⁵⁷ 菱川は、同プログラムの 2014 年度採択事業「統合イメージングサイエンス研究拠点:サブアトムダイナ ミクスから脳機能までを捉える」において、2014 年度~2015 年度は担当研究者、2016 年度は主担当研究 者として、カナダのケベック先端科学技術大学院大学(INRS) – EMT (Energy Materials Telecommunications)の Legare 教授グループとの共同研究を進めた。

⁵⁸ SCSS: SPring-8 Compact SASE Source test accelerator (SASE: Self Amplified Spontaneous Emission)

いた研究を進めた。その結果、(1)Arからの2重イオン化過程が電子の段階的放出⁵⁹によっ て起こり、Ar⁺の励起状態への共鳴によって2重イオン化効率が大きくなること、(2)2電子 励起状態への共鳴によってHeの3光子吸収過程が2光子過程よりも効率良く起こることな どを見いだし、XUV領域における非線形過程の特徴を明確な形で捉えることに成功している。 これらは新たに開発されたシングルショット計測に基づく成果で、カオティックな自発放 射光に起因してスペクトル分布や時間構造がショットごとに変化する SASE型 FEL の性質を 逆に利用した新しい光電子分光法として注目を集めた。

図 3-30 に、FEL の 15,000 ショットによって得られた Ar の光電子スペクトルを示す。5.6eV のピークは Ar⁺の生成に帰属する。他のピークは、それらの運動エネルギーにより、1 光子 イオン化によって生成した Ar⁺からの 2 光子イオン化による Ar²⁺の生成に帰属できる。Ar⁺ のピークエネルギーからショットごとに波長を計測し、Ar²⁺の信号を並べ替えることで明瞭 な共鳴構造が存在することが見いだされた^[1]。



図 3-30 FEL を用いた Ar の光電子スペクトル^[1]

一方、研究期間中に行った重水素化アセチレン 2 価イオン(C₂D₂²⁺)における異性化反応の 追跡に関しては、クーロン爆発イメージング法を 3 体爆発過程から 4 体爆発過程に拡張し て、分子内の水素の動きを捉える研究を行った。その結果、水素原子が他方の炭素原子サ イトに移動する過程で、(1)二つの重水素原子は独立に運動するのではなく、互いを避ける ような相関した運動をすること、(2)非平面型の分子構造を経由することなど、分子ダイナ ミクスの詳細を明らかにすることに成功した^[2]。図 3-31 は、重水素化アセチレン(C₂D₂)の 幾何学的構造、実験で得られた運動量角の相関マップを示す。図 3-31 右に示すように、ア

⁵⁹ 電子の段階的放出:電子を1個ずつ順番に放出すること。

セチレン構造に対応する(θ'_{I} , θ'_{2} =(180°, 0°)又は(θ'_{I} , θ'_{2})=(0°, 180°)分布が、遅延 時間(Δ t:励起パルスとプローブパルスの時間間隔)が 90fs では非平面型ビニリデン構造に 対応する $\theta'_{I=} \theta'_{2=}$ 90°付近で増加する。分布は対角線上に観測され、二つの水素原子が強 い相関を持って運動していることが見て取れる。



図 3-31 3 体及び 4 体クーロン爆発イメージングによる C₂D₂²⁺の超高速異性化反応過程の 可視化^[2]

化学結合の切断や生成を決定付けるのは電子の動きである。本研究では、分子内の電子 分布とその変化を直接観測するために、強レーザー場過程の一つである「トンネルイオン 化」に着目した新しい電子分布可視化法(=トンネルイオン化イメージング)の開拓を行っ た。分子に強いレーザー電場をかけると、束縛ポテンシャルが歪み障壁(バリア)ができる。 これを電子がトンネル透過することでイオン化が起こる。トンネルイオン化の起こりやす さは電子の波動関数と印加された電場の方向で決まるため、これを利用して分子内でどの ように電子が分布しているかを調べることができる。紫外光吸収する分子を標的としてこ のアプローチの検証を行ったところ、短寿命励起分子の電子分布形状を捉えると同時に、 光吸収に伴う変化を可視化することができた(図 3-32)^[3]。これはトンネルイオン化イメー ジングが複雑な解析を経ることなく分子内の電子の様子を直接可視化する手法として有用 であることを示す成果である。この論文[3]はソーシャルインパクトを示す Almetric 指標 でトップ 1%論文にランクされるなど大きな注目を集めた。



図 3-32 強レーザーパルス(8fs、1.1×10¹⁴W/cm²)による軌道可視化^[3]

強レーザー場では、トンネルイオン化やクーロン爆発のほかにエネルギー準位のシフト や核間ポテンシャルの変形など様々な非線形過程が誘起される。本研究は、これらの過程 がレーザー場の強度や波長、あるいはレーザー電場波形そのものによって変化することに 着目し、これを駆使することで①超高速2光子ラビ振動の実現、②単分子反応における選 択的結合切断の制御、③多体気相反応過程の観測と制御への展開、を行った。①ではコヒ ーレント過程の中でも特に重要な超高速ラビ振動を多光子過程に拡張することを目的とし て、強レーザー場における量子準位のエネルギーシフトを利用した新しいスキームを提案 した。これによってラビ振動に必要な共鳴条件をレーザー場強度の広い範囲にわたって維 持し、2個の光子を使って二つの状態間のポピュレーションを超高速操作することに成功し た。②では空間非対称なレーザー電場を利用することで、分子内の二つの等価な結合のう ち片方を優先的に切断できることを見いだした。③では強レーザーパルスを緩やかに集光 して得られるレーザーフィラメントを反応場として、新しい気相反応過程の研究を行い、 薄膜やナノ粒子が生成すること、レーザー強度がその構造やサイズを決定付ける重要なパ ラメータであることを示した^[4]。

図 3-33 に XUV 自由電子レーザーを用いて行った実験のスキームと、観測結果を示す。自 由電子レーザーを用いて標的となるヘリウム原子 1s2p 励起状態を生成し、近赤外域強レー ザーパルスを照射したところ光電子収量の周期的変化が観測され、1s6f リュードベリ状態 との間で最短 22fs の周期を持つ 2 光子ラビ振動が誘起されていることが見て取れる^[4]。



図 3-33 実験セットアップと強レーザー場共鳴と2光子ラビ振動の概念図(左)⁶⁰。光電子収量 のレーザー場強度依存性(右上)と各準位のポピュレーション変化(右下)^[4]

②社会・経済への波及効果

菱川は、クーロン爆発で生成した分子イオン(フラグメントイオン)の運動量を測定する ことにより、強レーザー場中の分子の挙動を追跡する手法を確立し、分子構造及び電子分 布の変化に対する知見を深めた。また、強レーザー場によって新しい化学反応の道が拓か れる可能性を示した。さらに、極紫外領域の自由電子レーザーを用いた原子の多光子イオ ン化の実験を展開して、自由電子レーザー利用研究の基盤構築に貢献した。さらに X 線自 由電子レーザーを用いることで内殻電子が関与する多光子吸収過程の解明にも注目して研 究を進めている。今後、X 線自由電子レーザーや、その他の波長領域における強レーザー場 を用いた原子・分子の研究は、生体分子の構造解析やナノテクノロジー開発に応用され、 学術領域だけではなく、医療や産業分野の技術発展に寄与することが期待されている。菱 川の研究成果は、そのような応用研究に対する基礎概念を提供するものとして、社会・経 済に対して徐々に波及していくと考えられる。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Hikosaka Y., Fushitani M., Matsuda A., Tseng C.-M., Hishikawa A., Shigemasa E., Nagasono M., Tono K., Togashi T., Ohashi H., Kimura H., Senba Y., Yabashi M., Ishikawa T. "Multiphoton double ionization of Ar in intense extreme ultraviolet laser fields studied by shot-by-shot photoelectron spectroscopy", Physical Review Letters, 2010, 105(13), 133001.
- [2] Matsuda A., Fushitani M., Takahashi E.J., Hishikawa A. "Visualizing hydrogen atoms migrating in acetylene dication by time-resolved three-body and four-body Coulomb explosion imaging", Physical Chemistry Chemical Physics, 2011, 13(19),

⁶⁰ 出典:名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻(化学系)ホームページ http://www3.chem.nagoya-u.ac.jp/wordpress/?p=10447&lang=en

8697-8704.

- [3] Endo T., Matsuda A., Fushitani M., Yasuike T., Tolstikhin O.I., Morishita T., Hishikawa A. "Imaging Electronic Excitation of NO by Ultrafast Laser Tunneling Ionization", Physical Review Letters, 2016, 116(16), 163002.
- [4] Fushitani M., Liu C.-N., Matsuda A., Endo T., Toida Y., Nagasono M., Togashi T., Yabashi M., Ishikawa T., Hikosaka Y., Morishita T., Hishikawa A. "Femtosecond two-photon Rabi oscillations in excited He driven by ultrashort intense laser fields", Nature Photonics, 2016, 10(2), 102-105.

④その他

国内の共同研究に関しては、レーザー場における超高速反応過程全般について、自然科 学研究機構分子科学研究所、新潟大学、富山大学、電気通信大学、放送大学と共同研究を 行った。また、自由電子レーザーを用いた光電子分光に関して理化学研究所と共同研究を 行った。海外との共同研究に関しては、近赤外高強度極短レーザーパルスを用いたイオン イメージングに関してモスクワ物理工科大学(ロシア)と、自由電子レーザーパルスを用い た光電子分光に関して輔仁大学(台湾)と共同研究を行った。

菱川は、さきがけ採択時には分子科学研究所准教授であったが、2010 年度に名古屋大学 大学院理学研究科教授、2015 年度から名古屋大学物質科学国際研究センター教授に就任し、 現在に至っている。

3.2 2006 年度採択研究課題

3.2.1 キャビティ QED による原子と光子の量子操作(青木隆朗)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①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 (Cavity Quantum Electrodynamics: 共振器電気力学)系の研究には、これまでファブリーペロー共振器が用いられてきたが、高Q値⁶¹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(必要に応じた拡張可能性)の低さといった欠点があった。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した。

②期間中の研究成果

真空槽内にトロイド共振器とテーパーファイバーを配置し、その上方でセシウム原子集 団を捕獲・冷却する実験系を用いて、原子をトラップから自由落下させ、原子を落とした ときのみ、検出光子数が増加することを明らかにした。また、原子と共振器の結合信号の 離調⁶²依存性を理論と比較することにより、強結合の実現を確認した^[1]。さらに、同実験系 を用い、臨界結合条件⁶³下のキャビティ QED 系における単一原子の共鳴蛍光を観測した。

次に、原子の捕獲・冷却とキャビティ QED 系に個別の真空槽を割り当てる実験系を構築 し、過結合条件⁶⁴下キャビティ QED 系を世界で初めて実現した。この系において、単一原子 が放射する光子と励起光のコヒーレントな量子干渉により、最初に入射した光子は反射さ れ、残りの光子は透過すること(光子ターンスタイル効果)の観測に成功した^[2]。

その後、超低損失の真空クラッド・サブ波長ファイバーの作製及びセシウム原子の D₂線 に対応する 852nm において約 3×10⁸ という高いQ値を持つトロイド共振器の作製を行った^[3]。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

Aoki T., Dayan B., Wilcut E., Bowen W.P., Parkins A.S., Kippenberg T.J., Vahala K.J., Kimble H.J. "Observation of strong coupling between one atom and a

⁶¹Q値(Q factor):Q=ωcE/Pout(ωc:共振器の共鳴角周波数、E:共振器に閉じ込められるエネルギー、Pout: 共振器から散逸するパワー)。共振器が持つ光の閉じ込め性能を表す指標。

⁶²離調:原子と共振器の共鳴周波数差。

⁶³ 臨界結合条件:共振器とテーパーファイバーの結合が、共振器の内部損失とバランスする条件。入力した光エネルギーは全て共振器内で失われる。

⁶⁴ 過結合条件:共振器とテーパーファイバーの結合に対して、共振器の内部損失が無視できる条件。入力 したエネルギーは共振器内でほとんど失われることなく出力される。

monolithic microresonator", Nature, 2006, 443(7112), 671-674.65

- [2] Dayan B., Parkins A.S., Aoki T., Ostby E.P., Vahala K.J., Kimble H.J. "A photon turnstile dynamically regulated by one atom", Science, 2008, 319(5866), 1062-1065.
- [3] Aoki T. "Fabrication of ultralow-loss tapered optical fibers and microtoroidal resonators", Japanese Journal of Applied Physics, 2010, 49(11), 118001.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究期間中から、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「半導体量子ドット-微小共振 器結合系のコヒーレント量子分光」(2009 年度~2010 年度)において、超低損失なトロイド 型微小光共振器及びサブ波長径テーパーファイバーの研究を行った。

研究終了後、総務省戦略的情報通信研究開発推進事業(SCOPE) ICT イノベーション創出型 研究開発新世代ネットワーク技術「単一モード共鳴光散乱過程による高純度単一光子源の 研究開発」(2011 年度~2013 年度)において、超低損失テーパーファイバーを用い、単一光 子パルスを生成する研究を行った。

また、科研費若手研究(A)「ナノ光ファイバー端を用いた導波路量子電気力学の研究」 (2014 年度~2016 年度)において、断熱条件に対して最適化された形状のテーパーファイバ ーと量子ドットを結合する研究を行った。

現在、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「共振器量子電気力学系の非局所コヒー レント結合の研究」(2016年度~2017年度)に取り組んでいる。さらに、JST 戦略的創造研 究推進事業 CREST 研究領域「量子状態の高度な制御に基づく革新的量子技術基盤の創出」(荒 川泰彦研究総括、東京大学生産技術研究所教授)において、「スケーラブルな光学的量子計 算に向けた超低損失ナノファイバー共振器 QED 系の開発」(2017年度~2022年度)研究代表 者として採択された。

①科学技術の進歩への貢献

研究終了後も、青木は量子光学研究とナノフォトニクスデバイス開発を融合し、量子状態の極限的な生成・測定・操作技術を開拓することで、光の量子性に起因する特異な現象の観測と量子情報・量子計測への応用に関する研究を継続している。総務省(SCOPE)「単ーモード共鳴光散乱過程による高純度単一光子源の研究開発」においては、超低損失テーパーファイバーと、ナノ光ファイバーレンズ、及び超高Q値モノリシック微小共振器を開発した。また、これらに単一半導体量子ドットを結合させることで、単一光子を単一モード光ファイバーに直接、高効率に結合する理論を確立するとともに、その基礎技術を開発した^[1]。

⁶⁵本文献は、青木が、さきがけ研究課題を提案し研究を進めた時期に在籍していたカリフォルニア工科大学(米国)との共同研究であり、さきがけ研究スタート時期の重要な成果である。このため、さきがけ調査対象期間(2007年1月~2010年12月)に先立つ2006年発行であるが、研究期間中の論文リストに収録し期間中成果の引用文献とした。

原子と共振器の強結合を実現するキャビティ QED 系を、拡張可能な複雑な系に発展させ るためには、モノリシックな微小共振器の開発が重要なステップとなるが、さらに、個別 の原子を共振器表面から 100nm 程度の近距離に局在化する技術が重要となる。青木は、ト ロイダル共振器表面から 100nm の距離に局在化されたセシウム原子をリアルタイムに選別 し、モニターする手法について報告した^[2]。これは、原子の近距離トラップを必要とする、 強結合限界における動的カシミール効果⁶⁶の定量的研究に道を拓く成果である。また、応用 面において、キャビティ QED 系の拡張による量子情報処理の進展につながる成果と考えら れる。図 3-34 に、同報告の実験系のイメージ図と光学ポテンシャルを示す。図 3-34(a)に 示すように、マイクロトロイダル共振器の上部に捕獲・冷却されたセシウム原子をランダム に落下させると、同原子の一部はマイクロトロイダル共振器から 100nm 以下の近傍を通過 する。このとき、共振器に近接して設置されたテーパーファイバーに入射したプローブ光 の透過光及び反射光をカウントすることにより、原子と共振器の結合を観測することがで きる。図 3-34(b)は、マイクロトロイド断面における結合係数⁶⁷の分布を示している。



図 3-34 実験系のイメージ図及び共振器表面近傍の光学ポテンシャル^[2]

2社会・経済への波及効果

フォトニクスの基盤技術であるファイバー光学と、キャビティ QED を融合させることは、 スケーラブルな光学的量子計算の実現のために、とりわけ有望な技術と考えられる。青木 は、研究終了後も様々なナノフォトニクスデバイスを開発し、それをキャビティ QED の研 究に応用している。

⁶⁶ カシミール効果:真空の空間に平行な金属板を置くと微弱な力によってそれらが引き合う現象。

⁶⁷ 図では、g/y₀(g:結合係数、y₀: A/2、A:Einstein A coefficient)の数値が示されている。

科研費若手研究(A)「ナノ光ファイバー端を用いた導波路量子電気力学の研究」において、 ナノ光ファイバーを滑らか平面で切断し、この平面端ナノ光ファイバーの端面に単一の半 導体量子ドットを配置する技術を開発した。具体的には、量子ドット溶液に平面端ナノ光 ファイバーの端面のみを接触させる独自のディップコート法を開発した。また、その研究 過程で、半導体量子ドットと相補的な特徴を持つ単一量子発光体としてレーザー冷却単一 原子に着目し、ナノ光ファイバーとレーザー冷却単一原子の相互作用を探求した。光の波 長以下の直径を持つナノ光ファイバーは、表面近傍でのエヴァネッセント波が大きな振幅 を持つため、その導波モードを単一原子と直接、高効率に相互作用させることができる。 さらに、99.7%以上の透過率のナノ光ファイバーの開発に成功し、さらにナノ光ファイバー とファイバーブラッグ格子(FBG)を組み合わせた「ナノ光ファイバー共振器」を開発した。 これにレーザー冷却・トラップされた単一原子を結合させることで、世界で初めて全ファ イバーキャビティ QED 系を実現することができた^[3](図 3-35 参照)。この光ファイバーキャ ビティ QED 系を光ファイバーでつなぎ合わせてネットワーク化することにより、スケーラ ブルな光学的量子計算実現の可能性があり、将来社会・経済に大きな影響を与えると期待 される。



図 3-35 ナノ光ファイバー共振器によるキャビティ QED の概念図と SEM 写真68

青木は、トロイダル共振器、ナノ光共振器だけでなく、Si マイクロリング共振器の研究 も行っている。具体的には、半径 7μm の Si マイクロリング共振器を用い、光通信用波長 帯において、タイムビン状態⁶⁹における量子もつれ光子対の観測に成功した^{[4],70}。Si マイク

⁶⁸ 早稲田大学先進理工学部応用物理学科 青木隆朗研究室ホームページ:

http://www.qo.phys.waseda.ac.jp/

⁶⁹ タイムビン(Time-bin)状態:波束形状を持つ状態。

⁷⁰ 情報通信研究機構及び日本電気(株)との共同研究。

ロリング共振器は、光学フィルタや干渉計とモノリシックに集積することが可能で、スケ ーラブルな量子情報処理回路の実現に道を拓く成果である。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Kato S., Chonan S., Aoki T. "High-numerical-aperture microlensed tip on an air-clad optical fiber", Optics Letters, 2014, 39(4), 773-776.
- [2] Alton D. J., Stern N. P., Aoki T., Lee H., Ostby E., Vahala K. J., Kimble H. J. "Strong interactions of single atoms and photons near a dielectric boundary", Nature Physics, 2011, 7(2), 159-165.
- [3] Kato S., Aoki T. "Strong Coupling between a Trapped Single Atom and an All-Fiber Cavity", Physical Review Letters, 2015, 115(9), 093603.
- [4] Wakabayashi R., Fujiwara M., Yoshino K.-I., Nambu Y., Sasaki M., Aoki T. "Time-bin entangled photon pair generation from Si micro-ring resonator", Optics Express, 2015, 23(2), 1103-1113.

④その他

青木は、量子光学研究と工学(応用物理学)としてのナノフォトニクスデバイス開発を融 合し、量子状態の極限的な生成・測定・操作技術の開拓を目指して研究を続けている。そ の中心となるのが、ナノフォトニクスデバイスを用いたキャビティ QED の研究であり、手 掛けるナノフォトニクスデバイスは、トロイダル共振器、球型共振器、ナノ光ファイバー 共振器、Si マイクロリング共振器と多岐にわたる。研究の特徴は、小規模な原理実証実験 にとどまることなく、常にスケーラブルな光学的量子計算の実現を目的として、拡張性の ある技術を探求している点である。中でも、ナノ光ファイバー共振器にレーザー冷却・ト ラップされた単一原子を結合させる手法は、多数のキャビティ QED 系が、既に社会インフ ラとなっているファイバーネットワークによって巨視的距離を隔てて結合される可能性を 示しており、量子情報処理の進展に大きく寄与すると期待される。

青木は、さきがけ応募時は東京大学大学院工学系研究科助手であり、研究期間中さきが け専任研究者としてカリフォルニア工科大学(Caltech、米国)で研究を進めた。2008 年度に 京都大学大学院理学研究科准教授に就任し、その後 2011 年度に早稲田大学理工学術院准教 授、2014 年度に同教授に就任し現在に至っている。

90

3.2.2 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(蘆原聡)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

短い時間幅を持つ中赤外⁷¹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。

本研究では、広帯域なスペクトルと短い時間幅を持つ中赤外パルスを発生する技術を開 発し、超高速分光及びコヒーレント制御へ適用すること、さらに、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を解明することを目指した。

②期間中の研究成果

本研究では、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 3~4µm において広帯域なスペクトルを持つ中赤外パルス (パルス幅 45fs)を発生させることに成功した^[1]。

さらに、半導体結晶中の自己位相変調⁷²を利用し、波長 5µm 帯での 3 サイクルパルスを 発生させることができた^[2]。この手法は、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 2~20µm で使える有用な 手法である。

また、中赤外フェムト秒パルスを利用したポンプ-プローブ分光装置を開発した。この装置を用いて、純水の 0H 変角振動モードのエネルギー緩和現象に関し、その温度依存性を初めて観測した。その結果から、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ることを明らかにした^{[3], 73}。

このような一連の研究によって、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など、中赤外超短パルスによる分子及び格子のダイナミクス制御と いうフィールドを切り拓いていく見通しが得られた。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

[1] Ashihara S., Mochizuki T., Yamamoto S., Shimura T., Kuroda K. "Generation of sub 50-fs mid-infrared pulses by optical parametric amplifier based on

⁷¹ 中赤外光:波長 3~30 µm(周波数 10~100THz)の電磁波。

⁷² 自己位相変調: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。

⁷³ Ashihara S., Fujioka S., Shibuya K. "Temperature dependence of vibrational relaxation of the OH bending excitation in liquid H₂O", Chemical Physics Letters, 2011, 502(1-3), 57-62.

periodically-poled MgO:LiNbO₃", Japanese Journal of Applied Physics, 2009, 48(4), 042501.

- [2] Ashihara S., Kawahara Y. "Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in GaAs", Optics Letters, 2009, 34(24), 3839-3841.
- [3] Ashihara S., Huse N., Espagne A., Nibbering E.T.J., Elsaesser T. "Ultrafast structural dynamics of water induced by dissipation of vibrational energy", Journal of Physical Chemistry A, 2007, 111(5), 743-746.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

科研費若手研究(A)「分子ダイナミクス制御へ向けた中赤外任意波形発生システムの開発」 (2008 年度~2010 年度)における研究代表者として、中赤外光のスペクトルを広帯域化する 技術、及び光電場波形を整形するシステムを開発した。また、科研費若手研究(A)「中赤外 波形整形を利用した分子のコヒーレント制御」(2011 年度~2013 年度)における研究代表者 として、中赤外超短パルスとその波形整形技術を利用した分子の運動・反応を駆動する技 術に関する研究を行った。さらに、科研費挑戦的萌芽研究「中赤外プラズモン増強場を用 いた新規非線形光学の開拓」(2014 年度~2015 年度)における研究代表者として、中赤外 超短パルスとプラズモニクスを融合し、超高速光科学の新たなプラットフォーム作りを行 った。

1科学技術の進歩への貢献

蘆原は、研究期間中に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 器を開発したが、それと同時にマグネシウムをドープしたニオブ酸リチウムにおける高速 な光キャリア緩和ダイナミクスの研究を行い、ポーラロン⁷⁴状態に起因する光吸収が可視~ 近赤外領域に現れることを明らかにした^[1]。これに続いて、タンタル酸リチウムについても 同様の検討を進め、ニオブ酸リチウムの場合と比較した。その結果、マグネシウムをドー プしたタンタル酸リチウムでは、ポーラロンに起因する光吸収が起こらないことを見いだ した⁷⁵。ポーラロン起因の光吸収が起こらないことは、光パラメトリック発振器において大 きな利点であり、レーザーの周波数変換技術に対して重要な知見をもたらす成果である。

科研費「分子ダイナミクス制御へ向けた中赤外任意波形発生システムの開発」において は、中赤外超短パルスとその波形成型技術を利用し、金属カルボニル⁷⁶の二つの C0 伸縮モ ード(対称及び反対称)をターゲットに経路間干渉の研究を行った。その結果、励起赤外線

⁷⁴ ポーラロン:電子と格子振動が結び付いてできる準粒子。電子の周りの格子が歪み、電子の移動に歪み が伴って移動するイオン結晶のような場合、その歪みを伴った電子がポーラロンに対応する。

⁷⁵ Enomoto S., Ashihara S. "Comparative study on light-induced absorption between MgO:LiNb03 and MgO:LiTa03", Journal of Applied Physics, 2011, 110(6), 063111.

⁷⁶金属カルボニルとして、2 次元赤外分光のモデル化合物とされている Ir(CO)₂C₅H₇O₂(IDC)と Rh(CO)₂C₅H₇O₂(RDC)を用いた。

パルスの位相変化によって、吸光度が変化することを見いだした⁷⁷。図 3-36 に、金属カル ボニル(RDC)における、吸光度の励起パルス位相依存性を示す。吸光度は、励起準位のポピ ュレーションに比例するため、この結果は、励起パルスの位相変化によって経路間干渉⁷⁸を 制御し、振動励起効率を操作したことを意味する。



図 3-36 RDC における吸光度の励起パルス位相依存性 77

また、同じく中赤外超短パルスを金属ナノ構造に照射することにより生じる時間的・空間的に局在した増強近接場の研究を行った⁷⁹。具体的には、ZnS 基板上に Au ナノロッド(長さ:1µm、幅:150nm、高さ 50nm)アレイを 2 次元的に電子ビームリソグラフィーによって形成し、中赤外超短パルス(波長 3-10µm、パルス間隔 160fs)を照射して、放出された光電子の運動エネルギースペクトルを計測した。その結果、超短パルス光電場をナノ空間で 35 倍以上(強度にして 1000 倍以上)に増強できること、また、その増強場を用いて光電子放出を電場振動の半周期以下の時間スケールで高速に制御できることを実証した^{[2],80}。図 3-37 に、入射光の波長をパラメータとした、放出される電子数(1 パルス当たり)の入射光強度依存性を示す。

⁷⁷ Ashihara S., Enomoto K., Tayama J. "Controlling Quantum Interferences in IR Vibrational Excitations in Metal Carbonyls", Ultrafast Phenomena XVIII (The European Physical Journal), 2013, 41, 05024.

⁷⁸ RDC における | 1S 1A>状態への遷移には、 | 0S 1A>状態経由と | 1S 0A>状態経由の二つのパスがあり、この 経路間に量子干渉が生じる。

⁷⁹ Usui S., Kitade S., Morichika U., Kohmura K., Kusa F., Ashihara S. "Near-Field Imaging of Infrared Nanoantenna Modes Under Oblique Illumination", Journal of Physical Chemistry C, 2017, 121(46), 26000-26006.

⁸⁰ 東京農工大学及びゲッティンゲン大学(ドイツ)との共同研究。



図 3-37 放出される電子数(1パルス当たり)の入射光強度依存性^[2]

このように、蘆原は分子振動を励起することができる中赤外超短パルスレーザーに注目 してその波形整形手法を確立し、これを用いて分子の構造や振動状態の変化を捉える研究 分野を開拓した。その研究成果を、通常の熱化学反応では起きない、光による化学反応の 誘起とその制御に向けて、さらに発展させている。また、新たにプラズモニクスを導入す ることによってナノ空間に高強度の中赤外超短パルスを生成することに成功しており、超 高速光科学の新たなプラットフォームを開拓している。

2社会・経済への波及効果

中赤外パルスを用いた分子振動のダイナミクスの追跡という、蘆原の研究対象には生命 維持に欠かせない「水」が含まれている。今後は水を始めとする分子反応の解明・制御を 通して生命現象の深い理解が進むと予想され、その知見は学術分野を越えて社会・経済に 影響を与えると考えられる。具体的な実験手法においても最近大きな進展が見られた赤外 ポンプ-プローブ分光法や二次元赤外分光法は、同分野の研究に対して極めて有効であるが、 測定感度が低いために適用範囲が制限されるという問題がある。これに対して蘆原は、赤 外共鳴ナノロッドアレイを用いることで、非線形赤外分光の超高感度化が可能であること を実証した^{[3],81,82}。図 3-38 にナノロッドアレイによる信号の増強を利用した非線形赤外分 光測定の概念図を示す。

⁸¹ 個々のナノロッドの局在プラズモン共鳴に加え、ナノロッド同士の強め合い(集団的共鳴)条件を満足す る周期アレイ構造を用いてポンプ-プローブ分光測定を行い、6桁以上の信号増強を実現した。

⁸² Kusa F., Morichika I., Takegami A., Ashihara S. "Enhanced ultrafast infrared spectroscopy using coupled nanoantenna arrays", Optics Express, 2017, 25(11), 12896-12907.



図 3-38 ナノロッドアレイによる信号の増強を利用した非線形赤外分光測定の概念図^[3]

今後もこのような測定技術におけるブレークスルーを積み重ねることにより、中赤外パルスを用いた分子振動等のダイナミクスの追跡は、将来、医療や産業分野においても活用 されると期待される。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Sasamoto S., Hirohashi J., Ashihara S. "Polaron dynamics in lithium niobate upon femtosecond pulse irradiation: Influence of magnesium doping and stoichiometry control", Journal of Applied Physics, 2009, 105(8), 083102.
- [2] Kusa F., Echternkamp K.E., Herink G., Ropers C., Ashihara S. "Optical field emission from resonant gold nanorods driven by femtosecond mid-infrared pulses", AIP Advances, 2015, 5(7), 077138.
- [3] Morichika I., Kusa F., Takegami A., Sakurai A., Ashihara S. "Antenna-Enhanced Nonlinear Infrared Spectroscopy in Reflection Geometry", Journal of Physical Chemistry C, 2017, 121(21), 11643-11649.

④その他

蘆原は、さきがけ採択時は東京大学生産技術研究所助手であったが、終了時は東京農工 大学大学院共生科学技術研究院特任准教授に、2014 年度には東京大学生産技術研究所准教 授に就任し、現在に至っている。

3.2.3 光格子によるアトムトロニクスのためのデバイス開発(木下俊哉)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

情報の媒体としてレーザー冷却等を用いて絶対零度付近まで冷やされた冷却原子を利用 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、原子波同士を干渉させて位相差を検出し、従来にはない 精度で、例えば重力加速度などの物理量が測定できる。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。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、2次元光格子による1次元チューブを形成し、ボース気体の非平 衡ダイナミクスな物性現象観測を目指した。

②期間中の研究成果

内部自由度を持ったボース・アインシュタイン凝縮(Bose-Einstein condensation: 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実験研究を行った。その結 果、接触型相互作用する純粋な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 な運動量分布が、極めて長時間にわたって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いだした^[1]。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いだした⁸³。この緩和機構の解 明、閉じ込め深さの閾値検討などは、今後の課題である。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

 Kinoshita T., Wenger T., Weiss D.S. "A quantum Newton's cradle", Nature, 2006, 440(7086), 900-903.⁸⁴

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、科研費基盤研究(B)「2次元アンチドット型光格子中の量子気体のダイナミ クス」(2008年度~2010年度)において、ポテンシャル障壁が規則的に配列し、エネルギー 極小が多重連結しあった 2次元アンチドット型光格子を構築し、その中へ位相空間密度の

⁸³ 木下俊哉、「光格子を利用したアトムト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、 28-31.

⁸⁴本文献は、木下が、さきがけ研究課題を提案し研究を進めた時期に在籍していたペンシルバニア州立大学 (米国) (D. S. Weiss 教授のグループ) との共同研究であり、さきがけ研究スタート時期の重要な成果である。 このため、さきがけ調査対象期間(2007 年 1 月~2010 年 12 月)に先立つ 2006 年発行であるが、研究期間 中の論文リストに収録し期間中成果の引用文献とした。

高い冷却原子気体を誘導して、アンチドット型光格子の中で非平衡過程の生成と観測を目 指した実験を行った。科研費挑戦的萌芽研究「冷却原子気体を用いた量子可積分系の非平 衡過程に関する実験的研究」(2012 年度~2013 年度)において、1 次元系のボース気体で、1 次元系間のトンネリングを制御しながら緩和過程の詳細を調べた。また、科研費挑戦的萌 芽研究「アンチドット型光格子中のボース凝縮体による量子乱流の生成」(2014 年度~2015 年度)において、ボース・アインシュタイン擬縮(BEC)した冷却原子気体を 2 次元アンチド ット型光格子に誘導し、超流動性の安定性を調べた。

①科学技術の進歩への貢献

本研究終了後も、ボース気体の1次元非平衡ダイナミクスな物性現象実験を継続している。これまでの2次元光格子で形成できる1次元系の実験とともに、アンチドット型光格子中で局在した擬似的な1次元系の実験を行っている。

ボース気体の 1 次元非平衡ダイナミクスの物性実験では、2 重光双極子トラップ(DCDT) 中で蒸発冷却を行う手法を開発し、約4秒の蒸発冷却で10⁶個の BEC を生成することに成功 した。図 3-39 に DCDT の実験装置を示す。その実験系は、10W のマルチモードファイバーレ ーザー(MCDT)と 6W のシングルモードファイバー増幅器(SCDT)で構成され、偏光勾配冷却と 2.8 秒の蒸発冷却を行うことで、1.2×10⁶個の原子の BEC を生成することに成功している。 全光学的手法による BEC 生成では、画期的な時間と個数を実現している^[1]。

本手法をBEC生成に困難を伴う⁸⁵Rb原子に適用した結果、わずか数秒で2x10⁵個のBECを 生成することに成功した。同原子は磁場によって原子間相互作用を自在に変化させること ができるため、これにより研究の幅を大きく広げることが可能となる。



図 3-39 DCDT の実験装置^[1]

アンチドット型光格子中で局在した擬似的な 1 次元系の実験では、アンチドット型光格 子内を流れる BEC の安定性、超流動性の崩壊、量子渦が生成され得るのかを調べた。アン チドット型光格子では、図 3-40 のように、ポテンシャル極小が多重に連結しており、基本 的には原子は局在しないはずであるが、ビーム強度が極めて強い場合には、連結部分の筋 状の通路に当たる部分では、トラップの閉じ込めは極めてタイトとなり、仮に局在したと すると、不確定性によりこの部分の原子は周囲に比べ高いエネルギー状態となる。そのた め原子は、閉じ込めが比較的緩くなる筋状の通路が交差し合うカスプ(尖点)状の部分に集 まり、縦方向にチューブ状に伸びる。これは擬似的に 1 次元とみなせる可能性がある。木 下は、実験により、ポテンシャル極小は多重連結しているものの実質的には移動できず、 カスプ状の中心部に原子が局在していることを示唆する結果を得た⁸³。



図 3-40 アンチドット型光格子85

また木下は、量子乱流過程の制御と観測を目的として、⁸⁷Rb 原子の BEC を 10⁶ 個生成し、 これを 2 次元アンチドット型光格子というエネルギー極小が多重連結した空間内に誘導し て、光格子全体を正弦波的に振動させる、あるいは逆に静止した光格子内で BEC 自体を一 定速度でドラッグさせて超流動性の安定性を調べる実験を行った。その結果、ドットが低 い場合、ブロッホ端⁸⁶の半分の速度(2.1mm/s)を超えると、格子の周期性に起因する大きな 波数を持つ励起が生成し、ドットが高い場合は、より小さい速度で低波数の励起がまず起 こり、次に低ドットの場合に見られた励起が同じ速度のところで表れることが分かった。 BEC の崩壊や不安定性は速度に起因し、臨界速度に達すると特定の波数の励起が生じ、二つ のタイプの崩壊機構が共存していることを確認した⁸⁷。アンチドット型光格子の研究は、実 験研究者である木下が立ち上げたものであるが、最近、いくつかの理論グループが興味を

⁸⁵ 科研費助成金事業研究成果報告書(課題番号:24654131)「冷却原子気体を用いた量子可積分系の非平衡過 程に関する実験的研究」

⁸⁶ 2 次元光格子内に閉じ込められた Rb 原子の波動空間端

⁸⁷ 科研費助成金事業研究成果報告書(課題番号:26610125)「アンチドット型光格子中のボース凝縮体による 量子乱流の生成」

もち始め、共同研究へと発展しつつある。

2社会・経済への波及効果

光格子に関する研究は多くの可能性を持っているが、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 示すことができた。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

[1] Yamashita K., Hanasaki K., Ando A., Takahama M., Kinoshita T. "All-optical production of a large Bose-Einstein condensate in a double compressible crossed dipole trap", Physical Review A, 2017, 95(1), 013609.

④その他

木下は、2001 年から 2007 年に、ポスドク研究員として米国ペンシルバニア州立大学物理 学科に在籍し、1 次元ボース気体の非平衡ダイナミクスの研究を行っている。ペンシルバニ ア州立大学在籍中の 2006 年より、本研究課題に取り組んでいる。2007 年 4 月に京都大学大 学院人間・環境学研究科准教授に着任し、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た。その後も、本研究課題を 継続的に研究し、現在に至っている。

3.2.4 光技術による生体幹細胞の分化制御 一再生医療実現化にむけた光技術の創成-(櫛引俊宏)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

幹細胞は、ある細胞に変化するようにという"指示"を受けると特定の細胞に分化する 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。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。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。

本研究では、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ことを目指した。

②期間中の研究成果

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などへの"指示"とそのメカニズムを解明した。

波長 405nm のレーザー光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。具体的には、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 von Kossa 染色を行った結果につい 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及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。各培養ウェル中のカルシウム濃度を測定した結果、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ことを確認した^[1,2]。

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。すなわち、軟骨前駆細胞へレーザー照射後、軟骨分化に伴いコラーゲ ン量が増加し、軟骨分化に関与する各種 mRNA の発現も増加することが分かった^[3]。幹細胞 以外の細胞についても、レーザー照射による機能制御の可能性を明らかにするため、波長 405nm のレーザーを肥満細胞に照射し、ヒスタミン⁸⁸分泌作用への影響を調べた。その結果、 レーザー照射により発生した活性酸素種 (Reactive Oxygen Species: ROS)がカルシウムイ オンチャ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を見いだした。

⁸⁸ ヒスタミン: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とともに、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。

このように、レーザーを用いた細胞の分化制御(促進)、サイトカイン⁸⁹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見いだすことに成功した。細胞生理機能の レーザー照射による制御が新しい疾病治療方法なだけでなく、レーザーが細胞機能の役割 解明に有用なツールになる可能性を提起した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Kushibiki T., Awazu K. "Controlling osteogenesis and adipogenesis of mesenchymal stromal cells by regulating a circadian clock protein with laser irradiation", International Journal of Medical Sciences, 2008, 5(6), 319-326.
- [2] Kushibiki T., Awazu K. "Blue laser irradiation enhances extracellular calcification of primary mesenchymal stem cells", Photomedicine and Laser Surgery, 2009, 27(3), 493-498.
- [3] Kushibiki T., Tajiri T., Ninomiya Y., Awazu K. "Chondrogenic mRNA expression in prechondrogenic cells after blue laser irradiation", Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology, 2010, 98(3), 211-215.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、科研費若手研究(A)「光技術を用いた細胞機能制御に関する研究」(2009 年 度~2011 年度)において、光技術を用いて非侵襲的に細胞機能を制御する方法に関する研究 を行った。また、科研費若手研究(A)「細胞機能および細胞分化制御のための光技術の創製」 (2013 年度~2015 年度)において、細胞死に至らない低レベルレーザーを用いた光線力学的 治療(Photodynamic Therapy: PDT)が細胞の分化促進に及ぼす影響についての研究を行った。 さらに、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「オプトジェネティクス⁹⁰による転写環境 制御」(2014 年度~2015 年度)において、光と遺伝子によって細胞機能を制御するオプトジ ェネティクスが創成する新しい転写環境の構築とその作用解析を行った。さらに、科研費 挑戦的萌芽研究「テラヘルツ波照射による細胞機能制御技術の開発」(2016 年度~2017 年 度)において、同じさきがけ研究領域で同期であった田中拓男(理化学研究所)と共同研究を 行い、テラヘルツ波照射が及ぼす細胞機能について研究を行った。

①科学技術の進歩への貢献

PDT は、光感受性物質を取り込んだがん細胞などにレーザーを照射して細胞死を誘導する 治療法であるが、櫛引は科研費「細胞機能および細胞分化制御のための光技術の創製」に おいて、細胞死に至らない低レベルレーザーを用いた PDT (Low dose PDT)が、細胞の分化促 進に及ぼす影響に関する研究を行った^[1]。実験は骨髄間葉系幹細胞を対象とし、レーザーの 波長は 635nm、照射量は 0~3J/cm² とした。その結果、Low dose PDT により骨髄間葉系幹細

⁸⁹ サイトカイン:細胞から分泌されるタンパク質で、細胞間相互作用に関する生理活性物質の総称。標的 細胞にシグナルを伝搬し、細胞の増殖、分化、細胞死、機能発現など多様な細胞応答を引き起こす。

⁹⁰ オプトジェネティクス:チャネルロドプシン 2(ChR2)に代表される光受容タンパクを、遺伝子操作によって生体細胞に導入して、光反応性を付与する技術。

胞は骨芽細胞に分化促進することを見いだした。また、Low dose PDT による骨芽細胞分化 促進メカニズム解明のために、細胞内の炎症性転写因子⁹¹の発現を調べた。その結果、Low dose PDT は、炎症性転写因子である Activator Protein-1(AP-1)発現亢進を誘導すること が分かった^[2]。本研究はマサチューセッツ総合病院及びハーバード大学医学大学院との共同 研究である。図 3-41 に Low dose PDT による骨芽細胞分化促進のメカニズムを示す。PDT に よって細胞が死に至る場合、細胞内で炎症に関するシグナル伝達が亢進する。細胞が死に 至らず、細胞の分化が促進する Low dose PDT においても、細胞死に至る場合と同様のメカ ニズムが働いている。



図 3-41 Low dose PDT による骨芽細胞分化促進のメカニズム^[2]

また、科研費「オプトジェネティクスによる転写環境制御」においては、オプトジェネ ティクスによる移植細胞の刺激や再生組織機能の改善を目指した研究に取り組んだ^[3]。その 結果、膵ベータ細胞に 2(ChR2)を導入し、波長 470nm のレーザーを照射すると、細胞内の Ca²⁺の濃度が増加し、インスリンの分泌量も増加⁹²することを見いだした^[4]。図 3-42 に、オ プトジェネティクスによるインスリン分泌量増加のメカニズムを示す。



図 3-42 オプトジェネティクスによるインスリン分泌量増加のメカニズム^[4]

⁹¹ 転写因子: DNA に書き込まれた遺伝情報の RNA への転写を促進したり抑制したりする働きを持つたんぱく 質群。

⁹² 細胞内での糖の分解過程に伴うものではないインスリンの分泌量の増加。

当初オプトジェネティクスは、神経生理学分野での発展が期待されていたが、本研究に よって、より広い範囲の細胞を対象として、オプトジェネティクスによる細胞機能制御の 研究を進展させる道が拓かれた。

②社会・経済への波及効果

最近注目されている再生医療として、生体内のありとあらゆる組織や器官へ分化するこ とができる幹細胞に、所定の"指示"を与えることにより、目的とする組織や器官を構築 する細胞に幹細胞を分化誘導し、最終的に失われた組織や器官を再生させる医療技術があ る。再生医療においては、これまで、幹細胞を長時間かけて培養し、その培地に分化誘導 物質を添加する方法が採られていた。しかしこの技術には、培養に時間が掛かること、分 化の選択性に不確実性がある(目的以外の細胞に分化する可能性がある)ことなどの問題が 指摘されている。櫛引が研究しているレーザー照射により細胞分化を誘導する方法は、こ のような再生医療の問題点を解決する手段として期待される。実際、櫛引は間葉細胞を選 択的に骨芽細胞に分化誘導する技術に関する特許を出願し、その出願は登録されている⁹³。 レーザーを細胞に照射する手法は、細胞分化を誘導するだけではなく、分化した細胞の機 能改善にも応用できると考えられている。

このように、櫛引が拓いた、光技術による細胞機能制御、Low dose PDT による細胞の分 化誘導や、オプトジェネティクスを用いた細胞機能制御の手法は、今後実用化に向けた技 術の進展と、対象とする細胞を拡大することにより、社会・経済に大きな影響を及ぼす可 能性がある。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Kushibiki T., Hirasawa T., Okawa S., Ishihara M. "Low reactive level laser therapy for mesenchymal stromal cells therapies", Stem Cells International, 2015, 974864.
- [2] Kushibiki T., Tu Y., Abu-Yousif A.O., Hasan T. "Photodynamic activation as a molecular switch to promote osteoblast cell differentiation via AP-1 activation", Scientific Reports, 2015, 5, 13114.
- [3] Kushibiki T., Okawa S., Hirasawa T., Ishihara M. "Optogenetics: Novel tools for controlling mammalian cell functions with light", International Journal of Photoenergy, 2014, 895039.
- [4] Kushibiki T., Okawa S., Hirasawa T., Ishihara M. "Optogenetic control of insulin secretion by pancreatic β -cells in vitro and in vivo", Gene Therapy, 2015, 22(7), 553-559.

④その他

櫛引は、研究期間中大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻 特任講師であったが、2011 年度に防衛医科大学校医学教育部医学科准教授に就任し現在に至っている。

⁹³ 特許 4743184「骨芽細胞への分化誘導方法」

3.2.5 光子数確定パルスの空間制御理論(越野和樹)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①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、量子情報処理を始めと する次世代量子技術の実装に最適な物理系である。そのため、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)の開発が強く求められて いる。

本研究では、物質の有する光学非線形性を利用して光子を操作する技術の可能性を理論 面から追求した。具体的には、光子の線形・非線形光学応答を定量的に解析できる「量子 非線形光学理論」の枠組みに基づき、光子場の連続多モード性と光・物質双方の量子化を 具備した新解析手法を考案し、それに基づく光子操作諸技術を理論的に提案することを目 指した。

②期間中の研究成果

光子場の連続多モード性と光・物質双方の量子化を具備する「量子非線形光学理論」の 枠組みでは数値計算量が指数関数的に増加するため、厳密な数値解析は従来大変難しいも のであったが、数値的負担の少ない「半古典理論」の拡張として厳密な数値解析を遂行す るための処方箋を示した。これにより、数値計算量が大幅に減り、解析可能な問題の対象 が広がり、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す ることができた^[1]。

さらに、新解析手法に基づいて、次世代量子技術、特に量子情報処理に必須の光子操作 諸技術を理論的に提案した。一つは、古典パルスから単一光子を抽出する「単一光子フィ ルタ」^[2]である。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、二準位系からの輻射を入射光との隔離を保ちつつ高効率で 取り出す。これによって、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 効率的に除去できる。単一光子源は、量子情報処理における盗聴など誤作動の原因を解消 できるものである。

もう一つは、光子により光子の制御を行う「二光子量子ゲート」^[3]の提案である。このゲ ートでは、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Λ型三準位量子系 という現実的な物理系⁹⁴を使い、決定論的な(効率1の)二光子制御ゲートの実装を可能にす る。この提案では、光子の量子状態を物質に転写することによって光学非線形性を使わず

⁹⁴ 光子-Λ系間の量子状態交換ゲートで、一次元的に伝搬する光子と、縮退Λ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Λ系の基底状態 qubit とが完全に入れ替わ る。
に光子間相互作用をもたらすというアイディアを世界に先駆けて発信した。この手法は、 光子パルス形状の制御が不要である、物質の初期化が自動的に行われるなど、実用化に向 けて有利な点が多い。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Koshino K. "Novel method for solving the quantum nonlinear dynamics of photons: Use of a classical input", Physical Review Letters, 2007, 98(22), 223902.
- [2] Koshino K. "Single-photon filtering by a cavity quantum electrodynamics system", Physical Review A, 2008, 77(2), 023805.
- [3] Koshino K., Ishizaka S., Nakamura Y. "Deterministic photon-photon \sqrt{SWAP} gate using a Λ system", Physical Review A, 2010, 82(1), 010301.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

越野は、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「Λ型三準位系における決定論的ラマン遷移の実現とその応用」(2011 年度~2012 年度)、科研費基盤研究(C)「一次元量子光学系を使った単一光子による決定論的量子操作の理論」(2013 年度~2015 年度)の研究代表者として研究を行った。現在は、科研費基盤研究(C)「着衣状態エンジニアリングに基づく決定論的量子ゲートの開発」(2016 年度~2018 年度)に取り組んでいる。

理論分野の研究を進める越野は、国際実験グループ(東京大学、東京理科大学、理化学研 究所、日本電気(NEC)、マサチューセッツ工科大学(米国)、北京計算科学研究センター(中 国))と共同して、超伝導回路上に実現される「回路量子電気力学」系において、Λ型三準 位系を用いた単一光子制御の実験を行い、世界に先駆けてマイクロ波単一光子の高効率検 出に成功した。

①科学技術の進歩への貢献

越野は、量子もつれ状態に注目した光子の相互作用に関する研究を継続的に行っている。 具体的には、最も単純な二次非線形媒質として三準位原子を用いて、そこに周波数量子も つれ状態にある二光子を入射した時に、アップコンバートされる(高調波が発生する)確率 を求めた。その結果、入射光源の持つ「周波数量子もつれ」を活用し、高調波生成効率を 効率的に増強する可能性を見いだした^[1]。図 3-43 に三準位系による二光子のアップコンバ ージョン過程の概念図を示す。



図 3-43 三準位系による二光子のアップコンバージョン過程[1]

また、科研費「Λ型三準位系における決定論的ラマン遷移の実現とその応用」において、 量子ドットの共鳴蛍光の理論的解析を行い、弾性及び非弾性散乱、蛍光のパワースペクト ル、環境とのエネルギー交換という三つの視点からの理論検討により、位相緩和の効果を 明確化した^[2]。さらに、科研費「一次元量子光学系を使った単一光子による決定論的量子操 作の理論」では、超電導人工原子とマイクロ波共振器とが結合している導波路 QED 系にお いて、Λ型三準位系を実装するための理論提案を行い、実験グループとともにそれを実現 した。空間的に離れた物質量子ビット間の量子的接続の担い手として、光子は有力な候補 であるが、個々の光子を原子などの物質量子ビットと効率良く相互作用させることは簡単 ではない。ところが、一次元的な光学系である導波路 QED 系では、原子や人工原子からの 発光がファイバーや導波路のような一次元モードへほぼ完全に誘導されるため、光子と原 子との相互作用を劇的に増強することができる。越野は、Λ型三準位系をベースとした理 論的検討により、単一のマイクロ波光子が超電導量子ビットの状態を決定論的にスイッチ することを具体的に示し、スケーラブルな量子回路実現に向けた有力な道筋の一つを提示 した。また、現実的な応用として、このダイナミクスをマイクロ波光子検出器に応用可能 であることを示し、世界に先駆けて高効率(66%)での単一光子検出に成功した^[3]。

②社会・経済への波及効果

越野は、一次元量子光学系(導波路 QED 系)の研究において、本光学系をマイクロ波光子 検出器に応用するという着想を得た。単一光子の検出は、光学的領域においても、マイク ロ波の領域においても量子光学の研究に不可欠な技術であるが、マイクロ波光子のエネル ギーは、通常の光学領域の光子のエネルギーに比べて4桁~5桁小さく、マイクロ波単一光 子の検出は極めて高度な課題である。越野は、超電導人工原子とマイクロ波共振器により 構成された導波路 QED における Λ型三準位系の理論的研究をベースに、マイクロ波単一光 子の検出に関する実験的な検討を行い、高い効率(0.66±0.06)で、マイクロ波単一光子を 検出できることを実証した^{[4],95}。図 3-44 に、超電導人工原子を用いたマイクロ波単一光子 検出器の構成を示す。



図 3-44 超電導人工原子を用いたマイクロ波単一光子検出器の構成^[4]

越野が機能を実証したマイクロ波光子検出器は、量子光学の発展に寄与するだけでなく、 近年注目されている量子コンピュータ実現にも寄与することが期待されている。量子ビッ トの幾つかの候補の中で有力とされる超電導量子ビットの読み出しには、超電導量子ビッ トの励起エネルギーに近いマイクロ波を利用する必要があるが、マイクロ波単一光子のエ ネルギーは非常に小さく、その検出は技術的に困難であった。越野が提案し実証した手法 によりその問題の解決に道が拓け、超電導量子ビットを用いた量子コンピュータの開発促 進に寄与する波及効果が考えられる。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Nakatani M., Shimizu R., Koshino K. "Up-conversion dynamics for temporally entangled two-photon pulses", Physical Review A, 2011, 83(1), 013824.
- [2] Koshino K. "Theory of resonance fluorescence from a solid-state cavity QED system: Effects of pure dephasing", Physical Review A, 2011, 84(3), 033824.
- [3] Koshino K., Inomata K., Lin Z., Nakamura Y., Yamamoto T. "Theory of microwave single-photon detection using an impedance-matched Λ system", Physical Review A, 2015, 91(4), 043805.
- [4] Inomata K., Lin Z., Koshino K., Oliver W.D., Tsai J.-S., Yamamoto T., Nakamura Y. "Single microwave-photon detector using an artificial Λ-type three-level system", Nature Communications, 2016, 7, 12303.

⁹⁵ 理化学研究所プレスリリース「マイクロ波単一光子の高効率検出を実現」 http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160725_1/

④その他

越野は、さきがけ採択時には和歌山大学システム工学部助手であったが、2007年に東京 医科歯科大学教養部准教授に就任し、現在に至っている。

3.2.6 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(田中拓男)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

① 研究のねらい

可視光電磁波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 ができれば、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。これを実 現する一つの手段が、プラズモニック・メタマテリアル⁹⁶である。しかし、このようなプラ ズモニック・メタマテリアルを創製する上での大きな技術的課題の一つは、3次元的なナノ サイズの金属構造を加工できる技術が確立されていないことであった。そこで、本研究で は、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を操作する技術(新しい 金属ナノ加工技術)を開発し、それによって創製されたメタマテリアルの新奇な光学現象を 利用して、全く新しい光制御素子を提案・実現することを目指した。

②期間中の研究成果

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する。こ の金属共振器は、例えば微小な金属リングに適当な切れ目を入れることで、コイルとコン デンサーによる光共振器を構成したものである。プラズモニック・メタマテリアルの共振 器を3次元的にアレイ化させて一種の光共振器アレイを構成する。光共振器アレイは光の 磁場成分と相互作用することで、巨視的な物質の比透磁率を変化(制御)することができる。 このような金属ナノ構造のプラズモニック・メタマテリアルは、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 象を発現させる可能性がある。

田中は、銀ロッド対のアレイから成るメタマテリアルにおいて、負の比透磁率を有する 磁気励起型の磁気共鳴現象を実証した^[1]。また、光共振器構造に対するテラヘルツ(THz)か ら可視光領域までの磁気応答特性の理論解析を行い、光共振器の構造設計指針を開発した^[2]。

このような光共振器を作製するには、高い導電率を持つ金属をナノサイズでデザインさ れた共振器の形状に加工し、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 せる必要がある。田中は、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 作り出す新しい加工技術を世界に先駆けて開発した^[3]。具体的には、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光の波長(800nm)を持つフェムト秒チタンサフ ァイアレーザーを集光照射させ、2 光子吸収によって金属イオンを還元して金属を析出させ る手法で、2 光子還元法と呼ばれている。それによって、回折限界を超える 100nm の空間分

⁹⁶ プラズモニック・メタマテリアル:ナノサイズの金属構造を用いて人工的に新奇な電磁気学的特性を付加した擬似物質。そのサイズを光の波長より十分小さくすると光にとってはあたかも均質な物質のように振る舞う。

解能で立体的な金属構造を作製した。

物質の屈折率は比誘電率と比透磁率で表される⁹⁷が、人工的に透磁率を制御できるメタマ テリアルは、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。例えばメタマテ リアルの応用として無反射光学素子の実現が期待されている。田中は、ある特定の平面内 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利用することで、p 偏光にも s 偏光にもブリュースター現象⁹⁸を発現させることが可能であることを示した⁹⁹。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 の創出へつながるものであることを明らかにした。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Ishikawa A., Tanaka T., Kawata S. "Magnetic excitation of magnetic resonance in metamaterials at far-infrared frequencies", Applied Physics Letters, 2007, 91(11), 113118.
- [2] Ishikawa A., Tanaka T., Kawata S. "Frequency dependence of the magnetic response of split-ring resonators", Journal of the Optical Society of America B, 2007, 24(3), 510-515.
- [3] Cao Y.Y., Takeyasu N., Tanaka T., Duan X.M., Kawata S. "3D Metallic Nano-Structure Fabrication By Surfactant-Assisted Multi-Photon-Induced Reduction", Small, 2009, 5(10), 1144-1148.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、科研費基盤研究(A)「紫外プラズモニック・メタマテリアル」(2010 年度~2012 年度)において、ナノコーティングリソグラフィー法を利用して紫外光領域において表面プラズモンを励起する金属ナノ構造体を開発した。科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「共振型3次元メタマテリアルの作製と機能評価」(2010 年度~2014 年度)において、3次元的な金属構造を自由に加工できる技術や高効率に加工できる技術を開発した。また、防衛省研究開発事業(安全保障技術研究推進制度)「ダークメタマテリアルを用いた等方的広帯域光吸収体」(2015 年度~2017 年度)において、メタマテリアルで赤外光を効率的に吸収する人工表面の開発と、同じ技術を可視光に応用することにより可視光全域をカバーする様々な色を作り出す研究を進めた。

⁹⁷ 屈折率(n)は、比誘電率(ε)と比透磁率(μ)で n=√ε x√μと表される。可視光領域では自然界の物質は可 視光の電磁波の磁場と相互作用せず、比透磁率が 1.0 に固定されている。

⁹⁸ ブリュースター現象:物質の境界面に光が入射する際に、その入射角と光の偏光とがある特殊な条件を 満たすと、境界面で生じる光の反射がゼロになるという現象。この現象は p 偏光の光のみに発現するも のとされていた。

⁹⁹ Tanaka T., Ishikawa A., Kawata S. "Unattenuated light transmission through the interface between two materials with different indices of refraction using magnetic metamaterials", Physical Review B, 2006, 73, 125423.

①科学技術の進歩への貢献

本研究終了後の具体的な成果の例を、主要な論文の内容を基に以下に示す。

科研費基盤研究(A)「紫外プラズモニック・メタマテリアル」(2010 年度~2012 年度)に おいて、グラフェンを用いたテラヘルツ・メタマテリアルを作製し、グラフェン・メタマ テリアル構造におけるプラズモン相互作用が、磁気応答の発現に重要な役割を果たしてい ることを明らかにした^[1]。

科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「共振型 3 次元メタマテリアルの作製と機能評 価」(2010年度~2014年度)において、本研究期間中に開発したメタマテリアル製造法を発 展させる研究を進めた。3 次元的な金属構造を加工する 2 光子還元法は、加工する構造の自 由度が高い利点があるが、加工に要する時間が長い欠点がある。一方田中は、磁場を用い て自己組織的に 3 次元メタマテリアルを加工する技術の開発を行った。常磁性と反磁性の 微小球を混在させた系に磁場を印加することで、球体周囲に発生する円環状磁場の自己組 織化現象を利用してナノスケールの金属球を制御する手法である^[2]。このように自己組織化 を利用した手法は、加工コストが低く大量の構造を高速に加工できるが、加工できる形状 や加工精度に限界がある。田中は、これら双方の手法の利点を活用して分割リング共振器 (Split-Ring Resonators: SRRs)の製造法を開発した^[3]。図 3-45 にその製造プロセスと製造 した SRRs の顕微鏡写真を示す。電子ビーム描画法で単純な金属リボン構造を加工する。そ の後、基板の一部をドライエッチング法で除去すると金属リボンに残る残留応力によって リボンが自己組織的にカールして基板上に直立した 3 次元メタマテリアル共振器に変形す る加工技術である。作製したメタマテリアルでは、32.8THz の光に対して 0.35 という真空 よりも低い屈折率を持つことが確認され、自然界にはない人工的に作り出した物質で実現 できたことが確認された。この研究は、台湾大学教授の蔡定平らとの国際共同研究グルー プによる成果である。



図 3-45 分割リング共振器 (SRRs) 製造プロセス (①~⑥) と SRRs の顕微鏡写真¹⁰⁰

¹⁰⁰ 理化学研究所 RIKEN NEWS No.437 November 2017 「構造で光を操るメタマテリアルの実用化を目指す」 http://www.riken.jp/pr/publications/news/2017/

また、赤外吸収メタマテリアルを用いた、表面増強赤外分光法の開発も行った^[4]。赤外吸 収メタマテリアルは Au/MgF₂積層マイクロリボンが Au 薄膜表面に 1 次元アレイ化された構 造をしており、その赤外吸収特性は中赤外領域において特異な特性を観測した。本手法は 既存の赤外吸収分光法の高感度化に応用できることも提案されている。

②社会・経済への波及効果

田中は、防衛省研究開発事業(安全保障技術研究推進制度)「ダークメタマテリアルを用 いた等方的広帯域光吸収体」(2015年度~2017年度)において、電子ビームリソグラフィー 法と真空蒸着法を用いて、シリコン基板上に塗布した厚さ150nmのポリメチルメタクリレ ート(PMA)のレジスト上に四角形パターンを描画し、その上に厚さ45nmのアルミニウム薄 膜を塗布したナノ構造を持つメタマテリアルを開発した。このメタマテリアルにより、可 視光全域をカバーする色を作り出すことに成功し、さらに異なる色を出す構造を混ぜるこ とで黒色を作り出すことにも成功した¹⁰¹。図 3-46 に色を作り出すメタマテリアルの構造と 作製したカラーチャートを示す。開発したメタマテリアルはナノ構造が破壊されない限り 半永久的に退色することがなく、塗料に比べて格段に薄くて軽い特徴を有する。将来、高 解像度ディスプレイやカメラのカラーフィルタとしての利用や、光の散乱を避けたい光学 機器の内壁、大型望遠鏡の黒色塗料などへの応用が期待できる。



図 3-46 a. 色を作り出すメタマテリアルの構造、b. PMMA レジストパターン描画後、 c. 作製したアルミニウム薄膜塗布後のカラーパレット¹⁰²

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Aoki K., Furusawa K., Tanaka T. "Magnetic assembly of gold core-shell necklace resonators", Applied Physics Letters, 2012, 100(18), 181106.
- [2] Ishikawa A., Tanaka T. "Plasmon hybridization in graphene metamaterials", Applied Physics Letters, 2013, 102(25), 253110.
- [3] Chen C.-C., Ishikawa A., Tang Y.-H., Shiao M.-H., Tsai D.P., Tanaka T.

¹⁰¹ Mudachathi R., Tanaka T. "Up Scalable Full Colour Plasmonic Pixels with Controllable Hue, Brightness and Saturation", Scientific Reports, 2017, 7(1), 1199.

¹⁰² 理化学研究所プレスリリース 2017 年 4 月 26 日「アルミニウムのナノ構造体で「色」を作る」 http://www.riken.jp/pr/press/2017/20170426_1/

"Uniaxial-isotropic Metamaterials by Three-Dimensional Split-Ring Resonators", Advanced Optical Materials, 2015, 3(1), 44-48.

[4] Ishikawa A., Tanaka T. "Metamaterial Absorbers for Infrared Detection of Molecular Self-Assembled Monolayers", Scientific Reports, 2015, 5, 12570.

④その他

田中は、さきがけ採択時よりナノ微細構造が作り出す新しい光学/光技術の世界を開拓し ており、最近では、金属ナノ構造を利用した人工光機能材料であるプラズモニック・メタ マテリアルや、3次元多層テラバイト光メモリの研究開発に取り組んでいる。金属ナノ構造 で光を操るメタマテリアルの実用化を目指して、研究成果の特許権利化も積極的に進めて いる。本研究期間中から本調査期間までに11件の特許出願を行い、既に6件が登録されて いる¹⁰³。

さきがけ採択時には独立行政法人理化学研究所先任研究員であったが、現在では国立研 究開発法人理化学研究所主任研究員、田中メタマテリアル研究室長である。また、国立研 究開発法人理化学研究所光量子工学研究領域フォトン操作機能研究チームのチームリーダ ーも兼務している。

¹⁰³ 特許 04761167「金属コーティング方法及び金属リングの製造方法」、特許 04753049「微粒子表面への金属コーティング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」、特許 05504467「3 次元ナノ金属構造体の光還元加工法」、特許 05397108「多層光記録媒体、光記録媒体ドライブ装置及びフォーカス引き込み方法」、特許 05771818「メタマテリアル用の単位共振器、共振器アレイおよびメタマテリアルの製造方法」、特許 04953488「金属コーティング方法」

3.3 2007 年度採択研究課題

3.3.1 高次高調波のコヒーレンスを利用した分子動画観測(板谷治郎)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

高強度超短パルスレーザーを用いて発生される高次高調波¹⁰⁴は時空間コヒーレンスという他の短波長光源にない性質を持っているが、その起源は、発生過程における強レーザー 場中での光電子波束のコヒーレントな運動にある。強レーザー場中での光と電子のコヒー レンスを利用することによって、原子・分子などの微小な系に対して超高速イメージング (分子動画)を実現できる可能性がある。本研究では、高次高調波の軟 X 線スペクトルの精 密測定によって、分子内の電子構造に関する知見を得る実験手法を確立することをねらい とした。

②期間中の研究成果

本研究では赤外域における高強度極短パルスレーザー光源の開発と、時間依存密度汎関 数法による高次高調波発生シミュレーションの手法の確立に成功した。具体的な成果とし て、高次高調波のスペクトル強度と相対位相を精密に測定可能な、大型真空チャンバー群 から成る軟 X 線ビームラインの開発に成功した^[1,2]。

光パラメトリック増幅レーザーにて BiB₃0₆ (Bismuth triobate, BIB0)結晶を非線形媒質と することによって赤外域で1オクターブを超える超広帯域増幅を実現させ、波長域1.1µm ~2.2µmをカバーしつつ、パルスエネルギー10µJまで増幅することに成功した^[3]。多電子 相関を取り入れた時間発展シミュレーション手法を開発し、基底状態に関して高い精度で 分子軌道のイオン化ポテンシャル再現を可能とした。開発した装置では、1オクターブを超 える超広帯域増幅を実現できたため、容易にキャリアエンベロープ位相(CEP)¹⁰⁵を測定でき、 精密な CEP 制御が可能になった。また、多電子相間を取り入れた時間発展シミュレーショ ン手法を開発し、基底状態に関して高い精度で分子軌道のイオン化ポテンシャル再現が可 能となった。実験結果で得られるスペクトル強度、位相と、時間依存密度汎関数法シミュ レーションとにより、実験結果と理論の双方に合致した分子軌道の形状の構築、あるいは、 異なる分子軌道からの高調波の寄与に関する情報取得にめどをつけた。

¹⁰⁴ 高次高調波:高強度レーザーパルスを原子や分子に10¹⁴W/cm²以上の強度で集光することにより得られる 広帯域短波長光で、アト秒領域の極短パルス発生手法として利用することができる。

¹⁰⁵ 光パルスは、振動する光電場(搬送波)とその包絡線から構成されており、包絡線と内部の電場振動との 時間的なずれを、キャリアエンベロープ位相と呼ぶ。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Adachi S., Ishii N., Kanai T., Konige A., Itatani J., Kobayashi Y., Yoshitomi D., Torizuka K., Watanabe S. "5-fs, multi-mJ, CEP-locked parametric chirped-pulse amplifier pumped by a 450-nm source at 1 kHz", Optics Express, 2008, 16(19), 14341-14352.
- [2] Kitano K., Ishii N., Itatani J. "High degree of molecular orientation by a combination of THz and femtosecond laser pulses", Physical Review A, 2011, 84(5), 053408.
- [3] Ishii Kanai Τ., Itatani Ν., Kitano K., Watanabe S., T. "Carrier-envelope-phase-preserving, octave-spanning optical parametric amplification in the infrared based on BiB₃O₆ pumped by 800nm femtosecond laser pulses", Applied Physics Express, 2011, 4(2), 022701.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、科研費基盤研究(S)「1keV 領域での高次高調波発生とアト秒軟 X 線分光への 展開」(2011 年度~2015 年度)において、高強度極短パルス赤外光源の開発と、より長波長 となる中赤外領域における光パラメトリック増幅光源の開発を行った。また、科研費挑戦 的萌芽研究「アト秒光電子分光のための超高強度テラヘルツパルス発生」(2015 年度~2016 年度)において、波長領域を赤外~テラヘルツ領域へと拡大する研究を行い、新しい観測手 法や新しい光の発生手法につなげる研究に取り組んだ。

①科学技術の進歩への貢献

本研究終了後の具体的な成果の例を、主要な論文の内容を基に以下に示す。

BIBO 結晶を用いた光パラメトリックチャープパルス増幅法¹⁰⁶に基づく高強度超短パルス 赤外光源を開発し、2012 年度に、パルスエネルギー0.5mJ、パルス幅 9.0fs で、キャリアエ ンベロープ位相安定な赤外パルス(中心波長 1,600nm)を繰り返し 1kHz で得ることに成功し た^[1]。図 3-47 に BIBO 結晶を用いた波長 1,600nm における高強度サブ 2 サイクルチャープパ ルスパラメトリック増幅(Optical Parametric Chirped Pulse Amplification: OPCPA) 方式 光源の模式図を示す。

¹⁰⁶ 光パラメトリックチャープパルス増幅法:反転対称性を持たない光学結晶中を伝搬する光波同士が非線形に結合し、エネルギーのやり取りを行う過程を利用して光を増幅する手法を光パラメトリック増幅法と呼ぶ。このうち、結晶が励起光によって損傷しないよう、伝搬する光パルスの時間幅が広がるように操作させる手法のこと。



図 3-47 BIBO 結晶を用いた赤外光パラメトリックチャープパルス増幅システムの模式図^[1]

本光源を用いて、炭素のK吸収端(284eV)を超える高周波スペクトルを確認している。図 3-48 に高強度赤外 OPCPA 光源を用いて発生した高次高調波のスペクトルを示す。高次高調 波のカットオフ光エネルギーは 330eV に達しており、炭素のK吸収端(284eV)を超えて「水 の窓」領域¹⁰⁷に十分入っている。また、キャリアエンベロープ位相を変化させることによっ て、カットオフ近傍の軟 X線スペクトルのピーク構造がシフトする現象(ハーフサイクルカ ットオフ)を見いだし、軟 X線領域における孤立アト秒パルス発生を実証した^[2,3]。



b. 高次高調波スペクトルのシミュレーション結果^[3]

高強度赤外光源の高出力化にも取り組み、2015 年度に、パルスエネルギー1.5mJの出力 を実現し、この結果、炭素の K 吸収端における軟 X 線吸収分光が可能となった。炭素を含 む薄膜試料で、炭素の K 吸収端(284eV)における吸収端近傍 X 線吸収微細構造の観測に成功

¹⁰⁷「水の窓」領域:X線では、生体分子である細胞は水分が多く透過度が高いため、その中身の様子を識別 することができない。一方、2nm~4nmの波長のX線(軟X線領域)は、水の層は透過するが、タンパク質 などは透過しない。そのため、この波長領域は、水分を含んだまま生体を観測できることから「水の窓」 領域と呼ばれる。

した108。

2社会・経済への波及効果

高強度の中赤外~テラヘルツの長波長光の発生に関する研究を進め、高強度テラヘルツ 光を用いて気相分子の回転運動を量子制御することによって、分子の頭と尻尾を区別した 分子配向を実現した。図 3-49 に高強度テラヘルツパルスによって誘起された HBr 分子内の 回転波束と、観測された分子配向を示す^[4]。



図 3-49 高強度テラヘルツパルスによって励起された HBr 分子内の回転波束と、分子配向^[4]

板谷は、位相制御された高強度短パルスレーザーとその波長変換を基盤技術とすること によって、軟 X 線からテラヘルツにわたる広い周波数領域において光パルスを発生させ、 物質の励起状態における動的過程を実時間観測し、光で制御することを目指す研究を行っ ている。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

Ishii N., Kaneshima K., Kitano K., Kanai T., Watanabe S., Itatani J.
"Sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable, intense optical pulses at 1.6

¹⁰⁸ 科研費研究成果報告書「1keV 領域での高次高調波発生とアト秒軟 X 線分光への展開」平成 28 年 6 月 9 日

 μ m from a BiB306 optical parametric chirped-pulse amplifier" , Optics Letters, 2012, 37(20), 4182-4184.

- [2] Ishii N., Adachi S., Nomura Y., Kosuge A., Kobayashi Y., Kanai T., Itatani J., Watanabe S. "Generation of soft x-ray and water window harmonics using a few-cycle, phase-locked, optical parametric chirped-pulse amplifier", Optics Letters, 2012, 37(1), 97-99.
- [3] Ishii N., Kaneshima K., Kitano K., Kanai T., Watanabe S., Itatani J. "Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses", Nature Communications, 2014, 5, 3331.
- [4] Kitano K., Ishii N., Kanda N., Matsumoto Y., Kanai T., Kuwata-Gonokami M., Itatani J. "Orientation of jet-cooled polar molecules with an intense single-cycle THz pulse", Physical Review A, 2013, 88(6), 061405(R).

④その他

板谷は、さきがけ研究領域に先立って、2004年、「ERATO 腰原非平衡ダイナミクスプロジ ェクト」(2003年度~2008年度、腰原伸也研究総括、東京工業大学フロンティア研究セン ター教授)に「分子動画技術開発グループ」のグループリーダーとして参画し、2005年より 米国ローレンス・バークレイ国立研究所(LBNL)に訪問研究員として常駐し研究に取り組ん だ。その後、さきがけ「光の創成・操作と展開」研究領域において 2007年度に採択され、 2008年3月より東京大学物性研究所に転任し、高強度レーザー光と物質の相互作用に関す る研究に従事している。高強度レーザー技術を開発しながら、アト秒からフェムト秒領域 での超高速現象に関する実験的研究を継続して行っており、現在、「アト秒科学」、「超高速 軟 X 線分光」、「高強度赤外光源によるサブサイクル分光」分野の研究に取り組んでいる。 また、物性研究者や光電子分光研究者との共同で、高次高調波の物性応用も進めており、 極端紫外域のフェムト秒パルスを用いた固体の超高速角度分解光電子分光が実現している。

2010年度、東京大学物性研究所先端分光研究部門(現、東京大学物性研究所極限コヒーレント光科学研究センター)准教授に昇格した。

3.3.2 多光子波束による物質の非線形光学応答(清水亮介)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

光の量子性を扱う量子光学の分野では、量子情報通信技術への応用に向けて、主に光子 統計性の制御や偏光自由度における量子相関制御に関する技術の開発はなされてきている が、光計測技術において重要な周波数自由度の量子相関制御技術の開発はほとんどなされ てこなかった。

本研究では、周波数自由度における光子-光子間の量子相関を制御した光(周波数量子も つれ光子¹⁰⁹)を用いて、半古典近似を超えた単一光子レベルでの光と物質との相互作用を明 らかにするための制御手法を開発すること、さらに、そこで開発した光源を用いて周波数 量子もつれ光子と物質との相互作用で期待される特異な非線形光学応答を実験的に観測す ることを目指した。

②期間中の研究成果

本研究では、周波数量子もつれを制御した光源を開発し、周波数量子もつれ光子と物質との相互作用で生ずる特異な非線形光学応答を実験的に観測することに成功した。

具体的には、まず、自発パラメトリック下方変換過程¹¹⁰より生成する2光子間の周波数相 関を制御し、量子的に対照的な性質を持つ周波数相関状態と周波数反相関状態を作り出す ことができた。次に、波長1584nm付近で周波数量子もつれを制御した光源を作製すること にも成功した。この光源は、量子もつれ光源としては世界最高レベルの2光子生成レート(~ 60000 pairs/mW/sec)、生成した2光子の量子干渉は90%を超える高い明瞭度を持つことが 分かった^[1]。さらに、この周波数もつれ光子光源を用いて偏光量子もつれ光子生成実験を行 い、偏光量子もつれ光子対生成には二つの光子の交換に対して対称な2光子スペクトル形 状が必要であることを実験、理論の両面から明らかにした。2光子スペクトル形状と2光子 干渉波形との関係が分かってきたことで、それまでの量子光学実験に数多く利用されてき た Hong-Ou-Mandel 干渉や Franson 干渉といった2光子干渉現象に統一的な理解を与えるこ とができた。

さらに、3光子以上を必要とする多量子ビットの量子情報通信プロトコルを実証するため に重要な周波数無相関状態を直接生成する手法を提案し、実証実験を行った。周期分極反 転 KTP 結晶(Periodically Poles KTiOPO4: PPKTP)の結晶長(30mm)と整合するように、ポンプ

¹⁰⁹ 二つの量子状態が、線形の重ね合わせ状態にあって、しかも両者の間に量子相関があるとき、量子もつれ状態にあるという。光には偏光のほかにも周波数という自由度があり、これに着目したのが周波数量子もつれ光子である。

¹¹⁰ 一つの光子が物質と非線形な相互作用をすることで、自発的に二つの光子に分かれる。この変換の前後 で、物質の状態が変化しない(光子の持つ運動量とエネルギーが保存される)過程。

光パルスを 0.4nm として 2 光子スペクトル測定を行い、周波数無相関に近い状態が得られることを実証した^[2]。

また、偏光量子もつれ光子生成の波長多重化に関する提案も行った。波長分割多重伝送 技術を用いた偏光量子もつれ光子対の伝送に向けた周波数多重偏光量子もつれ光子対光源 を作製する手法を提案できたことは、複雑で高度化していく量子情報処理技術の原理に対 する実証実験を加速させていく成果である。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Shimizu R., Edamatsu K. "High-flux and broadband biphoton sources with controlled frequency entanglement", Optics Express, 2009, 17(19), 16385-16393.
- [2] Edamatsu K., Shimizu R., Ueno W., Jin R.-B., Kaneda F., Yabuno M., Suzuki H., Nagano S., Syouji A., Suizu K. "Photon pair sources with controlled frequency correlation", Progress in Informatics, 2011, 8, 19-26.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

清水は、科研費若手研究(B)「時間領域量子もつれ光子波束操作技術の開発」(2011 年度 ~2012 年度)、及び科研費挑戦的萌芽研究「光子数分解型量子フーリエ変換分光計測装置の 開発」(2014 年度~2015 年度)の研究代表者として量子もつれ光子の研究に取り組んだ。現 在は、科研費基盤研究(A)「電波や光など様々な周波数帯で利用可能な高秘匿移動通信ネッ トワーク技術の研究開発」(2017 年度~2020 年度、佐々木雅英研究代表者、国立研究開発 法人情報通信研究機構(NICT)未来 ICT 研究所主管研究員)において、研究を発展的に進めて いる。

①科学技術の進歩への貢献

本研究終了後の具体的な成果の例を、主要な論文の内容を基に以下に示す。

清水は、科研費若手研究(B)「時間領域量子もつれ光子波束操作技術の開発」(2011 年度 ~2012 年度)及び科研費挑戦的萌芽研究「光子数分解型量子フーリエ変換分光計測装置の 開発」(2014 年度~2015 年度)において、量子もつれ光源に関する研究を進めるとともに、 NICT と継続的に光量子情報通信技術に関する共同研究を推進し成果を上げている。

上記の非線形光学結晶の PPKTP を用いた方法によって、通信波長帯(L-band)における波 長可変の高純度(81%以上)単一光子光源を開発した^[1]。また、この PPKTP 結晶において群速 度及び位相整合条件を調整することで、良質な量子もつれ光子対¹¹¹を生成することができる ことを明らかにした^[2]。

さらに、2.5GHzの駆動用レーザーを高純度量子もつれ光源に組み合わせることで、雑音

¹¹¹ 量子もつれ光子対:2 個の光子が特殊な相関を持って結び付いている状態をいう。量子もつれ光子対は 離れた2地点間にある信号間に強い結び付きを形成できるため、安全な通信(量子暗号)や高速の計算(量 子計算)などを実現することができる。

を増やすことなく、量子もつれ光の高速生成技術を開発し、生成速度を従来の 30 倍以上高 速化することに成功した^[3]。図 3-50 に実験装置の構成を示す。動作速度 2.5GHz の周波数コ ム光源から発生された基本波(波長 1,553nm)の光パルス列は、2 倍波に変換され、非線形光 学結晶の PPKTP を励起し、良質な量子もつれ光子が生成される。これらの研究は、清水が 量子もつれ光子対生成技術の向上方法を提案し、NICT チームが高速駆動用レーザー開発と 量子もつれ光子対生成技術向上方法の実証を行い、両者でデータ解析を担当した共同研究 の成果である¹¹⁰。



図 3-50 量子もつれ光子対高速生成技術の実験装置構成¹¹²

②社会・経済への波及効果

量子もつれ光子対は、離れた 2 点にある光子の間に強い結び付き(いわゆる量子相関)を 持つため、この状態を構成する光子のある一つについての情報が確定すると、それに伴っ て別の光子についての情報も確定する。複数の量子もつれ光子対をネットワーク上で伝送 し、必要な地点間で量子もつれ相関を自由に形成できれば、量子暗号の長距離化や量子計 算機のネットワーク化が可能になる。そのための基本的なプロトコルが量子もつれ交換で ある。清水と NICT の共同研究チームは、二つの独立な量子もつれ光源から生成された A-B 間、B-C 間の 2 組の量子もつれ光子対の光子を地点 B で極めて高精度で干渉させるための同 期技術を開発し、従来の 1,000 倍に相当する 1 秒間に 108 回の量子もつれ交換を行うこと に成功した^[4]。図 3-51 に量子もつれ交換実験装置の構成を示す。本成果により、光ファイ バーネットワーク上で量子もつれ光子対に対する回線交換や、量子暗号を長距離通信する

 ¹¹² NICT 及び電気通信大学によるプレスリリース「量子通信の実現に向けた、量子もつれ光の高速生成技術を開発」2014年12月19日、https://www.nict.go.jp/press/2014/12/19-1.html

ための中継実験を行うことが可能になった¹¹³。量子中継の実現に向けた大きな前進と評価されている。



図 3-51 量子もつれ交換実験装置の構成¹¹³

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Jin R.-B., Shimizu R., Wakui K., Benichi H., Sasaki M. "Widely tunable single photon source with high purity at telecom wavelength", Optics Express, 2013, 21(9), 10659-10666.
- [2] Jin R.-B., Shimizu R., Wakui K., Fujiwara M., Yamashita T., Miki S., Terai H., Wang Z., Sasaki M. "Pulsed Sagnac polarization-entangled photon source with a PPKTP crystal at telecom wavelength", Optics Express, 2014, 22(10), 11498-11507.
- [3] Jin R.-B., Wakui K., Shimizu R., Benichi H., Miki S., Yamashita T., Terai H., Wang Z., Fujiwara M., Sasaki M. "Nonclassical interference between independent intrinsically pure single photons at telecommunication wavelength", Physical Review A, 2013, 87(6), 063801.
- [4] Jin R.-B., Shimizu R., Morohashi I., Wakui K., Takeoka M., Izumi S., Sakamoto T., Fujiwara M., Yamashita T., Miki S., Terai H., Wang Z., Sasaki M. "Efficient generation of twin photons at telecom wavelengths with 2.5 GHz repetition-rate-tunable comb laser", Scientific Reports, 2014, 4, 7468.

¹¹³ NICT 及び電気通信大学によるプレスリリース「量子情報通信ネットワークの実現に向けた、「量子もつ れ交換」の高速化に成功」2015年3月20日。

④その他

清水は、本研究期間中から継続的に東北大学(枝松圭一教授のグループ)と量子もつれ光 源に関する共同研究を実施してきた。枝松教授は、JST 戦略的創造研究推進事業の CREST 研 究領域「新しい物理現象や動作原理に基づくナノデバイス・システムの創製」(2001 年度~ 2007 年度、梶村皓二研究総括、国立研究開発法人産業技術総合研究所電子光技術研究部門 研究顧問)の研究課題「光電場のナノ空間構造による新機能デバイスの創製」(2003 年度~ 2007 年度、石原一研究代表者、大阪府立大学教授)の主たる共同研究者の一人で、清水も CREST 研究員として参画していた。終了時は電気通信大学先端領域教育研究センター特任准 教授であったが、2015 年度には同大学准教授に就任し現在に至っている。近年は、NICT 未 来 ICT 研究所(佐々木雅英主管研究員のグループ)と光量子情報通信技術に関連した共同研 究を進めて成果を上げており、「光空間通信の物理レイヤセキュリティ技術」の共同研究成 果により、電子情報通信学会衛星通信研究会の 2015 年度衛星通信研究賞を受賞した。

3.3.3 テラヘルツ電磁波による高速電子スピン操作(永井正也)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

テラヘルツ(THz)領域(0.1-10THz)とは光と電波の中間的領域であり、発生や検出及びその電磁波応答の解釈が非常に難しい周波数領域である。一方、磁気的応答に目を向けると、低周波の磁気応答と高周波の磁気光学応答のちょうど中間の周波数領域にある。ただし磁気共鳴においては2価鉄など偶数スピン系の磁気共鳴がゼロ磁場でもTHz領域に現れる。したがって、高強度のTHzパルスを用いれば、スピン操作を高速で容易に行える可能性がある。本研究では、超短パルス波長変換技術により高強度THzパルスの光源を開発し、THz領域の非線形分光の手法を確立するとともに、これらを磁気共鳴のある系に適用することで、高強度テラヘルツ光源を用いた新しいスピン操作の方法論の確立をねらいとした。

②期間中の研究成果

高強度 THz 電磁パルスの開発においては、まず非線形結晶の光整流過程に注目し、再生 増幅したチタンサファイア(Ti:S)レーザーからの光を非線形結晶のニオブ酸リチウム (LiNb0₃)結晶に照射して THz 電場波形の発生を確認した^[1]。さらに、イッテルビウム(Yb)ド ープファイバーレーザー¹¹⁴に注目し、この光パルスを LiNb0₃結晶に照射し THz 電磁波が発 生する過程で、励起光のパルス圧縮を巧みに利用することによりファイバーレーザーを用 いたものでは世界最高出力(出力電場強度 8kV/cm)で高帯域(2THz)の電磁波発生に成功した ^[2]。これは半導体電子デバイス中に印加される電場強度に匹敵し、高感度 THz 電磁波イメー ジ検出への応用が期待される。

また、パルス幅 1ps で 100kV/cm を超える電場を維持させる THz 電磁パルスの発生にも成 功し、アルギニンペレットに THz 電磁パルスを入射して透過スペクトルを測定することで、 1.0THz を中心とした吸収を観測した。この吸収は水溶液にすると見られないことから分子 間振動に起因する吸収と考えられる。このように、結晶中の分子を大振幅で揺さぶること で、熱平衡状態では実現できないような分子変位を実現することに、世界で初めて成功し た^[3]。本技術の応用範囲は広く、超高速通信に必要な半導体デバイスの超高速スイッチ制御 の実現や、高強度・高繰り返しの特長をいかした小型のテラヘルツ動画イメージングシステ ムへの展開、たんぱく質など巨大分子の運動制御による機能実現への展開などが期待され る。

¹¹⁴ Yb ドープファイバーレーザー:エネルギー変換効率が高く産業用途に用いられているが、サブピコ秒程度のパルス幅しか得られず、THz パルス発生には不向きと考えられていた。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Jewariya M., Nagai M., Tanaka K. "Enhancement of terahertz wave generation by cascaded x(2) processes in LiNbO₃", Journal of the Optical Society of America B, 2009, 26(9), A101-A106.
- [2] Nagai M., Jewariya M., Ichikawa Y., Ohtake H., Sugiura T., Uehara Y., Tanaka K. "Broadband and high power terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via χ (2) cascaded processes in LiNbO₃", Optics Express, 2009, 17(14), 11543-11549.
- [3] Jewariya M., Nagai M., Tanaka K. "Ladder climbing on the anharmonic intermolecular potential in an amino acid microcrystal via an intense monocycle terahertz pulse", Physical Review Letters, 2010, 105(20), 203003,

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、JST 研究成果展開事業産学共創基礎基盤研究プログラム「極限的高効率 THz パルス発生技術の確立と高性能物質-THz 結合デバイスとの融合と応用」(2011 年度~2013 年度)において、ファイバーレーザーを用いて高効率の THz パルス発生技術研究を発展させ た。また、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「構造共鳴を利用したテラへルツ波メ タマテリアルの作製と機能」(2010 年度~2014 年度)において、金属板で THz 周波数帯の電 磁波の偏光を制御する技術を開発した。

また大きな市場を有する光加工分野において高強度テラヘルツパルスが有用であること を実証するために、現在、科研費基盤研究(B)「高強度テラヘルツパルスによるソフトな脱 離イオン化と質量分析への展開」(2015 年度~2017 年度)、更に JST 研究成果展開事業産学 共創基礎基盤研究プログラム「テラヘルツレーザー脱離イオン化法の開拓」(2015 年度~ 2017 年度)において、テラヘルツ自由電子レーザーからのさらに高強度の THz パルスの照射 を用いた固体試料の脱離イオン化法による質量分析に研究代表者として取り組んでいる。

①科学技術の進歩への貢献

本研究終了後の具体的な成果の例を、主要な論文の内容を基に以下に示す。

永井は、JST 研究成果展開事業産学共創基礎基盤研究プログラム「極限的高効率 THz パル ス発生技術の確立と高性能物質-THz 結合デバイスとの融合と応用」(2011 年度~2013 年度) において、本研究期間中の成果である LiNb0₃に超短パルスレーザーを照射して THz パルス を発生させる方式を発展させて最適化を行い、エネルギー変換効率 0.21%の高効率 THz の発 生に成功した^[1]。さらに、Yb ドープファイバーレーザーを用いて LiNb0₃結晶中の高次の非 線形光学過程と検出光のパルス圧縮を行うことで 12kV/cm の最大電場強度のパルス発生を 実現した^[2]。図 3-52(a)に実験系の概念を示す。発生した THz パルスは高次の非線形によっ て広帯域化しているため、サンプリングパルスのパルス圧縮によって高周波数側の感度を 大幅に改善することで測定した。図 3-52(b) は異なる励起光強度で発生した THz パルスの電 場波形である。現在取り組んでいる自由電子レーザーによるテラヘルツ加工技術を実証した後には、これらのコンパクトなテラヘルツ光源の開発が急激に進むものと考えられる。



図 3-52 Yb ドープファイバーレーザーを用いた実験系と異なる励起光で発生した THz パルス [2]

高強度テラヘルツ光源技術は一般的なテラヘルツ分光において様々な実験配置での測定 を可能にする。上述の光源を用いたフォトニック結晶ベースの完全吸収体の反射配置での 評価、太陽電池の動作環境下でのテラヘルツ分光などを様々な材料・デバイス開発グルー プとの共同研究で行っている。

また、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「構造共鳴を利用したテラヘルツ波メタ マテリアルの作製と機能」(2010年度~2014年度)において、エッチングにより金属板に周 期的な開口を設けた金属平行平板導波路を開発し、0.67THzから1.21THzの周波数帯で位相 板として偏光制御できることを実証した^[3]。図 3-53 に位相板(偏光板)を用いた偏光制御の 概念図と金属製位相板の写真を示す。



図 3-53 金属製位相板を用いた偏光制御の概念図と位相板の写真115

¹¹⁵ 大阪大学プレスリリース「世界初!金属板だけで光の偏光を自在に制御」2013 年 12 月 26 日 http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2013/20131226_1

位相板による位相シフトの周波数依存性を図 3-54 に示す。0.67THz から 1.21THz の周波 数帯で 90 度の位相差が 5%以内の精度で生じており、1/4 波長板として機能することを示し ている。



図 3-54 金属位相板による位相特性及び位相差 115

さらに永井は、金属製の位相板にピラーをアレイ状に配置することで、1/4 波長板として 2.0THz から 3.1THz へ高周波化することにも成功した^[4]。

②社会・経済への波及効果

永井は、さきがけ研究開始時に京都大学大学院理学研究科助教であった頃から、アイシン精機株式会社との共同研究を活発に行った。アイシン精機が開発した産業用光ファイバーレーザーを用いた高強度 THz 電磁波発生装置の共同開発を行い、2008 年に3 件の特許出願を行い登録¹¹⁶された。2010 年に大阪大学大学院基礎工学研究科に異動した後もアイシン精機との共同研究を発展させている¹¹⁷。共同開発した金属製位相板はシンプルな構造ながら、テラヘルツ帯で偏光が制御できることを実証しており、テラヘルツ周波数帯のアイソレータや偏光に敏感な高感度赤外光センシングなどへの応用が期待される。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Nagai M., Matsubara E., Ashida M. "High-efficiency terahertz pulse generation via optical rectification by suppressing stimulated Raman scattering process", Optics Express, 2012, 20(6), 6509-6514.
- [2] Nagai M., Matsubara E., Ashida M., Takayanagi J., Ohtake H. "Generation and

¹¹⁶「テラヘルツ波発生装置及びテラヘルツ波発生方法」として、アイシン精機出願の2件(特許 05098895、 特許 05353121)、アイシン精機と京都大学から共同出願の1件(特許 05196436)が登録された。

¹¹⁷引用文献[2]、「3」、[4]はアイシン精機の大竹秀行、高柳順らとの共著論文であり、2014 年にアイシン 精機から「テラヘルツ帯波長板、及びテラヘルツ波測定装置」(特開 2015-135414)が出願されている。

detection of THz pulses with a bandwidth extending beyond 4 THz using a subpicosecond Yb-doped fiber laser system", IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 2014, 4(4), 6832640, 440-446.

- [3] Nagai M., Mukai N., Minowa Y., Ashida M., Takayanagi J., Ohtake H. "Achromatic THz wave plate composed of stacked parallel metal plates", Optics Letters, 2014, 39(1), 146-149.
- [4] Nagai M., Mukai N., Minowa Y., Ashida M., Suzuki T., Takayanagi J., Ohtake H. "Achromatic wave plate in THz frequency region based on parallel metal plate waveguides with a pillar array", Optics Express, 2015, 23(4), 4641-4649.

④その他

永井は、さきがけ研究開始時は京都大学大学院理学研究科助教であり、京都大学の田中 耕一郎教授らのグループと研究活動を進めた。2010年度に、本さきがけ研究領域メンバー であった芦田昌明(大阪大学大学院基礎工学研究科教授)のグループに合流し准教授に就任 した。企業との共同研究としては、アイシン精機株式会社との共同研究を継続して活発に 行っている。

3.3.4 量子ドットによる光・量子メモリの創出と高光非線形性の探求(早瀬潤子)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

光は、最も安定に量子コヒーレンスを保持するため、量子情報通信・処理における情報 伝達媒質として最も適している。その一方で、光は止めておくこと(保存)ができない、互 いに相互作用しにくい(量子ゲート操作が困難)といった欠点がある。

本研究では、集積化・小型化に有利でかつ光との結合効率の良い半導体量子ドットを用いて、不均一性の影響を除去できるフォトンエコー¹¹⁸法により量子メモリの原理を実証すること、また、量子メモリ動作において重要な役割を果たす、半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用を解明することを目指した。

②期間中の研究成果

本研究では、半導体量子ドットを用いて、3パルスによるフォトンエコー法である四光波 混合(four-wave mixing:FWM)を使用することで、位相制御フォトンエコー測定系を新たに 構築し、光パルス間の相対位相・相対振幅に符号化された情報を、歪補償半導体量子ドッ ト集合体に高い忠実度で書き込み・読み出しすることに成功した。また、適用可能な光パ ルスの時間帯域幅積が 10³に迫ること、10² 個のマルチモードパルス列の適用が可能である ことを確認した。さらに、歪補償法と呼ぶ特殊な手法で作製した半導体量子ビット集合体 を用いて、光通信波長帯での高精度フォトンエコー測定を可能とし、励起子ラビ振動¹¹⁹の明 確な観測に成功した^[1]。これらの結果は、通信波長帯で利用が可能な固体量子メモリの実現 可能性を示唆している。

次に、半導体量子ドット集合体における非線形コヒーレント相互作用の解明において、 励起子ラビ振動における新たな減衰メカニズムがあること、入射光電場の空間分布と伝搬 効果が量子ドット集合体における巨視的ラビ振動の減衰に大きく影響することを初めて見 いだした。フォトンエコー信号の強度には明瞭な振動構造が見られ、観測された振動構造 の周期はほぼ πとなっており、ラビ振動特有の振る舞いを示すことが分かった。しかしパ ルス面積の大きな領域においてはラビ振動が大きく減衰しており、理想 2 準位系における 結果と大きく異なっていた^[2]。そこで、パルス面積の不均一性を取り入れたラビ振動の解析 を行い、計算結果が実験結果をよく再現することを見いだした。計算では、パルス面積の 不均一性により生じるフォトンエコー信号の空間分布と、フォトンエコー信号が検出器に 到達するまでの伝搬効果を取り入れた解析を行い、入射光電場の空間分布と伝搬効果が、

¹¹⁸ フォトンエコー:不均一な広がりを持つ二準位系原子に共鳴するレーザーパルスを複数個照射したとき、 系からの応答として光パルス信号が観測される現象をいう。

¹¹⁹ ラビ振動:光と2準位系との基本的な非線形コヒーレント相互作用。

量子ドット集合体における巨視的ラビ振動の減衰に大きく影響することが分かった^[3]。高い 精度のフォトンエコー測定を可能とし、遷移双極子モーメントなどの解析に必要な物理量 を高い精度で求め、フィッティングパラメータを用いずにラビ振動の理論解析を行うとい う独創的な研究成果を上げた^[3]。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Ishi-Hayase J., Akahane K., Yamamoto Y., Kujiraoka M., Ema K., Sasaki M. "Correlation effect of Rabi oscillations of excitons in quantum dots", Journal of Luminescence, 2008, 128(5-6), 1016-1018.
- [2] Kujiraoka M., Ishi-Hayase J., Akahane K., Yamamoto N., Ema K., Sasaki M. "Ensemble effect on Rabi oscillations of excitons in quantum dots", Physica Status Solidi (A), 2009, 206(5), 952-955.
- [3] Kujiraoka M., Ishi-Hayase J., Akahane K., Yamamoto N., Ema K., Sasaki M. "Optical rabi oscillations in a quantum dot ensemble", Applied Physics Express, 2010, 3(9), 092801.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、内閣府の最先端・次世代研究開発支援プログラム(NEXT)「単一光子-半導体 量子ドット電子スピン集団励起間の革新的量子インターフェースの実現」(2010年度~2013 年度)の研究者、及び科研費基盤研究(B)「ダイヤモンド量子制御による高感度核磁気共鳴 イメージング」(2015年度~2017年度)の研究代表者として、量子ドット集合体によるフォ トンエコー量子インターフェース技術、及びダイヤモンド基板上の窒素-空孔中心による量 子センシング技術を発展的に研究した。

①科学技術の進歩への貢献

本研究終了後の具体的な成果の例を、主要な論文の内容を基に以下に示す。

早瀬は、高品質歪補償超積層 InAs 量子ドットと、高感度光へテロダイン検出フォトンエ コー測定システムを組み合わせることにより、量子ドット集合体において、単一光子レベ ルの極微弱光領域でのフォトンエコー測定を世界で初めて成功させ、量子ドット集合体量 子インターフェースのデモンストレーションを行った。単一光子の重ね合わせ状態 (time-bin 量子ビット)を量子ドット集合体へ転写・保存した後、フォトンエコー信号として 任意の時間に再生可能であることを示した¹²⁰。図 3-55 に量子インターフェース実証実験に おける、入射散乱光及びフォトンエコー信号の時間波形を示す。

¹²⁰ Suzuki K., Akahane K., Yamamoto N., Ishi-Hayase J. "Transfer and Retrieval of Optical Coherence to Strain-compensated Quantum Dots using a Heterodyne Photon-echo Technique", AIP Conference Proceedings, 2013, 1566, 546-547.



図 3-55 time-bin 量子ビット(1 量子ビット当たり 0.5 光子)を入射した際の入射散乱光及び フォトンエコー信号の時間波形¹²¹

さらに、近年量子情報分野で注目されているダイヤモンド中の窒素-空孔中心を対象とし て、量子センシング技術の開発を行った。具体的には、窒素ドープ同位体制御化学気相成 長法を開発し、ダイヤモンド基板表面から 5nm 以内への窒素-空孔中心生成や、その生成位 置・密度・配向軸の同時制御を世界で初めて可能とした。生成した窒素-空孔中心の電子スピ ンを量子センサーとして用いることで、基板表面近くに配置された数千個程度のプロトン 集合体の誘起する微小磁場を検出することにも成功した^[1]。図 3-56 に配置された数千個の プロトン集合体の核磁気共鳴を検出したピークを示す。



図 3-56 窒素-空孔中心の電子スピンを量子センサーとして用い、数千個のプロトン集合体の 核磁気共鳴を計測した結果^[1]

 ¹²¹ 慶應義塾大学理工学部物理情報工学科ホームページ「早瀬准教授が NEXT グリーン・イノベーション・ポスター セッション金賞を受賞」2014年3月27日、https://www.appi.keio.ac.jp/?p=2766

2社会・経済への波及効果

量子センシングの研究においては国内研究者との共同研究を進めている。国立研究開発 法人産業技術総合研究所(産総研)電子光技術研究部門(渡邊幸志主任研究員らのグループ) が開発したマイクロ波プラズマ CVD 法ダイヤモンド合成技術¹²²により、ダイヤモンド薄膜中 に選択的に窒素-空孔ペアを生成し、その配向方向を制御する技術を開発し、磁場センシン グに適した窒素-空孔ペアを生成できることを示した^[2]。さらに、ダイヤモンドによる単一 原子核スピン磁気共鳴センシング技術を開発する慶應義塾大学の伊藤公平教授のグループ と、継続的に共同研究を進めている^[1,2,3]。これらのダイヤモンド量子センシング技術は、 小型・室温動作が可能で、感度・分解能の計測限界を打破する新技術として期待されている。 共同研究チームは、将来の可搬型 NMR 装置の実現を目指した要素技術の開発を進めている。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Ohashi K., Rosskopf T., Watanabe H., Loretz M., Tao Y., Hauert R., Tomizawa S., Ishikawa T., Ishi-Hayase J., Shikata S., Degen C.L., Itoh K.M. "Negatively charged nitrogen-vacancy centers in a 5 nm Thin 12C diamond film", Nano Letters, 2013, 13(10), 4733-4738.
- [2] Watanabe H., Umezawa H., Ishikawa T., Kaneko K., Shikata S., Ishi-Hayase J., Itoh K. M. "Formation of nitrogen-vacancy centers in homoepitaxial diamond thin films grown via microwave plasma-assisted chemical vapor deposition", IEEE Transactions on Nanotechnology, 2016, 15(4), 7466817, 614-618.
- [3] Sasaki K., Monnai Y., Saijo S., Fujita R., Watanabe H., Ishi-Hayase J., Itoh K.M., Abe E. "Broadband, large-area microwave antenna for optically detected magnetic resonance of nitrogen-vacancy centers in diamond", Review of Scientific Instruments, 2016, 87(5), 053904.

④その他

早瀬は、さきがけ領域採択時は独立行政法人情報通信研究機構第一研究部門 新世代ネットワーク研究センター専攻研究員であったが、現在は慶應義塾大学理工学部准教授である。 早瀬は、2014年3月1日に開催された FIRST シンポジウム「『科学技術が拓く 2030年』 へのシナリオ」内 NEXT グリーン・イノベーション・ポスターセッションにおいて、研究テ ーマ「単一光子-半導体量子ドット電子スピン集団励起間の革新的量子インターフェース の実現」に対して、金賞を受賞した¹²³。

¹²² 産総研より 2013 年に特許出願(早瀬は発明者の一人)している。特許 06037387「ダイヤモンド NV 光学中 心を有するダイヤモンド単結晶」。

 ¹²³ 慶應義塾大学理工学部物理情報工学科ホームページ「早瀬准教授が NEXT グリーン・イノベーション・ ポスター セッション金賞を受賞」2014年3月27日、https://www.appi.keio.ac.jp/?p=2766

3.3.5 デコヒーレンスフリーな非発散波束の生成と量子制御への応用(前田はるか)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

本質的に位相の擾乱に対して脆弱な波束を長時間にわたり保持し制御する決定的な方法 は確立されておらず、このような波束の生成機構の解明、並びにその制御の方法論の開拓 が新しい量子制御の展開をもたらす。そこで、前田らは、世界に先駆けて、生成・観測に 成功した発散しない波束(線形非発散波束)が、極端に長寿命であると同時に高度な制御も 可能である特異な波束であることを明らかにしている。

本研究では、この新奇な非発散波束及びそれが関わる物理現象を迅速かつ高い精度で検 出・観測するための装置を開発し、非発散波束を用いた"最も古典的"な原子状態の生成、 非発散波束の関わる多準位系の多光子吸収現象に関する実験を行うことを通じて、これま でにない量子制御や量子情報操作の開拓を行うことを目指した。

②期間中の研究成果

本研究では、位相の擾乱に対して脆弱な波束を長時間にわたり保持し、波束ダイナミク スを能動的に制御するという分野に先駆的に取り組んだ。その結果、非発散波束の研究の 礎となる以下のような成果を得た。

まず、"最も古典的"な原子状態、すなわちボーア原子のごとく振る舞う円形(Bohr 型) 非発散波束の励起と観測に世界で初めて成功した^[1]。

次に、非発散波束の運動が共鳴マイクロ波に位相同期されることを利用して、"原子の軸" の向きを自在に変化できることを明らかにし、非発散波束を用いた原子の配向制御に成功 した。

さらに、非発散波束を深く理解するための実験を行うには、リュードベリ原子¹²⁴を用いる ことが最も適切であるため、日本で初めて非発散波束の研究に特化した実験装置を開発し た。この装置は大別して、波長可変 kHz レーザーシステム^[2]、再生増幅フェムト秒レーザー システム、マイクロ波システム、及び真空装置から成っている。励起・イオン化のレーザ ーが全て 1kHz の高繰り返しで稼働し、データの取得が極めて短時間でできるという特長を 有している。

また、隣接する準位の間隔が少しずつ異なるような準位構造を持つ多準位系に共鳴電磁 波を照射することが、非発散波束を生成することにほかならないことを明らかにし、原子 の多光子イオン化が光電効果によるイオン化に移行する様子を初めて観測することにも成 功した^[3]。

¹²⁴ 電子が原子核から遠く離れたリュードベリ軌道と呼ばれる電子軌道上を運動している原子。原子核から リュードベリ軌道までの距離はナノメートルからマイクロメートルに達する。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Maeda H., Gurian J. H., Gallagher T. F. "Nondispersing bohr wave packets", Physical Review Letters, 2009, 102(10), 103001.
- [2] Gurian J.H., Maeda H., Gallagher T.F. "Kilohertz dye laser system for high resolution laser spectroscopy", Review of Scientific Instruments, 2010, 81(7), 073111.
- [3] Gurian J.H., Overstreet K.R., Maeda H., Gallagher T.F. "Connecting field ionization to photoionization via 17- and 36-GHz microwave fields", Physical Review A, 2010, 82(4), 043415.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、科研費基盤研究(C)「メゾスコピック極低温アルゴンガスの分子動力学的研 究」(2010 年度~2012 年度)、科研費挑戦的萌芽研究「極低温 Rydberg 原子を用いた低周 波帯単一光子源の開発」(2014 年度~2016 年度)という課題で研究を行った。

①科学技術の進歩への貢献

前田は、構造が単純で共鳴周波数がミリ波マイクロ波の領域にあるリュードベリ原子の 特徴を利用して、非発散波束の研究を引き続き行った。科研費「メゾスコピック極低温ア ルゴンガスの分子動力学的研究」では、磁気光学トラップに捕獲されたアルゴンガスを主 な対象としたが、Li 原子ビームを用いたリュードベリ状態の研究も行った。その結果、Li 原子に 18GHz のマイクロ波を照射して生成した非発散波束は、12.8GHz の微弱なマイクロ波 中でも存在可能であることが分かった¹²⁵。この結果は、Li 原子における 18GHz の非発散波 束と 12.8GHz の非発散波束の重ね合わせ状態生成の可能性を示しており、量子情報処理へ の応用に道を拓く成果である。

また、リュードベリ原子を用いた超放射¹²⁶の研究を行った。低温リュードベリガスにおい て、超放射とサンプルサイズ(原子集団の大きさ)及びモード整合との関係を精密に調べた 結果、多段階超放射(Super-radiance-cascade)及び、多モード超放射(Multimode Super-radiance)が生起するかどうかについては、自然放射のレートとエネルギー密度に依 存することを見いだした^[1]。図 3-57 にリュードベリガス(⁸⁵Rb)のエネルギー準位と得られ た超放射の周波数及び波長を示す。図中の(a)は4 準位系、(b)は多段階超放射のエネルギ ー準位、(c)は多モード発振のエネルギー準位を示す。

¹²⁵ 西口貴洋、東出純、水谷由宏、高峰愛子、前田はるか「発散しない原子波束の生成と観測」、分光研究、 2012、61 巻 3 号

¹²⁶ 超放射(Super-radiance):個々の原子又は分子を協力的に集団放射させると、それぞれ独立に自然放射させるより極めて強い放射光が得られる現象。互いに結合されることなく存在するN個の原子又は分子の放射強度がNに比例するのに対して、超放射ではN²に比例する。

(a) $ \begin{array}{c} 4 \\ 3 \\ 4 \\ 4 \\ 4 \\ 4 \\ 4 \\ 3 \\ 4 \\ 4 \\$	(b) 25s (23 (23) 24p (24s (24s) (22d)	333 GHz (C) 342 GHz 499 GHz	22d 527 GHz 20f 21d 1417 GHz 22p 19g 22s 20d 20d
Transitions	Frequencies (GHz)	Wavelengths (µm)	Radial matrix elements (ea _o)
25s → 24p _{3/2}	332.953 01	901.0	498
$25s \rightarrow 23p_{3/2}$	1058,947 34	283,3	66.1
$24p_{3/2} \rightarrow 24s$	342.159 42	876.8	489
$24p_{3/2} \rightarrow 22d_{5/2}$	499.120 65	601.1	336
$23d_{5/2} \rightarrow 21f_{7/2}$	455.958 21	658.0	372
$22d_{5/2} \rightarrow 21p_{3/2}$	2050.931 21	146.3	2.10
$22d_{5/2} \rightarrow 20f_{7/2}$	526.748 81	569.5	338
$22d_{5/2} \rightarrow 19f_{7/2}$	1417.489 11	211.6	67.8

図 3-57 リュードベリガス(⁸⁵Rb)のエネルギー準位と得られた超放射の周波数及び波長^[1]

続けて、高温分光セル中に閉じ込めた Rb ガスに 780nm の短パルスレーザーを照射するこ とで、超放射と4光波混合が同時に誘起される、いわゆるヨーク超放射現象の観測を試み、 これに成功するとともに、観測されたヨーク超放射の挙動を、原子のラビ振動に基づく新 しいモデルによって説明できることを提示した^[2]。今回観測されたヨーク超放射ビームの断 面は条件によってはリングシェイプを示し、新しいコヒーレント光源として利用の可能性 を示唆する結果を得られた。図 3-58 には Rb 原子のヨーク超放射に関与する準位図、及び 780nm レーザー光の照射強度を変えたとき((a) 21mW (b) 51 mW (c) 108 mW)に観測された リングシェイプ型ヨーク超放射ビームの一例を示す。なお、本ヨーク超放射は図中の青矢 印線に相当する 420nm 遷移についてである。



図 3-58 Rb のヨーク超放射準位図、及び、780nm レーザーの照射条件を変えたときに それぞれ観測された 420nm リングシェイプヨーク超放射^[2]

また、Mg のリュードベリ準位の分光測定を行った。YAG レーザーパルスを用いたレーザ ーアブレーションによって Mg の準安定準位を生成し、2 段階のレーザー共鳴励起を用いて その Mg をリュードベリ準位に励起する手法を用い、リュードベリ準位のエネルギー及び量 子欠損¹²⁷を測定により求めることができた^{[3],128}。図 3-59 に Mg のリュードベリ準位の分光 測定系を示す。



図 3-59 Mg のリュードベリ準位の測定系^[3]

このように前田は、非発散リュードベリ波束の物理的性質を深く理解するための原理的 な実験研究を継続しており、そのための実験系の構築においても成果を上げている。光学 遷移が禁止されている準安定状態に、レーザーアブレーションと放電励起法を同時に用い て原子を励起して、そこからレーザーを用いてリュードベリ状態に励起する方法の開発に より、新たな元素に対して分光データを取得したことはその好例であり、リュードベリ状 態の研究進展に大きく寄与する成果である。

②社会・経済への波及効果

量子波束のダイナミクスを能動的に制御する試みは、量子制御の中心的技術であるが、 位相の擾乱に対して脆弱な波束を、長時間にわたって保持し制御する決定的な方法は、ま だ確立されていない。発散しないリュードベリ波束が極めて長い寿命を持ち、また外場を 用いて制御することが可能である点に着目した前田の研究は、リュードベリ原子という特 異な巨大原子を利用した次世代量子デバイスの実現可能性を示唆するものと期待される。 また、リュードベリ準位を用いた超放射の研究は、産業的応用が進展しつつあるテラヘル

¹²⁷ 量子欠損(Quantum Defect):リュードベリ原子のエネルギー固有値を、水素のエネルギー固有値と同様の 形式で表現するために導入された補正値(次式のδ₁)。E_n=1/{2μ(n-δ₁)2}(n:主量子数、μ=1-1/m_p、m_p: 陽子の質量)。

¹²⁸ 上智大学理工学部(水谷由宏講師のグループ)との共同研究。

ツの新しいソースの開発につながる可能性を持っている。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Han J., Maeda H. "Super-radiance-cascades and multimode super-radiance oscillations in a cold ⁸⁵Rb Rydberg gas", Canadian Journal of Physics, 2014, 92(10), 1130-1134.
- [2] Kitano K., Maeda H. "Rabi oscillation in the spatial profiles of superfluorescenct pulses from rubidium vapor", Optics Express, 2017, 25(20), 23826-23832.
- [3] Amemiya T., Kobune Y., Ito H., Kato S., Kitano K., Mizugai Y., Maeda H. "Observation of the Mg 3snp and 3snf triplet Rydberg states by two-step laser excitation from the 3s3p³P^o_{0,1,2} metastable states", Spectrochimica Acta PartB, 2017, 136, 45-50.

④その他

前田は、さきがけ採択時はバージニア大学(米国)物理学科研究員であったが、2008 年度 に青山学院大学理工学部物理・数理学科准教授に就任し、2014 年度には同大教授に就任し現 在に至っている。

3.3.6 フラクタル構造による光制御可能性の探索と光機能素子の創製(宮丸文章)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

本研究では、人工的に作製した金属微細構造によって、これまでにない新たな光学特性 を持つ物質を創製し、その新たな特性を用いた光機能素子への応用を目指した。まず、プ ラズモニック結晶¹²⁹では、ある周波数に特異的な透過ピークが現れる異常透過現象のメカニ ズムを解明し、異常透過現象の応用展開を目指した。次に、メタマテリアル(微細構造がサ ブ波長サイズ)では、波長よりも十分に小さなサブ波長構造によって、有効誘電率と有効透 磁率を自在に制御し、自然界には存在しない光学特性を持つ物質を作製することを目指し た。また、フラクタル¹³⁰メタマテリアルでは、フラクタルをメタマテリアルのユニットセル とすることでフラクタル特有の光学特性を調べ、その光学特性を光伝導アンテナに応用し て新規のテラヘルツ波放射素子を開発することを目指した。

②期間中の研究成果

本研究では、金属の微細構造として、プラズモニック結晶、メタマテリアル(微細構造の サイズがサブ波長サイズ)、フラクタルメタマテリアルを対象とした。

プラズモニック結晶では、金属開口アレイにおいて観測される異常透過現象は、表面波 励起メカニズムと局所共鳴メカニズムによるもので、開口サイズによってそのメカニズム が移り変わることを詳細に調べたり^[1]、完全導体の開口アレイにおける表面波励起メカニズ ムの解明を行った。また、この異常透過現象を利用して微量物質を高感度でセンシングす ることを提案し、異常透過現象の応用展開を目指した。

メタマテリアルでは、微細構造がサブ波長サイズの二次元メタマテリアルシートを作製 し、それらを積層して三次元のスプリットリング共振器(SRR¹³¹)メタマテリアルを作製する ことによって、テラヘルツ領域では、これまで観測することができなかった入射磁場によ る純粋な磁気共鳴を観測した^[2]。

フラクタルメタマテリアルでは、フラクタルをメタマテリアルのユニットセルとするこ とで、マルチ周波数で共鳴特性が観測されることを確認した。また、このような自己相似 形によりマルチ周波数で共鳴が生じるというフラクタルの特性を利用して、テラヘルツ波 放射用の光伝導アンテナを作製した^[3]。

¹²⁹ プラズモニック結晶:金属表面上に微細な波長サイズの周期的な凹凸構造を設けたもので、表面プラズ モンの閉じ込めや、伝搬光との結合を設計できる構成物。

¹³⁰ フラクタル:自己相似形の微細構造であり、目的とする波長よりも小さなサイズから、波長よりも大き なサイズまでを全て含んだ構造。

¹³¹ スプリットリング共振器(Split-ring resonators: SRR):リング状の金属環の一部にギャップが入った 構造で、メタマテリアルを構成する基本構造としてしばしば用いられる。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Miyamaru F., Takeda M. W. "Coupling between localized resonance and excitation of surface waves in metal hole arrays", Physical Review B, 2009, 79, 153405.
- [2] Miyamaru F., Kubota S., Taima K., Takano K., Hangyo M., Takeda M. W. "Three-dimensional bulk metamaterials operating in the terahertz range", Applied Physics Letters, 2010, 96, 081105.
- [3] Miyamaru F., Saito Y., Takeda M. W., Liu L., Hou B., Wen W., Sheng P. "Emission of terahertz radiations from fractal antennas", Applied Physics Letters, 2009, 95, 221111.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、科研費若手研究(A)「テラヘルツ波による超解像リアルタイムイメージング システムの開発」(2013年度~2015年度)において、テラヘルツ領域における光の波長以下 の空間分解能を実現する光学素子の開発を行った。また、科研費基盤研究(C)「結合共振器 系を用いたマルチ共鳴メタマテリアルの作製とテラヘルツ波吸収体への応用」(2016年度~ 2018年度)において、マルチ周波数共鳴が生じるメタマテリアルの電磁応答特性を調査する とともに、作製したメタマテリアル構造をテラヘルツ領域の吸収体へ応用することを目指 した研究を行っている。

①科学技術の進歩への貢献

宮丸は、金属開口アレイの共鳴周波数が、更に細かく金属に開けた穴のサイズで任意に 制御できることを、実験とシミュレーションにより確認した。具体的には、目的の共鳴周 波数が現れる金属開口アレイがベースとしてあり、そのベース開口アレイの穴を更に周期 的な小穴(一辺が 100μm)で囲んだものを作製した。その試料の透過スペクトルを測定した 結果、小穴がない状態から、小穴を設け、さらにその小穴の大きさを拡大することで、透 過強度がピークとなる周波数を変化できることが分かった^[1]。またこの結果は、シミュレー ションとも程良く一致した。

また、テラヘルツ領域における二つのギャップを持つ SRR のギャップ位置による周波数 特性を理論的及び実験的に調べた。その結果、第二のギャップ位置を第一のギャップ位置 に対して変化させることで、比較的広範囲にわたって共振周波数を制御できることを見い だした。また、このような共振特性は、シミュレーション結果などから複数のキャパシタ ンスの合成キャパシタンスに起因すると考えられる^[2]。

さらに、結合共振器メタマテリアルを用いて、テラヘルツ波の群速度のスイッチングを 行った。結合共振器メタマテリアルとは、メタマテリアルのユニットセル内に二つ以上の 共振器(メタアトム)を配置した構造をしており、メタアトム間の相互作用によって、単体 のときとは異なる電磁波応答を示す。宮丸は、この結合共振器メタマテリアルにおいて, 電磁誘起透明化の古典アナロジーとなる電磁波応答を実験的に調べ、ある狭い周波数領域 の群遅延時間が1 ピコ秒程度になることを確認した。さらに結合共振器メタマテリアルの 基板をレーザーで励起することにより、この群遅延時間のスイッチングを実験的に行った^[3]。

②社会・経済への波及効果

宮丸は、近接場像を波長以下の解像度でリアルタイムにイメージングすることが可能と なるハイパーレンズを用いたイメージングシステムの構築を進めている。作製したハイパ ーレンズは光利用効率が余り大きくないため、幾つかの高強度のテラヘルツ光源を使用し てイメージングシステムの開発を進めている。このイメージングシステムは、化学物質や 動きのある物質などの観測への応用を目指している¹³²。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Miyamaru F., Kamijyo M., Hanaoka N., Takeda M. W. "Controlling extraordinary transmission characteristics of metal hole arrays with spoof surface plasmons", Applied Physics Letters, 2012, 100(8), 081112.
- Miyamaru F., Kubota S., Nakanishi T., Kawashima S., Sato N., Kitano M., Takeda M.W. "Transmission properties of double-gap asymmetric split ring resonators in terahertz region", Applied Physics Letters, 2012, 101(5), 051112.
- [3] Miyamaru F., Morita H., Nishiyama Y., Nishida T., Nakanishi T., Kitano M., Takeda M. W. "Ultrafast optical control of group delay of narrow-band terahertz waves", Scientific Reports, 2014, 4, 4346.

④その他

宮丸は、民間からの研究資金も受託している。2011年に住友財団から「近接場リアルタ イムイメージングを目指したテラヘルツハイパーレンズの開発」で基礎科学研究助成とし て150万円を獲得した。また、2013年度に、稲盛財団から「屈折率の時間界面生成による テラヘルツ波の周波数変調素子の開発」で研究助成対象者(助成金100万円)に選定された。

宮丸は、終了時には信州大学理学部物理科学科助教であったが、その後、同大学学術研 究院物理系准教授に就任し現在に至っている。

 ¹³² 科研費若手研究(A)「テラヘルツ波による超解像リアルタイムイメージングシステムの開発」(2013 年度 ~2015 年度) 研究成果報告書

https://kaken.nii.ac.jp/ja/file/KAKENHI-PR0JECT-25706026/25706026seika.pdf
3.3.7 重力波検出技術が拓く超巨視的量子性の物理(三代木伸二)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

原子のサイズの世界と、日常我々がよく接するばくだいな数の原子の集合として形成さ れている物体(超巨視的物体)では、運動の見え方が大きく異なっている。その運動は、原 子の世界では「量子力学」、日常生活では「ニュートン力学」で表現できる(ただし、極低 温状態では、大きいスケールでも、量子渦など量子力学的世界が観測された例は幾つかあ る)。

本研究では、超巨視的物体が「量子力学的振る舞い」をするのかどうか検証することを 究極の目標とした。そのため、レーザー干渉計における鏡と振り子の熱雑音を直接計測し、 揺動散逸理論からの予測を検証することを目指した。

②期間中の研究成果

本研究では、原子や分子を対象とするのではなく、長さの超精密計測用のレーザー干渉 計で使用される、超巨視的な(グラム〜キログラムスケール)「鏡」を観測対象にしている。 そのために、周波数 100Hz 付近において、10⁻¹⁸~10⁻¹⁹ (m/rHz) という極限的に小さな鏡の変 位を検出しなければならない。そこで、様々な雑音源を除去し、光の量子性に起因する原 理的な雑音である光のショット雑音と輻射圧雑音のみで決定される極限感度、つまり標準 量子限界感度を追求した。ただ、このような雑音の中でも、標準量子極限感度達成の最後 の壁となるのが「熱雑音」である。

そこで、低温レーザー干渉計 CLIO¹³³ (マイケルソン腕部分に Fabry Perot (FP) 共振器を内 包するレーザー干渉計スタイルを採用)を利用し、常温における鏡と、それを懸架する振り 子の熱雑音を直接検出することにした。その結果、世界で初めて、レーザー干渉計におい て、機械的なロスの少ない系での鏡と振り子の熱雑音を直接観測することに成功した^[1]。

この振り子の Structure Damping による熱雑音とともに、Viscous Damping による振り子の熱雑音を直接計測することができた。これは、揺動散逸理論から予測される機械系調和振動子の共振周波数より高い幅広い周波数領域における Viscous Damping による熱雑音の振る舞いを実験的に検証し、その特性が理論と一致することを世界で初めて確認した^[2]。

次に、レーザー干渉計における鏡と振り子を冷却する方法で熱雑音を低減させることを 試みた。その結果、振り子の温度が低下することによって振り子の熱雑音が低減すること を世界で初めて示し、鏡や振り子を低温にすることによって、熱雑音の問題を克服できる 可能性があることを実証した。

¹³³ CLIO(Cryogenic Laser Interferometer Observatory): 神岡鉱山地下に設置された基線長 100 メートルの低温重力波レーザー干渉計。大型低温重力波望遠鏡のプロトタイプとして建設された。

また、光の滞在時間が長い FP 共振器の共振制御の問題について、全く新規なアイディア を考案し、従来利用されていた Pound-Drever-Hall 法に比べ、線形領域を約 10 倍に、理論 的には変調周波数幅を超えて拡大できるとともに、ドップラーシフトによる線形性の乱れ もより小さくし、かつ、オフセットが起こりにくい制御信号を取得できることを示した^[3]。 これによって、一定の初期速度を持つ鏡で構成される FP 共振器の共振制御ができる可能性 を広げることができる。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- Agatsuma K., Uchiyama T., Yamamoto K., Ohashi M., Kawamura S., Miyoki S., Miyakawa O., Telada S., Kuroda K. "Direct measurement of thermal fluctuation of high-Q pendulum", Physical Review Letters, 2010, 104(4), 040602.
- [2] Agatsuma K., Arai K., Fujimoto M.-K., Kawamura S., Kuroda K., Miyakawa O., Miyoki S., Ohashi M., Suzuki T., Takahashi R., Tatsumi D., Telada S., Uchiyama T., Yamamoto K. "Thermal-noise-limited underground interferometer CLIO", Classical and Quantum Gravity, 2010, 27(8), 084022.
- [3] Miyoki S., Telada S., Uchiyama T. "Expansion of linear range of Pound-Drever-Hall signal", Applied Optics, 2010, 49(28), 5217-5225.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

三代木は、科研費基盤研究(B)「第三世代重力波望遠鏡における超長光滞在時間を持つ FP 共振器共振導入制御」(2013 年度~2016 年度)において、重力波検出を目的としたレーザー 干渉計に用いる FP 共振器に関する研究を行った。

現在、科研費挑戦的研究(開拓)「第三世代重力波望遠鏡用の新素材鏡開発」(2017 年度~ 2020 年度)に取り組んでいる。

①科学技術の進歩への貢献

三代木は研究期間中、鏡や振り子を低温にすることによって、レーザー干渉計における 熱雑音の問題を克服できる可能性があることを実証したが、サファイア・ミラーを用いた 低温重力波レーザー干渉計による研究成果を 2012 年に発表した^{134,[1]}。図 3-60 に低温 (Cryogenic:17-18K)と室温(Room-Temperature:299K)におけるレーザー干渉計の変位感度 (実験値及び理論値)の比較を示す。

その後、更なる鏡の冷却によるレーザー干渉計の感度向上に向けて、鏡を覆うシールド に開けられた孔(レーザービームを通過させるために必要)の影響を検討した。その結果、 中央に開口部を有する複数のバッフル(隔壁)を内部に設けたダクトシールドが、孔からの

¹³⁴ CLIO をベースとした、東京大学宇宙線研究所メンバー、国立開発研究法人産業技術総合研究所長さ標準研究グループ(寺田聡一主任研究員)、マックス・プランク重力物理学研究所(山元一広、現在は富山大学准教授)、国立天文台メンバーらとの共同研究。

熱の流入低減に効果があることを理論と実験で示し、その手法は KAGRA¹³⁵に採用されること になった^[2]。



図 3-60 低温と室温におけるレーザー干渉計の変位感度の比較[1]

超巨視的物体の量子的振る舞いを調べるために、鏡や振り子を対象としてその熱雑音の 低減を目指した研究は、その後も重力波検出用のレーザー干渉計の開発と運用に発展して いる。その中心となるのは、KAGRA の施設構築と運用への参画であった。2012 年に始まっ た KAGRA トンネルの掘削は2014年の3月に完了し、その時点での状況が報告されている^[3]。 さらに、KAGRA トンネル内に1500m のレーザー歪み計を設置し、その運用を開始するととも に歪み計の基本的な特性を評価した^[4]。図 3-61 に Kamioka 1500m 歪み計のバックグラウン ド歪みスペクトルを示す。Baksan、Gran Sasso などの既存の歪み計と比較して、Kamioka 1500m 歪み計は 1mHz-10mHz のレンジにおいて 10⁻¹¹以下という低い数値となっている。



図 3-61 神岡 1500m 歪み計のバックグラウンド歪みスペクトル^[4]

¹³⁵ KAGRA: 神岡鉱山に設置された基線長 3km の大型低温重力波望遠鏡(Large-scale Cryogenic Gravitational wave Telescope: LCGT)の愛称。設置場所である神岡鉱山のKAと重力波(Gravitational Wave)のGRA、「神楽」などをイメージして命名された。

②社会・経済への波及効果

三代木らは、20K以下に冷却したサファイア・ミラーを重力波検出に用いることを提案し、 それを CLI0 として実現した。CLI0 の技術は KAGRA に受け継がれ、2 台の aLIGO¹³⁶と1 台の aVIRGO¹³⁷とともに、発生位置の方向までを含めた重力波の検出を目指している。従来宇宙観 察には光を含む様々な電磁波と素粒子が用いられてきたが、2015 年¹³⁸に宇宙を観測する新 しい窓として重力波が加わった。例えば電波望遠鏡に用いられたローノイズアンプの技術 が、衛星通信や衛星放送技術の進展を促したように、宇宙観測の新しい窓に関わる様々な 技術が、将来社会・経済に還元される可能性がある。また、学術分野とはいえ、重力波検 出の施設は規模が大きく、その効率的な管理・運用は社会的に重要な意味を持ち、三代木 らの研究の今後の進展が期待される。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- [1] Uchiyama T., Miyoki S., Telada S., Yamamoto K., Ohashi M., Agatsuma K., Arai K., Fujimoto M.-K., Haruyama T., Kawamura S., Miyakawa O., Ohishi N., Saito T., Shintomi T., Suzuki T., Takahashi R., Tatsumi D. "Reduction of thermal fluctuations in a cryogenic laser interferometric gravitational wave detector", Physical Review Letters, 2012, 108(14), 141101.
- [2] Sakakibara Y., Kimura N., Yamamoto K., Suzuki T., Tomaru T., Miyoki S., Uchiyama T., Kuroda K. "Calculation of thermal radiation input via funneling through a duct shield with baffles for KAGRA", Classical and Quantum Gravity, 2012, 29(20), 205019.
- [3] Uchiyama T., Furuta K., Ohashi M., Miyoki S., Miyakawa O., Saito Y. "Excavation of an underground site for a km-scale laser interferometric gravitational-wave detector", Classical and Quantum Gravity, 2014, 31(22), 224005.
- [4] Araya A., Takamori A., Morii W., Miyo K., Ohashi M., Hayama K., Uchiyama T., Miyoki S., Saito Y. "Design and operation of a 1500-m laser strainmeter installed at an underground site in Kamioka, Japan 6. Geodesy", Earth, Planets and Space, 2017, 69(1), 69.

④その他

三代木は、さきがけ採択時東京大学宇宙線研究所助教であり、その後 2012 年度に東京大 学宇宙線研究所准教授に就任し現在に至っている。

¹³⁶ LIGO (Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory):米国の重力波観測施設。aLIGO は、 Advanced LIGO の略。

¹³⁷ VIRG0:イタリアに設置された欧州重力波観測所の重力波観測施設。aVIRG0の意味は aLIG0 と同様。

¹³⁸ 2015 年 9 月 14 日、米国の研究グループが、連星ブラックホールの合体から発生した重力波の直接検出 に成功した(LIG0 による)。

3.3.8 強高度レーザーによる超高分解能4次元時空イメージング(森下亨)

(1)研究のねらいと研究期間中の達成状況

①研究のねらい

高強度近赤外レーザーパルス光を用いた、原子・分子の新しい超高分解能実時間イメー ジングのための理論及び計算手法の開発を目的としている。レーザーにより誘起されるイ オン化電子の再衝突過程を利用して、空間的には原子サイズ(オングストローム)、時間的 には分子内電子の軌道周期(アト秒)程度の、超高分解能を与えるイメージング法の開発を 目標とした。

②期間中の研究成果

本研究では、高強度レーザーによって誘起される再衝突電子を利用した原子・分子のイ メージング法の骨格を完成させた。主たる成果は次の4点である。(1)厳密計算に基づく時 間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接解によって、イメージングの基本原理とな る再衝突過程における「分離公式」¹³⁹を見いだし、カンザス州立大学の実験研究者と協力し て実験的に検証してその妥当性を示した^[11]。(2)原子の電荷の空間分布を複数のパラメータ を使って表し、実験結果を最もよく再現する電荷分布パラメータをフィッティングによっ て求める物質構造の再構築アルゴリズムを開発した¹⁴⁰。(3)本研究の「分離公式」がシュレ ーディンガー方程式から自然な形で得られることを数学的に証明することに成功した^[2]。 (4)高強度紫外線アト秒超短パルスの多光子吸収による2電子イオン化の研究において、後 からイオン化した電子が先に電子化した電子に追い付いて衝突するという、新現象を見い だした^[3]。

本研究は実験研究に即した理論研究であり、研究推進のためには最先端の実験研究者と の議論が必要不可欠である。森下は、このような自身の立場を的確に把握し、さきがけ研 究期間中に科研費二国間交流事業「アト秒パルスの生成と原子分子ダイナミクスの実時間 分析への応用」(2007 年度~2008 年度)の研究代表者として、日米の三つの実験グループ、 日米の二つの理論グループとの共同研究を実施している¹⁴¹。さらに、森下は、高強度レーザ ー科学の実験及び理論的研究で世界的水準のカンザス州立大学に滞在し、さきがけ研究の まとめを行うとともに、長期的な視点に基づく研究協力を実施するなど、国内外の研究者

¹³⁹「分離公式」:気相原子の高エネルギー再散乱電子スペクトルが、電子・イオン微分弾性散乱断面積と再 衝突電子の運動量分布の積の形に近似的に分解できること。

¹⁴⁰ Morishita T., Umegaki T., Watanabe S., Lin C. D. "High-resolution spatial and temporal microscopy with intense-laser-induced rescattering electrons", Journal of Physics: Conference Series, 2009, 194, 12011.

¹⁴¹ 実験グループはカンザス州立大学(米国)(Chengjin Chen)、電気通信大学(桂川眞幸)、理化学研究所(緑 川克己)、理論グループはカンザス州立大学(Chii-Dong Lin)と電気通信大学(渡辺信一、森下亨)である。

交流のネットワークをいかした研究の発展を目指した。

③研究成果に関連した主な成果論文リスト3報以内

- [1] Morishita T., Le A.-T., Chen Z., Lin C. D. "Accurate retrieval of structural information from laser-induced photoelectron and high-order harmonic spectra by few-cycle laser pulses", Physical Review Letters, 2008, 100(1), 013903.
- [2] Tolstikhin O.I., Morishita T., Watanabe S. "Adiabatic theory of ionization of atoms by intense laser pulses: One-dimensional zero-range-potential model", Physical Review A, 2010, 81(3), 033415.
- [3] Zhang Z., Peng L.-Y., Gong Q., Morishita T. "Momentum space analysis of multiphoton double ionization of helium by intense attosecond xuv pulses", Optics Express, 2010, 18(9), 8976-8989.

(2)研究領域終了後の継続と発展状況

研究終了後、森下は継続的に科研費基盤研究(C)¹⁴²を得て、高強度レーザーを使用した超 高速実時間イメージング法の研究を発展させている。また、日本学術振興会二国間交流事 業「高強度レーザー場中の超高速原子・分子の多電子ダイナミズム」(2014 年度~2015 年 度)の研究代表者として、日本の二つの実験グループ(理化学研究所と名古屋大学¹⁴³)、日露 の二つの理論グループ(電気通信大学とモスクワ物理工科大学)が連携する研究を推進した。 その後、森下の所属する電気通信大学はモスクワ物理工科大学と研究及び教育の国際交流 協定を結び、森下は 0. I. Tolstikhin らとの共同研究を発展させている。

①科学技術の進歩への貢献

研究終了後の具体的な成果の例を、主要な論文の内容を基に以下に示す。

森下は科研費基盤研究(C)の「高強度レーザーによる超高速実時間イメージング法」(2011 年度~2013年度)で、分子内電子運動の時間スケールとレーザー電場の変化の時間変化を断 熱パラメータとした漸近展開によってシュレーディンガー方程式の解を構築する「断熱理 論」という新しい理論体系を構築した^[11]。図 3-62 に光電子運動量分布(PEMD:Photoelectron Momentum Distribution)の TDSE による数値計算結果(exact)と断熱理論による近似(AA: Adiabatic Approximation)の比較を示す。パルス長(T)が大きくなるほどよく一致している。

 ¹⁴²「高強度レーザーによる超高速実時間イメージング法」(2011 年度~2013 年度)、「高強度レーザーによる多電子系超高速実時間イメージング法」(2014 年度~2016 年度)、及び「高強度楕円偏光レーザーパルスを用いた原子・分子の超高速イメージング法」で、いずれも 500 万円以下の基盤研究(C)である。
¹⁴³名古屋大学からは、さきがけメンバーの菱川明栄らが参加した。



図 3-62 光電子運動量分布の TDSE 数値計算結果(exact)と断熱理論による近似(AA)の比較^[1]

さらに、強静電場中の分子のトンネルイオン化について弱電場漸近理論(Weak Field Asymptotic Theory (WFAT))を開発した^[2]。また、トンネルイオン化レートに対する核の運動量の影響、H₂及び D₂分子の同位体効果を調べ^[3]、原子・分子の多電子ダイナミクスについての研究を展開している^[4]。

近年は、モスクワ物理工科大学との共同研究を進展させ、静電場中の水素分子イオンについて、電場強度 F での WFAT の主要項 WFAT(0)、第1次補正項 WFAT(1)に対する解析的表現を導出し、2原子分子について適用した。そこで、水素分子イオンについて WFAT の結果をシュレーディンガー方程式の直接数値解と比較し、超障壁イオン化領域近くの強電場領域においても精度良くイオン化レートを記述できることを確かめた。図 3-63 に、水素分子イオンの電荷密度分布、弱電場及び強電場の場合の WFAT によるイオン化レートを示す¹⁴⁴。

¹⁴⁴ Trinh V. H., Pham V. N. T., Tolstikhin O. I., Morishita T. "Weak-field asymptotic theory of tunneling ionization including the first-order correction terms: Application to molecules", Physical Review A, 2015, 91(6), 063410.



図 3-63 水素分子イオンの電荷密度分布(上)、イオン化レート弱電場(中)、強電場(下)¹⁴⁴

2社会・経済への波及効果

森下は、名古屋大学、富山大学、理化学研究所、高輝度光科学研究センター、Fu-Jen Catholic 大学(台湾)との共同研究において、ヘリウム原子を対象とした光電子スペクトル 観測結果を理論計算で再現する研究を行い、強レーザーパルスを用いた数十フェムト秒内 に量子状態を繰り返し変化させるラビ振動を2光子過程で起こすことに成功した¹⁴⁵。この共 同研究の成果は、今後、化学反応制御や室温における量子コンピュータの量子状態操作の 基盤技術として役立つことが期待されている。

③上記、継続と発展状況を示す研究成果に関連した主な成果論文リスト4報以内

- Tolstikhin O. I., Morishita T. "Adiabatic theory of ionization by intense laser pulses: Finite-range potentials", Physical Review A, 2012, 86(4), 043417.
- [2] Madsen L.B., Tolstikhin O.I., Morishita T. "Application of the weak-field asymptotic theory to the analysis of tunneling ionization of linear molecules", Physical Review A, 2012, 85(5), 053404.
- [3] Madsen L.B., Jensen F., Tolstikhin O.I., Morishita T. "Structure factors for tunneling ionization rates of molecules", Physical Review A, 2013, 87(1), 013406.
- [4] Tolstikhin O.I., Madsen L.B., Morishita T. "Weak-field asymptotic theory of

¹⁴⁵ Fushitani M., Liu C.-N., Matsuda A., Endo T., Toida Y., Nagasono M., Togashi T., Yabashi M., Ishikawa T., Hikosaka Y., Morishita T., Hishikawa A. "Femtosecond two-photon Rabi oscillations in excited He driven by ultrashort intense laser fields", Nature Photonics, 2016, 10(2), 102-105.

tunneling ionization in many-electron atomic and molecular systems", Physical Review A, 2014, 89(1), 013421.

④その他

森下は、原子・分子・光科学の問題に対して理論的研究を継続的に行っており、さきが けメンバーを始めとした実験系研究者との共同研究^{146,147}や、海外大学研究者¹⁴⁸との共著論 文も多い。

2013年には、「高強度レーザー場中での原子・分子の超高速ダイナミクスに関する理論的 研究」により、第17回松尾財団宅間宏記念学術賞を受賞した。研究終了時には電気通信大 学助教であったが、2013年度に准教授、2017年度には教授(電気通信大学量子科学研究セ ンター)に昇格した。

¹⁴⁶ 基礎研究(B)「分子トンネルイオン化の量子制御を利用したレーザー場フーリエ合成」(2012 年度~2014 年度)、「サブ 10 フェムト秒位相制御による非熱的原子レベルレーザーカーヴィング技術の開発」(2016 年度~2018 年度)、いずれも研究代表者は大村英樹(国立研究開発法人産業技術研究所主任研究員)。

¹⁴⁷ 基礎研究(B)「レーザートンネルイオン化の理解に立脚した電子ダイナミクス可視化法の開拓」(2016 年 度~2018 年度)研究代表者は菱川明栄(名古屋大学教授)。

¹⁴⁸ L. B. Madsen(オーフス大学(デンマーク)教授)、0.I. Tolskihin(モスクワ物理工科大学(ロシア)教授)。

第4章 科学技術イノベーションの創出に資する研究成果

4.1 トポロジカル光波シンセシス(尾松孝茂)

4.1.1 研究の概要

(1)研究テーマの状況(国内)

尾松は、さきがけ研究において、高出力高強度のトポロジカル・ファイバーレーザーの 関発に成功し、さらに、トポロジカル光波を用いて金属の針状構造体を形成するレーザー アブレーション加工を実験的に実証した。

研究終了後も、JST 戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域「先端光源を駆使した光科学・ 光技術の融合展開」(伊藤正研究総括、大阪大学名誉教授)の研究課題「トポロジカル光波 の全角運動量による新規ナノ構造・物性の創出」(2010 年度~2014 年度)の研究代表者とし て、光波の全角運動量が様々な物質に及ぼすコヒーレント相互作用について、継続して研 究を発展させた。また、科研費基盤研究(B)「光渦励起パラメトリックレーザーに立脚する トポロジカル非線形光学」(2015 年度~2017 年度)における研究代表者として、光渦パラメ トリックレーザーにおいてトポロジカルチャージ分配則で決まる光の軌道角運動量の本質 を解明する研究を進めている。また 2016 年度からは、科研費新学術領域研究(研究領域提 案型)「光圧によるナノ物質操作と秩序の創生」(2016 年度~2020 年度、石原一領域代表者、 大阪大学教授)の研究領域において、研究課題「光圧で拓く:多粒子相互作用の選択的制御 による構造と現象の創造」の研究代表者として、主に高濃度系における微粒子の相互作用 を選択的に制御し、結晶化や化学反応などを物理的に制御する研究を継続・発展させてい る。以下に研究終了後の主な研究成果を示す。

①全角運動量が制御されたトポロジカル光源の開発

尾松は、高出力なトポロジカル光源の開発を行った。ファイバー内で光渦を発生させる と同時にレーザー増幅によって結合損失を上回る光増幅が可能な Yb 添加ラージモードエリ アファイバー増幅器(ファアイバー増幅器)を用いる方法を考案し、マスターレーザーに Nd:YV04 レーザーを使用した構成でピークパワー34.2kW、光-光変換効率 47.9%の光源を開 発した^[1]。

また、全角運動量が制御されたトポロジカル光源の開発を行った。励起光に 1 µmトポロ ジカル光波を用いた光パラメトリック発振器から 2µm帯トポロジカル光波を発生(光渦モー ドのシグナル光とガウスモードのアイドラー光の 2 波長)させ、差周波光発生を行うことに より 6~12 µmの中赤外波長領域でトポロジカル光波を発生(12 µm帯での発生は世界初)させ た^[2]。非線形光学結晶には KTiOPO4(KTP)結晶を用い、差周波数発生には ZnGeP₂(ZGP)結晶を 使用した。図 4-1 に中赤外波長可変トポロジカル光波の実験配置図を示す。



図 4-1 中赤外波長可変トポロジカル光波の実験配置図^[2]

図 4-2 に実験結果を示す。(a)、(b)はシグナル光の強度分布と破面、(c)、(d)はアイド ラー光の強度分布と波面を示している。



図 4-2 (a)、(b)シグナル光の強度分布と波面、(c)、(d)アイドラー光の強度分布と波面^[2]

なお、非線形結晶に AgGaSe₂を用いることで、18 µm (17THz)帯トポロジカル光波の発生に も成功した。

②トポロジカル光波による物質のキラル構造制御

尾松は、北海道大学(森田隆二教授のグループ)と共同研究を重ね、光渦パルスレーザー を金属に照射すると、光のナノ空間における金属の構造を螺旋状に変形できることを発見 し^[3]、光の角運動量が金属を螺旋の針(キラル金属ニードル)に変形すること、スピン角運動 量(円偏光)だけでは螺旋構造体はできないこと、螺旋の巻き数は全角運動量で決まること などを明らかにした^[4]。これらの研究で、トポロジカル光波の波面構造が初めて物質に転写 されることが示された。

図 4-3 にトポロジカル光波による金属ターゲット加工痕の SEM 画像を示す。(a)は円偏光 (J=+1(L=0, S=+1))のガウスビームによる加工痕で、構造体は何も形成されない。(b)は直 線偏光のラゲージ・ガウスビーム(J=±1(M=±1, S=0))による加工痕で、中央部には小さな 針状構造体(キラル金属ニードル)が見える。(c)はニードルの拡大画像である。



図 4-3 トポロジカル光波による金属ターゲット加工痕の SEM 画像^[4]

また、図 4-4 に金属ナノニードルの螺旋構造体の巻き数(螺旋周波数)と軌道角運動量 L 及び全角運動量 J との関係を示す。図 4-4(b)より螺旋周波数は軌道角運動量 L の大きさによらず全角運動量 J で決まることが分かる。図 4-4(a)は、軌道角運動量 L が同じ場合にはスピン角運動量 S の増加に伴い螺旋周波数も増加することを示している。



図 4-4 金属ナノニードルの螺旋周波数と軌道角運動量 L 及び全角運動量 J との関係^[4]

トポロジカル光波を照射した金属がキラルナノ構造体へと変形する現象は、溶融した金属とトポロジカル光波との電磁気学的相互作用によって、溶融した金属に全角運動量が力 学的に作用することで起こる。したがって、この現象は本質的に材料を問わない。尾松は、 シリコンや銅においてもキラル構造体が形成できることを実証した。

③トポロジカル光波による単結晶シリコンニードルの創製

尾松は、螺旋波面とドーナツ型の強度分布を持つレーザー光(光渦)をシリコン単結晶に 照射すると単結晶性のシリコンニードルができるという新奇物理現象を世界で初めて発見 し、その形成過程を超高速度カメラ撮影により可視化することに成功した^[5]。図 4-5 にピコ 秒パルス・トポロジカル光波(波長 1064nm、パルス幅 20ps、エネルギー0.6mJ)の照射によ り作製された単結晶シリコンニードル(高さ 14 µm、厚さ 2.9 µm)の電子顕微鏡写真を示す。



図 4-5 ピコ秒パルス・トポロジカル光波の照射によりできた単結晶シリコンニードル[5]

また、図 4-6 にニードルができるまでのプロセスを超高速度カメラで可視化した画像と プロセスの説明図を示す。光渦照射後、融解したシリコンが光渦の輻射力¹⁴⁹によって空孔に 集められてシリコン基板に堆積することでニードルが出来上がる。余剰となったシリコン は光渦の輻射力の効果と表面張力波の効果によって粒径 1~2 µmの液滴として飛翔している。



図 4-6 ニードルができるプロセスの超高速度カメラ画像と説明図^[5]

この技術は、光の輻射力を用いた新しい表面加工技術であり、将来的にはシリコンフォ トニクスなどへの応用や、微細な液滴を任意の場所に三次元的に飛翔させて構造体を創る プリンタブルエレクトロニクスへの応用の可能性を示した¹⁵⁰。

¹⁴⁹ 輻射力:光のエネルギーの流れに沿って物質に働く力を輻射力という。螺旋波面を持つ光渦の輻射力は、 進行方向に沿った前方向の輻射力のほかにドーナツ型強度分布に沿った周回方向の輻射力を持つ。周回 方向の輻射力は、光渦の螺旋の巻き数を表す 0 によって制御できる。

¹⁵⁰千葉大学ニュースリリース「世界初、光渦の輻射力が創るシリコンニードルとその形成過程の可視化に 成功」2016年2月25日、https://www.hokudai.ac.jp/news/20160225_eng_pr.pdf

(2) 海外での共同研究の状況

尾松は、国際共同研究を多数進めている。マッコリー大学(オーストラリア)のH.M. Pask 教授、A.J. Lee 教授とは、高効率のトポロジカル光波を2波長発する小型固体レーザー(基 本は1.06 μm、ストークスは1.18 μm、CW 出力 400mW)の開発や可視域で多波長発信するトポ ロジカル光源を実現した¹⁵¹。また、ニューヨーク州立大学バッファロー校(米国)の N.M. Litchintser 教授、KAIST(Korea Advanced Institute of Science and Technology、韓国)¹⁵² のF. Rotermund 教授、セントアンドリューズ大学(英国)とも共同研究を行っている。

4.1.2 研究成果の波及と展望

(1)科学技術への波及と展望

尾松は、「トポロジカル光波を物質に照射すると、物質が溶融すると同時にトポロジカル 光波の全角運動量を受け取り、物質が公転運動しながら螺旋状のナノ構造体(キラルナノ構 造体)へ変形する」という新奇な現象を発見し、発表論文^[3,4]は注目を集めた。これらは、 さきがけ研究領域から JST 戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域にかけて実施した共同 研究の成果である。すなわち、尾松ら千葉大学グループの高出力レーザー技術と北海道大 学(森田隆二教授)グループのレーザー計測・制御技術を融合させることで実現できた。尾 松は、2016 年度からは科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「光圧によるナノ物質操作 と秩序の創生」(2016 年度~2020 年度、石原一領域代表者、大阪大学教授)の研究領域にお いて、研究課題「光圧で拓く:多粒子相互作用の選択的制御による構造と現象の創造」の研 究代表者として、主に高濃度系における微粒子の相互作用を選択的に制御し、結晶化や化 学反応などを物理的に制御する研究を継続・発展させている。

(2) 社会・経済への波及と展望

さきがけ研究以降の期間において研究成果を積極的に特許出願し、11 件を登録させている(本追跡調査時点において)。その内容は、高強度パルスレーザー生成、光渦レーザー発振装置、光増幅システムやレーザー加工装置などに関するものである。2014 年設立のベン チャー企業のシンクランド株式会社¹⁵³では、尾松らが開発した光渦レーザーという新しいレ ーザー加工技術を活用した中空マイクロニードルを用いて、インスリン注入用無痛注射針 の実用化に向けた開発が進められている。

¹⁵¹ Lee A. J., Omatsu T., Pask H. M. "Direct generation of a first-Stokes vortex laser beam from a self-Raman laser", Optics Express, 2013, 21(10), 12401-12408.

¹⁵² Miyamoto K., Kang B. J., Kim W. T., Sasaki Y., Niinomi H., Suizu K., Rotermund F., Omatsu T. "Highly intense monocycle terahertz vortex generation by utilizing a Tsurupica spiral phase plate", Scientific Reports, 2016, 6, 38880.

¹⁵³ シンクランド株式会社、https://think-lands.co.jp/

(3) その他特筆すべき事項

尾松は、「キラルな光渦によるナノ物質の構造と物性制御に関する研究」により、2016年 度科学技術分野の文部科学大臣賞を受賞した。

引用文献

- [1] Koyama M., Hirose T., Okida M., Miyamoto K., Omatsu T. "Power scaling of a picosecond vortex laser based on a stressed Yb-doped fiber amplifier", Optics Express, 2011, 19(2), 994-999.
- [2] Furuki K., Horikawa M.-T., Ogawa A., Miyamoto K., Omatsu T. "Tunable mid-infrared (6.3-12 μm)optical vortex pulse generation", Optics Express, 2014, 22(21), 26351-26357.
- [3] Toyoda K., Miyamoto K., Aoki N., Morita R., Omatsu T. "Using optical vortex to control the chirality of twisted metal nanostructures", Nano Letters, 2012, 12(7), 3645-3649.
- [4] Toyoda K., Takahashi F., Takizawa S., Tokizane Y., Miyamoto K., Morita R., Omatsu T. "Transfer of light helicity to nanostructures", Physical Review Letters, 2013, 110(14), 143603.
- [5] Takahashi F., Miyamoto K., Hidai H., Yamane K., Morita R., Omatsu T. "Picosecond optical vortex pulse illumination forms a monocrystalline silicon needle", Scientific Reports, 2016, 6, 21738.

4.2 キャビティ QED による原子と光子の量子操作(青木隆朗)

4.2.1 研究の概要

(1)研究テーマの状況(国内)

青木は、さきがけ研究に先立ち、2005年4月からキャビティQEDの世界的権威であった カリフォルニア工科大学(California Institute of Technology: Caltech)のJeff Kimble 教授の研究室に留学した。当時CaltechのKerry Vahala 教授がトロイド型微小共振器を開 発¹⁵⁴したばかりであり、トロイド型微小共振器を使ってより精度の高いキャビティQEDを作 る着想を得た。青木は、このアイディアを基にさきがけ研究課題を提案して採択され、2008 年11月までCaltechに滞在して、さきがけ研究を実施した。Caltechでは、Vahala 教授か ら提供されたトロイド共振器を使用し、トロイド微小共振器とテーパーファイバー (Tapered optical fiber:TOF)を真空チャンバー内に配置し、自由落下する冷却した原子が トロイド共振器のモード内を通過する間に原子と共振器が結合することを確認した¹⁵⁵。また、 過結合条件下でのキャビティQEDを、世界で初めて実現した^[1]。図4-7にトロイド共振器と 真空中の単一原子との結合実験の概要を示す。



図 4-7 (a) トロイド共振器と TOF の構成、(b) 単一原子との結合実験の構成^[1]

図 4-7 (a)の Kex は共振器とファイバー間の外部結合レート、h は内部散乱、Ki は内部損 失レートを示している。ここで、K_{ex}=K_iの場合を臨界結合といい、この場合には共振器の共 鳴周波数でファイバーからの出力光強度がゼロになり、入力した光エネルギーは全て共振 器内で失われる。K_{ex}>>K_i の場合を過結合条件といい、外部結合における損失を低損失にす ることができる。図 4-7 (b) は単一原子との結合実験の構成を示している。セシウム原子は 磁気光学トラップ(MOT) により冷却・捕獲され、TOF に結合されたトロイド共振器上に落と

¹⁵⁴ Armani D.K., Kippenberg T.J., Spillane S.M., Vahala K.J. "Ultra-high-Q toroid microcavity on a chip", Nature, 2003, 421, 925-928.

¹⁵⁵ Aoki T., Dayan B., Wilcut E., Bowen W. P., Parkins A. S., Kippenberg T. J., Vahala K. J., Kimble H. J. "Observation of strong coupling between one atom and a monolithic microresonator", Nature, 2006, 443 (7112), 671-674.

される。図 4-8 に過結合条件下において測定した透過光及び反射光の強度相関係数(g⁽²⁾_T及 び g⁽²⁾_R)を示す。これにより、入力光のうちの単一光子は反射され、二つ目以降の残りの光 子は透過させたことを確認した。キャビティ QED 系を量子情報処理などに展開していくに は、共振器モード内にトラップされた単一原子に対して強結合条件でキャビティ QED を実 現する必要がある。



図 4-8 透過光及び反射光の強度相関係数 (g⁽²⁾ _T 及び g⁽²⁾ _R)^[1]

青木は、2008 年 12 月以降は京都大学において研究環境を立ち上げ、共振器等の fabrication 技術を高めてデバイス開発に本腰を入れた。そして、透過率が99%を超える超 低損失な TOF の作製に成功し、トロイド共振器の作製にも自ら取り組み、約3x10⁸という高 いQ値を実現する成果を上げた¹⁵⁶。

研究終了後、2011 年度に早稲田大学に着任し、ナノフォトニクス・デバイスを用いた量 子光学の研究開発を発展的に進めた。その後の研究を方向付けたのは、TOF と共振器との間 の光の出し入れの研究である。

青木は、総務省戦略的情報通信研究開発推進事業(SCOPE) ICT イノベーション創出型研究 開発新世代ネットワーク技術「単一モード共鳴光散乱過程による高純度単一光子源の研究 開発」(2011 年度~2013 年度)において、超低損失 TOF を用いて単一光子パルスを生成する 研究を行った。科研費若手研究(A)「ナノ光ファイバー端を用いた導波路量子電気力学の研 究」(2014 年度~2016 年度)においては、断熱条件¹⁵⁷に対して最適化された形状の TOF と量 子ドットを結合する研究を行った。

現在、科研費新学術領域研究(研究領域提案型)「共振器量子電気力学系の非局所コヒー

¹⁵⁶ Aoki T. "Fabrication of ultralow-loss tapered optical fibers and microtoroidal resonators", Japanese Journal of Applied Physics, 2010, 49(11), 118001.

¹⁵⁷ 断熱条件:TOF の光の透過率を低下させる要因の一つとして、テーパー部の形状に依存した基本モード と高次モードの結合による損失がある。この損失は、テーパー角をファイバー半径に応じて調整すると 低減することができ、損失が十分小さいとみなせる条件を断熱条件という。

レント結合の研究」(2016 年度~2017 年度)に取り組んでいる。さらに、2017 年 10 月に JST 戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域「量子状態の高度な制御に基づく革新的量子技術 基盤の創出」(荒川泰彦研究総括、東京大学生産技術研究所教授)において、「スケーラブル な光学的量子計算に向けた超低損失ナノファイバー共振器 QED 系の開発」(2017 年度~2022 年度)研究代表者として採択され、研究を継続・発展させている。以下に研究終了後の主な 研究成果を示す。

①断熱条件を満たす TOF の形状最適化とその製造方法¹⁵⁸

TOF は、一般的には微弱な光を扱うため高い透過率が要望される。また、微小共振器に結 合する場合には、全長が短いことも重要となる。青木は、断熱条件を満たす TOF の最適形 状を求め、その製造方法を開発した。これにより、従来のテーパー角 2mrad のもの(透過率 99.6%、全長 63mm)と比べて、同程度の透過率を維持しつつ全長を約 1/3 に短縮する(透過率 99.7%、全長 23mm)ことに成功した^[2]。開発した製造方法は特許出願¹⁵⁹された。図 4-9(a)に TOF の形状の例を示す。11 はテーパーウエスト部、12 はテーパー遷移部、14 は光ファイバ ーである。図 4-9(b)に TOF の形状最適化のための計算モデルを示す。



図 4-9 (a) TOF 外形¹⁵⁷、(b) TOF の形状最適化の計算モデル^[2]

計算モデルにより求めた光ファイバー半径とテーパー遷移部の断熱条件基準角との関係 を図 4-10 に示す。



図 4-10 光ファイバー半径とテーパー遷移部の断熱条件基準角との関係^[2]

¹⁵⁸ 科研費若手研究(A)「ナノ光ファイバー端を用いた導波路量子電気力学の研究」2014 年度実績報告書 https://kaken.nii.ac.jp/ja/report/KAKENHI-PR0JECT-26707022/267070222014jisseki/

¹⁵⁹ 特願 2015-032026「テーパー光ファイバの製造方法」

また、オークランド大学(ニュージーランド)の A. S. Parkins 准教授との共同研究により、 TOF と結合した微小光共振器を用いたキャビティ QED に関する新たな理論を確立した^[3]。

②全ファイバーのキャビティ QED 共振器の実現¹⁶⁰

断熱条件に対して最適化した形状の TOF を用いて、そのウエスト部を滑らかな平面で切 断し、この平面端ナノ光ファイバーの端面に単一の半導体量子ドットを配置する技術を開 発した(第3章で説明したディップコート法)。また、半導体量子ドットと相補的な特徴を 持つ単一量子発光体としてレーザー冷却単一原子に着目し、ナノ光ファイバーとレーザー 冷却単一原子の相互作用を探求した。図4-11にナノファイバー共振器によるキャビティ QED の概念図を示す(第3章でも示した)。



図 4-11 ナノファイバー共振器によるキャビティ QED の概念図 SEM 写真¹⁶¹

開発したナノ光ファイバーとファイバーブラッグ格子 (FBG) を具体的に組み合わせた新 奇なナノ光ファイバー共振器を図 4-12 に示す。図 4-12(a)にナノファイバー共振器キャビ ティ QED 系の構成を示す。二つのトラップビーム(λ_{blue}とλ_{red})で原子のトラップを作り、 周波数ω_pのプローブパルスにより単一原子の透過スペクトルを測定する。図 4-12(b)及び (c)は FBG1 及び FBG2 の透過スペクトルで、赤い線は共鳴周波数を示している。図 4-12(d) はナノファイバー表面のトラップポテンシャルである。原子と共振器の結合が強いほど、 プローブパルスの透過スペクトルが減衰する。

¹⁶⁰ 科研費若手研究(A)「ナノ光ファイバー端を用いた導波路量子電気力学の研究」2015 年度実績報告書 https://kaken.nii.ac.jp/ja/report/KAKENHI-PR0JECT-26707022/267070222015jisseki/

¹⁶¹ 早稲田大学 先進理工学部 応用物理学科 青木隆朗研究室ホームページ: http://www.qo.phys.waseda.ac.jp/



図 4-12 (a) ナノファイバー共振器キャビティ QED 系の構成、(b) 及び(c) FBG1 及び FBG2 の 透過スペクトル、(d) ナノファイバー表面のトラップポテンシャル^[4]

青木は、このナノファイバーの側面近傍に単一原子をレーザー冷却・トラップし、ナノファイバー共振器と単一原子の結合系のスペクトルを測定した結果、真空ラビ分裂を観測し、強結合条件が満たされていることを確認した。光ファイバーと直接結合した全ファイバー共振器とトラップされた単一原子との強結合共振器 QED を世界で初めて実現するという成果を上げた^[4]。

③ナノワイヤ状ダイヤモンドの窒素-空孔(NV)中心に関する研究¹⁶²

ナノファイバーと結合させる単一量子発光体として、単一原子・単一量子ドットに加え てダイヤモンド結晶中の NV 中心に関する研究を行っている。ナノワイヤ状のダイヤモンド をプラズマ反応性エッチングで作製し^[5]、ナノワイヤ状ダイヤモンド中の NV 中心とナノフ ァイバーを用いることで、75%という高い結合効率が達成できることをシミュレーションで 示した^[6]。図 4-13 に NV 中心を利用した円柱型のナノワイヤ状ダイヤモンドとナノファイバ ーとの結合システムの構造を示す。

¹⁶² 科研費若手研究(A)「ナノ光ファイバー端を用いた導波路量子電気力学の研究」2016 年度実績報告書 https://kaken.nii.ac.jp/ja/report/KAKENHI-PROJECT-26707022/267070222016jisseki/



図 4-13 円柱型ナノワイヤ状ダイヤモンドとナノファイバーとの結合システム^[6]

(2) 海外での共同研究の状況

青木は、さきがけ研究を QED の世界的権威であった Jeff Kimble 教授、及び Kerry Vahala 教授(トロイド型微小共振器の開発者)の協力を得て進めた。研究期間中の成果論文の多く は、Caltech メンバーとの共著となっている。また、オークランド大学の A. S. Parkins 准教 授との継続的な共同研究があり、Caltech 時代から現在まで量子論で密接に連携している。

4.2.2 研究成果の波及と展望

(1)科学技術への波及と展望

光子を量子ビットとして用いる光学的量子計算は、量子計算機の有力な候補の一つと考 えられている。光学的量子計算機の実現に必要となる要素技術(単一光子源、量子ビットゲ ート、クラスター状態源など)は、共振器 QED 系によって実現が可能であり、幾つかの原理 実証実験が報告されている。しかし、従来の共振器 QED は自由空間ファブリーペロー共振 器を用いたものであり、ファイバーとの整合性が悪く、複雑な調整・制御が必要なため、 低損失で多数の共振器 QED を連結し、それらを同時に使用することが困難という課題があ る。

青木は、TOFの光透過率の改善を行い、その後このTOFを利用してナノファイバー共振器の開発を進め、全ファイバーでキャビティQEDを世界で初めて開発した。

このナノファイバー共振器は、光ファイバーそのものに作り込まれた全ファイバー共振 器である。このため、光ファイバーを用いて複数の共振器を低損失に接続でき、多数のキ ャビティ QED をネットワーク化することが実現できると期待されている。

(2) 社会・経済への波及と展望

青木は、JST 戦略的創造研究推進事業 CREST 研究領域「量子状態の高度な制御に基づく革 新的量子技術基盤の創出」の「スケーラブルな光学的量子計算に向けた超低損失ナノファ イバー共振器 QED 系の開発」(2017 年度~2022 年度)において、超低損失ナノファーバー共 振器を開発し、光学的量子計算の要素技術をナノファイバー共振器 QED 系で実現すること を目指している。また、各要素技術を組み合わせて構築される誤り耐性量子計算のアーキ テクチャーの最適化に関する理論的研究を計画している。

本提案のアプローチは、室温動作が可能で、ファイバーネットワーク化による拡張性が 高い点などの特徴を有しており、光学的量子計算の実装へ向けた道を拓くことを狙いとし ている。

(3) その他特筆すべき事項

青木は、国内の共同研究として、国立研究開発法人情報通信研究機構(NICT)量子 ICT 先 端開発センターの佐々木雅英主管研究員のグループと量子エンタグルメント発生に関する 共同研究を継続的に行っている^[5,6]。日本電信電話(NTT)グループとも、量子情報処理の理 論研究者と継続的に共同研究を行っている。さきがけ領域のメンバーとの共同研究として は、東京医科歯科大学の越野和樹准教授と共同研究を行った。

引用文献

- [1] Aoki T., Parkins A.S., Alton D.J., Regal C.A., Dayan B., Ostby E., Vahala K.J., Kimble H.J. "Efficient routing of single photons by one atom and a microtoroidal cavity", Physical Review Letters, 2009, 102(8), 083601.
- [2] Nagai R., Aoki T. "Ultra-low-loss tapered optical fibers with minimal lengths", Optics Express, 2014, 22(23), 28427-28436.
- [3] Parkins A.S., Aoki T. "Microtoroidal cavity QED with fiber overcoupling and strong atom-field coupling: A single-atom quantum switch for coherent light fields", Physical Review A, 2014, 90(5), 053822.
- [4] Kato S., Aoki T. "Strong Coupling between a Trapped Single Atom and an All-Fiber Cavity", Physical Review Letters, 2015, 115(9), 093603.
- [5] Wakui K., Yonezu Y., Aoki T., Takeoka M., Semba K. "Simple method for fabrication of diamond nanowires by inductively coupled plasma reactive ion etching", Japanese Journal of Applied Physics, 2017, 56(5), 058005.
- [6] Yonezu Y., Wakui K., Furusawa K., Takeoka M., Semba K., Aoki T. "Efficient Single-Photon Coupling from a Nitrogen-Vacancy Center Embedded in a Diamond Nanowire Utilizing an Optical Nanofiber", Scientific Reports, 2017, 7(1), 12985.

4.3 高次高調波のコヒーレンスを利用した分子動画観測(板谷治郎)

4.3.1 研究の概要

(1)研究テーマの状況(国内)

板谷はさきがけ研究において、赤外領域における高強度極短パルスレーザー光源の開発 と、高次高調波¹⁶³発生シミュレーション手法の確立に成功した。また、高次高調波を発生さ せて、そのスペクトル強度を測定する極端紫外ビームラインの開発に成功した。

研究終了後も、科研費基盤研究(S)「1keV 領域での高次高調波発生とアト秒軟 X 線分光への展開」(2011 年度~2015 年度)において、光パラメトリックチャープパルス増幅(Optical Parametric Chirped Pulse Amplification:OPCPA)法に基づく高強度極短パルス赤外光源を開発した。本光源を用いた高次高調波発生の実験では、孤立アト秒パルスが発生していることを示した。また、高強度中赤外パルス(~40THz)の発生にも成功した。板谷は、高強度レーザー光源技術を開発し、アト秒からフェムト秒領域での超高速現象に関する実験的研究を継続して行っている。また、光電子分光研究者と極端紫外領域のフェムト秒パルスを用いた超高速時間分解光電子分光の共同研究に取り組んでいる。以下に研究終了後の主な研究成果を示す。

①高強度赤外パルス光源の開発と高次高調波発生技術の開発

板谷は、BIBO結晶を用いた OPCPA 方式に基づく高強度赤外パルス光源の開発に成功した。 波長 1.6μm、パルスエネルギー0.5mJ、パルス幅 9.0fs、繰り返し周波数 1kHz で、キャリ アエンベロープ位相¹⁶⁴ (Carrier Envelope Phase:CEP)安定なパルスが得られた^[1]。この光源 を用いて高次高調波の発生に取り組み、世界で初めて、炭素の K 吸収端(284eV)を超える軟 X 線領域(最大光子エネルギー325eV)で、CEP に依存するスペクトル構造を持つコヒーレン ト軟 X 線発生を観測した^[2]。これは、軟 X 線領域での孤立単一アト秒パルス発生を間接的に 示す大きな成果である¹⁶⁵。図 4-14 に開発した高強度赤外パルス光源の a:構成図、b:力電場 波形、c:次高調波発生実験のセットアップ、d:得られた軟 X 線スペクトルを示す。

¹⁶³ 高次高調波:高強度パルスレーザーを原子や分子に10¹⁴W/cm²以上の強度で集光することで得られる広帯 域短波長光で、アト秒領域の極短パルス発生法として利用できる。

¹⁶⁴ 光パルスは、振動する光電場(搬送波)とその包絡線から構成されており、包絡線と内部の電場振動との 時間的ずれを、キャリアエンベロープ位相という。

¹⁶⁵東京大学プレスリリース「次世代高強度赤外レーザーによる「水の窓」領域のコヒーレント軟X線パルス発生に成功 ー軟X線領域でのアト秒分光へー」2014年2月21日

http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/issp_wms/DATA/OPTION/release20140221.pdf



図 4-14 高強度赤外パルス光源の a:構成図、b:出力電場波形、c:実験のセットアップ、 d:軟 X 線スペクトル^[2]

さらに板谷は、高強度赤外光源の高出力化を進め、炭素の K 吸収端付近の軟 X 線領域で のフォトンフラックスの約 35 倍の増大を実現し、データ取得時間 100 秒程度で吸収端近傍 X 線吸収微細構造の測定が可能であることを示した^[3]。また、気相原子のトンネルイオン化 に伴う光電子スペクトルの CEP 依存性の測定を行い、運動エネルギーが 1keV を超える高エ ネルギー光電子の発生を確認した。この手法を用いて長時間の位相安定性を評価したとこ ろ、45 時間にわたり位相揺らぎ 250mrad 以下と、受動的な位相安定化機構が長時間、精度 良く機能していることを確認した^[4]。

②2 波長光パラメトリック増幅(OPA)方式による高強度中赤外パルス光源の開発

板谷は、強光子場科学やアト秒科学の探索に使用する目的で、高強度長波長光(中赤外~ テラヘルツ)の光源に関する研究を行った。中赤外では、可視域の数サイクルの極短パルス をサブサイクルのプローブ、あるいはポンプとして使うことが可能であり、固体の極端な 非線形光学応答を実時間観測し、制御することが期待されている。板谷は、赤外域の 2 波 長を同軸上で光パラメトリック増幅する手法を提案し、その差周波数発生(Differential Frequency Generation:DFG)により波長 5~11 µm をカバーする高強度中赤外光の発生に成 功した^[5]。この光源により、固体に 50MV/cm を超える光電場を印加できるようになった。図 4-15 に本手法の概念図を示す。分散媒質を通過した赤外白色光のチャープは、図 4-15 の中 央に示されたように 2 次曲線的になる。このパルスをシードパルスとして、短波長のポン プ光を使用した光パラメトリック増幅によって、2 波長の相対遅延の制御、波長間隔の調整 を行った。その後に、差周波数発生を行い、CEP 安定な中赤外光を得た。



図 4-15 2 波長光パラメトリック増幅法と差周波数発生の概念図^[5]

具体的なシステム構成図を図 4-16 に示す。高強度チタンサファイアレーザーの出力パル スを、YAG 結晶に集光して赤外白色光を発生させ、150mm 厚の石英ブロックで3次のチャー プを受けたシードパルスを発生させる。これを BIBO 結晶の OPA で2段増幅し、偏光と遅延 を調整し、1mm 厚の LiGaS2 結晶へ集光して差周波数を発生させる。



図 4-16 2 波長光パラメトリック増幅法による中赤外光源のシステム構成図^[5]

図 4-17 にチタンサファイアレーザーの出力より得られた 6.5fs の可視パルスによる電気 光学サンプリング(EOS)により測定された(a)中赤外光の電場波形、(b)電場波形のフーリエ 変換による中赤外パルスのスペクトル(赤色)と分光器で直接測定されたスペクトル(黒色) を示す。



図 4-17 (a) 中赤外パルスの電場波形、(b) スペクトル(赤色:フーリエ変換、黒色:分光測定)^[5]

③CEP マッピング手法の開発

板谷は、赤外域で CEP 制御された高強度極短パルス光源を開発し、アト秒軟 X 線パルス 光源を開発した。その一方で、高強度赤外電場中におけるキセノン(Xe)原子のレーザー誘 起電子散乱に関する研究を行い、CEP と散乱時の入射エネルギーを対応させる「キャリアエ ンベローブ位相マッピング」手法を提唱し、CEP 依存した光電子スペクトルから希ガス原子 の微分散乱断面積を再構築する手法を開発した。キセノン(Xe)原子のレーザー誘起電子散 乱における微分散乱断面積の研究では、国内外の理論研究者との共同研究により計算値が よい一致を見ており、原子・分子のイオン化理論と実験の比較手法を示した^[6]。

④極端紫外フェムト秒パルスを用いた超高速軟X線分光技術の開発

近年、レーザーを使って得られる高強度短波長光の波長が、極端紫外から軟 X 線領域に 達している。板谷は光電子分光研究者らとの共同研究を進めている。鉄系超伝導体の母物 質である BaFe₂As₂ において、高強度フェムト秒レーザーを希ガスに集光することで得られ る高次高調波を用いることで、ホール面に加えて、従来は難しかった電子面の光電子分光 測定を可能にした^[7]。それぞれ 1.5eV のポンプ光で励起されたホール面と電子面を、27.9eV のプローブ光で測定した結果、光電子強度の時間依存性において明確な振動を観測した。 光電子強度の振動数は 5.5THz であり、A₁g フォノンに対応することが分かった。

(2) 海外での共同研究の状況

板谷は、国際共同研究としては、ルードヴィヒ・マクシミリアン大学ミュンヘン(ドイツ) と光電子の運動量イメージング装置の研究開発を進めている。また、Xe 原子のレーザー誘 起電子散乱における微分散乱断面積の研究では、国内外の理論グループ(モスクワ物理工科 大学(ロシア)の0. I. Tolstikhin 教授、電気通信大学の森下亨教授)と共同研究を行った。

4.3.2 研究成果の波及と展望

(1)科学技術への波及と展望

板谷は、BIBO 結晶を用いた光パラメトリックチャープパルス増幅法に基づく高強度極短 パルス赤外光源を開発した。この光源を用いた高次高調波発生の実験で観測された軟 X 線 スペクトルの振る舞いから、孤立アト秒パルスが発生していることを世界で初めて示した。 また、高強度レーザーの波長領域を赤外~テラヘルツ領域へと拡大する研究を行い、高安 定でアト秒分光と整合性の高い中赤外パルス(~40THz)を得ることに成功した。板谷は、継 続して高強度パルスレーザー光源技術を開発し、アト秒からフェムト秒領域での超高速現 象に関する実験的研究を行っている。このような研究の先には、真空紫外・極短紫外・軟 X 線にわたる広い波長範囲におけるアト秒パルス発生とそのフォトンフラックスの向上によ り、触媒、光化学反応や光電場で駆動された物質の PHz 領域の超高速応答などに関する研 究が進展し、様々な超高速現象の電子論的理解の深化につながるものと期待されている。

(2) 社会・経済への波及と展望

板谷は、アト秒からフェムト秒領域の極端紫外光・軟 X 線の物性応用を目標として、元 素選択性の高い超高速軟 X 線分光の開発、及び、光電子分光研究者らと極端紫外領域のフ ェムト秒パルスを用いた超高速角度分解光電子分光の共同研究に取り組んでいる。軟 X 線 は物質との相互作用が強いため、元素吸収端を利用することで特定の元素の電子状態を直 接観測するのに好適である。さらに、アト秒からフェムト秒精度の時間分解技術を導入す ることで、光化学反応や高強度電場下での物質の超高速応答を電子状態の実時間変化とし て観測することが可能になると期待されている。特に、近年の Yb レーザーに基づく高出力 レーザー技術の進展によって、これまでチタンサファイアレーザーによって制限されてい たアト秒パルスの更なる高平均出力化が可能になると見込まれている。これにより、これ までは測定手法の原理実証にとどまっていたアト秒科学は、より広範な物質機能の理解と 探索へ進むであろう。その先には、光化学反応の素過程の理解による光エネルギー変換技 術の進歩や、現在のエレクトロニクスの限界を超えたペタへルツ領域での光演算素子等へ の展開が期待されている。

(3) その他特筆すべき事項

板谷はさきがけ研究領域に先立ち、2000 年~2004 年カナダの国立研究機関 National Research Council(NRC)及びオタワ大学に留学し、P.B. Corkum¹⁶⁶研究室でチタンサファイアレーザーの開発と高次高調波によるアト秒計測の研究を行った。その後、ERATO「腰原非平衡ダイナミクスプロジェクト」(2003 年度~2008 年度、腰原伸也研究総括、東京工業大学

¹⁶⁶ オタワ大学(カナダ)の P.B.Corcum 教授はアト秒科学の権威で、現在は NRC の Joint Laboratory Attosecond Science の責任者を兼任している。

フロンティア研究センター教授)に「分子動画技術開発グループ」のグループリーダーとし て参画し、2005 年より米国ローレンス・バークレイ国立研究所(LBNL)に訪問研究員として 常駐して、フェムト秒レーザーを使った物性研究に取り組んだ。2007 年度には、さきがけ 採択と同時期に、東京大学において高強度レーザーの研究室を立ち上げた。それ以降は、 将来へ向けた技術蓄積を考えて、光パラメトリック増幅光源や極端紫外線と軟 X 線の発生 と応用のための備品/機器/システム等を全て自作し、アト秒からフェムト秒領域の超高速 現象に関する研究を継続的に進めている。また、物性研究者や光電子分光研究者との共同 研究も積極的に進めている。

引用文献

- [1] Ishii N., Kaneshima K., Kitano K., Kanai T., Watanabe S., Itatani J. "Sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable, intense optical pulses at 1.6 μ m from a BiB₃O₆ optical parametric chirped-pulse amplifier", Optics Letters, 2012, 37(20), 4182-4184.
- [2] Ishii N., Kaneshima K., Kitano K., Kanai T., Watanabe S., Itatani J. "Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses", Nature Communications, 2014, 5, 3331.
- [3] Geiseler H., Ishii N., Kaneshima K., Kitano K., Kanai T., Itatani J. "High-energy half-cycle cutoffs in high harmonic and rescattered electron spectra using waveform-controlled few-cycle infrared pulses", Journal of Physics B, 2014, 47(20), 204011.
- [4] Geiseler H., Ishii N., Kaneshima K., Kanai T., Itatani J. "Long-term passive stabilization of the carrier-envelope phase of an intense infrared few-cycle pulse source", Applied Physics B, 2014, 117(3), 941-946.
- [5] Kaneshima K., Ishii N., Takeuchi K., Itatani J. "Generation of carrier-envelope phase-stable mid-infrared pulses via dual-wavelength optical parametric amplification", Optics Express, 2016, 24(8), 8660-8665.
- [6] Geiseler H., Ishii N., Kaneshima K., Geier F., Kanai T., Tolstikhin O.I., Morishita T., Itatani J. "Carrier-envelope phase mapping in laser-induced electron diffraction", Physical Review A, 2016, 94(3), 033417.
- [7] Suzuki H., Okazaki K., Yamamoto T., Someya T., Okada M., Koshiishi K., Fujisawa M., Kanai T., Ishii N., Nakajima M., Eisaki H., Ono K., Kumigashira H., Itatani J., Fujimori A., Shin S. "Ultrafast melting of spin density wave order in BaFe₂As₂ observed by time- and angle-resolved photoemission spectroscopy with extreme-ultraviolet higher harmonic generation", Physical Review B, 2017, 95(16), 165112.