

「光の極限制御・積極利用と新分野開拓」研究領域 領域活動・評価報告書

－2019 年度終了研究課題－

研究総括 植田 憲一

1. 研究領域の概要

本研究領域では、本質的な限界を持たないといわれる光を使って限界に挑戦し、それを越えようとする研究を推進します。具体的には、①環境・エネルギー・ものづくり・情報通信・医療等において将来の様々な社会的要請に応える新たな光利用を創成しようとする研究、②光の存在・介在によって出現する現象を利用して、従来の物理学・化学・生物学・工学等の分野に大きな革新をもたらす、これらの壁を打破しようとする研究、③高エネルギー密度科学や高強度光物理、極限物性研究などを通じて、より普遍的な原理及び現象を光科学技術の視点から確立しようとする研究、④上記の①～③を実現するための光源、受光、計測、イメージング機能を極限まで追究し、新しい応用に提供する研究等を対象とします。

本研究領域の推進にあたっては、横断的な光科学技術の軸を通して異分野との交流を積極的に行い、多様で複雑な対象を扱う分野の先端研究において、新たな視点や発想を生み出すことを目指します。

本研究領域は、文部科学省の選定した戦略目標「新たな光機能や光物性の発現・利活用による次世代フォトニクスの開拓」のもとに、平成 27 年度に発足しました。

2. 事後評価対象の研究課題・研究者名

件数：10 件

※研究課題名、研究者名は別紙一覧表参照

3. 事前評価の選考方針

選考の基本的な考えは下記の通り。

1) 選考は、「光の極限制御・積極利用と新分野開拓」領域に設けた選考委員 10 名の協力を得て、研究総括が行う。

2) 選考方法は、書類選考、面接選考及び総合選考とする。

3) 選考に当たっては、さきがけ共通の選考基準

(URL: <https://www.jst.go.jp/pr/info/info1211/besshi1.html>) の他、以下の点を重視した。

・光科学が関与する重要なメカニズムが顕在化する条件を集中的に研究し、それによって得られた新しい知識を一般化、普遍化することで、より広い分野に革新をもたらすことを期待。

・研究計画が自分自身の言葉で表現され、課題が明確に意識されていることを重要な評価基準として選考。

4. 事前評価の選考の経緯

一応募課題につき領域アドバイザー・外部評価者の内 13 名が書類審査し、書類選考会議において面接選考の対象者を選考した。続いて、面接選考および総合選考により、採用候補課題を選定した。

選 考	書類選考	面接選考	採択数
対象数	161 件	30 件	11 件

備考：

1) 2016 年度採択課題のうち、以下は今年度事後評価対象としない。

・上村研究者

研究を中止したため。

5. 研究実施期間

2016 年 10 月～2020 年 3 月

2016 年 12 月～2020 年 3 月(貴田研究者)

6. 領域の活動状況

領域会議:7 回

研究総括の研究実施場所訪問:研究開始後の 10 月～12 月にかけて全サイト 11 カ所を訪問。期間中異動者については、異動後に再訪問(3 カ所)。

7. 事後評価の手続き

研究者の研究報告書を基に、評価会(研究報告会、領域会議等)での発表・質疑応答、領域アドバイザーの意見などを参考に、下記の流れで研究総括が評価を行った。

(事後評価の流れ)

2019 年 11 月	評価会開催
2019 年 12 月	研究総括による事後評価
2019 年 12 月	被評価者への結果通知

8. 事後評価項目

- (1) 研究課題等の研究目的の達成状況
- (2) 研究実施体制及び研究費執行状況
- (3) 研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果(今後の見込みを含む)
- (4) 異分野との交流等による新たな研究ネットワークの構築(領域独自※)
- (5) 新たな視点や発想の創出、もしくは創出への貢献(領域独自※)

※世界レベルの若手研究リーダーの輩出の観点から、本さがけ研究が、研究者としての飛躍につながったか(今後の期待を含む)」を加味して評価を行った。

9. 評価結果

ほとんどの研究が世界最先端の課題を扱っており、限界に挑戦する光極限にふさわしい目標を設定した。当然、さがけ研究期間で完結することを期待するのは無理で、どのような切り口で困難な課題に挑戦すべきかという適切な糸口を発見することが重要目標と言えた。課題の困難さを克服する中で、当初計画になかった新しいチャレンジが果敢になされた課題が多く、全体的に高く評価される。当初から計画達成を目標視するのではなく、研究の中から新しい課題と解決法を見出してこそ、真の科学研究であると伝え続けたことが理解され、実際に新しい目、視点を持った研究発展が見られたことは、さがけ研究の本来のあり方を示すものである。研究分野によっては、巨大科学化のために大型研究装置の事情に振り回され、あるいは新しく新規の装置を開発せざるを得ない事態が発生したが、研究者としてできる限りの努力を重ね、一見トラブルに見える中から、新しい研究の芽を見出し成果につなげたケースもある。これらの場合、本当の研究成果はこれからであり、一層の活躍が期待できる。多様な分野の研究者が集まったことで、多種多様なブレイクスルーがあり、努力の仕方にも多様性があることを互いに学びあった成果が出ている。さがけ期間内に始まった多くの共同研究は今後も必須な研究ネットワークとして、互いを刺激し、支え合って発展するであろう。

それぞれの研究は、本質的な意味での分野、方向性が異なっており、評価の視点も異なっているため、もっとも光っている課題を選ぶのは難しい。その中で、岩崎孝之氏の研究を推薦したい。量子ネットワーク技術の核である固体量子光源の研究で、優れた光学特性とスピン特性を両立させることを目標に、ダイヤモンド中で重元素を利用するという新しい観点を導入し、GeV に続いて SnV センターを発見するに至った。さらに新しい量子光源の可能性も発見しており、結晶成長法においても独自の技術を開発している。量子光源の研究では、とにかく、応用面からの性能追求に集中しがちな中で、より本質的で大きな飛躍が望める材料開発から、さらにその物理特性の精密検証まで一貫して追求する研究姿勢は高く評価できるし、本物の量子ネットワーク実現のためにはなんとしても頑張って貰う必要がある。以上のような理由で、岩崎孝之氏を最も光っている課題とした。

以下、個別課題について述べる。

1) 秋田 総理 研究者「フェムト秒パルス光を用いた光化学系 II の酸素発生機構の解明」

【期待以上】

本研究は、あらゆる植物に普遍的に存在し、基礎的な生理現象である光化学系 II (PSII) の酸素発生メカニズムを、X 線自由電子レーザー (XFEL) と可視光レーザーを用いて解明する挑戦的な試みである。光合成における酸素発生サイクル (Kok サイクル) を解き明かし、人工光合成の実現に必要な人工触媒の設計の基盤を確立することを将来の目的とする。PSII は 20 種のサブユニットからなる、分子量 350 kDa の超分子複合体である。2011 年に提案者が属する岡山大学チームによって酸素発生中心部分の Mn クラスター反応開始状態 S1 の構造が“ゆがんだ椅子”構造であることが解明された。それから、光吸収による水分解、酸素発生の Kok サイクル ($S1 \rightarrow S2 \rightarrow S3 \rightarrow (S4) \rightarrow S0$) の解明に向けて、目下、岡山大、UC Berkeley、Arizona State Univ. 等による激しい研究競争が行われている。岡山大は常に正確なデータを提供しつづけ、PSII の構造変化と基質である水の結合を捉えたり、 $S2 \rightarrow S3$ の構造変化を観測に成功するなど先頭を走り続けている。この研究を支えているのは、秋田氏の PSII 微結晶作製技術である。当初、数 μg でタンパク質の構造解析が可能とされた X 線自由電子レーザーであるが、PSII 超分子複合体のダイナミックな構造変化を $2\text{\AA}$ の SFX (Serial Femtosecond Crystallography) で解明するにはその約 10 万倍の微結晶が必要で、大量の微結晶を高品質で作成する技術の開発は秋田氏に託された。世の中の単結晶育成とは全く逆方向の良質、微結晶の大量作成は困難な作業であったが、提案者は様々な工夫と努力で方式を確立するとともに、技術者の育成に心を砕いている。しかし、微結晶の大量育成は誰もができる作業ではなく、努力だけではなく、才能のいる作業である。その上、巨大設備である XFEL SACLA のマシンタイムは当初半年に 1 回、数時間という制限の中で研究は展開され、外国との研究競争に打ち勝ってきた。世間の研究イメージとは異なり、最先端の基礎科学を開拓している研究とは実際このようなもので、地道な努力の結果の上に、SACLA のような高度な最新装置が存在して初めて価値あるデータを生み出している。研究は決して、高度な装置があれば進むのではないことを如実に示している重要な研究といえる。実際、光合成の最重要プロセス、水分解→酸素発生の過程を解明したのは、秋田氏らによる *Thermosynechococcus vulcanus* の大量培養、PSII の精製、微結晶の調製と品質改良の結果である。さらに Ago-loop と呼ばれるメッシュ上に微結晶を固定する手法を開発して、それまでのグリース法に比べて、XFEL 光のヒット率を 70-80% に高めることで、1 回の分析に必要なデータ蓄積時間を 60 時間に縮め、より少量の微結晶で構造解析を可能とした。ある意味、古典的な研究スタイルに見えるが、それこそが本当の研究の価値を生み出す活動である。その貢献は極めて大きい。そして、実際、光合成における Kok サイクルの解明に大きく前進させた原動力である。現在、S3 までの 2 段階の構造変化は解明されたが、その先、 $S3 \rightarrow S0$ では 3 回の閃光照射でも反応が進んでいない。自然はさらに秘密の機構を用意しているようで、興味は尽きない。さらなる解明が期待されている中で、提案者らの果たす役割はますます大きくなっている。

2) 岩崎 孝之 研究者「IV 族元素を用いた固体量子光源エンジニアリング」

【期待以上】

次世代の情報ネットワーク技術として光の量子性を利用した量子ネットワークの構築が推進されている。量子通信技術の確立には、安定した単一光子源が不可欠だが、窒素-空孔 (NV) センターは量子光源に利用可能なゼロフォノン線 (ZPL) の割合が低く、量子光源となりうるシリコン-空孔 (SiV) センターは基底状態分裂幅が狭いためにスピンコヒーレンス時間が 2-5 K でも $1\mu\text{s}$ 以下に制限されている。岩崎氏はこれらを解決するために、Si より重い IV 続元素、ゲルマニウム Ge およびスズ Sn に着目し、それらの大きなスピン軌道相互作用の結果、カラーセンターが大きな基底状態分裂を持つようになると考え、これらのカラーセンター形成に取り組んだ。スズをダイヤモンドに導入し、量子光源として機能させた例はこれまでになく大きな挑戦であったが、岩崎氏は見事に成功した。もちろん、ダイヤモンドの構成原子である炭素 C より大きな Sn を導入するには、従来技術では困難で、 2000°C 以上での高温高压アニール手法というこれまでの常識から外れた新規な技術を開発して、SnV センターの創出に成功した。Sn 原子が格子間位置に存在し、2 つの空孔に挟まれた構造をしていること、室温でも鋭い ZPL が観測され発光効率が数 10% で、さらに単一発光源として機能させることに成功するなど、当初の構想が正しいことを証明した。基底状態分裂も 850 GHz と SiV の 48 GHz より桁違いの優れた量子光源であることも実験的な結果で示した。従来の 2 倍以上の高温・高压アニリングの結果として発生した欠陥にもさらに新しい手法により高品質な形成技術への道筋をつけるなど、着実な進歩を遂げている。SiV→GeV→SnV からさらに PbV と新たな挑戦にも取り組み究極の量子光源を追求する姿勢は、新しい困難も必ず克服して前進するだろうと期待させるものがある。その根本は、基本的な物理に基づく確固とした信念とそれを実現する技術開発力にある。この力量が余人が挑むことのなかった Ge、Sn、Pb という重い IV 属元素センターの開発につながったといえる。海外からも注目され、その基本特性の解明にも国際共同研究が展開されている。これだけの研究の場合、全てを単独でやろうとすると、縮んだ結果となる可能性がある。本当に重要な仕事は大きな

グループを形成してこそ、新しい世界の潮流となることができる。フロンティア研究をすでに成し遂げているが、それを本物にして、世の中に広めていくことになることを期待している。

3) 植竹 智 研究者「原子コヒーレンスによる微弱 QED 過程の極限制御」

【期待通り】

有限質量を持つことが実証されたニュートリノの質量精密測定を原子・分子物理で挑戦しようとする本研究は一見、常識はずれ、とんでもない提案に見える。一方、標準模型を超える新しい物理を構築するには、ニュートリノの質量絶対値や質量のタイプ(ディラック型かマヨラーナ型か)などの性質の分析が必要で、従来の高エネルギー物理学的な手法では極小質量粒子であるニュートリノ質量の精密測定が難しいことも明らかである。この点、低エネルギーを扱う原子・分子過程からニュートリノを発生させるという植竹氏の研究は本質的に魅力的である。宇宙や高エネルギー手法はいわば力づくでニュートリノを発生させるのに対して、原子の光学遷移から発生させるニュートリノは、由来が明確なニュートリノを人工的に制御して生成させる。もし、これが可能なら、原子物理と高エネルギー物理を量子エレクトロニクス手法が結合させる全く新しい物理学の誕生ということになる。もちろん、1原子あたりのニュートリノ発生確率は 10^{-34} s^{-1} と極限的に小さく 10^{23} 個の原子を集めても1万年に3回しか発生しない。このような微弱な QED 過程である多光子放射過程をを観測可能にする巨大な増幅過程は基本的に、QED 過程を誘導する光電場を強くするか、原子・分子コヒーレンスを利用して巨大な集団コヒーレンスを実現するしかない。必要とされる増幅率を実現する光強度は想像を絶する強度で実現不可能である。可能性は巨大な数の原子集団にコヒーレンスを付加し、極微の現象を観測可能にする超放射のさらなる多光子遷移への適用しかない。誘導放出の原理により自動的にコヒーレント現象がマクロ世界に出現するレーザー作用とは異なり、いわば人工的に制御して膨大な数の原子に同一のコヒーレンスを付与することはまさに光極限の追求といえる。これまでの超放射現象はいわば偶然の産物として発生したものを利用することが多かったが、植竹氏はそれを意識的に制御して実現しようとしている。難しいという指摘は誰でもできるが、不可能ということではない。実際、植竹氏は過去の経験でパラ水素を用いた実験で、分子間コヒーレンスを利用することで、微弱な 2 光子放出過程の放射レートを自然放出レートに比べて 10^{18} 倍も増幅することに成功した経験を持っている。たとえ 10^{34} 倍の増強が必要でも、それが不可能だということとはできない。

もちろんそれには高強度でありながら超精密なレーザー光源の開発から、多光子励起過程の複雑な研究を可能にする光源、装置開発が必要で、植竹氏は優れた構想、制作、調整の能力を駆使して、困難な実験を可能とした。その結果、当初、構想した Xe 原子の $E1 \times E1 \times E1$ の 3 光子励起レートより、 $E1 \times (M1 + E1)$ の 2 光子励起レートのほうが 1-2 桁も大きいという重要な発見をした。さらに非常に高い励起順位(149 nm 相当)ではイオン化による原子損失が無視できなくなることを発見するなど、まさに未踏の分野を進むがゆえの新しい知識を蓄積している。それでも研究計画にあったステップを着実にやり、実現できるものは確実にモノにしている実力は高く評価できる。そして、それらの過程で派生した研究は、それ自身高い水準の成果として数多くの学術論文出版につながっている。遠大な達成目標の価値にもたれかかることなく、必要な研究開発を通じて、学術論文の発表につなげる姿勢は立派に独り立ちした研究者の姿である。

4) 貴田 祐一郎 研究者「モノサイクル X 線自由電子レーザー実現に向けた高出力シード光源開発研究」

【期待通り】

光の極限技術を追求するとなると、通常の光の領域よりはるかに短波長の X 線レーザーが目標になるのは理の当然で、そこでモノサイクル(単一周期)パルスが実現すれば、そのパルス幅は現在のフェムト秒(10^{-15} s)からアト秒(10^{-18} s)を飛び越えてzeptosecond(10^{-21} s)に達する。同時に光子エネルギーが 100 万倍になることを考えれば、そこには現在と全く違った世界が広がっていることが理解しやすい。このようなある意味べらぼうな極限光を発生させることは可能なのだろうか。提案者である貴田氏はそれに挑むべく X 線自由電子レーザー用の高出力シード光源の開発に乗り出した。これは 2015 年に理研 X 線自由電子レーザー、SACLA グループが発表した“モノサイクル高調波発生(Monocycle harmonic generation, MCHG)”理論の原理検証を行おうとするものである。もし、その原理が実証されれば、極限までパルス幅の圧縮された単一周期光パルスを、光の単一周期極限線に沿って短波長へ波長変換することができる。複数段を重ねれば、zeptosecond モノサイクル X 線パルスが発生可能となる。ドイツ、Max Planck Institute の F. Krausz の下で超短パルス固体レーザー技術を磨いてきた貴田氏にとって、これまでの経験を生かして挑戦するにはもってこいのテーマといえる。もちろん、6 桁の巨大なジャンプを可能にするには、解決すべき課題は山積みで、本来、国家機関が全力を上げて取り組むべきテーマと言える。しかし、誰かが登り始めなければ頂上に向かう道も見つからない。そういう種類の研究である。

原理検証実験のための 267 nm 紫外モノサイクル光源の開発自身が世界で誰もやったことのない研究である。40

fs フェムト秒レーザーパルスを励起光源として白色光を発生させ、それを分光・増幅する可視(波長約 520 nm)、近赤外(波長約 1200 nm)の2種の光パラメトリック増幅器を構築した。量子干渉を利用してこれら2種のレーザー光を時空間軸上で合成し、単一光周期幅で周期的にピークを形成するレーザー光源を開発するなど、自身の経験を活かした着実な光源開発に成功した。2色のフェムト秒レーザー光を用いた非線形パルスピッカー原理検証実験(スペクトル計測実験)でも想定通りの光発生挙動を確認している。誰もやったことのない領域では、紫外モノサイクルパルスの計測法自身も開拓しなければならない。貴田氏は気体中の過渡回折格子効果に基づく時間波形計測法を開発した。その過程で、この計測法には正常動作領域と異常動作領域があり、正常動作の確認なく用いた場合は、パルス幅を非常に狭く過小評価する危険性があることを明確にした。きわめて注意深く、科学的な態度を維持した研究姿勢といえる。

完全に新規な研究課題に挑戦した結果、当初の構想を変更したり、新しい方式の限界を自ら検証する作業が膨大にある。貴田氏が孤軍奮闘をしたとしてもすべてを解決することはできず、当人は決して満足していないようであるが、これだけのことを余人ができるかといえは難しい。とても達成できまいとわかって採用した立場から言えば、予想以上の成果を出したともいえるが、当人の目標がさらに高いところにあることを考慮して、期待通りの評価とした。

5) 齊藤 尚平 研究者「局所応力イメージング技術の限界を突破する『光分子力学』の開拓」

【期待以上】

提案者である齊藤氏は独自に開発した羽ばたく分子 FLAP を基盤とし、そのメカニズムを解明し、必要な制御性を加味して、「基底状態における外部からの力」に応答する蛍光分子ライブラリーを構築した。さらに対象物内部における FLAP の局在を制御することに成功した。これにより、高分子材料における分子鎖レベルの局所応力が化学構造のどこに集中しているのかを定量的に追跡できる手法を生み出した。共有結合の切断を伴わずに V 字から平面型へのコンフォメーション変化だけで発光特性を変えることができるため、より微弱な力を可逆的に追跡できる。従来、ナノレベルにおける力の計測に使われてきた光ピンセットや AFM のような制限がなく、複雑系におけるナノレベルの応力情報をリアルタイムに定量する革新的な光解析技術の創出が可能となった。FLAP 分子そのものが、硬い2枚の平面構造(翼)を柔らかい構造が結合させており、受け取った力を効果的に発光部位に集中させるテコのようにして微弱な力を検出している。応力集中機構を内蔵した極めて合理的なメカノフォアといえる。

FLAP 分子の精密有機合成およびその重合による高分子化、高分子延伸と蛍光スペクトル・蛍光イメージングの同時測定、分子の動きを考慮した DFT 計算と分子動力学(MD)シミュレーション、単一分子分光解析などをフル活用する研究アプローチは見事で、異分野技術を融合させながら局所応力(および局所粘度)の謎に迫る研究を展開し、見事な成功を収めた。実際、結晶の温度相転移時の自由な空隙の崩壊に伴うメカノフォアの活性化や物質破断前のナノレベルでの力の伝搬などは他の方法では見ることができない。また、1分子レベルの空間分解能は分子周りの自由空間体積や気水界面の単分子膜の情報を伝えてくる、高分子主鎖と架橋点における応力分布が計測可能になるなど、分子内や分子同士の間に働く力を測定してみせた。羽ばたく分子 FLAP そのものが周囲から受ける力を感じて、発光強度、スペクトルの変化として伝えるプローブとして見事にその能力を証明している。しかもこれらの変化は粗視化シミュレーションによって理論的にも追跡、確認されている。となると、提案者の提唱するメカノバイオロジーは夢ではない。実際、無発光性の FLAP 前駆体が、細胞内にも存在する還元型グルタチオンと反応してレシオメトリック蛍光性の FLAP が生成することが確認されており、共焦点イメージングによる細胞観察へと実験が進んでいる。FLAP 分子はそれ単独で周囲の力を検出できるので、局所粘性の計測が可能となり、血漿粘度など健康診断にも応用可能という、思ってもいなかった展開まで開けてきた。これも単独で周囲の力を測定できる羽ばたく分子 FLAP の効果であろう。基礎から応用まで一貫して研究を展開する齊藤氏の力量は大したもの、自分なりの構想を自分の言葉で語り、実現していける人材である。それは分野違いの課題にも、直ちに自分なりの言葉に変換し、問題の核心に対する個性的な対応策を生み出すことで他の研究者に役立てることに現れている。今後も大きな飛躍が期待できる。

6) 種村 拓夫 研究者「有機電気光学材料による光メタ表面の機能化と高速変調素子への展開」

【期待以上】

本研究は、シリコンおよび金属からなるサブ波長格子に有機電気光学(EO: electro-optic)ポリマーを埋め込むことで、電氣的に制御できるアクティブな「光メタ表面」を実証し、垂直入射型の高速な光強度/位相変調器に応用することを目的とした。これにより、既存の空間光変調器(SLM: spatial light modulator)に比べて6桁以上高速な時間応答を持つ波面制御デバイスの実現を目指した。これまで光信号の制御は時間領域を中心に行われてきたが、光そのものは3次元空間の波動であり、空間周波数、すなわち空間波面制御が重要であることは言うまでもない。そ

れが遅れているのは、空間光変調器が液晶デバイスであり、巨大分子である液晶を高速に制御できないからである。種村氏の挑戦はこの分野に有機 EO ポリマーとシリコン及び金属の微細加工技術を駆使して作製するサブ波長格子を組み合わせた着想に始まった。これによる光メタ表面によって高効率でかつ GHz の変調帯域を持つ空間光変調器を実現しようという計画は、それ自身、技術研究の枠を超えたものと評価できる。新規な構造とアイデアを含む高速光変調器が実現すれば、全く新しい機能が創出され、光技術が大きく進展することは間違いない。光の波面制御が重要な今世紀の光技術を支えるデバイスに成長することが期待される。

実際の研究は EO ポリマーを埋め込む波長以下のサイズの格子を基板上に作製するための設計・エッチングを含むプロセス開発・試作実証を繰り返す地道な努力の積み重ねで、シリコン格子型変調素子の最適化を行い、高い Q 値で 500 MHz の変調が可能な素子の開発に成功した。また金属格子型変調器では 提案時とは異なる金属を上下に配置して EO ポリマーを挟み込む構造を新たに見出して、シリコン型に比べると Q 値は小さいが、新たに発見した Bimodal 共振点で十分大きな消光が得られることを確認できて、1.25 GHz までの高速変調を実証した。

実際経験したことは、EO ポリマーの極薄均一塗布、シリコン格子のための高アスペクト溝の ICP-RIE プロセス、エッチング技術、格子幅の精密制御、高 Q デバイスの設計、電界、ポインティングベクトル計算など地道な工夫を重ねることで 2 つのモードが交わる Bimodal Point を発見、利用に至るなど困難を乗り越える研究を重ねた。当初目標がそのまま実現するより遥かにたくさんの経験を学び、将来への展望力を身に着けたと評価できる。

光メタ表面を利用した高速変調はすでに民間企業と共同研究に発展しているほど目に見えて重要な技術と言える。大学の発想力、基礎の解明力と、企業のデバイス化技術が一体となって、重要な光デバイスが日本から発信される日が近いと期待している。

7) 田原 樹 研究者「多数自然光源の瞬間同時ホログラフィックマルチカラーセンシング」 【期待以上】

本研究は自然光により観察される、瞬間のマルチカラー 3 次元画像情報を、高い光利用効率で高速記録・可視化する自然光マルチカラーホログラフィック撮像システムの開発を目的として始まった。自然光、マルチカラー、ホログラフィック、瞬間、高速記録、可視化など、どれをとっても困難な課題で、それらを一緒に解決するという挑戦に、できるなら素晴らしいができるかな？、という感覚でさきがけ研究に採用した。しかし、それは決して大風呂敷ではなく、田原氏は古くからあるアイデアの真髓を読み解き、それを現代技術を利用すれば、過去に困難であったことも、現代では可能になることを、理論的、実験的な研究で証明してみせた。田原氏の研究は、(1)インコヒーレント光の単一露光ホログラフィック画像センシングシステムの試作、(2)レンズレス・波長フィルターレスでホログラフィックマルチカラー画像をセンシングするためのアルゴリズムの提案、(3)多数自然光源の瞬間同時ホログラフィックマルチカラー 3 次元顕微鏡システムの試作、(4)蛍光顕微鏡への応用可能性の実験的検討、(5)白色照明光を用いた単一露光ホログラフィックマルチカラー 3 次元顕微鏡における検出系の改良と 22 fps の記録速度でのセンシング、(6)レンズレス・波長フィルターレスでホログラフィックマルチカラー画像をセンシングするシステムの試作、(7)波長フィルター無く自然光のホログラフィックマルチカラー画像をセンシングするシステムの試作、(8)ハロゲンランプを用いたホログラフィックマルチカラー 3 次元顕微鏡システムの開発、(9)微弱な光の検出に向けた単一画素でホログラフィックマルチカラー画像をセンシングするシステムの試作、(10)レンズレス・波長フィルターレスでホログラフィックマルチカラー画像を単一露光センシング可能なシステムの設計、(11)偏光光学素子アレイの仕様策定、と段階を追って進められた。これらのステップは各々、適当に選んだものではなく、最終目標に必要な要素を分析し、必要な技術を自ら開発することから生まれた。像を記録するイメージングカメラと偏光・波長フィルターの工夫にとどまらず、記録後の信号処理系の工夫によりマルチカラーホログラムの記録が可能であることを実証したことは特筆すべきである。光学技術者らしい緻密でスキのない研究計画を実行したと評価できる。

元来の計画では、必須技術である偏光成分分解可能なイメージセンサーを自ら開発するという計画であったが、偶然、研究開始からしばらくして、ソニーが偏光カメラを発売することになった。それに目をつけ技術者レベルの交流が開始されると、研究用にさらに高分解能のカメラを提供されるに至った。これはまさに天の采配と言える偶然であり、本研究が歴史的に時宜を得たものの証明でもある。

膨大な研究の結果、光学素子アレイの施策を完了したのみならず、計算コヒーレント多重に基づく波長分離を使った波長選択抽出位相シフト法とその複数波長 3 次元イメージングにより高速化可能な自然照明光の波長フィルターレス・ホログラフィックマルチカラーセンシングシステムを実現させた。まさに天運を自ら呼び寄せたということがいえる。研究成果はジャーナル論文、国際会議、国内会議で Highlight 論文、Best Paper Award, 優秀論文賞が与えられるなど、高い評価を得ている。

とてもできないだろうと予想していた段階まで研究は進展し、さらに将来を生み出す研究に展開させた能力は素晴

らしく、さががけ研究を通じて飛躍して欲しい人材と言える。

同氏の能力はさががけ研究者の中でも高く評価され、その結果として、さががけ内部の研究者の研究に重要なアドバイスを数多く提供し、共同研究に発展した。同じく最先端の研究者から助言を求められることこそ、研究者の真の評価と言えよう。

8) 西内 満美子 研究者「極相対論的光電磁場における重元素低主量子数電子の電離機構の解明」

【期待通り】

ペタワット級超高出力レーザーの登場により、電子、陽子のレーザープラズマ加速の研究が盛んになったが、重元素のレーザー加速は手つかずの状態にある。西内氏の研究はそこに果敢に挑戦したもので、相対論光学の先を見据えた研究である。宇宙空間で発生している不安定核種の取り出しという究極の目的を目指して、「極高強度光電磁場」と「極高強度準静的電場」における重イオンの低主量子数電子の電離過程の違いを実験的に探るための研究を行った。内容は、所属機関が開発したペタワットレーザーシステム J-KAREN の超高コントラスト化、背景光除去から、超短パルス後を照射した薄膜ターゲットの相対論プラズマ粒子シミュレーション、その結果を反映した厚さ 5 nm の極薄銀薄膜ターゲット製造、レーザー駆動イオン加速で発生する多様なイオンが同時に加速されるカクテルビームを識別、分離、計測する新たな計測法、イオン種、エネルギー、価数でキャリブレーションされたイメージングプレートを使ったトムソンパラボラや飛行時間計測法による質量分析法 (MS-TOF) を開発するなど、新たな構想を実現するための多種多様な技術課題を含んでいる。これらは J-KAREN や HIMAC を有する所属機関の強みを最大限に生かした成果で他では困難な成果である。西内氏は多くの研究者の協力を得ながら、それらの課題を確実に達成し、着実な成果を上げた。QST のような巨大な組織で、それらを実現するには、並大抵でない努力が必要であったことは想像に難くない。いずれも将来の重イオン加速の機構解明に不可欠な新技術であり、この分野への貢献は大きい。単純な電子・陽子加速に比べて、多種多様な高いイオンが発生するカクテルビームの中から、42 価の銀イオンが 15 MV/u まで加速されていることを観測することに成功した。さらに結果の解析をする中で、軽イオンでは有効な従来モデルの根本的欠陥に行き着いた。薄膜ターゲット裏面に形成されるシース電界では決して 40 価以上の銀イオンができず、衝突電離で生まれた多価イオンがシース電場で加速されたことなどを解明した。表面不純物由来の軽元素とターゲット由来の銀イオンの最高エネルギーが逆相関を示すなど、加速スキームの解明の重要なデータが得られた。メインパルスが到達する以前に、プレシースをターゲットから離すことが重イオン加速にとって重要であることを明快に示した結果、新たなプラットフォームともいえる状況が用意されたのは重要な成果である。もとより、掲げた目標が大きく、さががけ期間中に達成できるとは期待していなかったが、予想を覆す結果を真摯に受け止め、精密に解析することで、次のステップの指導原理を導いたのは、未踏の目標に挑むための学術的姿勢として高く評価できる。

9) 松永 隆佑 研究者「高強度テラヘルツ電場による量子多体系の非平衡物理の探索」

【期待以上】

本研究は、凝縮系物理における素励起の典型的なエネルギースケールに相当するテラヘルツ波を用いて凝縮系の性質を観測し、さらに素励起を強く引き起こして非平衡状態へと駆動する手法に注目したことが特色である。これを用いて、マクロスケールで発現する量子凝縮の代表といえる超伝導や、トポロジカルな電子的性質を示すディラック半金属・ワイル半金属における非平衡ダイナミクス解明と光電場による制御を通して、物性物理学と最先端光学技術が融合した研究分野を開拓していくことを目指した。そのためには、それを可能にする強力な超短パルステラヘルツ波の発生と、凝縮系の素過程を詳細に観測できる計測技術の両方が必要で、手近な装置を組み合わせれば可能になるような研究ではない。新しい励起手段と計測手段を自ら開発しなければいけない本来の物理研究とも言うべきものである。松永氏はその両方を自らの手でやってのけたと評価できる。

実際、掲げた目的をすべて達成し、期待以上の成果をあげている。研究費の大半を Yb 系フェムト秒レーザーの購入にあて、先端的特性を有する THz 光源を生成し、超伝導系などの多体凝縮系やトポロジカル物質などの新たな物性現象を多数明らかにしたことは賞賛に値する。文部科学大臣賞やいくつかの海外招待講演は、そのことを裏付けている。領域会議などにおける報告を見ても非常に整理された研究を展開しており、先端研究がどのような Cutting edge を切り拓いているのかを見せてくれている。

Table top の光源で高次のテラヘルツ高調波発生に成功し、巨大異常ホール効果など室温動作素子の開発に繋がるとも言うが、実社会での応用展開に触れずとも、固体物理における新しい現象を捉えたこと自体に高い価値を主張してよい高い質を持った研究である。

事後評価の席上では、さらに面白い非公開の研究成果も開示された。松永氏の研究はさががけ提案の枠を超えて、

更に大きく発展している。今後の展開にも大いに期待している。

10) 向山 敬 研究者「極低温イオン・原子混合系で探求する極低温化学反応過程」

【期待以上】

本研究はレーザー冷却の手法により極低温に冷却されたイオンと中性原子気体の混合系を実現し、その両者の間に生じる弾性散乱、非弾性散乱(化学反応)の散乱特性を詳細に調べることを目的で、最終的にはマイクロケルビンの温度領域に到達することで両者の散乱過程が原子やイオンの量子統計性に支配される状況を実現することを目指している。本さがけ研究の期間中に、(1)電荷交換反応における量子状態の制御、(2)衝突緩和過程の観測、(3)原子イオン間弾性散乱による共同冷却効果を実証することを実現させた。極低温原子イオン混合系を生成する際に、イオンの内部状態を準安定励起状態に準備すると、内部状態の変化に伴う非弾性散乱(化学反応)過程が起こる。向山氏が採用したリチウム原子とカルシウムイオンでは、カルシウムイオンを準安定 D 状態に準備した時に電荷交換反応と衝突緩和反応が起こることをそれぞれ実験的に突き止めたのである。極低温での原子-イオン系化学反応(電荷交換反応、衝突緩和現象等)を、精緻に観測した研究で、物理的にも実験技術的にも非常に高く評価される。レーザー冷却された原子とイオンの混合系の研究は当該分野の研究者であれば誰もが行ってみたい研究である。しかし、難しい2つの実験技術を組み合わせるため、成功例は極めて少ない。困難なテーマに取り組み成功させた成果は高く評価される。電荷交換・衝突緩和を分離して観測することに成功した結果、今後、衝突断面積の定量化が今後期待できる。さらに弾性散乱過程の観測により弾性衝突による共同冷却効果を実証できている。マイクロケルビンの実現が遅れているため、極低温における量子統計的振る舞いの明瞭な観測は残されたが、これも向山氏の着実な研究の積み上げ姿勢を見ていると、時間の問題であり心配はない。本研究に必要な実験装置は、非常に精密な複雑な光学と原子・イオン系の組み合わせで、光学テーブルの上に展開されたシステムは見学した研究者を驚嘆させる。さがけ研究期間に、電通大→大阪大学に移動し、それらのシステムの分解、再構成、再調整を行うとともに、所属学生の入替えが必然的にあった中で、高度な研究水準を維持し続けたことは、尊敬に値する。これらすべてを手中に収め、新しい教育を繰り返す中で、さらに新しい発想を生み出してきた。これらは同氏の力量が並外れているから可能になったことである。

同氏の論文は重要な結果を簡潔に報告しているが、そのいずれも、短い時間に高い引用回数を獲得しており、世界からの注目度が高い。海外理論研究者との共同研究が活発化した。本研究で得られた実験成果が分子のエネルギー準位を理論的に求める際のスピン軌道相互作用の取り入れ方に指針を与えると認められたからである。原子イオン間の弾性衝突については、本研究で初めてイオンの温度が中性原子との1回の衝突で35%のエネルギーが奪われるという実験結果を得た。原子イオン間の弾性散乱を用いた共同冷却で、重い原子を用いてしまうとイオンの運動の攪乱が大きすぎるために大きな加熱を生んでしまうこととなる。同氏のように中性原子に軽い原子種を採用した系の研究は類似研究が少なく、他所では得られない重要な結果を生み出す事ができる象徴的な成果といえる。今後、マイクロケルビンにおける研究成果が出るときには、ますます重要な知見が得られることは確実で、大いに期待して見守っている。研究的な成果はまだまだ大きくなるとしても、現時点でも期待以上の質を生み出した研究を評価する。

10. 評価者

研究総括 植田 憲一 電気通信大学 名誉教授

領域アドバイザー(五十音順。所属、役職は2020年3月末現在)

井上 宏明	元 日本オクラロ(株) 執行役員 CTO
神成 文彦	慶應義塾大学理工学部電子工学科 教授
竹内 繁樹	京都大学大学院工学研究科 教授
武田 光夫	電気通信大学 名誉教授
塚田 秀夫	浜松ホトニクス(株) 中央研究所 主幹
寺川 進	浜松医科大学 名誉教授
年吉 洋	東京大学生産技術研究所 教授
波多野 睦子	東京工業大学工学院電気電子系 教授
松尾 由賀利	法政大学理工学部創成科学科 教授
三澤 弘明	北海道大学電子科学研究所 教授

(参考)

件数はいずれも、2020
年 3 月末現在。

(1) 外部発表件数

	国 内	国 際	計
論 文	2	60	62
口 頭	166	99	265
その他	19	6	25
合 計	187	165	352

(2) 特許出願件数

国 内	国 際	計
6	1	7

(3) 受賞等

岩崎 孝之

- ・平成 29 年度 東工大挑戦的研究賞(学長特別賞)(2017.7)
- ・文部科学大臣表彰 若手科学者賞(2019.4)
- ・令和元年度手島精一記念研究賞(研究論文賞)(2020.2)

齊藤 尚平

- ・井上科学振興財団 井上リサーチアワード(2017.2)
- ・江野科学振興財団 田中ゴム科学技術賞(2017.2)
- ・日本液晶学会 論文賞 2018(デバイス、応用分野)(2018.9)
- ・The Asian and Oceanian Photochemistry Association (APA) Prize for Young Scientist(2018.12)

田原 樹

- ・3 次元画像コンファレンス 2016 年度優秀論文賞(2017.2)
- ・Biomedical Imaging and Sensing Conference 2017 Best Paper Award (2017.4)
- ・Highlight of 2017 (Journal of Optics, IOP Publishing) (2018.9)
- ・2018 Reviewer Awards (Journal of Optics, IOP Publishing) (2019.3)
- ・3 次元画像コンファレンス 2019 優秀論文賞(2019.10)

西内 満美子

- ・第 13 回 日本加速器学会奨励賞(2017.4)

松永 隆佑

- ・文部科学大臣賞表彰 若手科学者賞(2018.4)

(4) 招待講演

国際 53 件

国内 59 件

別紙

「光の極限制御・積極利用と新分野開拓」領域 事後評価実施 研究課題名および研究者氏名

研究者氏名 (参加形態)	研究課題名 (研究実施場所)	現職(2020年3月末現在) (応募時所属)	研究費 (百万円)
秋田 総理 (兼任)	フェムト秒パルス光を用いた光化学系 II の酸素発生機構の解明 (岡山大学)	岡山大学異分野基礎科学研究所 准教授 (岡山大学異分野基礎科学研究所)	36
岩崎 孝之 (兼任)	IV 族元素を用いた固体量子光源エン ジニアリング (東京工業大学)	東京工業大学工学院 准教授 (東京工業大学工学院)	38
植竹 智 (兼任)	原子コヒーレンスによる微弱 QED 過程 の極限制御 (岡山大学)	岡山大学異分野基礎科学研究所 准教授 (岡山大学異分野基礎科学研究所)	39
貴田 祐一郎 (専任)	モノサイクル X 線自由電子レーザー実 現に向けた高出力シード光源開発研 究 (理化学研究所)	理化学研究所放射光科学総合研究 センター 研究員／科学技術振興 機構 さきがけ研究者	36
齊藤 尚平 (兼任)	局所応カイメージング技術の限界を突 破する「光分子力学」の開拓 (京都大学)	京都大学大学院理学研究科 准教 授 (京都大学大学院理学研究科)	41
種村 拓夫 (兼任)	有機電気光学材料による光メタ表面の 機能化と高速変調素子への展開 (東京大学)	東京大学大学院工学系研究科 准 教授 (東京大学大学院工学系研究科)	37
田原 樹 (兼任)	多数自然光源の瞬間同時ホログラフィ ックマルチカラーセンシング (情報通信研究機構)	情報通信研究機構電磁波研究所 電磁波応用総合研究室 研究員 (関西大学システム理工学部)	37
西内 満美子 (兼任)	極相対論的光電磁場における重元素 低主量子数電子の電離機構の解明 (量子科学技術研究開発機構)	量子科学技術研究開発機構量子ビ ーム科学部門 上席研究員 (量子科学技術研究開発機構量子 ビーム科学研究部門光量子科学研 究部高強度レーザー科学研究グル ープ)	35
松永 隆佑 (兼任)	高強度テラヘルツ電場による量子多体 系の非平衡物理の探索 (東京大学)	東京大学物性研究所 准教授 (東京大学大学院理学系研究科)	40
向山 敬 (兼任)	極低温イオン・原子混合系で探求する 極低温化学反応過程 (大阪大学)	大阪大学大学院基礎工学研究科 教授 (電気通信大学レーザー新世代研 究センター)	38

研 究 報 告 書

「フェムト秒パルス光を用いた光化学系Ⅱの酸素発生機構の解明」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 秋田 総理

1. 研究のねらい

本研究は、あらゆる植物に普遍的に存在し、基礎的な生理現象である光化学系Ⅱ(PSII)の酸素発生メカニズムを、X 線自由電子レーザー(XFEL)と可視光レーザーを用いて解明する挑戦的な試みである。1970 年に Kok らによって提唱された、酸素発生サイクルを解き明かし、人工光合成の実現に必要な人工触媒の設計の基盤を確立する。

PSII は 20 種のサブユニットからなる、分子量 350 kDa の超分子複合体である。2011 年に 1.9 Å の構造が詳細に示され、酸素発生中心部分の Mn クラスターの構造は“ゆがんだ椅子”構造と形容され、その年の Science 誌 10 大成果に選出された。しかしながら、この構造は反応開始状態の S_1 であり、その全容を解明するにはその他の状態(S_2 , S_3 , (S_4), S_0)の構造解析が必要である。本研究は、調製した PSII の結晶を可視光レーザーで励起し、XFEL を照射して回折像を収集し、解析を行うことでこれらの反応中間体の構造を明らかにすることを目的とする。

本研究を成功に導く方法として、XFEL を使用し、微小結晶を用いる事が挙げられる。強力な X 線レーザーを数十フェムト秒という極めて短い時間で照射し、X 線による損傷の無い状態の回折像を得る事ができ、PSII の微結晶溶液を一定流速で流しながら XFEL を照射する事で、可視光レーザーを結晶に照射して PSII 分子を励起させ、その下流で XFEL を照射する事で反応中間体の回折像を得る事ができる。また、100 μm 以下の微小結晶を調製し実験を行うことにより、結晶内の PSII 分子が十分に励起され、中間体をトラップする事ができる。我々は、脱水処理により 2.5 Å を超える分解能の結晶を準備できており、反応中間体の構造変化を解析するために十分なデータを収集できると確信している。

光合成は、ほぼ無限に降り注ぐ太陽光のエネルギーを化学エネルギーに変換するため、持続可能なエネルギー源を提供することが可能である。そのため本研究の成功は、太陽光エネルギーの高効率利用を目指した人工光合成の実現に必要な人工触媒の設計の基盤と成り、産業的・工業的な側面からも世界に多大な影響を及ぼすものと期待される。

2. 研究成果

(1) 概要

光化学系Ⅱ(PSII)は光エネルギーを利用して、水分子を酸素、プロトン、電子に分解する反応を触媒している。この反応機構を解明することは、人工光合成の実現にも重要な意味を持っており、本研究によって人工触媒の設計に必要な基盤を提供することができる。

PSII の中心にはマンガンクラスターと呼ばれる構造体が存在し、光を受けることで、 S_1 から S_2 , S_3 , (S_4), S_0 状態へと遷移し、また S_1 へと戻る(図 1)。その過程で水分子が分解されるのであるが、 S_1 状態しかその構造が明らかになっていなかった。

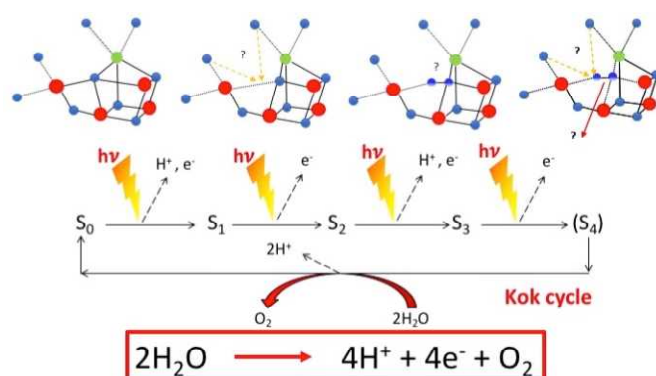


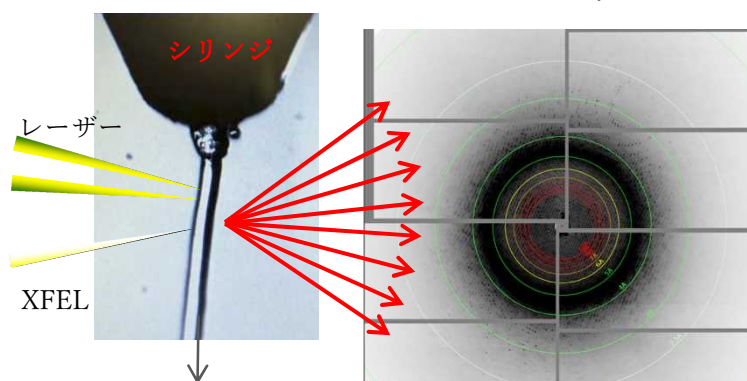
図 1. 光化学系 II による水分解反応

本研究では、PSII の水分解・酸素発生メカニズムを、X線自由電子レーザー (XFEL) を用いて解明する。PSII の微結晶溶液を一定流速で流しながら可視光レーザーを結晶に照射して PSII 分子を励起させ、その下流で XFEL を照射する事で反応中間体のデータを収集した。その結果、2.35 Å 分解能の S_1 構造とレーザー2回照射後の S_3 構造が得られ、これらのデータの比較から、世界で初めて酸素発生の中心部であるマンガンクラスターに基質の水 O6 が配位した構造を明らかにした (Suga, Akita et al. *Nature*, 2017)。

(2) 詳細

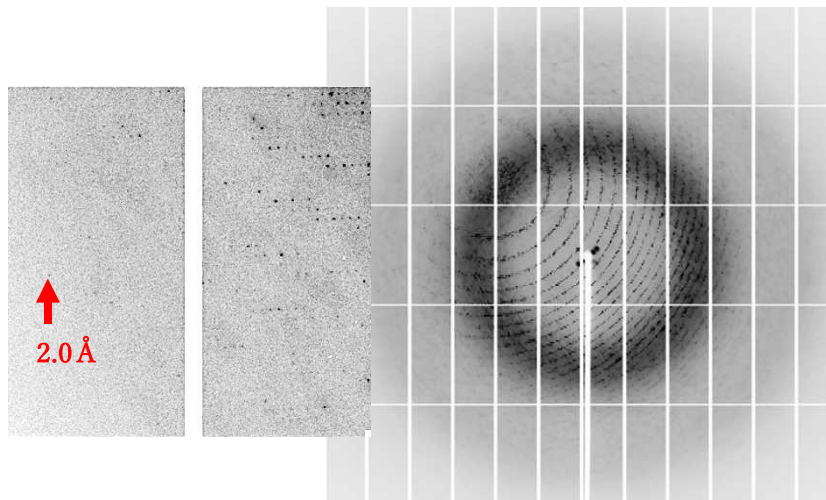
【研究テーマ A】SFX 実験

高濃度に調製した PSII の微結晶溶液をグリースと混合し、シリンジから一定流速で流しながら数十フェムト秒という極めて短い時間で XFEL を照射し、損傷の無い状態の回折象を収集した。この方法では、室温で実験できるので、可視光レーザーを結晶に照射して PSII 分子を励起させ、その下流で XFEL を照射する事で反応中間体の回折像を得ることが出来る。微小結晶の大きさを、結晶内の PSII 分子が十分に励起されるよう 100 μm 以下に調整した。



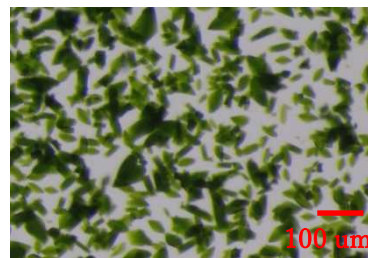
【研究テーマ B】結晶の改良

微結晶化による分解能の低下を改善するために回収した結晶の溶液条件を検討した。回収した結晶を段階的に高濃度の沈殿剤溶液に浸漬することで分解能を向上させた。SFX 実験では最高で 2.0 Å 分解能の回折イメージが得られるようになった。



【研究テーマ C】微結晶の調製法

SFX 実験に必要な PSII の微結晶作成条件を検討した。PSII 溶液と沈殿剤を等量加え、ボルテックスで数秒撹拌した後、20℃で数時間静置することで、簡単に微結晶を作成することが出来た。100 μm 程度に成長した結晶を振動撹拌装置で数秒撹拌し回収した。結晶保存溶液の条件を検討し、3～4 日反応効率・分解能が維持される条件を確立した。



得られた微結晶

【研究テーマ D】PSII の大量調製

SFX 実験では、2～3 g の高純度 PSII が必要である。そのため、PSII の大量調製システムの確立が必須である。単純に培養スケールを 20 L から 180 L へ、最終精製のイオン交換カラムの容量を 20 mL から 200 mL へ拡大した。その結果、一度の精製で従来の 20 mg から 300 mg の収量が得られるようになった。

3. 今後の展開

我々はこれまでに S_1 , S_3 の構造を解明しているが、酸素発生メカニズムを解明するためには、残りの (S_4), S_0 の構造を解明する必要がある。また、 $S_1 \rightarrow S_2 \rightarrow S_3 \rightarrow (S_4) \rightarrow S_0$ の各ステップを更に時分割で調べ、そのメカニズムを詳細に調べる必要がある。本研究によって水分解の人工触媒の設計に必要な基盤を提供できると考えている。

4. 自己評価

SFX の実験に必要なサンプルの供給体制、微結晶の作成・高分解能化を達成することが出来た。SFX のマシンタイムが限られているため、期間中に全ての中間体構造を解明することはできなかったが、SFX を用いた PSII 中間体構造解析の実験手法を確立することが出来た。また、世界で初めて酸素発生の中心部であるマンガンクラスターに基質の水 O6 が配位した構造を明らかにした。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Suga M.*, Akita F.*, Sugahara M.*, Kubo M.*, Nakajima Y.*, Nakane T., Yamashita K., Umena Y., Nakabayashi M., Yamane T., Nakano T., Suzuki M., Masuda T., Inoue S., Kimura T., Nomura T., Yonekura S., Yu L.-J., Sakamoto T., Motomura T., Chen J.-H., Kato Y., Noguchi T., Tono K., Joti Y., Kameshima T., Hatsui T., Nango E., Tanaka R., Naitow H., Matsuura Y., Yamashita A., Yamamoto M., Nureki O., Yabashi M., Ishikawa T., Iwata S., Shen J.-R. Light-induced structural changes and the site of O=O bond formation in PSII caught by XFEL. *Nature*, 2017, 543:131–135
2. Morton J., Chrysina M., Craig V.S.J., Akita F., Nakajima Y., Lubitz W., Cox N., Shen J.-R., Krausz E. Structured near-infrared Magnetic Circular Dichroism spectra of the Mn₄CaO₅ cluster of PSII in *T. vulcanus* are dominated by Mn(IV) d-d ‘spin-flip’ transitions. *Biochim. Biophys. Acta*, 2017, 1859:88–98
3. Nakajima Y., Umena Y., Nagao R., Endo K., Kobayashi K., Akita F., Suga M., Wada H., Noguchi T., Shen J.-R. Thylakoid membrane lipid sulfoquinovosyl-diacylglycerol (SQDG) is required for full functioning of photosystem II in *Thermosynechococcus elongatus*. *Journal of Biological Chemistry*, 2018, 293 (38):14786–14797
4. Kato Y., Akita F., Nakajima Y., Suga M., Umena Y., Shen J.-R., Noguchi T. Fourier transform infrared analysis of the S-state cycle of water oxidation in the microcrystals of Photosystem II. *J. Phys Chem Lett*, 2018, 9 (9): 2121–2126

(2) 特許出願

研究期間累積件数:0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. Nagao R., Kato K., Suzuki T., Ifuku K., Uchiyama I., Kashino Y., Dohmae N., Akimoto S., Shen J.-R., Miyazaki N., Akita F. Structural basis for energy harvesting and dissipation in a diatom PSII-FCPII. *Nature Plants*, 2019, 5(8):890–901
2. 秋田 総理, 菅 倫寛, 沈 建仁「光合成水分解・酸素発生反応の構造基盤」生化学, 2017, 89(5), 699–709
3. 宮崎 直幸, 長尾 遼, 加藤 公児, 沈 建仁, 秋田 総理「クライオ電子顕微鏡単粒子解析による光合成超分子複合体の構造解析」光合成研究, 2018, 28, 111–117.
4. プレスリリース「褐色を呈する光化学系 II-集光性色素タンパク質複合体の立体構造を解明～光合成生物の進化と多様化を解明する糸口に～」2019.7.30
5. Akita F., Nagao R., Kato K., Miyazaki N., Shen J.-R. Cryo-EM structures of photosystem II-antenna supercomplexes. 第 57 回日本生物物理学学会年会(招待講演), 2019.9.24

研 究 報 告 書

「IV 族元素を用いた固体量子光源エンジニアリング」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 岩崎 孝之

1. 研究のねらい

次世代の情報ネットワーク技術として光の量子性を利用した量子ネットワークの構築が推進されており、本研究はその構成要素として有望なダイヤモンド固体中の新しい量子光源について研究を実施する。量子ネットワークは、完全に安全な通信の実現など、これまでの古典ネットワークと異なる性質を有している。量子通信技術の確立には、安定した単一光子源や長距離伝送へ向けた量子中継など様々なデバイスが必要となる。その量子光源として、固体中の量子光源、特にダイヤモンド中のカラーセンターが注目されている。固体中の発光源の利用によって、将来的な量子光源デバイスの集積化や電氣的制御が期待できる。しかしながら、これまで最もよく研究されている窒素-空孔(NV)センターは、全発光強度の内、量子光源として利用できるゼロフォノン線(ZPL)の割合が 4%のみで発光強度が小さく、外部ノイズの影響で発光波長が不安定になるという問題があった。量子光-物質インターフェース応用に必要な優れた光学特性とスピン特性を両立する量子光源はいまだ見出されておらず、本研究はこの問題を解決するためにダイヤモンド中の新しい量子光源を創出することを目的とする。

ダイヤモンドは大きなバンドギャップ(5.5 eV)を有しており、そのギャップ中に多数の発光に寄与する不純物レベルを形成することができる。しかし、これまでに数百種類の発光構造が報告されているが、量子ネットワーク応用に必要な再現良く量子光源を形成できるのは数種類のみであった。量子光源として機能するシリコン-空孔(SiV)センターは高い ZPL の割合を有しているが、スピンコヒーレンス時間が 2～5 K において 1 μ s 以下に制限されている。これは、基底状態分裂幅が小さいために、準位間でのスピントリップが原因となりスピン状態を保てないためである。したがって、本研究では大きな ZPL および優れたスピン特性が期待できるより重い IV 族元素を用いた新しい量子光源に着目し研究を推進する。新しいダイヤモンド量子光源の高品質形成手法を通し、量子光源の光学特性を明らかにする。さらに、量子光源のエネルギーレベルの観測から重い元素を用いた量子光源のスピン特性について研究を実施する。

2. 研究成果

(1)概要

本研究では、シリコンよりも重いIV族元素であるゲルマニウムおよびスズに着目することでダイヤモンド中の優れた量子光源系の研究を推進した。特に、スズ空孔(SnV)センターは本研究で発見した新しい量子光源である(論文成果1)。スズはシリコンおよびゲルマニウムと同じIV族元素であり、周期律表において下に位置する重い元素である。重い元素ほど大きなスピン軌道相互作用を有しているため、カラーセンターにおいても大きな基底状態分裂につながることが期待できる。

スズ原子をダイヤモンド中に導入し量子光源として機能させた例はこれまでになく、本研究で初めて行われたものである。スズはダイヤモンドを構成する炭素原子よりも圧倒的に大きいために、SnVセンターの創出にあたり、まず新しい量子光源形成方法を開発した。ダイヤモンド中のNVセンターやSiVセンターの形成では、イオン注入後に800-1000℃の高温アニールをすることで量子光源を形成することができる。しかしながら、重いスズ原子に対してはこの温度領域では不十分であることが判明し、本研究では2000℃以上での高温高圧アニール手法を用いることで高品質なSnV量子光源を創出することに成功した。

第一原理計算から、ダイヤモンド中に取り込まれたスズ原子は格子間位置に存在し、2つの空孔に挟まれた構造をしていることがわかった。この原子配置は外部電界ノイズの影響を受けにくく、安定した発光波長が期待できる。光学特性評価から、SnVセンターは室温において波長619nmに鋭いZPLをもって発光し、ZPLの割合が数十%に及ぶことがわかった。単一発光源として機能させることにも成功し、その発光強度が従来のカラーセンター(NV, SiV)よりも大きいことを確かめた。

冷却下での計測から、SnVセンターのZPLは4つに分裂し、基底状態分裂がSiV、GeVセンターよりも大きな約850GHzを有することがわかった。この基底状態分裂はSiVの48GHzよりも桁違いに大きいので、スピンコヒーレンス時間を制限するフォノンの影響を大幅に減少させることができる。それにより、2K程度で長いスピンコヒーレンス時間の達成が期待できる。SiVで不可欠な希釈冷凍機を必要とせず、量子ネットワークへの利用が期待でき、この発見は優れた光学特性および長いスピンコヒーレンス時間を有する光-物質量子インターフェースの確立へのブレイクスルーとなる可能性を有している。

(2)詳細

高品質形成手法を用いたダイヤモンド中の新規SnV量子光源の創出

図1(a)に示すように、スズはダイヤモンドを構成する炭素よりも圧倒的に大きいために、ダイヤモンド中に安定して内包され、カラーセンターを形成することができるかが問題である。したがって、新しいSnVセンターの創出を目指し、本研究ではまずSnVセンターの高品質化を目的として研究を実施した。NV, SiV, GeVセンターはイオン注入後に800-1000℃の高温アニールをすることにより発光センターを形成することができる。しかしながら、SnVセンターはこの温度領域でのアニールでは発光線が明確に現れないことがわかった。よって、本研究ではさらに高い温度(最高2100℃)での熱処理を実施した。ただし、常圧下ではグラファイトが炭素の安定相であるため、ダイヤモンドが安定となる高圧下での高温アニールを用いた。図1(b)は

2100°C、7.7 GPa でアニールしたアンサンブル SnV センターからの室温発光スペクトルである（単一光子放出する単一状態に対して、ひとつの計測スポットに多数のカラーセンターがある状態をアンサンブルと呼ぶ）。SnV センターの ZPL として波長 619 nm に鋭いピークが観測された。熱処理温度を高めるほど ZPL の半値幅が小さくなっていった。これは、重いスズイオンの注入によって形成されたダイヤモンド中の結晶欠陥の回復およびスズ原子の安定化位置へのシフトが起こったためだと考えられる。したがって、高品質な SnV センターを形成するためにはこれまで使用されてきた温度以上でのアニールが有効であることを見出した。図 1(c) は第一原理計算により得られた SnV センターの原子構造モデルである。大きなスズ原子は炭素の間である格子間位置に存在し、両隣の炭素が空孔になっている構造を取っている。これは反転対称性を有する D_{3d} 対称性であり、SiV、GeV センターと同様の構造である。したがって、SnV センターは外部ノイズに強い安定した発光線を有する量子光源であることが期待できる。

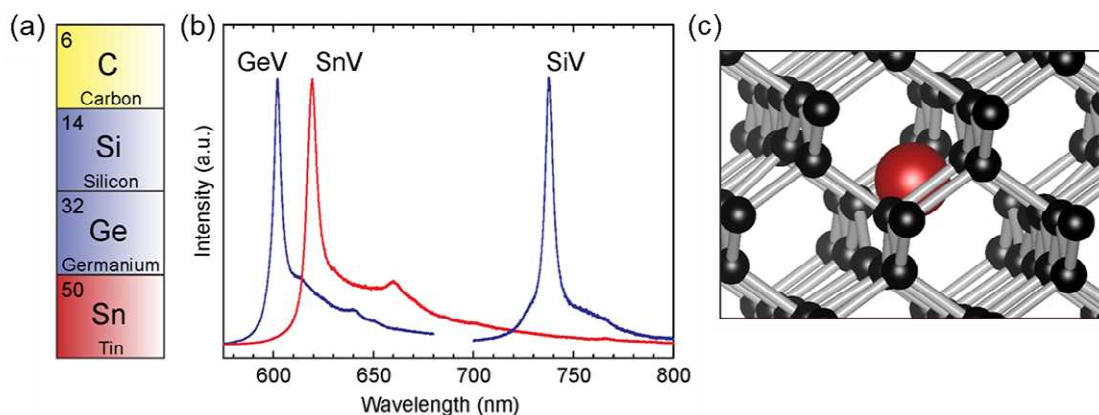


図 1 ダイヤモンド中の SnV センター。(a) IV 族元素の周期表。(b) 高温高圧加熱処理後のアンサンブル SnV センターからの室温発光スペクトル。(c) SnV センターの原子レベル構造。赤丸と黒丸はそれぞれスズ原子と炭素原子。

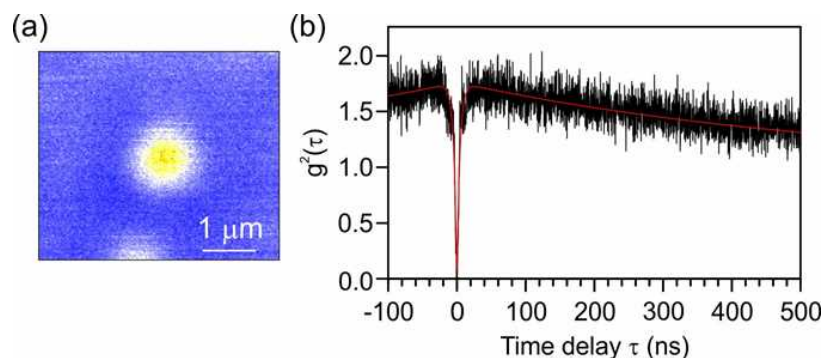


図 2 単一 SnV センターの形成。(a) 共焦点顕微鏡像。(b) 2 次自己相関関数 $g^2(\tau)$ 。

次に、単一光子放出源として機能する単一 SnV 量子光源の形成を実施した。単一状態は、原子レベルでただ一つの SnV センターからなるものである。図 2(a) は単一 SnV センターの共焦点顕微鏡像である。Hanbury Brown–Twiss (HBT) 干渉により 2 次自己相関関数 $g^2(\tau)$ を計測した結果を図 2(b) に示す。検出光をビームスプリッターで分割し、2 つの光検出器を用いて計測している。2 つの検出器に入射する光子のタイミング（遅延時間）を計測することで単一

状態を確認することができる。図 2(b)に示すように、遅延時間 0 ns において $g^2(\tau)$ が 0.5 以下となっており、これは図 2(a)の SnV センターが単一状態であることの証明である。 $g^2(\tau)$ の 3 準位モデルへのフィッティングから SnV センターの励起状態寿命として 5 ns が得られた。重要なことに、SnV センターの ZPL の飽和発光強度は 280 kcps であり、SiV センターに対して 5 倍高いことがわかった。また、異なる単一 SnV センターの発光励起分光の測定において線幅 20 MHz が得られ、これはフーリエ限界線幅に対応している。よって、本研究で開発した高温高压アニールによる活性化手法により、高品質な量子光源を形成できることが明らかとなった。

SnV センターの微細構造の決定と期待されるスピン特性

SnV センターの基底状態分裂を観察するために、低温状態において PL スペクトルによる微細構造計測を行った。室温ではひとつに見えるスペクトルが、温度を下げることによって 4 本に分裂することを確認した。これは、それぞれ 2 つに分裂した基底状態と励起状態間での遷移に対応する(図 3(a))。ピークの分裂から基底状態分裂を求めることができ、SnV センターは 850 GHz の分裂幅を有していることがわかった。この値は SiV センターおよび GeV センターの基底状態分裂よりも 17 倍および 5 倍大きな値である。これは、大きな元素ほどスピン-軌道相互作用が大きくなるために分裂幅も大きくなるため、重いスズ元素を用いた効果である(図 3(b))。

得られた基底状態分裂幅から SnV に期待されるスピン特性を検討した。図 3(c)はフォノンによる電子スピンの遷移レート(γ^+)を基底状態分裂および温度の関数としてマッピングしたものである。遷移レートが小さいほど長いスピンコヒーレンス時間が期待できる。従来の SiV, GeV に関する研究における数 K の温度領域での測定ではスピンコヒーレンス時間は 1 μ s 以下に留まっていた。SiV に関して希釈冷凍機を用いて温度を 400 mK 以下にすることで 10 ms を超える長いスピンコヒーレンス時間が達成されている(D. D. Sukachev, PRL 119, 223602, 2017)。これに対し、基底状態分裂が大きい SnV センターは 2 K で同じ遷移レート、つまり長いスピンコヒーレンス時間が期待できる領域に入ることがわかる。

以上より、SnV センターはこれまでの量子光源が抱えていた優れた光学特性とスピン特性の両立という問題を解決できる可能性を有しており、将来の量子ネットワークにおける光-物質量子インターフェースへの応用が期待できる。

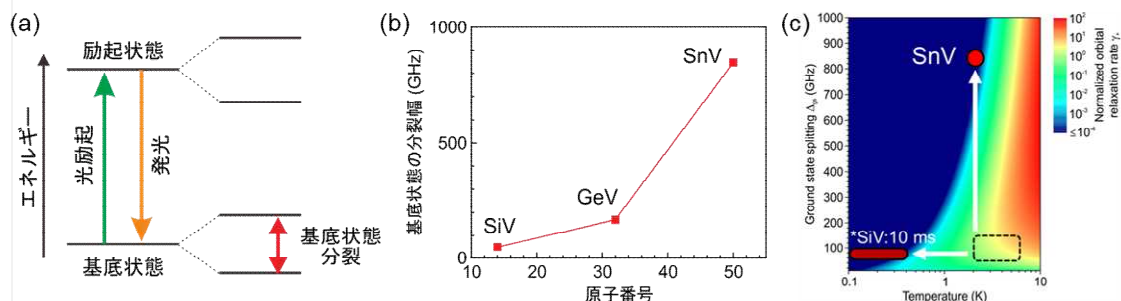


図 3 SnV センターのエネルギーレベルおよびスピン特性。(a) エネルギーレベル。基底状態および励起状態はスピン-軌道相互作用により分裂する。(b) 基底状態分裂幅の比較。(c) 期待されるスピン特性。[*SiV] D. D. Sukachev, PRL 119, 223602, 2017.

3. 今後の展開

本研究では、新しい量子光源であるダイヤモンド中の SnV センターを発見し、優れた光学特性およびスピン特性を両立できる可能性を示した。量子ネットワークへ応用するためには、長スピンコヒーレンス時間の実証、共振器やデバイスによる制御など精密な評価および制御を実施する必要がある。それらを通して単一光子発光源、光-物質インターフェースなど様々な量子光学素子としての応用展開が期待できる。

4. 自己評価

本研究では、究極の量子光源となる可能性を有するダイヤモンド中の新規 SnV センターを発見した。基礎的な光学特性を明らかにし、さらに長いスピンコヒーレンス時間を有する可能性を理論的考察から示した。優れた光学特性およびスピン特性を両立し得る量子光源の発見であり、将来的な長距離量子ネットワーク実現へ向けた大きな成果である。発表した論文(論文成果 1)はすでに被引用回数が 75 回(Google Scholar より)に達しており、世界的にも注目を集めている。SnV 量子光源の研究を通して国内外の多くの研究者との連携が生まれ、本研究で得られた成果をもとに、量子技術領域において今後さらに世界的に発展していくことが期待できる。

参画領域である「光の極限制御・積極利用と新分野開拓」は研究者自ら設定した極限を追い求めることを期待されている領域である。本研究は、新しい量子光源形成技術を通して究極の量子光源となり得る SnV 量子光源の発見を行い、さらにその特性を限界まで高めることを目標に研究を推進した。完璧な高品質形成手法の確立にはさらなる研究が必要であるが、基盤技術となる新しい量子光源の形成手法の開発など、量子光源の極限性能を追求する研究を推進することができた。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1.	T. Iwasaki, Y. Miyamoto, T. Taniguchi, P. Siyushev, M. H. Metsch, F. Jelezko, M. Hatano, Tin-Vacancy Quantum Emitters in Diamond, Phys. Rev. Lett. 2017, 119, 253601.
2.	S. Haeussler, G. Thiering, A. Dietrich, N. Waasem, T. Teraji, J. Isoya, T. Iwasaki, M. Hatano, F. Jelezko, A. Gali, A. Kubanek, Photoluminescence excitation spectroscopy of SiV ⁻ and GeV ⁻ color center in diamond, New. J. Phys. 2017, 19, 063036.
3.	J. Yaita, T. Suto, M. Natal, S. E. Sadow, M. Hatano, T. Iwasaki, In situ bias current monitoring of nucleation for epitaxial diamonds on 3C-SiC/Si substrates, Diam. Rel. Mater. 2018, 88, 158-162.
4.	E. A. Ekimov, M. V. Kondrin, V. S. Krivobok, A. A. Khomich, I. I. Vlasov, R. A. Khmelnitskiy, T. Iwasaki, M. Hatano, Effect of Si, Ge and Sn dopant elements on structure and photoluminescence of nano- and microdiamonds synthesized from organic compounds, Diam. Rel. Mater. 2019, 93, 75-83.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 【受賞】文部科学大臣表彰若手科学者賞、「ワイドバンドギャップ半導体中の固体量子光源に関する研究」 2019 年 4 月 17 日.
2. 【プレスリリース】“高温で安定化する新しいダイヤモンド量子発光体の作製に成功 ~ 量子ネットワークへの応用に期待~” 2017 年 12 月 26 日.
3. 【招待講演】 T. Iwasaki, “Diamond Spin Defects for Quantum Technologies” Frontiers in Quantum Materials & Devices Workshop, Tokyo, 27th May, 2019.
4. 【招待講演】 岩崎孝之, “ダイヤモンドの IV 族-空孔色中心の新展開” 一般社団法人ニューダイヤモンドフォーラム 平成 30 年度第 1 回研究会、東京、2018 年 6 月 27 日.
5. 【招待講演】 T. Iwasaki, “Quantum technologies using diamond color centers” Impurity Spins for Quantum Information and Technologies 2017, Okinawa, Japan, September 13th, 2017.

研 究 報 告 書

「原子コヒーレンスによる微弱 QED 過程の極限制御」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 植竹 智

1. 研究のねらい

本研究では、光と物質のコヒーレント相互作用の極限操作により、弱い相互作用を含む電弱過程を人為的に制御する方法の確立を目指すことと、それにより標準理論を超えた物理の構築へ貢献することを長期的な目標としている。2012 年のヒッグス粒子発見により、建設から数十年を経て標準理論は確立した。数々の輝かしい成功の一方で、ニュートリノが質量を持つことや、宇宙の物質・反物質不均衡、暗黒物質・暗黒エネルギーの存在など、標準理論では説明できない現象も明らかになっており、これらの現象を説明できる新しい理論が必要とされている。標準理論を超えた物理の構築と、これと密接に関連したニュートリノの性質解明は、現代の基礎物理学における喫緊の課題と言える。本研究は、この課題に AMO (Atomic Molecular and Optical Physics) 分野で発達した「媒質のコヒーレンスによる放射レート増幅」の手法を用いて挑戦していく。具体的には、原子や分子の準安定励起状態から光子を伴ってニュートリノ対を放射する過程 (Radiative Emission of Neutrino Pair: RENP 過程) の発生レートを、媒質のコヒーレンスを用いて大幅に増強し観測する。これにより未解明のニュートリノ基本パラメータである質量絶対値や質量タイプ (ディラック型かマヨラナ型か) などを精密に測定することが究極的な目標である。

RENP 過程は理論的な可能性が指摘されているだけであり、実現は容易ではない。RENP 過程観測という長期目標の実現に向け、本研究ではその基盤技術開発を進めることを研究期間中の目標とする。具体的には、(1) 原子・分子集団にマクロスケールの大きなコヒーレンスを生成するために必要となる高品質レーザー光源開発を進め、(2) 開発したレーザーを用いて生成した「コヒーレントな物質」を用い、微弱な QED 過程である多光子放射過程の発生レートを大幅に増強し観測する。そして(3) Maxwell-Bloch 方程式による数値シミュレーションと実験結果の比較により、光と物質の非線形光学応答に対する理解を深めていくことが目標である。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究では、原子・分子集団に高いコヒーレンスを生成し、生成した「コヒーレントな物質」を用いて微弱な QED 過程である多光子放射過程の発生レートを増強して観測することが目標である。このために必要な狭線幅・ハイパワー光源は、その発振波長を原子・分子の遷移波長に合わせる必要があり、市販レーザーでは対応できない。このためまず、対象とする水素分子 (波長 4.8 μm) および Xe 原子 (波長 298 nm) の遷移波長に合わせた光源を独自に設計し、開発を進めた(研究項目 A)。開発した光源を用い、水素分子の振動励起状態からの E1 $\times$ E1 二光子放射レートを高めて観測する。原子・分子コヒーレンスを使った 1 光子放射レートの大幅な増強は「超放射」として知られているが、本研究はそれを二光子放射過程に拡

張したもので、二光子対超放射 (Paired Super-Radiance: PSR)」と呼んでいる。パラ水素分子を用いた PSR 観測は本研究開始以前に成功していたが、本研究でさらにこの技術の応用可能性を探る研究や、Maxwell-Bloch シミュレーションとの比較により発生機構の理解を深める研究を進めた (研究項目 B)。また、基底状態とパリティの異なる準安定状態を持つ Xe 原子を対象に、開発したレーザーによりコヒーレンスを生成し、微弱な QED 過程である $E1 \times M1$ や $E1 \times E2$ 型の二光子放射観測を目指した研究を進めた (研究項目 C)。

(2) 詳細

研究テーマ A「原子・分子間コヒーレンス生成のための基盤技術開発」

高いコヒーレンスを持つ原子集団とは、個々の原子の基底-準安定励起状態間の重ね合わせの位相が、数 cm というマクロなスケールで一致した状態のことを指す。このような状態を実現するには、遷移に共鳴する波長で線幅の十分狭いコヒーレントなレーザーを用いる必要がある。また、多数の原子を準安定状態へ励起するには二光子励起が有利なため、ピーク強度の高い光源が必要である。この要求を満たす光源として、ナノ秒程度のパルス幅を持ち、線幅 100 MHz 程度 (フーリエ限界) の光源を独自に設計し開発を進めた。

パラ水素分子の振動励起状態への励起および PSR を誘起するために必要な光源として、本研究では波長 $4.8 \mu\text{m}$ 、パルス出力 5 mJ、パルス幅 5 ns、線幅 150 MHz (ほぼフーリエ限界) の中赤外パルス光源を開発した。光源は図 1 (a) に示すような 3 段構成になっている: 初段の注入同期光パラメトリック発生 (Injection-seeded OPG) では、線幅 1MHz 以下の外部共振器型半導体レーザー (ECDL) を光アンプ (TA) で増幅した連続波発振光を種光として非線形光学結晶 LBO へ入射し、波長 871 nm および 1367 nm の狭線幅パルス光を生成する。これを 2 段目の光パラメトリックアンプ (OPA) で増幅した後 1367 nm のみを取りだし、最終段で非線形光学結晶 KTA による差周波発生 (DFG) により $4.8 \mu\text{m}$ の中赤外光を発生させた。パラ水素分子にコヒーレンスを生成するために十分な性能を得ることができ

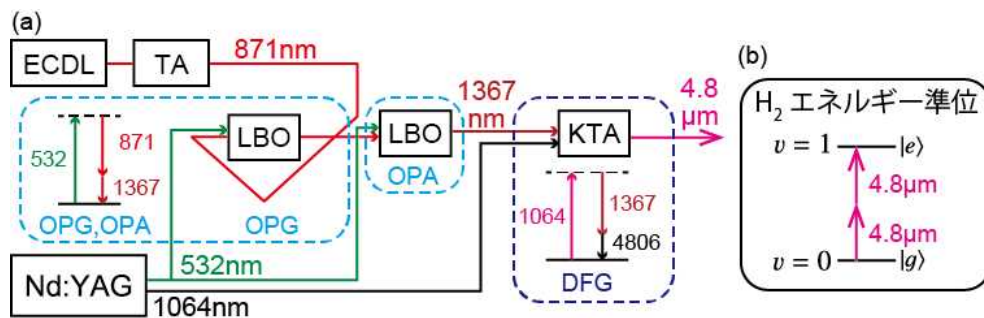


図 1(a) 開発した水素分子励起用狭線幅中赤外パルス光源、(b) 水素分子エネルギー準位

た。
次に Xe 原子のコヒーレンス生成に必要な波長 298 nm の光源開発を進めた。図 (a) に示す 4 段の構成になっている: 初段は水素分子励起用光源と同様の手法により、波長 875 nm の狭線幅パルス光を発生させる。これをチタンサファイア (Ti:S) 結晶を用いたマルチパスアンプにより増幅して LBO 結晶へ入射し、Nd:YAG レーザー 3 倍波 (波長 355 nm) との差周波である 596 nm のパルスを生成する。これを LBO 結晶により 2 倍波に変換し 298 nm を

得る。得られた 298 nm はパルス出力 8 mJ、パルス幅 2.7 ns、線幅 250 MHz (ほぼフーリエ

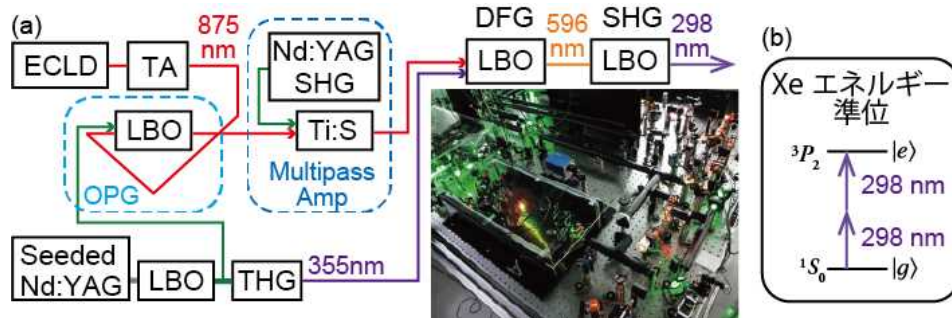


図 2 (a) 開発した Xe 原子励起用狭線幅紫外パルス光源, (b) Xe 原子エネルギー準位

限界) であり、目標とする Xe 原子のコヒーレンス生成に十分な性能を得られた。

研究テーマ B 「パラ水素分子による E1 × E1 二光子放射過程の詳細研究」

本研究では PSR を応用することで、数十テラヘルツ帯で線幅 100 MHz 程度の狭線幅かつハイパワーを得られるナノ秒パルス光源としても利用可能であることを示した (論文リスト 3)。この研究では、図 3 に示すように波長 532 nm と 683 nm のパルス光によるラマン励起でパラ水素

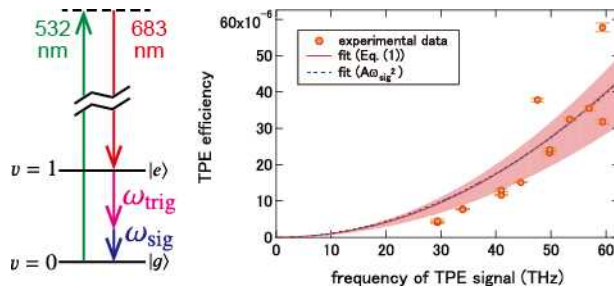


図 2 パラ水素による遠赤外波発生

のコヒーレンスを生成した。コヒーレンス生成と同時に 3.1 μm ~ 4.8 μm の範囲で波長可変な中赤外光源をトリガ光として入射することで、波長 4.9 μm ~ 10 μm (60 THz ~ 30 THz) のシグナル光を得た。図 3 に示すように理論的な予想とも良く一致している。現時点では変換効率が 10^{-5} 程度と低い、これはコヒーレンス生成光源の出力が 5mJ 程度しか無かったためである。光源パワーを上げることでさらに高い変換効率を得ることは可能である。

また、本研究で開発した波長 4.8 μm の中赤外光源を用いて、対向入射によるラダー型コヒーレンス生成 (図 1b) と PSR 観測にも成功した。同方向のラマン励起ではドップラー広がり decoherence の要因となるが、対向励起ではこれをキャンセルできる。また、RENP 過程実現やニュートリノの質量タイプ (ディラック粒子かマヨラナ粒子か) を判別するためには、対向励起が重要であることが理論家との共同研究でわかっている (論文リスト 4)。対向励起によるコヒーレンス生成と PSR 発生のメカニズムを詳細に理解するため、数値シミュレーションコードを開発し実験との比較を進めた。基本となる方程式は、Maxwell-Bloch 方程式と呼ばれる時間・空間の連立偏微分方程式である。入射レーザーと原子・

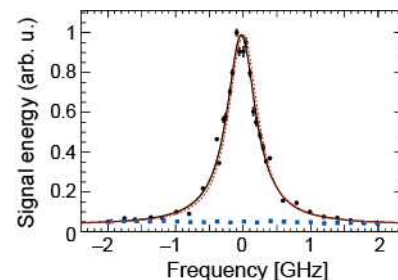


図 3 パラ水素の対向励起による PSR 発生。赤破線の Maxwell-Bloch シミュレーションと実験結果 (黒丸) は良く一致している。

分子の相互作用により生じる分極を Bloch 方程式で記述し、媒質中の電磁波伝搬を表す Maxwell 方程式と組み合わせた方程式である。本研究で Maxwell-Bloch 方程式による対向励起のシミュレーションコードを開発し、実験結果と比較した。図 4 に示すように、シミュレーションの結果（赤破線）は実験データ（黒丸）を良く再現しており、開発したシミュレーションコードが適切であることを示している。その他、水素分子密度と PSR 強度の関係や、コヒーレンス生成光とトリガ光の入射角度依存性などの詳細を調べ論文としてまとめた（論文リスト 1、2）。

研究テーマ C 「Xe 原子による $E1 \times (M1+E2)$ 二光子放射レート増幅の研究」

パラ水素分子は基底状態と準安定状態が同じパリティであり、 $E1 \times E1$ 二光子遷移許容である。一方、基底状態と準安定状態のパリティが異なる原子では $E1 \times E1$ 二光子遷移が禁制となり、 $E1 \times M1$ 二光子遷移などのより微弱な QED 過程のレート増幅を実現・観測するために適している。本研究では $E1 \times (M1+E2)$ 二光子放射レートの増幅を目指し、開発した 298 nm パルス光源を用いて Xe のコヒーレンス生成実験を進めた。現在 10^6 個以上の Xe 原子を準安定状態へ励起し、コヒーレンスを生成することには成功しているが、 $E1 \times (M1+E2)$ 二光子放出の検出はまだ実現に至っておらず、研究途上である。現在理論家との共同研究により、Xe 原子の様々な電子励起状態間の M1 遷移や E2 遷移レートの理論値から二光子励起レートを求め、実験との比較を進めている。

3. 今後の展開

本研究で得られた成果・知見を更に発展させ、微弱な QED 過程の放射レート増幅を実現する。また、将来的な RENP 過程の実現には、高密度かつ低デコヒーレンスである媒質を用いることが重要である。高密度化のため、デコヒーレンスの小さい固体結晶中の不純物イオン準位を使った研究を展開する。対象とするイオンの共鳴準位に合わせた高品質レーザー光源開発については、本研究で十分な経験を得ることができたので、今後の開発は容易である。

4. 自己評価

本研究の目標の一つである高品質レーザー光源開発については、中赤外（4.8 μm ）から紫外（298 nm）に至る様々な波長でほぼフーリエ限界のパルス光源開発に成功した。光源の高出力化についても様々な知見・経験を得ることができ、ほぼ当初の目標を達成できたと思う。また、Maxwell-Bloch 方程式に基づくシミュレーションについても、パラ水素による対向励起実験を良く再現するプログラムができており、光と物質の非線形光学応答に対する理解はかなり深めることができたと考えている。一方で、目標として掲げた微弱な QED 過程である $E1 \times M1$ 二光子遷移の放射レート実現にはまだもう少し時間を要する見込みである。本研究で実現した Xe の二光子励起は過去に例が無いもので、現在理論家との共同で論文を準備中であるが、原著論文での発表は研究期間終了後となる見込みである。

以上のように、当初の目標を全て達成するには至らなかったが、RENP 過程観測という大目標の実現に向け、着実に前進していることは貴重な成果だと考えている。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1. H. Hara, Y. Miyamoto, T. Hiraki, K. Imamura, T. Masuda, N. Sasao, S. Uetake, A. Yoshimi, K. Yoshimura and M. Yoshimura, Geometry-dependent spectra and coherent transient measurement of nearly degenerate four-wave mixing using two-photon resonance, J. Phys. B (in press)
2. T. Hiraki, H. Hara, Y. Miyamoto, K. Imamura, T. Masuda, N. Sasao, S. Uetake, A. Yoshimi, K. Yoshimura and M. Yoshimura, Coherent two-photon emission from hydrogen molecules excited by counter-propagating laser pulses, J. Phys. B vol. 52, no. 4, 045401 (2019)
3. H. Hara, Y. Miyamoto, T. Hiraki, T. Masuda, N. Sasao, S. Uetake, A. Yoshimi, K. Yoshimura, and M. Yoshimura, Frequency dependence of coherently amplified two-photon emission from hydrogen molecules, Phys. Rev. A, vol. 96, no. 6, 063827 (2017)
4. M. Tanaka, K. Tsumura, N. Sasao, S. Uetake, and M. Yoshimura, Effects of initial spatial phase in radiative neutrino pair emission, Phys. Rev. D 96, 113005 (2017)

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

該当なし

研 究 報 告 書

「モノサイクル X 線自由電子レーザー実現に向けた高出力シード光源開発研究」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 12 月～2020 年 3 月

研 究 者: 貴田 祐一郎

1. 研究のねらい

本研究では、zeptosecond X 線自由電子レーザー、つまり、モノサイクル(単一周期)X 線自由電子レーザーを見据えた次世代自由電子レーザー理論“モノサイクル高調波発生(Monocycle harmonic generation, MCHG)”の原理検証を可能とする高出力シード光源を創出することをねらいとした。

2015 年、理研の研究者からモノサイクル X 線自由電子レーザーを実現するためのコンセプト(前述の MCHG)が世界へ発信された。極限までパルス幅の圧縮された単一周期光パルスを、光の単一周期極限線に沿って短波長へ波長変換する手法である。他の方法論と異なり、複数段を経ることで、zeptosecond X 線自由電子レーザーを実現できる可能性がある。そして、その道を拓くためには MCHG 理論の原理実証が必須である。

MCHG 理論提案では高次高調波発生により得られる波長 60 nm の極端紫外光がシード光源として仮定され、数値計算研究が行われている。しかし高次高調波をシード光源としたシード型自由電子レーザーが利用に資する安定光源を与えて来なかった経緯を踏まえれば、高い安定性が得られ易い長波長の超短パルスレーザー光源をシード光源に用いることが現実的であると考えられる。一方で、電子ビームへ高周波のエネルギー変調を与える(自由電子レーザー波長を短波長化する)ためには短波長のシード光源が有利という逆の要請もある。これら相反するシード波長に対する要請を勘案すると、267 nm 近傍の紫外域がシード波長の候補として浮かび上がる。実際、レーザーシード型自由電子レーザーとして安定稼働し、利用者に長年レーザー光を提供してきた海外自由電子レーザー施設においては電子ビームのエネルギー変調に波長 267 nm のレーザー光源が用いられてきた。

以上の背景の下、本さがけ研究では紫外域に目を向け、MCHG 理論の原理検証に資する高出力紫外モノサイクルシード光源技術を創出することをねらいとした。紫外モノサイクルレーザー光源は世界で前例がない。実現のための新奇方法論の提案、原理検証、そのために必要な要素光源・計測技術基盤の形成を含む一連の研究を推進した。

2. 研究成果

(1) 概要

波長 800 nm、パルス幅約 40 fs フェムト秒レーザーパルスを励起光源として白色光を発生させ、それを分光・増幅する可視(波長約 520 nm)、近赤外(波長約 1200 nm)の 2 種の光パラメトリック増幅器を構築した。量子干渉を利用してこれら 2 レーザー光を時空間軸上で合成し、単一周期幅で周期的にピークを形成するレーザー光源を開発した(研究テーマ A)。また、希ガス充填中空ファイバー中の自己位相変調と負分散鏡を併用し、サブ 10 fs 短パルス光源を開発した(研究テーマ B)。以上の光源の内、波長 800 nm と波長 1200 nm の 2 光源を用い

て気体中で四波混合を誘起し、紫外光を発生させる実験研究を推進した。連続的なスペクトル構造を持つ光や、複数のスペクトルピークを持つ光等が出力される挙動が観測され、方法論[Phys. Rev. A 96, 063840 (2017)]と矛盾のない結果が得られている。

当初想定されていなかった成果も得られた。第三高調波発生に関する成果であり、パルス幅 2-3 fs に相当する広帯域の紫外放射が得られると同時に、報告例の無い特異な挙動も観測されている。観測された第三高調波発生に関する挙動は先の四波混合に関する挙動と併せて一種の光極限“単一光周期極限における摂動論的非線形光学”と位置づけ、統一して解釈できることが明らかとなった。

極短光パルス波形計測について、気体を媒質とした相互相関計測技術を研究した。パルス幅 8 fs の光パルスを試験パルスとして用いた実験研究を推進し、既法による計測結果と比較し、両者が同一の波形を与えることを示した。既法とは異なり、本法は原理上紫外モノサイクルパルス計測に利用可能である。更に、過渡回折格子効果に基づく本法には、非線形動作領域(異常動作条件)があることを明らかにした。この領域で利用した場合、測定対象パルスの幅を著しく過小評価してしまう危険性の高い手法であることを明らかにすると同時に、それを避ける複数の技術的手段を見出し、光計測技術として確立させた。長年広く利用されてきた和周波混合に基づく既法よりも堅牢な計測技術であることも見出した。

(2) 詳細

研究テーマ A「近赤外モノサイクルパルス列光源開発」

波長 800 nm、パルス幅約 40 fs フェムト秒レーザーパルスを励起光源として白色光を発生させ、分光・増幅する可視(波長約 520 nm)、近赤外(波長約 1200 nm)の 2 種の光パラメトリック増幅器を構築した。量子干渉を利用してこれら 2 レーザー光を時空間軸上で合成し、単一光周期幅で周期的にピークを形成するレーザー光源を構築した。これは紫外モノサイクルパルス発生に要する入射光源の一つである。研究開始当初は 3 色以上のレーザー光源を合成する計画であったが、最終的に得られる紫外モノサイクルパルス光源安定性の観点から方式を見直し、検討を重ねた結果、2 レーザー光で十分であることが結論付けられ、前述の通り 2 色のレーザー光源のみを合成して本研究項目を終えた。

研究テーマ B「サブ 10 fs 超短パルス光源開発」

本研究項目は、本さきがけ研究課題において必須ではあるが主題ではないことを踏まえ、迅速な目的達成のため、希ガス充填中空ファイバー中の自己位相変調と負分散鏡を併用する既存技術に基づき、高強度サブ 10 fs 短パルス光源を構築した。これを 2 つに分岐し、パルス幅 8 fs 以下の時間波形形状の滑らかな短パルスビームラインを 2 本構築した。

研究テーマ C「モノサイクル深紫外超短パルス光発生」

① 非線形パルスピッカー原理実証実験研究

紫外モノサイクルパルス発生用入射光源の内、波長 800 nm と波長 1200 nm の 2 色のフェムト秒レーザー光を用いて非線形パルスピッカー原理検証実験(スペクトル計測実験)を行った。得られた出力光のスペクトルを図 1 に示す。2 色のフェムト秒レーザー光の相対位相(図中の位相差)に依存し、スペクトル形状が連続的な形状(図中赤線)と、複数ピークから為る形状(図中青線)との間で変化する様子が確認された(図 1)。本さがけ研究課題の基礎となる方法論[Phys. Rev. A 96, 063840 (2017)] と矛盾無く、入射パルス包絡線の変化と関連付けて観測された挙動を定性的に説明できることが確認された。つまり、さがけ研究目的である紫外モノサイクルパルス発生に資する想定通りの光発生挙動が観測された。

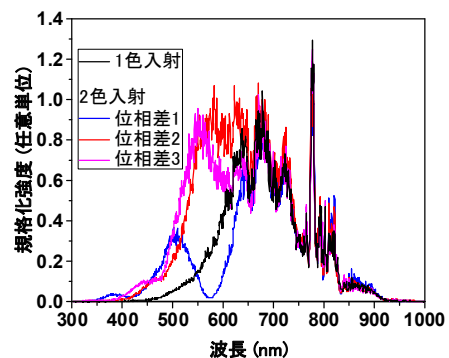


図 1. スペクトルの相対位相依存性

② 第三高調波発生に関する特異な挙動

本成果は前項目の研究推進中に偶然得られた成果である。具体的には 2 つのレーザー光同時入射時に、パルス幅 2-3 fs に相当する広帯域の紫外放射(第三高調波)が得られた(図 2)。また、2 つの入射レーザー光の相対位相差(図中の位相差)に依存して連続的なスペクトルが得られる場合(図 2 赤線)、孤立した 2 つのピークから成るスペクトルが得られる場合(図 2 青線)の 2 種が確認された。そして、本挙動も前項目の四波混合に関する成果同様、電場の包絡線形状に基づき定性的に説明できることが明らかとなった。物理に関する得られた理解を基盤とし、モノサイクルダブルパルス生成並びに、その構成パルス間隔のレーザー周波数による受動固定(passive stabilization)など、新しい光制御技術応用の方向性も見出された。

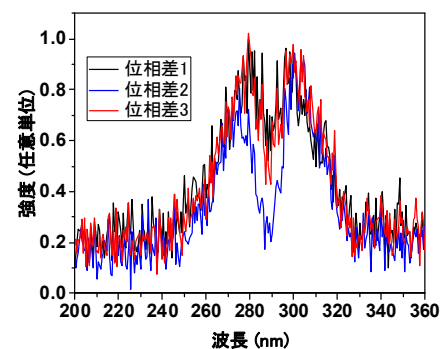


図 2. 第三高調波スペクトル

③ 気体中の過渡回折格子効果に基づく時間波形計測法

本さがけ研究課題目的達成のためには紫外モノサイクルパルス計測技術が必要である。しかし現在までに紫外モノサイクルパルスを計測する技術は確立されておらず、2019 年出版の複数の論文にそのことが明記されている。さがけ研究課題開始時より新奇時間波形計測技術の研究を一項目として計画に組み込み、2018 年度までの参照光源の整備を経て、2019 年度に気体中の過渡回折格子効果に基づく相互相関周波数分解光ゲート法の研究を本格始動・完了し、結果として極短光パルス計測技術が創出された。

また、報告例の無い非線形動作領域(異常動作領域)の存在についても研究の過程で突き止めた。それを線形動作領域(正常動作領域)と切り分けるための複数の技術的手段を含め、技術的障害とそれらを除く手段の研究を進め、最終的に計測技術として完成させた。前述の正常動作の検証無く利用した場合、過渡回折格子を利用した時間波形計測法は、測定対象パルスの幅を非常に狭く過小評価してしまう極めて危険な手法であることも明らかにした。

測定対象波長・パルス幅を制限しない本法は汎用的かつ高い精度と信頼性を有するレーザーパルス時間波形計測技術として光科学技術の発展に資する可能性がある。広く利用される和周波混合を利用した周波数分解光ゲート法(図3点線、既法)よりも原理・実験の両面から堅牢な技術であることも見出された。

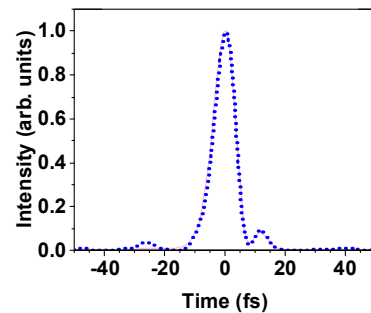


図3. 時間強度波形計測結果.
点線は既法(和周波混合)による同一光源計測結果

3. 今後の展開

今後の研究の展開の方向性の一つとして、例えば、イタリアのレーザーシード型自由電子レーザーに使用される紫外シードレーザー光源と同等の安定性を持つモノサイクル紫外光源技術へと高度化する研究展開の方向性が挙げられる。本さきがけ研究は、方法論の提案から原理検証までを含む基礎研究であったため、広いパラメータ空間上で光源開発研究を推進した。そのため各要素に冗長性が持たされた機器構成になり、全て3 m x 1.5 mの面積に収まっているものの、簡素化を経た小型化の余地がある。つまり、モノリシックな紫外モノサイクル光源への研究展開の方向性とそれによる安定性の向上を出口とした技術開発の方向性が展開の一つに挙げられる。また、真空紫外モノサイクル光源を先に見据えた光源波長短波長化研究も研究展開としてあり得る。その他光パラメトリックチャープパルス増幅等の既存光源技術との組み合わせによる更なる高強度化、搬送波包絡位相安定化の方向性も考えられる。

そして、本研究で形成された気相の過渡回折格子効果に基づく光計測技術基盤は、電子動力学研究に利用される過渡回折格子法[例えば、Faraday discussions 212, 157 (2018)]と同配置であり、共存する。即ち、測定対象パルスを本技術で計測後、気体媒質を入れ替え、そのまま時間分解分光計測を開始、データ取得、解析する、という一連の流れを堰き止めることなく、繋ぐことが出来る。紫外モノサイクルパルスを用いれば、紫外サブフェムト秒科学を開拓する手段へとそのまま変貌する。紫外モノサイクルパルス光源と本計測技術の組み合わせによるこうした紫外光科学の開拓も、研究成果を基盤とした今後の展開の可能性の一つとして描くことができる。

4. 自己評価

・研究目的の達成状況

本報告書執筆時点では本研究課題の目的は達成されていないが、必要な各種要素光源開

発、時間波形計測技術開発を終え、研究期間内の紫外モノサイクルパルス発生・計測の目的達成が見込まれている。

・研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)

本研究は研究代表者一人で推進し、研究期間全体を通して概ね想定通りに進捗した。研究費執行状況について、本研究開始当初から必要最低限の性能、もしくは、不明ではあるが使用できる可能性のある安価なカタログ製品を設定予算の制約内で導入・試験しながら光源開発を推進した。本研究初期は執行研究費節減と引き換えに多くの時間を消費したが、安価な量産品の中にいくつかの良質で高性能な光学部品が存在を認めることができた。蓄積された情報を背景に、研究期間後半において、時間と研究費を過度に消費することなく、真に必要な箇所に集中・執行することが可能となった。研究期間全体として、有効な研究費執行が行われたように感じている。

・研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果(今後の見込みを含む)

本研究ではモノサイクル X 線自由電子レーザー実現に向けた紫外モノサイクルレーザー光源創出を目的に研究を推進したが、研究期間を通して得られた紫外極短パルス光源技術はこれに代表される次世代 X 線レーザー技術の発展に、直接的、或いは間接的に資すると考えられる。

また、本研究がキーワードとした「紫外」域は、種々の光材料や半導体、また核酸等ベンゼン環を有する化合物が光を吸収して極短時間電子応答を示す重要な波長域である。アト秒とフェムト秒の境界領域の時間分解能で光物理・化学反応過程の起点となる電子の動きを直接捉える手段が得られれば、光科学分野で重要な位置づけを占める新たな光物性研究領域、即ち、紫外サブフェムト秒科学が創出されるはずである。本さがけ研究が研究対象とした紫外モノサイクル光源はこうした新しい紫外光科学への扉を開く鍵の一つとして見ることもできる。2019 年より既にその潮流が世界で生じ始めている(例えば, Opt. Lett. 44, 1308 (2019), Phys. Rev. A 99, 063405 (2019))当該紫外光科学研究領域に対して、本光源に関する成果は、光計測に関する本研究の別の成果(2つ目の鍵)と共に開拓の原動力を形成する可能性がある。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

- | |
|---|
| 1. Yuichiro Kida. Isolation of an energetic monocycle optical pulse in the ultraviolet range. Physical Review A. 2017, 96, 063840/1-6 |
| 2. Yuichiro Kida. Transient grating in a thin gas target for characterization of extremely short optical pulses, Optics Letters, accepted |

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表(招待講演)

1. Yuichiro Kida. DEEP UV MONOCYCLE LASER FOR SEEDING OF NEXT GENERATION XFEL. Topical Problems of Nonlinear Wave Physics (NWP-2017), ロシア モスクワサンクトペテルブルグ, 2017 年 7 月 22-28 日
2. 貴田 祐一郎. 単一光周期非線形光学が創出する紫外極短パルス光源. 日本分光学会 紫外フロンティア分光部会第2回講演会「紫外フロンティア分光研究の最前線」, 名古屋大学東山キャンパス, 2020 年 1 月 6 日
3. 貴田 祐一郎. 単一光電場周期内で駆動される非線形光学効果に基づく紫外極短光パルス発生. レーザー学会学術講演会第40回年次大会, 宮城県仙台市, 2020 年 1 月 20-22 日

研究報告書

「局所応カイメージング技術の限界を突破する『光分子力学』の開拓」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

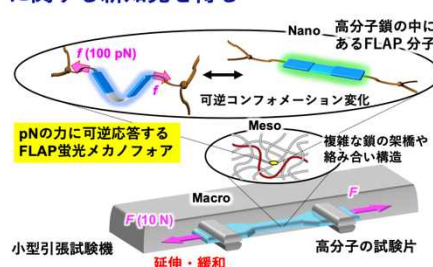
研究者: 齊藤 尚平

1. 研究のねらい

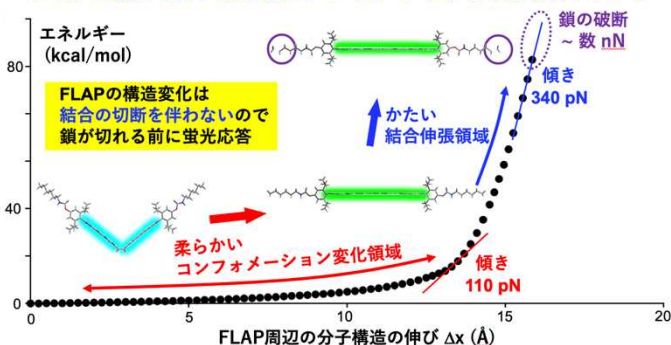
局所的な微弱応力や粘度を解析する技術は、ソフトマテリアルや分子細胞生物学の先端研究において重要な役割を果たしている。対象物の力学的性質や運動現象を1次構造から根源的に理解し、材料開発や医療応用につなげるためには、局所応力や局所粘度の解析は避けて通れない課題であり、レオロジーやメカノバイオロジーと呼ばれる分野でさらに重要性を増している。現在、実際に応用されている主要な局所応力解析技術として、「原子間力顕微鏡(AFM)」と「光ピンセット(Optical Tweezers)」が挙げられる。しかし、これらの技術は、運用できる対象物や測定環境に原理的制約が存在するため、たとえば複雑に絡みあった高分子鎖の1本1本にかかっている力の分析には使えない。そこで本研究提案では、独自に開発した「単一で張力に応答して発光色が変化する分子群 FLAP」を研究基盤として、有機材料科学の発展を妨げている局所応力解析技術の限界を突破することを目的とした。

羽ばたく発光分子 FLAP は、1つ1つの分子が外部からかかる微弱な張力を感じとってV字型から平面型へと可逆に分子形状と発光特性を変えられる、柔軟なメカノフォアである。すなわち、FLAP は従来のメカノフォアと異なり、共有結合の切断を伴わずにコンフォメーション変化だけで発光特性を変えることができるため、より微弱な力を可逆的に追跡できる。そこで、有機合成によって FLAP の励起-発光波長、応答する力の閾値、対象物内部における局在箇所を自在に設計することで、複雑系におけるナノレベルの応力情報をリアルタイムに定量する革新的な光解析技術の創出を目指した。研究アプローチとしては、FLAP 分子の精密有機合成およびその重合による高分子化、高分子延伸と蛍光スペクトル・蛍光イメージングの同時測定、分子の動きを考慮した DFT 計算と分子動力学(MD)シミュレーション、単一分子分光解析などをフル活用し、異分野技術を融合させながら局所応力(および局所粘度)の謎に迫った。

独自の羽ばたく発光分子FLAPを用いて、有機材料の破壊の原因である局所応力集中に関する新知見を得る



FLAPは弱い力に可逆的にレシオメトリック蛍光応答できる



2. 研究成果

(1) 概要

前述の研究のねらいを達成すべく、下記研究テーマ A-C に着手した。それぞれ、基盤とした分子技術と得られた基礎科学的な成果、そして社会的な意義を記載した。

研究テーマ A	FLAP 骨格のライブラリー化によるメカノフォア特性の制御
基盤分子技術 1	励起・発光波長が制御された FLAP を合成した
基盤分子技術 2	応答する力の閾値が制御された FLAP を合成した
基盤分子技術 3	局所粘度には応答せず局所応力にのみ応答する FLAP を合成した
基礎科学的な成果	観察対象物に応じて選べる柔軟なメカノフォアシリーズを構築した
社会的な意義	より多くの対象物に局所応力解析を適用する準備を整え、材料の破壊メカニズム解明や強靱化設計につながる基盤をつくりあげた

*該当成果リスト: 論文 #1,2,3,5 特許出願 #1, 2 (国内, 国際)

研究テーマ B	高分子中における FLAP の局在制御と局所応力集中の評価
基盤分子技術 1	架橋高分子の主鎖と架橋点それぞれに選択的に FLAP を導入した
基盤分子技術 2	ポリウレタンやポリカーボネートなどの異なる高分子へ導入した
基礎科学的な成果	架橋高分子における局所応力が主鎖よりも架橋点に集中することを実験と理論の両面から示し、さらに亀裂進展過程における顕微応力イメージングの動画を取得することに成功した *理論(粗視化 MD 計算)は増淵雄一教授(名古屋大)との共同研究
社会的な意義	分子レベルで応力を分散させて強靱な高分子を設計するためには架橋点の化学構造が特に重要であることを示し、架橋部への工夫次第で高分子材料に新たな力学機能が付与できることを裏付けた

*該当成果リスト: 論文投稿準備中 特許出願 #1,2 (国内, 国際)

研究テーマ C	FLAP の光耐久性向上と 1 分子解析・高速構造解析への適用
基盤分子技術 1	全く新しい超耐光性 FLAP 骨格を合成した
基盤分子技術 2	従来の FLAP に窒素原子を組み込んで光劣化機構を抑制した
基盤分子技術 3	超高速電子線回折法で構造解析可能な FLAP 液晶を合成した
基礎科学的な成果	耐光性の高感度蛍光粘度プローブの開発と、ソフトマテリアル内部における局所かつ高速な構造変化の実験的追跡に成功した *精密蛍光寿命解析は倉持光研究者(3期生, 理研)との共同研究 *1分子蛍光分光解析は Vacha Martin 教授(東工大)との共同研究 *超高速電子線回折は羽田真毅准教授(筑波大)との共同研究
社会的な意義	小分子を分離する薄膜(分子ふるい膜)の性能などを左右する「高分子中の微視的空隙の時間変化」を直接評価する技術につながる

*該当成果リスト: 論文 #4 特許出願 #1,2 (国内, 国際)

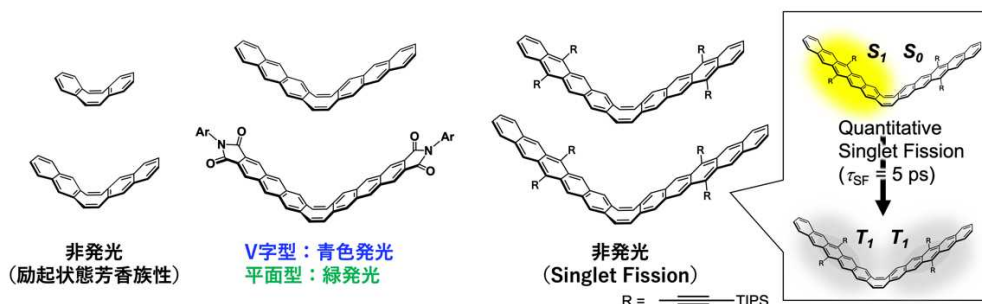
(2) 詳細

研究テーマ A FLAP 骨格のライブラリー化によるメカノフォア特性の制御 (達成度 90%)

1)~3)の分子変換を用いて、FLAPの励起・発光波長の制御、応答する力の閾値の制御、励起状態における意図しない構造平面化の抑制を実現した。なお、下記の FLAP 分子構造は全て物質特許として国内および海外に出願している(特許出願 1,2)。

1) π 共役構造の長さを変える

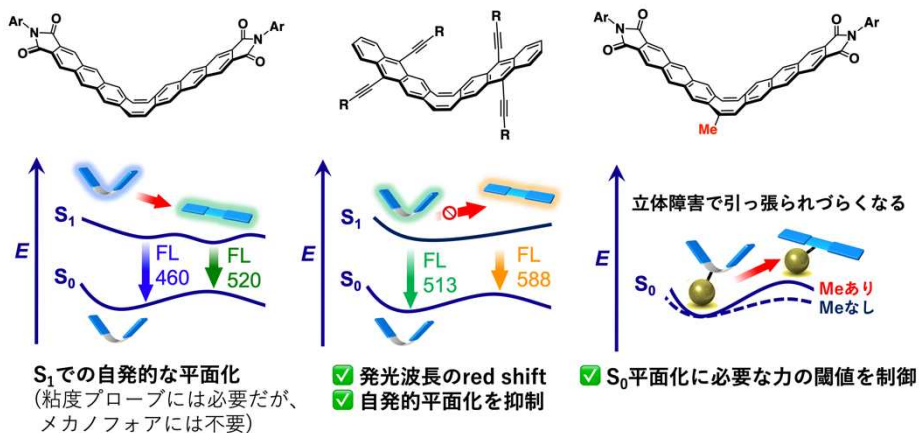
はじめに FLAP の翼部位にあたるアセン構造の長短を変えて、光物性を調べた。すると、翼部位の π 共役が短すぎる場合(ベンゼン、ナフタレン)には励起状態芳香族性が発現して平面構造が非発光になり、逆に π 共役が長すぎる場合(テトラセン、ペンタセン)には Singlet Fission が発現して非発光になった(論文 2)。すなわち、8員環を中央にもつアセン型 FLAP では、中程度の π 共役構造(アントラセン、アントラセンイミド)を翼とした分子だけがまともに蛍光を発することが判明したため、別の分子設計で発光特性を制御することにした。



2) 適切な位置に置換基を導入する

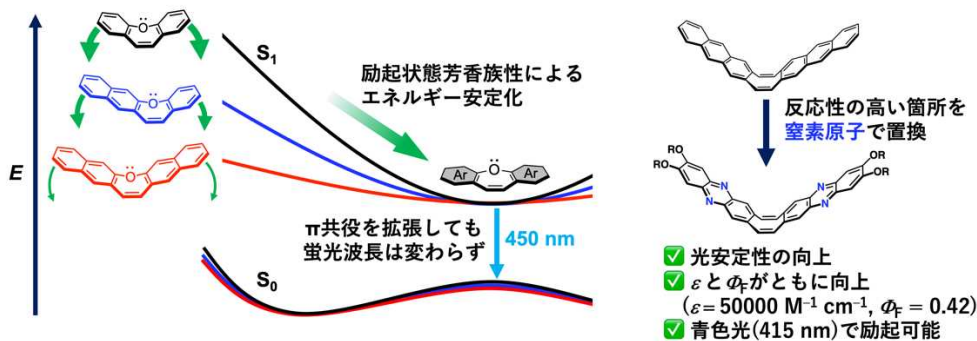
翼部位の中央にアセチレンを導入したところ、蛍光が長波長シフトした FLAP が合成できた。従来型 FLAP は V 字型で青蛍光、平面型で緑蛍光だったが(論文 3)、これにより V 字型で緑、平面型で橙となった。また、 S_1 energy profile が変化し、励起状態における意図しない構造平面化が抑制されたため、粘度にตอบสนองせずに力にだけตอบสนองするメカノフォアとなった。さらに、この分子は結晶相転移による Void の崩壊とともに基底 S_0 状態で平面化することを発見し、「結晶相転移を利用した過去にないメカノフォアの活性化手法」として論文報告した(論文 1)。

他にも、中央の8員環にメチル基を入れるだけで S_0 energy profile が大きく変化し、FLAP の応答する力の閾値が約 120 pN から 250pN まで上がることが理論的に示された。



3) π 共役構造にヘテロ原子を組み込む

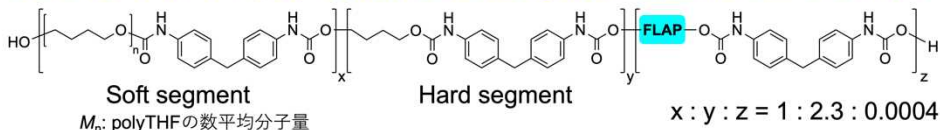
中央の炭素8員環(COT)を、酸素原子を1つ含む7員環(Oxepin)に変えると、分子対称性の低下により π 共役が短くても発光することがわかった。しかし一方で、 π 共役を拡張しても励起状態芳香族性が弱くなるせいで発光波長が長波長シフトしないことがわかった(論文投稿間近)。また、中央の8員環はそのままに、翼部位のアントラセンに窒素を導入した FLAP は光安定性と Brightness の向上をもたらし、青色光による光励起も可能になった。



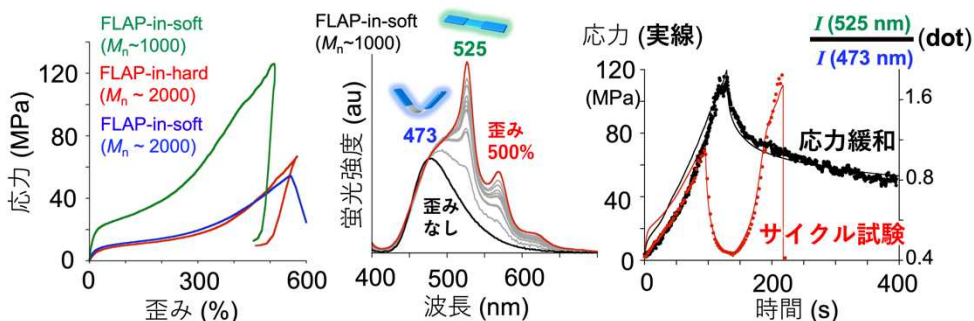
研究テーマ B 高分子中における FLAP の局在制御と局所応力集中の評価(達成度 80%)

まず、微量の FLAP をソフトセグメントに化学導入した架橋なしポリウレタン(FLAP 重量比 0.01%)において、延伸時の局所応力集中の度合いを「V 字型 FLAP 由来の蛍光強度と平面型 FLAP 由来の蛍光強度の比」により ratiometric 定量解析できることを示した。また、延伸したまま 5 分間固定したときの高分子の応力緩和に伴って蛍光強度比も可逆的に戻ることや、延伸と収縮を繰り返すサイクル試験でも素早く蛍光強度比の応答が追従することを明らかにした。

架橋なしポリウレタン(PU)のSoftまたはHard segmentへ選択的にFLAPを化学導入



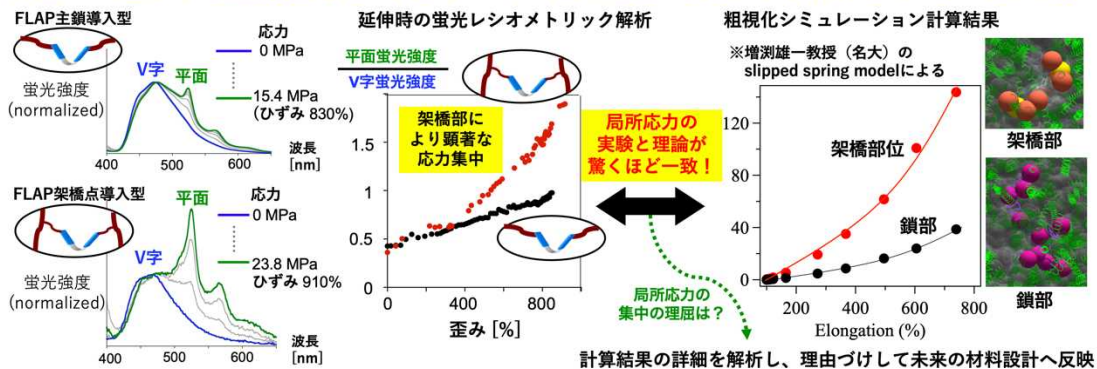
○PU試験片の応力-歪み曲線 ○延伸時の蛍光変化 ○緩和や収縮にも蛍光レシオが追従



その上で、分子両末端の重合基の数が異なる FLAP を新たに合成し、架橋ポリウレタン重合時にわずかに添加することで高分子主鎖と架橋点のそれぞれに選択的に FLAP を導入した。得られた2種類の薄膜は、ほぼ同様の応力-ひずみ曲線を示した一方、蛍光応答は全く異なり、架橋点に FLAP を導入した薄膜の方が蛍光変化は顕著だった。さらに、架橋高分子における主鎖と架橋部位の局所応力を粗視化 MD 計算により求めたところ、驚くほど実験と一致する結果が得ら

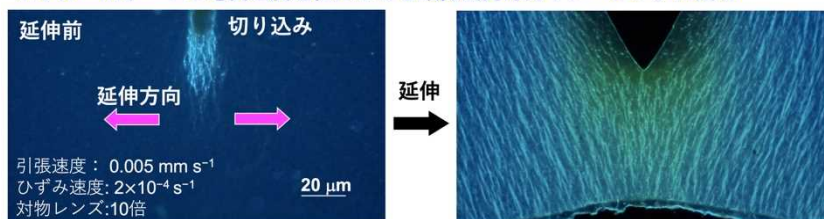
れた。これは、ポリウレタンに関わらず一般的な架橋高分子において高分子鎖の架橋点に応力が集中しやすいことを示しており、強靱な高分子化学構造の設計を考える上で貴重な知見である。さらに、これまでは粗視化 MD 計算の妥当性は巨視的な実験結果との比較(応力-ひずみ曲線の形状一致や小さな亀裂の発生)でしか検証できなかったが、本研究において初めて微視的な検証が達成されたことは理論科学者の観点からも意義深い。

架橋PUの延伸時の蛍光変化を比べ、分子レベルでは架橋部に応力がより集中していることが判明



また、破断に至るまで応力集中部位が顕微鏡の視野から外れないよう、顕微鏡下で高分子を左右対称に引っ張る装置系を組み立てた。ポリウレタンよりも硬く変形の小さいポリカーボネートにFLAPを導入したところ、亀裂進展過程における顕微応力イメージングの動画を取得することに成功した。さらに現在は本装置系に分光器とEM-CCD検出器を組み合わせている。

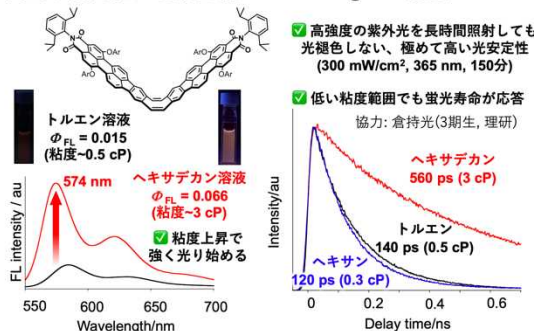
ポリカーボネートの亀裂進展過程における顕微蛍光応力イメージングに成功



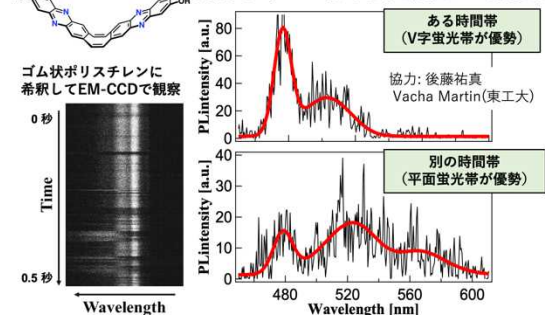
研究テーマC FLAPの光耐久性向上と1分子解析・高速構造解析への適用(達成度 50%)

従来のFLAPと比較して圧倒的に光耐久性が高いペリレンイミド型のFLAPを合成した。このFLAPは、わずかな局所粘度の増加に応じて蛍光寿命が長くなり蛍光量子収率が上昇するFluorogenic粘度プローブとして機能した。また、窒素組み込み型FLAPを用いて、

圧倒的な耐光性と感度を備えたFluorogenic粘度プローブ



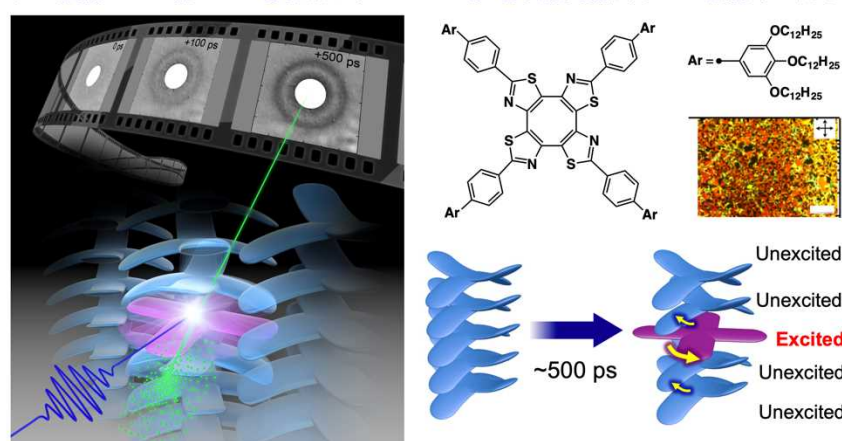
高分子中の1分子蛍光分光の時間変化



ゴム状ポリスチレンに希釈させた上で1分子蛍光スペクトルを追跡した。すると、露光時間 0.5 秒 (300 枚撮影)のある時間帯においてV字発光帯と平面発光帯が置き換わる現象が繰り返し確認された。この結果は、FLAP 単分子がゴム状高分子の隙間でゆっくり構造変化できることを示唆している。高分子の自由体積の時間変化に関する知見は、小分子の分離膜を設計する上で重要であり、実験で局所空間が時間変化する情報を直接的に得た例は極めて珍しい。

さらに、光応答ソフトマテリアルにおける光励起部位周辺の超高速パッキング構造変化を直接構造解析することができた。4つ腕でサドル型の FLAP 液晶分子を合成し、カラムナーパッキングさせた状態で、フェムト秒電子線回折、フェムト秒 IR 分光法、MD 計算を相補的に組み合わせて解析した結果、励起された FLAP の平面化に伴って隣接分子との立体障害を避けるようにカラム内で回転する構造変化が高速で起こっていることが示された(論文4, 共同リリース)。

室温カラムナー液晶の4つ腕FLAPを合成し、フェムト秒電子線回折法などで液晶中の分子の動画を撮影



3. 今後の展開

蛍光分子 FLAP のシリーズ化や対象物内部における局在制御を通して、羽ばたき運動(コンフォメーション変化)を活かした局所応力や局所粘度の解析を達成した。特に AFM や光ピンセットでは原理的に得ることのできなかった、架橋高分子における分子レベルの局所応力集中の情報をレシオメトリック蛍光解析で定量したことは重要な成果である。今後、ここで得られた知見をもとにして新しい力学機能材料の化学構造を設計し、独自の高分子材料の開発にも挑戦する。一方で、FLAP の高感度な粘度応答性を臨床応用に展開させることも視野に入れている。今後も幅広い分野の知識と経験を蓄えながら、基礎科学と応用技術の両面から研究を推進する。

4. 自己評価

独自に開発した羽ばたく分子 FLAP を基盤として、「基底状態における外部からの力」に応答する蛍光分子ライブラリーを構築し、さらに対象物内部における FLAP の局在を制御することに成功した。これにより、高分子材料における分子鎖レベルの局所応力が化学構造のどこに集中しているのかを定量的に追跡できる手法をうみだした。ここから得られる知見をもとにすれば、局所応力を分子鎖レベルで分散させて高分子を強靱化させたり、あるいは局所応力集中の分布を自在に外部刺激で制御することのできる新しい材料化学構造の設計指針が得られる。また一方

で、活性化された分子が外部に対してうみだす力、すなわち「光励起による自発的な羽ばたき運動」に着目することで、当初予想していなかった超高感度粘度プローブや新しい光応答材料の創出、さらには特許の登録や企業との継続的共同研究にもつながり、当初の期待以上の進捗が得られた。研究開始時点では苦戦していた FLAP 分子系のバイオ展開についても、細胞イメージングを専門とするさがけ研究者との共同研究により順調に軌道に乗り始めた。領域総括と技術参事により企画された化学フェスタの合同セッションではメカノバイオロジー研究者たちとの交流が進み、領域アドバイザーからの助言では粘度プローブ研究の新たな出口を発見することができた。今後も基礎科学・応用技術の両面において大いに発展が期待でき、執行した研究費に見合う実績をあげることができたと考えている。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Takuya Yamakado, Kazuya Otsubo, Atsuhiko Osuka, Shohei Saito*
“Compression of a Flapping Mechanophore Accompanied by Thermal Void Collapse in a Crystalline Phase”, *Journal of the American Chemistry Society*, 140, 6245–6248 (2018)
2. Takuya Yamakado, Shota Takahashi, Kazuya Watanabe*, Yoshiyasu Matsumoto, Atsuhiko Osuka, Shohei Saito*
“Conformational Planarization versus Singlet Fission: Distinct Excited-State Dynamics of Cyclooctatetraene-Fused Acene Dimers” *Angewandte Chemie International Edition*, 57, 5438–5443 (2018).
3. Ryota Kotani, Hikaru Sotome, Hajime Okajima, Soichi Yokoyama, Yumi Nakaike, Akihiro Kashiwagi, Chigusa Mori, Yuki Nakada, Shigehiro Yamaguchi, Atsuhiko Osuka, Akira Sakamoto*, Hiroshi Miyasaka*, Shohei Saito*
“Flapping viscosity probe that shows polarity-independent ratiometric fluorescence” *Journal of Materials Chemistry C*, 5, 5248–5256 (2017).
4. Masaki Hada*[†], Shohei Saito*[†] (†: Equally contributed), Sei'ichi Tanaka, Ryuma Sato, Masahiko Yoshimura, Kazuhiro Mouri, Kyohei Matsuo, Shigehiro Yamaguchi, Mitsuo Hara, Yasuhiko Hayashi, Fynn Röhricht, Rainer Herges, Yasuteru Shigeta*, Ken Onda*, R. J. Dwayne Miller
“Structural Monitoring of the Onset of Excited-State Aromaticity in a Liquid Crystal Phase”, *Journal of the American Chemistry Society*, 139, 15792–15800 (2017).
5. Waka Nakanishi*, Shohei Saito*, Naoki Sakamoto, Akihiro Kashiwagi, Shigehiro Yamaguchi, Hideki Sakai, Katsuhiko Ariga*
“Monitoring fluorescence response of amphiphilic flapping molecules in compressed monolayers at the air–water interface”, *Chem. Asian J. (Selected as Very Important Paper)*, 14, 2869–2876 (2019).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 4 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

1.

発 明 者: 齊藤尚平(50%), 藪浩(30%), 阿部博弥(20%)
発明の名称: 化合物および該化合物を含む高分子化合物
出 願 人: JST
出 願 日: 2018/3/5
出 願 番 号: 特願 2018-39162

2.

発 明 者: 齊藤尚平(50%), 藪浩(30%), 阿部博弥(20%)
発明の名称: 化合物および該化合物を含む高分子化合物
出 願 人: JST
出 願 日: 2019/3/4
出 願 番 号: PCT/JP2019/008463

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表(関連の深い国際招待講演のみを記載)

1. Shohei Saito, “Flapping molecules for photo- and mechanoresponsive materials”, 2019 US-Japan Polymer Symposium, 招待講演 (Stanford, California).
2. Shohei Saito, “Development of Flapping Molecules and Photofunctional Materials”, the 10th Asian Photochemistry Conference APC 2018 受賞講演, (Taipei, Taiwan).
3. Shohei Saito, “Luminescent molecular force probe for rheology and mechanobiology”, OPTICS&PHOTONICS International Congress (OPIC) 2018 Biomedical Imaging and Sensing Conference, 招待講演 (パシフィコ横浜)
4. Shohei Saito, “Light-melt adhesive and molecular force probe”, Materials Horizons Symposium: Electronic and Photonic Materials, 招待講演 (京都大学 iCeMS)
5. Shohei Saito, “Flapping molecules that work by excited-state aromaticity”, International Conference on Excited State Aromaticity and Antiaromaticity (Sigtuna, Sweden)

著作物(自身の研究の Review として Book Chapter を執筆)

1. Shohei Saito, “Flapping Molecules for Photofunctional Materials”, ***Molecular Technology: Materials Innovation*** Vol 3 Chapter 2, Wiley-VCH 2018, (Eds) Hisashi Yamamoto, Takashi Kato.
2. Shohei Saito, “Rigid-flexible hybrid design for photofunctional molecules and materials”, ***Light-Active Functional Organic Materials*** Chapter 2, Jenny Stanford Publishing 2019, (Eds) Shiki Yagai, Hiroko Yamada.

受賞

2017 年 2 月 3 日 井上科学振興財団 井上リサーチアワード

2018 年 12 月 19 日 The Asian and Oceanian Photochemistry Association (APA) Prize
for Young Scientist 2018

2018 年 9 月 5 日 日本液晶学会 論文賞 2018 (デバイス、応用分野)



プレスリリース

“1 兆分の 1 秒の時間分解能で液晶分子の動画を観測 ―新しい測定・解析手法の確立―”

岡山大学, 京都大学, 筑波大学, 九州大学から同時リリース

http://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research/research_results/2017/documents/171016_2/02.pdf

(論文 4, *JACS*, 2017, 139, 15792–15800 に対応)

研究報告書

「有機電気光学材料による光メタ表面の機能化と高速変調素子への展開」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研究者: 種村 拓夫

1. 研究のねらい

本研究では、シリコンおよび金属からなるサブ波長格子に有機電気光学 (EO: electro-optic) ポリマーを埋め込むことで、電氣的に制御できるアクティブな「光メタ表面」を実証し、垂直入射型の高速な光強度／位相変調器に応用することを目的とした。これにより、既存の空間光変調器 (SLM: spatial light modulator) に比べて6桁以上高速な時間応答を持つ波面制御デバイスの実現を目指した。

「光メタ表面」とは、金属、半導体、誘電体等からなる波長以下の2次元構造体であり、近年のナノ加工技術の成熟に伴い、研究が活性化している。所望の微細パターンを基板上に形成することで、厚さ $1\mu\text{m}$ 以下の平面型薄膜レンズ、偏光フィルタ、広帯域反射鏡など、数多くのパッシブ光学素子が報告されている。その一方で、光メタ表面の特性を電気光学的に制御したアクティブ光学素子は実現が難しく、実用的な素子は実証されていないのが現状である。

一方、「有機 EO ポリマー」は、ガラス転移温度にて高電界を印加 (ポーリング) することで、色素分子が配向し、顕著なポッケルス効果が誘発される材料である。特に 2010 年以降、EO ポリマー材料の開発が国内外で加速しており、ニオブ酸リチウムなどの従来の EO 材料に比べて 1 桁近く大きな EO 効果が得られるようになった。100 GHz 以上の超高速光応答、圧倒的に低コストかつ簡易なプロセス、どのような基板上にも実装できる互換性といった利点から、光通信や光インターコネクトをはじめ、様々な分野への応用が期待され始めている。

以上の背景を踏まえ、本研究は、特異な反射／散乱現象を持つ光メタ表面に、近年急速に高性能化が進む有機 EO ポリマー材料を導入することで、GHz 以上の速度で動作する垂直入射型変調素子を初めて実現することを目指した。このような素子の実現すれば、時間と空間を有効に活用した、これまでにない光応用が可能になる。現在液晶型 SLM が用いられている光計測や光スイッチの高速化に直接寄与するだけでなく、光の空間モードをより積極的に利用した新しい光通信、光演算、光操作、光イメージング技術への展開が期待される。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究では、高い屈折率を持つシリコン、および、金属からなるサブ波長格子を基板上に形成し、有機 EO ポリマーによって埋め込んだ垂直入射型高速光変調素子を初めて実証することで、光通信や光イメージングなどの分野に応用することを目指した。具体的には、シリコンからなる高屈折率差サブ波長格子内の光共振効果を用いる手法と、金属サブ波長格子内のプラズモンニック効果を用いる手法の2種類について、新規素子の考案、設計、試作実証を行った。

まず、シリコン格子型変調素子の構造を図 1(a)に示す。シリコン格子間に EO ポリマーを埋め込むことで、外部印加電界によって高屈折率差格子の共振波長がシフトする現象を用いる。シ

リコン格子を櫛歯電極としても兼用することで、周期反転ポーリングおよび屈折率変調が無駄なく得られ、高効率な変調が可能になる。素子構造の詳細設計、プロセス開発、試作実証を繰り返すことによって完成した強度変調素子の測定結果を図 1(b)に示す。設計通り、外部印加電界によって共振波長がシフトし、30 MHzにおいて20%以上の強度変調が得られることを実証した。さらに、格子周期を細かく調整することにより共振 Q 値を 1 桁以上改善できることを確認しており、さらなる高効率化が見込まれる。

一方、金属格子型変調素子については、詳細な数値解析による考察を経て、図 2(a)に示す新規構造を提案した。本研究提案時の構造と異なり、EO ポリマー層を上下の金属膜によって挟み込んだ構造を持つ。格子内に局在する2つのプラズモンモード間の相互作用を利用することで、プラズモニックメタ表面としては異例の Q 値が 100 以上の鋭い共振が得られることを発見した。実際に素子を作製し、評価した結果を図 2(b)に示す。EO ポリマーに外部電界を印加することで、反射スペクトルがシフトし、80%以上の強度変調が得られることを初めて確認した。さらに、電極パッドの寄生容量を低減することで、1GHz を超える変調帯域を初めて実証した。

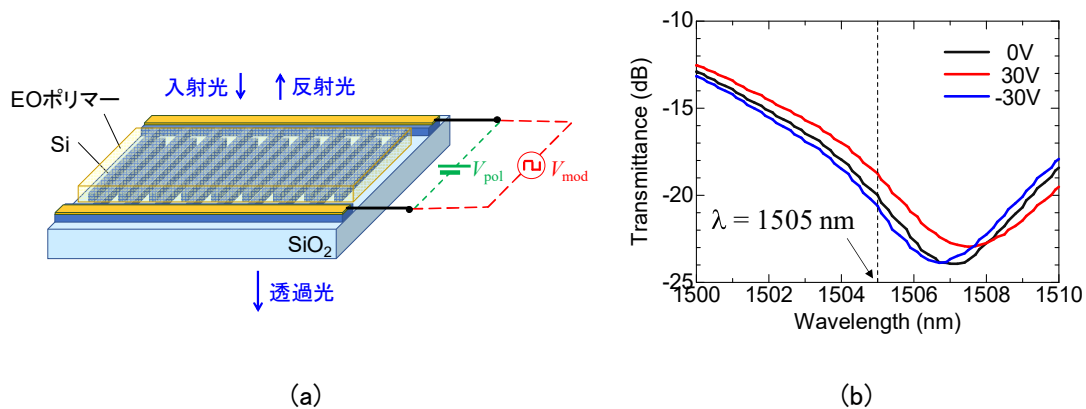


図 1: シリコン格子型素子の構造(a)と測定結果(b).

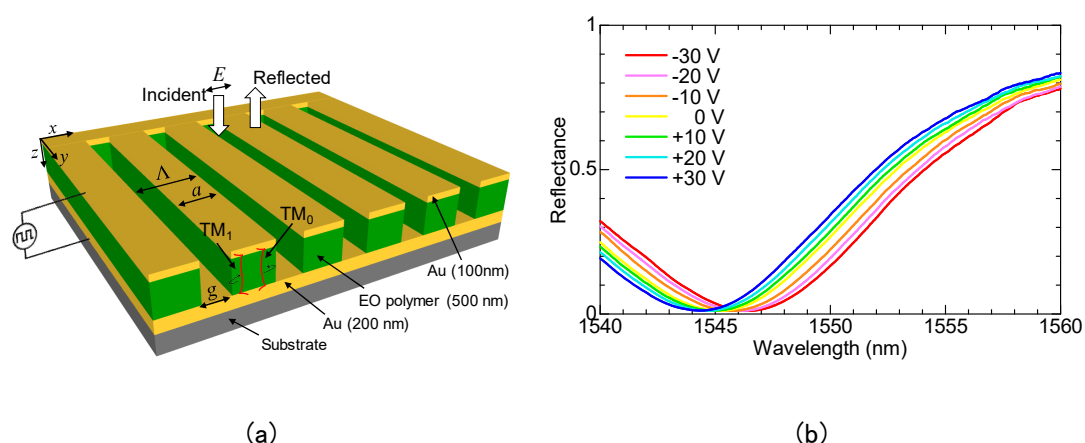


図 2: 金属格子型素子の構造(a)と測定結果(b).

(2) 詳細

本研究の目標を達成するために、下記の研究項目を並行して進めた。

研究テーマ A 「共通基盤技術の確立」

今回提案するシリコン格子型変調素子、および、金属格子型変調素子を開発する上で、共通する基盤技術を開発した。特に、EO ポリマーの扱いは、本研究で初めて直面する課題であり、一からノウハウを確立する必要があった。

まず、EO ポリマーの合成、塗布、アニールを行うためのプロセス装置を整備した。1 μ m 以下の狭い溝にポリマーを埋め込むプロセスの条件出しを行い、均一かつ精度よく埋め込む条件を見い出した。さらに、スピンコーティングの条件を細かく精査することで、EO ポリマー膜の厚みを精密に制御することに成功した。また、塗布後のポーリングに向けて、試料を 100℃ 以上に加熱しながら高電界を印加し、その後、冷却水を流して急冷する設備を新しく立ち上げた。これを用いることで、電気光学係数 r_{33} が約 30 pm/V のポッケルス効果が発現することを確認した。以上と並行して、シリコンおよび金属の微細ナノ加工を行うための基盤プロセスを開発した。

研究テーマ B 「シリコン格子型変調素子の開発」

まず、素子構造の設計改善を行い、格子に対して平行な電界成分を持つ直線偏波光を用いることで、当初設計(850nm 程度)に比べてシリコン層を 3 割以上薄く(550nm 程度)できることが分かった。高アスペクト比のシリコン格子の形成と、その内部への EO ポリマーの埋め込みは、素子の作製上、最大の難関であるため、シリコン層が薄膜化できることは大いなる意義を持つ。

本設計を基に、作製プロセスの最適化を繰り返すことで素子を完成させた。図 3(a)にシリコン格子形成後の走査電子線顕微鏡(SEM)像を示す。本素子に対して垂直に光を入射したところ、図 1(b)のように、Q 値が 60 程度の共振を確認した。図 3(b)には、30MHz において変調時の透過光強度の観測結果を示すが、20%以上の変調が得られることを確認した。さらに、格子周期の最適化を進めることで、Q 値が 700 近くまで向上することを確認しており、さらなる高効率化に向けて素子の作製を進めている。

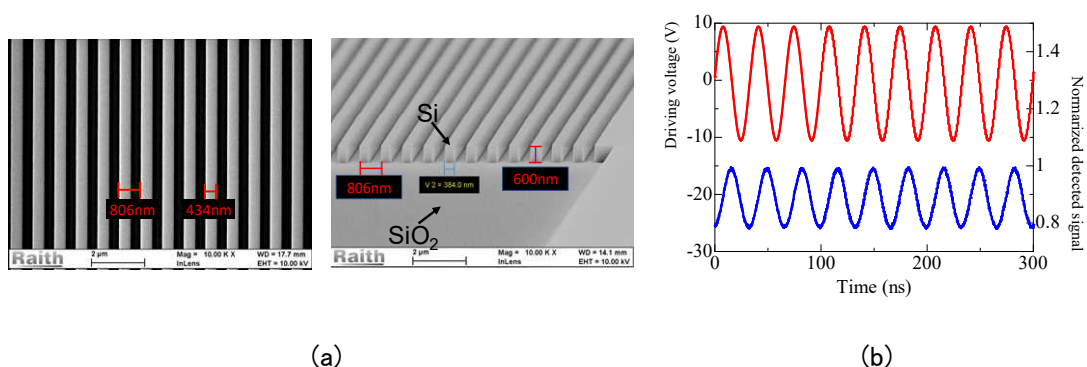


図 3: (a) 試作したシリコン格子型素子の SEM 像。 (b) 30MHz 変調時の透過光測定結果。

研究テーマ C 「金属格子型変調素子の開発」

まず、有限差分時間領域(FDTD)法による数値シミュレーションによる詳細な解析を行った。その結果、当初案とは異なり、図 2(a)のように金属を上下に配置して EO ポリマーを挟み込む構造を用いることで、横方向に金属-絶縁体-金属(MIM)導波路が形成され、高い Q 値の共振が生じることが分かった。シリコン型に比べると Q 値は小さいものの、相互作用長が長く取れるため、十分大きな共振波長シフトが得られることを確認した。

格子周期 Λ の異なる素子をいくつも試作し、反射率スペクトルを測定した結果を図 4(a)に示す。計算結果(図 4(b))と見事に一致し、2つの MIM モードの分散曲線が交わる反交差点において、Q 値が急激に増幅する現象が初めて確認された。特に、 $\Lambda = 1040 \text{ nm}$ のとき、臨界結合条件が満たされ、図 4(c)に示すように、最大吸収率 $> 23 \text{ dB}$ 、Q 値 > 100 の鋭い共振を実証した。さらに上下の金属層に電界を印加することで、図 2(b)に示すスペクトルシフトが確認された。この結果から、波長 1547 nm 、印加電圧 $\pm 30 \text{ V}$ において、83% (8.7 dB) の変調度を実証した。さらに、電極パッドの寄生容量を低減した素子において、GHz 以上の変調帯域を確認した。

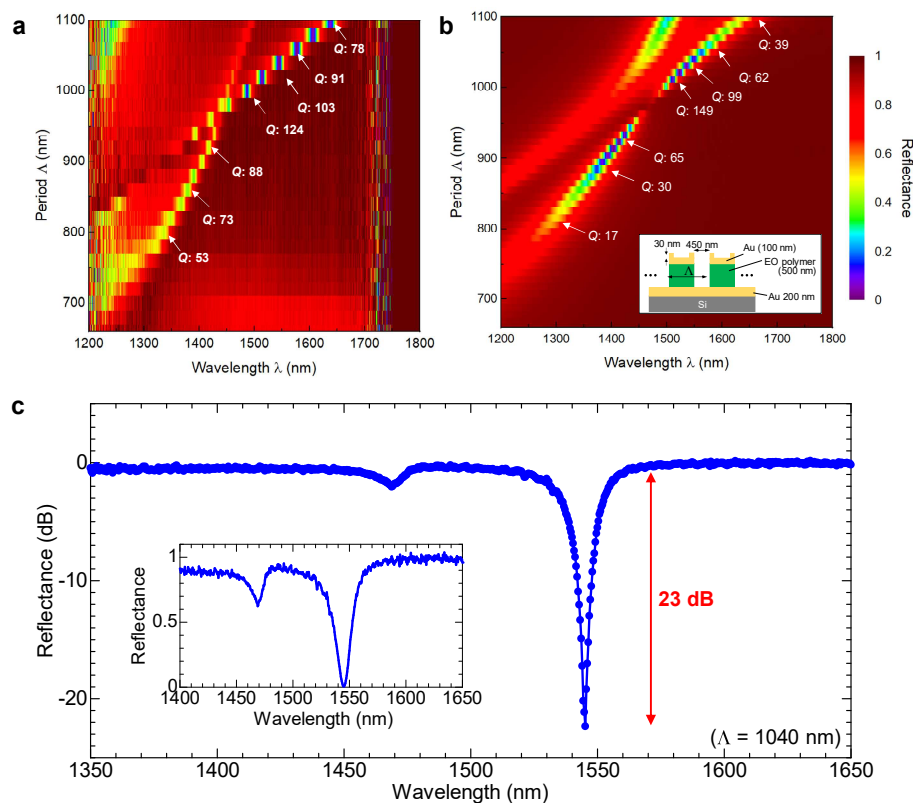


図 4: (a)金属格子型素子の反射率測定結果. (b)反射率計算結果.
(c)格子周期 $\Lambda = 1040 \text{ nm}$ のときの反射率スペクトルの測定結果.

3. 今後の展開

本研究により、シリコンおよび金属を用いた光メタ表面と EO ポリマーを組み合わせることで、GHz 以上の応答速度を持つ垂直入射型光変調素子の実現可能性が示された。今後、より EO 係数の高いポリマー材料の開発、ポーリング条件の最適化、および、微細加工プロセスの改善等を通じて変調効率を 1 桁向上させることで、数 V 程度の駆動電圧で動作する実用的

な素子の実現できると見込まれる。さらには、このような素子を基本ピクセルとして用い、2次元アレイ化を進めることで、高密度多チャンネル変調器や高速波面合成素子など、様々なデバイスへの展開が考えられる。

4. 自己評価

まず、当初計画において目的としたシリコン格子型素子および金属格子型素子の双方について試作実証に成功し、概ね目標は達成したと言える。特に、金属格子型変調素子に関しては、当初計画とは異なる素子構造により効率良く臨界結合条件を達成できることを見出し、20 dB以上の吸収率を持つ急峻な共振特性、および、8 dB以上の変調消光比を達成した点は、目標値を上回る成果である。これらの成果をきっかけに、本素子の実用化を目指し、民間企業との共同研究を開始するに至っている。また、上記の研究を遂行する上で、実施体制の整備と研究費の執行に関してもほぼ計画通り適切に実施した。その結果、素子の作製において不可欠となるEOポリマープロセスの開発、および、必要な装置の整備も遅滞なく実施し、円滑に研究を進めることが出来た。

本研究の成果は、科学技術及び社会・経済の双方において多大なインパクトがあると考えられる。まず学術的には、2つの共振モード間の相互作用を利用することで従来の光メタ表面素子では難しかった高Q値かつ高消光比の共振、および、GHz以上の高速変調を実証したものであり、新規性が高い。一方、工学的には、現存の空間光変調器(SLM: spatial light modulator)に比べて6桁ほど高速な垂直入射型変調素子の実現可能性を示したものであり、多様な応用が期待される。例えば、反射型変調素子を高密度に2次元アレイ化することで、将来の高密度チップ間インターコネクต์への適用が考えられる。また、本素子を2次元アレイ化することで高速かつ安価な光ビーム整形器が実現すれば、LIDARなどの高速光イメージング、レーザ加工、光情報処理など広範な産業分野への応用が期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

- | |
|--|
| 1. J. Zhang, Y. Kosugi, A. Otomo, Y. Nakano, and T. Tanemura, "Active metasurface modulator with electro-optic polymer using bimodal plasmonic resonance," Opt. Express, 2017, 25, p. 30304-3031. |
| 2. J. Zhang, Y. Kosugi, A. Otomo, Y.-L. Ho, J.-J. Delaunay, Y. Nakano, and T. Tanemura, "Electrical tuning of metal-insulator-metal metasurface with electro-optic polymer," Appl. Phys. Lett., 2018, 113, 231102. |

(2) 特許出願

研究期間累積件数:0件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. T. Tanemura “Active metasurface modulators with electro-optic polymer,” SNU-UT Workshop on Nanophotonics, Seoul, 2020.
2. M. Ogasawara, Y. Kosugi, J. Zhang, Y. Okamoto, Y. Mita, A. Otomo, Y. Nakano, and T. Tanemura, “Electro-optic polymer surface-normal modulator using silicon high-contrast grating resonator,” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), JTh2A.48, San Jose, 2019.
3. 宮崎俊輝, 小笠原誠, 張家琦, 中野義昭, 種村拓夫, “電気光学ポリマー垂直入射型光変調器に向けた高 Q 値シリコン共振構造の作製,” 電子情報通信学会光エレクトロニクス研究会, 2019.
4. J. Zhang, Y. Kosugi, A. Otomo, Y. L. Ho, J. J. Delaunay, Y. Nakano, and T. Tanemura, “Experimental demonstration of surface-normal MIM modulator with electro-optic polymer,” Int. Conf. Photonics in Switching and Computing (PSC 2018), Cyprus, 2018.
5. 小杉優地, 岡本有貴, 山田千由美, 肥後昭男, 山田俊樹, 大友明, 三田吉郎, 中野義昭, 種村拓夫, “TE 光を用いたサブ波長格子型光変調器の設計と試作,” 第 65 回応用物理学会春期術講演会, 18p-B203-6, 2018.
6. J. Zhang, Y. Kosugi, Y. Nakano, and T. Tanemura, “Numerical design of surface-normal plasmonic modulator with electro-optic polymer,” The 24th Congress of the International Commission for Optics (ICO-24), Th1J-02, Tokyo, 2017.

研 究 報 告 書

「多数自然光源の瞬間同時ホログラフィックマルチカラーセンシング」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016年10月～2020年3月

研 究 者: 田原 樹

1. 研究のねらい

生命科学研究や材料科学研究, ロボットビジョン, 部品や製品の検査など, 基礎科学から産業に至るまで観察, 計測を行なう技術に対する要求や需要は増大する一方である。科学研究においては特に, 3 次元顕微鏡にかかる需要は高く, 3 次元空間に加え波長の情報を高速に取得することが求められる。顕微鏡観察下で 3 次元画像の情報を取得するには走査過程を従来必要としているが, 機械的な走査の速度に時間分解能が律速されることから逃れられない。限界性能を突破するには多様なアプローチの出現が必要不可欠であり, 機械走査の速度に律速されない, 3 次元画像情報を一括取得できる顕微鏡技術が極めて重要である。単一露光で 3 次元画像を取得できる技術としてホログラフィがあるが, 干渉縞の生成のためにレーザー光を用いると, 蛍光等のインコヒーレント光のセンシングができない。

本研究提案では, 蛍光などの自然光, すなわち空間的・時間的にインコヒーレントな光により観察される, 瞬間のマルチカラー 3 次元画像情報を, 高い光利用効率で高速記録・可視化する自然光マルチカラーホログラフィック記録システムの開発を目的とする。目的達成のために, 本研究課題では, インコヒーレントデジタルホログラフィ, 単一露光位相シフト法, ホログラフィック波長多重を駆使するアプローチをとる。これら 3 要素技術の組み合わせをもって, 限られた光量におけるマルチカラーホログラフィック 3 次元画像の取得速度の限界に挑む。そして, 多数の回折波源から発せられる空間的・時間的にインコヒーレントな光のホログラムを単一露光で同時にマルチカラーセンシングできること, カラーフィルタに頼らず単板単色撮像素子によりインコヒーレントな波長多重ホログラムをセンシングできること, そして機械走査が不要な蛍光 3 次元顕微鏡への応用可能性を示すことを目指す。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究では, 図 1 に示す構想に基づき研究を進めた。図 1 の通り, 自然光をホログラムとして検出するシステムと, 記録された 1 枚のホログラムに対する信号処理の駆使により, 瞬間のマルチカラー自然光の 3 次元画像を取得するアプローチをとった。本研究課題では大別して, [1]単一露光位相シフト法を用いたインコヒーレントデジタルホログラフィ, [2]ホログラフィック波長多重技術, [3]ホログラフィック波長多重技術の一つである計算コヒーレント多重を用いた波長多重インコヒーレントデジタルホログラフィの研究を進め, [1] - [3]の統合と共に蛍光 3 次元顕微鏡への応用を目指した。構想の一実施形態として, [1]に基づく光学システムの概略を図 2 に示す。入射したマルチカラー自然光に対し, 偏光と偏光感受性を有する空間光位相変調器や複屈折材料を用いて, 偏光方向が直交し曲率半径の異なる 2 光波を生成する。1/4 波長板と偏光子アレイを用いて位相シフト干渉法に必要な 4 種の自己干渉ホログラムを空間分割

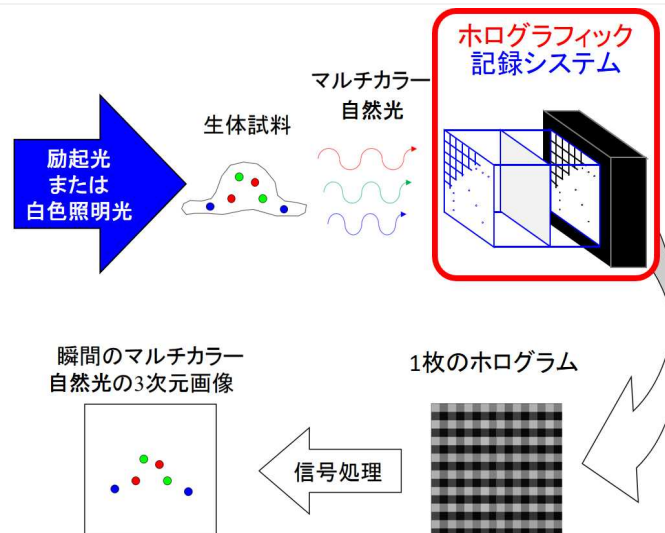


図 1. 本研究提案の構想.

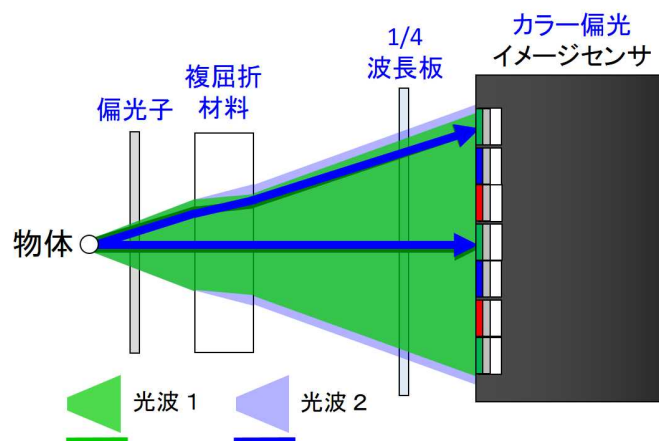


図 2. 単一露光位相シフトインコヒーレントカラーデジタルホログラフィの記録システムの概略.

多重化する。そして、カラーフィルタアレイを時間的コヒーレンスの制御と波長情報の空間分割多重化に用い、最後にイメージセンサで、RGB の各波長域において 4 種、すなわち計 12 種類の空間的にインコヒーレントなマルチカラーの位相シフトホログラムを単一露光で同時記録する。記録されたホログラムに対し位相シフト干渉法や回折積分などの信号処理を施すことにより、RGB の各波長域における 3 次元画像を取得する。[2], [3]を当該システムに統合することにより、カラーフィルタアレイを透明な光学素子のアレイ(以下、偏光光学素子アレイ)に置き換えられるため、アレイ素子の試作や統合システムの設計を通じて光利用効率の向上を目指した。

本課題では主題として蛍光 3 次元動画顕微鏡への応用を目指し、[1] - [3]の技術を研究した。以下に研究成果の概略を示す。

[1] 単一露光位相シフト法を用いたインコヒーレントデジタルホログラフィ

・インコヒーレント光の単一露光ホログラフィック画像センシングシステムの試作, 実証

- ・多数自然光源の瞬間同時ホログラフィックマルチカラー3次元顕微鏡システムの試作, 実証
- ・蛍光3次元顕微鏡への応用可能性の実験的検討
- ・上記マルチカラーセンシングシステムの検出系の改良による, センサへの結像面から21.9 μm の深さにおいて1 μm オーダの構造に対する, 22 fps の記録速度でのマルチカラーホログラフィック3次元画像センシング

[2] ホログラフィック波長多重技術

- ・レンズレス・波長フィルタレスでホログラフィックマルチカラー画像をセンシングするためのアルゴリズムの提案と実証システムの試作
- ・微弱な光の検出に向けた単一画素でホログラフィックマルチカラー画像をセンシングするシステムの試作と実証

[3] 計算コヒーレント多重を用いた波長多重インコヒーレントデジタルホログラフィ

- ・波長フィルタレスで自然光のホログラフィックマルチカラー画像をセンシングするシステムの試作と実証
- ・ハロゲンランプを用いたホログラフィック波長多重マルチカラー3次元顕微鏡システムの開発
- ・レンズレス・波長フィルタレスでホログラフィックマルチカラー画像を単一露光センシング可能なシステムの設計
- ・偏光光学素子アレイの仕様策定

(2) 詳細

本課題では主題として蛍光3次元動画像顕微鏡への応用を目指し, 「2.研究成果(1)概要」の[1] - [3]の技術を研究した。以下に示す3研究テーマとの対応を含め, 研究成果を述べる。

【蛍光3次元動画像顕微鏡システムの開発に関する研究】

当該研究テーマに対しては, 「2.研究成果(1)概要」記載の[1]と[3]に基づく成果が該当する。まず, 系の耐振動性や顕微鏡との融合可能性を勘案し, フレネルインコヒーレント自己相関ホログラフィ(FINCH)システムと並列位相シフト干渉法に基づく, 単一光路・単一露光インコヒーレントデジタルホログラフィシステムを試作した。そして, 透過型および反射型の光学系配置において被写体の単一露光3次元画像センシング能力を示し, 技術の実証に成功した(論文1)。システム設計および技術の実証に対して, 国際共著 Review 論文1稿(著作物(Review 論文1))を含め各種対外的な評価(受賞, ハイライト 1, 2)を受けた。その後, 電子機器の性能向上, 高機能化に伴い, 当該システムに適合するイメージセンサが世の中に登場したことに伴い, 当該イメージセンサの貸与を受け, 図2に示す光学システムの顕微鏡応用システムを図3の通りに構築した。図3に示す通り, 市販の倒立型光学顕微鏡により時間的, 空間的にインコヒーレントな物体の拡大像を生成し, 偏光子と LCoS-SLM からなる FINCH システムによりインコヒーレント光の自己干渉ホログラムを生成し, そして 1/4 波長板とカラー偏光イメージセンサからなる単一露光位相シフト干渉システムにより単一露光で計 12 種類のインコヒーレントホログラムを同時取得した。図4に示す通りハロゲンランプを用いた白色照明光, または蛍光染色された生体



図 3. 試作した多数自然光源の瞬間同時ホログラフィックマルチカラー3次元顕微鏡システム.

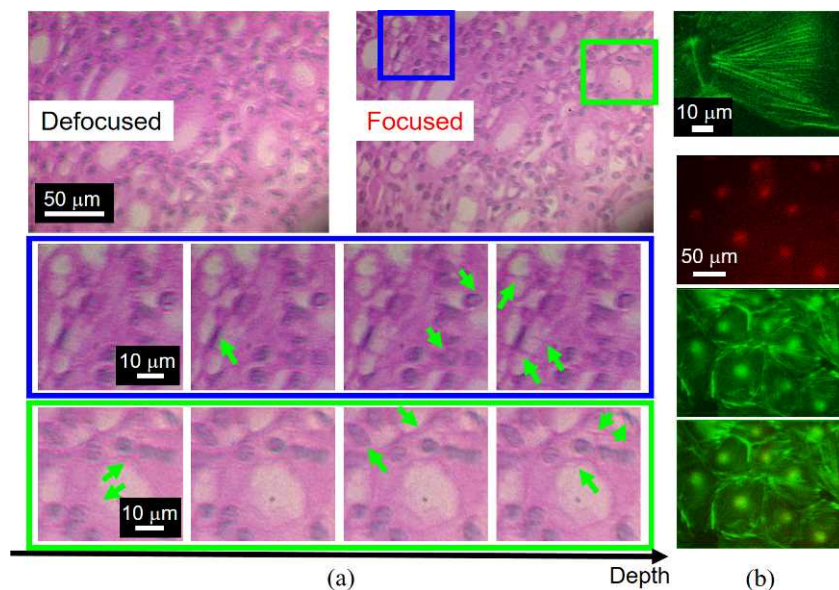


図 4. 実験結果。(a)ハロゲンランプを光源に用いた結果, (b)蛍光イメージング結果。(a)内矢印は合焦部, 全体の深さ差は 6 μm , 試料は HE 染色されたマウス腎臓細胞。(b)試料は Ptk2 細胞, アクチンが赤色蛍光, 微小管が緑色蛍光染色, 画像はコントラスト強調後。

試料から発せられたカラー蛍光の単一露光センシングを実証し, 研究課題名の世界初の実証を学会にて発表した(受賞 4)。当時点で白色光, 蛍光いずれにおいても系の倍率を 20 としても

光量を原因として 1.67 fps のフレームレートであったため、光学系の再設計を行なった。LCoS-SLM から、焦点距離に偏光依存性を有するレンズに変え、図 3 のビームスプリッタを取

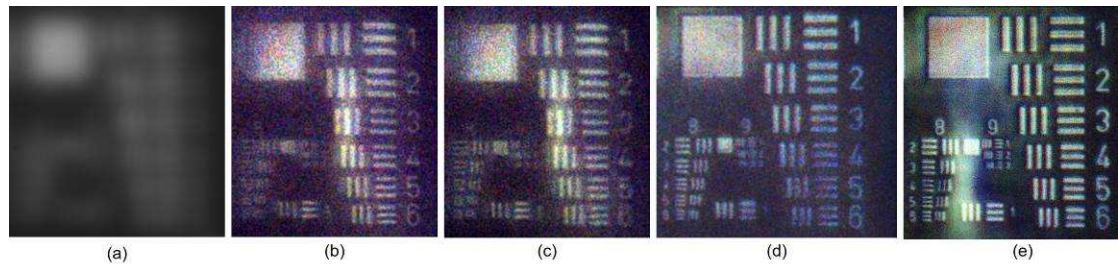


図 5. 光学システム改良後のマルチカラーホログラムの単一露光記録実験結果。(a)22 fps の記録速度で得られたホログラム群の 1 枚。USAF1951 テストターゲットの Group 7, 8, 9 のホログラムを示す。(b) (a)から再生され Group 7 に合焦,(c) Group 8 に合焦。(b)は(a)に示すセンサへの結像面から 21.9 μm の深さに計算機で合焦させたときの結果。(d) 10 fps の記録速度で得られた再生像,(e) 2 fps の記録速度で得られた再生像。

り外し、一直線の単一光路に変更し光学素子と電子機器の再選定を行なった。照明光の光量を変えずに系の倍率を 37 と倍近くにしたが、図 5 に示す通り、センサへの結像面から 21.9 μm の深さにある 1 μm オーダの構造に対して、最高 22 fps で白色光のマルチカラーホログラム動画センシングを達成した。改良前のシステムでは白色光と蛍光のセンシングにおいて等しいフレームレートであったため、改良後のシステムに対しても同じ性能を発揮できると考えられる。改良後のシステムの内容において国際会議発表へ向けて予稿を投稿し、その後、同国際会議にて招待講演の依頼を受けた(国際会議 3)。また原著論文への投稿に向けて準備している。

【計算コヒーレント多重に基づく波長多重インコヒーレントデジタルホログラフィ】

当該研究テーマに対しては、「2.研究成果(1)概要」記載の[2]と[3]に基づく成果が該当する。本研究テーマは、蛍光 3 次元動画顕微鏡システムの開発において、ホログラフィック波長多重を駆使してカラーフィルタアレイを取り外し、波長多重センシングすることにより、光利用効率を高めることを狙い設定した。まずホログラフィック波長多重センシング技術の一つである計算コヒーレント多重方式(論文 2 等)を、「2.研究成果(1)概要」記載の[1]のシステムと親和性を有するものとして採用した。本方式では、波長毎に異なる位相変調量を離散的に与えることで、少ない測定回数で複数波長のホログラフィック 3 次元画像を得ることができる。研究として、記録回数を既存の方式に比べ 1/70 に低減し且つ位相変調量を減らせるアルゴリズムを提案し(論文 2)、位相変調に機械駆動部を必要とせずレンズレス・波長フィルタレスでの波長多重 3 次元画像センシングを実証した(論文 3)。以上より、液晶などの位相変調素子と計算コヒーレント多重に基づく信号処理のみで、単板単色撮像素子によりセンシングされた波長多重ホログラムからマルチカラー 3 次元画像を取得できることを確認した。以上の研究内容に対しては一部報道された(報道 1)。また、インコヒーレントデジタルホログラフィの内容と併せて Review 論文 1 稿(著作物(Review 論文 2))を執筆した。レーザによる原理検証後、空間的にインコヒーレントで、

時間的に低コヒーレンスな光源である RGB の LED 光源を用い、一般照明光に対する適性を実験的に調べた。FINCHに基づく波長多重インコヒーレントデジタルホログラフィシステムを試作し、原理検証のために抵抗器を被写体として市販のイメージセンサを用いて、図 6 に示すような波長多重インコヒーレントホログラムを 7 枚取得した。取得されたホログラム群から図 6 の再生



図 6. 波長多重インコヒーレントホログラムセンシング実験結果. 被写体は 6 mm × 3 mm の抵抗器. 赤矩形は合焦部. 光源は中心波長 455 nm, 530 nm, 625 nm の LED.

像を取得できたことから、時間的に低コヒーレンスな光波のホログラムも取得可能であることを明らかにした(論文 4)。以上の研究結果より、ハロゲンランプや太陽光、広波長域の蛍光体などの空間的・時間的にインコヒーレントな光源に用いても、マルチバンドパスフィルタを通せば光量損失を抑えながら時間的なコヒーレンスを制御できるため、自然光の波長多重ホログラムを市販の sCMOS カメラでも検出可能と判断した。そして原理検証の実験として、ハロゲンランプを具備する倒立型光学顕微鏡を用い、計算コヒーレント多重に基づく白色光ホログラフィック波長多重マルチカラー 3 次元顕微鏡システムを試作した。結果として、図 7 に示す通り、FINCH の特徴として見られる、検出系の工夫により実現される超解像センシング能力と、リフォーカシング処理の上でマルチカラー画像センシング能力を示すことができた。また、フーリエ分光法を用いるインコヒーレントホログラフィでは従来 RGB の情報取得に 500 枚回以上のホログラム記録を必要としたが、計算コヒーレント多重では 7 回の露光で済むため、記録回数を 1/70 以下に減らすことができ、逐次記録の方法においても高速化の可能性を示せた(論文 5)。当該技術単体では、瞬間のセンシングこそ難しいが、市販の光学機器、電子機器のみで構成でき、多数自然光源の同時ホログラフィックマルチカラーセンシングが可能であることから、位相変調素子の高速化により今後動画像センシングが可能であるとの見通しを得た。

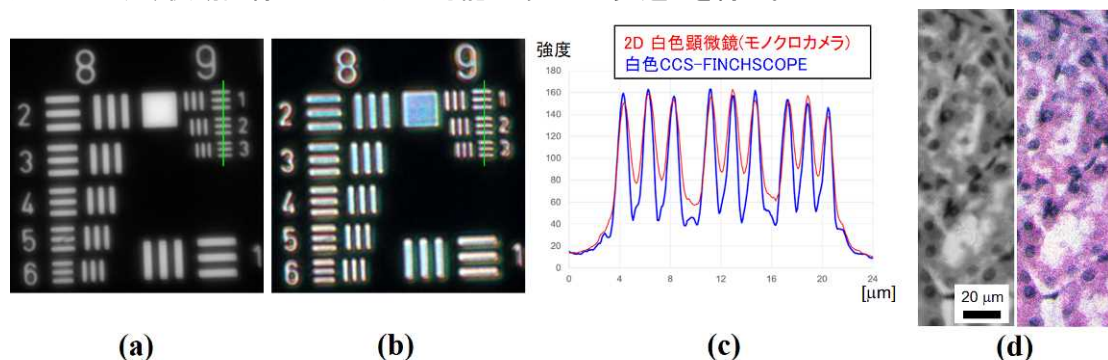


図 7. 構築した計算コヒーレント多重(CCS)に基づく、白色光 FINCH 顕微鏡システムによる実験結果。(a)同じモノクロセンサと白色顕微鏡を用い記録した画像、(b)

CCS-FINCHSCOPE により得られたカラー再生像, (c) (a),(b)内緑線のプロット, (d) 白色光の波長多重ホログラムの一枚とカラー再生像。(c)より, USAF1951テストターゲットの Group9 のもつ高空間周波数成分が, CCS-FINCHSCOPE により減衰せずに解像されている。(d)のカラー再生像は, ホワイトバランスをとり, コントラストを強調した後の結果。対物レンズは NA0.95, 倍率 40.

【偏光光学素子アレイ素子の仕様策定・試作に関する研究】

当該研究テーマに対しては, 「2.研究成果(1)概要」記載の[3]に基づく成果が該当する。本研究テーマは, 【蛍光 3 次元動画像顕微鏡システムの開発に関する研究】と【計算コヒーレント多重に基づく波長多重インコヒーレントデジタルホログラフィ】を統合し, 吸収ではなく位相の波長依存性をもって波長センシングすることを目的としたものである。その結果として光利用効率を高めることを狙い設定した。当該光学素子アレイでは, アレイの1セルのサイズが微小であるため, 撮像素子に合わせられることが望ましい。一方で, 広視野・高分解能な像転送光学系を採用すれば, セルと撮像素子の画素を調整により合わせることが可能である。そこで本課題では, センサとアレイ素子を合わせる場合と, アレイ素子と像転送光学系を用いる場合の両方の光学系を設計し, アレイ素子並びに像転送光学系の仕様を策定した。現在までにアレイ素子付イメージセンサと偏光光学素子アレイ, 像転送光学系の試作は完了し, アレイ素子を含めた自然光のホログラフィックマルチカラー3 次元顕微鏡システムを構築する段階である。アレイ素子とその得られる機能に対して対外的に評価された(報道 2)。

【微弱な光のホログラフィック検出に関する研究】

本さがけ内での共同研究として, 量子光学が専門のさがけ領域の岡本 亮 氏と, 量子光学と情報光学の考えを導入した研究を進めた。(1)単一画素検出器で少ない情報量から多次元ホログラフィック画像の情報を取得することを目指した研究と, (2)微弱な干渉光の検出における不確かさを導出する研究を進めた。後者は, 岡本氏が位相シフト干渉法に対し量子ゆらぎの考えを導入して, 理論を立てて研究を進めたものであり, 研究者は量子光学に基づく計算機シミュレーションをもって数値的に検証し, 良い一致が示されることを確認した。本共同研究により, 微弱な光の検出における測定結果の信頼性に対する指標を生み出すことができ, 微弱光多次元ホログラフィックセンシングの基礎研究を推進することができた。計算機シミュレーション結果の内容をまとめ, 国際会議発表へ向けて予稿を共著にて投稿した。また, さがけ領域の石井 あゆみ 氏と, 高感度, 多機能センシングについて議論し, 光学設計のみでは達成しえない情報量の取得可能性を見出すことができている。

3. 今後の展開

「2. 研究成果 (2)詳細」に記載の通り, 試作した光学システムでは現在, センサへの結像面から 21.9 μm の深さにおいて 1 μm オーダの構造を 22 fps の記録速度で白色光のマルチカラーホログラフィックセンシングを実現している。しかしながら, 「2. 研究成果 (2)詳細」に記載の統合システムの導入などにより, 時間分解能の向上において性能向上の余地がある。空間分解能においても, 試作システムではカラー偏光イメージセンサの画素密度に左右され, 12 種のホログラムの画素密度が空間分割多重により減少するため, 改善の余地がある。倍率を上

げると 1 画素あたりが検出する光量が減少するため、光量が限定された条件では時間、空間情報量のトレードオフが避けられない。「2. 研究成果 (2) 詳細」に記載の統合システムでは、光量の制限を緩和し更にアレイ素子による空間的な分割数を減らし、時間、空間情報量をより多く得る潜在能力を有する。今後、統合システムを実現し、ビデオレートを超えた記録速度で、 $1\mu\text{m}$ 以下の構造を 3 次元画像としてセンシングする、マルチカラーインコヒーレントホログラフィック顕微鏡として、多様な現象の 3 次元動態観察に挑みたい。一方で、ストロボ撮影など光量を多くとることができる条件を設定できれば、現在の光学システムでも高い時間分解能をもって 3 次元画像記録できる。これは例えば工業用顕微鏡への応用を考えると、LED などのストロボ照明を用いて、1 枚の記録されたホログラムから RGB の全焦点画像を再構成し、RGB の 3 次元画像観察を行うことができる。このことから、光量を一つの指標として、応用展開を考えることが想定される。

本研究課題では、顕微鏡を照明光学系と検出光学系に分けたとき、検出光学系の研究開発を行なったものと位置付けられる。照明系を工夫した超解像顕微鏡との親和性を考えるとき、FINCH に基づく検出系の PSF 改善と、計算コヒーレント多重に基づくマルチカラー同時ホログラムセンシングは、照明系にメリットを与えられ、親和性も高いと考えられる。検出系を工夫し時間分解能を向上させるアプローチに加えて、照明光学系の工夫に取り組む波動光学や生命科学の研究者との連携を通じて、時間、空間、波長、光量などの情報量に対する光学的な設計を見直し、それぞれのトレードオフの限界突破を目指しつつ、求められて要求に応えられる顕微鏡としての成長に繋げたい。

さがけ領域 岡本 亮 氏との共同研究により始まった、単一画素・微弱光多次元ホログラフィックセンシングの研究においては、単一画素センサの広い時間周波数帯域と広ダイナミックレンジの自由度をもって、限られた情報量から如何により多くの情報を得るかに焦点をあてつつ進めたい。ダイナミックレンジ方向に位相や波長の情報をエンコードしセンシング回数を低減することはホログラフィック多重センシングの強みであるが、更なる検出時間の低減に向けて情報科学の積極的な活用にも取り組みたい。また、顕微鏡など光量が制限された条件下における、ホログラムセンシングの限界性能を解き明かすべく、基礎科学研究課題として量子光学の考えを活用して技術の評価や数値的検証を今後も氏と共同で進め、広がりを持たせたい。

4. 自己評価

時間的、空間的にインコヒーレントな光をマルチカラーのホログラムとして単一露光センシングする研究課題を提案した。技術の実証と共に、白色照明光学顕微鏡においてセンサへの結像面から $21.9\mu\text{m}$ の深さにある $1\mu\text{m}$ オーダの構造に対して、最高 22 fps でマルチカラーホログラム動画画像センシングを達成した。このことから、描いた構想を概ね達成できたと結論付けられる。白色光、蛍光の単一露光ホログラフィック顕微鏡画像センシングを実証できたことは、顕微鏡観察下においてあらゆる光のホログラフィック動画画像センシングを実現可能であることを示すものであり、コヒーレント光、インコヒーレント光、線形/非線形光を問わずに活用できるホログラフィック顕微鏡法の創出を達成したと自己評価する。一方で、蛍光 3 次元動画画像顕微鏡システムへの応用において、現時点の光学システムで上記のフレームレートを得るには蛍光検出のために強い励起光を照明せねばならず、励起光を弱めながら高倍率で微弱な光を

検出できるように、光学システムを改良する必要がある。光学システムの改良には、”計算コヒーレント多重を用いた波長多重インコヒーレントデジタルホログラフィ”で挙げた研究成果を最大限に活用し、統合された光学システムをもって性能向上を目指すことが一つの有効な策として挙げられる。そのため、とった研究アプローチは妥当であったと評価する。また、同さがけ領域の岡本 亮 氏と共同研究を進め、微弱な光の検出における測定結果の信頼性に対する指標を生み出すことができ、石井 あゆみ 氏と高感度、多機能センシングについて議論に基づき、光学設計のみでは達成しえない情報量の取得可能性を見出すことができており、微弱光多次元ホログラフィックセンシングの基礎研究を推進することができた。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Tatsuki Tahara, Takeya Kanno, Yasuhiko Arai, and Takeaki Ozawa, “Single-shot phase-shifting incoherent digital holography,” J. Opt. (IOP Publishing), **19**, 065705–1–8 (2017).
2. Tatsuki Tahara, Reo Otani, Kaito Omae, Takuya Gothoda, Yasuhiko Arai, and Yasuhiro Takaki, “Multiwavelength digital holography with wavelength-multiplexed holograms and arbitrary symmetric phase shifts,” Opt. Express, **25**, 11157–11172 (2017).
3. Tatsuki Tahara and Yutaka Endo, “Multiwavelength-selective phase-shifting digital holography without mechanical scanning,” Appl. Opt. **58**, G218–G225 (2019).
4. Takayuki Hara, Tatsuki Tahara, Yasuyuki Ichihashi, Ryutaro Oi, and Tomoyoshi Ito, “Multiwavelength-multiplexed phase-shifting incoherent color digital holography,” Opt. Express (in press)
5. Tatsuki Tahara, Tomoyoshi Ito, Yasuyuki Ichihashi, and Ryutaro Oi, “Multiwavelength three-dimensional microscopy with spatially incoherent light based on computational coherent superposition,” Opt. Lett. (accepted)

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 3 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

1. 田原 樹, 大谷礼雄, 「ホログラム記録装置」, 特願 2018-116985 号(出願日 2018 年 6 月 20 日), 特開 2019-219523 号(公開日 2019 年 12 月 26 日), 出願人 学校法人関西大学, シグマ光機株式会社(共願)。

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

・主要な学会発表

【国際会議(招待講演)】

1. T. Tahara, R. Otani, Y. Arai, Y. Takaki, “Multidimensional imaging with phase-shifting interferometry,” The 7th Korea-Japan Workshop on Digital Holography and Information Photonics (DHIP2017) (Daegu Gyungpook Design Center, Daegu, Korea) (2017/12/21)
2. T. Tahara, T. Ito, R. Okamoto, K. Wakunami, Y. Ichihashi, and R. Oi, “Approaches for simultaneous holographic multicolor motion-picture-microscopy sensing of multiple natural

light sources,” OSA Imaging and Applied Optics Congress: Digital holography and 3-D imaging 2020 (DH2020) (Hyatt Regency Vancouver, Vancouver, British Columbia Canada) (2020/6/22-26(予定)).

【国内発表(会議, 研究会, シンポジウム)(招待講演)】

1. 田原 樹, “計算コヒーレント多重に基づく多種光源のホログラフィックマルチカラーセンシング,” 2019 年度千葉大学シンポジウム(GPシンポジウム) (千葉大学西千葉キャンパス) (2019/12/26).

・著作物

【Review 論文(査読付)】

1. J.-P. Liu, T. Tahara, Y. Hayasaki, and T.-C. Poon, “Incoherent Digital Holography: A Review,” Appl. Sci. **8**, 1–18 (2018).
2. T. Tahara, X. Quan, R. Otani, Y. Takaki, and O. Matoba, “Digital holography and its multidimensional imaging applications: a review,” Microscopy (Oxford Academic), **67**, 55–67 (2018).

・報道

1. 2016 年 11 月 20 日(TBS テレビ), 2016 年 11 月 27 日(BS-TBS), TBS テレビ, TV 番組: 未来の起源「カメラ 1 台で立体映像」
2. 2018 年 2 月 21 日, 日経産業新聞 先端技術欄「3 次元カラー撮影 瞬時に」

研 究 報 告 書

「極相対論的光電磁場における重元素低主量子数電子の電離機構の解明」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 西内満美子

1. 研究のねらい

超高強度レーザーを薄膜ターゲットに照射すれば、従来型加速器に用いられる加速空洞では発生不可能な究極に高い加速電界が照射時間に同期する時間(フェムト秒)で発生可能であり、この極高強電場はレーザー駆動型のイオンの加速の源として着目を集めている。申請者により、この究極に高い加速電界を使えば、従来型加速器技術では不可能な、重元素の高エネルギー加速と多価電離を、同時に達成できる「極高強度準静的電場」が生じることが明らかにされた。そこで本研究では、重元素の多価電離と高エネルギー加速に寄与する「極高強度準静的電場」と、レーザー光そのものが有する「相対論的極高強度光電磁場」という一見類似しているように見え、実は全く異なる二つの極高強度場に着目し、未だ完全に理解されていない相対論的な超高強度光電磁場による重元素の低主量子数電子の電離過程を実験的に明らかにすることに挑戦する。

超高強度レーザーによる元素の光電離過程においては、「Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 理論によるトンネル電離過程でほぼ完全に説明できる」と理解される。しかし実際には、もはや一般的な技術となっている 10^{21} [W/cm²] を超えるようなペタワット(= 10^{15} [W] 以下 PW と記述) 級レベルのレーザーとイオン化ポテンシャルが ~ 100 keV にもなる質量数 200 クラスの重元素の低主量子数電子の電離過程を考えた場合にはこの考えは適用できない。ADK 理論のトンネル電離のモデルの中では、レーザー電場は準静的な電場によって近似でき、その電場によって束縛電子の持つポテンシャル壁が押し下げられて束縛電子が電離するという半古典的な描像に基づくが、これには次の重要な 2 点が欠落する。①相対論的なレーザー強度では、光磁場の効果によって束縛電子がレーザー進行方向に得る速度が増加し、静電場中での電子の動きが双極子近似では扱えないこと。②相対論の効果による電子質量の増加。本研究においては、これらの重要な 2 点が、極相対論的な光電磁場強度において電離過程にいかなる影響を及ぼすのかを実験的に示すことに主眼を置き、「極高強度光電磁場」そのものと、「光電磁場と同等強度を持つ極高強度準静的電場」という比較実験に必要なユニークな二つの系を作り出し、重元素の低主量子数電子の電離過程の両者における違いを明らかにする。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究は「極高強度光電磁場」と「極高強度準静的電場」による重イオンの低主量子数電子の電離過程の違いを実験的に探るものである。

本研究遂行には極強集光可能なレーザーシステムが必須となる。本研究開始時期には、そのようなレーザーは日本においては報告者が所属する QST 関西研の J-KAREN システムがその可能性を持つ唯一のマシンであった。まず①J-KAREN システムの大強度化プロジェ

クトにコアメンバーとして貢献し、J-KAREN システムの強集光を達成した。②強集光したレーザー光とターゲット物質が相互作用するのを妨げるレーザーの背景光の低減を行った。これら二点は、世界初の試みであることを特筆する。

「極高強度準静的電場」は、その強集光した光と最適な材質と厚みでできたターゲットを相互作用させて初めて生成される。大強度レーザー光は、波形整形された後も矩形波とは程遠い波形を示すため、その波形に最適化されたようなターゲット素材を選択する必要がある。また極高強度準静的電場を生成するには nm レベルの厚みの薄膜が必要であるため、残った背景光によって擾乱を受けにくい重元素の銀を選択し、nm レベルの厚みの自立薄膜ターゲットを形成する技術を開発した(③)。

極高強度準静的電場でイオン化された重イオンを計測するのに必要な装置の開発を行った。具体的にはトムソンパラボラスペクトロメータの原理に独自のアイデアを組み合わせ、異なる核子からのイベントを識別可能とした方式である(④)。

次に「極高強度準静的電場」生成のために、最適化されたレーザー波形と生成した銀の 500 nm の薄膜ターゲットを相互作用させることで、42 TV/m の極高強度準静的電場の生成に成功し、準静電場によるイオン化過程では Ag+37 価までを確認した(⑤)。その際に得られた重要な知見として、超高強度レーザーと固体薄膜の相互作用にて生成されるプラズマは非常にユニークな高温(10 keV)固体プラズマであること、さらにターゲットの厚みによっては、固体高温プラズマ中での電子衝突イオン化によって+42 価まで電離されたイオンを裏面の電場で引き出すことが可能であることが分かった。レーザーによる重イオン加速のイオン化メカニズムは、世界においても初めての知見である。

また「極高強度電磁場」と重元素のイオン化過程を探るために TOF-MS スペクトロメータを開発し、キャリブレーションまで完了した。今年度後半に予定されている大強度レーザーのマシントimeにて実験を行う条件が整った(⑥)。

(2) 詳細

1) レーザー開発: 超高強度場電磁場を生成するツールの開発

本研究を遂行するにあたり、超高強度電磁場を実験室に実現するための強集光可能なレーザーシステムが必須となる。本研究開始時期には、そのようなレーザーは世界においても立ち上がりつつあるような状況であり、日本においては報告者が所属する QST 関西研の J-KAREN レーザーシステムがその可能性を持つ唯一のマシンであった。そこで、J-KAREN レーザーシステムの大強度化プロジェクトにコアメンバーとして貢献した。その結果を Figure.1(a)(b)に示す。Fig.1(a)は J-KAREN レーザーの集光スポット、Fig.1(b)パルス波形を示す。適切な波面形成を行うことで、集光スポットは回折限界のほぼ2倍である $1.3 \times 1.4 \text{ mm}^2$ まで強く絞り込むことが可能となり、時間波形においては、時間位相を調整することで、ほぼフーリエ限界に近いところまで圧縮が可能となった。この結果集光スポットにおけるレーザーの強度は世界最高レベルである $\sim 10^{22} \text{ Wcm}^{-2}$ が達成された[1]。

2) レーザー開発: コントラスト向上のための試み : SRSI-ETE

また、レーザーにはピークパルスに先立つ背景光が存在することが知られている。この背景光はメインパルスより前にターゲット物質と相互作用するために、メインパルスとターゲット

物質が直接相互作用する前に、ターゲットの状況が変化してしまうという問題が発生する。超高強度レーザーの場合はこの問題がより顕著になる(背景光が物質のイオン化閾値を優位に超える)ために、本研究で計測したいメインパルスピークによる原子のイオン化の信号がバックグラウンドに埋もれて計測できなくなるという問題が発生する。当初 J-KARENレーザーの持つ時間波形においてはこの背景光成分が、メインパルスに先立つ 200 ps 以前より、元素のイオン化レベルをはるかに超える強度($>10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$)領域で存在していた。この状況を改善すべく J-KAREN レーザーシステムの背景光を低減する試みを行ない、Fig.1(c)にみられるように大幅な改善に成功した [2,3,4,5]。

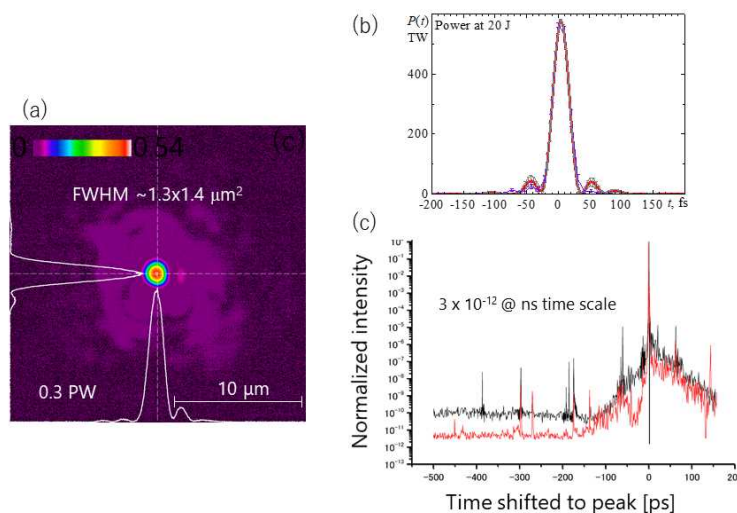


Figure.1 J-KAREN レーザーの持つ(a)集光スポット、(b)パルス波形、(c)コントラスト。

3) 超高強度電場生成のためのターゲット作成

本研究テーマの一つである、極高強度準静的電場生成の手法としては、超高強度レーザーと薄膜を相互作用させ、レーザー照射側から見て裏面に生成されるシース電場(電荷分離電場)を用いる。このシース電場の強度は、薄膜に照射するレーザーのピーク強度の約 7 割程度までたかめることが可能である(詳細は現在執筆中の論文に記述)。このシース強度はターゲットの裏面における電子の密度および電子温度に依存する。しかしながら、上記のレーザーのコントラスト状況が悪いと、ターゲットの裏面にメインパルス照射前にプリプラズマが形成され、プラズマ密度が固体密度よりも減少する。レーザーと薄膜との相互作用によって照射面から発生する高エネルギー電子が発散角を持つため、ターゲットが厚い場合、裏面における電子の密度が減少する。すなわち、できるだけ背景光が低いレーザーを用いて、できるだけ薄い薄膜を使うことで、ターゲット裏面に極高強度準静的電場が生成できる。しかしながら、超高強度レーザーの背景光は全くゼロにすることは原理的に不可能であり、かつ矩形波のようなパルスを生成できないため、ある程度有限の背景光を持つパルスに耐えるターゲットの素材を選ぶ必要がある。このような状況を加味し、背景光に抵抗力がある重元素の銀をターゲット素材として選択し、最薄で 5 nm までの自立ターゲット生成手法を開発した。

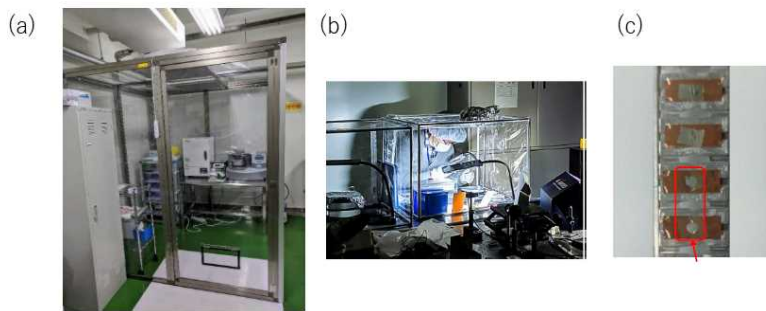


Figure.2 (a) 自立薄膜生成のために開発したクリーンブース、
(b)自立薄膜ターゲットを生成する様子、(c)5 nm の銀の自立薄膜ターゲット。

4) レーザー駆動カクテルビームより重イオンを識別する手法の開発

レーザー駆動イオン加速ビームの持つ特徴であるカクテルビーム性から、様々な核種のイオンが様々な電荷分布をもってターゲットから発生する。通常レーザー駆動イオンビームの識別には、トムソンパラボラスペクトロメータが用いられる。トムソンパラボラスペクトロメータとは、ターゲットより飛行して飛び出すイオンの軌道に対して垂直に電場と磁場を同方向に印加することで、イオンはターゲットから離れた位置に設置した検出器上で、イオンが持つエネルギーおよび価数によってパラボラ曲線を描くことでイオンを分別する原理を持つ。ただし、この際に、同じ価数と質量比(以下 Q/M と記述)を持つイオンに関しては、同じ軌道上に分布することになり、異なる核子であったとしても同じ Q/M を持つイオンは識別することが不可能である。本研究においては、重元素の価数を計測することが目的であり、同じパラボラ曲線上を描く軽元素のイベントと重元素のイベントとを区別することが必須となる。そこで、トムソンパラボラ検出器の検出面にイメージングプレート(以下 IP と記述)を選択した。異なる Z を持つイオンはイメージングプレート上に落とすエネルギー(dE/dx)が異なること着目し、あらかじめイオン種、エネルギー、価数が明らかな加速器からのイオンビームを用いてイメージングプレートを精度よくキャリブレーションした。その結果レーザー駆動のカクテルビームより、精度よく銀のイベントを識別することが可能となり、重元素の銀の価数を正確に計測することが世界で初めて可能となった。

5) 超高強度短パルスレーザーと固体薄膜相互作用による極高強度場生成

大強度レーザー J-KAREN システムからのレーザーパルスを銀のターゲットに照射することで、マクロな準静的電場としては、地球上の他のいかなる手法によっても生成できない極高強度電場 50 TV/m を達成した。この電場強度は、例えば宇宙における中性子星の表面付近に存在する電場強度に匹敵するほど高強度な電場である。

実験では J-KAREN レーザーシステムを 300 TW モードで用い、10 J、40 fs のレーザー光を 500 nm の銀の薄膜に F/1.4 の軸外し放物面鏡で 45 度の角度から $5 \times 10^{21} \text{ Wcm}^{-2}$ の集光強度で照射した。達成した電場の強度をターゲット素材の銀のイオン価数によって計測するという手法をとることを考え、上記4)のトムソンパラボラスペクトロメータを用いた。

ターゲットの裏面に強力な電場を立てたい場合にターゲット上に邪魔ものが存在する。それは、ターゲット表面に存在する、数十 nm の厚みの水や油などの不純物層である。レーザーが

ターゲットに照射されることで、この不純物層由来の軽元素がターゲット裏面にプラズマを形成し、そのプラズマ中に電場が形成されることで、まずは不純物層由来の軽元素が電場のポテンシャルによって加速される。すなわちこれらの不純物層の加速に電場のポテンシャルが無駄に使われるために、標的である銀を電離及び加速するための強い電場の形成には至らない。すなわちこの表面不純物層を取り除く必要がある。そこで、J-KAREN レーザーのパルスをやうまく整形してやることで、プリパルスを形成し、このプリパルスによってあらかじめプリシース電場を作り、ターゲット表面の不純物層を電離・加速することを考えた。すなわちメインパルスが銀ターゲットに照射される時間には、不純物層は十分ターゲットより離れている状況を実現するというものである。ただしここで気を付けるべきは、プリパルスの強度とメインパルスとの時間である。あまりにも強度が高いプリパルスを早期に照射すると、不純物ばかりではなくターゲット自体もプラズマ化して膨張してしまうために、高強度場形成に必要な電子密度が下がってしまうからである。

このようにあらかじめ時間波形を調整した J-KAREN レーザーを用いることでターゲット裏面に強電場を形成し、銀を電離・加速し取り出した。結果としてトムソンパラボラスペクトロメータには最高+42 まで多価電離された銀イオンが 15 MeV/u まで加速されたことが計測された。また同時に計測された表面不純物層由来の陽子線は 40 MeV まで加速されていたことを確認した。

この実験状況を詳細に理解するために、解析的手法、および流体シミュレーション及び PIC シミュレーションを行った。用いた PIC シミュレーションには詳細なイオン化プロセスが組み込まれている。

まず、メインパルス照射時にはターゲットの表面の不純物層は十分にターゲット表面から離れた位置まで吹き飛んでいることが確認され、かつその時点において銀のターゲットは固体密度を保っていたことも確認された。次に、照射したレーザーの電場に相当する 200 TV/m に対し、その約 1/5 である 43 TV/m の電場がターゲットの裏面に形成されていることが確認された。この加速電場でイオン化できる銀の価数は 37 価どまりであり、実験で計測された 42 価の銀イオンのイオン化メカニズムは説明できないことが分かった。

しかし、ターゲットの温度はメインパルス照射によって、10 keV 近くまで上昇していたことが確認され、42 価まで多価電離されたイオンはターゲット中の電子の衝突電離過程によって生成され、裏面の加速電場で取り出されたイベントであることが理解された。

また、このような高い温度を持つ固体の銀プラズマを生成できるのは、背景光をできるだけ落とした超高強度短パルスレーザーのみであり、生成されたプラズマは非常にユニークなプラズマであることも確認された。

6) 超高強度電磁場と希ガスの相互作用で形成される多価イオン識別のための MS-TOF システムの開発

ここでは、「超高強度電磁場」によるイオン化過程を調査するために、 10^{21} Wcm^{-2} を超える超高強度レーザーと希ガスの相互作用によるイオン化閾値を実験的に取得し、古典モデルとの比較を行うことを目的とする。そのために必要な飛行時間計測法による質量分析装置 (MS-TOF) を開発した。集光強度の低いレーザー ($<10^{18} \text{ Wcm}^{-2}$) による原子のイオン化過程を調べるための分析装置と超高強度レーザーを照射してイオン化過程を調査するための分析

装置は、設計思想が全く異なる。低強度のレーザー照射においては、レーザー照射によってイオン自体が速度をもらい受けることはない。しかしながら、レーザー強度が 10^{21} Wcm^{-2} レベルになると、レーザーの持つ電磁場によって、イオン自体も加速されてしまい速度を持つことになる(例えば 10^{22} Wcm^{-2} の直線偏光レーザーを、Kr に照射すると、レーザー偏光方向に最高で 5 KeV ものエネルギーを得る)。このような「初速を持った」イオンをいかに効率よく収集し、エネルギー分解能よく検出器に運ぶかを粒子シミュレーションを用いて設計し MS-TOF システムを制作した。

今年度後半(2019/12~2020/1)に大強度レーザーJ-KAREN を用いて Ar および Xe のデータのレーザー電磁場によるイオン化メカニズムの実験を行う予定である。

3. 今後の展開

「超高強度電磁場によるイオン化(テーマ A)」と「超高強度準静電場によるイオン化(テーマ B)」のそれぞれについて記述する。

両テーマ共通してさきがけ期間内において調査できたレーザーの強度範囲は、 $<5 \times 10^{21} \text{ Wcm}^{-2}$ にとどまっている。しかしながら、もっとレーザー強度が上がっていくことで、レーザー電磁場と静電場との違いが顕著に表れてくるのは明らかであり、引き続きさらなる高強度領域にてこれらのテーマを続けていくことが必要である。これらは、既存のイオン加速手法にない卓越した特徴を持つレーザー駆動重イオン加速手法を制御するためには必要不可欠な情報である。レーザー駆動重イオン加速手法が超高強度レーザー領域で制御可能になれば、現在最先端の素粒子・原子核実験に用いられている重イオン加速器の飛躍的な小型化が期待でき、エネルギーフロンティアにさらなる切込みを入れることが可能になると考えられる。

テーマ(B)において、研究開始当初には考えていなかった新しい展開(4 章に詳細を後述)につながったため、超高強度レーザーと薄膜との相互作用にて生成できるユニークなプラズマにおけるエネルギー輸送の問題に引き続き取り組みたいと考えている。これも、レーザー駆動重イオン加速器制御のために必要不可欠なテーマであるとともに、プラズマ物理としても未踏の領域における研究である。

また、さらに高強度のレーザーを用いることで、プラズマ中に radiation friction の効果が卓越してくる領域に入ると考えられ、イオン化のプロセスとしては、今の強度領域($<10^{22} \text{ Wcm}^{-2}$)では無視できる X 線の光子衝突イオン化の効果がどのように成長してくるのかを計測するというのが大きなテーマとなると考えられ、現在高エネルギーX線及びガンマ線の計測手法の開発を開始している。

4. 自己評価

本研究内容として、「超高強度電磁場(テーマ A)」と「超高強度準静電場(テーマ B)」におけるイオン化過程の違いを調査するというものであった。両テーマに共通して、必要なレーザーの環境を整えるのにかなりの時間を要したことは否めない。しかしながら、それを通じて、同じ問題を抱え、同じ目的を持つ海外の研究者との交流が深まり、深い共同研究に発展したことは非常に大きな収益だった。

テーマ B を遂行するにあたって、実験計画当初には考えていなかった、High Energy

Density(HED)物質の研究への新しい展開が生まれた。具体的には、超高強度レーザーと薄膜との相互作用によって、生成できるプラズマがユニークなものであり、他のいかなる手法をもってしても生成できないものであることが判明したこと。すなわち、超高強度レーザー、それも短パルス(数十フェムト)レーザーの照射によって始めて、プラズマが高温に加熱されることが分かった。いくら多くのエネルギーを投入しても長時間(ピコ秒以上)かけてエネルギーをインプットするのでは、プラズマが輻射によって冷却する過程のほうが勝るために、プラズマの温度が上がらない。短パルスのレーザーであったとしても、背景光の量が多いと、長いパルスでゆっくりプラズマを加熱しているのと同じ効果になってしまう。これらが原因で今まで短パルス(数十フェムト)超高強度($>10^{21}$ Wcm⁻²)かつ、低い背景光のレーザーが強集光できるまでは、このようなプラズマが生成できなかった。このようなユニークなプラズマ中にエネルギー輸送過程を研究することは、プラズマ物理としても未踏の領域における研究である。

また、このような高温固体プラズマ中では、電子衝突イオン化の効果によって、数多くの高イオンが生成され、ターゲットの厚みを最適化することでそれらを加速して取り出すことが可能となることも明らかになった。レーザー駆動イオン加速手法を制御して応用につなげるという観点から考え、このユニークなプラズマ中のイオン化過程を調査し、レーザー駆動イオン加速の最適化手法へつなげられる知見を得たことは、非常に重要である。これらの結果により、現在最先端の素粒子・原子核実験に用いられている重イオン加速器の飛躍的な小型化が期待でき、エネルギーフロンティアにさらなる切込みを入れることが可能になることにとどまらず、小型の医療レーザー駆動イオン加速器(all optical)の確立も期待できる(科学技術及び社会への波及効果)。

テーマ A に関しては、研究に必要な環境を整え最終年度の後半にマシンタイムが取得できたため、実験をそこで行う予定であるが、さきがけ研究期間内においてはまだまだ途中であるため、今後引き続き研究を行っていきたいと考える。

研究費の執行状況としては、後述するように当初の予定どおり執行され、必要な実験環境を整えることができている。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1.

A. S. Pirozhkov, Y. Fukuda, M. Nishiuchi, H. Kiriya, A. Sagisaka, K. Ogura, M. Mori, M. Kishimoto, H. Sakaki, N. P. Dover, et.al., “Approaching the diffraction-limited, bandwidth-limited Petawatt”, Optics Express, 17, (2017).

2.

H. Kiriya, A. S. Pirozhkov, M. Nishiuchi, Y. Fukuda, K. Ogura, A. Sagisaka, Y. Miyasaka, M. Mori, H. Sakaki, N. P. Dover, et.al., “High-contrast high-intensity repetitive petawatt laser,” Opt. Lett. **43**, 2595–2598 (2018).

3.

M.Nishiuchi, H. Kiriya, H. Sakaki, N. P. Dover, K. Kondo, T. Miyahara, J. Koga, A. S. Pirozhkov, A. Sagisaka, Y. Fukuda, K. Ogura, Y. Watanabe, M. Kando, K. Kondo, “Ion acceleration experiment with the high intensity, high contrast J-KAREN-P laser system”, The review of Laser Engineering, 46, 145–147, (2018).

4.

H. Kiriya, M. Nishiuchi, A. Pirozhkov, Y. Fukuda, H. Sakaki, A. Sagisaka, N.P Dover, Ko. Kotaro, K.Ogura, M. Mori, Y. Miyasaka, N Nakanii, H. Kai, J. Koga, T. Esirkepov, M. Kando, K. Kondo, “The J-KAREN-P facility laser performance status”, The Review of Laser Engineering, 46(3), 134 – 137, (2018).

5.

M. A. Alkhimova, A. Ya. Faenov, I. Yu. Skobelev, T. A. Pikuz, M. Nishiuchi, H. Sakaki, A. S. Pirozhkov, A. Sagisaka, N. P. Dover, Ko. Kondo, K. Ogura, Y. Fukuda, H. Kiriya, K. Nishitani, T. Miyahara, Y. Watanabe, S. A. Pikuz, M. Kando, R. Kodama, and K. Kondo, “High resolution X-ray spectra of stainless steel foils irradiated by femtosecond laser pulses with ultra-relativistic intensities”, Optics Express 25 29501 (2017).

(2)特許出願

研究期間累積件数:0件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

招待講演

1) Electric fields extracting highly charged heavy ions by the short pulse high intensity laser J-KAREN-P system

西内 満美子, 榎 泰直, 桐山 博光, ドーバー ニコラス ピーター, コーガ ジェームズ, 近藤 康太郎, 渡辺 幸信, 神門 正城, 近藤 公伯, 畑 昌育, 岩田 夏弥, 千徳 靖彦

ICMRE 2019, University of Science and Technology,

2) Extreme electric fields extracting highly charged heavy ions by the short pulse high intensity laser J-KAREN-P system

西内 満美子, 榎 泰直, 桐山 博光, ドーバー ニコラス ピーター, コーガ ジェームズ, 近藤 康太郎, 渡辺 幸信, 神門 正城, 近藤 公伯, 畑 昌育, 岩田 夏弥, 千徳 靖彦

SPIE Optics Optoelectronics , SPIE, 2019-04-03

3) Investigation of ionization processes in the HED plasma, laser-driven ion source

西内 満美子, NicholasPeter Dover, 畑昌育, Hironao Sakaki, Kotaro Kondo, 宮原巧, Hiromitsu Kiriya, James Kevin Koga, 岩田夏弥, MARIYA, Alkhimova, Alexander Pirozhkov, FAENOV, Anatory, PIKUZ, Tatiana, Akito Sagisaka, Yukinobu Watanabe, Masaki Kando, Kiminori Kondo, Sentoku Yasuhiko
HEDS2019, OPIC , 2019-04-22

- 4) Extreme plasma as an ion source produced by high intensity laser pulses interaction with solid density targets

M.Nishiuchi, N.P. Dover, M. Hata, H. Sakaki, Ko. Kondo, T. Miyahara, H. Kiriya, J. K. Koga, N. Iwata, M. A. Alkhimova, A. S. Pirozhkov, A. Ya. Faenov, T.A.Pikuz, A. Sagisaka, Y. Watanabe, M. Kando, K. Kondo, Y. Sentoku

54th ASRC International Workshop Sakura-2019 "Nuclear Fission and Structure of Exotic Nuclei " 2019/03/25-27

- 5) Ion acceleration experiments with high contrast high intensity laser system
"J-KAREN-P" -- Extremely strong quasi-static electric field---

M.Nishiuchi, N.P. Dover, M. Hata, H. Sakaki, Ko. Kondo, T. Miyahara, H. Kiriya, J. K. Koga, N. Iwata, M. A. Alkhimova, A. S. Pirozhkov, A. Ya. Faenov, T.A.Pikuz, A. Sagisaka, Y. Watanabe, M. Kando, K. Kondo, Y. Sentoku

AAPPS-DPP 2018 (Division of Plasma Physics, Association of Asia Pacific Physical Societies)

2nd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics 2018/11/12-17 "

受賞

第 13 回 日本加速器学会奨励賞

研 究 報 告 書

「高強度テラヘルツ電場による量子多体系の非平衡物理の探索」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 松永 隆佑

1. 研究のねらい

超短パルスレーザー技術の発展によって、様々な物質において非平衡状態の超高速ダイナミクスがフェムト秒あるいはアト秒領域で調べられてきた。高強度化したパルスレーザーのパルス幅がモノサイクル程度にまで短くなると、パルスのキャリアエンベロープ位相に敏感な非摂動論的相互作用が現れるため、位相安定な光源を実現することが必要である。近年ではこのような光源を用いることで、光を強い ac 電場と見なし、時間変化する強い光電場と物質の相互作用が盛んに研究されている。

このような最先端フォトニクス技術が物性物理学や物質科学においても大きな役割を果たすことが期待される。しかし実際に行われている研究の対象は、一電子描像がよく成り立つ半導体や、初等的な量子力学でよく記述される原子・分子などの単純な系がその多くを占めている。現代の物質科学・物性物理学における最大の興味は、物質中の様々な自由度からなる量子力学的な多体効果と、この多体相関に由来して現れる多種多様で非自明な秩序(相)にある。凝縮系物理における素励起の典型的なエネルギースケールは meV 程度、周波数領域で言えばテラヘルツ帯に相当する。凝縮系の性質を観測し、素励起を強く引き起こして非平衡状態へと駆動するといった研究のためには、テラヘルツ光源を最大限利活用することが重要である。

近年ではテラヘルツ分光技術に加えて高強度テラヘルツパルス発生技術開発の進展が著しく、様々な非線形テラヘルツ応答の研究が国内外で進められている。しかしその多くは半導体などの単純な系をベースとしたものであり、量子的な多体相関が強く現れる複雑な系において高強度テラヘルツ光電場を活用した例はごく僅かしか報告されていない。テラヘルツ分光の最先端技術を、量子多体系の物性物理研究へと積極的に活用し役立てていくことが本研究のねらいである。本研究では、高強度テラヘルツパルス発生を主軸としたフォトニクス技術を活用して、量子多体系の凝縮状態において現れる秩序の性質を解明し、対称性の自発的な破れに付随する普遍的かつ未解明の現象を探索する。マクロスケールで発現する量子凝縮の代表といえる超伝導や、トポロジカルな電子的性質を示すディラック半金属・ワイル半金属に着目し、その非平衡ダイナミクスの解明と光電場による制御を通して、物性物理学と最先端光学技術が融合した研究分野を開拓していくことを目指す。

2. 研究成果

(1) 概要

高強度テラヘルツパルス発生を主軸としたフォトニクス技術を活用して、量子多体系の凝縮状態において現れる秩序の性質を解明していくことが本研究の主題である。具体的な主な物質系としては、

- ・ 従来型超伝導体

- ・ d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導体
- ・ ワイル反強磁性体
- ・ ディラック半金属

の 4 つの物質系について研究を行った。さらにそのためのテラヘルツ技術として、

- ・ Yb 系レーザーによる高強度テラヘルツパルス・中赤外パルス発生及び検出
- ・ 高精度偏光分解テラヘルツ時間領域分光システムの構築

などに関するフォトンクス技術開発を行った。下記ではその詳細について、研究テーマ A, B, C, D, E の 5 つに分けて解説する。

研究テーマ A では、従来型超伝導体 NbN のテラヘルツ非線形応答を結晶の対称性と電場の偏光に注目して調べた。その結果、従来型超伝導を記述するうえで最も重要な BCS 平均場近似が、非線形応答を考える際には容易に破綻し、集団励起(ヒッグスモード)を過小評価してしまうことを明らかにした。

研究テーマ B では、d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導体物 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCuO}_{8+x}$ について高強度テラヘルツ電場パルス照射における可視域の反射率変化の超高速ダイナミクスを調べた。偏光分解したポンププローブ分光により、d 波超伝導の全対称(A_{1g})ヒッグスモードの観測に初めて成功した。

研究テーマ C では、Yb 系媒質を用いたテラヘルツ技術の開拓に取り組んだ。新たなパルス圧縮方法として安価・安定で低パルスエネルギーでも可能なマルチプレート多段階自己位相変調法を開拓し、250 fs 以上のレーザーのパルス幅を 11 fs 程度にまで圧縮し、揺らぎを 0.05% 以下に抑えることに成功した。これを用いて 60 THz 帯にまたがる位相安定な広帯域パルスの発生と検出方法を確認した。

研究テーマ D では、反強磁性スピン由来の巨大応答が応用面で期待されているワイル反強磁性体において、テラヘルツ周波数帯での巨大異常ホール伝導の振る舞いを明らかにした。またディラック半金属の性質についても最先端のテラヘルツ分光技術を用いることで詳細に調べ、その光機能性を明らかにした。

(2) 詳細

研究テーマ A 「偏光分解テラヘルツ非線形分光による従来型超伝導の集団励起と BCS 平均場近似の破れの研究」

従来型超伝導体である NbN 薄膜のテラヘルツ帯非線形感受率の偏光特性を詳細に調べた。我々の過去の研究において超伝導とテラヘルツ波の非線形相互作用により第三高調波が発生することを発見し、これが超伝導特有の集団励起(ヒッグスモード)の共鳴効果によるものであることを示した。しかしその後、個別励起によっても定性的にはこの現象が説明できること、BCS 平均場近似の下では集団励起よりも個別励起の寄与の方が遥かに大きいことが理論的に指摘されたため、実験結果の解釈が議論になっていた。本研究で、我々は結晶の対称性に対するテラヘルツ電場の偏光依存性に注目しながら第三高調波の性質を調べること、非線形応答が極めて等方的であることを示した。これは個別励起では説明できず、集団励起の寄与の方が遥かに大きいことを実験的に明らかにした。

これは、通常 BCS 近似が良く成り立つとされる従来型超伝導体においても、その非線形応

答を考える際には BCS 近似が破綻しており、集団励起の寄与を著しく過小評価してしまうことを意味している。対形成相互作用における遅延効果や不純物散乱など、BCS 近似では無視されてしまう効果を取り入れた計算を行うことで実験結果をよく説明することができる。この内容は Physical Review B (Rapid Communications)誌に掲載された。

研究テーマ B 「銅酸化物超伝導体における d 波ヒッグスモードの観測」

d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCuO}_{8+x}$ について高強度テラヘルツ電場パルス(ポンプ)照射における可視域の反射率変化(プローブ)の超高速ダイナミクスを調べた。ポンプとプローブの偏光を変えることで非線形信号の中から A_{1g} 及び B_{1g} の対称性を持つ成分を抽出し、細かい温度依存性とホールドープ濃度依存性を系統的に調べることで、d 波超伝導の全対称(A_{1g})ヒッグスモードの観測に初めて成功した。この成果は Physical Review Letters 誌に掲載され、Editors' suggestion に選出された。

研究テーマ C 「Yb 系フェムト秒レーザーにおける高強度テラヘルツパルスおよび中赤外テラヘルツパルス生成」

テラヘルツ発生・検出のベースとなる超短パルス技術において、広い利得帯域が得られる Ti:S 結晶ベースのレーザーが長らく主流であったが、最近では、高安定・高繰返しが可能な Yb 系媒質によるパルスレーザーが注目されている。しかし Yb 系媒質では典型的に 200 fs 程度の長いパルス幅しか得られないという欠点がある。その点を克服することを重点的に考えながら、テラヘルツパルス発生技術の開発を進めた。まず 1 THz 周波数帯の高強度テラヘルツパルス生成を目指し、窒素冷却 LiNbO₃ 結晶の光整流効果とパルス面傾斜法を用いて、400 kV/cm を超えるテラヘルツパルス発生を確認した。中心周波数は 2 THz に達しており、これは非線形結晶の中で生じる 3 次の非線形効果によって自己位相変調が生じ、結晶伝搬中に広いバンド幅を獲得して帯域が広がったものと考えられる。

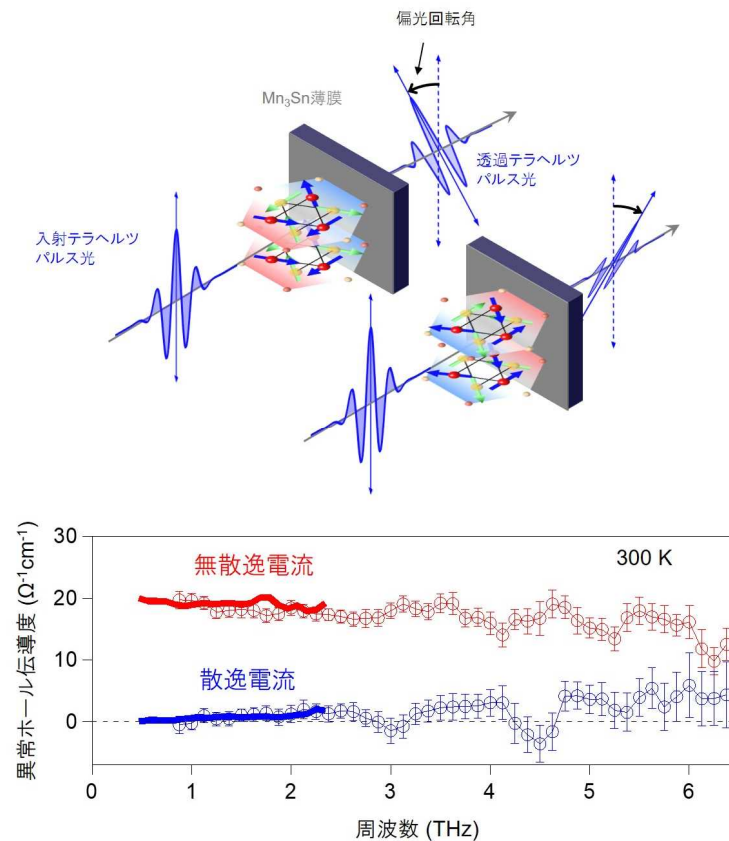
さらに数十 THz 帯の中赤外領域において位相安定な高強度テラヘルツ光源を開発することを目指し、まず差周波発生によって中赤外テラヘルツパルスを発生させ、それを光パラメトリック増幅して高強度化する方針を立てた。そのためにマルチプレート多段階自己位相変調法を導入し、250 fs 以上のレーザーのパルス幅を 11 fs 程度にまで圧縮することに成功した。これは中空ファイバーによるパルス幅圧縮と比べ極めて安価でかつ低いパルスエネルギーで実現可能であり、さらに圧縮後のショットごとの揺らぎが 0.05%以下に抑えられており安定性も極めて高い。この光源と GaSe 劈開剥片を利用して、60 THz 帯にまたがる広帯域パルスを発生させた。位相安定性はジッター 0.4 fs 以下に達しており、15 秒ほどの短い時間内に明瞭な電場波形を取得する検出方法確立した。

研究テーマ D 「ワイル反強磁性体 Mn_3Sn における室温テラヘルツ巨大異常ホール伝導」

反強磁性体は一般にスピンの歳差運動が強磁性体よりも桁違いに速くテラヘルツ周波数帯で駆動すること及び漏れ磁場が小さいことから、次世代の高速スピントロニクス材料として期待されている。しかし外場に対する応答が強磁性体と比べ非常に小さいため、スピンの情報を読み出すことが難しく、実用化には至っていない。最近マンガン化合物 Mn_3Sn が室温で

巨大な異常ホール効果を示すことが発見され、自発磁化が非常に小さい反強磁性体であるにも関わらず強磁性体並みの巨大応答を示すことから大きな注目を集めている。これは積層カゴメ格子においてスピンの逆 120 度構造を取ることによってワイル反強磁性体として振舞うためと考えられている。テラヘルツ周波数帯における Mn_3Sn の動的性質を調べることは、反強磁性スピンの巨大応答を活用した新しいスピントロニクスデバイスに繋がる可能性がある。

本研究では、 Mn_3Sn 薄膜の異常ホール伝導度スペクトルをテラヘルツ周波数領域で調べることで、反強磁性スピンの情報を高速にテラヘルツ帯で読み出すことに成功した。異常ホール伝導は光電場に対する偏光回転として現れるため、我々はテラヘルツ偏光回転スペクトルの精密計測に取り組み、0.5–2.0 THz の周波数帯において 20 min の積算で 0.05 mrad の精度が得られる高精度偏光分解テラヘルツ分光システムを構築した。これを用いて巨大異常ホール伝導をテラヘルツ周波数帯で観測し、1 THz 周波数帯でも異常ホール電流が極めて非散逸的であること、低温ではスピン秩序における時間反転対称性が回復することで偏光回転が消失すること等を示した。



ワイル反強磁性体の巨大異常ホール効果の観測。(上)反強磁性スピン秩序情報をテラヘルツパルスの偏光回転として高速に取り取ることを実現。(下)観測された異常ホール伝導度の周波数特性。1 THz 帯まではほぼ無散逸にホール電流が流れる。

3. 今後の展開

研究テーマ A 及び B については、高強度テラヘルツ波を用いた物性物理学研究として、非平衡超伝導の性質と非線形応答を明らかにすることに成功した。BCS 理論によって基本的な性質はほぼ解明されつくしたとも思われた従来型超伝導においても高強度テラヘルツパルスのような技術の進展によって基礎的な理解が進んだことは興味深く、今後もフロンティアが広がることが期待される。特に非線形応答における BCS 平均場近似の破綻を示したことで、これまで主に BCS 平均場近似によって解釈されていたラマン散乱の実験結果についても新たな議論が必要になると考えられ、ラマン散乱測定で観測されるコヒーレントピークが集団励起由来である可能性を検証したいと考えている。

研究テーマ C で実現した、Yb 系高安定フェムト秒パルスレーザーを用いた高強度テラヘルツパルス発生技術は、1 THz 周波数帯における極めて強い光源として、現在我々が進めている物性研究において極めて重要な役割を果たしている。また超短パルスレーザー圧縮技術によって 60 THz あたりにまで及ぶ高周波テラヘルツパルス発生が可能にあり、広帯域のポンププローブにより今後はトポロジカル半金属の非平衡状態を調べていく予定である。さらに今後は高周波テラヘルツパルスの光パラメトリック増幅による高強度化に取り組み、この位相安定高強度光源による光電場駆動を用いた更なる非平衡物性研究に取り組む。

研究テーマ D ではワイル反強磁性体の巨大異常ホール伝導をテラヘルツ周波数帯で観測することに成功し、反強磁性スピン情報の高速読み出しが実現した。今後はこれを高強度テラヘルツ磁場と組み合わせることで、テラヘルツ磁場により反強磁性スピンを高速反転させそれを時間分解して検出する技術に発展させることが期待される。また、異常ホール伝導度を超高速に時間分解することが可能になったため、可視光ポンプ-THz プローブ分光により光励起後の異常ホール伝導を調べる研究を進める予定である。異常ホール伝導の起源として、電子分布関数とベリー曲率に由来して散逸なしで生じる「内因性異常ホール効果」と、不純物との散乱によって決まる「外因性異常ホール伝導」の 2 種類が存在することが知られ、未だに議論の対象となっている。光励起によって電子分布関数を変化させたときの過渡的非平衡状態において電子の散乱確率と異常ホール伝導がどう変化するかを調べることで、この問題について明瞭な結論を得ることができると期待される。

4. 自己評価

研究の進め方については、さきがけ 2 年目にあたる 2017 年 7 月より東京大学物性研究所に着任して新しく研究室を立ちあげることになり、当初の予定からは方針変更が必要となった。特にもっとも大きな購入物であるフェムト秒パルスレーザーについて、新所属後の導入になったことに加えて予算前倒し申請による機器のアップグレードを行い、結果的に納品されたのがさきがけ 2 年目の年度末になるなどの遅れが生じた。しかしそれでも当初の大きな研究目的として掲げた「高強度テラヘルツ電場をベースとした最先端光技術を活用し、量子多体系と凝縮状態において現れる秩序の解明と光電場による制御を通して、物性物理学と光学技術が融合した研究分野を開拓していくことを目指す」という点において、まさにその目的に合致した成果を残すことができた。具体的には、従来型超伝導、非従来型銅酸化物高温超伝導、ワイル反強磁性体、ディラック半金属など、物性物理学・凝縮系物理学における中心的トピック

クである物質系に対して、それぞれ興味深い研究成果を上げることができた。そのベースとなっているものは、さががけ予算の大半を投じて導入した Yb 系フェムト秒パルスレーザーの再生増幅器であり、パルスエネルギー 2 mJ、繰り返し 3 kHz、パルス幅 255 fs の非常に強力かつ安定な光源を導入できたことで、新しい研究室の立ち上げという状況下においても先端的な実験が可能となった。このレーザーを用いてテラヘルツを中心とした最先端光技術をさらに進め、本さががけ研究にも、高強度テラヘルツ発生、位相安定中赤外テラヘルツパルス発生、高精度偏光分解テラヘルツ時間領域分光など、それぞれの計測に必要な光学システムを立ち上げて活用し、物性研究に役立てることができた。

特に、ワイル反強磁性体およびディラック半金属に対して行った研究では、テラヘルツ周波数における新たな光機能性を「室温で」発現している点を実証したという点が重要である。ワイル反強磁性体におけるテラヘルツ巨大異常ホール伝導、およびディラック半金属におけるテラヘルツ巨大非線形伝導と周波数変換は、いずれも物質科学における最先端トピックである電子状態のトポロジーに起因した新奇応答によるものであり、これを活用した高速テラヘルツスピントロニクスおよびエレクトロニクスにおけるデバイス開発に役立つことが期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Ryusuke Matsunaga, Naoto Tsuji, Kazumasa Makise, Hirotaka Terai, Hideo Aoki, and Ryo Shimano, "Polarization-resolved terahertz third-harmonic generation in a superconductor NbN: dominance of Higgs mode beyond the BCS approximation", *Physical Review B Rapid Communications* (2017) 96, 020505(R) (2017).
2. Kota Katsumi, Naoto Tsuji, Yuki I. Hamada, Ryusuke Matsunaga, John Schneeloch, Ruidan D. Zhong, Genda D. Gu, Hideo Aoki, Yann Gallais, and Ryo Shimano, "Higgs Mode in the d-Wave Superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ Driven by an Intense Terahertz Pulse", *Physical Review Letters* 120, 117001 (2018).
3. Takuya Matsuda, Natsuki Kanda, Tomoya Higo, N. P. Armitage, Satoru Nakatsuji, and Ryusuke Matsunaga, "Room-Temperature Terahertz Anomalous Hall Effect in Weyl Antiferromagnet Mn_3Sn Thin Films", *Nature Communications* in press (2020).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

<https://www.jst.go.jp/pr/announce/20200318-2/index.html> (受賞) 平成 30 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞、2018 年 4 月 17 日

- ・ (Invited talk) Ryusuke Matsunaga, "Ultrafast dynamics in superconductor and Dirac semimetal with efficient terahertz harmonic generation", Workshop for Nano- and Ultrafast Surface Sciences, Garching, Germany, Sep. 25-27th, 2019 (Invited talk)
- ・ (招待講演) 松永隆佑, "高強度テラヘルツ光による超伝導体の非線形応答と集団励起", 一般社団法人レーザー学会学術講演会第 39 回年次大会、東海大学、2019 年 1 月 14 日

- (Invited talk) Ryusuke Matsunaga, "Higgs Amplitude Mode in Superconductors Studied by Nonlinear Terahertz Spectroscopy", the 31st International Symposium on Superconductivity, Tsukuba, Japan, Dec. 12-14th, 2018 (Invited talk)
- (招待講演) 松永隆佑、"テラヘルツ非線形分光による超伝導ダイナミクス研究の戦略"、シンポジウム「テラヘルツ科学の最先端 IV」(KKR ホテル熱海), 2017 年 12 月 4-6 日
- プレスリリース「反強磁性金属薄膜のテラヘルツ異常ホール効果を観測」2020 年 3 月 18 日

研究報告書

「極低温イオン・原子混合系で探求する極低温化学反応過程」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研究者: 向山 敬

1. 研究のねらい

本研究のねらいは、「極めて絶対零度に近い極低温下での化学反応過程の観測と、化学反応に現れる量子効果の研究」である。そのための具体的な手法として本研究では「レーザー冷却イオン・中性原子混合系における極低温化学反応過程の研究」という課題に挑戦する。

通常、化学反応を起こす際に温度を上げれば反応速度が上げられることを我々は経験的に知っている。これはアレニウス則と呼ばれ化学反応過程が系の温度と活性化エネルギーの比較から反応速度が議論できる古典的な状況においてよく成り立つ。しかし粒子の波動性が利いてくる低温領域では量子トンネリングにより活性化エネルギーの壁を越えずともトンネリングによって化学反応が進むと考えられる。近年になり1ケルビンから数十ミリケルビン以下程度の温度領域については、化学反応レートが低温になるにつれて上昇するというアレニウス則に従わない振る舞いが観測され始めている一方で、より低温のマイクロケルビンの温度領域における化学反応は未開拓となっている。本研究では、精密に制御されたレーザーによる冷却技術を駆使することで中性原子気体とイオンの混合気体系においてマイクロケルビンの温度領域を実現し、その系を用いて極低温化学反応を研究することを目指すものである。特にマイクロケルビンという温度領域では、化学反応における量子トンネリングの効果に加えて、反応に寄与する原子やイオンの持つ量子統計性(ボース粒子/フェルミ粒子)が化学反応に影響を及ぼすことが予想される。つまり本研究は、化学反応研究をより低温に拡張することで化学反応過程に量子多体効果が顕著となる状況の実現を目指すものである。そしてこの研究は原子物理分野で培われた技術を応用することで分野の垣根を超えて量子化学との間を融合させる新しい研究になると考えている。さらに我々の系は極低温の中性原子気体を用いたイオンの共同冷却という利用法も考えられ、永久双極子モーメントの測定への応用や、光格子を用いて周期的に配列した単一原子の量子状態の観測や制御を行う道具としてイオンを用いるといった新技術への発展も期待できる。その点からも、本研究提案は目指すものそれ自体が革新的な研究となると同時に、新しい量子技術への応用の可能性を秘めたものになると考えている。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究ではレーザー冷却の手法により極低温に冷却されたイオンと中性原子気体の混合系を実現し、その両者の間に生じる弾性散乱、非弾性散乱(化学反応)の散乱特性を詳細に調べることを目的としている。そして最終的にはマイクロケルビンの温度領域に到達することで両者の散乱過程が原子やイオンの量子統計性に支配される状況を実現することを目指す。本さきがけ研究では、(1)電荷交換反応における量子状態の制御、(2)衝突緩和過程の観測、(3)原子イオン間弾性散乱による共同冷却効果の実証、を実現した。

極低温原子イオン混合系を生成した際に、イオンの内部状態を準安定励起状態に準備すると、内部状態の変化に伴う非弾性散乱(化学反応)過程が起こる。我々が採用したリチウム原子とカルシウムイオンでは、カルシウムイオンを準安定D状態に準備した時に電荷交換反応と衝突緩和反応が起こることをそれぞれ実験的に突き止めた。実験的に得られた電荷交換反応の反応断面積は、原子とイオンが近接する断面積に比べて大きくなるという測定結果になり、それ自体は一見矛盾した結果のように見える。しかし、その考察は原子とイオンの持つ全スピン角運動量を良い量子数とみた考え方であり、本研究の結果はこの全スピン角運動量を良い量子数と捉えることの問題点を示唆している可能性がある。これは本来考慮すべきであるがその大きさが非自明なスピン軌道相互作用の存在を考慮すれば必ずしも不自然なことではない。量子化学計算でこのスピン軌道相互作用を取り入れて分子のエネルギー準位を計算することは容易ではなく、本研究で得られた実験成果が分子のエネルギー準位を理論的に求める際のスピン軌道相互作用の取り入れ方に指針を与える実験結果になると期待される。また、(3)の原子イオン間の弾性衝突については、本研究で初めてイオンの温度が中性原子との1回の衝突で35%のエネルギーが奪われるという実験結果が得られている。原子イオン間の弾性散乱を用いた共同冷却では、重い原子を用いてしまうとイオンの運動の攪乱が大きすぎるために大きな加熱を生んでしまう可能性が指摘されており、今回の成果は中性原子として軽い原子種を選択している我々の系だから観測できた現象である可能性があり、我々の系の優位性について検討する材料としても重要な結果である。

(2) 詳細

研究テーマ A:「電荷交換反応における量子状態制御」

本研究は極低温領域における化学反応を理解することを目指して開始された研究であり、研究対象としてレーザー冷却された中性原子とイオンを用いている。この混合系はマイクロケルビンという温度領域を実現することが可能であり、そのような温度領域では化学反応の反応物が持つ量子統計性が化学反応に影響を与えることが考えられる。さらにレーザー冷却原子イオン系は反応物を特定の量子状態に用意

することが可能であり、その量子状態の制御をレーザーによって高い精度で行うことができるという強みがある。この性質を生かして、原子イオン間に生じる極低温電荷交換反応の反応断面積を様々な量子状態について詳細に調べる実験を行なった。実験系は図1(a)に示すようなものである。左側の原子トラップの位置で極低温の ${}^6\text{Li}$ 原子を用意し、右側のイオントラップのある位置に中性原子気体を光ピンセットの技術を用いて輸送することで ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオン

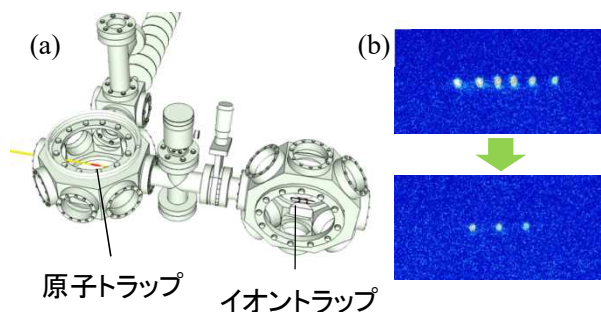


図1:(a)実験装置の概要 (b)上図が電下交換反応前、下図が電下交換反応後のイオンの蛍光画像

との混合系を実現している。図1(b)に原子と ${}^6\text{Li}$ を混合させる前後でのイオンの蛍光画像の変化を示す。図1(b)上図に示すように混合前にはイオンが6個トラップされているが、原子を混合させて1秒ほど待つと図1(b)下図に示すようにイオンが3個に減っている。これは ${}^6\text{Li}$ 原子から ${}^{40}\text{Ca}^+$ イオンへ電子が飛び移った電荷交換反応であることが、別の実験における質量分析の結果から判明している。我々は衝突エネルギーにして 200 マイクロケルビンという極低温の状態を実現することに成功している。また、我々はパリ第 11 大学の理論研究者 Olivier Dulieu 教授らと共同研究を進め、 ${}^6\text{Li}$ - ${}^{40}\text{Ca}^+$ 系についてのポテンシャル曲線の計算結果と突き合わせることで電荷交換反応がポテンシャル曲線上のどのような経路をたどって生じているかを突き止めることに成功した。一方で、本研究の結果から、いくつかの量子状態を始状態とした場合に、電荷交換散乱断面積が原子とイオンが近距離まで近づく断面積(ランジュバン断面積と呼ばれる)よりも大きくなるという結果が得られている。これは電荷交換散乱がランジュバン散乱の一部であることを考えると、電荷交換散乱断面積はランジュバン散乱断面積を下回るはずであり、この結果が現時点で相互作用ポテンシャルを算出する際に取り入れられていないスピン軌道相互作用を取り入れなければいけないという状況を示唆している可能性がある。もしそうであれば現時点で理論的には取り入れる方法が自明ではないスピン軌道相互作用について、その取り入れ方を議論する際のベンチマークとなりうる重要な実験結果となる。この研究の成果は原著論文リスト2に報告している。

研究テーマ B:「衝突緩和過程の観測」

この原子イオン間の電荷交換反応の検討の中で、我々は電荷交換反応を検出したのと同じ原子とイオンの量子状態から出発した時に電荷交換を伴わない衝突緩和による過程も起こり得ることを見出した。これまでの測定はイオンの蛍光の消失によって化学反応を検出していたため、電荷交換は検出できるが衝突緩和は検出することができない。そこで2018年度は新しい測定方法を導入することでこの衝突緩和の検出を行なった。図2(a)に衝突緩和のポテンシャルエネルギー曲線上での経路を示す。電荷交換過程と同様に入力状態と出力状態のエネルギー準位の間に交差が起こっており、その点で遷移が生じる。電荷交換と衝突緩和のどちらが起こるかがは入力状態の原子とイオンのスピン状態の組み合わせに依存している。衝突緩和の測定は図2(b)に示すように冷却のためのレーザーとして 397nm と 866nm の光を照射する。さらに波長 850nm のレーザーを照射するとイオンが $D_{5/2}$ 状態に遷移し、蛍光が消失する。イオンは $D_{5/2}$ 状態から寿命 1 秒程度で基底状態

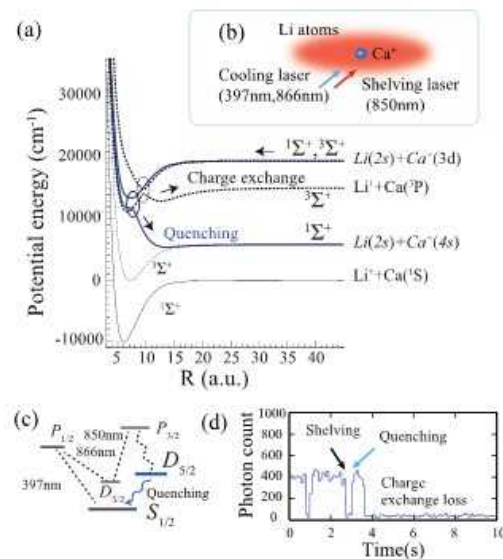


図2:(a)衝突緩和の経路 (b)具体的な実験手法 (c)カルシウムイオンのエネルギー準位図 (d)典型的なイオン蛍光量の時間変化

に脱励起することがわかっている。ここでこの $D_{5/2}$ 状態に用意されたイオンに原子を混合させ、 $D_{5/2}$ 状態の寿命を測定する。測定した結果を図3に示す。縦軸はイオンが D 状態にいる確率を表し、横軸は保持時間を示している。青の点はイオン単独での寿命の測定結果であり、およそ1秒という結果が得られていて、これはイオンの準位が本来持っている寿命と矛盾しない時間スケールである。赤いデータ点はイオンに原子をトラップするための近赤外光を照射

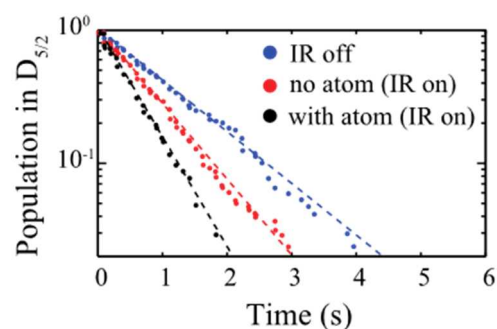


図3:イオンの蛍光寿命測定

した時の結果である。のちに原子と混合した時の結果を議論するが、原子をトラップするために照射している近赤外光が影響を及ぼすため、その影響を調べた結果である。次に黒で示しているのはイオンが原子と混合された時の D 状態の寿命測定の結果である。この結果より原子と混合した場合には寿命が 0.52 秒まで短くなったことがわかった。これは原子と混合することによって生じた衝突緩和により、イオンが基底状態に戻ったことを意味している。今後衝突断面積を定量的に評価することで、ポテンシャルエネルギーの詳細な理解につながる事が期待される。本研究については” Observation of quenching collisions in an atom-ion hybrid trap ”というタイトルで論文原稿を準備している段階である。

研究テーマ C:「原子イオン間弾性散乱による共同冷却効果の実証」

イオンと原子の弾性散乱過程の観測実験を行なった。我々はイオンからの蛍光を光子検出器で検出し、蛍光のタイミングと蛍光強度の相関を取ることができるよう装置を改良することでイオンの温度評価を行う技術を導入した。これにより中性原子との衝突の前後でのイオンの温度が変化する様子を定量的に評価することに成功した。図4に実験結果を示す。縦軸にはイオンの温度、横軸にはイオンを極低温の中性原子と混合した時間を示す。ランジュバン衝突レート Γ_L の値が大きい時ほど混合している中性原子の密度が高いことを表し、原子密度が高い時にイオンがより冷却されている様子が見て取れる。この結果をレート方程式を用いて解析することにより、(1)イオン原子衝突が近距離衝突するたびにイオンがエネルギーを失うこと、(2)1回の衝突あたりにイオンが失うエネルギーが 35%程度であるということ、の2つを明らかにした。原子イオン間の弾性散乱についてここまで定量的に議論した例はこれまでなく、極めて新しい成果として Physical Review Letters 誌に報告している(原著論文リスト1)。原子イオン間の弾性散乱を用いた共同冷却では、重い原子を用いてしまうとイオンの運動の攪乱が大きすぎるために大きな加熱を生んでしまう可能性が指摘されており、今回の成果は中性原子として軽い原子種を選択してい

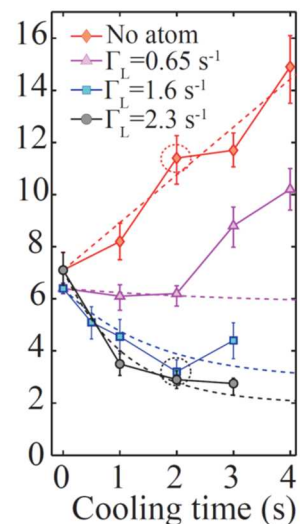


図4:イオンの共同冷却

るから我々だからこそ観測できた可能性のある現象であり、我々の系の優位性について検討する材料として重要な結果ととらえている。

3. 今後の展開

本研究の目標はマイクロケルビンの温度領域での原子イオン混合系の実現と、その環境において起こる化学反応に現れる量子統計効果の観測であった。その現象の観測自身も極めて重要なターゲットであるが、一方で真空中に浮かんだ孤立量子系としての極低温イオン原子混合系は、近年著しく発展したレーザー冷却の技術を極低温量子化学に応用することができる非常に興味深い系である。このような系は、温度領域こそ異なるものの数ケルビン程度の温度領域で生じる星間分子の反応と深い関連があり、両者ともイオン-原子間相互作用が重要な役割を果たす系である。そのため、本研究で得られる知見は原子分子物理だけでなく量子化学、宇宙物理など多岐に渡る分野の発展に生かされるものであると考えられる。また、我々の系は極低温の中性原子気体を用いてイオンの冷却を行うという利用法も考えられる。例えば永久双極子モーメント(EDM)の観測の対象として注目されている HfF^+ などの分子はレーザー冷却が適用しにくく冷却が難しいが、中性原子を用いた共同冷却を行えば併進運動に加えて振動回転の自由度まで含めて冷却が可能となり、EDM の測定に有用となるであろう。実際に本研究では中性原子気体を用いてイオンの並進運動を冷却できることを実証しており、レーザー冷却できないような分子イオンでの並進運動と内部運動(振動、回転運動)の冷却のデモンストレーションができればその波及効果は原子分子分野、精密計測分野など多岐に渡ると考えられる。さらに本研究で実現する原子イオン混合系は、電荷(電場)という自由度を極低温原子気体系に導入した系ということもでき、これまで磁場や光によって主に制御されてきた中性原子気体を、イオンの運動を介すことにより電場で制御することが可能になる。例えば光格子の技術を利用して周期的に配列した単一原子のそれぞれについて状態の観測や制御を行う道具としてイオンを用いると、近くの他の原子に影響を与えずに対象とする原子の観測や制御を行うことが可能になるかもしれない。このように極低温原子気体の研究に新しい制御自由度をもたらす研究に発展することが期待され、本研究提案が目指すものそれ自体が革新的な研究となる。

4. 自己評価

本研究はマイクロケルビンの極低温の温度領域で中性原子とイオンの混合系を実現し、さらにその両者の起こす化学反応過程に量子統計性が現れる振る舞いを観測することを目指したものである。研究開始時には原子とイオンが真空中の同一空間にトラップされた結果として電荷交換反応が起こることが確認できていたところだった。3年の研究の間に電荷交換反応における量子状態の制御、衝突緩和過程の観測、原子イオン間弾性散乱による共同冷却効果の実証、といった重要な成果を上げることができた。その点では順調に研究が進展していると言えるが、一方で当初の目的として掲げていたマイクロケルビンの温度領域に到達することは叶わなかった。研究が当初計画と比較して遅れた理由の一つとして、本さがけ研究を開始してちょうど1年が経過したところで異動に伴う装置の解体、移動と再構築の過程が入ったこと、また研究に従事していた研究室のメンバーも全員卒業してゼロから立ち上げ直しの状況になったことが挙げられる。本さがけ研究が終了した後も当初目指していた目標を実現するために努力していきたいと考えており、あと1年程度の研究期間があればイオンにサイドバンド冷却を施すことでマイクロケルビンの

温度領域が実現できると考えている。

一方で、本さがけ研究で達成した上記の成果により、フランスの理論研究者である Dulieu 教授との共同研究を進めることになり、共著で論文を執筆するまでに至っている。また、イオントラップ研究で著名なイスラエルの実験研究者である Ozeri 教授とも2国間共同研究プロジェクトに共同で申請することを提案してもらうことができ、2018 年度に採択されて共同研究を進めるに至っている。また、本研究を実施している間に10回の招待講演を行っており、うち6回は国際会議に、4回は国内の会議に招待されたものである。そのことから、研究分野内で本研究の成果について一定の評価が与えられていると考えている。また、本研究は中性原子気体と電荷を持つイオンの間に生じる衝突過程を詳細に調べたものであるが、そのような原子イオン衝突は今後様々な応用(科学技術としての)につながる可能性がある。我々は原子イオン弾性散乱を用いたイオンの共同冷却に成功しているが、この技術は今後、レーザー冷却が適用できないような分子イオンに適用することで並進運動と振動、回転運動の両方をマイクロケルビンの温度領域まで冷却する手法に発展する可能性がある。冷却が期待される分子イオンとしては永久電気双極子モーメントの観測の有力候補となる様々な分子イオンが考えられ、超精密計測への重要な貢献をもたらす技術となるかもしれない。また、中性原子により作られる超流動体中に電荷という不純物を導入した系は、中性子星中の中性子が原子核に束縛されたり解放されたりを繰り返す中性子ドリップの現象のモデル系にもなりうるという議論も存在する。また周期的に並んだイオンの周りを中性原子が行き来する様子は金属中の原子核と自由電子の置かれた状況と極めて近いと考えられる。この原子イオン混合系はそのような他の物理系のモデルとなる系としての役割も果たす可能性があり、他の物理系で発現する現象をミクロなレベルで理解するためのモデル系としての役割も期待できると考えている。

5. 主な研究成果リスト

1. 論文(原著論文)発表

1. S. Haze, M. Sasakawa, R. Saito, R. Nakai, and T. Mukaiyama, Cooling dynamics of a single trapped ion via elastic collisions with small-mass atoms, Physical Review Letters 2018 年, 120 号, 043401
2. R. Saito, S. Haze, M. Sasakawa, R. Nakai, M. Raoult, H. Da Silva Jr., O. Dulieu, and T. Mukaiyama, Characterization of charge-exchange collisions between ultracold ${}^6\text{Li}$ atoms and ${}^{40}\text{Ca}^+$ ions, Physical Review A 2017 年, 95 号, 032709

1. 特許出願

研究期間累積件数:0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

2. その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 土師慎祐, 齋藤了一, 向山 敬「イオン・原子混合系における極低温衝突」, 日本物理学会誌 2018 年 第 73 巻 第 2 号 97 ページ
2. Takashi Mukaiyama, Collisional properties of ultracold ions with neutral atoms, Workshop on Charge Impurities in Cold Atomic and Molecular Systems, Spain, July 23, 2018(国際会議招待講演)

3. Takashi Mukaiyama, “Collisional properties of ions with light-mass neutral atoms”, European conference on trapped ions, Israel, Nov. 21, 2018(国際会議招待講演)
4. Takashi Mukaiyama, “Collisional properties of ultracold ions with neutral atoms”, 30th International Conference on Photonic Electronic and Atomic Collisions, Cairns, Jul. 31, 2017(国際会議招待講演)
5. Takashi Mukaiyama, “Collisional properties between ultracold atoms and ions”, symposium on small and medium sized cold atomic systems, Okinawa Institute of Science and Technology, Jul. 18, 2017(国際会議招待講演)

量子ネットワーク実現に向けた新しい量子光源を発見

岩崎 孝之（東京工業大学 工学院 電気電子系・准教授）

研究課題名：「IV 族元素を用いた固体量子光源エンジニアリング」 研究期間：2016.10～2020.3

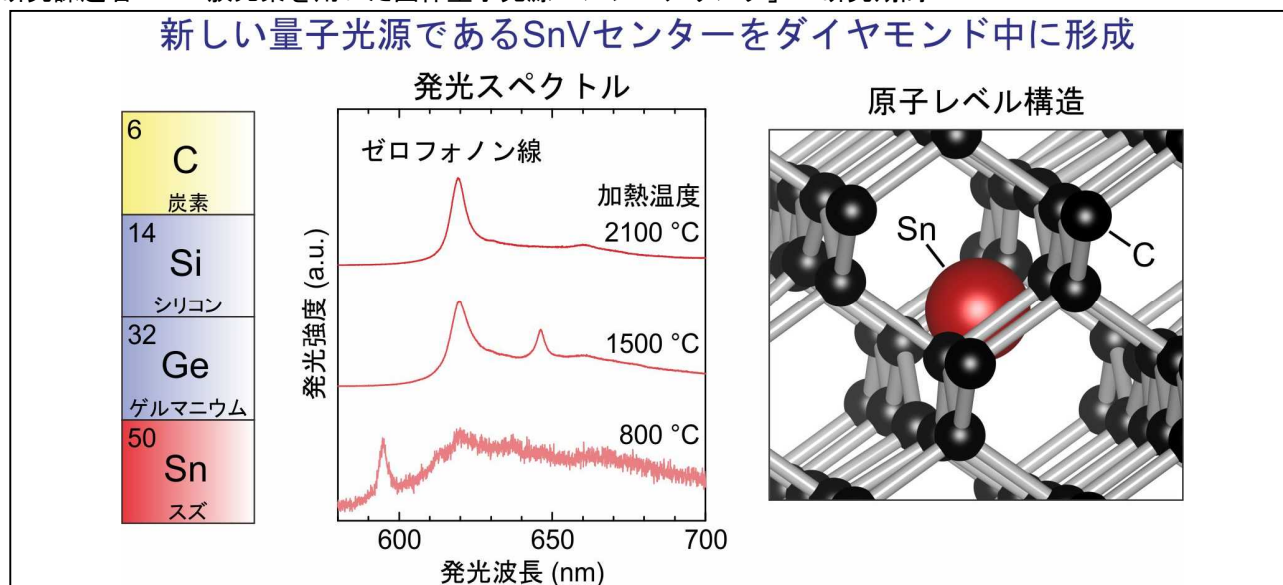


図 ダイヤモンド中のSnVセンター

ダイヤモンドは炭素原子が密に結合した結晶構造からなります。本研究では、炭素と同じIV族元素であるが圧倒的に大きいスズをダイヤモンド内に導入することで新しい量子光源を発見しました。2100℃という高い温度での熱処理を行うことで鋭い発光（ゼロフォノン線）を示す構造の形成を達成しました。第一原理計算から、ダイヤモンド結晶中では、スズは炭素が本来ある位置と位置の間に存在し、2つの空孔に挟まれることでSnVセンターを形成しています。

量子ネットワークは、量子状態を送受信することで完全に安全な通信を実現する技術です。現在の光ネットワークのように長距離で量子ネットワークを構築するためには、送受信者間で量子情報を中継するデバイスが必要不可欠です。そのようなデバイスを実現すると期待されているのが、固体物質中の量子光源です。量子光源には、光子を1つずつ早く放出する機能と量子状態を長く保存するメモリ機能が必要になりますが、これまで2つの特性を両立する量子光源は見出されていませんでした。

本研究では、優れた光学特性とメモリ特性（スピン特性）を両立する可能性を有する新しい量子光源を発見しました。IV元素であるスズ(Sn)をダイヤモンドに導入し、2100℃、7.7 GPaという高温高压下で処理することでスズと空孔(V)が結びついたスズー空孔(SnV)センターを形成しました。実験および理論計算から、SnVセンターは単一光子放出源として機能し、強い発光を示すこと、さらに温度2 Kで長いスピンコヒーレンス時間（メモリ時間）を期待できることを明らかに

しました。本研究の発見により、従来の固体量子光源が抱えていた問題が解決される可能性があり、長距離量子ネットワークを実現するための重要な1歩になると期待できます。

>>参考情報

➤ 論文

1. Iwasaki T., et al., *Phys. Rev. Lett.* 119, 25 3601, 2017.
2. Goerlitz J., *New. J. Phys.* 22, 013048, 2020.

➤ 受賞

1. 「平成 31 年度 科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞」(2019)
2. 「令和元年度手島精一記念研究賞(研究論文賞)」(2020)

➤ プレスリリース

1. 「高温で安定化する新しいダイヤモンド量子発光体の作製に成功 ～量子ネットワークへの応用に期待～」(2017 年 12 月)

<https://www.jst.go.jp/pr/announce/20171226/index.html>