

戦略的創造研究推進事業 CREST  
研究領域「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」  
研究課題  
「時空間モルフォロジーの制御による  
能動メゾ光学」

研究終了報告書

研究期間 平成18年10月～平成24年3月

研究代表者：五神 真  
東京大学大学院理学系研究科、教授

## § 1 研究実施の概要

### (1) 実施概要

レーザーの発明から半世紀が経過した現在、このレーザー技術の発展はより加速しており、学術分野だけでなく様々な場面で人類社会を支える基盤技術となっている。超高速大容量の光伝送通信技術や GPS の高度化など、光科学技術のさらなる発展への期待はますます高まっている。近年の光科学技術の革新の原動力は、レーザー光を光波としてとらえ、その振幅や位相を完全に制御する技術が確立したことである。光はベクトル波であり、位相、振幅以外にも偏光という自由度をもつ。これらの光の全自由度を自在に制御する技術をさらに追求し、物質と光の潜在力を引き出すことが求められている。本研究では、偏光自由度に加えて光の波長と同程度のモルフォロジーに着眼し、それらをダイナミックに制御することで、物質が光に対して鋭敏に応答しさらにそれを光の状態変化につなげる仕組みを創出できるのではないかと考えた。

東大グループは、電子励起状態の分光研究や微小球による光閉じ込め、人工キラル構造による光波制御などで実績を上げてきた。一方、農工大グループは、極超短パルスを精緻に制御する技術の研究で世界をリードしてきた。本研究では、両グループの連携でこれらを融合させ、時間軸と空間軸の両方で同時に制御された光を用いて物質の励起状態を巧みに制御して新現象を発現させると共に、波長以下の特異構造を動的に制御することによって新しい光機能を引き出す、“能動メゾ光学”を開拓することを目指した。これによって、光と物質の基礎科学を深化させ、新たな光技術・光物性研究の突破口を見いだすことを狙いとした。研究の遂行にあたっては、以下の研究項目を設定し、相互に連携させながら進めた。個々の項目と本研究の成果をまとめて記す。

### ・東大グループ

#### I. モルフォロジー制御による光機能発現

金属キラルナノ格子巨大旋光性の発現機構の解明、誘電体導波路上人工キラルナノ格子における巨大旋光性の観測、金属人工キラル構造によるテラヘルツ(THz)旋光性の発現、光励起キャリアによる THz 領域の三次元キラリティーの創成、半導体キラルナノ周期構造による円偏光放射制御の実現、結合ファブリーペロー共振器構造を用いた反強磁性からの磁気放射制御

#### II. 巨大光応答物質相の探索

位相制御パルスによる極低温励起子の選択的生成、サブケルビン下での励起子 BEC 転移の観測、フェムト秒モード同期ファイバーレーザーの製作、角運動量保存則の観点に基づく光誘起磁化の新しい選択則の発見、反強磁性中における光を用いた磁化の THz ベクトル制御の実現、非線形光学結晶を用いた THz ベクトルビーム発生法の開発

### ・農工大グループ

#### III. 時空間波形制御技術の開拓

パルス光波の振幅・位相・偏光の完全制御技術の確立とねじれ偏光パルスの実現、広帯域光位相変調技術を用いた CARS 散乱分光の高感度化と生体内分子検出への応用

#### IV. 能動的三次元時空間制御造形法の開拓

位相制御パルスを用いた振動モードの選択的励起による光異性化ダイナミクスの制御、高速高感度時間分解エリプソメトリー測定系の開発

### ・東大農工大連携課題

光励起キャリア擬2次元人工キラル格子の形成とテラヘルツ偏光制御の実現  
ねじれ偏光パルス励起による結晶内テラヘルツ振動の周波数帯域可変任意ベクトル制御の実現

本 CREST 研究においては、両グループ連携のシナジー効果が如何なく発揮された。研究の比較的初期の段階での東大グループにおける位相制御パルスによる極低温励起子の選択的生成の成功や、自作フェムト秒ファイバーレーザーの着手には、農工大グループの技術的支援が不可欠であった。その一方で、農工大グループの先端光源の長所を最大限に引き出す物質系の選定には、東大グループから効果的なアドバイスを与えることができた。その過程で培われた強力な連携体制の下で、本 CREST 期間中に各グループによって達成された「光を用いた磁化のベクトル的制御(東大)」と「ねじれ偏光パルスの実現(農工大)」を直接的に組み合わせる実験を成功させることができた。この際には、農工大で開発した波形制御ユニットを東大のラボに持ち込んで両グループの大学院生が共同で実験を行った。情報共用のみならず、装置、人の交流も含めた強力な連携体制が、数々の研究成果の創出につながったものである。

本 CREST 研究を通じて、位相、振幅、偏光という光の全自由度を自在に制御する技術、によって、これまでにない新たな物質の潜在的な能力を引き出すことが可能であることが実際に示された。たとえば、アキラルな媒質において人工的に強いキラル真空場を生じさせることで、自然放出光を円偏光化する実験はその実例である。本研究によって、この新しい光科学の端緒が開かれたと考えている。これは様々な観点から発展させることができるものであり、今後も取り組んでいきたい。従来の物性研究においてレーザーは、ユーザーとしての立場でもっぱら利用するだけのことが多かったが、本研究を通じてその技術開発に自ら切り込むことができるようになったことは大きな成果である。これを契機として、光源研究の研究者と一体となった光科学の研究を推進することに積極的に取り組んでいる。具体的には、文部科学省・最先端の光の創成を目指したネットワーク拠点プログラム「先端光量子科学アライアンス」および文部科学省最先端研究基盤事業「コヒーレント光科学研究基盤の整備」を主導してすすめているが、これも本 CREST 研究によってもたらされた成果である。

## (2) 顕著な成果

1. "Coherent Quantum Control of Excitons at Ultracold and High Density in Cu<sub>2</sub>O with Phase Manipulated Pulses" T. Ideguchi, K. Yoshioka, A. Mysyrowicz, and M. Kuwata-Gonokami, Phys. Rev. Lett., **100**, 233001 (2008).

**概要:**亜酸化銅における1sオルソ励起子系において、空間光変調器を用いて周波数空間上での励起光の位相操作を行うことによって、位相空間圧縮法による共鳴2光子吸収遷移強度を保ったまま、高温の励起子生成につながる3光子吸収過程を抑制し、励起子を低温のまま高密度に生成できることを実証した。

2. "The vectorial control of magnetization by light", N. Kanda, T. Higuchi, H. Shimizu, K. Konishi, K. Yoshioka, M. Kuwata-Gonokami, Nature Communications **2**, 362 (2011)

**概要:**THz 領域に強い反強磁性共鳴が観測される酸化ニッケル(NiO)に対して、我々が見出した偏光選択則に基づいて設計したねじれ偏光ダブルパルスを励起光として用いることによって左右の振動モードが縮退した磁気共鳴を選択的に励起し、THz 円偏光放射として検出することに成功した。磁性体の磁化制御の新しい手法として注目すべき成果である。

3. "Interferometric Polarization Pulse Shaper Stabilized by an External Laser Diode for Arbitrary Vector Field Shaping", M. Sato, T. Suzuki, and K. Misawa, Rev. Sci. Instrum., **80**, 123107 (2009)

**概要:**直交する2つの偏光成分をそれぞれ波形整形した後に干渉させることにより、任意の偏光状態を持つパルス波形の生成に成功した。偏光制御パルスによる物質制御は、光学異性

体を持つアミノ酸などに適用することで、生命科学や医療の分野にも新しい技術をもたらすものと考えられる。

## § 2. 研究構想

### (1) 当初の研究構想

本研究では、東京大学グループが進めてきた微小球やナノキラル構造研究などのモルフォロジー依存光学の研究、電子系や励起子系の巨視的量子状態の研究と農工大グループが積み上げてきた極超短パルス分光技術研究を融合させ、物質系の新たな知見を得ると共に、新しい光制御技術-能動メゾ光学-を確立する。このため、以下の3つの研究項目を互いに連携させながら研究を進める。また、産業界で光技術開発に豊富な経験と実績を有するメンバーとの議論により、本研究で得られる基礎研究の成果を有効に応用に繋げる道筋を探る。

#### 研究項目 A: モルフォロジー制御と光機能

波長以下のサイズでの形状制御やモルフォロジー敏感な光学応答に注目し特異な光学応答を引き出す方法を探る。光励起状態を使う前段階として、金属や大きな振動子を持つ分子系を活用して原理確認実験をすすめ、次に光励起による動的な制御の研究を進める。

課題 A-1: サブ波長スケールの形状に依存する光学応答の原理解明

課題 A-2: モルフォロジー制御による非相反光学応答の発現

#### 研究項目 B: 時空間光波束操作による3次元構造の動的制御

フェムト秒パルスの電場波形整形技術と、光波の2次元横モードの波面整形技術、および偏光状態の実時間制御とを組み合わせ、新たな時空間波形制御技術を開拓する。これにより任意に操作された時空間整形パルスを用いて、能動的に3次元時空構造を形成する手法を開発する。

課題B-1: 時空間波形制御技術の開拓

課題B-2: 能動的3次元時空構造形成法の開発

#### 研究項目 C: 巨大光応答物質相の制御と探索

物質のサブ波長の形状に敏感に依存した光学応答を引き出す為に、プラズモン、量子縮退領域の励起子や励起子分子、有機分子性結晶の誘起分極などを対象に相互作用増強の原理を調べる。これと並行し、空間微分に敏感な光学応答として電気四重極子、磁気双極子に着目し、共鳴効果の利用による増大条件を探る。また励起子や電子正孔系の巨視的量子状態の位相コヒーレンスの抽出、磁化の高速制御など、物質科学へのフィードバックもはかる。

課題 C-1: 極低温状態励起子系の光生成手法の高度化

課題 C-2: 光と物質の相互作用を巨大化する物質相の探索

課題 C-3: 光と物質の非局所相互作用の原理と応用

#### 研究項目 D: 連携課題

3グループの連携を積極的に推進するために、連携課題を設定し、3グループ共同で進める。連携課題としては、研究の進捗管理および技術動向を踏まえた応用展開についての方向性について議論を行う。それに加え、具体的な実施課題を設定し共同実験を進める。共同実験としてはまず前半で、擬2次元人工キラル格子の光書き込みの実験を行う。後半ではこれを3次元に拡張する実験を進めると共に、研究全体の進捗展開を見据えて実証テーマを設定する。

### 課題 D-1: 光励起キャリア擬2次元人工キラル格子の形成とテラヘルツ偏光制御

半導体基板に光キャリアの空間構造(例えば凹構造)を作成し、プラズマ共鳴近傍のテラヘルツ波をプローブに用いて、その光学活性の発現を確認する。励起密度や形状の最適化を行う。

### 課題 D-2: 動的モルフォロジーの3次元構造形成制御による新規光機能発現

各グループの研究成果を踏まえ、3次元構造形成を利用した光機能の実証実験を行う。

#### (2) 新たに追加・修正など変更した研究構想

・巨大旋光性を有する人工キラルナノ構造は、その特異モルフォロジーの効果により、構造内部における真空場分布に、左右円偏光の非対称性を生じさせることができることを見出した。これは、構造内部に置かれた発光体からの自然放出は、その左右円偏光成分に差が生じることを意味する。我々は、この点を実験的に検証するため、半導体を用いてキラルフォトニック結晶を作製し、その発光偏光特性の解明を試みた。人工キラルナノ構造は、発光過程の制御にも応用できることが明らかになり、新たな円偏光発光素子としての観点からも研究を進めた。

・磁気応答と特異モルフォロジーの結合効果を検出するのに適した系として、THz 領域に強い反磁性共鳴を有するNiOに注目し、この光学応答を詳細に調べるとともに、励起パルスの制御や、構造の制御によってその応答特性を劇的に変化させる手法の開拓を目標として研究を進めた。

・農工大グループが開発中である次世代レーザー光源技術をスムーズに分光に応用するため、研究項目②-1に適用する形でフェムト秒ファイバーレーザーの製作を開始した。位相を含めたモード同期レーザーの制御が当然より高い技術的課題となるが、農工大グループの協力体制の下、比較的早い段階で分光応用へつなげることができる可能性が高まっている。

・農工大グループの当初構想にあった偏光状態の実時間制御について、特に直線偏光がパルス波形のなかで一定の回転速度で一方向に回転していく「ねじれ偏光パルス」が本質的であることが、研究を進めていく中で明らかになった。このねじれ偏光パルスを周波数解析すると、異なる中心周波数を持つ2つの逆回り円偏光の重ね合わせで表現できる。したがって、ねじれ偏光パルスによる励起を、左右逆回り偏光の周波数差を利用したラマン過程として捉えることが重要である。このとき、ねじれの回転周波数がラマン周波数に相当する。この観点から、モルフォロジー制御の対象を絞り込んで研究を進めた。

・位相ロックされた多波長光の電場波形を線形加算することによって位相敏感な分光が実現される。特に、ラマン励起による差周波過程では、単一のフェムト秒パルスであっても、スペクトル成分間の相対位相を制御することによって、位相敏感な非線形光学過程を抽出することができる。この原理検証として、単一の位相変調フェムト秒パルスをコヒーレントアンチストークスラマン散乱(CARS)分光法に応用した。フェムト秒パルス中に含まれる2つの周波数成分の差周波によって、分子の固有振動モードを励起できる。振動分子と励起パルスとの更なる相互作用の結果、短波長側にアンチストークス光が放射されるが、スペクトル帯域中のある狭い周波数成分のみに位相変調をかけると、この成分由来の信号を他の成分由来の信号から干渉的に際立たせ鮮明に観測できることを示した。

・位相変調を利用した CARS 分光は、分光困難な極限的な環境下においてもその威力を發揮できることが期待される。我々は生存状態にあるイカ巨大軸索中にハロゲン化炭化水素を注入し、生態環境内でも位相変調パルスが理想的に機能し、CARS 信号を先鋭化できることを示した。

・位相変調 CARS 分光には、不可避なバックグラウンドノイズが存在する。これは微弱な信号を分光観測する際の大きな制限要因となる。我々はこれまで開発したラピッドスキヤン型分光計を応用した高速位相変調と AC 検出を採用し、これに時間分解法とヘテロダイイン検出を組み合わせることで

バックグラウンドフリーの CARS スペクトルを取得することにも成功した。

・ファイバーレーザーは、チタンサファイアレーザーに取って代わりうる有望な新規レーザーである。特にイッテルビウム(Yb)ファイバーレーザーは、 $1\text{ }\mu\text{m}$  帯の発振波長を持つため、第二高調波を利用して容易に緑色の可視光パルスに変換できる。可視域での分光光源の有望な選択肢として Yb ファイバーレーザーの開発にも着手し、実際に数百フェムト秒のパルス発振を達成するに至った。

・光による分子の(振動)運動状態制御をより強固に確認するため、分子軌道計算を導入した。核の数が比較的多い場合、半経験的計算手法に頼らざるを得ないが、計算結果の妥当性を検証することは一般に困難である。我々は類似構造の分子に対する系統的な振動制御実験から得られる結果に加え、分子軌道計算の結果を相補的に利用することにより、高い信頼度で分子の実空間運動を特定できることを見出した。

### § 3 研究実施体制

#### (1)「東大」グループ

##### ① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
五神 真	東京大学 大学院理学系研究科	教授	H18.10～
吉岡 孝高	東京大学 大学院理学系研究科	助教	H18.10～
小西 邦昭	東京大学 大学院工学系研究科	特任助教	H18.10～
大間知 潤子	東京大学 大学院工学系研究科	研究員	H19.4～
李 佳	東京大学 大学院工学系研究科	研究員	H21.10～H23.2
竹田 研爾	東京大学 大学院工学系研究科	研究員	H18.10～
神田 夏輝	東京大学 大学院工学系研究科	D3	H21.4～
樋口 卓也	東京大学 大学院工学系研究科	D3	H21.4～
宮下 顕	東京大学 大学院工学系研究科	D2	H22.4～H23.9
武村 尚友	東京大学 大学院理学系研究会	D2 (留学)	H22.4～H23.11
鄭 渚	東京大学 大学院工学系研究科	D1	H22.10～
Yuri Svirko	University of Joensuu	教授	H18.10～
Andre Mysyrowicz	Ecole Polytechnique	研究部長	H18.10～
太野垣 健	東京大学 大学院工学系研究科	助手 (19年2月時点)	H18.10～H19.2
窪内 源宜	東京大学 大学院工学系研究科	D3 (19年3月時点)	H18.10～H19.3
中 暢子	東京大学	特任講師	H18.10～H20.7

	大学院工学系研究科	(20年7月時点)	
Jean Benoit Heroux	東京大学 大学院工学系研究科	助教	H18.10～H20.9
白濱 昌子	東京大学 大学院工学系研究科	学術支援専門職員	H18.10～H20.11
蔡 恩美	東京大学 大学院工学系研究科	D1(留学) (21年7月時点)	H20.4～H21.7
島崎 敏彦	東京大学 大学院工学系研究科	D2(留学) (21年6月時点)	H20.4～H21.6

## ②研究項目

研究課題:「巨大光応答物質相探索とモルフォロジー制御光機能開拓」

研究項目① モルフォロジー制御による光機能発現

①-1:形態に依存する光学応答の原理解明

①-2:モルフォロジー制御による非相反光学応答の発現

研究項目②:巨大光応答物質相の制御と探索

②-1:極低温状態励起子系の光生成手法の高度化

②-2:光と物質の相互作用を巨大化する物質相の探索

②-3:光と物質の非局所相互作用の原理と応用

## (2)「東京農工大」グループ

①研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
三沢 和彦	東京農工大学 工学研究院	教授	H18.10～
鈴木 隆行	東京農工大学 工学研究院	助教	H20.12～
佐藤 正明	東京農工大学 大学院工学府	D2	H20.4～
田島 隼人	東京農工大学 大学院工学府	M2	H22.4～
野口 大輔	東京農工大学 大学院工学府	M2	H22.4～
坂本 貴史	東京農工大学 大学院工学府	M1	H23.4～
攬上 泰亮	東京農工大学 大学院工学府	M1	H23.4～
小城 緋嘉里	東京農工大学 大学院工学府	M1	H23.4～
覧具 博義	東京農工大学 共生科学技術研究院	教授 (20年3月時点)	H18.10～H20.3
堀越 建吾	東京農工大学 大学院工学府	D3(離脱時)	H18.10～H21.3
小尻 尚志	東京農工大学 大学院工学府	M2(離脱時)	H18.10～H19.3
中野 雄介	東京農工大学 大学院工学府	M2(離脱時)	H19.4～H21.3

西尾 謙一	東京農工大学 大学院工学府	M2(離脱時)	H19.4～H21.3
芦沢 さや歌	東京農工大学 大学院工学府	M2(離脱時)	H20.4～H22.3
引田 敦統	東京農工大学 大学院工学府	M2(離脱時)	H20.4～H22.3
鈴木 智悟	東京農工大学 大学院工学府	M2(離脱時)	H21.4～H23.3
宮 良太	東京農工大学 大学院工学府	M2(離脱時)	H21.4～H23.3

## ②研究項目

研究課題:「時空間光波束操作による3次元構造の動的制御」

研究項目①:時空間波形制御技術の開拓

研究項目②:能動的3次元時空構造形成法の開発

時間分解旋光性スペクトルの高感度観測を追加

## § 4 研究実施内容及び成果

### 4. 1 モルフォロジー制御による光機能発現(東京大学 五神グループ)

#### (1)研究実施内容及び成果

##### ①-1:形態に依存する光学応答の原理解明

サブ波長スケールのパターンを周期的に並べた金属薄膜格子において見いだされた巨大旋光性の起源を系統的実験により明らかにし、表面プラズモンモードなどの電磁結合モードとメゾン構造の関わりについて、物理的モデルを構築し、効果の設計予測に活用することをねらいとしてこの研究テーマは開始された。

まず、ピエゾ弾性光変調素子を用いた偏光測定システムにおいて試料方位制御装置を導入し、自動測定システムを構築した。これにより、人工ナノキラル格子における巨大旋光性の入射光角度依存性を系統的かつ詳細に調べることが可能になった。2次元周期構造における、表面プラズモンモードの寄与を明確化するために、金属構造が連結したパターンによる高品質試料を用意した(図 1)。その結果、表面プラズモンモードの分散関係と旋光角のスペクトルが非常によく一致し、巨大旋光性の発現に表面プラズモン共鳴の効果が大きく寄与していることを実験的に明らかにした(図 1)。この微視的メカニズムを明らかにするため、ヨーエンス大学(フィンランド)との共同研究により、電磁波分布の数値計算を行った。その結果、金属ナノキラル格子における巨大旋光性の発現機構について、近接場の電磁場分布に起因する非局所的相互作用が構造のカイラリティーによって発現し、その効果がプラズモン共鳴によって増大されるという巨大旋光性発現のメカニズムを解明することに成功した。

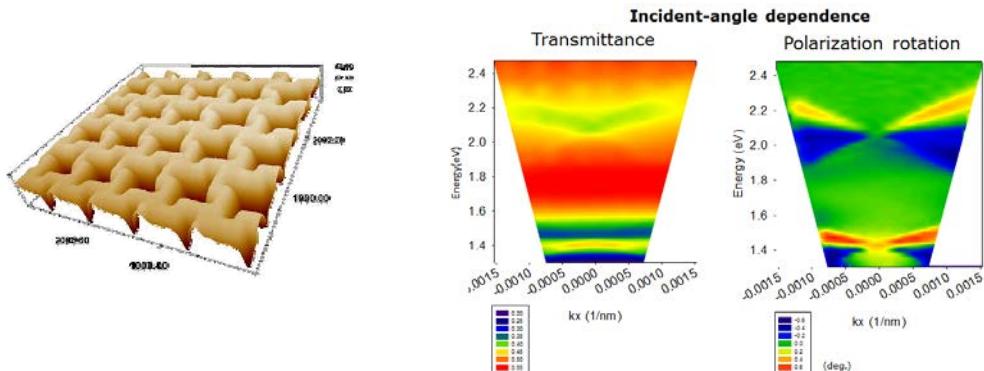


図 1:新たに作製した金属キラルナノ周期構造の AFM 像(左図)及び  
透過率・偏光回転スペクトルの入射角依存性(右図)

金属ナノキラル格子で得た旋光性発現メカニズムの知見を応用し、金属以外に、誘電体のみを用いた構造で巨大旋光性を実現することを試みた。局在電磁場モードを形成する導波路共鳴を効果的に利用する構造(キラルフォトニック結晶構造)を用いることによって、ゼロ次透過光において金属キラルナノ格子の 10 倍以上にも達する巨大な旋光性が発現することを初めて実験的に示すことに成功した(図 2)。スペクトルの入射角依存性及び数値計算により、導波路共鳴の効果によって旋光性の増大が生じていることを明らかにした。さらに、超高速偏光制御素子や円偏光レーザーなどのアクティブ応用へ向けて、光デバイスに用いられる代表的な半導体であるガリウムヒ素でキラルフォトニック結晶構造を作製し、通信波長帯において 15 度を越える巨大旋光性を観測することに成功した。

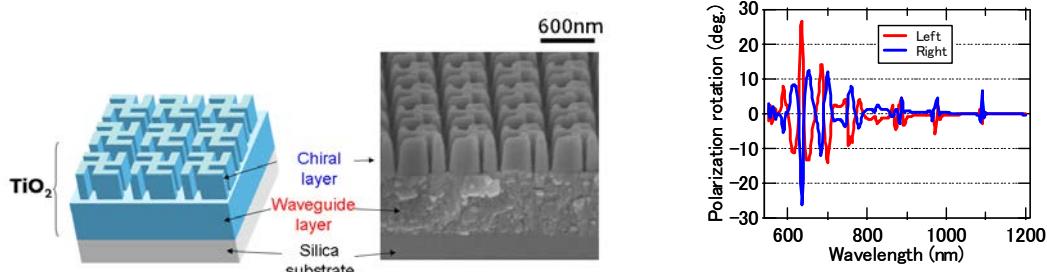


図 2:巨大旋光性を有する誘電体キラルフォトニック結晶構造

左図:キラルフォトニック結晶の模式図

中図:キラルフォトニック結晶の SEM 画像

右図:キラルフォトニック結晶の旋光性スペクトル

巨大旋光性を有する人工キラルナノ構造では、その特異モルフォロジーの効果により、構造内部における真空場分布に左右円偏光の非対称性を生じさせることができることを見出した。これは、構造内部に置かれた発光体からの自然放出は、その左右円偏光成分に差が生じることを意味する。我々は、この点を実験的に検証するため、ガリウムヒ素系半導体を用いてキラルフォトニック結晶を作製した(図 3)。この構造は、導波路層内部に、発光層としてインジウムヒ素量子ドット層を有することを特徴とする。この構造のフォトoluminescenceを観測したところ、確かに異なる左右円偏光成分を有する発光が観測され、その円偏光度は最大約 25%に達した(図 3)。構造のキラリティーを逆にすると左右の円偏光スペクトルも逆になり、これが構造のキラリティーに起因するものであることが明らかになった。また、上記の円偏光異方性真空場の状態を、数値計算によって明らかにすることに成功した。また、真空場の面内電磁場分布に対してフーリエ変換を行うことにより、そのモード構造を明らかにすることに成功し、真空場変調の増大には確かに特定の導波路モードの効果が支配的であることを明らかにした。さらに、複数の線幅の異なるキラルフォトニック結晶について同様の解析を行い、実験値と計算値が良く一致することを示した。この成果は Physical Review Letters 誌に掲載され、Physical Review Focus にハイライトされた。このように、人工キラルナノ構造は、発光過程の制御にも応用できることを明らかにし、新たな円偏光発光素子としての観点からの研究を進展させた。

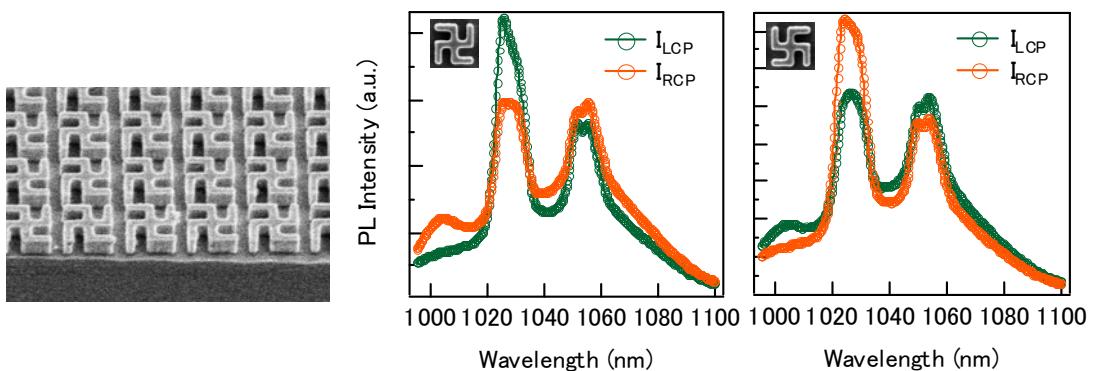


図 3:量子ドット発光層を有する半導体キラルフォトニック結晶の SME 像およびフォト  
ルミネッセンスの左右円偏光成分スペクトル

また、可視光域における巨大旋光性発現のアイデアを、未開拓の電磁波領域として近年注目の高まっている THz 領域に展開した。可視光域よりはるかに波長の長い THz 領域において非局所的相互作用を増大させるための手法として、バビネの定理を応用した相補的二層構造という独自の構造を提案し、実際に巨大旋光性の発現に非常に有効であることを実験的に示すことに成功した。これは、可視光域に比べて光学素子が少ない THz 領域における人工構造を利用した新しい偏波制御素子への応用を開くものである。さらに、高性能計算機を用いた数値シミ

ュレーションによって、この実験結果を再現することに成功している。

光によって創生された特徴的な三次元モルフォロジーの効果による、新たな能動的光波制御技術の開拓は、本プロジェクトの重要なテーマである。光励起キャリア擬2次元人工キラル格子の形成とテラヘルツ偏光制御に向けた取り組みとして、高抵抗Si基板上の単層金属キラル格子構造に対する光照射により、光励起キャリアの効果によってテラヘルツ領域における旋光性を発現させることに成功した(図4)。金属光子の形状がアキラルな場合には光励起を行っても THz 偏光回転はほとんど観測されないのでに対し、キラルな場合には偏光回転が観測され、励起強度を大きくするにしたがって偏光回転も増大することが明らかになった。これは、光励起キャリアによって形成される三次元キラルモルフォロジーによって THz 波に対する旋光性の制御が可能であることを示した初めての結果である。光励起キャリアによる旋光性は、三次元モルフォロジーによって生じるという特徴により、その応答速度はキャリアの寿命ではなく、キャリア拡散の効果が支配的になるということを実験的に明らかにした。また、この効果の時間ダイナミクスを詳細に調べるために、低繰り返しの光励起と高繰り返しの THz 検出を組み合わせた計測法の開発を進めた。この方法により、通常の単一の繰り返し周波数の光パルスを用いた光学遅延では困難なナノ秒から数秒までの広い時間スケールのダイナミクスを THz 領域で周波数分解して検出することが可能になった。その結果、キラル格子に対する光励起で生じるキラリティーの起源が Si 基板内のキラル形状のキャリア分布であり、緩和メカニズムがキャリア寿命だけでなくキャリア拡散による分布の均一化にもよる、ということを明確に示すことに成功した。

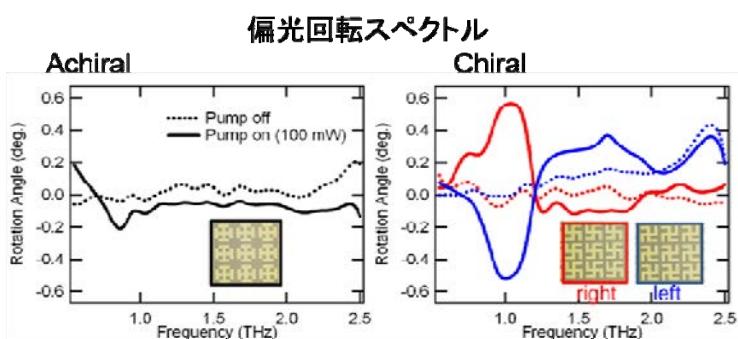
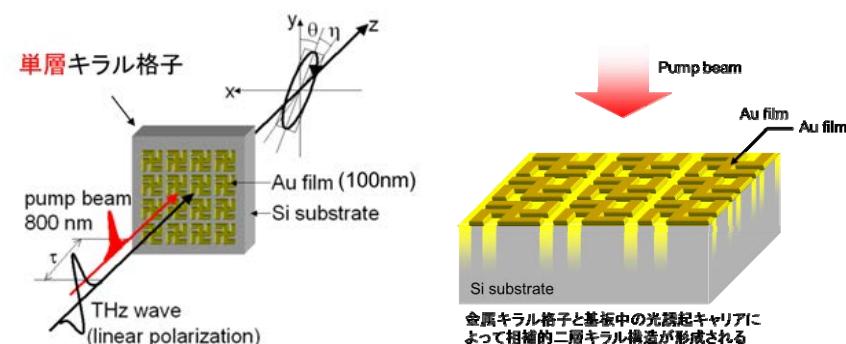


図4:光励起キャリア三次元キラリティーによる THz 偏光回転の実験模式図と原理図(上段)及び偏光回転スペクトルの測定結果

これらの結果をふまえて、CREST 開始時の設定課題の一つである、金属マスクを用いずに基板の励起光強度の空間パターン変調のみによって旋光性を誘起し、THz 旋光性を発現させることに成功した。詳細は 4.4 共通課題 の項で述べる。

#### ①-2: モルフォロジー制御による非相反光学応答の発現

開始当初は、磁性金属や半導体等を対象とし、空間モルフォロジーの最適化された人工物

質系を用いて磁気光学と旋光性の複合による非相反的光学応答の発現を狙うことをねらいとした。

目的とする磁気光学と旋光性の結合効果を系統的に計測するため、光学系に適合させやすい外部磁場としてヘルムホルツコイルの設計と導入、立ち上げを実施した。そのファラデー効果の観測を通じて、強磁性金属ナノ格子の内部磁化の制御が可能であることを確認した。さらに、磁気光学応答を高感度に検出するための、磁場変調測定系を新たに構築した。また、放射光を用いたPEEM測定によって、カイラリティーを有するような特異な形状の微小構造体において、磁区構造が外部磁場によってどのように変化するかを可視化することに成功した。また、長年の懸案となっていた、磁性半導体における強磁性発現機構の解明における研究も進捗があった。時間分解磁気光学分光と中赤外領域の過渡誘導吸収信号の相関を解析し、磁性に起因する成分が共通に含まれることを確認することに生じた。これは強磁性発現が束縛磁気ポーラロンによることを強く示唆する結果であり、重要な成果である。また、光制御による磁性制御の方策を絞り込む上でも重要な成果である。

さらに、磁気応答と特異モルフォロジーの結合効果を検出するのに適した系の探索を進め、物質系の候補として、THz領域に強い反磁性共鳴を有するNiOに注目した。金属グレーティングやファブリーペロー共振器などの人工構造体によって、NiOからのTHz磁気放射を増大させる手法の探索を進め、NiOと金属ミラーとから成る結合ファブリーペロー共振器構造を適切に制御することによって、確かにTHz磁気放射の強度が制御可能であることを実験的に見出した(図5)。さらに、数値計算によってそのミクロなメカニズムについての解析を進め、共振器構造のチューニングによる電磁波の位相と、内部磁化の位相関係の適切な制御により、電磁波エネルギーの取り出し効率を最大化できていることを明らかにした。

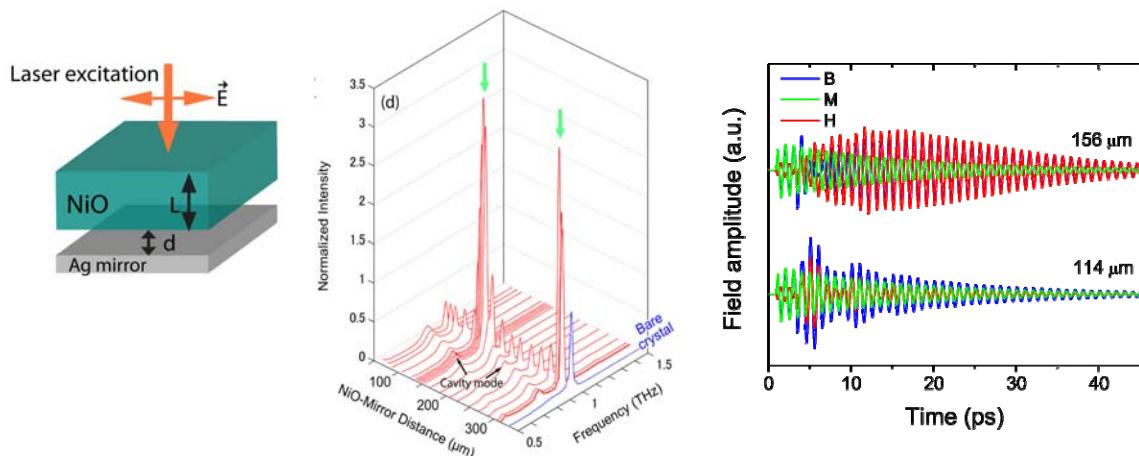


図5:(左図)NiO-金属ミラー結合ファブリーペロー共振器構造の模式図 (中図)テラヘルツ波放射強度のミラー距離依存性 (右図)NiO結晶端面における、電磁場と磁化の大きさの数値シミュレーション結果

また、フレーク状の特異構造を有する積層グラフェン構造について、超短パルスレーザーを用いた励起を行うことにより、THz電磁波の放射が観測されることを見出し、すでに報告されている光電流効果の観測結果とコンシスティントであることを確認した。

## (2)研究成果の今後期待される効果

人工キラル構造の光学応答は、本CREST期間の間に多くのグループにおいて研究が進められるようになったが、そのほとんどは金属のキラル構造を用いた研究である。この様な状況の中で、

我々が本 CRESTにおいて、人工キラル構造の特異光学応答の発現は、金属であることは本質的ではなく、共鳴効果を上手く利用することによって、誘電体や半導体でも同様の巨大非局所応答を引き出せることを明らかにした意義は大きい。これは、特異モルフォロジー制御による光波制御の概念の適用先が大幅に拡大することを意味しており、本プロジェクトで人工キラルナノ構造が発光の偏光制御に用いることが可能であることを示したのはその典型例であると言える。周期構造制御によるフォトニック結晶の技術は非常に進化しており、それとモルフォロジー制御の概念が融合することにより、新たな光波制御技術の創成につながることが期待される。近年、ディスプレイ分野において小型かつ高性能な偏光制御素子に対する要求が高まっており、それらの新しいデバイス開発に寄与する可能性もある。また、非古典光源と融合させることにより、量子情報分野で期待されている偏光の制御された非古典光源の実現に向けた取り組みも見込まれる。

また、テラヘルツ領域において、光励起キャリアそのもののモルフォロジーによって偏光制御が可能であることを示すことに成功した。テラヘルツ領域においては、依然として有効な光学素子の開発が求められている状況であり、光励起キャリアによる THz 波制御は、フレキシブルかつ高速な THz 波制御デバイスの実現につながる重要な技術となる可能性を有している。さらなる効果の増大を目指していくことが重要である。

#### 4. 2 巨大光応答物質相の制御と探索(東京大学 五神グループ)

##### (1)研究実施内容及び成果

###### ②-1: 極低温状態励起子系の光生成手法の高度化

半導体における極低温な励起子系を共鳴的に励起し、生成された励起子集団の温度や密度をレーザ一分光法により測定することは、研究開始当初から東大チームが得意とするところであった。本研究では、農工大チームが持つフェムト秒パルスの操作技術を融合して特に励起子を生成する光の位相を最大限に活用し、極低温励起子の生成をさらに高度化させることを狙った。これにより前人未到の量子縮退励起子系を実現し、その物質相の特徴をとらえることが研究開始時の大いな目標であった。特に、直接遷移型半導体亜酸化銅における励起子のボース・AINシュタイン凝縮(BEC)という長年の懸案に本研究による解決の糸口を見出すことを重要な課題とした。

励起子を極低温に保ったまま高密度状態にすることは、巨視的量子状態の発現や励起子モット転移の精密な観測に不可欠である。我々は束縛エネルギーが大きく高い密度まで安定に存在可能な亜酸化銅における1s励起子系に着目した。1sオルソ励起子は1光子遷移禁制である一方で、2光子双極子遷移が許容な狭い帯域の状態である。このような状態に対しては、フェムト秒パルスを用いた2光子共鳴励起により、瞬時に低温かつ高密度の励起子系を生成することが可能である(位相空間圧縮法)。原理的にはこの励起強度を上げることで量子縮退した励起子集団の新奇物質相に到達できるはずである。ところが実際には、フーリエ変換限界パルスを用いて励起密度を上げるに従って、3光子吸収による自由キャリア生成のため高温のオルソ励起子が生成されることが判明した。我々はこれを抑制するにあたり、この3光子遷移の終状態が広帯域な吸収構造を有する一方で、オルソ励起子は原子状態様の狭帯域な状態であることに着目した。このことを利用すると、フェムト秒パルスに周波数空間で適切な周波数からステップ状の $\pi$ 位相シフトを加えることで、位相空間圧縮法による共鳴2光子吸収遷移強度を保ったまま3光子吸収過程を抑制することが可能となる。FROG 法による光パルス計測システムの製作ののち、農工大グループの技術面での協力の下、近赤外波長領域において空間光変調器(SLM)と4f光学系に基づく波形制御系を立ち上げた。これを用いて周波数空間上での光位相操作を行い、実際に高温の励起子生成を排除した上でオルソ励起子を低温のまま高密度に生成できることを示した(図 6)。この成果は Physical Review Letters 誌に掲載された。この方法を用いてさらに励起パルスエネルギーを上げるには SLM のダメージ閾値により制限されるため、音響光学分散フィルタを導入し、さらなる高密度化と効果的な励起子系加熱抑制法の検討を進めた。上述の $\pi$ ステップパルスによる励起の場合、励起パルスは時間軸上でダブルパルス状であり、ピークパワーをさらに落とす余地がある。そこで、周波数に対してチャープを生じるような正弦波的な光位相を加えることで、3 光子吸収による寄与をさらに減ずることに成功している。これにより、サブケルビン領域において自発的ボース・AINシュタイン凝

縮(BEC)転移が観測された  $10^{16}\text{cm}^{-3}$  台の密度を持つ極低温オルソ励起子を生成することが可能となり、励起子 Lyman 系列のスペクトルが大きな変調を受けないことから励起子が十分に安定に存在できることを証明した。

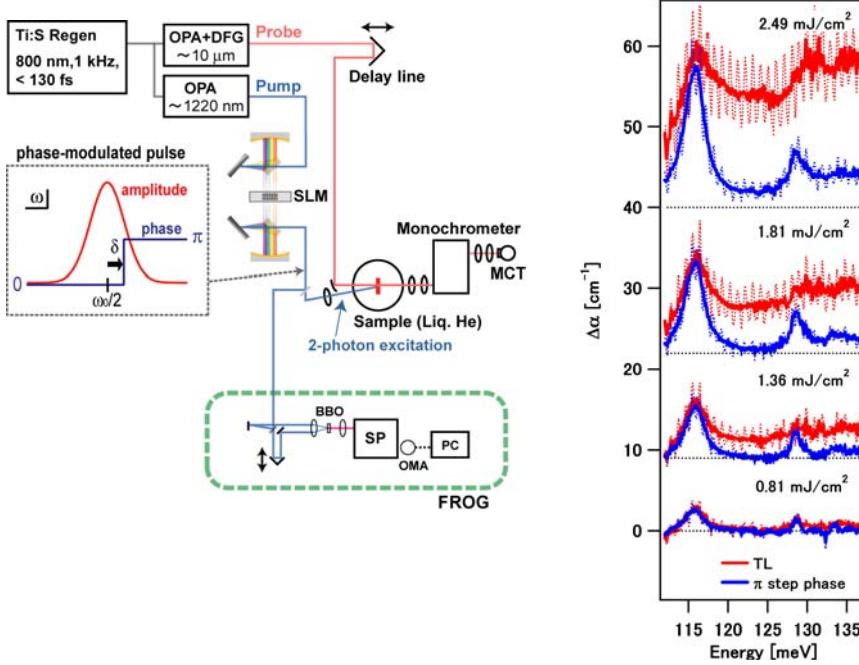


図 6:光位相制御による低温励起子の選択的生成

左図:空間位相変調器を用いたセットアップ

右図:高温励起子(赤線)の抑制による低温高密度励起子(青線)

上記のようなフェムト秒パルスによる瞬間的な縮退励起子系生成の一方で、我々は準熱平衡状態における自発的な量子凝縮の観測に向けた試みも行っている。準熱平衡状態の実現のためには、励起子の寿命が長いことが本質的に重要であるが、ここでは純スピン禁制状態でありきわめて長い寿命を持つ亜酸化銅の1sパラ励起子を対象とした。この系は輻射場と結合しないために長い寿命を有するが、一方で従来の発光観測法では定量的評価が難しいことも意味している。低温高密度励起子系を精密に議論するためには、励起子の検出法も高感度かつ定量的である必要があり、このためにCWレーザーに基づく励起子ライマン分光法を確立した。CW 炭酸ガスレーザーおよび量子カスケードレーザーを用い、中赤外領域において  $10^{-6}$  台の微小な微分透過信号検出を実現し、希薄極限から高密度領域までの広いダイナミックレンジを有する分光法を立ち上げた。これにより従来の発光測定では不明瞭であったパラ励起子の詳細な測定が可能となり、ボース・AINシュタイン凝縮の実現に重要な有効質量の決定や、マイクロ秒オーダーの長い寿命の測定を行うことに成功した。さらに、この高感度励起子ライマン分光法を用いて亜酸化銅1sパラ励起子の密度を励起強度の関数として詳細な測定を行った。マイクロ秒の寿命測定結果や3次元的拡散効果を考慮した数値計算を組み合わせた結果、極低温高密度励起子系の安定性を決定付ける2体衝突ロスが、レーザー冷却原子気体や原子核物理学と同様に量子力学的取り扱いが必要な領域にあることを励起子系において初めて明らかにした(図 7)。

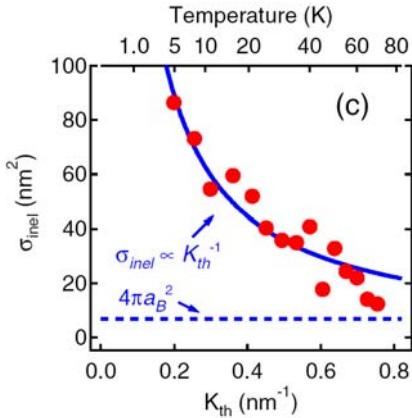


図7 励起子Lyman分光法を用いて測定した亜酸化銅における1sパラ励起子の非弾性散乱断面積の温度依存性。

上記の励起子間非弾性衝突断面積は理論予測よりも桁違いに大きなものであり、液体ヘリウム温度においては臨界密度を達成したとしても、この非弾性衝突で制限される寿命は僅か100ピコ秒程と短く励起子ボースアインシュタイン凝縮(BEC)の実現は難しいと判断できる。そこでヘリウム3冷凍機を用いたサブケルビン領域の低温においてBEC実現を目指した。すなわち、BEC転移温度を下げることで臨界密度を低下させ、この非弾性散乱の頻度を下げることに活路を見出した。冷凍機の冷却能力の制限のもと十分な高密度状態を実現するため、亜酸化銅結晶に不均一な歪を印加することによりパラ励起子の3次元ポテンシャルへの閉じ込めを行った。長いパラ励起子の寿命を生かしトラップへの蓄積を行うため、單一周波数色素レーザーを用いたノイズの少ないCW的な励起を行った。その結果、調和ポテンシャル中に蓄積されたパラ励起子の空間広がり、エネルギー一広がりから評価できる励起子温度は0.8ケルビンまで冷却できていることが分かり、この温度とトラップ周波数で規定されるBEC臨界励起子数に実際に到達することに成功した。そこで観測されたのは、トラップ中BECの臨界粒子数を越えたとみられる領域において相転移的に熱的なパラ励起子成分の増強であった(図8)。トラップポテンシャル中でBEC転移が生じると、トラップのため基底状態の小さな空間広がりに励起子が集中するため密度が局所的に増大する。このとき、非弾性散乱が強く起こる系においては、非弾性衝突が増強され凝縮体の不安定化をもたらし、このとき散乱の終状態である熱的な励起子がトラップの底から飛び出す。これは磁気トラップ中の水素原子のBECにおいて予測されていた緩和爆発と呼ばれる現象であり、亜酸化銅におけるパラ励起子系においてもまさしくこの現象が生じた。レーザーによる励起子生成や励起子フォノン相互作用、励起子間散乱、寿命といった実験に寄与するパラメータをすべて考慮したモンテカルロ計算(Direct Simulation Monte-Carlo(DSMC)法)によるシミュレーションの結果、トラップされたパラ励起子全体の1%程の凝縮体が存在すると、確かに凝縮体へのボソニック誘導散乱過程と、高密度な凝縮体における非弾性散乱による励起子ロス過程が競合することで、実験で観測された異常な空間分解スペクトルをもたらすことを再現した。

亜酸化銅において歪トラップされた低温高密度パラ励起子を定量的に観測するためには、励起子ライマン分光法が有用と考えられる。歪環境下においては、1s励起子のエネルギーシフト等の情報は良く知られている一方で、2p励起子の歪依存性はこれまで調べられてこなかった。そこで、2p励起子の基礎吸収スペクトルの系統的な一軸性歪依存性を測定するとともに、励起子ライマンスペクトルを観測した上で、理論計算との比較を行った。これにより、任意の歪のもとでパラ励起子の1s-2p遷移がどのようなエネルギーとなるか計算することが可能となり、トラップ中で量子縮退状態が得られた場合に励起子ライマン分光によるスペクトル形状について予測が可能となった。

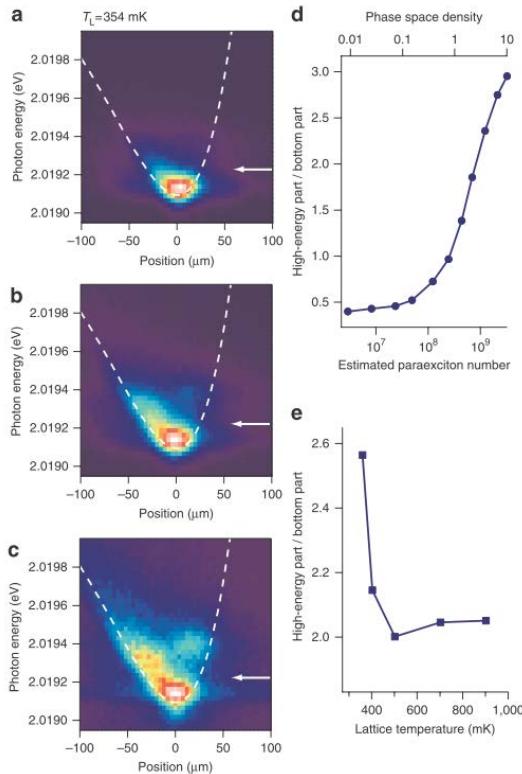


図 8 ヘリウム 3 冷凍機内で歪トラップした亜酸化銅パラ励起子が、BEC 臨界粒子数を超えると緩和爆発を生じる様子(a-c)。理想ボース粒子の BEC 相境界を越えた付近で閾値的にこのような現象が生じる(d,e)。

一方、新現象の高確度低雑音検出のための安定化レーザー光源開発を推進した。そのためのフェムト秒光源として特にモード同期ファイバーレーザーをコンパクトで安定な次世代光源と位置づけ、それを完全に制御し分光応用につなげるため、レーザー装置の購入は控えすべて製作することとした。まず、フェムト秒エルビウム添加受動モード同期ファイバーレーザーの開発を行い、さらにそのファイバー増幅器の製作を行いハイパワー化・短パルス化を進めた。次に、この製作した安定な近赤外光源を用いて、近年電波と光の中間周波数帯として基礎・応用研究が進んでいる THz 帯のファイバーレーザーベースのパルス光源として分光応用につなげることを狙った。高い信号対雑音比を確保するためには強い THz パルスが必要であるが、THz パルス発生のための光整流過程は非常に非線形変換効率が低く、大型のチタンサファイア再生増幅器を用いることが一般的である。そこで、アンプしたモード同期ファイバーレーザーの繰り返し周波数に同期した受動共振器を製作し、その中に THz 発生用非線形結晶を挿入しあつその分散補償を行うことで、比較的弱いファーバーレーザー光源でも明るい THz 波を発生できるよう実験系を構築した。さらに、ハイパワー化に最適なフェムト秒イッテルビウム添加モード同期ファイバーレーザーの開発も完了した。これらのフェムト秒レーザーと、既存のフェムト秒チタンサファイアレーザーの同期やこれによる2波長ポンプ・プロープ実験の検討を進めている。固体レーザーの制御が必要になる実験も想定されるため、主にチタンサファイアレーザーの励起に使用される共振器内第二高調波発生 Nd:YVO<sub>4</sub> レーザーの製作および繰り返し周波数が 1GHz の高繰り返しモード同期チタンサファイアレーザーの開発も進めた。

受動共振器を用いた分光応用の展開として、近年注目を集めているレーザー光電子分光においてパルス幅が長く線幅の狭い真空紫外高繰り返しレーザー光源の開発が求められている。そこで、パルス幅 10ps、繰り返し周波数 73MHz、出力光 3W の高強度モード同期チタンサファイアレーザーを主光源として、高効率四倍波発生による紫外励起光源の開発を試みた。高繰り返し狭線幅パルスにおいて高効率な第二高調波発生を実現するため、まず、主光源の繰り返し周波数に同期した受動共振器を作成し、共振器中に BiBO 結晶を挿入した二倍波発生系を構築した。これにより、受動共振器直前において 2.6W の基本波光強度に対し 1.3W (変換効率 50%) の二倍波を得ることに成功した。さらに、これを BBO 結晶に絞り込むことにより、50mW の 6eV 光源を得ることに成功

した。

## ②-2: 光と物質の相互作用を巨大化する物質相の探索

光と物質の相互作用を使って特異な光機能を発現させることをねらいとして、物質や物質相の探索を進めた。光励起により生成される準安定な物質相は、励起強度によりキャリア密度を操作可能であることや外場による制御性が高いこと、キャリア間の多体相関が強く働くことといった特徴をもつことから、特異な光機能発現が期待できることに着目し、主に半導体を中心に光励起電子正孔系を対象として、以下のような基礎的な研究を進めた。

強い光との相互作用が期待される物質相の候補として、パルス励起の下で自然に非常に高密度な電子正孔系が形成される、ダイヤモンドの電子正孔液滴に注目した。ダイヤモンドの電子正孔液滴は、他の物質と比較して著しく高いキャリア密度と高いフェルミ縮退度を有しているという特徴がある。ダイヤモンドにおける励起子-電子正孔プラズマの相転移閾値近傍は大きな光学応答の変化が期待できる系である。

まず、ダイヤモンド電子正孔系の外場制御性を示すため、高純度ダイヤモンド単結晶にヘルチアンストレスにより不均一な歪分布を与える圧力印加装置を作製した。圧力主軸を(110)とし歪印加した結果、結晶内の最大印加圧力は 2.5GPa であることを確認した。歪印加下での発光スペクトル測定、時間分解測定、温度依存性測定により、電子正孔液滴の密度及び臨界温度の低下を明らかにした。これらの実験結果は、伝導帯の縮退数が 6 重から 4 重へ低下した系において理論的に計算される液滴の密度と臨界温度の変化量と一致した。これにより、バンド構造を歪印加により操作することで、電子正孔液滴相を不安定化することに成功した。また、試料位置依存性測定によりバンドギャップエネルギーが歪量に応じて変化することを確認した。適切な歪分布を設計することで、液滴や励起子の空間制御の応用が期待できる。

次に、高密度電子正孔系の光による制御性を確認するため、チタンサファイア再生増幅器出力の4倍波を用いたダブルパルス相關法により相転移近傍の応答を探った。メインパルス照射後、電子正孔液滴の生成時間内に弱いコントロールパルスを照射すると、液滴生成が急激に加速し液滴からの発光信号量が増強することを見出した。この増強の温度依存性を測定すると、低温よりもむしろ液滴形成の臨界温度に近い高温ほど強い増強が得られることがわかった。これは相転移の臨界温度付近で大きな光応答が期待できることに加えて、従来観測されてこなかった新たな電子正孔系の相が低温において出現している可能性を示唆している。

結晶中で空間制御した励起子系の光励起を行うための2光子励起等の基礎的実験を進めた。チタンサファイア再生増幅器出力の3倍波を用いた2光子励起法を用いて、従来よりもはるかに低温の励起子の生成に成功した。これは、一光子励起では励起が結晶表面近傍に限定されるのに対し、二光子励起では電子正孔系が結晶中の広い領域に分布し、結晶の格子系との熱接觸がよくとれるためである。この励起法を用いて励起光強度を上げていくと中間密度領域で、これまでに観測されてこなかった離散的スペクトルを観測した(図 9 左)。時間分解発光測定により、この発光群が多励起子束縛状態であることを明らかにした(図 9 右)。また、温度依存性測定により、励起子温度の上昇に伴い多励起子束縛状態から液滴へと発光スペクトルが変化することを明らかにした。これまでに、低温では励起子の熱速度が減少することによる液滴への励起子吸着レートの減少と有限寿命効果により、液滴が十分に成長せず、マルチクラスター状態になると理論予測されていた。今回の結果により、低温中間密度領域では多励起子束縛状態が形成されることを初めて実験で明らかにした。

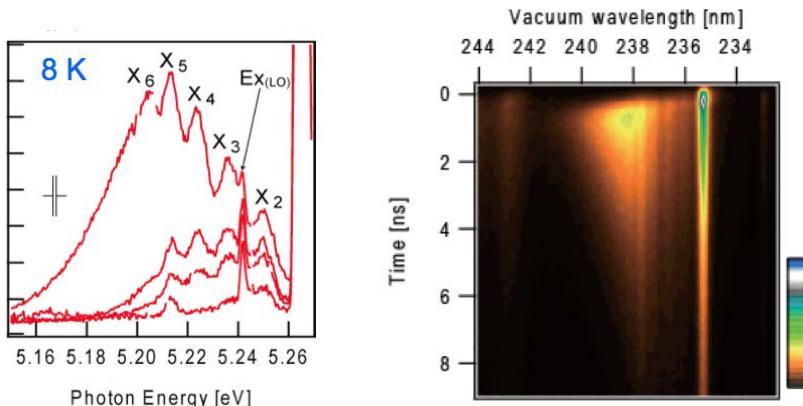


図 9:低温中間温度域で観測された多励起子束縛状態。(左図):励起子温度8Kでの発光スペクトルの励起強度依存性。X2-X6は今回はじめて観測された多励起子束縛状態からの発光を示す。(右図):励起子温度10Kでの時間分解発光スペクトル。時間軸方向に伸びる複数の輝線が多励起子束縛状態の時間発展を示している。

また、ダイヤモンド特有の高密度な電子正孔系の特徴を生かし、中赤外領域において期待される電子正孔液滴の強い応答を観測するため、 $4\text{ }\mu\text{m}$ から $11\text{ }\mu\text{m}$ (0.1–0.3 eV)にわたる広帯域中赤外光をプローブ光として用い、ポンププローブ分光系を構築した。液滴由来の光学応答が観測される中赤外領域では、励起子のイオン化による誘導吸収がスペクトル上で重なる。そこで、ストリークカメラを用いた時間分解発光測定から得られる液滴のダイナミクスとの時間領域における比較から、中赤外領域における電子正孔液滴の誘導吸収スペクトルを抽出することに成功した。(図 10 左)。

二成分系の有効媒質モデルを仮定した解析により、液滴の密度、ダンピング、体積占有率や励起子の密度の時間発展を定量的に調べることが可能となる。これにより、光励起による電子正孔対密度が $10^{18}\text{ cm}^{-3}$ 程度の電子正孔プラズマの生成後に、 $10^{17}\text{ cm}^{-3}$ 程度の励起子ガスと $10^{20}\text{ cm}^{-3}$ 程度の電子正孔液体に空間相分離するダイナミクスを明らかにした。すなわち、ダイヤモンドにおいては比較的低密度の光励起条件でありながら、 $10^{20}\text{ cm}^{-3}$ という非常に高密度な液滴が自然に形成され、中赤外領域の強い光学応答をもたらすことを実証した。これは、ダイヤモンドにおける液滴内の電子正孔対密度が、シリコンやゲルマニウムで観測されたものと比較して桁違いに高密度であることを示すものである。

また、上記の解析により、液滴の誘導吸収スペクトルの線幅は電子、正孔のフェルミエネルギーよりも大きい値であることを明らかにした。これに対し、一般に金属微小球の表面プラズモン効果による吸収スペクトルの線幅はフェルミエネルギーより十分小さい。数値計算により液滴の誘電応答スペクトル形状の起源について解析を進めた。その結果、金属微小球の場合に線幅の起源として説明されるフェルミ面上の電子間衝突や液滴表面の散乱効果のみに依らず、バンド縮退を考慮した電子正孔の強いキャリア相関が液滴のダンピングに寄与していることを明確に示した(図 10 右)。これは、中赤外の誘電応答が電子正孔系におけるキャリア相関の重要な情報を有することを示し、発光測定のみでは得られない重要な結果である。今後の進展として極低温での高密度電子正孔相において期待される、電子正孔 BCS 状態の発現を狙う上でも重要な成果である。

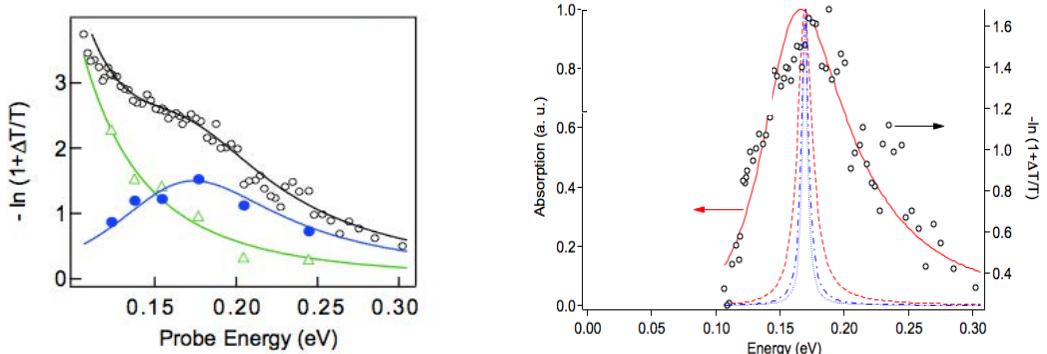


図 10: 中赤外領域における温度 60Kでの高密度電子正孔状態の誘導吸収スペクトル。左図: 実験データ(黒丸)とスペクトルを構成する励起子成分(緑三角)と液滴成分(青丸)。右図: 実験で得られた液滴の誘導吸収成分(黒丸)とキャリアの多体相関(赤実線)を取り入れた理論計算を用いたフィッティング結果。その他の線はフェルミ面上のキャリア散乱、液滴表面の散乱効果のみを取り入れた計算結果を示しており、実験データを説明しないことが明らかである。

また、近年高品質化が進んでいる酸化亜鉛単一量子井戸はワイドギャップかつ内部電界が大きく、紫外域において大きな光機能発現が期待できる。基礎的吸収、発光測定、励起強度依存性測定やその井戸幅依存性を取得した。その結果、電子正孔が空間分離した高密度励起子の電場によって量子閉じ込めシユタルク効果が軽減される結果、高密度励起下では励起子のエネルギーが大きくシフトすることを見出し巨大な非線形性を有することが明らかになった。また、紫外から赤外波長域に亘って顕微的に光と物質の相互作用の巨大化の機構やモルフォロジー敏感な光学応答を観測するため、反射型対物レンズとマイクロスタットを使用した低温顕微分光システムを構築した。位置依存性として連続的に量子井戸の膜厚が変化する試料の顕微分光を行い、バルク的応答から量子閉じ込めシユタルク効果が重要となる領域への推移を明瞭に観察することに成功した。

## ② -3: 光と物質の非局所相互作用の原理と応用

電気四重極・磁気双極子相互作用は通常微弱であるが、非局所相互作用であるため空間モルフォロジー制御により劇的に増強されることが期待できる。双極子遷移が禁止されこれらの高次項が支配的になる系で非局所相互作用の本質を探る。

まず、第一塩化銅における上枝励起子ポラリトンの2光子励起過程において、結晶格子による回転対称性を厳密に取り扱うことで、通常の光の角運動量保存則からは従来禁制と考えられた遷移が許容となることを明らかにした。結晶構造に由来して系の連続回転対称性が破れる結果「擬角運動量」が保存されることを考慮すると、右回り円偏光を用いて上枝励起子ポラリトンを介した2光子共鳴放射は、左回り円偏光で出力されるといった原理検証実験を行い、量子力学的光子状態生成への応用検討を行った。

また、磁気応答と特異モルフォロジーの結合効果が顕著に現れる物質として、THz 領域に強い反強磁性共鳴が観測される酸化ニッケル(NiO)に注目し、超短パルス光を用いた非線形光学応答による磁化制御、およびそこからの THz 磁気放射特性の解明を進めた。まず、角運動量保存則の観点から光誘起磁化の選択則について整理した。固体中の光磁気相互作用においては光、および誘起された磁化、そして結晶の三者間で角運動量は保存されなければならない。ここで結晶はその離散対称性に応じて離散的な値の角運動量のやり取りにしか関与しない。この事を明示的に扱うことによって、本来禁制であるような非線形光学効果が許容になることを理論的に示した。具体的には例えばマルチドメイン NiO のように結晶が三回回転対称性を有する場合には、直線偏光パルスの入射によって電気磁気複合の誘導ラマン過程を介してコヒーレントに磁気共鳴励起を誘起することができる。我々は誘起された磁化からのコヒーレントな THz 放射を測定する実験によって、光誘起磁化の従う偏光選択則が上記から予想されるものと良く一致することを明らかにした。以上

の内容を論文にまとめ、Physical Review Letters に掲載された。さらに既知となった偏光選択則に基づき、偏光の自由度も考慮して設計したねじれ偏光ダブルパルスを励起光として用いることによって左右の振動モードが縮退した磁気励起を選択的に励起し、それを円偏光放射として検出することに成功した(図11)。これは、反強磁性体の磁化制御の新しい手法として注目すべき成果であり、Nature Communications 誌に掲載された。

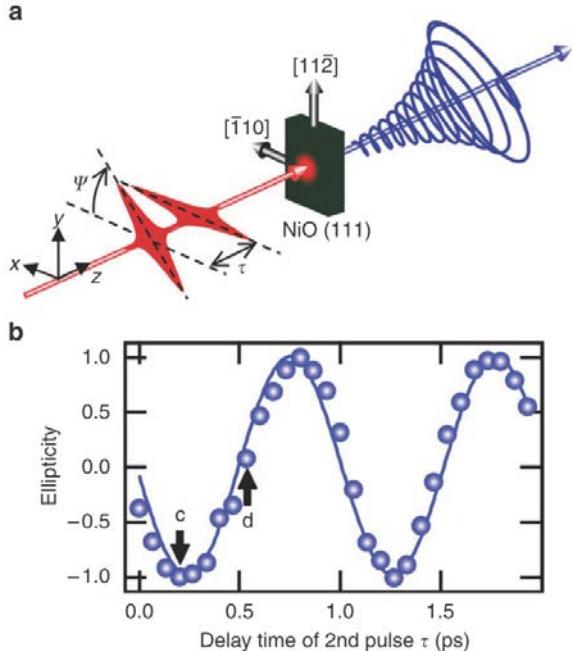


図 11 (上図)NiO において観測したねじれ偏光ダブルパルスによる円偏光磁気双極子放射。(下図)ダブルパルスの間隔の関数として測定した椭円率。

上記の三回転対称性を有する非線形光学結晶からのテラヘルツ放射は、入射光の偏光を  $\phi$  回転させると、放射されるTHz波の強度は変わらずに偏光の向きが $-2\phi$ 変化するという特徴を有する。この特徴的な偏光依存性を利用して、結晶の向きが適切に選択された複数枚の GaP(111)結晶を組み合わせたものを THz 発生用結晶として用いることにより、ビーム内で軸対称な偏光分布を有するベクトルビームを THz 領域において発生させることに成功した。近年開発されたテラヘルツカメラを用いてビーム内での偏光分布をリアルタイムに観測し、なおかつ二次元 EO サンプリング法を用いて面内及び面直方向の電場分布を直接検出することにより、ベクトルビームとそれに伴う縦電場発生が実現していることを確認した。今回開発した手法は、これまでに報告されている THz 領域におけるベクトルビーム発生法に比べて、偏光制御性、帯域、強度などの多くの点で優位性がある。

## (2)研究成果の今後期待される効果

農工大グループのフェムト秒パルス光制御技術と東大グループの固体中の素励起の精緻な分光法の融合によって、従来到達し得なかった低温かつ高密度な励起子の光による生成・制御が可能となった。これにより、長年半導体光励起電子正孔系で期待されてきた多体量子物質相の物理をあぶりだす研究、すなわち励起子 BEC 相や電子正孔 BCS 状態およびそのクロスオーバー領域の光による瞬時生成と観測法への展開が期待される。また、サブケルビン領域における自発的励起子 BEC 転移の観測は 50 年來の懸案に決着をつけたマイルストーンとなる成果である。トラップ中の BEC の緩和爆発による凝縮体の不安定化を克服する指針も得られており、いよいよこの凝縮体の性質を精密に測定し、この新たな量子多体系の性質を議論できるその端緒を開いたといえる。

結晶中の角運動量をうまく利用することで磁気共鳴のコヒーレントな励起が可能であることを示したことは、光による磁化やスピンの制御法の指針として新たな視点を提供するものであり今後の展開が期待される。また、次世代のパルスレーザー光源として注目されるモ

ード同期ファイバーレーザーやその増幅技術を確立したことは、上記の展開において高敏感測定や安定な物質相生成のために必須の光源となる。光位相まで制御されたこのような光源を活用することで、固体分光の実験に新たな展開をもたらす可能性を秘めている。

ベクトルビームは、通常のガウスビームの回折限界を超えた集光や、縦電場生成などの特徴を有していることがすでに可視光領域では実証されており、本 CREST 研究で開発した手法を用いて発生した THz ベクトルビームを用いて、これらの特徴を THz 領域で活用することにより、THz イメージングの高分解能化や、縦 THz 電場を用いた物性制御など、テラヘルツテクノロジーの新たな可能性が拓かれることが期待される。

#### 4. 3 時空間光波束操作による3次元構造の動的制御(東京農工大学 三沢グループ)

##### (1)研究実施内容及び成果

###### ③-1:時空間波形制御技術の開拓

本研究は、パルス列間の電場波形を完全に揃えた位相制御光源を開発することを目的とする。特に、時間領域に対応した光波の進行方向( $z$  軸)に沿ってパルス波形整形を施す従来の方法に加えて、時間とともに  $xy$  平面内の偏光方向が任意に変化する3次元時空間制御されたパルス光源を開発し、3次元時空構造形成に応用する。また、光波の2次元横モードの波面整形も施す。

まず、チタンサファイアレーザーパルスを高度な分光計測に応用すべく、光パルスが持つ本質的なパラメータである強度、位相、偏光の全てを完全に制御するための機構の開発に取り組んだ。超短パルス光の搬送周波数を制御するために、チタンサファイアレーザー共振器内のミラーの一部にピエゾアクチュエーターを組み込み、任意に共振条件を変調できるようにした。また、フォトニッククリスタルファイバーを用いて出射パルスのスペクトルを 1 オクタープ以上に広げることで可能になるスペクトル干渉型の絶対位相のパルス間変化を測定する光学系も構築した。この絶対位相変化を参照し、レーザー共振器をフィードバック制御することで、同一の搬送周波数を持つ超短パルス列が生成できるようになった。

並行して、個別パルスの完全制御にも取り掛かった。従来のパルス整形の制御パラメータは、振幅と位相のみであったが、偏光状態を任意に制御できるように技術の大幅な拡張を行った。偏光状態を制御できれば、3 次元空間内に任意の電場ベクトル分布を実現できるため、媒質中にマクロな光学的特性を誘起できることが期待される。直交する 2 つの直線偏光成分に独立に振幅と位相の変調を加えるために、マッハツエンダー型干渉計とパルス整形器を組み合わせた(図 12)。直交成分間の相対位相を能動的に安定化させた状態で、直交偏光成分に独立な振幅・位相変調を施せるようになった。

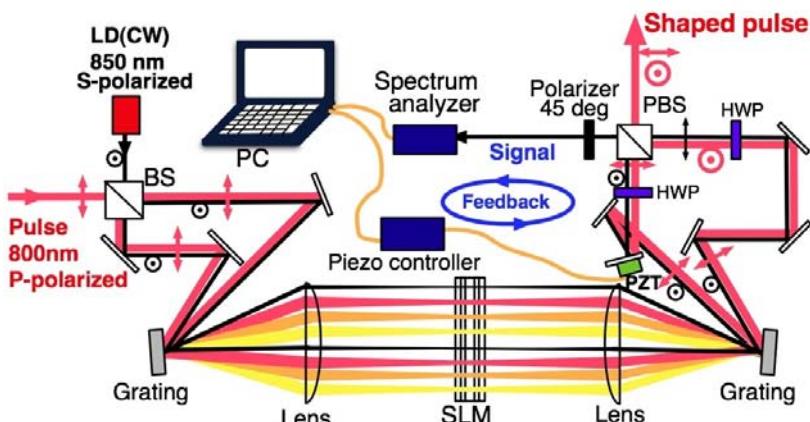


図 12:干渉計型任意偏光制御システムの構成図

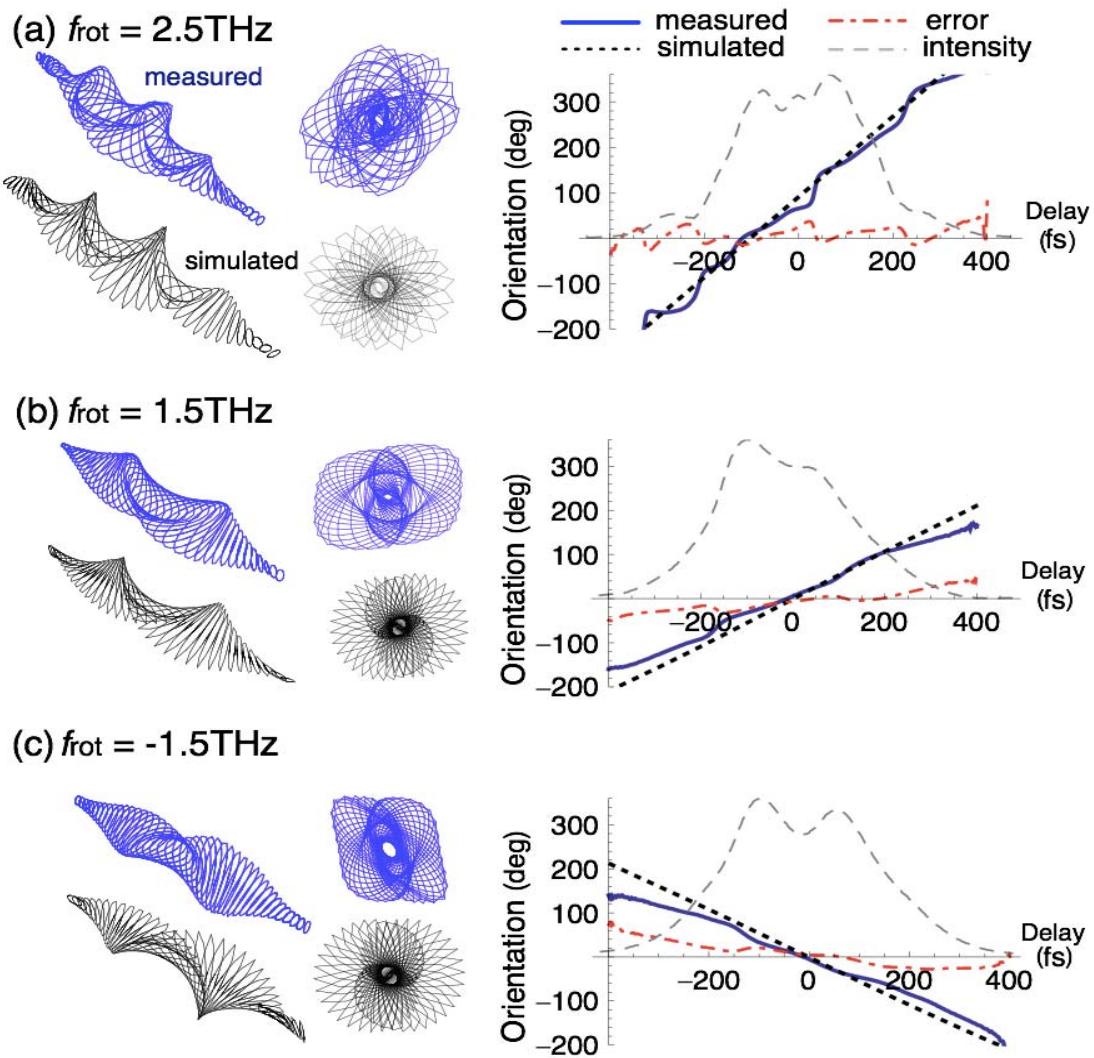


図 13:ねじれ偏光パルスの測定結果

幾何的に特異なベクトル分布を持つ光パルスの典型例として、パルス内で電場の振動方向が時々刻々変化する「ねじれ偏光パルス」を生成した(図 13)。このパルスは、直線偏光の偏光面が数十  $\mu\text{m}$  の任意周期の大きな空間的ねじれ構造を持つ上に、右回りと左回りが明確に区別されるため、3 次元モロフォロジー制御に有効なパルス形状の一例である。ねじれ偏光パルスは、本質的には異なる周波数の左右円偏光の重ね合わせである。実際に生成したねじれ偏光パルスは独自に開発した偏光分割相互関測定法を用いて詳しく解析できるようになった。パルス整形器・計測システムの開発の結果、ねじれ偏光パルスが予め指定したねじれ方向・周期で正しく生成できていることも確認できた。

広帯域光の位相変調は、それ自体が位相ロック多波長光源として機能することが示唆される。そこで、複数波長を使う代表的な光学応答としてコヒーレントアンチストークスラマン散乱(CARS)に注目し、単一の超短パルスであっても位相制御を施すことで実効的に多波長光源と同様にふるまいうることを示した。CARS 分光では、広帯域光に含まれるあらゆる周波数成分の差周波数が重畠し、観測目標となる振動モードを広い帯域に埋もれてしまう。光パルスの制御技術を適用し、

狭帯域の位相変調を施すことで、鋭い共鳴ピークを洗い出すことが示された。実際、クロロホルムをはじめとしたハロゲン化炭化水素の振動ラマンスペクトルを観測することに成功し、これまでほとんど観測実績のないイソフルラン・セボフルランといった吸入麻酔薬の観測にも成功した。

分光応用における位相制御パルスのポテンシャルを示すため、極限的な環境下においても振動モードが感度よく観測できることを確認した。生存状態のイカ巨大軸索を用い、その中に注入した麻酔分子の局在を初めてとらえることに成功した。巨大軸索とよばれるイカの神経突起内に注入した麻酔薬(セボフルラン)のラマンスペクトルを、細胞質から分離して測定し、細胞中での麻酔ガス分子の位置を特定した。この手法をベースとした画像化機構を開発すれば、生命科学・医療分野で非常に有効な手段となる。

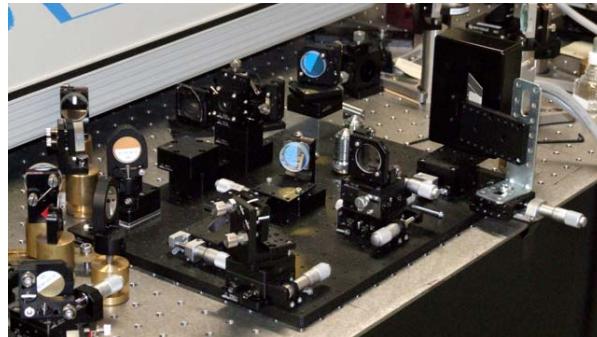


図 14:スペクトル位相制御装置の全景。回折格子により、光パルスに含まれる周波数成分に分け、液晶空間光変調器により、それぞれの周波数成分に最適な位相ずれを与える。相対的に位相ずれが与えられた全周波数成分を再び合成して、1本のレーザービームとして出力する。

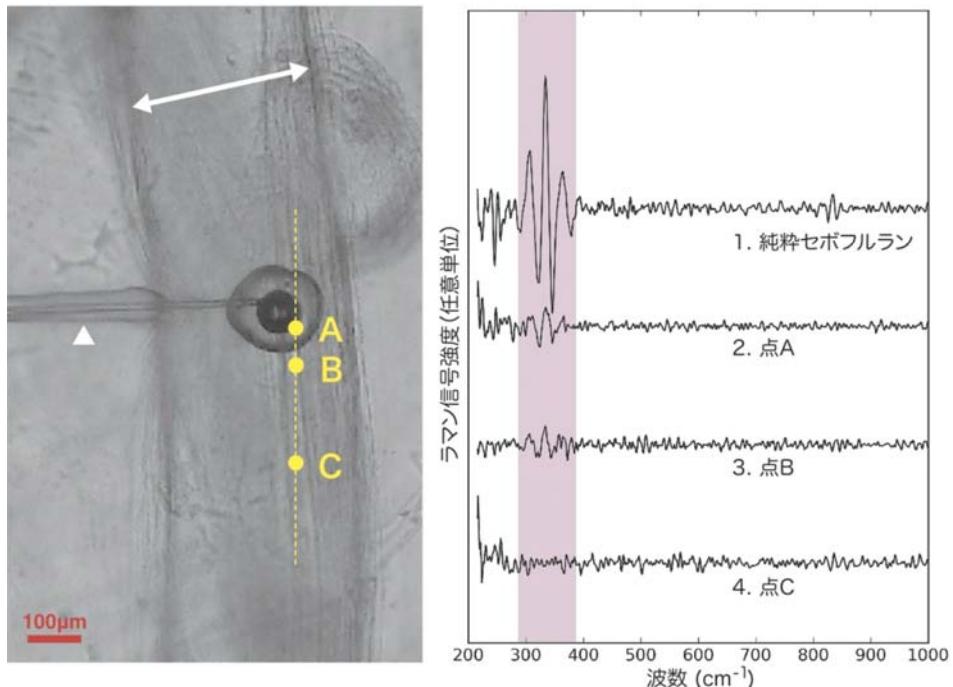


図 15 左:イカ巨大軸索中に注入されたセボフルラン液滴の顕微鏡写真。中央に黒く見える球状の部分が、注射器( $\triangle$ )によって軸索内に注入されたセボフルラン液滴。両矢印( $\leftrightarrow$ )は軸索の太さ方向である。点Aは液滴の中心付近、点Bは液滴の外周部、点Cは液滴から離れた位置。

図 15 右:純粋セボフルランのラマンスペクトルおよび、顕微鏡写真中のA,B,C各点におけるラマンスペクトル。純粋セボフルランで網掛けの領域に現れるスペクトルパターンを指標とした。点Aと点Bではセボフルランに特徴的なパターンがみられるが、点Cにはみられない。

三沢研が独自に開発した「高速掃引量子波束分光計」の技術を位相制御に応用することで、位相変調 CARS 測定の検出感度を増大させ、分光測定自体を大幅に向かう可能性がある。高速位相変調とスペクトルの交流成分検出を組み合わせることで、バックグラウンドノイズを大幅に低減できる。さらに、これまで培ってきた時間分解測定法と、ヘテロダイン検出法を併用することで、不可避であったバックグラウンドノイズをほぼ完全の除去することに成功した。

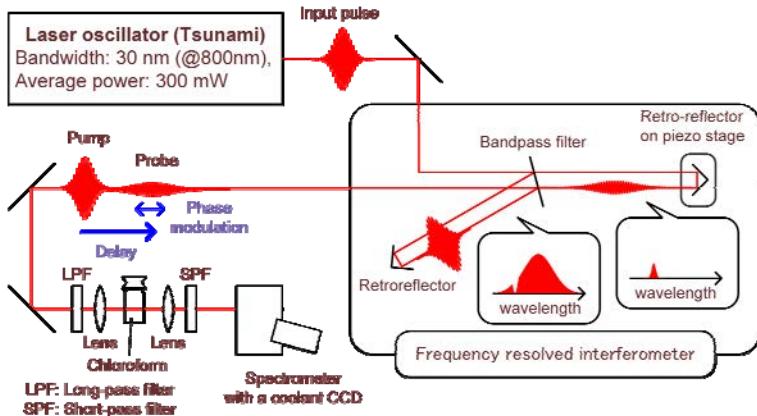


図 16: 高速掃引量子波束分光計を応用した時間分解位相変調コヒーレントラマン分光測定系のダイアグラム。

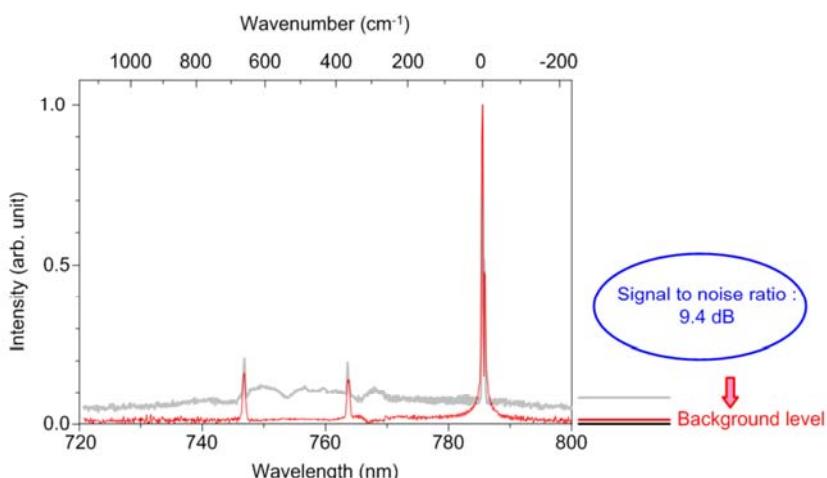


図 17: 高速掃引量子波束分光計を応用した時間分解位相変調コヒーレントラマン分光測定系によるバックグラウンドノイズの除去。(灰色)従来の測定方法によるスペクトル。(赤色)新手法。

チタンサファイアに代わる新規分光光源として Yb ファイバーレーザーの開発にも取り組んだ。Yb は発振波長  $1 \mu\text{m}$  であるので、第二高調波発生を通して容易に可視域へと波長変換することができる。ファイバー発振器の後段に 2 つの増幅器を配し段階的に増幅することで、20MHz の繰り返し周波数で最大 2W の出力を達成した。さらにパルス評価のための自己相關計測系と、周波数分散を補償するための回折格子対を構築し、分散量に応じたパルス幅の変化、パルスの圧縮が確認できた。しかし、スペクトル幅から見積もられる変換限界には及ばず、高次の分散が強く影響していることが見出された。これまでチタンサファイアレーザーを用いた位相制御技術を Yb ファイバーレーザーにも適用しつつあり、高次分散を除去できるパルス整形器の開発が進行中である。

### ③-2:能動的3次元時空構造形成法の開発

本研究は、時空間パルス波形整形技術を用いて、3次元誘電率分布を動的に書き込む手法を開拓することを目的とする。偏光整形により、等方媒質中にも光学活性を能動的に誘起するなどして、位相制御パルスによるモルフォロジー制御を実証する。モルフォロジー制御の対象として、農工大チームの得意とする有機分子の選択的異性化を用い、新しいパターン形成法を開拓する。また、3次元時空構造形成の材料探索として、様々な感光性有機分子の非線形光学特性を波形整形パルスによって誘起する実験を系統的に行う。

位相制御パルスが分子制御に有効であることを実証するための第一段階として、レチナール分子を対象に位相ロックパルス対により光異性化反応を制御した。反応の収率はクロマトグラフィーを用いて分析評価した。

フェムト秒時間波形整形装置と高速掃引型波束分光計を組み合わせた、自動制御システムを用いて、感光性有機分子における光異性化ダイナミクスの分子構造依存性を測定した。空間対称な分子構造を持つシアニン系色素分子のDTTCIにおけるねじれ振動と曲がり振動を選択的に誘起に成功した。一方で、DTTCI分子の炭素直鎖に架橋をかけて非対称型にしたDNTTCI分子についても同様の光位相による構造変化の制御を行った。DNTTCI分子についても、複数の振動モードの中から、光位相によって特定の振動だけを選択的に誘起することに成功した。構造のわずかに異なる2つの分子振動スペクトルを比較すると、分子数の増加を反映し、DNTTCIにはDTTCIには存在しない分子振動モードが確認された。

2つの類似分子の応答性の違いを考察するために分子軌道計算を採用し、DTTCIとDNTTCIの分子振動解析を行った。それぞれの分子に対する計算結果を類似性の観点から解析し、DNTTCI特有のモードの同定を試みた。この結果、選択的誘起に成功した振動モードは、DTTCI分子とDNTTCI分子とで共通に主鎖の形を変えず両端にある2つのベンゾチアゾール環のねじれ角が変化する分子運動であることが明らかになった。

ねじれた分子構造を持つキラル分子が持つ光学活性などは、分子や媒質のモルフォロジーに依存して発現する。モルフォロジーを動的に制御することができれば、光学活性の能動的な発生や増強が可能となる。そこで位相や偏光を整形したパルスにより分子振動を選択的に制御し、分子の光学活性を時間分解することで光学活性増強に必要な振動モードを同定する目的で、時間分解エリプソメトリー測定系の開発を行った。開発した測定系の動作検証として、キラル分子ではないが、ラマン能率の大きなクロロホルム分子に対して、超短光パルスでISRS(Impulsive Stimulated Raman Scattering)により励振された分子振動モードの観測と、パルス列を用いた振動モードの選択制御実験を行った。今回、分子振動によって変調を受けたプローブ光スペクトルの周波数シフトを差動アンプで增幅し、既に本プロジェクトで開発済みの高速掃引型波束分光計と組み合せることにより、高感度低ノイズ化を達成し、本研究プロジェクトにおける農工大チームの役割のひとつである「動的モルフォロジーの高感度低ノイズ計測手法の開発」を大きく進展させることができた。さらに、波形整形器で時間間隔を調整したパルス列を用いて、任意の分子振動モードのみを選択励起できることを確認した。

### (2)研究成果の今後期待される効果

農工大グループが本CRESTプロジェクトで開拓した時空間光波束制御技術は、多くの分野で活用可能な汎用性に富んだ光技術である。

光位相を自由に操作・測定する技術をもとに開発した「位相制御コヒーレントラマン顕微分光法」は、分子固有の構造に由来するラマンスペクトルを顕微鏡下で高感度かつ簡便に測定することを実現した。光のスペクトル位相の操作は、時空間光波束制御の基本である。さらに、この方法を用いて、巨大軸索と呼ばれるイカの神経突起内に注入した麻酔薬分子のラマンスペクトルを細胞質から分離して測定し、細胞中での麻酔ガス分子の位置を特定した。

生命科学の分野では、上述の麻酔ガス分子のように、生体細胞内で生体機能を担う分子そのものの存在位置を特定する観測手法がないため、機能の作用機構を直接的に解明する研究は困難な状況にある。光波制御を利用した分子の高感度分光技術を利用した2次元画像化を行えば、生命科学や医療分野など多くの発展的分野への応用が可能となる。

農工大グループのもうひとつの特徴は、光位相に敏感な光学測定技術である。従来の位相変調コヒーレントラマン測定をさらに発展させ、高感度・高速な測定を、ほぼ完全なノイズ除去と両立できる分光手法を開拓した。この方法では、高速位相変調・高速掃引型波束分光計・位相敏感検波という本プロジェクトでこれまでに開発・応用してきた基礎技術を組み合わせているため、非常に独自性の高いシステムとなっている。

高感度かつ低ノイズな新しい手法は、データの取得時間が大幅に短縮されるため、分光測定を基にした分子分布の画像化を実現するのに、非常に強力なツールになると期待できる。特に、生体分子分光においては、主要なノイズ元となる「水」の存在が不可避であるが、本手法を用いれば水由来のノイズを選択的に除去し、目的の薬剤の空間分布を鮮明に浮かび上がらせる事もできる。実際、水中の 100 マイクロメートル四方の範囲に点在するピコリットルのクロロホルム液滴を対象とした画像化もすでに成功しており、生体環境下での実用性を実証することができた。

偏光制御パルスは、本プロジェクトの研究開始時からの目標であり最大の成果である。直交する2つの偏光成分をそれぞれ波形整形した後に干渉させる方法により、任意の偏光状態を持つパルス波形の生成に成功した。さらに、独立な偏光成分を合波する場合に問題となる、2成分間の相対位相の揺らぎを低減するために、干渉計の能動制御を行い、時空間光波束操作の実用化に成功した。

この偏光制御パルスを用いて、鏡像関係にある光学異性体の片方をもう一方の鏡像異性体に反転させることができないかを今後検討していく予定である。生体に深く関わるアミノ酸も光学異性体を持つことから、偏光制御パルスによる物質制御についても、生命科学や医療の分野に新しい技術をもたらすものと考えられる。

第4期科学技術基本計画では、我が国の将来にわたる成長と社会の発展の柱の1本として、『ライフイノベーションの推進』が掲げられている。ライフイノベーションの目標実現のために重点的に推進すべき施策には、疾患の早期発見につながる新しい診断法の開発があり、具体的には、早期診断に資する微量物質の同定技術や、新たなイメージング技術の開発が望まれている。本プロジェクトの成果は、この重点施策に対するひとつの解答を与えるものと考えられる。

#### 4.4 東京大学 五神グループ、東京農工大学 三沢グループ 連携課題

半導体基板に光キャリアの空間構造を作成し、プラズマ共鳴近傍のテラヘルツ波をプローブに用いて、その光学活性の発現を確認することを当初の課題として設定した。4.1に述べた金属キラル格子を利用した光励起キャリアによる三次元キラリティー誘起の実験結果により、Si 基板に光励起キャリアのみで観測可能な旋光性を誘起するためには mJ 程度のパルスエネルギーを有する光を光源として用いることが必要であることがわかったため、高パルスエネルギー対応の反射型二次元空間位相変調器を導入した。これを用いて、高抵抗 Si 基板上に、周期 180um 程度の卍周期構造パターンになるように励起光を集光し、そこを透過した THz 波の偏光変化を計測した(図 18)。この結果、確かに卍のキラリティーに依存した、最大 1 度程度の偏光回転が観測され、卍の周期を変えることによって偏光回転スペクトルもシフトすることが確認された。パターンがアキラルな場合にはこのような偏光回転は観測されなかった。これは、光励起キャリア分布の三次元キラリティーのみで THz の旋光性を誘起することが可能であることを示した初めての結果である。

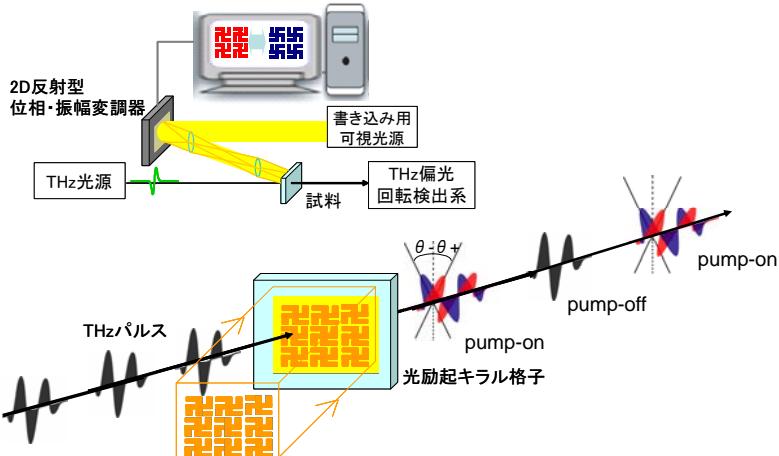


図 18 光励起キャリアによる三次元キラルモルフォロジー誘起実験の模式図

また、光励起キャリアでワイヤーグリッド構造を誘起した場合、THz 波に対して波長板として作用することが明らかになった。観測される楕円率角の最大値は  $45^\circ$  に達し、グリッドの周期を変えることによって動作周波数を制御することもできる。これは、周波数可変なアクティブ  $\lambda/4$  波長板が実現できることを意味しており、応用上も重要な結果であると考えられる。

金属等の人工構造モルフォロジーと比べて、光励起キャリアのみによる制御は、パターンを高速かつ自在に切り替えることが可能という非常に大きな利点を有しているため、新たな THz 変調デバイスの実現につながる大きな可能性を有している。

また、農工大グループが開発した時空間パルス波形整形技術を用いて実現した「ねじれ偏光パルス」を用いて、物質中の分極・磁化の振動を自在に制御する手法を開発し、実証することに成功した。前述の、ねじれ偏光ダブルパルスを用いた磁化ベクトル制御の実験の場合には、実質的に制御できるパラメータがダブルパルスの時間間隔のみであった。それに対して、ねじれ偏光パルスの場合は、周波数空間における左右円偏光の変調を自在に設計することが可能であるため、誘導ラマン過程の制御の自由度を飛躍的に向上させることができることを見出した。ここで重要なのが、ねじれ偏光パルスの設計指針である。非線形光学過程である誘導ラマン過程を活用するためには、光パルスを構成する角周波数成分の偏光状態を独立に制御するのではなく、異なる周波数成分間の相関を考慮することが必須である。東大グループでは、この相関を記述するシンプルなパラメータとして、包絡関数を表す「時間依存するストークスペラーメータ」の捻れに着目した。これによって、素励起あたりの角運動量が  $\pm 2\hbar$  となる回転モードを選択的に制御できることを理論的に示した。

この設計指針に従って波形整形を施したねじれ偏光パルスによって、ユニークな回転モード制御が可能になった。例えば、近赤外パルスの高周波成分を左(右) 円偏光、低周波成分を右(左) 円偏光に整形したねじれ偏光パルスを用いて、3 回対称結晶で差周波を発生させると、広帯域の右(左) 円偏光 THz パルスが発生する。あるいは、ねじれ偏光パルスの位相にサイン型の位相変調を与えると、ねじれ偏光パルスのパルス列が発生するため、フリンジスペクトルを持つ円偏光 THz パルスや、中心周波数調整可能な狭帯域円偏光 THz パルスを発生させることができる。我々は、特徴的な共鳴を有しない ZnTe(111)結晶に、設計されたねじれ偏光パルスを入射することによって上記のような THz 波発生偏光制御が可能であることを実験で示すことに成功した(図19)。これは、物質内部における THz 領域の様々な振動モードを自在に制御することが可能な技術であり、時空間パルス波形整形技術の強力なアプリケーションの一つであることは間違いない。また、制御素子が未だ不十分な THz 領域において、放射される THz 波の帯域や偏光を自在に制御できるため、THz の光源としても画期的なものであると言える。なおこの実験は、東大グループで開発を進めてきた高感度 THz 偏光状態計測技術と、農工大グループの進めてきた時空間パルス波形整形技術が組み合わさることによって初めて実現が可能となったものであり、実際に、農工大グループが開発した波形整形用のユニットを東大の実験室に移設することによって実験を遂行し、見事な

実験結果を得ることができた。CRESTによる共同研究の強みが最大限発揮された実験であったと言える。

また、新たな進歩として、ZnTeよりも広い帯域で位相整合条件を満たすことができる GaP を THz 波発生結晶に用い、モノサイクルに近い広帯域円偏光 THz 波を生成することに成功した。この広帯域 THz 波は、波形整形器により励起光パルスを整形することで、偏光を含めて自由に設計することができる。この例として、帯域が 0.4 THz 程度の狭帯域円偏光 THz 波を発生させ、その中心周波数を 1 THz から 3 THz に変調することに成功した。THz 領域は、バンドパスフィルターが充実しないため、偏光操作と帯域フィルターを同時に実現する今回開発した技術は、近年発達してきた THz カメラと組み合わせることで、生体試料を対称とした円二色分光イメージング等のアプリケーションを実現する技術として重宝されることを期待している。

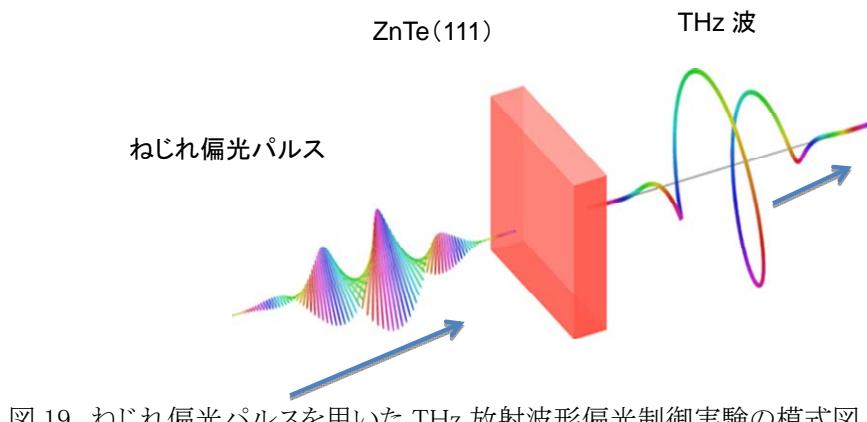


図 19 ねじれ偏光パルスを用いた THz 放射波形偏光制御実験の模式図

## § 5 成果発表等

(1) 原著論文発表 (国内(和文)誌 0 件、国際(欧文)誌 32 件)

1. K. Konishi, T. Sugimoto, B. Bai, Y. Svirko, and M. Kuwata-Gonokami, "Effect of surface plasmon resonance on the optical activity of chiral metal nanogratings" *Opt. Express*, **15** (15) 9575 (2007). [DOI:10.1364/OE.15.009575]
2. N. Kanda, K. Konishi, and M. Kuwata-Gonokami, "Terahertz wave polarization rotation with double layered metal grating of complimentary chiral patterns" *Opt. Express*, **15** (18) 11117 (2007). [DOI:10.1364/OE.15.011117]
3. K. Yoshioka, T. Ideguchi, and M. Kuwata-Gonokami, "Laser-based continuous-wave excitonic Lyman spectroscopy in Cu<sub>2</sub>O" *Phys. Rev. B*, **76**, 033204 (2007). [DOI:10.1103/PhysRevB.76.033204]
4. N. Naka, J. Omachi, and M. Kuwata-Gonokami, "Suppressed formation of electron-hole droplets in diamond under a strain field" *Phys. Rev. B*, **76**, 193202 (2007). [DOI:10.1103/PhysRevB.76.193202]
5. E. Kojima, J. B. Héroux, R. Shimano, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, Y. Iye and M. Kuwata-Gonokami, "Experimental investigation of polaron effects in GaMnAs by time-resolved and continuous wave mid-infrared spectroscopy" *Phys. Rev. B*, **76**, 195323 (2007). [DOI: 10.1103/PhysRevB.76.195323]
6. K. Horikoshi, K. Misawa and R. Lang, "20-fps motion capture of phase-controlled wave-packets for adaptive quantum control" *Ultrafast Phenomena XV*, 175-177 (2007). [DOI: 10.1007/978-3-540-68781-8\_56]
7. K. Horikoshi, K. Misawa and R. Lang, "Rapid motion capture of mode-specific quantum wave packets selectively generated by phase-controlled optical pulses" *J. Chem. Phys.*, **127**, 054104 (2007). [DOI:10.1063/1.2753834]
8. K. Ishida, F. Aiga, K. Misawa, "Nonlinear optical response of wave packets on quantized potential energy surfaces" *J. Chem. Phys.*, **127**, 194304 (2007). [DOI:10.1063/1.2805091]
9. T. Kojiri, K. Misawa and R. Lang, "Photoisomerization of all-trans retinal triggered with femtosecond phase-locked pulse pairs," *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**, 014708 (2008). [DOI: 10.1143/JPSJ.77.014708]
10. K. Konishi, B. Bai, X. Meng, P. Karvinen, J. Turunen, Y. P. Svirko, and M. Kuwata-Gonokami, "Observation of extraordinary optical activity in planar chiral photonic crystals" *Optics Express*, **16**, 7189 (2008). [doi:10.1364/OE.16.007189]
11. T. Ideguchi, K. Yoshioka, A. Mysyrowicz, and M. Kuwata-Gonokami, "Coherent Quantum Control of Excitons at Ultracold and High Density in Cu<sub>2</sub>O with Phase Manipulated Pulses" *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 233001 (2008). [DOI:10.1103/PhysRevLett.100.233001]
12. K. Misawa and K. Horikoshi, "Real-time wave-packet engineering using a sensitive wave-packet spectrometer and a pulse-shaper" *Proceedings of XVI International Conference on Ultrafast Phenomena*, MIa2 (2008). [DOI:

13. N. Naka, T. Kitamura, J. Omachi, and M. Kuwata-Gonokami, “Low-temperature excitons produced by two-photon excitation in high-purity diamond crystals” *Phys. Stat. Sol. (b)*, **245**, 2676-2679 (2008). [DOI: 10.1002/pssb.200879877]
14. J. Omachi, N. Naka, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami, “Formation control of electron-hole droplets in diamond by a weak pulse injection” *J. Phys. C*, **148**, 012051 (2009).
15. N. Naka, J. Omachi, H. Sumiya, K. Tamasaku, T. Ishikawa, M. Kuwata-Gonokami, “Density-dependent rxciton kinetics in synthetic diamond crystals” *Phys. Rev. B*, **80**, 035201 (2009). [DOI:10.1088/1742-6596/148/1/012051]
16. K. Konishi, N. Kanda, B.Bai, X. Meng, P. Karvinen, J. Turunen, Y. P. Svirko, M. Kuwata-Gonokami, “Optical activity in metal and dielectric planar chiral gratings” *Proceedings of SPIE*, **7395**, 73951F (2009). [DOI:10.1117/12.827004]
17. N. Kanda, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, “Light-induced terahertz optical activity” *Optics Letters*, **34**, 19, 3000 (2009).[DOI:10.1364/OL.34.003000]
18. M. Sato, T. Suzuki, and K. Miawa, “Interferometric polarization pulse shaper stabilized by an external laser diode for arbitrary vector field shaping”, *Rev. Sci. Inst.*, **80**, 123107 (2009). [DOI:10.1063/1.3270254]
19. K. Misawa and K. Horikoshi, “Vibrational wave-packet engineering by rapid-scanning wave-packet spectroscopy”, *Review of Laser Engineering*, **38** (2), 125 (2010)
20. T. Unuma, Y. Ino, M. Kuwata-Gonokami, E. M. Vartiainen, K.-E. Peiponen, and K. Hirakawa, “Determination of the time origin by the maximum entropy method in time-domain terahertz emission spectroscopy”, *Optics Express*, **18** (15), 15853-15858 (2010) [DOI: 10.1364/OE.18.015853]
21. 2. K. Yoshioka, T. Ideguchi, André Mysyrowicz, and M. Kuwata-Gonokami, “Quantum inelastic collisions between paraexcitons in Cu<sub>2</sub>O” *Phys. Rev. B*, **82**, 041201/1-4(R) (2010) [DOI: 10.1103/PhysRevB.82.04120]
22. 3. N. Kuse, Y. Nomura, A. Ozawa, M. Kuwata-Gonokami, S. Watanabe, Y. Kobayashi, “Self-compensation of third-order dispersion for ultrashort pulse generation demonstrated in an Yb fiber oscillator”, *Optics Letters*, **35** (23) 3868-3870 (2010) [DOI:10.1364/OL.35.003868]
23. Y. Nagashima, T. Suzuki, S. Terada, S. Tsuji, and K. Misawa “In-vivo molecular labeling of halogenated volatile anesthetics via intrinsic molecular vibrations using nonlinear Raman spectroscopy”, *Journal of Chemical Physics*, **134**, 024525 (2011) [DOI: 10.1063/1.3526489]
24. Y. Nagashima, T. Suzuki, S. Terada, S. Tsuji, and K. Misawa “Improved signal extraction method for single-pulse heterodyne CARS spectroscopy”, *Proc. SPIE* 7376, 73760S (2010) [DOI:10.1117/12.871162]

25. M. Sato, T. Suzuki, and K. Misawa "Full Control of Polarization Shaped Pulses Using a Phase-Locked Mach-Zehnder Interferometer", Proceedings of International Conference on Ultrafast Phenomena XVII, pp.844-846 (2011)
26. T. Higuchi, N. Kanda, H. Tamaru, and M. Kuwata-Gonokami, "Selection rules for light-induced magnetization in a crystal with threefold symmetry: the case of antiferromagnetic NiO", Phys. Rev. Lett., **106** (4), 047401/1-4 (2011) [DOI:10.1103/PhysRevLett.106.047401 ] (Selected as Editor's suggestion)
27. K. Konishi, M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Arakawa, M. Kuwata-Gonokami, "Circularly Polarized Light Emission from Semiconductor Planar Chiral Nanostructures", Physical Review Letters, **106** (5) 057402/1-4 (2011) [DOI:10.1038/asiamat.2011.44] (Highlighted in Physical Review Focus and NPG Asia Materials)
28. K. Yoshioka, E. Chae, and M. Kuwata-Gonokami, "Transition to a Bose-Einstein condensate and relaxation explosion of excitons at sub-Kelvin temperatures", Nature Communications, 2 : 328 (2011) [DOI: 10.1038/ncomms1335]
29. T. Unuma, Y. Ino, K. Peiponen, E. M. Vartiainen, M. Kuwata-Gonokami, and K. Hirakawa, "Causality-based method for determining the time origin in terahertz emission spectroscopy", Opt. Express, **19** (13) 12759/1-7 (2011) [DOI: 10.1364/OE.19.012759]
30. N. Kanda, T. Higuchi, H. Shimizu, K. Konishi, K. Yoshioka, M. Kuwata-Gonokami, "The vectorial control of magnetization by light", Nature Communications **2**, 362 (2011) [DOI: 10.1038/ncomms1366]
31. T. Suzuki and K. Misawa, "Efficient heterodyne CARS measurement by combining spectral phase modulation with temporal delay technique," Opt. Express 19, 11463-11470 (2011) [doi:10.1364/OE.19.011463]
32. J. Li, T. Higuchi, N. Kanda, K. Konishi, S. G. Tikhodeev, and M. Kuwata-Gonokami,  
Control of magnetic dipole terahertz radiation by cavity-based phase modulation  
Optics Express, **19** (23) 22550/1-7 (2011)
- (2) その他の著作物(総説、書籍など)
1. 五神真, 「(特集2:物理学の今日から明日へ)先端光技術による物理学の展開」, 学術の動向, 52-53, (2007)
  2. 三沢和彦, 「位相制御技術を用いた新規短パルスレーザー光源の開発と光化学反応制御」高分子, 56, 505 (2007).
  3. 三沢和彦, 堀越建吾, 「光位相による凝縮系物性制御」, 光アライアンス, 第 19 卷 8 号, 9-13 (2008)
  4. 小西邦昭, 五神真, ナノ格子による巨大施光性, 応用物理, 78号, 531-535 (2009)
  5. M. Kuwata-Gonokami, "Optical Manipulation of Excitonic Particles into a quantum degenerate regime", Quantum Coherence in Solid State Systems, International School of Physics "Enrico Fermi", Course CLXXI, **171**, IOS press,

Amsterdam, 343-373 (2009)

6. M. Kuwata-Gonokami, "High-Density Excitons in Semiconductors", In: P. Bhattacharya, R. Fornari, H. Kamimura, (eds.), *Comprehensive Semiconductor Science and Technology*, **2**, 213-255, Amsterdam: Elsevier, (2011)
  7. 五神真,「円偏光を放出する微細素子-半導体キラルナノ周期構造による自然偏光の円偏光化」, OplusE, 第 33 卷, 第 4 号, 335-336 (2011)
  8. 樋口卓也, 五神真, 「光によるコヒーレントな磁化制御における結晶対称性の役割」, 固体物理, Vol.46 , No.11, P711-723 (2011)
  9. 吉岡孝高, 五神真, 「バルク半導体における励起子 BEC 相の探索」, 固体物理, Vol.46, No.11, P593-604 (2011)
  10. 吉岡孝高、五神真, 「半導体励起子のボース・アインシュタイン凝縮」, 物理学会誌、第 67 卷, 第 01 号, P44 (Jan., 2012)
  11. 小西邦昭, 五神真, 「半導体プロセスを用いた小型円偏光発光素子」, レーザ加工学会誌、Vol.19, No.1 (2012)
- (3)国際学会発表及び主要な国内学会発表
- ① 招待講演 (国内会議 27 件、国際会議 39 件)  
(国内)
1. 五神真, 「Excitonic Lyman spectroscopy of cold excitons in Cu<sub>2</sub>O」, 日本物理学会春季大会, 鹿児島大学, 2007-03-18
  2. 五神真, 「先端光科学による物質科学の展開」, 茅コンファレンス 21 世紀物性科学の展望, 秋葉原コンベンションホール, 2008-06-11
  3. 三沢和彦, 「フェムト秒量子波束制御」, 強光子場科学研究懇談会 平成 19 年度第 3 回懇談会, 東京 2008-7-25
  4. 五神真, 「パルス光による量子縮退した励起子系のコヒーレント操作」, 第 5 回超高速光エレクトロニクス研究会, 丸駒温泉(北海道), 2008-08-02
  5. 五神真, 「先端レーザー分光法による電子正孔系の物質相の制御」, 物性研究所先端分光研究部門セミナー, 物性研究所, 2008-09-02
  6. 五神真, 「先端レーザー分光法による電子正孔系の物質相の制御」, 強光子場科学研究懇談会, 小柴ホール, 2008-10-25
  7. 三沢和彦、「フェムト秒量子波束制御」、応用物理学会北海道支部講演会, 北海道大学, 2008-10-31
  8. 五神真, 「光と半導体」, JST SORST 「フォトンサイエンスワークショップ」"フォトンサイエンスのパラダイムシフト", 山上会館, 2009-01-20
  9. 五神真, 「固体の多体量子現象と光機能」, 光科学技術振興財団 超高速時間分解光

計測研究会, 浜名名鉄ホテル, 2009-03-05

10. 五神真, 「波形制御パルスによる半導体励起子集団のコヒーレント操作」, フェムト秒レーザーパルス波形整形技術の基礎と新しい応用展開, 慶應大学, 2009-03-27
11. 三沢和彦、「光位相による凝縮系物性制御」, 日本物理学会第 64 回年次大会 27pVA-4, 立教大学, 2009-03-27
12. 五神真, 「カイラルナノ格子による光制御」, 第 112 回微小光学研究会「みらい微小光学」, 日本科学未来館, 2009-05-19
13. 五神真, 「半導体における動的電子相関と光機能」, 国際高等研究所 研究プロジェクト「ナノ物質量子相の科学」2009 年度第 1 回研究会, 国際高等研究所, 2009-6-19
14. 小西邦昭, 「微細構造による巨大旋光性」, 日本物理学会 2009 年秋季大会, 熊本大学, 2009-09-27
15. 五神真, 「励起子ライマン分光による極低温励起子物質相の探索」, 日本物理学会 2009 年秋季大会, 熊本大学, 2009-09-26.
16. 五神真, 「半導体における励起子ボース・アインシュタイン凝縮相の探索」, 第 10 回エクストリームフォトニクス研究会, 愛知県蒲郡市, 2009-11-4
17. 五神真, 「光で創る集団の量子現象と光科学」, Optical Science of photo-controlled coherent matters, 日本光学会年次学術講演会, 朱鷺メッセ(新潟), 2009-11-24(基調)
18. 五神真, 「波形制御パルスによる極低温励起子集団の生成超高速過程における量子コヒーレントの観測と制御」, ~量子情報処理から固体・生体分子ダイナミクス~, 東北大学理学部化学教室, 2009-12-4
19. 五神真, 「2次元キラル格子によるテラヘルツ偏光制御」, 応用物理学会 THz 電磁波技術研究会企画「テラヘルツ光化学の新展開」, 東海大学(平塚), 2010-3-18
20. 三沢和彦, 「時空間波形制御技術の開拓」, ワークショップ「超高速過程における量子コヒーレンスの観測と制御」、東北大学, 2009-12-4
21. 三沢和彦, 「量子波束制御エンジニアリング」, 第6回電通大・農工大合同シンポジウム , 東京農工大学, 2009-12-5
22. 五神真, 「先端レーザー技術による光物理学の展開」, 日本学術会議主催公開シンポジウム「先端フォトニクスの展望」, 日本学術会議講堂, 2010-4-9
23. 三沢和彦, 「時空間光波束の位相制御と物性研究への応用」, 物性研短期研究会「外部場の時間操作と実時間物理現象」, 東大物性研柏キャンパス, 2010-6-22
24. 三沢和彦, 「超短光パルスの内部位相制御とその応用」、超高速フォトニクスシンポジウム, 早稲田大学西早稲田キャンパス, 2010-4-11

25. 五神真, 「高密度電子正孔系の物質相一励起子ガスの基底状態を求めて」, 日本物理学会第 66 回年次大会, 新潟大学, 2011-03-26
26. 五神真, 「人工キラル格子による光波操作—偏光制御の新展開—」, FPD 設計技術研究会, 秋葉原 UDX, 2011-05-27
27. 五神真, 「高密度電子正孔系の物質相一励起子ガスの基底状態を求めて」, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-22

(国際)

1. M. Kuwata-Gonokami, "Study on the collision effects of cold excitons in Cu<sub>2</sub>O by excitonic Lyman spectroscopy", 37th Winter Colloquium on The Physics of Quantum Electronics (PQE), Snow Bird, Utah, (Jan. 3, 2007)
2. K. Misawa, "Femtosecond isomerization of all-retinal triggered with a phase-locked pulse pair", 37th Winter Colloquium on The Physics of Quantum Electronics (PQE), Snow Bird, Utah, (Jan. 3, 2007)
3. M. Kuwata-Gonokami, "Dynamics and collision-induced effects of cold excitons in Cu<sub>2</sub>O by excitonic Lyman spectroscopy", 3rd International Conference on Spontaneous Coherence in excitonic Systems, Les Houches, France, (Jan. 17, 2007)
4. M. Kuwata-Gonokami, "Dynamics of cold excitons in Cu<sub>2</sub>O by excitonic Lyman spectroscopy", Fundamental Optical Processes in Semiconductors FOPS, Montana (24, July, 2007).
5. M. Kuwata-Gonokami, "Enhanced optical activity of quasi two-dimensional metal chiral nanogratings", The Seventh Finnish-Japanese Joint Symposium on Optics in Engineering OIE, Tampere, Finland (7, Aug., 2007) (plenary)
6. M. Kuwata-Gonokami, "Enhanced polarization effects on quasi-two-dimensional metal chiral nanogratings", The 7th Pacific Rim Conference On Lasers and Electro-Optics, CLEO/Pacific Rim, Korea (29, Aug., 2007)
7. M. Kuwata-Gonokami, "Optical manipulation of quantum-degenerate excitonic particles", COAST/CORAL Winter School on Advanced Laser Science, Yuzawa (15, Jan., 2008)
8. M. Kuwata-Gonokami, "Enhanced optical activity in planar chiral nano-gratings", JST-DFG Workshop on nanoelectronics, Aachen (7, Mar. 2008)
9. M. Kuwata-Gonokami, "Optical manipulation of Quantum-degenerate Excitonic Particles", PLMCN8: 8th International Conference on physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures, Komaba Research Campus, the Univ. of Tokyo (10, April 2008).
10. M. Kuwata-Gonokami, "Cold excitons in a quantum degenerate regime", EXCON'08: The 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Kyoto (5, June 2008).

11. M. Kuwata-Gonokami, "Optical Manipulation on Excitonic Particles into a quantum degenerate regime," 2008 International School of Physics "Enrico Fermi", Varenna, Lake of Como, Italy, (July 2008).
12. M. Kuwata-Gonokami, "Enhanced optical activity in metal and dielectric chiral nanograting structures", iNOW 2008: International Nano-Optoelectronics Workshop, Univ. of Tokyo, (August 2008).
13. M. Kuwata-Gonokami, "Coherent optical manipulation of cold excitons", PIPT: 3rd International Conference on Photo-Induced Phase Transitions and Cooperative Phenomena, Osaka (14, Nov., 2008).
14. M. Kuwata-Gonokami, "Giant Optical Activity in Semiconductor Planar Chiral Structures", Nanometa 2009: 2nd European Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials, Seefeld (Tirol), Austria, (6, Jan., 2009).
15. M. Kuwata-Gonokami, "Optical manipulation of cold excitons", The 1st Shanghai Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science, Univ. of Tokyo (12, Feb., 2009)
16. K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, "Polarization control with metal and semiconductor chiral nanogratings", Noma 2009: 9th Mediterranean Workshop and Topical Meeting "Novel Optical Materials and Applications" Grand Hotel San Michele, Cetraro - Italy (13, June, 2009)
17. M. Kuwata-Gonokami, "Cold excitons in a quantum degenerate regime", Statistical Physics: Modern Trends and Applications - dedicated to the 100-th anniversary of Prof. M. M. Bogolyubov (1909-1992) , Lviv, Ukraina (24, June, 2009)
18. M. Kuwata-Gonokami, "Optical activity in metal and dielectric planar chiral gratings", SPIE (Society of Phot-optical Instrumentation Engineers) Optics+Photonics 2009, San Diego, (5, Aug., 2009)
19. M. Kuwata-Gonokami, "Coherent control of resonant two-photon excitation of cold excitons by phase modulated pulses", CLEO/Pacific Rim 2009: The 8<sup>th</sup> Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics, Shanghai, (1, Sep, 2009)
20. K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, "Giant optical activity of planar chiral nanostructures and circularly-polarized light emission", CLEO/Pacific Rim 2009, Shanghai, (1, Sep, 2009)
21. M. Kuwata-Gonokami, "Cold excitons in a quantum degenerate regime", Statistical Physics: Modern Trends and Applications - dedicated to the 100-th anniversary of Prof. M. M. Bogolyubov (1909-1992) , Lviv, Ukraina (24, June, 2009)
22. M. Kuwata-Gonokami, "Optical activity in metal and dielectric planar chiral gratings", SPIE (Society of Phot-optical Instrumentation Engineers) Optics+Photonics 2009, San Diego, (5, Aug., 2009)
23. M. Kuwata-Gonokami, "Strong optical activity in planner chiral grating

Structures”, Optical Society of Korea 20th Anniversary and Winter Annual Meeting 2010, KAIST, KOREA, (21, Jan., 2010)

24. M. Kuwata-Gonokami, “Search for exciton BEC in a Cu<sub>2</sub>O crystal”, Symposium on “Physics and Chemistry of Coherently Controlled Quantum Systems”, Meitetsu Inuyama Hotel, Inuyama, Japan (20, March, 2010)
25. K. Misawa, “Sensitive detection of inhalational anesthetic molecules by heterodyne-detected single-beam CARS using adaptively phase-modulated femtosecond pulses”, The 40th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, Snowbird, (7, Jan. 2010)
26. K. Konishi, N. Kanda, and M. Kuwata-Gonokami, “Polarization control with planner chiral grating structures”, SPIE-The International Society for Optical Engineering, Brussels, Belgium (15, April, 2010)
27. N. Kanda, K. Konishi, and M. Kuwata-Gonokami, “THz polarization control with chiral grating structures”, The 7th Asia-Pacific Laser Symposium, Jeju island, Korea (13, May, 2010)
28. M. Kuwata-Gonokami, “Advanced photons for condensed matter”, The 4th Yamada Symposium Advanced Photon and Science Evolution, Osaka (14, June, 2010)
29. K. Misawa, “Rapid motion capture of phase-controlled vibrational wave-packets associated with free and bridged molecular backbones”, Symposium on the development of ultrafast pulse lasers and ultrafast spectroscopy , Tokyo, Japan (17, September, 2010) (invited)
30. K. Misawa, “Rapid motion capture and phase control of vibrational wave-packets”, Pacificchem 2010, Honolulu, USA, (18, December, 2010)
31. K. Misawa, “Nonlinear spectroscopy using tailored femtosecond pulses”, International Symposium on General Aspects of Graphene, Carbon Nanotube and Ultrafast Phenomena of Nanomaterials, Taipei (16, November, 2010)
32. M. Kuwata-Gonokami, “Stability of an ensemble of excitons in a quantum degenerate regime in a bulk semiconductor of Cu<sub>2</sub>O - Search for Bose-Einstein Condensation of excitons”, The 41th Winter Colloquium on the PHYSICS of QUANTUM ELECTRONICS, Snowbird (3, Jan., 2011)
33. M. Kuwata-Gonokami, “Search for exciton BEC in a Cu<sub>2</sub>O crystal” ERATO Macroscopic Quantum Control Conference on Ultracold Atoms and Molecules, UCAM2011, University of Tokyo, Japan (24, Jan., 2011)
34. M. Kuwata-Gonokami, “Experimental aspects of exciton-exciton interactions and of exciton BEC”, School and Congerence “Cold Atoms, Semiconductor Polaritons and Nanotechnology”, albatros Hotel, Chersonissos, Crete, Greece, (3, May, 2011)
35. M. Kuwata-Gonokami, “High Density excitation phenomena in semiconductors”, School and Congerence “Cold Atoms, Semiconductor Polaritons and Nanotechnology”, albatros Hotel, Chersonissos, Crete, Greece,

(4, May, 2011)

36. M. Kuwata-Gonokami, "Relaxation explosion of a Bose-Einstein condensate of excitons in Cu<sub>2</sub>O", Fundamental Optical Properties of Semiconductor -2011, North Carolina, (4, August, 2011)
37. M. Kuwata-Gonokami,  
Observation of spontaneous Bose-Einstein condensation and relaxation explosion of excitons at sub-Kelvin temperatures,  
Bose-Einstein Condensation 2011 Frontiers in Quantum Gases, Spain, (13, (10-16) Sep., 2011) (invited, poster)
38. M. Kuwata-Gonokami,  
Transition to a Bose-Einstein condensate of excitons in a potential trap at sub-Kelvin temperatures,  
Gordon Research Conference on Ultrafast phenomena in cooperative systems, Hotel Galvez, Texas, (20, (19-24) Feb., 2012) (invited)
39. M. Kuwata-Gonokami,  
Polarization control with artificial chiral structures,  
8th EOS Topical Meeting on Diffractive Optics 2012(DO2012), Delft, Netherlands (2012)

- ② 口頭発表 (国内会議 87 件、国際会議 36 件)  
(国内)
1. 大間知潤子, 中暢子, 五神真, 「歪み印加によるダイヤモンド電子正孔液滴相の抑制」, 日本物理学会春季大会, 鹿児島大学, 2007-03-18
  2. 島崎敏彦, 吉岡孝高, 五神真, 「コヒーレント励起子分子による位相共役波発生」, 日本物理学会春季大会, 鹿児島大学, 2007-03-18
  3. 小尻尚志、三沢和彦、覧具博義, 「レチナールの光異性化反応におけるコヒーレント効果の検証」, 日本物理学会春季大会, 鹿児島大学, 2007-03-19
  4. 小西邦昭, 杉本智洋, 遠矢祥弘, K. Jefimovs, Y. Svirko, 五神真, 「金属薄膜キラルナノ格子の巨大旋光性と表面プラズモンの関係」, 日本物理学会春季大会, 鹿児島大学, 2007-03-21
  5. 島崎敏彦, 吉岡孝高, 五神真, 「位相共役波を用いた励起子分子の運動量分布観測」, 日本物理学会秋季大会, 北海道大学, 2007-09-21
  6. 吉岡孝高, 井手口拓郎, 五神真, 「励起子 Lyman 分光法による Cu<sub>2</sub>O 1s パラ励起子寿命の温度依存性測定」, 日本物理学会秋季大会, 北海道大学, 2007-09-21
  7. 蔡恩美, 吉岡孝高, 井手口拓郎, 中暢子, 五神真, 「歪トラップした Cu<sub>2</sub>O パラ励起子の励起子 Lyman 分光」, 日本物理学会秋季大会, 北海道大学, 2007-09-21
  8. 大間知潤子, 中暢子, 吉岡孝高, 五神真, 「ダイヤモンドにおける電子正孔液滴のダイナミクス」, 日本物理学会秋季大会, 北海道大学, 2007-09-21
  9. J.B. Heroux, 橋本義昭, 勝本信吾, 五神真, 「赤外過渡分光法による希薄磁性半導体

GaMnAs の束縛磁気ポーラロン効果の観測」，日本物理学会秋季大会，北海道大学，2007-09-21

10. 神田夏輝, 小西邦昭, 五神真, 「金属薄膜キラル格子による THz 波の偏光操作」, 日本物理学会秋季大会, 北海道大学, 2007-09-22
11. 吉岡孝高, 井手口拓郎, 五神真, 「 $\text{Cu}_2\text{O}$  パラ励起子における衝突誘起非輻射緩和過程の観測」, 日本物理学会年次大会, 近畿大学, 2008-03-23
12. 井手口拓郎, 坂本歳幸, 吉岡孝高, 五神真, 「位相制御光パルスによる  $\text{Cu}_2\text{O}$  励起子多光子励起過程の制御」, 日本物理学会年次大会, 近畿大学, 2008-03-23
13. 大間知潤子, 中暢子, 吉岡孝高, 五神真, 「ダブルパルス発光相關法によるダイヤモンド電子正孔系の形成過程の制御」, 日本物理学会年次大会, 近畿大学, 2008-03-23
14. 小西邦昭, Benfeng Bai, Yuri Svirko, 五神真, 「人工キラルナノ格子の共鳴制御による巨大旋光性」, 日本物理学会年次大会, 近畿大学, 2008-03-24
15. 五神真, 「電子-正孔系におけるボソン・フェルミオンクロスオーバーと BEC」, 日本物理学会春季大会, 近畿大学, 2008-03-24
16. 五神真, 「半導体のキャリア相関と光制御機能」, 春季応用物理学会関係連合講演会, 日本大学船橋キャンパス, 2008-03-29
17. 小西邦昭, 野村政宏, 渡邊克之, 岩本敏, 荒川泰彦, 五神真, 「GaAs 半導体キラルフォトニック結晶における巨大旋光性」, 第 69 回応用物理学会学術講演会, 中部大学, 2008-09-02.
18. 堀越建吾, 三沢和彦, 「チャーピパルス列を利用した振動モード選択的な分子振動波束の生成」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学, 2008-09-20
19. 坂本歳幸, 吉竹純基, 吉岡孝高, 塚崎敦, 川崎雅司, 五神真, 「 $\text{ZnO}/\text{ZnMnO}$  単一量子井戸励起子発光の高密度励起効果」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学, 2008-09-20
20. 中暢子, 北村鉄人, 大間知潤子, 五神真, 「ダイヤモンドの二光子励起発光と熱化ダイナミクス」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学, 2008-09-22
21. 吉岡孝高, 蔡恩美, 鈴木理仁, 五神真, 「トラップした  $\text{Cu}_2\text{O}$  パラ励起子のサブケルビン領域における量子縮退状態」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学, 2008-09-22
22. 蔡恩美, 吉岡孝高, 五神真, 「 $\text{Cu}_2\text{O}$  黄色系列励起子の 2p 準位に対する一軸性歪依存性」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 岩手大学, 2008-09-22
23. 佐藤正明, 堀越建吾, 鈴木隆行, 三沢和彦, 「独立な偏光成分の位相振幅変調によるフェムト秒パルスの 3 次元偏光制御」レーザー学会第 384 回研究会, 東京, 2009-2-20
24. 鈴木理仁, 大間知潤子, 加藤宏平, 中暢子, 吉岡孝高, 五神真, 「ダイヤモンド電子正孔液滴の時間分解発光測定」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-27

25. 大間知潤子, 中暢子, 吉岡孝高, 五神真, 「ダイヤモンドにおける低温電子正孔液滴相の安定性」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-27
26. 堀越建吾, 塚本智隆, 三沢和彦「分子構造に依存する量子波束ダイナミクスの観測とその光位相制御」日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-27
27. 佐藤正明, 三沢和彦, 「独立な偏光成分の位相振幅変調によるフェムト秒パルスの 3 次元偏光制御」日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-27
28. 神田夏輝, 小西邦昭, 五神真, 「人工キラル格子の光励起による THz 波偏光回転制御」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-28
29. 島崎敏彦, 吉岡孝高, 五神真, 「CuCl 励起子ポラリトンの二光子共鳴励起における擬角運動量保存」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-28
30. 中暢子, 北村鉄人, 大間知潤子, 五神真, 「ダイヤモンドにおける励起子の微細構造」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-28
31. 坂本歳幸, 富田克行, 吉岡孝高, 瀬川勇三郎, 塚崎敦, 川崎雅司, 五神真, 「ZnO/ZnMgO 単一量子井戸中励起子の高密度効果」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-28
32. 吉岡孝高, 蔡恩美, 五神真, 「サブケルビン領域における量子縮退励起子の観測とその安定性」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 立教大学, 2009-03-28
33. 五神真, 「電子正孔・励起子量子凝縮相の光操作と制御」, 平成 20 年度科学研究費補助金「新学術領域研究(研究領域提案型)」「半導体における動的相関電子系の光科学」第 2 回 シンポジウム, 京都大学, 2009-08-20
34. 久世直也, 野村雄高, 五神真, 渡部俊太郎, 小林洋平, 「コンパクト超短パルス Yb ファイバー発振器」, 応用物理学会学術講演会, 富山大学, 2009-09-10
35. 小西邦昭, 野村政宏, 熊谷直人, 岩本敏, 荒川康彦, 五神真, 「半導体キラルフォトニック結晶構造からの円偏光 PL スペクトル」, 応用物理学会学術講演会, 富山大学, 2009-09-08
36. 五神真, 「理論家への提言」, 新学術領域研究「半導体における動的相関電子系の光科学」第 1 回 DYCE 若手道場, 北海道大学, 2009-09-14
37. 吉岡孝高, 「亜酸化銅における励起子 Bose-Einstein 凝縮の探求」, 新学術領域研究「半導体における動的相関電子系の光科学」第 1 回 DYCE 若手道場, 北海道大学, 2009-09-14
38. 大間知潤子, 鈴木理仁, 加藤宏平, 吉岡孝高, 中暢子, 五神真, 「中赤外ポンププロープ分光によるダイヤモンド電子正孔液滴の観測」, 新学術領域研究「半導体における動的相関電子系の光科学」第 1 回 DYCE 若手道場, 北海道大学, 2009-09-14
39. 樋口卓也, 吉岡孝高, 瀬川勇三郎, 塚崎敦, 川崎雅司, 五神真, 「ZnO 人工 2 次元構

造中の励起子状態」，新学術領域研究「半導体における動的相關電子系の光科学」第 1 回 DYCE 若手道場，北海道大学、2009-09-14

40. 大間知潤子，加藤宏平，鈴木理仁，吉岡孝高，中暢子，五神真，「ダイヤモンド電子正孔液滴の中赤外分光」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-25
41. 鈴木理仁，加藤宏平，大間知潤子，吉岡孝高，中暢子，五神真，「時間分解発光によるダイヤモンド電子正孔液滴の観測」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-25
42. 神田夏輝，小西邦昭，五神真，「人工キラル格子における光励起三次元キラリティーの過渡光学応答」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-26
43. 長島優，鈴木隆行，寺田純雄，三沢和彦，「Single-beam CARS 信号の位相コントラスト増強によるハロゲン化有機化合物のラマンスペクトルの測定」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-27.
44. 塚本智隆，堀越建吾，三沢和彦，「シアニン系色素における分子振動ダイナミクスの分子構造依存性」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-27
45. 蔡恩美，吉岡孝高，五神真，「 $\text{Cu}_2\text{O}$  黄色系列励起子における 1s-2p 誘導吸収スペクトルの歪依存性」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-28
46. 横口卓也，吉岡孝高，瀬川勇三郎，塚崎敦，川崎雅司，五神真，「ZnO 人工 2 次元構造中の励起子状態」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-28
47. 佐藤正明，鈴木隆行，三沢和彦，「任意偏光制御光パルスを用いたコヒーレント制御実験系の構築」，日本物理学会 2009 年秋季大会，熊本大学，2009-09-28
48. 五神真，「時空間モルフォロジーの制御による能動メゾ光学」，CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域，第2回公開シンポジウム 光・光量子科学技術の新展開，日本科学未来館，2009-11-27
49. 五神真，「先端光量子科学アライアンスの活動と大学院改革」，応用物理学会 シンポジウム「光科学技術における人材育成」，東海大学(平塚)，2010-3-19
50. 大間知潤子，鈴木理仁，吉岡孝高，中暢子，五神真，「ダイヤモンド電子正孔系における中赤外誘導吸収スペクトル」，日本物理学会第 65 回年次大会，岡山大学，2010-3-20
51. 吉岡孝高，朴仁用，五神真，「亜酸化銅励起子の高密度励起下における光伝導測定」，日本物理学会第 65 回年次大会，岡山大学，2010-3-21
52. 横口卓也，吉岡孝高，瀬川勇三郎，塚崎敦，川崎雅司，五神真，「ZnO 量子井戸中励起子状態の井戸幅依存性」，日本物理学会第 65 回年次大会，岡山大学，2010-3-21
53. 小西邦昭，野村政宏，熊谷直人，岩本敏，荒川泰彦，五神真，「半導体キラルフォトニック結晶からの円偏光放射」，日本物理学会第 65 回年次大会，岡山大学，2010-3-21
54. 鈴木智悟，波川壮智，鈴木隆行、三沢和彦，「全ファイバー型 Yb レーザーを用いたフェム

- ト秒分光光源の開発」，日本物理学会 2010 年年次大会，岡山大学， 2010-3-22
55. 鈴木隆行，三沢和彦，「高速位相変調を用いた単一フェムト秒パルスによる CARS 分光」，日本物理学会 2010 年年次大会，岡山大学， 2010-3-22
56. 長島優，鈴木隆行，寺田純雄，三沢和彦，「位相制御コヒーレントラマン分光法による CARS スペクトルの未知信号源の分離」，日本物理学会 2010 年年次大会，岡山大学， 2010-3-22
57. 五神真，「「動的相關光科学」領域紹介および「半導体における電子正孔系の物質相と光機能」」，日本科学未来館，特定領域研究「光-分子強相互作用場の創成」領域および新学術領域研究「半導体における動的相關電子系の光科学」領域合同シンポジウム，2010-05-27
58. 久世直也，野村雄高，小澤陽，五神真，小林洋平，「Yb ファイバーレーザーによる光周波数コムの開発」，第 71 回応用物理学会学術講演会，長崎大学，2010-09-16
59. 樋口卓也，神田夏輝，清水裕勝，田丸博晴，吉岡孝高，五神真，「反強磁性体マグノン共鳴による差周波発生理論」，大阪府立大学，日本物理学会 2010 年秋季大会，2010-09-24
60. 神田夏輝，清水裕勝，樋口卓也，小西邦昭，吉岡孝高，五神真，「反強磁性マグノンのベクトルコヒーレント制御による THz 放射制御」，大阪府立大学，日本物理学会 2010 年秋季大会，2010-09-24
61. 朴仁用，吉岡孝高，五神真，「可視光照射による亜酸化銅励起子の再励起効果」，大阪府立大学，日本物理学会 2010 年秋季大会，2010-09-24
62. 宮下顕，吉岡孝高，五神真，「音響光学分散フィルタによる  $\text{Cu}_2\text{O}$  励起子励起過程のコヒーレント制御」，日本物理学会 2010 年秋季大会，大阪府立大学，2010-09-24
63. 挟間優治，中暢子，田中耕一郎，D, Heinrich Stolz，北村鉄人，大間知潤子，五神真，「ダイヤモンドにおける励起子微細構造の検証」，日本物理学会 2010 年秋季大会，大阪府立大学，2010-09-25
64. 鵜沼毅也，井野雄介，五神真，平川一彦，「GaAs/AlAs 超格子における THz 放射電場波形の時間原点とプロッホ振動の位相 III」，日本物理学会 2010 年秋季大会，大阪府立大学，2010-09-25
65. 佐藤正明，鈴木隆行，三沢和彦，「光学活性誘起のための、直交偏光成分の位相変調によるねじれ偏光パルスの生成」，日本物理学会 2010 年秋季大会，大阪府立大学，2010-09-25 織田拓磨，吉岡孝高，竹田研爾，五神真，「單一ドナー・アクセプター対の時系列光子相關計数測定」，日本物理学会 2010 年秋季大会，大阪府立大学，2010-09-26
66. 佐藤正明，鈴木隆行，三沢和彦，「ベクトルコヒーレント制御のための、偏光がパルス内でねじれる超短光パルスの設計」，第 7 回 農工大電通大 合同シンポジウム「ナノ未来科学とコヒーレント光科学」，電気通信大学，2010-12-11
67. 五神真，「電子正孔・励起子量子凝縮相の光操作と制御」，第 4 回 DYCE シンポジウム、京都大学，2011-01-06

68. 平林肇, 中暢子, 田中耕一郎, 五神真, Y.P. Svirko, A.N. Obraztsov, 「ダイヤモンドナノチップのラマンイメージングと内部歪みの効果」, 日本物理学会第66回年次大会, 新潟大学五十嵐キャンパス, 2011-03-25
69. 佐藤正明, 鈴木隆行, 三沢和彦, 「動的モルフォロジー制御に向けた時間分解エリプソメトリー系の構築」, 日本物理学会 2011 年 年次大会, 新潟大学, 20011-03-27
70. 樋口卓也, 田丸博晴, 五神真, 「誘導ラマン過程において光パルスが及ぼすトル」, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-21
71. 佐藤正明, 鈴木隆行, 三沢和彦, 「分子振動時間波形の高速検出が可能な差動検出スペクトルシフト分光計の開発とコヒーレント制御への応用」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-21
72. 田島隼人, 福原いづみ, 三沢和彦, 「パルスレーザー励起したチラコイド膜の酸素濃度測定における電荷分離過程の観測と評価」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-21
73. 福岡健太, 森田悠介, 吉岡孝高, 五神真, 「希釈冷凍機を用いた 100mK 以下の極低温における亜酸化銅励起子の発光解析」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-23
74. 挟間優治, 中暢子, 五神真, 田中耕一郎, 「ダイヤモンドの励起子微細構造と準位間緩和」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-23
75. 小城緋嘉里, 三沢和彦, 「PNI 及び PNO におけるフォトクロミック反応の量子収率測定」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-23
76. 樋口卓也, 五神真, 「 $MnF_2$  結晶の反強磁性ドメインにおける磁気光学効果の選択則」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-24
77. 鈴木隆行, 三沢和彦, 「位相敏感検波によるマルチプレックス CARS 分光の完全ノイズ除去」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-23
78. 神田夏輝, 小西邦昭, 五神真, 「空間光変調によるテラヘルツ光学活性の動的制御」, 物理学会 2011 年秋季大会, 富山大学, 2011-09-24
79. 吉岡孝高、大間知潤子、五神真  
半導体電子正孔系における量子凝縮相の光創生と制御  
CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域第4回公開シンポジウム、日本科学未来館、2011/12/2 (poster) 7
80. 吉岡孝高、大間知潤子、五神真  
高安定モード同期レーザーの作成と分光応用への展開  
CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域第4回公開シンポジウム、日本科学未来館、2011/12/2 (poster) 8
81. 樋口卓也、神田夏輝、李佳、小西邦昭、吉岡孝高、五神真  
ねじれ偏光ダブルパルスを用いた結晶中の磁化のベクトル的制御の実現

82. 今井亮, 神田夏輝, 鄭渚, 小西邦昭, 五神真  
非線形光学結晶を用いたテラヘルツベクトルビームの発生  
2012年春季 第59回 応用物理学関係連合講演会、早稲田大学、2012/3(口頭)2613
83. 大間知潤子、平野大輔、吉岡考高、坂野昌人、下志万貴博、石坂香子、五神真  
分解能光電子分光のための受動共振器を用いた高繰り返し狭線幅 6eV 光源の開発  
日本物理学会春季大会、関西学院大学、2012/3/24(口頭)24pPSA-12
84. 鵜沼毅也、井野雄介, Kai-Erik Peiponen, Erik M. Vartiainen, 五神真, 平川一彦  
テラヘルツ放射分光における因果律に基づいた時間原点の決定  
日本物理学会春季大会、関西学院大学、2012/3/25(口頭)24pPSA-32
85. 福岡健太、森田悠介、吉岡孝高、五神真  
希釈冷凍機を用いた亜酸化銅励起子の BEC 転移の系統的観測  
日本物理学会春季大会、関西学院大学、2012/3/25(口頭)25aAC-8
86. 富樫康平、乙津聰夫、Jonas Metz、堀越宗一、小芦雅斗、五神真  
冷却原子系の任意散乱長で熱力学決定  
日本物理学会春季大会、関西学院大学、2012/3/27(口頭)27pAB-9
87. 佐藤正明, 神田夏輝, 樋口卓也, 鈴木隆行, 小西邦昭, 吉岡孝高, 三沢和彦, 五神真  
三回対称結晶を用いたベクトル整形光パルスによる偏光制御 THz 波発生  
日本物理学会春季大会、関西学院大学、2012/3/27 口頭)27pAD-3

(国際)

1. N. Naka, J. Omachi, and M. Kuwata-Gonokami, "Suppression of electron-hole-droplet phase in diamond by strain field", 3rd International Conference on Spontaneous Coherence in excitonic Systems, Les Houches, France, (17, Jan., 2007)
2. K. Konishi, T. Sugimoto, K. Jefimovs, Y. Svirko, and M. Kuwata-Gonokami, "Effect of Surface Plasmon Polaritons on Optical Activity in Chiral Metal Nanogratings.", Conference on Lasers and Electro-Optics / Quantum Electronics and Laser Science Conference, Baltimore, (11, May 2007)
3. K. Misawa, T. Kojiri, and R. Lang, "Femtosecond wave-packet interferometry in all-trans retinal analyzed by high-performance liquid chromatography," the International Quantum Electronics Conference 2007, Munich, (June, 2007)
4. K. Yoshioka, T. Ideguchi, and M. Kuwata-Gonokami, "Density Dependent Particle Loss of Spin-forbidden Excitons in Cuprous Oxide Observed by Excitonic Lyman Spectroscopy," PLMCN8: 8th International Conference on physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures, Komaba Research Campus (8, April 2008).
5. N. Kanda, K. Konishi and M. Kuwata-Gonokami, "Enhanced Optical Activity of Metal Chiral Gratings with Complimentary Double-layered Structures in the Terahertz Region," PLMCN8: 8th International Conference on physics of

Light-Matter Coupling in Nanostructures, Komaba Research Campus (10, April 2008).

6. N. Kanda, K. Konishi, and M. Kuwata-Gonokami, "Enhanced optical activity of a Terahertz wave with complimentary double-layered metal chiral gratings," CLEO/QELS 2008, San Jose (6, May 2008).
7. E. Chae, K. Yoshioka, T. Ideguchi, N. Naka, and M. Kuwata-Gonokami, "Thermal distribution of Cu<sub>2</sub>O paraexcitons in a strain-induced trap probed by excitonic Lyman spectroscopy," CLEO/QELS 2008, San Jose (8, May 2008).
8. T. Ideguchi, T. Sakamoto, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami, "Coherent control of resonant two-photon excitation of excitons in Cu<sub>2</sub>O by phase modulated pulses," CLEO/QELS 2008, San Jose (8, May 2008).
9. M. Katsuragawa and K. Misawa, "Full Characterization of an Ultrahigh-Repetition-Rate Train of Ultrashort Pulses Generated with Phase-Coherent Raman", CLEO/QELS 2008, San Jose (May 2008).
10. K. Horikoshi and K. Misawa, "Adaptive Control of Transient Vibrational Wave-Packet Motion by Using Chirped Pulse Sequences", CLEO/QELS 2008, San Jose (May 2008).
11. T. Ideguchi, T. Sakamoto, K. Yoshioka and M. Kuwata-Gonokami, "Suppression of heating in ultracold excitons at high densities in Cu<sub>2</sub>O by optical phase manipulation," NOEKS9: The International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors, Klink, Germany (28, May 2008).
12. K. Horikoshi, T. Tsukamoto, K. Misawa, "Vibrational wave-packet control in cyanine dye molecules with free and restricted conjugated backbones," CLEO/Europe-EQEC 2009, EG2.2 (17, June 2009)
13. N. Naka, T. Kitamura, J. Omachi and M. Kuwata-Gonokami, "Low-temperature excitons produced by two-photon excitation in high-purity diamond crystals," EXCON'08: The 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Kyoto (24, June 2008).
14. E. Chae, K. Yoshioka, T. Ideguchi, N. Naka, and M. Kuwata-Gonokami, "Cu<sub>2</sub>O paraexcitons in a strain-induced trap probed by excitonic Lyman spectroscopy," EXCON'08: The 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Kyoto (24, June 2008).
15. T. Sakamoto, J. Yoshitake, K. Yoshioka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, M. Kuwata Gonokami, "Quantum Confined Stark Effect of excitons in a ZnO/ZnMgO single quantum well and density dependent screening of the internal electric field," EXCON'08: The 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Kyoto (24, June 2008).
16. K. Konishi, B. Bai, X. Meng, P. Karvinen, J. Turunen, Y. Svirko, M. Kuwata-Gonokami, "Enhanced Optical Activity of On-Waveguide Planar Chiral Photonic Crystals," Metamaterials'2008: 2<sup>nd</sup> International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics, Pamplona, Spain (September 2008).

17. J. Omachi, N. Naka, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami, „Formation control of electron-hole droplets in diamond by a weak pulse injection,” PIPT: 3rd International Conference on Photo-Induced Phase Transitions and Cooperative Phenomena, Osaka (November 2008).
18. N. Kanda, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, ”Photo-controlled Terahertz Optical Activity in Metal Chiral Gratings,” Nanometa 2009: 2nd European Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials, Seefeld (Tirol), Austria (8, January 2009).
19. N. Kanda, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, “Active Control of Terahertz Optical Activity by Photo-Excitation of Metal Chiral Gratings”, CLEO/IQEC 2009: The Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference, Baltimore, USA (4, June, 2009)
20. M. D. Fraser, M. Kuwata-Gonokami, S. Höfling, A. Forchel, Y. Yamamoto, “Rotation of a two-dimensional exciton-polariton condensate”, The 18th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-18), E3b, p.145, Kobe, Japan (21, July, 2009)
21. Masaaki Sato, Takayuki Suzuki, and Kazuhiko Misawa, “Arbitrary Vector Shaping of Femtosecond Pulses by a Phase-locked Mach-Zehnder Interferometer”, CLEO Pacific-Rim 2009, (Aug. 2009)
22. K. Konishi, M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Arakawa and M. Kuwata-Gonokami, “Circularly-Polarized Photoluminescence from Semiconductor Planar Chiral Photonic Crystals”, ISQNN2009, Komaba, Japan (20, Nov. 2009)
23. K. Konishi, M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Arakawa, and M. Kuwata-Gonokami, “Circularly-Polarized Light Emission from Semiconductor Planar Chiral Photonic Crystals”, Conference on Lasers and Electro-Optics / Quantum Electronics and Laser Science Conference, CLEO/QELS:2010, San Jose, California, (17, May, 2010)
24. N. Kuse, M. Kuwata-Gonokami, Y. Nomura, S. Watanabe, and Y. Kobayashi, “Experimental Study of Pulse Evolution in a 30-fs Mode-Locked Yb-Fiber Oscillator”, Conference on Lasers and Electro-Optics / Quantum Electronics and Laser Science Conference, CLEO/QELS:2010, San Jose, California, (21, May, 2010)
25. K. Yoshioka, T. Ideguchi, and M. Kuwata-Gonokami, “Quantum mechanical inelastic collision of cold paraexcitons in cuprous oxide” International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials, EXCON'10, Brisbane, Australia, (13, July, 2010) (oral)
26. J. Omachi, T. Suzuki, N. T. Long, K. Yoshioka, N. Naka, and M. Kuwata-Gonokami, “Mid-infrared dielectric response of electron-hole droplets in diamond” International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials, EXCON'10, Brisbane, Australia, (13, July, 2010)
27. N. Kanda, P. Obraztsov, Y. Okane, T. Higuchi, K. Konishi, A. V. Tyrnina, Yu. P. Svirko, and M. Kuwata-Gonokami, “Terahertz Emission from Nano Carbon and

Graphite Films”, Nanocarbon Photonics and Optoelectronics, NPO2010, National Park Koli, Finland, (3, Aug., 2010)

28. Y. Nagashima, T. Suzuki, S. Terada, A. Iwata, S. Tsuji, and K. Misawa , “Nonlinear Raman spectrometry of halogenated volatile anesthetics”, XII International Conference on Laser Applications in Life Sciences 2010, Oule, Finland, (11, June, 2010)
29. T. Suzuki, V. Nuzzo, K. Misawa, and E. Mazur, “Heterodyne-CARS spectroscopy for biological applications”, 3rd International Symposium on International Training Program, Southampton, UK (26, Novenber, 2010)
30. K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, “Circularly-Polarized Photoluminescence from Semiconductor Chiral Photonic Nanostructures” NANOMET2011, Tirol, Austria, (5, Jan., 2011)
31. K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami “Quantum degenerate state of trapped 1s paraexcitons in Cu<sub>2</sub>O at sub-Kelvin temperature” 5th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems, ICSCE-5, Ecole Polytechnique Federale de Lausanne, Switzerland, (7, Feb., 2011)
32. T. Higuchi, N. Kanda, H. Tamaru, and M. Kuwata-Gonokami, “Optical Control of Magnetization by Linearly Polarized Laser Pulses in a Crystal with Three-Fold Symmetry”, CLEO Europe - EQEC 2011, ICM convention center Munich, Germany, (26, May, 2011)
33. N. Kanda, T. Higuchi, H. Shimizu, K. Konishi, K. Yoshioka, M. Kuwata-Gonokami, “All-optical coherent manipulation of magnetization vector in an antiferromagnetic NiO crystal”, CLEO Europe - EQEC 2011, ICM convention center Munich, Germany, (26, May, 2011)
34. N. Kanda, T. Higuchi, H. Shimizu, K. Konishi, K. Yoshioka and M. Kuwata-Gonokami, “Optical manipulation of magnetization vector in multi-dimensional space”, Nonlinear Optics 2011, Kauai, Hawaii, (19, July, 2011)
35. T. Higuchi, N. Kanda, H. Tamaru, and M. Kuwata-Gonokami, “Selection Rules for Light-Induced Magnetization through Stimulated Raman Process”, Nonlinear Optics 2011, Kauai, Hawaii, (19, July, 2011)
36. Takayuki Suzuki, and Kazuhiko Misawa, "Extreme Nonresonant Background Reduction for Rapid Phase-modulation CARS Spectroscopy by Phase Sensitive Detection" CLEO Pacific-Rim 2011, 3420-CT-1 (2011)

ポスター発表 (国内会議 20 件、国際会議 28 件)

(国内)

1. 小尻尚志, 三沢和彦, 覧具博義, 「フェムト秒位相ロックパルス対によるレチナールの光異性化反応」, 光物性研究会, 大阪市立大学, 2006-12-08
2. 井手口拓郎, 坂本歳幸, 吉岡孝高, 五神真, 「波形制御光パルスによる Cu<sub>2</sub>O 励起子 2 光子共鳴励起の制御」, 日本物理学会秋季大会, 北海道大学, 2007-09-23
3. 中暢子, 大間知潤子, 坂本歳幸, 五神真, 玉作賢治, 石川哲也, 角谷均, 「深紫外域に

おける高純度ダイヤモンドの発光特性」，日本物理学会年次大会，近畿大学，2008-03-26

4. 堀越建吾，三沢和彦，「波形整形光パルスによる分子振動波束のコヒーレント制御」，電気通信大学・東京農工大学合同シンポジウム，東京農工大学，2007-12
5. 小西邦昭，野村政宏，熊谷直人，渡邊克之，岩本敏，荒川泰彦，五神真，「半導体キラルナノ格子を用いた円偏光発光素子」，ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム ナノ、量子、IT 融合によるイノベーション創出～ナノ量子情報エレクトロニクス連携研究拠点の新展開～，東大小柴ホール，2009-04-29
6. 神田夏輝、小西邦昭、五神真，「人工キラル格子の光励起による三次元キラリティの発現」ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム ナノ、量子、IT 融合によるイノベーション創出～ナノ量子情報エレクトロニクス連携研究拠点の新展開～，東大小柴ホール，2009-04-29
7. 長島優，鈴木隆行，寺田純雄，三沢和彦，「位相コントラスト増強による 単一ビーム CARS 分光法を用いた 吸入麻酔薬のラマンスペクトルの測定」，第3回分子科学討論会 1P089，名古屋，2009-9-21
8. 鈴木隆行，「位相制御光パルスによる先進的分光法と分子操作」，日本学術会議主催 公開シンポジウム「先端フotonicsの展望」，日本学術会議講堂，2010-04-09
9. 鈴木隆行，「燐光過程のコヒーレント制御に向けた紫外パルスの発生と制御」，特定領域研究「光-分子強血同反応場の創成」領域および新学術領域研究「半導体における動的相関電子系の光科学」領域合同シンポジウム，日本科学未来館，2010-05-27
10. 吉岡孝高，蔡恩美，五神真，「非弾性散乱下における励起子 BEC 状態の観測」，CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域 第3回 公開シンポジウム，日本未来科学館，2010-11-26
11. 神田夏輝，樋口卓也，小西邦昭，吉岡孝高，五神真，「偏光ねじれダブルパルスによる光誘起磁化の角運動量選択的制御」，CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」，研究領域第3回 公開シンポジウム，日本未来科学館，2010-11-26
12. 佐藤正明，鈴木隆行，三沢和彦，「光学活性誘起のための、位相変調ねじれ偏光パルスの生成」，CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域 第3回 公開シンポジウム，2010-11-26
13. 朴仁用、吉岡孝高、五神真，”再励起光照射による亜酸化銅の励起子増強効果”、ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム，東京大学武田先端知ホール，2010-12-22
14. 鈴木隆行，長島優，三沢和彦，「位相制御単一ビーム CARS 顕微分光の開発とその応用」，CREST「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」研究領域 第3回 公開シンポジウム，2010-11-26
15. 小西邦昭，野村政宏，熊谷直人，岩本敏，荒川泰彦，五神真，「半導体キラルナノ周期構造を用いた円偏光発光制御」，ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム，東京大学武田先端知ホール，2010-12-22

16. 織田拓磨, 吉岡孝高, 竹田研爾, 五神真, 「單一ドナー・アクセプター対の強度相関測定」, ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム, 東京大学武田先端知ホール, 2010-12-22
17. 田島隼人, 福原いづみ, 三沢和彦, 「ポンププローブ分光と酸素濃度測定による光合成初期電荷分離過程の観測-酸素濃度測定による電荷分離過程の観測」, 日本物理学会 2011 年 年次大会, 20011-03-25
18. 野口大輔, 三沢和彦, 「フェムト秒パルスで生成した核波束の運動シミュレーション」, 日本物理学会 2011 年 年次大会, 20011-03-25
19. 挟間優治, 中暢子, 五神真, 田中耕一郎, 「共鳴励起下でのダイヤモンドの励起子発光」, 日本物理学会第 66 回年次大会, 新潟大学五十嵐キャンパス, 2011-03-25
20. 神田夏輝, 小西邦昭, 五神真, 「キラル格子における光誘起 THz 光学活性」, 第 5 回 DYCE シンポジウム, 京都大学化学研究所, 2011-06-13,14

(国際)

1. K. Yoshioka, T. Ideguchi, and M. Kuwata-Gonokami, "Laser Based Continuous-Wave Excitonic Lyman Spectroscopy of Spin-Forbidden Excitons in Cu<sub>2</sub>O", CLEO/QELS, Baltimore, (May, 2007)
2. J. Omachi, N. Naka, and M. Kuwata-Gonokami, "Dynamics of an electron-hole system in diamond under a strain field", Fundamental Optical Processes in Semiconductors FOPS , Montana (26, July, 2007)
3. J. Omachi, N. Naka, K. Yoshioka and M. Kuwata-Gonokami, "Luminescence Enhancement of Electron-hole Droplets in Diamond by a Weak Pulse Injection," PLMCN8: 8th International Conference on physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures, Komaba Research Campus (9, April 2008).
4. T. Ideguchi, T. Sakamoto, K. Yoshioka and M. Kuwata-Gonokami, "Selective Generation of Cold Orthoexcitons in cuprous Oxide Using Phase Modulate Femtosecond pulses," PLMCN8: 8th International Conference on physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures, Komaba Research Campus (9, April 2008).
5. K. Yoshioka, T. Ideguchi, and M. Kuwata-Gonokami, "Evaluation of density-dependent lifetime of 1s paraexcitons in Cu<sub>2</sub>O by cw laser based excitonic Lyman spectroscopy," CLEO/QELS 2008, San Jose (7, May 2008).
6. J. Omachi, N. Naka, K. Yoshioka, and Makoto Kuwata-Gonokami, "Enhanced formation of electron-hole droplets in diamond by a weak pulse injection," CLEO/QELS 2008, San Jose (7, May 2008).
7. J. B. Héroux and M. Kuwata-Gonokami, "Influence of the Pump Excitation Wavelength on the Efficiency of Terahertz Emission from InAs by Photo-Dember Effect," NOEKS9, Klink, Germany (7, May 2008).
8. N. Naka, T. Kitamura, J. Omachi, and M. Kuwata-Gonokami, "Generation of low-temperature excitons in diamond using a two-photon absorption process,"

NOEKS9, Klink, Germany (28, May 2008).

9. K. Yoshioka, T. Ideguchi and M. Kuwata-Gonokami, "Density-dependent loss of paraexcitons in cuprous oxide probed by excitonic Lyman spectroscopy," NOEKS9, Klink, Germany (28, May 2008).
10. T. Sakamoto, J. Yoshitake, K. Yoshioka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, M. Kuwata-Gonokami, "Quantum Confined Stark Effect and screening of the internal electric field in a ZnO/ZnMgO single quantum well structure," NOEKS9, Klink ,Germany (28, May 2008).
11. K. Misawa and K. Horikoshi, "Real-time wave-packet engineering using a sensitive wave-packet spectrometer and a pulse-shaper", XVI International Conference on Ultrafast Phenomena, MIa2, Stresa (June 2008).
12. N. Kanda, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, "Enhancement of terahertz optical activity with photo-excitation in metal chiral gratings," iNow 2008: International Nano-Optoelectronics Workshop 2008, Univ. of Tokyo (5, August 2008).
13. T. Sakamoto, J. Yoshitake, K. Yoshioka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, M. Kuwata-Gonokami, "A High Density Effect on Exciton Luminescence in a ZnO/ZnMgO Single Quantum Well," iNow 2008: International Nano-Optoelectronics Workshop 2008, Univ. of Tokyo (5, August 2008).
14. E. Chae, K. Yoshioka, M. Kuwata-Gonokami, "Uniaxial Stress Dependence of Yellow Series np Excitons in Cu<sub>2</sub>O", CLEO/IQEC 2009, Baltimore, USA (2, June, 2009)
15. N. Kanda, K. Konishi and M. Kuwata-Gonokami, "Dynamics of Light-induced Three-dimensional Chirality", International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics 2009, Komaba, Japan (19, Nov. 2009)
16. T. Higuchi, K. Yoshioka, Y. Segawa, A. Tsukazaki, M. Kawasaki and M. Kuwata-Gonokami, "Effect of interface roughness to the photoluminescence line shape of ZnO quantum wells" International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics 2009, Komaba, Japan (18, Nov. 2009)
17. M. Sato, T. Suzuki, and K. Misawa, "Arbitrary vector field shaping of femtosecond pulses by a phase-locked Mach-Zehnder interferometer", The 40th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, Snowbird (7, Jan. 2010)
18. T. Tsukamoto, K. Horikoshi, and K. Misawa, "Vibrational wave-packet control in cyanine dye molecules with free and restricted conjugated backbones", The 40th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, Snowbird (7, Jan. 2010)
19. Masaaki Sato, Takayuki Suzuki, and Kazuhiko Misawa, "Full Control of Polarization Shaped Pulses Using a Phase-Locked Mach-Zehnder Interferometer" 17th International Conference on Ultrafast Phenomena, ME32 (2010)

20. N. Naka, Y. Hazama, T. Kitamura, J. Omachi, M. Kuwata-Gonokami, and H. Stolz, "Photoluminescence strudy on excitonic fine structure in diamond", NOEKS10, Paderborn, Germany (17, Aug. 2010)
21. K. Yoshioka, I. Park, and M. Kurata-Gonokami, "Photocconductivity of Cu<sub>2</sub>O in the presence of high density 1s paraexcitons" , NOEKS10, Paderborn, Germany (17, Aug. 2010)
22. J. Omachi, T. Suzuki, K. Kato, K. Yoshioka, N. Naka, and M. Kuwata-Gonokami, "Observation of polyexcitons in diamond" , NOEKS10, Paderborn, Germany (17, Aug. 2010)
23. N. Kanda, K. Konishi, M. Kuwata-Gonokami, "Dynamics of Photo-induced Terahertz Optical Activity in Metal Chiral Gratingsl" NANOMETA2011, Tirol, Austria, (4, Jan., 2011)
24. K. Yoshioka, E. Chae, and M. Kuwata-Gonokami, "Stability of Bose-Einstein condensation of dark excitons in cuprous oxide" ERATO Macroscopic Quantum Control Conference on Ultracold Atoms and Molecules, UCAM2011, University of Tokyo, Japan (24, Jan., 2011)
25. J. Li, T. Higuchi, N. Kanda, K. Konishi and M. Kuwata-Gonokami, "Enhancement of coherent magnetic dipole radiation by cavity effect in the terahertz regime", Nonlinear Optics 2011, Kauai, Hawaii, (19, July, 2011)
26. M. Kuwata-Gonokami, "Observation of spontaneous Bose-Einstein condensation and relaxation explosion of excitons at sub-Kelvin temperatures", Bose-Einstein Condensation 2011 Frontiers in Quantum Gases, Spain, (13, Sep., 2011)
27. Kazuhiko Misawa, Yu Nagashima, Takayuki Suzuki, and Sumio Terada, "Heterodyne CARS Measurement of Inhalational Anesthetic Molecules Using Adaptively Phase-Modulated Femtosecond Pulses" CLEO/Europe-EQEC 2011, EG.P.4 (2011)
28. T. Higuchi, H. Tamaru, and M. Kuwata-Gonokami,  
Ultrafast coherent manipulation of angular momentum via tuning the envelope  
of a light pulse,  
Gordon Research Conference on Ultrafast phenomena in cooperative systems,  
Hotel Galvez, Texas, ((19-24) Feb., 2012) (poster)

(4)知財出願

①国内出願 (0 件)

②海外出願 (0 件)

③その他の知的財産権

(5)受賞・報道等

①受賞

1. Best Poster Award (International Nano-Optoelectronics Workshop 2008): T. Sakamoto et al.(上記ポスター発表 13).

2. 松尾学術賞(2010年11月) 五神真 「レーザー一分光法による固体における光量子物理学の研究」
3. 平成23年度日本物理学会若手奨励賞受賞 吉岡孝高助教(領域5)(2011年11月)
4. Takuya Higuchi, Young Investigator Award, Gordon Research Conference (Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems 2012)
  - ②マスコミ(新聞・TV等)報道
1. 日経BP社 バイオテックジャパン 2010年12月16日  
「東京農工大学、東京医科歯科大学、生きた神経細胞内で麻酔ガスの分子を検出することに成功」
2. 日刊工業新聞 2010年12月27日  
「東京農工大など、生きた神経細胞内で麻酔ガスの分子を検出」
3. 科学新聞 2011年1月1日  
「麻酔の作用機構解明へ新手法 東京農工大グループ」
4. 日刊工業新聞 2011年2月2日  
「人工的な周期構造 円偏光発光素子を開発 東大 半導体プロセスで小型化」
5. 科学新聞 2011年2月18日  
「新原理 円偏光発光素子 半導体プロセスで作製 東大」
6. プレス発表 東京大学大学院理学系研究科 2011年6月1日  
「励起子のボース・アインシュタイン凝縮体への転移を観測することに成功」  
<http://www.s.u-tokyo.ac.jp/ja/press/2011/14.html>

概要:理論予想から約50年を経過しながらも観測されるに至らなかった、半導体における励起子のボース・アインシュタイン凝縮状態への転移を明瞭に捉えることに成功した。これは超伝導や超流動現象と同様に、電子と正孔の集団において、自発的な対称性の破れによってマクロな量子力学的状態が生じることを実証したものである。半導体においては多数の電子と正孔が複雑に相互作用をしており、それらが様々なデバイスの機能を担っている。今回の研究により、その電子と正孔の振る舞いにおいてもその背後で「量子統計性」という物理学の基礎原理が重要な役割を担っていることが明確に示された。これは固体物理学の長年の懸案を解決した重要な成果である。
7. 日刊工業新聞 2011年6月1日  
「ボース・アインシュタイン凝縮体 半導体励起子が転移 東大が初観測」
8. 科学新聞 2011年6月17日  
「励起子のボース・アインシュタイン凝縮体への転移 五神・東大教授らの研究グループが観測に成功」
9. 科学新聞 2011年7月1日  
「磁化ベクトルを光で制御 東大・五神教授らの研究グループ成功」
10. 日刊工業新聞 2011年7月21日

「物質中の磁化振動方向 光で制御に成功」

③その他  
なし

(6)成果展開事例

①実用化に向けての展開

②社会還元的な展開活動

- ・人工キラルナノ格子の偏光特性評価のために作製した、入射角自動制御可能な偏光解析装置を用いて、ある企業から依頼されたナノ構造素子の偏光特性解析を行っている。
- ・試料評価用に構築したテラヘルツ透過スペクトル測定装置を用いて、ある企業から依頼されたSiに代わる THz 領域用光学素子材料の透過測定評価を行った。

§ 6 研究期間中の主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

該当無し

## § 7 結び

本CREST研究では、近年のレーザー技術の進歩を捉え、レーザー光の周波数やパルス幅の精緻な制御に加え、パルスの振幅、位相、偏光さらにはビームの空間形状を自在に制御することで、光を用いた物質の新たな制御法を見いだし、またそこに新規光機能を発現させることを狙いとした研究を進めた。またこの研究を通じて、先端的なレーザー技術のノウハウを固体物性研究などの応用の現場に持ち込むことが大きな進展につながるということを実証し、光源技術そのものにも立ち入りながら分光研究を進めるというスタイルを確立することも狙いとした。

この2つの目標を達成するために、固体物性研究において実績をもつ東京大学の五神研究室と極短パルス光の発生・制御技術開拓において実績をもつ東京農工大学の三沢研究室を連携させて進めることとした。この連携において、物質科学研究とレーザー技術研究を高度なレベルで融合させた研究を進めることができた。

たとえば、波形制御パルス2光子共鳴励起による極低温励起子の直接生成の実験は、本研究の開始後直ちに、農工大で培った波形制御技術が東京大学の研究に導入されたものである。この結果により、励起子が極低温の状態において $10^{16}\text{cm}^{-3}$ の密度まで安定に存在することが確認された。これは励起子 BEC の検証という大きな成果につながった。バルク半導体における励起子 BEC の検証は半世紀に及ぶ懸案の一つであったが、これまで多くの実験研究が行われてきたにもかかわらず、決定的な実験結果を得るには至っていなかった。本研究においては、高感度かつ高精度の分光検出法を用いてこの問題に取り組み、励起子 BEC 到達の条件を定量的に割り出し、最終的にサブケルビン以下に冷却した結晶に3次元トラップを形成することで励起子 BEC への転移を明確に捉えることに成功した。東京大学では、人工キラル格子構造において以前に見いだした巨大旋光性に関する研究を提案した。本研究において、まず金属人工キラル格子構造における旋光性発現の機構を表面プラズモンの励起と人工構造の対称性を組み合わせて解明した。さらに、誘電体導波路を用いた構造に発展させ、旋光性の巨大化に成功した。その発展として、構造内部に強い円偏光非対称性をもつ真空場を発生させる研究を進め、量子ドットの自然放出を円偏光化することに成功している。また、光励起キャリアの分布を、キラリティーを有する形状に整形することによって、アキラルな結晶に旋光性を動的に誘起するという実験を計画段階で提案していた。

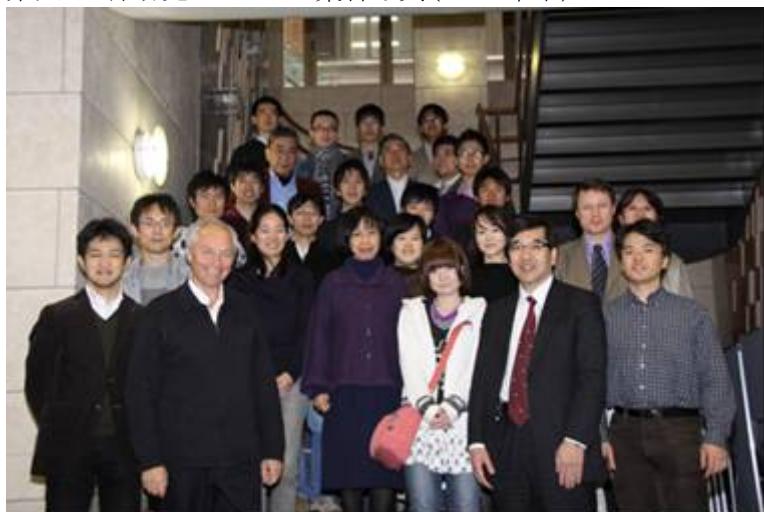
農工大グループの中心課題の一つである、ねじれ偏光パルスの発生については、両グループメンバー全員で議論を進めた。この議論は、東京大学におけるねじれダブルパルスを用いた磁化のベクトル制御の手法開発にとって非常に役立った。この議論をもとに東京大学では、偏光自由度を含む時間波形制御パルスの効果を考える際の基礎となる、誘導ラマン過程などのコヒーレント2次光学過程における光と物質の角運動量の授受についての一般論を構築することに成功した。現在、この実験技術と新しい理論を組み合わせた応用実験を、東大グループと農工大グループが共同で進め、順調に進んでいる。

光制御された物質相の探求と高度なレーザー技術の開発と普及という本研究で掲げた2つの狙いは、当初の計画以上に大きな成果をもたらしたといえる。この活動を通じて、東京大学と農工大学のグループは定期的に研究ミーティングを行い、相互の大学院学生の育成においても大きな効果がえられた。卒業生は現在、国内外の産学様々な場面で活躍している。

現在、物性研究室でレーザーは広く普及し、フェムト秒ポンププローブ分光などの実験が様々な物質系に対しておこなわれるようになった。しかしながら多くの場合、レーザー光源は所与のものとして、光源装置を販売する業者の技術サポートに頼って実験を行うのが普通となってしまっている。本研究の提案に際し、真にオリジナルな研究を進めるためにはこのスタイルを改めるべきであることを宣言し、本研究でそれを実践することを提案した。東京大学において、卒業論文研究課題として、自作のモード同期ファイバーレーザーとその増幅器の作製を取り上げ、修士論文課題では、その光源を用いて、受動共振器によるパルス増幅によるテラヘルツ光源開発に挑戦した。最近この成果として、レーザー光電子分光用の狭帯域、高平均出力の紫外パルス光源の発生に成功した。この光源は光電子分光実験装置に組み込んで利用する計画である。このような研究の発展として、現在五神研究室を中心として、東京大学の本郷キャンパスに共同利用型の先端コヒーレント設備の開発を進めている。これは、文部科学省最先端研究基盤事業「コヒーレント光科学研究基盤の整備」のもとで、理化学研究所と共同で進めている。

このように本プロジェクトの研究課題を狙い通りに進めることができたのは、東京大学と農工大グループの連携による相乗効果がうまく発揮できたためである。このような連携の仕組みとしてCREST 制度は非常に貴重であった。実際に農工大グループは独自に開発した波形制御の光学系を東大のラボに移設し、農工大の大学院生がその期間東大に常駐して実験を行っている。このような連携により、世界にさきがけて迅速に成果を出すことができている。これらの共同研究が、このプロジェクトの開始当時から在籍した両グループの大学院生が中心となって企画立案され進められていることも特筆すべきことである。これは CREST を通した人材育成として極めて効果的であった。CREST 終了後もこの体制を維持すると共に、このような連携融合による人材育成の仕組みをより大きく発展させるようなアクションをとっていきたいと考えている。

東大・五神研究室メンバー集合写真(2010 年末)



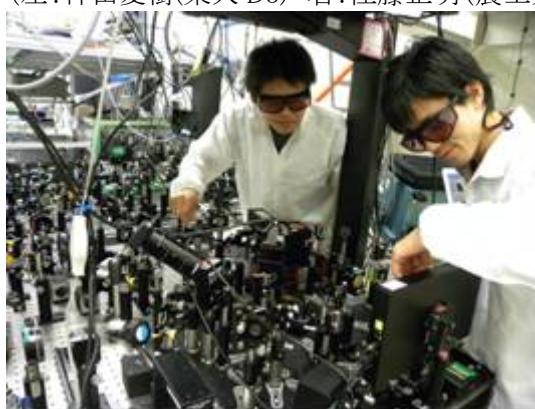
農工大・三沢研究室ゼミ合宿集合写真(2011 年)



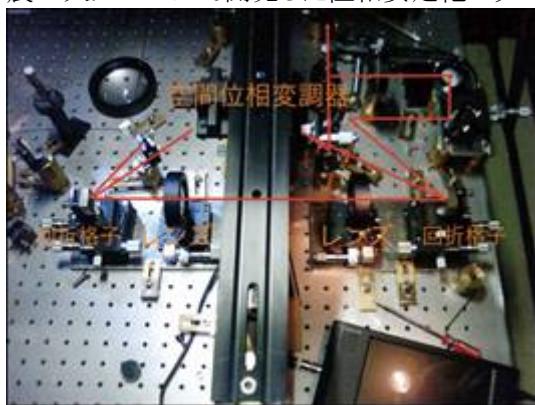
CREST ミーティング風景(2011 年)



東大グループ・農工大グループ連携実験風景(2011 年)  
(左:神田夏樹(東大 D3) 右:佐藤正明(農工大 D2))



農工大グループで開発した位相安定化マッハツェンダ型偏光整形装置



東大グループで自作した固体レーザー

