

東京農工大学
工学部 物理システム工学科
教授

覧具 博義

「光・電子波束エンジニアリング」

研究期間：平成11年11月1日～平成17年3月31日

目次

1. 研究実施の概要	1
2. 研究構想	5
3. 研究成果	
3. 1 チーム全体の成果	11
3. 2 フェムト秒量子波束グループ/量子構造材料グループ	
3. 2. 1 波束制御エンジニアリング	
3. 2. 1. 1 フェムト秒量子波束グループの主な研究内容	13
3. 2. 1. 2 光波束とスペクトル位相	15
3. 2. 2 フェムト秒位相制御光源	
3. 2. 2. 1 フーリエ合成	16
3. 2. 2. 2 全体構成	16
3. 2. 2. 3 位相変調器	17
3. 2. 2. 4 位相解析器	18
3. 2. 2. 5 位相変調パルスの生成	20
3. 2. 3 チャープ可変装置	
3. 2. 3. 1 背景	22
3. 2. 3. 2 フェムト秒チャープ可変装置	22
3. 2. 3. 3 チャープ可変装置の性能評価	24
3. 2. 4 ラピッドスキャン型分光測光装置による波束の実時間観測	
3. 2. 4. 1 背景・目的	25
3. 2. 4. 2 開発した装置の概要	26
3. 2. 4. 3 DTTCIの分子核波束の測定	27
3. 2. 5 量子波束の光位相制御	
3. 2. 5. 1 波動関数の重ね合わせと量子波束	28
3. 2. 5. 2 量子波束への光位相の書き込み、読み出し	28
3. 2. 5. 3 チャープ依存ダイナミクス	31
3. 2. 5. 4 2 + 1 準位モデル	32
3. 2. 5. 5 1 + 2 準位におけるコヒーレント相互作用	33
3. 2. 6 フェムト秒位相分光法	
3. 2. 6. 1 光の位相検出	35
3. 2. 6. 2 フェムト秒偏光分割サニャック干渉計	36

3.2.6.3	半導体量子構造材料の非線形位相シフト	38
3.2.7	単一ショット位相測定	
3.2.7.1	スペクトル領域干渉計	40
3.2.7.2	単一ショット測定	43
3.2.8	非対称階段型量子井戸構造	
3.2.8.1	基本構造	47
3.2.8.2	選択則の改変	48
3.2.8.3	C-type ASQWの最適設計	49
3.2.8.4	非対称量子井戸構造の設計、結晶成長	50
3.2.8.5	光変調反射	52
3.2.9	得られた研究成果の評価及び今後期待される効果	54
3.3	分子核波束グループ	
3.3.1	光位相による分子核波束の精密制御	56
3.3.1.1	HgArファン・デル・ワールス (vdW) 錯体	56
3.3.1.2	ヨウ素分子	61
3.3.2	光位相による光電子波束の制御	64
3.3.2.1	キセノン原子の5光子イオン化によって発生する光電子波束の位相	64
3.3.3	得られた研究成果の評価及び今後期待される効果	70
4.	研究実施体制	
(1)	体制	73
(2)	メンバー表	74
5.	研究期間中の主な活動	
(1)	ワークショップ・シンポジウム等	77
6.	主な研究成果物、発表等	
(1)	発表論文	80
(2)	口頭発表	82
(3)	特許出願	87
(4)	新聞報道等	88
7.	結び	89

1. 研究実施の概要

基本構想

フェムト秒領域の超短光パルスは広範囲の周波数成分の重ね合わせからなっており、光の波束、すなわち光波束と見なすことができる。本プロジェクトは、光パルスの内部位相を任意に制御し、それを記録し、検出して、フォトニクスの超高速性をより多様に展開する新しい技術のコンセプト「波束制御エンジニアリング」を提唱し、その実現を目指した。特に、光情報伝送技術への応用を志向して、超短光パルスの内部位相を制御することによって単一の光パルスに複数ビットの情報を担わせることにより、従来の時分割多重と周波数分割多重を融合させた、より自由度の高い新しい通信方式の可能性を探索した。より具体的には、光パルスと媒質のコヒーレントな相互作用を通じて媒質中に量子波束を励起することによって光位相の制御、検出、記憶、制御などの機能を実現することを目標にし、このための位相制御光源、位相制御デバイス、位相検出分光技術などの要素技術の開発を行い、さらに、凝集系、特に半導体ナノ構造における量子波束形成制御の実証を目指した。

また、本プロジェクトは、科学的な理解とともに、着実な技術としての応用可能性を念頭に進めた。このために、特許出願による知的所有権の確保も重視した。その結果、プロジェクト期間中に、6件の特許出願を行い、うち2件は既に成立している。

プロジェクト体制

本プロジェクトは、当初、光波束—量子波束の発生・制御・検出に関わる東京農工大学のグループと、主として半導体ナノ構造の設計・製作を担う日本電気（株）およびフェムト秒テクノロジー共同研究機構（FESTA）のメンバーからなるグループで構成された。さらに平成13年より東北大多元研佐藤幸紀教授のグループが分子系での量子波束のコヒーレント制御の研究で参画した。

研究実施の概要と達成度

上述の光波束と電子波束の相互制御による「量子波束エンジニアリング」の実現を本プロジェクトは以下の5つのサブテーマを通じて追求した。すなわち、1) 内部位相の制御が可能な光パルス光源技術および位相制御デバイスの開発、2) 光波束の内部位相を検出する位相分光技術の開発、3) 量子波束の励起のためのナノ構造媒質の設計・製作・評価、および4) 凝縮媒質中での量子波束の励起・制御・検出の実証、そして、5) 位相緩和の影響が少なく分光学的なデータが豊富なために

量子波束形成とその応用を先行的に実証できると考えられる分子気体における核波束のコヒーレント制御である。以下にそれぞれについて説明する。

1) フェムト秒位相制御光源システムおよび位相制御デバイスの開発

Ti サファイアフェムト秒レーザーに、液晶光変調器を用いた位相変調器、周波数分解光ゲート法を用いた位相解析器を組み合わせたフィードバック制御システムにより、 $0.8\mu\text{m}$ 帯、および $1.1\sim 1.6\mu\text{m}$ 帯可変波長光源を開発した。所望の任意の位相プロファイルを付加できるプログラマブル性が特徴で、安定なルーティン稼働を可能にした。この光源は以下の 2)ないし 4) の研究項目の多くの実施に使用され、プロジェクト目標の達成に大きく寄与した。

パルス内部位相制御としては、「チャープ」制御が応用上重要である。そこで、上述の液晶光変調器に較べて、損傷しきい値が高く高エネルギーパルスの使用が可能でコンパクトなフェムト秒チャープ可変装置を開発した。(特許第 3569777 号) 安定でしかも装置の大幅な小型化を可能にするもので、複数の外部研究機関の要請に応じて技術提携を始めている。

2) 光位相検出分光法の開発

超短光パルスと媒質との相互作用により生じる光パルス内の非線形位相シフトをフェムト秒の時間分解能で精度良く測定する方法として偏光分割フェムト秒サニャック型干渉計を開発した。極めて高安定で、従来方式に較べて 10^4 倍程度という大幅な感度向上を達成した。既に特許も成立しており (特許第 3533651 号)、コンパクトな可搬型なので、領域内の他チームの要請に応じて共同研究にも供している。

従来の光パルス位相測定方法は、上述のサニャック型干渉計も含めて、時間領域での干渉を利用するために、複数の光パルスについて平均化された位相を測定する。通信データのように時系列でランダムに位相データが伝送されてくる場合には、単一の光パルスの位相を測定する必要がある。そこで、スペクトル領域での干渉計とストリークカメラを組み合わせた、単一ショット位相測定方式を開発した。これは、パルスの内部位相のシングルショットでの検出を実証した重要な成果と考えられる。

3) 量子波束励起のための半導体ナノ構造の設計・製作・評価

量子波束形成・制御・検出のための媒質としては、エネルギー準位や波動関数の形状が設計可能な半導体ナノ構造を選択した。特に、高均一な膜厚の成長が可能な半導体量子井戸中の exciton 準位に検討を集中した。

量子波束の形成のためには、単一準位から複数準位への励起により波動関数の重ね合わせ状態を形成する必要があるが、単純な量子井戸構造では、バンド間遷移の

選択則のために、遷移は実質的に単一準位間に限られてしまう。この選択則の改変を実現するために非対称階段型量子井戸 (Asymmetric Stepped Quantum Well: ASQW) を提案し、界面を単原子層レベルで平坦化した ASQW 構造を製作した。試作した構造は、変調反射分光法で評価を行い、設計で意図した遷移選択則の改変が実現されていることを実証した。この ASQW 構造はテラヘルツ波発生などへの応用も期待される。(特願 2002-276156)

ASQW にチャープを制御したフェムト秒パルス照射したときに形成される量子波束について、下 1 準位上 2 準位の 3 準位系のモデルを用いて詳細に解析し、上 2 準位への励起は、チャープの方向と大きさに応じて大きく偏ることが見いだした。この現象は、位相緩和に対してロバストなチャープ検出方法として期待される。

4) 凝縮系媒質における量子波束の誘起とその検出の実証

位相制御光源を使ってチャープ制御パルスを生成し、シアニン色素分子に照射してその蛍光強度のチャープの大きさおよび方向への依存性を見出した。これは、位相情報を蛍光の振幅に変換する「振幅位相変換機能」と考えることができる。このチャープ依存蛍光効率のダイナミクスを理論解析し、そのエッセンスは下 2 準位上 1 準位の 3 準位系のモデルで説明できることを示した。

位相制御光パルスで媒質中に書き込んだ情報を最大限活用するには、量子波束の波形をできるだけ完全に可視化する技術が必要である。そこで、量子波束の振幅・位相情報を直接読み出す方法として、ラピッドスキャン型分光測光装置(特願 2005-55578)を開発し、エタノール溶液中のシアニン色素分子 DTTCI における量子波束の実時間観測に成功した。

5) 分子気体における核波束のコヒーレント制御

量子波束の生成・制御の原理的な実証は、分光学的なデータが豊富で位相緩和時間が長い分子を媒質として用いることによって先行的に検証できる部分が多い。平成 13 年度からこのプロジェクトに参加した東北大多元研の佐藤幸紀教授のグループは、光位相による分子核波束の精密制御を実証した。まず、光二連パルス間の遅延時間を約 10 アト秒の精度で制御する精密光干渉装置 (アト秒位相制御装置、APM) を実現した。この 10 アト秒精度の遅延時間制御は、世界的にも前例が無い。この APM からの二連パルスを HgAr 分子に照射し、二つのパルスが励起する分子核波束の間ではほぼ 100% のコントラストを有する干渉を観測した。これは、位相制御光源の光位相を、分子内量子波束の位相に転写した結果と解釈でき、分子が光位相の量子メモリとなることを原理実証したものである。(K. Ohmori, Y. Sato, E. E. Nikitin, and S. A. Rice, Phys. Rev. Lett., 91, 243003 (2003)) さらに、I₂ 分子を用いて、第一の光パルスで生成した振動量子波束が、次の光パルスで増幅或

いは減衰するダイナミクス過程を、第三のパルス光を用いて観測し、分子波束制御の経過を実時間観測に成功した。これら波の実験結果は、シミュレーション計算によって詳細に説明された。本研究は光位相による量子波束制御の一つの到達点として、特に多数の分子のアンサンブルに対して高いコントラストの量子干渉を実現した点で、国内外で高く評価され、非常に数多くの招待講演、依頼講演の要請を受けた。

さらに、強いレーザーパルスによる多光子イオン化によって希薄気体中の原子から放出される“光電子波束”の位相制御を追求した。中心波長 400 nm、パルス幅 100 フェムト秒のレーザーパルスを一次光源とし、位相制御光源からの二連パルスをXe原子気体流に集光し、Xe原子の 5 光子イオン化によって放出される光電子強度の位相変調を観測し、位相制御光源が持つ位相特性が、高次の非線形過程によって発生する電子の位相特性に鋭敏に反映されることを示した。

研究成果の意義と自己評価

本プロジェクトで開発した位相制御光源、特に 1.1-1.6 μ m 帯の波長可変光源は、光通信帯波長域であることに加えて、化学・バイオの領域での応用可能性から強い関心を集めており、外部機関との光誘起相転移に関わる共同研究が開始されている。また、コンパクトで安定なチャープ制御デバイスも複数の研究機関から技術提携を求められて対応している。さらに、本プロジェクトで開発発展させた偏光分割フェムト秒サニャック型干渉計は、極めて高安定で、高感度であり、しかもコンパクトな可搬型なので、外部機関の要請に応じて半導体量子ビットに関する共同研究にも供している。これらは、フェムト秒域超高速フォトンクス技術の展開に大きく寄与する成果と考えられる。

当初意図した半導体ナノ構造における量子波束励起と検出についてはプロジェクト期間中には明確な結果を得ることができなかった。しかし、半導体ナノ構造媒質の検討の中で得られた非対称階段型量子井戸構造 (ASQW) は、バンド内遷移を利用するテラヘルツ発生の効率増大などにも有効性を発揮することが期待される。また、凝集系での量子波束の実時間観測の実現は、本プロジェクトの中心課題である「波束制御エンジニアリング」の可能性を実証したものである。その実現にあずかったラピッドスキャン型マルチチャンネル波束測定装置は、今後の量子波束の研究の展開を加速するものと期待される。さらに、パルス位相の単一ショット検出の実現は、フェムト秒領域のパルス分光技術に新しい可能性を示したものと考えられる。

東北大グループにおいて、分子核波束を用いて先行的に実証された、10アト秒精度での量子波束の生成や相互干渉、その検出、さらに光電子波束の制御などの研究成果は、化学反応や分子間エネルギー移動・電子移動等の光位相制御、原子分子系を媒質とする高次非線形過程によって新たな光源（例えば超短パルス光源や軟X線光源）の開発、原子分子を利用する量子メモリーや量子ゲートの開発への展開が見込まれる。

2. 研究構想

基本構想

本プロジェクトは、フェムト秒領域の超短光パルス光の位相を高速かつ高精度に制御し利用する技術を開発することをめざした。フォトンクス技術は電子エレクトロニクス技術の速度限界を打ち破る超高速性が期待されており、その可能性を端的に示すのがフェムト秒からサブ・フェムト秒に至る超短光パルス発生の実現である。光パルスは広範囲の周波数成分の重ね合わせからなっており、光の波束、すなわち光波束と見なすことができる。光パルス幅の短縮は、光波束を構成する周波数スペクトル成分を一定の位相関係に保つ位相制御技術に依っている。特に、周波数成分の(初期)位相を等しく保つことによって、いわゆるフーリエ変換限界（Fourier Transform Limited : FTL）の最短パルスが得られる。

本プロジェクトは、光パルスの内部位相を任意に制御し、それを記録し、検出する技術を実現して、フォトンクスの超高速性をより多様に展開することを目指し、この技術を「波束制御エンジニアリング」と名付けた。より具体的には、光情報伝送技術への応用を志向して、超短光パルスの内部位相を制御することによって単一の光パルスに複数ビットの情報を担わせることにより、従来の時分割多重方式と周波数（波長）分割多重方式にかわる、周波数領域と同時に時間領域での多重化を複合させた、より自由度の高い新しい通信方式を探索する可能性を探索した。そして、その実現を、光パルスと高速に相互作用できる媒質中に量子波束を励起することによって光位相の制御、検出、記憶、制御などの機能を実現することを目指した。媒質としては、既存の電子・光デバイスとの整合性からの観点から、凝集系、特に、エネルギー準位や波動関数の形状が設計可能な半導体ナノ構造における量子波束形成制御の可能性を探索した。

プロジェクト体制

本プロジェクトは、当初、光波束—量子波束の発生・制御検出に関わる東京農工大学工学部のグループと、主として半導体ナノ構造の設計・製作を担う日本電気(株)およびフェムト秒テクノロジー共同研究機構(FESTA)のメンバーからなるグループで構成された。さらに平成13年より東北大多元研のグループが原子分子量子波束のコヒーレント制御の研究で参画してプロジェクト全体の推進加速に寄与してきた。

プロジェクト遂行に当たっての方針

プロジェクト遂行に当たっては、応用技術への展開可能性を念頭に進めた。従来から超高速光技術の研究開発では、チャンピオン・データでの激しい競争が行われている。本プロジェクトは、物理的な理解を確実なものとするとともに、応用技術の側面からも確実なものにすること、すなわち、「できる」とどまらず「使える」技術の実証を目標にした。このために、特許出願による知的所有権の確保を重視した。その結果、プロジェクト期間中に、6件の特許出願を行い、うち2件は既に成立している。

研究開始時に目指した目標

光波束であるフェムト秒光波束とそれが半導体ナノ構造内部に誘起する量子波束の相互作用の実証を目指して、研究目標としては以下を設定した。

1) 位相制御フェムト秒光源システム光位相制御装置の開発

光波束すなわち光超短パルスの内部位相を任意に制御できることを実証するために、プログラマブルな内部位相制御が可能なフェムト秒パルス光源の開発を目標に設定した。0.8 μ mおよび波長可変1.1-1.6 μ m波長域の光源の開発をめざした。さらに位相2次分散(チャープ)制御装置の開発を目標とした。この項目は農工大グループが実施した。

2) 光位相検出分光法の開発

上述の光源と並んで不可欠の要素は、光パルスの内部位相の検出法の開発である。これは、光源出力の位相の確認とともに、媒質中に励起された量子波束を、媒質からの透過光あるいは反射光の内部位相から検出する。

第一ステップとしては、光パルス内部位相と振幅の変化を波長分解・時間分解で検出する偏光分割サニャック型干渉計の開発を、さらに、第2ステップでは、単一パルスを抽出してその周波数成分の位相および振幅を分離して検出する単一ショット位相分光法の開発を目標とした。この項目は農工大グループが実施した。

3) 量子波束励起のための半導体ナノ構造の設計・製作・評価

量子波束形成・制御・検出のための媒質としては、エネルギー準位や波動関数の形状が設計可能な半導体ナノ構造を選択した。量子波束形成を可能にする半導体ナノ構造の設計、試作、および試料の評価を、東京農工大グループが、NEC および FESTA グループと共同で実施した。

4) 凝縮系媒質における量子波束の誘起とその検出の実証

上で開発する光源および検出法を用いて、まず、色素分子における分子核波束生成の実証と検出を目標においた。さらに、半導体ナノ構造における量子波束の形成と検出を目標に設定した。この項目は、農工大グループが実施した。

新展開から生まれた目標、計画の変更・追加

上述のようにこのプロジェクトは当初から凝縮系における光波束と量子波束の相互制御の実証を目指してきた。しかし、量子波束の生成・制御の原理的な実証は、分光学的なデータが豊富で位相緩和時間が長い分子を媒質として用いることによって先行的に検証できる部分が多い。そこで、平成 13 年に東北大多元研で分子核波束の研究を推進している佐藤幸紀研究室の参画を得て、以下のテーマを追加して農工大グループとの相互連携によるプロジェクト推進の加速をはかった。

5) 光位相による原子分子量子波束のコヒーレント制御

研究実施の概要と達成度

1) フェムト秒位相制御光源システムの開発

位相制御光源

液晶光変調器を用いた位相変調器、周波数分解光ゲート法を用いた位相解析器を組み合わせたフィードバック制御システムにより、 $0.8\mu\text{m}$ 帯のフェムト秒パルスの内部位相を、周波数成分ごとに個別に位相制御し、再合成する位相制御光源を開発した。所望の任意の位相プロファイルを付加できるプログラマブル性が特徴であり、安定なルーティン稼働に成功している。さらに、この技術を適用して、 $1.1\sim 1.6\mu\text{m}$ 帯可変波長光源を開発した。位相制御光源は、光通信のみならず、化学・バイオの領域での応用可能性も持つことから強い関心を集めており、外部機関との共同研究が開始されている。

フェムト秒チャープ可変装置

応用面ではチャープ（2次分散）の形の位相制御も有用である。上述の液晶光変調器に較べて、損傷しきい値が高く高エネルギーパルスの使用が可能で、コンパクトなフェムト秒チャープ可変装置を開発した。（特許第 3569777 号）安定でしかも

装置の大幅な小型化を可能にするため、複数の外部機関から技術提供の要請があり対応している。

2) 光位相検出分光法の開発

偏光分割サニャック型干渉計の開発

超短光パルスと媒質との相互作用により生じる光パルス内の非線形位相シフトをフェムト秒の時間分解能で精度良く測定する方法として偏光分割フェムト秒サニャック干渉計を開発した。サニャック干渉計構成を採用したため、極めて高安定で、かつ、従来方式と異なり、干渉計内に可動部分が全くないので、従来方式に較べて 10^4 倍程度という大幅な感度向上を達成した。既に特許も成立しており（特許第 3533651 号）、コンパクトな可搬型なので、外部機関の要請に応じて共同研究に供している。

単一ショット位相分光測定法の開発

周波数分解光ゲート法(FROG)などの従来の光パルス位相測定方法では、複数の光パルスで平均化された位相を測定するにとどまっていた。通信データのように時系列でランダムにデータが伝送されてくる場合には、単一の光パルスの位相を測定する必要がある。そこで、スペクトル領域干渉計とストリークカメラを組み合わせ、単一ショット位相測定方式を開発した。これは、パルスの内部位相のシングルショットでの検出を実証した重要な成果と考えられる。

3) 量子波束励起のための半導体ナノ構造の設計・製作・評価

量子波束形成・制御・検出のための媒質としては、エネルギー準位や波動関数の形状が設計可能な半導体ナノ構造を選択した。当初は量子ドットを想定し試作と光学評価を行った。また、位相緩和の支配因子や速度についての理論解析を海外研究者と共同で行った。その結果はすでに 20 回引用されている。(Uskov et al., Appl. Phys. Lett.)

しかし、量子ドットレーザー特性の解析から、ドットサイズのばらつきがもたらす準位の不均一広がりや光波束照射による励起の不均一性などの問題点が明確になった。このため、プロジェクト後半では、高均一な膜厚の成長が可能な半導体量子井戸中の exciton 準位に検討を集中した。

非対称階段型量子井戸 (ASQW)

量子波束の形成のためには、単一準位から複数準位への励起により波動関数の重ね合わせ状態を形成する必要がある。単純な量子井戸構造ではバンド間遷移の選択則のために、遷移は実質的に単一準位間に限られてしまう。この選択則の改変を実

現するために非対称階段型量子井戸 (Asymmetric Stepped Quantum Well: ASQW) を提案しその最適設計を行った。その結果をもとに、単原子層レベルの膜厚制御、および組成の精密制御を行い、界面を単原子層レベルで平坦化した ASQW 構造を製作した。試作した構造は、変調反射分光法で評価を行い、設計で意図した遷移選択則の改変が実現されていることを実証した。この ASQW 構造はテラヘルツ波発生などへの応用も期待される。(特許出願済み)

ASQW における波束励起の理論解析

ASQW にチャープを制御したフェムト秒パルスを照射したときに形成される量子波束について、下 1 準位上 2 準位の 3 準位系のモデルを用いて詳細に解析した。上 2 準位への励起は、チャープの方向と大きさに応じて大きく偏ることが見いだされた。この現象のキャリア緩和依存性も詳細に検討された。この現象は、位相緩和に対してロバストなチャープ検出方法として期待される。

4) 凝縮系媒質における量子波束の誘起とその検出の実証

量子波束への光位相の書き込み、読み出し

量子波束の誘起とその生成はまず、色素分子を用いた実証した。位相制御光源を使ってチャープ制御パルスを生成し、シアニン色素分子に照射してその蛍光強度のチャープの大きさおよび方向への依存性を測定した。正チャープパルスでは蛍光強度が増加し、負チャープでは減少する。これは、位相情報を蛍光強度に変換する「振幅位相変換機能」と考えることができる。このチャープ依存蛍光効率のダイナミクスを理論的に詳細に解析した。そのエッセンスは、下 2 準位上 1 準位の 3 準位系のモデルで説明できることを示した。この結果は *Applied Physics Letters* に掲載された。

波束の実時間観測

位相制御光パルスで媒質中に記憶させた情報は、量子波束を形成する量子状態の振幅・位相をすべて読み出すことによって完全に復元できる。書き込んだ情報を最大限活用するには、量子波束の波形をできるだけ完全に可視化する技術が必要である。そこで、量子波束の振幅・位相情報を直接読み出す方法として、ラピッドスキャン型分光測光装置(特許出願済み)を開発し、エタノール溶液中のシアニン色素分子 DTTCI における量子波束の実時間観測に成功し、上記の完全復元の可能性を実証した。

5) 光位相による原子分子量子波束のコヒーレント制御

量子波束の生成・制御の原理的な実証は、分光学的なデータが豊富で位相緩和時間が長い分子を媒質として用いることによって先行的に検証できる部分が多い。平

成 13 年度からこのプロジェクトに参加した東北大多元研の佐藤幸紀教授のグループが以下のテーマに取り組んだ。

光位相による分子核波束の精密制御

希薄気体中の孤立分子集団を対象とし、分子内の核波束、即ち分子振動の量子波束を生成し、光位相で制御し、制御の結果を読み出すことを研究課題とした。光二連パルス間の遅延時間を約 10 アト秒の精度で制御する精密光干渉装置（アト秒位相制御装置、APM）を実現した。この光源からの光パルス対によって、二原子分子（HgAr と I₂）における分子振動の量子波束対を発生させ、光パルス間遅延時間制御による量子波束の高精度制御を実現した。HgAr 分子においては、振動固有状態の確率分布制御を前例の無い高い精度で実現した。I₂ 分子においては、第一の光パルスで生成した振動量子波束が、次の光パルスで増幅或いは減衰するダイナミクス過程を、第三のパルス光を用いて観測した。波束制御の経過を実時間観測した例は極めて少ない。

さらに、二連パルスによる分子核波束の生成と制御のシミュレーション計算によって、パルス間遅延時間を、光学サイクルと分子振動サイクルとのさまざまな組み合わせに従って変化させたときに、核波束の空間的な描像がどのように変化するかを視覚化した。このシミュレーションを通じて、光位相が量子位相に転写される過程の具体的な理解が得られた。

光位相による光電子波束の精密制御

このテーマは、強いレーザーパルスによる多光子イオン化によって希薄気体中の原子から放出される“電子波束”の位相制御をめざした。光位相を量子位相に転写するというチーム共通の課題のなかで、“電子波束”制御は、原子分子系あるいは凝縮系を問わず重要な興味ある課題である。中心波長 400 nm、パルス幅 100 フェムト秒のレーザーパルスを一次光源とし、位相制御光源からの二連パルスを Xe 原子気体流に集光し、発生する光電子のエネルギースペクトルを二連パルス間遅延時間の関数として測定した。波長 400 nm の光が Xe 原子をイオン化するには、4 光子以上の吸収が必要である。このような高次の光吸収によって放出される光電子の位相干渉を二連パルス方式で観測した例は無い。Xe 原子の 5 光子イオン化によって放出される光電子強度の位相変調を観測し、位相制御光源が持つ位相特性が、高次の非線形過程によって発生する電子の位相特性に鋭敏に反映されることを示した。

これらの研究成果は、化学反応や分子間エネルギー移動・電子移動等の光位相制御、原子分子系を媒質とする高次非線形過程によって新たな光源（例えば超短パルス光源や軟 X 線光源）の開発、原子分子を利用する量子メモリーや量子ゲートの開発への展開が見込まれる。

3. 研究成果

3. 1 チーム全体の成果

本プロジェクトは、光パルスの内部位相を任意に制御し、それを記録し、検出して、フォトニクスを超高速性をより多様に展開する新しい技術のコンセプト「波束制御エンジニアリング」（特許出願）を提唱し、その実現を目指した。特に、光情報伝送技術への応用を志向して、内部位相を制御することによって単一の光パルスに複数ビットの情報を担わせることにより、自由度の高い新しい通信方式の可能性を探索した。具体的には、光パルスとのコヒーレントな相互作用を通じて媒質中に量子波束を励起することによって光位相の制御、検出、記憶などの機能を実現することをめざし、このための位相制御光源や、位相検出分光などの要素技術の開発を行い、さらに、凝集系、特に半導体ナノ構造における量子波束形成制御の実証を目指した。

また、本プロジェクトは、着実な技術としての応用可能性を念頭に進めたため、特許出願による知的所有権の確保を重視した。その結果、プロジェクト期間中に、6件の特許出願を行い、うち2件は既に成立している。これらは、フェムト秒域超高速フォトニクス技術の展開に大きく寄与する成果と考えられる。

1) 位相制御光源システムおよびデバイス（農工大G）

フェムト秒位相制御光源システムの開発

Tiサファイアフェムト秒レーザーに、液晶光変調器を用いた位相変調器、周波数分解光ゲート法を用いた位相解析器を組み合わせたフィードバック制御システムにより、 $0.8\mu\text{m}$ 帯、および $1.1\sim 1.6\mu\text{m}$ 帯可変波長光源を開発した。所望の任意の位相プロファイルを付加できるプログラマブル性が特徴で、安定なルーティン稼働を実現した。本プロジェクト推進に大きく寄与しただけでなく、特に $1.1\sim 1.6\mu\text{m}$ 帯の波長可変光源は、化学・バイオの領域からも強い関心を集めて、外部機関との光誘起相転移に関わる共同研究に発展しつつある。

チャープ可変デバイス

パルス内部位相制御としては、チャープの制御が応用上重要である。そこで、光学損傷しきい値が高く高エネルギーパルスの使用が可能でコンパクトなフェムト秒チャープ可変デバイスを開発した。（特許成立）小型かつ安定で幅な小型化を可能にするもので、複数の研究機関から技術提携を求められている。

2) 光位相検出分光法の開発（農工大G）

偏光分割フェムト秒サニャック型干渉計

超短光パルスと媒質との相互作用により生じる光パルス内の非線形位相シフトを

波長分解かつフェムト秒域時間分解能で精度良く測定する方法として偏光分割フェムト秒サニャック型干渉計を開発した。極めて高安定で、従来方式に較べて 10^4 倍程度という大幅な感度向上を達成した（特許成立）のみならず、この分野での常識を打破するコンパクト性と可搬性を実現している。領域内の他チームと共同で量子機能の極限的制御にむけて共同研究を開始している。

単一ショット位相測定方式

従来の光パルス位相測定方法は、複数の光パルスについて平均化された位相を測定するものだが、通信データのように時系列でランダムに位相データが伝送されてくる場合には、単一の光パルスの位相を測定する必要がある。そこで、スペクトル領域での干渉計とストリークカメラを組み合わせ、GHz 繰り返しの単一ショット位相測定方式を開発した。これは、従来技術に対して 10^3 倍の高速繰り返しを実現したものである。

3) 量子波束励起のための半導体ナノ構造の設計・製作・評価

(農工大 G+NEC/FESTA G)

量子波束の形成のためには、単一準位から複数準位への励起により波動関数の重ね合わせ状態を形成する必要がある。そのために必要な単純な量子井戸構造のバンド間遷移選択則の改変を実現する非対称階段型量子井戸 (Asymmetric Stepped Quantum Well: ASQW) を提案し、製作した。変調反射分光法で評価を行い、設計で意図した遷移選択則の改変が実現されていることを実証した。この ASQW 構造はテラヘルツ波発生などへの応用も期待される。(特許出願)

また、多準位系にチャープを制御したフェムト秒パルスを照射したときに形成される量子波束について解析し、複数準位への励起が、チャープの方向と大きさに応じて大きく偏ることを見いだした。この現象は、位相緩和に対してロバストなチャープ検出方法として期待される。

4) 凝縮系媒質における量子波束の誘起と検出 (農工大 G)

チャープ依存蛍光

位相制御光源を使ってチャープ制御パルスを生成し、シアニン色素分子に照射してその蛍光強度のチャープの大きさおよび方向への依存性を見出した。これは、位相情報を蛍光の振幅に変換する「振幅位相変換機能」と考えることができる。このチャープ依存蛍光効率のダイナミクスを理論解析により説明した。

量子波束の実時間観察の実現

位相制御光パルスで媒質中に書き込んだ情報を最大限活用するには、量子波束の時間発展を完全に可視化する技術が必要である。そこで、量子波束の振幅・位相情報を直接読み出す方法として、ラピッドスキャン型分光測光装置 (Rapid-scanning

multi-channel spectrometer ; RSMCS) を開発し(特許出願)、エタノール溶液中のシアニン色素分子 DTTCl における量子波束の実時間観測に成功した。これは、分子の電子的励起準位の振動準位ポテンシャルの中を量子波束が往復する様子を時分解でとらえたもので、凝集系での実現は世界で初めてである。これは、本プロジェクトの中心課題である「波束制御エンジニアリング」の可能性を実証したもので、ここで開発した RSMCS は、今後の量子波束の研究の展開を大きく加速するものと期待される。

5) 分子気体における核波束のコヒーレント制御 (東北大 G)

光位相による分子核波束の精密制御

二連光パルス間の遅延時間を世界的にも前例のない 10 アト秒の精度で制御する精密光干渉装置(アト秒位相制御装置、APM)を実現し、この APM からの二連パルスを HgAr 分子に照射して、二つのパルスが励起する分子核波束の間でほぼ 100% のコントラストを有する干渉を観測した。これは、位相制御光源の光位相を、分子内量子波束の位相に転写したもので、分子が光位相の量子メモリーとなることを原理実証したものである。本研究は、特に多数の分子のアンサンブルに対して高いコントラストの量子干渉を実現した点で、国内外で高く評価され、非常に数多くの招待講演、依頼講演の要請を受けた。さらに、 I_2 分子を用いて、分子波束制御の経過の実時間観測にも成功した。

光電子波束の位相制御

強いレーザーパルスによる多光子イオン化によって希薄気体中の原子から放出される“光電子波束”の位相制御を追求した。位相制御光源からの二連パルスを Xe 原子気体流に集光し、Xe 原子の 5 光子イオン化によって放出される光電子強度の位相変調を観測し、位相制御光源が持つ位相特性が、高次の非線形過程によって発生する電子の位相特性に鋭敏に反映されることを示した。

分子気体におけるこれらの研究成果は、化学反応や分子間エネルギー移動・電子移動等の光位相制御、原子分子系を媒質とする高次非線形過程によって新たな光源(例えば超短パルス光源や軟 X 線光源)の開発、原子分子を利用する量子メモリーや量子ゲートの開発への展開が見込まれる。

3. 2 フェムト秒量子波束グループ/量子構造材料グループ

3. 2. 1 波束制御エンジニアリング

3. 2. 1. 1 フェムト秒量子波束グループの主な研究内容

本プロジェクトは、フェムト秒パルスの持つ振幅・位相情報を量子構造半導体中に生成された量子波束の振幅・位相情報に転写し、またその逆の動作も可能と

するデバイスの原理を実証するための研究を進めている。我々は、この技術を「波束制御エンジニアリング」と名付けた。「波束制御エンジニアリング」が実現すると、光の運ぶ情報を半導体素子中に一時的に保持する光メモリーあるいは光バッファとしての応用が可能となる。

本プロジェクトでは、具体的には、フェムト秒プログラマブル位相制御光源とフェムト秒位相分光法の開発を行い、有機分子や量子構造半導体中での量子波束制御を試みた。また、共同研究グループであるNECシステムデバイス研究所の協力を得て、波束制御に最適な多準位遷移評価用非対称量子井戸材料の設計と試作も行った。これらの研究成果は、東北大佐藤グループの原子・分子を対象とした波束観測と非常に密接な関連がある。フェムト秒量子波束グループおよび量子構造材料グループの研究成果の概要は以下の通りである。

(1) フェムト秒位相制御光源の開発

液晶光変調器を用いた位相変調器、周波数分解光ゲート法を用いた位相解析器を組み合わせたフィードバック制御システムにより、フェムト秒パルスの内部位相を、周波数成分ごとに個別に位相制御し、再合成する位相制御光源を開発した。加えてより実用的なチャープ可変装置を開発した。

(2) フェムト秒位相分光法の開発

位相制御光源の開発とならんで、光パルスの内部位相を波長分割かつ時分割で検出する技術も、本研究の重要要素である。本プロジェクトでは、フェムト秒パルスの内部位相に着目して、光の位相を周波数分割して測定する技術の確立をめざし、様々な時間分解干渉計を開発した。

(3) 量子波束の時間発展の実時間観測

位相制御光パルスで媒質中に記憶させた情報は、量子波束を形成する量子状態の振幅・位相をすべて読み出すことによって完全に復元できる。シアニン系分子について、ラピッドスキャン型マルチチャンネル分光計により波束の実時間測定に成功した。

(4) 量子波束形成・制御・解析

フェムト秒位相制御光源をもちいて、有機色素分子における波束制御の可能性を実証した。特に、分子核波束の生成とその光パルス位相への依存性を、励起に伴う蛍光の発光効率のパルスチャープに対する依存性として検出した。このメカニズムを詳細に理論解析し、色素よりはるかに単純で設計可能な準位構成を持つ半導体量子井戸などで実現可能という見通しが得られた。

(5) 多準位系と超短光パルスのコヒーレント相互作用の詳細解析

非対称階段構造量子井戸などを用いた電子波束形成と検出の可能性を検討するために、3準位系とフェムト秒光パルスとのコヒーレント相互作用を、特に励起パルスのもつチャージングの効果に注目して詳細に解析した。

(6) 波束制御のための量子構造半導体の設計と評価

波束形成制御を行うためのナノ構造の設計を行った。量子井戸構造に書き込み光となるフェムト秒光パルスの情報を正しく、効率よく量子波束として転写するための、非対称階段構造などの構造制御の要件を明らかにした。これらの試料について、量子準位の同定および、遷移確率の定量化を目的として、変調反射スペクトルを測定し、波束生成の可能性が確認された。

3.2.1.2 光波束とスペクトル位相

フェムト秒光パルスは複数の共振器縦モードが干渉した光波束として考えられ、下式の形に表現できる。

$$E(t) = \sum |E(\Omega_k)| \exp[i\Phi(\Omega_k)] \exp[ikr] \exp[-i\Omega_k t]$$

ここで、 $E(\Omega)$ と $\Phi(\Omega)$ は各モード Ω_k のフーリエ振幅と位相である(図3.2-1)。フーリエ変換の関係より、パルス幅を短くすることはスペクトル幅を広くすることと同義である。しかし、単なる広帯域光とフェムト秒光パルスとが異なる点は、パルスでは各モード間の位相が完全に確定していることである。波束を決定する要素として、それぞれの波の振幅だけでなく、さらにそれぞれの波の間の位相関係が重要な物理量となる。

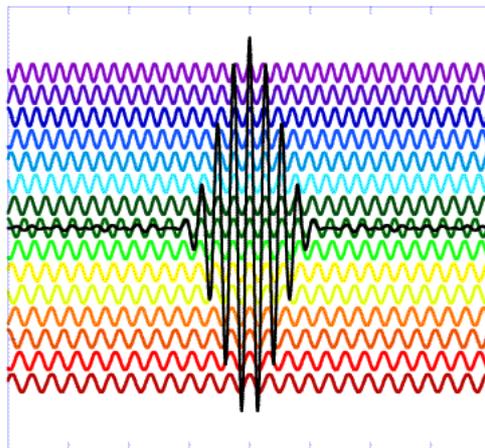


図 3.2-1：単色波の重ね合わせとしての光パルス。光波束とも呼ぶ。

現在、光通信の基本となっている時分割多重(Time Division Multiplexing、TDM)や周波数分割多重(Wavelength Division Multiplexing、WDM)では情報は光の強度につまり波の振幅に変換され、スペクトル幅を広くすることによってパル

スの時間幅を短くする (TDM)、またはスペクトルごとに別の信号を送る (WDM) ことで信号の多重化を実現している。よってこれらの方式では光「波束」の位相は利用されていない。光パルス列中の光パルスそれぞれの位相を制御すれば、パルスの時間多重が可能であるという性質を残しながら周波数領域に情報を書き込み、パルス 1 つ 1 つをパケットとすることができる。そのようなフェムト秒光パルスの各モードの位相に情報を載せることで、フェムト秒領域での時間波長多重コヒーレント伝送が可能となる。図 3.2-2 に位相に情報が載ったパルス列が伝送されていく様子を概念図として示す。パルスがもつ情報はスペクトル成分ごとの内部位相差であり、これをスペクトル位相と呼ぶ。

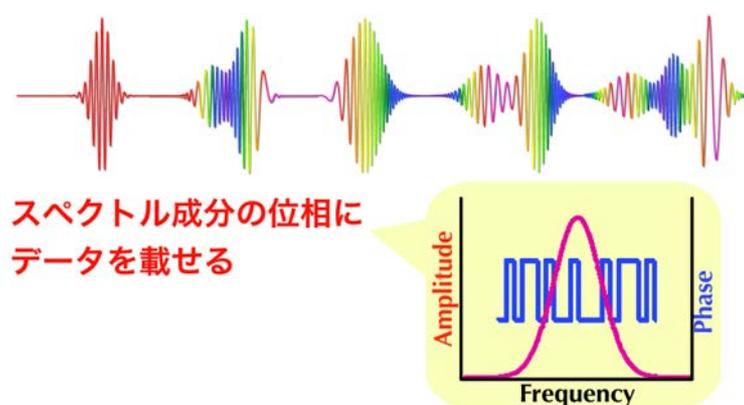


図 3.2-2 : スペクトル位相をデータパケットとする位相変調パルス列

3. 2. 2 フェムト秒位相制御光源

3.2.2.1 フーリエ合成

フーリエ級数展開の基底となる共振器縦モードは完全直交系をなしているから、これらのフーリエ成分の振幅と位相を任意に調整すると、任意のパルス時間波形が得られることになる。このフーリエ合成をパルス整形に応用する方法を、光周波数領域でのシンセサイザと呼ぶこともできる。

3.2.2.2 全体構成

図 3.2-3 に位相制御フィードバックシステムの構成図を示す。チタンサファイア発振器からのフーリエ限界に近いフェムト秒パルス有位相制御器に入れる。位相制御器では、パルスの持つ各スペクトル成分に独立に与えるべき位相シフトデータをパーソナルコンピューターから出力できるようにしてある。位相制御装置でのパルスエネルギーのロスを補い、非線形光学実験に必要なピーク出力を得るために、位相制御器を通した後に増幅器で増幅する。位相変調がかけられ、増幅

されたパルスの一部を位相解析器にかけて、その位相情報を取り出す。得られた位相情報をパーソナルコンピュータで演算処理して、目的のパルス位相になっているか判断する。所望のパルス位相とずれがある場合は、コンピュータから位相制御器に制御信号を送出して、目的のパルス位相に近づける。この処理を繰り返すことによって、最終的に制御されたパルス位相を得る。これらの計算機による制御はLabVIEW (National Instruments) プログラミングによって行った。

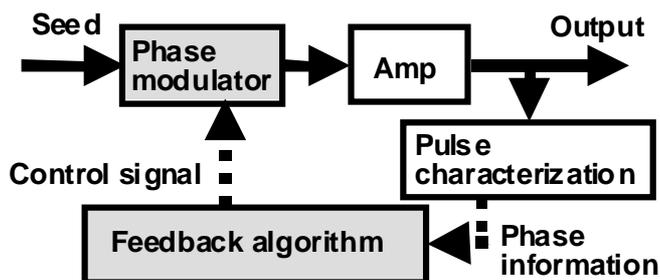


図 3. 2-3 : 位相制御フィードバックシステム

3. 2. 2. 3 位相変調器

パルスのスペクトル成分の位相を独立に制御するのに最も簡単な方法はパルスを空間的に各周波数毎に分けることである。図 3. 2-4 に位相変調器の構成を示す。位相変調器はいわゆる 4- f 光学系で構成されている。

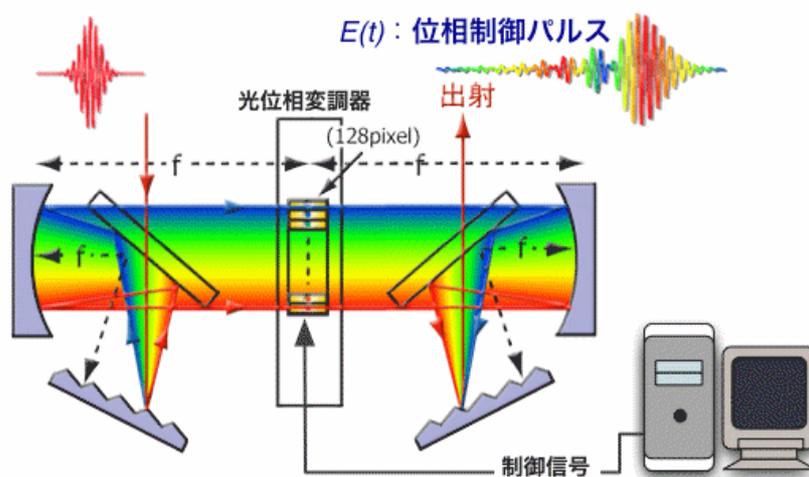


図 3. 2-4 : 位相制御光源の実験配置図

この 4- f 光学系では、

- 回折格子から凹面鏡までの距離
- 凹面鏡からフーリエ変換面までの距離
- フーリエ変換面から凹面鏡まで距離

凹面鏡から回折格子までの距離

の4つの距離が凹面鏡の焦点距離となるように設定する。回折格子は集光素子の焦点距離の位置に配置されている。ビームを鉛直方向に角度をもって鏡の縁ぎりぎりに当たり反射される。そして凹面鏡に正面から当たり、高さをわずかに変えて反射され、鏡のわずかに上を抜けて、液晶空間光変調器に入射する。このように凹面鏡の正面から反射させる配置にすることによって収差の影響を極力減らすことが可能となる。パルスは回折格子で各周波数成分毎に異なる角度で放射状に出射されるが、光学素子を焦点距離の位置に配置することにより、フーリエ変換面ではそれぞれ平行となる。また、同じ周波数は回折格子上から平行に出射され、フーリエ変換面では集光される。このようにパルスはスペクトル成分に分かれ、異なる周波数どうしは互いに異なる位置に変換される。

集光素子の焦点距離、回折格子の格子間隔は液晶空間光変調器に入射するパルススペクトル幅から設計する。中心波長 $0.8\ \mu\text{m}$ のチタンサファイア光源では、パルススペクトルの全幅は 200nm 程度であり、このときの構成は焦点距離 100mm 、格子間隔 $1/600\text{mm}$ のものを用いた。したがって、波長分解能は $200\text{nm}/128\text{pixel}$ となる。通信波長帯を志向した近赤外域パラメトリック光源 $1.3\text{--}1.5\ \mu\text{m}$ では、凹面鏡は $f=125\text{mm}$ を選定した。

このフーリエ変換面に、液晶空間光変調器を配置することによって、それぞれの周波数成分に独立に位相シフトを与えることができる。液晶空間光変調器 (Liquid-Crystal-Spatial Light Modulator、以下SLM) は二つのシリカ基層に挟まれた薄い ($5\text{--}20\ \mu\text{m}$) 液晶層からなる。二つの基層には光学的に透明だが電導性をもつ indiumtin oxide (ITO) の微小電極が等間隔に配列している。それらのピクセル毎に独立に電場を印加することができ、電圧に依存して複屈折性を変えることが可能である。ただし、ピクセル間にはギャップが存在し、その範囲は制御することはできないため、ギャップ幅のなるべく小さいものを選ぶ必要がある。本研究で用いた SLM は 128 ピクセルに分かれ、 1 ピクセルの幅が $97\ \mu\text{m}$ 、ギャップ幅 $3\ \mu\text{m}$ で、全体の幅は 12.8mm となっている。さらに、 128 ピクセルの液晶が 2 枚重なって、振幅と位相が独立に変化できるようになっている。また、駆動電圧分解能は 12bits あり、電圧は $10\text{V}/4096=2.44\text{mV}$ ステップで与えられる。

3.2.2.4 位相解析器

フェムト秒パルスの場合、光の周波数が測定器の電子的な応答帯域より高いため、通常の検出器ではパルス電場は直接測定できない。そこで、位相解析には周波数分解光ゲート法 (Frequency Resolved Optical Gating、以下FROG) が有効な

方法として、提案された。特に本研究では、二次の非線形光学効果を用いたFROGをSHG(Second Harmonic Generator)-FROGを用いている。パルスをビームスプリッターで二つに分け、一方に遅延時間を与え、凹面鏡で非線形結晶上に交差するように集光し、再び重ね合わせる。非線形結晶で発生した角周波数 ω_1 と ω_2 の和周波 $\omega_3=\omega_1+\omega_2$ を分光検出し、遅延時間及び周波数を変数とした非線形信号強度の三次元プロットを得る。分光器(S2000、OceanOptics)は中心波長400nm、分解能140nm/2048pixelのものを使用した。パルス電場にチャープがあるときは瞬時周波数が時間的に変化しているため、パルスの位相関係によって遅延時間に応じて敏感に和周波スペクトルが変わる。SHG-FROG信号は次のように表せる。

$$I_{FROG}(t) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)E(t-\tau)\exp[i\omega\tau]d\tau \right|^2$$

ここで、 $E(t)$ はパルス電場、 τ は遅延時間である。は非線形信号の電場振幅であり、分光することによってそのフーリエ変換を測定していることになる。FROG信号から電場波形を抽出するのは、専用のソフトウェアで行った。

パルスは前項の位相変調器で周波数についての2次関数で与えられる位相差(2次分散)を加えた場合である。図3.2-5にFROG法によって求めたパルス位相を示す。

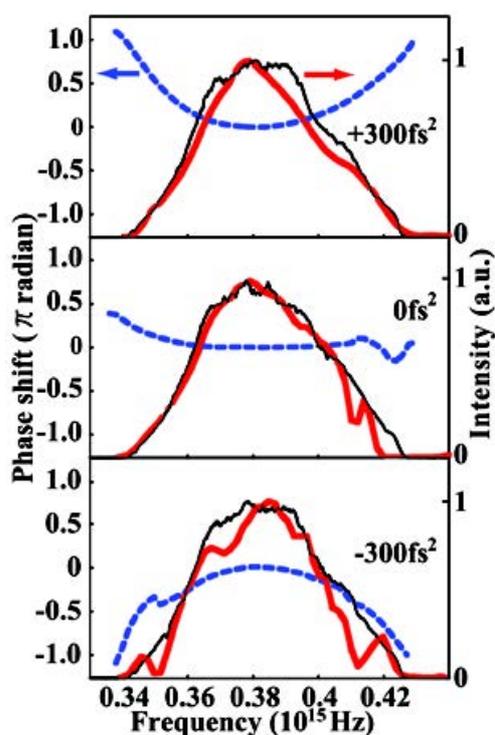


図 3.2-5 : FROG法で求めた2次分散パルスのスペクトル位相曲線(破線)

3.2.2.5 位相変調パルスの生成

超短光パルスの周波数幅が非常に広いことに着目して、帯域内の周波数成分に位相変調を行って、単一の超短光パルスを複数ビットの情報を含む情報パケットとして利用する可能性が検討している。そこで、通信波長帯に変換したフェムト秒パルスレーザーに含まれるそれぞれのスペクトル位相を制御することで、1パルスに多ビットの位相信号を書き込む実験を行った。スペクトルに与える信号の種類は二値0、 π とした。図3.2-6に全スペクトル領域を26チャンネルに分け、1チャンネルおきに0と π の位相シフトをコーディングした結果を示す。ここでは、位相シフトを強度に変換しており、位相シフトの0と π はそれぞれ強度の極大と極小に対応する。図3.2-6の楕円の波形がチャンネルごとに交互に0と π の位相シフトが与えられている様子を示している。

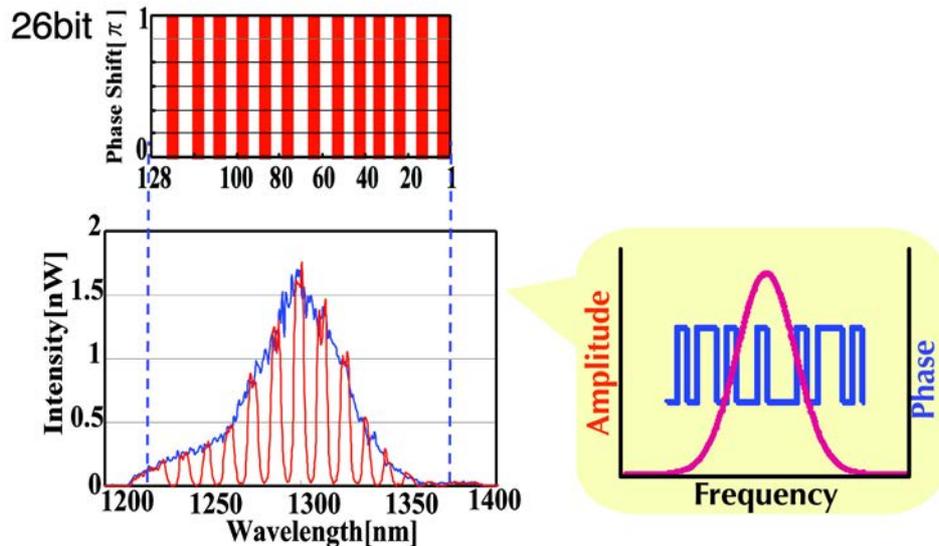


図 3.2-6：近赤外域パルスのスペクトル位相コーディング

このように、光パルスの周波数帯域をM個の領域に分割して、各々に位相変調を行うと、パルス時間波形は歪んでくる。内部位相の変調によって大きな裾広がりを生じた光パルスから、もとの位相変調情報がどの程度再生できるかを数値計算によって検討した。ガウシアン形のパルスを仮定してその周波数領域を分割して、領域ごとの位相あるいは振幅の変調を行うものとし、その時間波形を以下のフーリエ積分によって求めた。

$$E(t) = \sum_{m=1}^n \int_{\omega_{m-1}}^{\omega_m} a_m E(\omega) \exp(i\theta_m) \exp(-i\omega t) d\omega$$

ただし、ここで $E(\omega) = E_0 \exp(-\sigma^2(\omega - \omega_0)^2)$ である。

分割幅 $\omega_m - \omega_{m-1}$ は各々の領域に含まれるパルスエネルギーが等しくなるように

選んだ。 a_m を0、1とすることで振幅変調を、 θ_m を0、 $\pi/2$ あるいは0、 π とすることで位相変調をシミュレートした。

周波数領域を4分割した4bit位相変調の場合の時間波形の例を図3.2-7に示した。パルス幅の目安として、パルスエネルギーの90%を含む中心部分の時間幅をとった。変調前のパルス幅は48.8fsとしたのに対して、変調によって波形は伸長する。変調後の波形は、振幅変調では(0,0,1,0)パターンのときに最も伸長するが波形は(0,1,0,1)パターンで最も複雑になる。位相変調の場合には、図3.2-7の(0,1,0,1)パターンのとき最も全幅が大きく、818.5fsであった。しかし、位相変調により伸長し複雑化したパルス波形の中心付近を検出すれば、位相情報の再生が可能である。パルス中心部に検出時間幅 2τ を設定し、もとの情報を読み出すのに必要な時間幅を評価したところ、上の(0,1,0,1)パターンの場合でも、図3.2-8に示すように、変調後のパルス幅の約4分の1の $2\tau=200$ fsでも変調信号の弁別が可能だった。

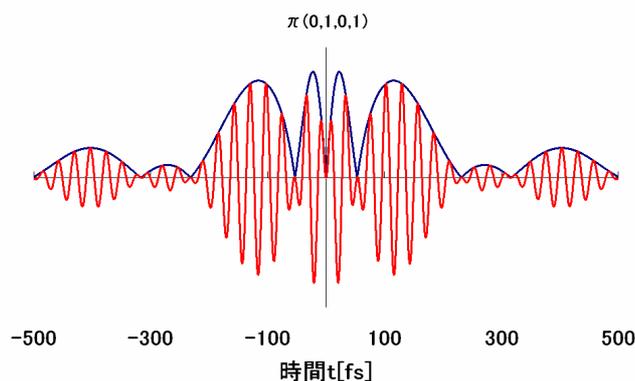


図3.2-7：4bit位相変調の場合の時間波形の例。位相変調量は(0, π , 0, π)

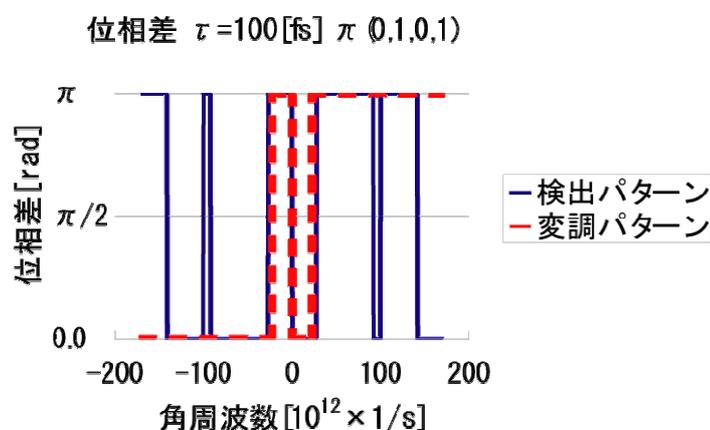


図3.2-8：図3.2-7の時間波形から $2\tau=200$ fsだけ切り出して復元した結果

3. 2. 3 チャープ可変装置

3.2.3.1 背景

フェムト秒変調パルスで最も基本的なのはチャープパルスという状態である。チャープパルスには正負の状態があり、正チャープとはパルス時間幅内での周波数増加、負チャープは周波数減少を意味する。照射される側から見ると、正チャープと負チャープでは周波数増減が時間反転となっている。

チャープ量の制御は、前述の液晶光変調器の他、プリズム対、回折格子対だけでも可能である。プリズム対では、大きなチャープ（2次分散）量を得るためにふたつのプリズム間隔は大きくなる。さらに、チャープ量だけでなく、材料分散が大きな高次分散を生じてしまう。他方、回折格子対はよりコンパクトであるが、回折格子対全体での光強度のスループットはプリズム対よりかなり小さくなる。

前節で述べた光空間変調器（SLM）を用いれば、パルスの各々の周波数成分の位相を任意に調整することができる。しかしながら、光空間変調器を用いた装置では、損傷しきい値が低く、高エネルギーのフェムト秒パルスを直接変調できないといった課題があった。

3.2.3.2 フェムト秒チャープ可変装置

我々は、高次の分散を抑制しチャープ（2次分散）量だけ制御すること、また光学損傷しきい値が高く高エネルギーのフェムト秒パルスの使用が可能なこと、更に装置の小型化であること、などの利点を併せ持つフェムト秒チャープ可変装置を開発した。

この装置は、図 3.2-9 に示すように、向かい合った2枚のチャープ鏡とそれらのチャープ鏡の間に小型ミラーを挿入しこの小型ミラーをチャープ鏡の面方向に移動する機構を有する。図 3.2-10 に装置全景の写真を載せる。向かい合わせたチャープ鏡対とその間を垂直に移動する小型ミラーを用いることにより、段階的に反射の回数だけ負チャープ量をフェムト秒パルスに加えることができる。装置全体の寸法は、180mm×76mmである。

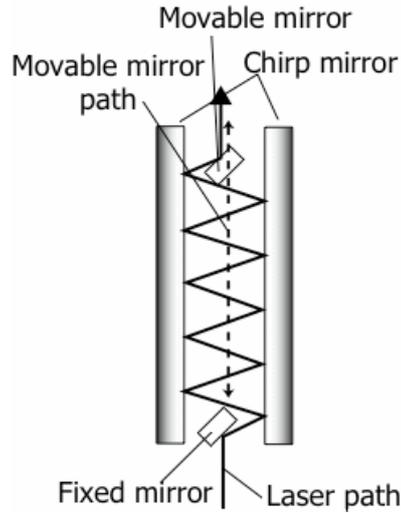


図 3.2-9 : フェムト秒チャープ可変装置

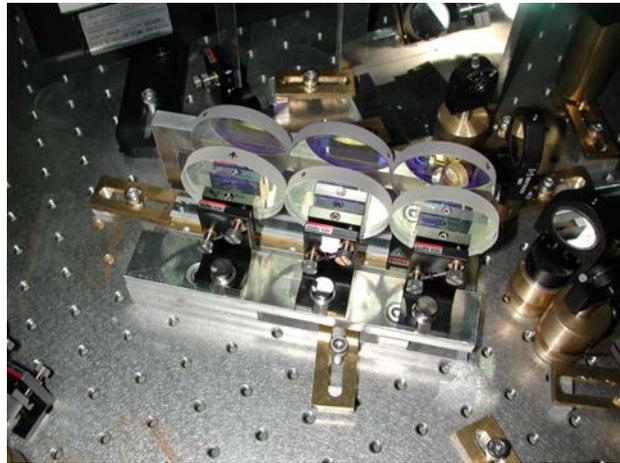


図 3.2-10 : フェムト秒チャープ可変装置の全景写真

誘電体チャープ鏡は、2つの異なる屈折率をもつ誘電体を多層重ねたものである。このとき、入射のパルスの方に徐々に層の厚さを増やして積層する。したがって、パルスに含まれるより長い波長成分は短い波長より鏡に深く入りこんでから反射されることになる。通常の媒質では波長が短いほど屈折率が大きく、光の位相は遅れて出てくるが、チャープ鏡の場合は波長が長いほど遅れて出てくる逆分散になる。一回あたりに付加されるチャープ量が固定しているため、パルスに付加される全チャープ量はチャープ鏡対の間での反射回数に比例する。しかし、一般的にはチャープ鏡対を使う場合、反射回数を変えても同じ方向に出力させるためには、全体の配置を修正しなければならないので、一連の実験の中で反射回数を変更するのは容易ではない。

そこで、本研究では以上のような問題を解決する新しい装置を開発した。(特許第 3569777 号) チャープ鏡対の間にふたつの小さな鏡を挿入することで、出力

ビームの方向は入射の光軸と同じ方向に保ったまま、チャープ鏡の反射回数を変えることができるようになる。このチャープ可変装置は、ふたつのチャープ鏡と小さな鏡だけで構成されるので、等価な機能を果たす従来の装置に比べて最もコンパクトである。

3.2.3.3 チャープ可変装置の性能評価

小型ミラーとチャープ鏡間の反射回数を変え、負チャープ量をフェムト秒パルスに加えたときの位相状態をFROG法によって解析した。図 3.2-11 は横軸に反射回数を取り、縦軸はパルス幅を示している。図 3.2-12 はチャープ量が等しく、チャープの方向が異なる正チャープ、負チャープパルスと、0 チャープのフーリエ限界パルスのFROG波形である。同じチャープ量の正チャープパルスと負チャープパルスでは、パルス幅がほぼ等しいことがわかる。また、このとき、パルススペクトルは、原理的には変わっていない。図 3.2-11 にはパルス幅と線形チャープの関係から得られた理論曲線をあわせて描いてあるが、実験結果はこのチャープ可変装置で、主に線形チャープが変化していることがわかる。また、反射回数が多くても、高次分散が少ないといえる。

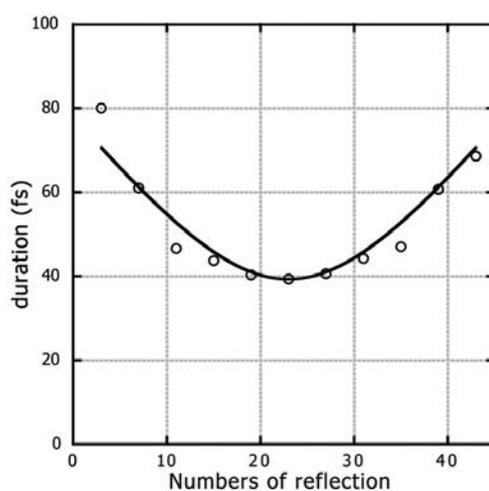


図 3.2-11 : チャープ鏡の反射回数とパルス幅の関係

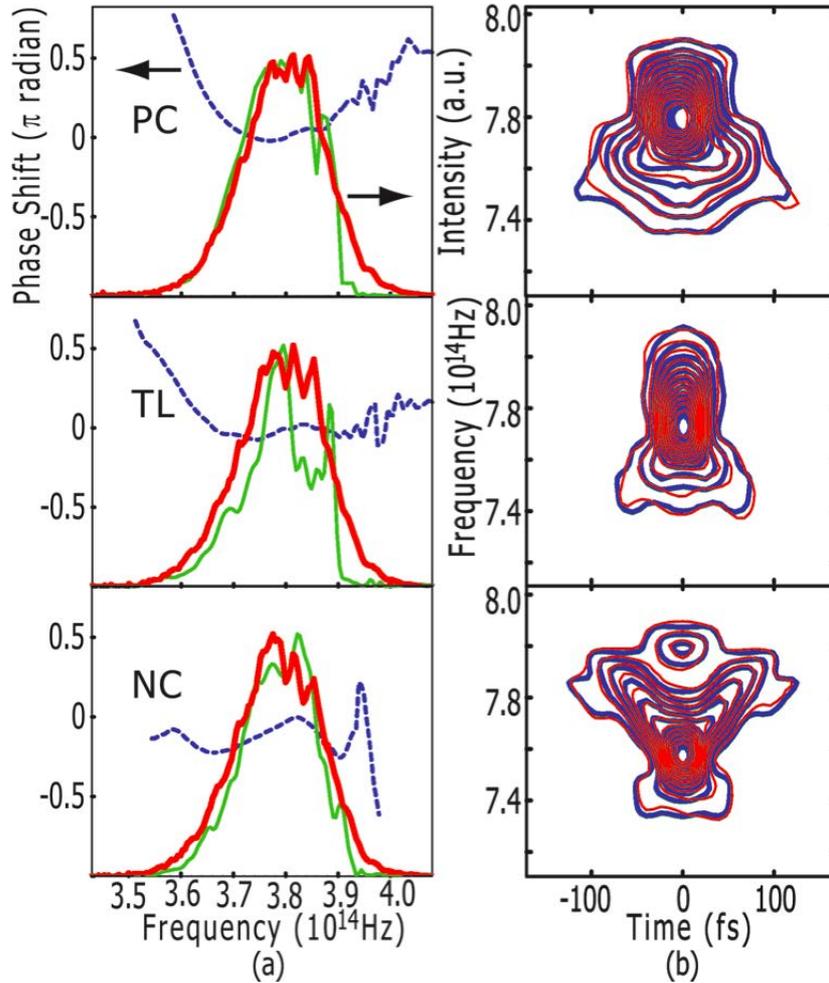


図 3.2-12: チャープ可変装置から出力される正チャープパルス、フーリエ変換限界パルス、負チャープパルスのFROG波形とスペクトル位相曲線

3. 2. 4 ラピッドスキャン型分光測光装置による波束の実時間観測

3.2.4.1 背景・目的

位相制御光パルスで媒質中に記憶させた情報は、量子波束を形成する量子状態の振幅・位相をすべて読み出すことによって完全に復元できる。書き込んだ情報を最大限活用するには、量子波束の波形をできるだけ完全に可視化する技術が必要である。そこで、量子波束の振幅・位相情報を直接読み出す方法を開発した。これにより、ひとつの光パルスで多値多ビットのデータを処理できるようになる。

波束を実時間観測するには、時間分解ポンプ・プローブ分光測定が一般的に行われてきた。そこではポンプ光により分子核波束が励起され、ポンプ光よりも τ だけ遅れて試料を通過するプローブ光によりその時間発展を観測することになる。分子核波束の時間発展は、プローブ信号の τ 依存性に現れる量子ビートに対応している。基底準位の波動関数が光学遷移により励起準位に移動することによ

り波束が生成され、励起準位束縛ポテンシャルの中を往復運動する。この波束の往復運動が分子の分光吸光度を変化させ、透過プローブ光強度に量子ビートを生じさせる。

3.2.4.2 開発した装置の概要

測定光学系は変形マッハツェンダー干渉計型ポンプ・プローブ測光系と、フェムト秒パルス光源とから成る (図 3.2-13)。干渉計の一方の光路にはラピッドスキャン光学遅延ステージが組み込まれており、ポンプ・プローブ間の光学遅延 τ を 4ps のレンジでスキャンしている。スキャン周波数は 20Hz である。ラピッドスキャンステージからは、 τ に対応する電圧信号が出力されている。

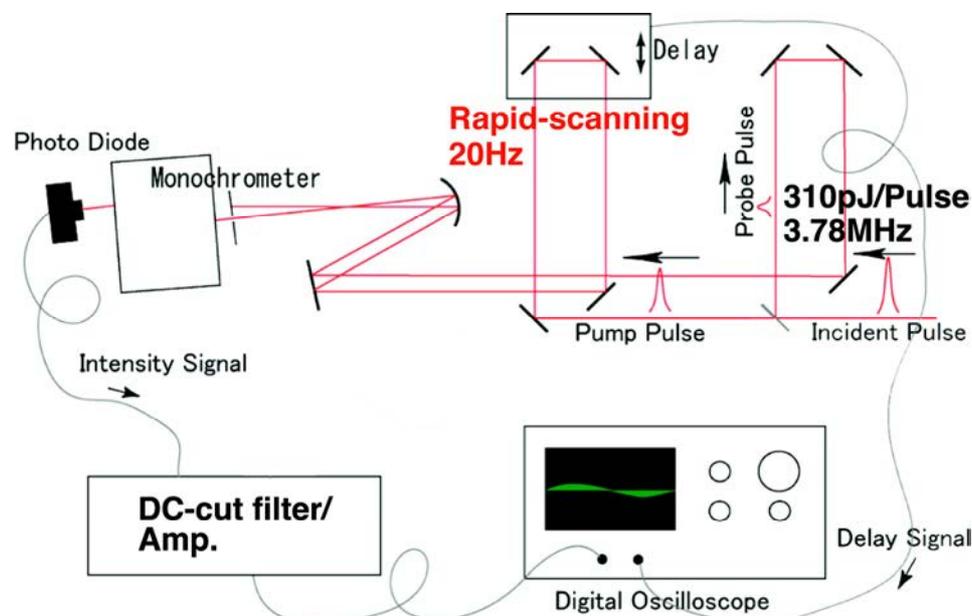


図 3.2-13 : ラピッドスキャン型マルチチャンネル波束測定装置

試料を通過したプローブ光は、分光されてフォトダイオードアレイに入射し、波長ごとに電圧信号に変換される。検出されたプローブ信号には、線形分極光の成分と、分子核波束の情報を含む非線形分極光の成分とがある。非線形分極光成分は τ に依存し、そのため 20Hz で変動する。そこで、ハイパスフィルタ (HPF) を使い信号の DC 成分をカットすることによって、非線形分極光の成分のみを抽出する。HPF を通過したプローブ信号は、光学遅延ステージからの τ を与える信号と共に多チャンネルデジタルオシロスコープに入力され、 τ の関数として記録される。数千スキャンにわたって測定を行い、積算された結果を得る。この方法は、

ロックインアンプを用いる方法と異なり参照信号を必要とせず、単純な装置で優れたS/Nを得られる。

3.2.4.3 DTTCIの分子核波束の測定

エタノール溶液中のシアニン色素分子DTTCIを対象に、ラピッドスキャン型マルチチャンネル分光装置を用いて、様々なプローブ光子エネルギーにおける透過率変化の時間波形を測定した。図 3.2-14 に、測定された非線形分極光の τ 依存性を示す。周期約 200fsの振動が 2ps程度にわたって持続しており、これが分子核波束の運動に対応する量子ビートである。図 3.2-14 の時間波形をフーリエ変換した振動の周波数スペクトルを図 3.2-15 に示す。ここで顕著に見られる 4.4THzの周期構造が波束運動に対応している。

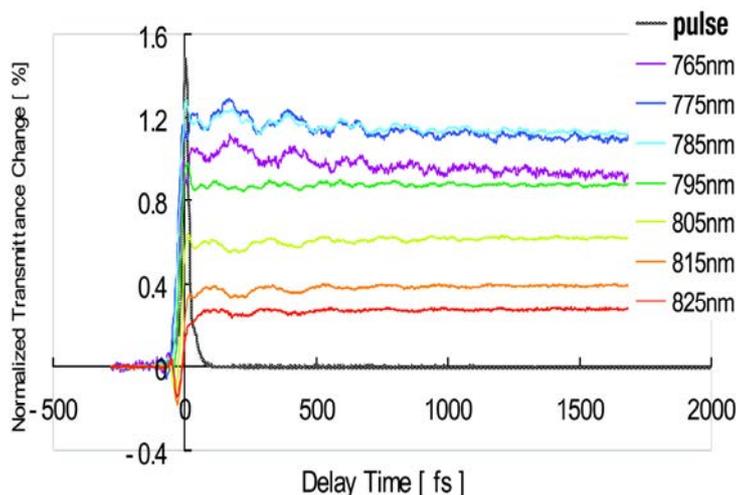


図 3.2-14 : 量子波束の実時間測定

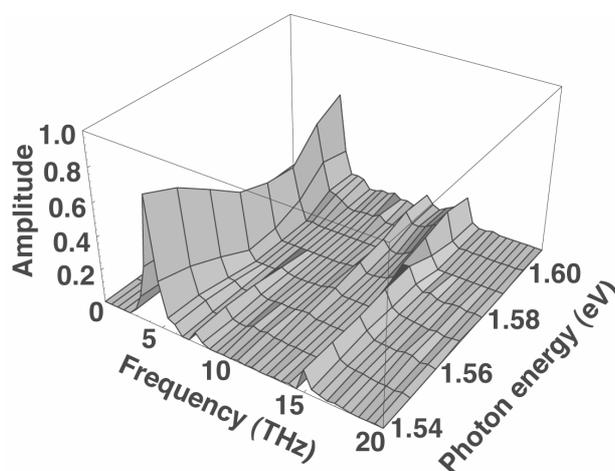


図 3.2-15 : 波束振動のフーリエスペクトル

3. 2. 5 量子波束の光位相制御

3.2.5.1 波動関数の重ね合わせと量子波束

このフェムト秒光パルスをもそのスペクトル内で単一準位から複数準位へのコヒーレント励起可能な量子構造に照射することにより、電子の励起状態は各準位の固有状態に対して波の干渉が起こり、量子波束が形成される。そして、フェムト秒光パルスのスペクトル成分のもつ位相関係によって量子波束は様々な初期状態に変化する。そのときの量子波束は以下のように表せる。

$$\Psi(r,t) = \sum |b_k| \exp[i\phi_k] \psi_k(r) \exp[-i\omega_k t]$$

ここで、 $|b_k|$ と ϕ_k は各量子数 k で表される固有状態 $\psi_k(r)$ の確率振幅と位相である。光波束では、共振器縦モードは正弦波に限定されていたが、電子波束では、物質によって異なる空間依存性を持つ波動関数の重ね合わせとなる点が大きく異なっている。このように、フェムト秒光パルスを物質に照射し、単一準位から複数準位へのコヒーレント励起を行えば、波動関数の重ね合わせからなる量子波束が形成され、フェムト秒光パルスのそれぞれの周波数成分が持つ位相情報は、量子波束の対応する波動関数の係数に転写される。この量子波束の位相情報を、別のフェムト秒光パルスを用いて、読み出し、制御することができれば、光の強度のみを利用した方法に比べ、より自由度の高い光の伝送・記録方式をもたらすことが期待される。

本プロジェクトでは、量子構造半導体の複数のサブレベルを同時に励起して、電子波動関数の波束を生成し、この波束の運動を照射レーザーの位相で制御する可能性を追求した。量子構造半導体では、物質設計によって、波動関数を任意に作成することも可能である。したがって、それらの固有状態の重ね合わせである電子波束を、生成するためのパルス波形・位相の制御だけでなく、波動関数の設計によっても制御可能となり、自由度が著しく増大するものと期待される。これにより、光の位相に敏感な半導体光デバイスの新しい原理を開拓しようというものである。伝送量の向上だけではなく物質中の電子との相互作用を利用することで、フェムト秒領域で動作する光スイッチ、光メモリーなど新たな光情報処理技術の開発につながると考えられる。

3.2.5.2 量子波束への光位相の書き込み、読み出し

位相制御光源を使ってチャープ制御パルスを生成し、シアニン色素分子に照射し、その蛍光強度変化を測定した。このとき試料としては、エタノール溶液中のIR140色素分子を用いた。図3.2-17は正チャープパルスおよび負チャープパルスで励起した時の蛍光強度から0チャープパルスでの蛍光強度を引いた差

スペクトルを表している。正チャープパルスでは蛍光強度が増加し、負チャープパルスでは減少している。

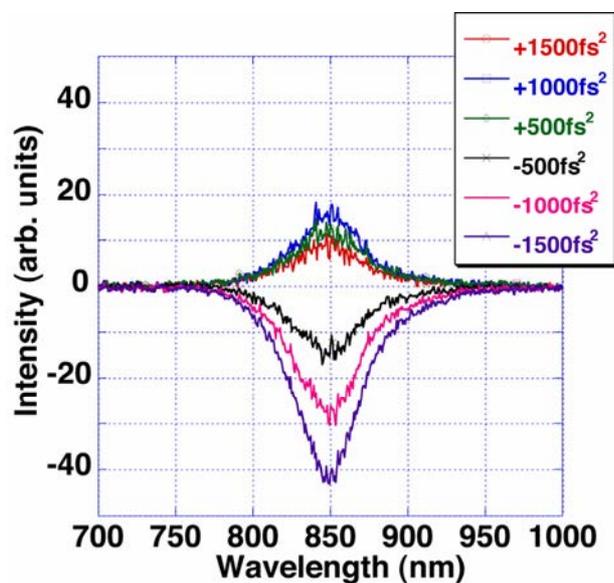


図 3.2-17 : チャープ依存蛍光差スペクトル

このチャープ依存蛍光は、ポンプ・ダンプ過程で説明することができる。我々が観察した現象は、図 3.2-18 にまとめられる。

1. 最初に、分子はチャープパルスの前半部分によって励起される。
2. 励起状態に量子波束が生成される。
3. その波束がチャープパルスの後半部分と相互作用することによって、誘導放出を引き起こす。
4. 最後に、励起状態分布量に比例する蛍光強度が測定にかかる。

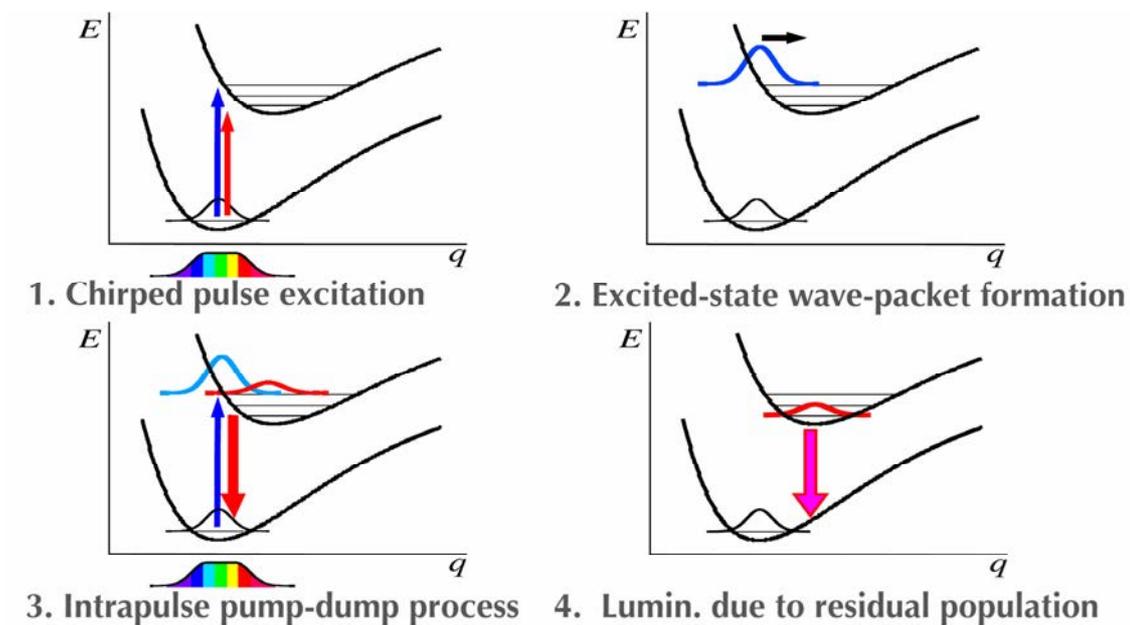


図 3.2-18 : チャープ依存蛍光の原理となるポンプ・ダンプ機構

最も重要な結果は、誘導放出の効率がパルス・チャープの方向と量に依存しているということである。このように、位相情報を発光振幅へ変換する機能を、図 3.2-19 に示すような「振幅位相変換機能」として提案した。

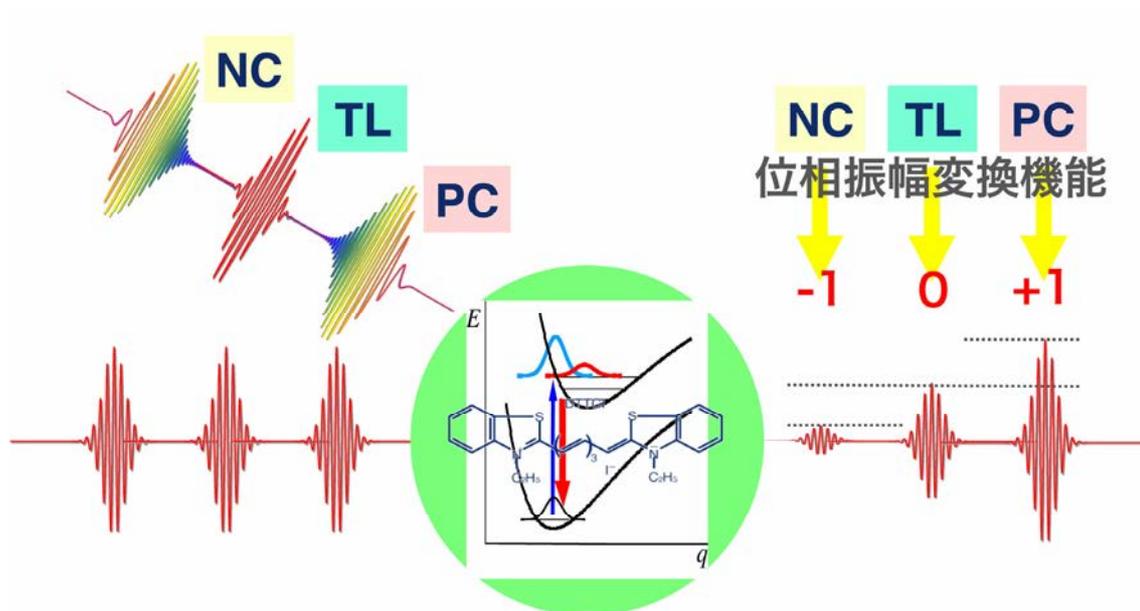


図 3.2-19 : 位相振幅変換機能の概念図

図 3.2-20 には、チャープ量を固定した正チャープ、負チャープパルスと 0 チャープのフーリエ変換限界パルスの蛍光強度の励起強度依存性を示す。横軸はパルス強度、縦軸は蛍光強度を表し、×は正チャープ、■は 0 チャープ、●は負チャープ

チャープパルスの蛍光強度をプロットしたものである。強調すべき点は、この3つの測定について、パルス幅、パルススペクトルが全て同じだということである。

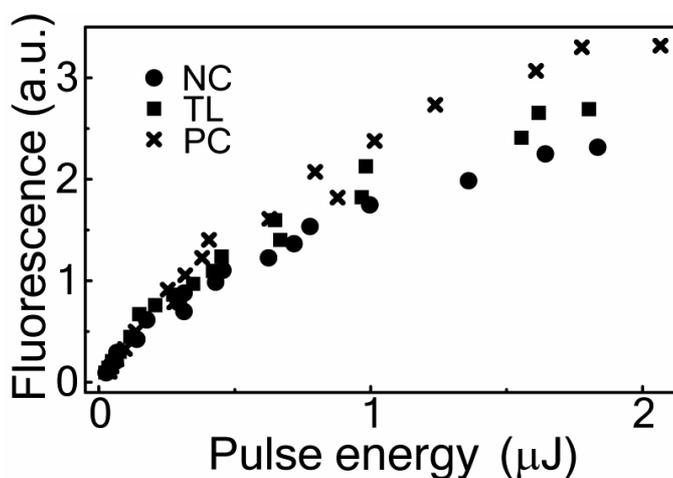


図 3.2-20 : 蛍光強度の励起強度依存性

低励起では、それぞれの蛍光強度に差がみられないが、励起強度を増加させていくと、正チャープ、0チャープ、負チャープ励起の蛍光強度に明かな違いがみられる。また、この励起強度範囲では、正チャープ励起による蛍光強度は0チャープ励起の場合より大きく、負チャープ励起は小さいことがわかる。

3.2.5.3 チャープ依存ダイナミクス

チャープ可変フェムト秒増幅器を使って、時間分解ポンププローブ分光法によって、チャープに依存するダイナミクスを観察した。図 3.2-21 は、正負チャープパルスで励起した時の透過率変化の時間依存性を示す。正チャープ励起では吸収が主であり、より大きな励起状態分布が得られる。他方、負チャープ励起は効果的に誘導放出をもたらし、励起状態分布は基底状態に効率よくダンプされる。

図 3.2-21 の右は、励起直後から励起状態と基底状態間における分布差の時間依存を数値計算したものである。観察された透過率変化は、基底状態と励起状態の分布差に比例している。

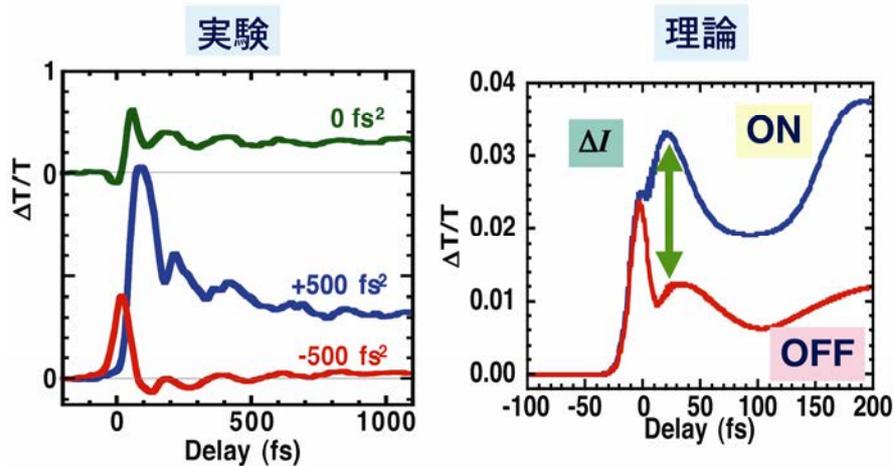


図 3.2-21 : チャープパルス励起による励起状態波束ダイナミクスの観測

3.2.5.4. 2 + 1 準位モデル

上で述べた、フェムト秒励起パルスのチャープの方向に蛍光強度が強く依存するという現象のメカニズムを最もシンプルなモデルで解明し、それに必要な条件を調べた。ここでは、図 3.2-22 に示すような 3 準位モデルを考える。許容な遷移は、 $1 \rightarrow 3$ と $2 \rightarrow 3$ である。

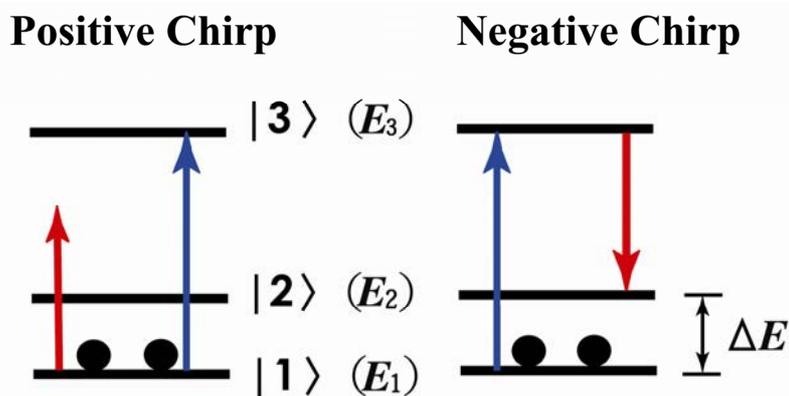


図 3.2-22 : 3 準位モデル

初期分布を 1 状態から始めた結果を図 3.2-23 に示す。まず、正チャープ (PC) では、パルスの前半で非共鳴的に 3 への遷移が始まる。パルスピークするとき、3 への遷移が大きくなる。そして、パルス後半では 2 への遷移が徐々に起こる。したがって、準位 3 への励起が支配的となる。負チャープ (NC) の場合には、パルス前半で、共鳴的に 3 への遷移が起こり、ピークで、3 から 2 への誘導放出が起こる。したがって、励起状態 3 の分布が PC に比べ、より少なくなる。蛍光は準

位 3 からの発光なので、PCのほうが蛍光強度量が多くなることになる。これは実験事実と合致する。

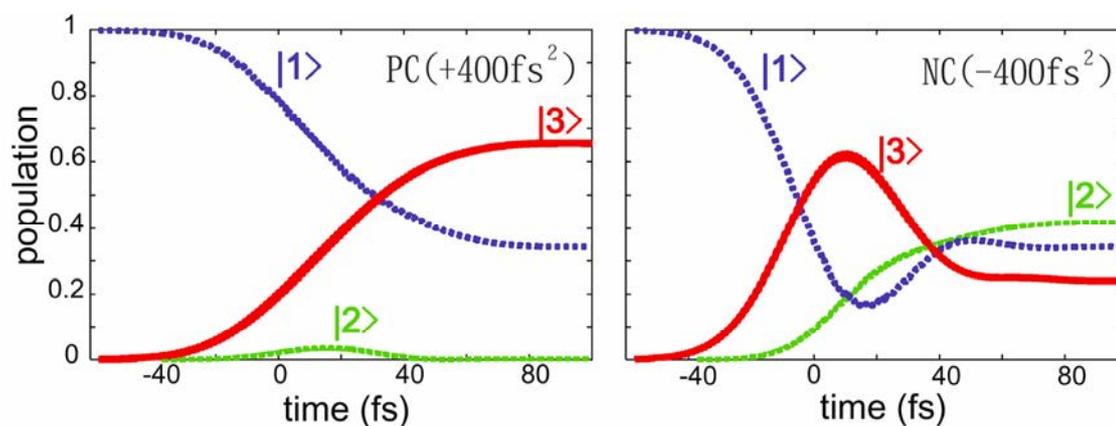


図 3.2-23 : チャープパルス励起による各準位の占有確率の時間依存性

この 3 準位モデル対し位相緩和を取り入れ、位相緩和時間とパルスの時間幅との関係を調べると、チャープによりパルス幅が広がるにもかかわらず、位相緩和時間がパルスのスペクトル幅の逆数程度にならない限りチャープ依存性が見られることがわかる。この理由は、パルス幅全体にわたるコヒーレント励起過程ではなく、時間局所的な共鳴過程がチャープ依存性の本質だからである。

3.2.5.5 1 + 2 準位におけるコヒーレント相互作用

量子波束のコヒーレント励起の最も基本的な物理過程を解明し、そのメカニズムを応用した量子波束による光パルス位相検出方法について検討した。量子波束を形成するためには単一準位から複数準位への同時励起が必要となる。このような条件を満たす最も単純化された系として、単一基底準位と近接した二つの励起準位からなる 3 準位系が考えられる。(図 3.2-24) 最も基本的な物理過程を抽出するために 1-2、1-3 準位間遷移双極子モーメントは等しい値を持つと仮定した。

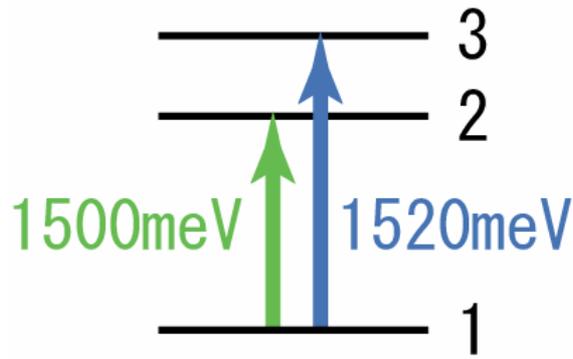


図 3.2-24：基底 1、励起 2 準位からなる 3 準位系

理想的なコヒーレント励起を解析するため、緩和を全て無視した。初期条件として、電子は光パルス照射前は基底準位にのみ存在するとした。図 3.2-25 は 3 準位系に $\beta = +1000 (\text{fs}^2)$ (正チャープ) の線形チャープパルスが照射されてから通過するまでの密度行列の対角成分の時間変化を示したものである。パルスが照射されると ρ_{11} が減少し、 ρ_{22} 、 ρ_{33} が増加していく。この例では光パルス通過後、 $\rho_{22} > \rho_{33}$ であることが明らかである。即ち 2 準位へより多く励起されている。この偏った励起の原因は、光パルスの前半部分で共鳴する準位間に誘起される分極が励起の全過程において支配的に働き励起に大きく作用し、光パルスが共鳴から外れた後も作用を続け、また、共存する他方の分極の作用にも影響を及ぼすことによると解釈することができる。図 3.2-26 はパルス通過後の ρ_{22} 、 ρ_{33} の β 依存性である。 $\beta = 0$ の時は瞬時周波数は一定のため 1-2, 1-3 準位間で共鳴に差は生じないため各への準位への励起量は等しい。 β が正方向に増加する程、偏りが大きくなることが分かる。 $\beta < 0$ 即ち、負チャープの時は、逆の共鳴関係となるため偏り方は反転する。

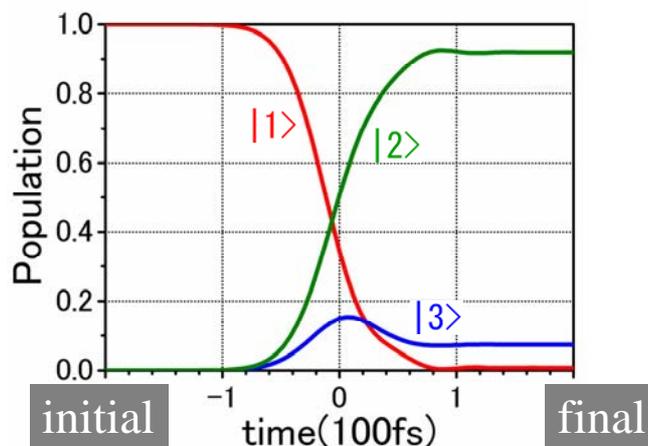


図 3.2-25:線形チャープパルスが照射されてから通過するまでの密度行列の対角成分の時間変化

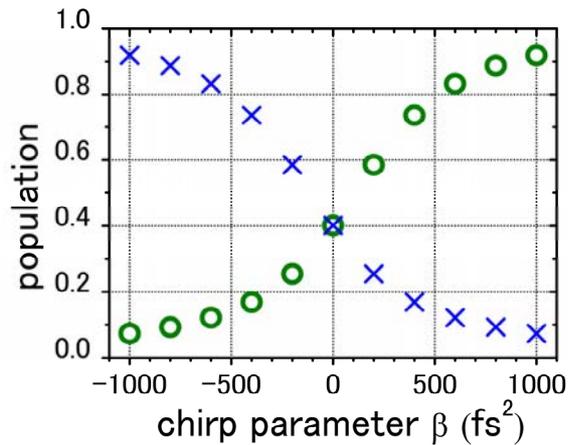


図 3.2-26 : パルス通過後の ρ_{22} , ρ_{33} の β 依存性

チャープという位相情報は分極の作用の違いとして現れる。パルスの持続時間の範囲内で、形成された分極が位相緩和の効果により打ち消されてしまい、励起そのものが行われなくなると考えられる。たとえば、 $\beta = 1000$ (fs²) の時、2-3 準位間分極の位相緩和時間を 10ps、1-2(3)間を 10fs とすると、チャープパルスでの励起に特有の一つの励起準位への偏った励起が起こらない。

3. 2. 6 フェムト秒位相分光法

3.2.6.1 光の位相検出

位相制御光源の開発とならんで、光パルスの内部位相を波長分割かつ時分割で検出する技術も、このプロジェクト研究の重要要素である。本プロジェクトでは、フェムト秒パルスの内部位相に着目して、光の位相を周波数分割して測定する技術の確立をめざした。

非線形位相シフトをフェムト秒の時間分解能で精度良く測定する方法としてフェムト秒サニャック干渉計を開発した。フェムト秒サニャック干渉計では、被測定光と参照光とが共通の光路を反対周りに伝搬する。図 3.2-27 にフェムト秒サニャック干渉計の基本形を示す。プローブパルスと参照パルスはリング型干渉計の同一光路を逆向きに伝搬してくるので、干渉計からは同時に出てくる。それゆえ、干渉計の光学系が機械的に揺らいでも、その揺らぎは被測定光と参照光とで互いに打ち消し合う。干渉測定最大の課題である干渉縞の安定性が自動的に保証されるのである。

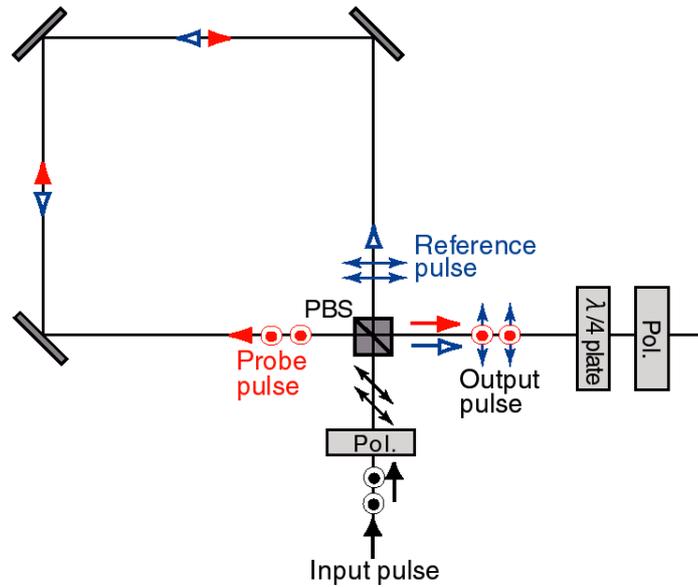


図 3.2-27：フェムト秒サニャック干渉計の基本配置

プローブ光と参照光は、試料に到達する時間は異なるが、干渉計を出射する際には時間的・空間的に重なり合う。そこで、励起光は参照光とプローブ光の試料到達時間の間に照射すれば、励起光による試料の変化分を取り出すことができる。リング型干渉計で反時計回りに伝播する参照パルスが最初に試料に到達する。そして、時計回りのプローブパルスはリングをほぼ 1 周した後、試料に到着する。そこで、励起パルスを参照パルスとプローブパルスとの間に照射すると、後から試料に到達するプローブパルスのみが非線形位相変化の影響を受けることになる。

3.2.6.2 フェムト秒偏光分割サニャック干渉計

位相シフトを定量的に求めるには、光路差を掃引しなければならないが、共通光路干渉計では、光路差の掃引は非常に難しい。本研究では、プローブ光と参照光とを互いに直交する直線偏光にすることで、干渉計を出射した光線は偏光光学素子により位相差を掃引できるようにした。以前報告されたピコ秒領域の偏光分割サニャック干渉計では、バビネ・ソレイユ補償板を干渉計内に挿入した例があるが、本方法（特許第 3533651 号）では干渉計内に可動部分が全くないので、縞の安定性を損なう要因がない。このように得られる干渉縞は、ほぼ理想的なコサイン型の干渉縞となる。これより、励起光の有無による干渉縞の変化分から、非線形位相シフトを測定することができる。それだけでなく、プローブ光の振幅変化をも精度良く分離することができる。位相変化の場合は干渉縞のピーク位置が

シフトし、吸光度変化の場合は干渉縞の深さ(可視度)が低くなる。したがって、これらふたつの寄与を分離することによって位相変化と吸収変化を独立に測定することができる。図 3.2-28 は偏光分割サニャック干渉計の実験装置である。また、図 3.2-29 に装置の全景写真を載せる。

干渉計への入射光は、偏光ビームスプリッター(PBS)を使って参照光とプローブ光に分けられる。両方の光線の強さは等しく、偏光は互いに直交している。参照光とプローブ光が直交した直線偏光であるので、その間の位相差は $\lambda/4$ 波長板と偏光子を組み合わせることでスキャンできる。垂直偏光を持つ参照光の電場 E_y を

$$E_y(t) = \tilde{E}_{ref} \cdot \exp\{i(kz - \omega t)\}$$

水平偏光を持つプローブ光の電場 E_x を

$$E_x(t, \tau, \omega) = (\tilde{E}_{pro} + \Delta\tilde{E}(\tau, \omega)) \cdot \exp\{i(kz - \omega t)\} \cdot \exp(i \cdot \Delta\theta(\tau, \omega))$$

と書き表す。 $\tilde{E}_{pro} = \tilde{E}_{ref} = \tilde{E}$ の場合には、励起がある時とない時の干渉光強度差

ΔI は、

$$\begin{aligned} \Delta I(\tau, \omega, \phi) &\equiv I' - I \\ &= \Delta\theta(\tau, \omega) \cdot \tilde{E}^2 \cos 2\phi + \frac{1}{2} \Delta\tilde{E}(\tau, \omega) \cdot \tilde{E} (1 + \cos 4\phi + \sin 4\phi) \end{aligned}$$

と計算される。この干渉光強度差は、ロックインアンプを用いて直接検出することができる。一般に ΔI は τ の関数であるが、 $\Delta\theta$ と $\Delta E/E$ を分離して求めるのには、次のように $\lambda/4$ 波長板角度 ϕ の2つの直交位相だけで十分である。

$$\frac{\Delta I_{0^\circ}(\tau, \omega) + \Delta I_{90^\circ}(\tau, \omega)}{\tilde{E}^2} = 2 \frac{\Delta\tilde{E}(\tau, \omega)}{\tilde{E}}$$

$$\frac{\Delta I_{0^\circ}(\tau, \omega) - \Delta I_{90^\circ}(\tau, \omega)}{\tilde{E}^2} = 2\Delta\theta(\tau, \omega)$$

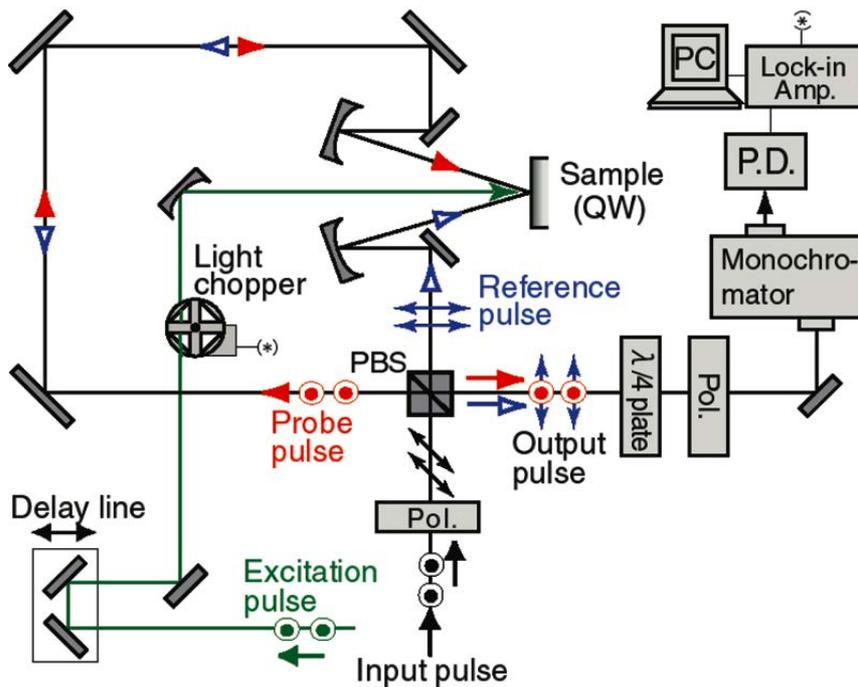


図 3.2-28 : 偏光分割サニャック干渉計の実験配置図

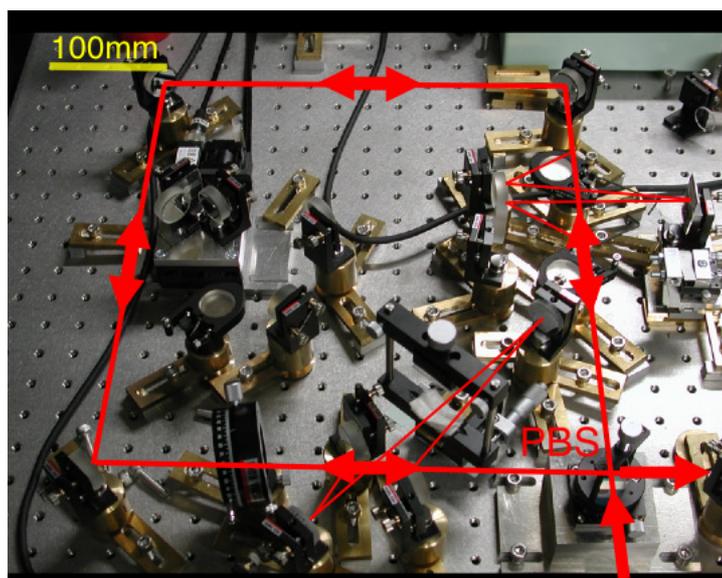


図 3.2-29 : 偏光分割サニャック干渉計の装置全景

3.2.6.3 半導体量子構造材料の非線形位相シフト

特に、このサニャック干渉計を用いれば、非線形位相シフトの波長分散特性を直接測定することが可能となる。フェムト秒パルスは本来広いスペクトル帯域をもつため、フェムト秒パルスを干渉させた後に分光検出器で分光すれば、多波長測定を行うことができる。

励起子共鳴付近での非線形分散関係を測定するために、試料としてエピタキシャル成長したGaAs/AlGaAs量子井戸を使った。試料は、あとで詳しく述べる非対

称階段型量子井戸で、井戸層 GaAs (3.0nm)/Al_{0.1}Ga_{0.9}As (6.0nm)、バリア層 Al_{0.3}Ga_{0.7}As (10.0nm) の 25 周期からなる。室温での励起子共鳴エネルギーは、蛍光スペクトルから 1.56 と 1.58eV と求められた。GaAs 基板は除去していないので、反射光を検出した

図 3.2-30 に、非対称階段型量子井戸 (Al_{0.3}Ga_{0.7}As/Al_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs) の第一励起準位波長付近で測定した、いくつかの時間遅延における時間分解位相差スペクトル $\Delta\theta$ および、振幅変化スペクトル $\Delta E/E$ を図 3.2-30 に載せる。 $\Delta\theta$ と $\Delta E/E$ は、それぞれ、励起子共鳴のまわりでピーク形と分散形を示し、重い正孔と軽い正孔の寄与がスペクトルの構造として観察できる。この時間分解非線形分散スペクトルより、非線形位相変化と振幅変化についてのあらゆる情報を得ることができる。たとえば、このスペクトルから、励起子共鳴エネルギーの近傍では、 $\Delta E/E$ 、 $\Delta\theta$ は極値となっており、その光子エネルギーでは位相変調が支配的になることが理解できる。したがって、この波長で動作させれば、信号光強度の変動なく純粋に位相シフトのみを与えることができ、位相変調デバイスとして理想的であるということがわかる。

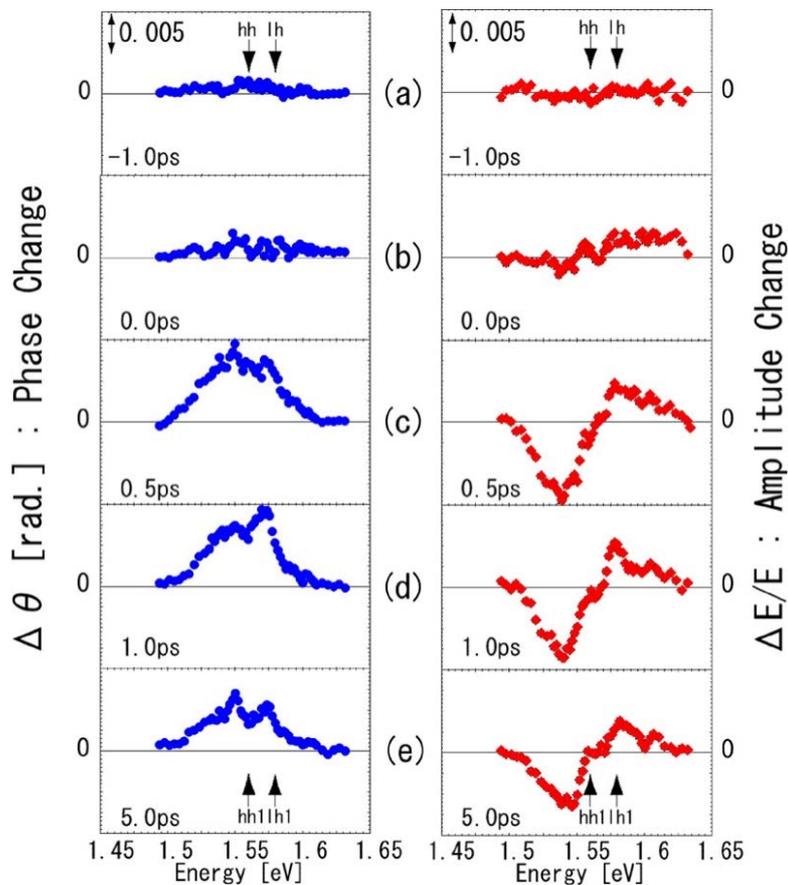


図 3.2-30 : いくつかの時間遅延における時間分解位相差スペクトル、
および振幅変化スペクトル

図 3.2-31 は、励起子共鳴付近の (a) 1.600eV、(b) 1.570eV、および (c) 1.540eV における非線形位相変化と振幅変化の時間依存性を示す。 $\Delta\theta$ および、 $\Delta E/E$ は励起の後、時間分解能 50fs 以内で立ち上がることがわかる。これは観測した全てのプローブ光子エネルギーで、同じ時間応答特性を示している。ゼロ遅延付近での瞬時的な応答あるいはコヒーレント過渡現象は顕著に見られなかった。このように、スイッチオンの時間は制御光に時間的に追従するが、一方で、スイッチオフは半導体試料のキャリア寿命に依存することもわかる。この変化は測定時間範囲内ではほとんど減衰せず、減衰時間はナノ秒におよぶバンド間遷移のキャリア寿命に対応するものと考えられる。これより、フォトニックデバイスの超高速動作を実現するには、キャリア寿命に依存しないデバイス原理を工夫しなければならないということも言える。

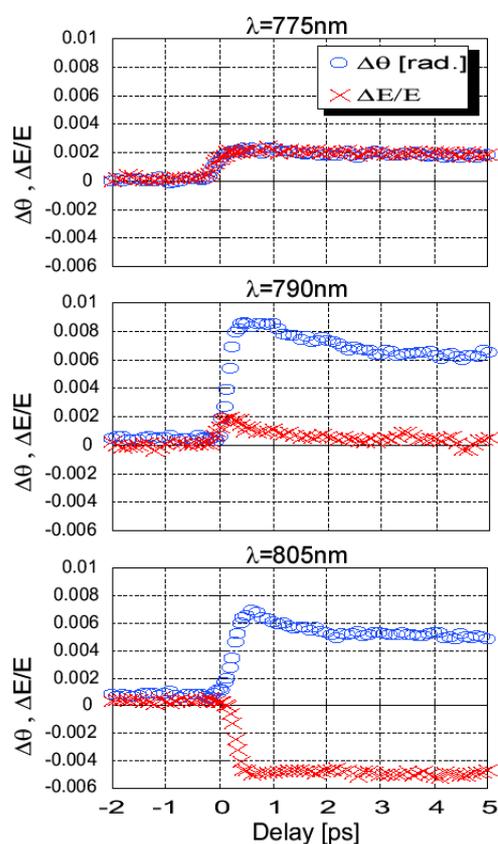


図 3.2-31：非線形位相変化と非線形振幅変化の時間依存性

3. 2. 7 単一ショット位相測定

3.2.7.1 スペクトル領域干渉計

前述した周波数分解光ゲート法 (FROG) などの位相測定方法では、自己相関信号を遅延時間 τ の関数として測定するため、遅延時間ごとに異なる光パルスが必要とする。その結果として、パルス列の中の光パルスの位相を個別に測定すること

は実現されておらず、複数の光パルスで平均化された位相を測定するにとどまっている。通信データのように時系列でランダムにデータが伝送されてくる場合には、単一の光パルスの位相を測定する必要がある。そのためには、遅延時間 τ を掃引することなく位相情報を抽出できるスペクトル領域干渉計(spectral phase interferometer:SPI)が必要である。

スペクトル領域干渉計は、マイケルソン干渉計を基本とする。図 3.2-32 にスペクトル領域干渉計の構成を示す。被測定パルスをプローブ光とし、もう一方のアームを位相の基準となる参照光とする。このプローブ光と参照光の間に時間的な間隔を与え、分光器に入射する。するとプローブと参照光は分光器によりフーリエ変換される。その結果、スペクトル領域上で干渉した干渉縞を測定する。この干渉縞の振動項部分に位相情報が含まれており、フーリエフィルタリングによって、参照光に対するプローブ光の位相変化を導くことができる。スペクトル領域干渉計は、以下に示す多くの利点がある。

- ・マイケルソン干渉計の形状とすることで、ビームスプリッタとミラーの二つの光学部品だけで光路長を調整できる装置を構成できる。
- ・プローブ光と参照光を時間的、空間的に重ねるための調整が容易である。
- ・プローブ光と参照光の間の時間的な間隔を固定して測定するので、掃引して測定する際の光軸のずれがない。
- ・掃引せずに測定することで、大量の測定データを必要とせず、短時間で干渉縞全体を取得できるので、位相測定の信頼性が非常に高い。
- ・プローブ光と参照光の間の時間間隔よりも、光学素子の機械的な振動揺らぎは非常に長いので、振動による変位を無視できる。
- ・解析時にプローブ光と参照光の差分を取ることで、分散などの影響を外部の補正機構を用いずに除去できる。

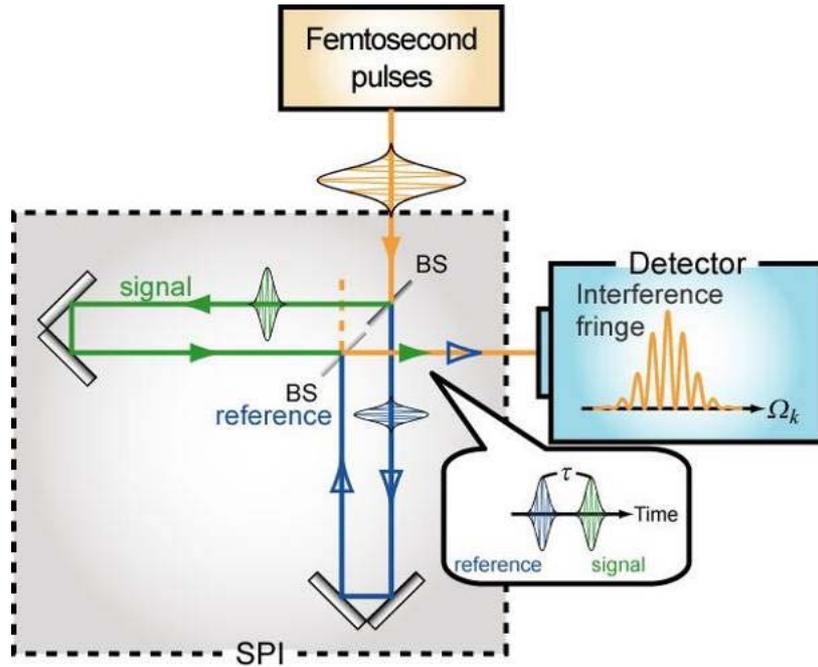


図 3.2-32 : スペクトル領域干渉計の構成

スペクトル領域干渉計は、マイケルソン干渉計において、一方のアームは参照光、もう一方のアームは変調を受けるプローブ光とし、参照光に対し時間的な遅延 τ を与える。この参照光とプローブ光を同軸にして分光器に入射し、それらのスペクトル干渉縞を測定することにより位相情報を得る。ここで、参照光 $E_{ref}(t)$ と変調を受けていないプローブ光 $E_{pro}^{(noex)}(t-\tau)$ はスペクトルも時間波形も同一であり、変調を受けていないプローブ光は参照光に対し任意の時間的な遅延 τ を与えただけの光パルスであると定義する。

$$E_{ref}(t) = \sum_k \left| \tilde{E}(\Omega_k) \right| \exp[i\Phi(\Omega_k)] \exp[-i\Omega_k t]$$

$$E_{pro}^{(noex)}(t) = \sum_k \left| \tilde{E}(\Omega_k) \right| \exp[i\Phi(\Omega_k)] \exp[-i\Omega_k (t - \tau)]$$

実験で検出するのはこれらの電場の和のパワースペクトルなので、

$$\begin{aligned} D^{(noex)}(t) &= \left| F[E_{ref}(t) + E_{pro}^{(noex)}(t - \tau); t \rightarrow \Omega_k] \right|^2 \\ &= \left| \tilde{E}(\Omega_k) \right|^2 (2 + 2\cos[\tau\Omega_k]) \end{aligned}$$

このように、プローブ光が位相シフトを受けていない場合のスペクトル干渉縞は、実電場の振幅と振動項の積で表される。この振動項の引数は、遅延時間を係数とした線形項 $\tau\Omega_k$ になっている。位相変調と振幅変調を受けたプローブ光

$$E_{pro}^{(ex)}(t - \tau)$$

$$E_{pro}^{(ex)}(t - \tau) = \sum_k \left| \tilde{E}(\Omega_k) + \Delta\tilde{E}(\Omega_k) \right| \exp[i\{\Phi(\Omega_k) + \Delta\Phi(\Omega_k)\}] \exp[-i\Omega_k(t - \tau)]$$

として表すと、測定される参照光とのスペクトル干渉縞 $D^{(ex)}(t)$ は

$$\begin{aligned} D^{(ex)}(t) &= \left| F[E_{ref}(t) + E_{pro}^{(ex)}(t - \tau); t \rightarrow \Omega_k] \right|^2 \\ &= \left| \tilde{E}(\Omega_k) \right|^2 + \left| \tilde{E}(\Omega_k) + \Delta\tilde{E}(\Omega_k) \right|^2 + 2 \left| \tilde{E}(\Omega_k) \right| \left| \tilde{E}(\Omega_k) + \Delta\tilde{E}(\Omega_k) \right| \cos[\tau\Omega_k + \Delta\Phi(\Omega_k)] \end{aligned}$$

となる。振動部分に非線形位相変化 $\Delta\Phi(\Omega_k)$ が、包絡関数部分に非線形振幅変化 $\Delta\tilde{E}(\Omega_k)$ が含まれている。フーリエフィルタリングにより、振動項の引数と係数部分を抜き出し、非線形位相変化 $\Delta\Phi(\Omega_k)$ および非線形振幅変化 $\Delta\tilde{E}(\Omega_k)$ を分離することができる。

3.2.7.2 単一ショット測定

超高速光パルスを検出する手段として、非線形光学結晶による第2高調波発生を利用する相関検出法、超高速フォトダイオード、アバランシェ・フォトダイオード、ストリークカメラなどが挙げられる。単一の光パルスのみ非線形位相変化と非線形振幅変化を測定するためには、スペクトル領域干渉計に加えて、フェムト秒光パルスのパルス列を時間的にとらえることができる検出器が必要である。これは、高速のCCDカメラやストリークカメラを用いることにより可能となるが、高速CCDカメラは、繰り返し周波数1kHzのパルス列を測定した例しか報告されていない。これに対し、ストリークカメラはGHzの繰り返し周波数まで対応できる。

単一の光パルスの位相の測定は、遅延時間を掃印することなく、位相を測定できる干渉計とパルス列の中のパルスを個別にとらえることができる検出器を組み合わせることで実現できる。そこで、前項のスペクトル領域干渉計とストリークカメラを組み合わせる。図3.2-33に単一ショット位相測定の実験配置図を示す。図3.2-34にはSPI、分光器、ストリークカメラを組み合わせることによる、時間分解されたスペクトル干渉縞の概念図を示す。

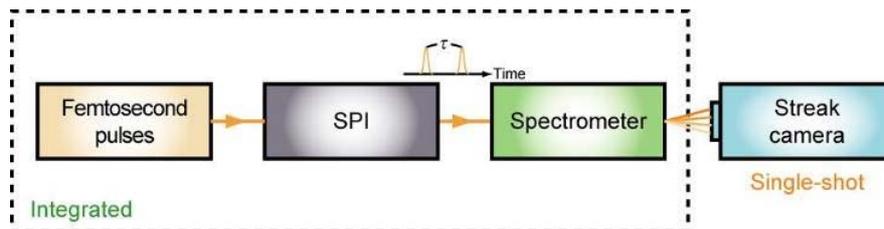


図 3.2-33: 単一ショット位相測定の実験配置図

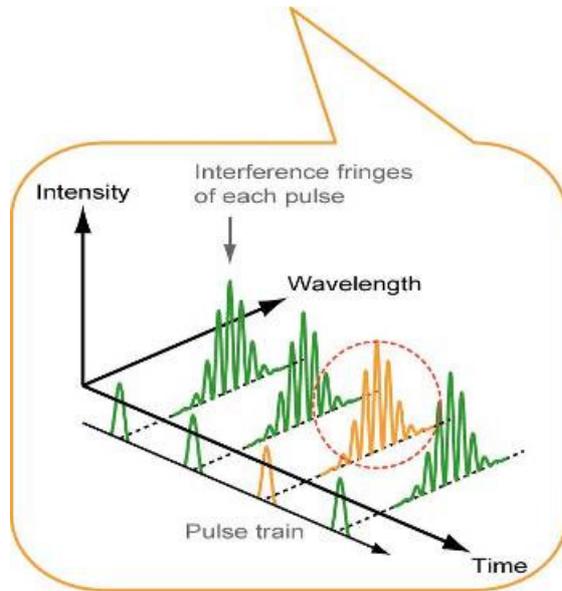


図 3.2-34:時間分解されたスペクトル干渉縞の概念図

参照光、プローブ光には、モード同期チタンサファイアレーザから出射される、繰り返し周波数 76MHz、時間幅 50fs、中心波長 800nm、光パルスを使用し、励起光には同じ光パルスをシード光とした再生増幅器から出射される繰り返し周波数 1kHz、時間幅 50fs、中心波長 800nmの光パルスを使用する。非線形光学媒質である二硫化炭素の緩和時間は 2ps、DTTC-Iodideの緩和時間は 1nsである。これはプローブ光の繰り返し周期 13nsよりも十分に短いので、励起光の影響を受けるプローブ光のパルスは励起光照射の直後に入射されたパルスのみとなる。励起光により非線形光学媒質を励起し、緩和するまでの間にプローブ光のパルスを入射する。これにより、プローブ光のパルス列の中で励起光が入射された直後の光パルスのみが非線形屈折率変化と非線形吸光度変化の影響を受け、非線形位相変化と非線形振幅変化を生じる。そして、プローブ光と参照光の間に時間差を与え、二つの光を空間的に重ねて、分光器に入射し、空間的に波長を分ける。それを時間分解能 50psのストリークカメラに入射してパルス列を時間的に分解することで、励起光照射による非線形位相変化と非線形振幅変化をもったパルス列を測定することができる。

図 3.2-35 にCS₂により変調されたパルス列を単一ショット測定した二次元ストリーク画像を示す。時間軸より繰り返し 76MHzのパルス列が時間的に分解され、波長軸より明暗の干渉縞からスペクトル干渉している。そして、時間軸での上から 2 番目のパルスのみが光励起の影響を受けた光パルスである。そして、図 3.2-35 の時間軸での上から二番目のパルスのみスペクトル干渉縞が右にシフトしていることより位相変化が確認できる。図 3.2-36 と図 3.2-37 は、スペクトル

干渉縞をパルスごとにフーリエフィルタリングし、導出した非線形位相変化と非線形振幅変化である。位相差を示す、図 3.2-36 では、太線で示した図 3.2-35 の時間軸での上から二番目のパルスのみ、他とは大きく異なり、3rad付近に非線形位相変化が確認できる。曲線が一定の値になっていないが、これは測定誤差によるものである。変調を与えていない場合の曲線は、0.8rad程度の揺らぎがあり、非線形位相変化にもこの揺らぎ程度の誤差が生じる。振幅の比を示す、図 3.2-37 では、どのパルスもゼロ付近に集まっており、非線形振幅変化が小さいことが確認できる。

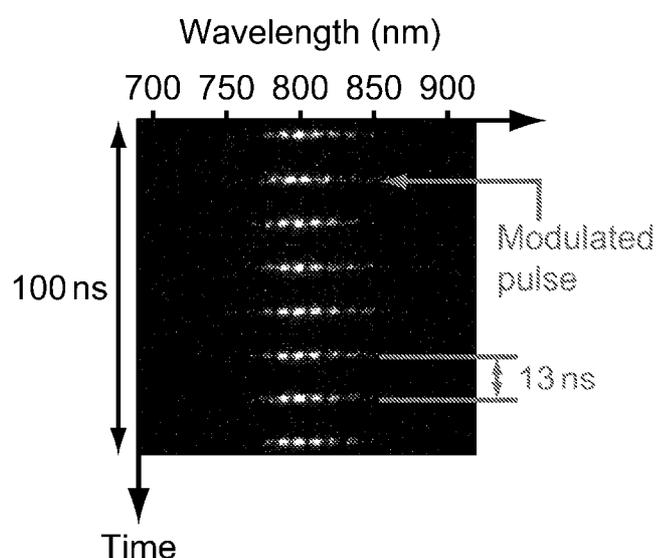


図 3.2-35 : CS_2 により変調されたパルス列の二次元ストリーク画像

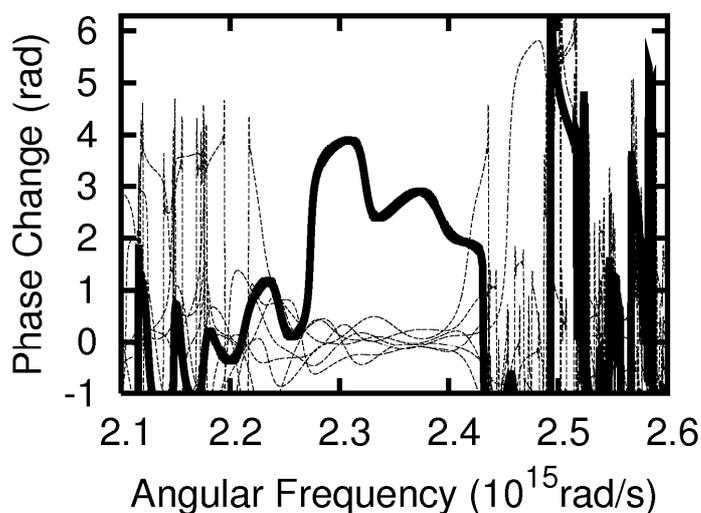


図 3.2-36 : スペクトル干渉縞から導出した非線形位相変化

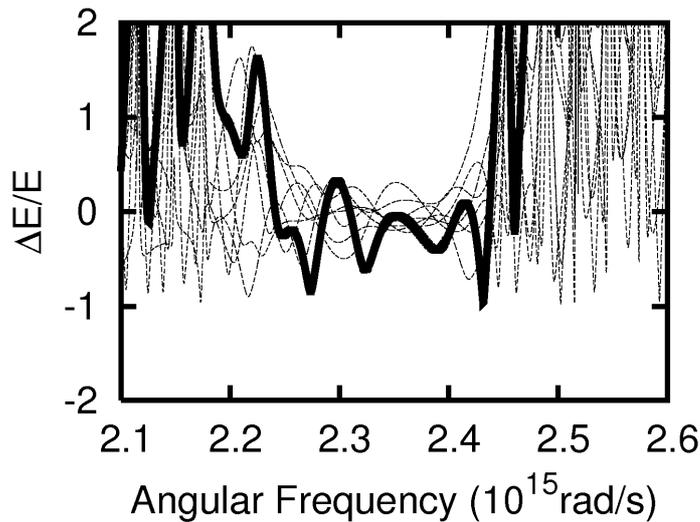


図 3.2-37 : スペクトル干渉縞から導出した非線形振幅変化

図 3.2-38 にDTTC-Iodideにより変調されたパルス列を単一ショット測定した二次元ストリーク画像を示す。時間軸より繰り返し 76MHzの時間軸での上から 2 番目のパルスのみが光励起の影響を受けた光パルスである。図 3.2-38 の時間軸での上から二番目のパルスのみ強度が増加し、かつ、スペクトル干渉縞が左にシフトしていることより振幅変化と位相変化が確認できる。図 3.2-39 は、スペクトル干渉縞をCS₂の場合と同様に、パルスごとにフーリエフィルタリングし導出した非線形位相変化と非線形振幅変化である。太線は非線形位相変化を、細線は非線形振幅変化を表す。破線は参考のために載せたDTTC-Iodideの吸収曲線である。1Radほどの非線形位相変化と 1.5 程度の振幅比を確認できる。

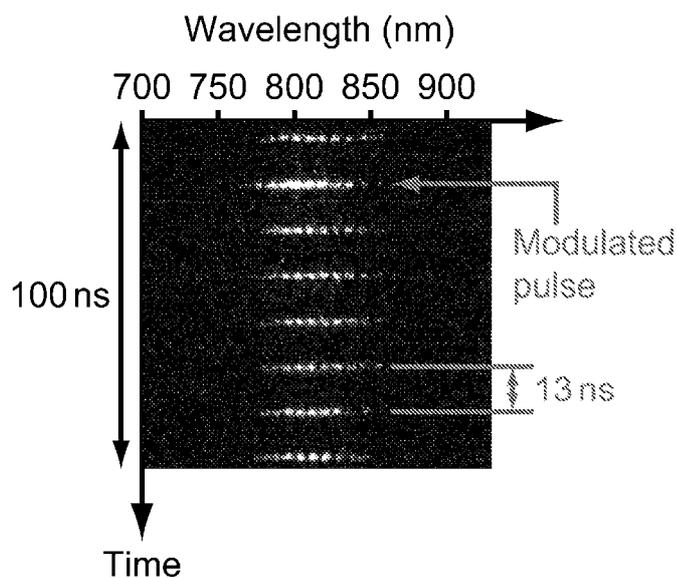


図 3.2-38 : DTTC-Iにより変調されたパルス列の二次元ストリーク画像

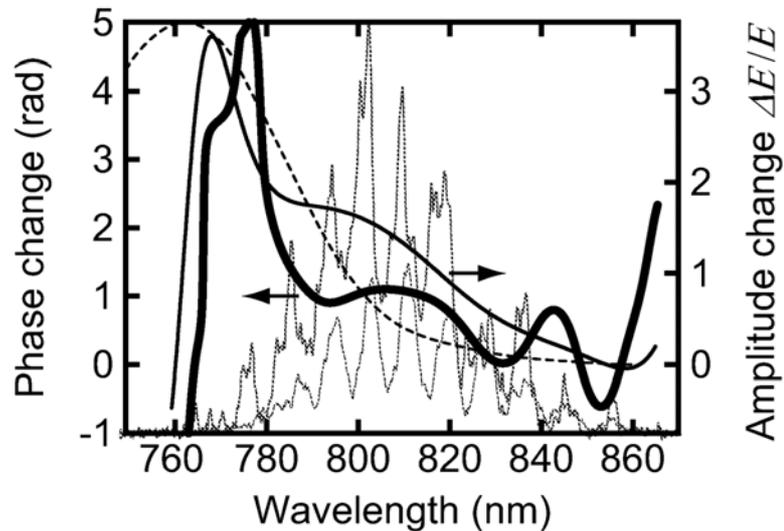


図 3.2-39：スペクトル干渉縞をから導出した非線形位相変化と非線形振幅変化

3. 2. 8 非対称階段型量子井戸構造

3.2.8.1 基本構造

量子波束が物質中に励起されるためには、その過程において複数の準位の波動関数の間で相対的な位相が固定でなければ波束とならない。そこで、先に述べた量子波束を用いた位相情報を保持、演算するためのデバイスを実現するためには、次のような特性をもつ必要がある。

- ・複数のエネルギー準位をもつ多準位系であること
- ・単一準位から複数準位への遷移が許容であること
- ・応用上の観点から、固体であること

が望まれる。本プロジェクトでは半導体中における量子波束の生成を実現するために、非対称階段型量子井戸 (Asymmetric Stepped Quantum Well、ASQW) を提案した。図 3.2-40 はバンド間遷移を用いて量子波束を半導体中に励起するために考案された半導体ナノ構造である。このとき、量子波束は価電子帯の電子の波動関数の重ね合わせであるから以下では電子波束とよぶ。単純な量子井戸では選択則によって、半導体中に電子波束を励起するために必要な単一準位から複数準位への光学遷移が許容ではない。ASQWでは井戸の中にステップをもうけポテンシャル形状を非対称にすることで選択則が改変され、単一準位から複数準位への遷移が許容である構造を実現している。このような構造は、 $Al_{1-x}Ga_xAs$ 系材料で、成分比 x の値の異なる超薄膜を積層した多層構造で実現できる。

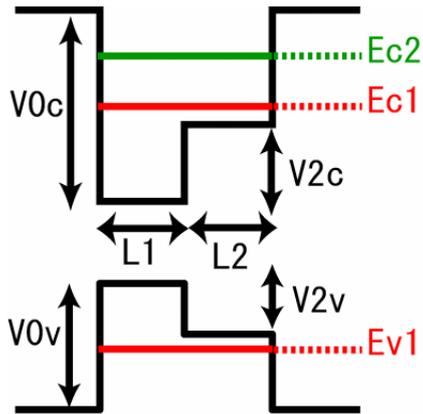


図 3.2-40：非対称階段型量子井戸構造

3.2.8.2 選択則の改変

ASQWに関するより詳細な検討から、選択則を崩すASQW形状を探す上で、ASQWの形状を以下の3種類に分類することが有用であることがわかった。すなわち、各バンドの第1準位 E_{v1} 、 E_{c1} に注目して、図3.2-41のようにA、B、Cの3つに分類する。

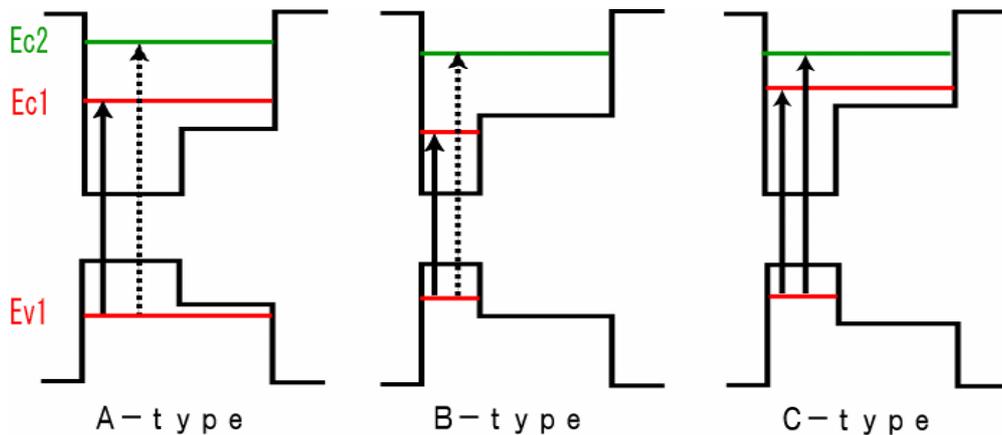


図 3.2-41：非対称階段型量子井戸構造の3タイプ

Aでは $E_{v1} > V_{v2}$ 、 $E_{c1} > V_{2c}$ であり、各準位ともステップ外に出ている。逆に、Bでは $E_{v1} < V_{v2}$ 、 $E_{c1} < V_{2c}$ であり、各準位ともステップ内に閉じ込められている。A-typeのASQWでは ϕ_{v1} 、 ϕ_{c1} が共に、全体の量子井戸幅全体に広がってしまう。同様に、B-typeのASQWでは E_{v1} 、 E_{c1} といった対応する準位の波動関数 ϕ_{v1} 、 ϕ_{c1} が共に、ステップ内に局在してしまう。このために ϕ_{v1} と ϕ_{c1} とがきわめて類似した形状となり、選択則を崩せない。しかし、C-typeのような $E_{v1} < V_{v2}$ 、 $E_{c1} > V_{2c}$ を満たす構造が実現すれば、基底準位の波動関数 ϕ_{v1} は価電子帯ではステ

ップ内に局在し、伝導帯では ϕ_{c1} は量子井戸全体に広がり、空間的な形状が顕著に異なるといった可能性が期待できる。

図 3.2-42 はステップ位置 ($L1$ 、 $V2c$) に対する遷移確率 P_{v1c1} の大きさを調べ、色で示したものである。赤色で示してある領域の内部では P_{v1c1} が小さいことを表している。従って、ステップ位置をこの領域内に選ぶことにより、複数準位への遷移を、より大きく許容させることができる。

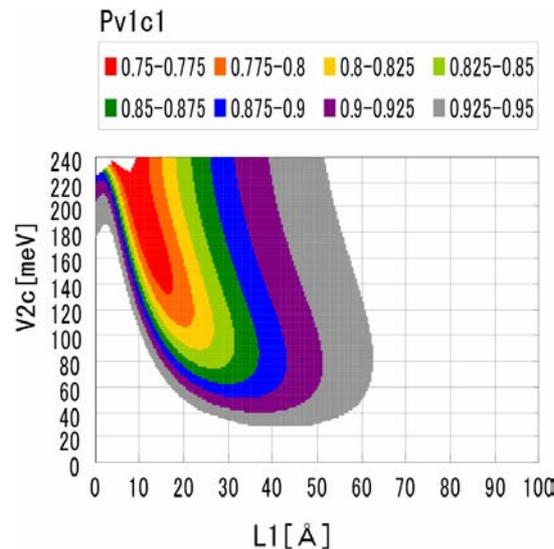


図 3.2-42 : ステップ位置 ($L1$ 、 $V2c$) に対する遷移確率 P_{v1c1} の大きさ

3.2.8.3 C-type ASQWの最適設計

これまで、量子井戸の全幅 $L1+L2$ を 100\AA に限った ASQW について考えてきたが、量子井戸形状の自由度を広げて考えると、電子波束形成に、より適した構造を得ることができる。例えば、量子井戸の全幅を広くすることによって、複数準位への遷移確率を同程度まで許容させる構造を得ることが可能である。

図 3.2-43 は ASQW の溝の深さ $V2c$ を 80meV 一定とし、 $L1+L2$ を変えた場合の、準位間エネルギーと波動関数の関係を示したものである。具体的には全幅 $L1+L2$ が 100\AA (a)、 200\AA (b)、 300\AA (c) の場合について計算を行った。結論としては、全幅 $L1+L2$ を広げることによって、 P_{v1c2} 、 P_{v1c3} が大きく許容される。これに伴い、総和則の関係から P_{v1c1} が非常に小さくなっている。特に、図 4.3 のように $L1+L2=300\text{\AA}$ にした構造では、遷移確率 $P_{v1c1}=P_{v1c2}$ とほぼ等しくなり、さらに P_{v1c3} 等の高次の準位への遷移が大きく許容されている。

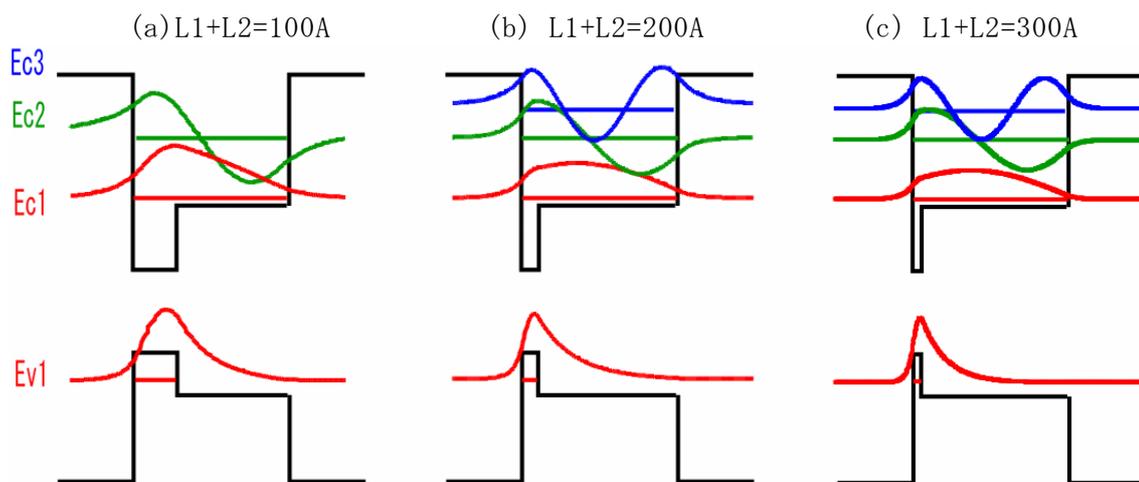


図 3.2-43 : 遷移確率が最も近づく、最適位置での波動関数

図 3.2-43(a)に比べて、 $L1+L2$ が広い図 3.2-43(b)、(c)の方が、 ϕ_{v1} が $L1$ の範囲に強く閉じ込められ、 ϕ_{c1} が量子井戸全体に広がっていることが見て取れる。つまり、量子井戸の全幅 $L1+L2$ が広いほど、波動関数 ϕ_{v1} 、と ϕ_{c1} の空間的な局在性を大きく異ならせることができる。このことが P_{v1c1} の著しい減少、 P_{v1c2} さらに P_{v1c3} といった遷移の増大につながるのである。

次に $P_{v1c1}=P_{v1c2}$ という最適設計での、準位 $c1$ 、 $c2$ によって形成される電子波束の、時間的変動を、図 3.2-44 に示した。ただし、波束を形成する波動関数の係数部分の位相は全て 0 としている。2 準位によって形成される電子波束の時間的変動は、準位間エネルギー ΔE_{21} ($=12\text{meV}$) に対応する振動周期 T_{21} ($=35\text{fs}$) で、周期的な変動をする。

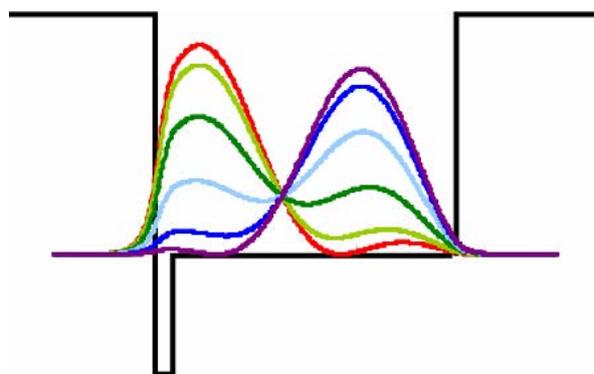


図 3.2-44 : 最適設計での波束の時間的変動 $L1(=20\text{\AA}) + L2=300\text{\AA}$, $V_{2c}=80\text{meV}$

3.2.8.4 非対称量子井戸構造の設計、結晶成長

量子井戸内での光学遷移において、電子-ホールそれぞれの基底準位間遷移と、

ホール基底準位一電子第一励起準位間遷移が、ほぼ同様の確率で生じる構造を作製し、量子波束の制御の初期実験用のサンプルとした。具体的な構造としては、まず 25 周期 (GaAs3nm、Al_{0.1}Ga_{0.9}As7nm) 非対称well/Al_{0.3}Ga_{0.7}As10nmバリア構造を成長した。この試料を以下では 9nmASQWと呼ぶ。(図 3.2-45) また、波束の運動周期はc1-hh1 とc2-hh1 のエネルギー差が約 87.9meVであるから約 47fsである。

室温でのPL測定では、発光半値幅は 29meV程度と、一般的なGaAs系量子井戸での値よりやや(10%程度)大きいことが判明した。これは、波動関数が混晶のAlGaAsにまで広がり、また急峻界面形成のために基板温度を下げているため、AlGaAsの品質が多少劣化しているためと推察される。

9nmASQWではc1-hh1 とc2-hh1 の遷移確率の比はほぼ、7:1 である。そのため、c1-hh1 に偏った励起が起こると考えられ、量子波束励起に最適とはいえない。また、実験で用いる光パルスの時間幅がその測定の時間分解能にあたる。そこで、c1-hh1 とc2-hh1 の遷移確率が同程度で、波束の振動周期を約 100fsの試料を設計した。複数準位への遷移確率がなるべく等確率になるためには井戸の全幅を広げることが有効なので、井戸の全幅を広げ、さらに波束の運動周期が約 100fsとなるようにc1-hh1 とc2-hh1 のエネルギー差が約 40meVになる組み合わせを探した結果、井戸の全幅を 20nm、ステップ幅を 2nmとすると遷移確率の比がおおよそ (c1-hh1):(c2-hh1)=1.6:1 となることが分かった。この試料を以下では 20nmASQW(C-type)と呼ぶ。(図 3.2-45)さらに比較のために井戸の全幅やバリア層など他の条件はまったく同じとし、ステップ幅をのみを 4nmと変更した試料も作成した。このときは図 3.2-43(b)のように価電子帯、伝導帯の基底準位がステップの中に局在するB-typeとなる。このとき遷移確率の比はおおよそ (c1-hh1):(c2-hh1)=10:1 であり、B-typeでは選択則を大きく変更することができないことが分かる。これを以下では 20nmASQW(B-type)と呼ぶ。(図 3.2-45)また、積層は光変調反射測定において試料表面と井戸層、井戸層と基板との多重反射効果を考慮し、c1-hh1 とc2-hh1 の許容遷移エネルギーにおいてスペクトルの構造が同じ形状になるよう 6 層とした。波束の運動周期はC-typeが約 171fs、B-typeが約 111fsである。

さらに、基底準位間遷移エネルギーを調整するために、量子井戸をInGaAs/GaAsとする構造も作製した。ここで、伝導帯のバンド不連続量が、基底準位と高次準位の波動関数の形状を決定し、これが初期の目的達成のために本質的であるため、GaAs上のInGaAsの歪によるバンド構造変化量を定量的に計算し、そのIn組成および膜厚を決定した。具体的には、量子井戸構造を 25 周期の (In_{0.1}Ga_{0.9}As3nm、GaAs7nm) 非対称well/Al_{0.3}Ga_{0.7}As10nmバリア構造としたサンプルを作製した。PL

測定で得られた発光波長はほぼ設計通りであった。また室温でのPL発光半値幅は、17meV程度と非常に良好な値を示した。これより、不純物等や、界面だれ等の問題がほとんど存在しないと期待される。

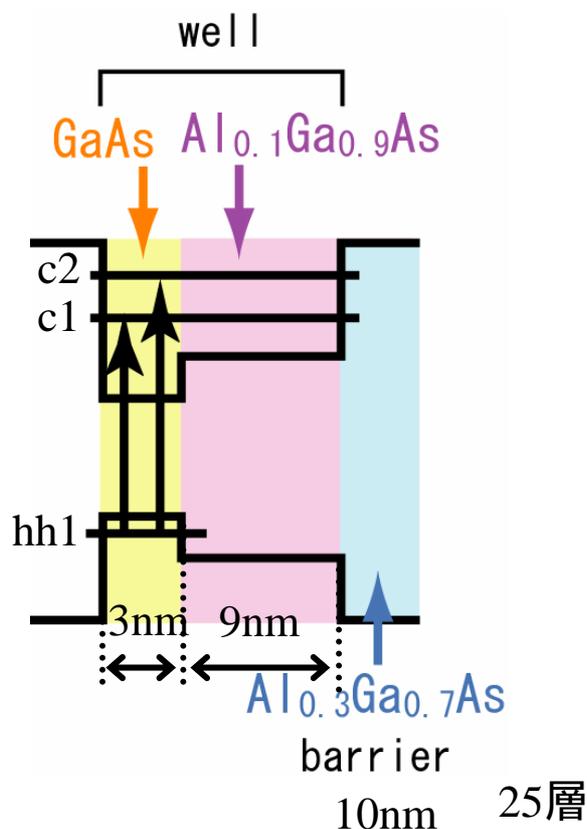


図 3.2-45 : 作製した試料構造

3.2.8.5 光変調反射

作製したASQWが電子波束励起のための物質としての条件を満たすかを評価するために光変調反射分光を行った。光変調反射では、ポンプ光としてCWレーザー（波長 532nm、2331meV）を試料に照射し、プローブ光として白色光であるハロゲンランプ（15W）を分光器で分光（分解能 3.625nm）して、その反射率変化を測定する。これにより、ASQWの遷移エネルギーおよび遷移の選択則が実測できる。

図 3.2-46 は 9nmASQWに対する光変調反射測定の結果である。光変調反射スペクトルでは許容遷移が存在するエネルギーでスペクトルの形状が分散型、ピーク、ディップといった構造をもつ。そこで、9nmASQWの遷移エネルギーの計算値であるc1-hh1:1577.46meV、c2-hh1:1645.4meV付近に注目する。実験の結果を見るとそれよりもほぼ 5meV低い 1572meV付近に分散型、1640meV付近のピークの構造が存在する。よって、この付近に許容遷移が存在すると言える。また、この測定と

多重反射を考慮した解析との比較を行った結果、変調メカニズムとしてレベルシフトの効果を検討すると、全体のスペクトルを説明できることがわかった。また、解析の中で用いた遷移確率は設計時に計算で求めたものと同じ値を用いてこのような一致がみられる。以上から 9nmASQWは以下のようなエネルギーで価電子帯基底準位(hh1)から伝導帯の2つの準位(c1、c2)への遷移が許容であることが実証できた。その結果、電子波束生成の最小の系である3準位系がASQWを用いて実現できることが分かった。

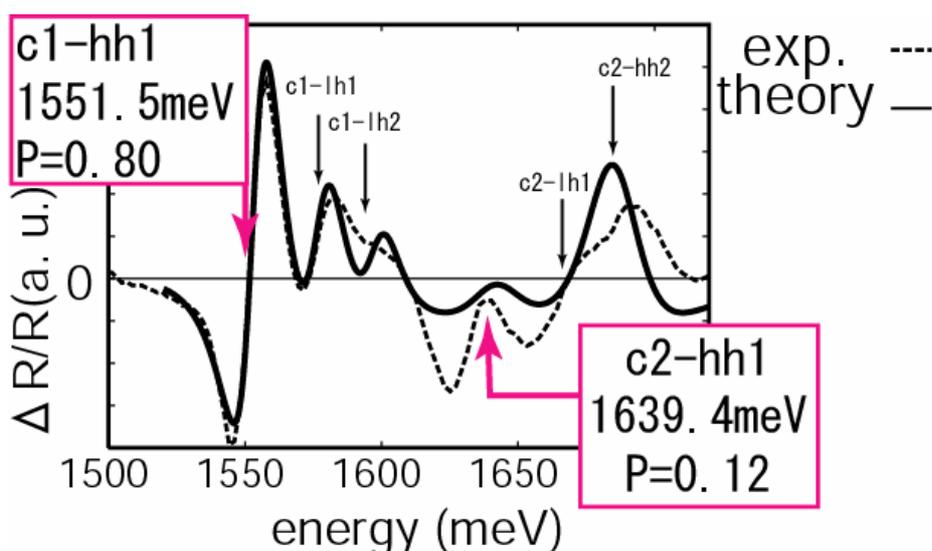


図 3.2-46 : 9nmASQWの光変調反射スペクトル

図 3.2-47 はC-type、B-typeの 20nmASQWに対するPR測定の結果である。20nmASQWでは井戸の全幅を広げたことにより、各準位間の間隔が狭くなり 9nmASQWに比べ、非常に構造の多いスペクトルが観測された。先ほどと同様に設計時の許容遷移エネルギーの計算値付近に注目する。まず、C-type、B-typeともにc1-hh1間の許容遷移エネルギー付近に注目すると、ピーク型の構造が見られる。c2-hh1間の許容遷移エネルギーに注目するとC-typeではピークの構造が見られるのに対し、B-typeでは明確な構造は見られない。このことからC-typeではc1-hh1、c2-hh1の両方の遷移が許容であるのに対してB-typeではc1-hh1のみが許容遷移であるという設計を実現しているといえる。

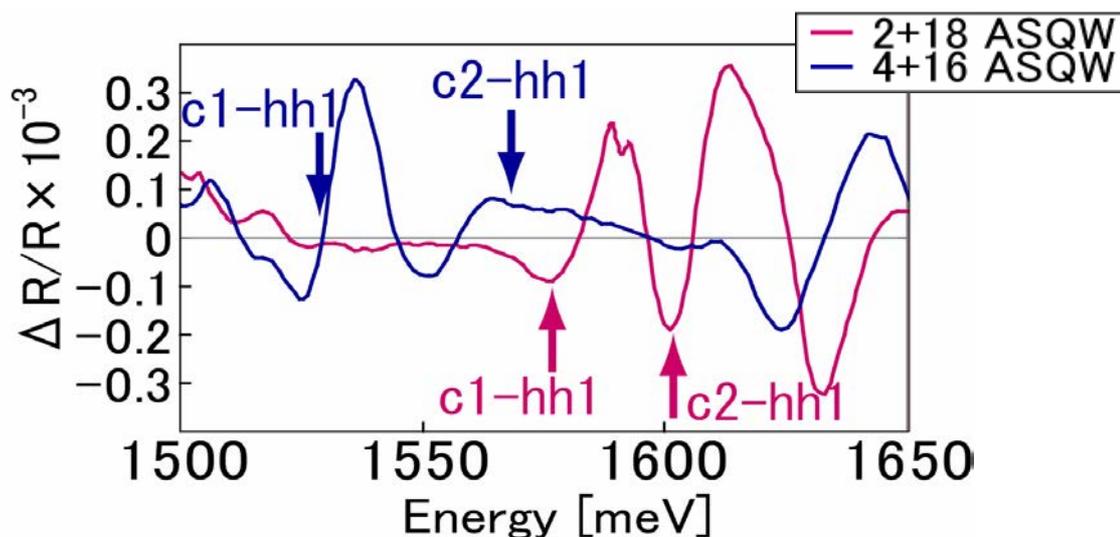


図 3.2-47 : C-type、B-typeの 20nmASQWに対するPR測定結果

3. 2. 9 得られた研究成果の評価及び今後期待される効果

フェムト秒量子波束制御グループでは、特に通信応用の分野では全く新しい概念である「量子波束制御エンジニアリング」を提唱し、その原理実証を行った。原理実証実験は、単に「できた」というデモンストレーションの段階で終わってしまう傾向にあるが、本プロジェクトは量子波束制御のための基盤技術を「使える」ものとして成熟させ、特許出願と同時に実用的なパッケージとしてプロトタイプ装置を製作した。

波束制御エンジニアリングの原理特許 (特願 2003-78505)

チャープ可変装置 (特許第 3569777 号)

チャープパルスの光化学反応への応用 (特願 2003-161889)

偏光分割サニャック干渉計 (特許第 3533651 号)

ラピッドスキャン型マルチチャンネル波束測定装置 (特願 2005-55578)

非対称階段型量子井戸 (特開 2004-111878)

これらの実用技術がこのプロジェクト期間中に既に他の多くの研究プロジェクトで活用されている。特に位相制御技術に熟達した研究者でなくても量子位相制御の実験を可能にしたという点で波及効果は計り知れない。以下に主な例について述べる。

(1) チャープ可変装置 : 電通大COE桂川グループ (超高繰り返しコヒーレント光源の開発)

2波長の単一モードレーザーを用いて、気相の水素分子のラマンコヒーレンスを断熱生成した。2つのレーザー周波数の差を、10.6THzで水素分子回転モードに近共鳴させてある。変調を受けて生成したラマンサイドバンドの位相制御にチャープ可変装置を用いた。断熱的な過程のため、サイドバンド間の相対位相は固定されている。適切に分散補償することで、パルス幅 21fs、パルス繰り返し10.6THzの超高繰り返し超短光パルス列の生成に成功した。

(2) チャープ可変装置 : ERATO腰原プロジェクト (光誘起相転移の制御)

フェムト秒位相制御パルスを用いて有機色素分子の励起状態波束を制御する実験を受けて、生理活性ポリエーテル分子の機能性異性体を、製造分離する方法に応用した。光反応を誘起する光パルスにチャープ可変装置を介したフェムト秒チャープパルスを用いた。

その結果、レチナール分子の全トランス体の光異性化反応について、反応効率を最大にするチャープ条件を発見した。また視覚物質として生理機能をもつ異性体 11 シスと、プロトンポンプ機能を担う 13 シス体の生成比率をみると、チャープ量をかえることで5倍程度変化させられることも発見した。

(3) 偏光分割サニャック干渉計 : CREST中村プロジェクト (光子位相制御ゲートの実現)

量子暗号ネットワーク基盤技術の実現には、固体素子として量子ゲート、量子バッファなどが必要である。半導体材料中での量子ビット実現には、半導体の励起状態を対象とした分光の技術が必要である。特に量子ビットは一般に2状態間の位相差で表されるため、光子-励起子間の位相情報の転換、読み出しには、本プロジェクトで開発したフェムト秒位相分光法が有力である。

(4) ラピッドスキャン型マルチチャンネル波束測定装置 : JST宮城横山プロジェクト (超広帯域バイオフィotonics光源の開発)

1光子および多光子レーザー顕微鏡や、多光子効果ナノ加工などバイオメディカル分野への応用に特化した小型半導体超短光パルスレーザーを開発する。この時の多光子過程による非線形光学信号の検出に高感度かつコンパクトなラピッドスキャン型マルチチャンネル分光測光装置が有力である。

3. 3 分子核波束グループ

3. 3. 1 光位相による分子核波束の精密制御

気相中の二原子分子、HgArファン・デル・ワールス (vdW) 錯体、及びヨウ素分子、を対象とし、分子内の特定の電子励起状態 (HgArにおいてはA状態、ヨウ素分子においてはB状態) に生成した分子振動の量子波束を光位相で制御し、制御の結果を読み出すことが本研究の課題である。

3. 3. 1. 1 HgArファン・デル・ワールス (vdW) 錯体

分子振動波束の生成と位相制御を行うために、パルス間遅延時間を制御した双子の光パルス対を用いる。図3. 3-1にHgAr錯体に用いた実験装置の概略図を示す。アルゴンと水銀蒸気の混合気体をパルスバルブを通して真空中にジェット膨張させることにより、HgAr錯体を基底電子状態の基底振動準位 ($v=0$) に生成する。

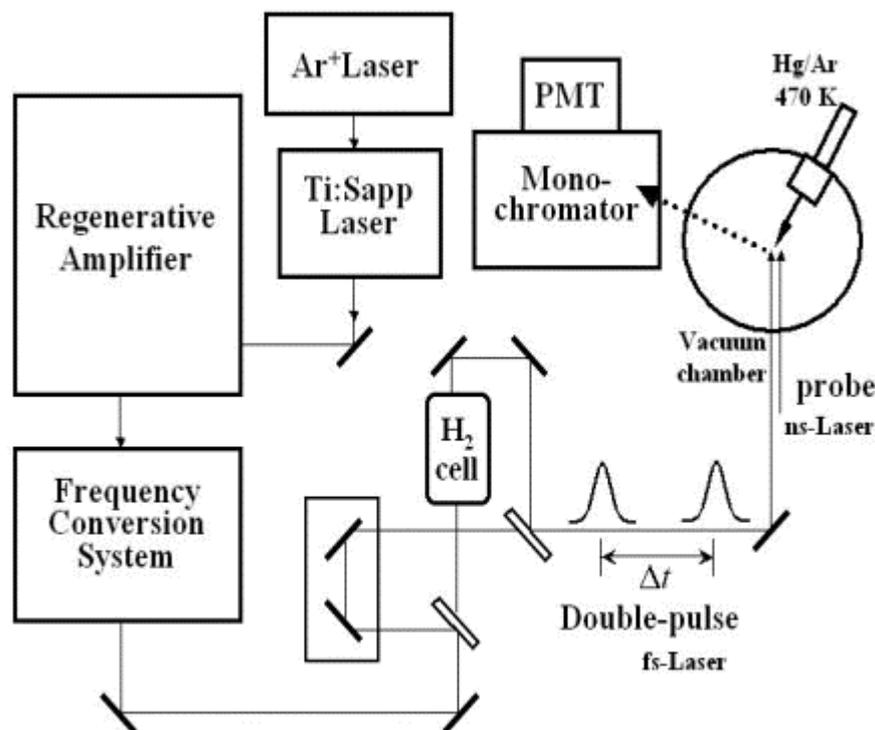


図 3. 3-1 光二連パルスによってHgAr ヴァン・デル・ワールス錯体内の振動量子波束を生成・制御する実験装置の概略図。

Ti:Sapphireレーザーの3倍高調波で得られるパルス光、中心波長 254 nm、時間幅 300 fs (fs:フェムト秒) を一次光源とし、これをマイケルソン型のダブルアーム干渉光学系に入力して二連のパルス列を発生させる。この光学系は、アームの一方に設置した並進ステージと他方に挿入した気体セル内の圧力調整によって、パルス間の遅延時間を 0~5 ps (ps:ピコ秒) の範囲で約 10 アト秒の分解能で調節することができる。(我々はこれを“アト秒位相変調器: APM”と呼んでいる)。このパルス対は一次パルスと同様の中心波長と時間幅を持つ双子の光パルスである。

これら光パルス対を真空容器内に導入し、HgAr錯体を含む超音速分子流と交差させることによって、HgAr錯体内のA状態に2つの振動波束を発生させる。この2つの波束は、光パルス対間の遅延時間に依存して様々の干渉の仕方を示し、量子干渉の結果は波束を構成する振動固有状態の確率密度(ポピュレーション)に反映する。

光パルス対によって生成・制御された振動固有状態の確率密度は、30 ns (ns: ナノ秒) 後に照射する狭帯域プローブレザーによって、A状態よりも上位にあるE状態を経由するレーザー誘起蛍光法(LIF法)によって読み出す。

光パルス (~254 nm、~300 fs) によってA状態に生成する振動波束は主に3つの固有状態 ($v = 3, 4, 5$) の重ね合わせから成る。この波束は約 1.1 ピコ秒の周期でA状態ポテンシャル内に束縛された振動運動を繰り返す。狭帯域プローブレザーの波長を選択すれば、これら3つの固有状態を別々に選別してそのポピュレーション変化をパルス間遅延時間 τ の関数として測ることができる。固有状態 $v = 3$ のポピュレーション変化を測定した結果を図 3.3-2 に示す。

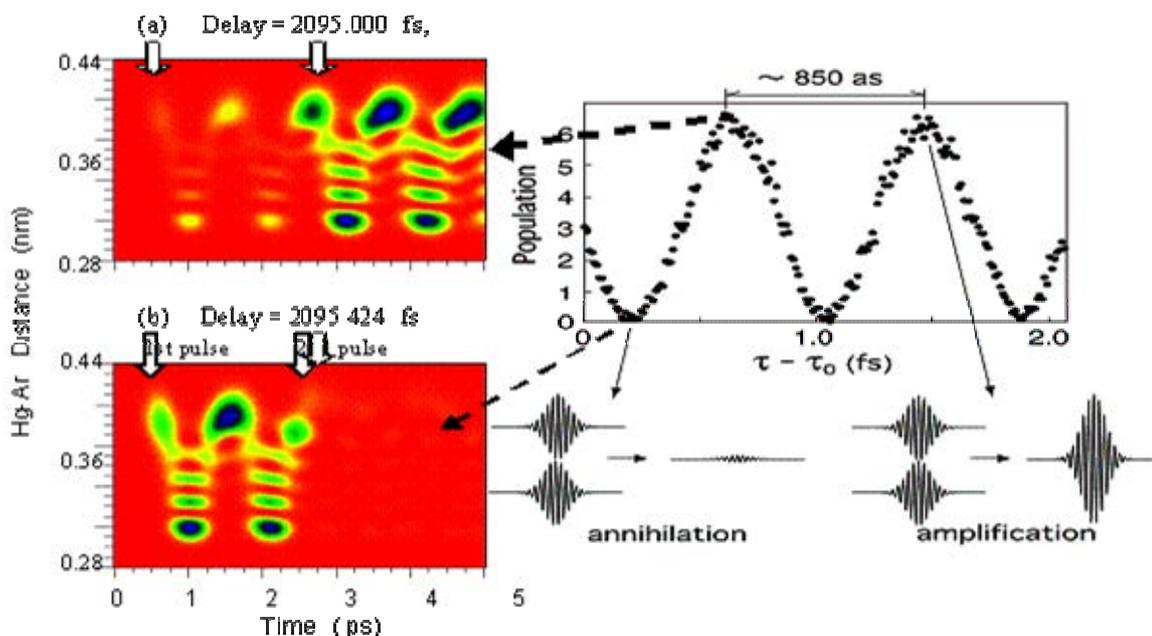


図 3.3-2 パルス間遅延時間 τ の変化に対する振動固有状態 $v = 3$ のポピュレーション変化。 τ は、波束運動の周期の 2 倍近傍 (~ 2.1 ピコ秒) において、約 7 アト秒の精度で変化させた。ポピュレーション (相対値) は波束生成パルスの光学サイクル (~ 850 アト秒) に同期した正弦波振動を示す。正弦波振動の最大値と最小値に対応する波束制御のシミュレーションを示す。

図 3.3-2 に示した固有状態ポピュレーションの正弦波振動は、時間差 τ をおいて生成した 2 つの量子波束の干渉によるもので、ラムゼー振動 (或いは、ラムゼー干渉) と呼ばれている。干渉の谷ではポピュレーションはゼロに落ちており、量子干渉がほぼ 100% のコントラストで制御されていることを示している。

他の固有状態 ($v = 3$ 或いは $v = 5$) のポピュレーションも、 $v = 4$ と全く同様に、遅延時間 τ の変化に対して 850 アト秒の光学サイクルに同期したラムゼー振動を示す。しかし各固有状態のラムゼー振動は、図 3.3-3 に示すように、遅延時間を分子振動波束の周回周期 T_{vib} (~ 1.1 ピコ秒) のどの位置で走査するかによって固有状態間に位相のずれが生じるのを観測した。

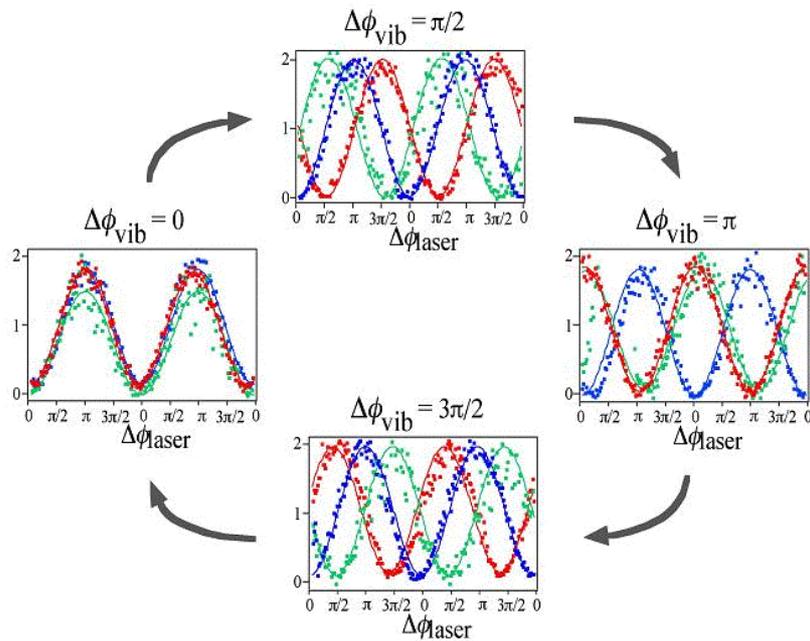


図 3.3-3 二連光パルスによってHgAr錯体のA状態に生成・制御された振動固有状態のラムゼー振動の位相のずれ。振動固有状態 $v = 3$ (赤)、 $v = 4$ (青) 及び $v = 5$ (緑) のポピュレーションに現れるラムゼー振動を示す。図の横軸はパルス間遅延時間。遅延時間はアト秒位相調節器 (APM) の水素セル内気体圧を変化させて、光学サイクル (850 アト秒) の2周期の範囲で走査した。

図 3.3-3 は、パルス間遅延時間 τ と分子振動の周期 T_{vib} の比がほぼ、 $n, n+1/4, n+1/2, n+3/4$ (n は整数) となる近傍で τ を微走査したときに観測されたラムゼー振動である。850 アト秒の光学サイクルに同期したラムゼー振動が、この図に示すように各振動固有状態の間に位相のずれを与えることは、遅延時間 τ の微走査を約 10 アト秒の高精度で行うことによって初めて観測された。このことは、遅延時間というただ一つの制御パラメーターによって、3つの振動固有状態のポピュレーション分布をある程度はコード化できることを意味している。そのようなコード化の例を図 3.3-4 に示す。

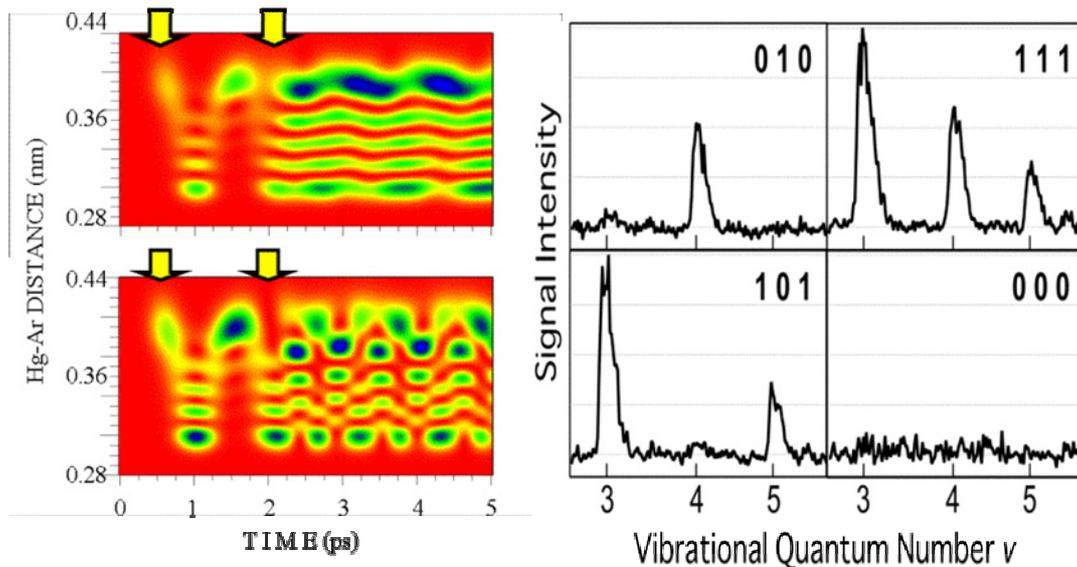


図 3.3-4 三準位ポピュレーションのコード化の例とコード (0 1 0) と (1 0 1) を発生する場合の波束の生成・制御の経過を示すシミュレーション計算。

図 3.3-4 はコード化された振動固有状態 $v = 3, 4, 5$ のポピュレーション分布を高いコントラストで読み出すことができることを示している。

双子の光パルス対は、パルス間遅延時間によって決まる位相特性を持っている。その位相特性が HgAr 錯体の A 状態で時間発展する振動量子波束に与えられた結果、図 3 や図 4 に示したようなポピュレーション分布をもたらす。この分布を読み出したのは 30 ナノ秒という長時間の後であり、系全体のコヒーレンスはすでに消失した後であろうと考えられる。それにも拘わらず、光位相が分子内の量子系に与えた情報の一部はコヒーレンスが消失した後も分子内に保持され、ポピュレーション分布測定によって読み出すことが可能であることが実証された。

双子の光パルス対が持つ位相情報は、固有状態の量子振幅（複素振幅）の中の実振幅の部分と位相部分の双方に与えられるが、今の段階では実振幅の二乗を読み出しただけあり、位相部分は読み出していない。パルス間遅延時間というただ一つのパラメーターだけでは量子振幅の実振幅と位相部分の両方を独立に制御することは出来ない。この点が双子の光パルス対を用いる自動相関 (Auto-correlation) 型量子波束制御の限界である。これを認識することは、光位相による量子制御の今後の発展を図る上で重要である。しかし本研究は光位相による量子波束制御の一つの到達点として、特に多数の分子のアンサンブルに対して図 2 及び図 3 に示したような高いコントラストの量子干渉を実現した点で、国内外で高く評価され、非常に数多くの招待講演、依頼講演の要請を受けた。

本研究は、大森賢治（現在分子研教授）と千葉 寿（現在分子研技官）が東北大・多元研の佐藤グループに在籍中に装置開発と実験を行い、大学院生：天野和浩、中村美香、本田真佐浩、萩原雄介が実験に協力した。佐藤幸紀は研究全体の総括と波束制御のシミュレーション計算を担当した。また、J. B. West（英国）、E. E. Nikitin（イスラエル）、S. A. Rice（米国）など国外の著名研究者も本研究に大いに興味を寄せ、論文作製段階で貴重な助言を与えてくれた。

3.3.1.2 ヨウ素分子

今後、分子の内部量子状態をより高度な情報処理に応用するにあたって、これまで行なってきたデコヒーレンス後のポピュレーション測定をコヒーレンスの直接測定に発展させる事が望ましい。そこで我々は、ヨウ素分子内に発生させた2個の振動波束の干渉を実時間観測する試みを開始した。

実験のスキームを図 3.3-5 に示す。波長可変の2台の光パラメトリック増幅器の片方の出力をアト秒位相変調器に入力し、位相ロックされたポンプパルス対（ $\sim 600\text{nm}$, $\sim 100\text{fs}$ ）を発生させる。これを真空容器内に導入し、ヨウ素分子とアルゴンを混合した超音速分子流と交差させることによって、ヨウ素分子のB状態ポテンシャル上に2個の振動波束を発生させる。これら2つの波束は、互いの相対位相に依存して、複雑な干渉パターンを形成し、この干渉パターンは時間とともに変動する。このような波束の発生から干渉に至る一連の事象を、もう一方の光パラメトリック増幅器の出力（ $\sim 400\text{nm}$, $\sim 100\text{fs}$ ）を用いて実時間観測する。

測定結果の一例を図 3.3-6 に示す。左側の図は、二つのポンプパルスを照射するタイミングを分子振動の周期の2倍に設定した場合の結果である。すなわち、最初のポンプパルスで発生した波束が、フランク・コンドン領域に戻って来たときに、これに空間的に重なるかたちで2個目の波束が発生する。このように、二つのポンプパルスのタイミングを1fs変化させただけで、波束の時間発展は劇的に変化する。ここでの1fsは、波束の量子位相において π に相当しており、干渉がconstructiveからdestructiveに変化していることがわかる。また、干渉が起こった後も分子内にコヒーレンスが持続しており、ポピュレーション情報だけでなく、位相情報を保存することが可能であることがわかる。一方、右側の図は、二つのポンプパルスを照射するタイミングを分子振動の周期の1.5倍に設定した場合の結果である。すなわち、2個目の波束が発生したときには1個目の波束はポテンシャルの反対側の壁付近に存在しており、時間発展に伴ってこれら二つの波束がポテンシャルの中央付近で周期的な交差を繰り返す。この場合、二つのポンプパルスのタイミングを0.5fs刻みで変化させると、波束の時間発展はより複

雑に変化する。特に、図中の $\tau = \tau_0$ と $\tau = \tau_0 + 1.0 \text{ fs}$ の間では、ビートの位相が反転していることがわかる。これら二つのケースについて、波束を構成する振動固有状態のポピュレーションを測定した結果、どちらも似たようなポピュレーション分布になっていることが明らかになった。

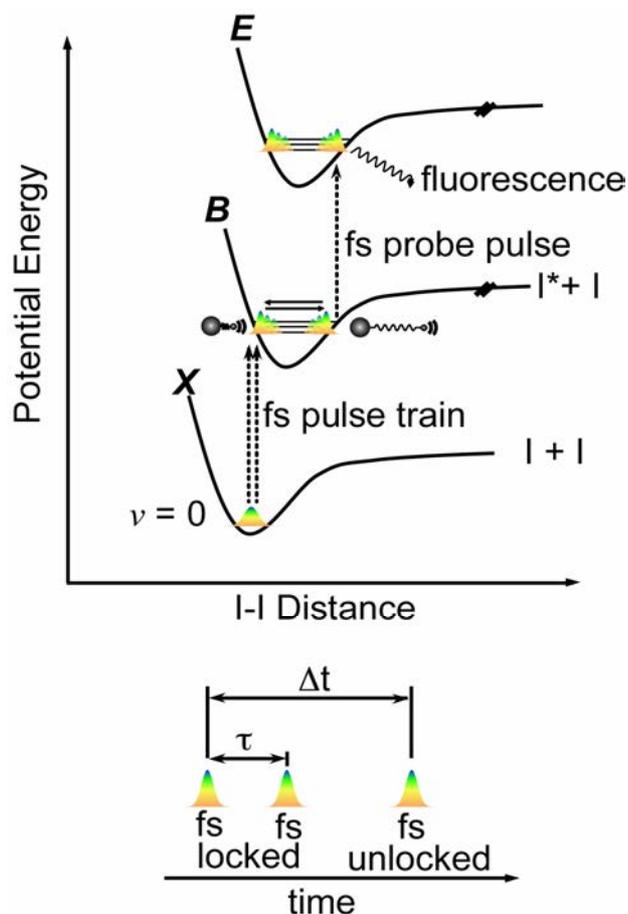


図 3.3-5 位相ロックされたフェムト秒パルス対によって I_2 分子のB状態に生成した2個の振動波束の量子干渉を別の位相ロックされていないfsパルスによって実時間観測する。

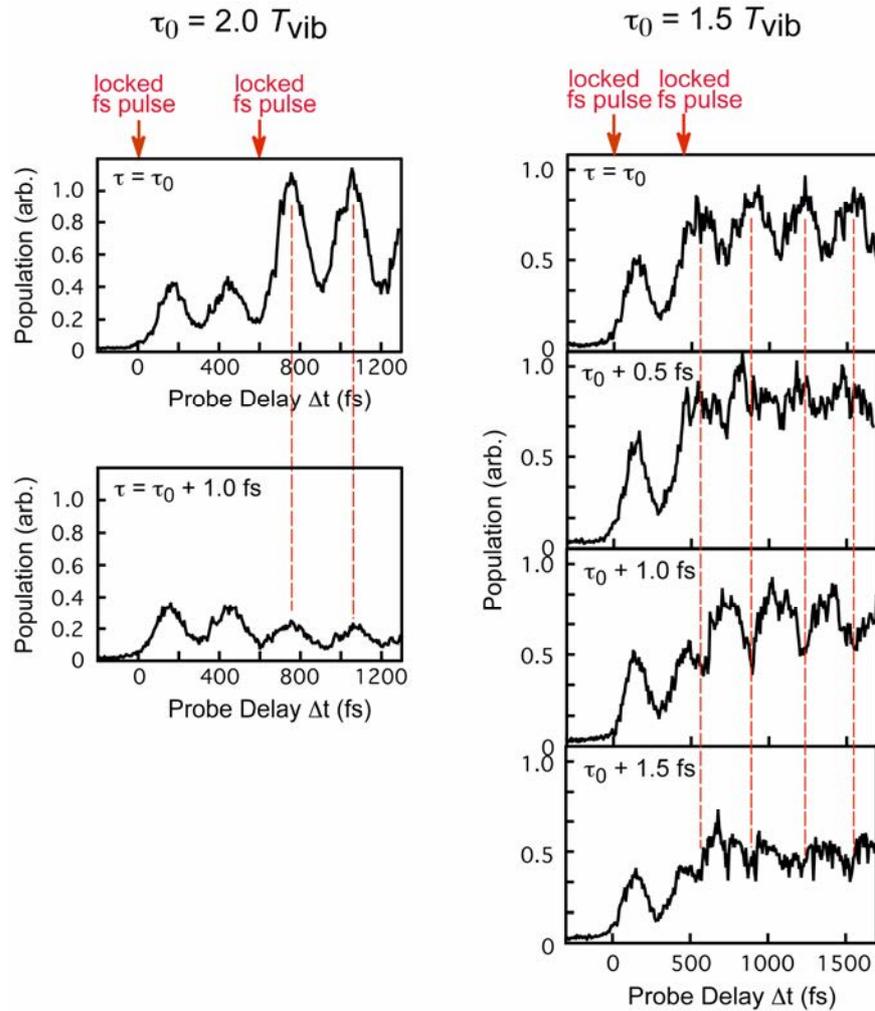


図 3.3-6 位相ロックされたfsパルス対によって I_2 分子のB状態ポテンシャル上に生成した2個の振動波束が干渉する様子を実時間観測した例。 T_{vib} は古典的な分子振動の周期で約300fs。2個の波束を空間的に重ねて作った場合（左）とそれぞれポテンシャルの対峙する二つの壁付近に空間的に離して作った場合（右）。

従って、観測されたビートの反転は、振動固有状態間の相対的な量子位相の違いを反映したものであると判断される。さらに我々は、分子内の振動波束干渉によって形成される波動関数の空間パターンを、フェムト秒の時間分解能とオングストロームの空間分解能で観測する手法を開発し、これをヨウ素分子に適用した。その結果、二つの波束が交差する際に過渡的に形成される定在波の空間パターンが、波束に含まれる位相情報に極めて敏感である事を見いだした。このように、コヒーレンスの実時間測定とポピュレーション測定を組み合わせることによって、波束に含まれる各振動固有状態の振幅情報と位相情報の両方を読み出す事が可能である事を実証した。

また、このようなコヒーレンス測定に基づく量子位相緩和検出器を開発し、これを希薄なヨウ素分子アンサンブル中の振動波束に適用した結果、通常のフェムト秒ポンプ・プローブ法では感知することのできない回転位相緩和を定量的に高感度で実時間検出することに成功した。

図 3.3-6 に示したデータは東北大・多元研で測定され、測定には千葉 寿技官、大学院生本田真佐浩が協力した。その後分子研大森グループにおいて、香月浩之（大森グループ助手）が協力して波束読み出し法の高度化が行われ、波動関数の時間位置分解検出法の開発が進められている。この開発は、Bertrand Girard および Chris Meier (Universit_ Paul Sabatier, France) との共同研究である。

3. 3. 2 光位相による光電子波束の制御

上記のテーマ 1 は、分子内に束縛された離散エネルギースペクトルを持つ量子系の位相制御に関する研究であるのに対し、本テーマでは、連続エネルギースペクトルを持つ量子系に対して、光位相情報がどのように転写されるかを明らかにするのが目的である。

3.3.2.1 キセノン原子の 5 光子イオン化によって発生する光電子波束の位相制御

[実験方法]

本テーマにおいても、パルス間遅延時間を制御し得る双子の光パルス対を位相制御光源とし、テーマ 1 で開発したマイケルソン型ダブルアーム干渉光学系 (APM) を用いた。この実験では気体セル使わず、並進ステージの操作だけで遅延時間を制御した。図 3.3-7 は装置の概略図である。光パラメトリック増幅器 (TOPAS) の出力 (~ 400 nm, ~ 100 fs) を APM 入力してパルス対を得、これを一の半波長板と一対の偏光ビームスプリッター (PBS) を通して高い直線偏光とした後に、真空容器内に導入してキセノン原子流と交差させる。パルス対は凸レンズによって原子流の中心部に強く集光させる。集光点での光強度の最大値が 10^{13} \sim 10^{14} W/cm² に達すると、キセノン原子は 4 光子、5 光子、6 光子など多光子吸収によってイオン化されて光電子を放出する。光電子は飛行時間分析管 (TOF-DT) を飛行して検出器 (MCP) に達する。光電子の飛行時間を Time-to-Digital Converter (TDC) で分析して光電子のエネルギースペクトルを得る。

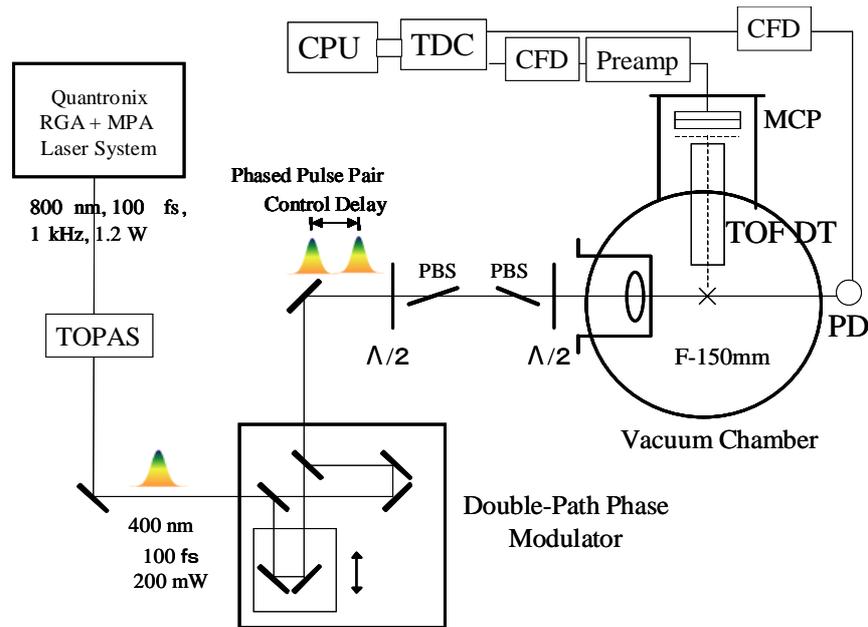


図 3.3-7 パルス対による光電子波束の位相制御装置

[Above-Threshold-Ionization (ATI)]

Xe原子のイオン化エネルギーは、 $J=3/2$ 準位が $IP_{3/2} = 12.13$ eV、 $J=1/2$ 準位が $IP_{1/2} = 12.44$ eVであるから、波長 400 nmの光（1光子エネルギー=3.10 eV）でイオン化するには少なくとも4光子が必要である。しかし多光子吸収の確率をあげるためにレーザーの強度を高くすると、イオン化に必要な最低の光子数（ m コ）のほかに更に1コ以上（ s コ）を吸収してイオン化する現象が1979年に発見され、Above-Threshold-Ionization (ATI) と呼ばれている。レーザー強度が強くなると、イオン化threshold近傍の高リユドベルグ状態がレーザー電場によるACシュタルク効果によって歪められ、実効的なイオン化エネルギーが上昇するためであることが理論的に解明されている。強いレーザー電場によるイオン化エネルギーの上昇はポンドロモティブ (Ponderomotive) シフトと呼ばれ、このシフトはレーザー電場の強度に比例する。

レーザーの短パルス化と高強度化の技術が進むにつれてATIの研究は盛んになり、ATIの競争過程である高次高調波発生と共に多くの研究がなされてきた。なお、強いレーザーを一次光源とし、気体媒質による高次高調波発生によって、コヒーレント軟X線光源の開発、或いはパルス幅が1フェムト秒を切る超短パルス光源の開発などの研究が近年盛んになっている。

[ATI電子のエネルギースペクトル]

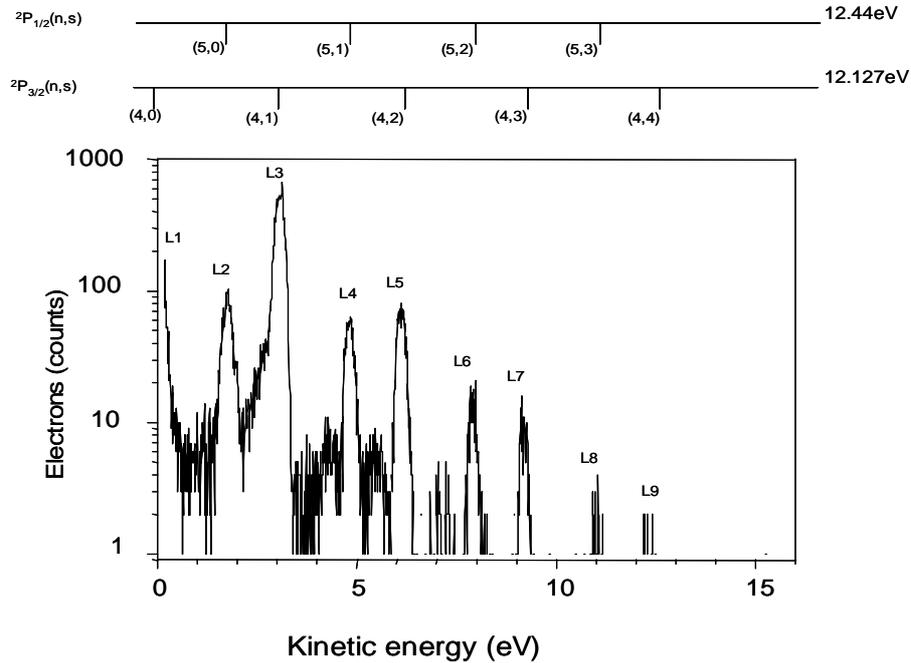


図 3.3-8 Xe 原子からのATI光電子スペクトルの測定結果。レーザー (400 nm, 100 fs) の強度は、 $I=3.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 。

図 3.3-8にATI電子スペクトルの測定結果の一例を示した。このスペクトルは、光パラメトリック増幅器 (TOPAS) からの出力パルス (100fs単パルス、400 nm) を半波長板と P B S の対を通してXe原子線に集光して得た結果である。集光点におけるレーザー強度 ($I_L=3.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$) はATI電子のエネルギーがレーザー強度 I_L に比例して低エネルギー側にシフトするのを実測して決定した。このシフトは、上述のようにイオン化エネルギーがポンドロモティブ・シフトするために起こる。図 3.3-8 でL3 とラベルした最も強いピークは、Xe原子が $m+s=4+1$ コ (合計 5 コ) の光子を吸収した結果、 $J=3/2$ のイオン化極限 (12.44 eV) の上の連続エネルギー帯に生成したATI電子のピークである。このATI電子のエネルギーは、ポンドロモティブ・シフトを U_p と書いて、

$$E_{L3} = (m+s)h\nu - (IP_{3/2} + U_p), \quad m=4, s=1$$

で与えられる。

[光二連パルスによるATI電子の位相制御]

図 3.3-8 に示したATI電子のピークの中で最も強いピークL3 に対して、光二連パルスを用いて、電子生成強度をパルス間遅延時間の関数として測定した結果を図 3.3-9 に示す。

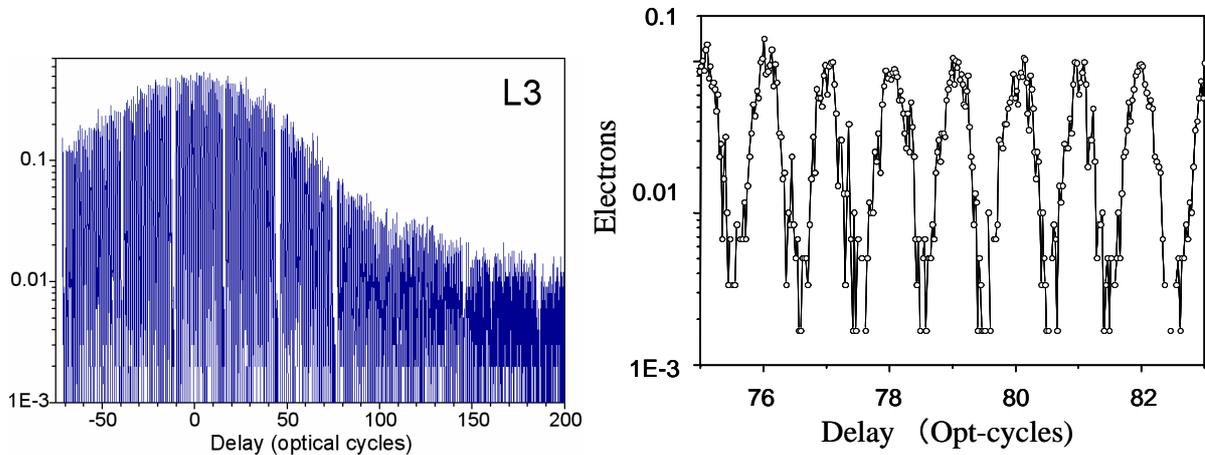


図 3.3-9 光二連パルスによるATI光電子のラムゼー振動。パルス間遅延時間はレーザー電場の光学サイクル (~ 1.33 fs) を単位としている。左図は広い範囲の遅延時間 (-70 \sim 200 光学サイクル) に亘る測定結果。右図はその一部の拡大図。光電子は光学サイクルと完全に同期して発生する。

上の図が示す結果は、

- (a) 光電子の発生はレーザー電場の光学サイクル (~ 1.33 fs) と完全に同期しており、パルス間遅延時間が光学サイクルの整数倍のときに光電子数は最大となり、半整数倍の時に最小となる。つまり、テーマ1で観測した“Bound-state Interferometry”と同様のラムゼー干渉が、“Free-state Interferometry”として観測された。
- (b) ラムゼー干渉の振動波形は、テーマ1で観測した正弦波形 (図 3.3-2) から大きく歪んでいる。これは、Xe原子が多数の光子を同時に吸収してイオン化される高次の非線形過程によって、ATI光電子が発生したことを示している。
- (c) 光電子の干渉振動は、レーザーパルス間の遅延時間がレーザーのパルス幅 (~ 100 fs) をはるかに越えても続いている。しかしこの干渉振動の振幅は、同時に観測した光二連パルスの光学干渉よりもはるかに早く減衰する。と要約される。

光二連パルスで多光子励起を行う場合を、4光子励起過程を例に考えてみる。

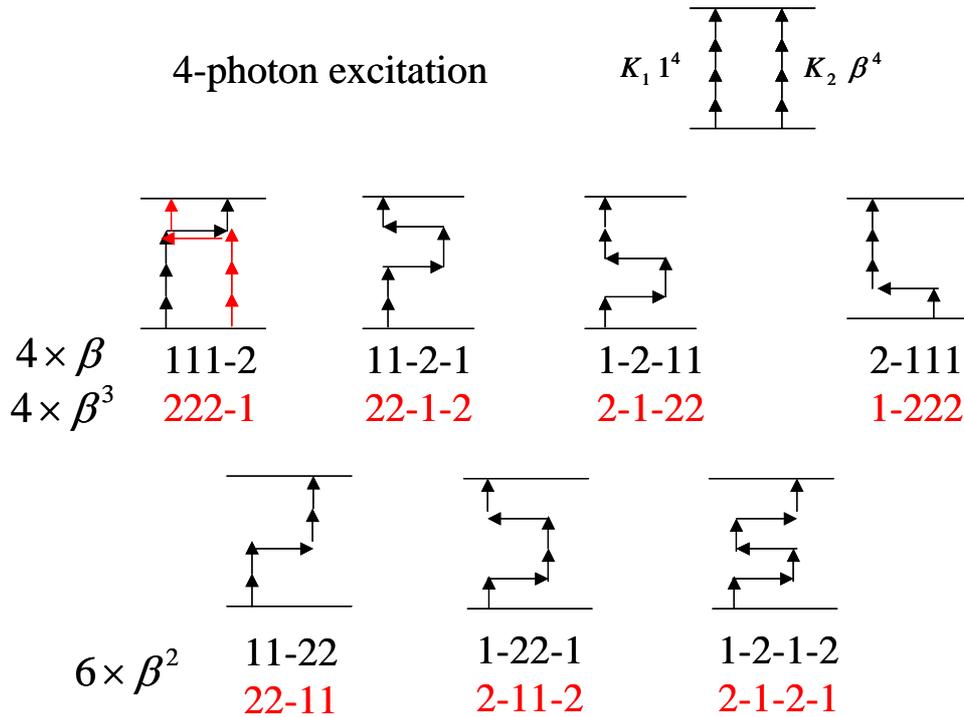


図 3.3-10 光二連パルスによる4光子励起過程において可能な励起経路

上の図でK1、K2 と書いた経路は、第1パルスのみか第2パルス（ β でラベルしてある）のみで励起が行われる場合を表し、この場合には励起確率はパルス間遅延時間には依存しない。これ以外は、例えば、第1パルスから3光子を吸収し第2パルスから1光子を吸収する場合や或いはその逆の場合など、二つのパルスの“交差相関（Cross-Correlation）”によって可能となる経路がある。途中で原子内のどのエネルギー準位とも共鳴しないで同時に4光子励起が起こるものと仮定すると、交差相関の経路は二つのパルスの時間的重なりが無いと成立しない。従ってパルス間遅延時間の増加と共にこれらの経路の寄与は急速に減少し、最後にはK1、K2の経路のみが残る。パルス間遅延時間がパルス幅より短い場合には、経路数をはるかに多い交差相関の寄与が支配的となる。

多光子励起の場合に考えられるこのような事情を考慮して行った干渉振動（ラムゼー振動）波形のモデル計算の結果を次に示す。

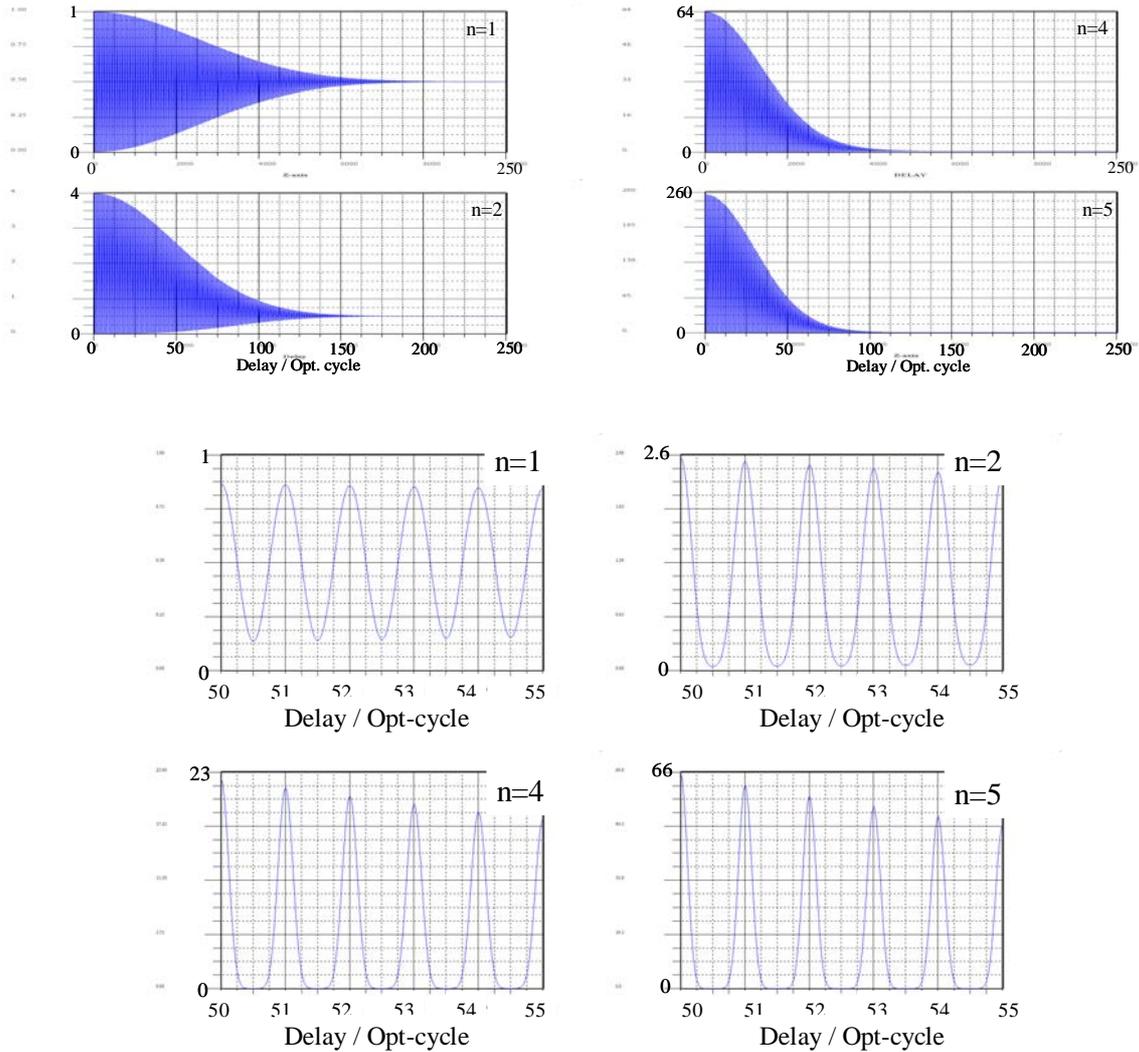


図 3.3-11 光二連パルスによる 1 光子励起 ($n=1$) 及び多光子励起 ($n=2, 4, 5$) で発生する光電子のラムゼー振動 (モデル計算)。光電子生成確率をパルス間遅延時間に対してプロットした。レーザーパルスは時間幅 100 fs (FWHM) のガウシアンパルスとした。パルス間遅延時間を示す横軸の数値はレーザー電場の光学サイクル (1.33 fs) を単位としている。下の 4 枚の図は上の 4 枚の図の一部遅延時間範囲を拡大。

上に示したモデル計算において、 $n=1$ の場合は、二連パルス光源の強度をレーザーが有する全波長範囲に互って積分測定したときの光学干渉と全く同じであり、光学干渉の測定結果ともほぼ一致する。つまり、1 光子イオン化で生成する光電子には二連パルス光源の位相情報がそのまま転写される。ATI 光電子の測定結果 (図 3.3-10) はモデル計算の $n=4$ 或いは $n=5$ の場合とほぼ一致しており、ど

ちらかと言えば $n=4$ の計算の方が実験結果に近い。このことは、 $m + s = 4 + 1$ のATI過程では、4光子エネルギーがXe原子のイオン化極限に近い高リユドベリー状態（複数）に一致するために、この状態に一旦共鳴励起された後にもう1光子を吸収して電子を放出しているためと考えられる。モデル計算の結果は上記(a)、(b)、(c)に要約した実験結果を全て説明しており、多光子過程であるにも拘わらず常に光学サイクルの整数倍に一致した遅延時間においてのみ干渉振動の極大が現れることも説明できる。もし光電子のエネルギー分析分解能を1 meV程度に高めて、ある極めて狭いエネルギー帯の光電子のみを観測するならば、 n 光子イオン化で生成する光電子には光学サイクルの n 倍の周波数で変調されたラムゼー干渉が見られると予測される。

結局、光二連パルスによるATI光電子の位相制御は、光干渉の結果を、気体原子を媒質とする高次の非線形過程を通して観測するものである。光電子には光位相が鋭敏に転写されるばかりでなく、高次非線形過程を経由したという履歴も光電子の位相に書き込まれる。

本研究は、東北大グループ代表を佐藤から引き継いだ上田 潔（東北大・多元研・教授）が研究を総括し、上田グループのG. Prüemper（博士研究員）、島田浩三（技官）、奥西みさき（助手）、大学院生：萩原雄介、藤原克利が実験に協力した。千葉 寿（現在分子研技官）はテーマ1で開発した位相変調器（APM）の複製を主導し、また島田浩三（技官）にレーザーの操作法を指導した。佐藤幸紀は実験に協力するとともに、波束制御のモデル計算を担当した。

3. 3. 3 得られた研究成果の評価及び今後期待される効果

光二連パルス間の遅延時間を約10アト秒の精度で制御する精密光干渉装置（アト秒位相制御装置、APM）を製作した。この装置は、光パルスが有する周波数帯域内において、任意の周波数間の相対位相を連続的に制御しえる光源（位相制御光源）である。

サブテーマ1では、この光源からの光パルス対によって、二原子分子（HgAr ヴァン・デル・ワールス錯体とヨウ素分子 I_2 ）における振動量子波束の高精度制御を実現した。HgAr錯体の振動固有状態の確率分布に現れる干渉振動（ラムゼー振動）の位相が、固有状態の間で差を生じることを利用して、固有状態の確率分布（ポピュレーション）を0か1にコード化できることを示した。このコード化はまだ部分的であるが、光位相の情報をポピュレーションコードとして分子内に長

時間保持できることを示した。ヨウ素分子においては、振動量子波束の生成・制御の過程を数百フェムト秒の時間領域で捉えることに成功した。このように、波束制御の結果のポピュレーション測定とコヒーレンスの実時間測定とを組み合わせ、波束に含まれる各固有状態の振幅情報と位相情報の両方を読み出す事が可能である事を実証した。

サブテーマ2では、Xe原子の5光子イオン化により放出される光電子の位相干渉振動（ラムゼー振動）を観測し、光電子の位相特性に光源の位相特性が鋭敏に反映されることを実証した。光二連パルスによる量子波束干渉の観測は、原子のリュドベリー波束や分子の振動波束など、限られた空間領域で周回運動をする束縛状態の波束に対して多く行われてきたが、光電子のような自由粒子波束に対して行われた例は少なく、さらに光電場の4次や5次など高次過程で生成する光電子に光二連パルス法を用いた例は無い。高次の光電子制御においては、干渉波形が正弦波形とはならないことを明確に示した最初の例かと思われる。本研究の成果は最終年度に得られ、論文発表が遅れているので、今後論文発表を早急に行う予定である。

国内外の類似の研究成果と比較した研究成果の水準（技術レベルの比較）

光二連パルスによる量子波束制御は、量子制御の基本的な方法として国外では数多く行われてきたが、本研究で実現した10アト秒精度の遅延時間制御は、世界的にも前例が無い。これにより、光源の光位相が分子振動および光電子の量子位相に鋭敏に転写されることを、これまでに無い高い精度で実証した。自己評価：A、

今後の展開見込み、科学・技術や社会への波及効果：

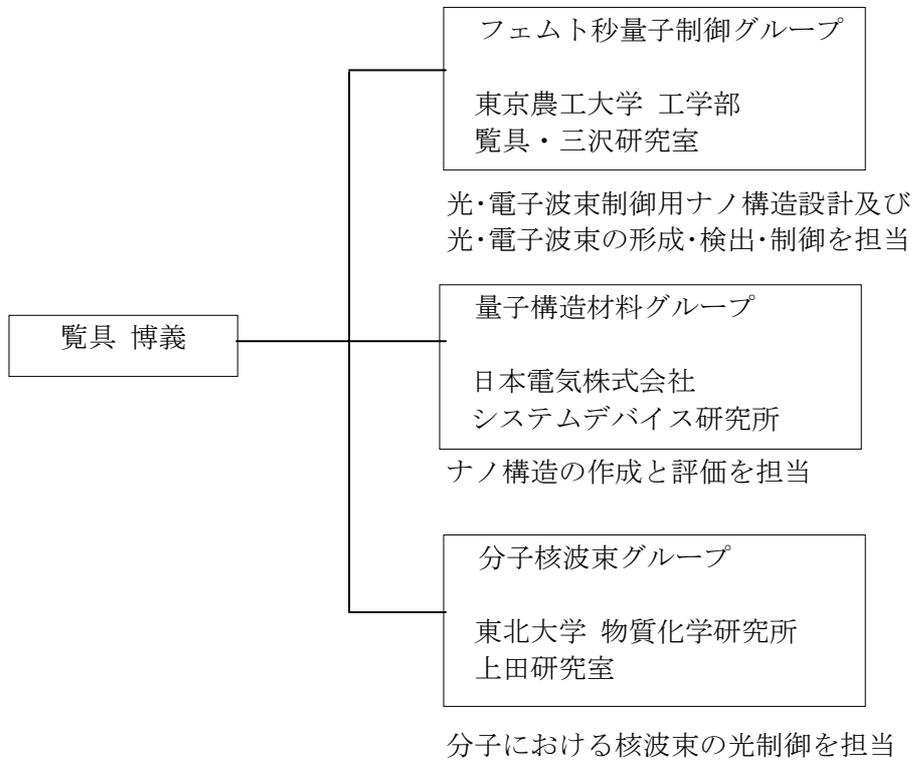
原子分子分野においては、化学反応や分子間エネルギー移動・電子移動等の分子過程を光位相で制御する方法の開発が長く望まれてきたが、位相制御の理論面での進展に比べて、実験面の進展はまだ不十分である。本研究で達成した高精度位相制御は、このような研究動向を刺激する役割を果たしている。化学反応の中でも、光によってシストランス異性化など分子の構造異性化を誘起する過程は、光誘起分子間エネルギー移動・電子移動プロトン移動などと共に生体反応の重要な基本過程である。今後は、このような生体反応関連の分子過程を光位相で制御する方向への展開が見込まれる。また本研究は、原子分子を利用する量子メモリーや量子ゲートの開発に向けて可能性を示唆した。現段階ではまだ波束に含まれる各固有状態の振幅と位相の両方を独立に操作することはできないが、今

後より一般的な量子操作技術の開発に向けて光学・分光技術の高度化と展開の動きが加速されることが見込まれる。

光位相による光電子制御は、光位相を伝達する新たな方法の開発と応用に向けて展開が見込まれる。また原子分子系を媒質とする高次非線形過程によって新たな光源（例えば超短パルス光源や軟X線光源）の開発とも密接に関連し、サブフェムト秒光パルスなど超短パルス光の時間幅計測への応用も考えられる。更に生体関連分子を含むより大きな分子における光イオン化や光解離の位相制御への展開が見込まれる。

4. 研究実施体制

(1) 体制



(2) メンバー表

フェムト秒量子制御グループ (覧具博義)

氏名	所属	役職	研究項目	参加時期
覧具 博義	東京農工大学・工学部	教授	全体総括 光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成11年10月 ～17年3月
三沢 和彦	東京農工大学・工学部	助教授	光・電子波束の形成・検出・制御	平成11年10月 ～17年3月
田久保嘉隆	東京農工大学・工学部	教授	光・電子波束の形成・検出・制御	平成11年10月 ～13年3月
谷 俊朗	東京農工大学・工学部	教授	光・電子波束の形成・検出・制御	平成11年10月 ～13年3月
室尾 和之	東京農工大学・工学部	講師	光・電子波束の形成・検出・制御	平成11年10月 ～13年3月
井下 猛	国際基盤材料研究所	フェロー研究員	光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成11年10月 ～12年3月
半村 清孝	派遣先	CREST 研究員	光・電子波束の形成・検出・制御	平成13年4月 ～14年1月
橋本 直行	派遣先	CREST 研究員	光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成13年7月 ～16年6月
松田 功	東京農工大学・工学部	博士前期・後期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成12年4月 ～16年3月
石正 光則	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成12年4月 ～13年3月
平田 賢治	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成12年4月 ～13年3月
伊藤 明子	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成12年4月 ～14年3月
永名 継道	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成12年4月 ～14年3月
遠山 明利	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成12年4月 ～14年3月
新才 昌弘	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成13年4月 ～15年3月
橋本 祐也	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成13年4月 ～15年3月
佐々木 郁	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成13年4月 ～15年3月
多羽田 敦	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御 用ナノ構造設計	平成13年4月 ～15年3月
犬塚 史一	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成14年4月 ～16年3月
菊池真理子	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成14年4月 ～16年3月

坂本 幸康	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成14年4月～16年3月
竹内 浩史	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成14年4月～16年3月
藤田 博一	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御用ナノ構造設計	平成14年4月～16年3月
赤川 武志	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成15年4月～17年3月
上 菜津子	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成15年4月～17年3月
足立光一郎	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御用ナノ構造設計	平成15年4月～17年3月
西田 航平	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御用ナノ構造設計	平成15年4月～17年3月
示野 竜三	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御用ナノ構造設計	平成16年4月～17年3月
藤井 宏太	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成16年4月～17年3月
二村 真史	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束制御用ナノ構造設計	平成16年4月～17年3月
堀越 建吾	東京農工大学・工学部	博士前期課程	光・電子波束の形成・検出・制御	平成16年4月～17年3月
甲野 恵子	派遣先	研究補助員		平成11年11月～17年3月

量子構造材料グループ（西 研一）

氏名	所属	役職	研究項目	参加時期
菅生 繁男	NEC システムデバイス研究所	部長	ナノ構造の作成と評価	平成15年4月～12月
西 研一	NEC システムデバイス研究所	部長	ナノ構造の作成と評価	平成11年10月～17年3月
斎藤 英彰	NEC 光・無線デバイス研究所	研究員	光電子波束制御の応用探索	平成11年10月～14年7月
横山 弘之	NEC システムデバイス研究所	主管研究員	ナノ構造の作成と評価	平成11年10月～14年3月
河本 滋	NEC システムデバイス研究所	主任	ナノ構造の作成と評価	平成14年10月～17年3月
浅川 潔	フェムト秒テクノロジー研究機構	グループリーダー	ナノ構造の作成と評価	平成11年10月～17年3月

分子核波束グループ（上田潔）

氏名	所属	役職	研究項目	参加時期
上田 潔	東北大学多元物質科学研究所	教授	分子における核波束の光制御	平成15年4月～17年3月
佐藤 幸紀*	東北大学多元物質科学研究所	名誉教授	分子における核波束の光制御	平成13年4月～17年3月
大森 賢治	岡崎国立共同研究機構分子科学研究所	教授	分子における核波束の光制御	平成13年4月～17年3月
千葉 寿	東北大学多元物質科学研究所	技官	分子における核波束の光制御	平成13年4月～16年3月
中村 美香	東北大学多元物質科学研究所	博士課程前期	分子における核波束の光制御	平成13年11月～14年3月
萩原 雄祐	東北大学大学院理学研究科	博士課程前期	分子における核波束の光制御	平成15年4月～16年3月
本田真佐浩	東北大学大学院理学研究科	博士課程前期	分子における核波束の光制御	平成15年4月～16年3月
藤原 克利	東北大学大学院理学研究科	博士課程前期	分子における核波束の光制御	平成15年4月～17年3月

*平成15年4月より技術アドバイザー

5. 研究期間中の主な活動

(1) ワークショップ・シンポジウム等

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成 11 年 12 月 3 日	キックオフ会	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室/ 学科内会議室	覧具 G 2 名、 研究室学生、 JST 本部関係 者、 CREST 技術参 事、 NEC 及び FESTA 関係者、 学科教員ほか	講演会及び懇親会 (費用はCREST外)
平成 12 年 1 月 6 日	キックオフ会	「電子・光子等機 能制御」研究事務 所	覧具 G からは 2 名	
平成 12 年 3 月 17 日	研究打ち合わせ	日本電気株式会 社(光・超高速周 波デバイス研究 所)	覧具G 2 名 院生 2 名 NEC 3 名	
平成 12 年 10 月 26 日	領域シンポジウム	JAホール	覧具G5 名 西G1 名	
平成 13 年 5 月 7 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具 G 全員 佐藤 G から 2 名	新たにチームに参加す る東北大グループのメ ンバーを農工大に迎 え、互いの研究経過の 報告と討論
平成 13 年 8 月 28 日 ～ 29 日	研究打ち合わせ	フェムト秒テク ノロジー研究機 構、 NEC 光・無線デバ イス研究所	覧具 G から 4 名 佐藤 G から 2 名 FESTA 1 名 NEC 2 名	研究成果の紹介と討論
平成 13 年 10 月 24 日 ～25 日	領域シンポジウム	コクヨホール	覧具G8 名 西G3 名 佐藤G3 名	

平成 13 年 12 月 7 日～ 8 日	科学技術振興事業 団「光子機能制御研 究のフロンティア」 戦略的基礎研究推 進事業 研究領域 「電子・光子等の機 能制御」関連プロジ ェクト合同シンポ ジウム	名古屋大学ベン チャービジネス ラボラトリー	覧具G9 名 西G2 名 佐藤G4 名	
平成 14 年 7 月 30 日～ 31 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具 G から 3 名 佐藤 G から 2 名	中間評価会議を前に、 互いの研究成果の報告 と討論。
平成 14 年 8 月 4 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具 G から 2 名 佐藤 G から 2 名	中間評価会議のための 打合せ。
平成 14 年 8 月 5 日	中間評価会議	JST東京展示館	覧具Gから 2 名 西Gから 1 名 佐藤Gから 2 名	
平成 14 年 10 月 24 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具G全員 上田Gから 3 名	領域シンポジウムのため に、互いの研究経過 の報告と討論、打合せ。
平成 14 年 10 月 25 日 ～26 日	領域シンポジウム	コクヨホール	覧具G全員 西G2 名 佐藤G5 名	
平成 15 年 3 月 30 日～ 31 日	研究打ち合わせ	東北大学多元物 質科学研究所	覧具Gから 3 名 佐藤Gから 4 名	
平成 15 年 5 月 30 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具 G から 3 名 菅生 G から 2 名	
平成 15 年 10 月 29 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具 G から 3 名 上田 G から 3 名	領域シンポジウムのため に、研究経過報告と討 論、打合せ。
平成 15 年 10 月 30 日 ～31 日	領域第 4 回シンポ ジウムに参加	コクヨホール	覧具 G から 13 名 菅生 G から 2 名 上田 G から 4 名	
平成 15 年 11 月 25 日 ～27 日	グループ内研究打 合せ	東北大学多元物 質科学研究所	上田グループ 全員	実験及び研究打合せ。 装置を動かしながらの 共同作業。今後の研究 の詳細について議論。
平成 15 年 12 月 26 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具G全員 上田Gから 2 名	互いの研究経過の報告 と討論。

平成 16 年 3 月 19 日～ 20 日	研究打合せ	東北大学多元物 質科学研究所	覧具Gから 6 名 上田Gから 名	研究の進捗状況を互い に報告。研究内容につ いての詳細な討論。
平成 16 年 8 月 1 日～ 4 日	「物理化学コロキウ ム(PCC2004)」	東北大学多元物 質化学研究所 金 属材料研究所講 堂	上田G全員 覧具Gから 2 名	日本化学会東北支部主 催、東北大学多元物質 化学研究所・日本分光 学会支部共催、CREST覧 具チーム協力により、 上田教授がチェアマン を勤め、「超高速・強光 子場現象」国際シンポ ジウムとして開催。「電 子・光子等の機能制御」 と密接に関わる研究課 題が議論の対象。
平成 16 年 8 月 25 日～ 26 日	研究打合せ及び 共同実験	日本電気株式会 社(基礎・環境研 究所)	覧具Gから 1 名 NECから 3 名	
平成 16 年 9 月 28 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具 G 全員 上田 G から 2 名	領域シンポジウムのため に、互いの研究経過 の報告と討論、打合せ。
平成 16 年 9 月 29 日 ～30 日	領域シンポジウム に参加	コクヨホール	覧具 G 全員 西 G から 2 名 上田 G から 3 名 +1 名(元メンバー)	
平成 16 年 9 月 28 日 ～ 29 日	研究打合せ及び 共同実験	日本電気株式会 社(基礎・環境研 究所)	覧具 G から 3 名 (学部生 1 名を 含む) NEC から 3 名	
平成 16 年 11 月 18 日 ～19 日	研究打合せ及び 共同実験	日本電気株式会 社(基礎・環境研 究所)	覧具 G から 2 名 NEC から 3 名	
平成 17 年 3 月 23 日	研究打ち合わせ	東京農工大学工 学部 覧具・三沢 研究室	覧具Gから 2 名 上田Gから 2 名	事後評価会議に臨むに あたって、互いの研究 成果の報告と打合せ
平成 17 年 3 月 24 日	事後評価会議	JST 東京展示館	覧具Gから 2 名 上田Gから 2 名	

6. 主な研究成果物、発表等

(1) 論文発表 (和文 7 件、英文 34 件)

- 1) K. Misawa and T. Kobayashi, "Wave-packet dynamics in a cyanine dye molecule excited with femtosecond chirped pulses", *J. Chem. Phys.* 113(17), 7546-7553 (2000).
- 2) A. V. Uskov, A.-P. Jauho, B. Tromborg, J. Mork, and R. Lang, "Dephasing Times in Quantum Dots due to Elastic LO Phonon-Carrier Collisions", *Physical Review Letters*, 85(7), 1516-1519 (2000)
- 3) Kazuhiko Misawa, "Excited- and ground-State wave packet dynamics in organic materials induced by femtosecond chirped pulses", in *Advances in Multi-photon Processes and Spectroscopy*, (World Scientific).
- 4) T. Kobayashi, H. Kano, and K. Misawa, "Spectral fringes in difference phase and transmission spectra using a femtosecond Sagnac interferometer", *Technical Digest of Quantum Electronics and Laser Science Conference 2000, QWI12*, p.124 (2000).
- 5) 三沢和彦, 覧具博義, 「フェムト秒チャープパルスを用いた電子波束のコヒーレント量子制御」, 信学技報 LQE2000-3, 100(73), (2000).
- 6) 覧具博義, 三沢和彦, 「量子ドットレーザーにおけるホールバーニング機構の考察」, 信学技報 LQE2000-14, 100(115), (2000).
- 7) 三沢和彦, 松田功, 覧具博義, 「全固体フェムト秒位相制御レーザー開発の試み」, 信学技報 LQE2000-71, 100(391), (2000).
- 8) H. Kano, K. Misawa, and T. Kobayashi, "Periodic Structures in Difference Phase and Transmission Spectra Studied by a Femtosecond Sagnac Interferometer", *Opt. Comm.*, 188(1-4), 1-9 (2001).
- 9) A. V. Uskov, I. Magnusdottir, B. Tromborg, and J. Mork, and R. Lang, "Line broadening caused by Coulomb carrier-carrier correlations and dynamics of carrier capture and emission in quantum dots", *Applied Physics Letters*, 79(11), 1679-1681 (2001).
- 10) Roy Lang, "Problems in recent analysis of injected carrier dynamics in semiconductor quantum dots", *Appl. Phys. Lett.*, 79, 3912-3913 (2001).
- 11) K. Ohmori, M. Nakamura, H. Chiba, K. Amano, M. Okunishi, and Y. Sato, "Development of attosecond optical-phase manipulation for the wave-packet engineering", *J. Photochem. Photobiol.*, 145, 17-21 (2001).
- 12) Kazuhiko Misawa, "Ultrafast exciton dynamics in molecular J-aggregates"(Invited), *Abstracts of International Workshop on Femtosecond Technology 2001*, p.77, (2001).
- 13) Sayako Itoh, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Femtosecond Phase and Amplitude Distortion in Dielectric Materials Measured by Cross-Correlation Frequency Resolved Optical Gating", *Abstracts of International Workshop on Femtosecond Technology 2001*, p.185 (2001).
- 14) Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Phase-Programmable Femtosecond Optical Source for Wave Packet Engineering", *Abstracts of International Workshop on Femtosecond Technology 2001*, p.186 (2001).
- 15) Tsugumichi Nagana, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Time-resolved interferometry of porphyrin J-aggregates using femtosecond Sagnac interferometer", *Abstracts of International Workshop on Femtosecond Technology 2001*, p.184 (2001).
- 16) Y. Sato, K. Ohmori, K. Amano, H. Chiba, and M. Nakamura, "Sub-femtosecond Coherent Control of Vibrational Wavepacket in the van der Waals Interactions", *Proceedings of the 21st International Conference on Photonic, Electronic, and*

Atomic Collisions, (Rinton Press, 2001).

17) 松田功, 三沢和彦, 覧具博義, 「電子波束制御を目的としたフェムト秒位相制御光源」, 信学技報LQE2001-13, vol.101 No.65 (2001).

18) 伊藤明子, 三沢和彦, 覧具博義 「相互相関周波数分解光ゲート法を用いた物質分散の超広帯域同時測定」 信学技報LQE2001-82, vol.101 No.448 (2001).

19) 大森賢治, 「アト秒精度の量子波束エンジニアリング」 応用物理, 71(2), 195-199 (2002).

20) Roy Lang, "Response to 'Comment on 'Problems in recent analysis of injected carrier dynamics in semiconductor quantum dots' [APL.79,3912(2001)] ", Applied Physics Letters, 81, 565 (2002).

21) Y. Sato, H. Chiba, M. Nakamura and K. Ohmori, "Double-Pulse Manipulation of Vibrational Wavepackets in HgAr van der Waals Complex", in Laser Control and Manipulation of Molecules, eds. A. Bandrauk, R. Gordon, and Y. Fujimura, (ACS Books), p.155-170 (2002).

22) Kazuhiko Misawa, Isao Matsuda, and Roy Lang, "Femtosecond Wave Packet Engineering in a cyanine dye molecule", SPIE Proceedings, 4798, 11-20 (2002).

23) Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Wave Packet Engineering Using a Phase-Programmable Femtosecond Optical Source", The technical digest of Conference on Lasers and Electro-Optics 2002, p.113 (2002).

24) Kazuhiko Misawa, Sayako Ito, Hiroyoshi Lang, "Broadband Measurement of the Nonlinear Phase Changing Using Cross-Correlation Frequency Resolved Optical Gating", The 9th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2002, p.204(2002).

25) Fumikazu Inuzuka, Kazuhiko Misawa, Roy Lang, "Polarization-division Sagnac Interferometer for Femtosecond Phase Spectroscopy", The 9th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2002, p.203 (2002).

26) Alberto De Fanis, Norio Saito, Andrey A. Pavlychev, D. Yu. Ladonin, Masatake Machida, Keiichiro Kubozuka, Inosuke Koyano, Kazumasa Okada, Kazumasa Ikejiri, Amine Cassimi, Achim Czasch, Reinhard Dörner, Hisashi Chiba, Yukinori Sato, and Kiyoshi Ueda, "Symmetry-dependent multielectron excitations near the C 1s ionization threshold and distortion of the shape resonance in CO₂", Physical Review Letters, 89, 023006 (2002).

27) E. I. Dashevskaya, E. E. Nikitin, K. Ohmori, M. Okunishi, I. Oref and Y. Sato, "Energy dependence of the intramultiplet mixing cross section in Hg-N₂ collisions: Conical intersection mechanism, indication at tunneling and interference", Physical Chemistry Chemical Physics, 5(6), 1198-1204 (2003).

28) Naoyuki T. Hashimoto, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "A three-level picture for chirp-dependent fluorescence-yields under femtosecond optical pulse irradiation", Applied Physics Letters, 82(17), 2749-2751 (2003).

29) Kiyoshi Ueda, Alberto De Fanis, Norio Saito, Masatake Machida, Keiichiro Kubozuka, Hisashi Chiba, Yoko Muramatsu, Yukinori Sato, Achim Czasch, Ottmar Jauzki, Reinhard Dörner, Amine Cassimi, Masashi Kitajima, Tomoya Furuta, Hiroshi Tanaka, Stacey L. Sorensen, Kazumasa Okada, Shu-ichiro Tanimoto, Kazumasa Ikejiri, Yusuke Tamenori, Haruhiko Ohashi, and Inosuke Koyano, "Nuclear motion and symmetry breaking of the B 1s-excited BF₃ molecule", Chemical Physics, 289, 135 (2003).

30) Kenji Ohmori, Yukinori Sato, Evgueni E. Nikitin, and Stuart A. Rice, "High-precision molecular wave-packet interferometry with HgAr dimers", Physical Review Letters, 91, 243003-1 – 243003-4 (2003).

31) Kaoru Sasaki, Yuya Hshimoto, Naoyuki T. Hashimoto, Kazuhiko Misawa, Kenichi Nishi and Roy Lang, "Asymmetric Stepped Quantum Well Structures for Electronic Wave Packet Excitations", The 10th International Workshop on

Femtosecond Technology Abstracts FST2003, p.112 (2003).

32) Hiroshi Takeuchi, Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Phase-programmed femtosecond pulses tunable in the near infrared", The 10th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2003, p.178 (2003).

33) Koichiro Adachi, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "Analysis of Coherent Excitation of 3 Level System", The 10th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2003, p.177 (2003).

34) Fumikazu Inuzuka, Kazuhiko Misawa, Kiyoshi Asakawa and Roy Lang, "Femtosecond nonlinear phase and amplitude changes in quantum wells measured using polarization-division Sagnac interferometer", The 10th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2003, p.175 (2003).

35) Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "Chirp-dependent fluorescence saturation observed by means of femtosecond variable chirp device", The 10th International Workshop on Femtosecond Technology Abstracts FST2003, p.40 (2003).

36) Kazuhiko Misawa, Fumikazu Inuzuka and Roy Lang, "Femtosecond Sagnac interferometer for the measurement of complex third-order optical susceptibilities", SPIE Proceedings, 5212, 270-281 (2003).

37) Kazuhiko Misawa, Isao Matsuda and Roy Lang, "Femtosecond chirp-variable apparatus using a chirped mirror pair for quantum coherent control", Optics Communications, 00239/0001-00239/0003, pp.181-186 (2004).

38) Kazuhiko Misawa, Isao Matsuda, Naoyuki T. Hashimoto and Roy Lang, "Wave packet engineering using a phase-programmable femtosecond optical source", J. Modern Optics, 51(16-18), 2685 (2004).

39) Fumikazu Inuzuka, Kazuhiko Misawa, Kenichi Nishi and Roy Lang, "Femtosecond time-resolved dispersion relation of complex nonlinear refractive index in semiconductor nanostructures", Applied Physics Letters, 85(17), 3678-3680 (2004).

40) 大森賢治, 「アト秒精度のコヒーレント制御ー分子振動波束への応用ー」, 日本物理学会誌, 59(9), 615-618 (2004).

41) Yukinori Sato, Kenji Ohmori, Hisashi Chiba and Kiyoshi Ueda, "High-Precision Quantum Wave Interferometry", Proceedings of the 2nd International Symposium on Meteorology & Physics Application, and Energy Measurement (ISMPAEM) (2004).

(2) 口頭発表 (国内学会 55 件、国際学会 43 件)

① 招待、口頭講演 (国内学会 54 件、国際学会 38 件)

② ポスター発表 (国内学会 1 件、国際学会 5 件)

1) Kazuhiko Misawa, "Wave packet engineering: From molecules to semiconductor nanostructures"(Invited), US-Japan Workshop, Hawaii, December, 1999.

2) 三沢和彦, 覧具博義, 「フェムト秒チャープパルス励起による分子振動波束の時間発展」, 日本物理学会, 吹田, 2000 年 3 月.

3) R. Lang, H. Ito, and K. Misawa, "Spatial hole-burning in quantum dot lasers", International Workshop on Femtosecond Technology 2000, Tsukuba, June, 2000.

4) Kazuhiko Misawa, "Ultrafast optical nonlinearities in molecular J-aggregates"(Invited), Frontier Science Research Conference, La Jolla, November, 2000.

5) T. Kobayashi, H. Kano, and K. Misawa, "Spectral fringes in difference phase and

- transmission spectra using a femtosecond Sagnac interferometer", Quantum Electronics and Laser Science Conference 2000, San Francisco, May, 2000.
- 6) 三沢和彦, 覧具博義, 「フェムト秒チャープパルスを用いた電子波束のコヒーレント量子制御」, 電子情報通信学会 LQE 研究会, 福井, 2000 年 5 月
 - 7) 覧具博義, 三沢和彦, 「量子ドットレーザーにおけるホールバーニング機構の考察」, 電子情報通信学会 LQE 研究会, 東京, 2000 年 6 月.
 - 8) 石正光則, 櫻井良仁, 覧具博義, 「量子ドットレーザーにおけるスペクトル的なホール・バーニングの考察」, 応用物理学会学術講演会, 札幌, 2000 年 9 月.
 - 9) 平田賢治, 伊藤弘明, 覧具博義, 「量子ドットレーザーにおける空間的ホールバーニングの解析」, 応用物理学会学術講演会, 札幌, 2000 年 9 月.
 - 10) 三沢和彦, 「光・電子波束制御エンジニアリング」, 光化学討論会ワークショップ, 岡崎, 2000 年 9 月.
 - 11) 三沢和彦, 松田功, 覧具博義, 「全固体フェムト秒位相制御レーザー開発の試み」, 電子情報通信学会 LQE 研究会, 2000 年 10 月.
 - 12) 松田功, 三沢和彦, 覧具博義, 「電子波束制御を目的としたフェムト秒位相制御光源の開発」, 応用物理学会, 東京, 2001 年 3 月.
 - 13) Kazuhiko Misawa, "Ultrafast exciton dynamics in molecular J-aggregates"(Invited), International Workshop on Femtosecond Technology 2001, Tsukuba, June, 2001.
 - 14) Sayako Itoh, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Femtosecond Phase and Amplitude Distortion in Dielectric Materials Measured by Cross-Correlation Frequency Resolved Optical Gating", International Workshop on Femtosecond Technology 2001, Tsukuba, June, 2001.
 - 15) Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Phase-Programmable Femtosecond Optical Source for Wave Packet Engineering", International Workshop on Femtosecond Technology 2001, Tsukuba, June, 2001.
 - 16) Tsugumichi Nagana, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, "Time-resolved interferometry of porphyrin J-aggregates using femtosecond Sagnac interferometer", International Workshop on Femtosecond Technology 2001, Tsukuba, June, 2001.
 - 17) 松田功, 三沢和彦, 覧具博義, 「電子波束制御を目的としたフェムト秒位相制御光源」 電子情報通信学会 LQE 研究会, 金沢, 2001 年 5 月.
 - 18) Y. Sato, K. Ohmori, K. Amano, H. Chiba, and M. Nakamura, "Sub-femtosecond Coherent Control of Vibrational Wavepackets in the van der Waals Interaction", 22nd International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions, Santa Fe, New Mexico, July, 2001.
 - 19) 大森賢治 「アト秒量子波束エンジニアリングの開発」 高輝度光源長尺アンジュレータ利用研究ワークショップ, 2001 年 8 月.
 - 20) 永名継道, 三沢和彦, 覧具博義, 「Sagnac 干渉計を用いたフェムト秒時間分解干渉測定」 応用物理学会, 名古屋, 2001 年 9 月.
 - 21) 松田功, 三沢和彦, 覧具博義 「フェムト秒位相制御光源を用いたシアニン色素の分子振動波束制御」 応用物理学会, 名古屋, 2001 年 9 月.
 - 22) 松田功, 三沢和彦, 覧具博義, 「フェムト秒位相制御光源を用いた分子核波束の制御」 日本物理学会, 徳島, 2001 年 9 月.
 - 23) 三沢和彦, 松田功, 覧具博義 「フェムト秒位相制御光源を用いた電子波束制御エンジニアリング」 超高速光エレクトロニクス研究会, 横浜, 2001 年 9 月.
 - 24) 大森賢治 「単一分子を媒体とする大規模量子計算のためのアト秒超精密量子位相操作」 量子情報技術研究会, 2001 年 11 月.
 - 25) 伊藤明子, 三沢和彦, 覧具博義 「相互相関周波数分解光ゲート法を用いた物質分散の超広帯域同時測定」 電子情報通信学会 LQE 研究会, 高知, 2001 年 11 月.
 - 26) 三沢和彦, 松田功, 覧具博義 「フェムト秒波束制御エンジニアリング」 CREST 合同シン

ポジウム,名古屋,2001年12月.

27) 大森賢治,千葉寿,中村美香,佐藤幸紀,「アト秒波束制御—分子核波束からのアプローチ」CREST合同シンポジウム,名古屋,2001年12月.

28) 西研一,斎藤英彰,菅生繁男,「自己形成量子ドットのMBE成長とデバイス応用」CREST合同シンポジウム,名古屋,2001年12月.

29) 大森賢治「同種多粒子系のアト秒量子位相制御」強レーザー光子場における分子制御, 2001年12月.

30) 大森賢治「アト秒量子波束エンジニアリングの開発」レーザー学会学術講演会, 2002年1月.

31) Y. Sato, “Laser Manipulation of Quantum Wave Packets with Attosecond Phase Control – Encoding of Molecular Wave Packet Modes–”(Invited), International Symposium on Mesoscopic Superconductivity and Spintronics 2002, Atsugi, March, 2002.

32) K. Ohmori, ”Attosecond Quantum Engineering”, The 6th East Asian Workshop on Chemical Reactions, March, 2002.

33) 橋本直行,三沢和彦,覧具博義「フェムト秒パルス励起蛍光強度のチャープ依存性」日本物理学会,大津,2002年3月.

34) 三沢和彦,伊藤明子,覧具博義「相互相関周波数分解光ゲート法を用いた広帯域非線形位相変化測定」応用物理学会,平塚,2002年3月.

35) Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa, and Roy Lang, " Wave Packet Engineering Using a Phase-Programmable Femtosecond Optical Source", Conference on Lasers and Electro-Optics, Long Beach, May, 2002.

36) 大森 賢治,千葉 寿,中村 美香,萩原 雄祐,本田 真佐浩,佐藤 幸紀「アト秒量子エンジニアリング」第18回化学反応討論会,新潟,2002年6月.

37) Kazuhiko Misawa, Sayako Ito, Hiroyoshi Lang, “Broadband Measurement of the Nonlinear Phase Changing Using Cross-Correlation Frequency Resolved Optical Gating”(Poster session), The 9th International Workshop on Femtosecond Technology, Tsukuba, June, 2002.

38) Fumikazu Inuzuka, Kazuhiko Misawa, Roy Lang, “Polarization-division Sagnac Interferometer for Femtosecond Phase Spectroscopy”(Poster session), The 9th International Workshop on Femtosecond Technology, Tsukuba, June, 2002.

39) Kazuhiko Misawa, Isao Matsuda, and Roy Lang, " Femtosecond Wave Packet Engineering in a cyanine dye molecule"(Invited), SPIE Annual Meeting 2002, Seattle, July 10, 2002.

40) Yukinori Sato, “Attosecond Coherent Control of Molecular Wave Packets” (Invited), International Workshop on Photoionization 2002(IWP2002), Hyogo, August, 2002.

41) Yukinori Sato, “Attosecond Phase Control of Molecular Wave Packets”(Invited), 2nd Conference on the Elementary Processes in Atomic Systems, Gdansk, Poland, September, 2002.

42) Kenji Ohmori, “Single molecule quantum memory”(Invited), International Symposium on Advanced Laser Manipulation of Molecular Systems, Sendai, September, 2002.

43) 佐々木郁, 橋本祐也, 橋本直行, 三沢和彦, 覧具博義「電子波束励起のための非対称量子井戸の設計」応用物理学会,新潟,2002年9月.

44) 橋本 祐也, 佐々木 郁, 橋本 直行, 三沢 和彦, 西 研一, 斎藤 英彰, 覧具 博義「階段型量子井戸の光変調反射スペクトル測定」応用物理学会,新潟,2002年9月.

45) 橋本 直行, 橋本 祐也, 佐々木 郁, 三沢 和彦, 西 研一, 斎藤 英彰, 覧具 博義, 「光変調反射スペクトルによる階段型量子井戸構造の解析」応用物理学会, 新潟, 2002年9月.

- 46) 多羽田敦, 三沢和彦, 覧具 博義「量子ドットレーザ発振スペクトルの狭帯化」応用物理学会,新潟,2002年9月.
- 47) 藤田博一, 遠山明利, 松浦哲也, 橋本直行, 三沢和彦, 覧具博義「パウリブロッキングを考慮した量子ドットレーザ変調特性の解析」応用物理学会,新潟,2002年9月.
- 48) 犬塚史一, 三沢和彦, 覧具博義「偏光分割サニャック干渉計によるフェムト秒位相分光法」応用物理学会, 新潟, 2002年9月.
- 49) 大森賢治「アト秒コヒーレント制御法の開発」(招待講演)日本化学会第82秋期年会,大阪,2002年9月.
- 50) 萩原雄祐, 大森賢治, 千葉寿, 本田真佐浩, 中村美香, 佐藤幸紀,「サブ10アト秒精度の量子位相操作」,2002年分子構造総合討論会,神戸,2002年10月.
- 51) 本田真佐浩, 大森賢治, 千葉寿, 萩原雄祐, 中村美香, 佐藤幸紀「一分子量子メモリー内のデータエンコーディングとデコーディング」,2002年分子構造総合討論会,神戸,2002年10月.
- 52) Kenji Ohmori, “Attosecond Manipulation of Quantum Phases”(Invited), The 5th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, Nara, October, 2002.
- 53) 大森 賢治「アト秒量子エンジニアリング」文部科学省科学研究費補助金「特定領域研究 強レーザー光子場における分子制御」第一回全体会議,東京,2002年10月.
- 54) 大森賢治「サブ10アト秒精度の量子位相操作」(招待講演)第2回原子・分子・光・化科学(AMOS)懇談会,東京,2002年10月.
- 55) 犬塚史一, 三沢和彦, 覧具博義「フェムト秒偏光分割サニャック干渉計の開発」日本光学会,東京,2002年11月.
- 56) 竹内浩史, 松田功, 三沢和彦, 覧具博義「近赤外波長可変フェムト秒位相制御光源の開発」日本光学会,東京,2002年11月.
- 57) Naoyuki Hashimoto, “A simple model for chirp-dependent fluorescence-yields under femtosecond optical pulse irradiation”, 分子科学研究所分子基礎理論第2研究部門中村研究室,愛知,2002年12月.
- 58) Kazuhiko Misawa, “Wave packet engineering using a phase-programmable femtosecond optical source”(Invited), 33rd Winter Colloquium on The Physics of Quantum Electronics, Snowbird, USA, January, 2003.
- 59) 大森賢治「単一分子量子レジスター」特定領域研究「強レーザー光子場における分子制御」研究会『光子場デザインと分子制御』, 柏, 2003年1月.
- 60) 大森賢治, 本田真佐浩, 萩原雄祐, 千葉寿, 佐藤幸紀, John B. West, Evgueni E. Nikitin「単一分子量子レジスター」日本化学会第83春季大会,東京,2003年3月.
- 61) Kenji Ohmori, “Sub-10 attosecond manipulation of quantum phases”(Invited), XX International Symposium on Molecular Beams, Lisbon, Portugal, June, 2003.
- 62) Kenji Ohmori, M. Honda, Y. Hagiwara, H. Chiba, Y. Sato, “Sub-10 attosecond manipulation of quantum phases”(Invited), Kenji Ohmori, XVIII International Conference on Molecular Energy Transfer, San Lorenzo de El Escorial, Spain, June, 2003.
- 63) Roy Lang, “Semiconductor Photonic Devices: Quantum Dot Lasers and Beyond”(Invited), TAMU-ONR-DARPA Workshop on Quantum Optics, Grand Targhee, USA, July, 2003.
- 64) Kaoru Sasaki, Yuya Hshimoto, Naoyuki T. Hashimoto, Kazuhiko Misawa, Kenichi Nishi and Roy Lang, “Asymmetric Stepped Quantum Well Structures for Electronic Wave Packet Excitations”, The 10th International Workshop on Femtosecond Technology, Makuhari, July, 2003.
- 65) Hiroshi Takeuchi, I. Matsuda, K. Misawa and R. Lang, “Phase-programmed femtosecond pulses tunable in the near infrared”, The 10th International Workshop on Femtosecond Technology, Makuhari, July, 2003.

- 66) Koichiro Adachi, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "Analysis of Coherent Excitation of 3 Level System", The 10th International Workshop on Femtosecond Technology, Makuhari, July, 2003.
- 67) Fumikazu Inuzuka, Kazuhiko Misawa, Kiyoshi Asakawa and Roy Lang, "Femtosecond nonlinear phase and amplitude changes in quantum wells measured using polarization-division Sagnac interferometer", The 10th International Workshop on Femtosecond Technology, Makuhari, July, 2003.
- 68) Isao Matsuda, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, "Chirp-dependent fluorescence saturation observed by means of femtosecond variable chirp device", The 10th International Workshop on Femtosecond Technology, Makuhari, July, 2003.
- 69) Yukinori Sato, "Coherent Interaction of Laser fields with Molecules – Control and Read-out of Schrodinger Cat States in Molecules", Seminar at St. Petersburg University, Saint Petersburg, Russia, July, 2003.
- 70) Yukinori Sato, "Attosecond phase control of vibrational wavepackets in the HgAr vdW complex"(Invited) International Symposium "Atomic Cluster Collisions: fission, fusion, electron, ion and photon impact (ISACC 2003)", Saint Petersburg, Russia, July 21, 2003.
- 71) Kenji Ohmori, "Sub-10 attosecond manipulation of quantum phases"(Invited), The 5th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics: CLEO/Pacific Rim 2003, Taipei, Taiwan, July, 2003.
- 72) Kazuhiko Misawa, Fumikazu Inuzuka and Roy Lang, "Femtosecond Sagnac interferometer for the measurement of complex third-order optical susceptibilities"(Invited), SPIE 48th Annual Meeting, San Diego, USA, August, 2003.
- 73) 足立 光一郎, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「3 準位系のコヒーレント励起を用いたチャープパルス位相の検出」, 第 64 回応用物理学会学術講演会, 福岡, 2003 年 8 月.
- 74) 松田 功, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「チャープ鏡対を用いたフェムト秒チャープ量可変装置の開発」, 第 64 回応用物理学会学術講演会, 福岡, 2003 年 8 月.
- 75) 犬塚 史一, 三沢 和彦, 浅川 潔, 覧具 博義, 「半導体量子構造のフェムト秒非線形複素感受率スペクトル」, 第 64 回応用物理学会学術講演会, 福岡, 2003 年 8 月.
- 76) 藤田 博一, 西田 航平, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「ホール分布を考慮した量子ドットレーザ変調特性の解析」, 第 64 回応用物理学会学術講演会, 福岡, 2003 年 8 月.
- 77) 赤川 武志, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「スペクトル領域干渉計による単一ショット位相解析」, 第 64 回応用物理学会学術講演会, 福岡, 2003 年 8 月.
- 78) 上 菜津子, 橋本 直行, 三沢 和彦, 西 研一, 覧具 博義, 「非対称階段型量子井戸の光変調反射スペクトルによる光学遷移の解析」, 第 64 回応用物理学会学術講演会, 福岡, 2003 年 8 月.
- 79) 西田 航平, 藤田 博一, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「ホール分布を考慮した量子ドットレーザの複数準位間発振の解析」, 第 64 回応用物理学会学術講演会, 福岡, 2003 年 8 月.
- 80) 橋本 直行, 上 菜津子, 三沢 和彦, 西 研一, 覧具 博義, 「非対称階段型量子井戸の光変調反射スペクトルによる解析」, 日本物理学会 2003 年秋期大会, 岡山, 2003 年 9 月.
- 81) 松田 功, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「シアニン色素分子における蛍光強度飽和の励起パルスチャープ依存性」, 日本物理学会 2003 年秋期大会, 岡山, 2003 年 9 月.
- 82) Kenji Ohmori, "Single Molecule Quantum Register"(Invited), International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 2: propagation and interaction, Quebec, Canada, September, 2003.
- 83) Kazuhiko Misawa, Isao Matsuda, Naoyuki T. Hashimoto and Roy Lang, "Chirp-dependent fluorescence from cyanine dye molecules"(Invited), 34th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, Snowbird, USA, January, 2004.
- 84) 赤川武志, 三沢和彦, 覧具博義, 「位相変調パルス列の単一ショット位相シフト測

- 定」, 電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会, 松山, 2004年1月.
- 85) 足立光一郎, 三沢和彦, 覧具博義, 「3準位系のコヒーレント励起を利用した光パルス位相の検出に関する解析」, 電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会, 松山, 2004年1月.
- 86) 橋本直行, 三沢和彦, 覧具博義, 「フェムト秒パルス励起蛍光強度チャープ依存性における位相緩和効果(理論)」, 日本物理学会第59回年次大会, 福岡, 2004年3月.
- 87) Kazuhiko Misawa, Isao Matsuda, Naoyuki T. Hashimoto and Roy Lang, “Single molecular phase-to-amplitude converter using femtosecond wave packet engineering”(Poster session), Conference on Lasers and Electro-Optics 2004(CLEO2004), San Francisco, USA, May, 2004
- 88) Kazuhiko Misawa, Fumikazu Inuzuka, Kenichi Nishi and Roy Lang, “Femtosecond nonlinear phase dispersion of GaAs/AlGaAs quantum wells”, Conference on Lasers and Electro-Optics 2004(CLEO2004), San Francisco, USA, May, 2004.
- 89) Kazuhiko Misawa and Roy Lang, “Molecular phase-to-amplitude converting using femtosecond wave packet engineering”, 14th International Conference on Ultrafast Phenomena, Niigata, July, 2004.
- 90) Takeshi Akagawa, Kazuhiko Misawa and Roy Lang, “Single-shot measurement by spectral phase interferometry using a streak camera”(Poster session), 14th International Conference on Ultrafast Phenomena, Niigata, July, 2004.
- 91) Yukinori Sato, Hisashi Chiba, Masahiro Honda, Yusuke Hagiwara, Katsutoshi Fujiwara, Kiyoshi Ueda and Kenji Ohmori, “Real-time observation of phase-controlled vibrational wavepackets in iodine molecules”, 14th International Conference on Ultrafast Phenomena, Niigata, July, 2004.
- 92) Kazuhiko Misawa and Roy Lang, “Femtosecond phase spectroscopy for wave packet engineering”(Invited), Physical Chemistry Colloquium 2004, Sendai, August, 2004.
- 93) 覧具 博義, 三沢 和彦, 「フェムト秒光位相制御による波束エンジニアリング」(招待講演), 原子衝突研究協会第29回研究会, 仙台, 2004年8月.
- 94) Yukinori Sato, Kenji Ohmori, Hisashi Chiba and Kiyoshi Ueda, ” High-Precision Quantum Wave Interferometry”(Invited), 2nd International Symposium on Meteorology & Physics Application, and Energy Measurement (ISMPAEM), Jakarta, Indonesia, August, 2004.
- 95) Kazuhiko Misawa, “Real-time wave-packet dynamics and wave-packet engineering”(Invited), 35th Winter Colloquium on The Physics of Quantum Electronics, Snowbird, Utah, January, 2005.
- 96) 三沢 和彦, 犬塚 史一, 覧具 博義, 「量子構造半導体材料における非線形位相シフトのフェムト秒干渉計測」, 電子情報通信学会 LQE 研究会, 吹田, 2005年1月.
- 97) 三沢 和彦, 石田 邦夫, 相賀 史彦, 「量子化された分子振動ポテンシャル上の波束ダイナミクス」, 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 2005年3月.
- 98) 堀越 建吾, 三沢 和彦, 覧具 博義, 石田 邦夫, 「ラピッドスキアン型フェムト秒ポンブプローブ分光法による分子核波束の観測」, 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 2005年3月.

(3)特許出願 (国内6件、海外2件)

- 1) 三沢 和彦, 覧具 博義, 「光多重送信装置、光多重受信装置、光多重送受信装置、光多重通信装置」, JST, 2001.9.5, 特願2001-268846(A111P09), 特開2003-78505(03.3.14)
- 2) 橋本 直行, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「光パルスのチャープ方向及び量を識別する物質並びにこの物質を用いた光パルスのチャープ方向及び量の測定方法」, JST, 2002.3.22,

特願 2002-81779(A111P51), 特開 2003-279417(03.10.2)

- 3) 三沢 和彦, 犬塚 史一, 覧具 博義, 「時間分解・非線形複素感受率測定装置」, 2003. 1. 7, 特願 2003-1549(A111P73), (優先権主張出願: 2002. 9. 20, 特願 2002-276155(A111P63), 特開 2004-163384(2004. 6. 10), 特許第 3533651, PCT 出願 (PCT/JP03/12015, 2003. 9. 19) (A111-29PCT)
- 4) 佐々木 郁, 橋本 直行, 覧具 博義, 三沢 和彦, 「単一準位と複数準位間の光学遷移が可能な半導体多層構造」, JST, 2002. 9. 20, 特願 2002-276156(A111P64), 特開 2004-111878(2004. 4. 8)
- 5) 松田 功, 三沢 和彦, 覧具 博義, 「光周波数線形チャープ量可変装置」, JST, 2003. 3. 24, 特願 2003-81170(A111P77), 特許第 3569777 号
- 6) 腰原 伸也, 佐島 徳武, 三沢 和彦, 橋本 秀樹, 「共役ポリエン分子の光反応制御方法」, (財)神奈川科学技術アカデミー, JST, 2003. 6. 6, 特願 2003-161889(A111P78)

(4) 新聞報道等

① 新聞報道

「わが国の基礎研究を支えるプロジェクト 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業-CREST研究成果から 52」 “光源・検出系を開発し位相制御/超高速通信, 量子演算の基盤にも 『光・電子波束制御エンジニアリング』 研究代表者 覧具 博義氏”, 科学新聞 2003 年(平成 15 年)12 月 19 日.

「分子にバーコード」分子研大森賢治教授、東京新聞、京都新聞他多数 2004 年 2 月 17 日.

7. 結び

本プロジェクトは、フォトニクスの超高速性をより多様に展開する新しい技術のコンセプト「波束制御エンジニアリング」を提唱し、光の「波束」である光パルスの内部位相を制御することによって単一の光パルスに複数ビットの情報を担わせる自由度の高い新しい光情報通信方式の原理実証を目指した。そして、研究の重点を、光パルスとこれとコヒーレント相互作用する媒質中に励起される量子波束の相互制御においた。困難度の高い目標設定であったが、それに向かってプロジェクトの資源と努力を集中したことによって、超高速フォトニクスの今後の展開に大きく寄与する成果を上げることができたと考えている。

位相制御光源システムおよびチャープ制御デバイスの開発、パルス位相分光技術としての偏光分割フェムト秒サンヤック型干渉計および GHz 高速繰り返し単一ショット位相検出分光技術の開発、そしてラピッドスキュン型分光測光装置により凝縮系であるシアニン色素分子で実現した波束の時間発展の実時間観察は、波束制御エンジニアリングのエッセンスを実証した。非対称量子井戸の実現と理論解析によって、半導体ナノ構造での波束形成の実現もあと一步のところまで来ている。東北大グループによる 10 アト秒の精度で制御された 2 連パルスによる希薄気体における高いコントラストでの分子核波束の干渉の観測は、分子が光位相の量子メモリーとなることを原理実証したもので、波束制御エンジニアリングの量子演算等への発展の可能性を示している。

プロジェクト期間途中から参加を得た東北大多元研の佐藤幸紀研究室での気体分子波束に関する研究と農工大における凝縮系での研究の連携は、研究の加速に有効であった。メンバー追加を認めてくださった研究総括に深く感謝申し上げます。

プロジェクト遂行にあたっては、科学的な理解の深化とともに、技術としての着実性を重視した。綱渡り的な実験や瞬間風速的なデータの積み重ねを自戒して、安定度の高いシステムを組み、可能な限り小型化と可搬性を目指した。その努力は期間中の 6 件の特許出願に加えて、これらの技術が既に、他の多くの研究プロジェクトへの連携協力を要請されて活用されていることに反映されている。特に位相制御技術に熟達した研究者でなくても量子位相制御の実験が可能になったという点で波及効果は極めて大きいと自負している。

また、研究実施にあたっては人材の育成を重視した。CREST 資金と、研究総括および領域アドバイザー各位のご助言は、プロジェクトの中核を担った若手大学人が研究者としてのキャリアを形成していく上ではかりしれない大きな支援となった。また、このプロジェクトに参加した 30 名に達する大学院生達にとっても、極めて有益な研究体験の場を提供することができた。

プロジェクトメンバー達が極めて大きな教育負担を抱えながらも自らに課した高い目標に取り組んでいくことができたのは、JST 本部にくわえて事務所の技術参事、事務参事、その他のスタッフによるご支援に負うところが極めて大きい。心からの謝意を表す。