

微小物質のレーザー光物性 — 光で作る、操る、調べる —



研究室紹介

芦田昌明*

Laser Spectroscopy of Nanomaterials
— Optical Fabrication, Manipulation, and Investigation —

Key Words : Nanomaterial, Ultrafast Spectroscopy, Terahertz Wave,
Laser Ablation, Optical Manipulation

1. はじめに

我々の研究室では、光吸収や発光といった、光と物質の相互作用を通じて、物質の性質を調べる光物性研究をレーザーを用いて行っています。特に、微小な物質の作製とその運動制御によるサイズなどの選別、また特異な光学応答の発見と解明を進めています。

具体的には、永井正也准教授並びに松原英一助教と共にいわゆるテラヘルツ周波数帯における分光を、蓑輪陽介助教と共にナノ粒子の作製とその光マニピュレーションを、招へい教員の宮正義大阪歯科大学講師と共に超高品質半導体薄膜の超高速光学応答の解明を、それぞれ進めています。以下では、順を追って内容を紹介させて戴きます。

2. テラヘルツ波による分光と物性制御

電磁波の中で、光と電波の中間の周波数をもつもの（一般的に0.1-10 THz、ここでTHzは1兆ヘルツ）はその単位からとって「テラヘルツ波」と呼ばれています。テラヘルツ波は、可視光を通さない紙、プラスチックなどを透過しますが、生体に与える影響がX線に比べて桁違いに小さいので、空港・税関の検査など安全・安心への応用が期待されています。また、(生体高)分子の回転・振動や、固体の格子振動、超伝導ギャップ、伝導電子の応答など、豊富

な情報が得られる周波数帯ですので、基礎研究の観点からも重要です。電極が付けられないナノ粒子の特性評価にも威力を発揮します。

これまでテラヘルツ波の発生・検出はエレクトロニクスからすると周波数が高過ぎ、光学からすると波長が長過ぎて難しいものでしたが、ここ20年ほど前から時間幅がフェムト秒(fs、1000兆分の1秒)クラスの超短パルスレーザーが容易に利用できるようになって、飛躍的に発展しました。こうしたレーザーを用いて、非線形光学効果と呼ばれる周波数混合を行うことで、パルスの(搬送波を整流して)包絡線程度の時間幅の電場パルスを発生させる「光整流」を行うことができます。例えば、ピコ秒(ps、1兆分の1秒)レーザーを用いると、その逆数に相当する周波数、テラヘルツ波を発生できます。また、サンプリングオシロスコープと同様に時間幅が十分短いゲートをかけて、ある時刻の電場の値を何らかの方法でサンプリングし、その時刻を十分細かい精度で走査していくことで電場の時間応答を観測できる「時間領域分光法」が可能となりました。例えば、ピコ秒レーザーでゲートをかけることにより、テラヘルツ波の電場計測が行えます。光の計測では、通常その強度のみが測定されますが、電場を計測できれば位相情報も加わるため、誘電率など複素数でかかれる定数の実部と虚部を同時に求めることができ、非常に有力な分光法です。我々は、この手法をテラヘルツ帯から可視域にまで広げる試みを行っています。図1左は時間幅5 fsの超短パルスを有機結晶DASTに照射して光整流を行うことにより得られた超広帯域赤外パルスを、光伝導アンテナと呼ばれる素子に同じ超短パルスでゲートをかけて時間領域分光することで得られた時間波形です。挿入図に示す通り、周期において数fsの振動が観測でき、そのフーリエ変換スペクトルである図1右より、検出で



*Masaaki ASHIDA

1964年5月生
京都大学大学院理学研究科物理学第一専攻博士後期課程中退(1991年)
現在、大阪大学 大学院基礎工学研究科物質創成専攻 未来物質領域 教授
博士(理学) 光物性物理学、レーザー分光学
TEL : 06-6850-6506
FAX : 06-6850-6509
E-mail : ashida@mp.es.osaka-u.ac.jp

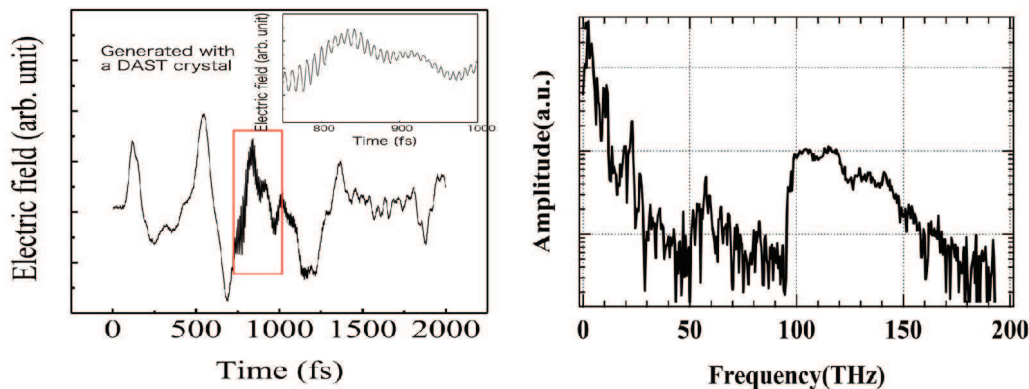


図1 超広帯域赤外パルス電場の時間応答（左）とそのフーリエ変換スペクトル（右）
左図の中央部四角内を拡大したものが挿入図である。右図で100THz以下に見られる多くの鋭いスペクトル構造はDAST結晶の吸収による。

きた周波数は170 THz ($1.8 \mu\text{m}$) 程度の近赤外域にまで達していることがわかります。これは、アンテナでも赤外光の電場が直接観測できることを示すもので、今のところ世界最高記録です。¹⁾

また、通常の半導体素子のpn接合にかかる電場を上回る400kV/cm程度の高電場テラヘルツ波の効率的な発生にも成功しています。²⁾ この、熱の発生より速いピコ秒程度の高強度電場印加による物性の制御や新たな物質の創成が目下の課題です。

3. 光によるナノ粒子の作製と光による運動制御

半導体ナノ粒子は、電子が微小空間に閉じ込められることから、量子力学的な効果でエネルギー準位が原子のように離散化し、そのエネルギー準位はサイズや形状に依存する性質があります。この人工原子としての性質を使うと、吸収波長を制御できますので、太陽光発電でSiなどの従来材料が得意な波長、例えば赤外域の吸収をより大きくすることなどが期待されています。しかし、エネルギー準位の揃ったナノ粒子群を得ることは今日でも容易ではありません。

我々は、高強度レーザーによって材料表面を破壊することによって微粒子群が放出される「レーザーアブレーション」と呼ばれる現象を利用して、ナノ粒子を作製します。得られる粒子群はサイズ・形状に大きな不均一分布をもちますが、上で述べた応用を進めるには、その選別を行い、均一な集団を得ることが極めて重要です。そこで、光による運動制御、「光マニピュレーション」を行います。ここでは、

ナノ粒子が光を吸収・散乱する際にその運動量を受け取ること、すなわち輻射力で運動を制御しますが、粒子のサイズ・形状の違いに対応して（エネルギー準位が異なり）共鳴する光のエネルギーが異なることを利用すると、粒子の選別も可能となります。ここで超流動ヘリウムを媒質として用いると、温度が2K程度と低く、共鳴のエネルギー幅が非常に狭くなって選別性を高めることができる上、粘性が無視できるほど小さいなど、光マニピュレーションに対して理想的な環境を創り出せます。図2に示すように、青色発光材料として期待されているZnOなどのワイドギャップ半導体に対して、超流動ヘリウム中でレーザーアブレーションによるナノ粒子の作製とそのサイズ選別を含めた光マニピュレーションに成功しています。この手法の適用物質の拡張とナノ粒子の配列制御を目指した研究を進めています。

また、超流動ヘリウム中のアブレーションで作製されたマイクロ球が示す低閾値レーザー発振を発見しました。³⁾ このように、他の環境では得られない新奇材料の創成も狙っています。

4. 超高品質半導体薄膜が示す超高速光学応答

光通信は今日のインターネット社会を支える非常に重要な技術ですが、交換機に相当する光スイッチでは、一旦光を電気信号に変換して、それをエレクトロニクス素子で処理した後に再び光信号に変換されており、最終的な伝送速度に限界があります。従って、光で光を操作する全光スイッチの実用化が待たれますが、そのためには、制御光によって信号光

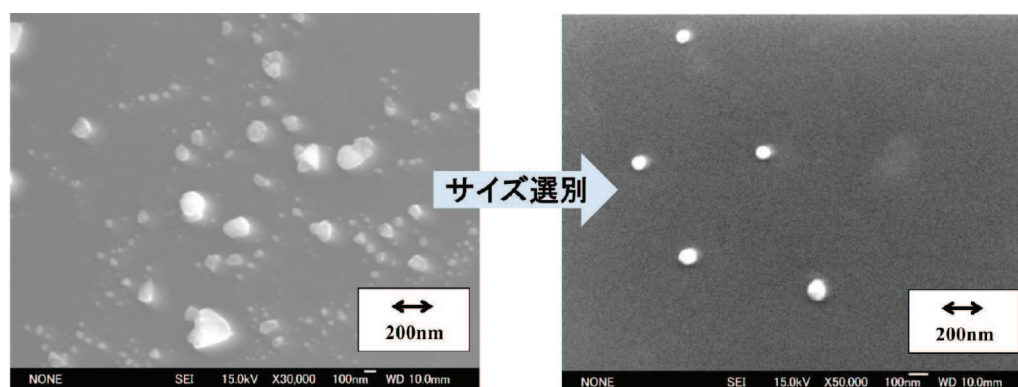


図2 レーザーアブレーションで作製された微粒子 (左) と光マニピュレーション後 (右) ZnO に対する実験結果。Si 基板上に堆積させたものを走査型電子顕微鏡で観察。

に対する屈折率が変化するなど、複数の光が関与する現象、すなわち非線形光学効果を用いる必要があります。大きな非線形光学応答を示す材料では応答速度が遅くなる問題があり、その限界を超える材料は未だ知られていません。我々はよく知られた半導体薄膜の品質を向上させることで、非線形応答と超高速応答を両立できることを見出しました。真空蒸着法の1つである分子線エピタキシー法でI-VII族化合物半導体CuClの薄膜を高品質化することで、励起された電子の波動関数が欠陥等に阻害されずに、光の波と数波長の距離に渡って相互作用できるようにしました。その結果、特定の膜厚で光と電子励起状態の相互作用が特異的に強くなり、励起状態が素早く光となる、新たな超高速現象を明らかにしました。得られた応答時間は100 fsクラスに達し、従来の半導体に比べて3桁以上も高速な応答速度を実現しています。⁴⁾ この機構では、室温の熱擾乱で電子の波動関数が乱されてしまうより速く光スイッチ動作を完了することが可能であるため、室温で効率的に動作する超高速光スイッチへの応用が期待されます。

5. おわりに

当研究室は発足から2年ちょっとで、紹介した3

つの項目は互いに関わりなく進んでいるように見えるかも知れませんが、それらをつなぎ合わせた研究、すなわち、高品質薄膜が示したような新奇応答を、ナノ粒子等の巧みな配列で実現し、その特徴的な応答を広帯域テラヘルツ時間領域分光法などを駆使して観測することが当面の目標です。

当研究室は、基礎工学研究科物質創成専攻の物理系と化学系から構成され未来物質領域に属し、本誌Vol.63, No.3 (2011)で研究紹介を執筆されたレーザー化学がご専門の宮坂博教授の研究室と共に、微小物質ダイナミクス講座を構成しています。日常的な交流の下に、物理と化学の融合に基づく新物質・機能の創成や広い視野をもった物質科学の研究者の育成を目指しています。

参考文献

- 1) I. Katayama, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 021105, (2010).
- 2) M. Nagai, E. Matsubara, and M. Ashida, *Opt. Exp.* **20**, 6509 (2012).
- 3) S. Okamoto, Y. Minowa, and M. Ashida, *Proc. of SPIE*, Vol. **8263** 82630K (2012).
- 4) M. Ichimiya, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 257401, (2009).