

# 物性研だより

第40卷  
第2号

2000年7月

## 目 次

物性研に着任して	榎原俊郎	1
研究会シリーズ「物性研究の展望」の講評にお応えして		3
物性研究所短期研究会報告		
○ 「量子構造体における励起電子ダイナミックス」		6
世話人 後藤武生, 末元 徹, 張 紀久夫, 山本愛士		
○ 「強光子場中の原子分子ダイナミクス」		41
世話人 山内 薫, 渡部俊太郎, 小森文夫, 吉信 淳, 中島信昭, 河野裕彦, 染田清彦, 池田研介		
物性研究所談話会		66
物性研ニュース		
○ 人事異動		69
○ 東京大学物性研究所 教官公募		70
○ テクニカル・レポート 新刊リスト		74
編集後記		

東京大学物性研究所

ISSN 0385-9843

## 物性研に着任して

新物質科学研究部門 榊原俊郎

3月1日付で北海道大学から物性研新物質科学研究部門に着任しました。3、4月は自分の異動と物性研の柏移転とが重なったこともある、慌ただしく過ぎ去った感があります。私は北大の中で二度、新しい研究棟に引っ越しをした経験がありますが、柏キャンパスの新研究棟の規模と設備の充実ぶりには驚かされました。現在は建物周囲の環境整備がまだ終わっていませんが、完成すればすばらしい研究施設になるものと思います。

私の研究室は連休明けに漸く実験装置の移設を終え、現在立ち上げの最中です。ただし北大の私の居た研究室は引き続き網塚・天谷両氏が研究を継続するために、稼働中の装置の多くを残していました。したがって移設を終えたとは言ってもすぐに使える状態ではなく、例えば自作の $^3\text{He}$ 冷凍機のガスハンドリング部を新たに製作中、といった状況です。これに加えて、これまで計測器制御に今や時代遅れ(?)のN○○BASICをまだ使用していたのですが、これを機会にLabVIEWで書き直すことを決意したためにその開発(修得)にも少々時間を要しています。何分今のところ研究室は私一人のためいろいろと手間取っていますが、部門の技官の方の協力を得ながら何とか6月中には実験を再開できるように鋭意努力中です。

柏に来て最初戸惑ったのは、実験室の立ち上げに必要な資材を調達する業者探しでした。測定機器の類はメーカや取扱業者がわかっているので問題はないのですが、厄介なのはもっと細々とした資材の調達です。たとえば、「こことこの配管をつなぐレデューサーが欲しい」、とか「こういう物を作りたいのだけれど何か適当な部品がありますか」などといった、電話では説明しにくい要求が日常頻繁に発生します。長年居ると馴染みの業者さんが出来て直接話を聞いてくれるので甚だ便利なのですが、新しい土地ではそうはいきません。幸い六本木のときの出入りの業者さんが週に2回ほど柏まで来てくれ、また北大でお世話になっていた業者の営業所が筑波にあって電話連絡をすれば柏まで来てくれることがわかり助かっています。ただし少し特殊なエレクトロニクス部品の調達ルートがまだよくわかりません。さすがに六本木のときに比べると不便さを感じます。

さて、私の研究室は希釈冷凍機温度で15Tまでの磁場スキャンの磁化測定が行えるのが売り物です。この装置は約8年前から開発を始めたもので、当時は重い電子系物質の研究がピークを迎つた時期でした。重い電子系物質はその特徴的なフェルミ温度が10K程度と低いために、基底状態の振舞を研究するためには希釈冷凍機を使った実験が必要になります。ところが磁化測定に限る

とこの温度領域で数Tまでの測定の行える汎用の装置は当時私の知る限り皆無でした。これは是非必要であると思い開発を始めたわけですが、「SQUIDによる引き抜き法」という正攻法ではなく「キャパシタンスセルを用いたファラデー法」が有利であると早い段階で見極めたことは正解であったと考えています。ただし初期の段階の試作品はとても使用に耐えるものではなく幾度か匙を投げそうになりましたが、粘り強く試行錯誤を続けた結果、一応満足のいく装置を完成させることができました。この1号機は9T, 50mKの測定レンジと10万分の1emuの感度を有し大変活躍しました。今なお現役で北大で稼働中です。

このキャパシタンス式磁化測定装置は“低温で使えること”が開発の第一目標でしたが、使ってみると他にもいろいろメリットのあることがわかりました。まず引き抜き法が単発の測定の繰り返しであるのに対して、キャパシタンス法は準静的測定でかつ磁化の変化分を感度良く検出できるためデータの連續性に優れています。また、試料をほとんど静止させたまま測定が行われるため、試料が感じる磁場揺らぎ（引き抜き法では問題となることが多い）が皆無です。これらの特徴は1次相転移の検出や第二種超伝導体の混合状態の磁化ヒステリシスループの測定などに特に有効でした。もっとも欠点が無いわけではなく、試料が常に数100G/cm程度の磁場勾配を受けることはファラデー法の宿命です。

現在の装置は北大から移設した13/15Tマグネット+3 He冷凍機／希釈冷凍機（夏頃には稼働予定）ですが、今年度中にはさらに8/10Tマグネット+ソーブ式希釈冷凍機のシステムが稼働する予定です。後者ではより高感度の実験が行える予定です。これらの装置はもちろん共同利用にも提供いたしますのでご利用ください。現在進行中の研究課題はf電子化合物における軌道（四重極）整列や多重極相互作用の問題、また軌道縮退を有する系の四重極近藤効果を含む低温異常の問題などですが、これまで行ってきた重い電子系のメタ磁性や異方的超伝導についてもまだ未解決の問題が残されており、これらについても継続的に考えたいと思います。さらにf電子系に限らず低温磁性として興味ある現象は広く視野に入れて行くつもりです。物性研は何と言っても物質科学の様々な分野の専門家がそろった他に類を見ない研究組織です。この環境を生かして研究のアクティビティを高めていくためには研究室・部門を越えた協力体制が重要であることは言を待ちません。私も積極的に参加し、また期待します。

最後になりましたが、北海道大学における11年間の研究生活は私にとって大変有意義かつ楽しいものでした。研究室の網塚・天谷両氏、そして物理教室の伊土先生、大川先生をはじめ数多くの方々に研究や運営の様々な局面で支援していただきましたことを深く感謝致しております。

## 「研究会シリーズ「物性研究の展望」の講評にお応えして」

先端領域研究部門

「表面・人工物質における物性科学のフロンティア」というタイトルで開催した本研究会に、ご多忙中にも関わらずご出席くださり、貴重なコメントをお寄せくださった評価委員の先生方に感謝申し上げる。

物性研究所は平成8年に、それまでの組織を全面的に再編し、新たに5研究部門+3研究施設の体制でスタートした。先端領域研究部門はその際に新たに発足した部門である。その基盤となったのは、改組前の極限物性部門表面グループ3研究室（村田・田中・小森）と超低温グループ1研究室（河野），それに凝縮系物性部門の量子輸送関係の2研究室（家・勝本）であった。部門発足と前後して村田所員、田中所員の停年退官に伴う所員人事が行われ、吉信所員、長谷川所員が着任した。また本研究会の後に生じた人事異動であるが、本年4月付けで河野所員が理化学研究所に転出した。

当部門は、物性科学における先端的重点分野について10年程度の時間スケールで集中的な研究を行う部門と位置づけられ、現在、表面および人工物質系を対象とする研究に取り組んでいる。表面科学は、物性研が早い時期から取り組んできた分野の一つである。昭和55年に第2世代の極限物性研究計画をスタートするに当たって表面科学を5本柱の一つとして取り上げたことは先見性があったと思われる。当時は、表面構造や組成、そして表面で何がおこっているかを明らかにすることが第一の目標であった。現在では、これらを調べる方法が充分とはいえないまでもほぼ確立し、表面科学はその全体をカバーしようとすれば1つの研究所全部を当てても不足するほど広範な分野に発展した。物性研の表面グループでは、その中でも表面あるいは表面上のナノスケール構造の構築、形成過程、及びその物性を中心とする研究に焦点を絞り、さらに実験手法の新規開発も同時に進めている。人工物質・メゾスコピック系の研究は物性研としても我が国全体としても欧米の先進的研究機関に比べて出遅れた感が否めない。研究を進めるための最低限の設備や人員に、ある程度の規模が必要であるため、かつての凝縮系部門では推進することが躊躇されたという経緯がある。しかしながらこの分野の重要性に鑑み、また学部・研究科での研究実施はさらに難しいことから、欧米の先進的研究機関に比べて小規模ながら当部門で取り組みを行っている。

研究会で報告した当部門各研究室の活動内容に対して、一定の評価はいただけたものと思う。今後の当部門の活動に対して、期待を込めた暖かい提言を賜った。そのポイントは、①理論と実験の緊密な協力関係、異分野との積極的な研究交流を進めるように、②表面関係と量子輸送関係の研究

室が1つの部門を構成していることを生かした物性研独自の展開を目指すように、③継続的技術開発力の充実を図るように、④独自の方向性を打ち出して「自由にのびのびと」「物議を醸すような」研究を進めよ、といった点に集約されるかと思う。

①については、電荷密度波の周期や表面吸着分子の配位に関する第一原理計算、磁場変調下の2次元電子系の抵抗、表面電子状態の光電子スペクトル解析など、所内理論部門との協力の事例や客員所員として迎えた理論家との共同研究がいくつかあるが、今後も所内外の理論家との交流を積極的に進めたい。実験についても、いくつかの系に関する光電子分光の共同研究が軌道放射研究施設と、フェムト秒レーザーを用いた表面磁性研究やX線ラマン散乱による希薄磁性半導体の研究が先端分光研究部門との共同で進行中である。共同利用・共同研究という観点の活動については後述する。

②は重要な指摘であり、われわれも一つの部門を構成することの意味を改めて考える契機となった。当部門の全研究室の研究テーマのベクトルをトップダウンで合わせるようなことは適切な戦略とは思われないし、提言の主旨でもないであろう。むしろ当部門のメンバーの研究志向に通底するものを意識し、得意とする実験技術を共有することによって相互啓発に努めるなかで、部門内共同研究の実を上げることが重要と考える。表面独特のナノ構造の形成と局所プローブによる物性研究が表面分野の重要な一角をなすことは疑いないし、メソスコピック分野においても原子サイズのナノ構造への展開は必然的な潮流であろう。このような意味からは当部門の進むべき大きな方向は「ナノスケール・サイエンス」(いささか手垢のついた言葉ではあるが)というキーワードで表現することができよう。われわれはこのキーワードを意識しつつ、低温技術や走査プローブ顕微鏡技術などを武器として研究を進めて行く所存である。

③は全く同感であり、技術開発研究や技術支援組織の重要性はわれわれも強く感じている。定員削減等の厳しい状況のなかで根本的な解決は難しいが、例えば地域のベンチャー企業育成の場である東葛テクノプラザとの連携が一つの策かもしれない。

④はある意味で最も厳しい指摘かもしれない。オリジナリティを出すことの困難に立ち向かえという励ましの言葉として読ませていただいた。

本研究会に先行して開催された極限環境物性研究部門の研究会では、施設の共同利用についての議論が盛んであった。ユーザー・ファシリティとは性格を異にする当部門の研究会では、この点はあまり議論にならなかったが、共同利用に関して当部門が貢献できることを述べておく必要がある。低温輸送現象の測定関係では、以前から超伝導マグネットや<sup>3</sup>He冷凍機などを用いた実験に協力してきた。比較的スタンダードな測定については物質設計評価施設の電磁気測定室で対応する体制に移行している。より低温の希釈冷凍機温度や磁場中の精密角度調整を必要とする実験については当部門で対応することができる。試料提供という観点からは、いくつかの研究グループに半導体2次元電子系試料（ウェハー）や希薄磁性半導体試料の提供を行っているが、新規導入したMBE装

置を立ち上げて、これまでよりも高品質の試料を関連分野の研究者に提供できる体制を整えたいと考えている。また微細加工設備も適宜共同利用に供することができる。表面研究においては、多くの場合、試料の調製から測定までを超高真空環境で一貫して行うことが必須となるため、いわゆる施設利用的な利用形態には馴染まない点がある。むしろ、初期の段階から議論を共にする共同研究が望ましく、これまでにも長期にわたる共同研究がいくつか行われてきた。柏移転に際して各種表面分光装置や走査プローブ顕微鏡を充実させることができたので、これからも積極的に共同研究を推進する考えである。

柏移転は、物性研究所全体にとっていろいろな意味で大きなプラスの面があったが、われわれの部門は特に移転のメリットを享受できると期待している。手狭であった六本木から柏に移ったことによって実験室のスペースに若干の余裕ができ、作業効率を考えた装置配置ができるようになった。六本木に比べて機械的振動や電磁雑音が格段に低レベルであることは大きなメリットである。日常的に走査プローブ顕微鏡や電子線描画装置を用い、また微小信号測定でノイズとの戦いを強いられる宿命を負ったわれわれにとって極めて恵まれた環境である。六本木の立地条件では半ば諦めざるを得なかったレベルの実験がこの柏では可能になるのではないかと希望を膨らませている。

## 物性研究所短期研究会報告

### 「量子構造体における励起電子ダイナミックス」

日 時 2000年4月24日（月）～4月26日（水）

場 所 東京大学物性研究所 6階大講義室

世話人 後藤武生（東北大院理）  
末元徹（東大物性研）  
張紀久夫（阪大院基礎工）  
山本愛士（東北大院理）

電子が量子サイズ効果を受けるナノ構造体では、電子は、コヒーレント超放射、ランダムレージング、エクシトンストリングなどの特異な物性を示すことが知られている。

特に最近ではフェムト分光の技術が発達し、デンドリマーでの励起電子の動きや電子一格子相互作用をリアルタイムで観測できるようになっている。他方、最近N S O Mの技術も飛躍的に進歩し、分子1個やナノメートルサイズの超微粒子1個の電子を光励起し、外場の下での発光の時間分解分光により閉じ込められた1個の励起電子のダイナミックスを研究できるようになった。

2000年8月には、励起子に関する国際会議が大阪で開催される予定になっており、我が国での研究も非常な盛り上がりを見せつつある。このような状況の下でこの機会に短期研究会を開いて、物性と実験技術について研究者相互の情報を交換し、研究の発展を企てるとの意義は大きい。特に物性研には、三浦、末元、秋山所員を始めとしてこの分野の第一人者が揃っており、全国の研究の拠点をなしているので、研究会それ自身役立つのみでなく新しい柏キャンパスの最先端施設を見学し、物性研との共同研究や自らの研究に役立てることの意義も大きい。

## プ ロ グ ラ ム

4月24日（月）

13:30 はじめに

後藤 武生（東北大院理）

13:35 第4回励起子国際会議（EXCON2000）のアナウンス

松井 敦男（EXCON組織委員長）

(1) 13:40 半導体量子細線、井戸構造における構造ゆらぎと励起子拡散

吉田 正裕、秋山 英文（東大物性研）

(2) 14:05 GaP/AlPへテロ構造の励起子発光機構と強磁場・高圧効果

内田 和人、三浦 登、白木 靖寛\*（東大物性研、東大先端研\*）

(3) 14:30 ZnSe量子井戸における励起子の高密度励起効果—プレパルススペクトル分解四光波混合実験

田中耕一郎、畠岡真一郎、若井 良平（京大院理）

(4) 14:55 Bosonizations for electron-hole excitations in insulators and metals

小川 哲生（東北大院理）

15:20～15:40 休憩

(5) 15:40 量子ドットにおける励起電子のダイナミックス

舛本 泰章（筑波大物、ERATO）

(6) 16:05 (411)A GaAs基板上に自己形成したGaAs/AlGaAs単一量子ドットの多励起子状態

枝松 圭一、綿谷 力、下村 哲、冷水 佐壽（阪大院基礎工）

(7) 16:30 Coherent control and interference of cold biexciton waves

五神 真（東大院工、科技団ERATO）

(8) 16:55 シクロデキストリン中の分子クラスター及び单一分子

吉成 武久、金 泰臻、中坪 武士、後藤 武生\*（山形大理、東北大院理\*）

17:20 終了

4月25日（火）

- (9) 9:30 2光子吸収、赤外過渡吸収による励起子閉じ込め効果の研究

伊藤 正（阪大院基礎工）

- (10) 9:55 1次元励起子ポーラロンの超放射と励起子コヒーレンスサイズ

田中 智（阪府大総科）

- (11) 10:20 ハロゲン架橋白金錯体類似3次元化合物の蛍光スペクトルと緩和

栗田 進（横浜国大工）

10:45～11:10 休憩

- (12) 11:10 一次元白金ジメチルグリオキシム錯体における緩和励起状態波束運動と励起光  
チャーブ依存性

岩井伸一郎（物質研）

- (13) 11:35 超高速発光分光による局在電子状態の研究

末元 徹、齋藤 伸吾、富本 慎一、津村 武男（東大物性研）

12:00～13:30 昼食

- (14) 13:30 強相関一次元系の光励起状態と非線形光学応答

岡本 博、岸田 英夫（東大新領域）

- (15) 13:55 サブ5フェムト秒実時間分光

小林 孝嘉（東大院理）

- (16) 14:20 光合成アンテナ系における光学禁制励起子と励起移動

向井宏一郎、阿部 修治、住 齊\*（電総研、筑波大物質工\*）

- (17) 14:45 層状半導体結晶励起子の非線型光学応答とダイナミックス

唐沢 力（大阪市大院理）

15:10～15:30 休憩

- (18) 15:30 ハロゲン化鉛結晶における励起子の電荷分離型緩和

林 啓介、岩長 祐伸\*（京大総合人間、京大院人間環境\*）

- (19) 15:55 NaCl結晶中の超構造相 $\text{Na}_6\text{CdCl}_8$ での緩和励起子発光

中川 英之（福井大工）

- (20) 16:20 ZnO エピタキシャル薄膜の高密度光励起キャリアのダイナミクス

武田 淳, 隈内 秀夫, 栗田 進, 陳 亦凡\*

八百 隆文\*（横浜国大工, 東北大金研\*）

- (21) 16:45 ZnO エピタキシャル薄膜における高密度光励起状態

山本 愛士（東北大院理）

17:10 終了

17:30～19:30 懇親会（場所：本館[A棟] 6階ロビー）

4月26日（水）

- (22) 9:30 微視的非局所応答理論：最近の発展

張 紀久夫（阪大院基礎工）

- (23) 9:55 ZnO/MgZnO 量子井戸における誘導放出機構

牧野 哲征（理研PDC）

- (24) 10:20 半金属・半導体における格子振動のフェムト秒実時間観測および制御

長谷 宗明（金材技研）

10:45～11:10 休憩

- (25) 11:10 アモルファス半導体の量子閉じ込め効果？

金光 義彦（奈良先端大）

- (26) 11:35 フォトニック結晶から時空間機能材料へ

石原 照也（理研フロンティア研究システム）

12:00 閉会

## 半導体量子細線, 井戸構造における構造ゆらぎと励起子拡散

東大物性研 吉田正裕  
秋山英文

結晶成長技術の進歩に伴い、良く形状制御されかつ高品質な半導体ナノ量子構造の形成が可能となってきた。このようなナノ量子構造の研究において、その低次元性についての基礎物性研究だけでなく、構造の均一性や構造内のキャリアのダイナミックス（流れ、拡散）などについての研究（低温だけでなく広い温度範囲での温度特性も含めて）も、応用面を考えた場合には重要なものである。

本研究では、そのような観点から、ソリッドイメージングレンズを顕微手法と組み合わせたサブ $\mu\text{m}$ の分解能を有する高空間分解能顕微蛍光分光・画像計測<sup>[1]</sup>を用い、ナノ構造中での励起子の空間分布や近接した量子構造間での励起子の流れ、局所的な電子状態についての計測を行なった。

(1) パターン基板上へのMBE選択成長により作製した2つのリッジ構造を有するダブルリッジ型GaAs量子井戸構造における励起子の空間分布、移動の様子を蛍光画像計測により直接観測した。<sup>[2]</sup> 量子井戸幅の分布（メサ構造中央で薄く、両端近傍で厚い）による閉じ込めポテンシャルの空間分布を反映した発光分布を観測することができた。また、試料上に集光した点励起下での蛍光像観察から、励起位置に依存した異方的な蛍光像が得られ、拡散だけでなく閉じ込めポテンシャル勾配によるドリフトの効果も観測された。

(2) へき開再成長法によりMBE装置を用いて作製したT型量子細線について、まず、細線(QWR)の空間分布について観察したところ、空間的に不均一な発光像が観測された。(110)面上の量子井戸についての顕微蛍光計測との比較から、この不均一分布は、主に、(110)量子井戸界面に存在するに大きな界面ラフネスにより局在化した電子状態からのものであることが示された。

次に、T型量子細線構造における1次元励起子の安定性について、発光強度の温度依存性を調べた。低温領域( $T < 60\text{K}$ )では、温度上昇につれ、QW1(第一成長層として(001)面上に成長する量子井戸)からの発光強度の減少とQWRの発光強度の増加が観測された。これは励起子拡散距離の増加によるQW1からQWRへの励起子の流れ込み効果によるものと解釈できる。

一方、高温領域( $T > 60\text{K}$ )では、QW1とQWRからの発光強度の比( $I_{\text{QW1}}/I_{\text{QWR}}$ )が活性化型を示し、その活性化エネルギーがQW1とQWRの発光エネルギー差と良く一致する。これは、QWRとQW1の状態間で熱平衡状態となっていることを示している。これらのことから、より高温において1次元状態を保持するには、大きな横方向閉じ込めエネルギーだけでなく、近接した量子井戸構造との間での励起子の流れ込みや分布も重要なファクターであると考えられる。

本研究で使用した半導体ナノ構造試料の作製は、東大生産研榎裕之先生、小柴俊（現香川大）、染谷隆夫（現生産研）、近藤直樹氏によるものである。

- [1] T. Sasaki et al., Jpn. J. Appl. Phys. **36** L962 (1997).
- [2] M. Yoshita et al., Appl. Phys. Lett. **73** 2965 (1998).

### GaP/AIPヘテロ構造の励起子発光機構と強磁場・高圧効果

東大物性研 内田和人

三浦登

東大先端研 白木靖寛

間接遷移型半導体のみで構成された半導体ヘテロ構造を新たな発光材料に利用する試みがなされ、母体結晶の性質からかけ離れた新しい物性の創造が期待されている。そのひとつとして、超格子構造を導入し電子帯の折り返し効果によって  $k$  空間での直接遷移型へ変換させる方法が、Si/Ge系やGaP/AIP系を中心に試みられている。なかでもGaP/AIP超格子は格子整合系であり、可視光領域において実際に観測される強い発光が  $k$  空間での直接遷移によるものかどうか、多くの注目を集めている。GaP/AIPヘテロ構造は、価電子帯の頂上が GaP の  $\Gamma$  点にあり、伝導帯の底が AIP の X 点にある。X 点は極めて異方的な電子状態を持つことから、磁場及び圧力（一軸性応力）下で発光スペクトルを測定することにより、バンド端の電子状態 ( $X_{xy}$ か折り返された  $X_z$  か) を明らかにし、励起子発光機構を調べることを研究の目的とする。

(3,3) 超格子のヘテロ界面に垂直に一軸性応力を加えると、約 0.1GPa で  $X_{xy}$  -  $X_z$  準位交差に伴う発光強度の急激な増大とエネルギーシフトの変化が観測された（図1）。より長周期の超格子及び量子井戸構造、隣接閉じこめ構造についても同様の測定を行い、(4,4)超格子を境に、それよりも短周期の超格子では伝導帯下端が  $X_{xy}$  点であり、他のヘテロ構造では  $X_z$  点であることが明らかになった。さらに、(3,3)超格子について、約 0.1GPa の一軸性応力下でヘテロ界面に垂直に磁場を加えると、大気圧下では見られなかった急激な発光強度の減少とレッ

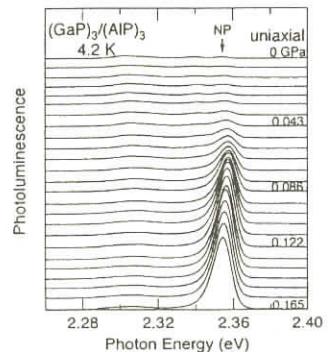


図 1

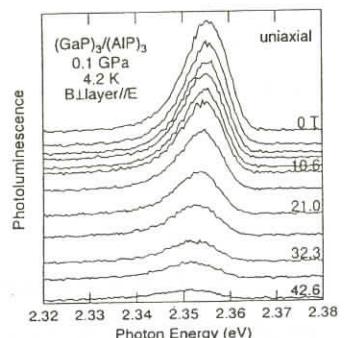


図 2

ドシフトが観測された（図2）。これは、自由励起子の磁場効果とは正反対であり、タイプIIヘテロ構造特有の磁場誘起キャリア局在と考えられる。これらの圧力依存性と磁場依存性から、GaP/AIPヘテロ構造からの強い発光は、ヘテロ界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動が選択則を乱し、本来禁制遷移である電子・正孔の再結合を促しているものと考えられ、界面付近での励起子局在効果が、発光に支配的であることが示唆される。

### ZnSe量子井戸における励起子の高密度励起効果 — プレパルススペクトル分解四光波混合実験

京大院理 田中 耕一郎

畠岡 真一郎

若井 良平

これまでの2パルス四光波混合の実験から、励起強度を大きくすると、励起子および2励起子状態の位相緩和時間は励起強度とともに速くなるのに対し、励起子分子では励起強度にはほとんど依存しないことがわかつた。位相緩和時間が速くなる原因としては、インコヒーレント励起子との散乱を考えてきたが、四光波混合信号を測定するのに用いているパルスが、同時にインコヒーレント励起子を作っているために、議論に不明瞭な点があった。

そこで、今回、インコヒーレント励起子を導入するためのプレパルスを用いた四光波混合実験を行った。四光波混合を測定するための2パルスの強度はそれぞれ $1.4 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ に固定し、プレパルスの励起強度を $1.4 \sim 14 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ の間で変化させた。図1は、parallel偏光配置における四光波混合スペクトルで、インコヒーレント励起子密度依存性を示している。2つのパルスの遅延時間を0.3psにし、プレパルスの入射時間はそれより10ps前に設定してある。図のXに観測される信号は励起子からの信号である。信号が2つに分裂して見えるのは、四光波混合信号を反射配

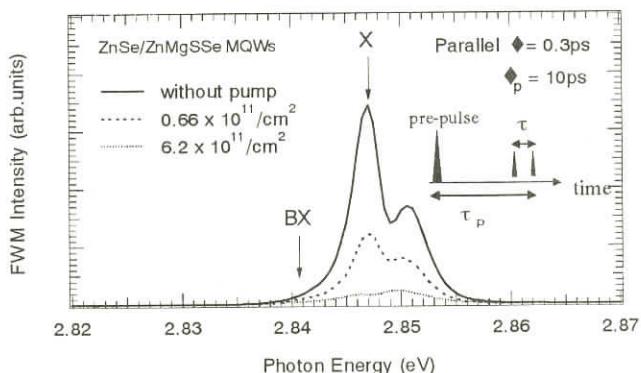


図1 四光波混合スペクトル

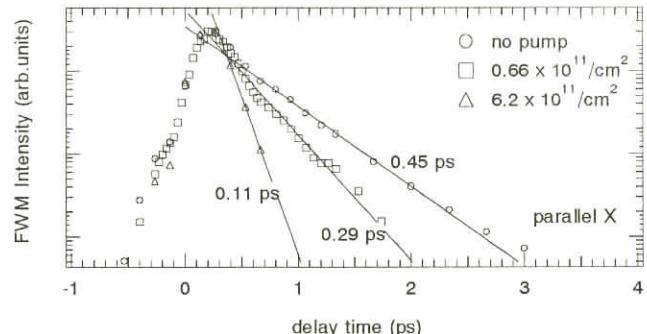


図2 位相緩和時間の励起強度依存性

置で測定しているために、直接の信号と一度透過し基板で反射された信号が干渉しているためと考えている。インコヒーレント励起子の密度を大きくすると、四光波混合信号は弱くなることがわかった。この原因としては、プレパルスにより励起子を作ったために励起子の吸収飽和が起こり、そもそも発生する四光波混合信号が弱くなっていることが考えられる。図2は、位相緩和時間のインコヒーレント励起子密度依存性である。インコヒーレント励起子密度が大きいほど位相緩和時間が速くなっていることがわかる。

### Bosonizations for electron - hole excitations in insulators and metals

東北大学大学院理学研究科 小川哲生

Recently, origins of the optical nonlinearity of semiconductors near the 1s exciton resonance are eagerly studied experimentally with the use of four-wave-mixing techniques [1]. Simultaneously, there are several theoretical efforts to clarify the nonlinear dynamics of exciton systems. The exciton unharmonicity and/or the exciton-exciton coupling are thought to be of importance. One of the effective ways to describe and understand the excitonic nonlinearity is to represent such systems by two kinds of bosons: photons and elementary excitations in the materials. Our study concerns with a novel bosonic description of electron-hole excitations(i.e., excitons)in optically-excited semiconductors.

The low-lying excited state with an energy of the order of the band gap, which is composed of two fermions(a conduction electron and a valence hole), has been described as a “boson.” However, this “boson” does not always obey the ordinary bosonic commutation relations. There are two causes of such a deviation from the pure-boson commutation relations: the Pauli’s exclusion and the fermion-fermion (Coulomb) interactions. Thus, when more than two excitons are excited, the *nonboson* nature of excitons becomes crucial. Thus far, several bosonization schemes have been proposed: the Usui transformation<sup>[2]</sup>, the Marumori mapping, the Dyson expansion method, and so on. These bosonization methods, however, are inconvenient not only for discussing the nonboson characters of such elementary excitations but also for describing the *spin* dependence, i.e., the angular momenta of constituents.

We have proposed useful bosonization scheme<sup>[3]</sup>taking into full account the angular-momentum degrees of freedom and the fermion nature of the constituents to derive the boson-boson interaction and the boson-photon interaction with their

momentum - transfer dependence. Our method is free from the momentum constraint in the Usui transformation, and the pure - boson approximation for even - number fermion composites is unnecessary. Then, we can derive an exact mapping from the actual space of two-fermion composites with a ls-type arbitrary internal motion to the pure-boson space<sup>[4]</sup>.

For the  $\chi^{(3)}$  excitonic nonlinearity of a semiconductor quantum well, the subspace can be limited to a spin -  $\frac{1}{2}$  two - electron - two - hole one in the semiconductor two - band model, which is spanned by the bases: the ground state, the ls one - exciton states, and the "orthogonalized" two - exciton states. We have derived the bosonic Hamiltonian for the  $\chi^{(3)}$  responses under the ls exciton resonance. Dependence of the interactions on the momentum transfer and the "spin" has been discussed and the nonboson effects was clarified. Comparison with other bosonization methods for one - dimensional metals<sup>[5]</sup> was also carried out.

- [1] M. kuwata - Gonokami *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 1341 (1997).
- [2] E. Hanamura, J.Phys. Soc. Jpn. **37**, 1545(1974).
- [3] T. Kishimoto and T. Tamura, Phys. Rev. C **27**, 341(1983).
- [4] S.Okumura and T. Ogawa, J. Lumin. (in print).
- [5] T.Ogawa, Materials Sci. Engineer. B **48**, 131 (1997).

### 量子ドットにおける励起電子のダイナミックス

筑波大学物理学系, 科学技術振興事業団单一量子点プロジェクト 夔 本 泰 章  
量子ドットにおける励起電子のダイナミックスの特徴を考えるとき, 量子準位間のエネルギー緩和, 位相緩和, 量子ドットと周囲の母体とのキャリアーのやりとりなどが量子ドット特有の面白い問題となる。量子ドットにおける量子準位間のエネルギー緩和には, 離散的なエネルギー準位間のフォノン緩和という特異性があり, 離散的なエネルギー準位間をどのようにフォノン緩和するのかが興味あるところである。サイト選択発光分光により, 電場で非輻射緩和速度を人工的に制御した環境下で自己生成InP量子ドット中のフォノン緩和を研究した。縦波光学型フォノンを用いた緩和は音響型フォノンを用いた緩和に比べ1桁は速いが2桁は速くないという結果が得られた。電子の緩和速度に音響型フォノンの波数依存性が入ってこない結果が得られ, 今後どう理解されるか興味が持たれる。

空間分解（顕微）分光法を用いた单一量子ドットの分光はサイト選択分光でも観測できない一箇

の量子ドットを見ることで初めて得られる有用な情報を与えることがある。例として、InP量子ドットの発光の偏光がInGaP母体の影響を受けて一つ一つ違うことや、発光強度の温度依存性が一つ一つ違うこと、発光の明滅現象、励起子分子、三励起子状態や荷電励起子が容易に観測されることが明らかになった。InP量子ドットの発光の明滅現象は、試料の表面処理の効果、励起強度依存性、温度依存性、赤色光照射による効果や電場依存性の実験から量子ドットから周囲のInGaP母体中の価電子帯から1.5eVの深さにあるトラップへのキャリアーの捕獲と再結合の繰り返しにより説明される。

位相緩和そして光スペクトルの均一幅については、0.5Kの極低温までCuCl, CuBr, CdSe量子ドットを蓄積フォトンエコー法を用いて研究している。バルク結晶中では均一幅は音響型フォノンの連続的なエネルギースペクトルを反映して温度に対して線形に増加するが、この温度依存性との違いと絶対零度でのはるかに狭い均一幅が量子ドットの特徴となる。CuCl量子ドット中の励起子が0.7Kで $1\mu\text{eV}$ という極めて狭い均一幅を示し、CuCl, CuBr量子ドットで極低温領域で母体中の二順位系との相互作用が支配する特異な温度依存性を示す。CuBr, CdSe量子ドットではサイズの逆数に比例する絶対零度での均一幅が観測され、表面の寄与が支配的であることが示された。

#### (411)A GaAs 基板上に自己形成した GaAs/AlGaAs 単一量子ドットの多励起子状態

大阪大学大学院基礎工学研究科 枝松圭一  
綿谷力  
下村哲  
冷水佐壽

近年の単一量子ドット分光法の進展によって個々のドットの個性を直接反映した光学測定が可能となり、そこから得られる量子ドット系の新しい物理が興味を集めている。特に、単一量子ドットに複数の励起子を生成した場合の多励起子状態の研究は、量子ドットの電子状態の理解そのもののみならず、それが示す大きな光学非線形性を理解する上でも非常に重要である。我々は、GaAsの(411)A面上に自然形成した三角錐状構造の上にGaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Asの量子井戸構造を成長した際に形成される量子ドット構造<sup>[1]</sup>について、ピコ秒パルスレーザを励起光源として用いた単一量子ドット発光分光を行い、単一量子ドット中に単数または複数の励起子を生成した際に生じる発光スペクトルとその起源について研究した。Fig. 1は発光スペクトルの励起強度依存性、Fig. 2はFig. 1のa, b, c各群の強度の励起強度依存性を示す。これらの結果の解析により、a群はドット中に1個の励起子を生成した際の最低励起状態からの発光、b群は励起子を複数個生成した場合最低励起状態(2個の場合は励起子分子)からの発光、c群は励起子を複数個生成した際の上位の励起

状態からの発光であることがわかった。量子ドット中の多励起子状態からの発光のこのような振舞いは、理論計算<sup>[2]</sup>とも定性的に一致し、励起子数に応じて離散的なエネルギー準位をもつ量子ドット系の特徴を顯している。

[1] H. Hayashi, S. Shimomura, S. Hiyamizu, unpublished.

[2] S.V. Nair and Y. Masumoto, to be published in J. Lumin. (2000).

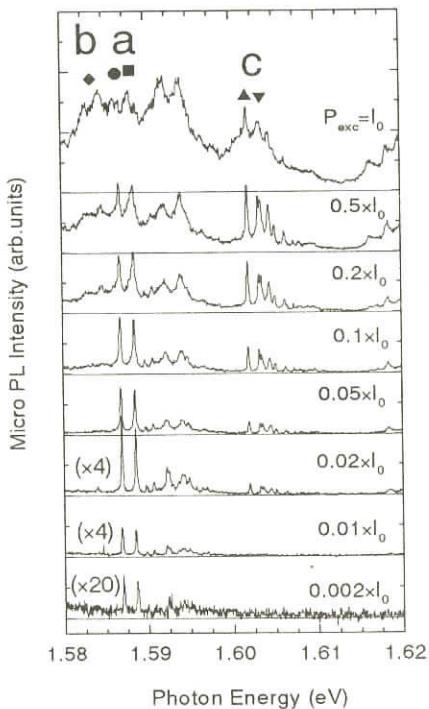


Fig. 1 Micro photoluminescence spectra of GaAs/AlGaAs quantum dots at 3.3 K excited by a picosecond laser pulses. Excitation power density for  $I_0$  is  $28 \text{ W/cm}^2 = 350 \text{ nJ/cm}^2 \cdot \text{pulse}$ .

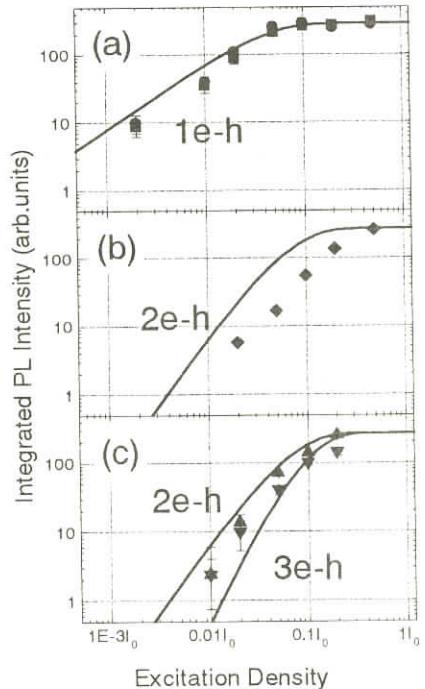


Fig. 2 Excitation power density dependence of the luminescence intensities. Graphs (a), (b) and (c) correspond to the lines indicated by the same letters in Fig. 1.

## Coherent control and interference of cold biexciton waves

東京大学大学院工学系研究科 科技団ERATO 五 神 真

The systematic study of BEC of particles with large number of internal degrees of freedom requires creation of high-density atomic condensate. However, in the typical BEC experiment the density of atoms is very low. Useful insight on the behavior of coherent matter waves may be obtained by studying excitons in semiconductors, because the exciton density can be controlled in the very wide range. This is because, unlike atoms, the excitons can be created by the absorption of photons. Correspondingly, the high degree of Bose degeneracy of the single-mode photonic ensemble from laser beam can be transferred to excitons effectively creating a macroscopic coherent matter wave. This will give rise to exciton condensate with a density, which can be varied from the dilute limit of weakly interacting atomic bosons to the very dense limit found in nuclear matter.

Here we demonstrate the generation of biexcitons with a small momentum spread in CuCl by the phase matched two polariton absorption, using femtosecond pulses from conventional mode locked Ti: sapphire laser. We create biexciton ensemble in super cooled state with a phase space density of about  $10^7$  at an excitation density of  $4 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  pulse. Such a highly degenerate biexcitons behave as macroscopic coherent waves with a coherence time governed by their lifetime. The coherent wave nature of biexciton can be observed by studying the interference between two biexciton waves created at different times. Figure 1 shows the results of biexciton wave interference probed by four wave mixing signal. The high visibility of the interference fringes indicates that the normalized correlation term is as high as 0.98. The role of the nonlinearities arising from saturation and biexciton repulsion is discussed in terms of GP equation which describes the temporal evolution of weakly interacting highly degenerate bosons.

<sup>†</sup>Permanent address: Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA, Ecole Polytechnique, Palaiseau, F-91127, France.

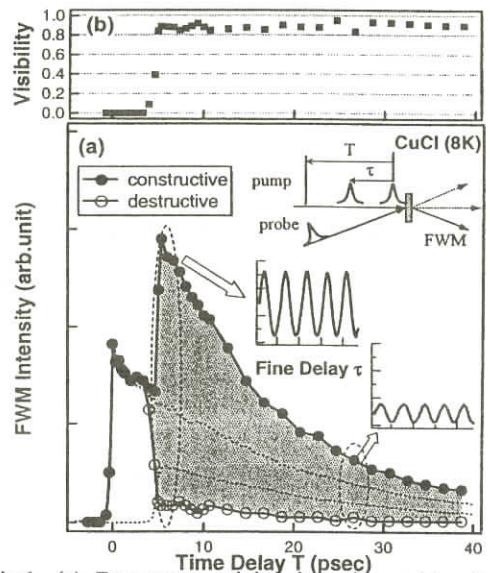


Fig.1. (a) Four wave mixing intensity at biexciton resonance with two orthogonally polarized pump pulses, showing interference pattern. Dotted lines are the signal from each pump pulse alone. Insets show the signal dependence on the pump pulse interval for two different probe delays,  $T=6$  psec, and  $T=26$  psec. (b) Interference visibility as a function of probe delay  $T$ .

## シクロデキストリン中の分子クラスター及び單一分子状態

山形大理 吉成武久  
Kim Tae Jin  
金 泰 琨

中坪武士  
東北大院理 後藤武生

微粒子やクラスターの研究において、それらのサイズ制御は重要なファクターである。大きさが一定の容器を用いてサイズ制御するために、ゼオライト、ポリスチレン微小球や微細加工技術等の種々の工夫がなされている。化学物質の分離や包摶化合物生成として多方面に利用されている筒状有機分子シクロデキストリンも、サイズ制御容器として利用できる。ただし、有機化合物であるため融点が低くその中に取り入れる物質には制限があるが、有機物質等のソフトマテリアルの取り扱いには適している。

$\text{SnI}_4$ は $\text{sp}^3$ 混成軌道による共有結合によって、中性のメタン型分子を形成する。その融点は417.7K (144.5°C)であり、シクロデキストリン中に分子間力で取り込まれてクラスター状態をつくりだすことができる。その吸収スペクトルは粉末反射法で測定してクベルカ・ムンク解析によって得られる。シクロデキストリンの内径が小さいために、 $\text{SnI}_4$ の孤立分子に近い電子状態が観測され、スピン軌道分裂による2重構造が見られた。<sup>1)</sup>

シクロデキストリンはグルコース基を合成して生成されるが、グルコース基の数によって内径の異なる $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ 等の数種がある。 $\gamma$ -シクロデキストリン内にはアントラセンを2分子取り込むことができ、アントラセンの第1励起準位への吸収帯を光励起するとアントラセン・ダイマーを形成する。更に、第二励起準位を励起すると、再び单分子に解離する。この反応自体は良く知られているものであるが、殆どが溶液状態での研究である。近接したアントラセン2分子は分子間力によって直交すると考えられる。そのため、溶液中での光照射による2量化では、9位、10位の両位置で結合が起こると考えにくい。そこで、面と面が向き合ったアントラセン2分子状態が実現できるシクロデキストリン中の2分子で調べた。粉末固体状態でより精密に調べることで、理論計算に耐えうるようなデータが得られた。<sup>2)</sup>

取り込む分子の大きさに合わせた適切な内径のシクロデキストリンを選択すれば、單一のほぼ孤立分子に近い状態を作り出すことが可能である。例えば、 $\beta$ -シクロデキストリンにはアントラセン分子が1個しか入らない。アントラセンの融点は489.4K (216.2°C)であるが、真空中では融点が下がる。しかも、分子結合は弱く昇華性があるために、真空中で取り扱えば容易にシクロデキストリン中に取り込むことができる。この孤立分子状態のアントラセンの発光スペクトルは、単結晶のそれと比してサイズ効果のため短波長にシフトしており、吸収スペクトルと鏡映の関係になっている。<sup>3)</sup>

- 1) M. Omaru, S. Takahashi, A. Ohnishi, T. Yoshinari, S. Nagasaka, T. Kamikawa and T. Goto: J. Phys. Soc. Jpn **66** (1997) 1816 - 1821.
- 2) R. Belosludov, T. Hiwada, Y. Kawazoe, K. Ohno, T. Yoshinari, A. Ohnishi and S. Nagasaka: J. Solid State Chem. **144** (1999) 263 - 271.
- 3) S. Hashimoto, S. Ikuta, T. Asahi and H. Masuhara: Langmuir **14** (1998) 4284.

## 2 光子吸収、赤外過渡吸収による励起子閉じ込め効果の研究

阪大院基礎工 伊藤 正

CuCl量子ドット中の励起子1S状態に対する閉じ込め効果は、励起子ボーア半径が0.7nmと極めて小さいことを反映して、電子正孔間の相対運動にはあまり影響を与えず、主に重心運動の量子化のみによる高エネルギーシフトを引き起こすことが知られている。しかし、1S状態よりもかなり大きな半径を持つ励起子リュードベリ系列の励起状態の閉じ込め効果については、一光子吸収や励起スペクトルの測定からはほとんど情報が得られていなかった。ここでは、NaCl中に析出させたnmサイズのCuCl量子ドットの励起子励起状態について2光子励起法と紫外励起赤外過渡吸収法を用いた研究を行った。

まず、波長可変CW-ML赤外色素レーザーを用いた1S励起子発光の積分強度の2光子励起スペクトルには、1光子吸収には見られない急激な吸収増加を伴う明確な吸収端が観測される。2光子吸収端は、パルク結晶ではバンドギャップ付近にあるが、量子ドットでは閉じ込め2P励起子エネルギー付近に現れ、ドットサイズの減少と共に高エネルギーシフトを起こす。このことは量子閉じ込め効果によって励起子のクーロン非束縛状態が独立して存在できなくなり、束縛状態と強く混じり合うことの結果と考えられる。

一方、ナノ秒パルスチタンサファイアレーザーを用いて閉じ込め1S励起子状態をサイズ選択共鳴励起すると、赤外領域の0.15~0.6eV付近に過渡吸収が現れる。このうち、励起子寿命程度の時定数を持つ速い成分は0.2~0.4eV付近にピークを持つ幅広い吸収帯を与え、ドットサイズの減少と共に高エネルギーシフトを起こす。この吸収は主に閉じ込めリュードベリ1S状態から2P状態への励起状態吸収と考えられる。2P励起子状態における量子閉じ込め効果は励起子の内部運動にも大きく影響し、ドットサイズの減少とともに1S状態よりも大きな高エネルギーシフトを起こしていることが分かる。

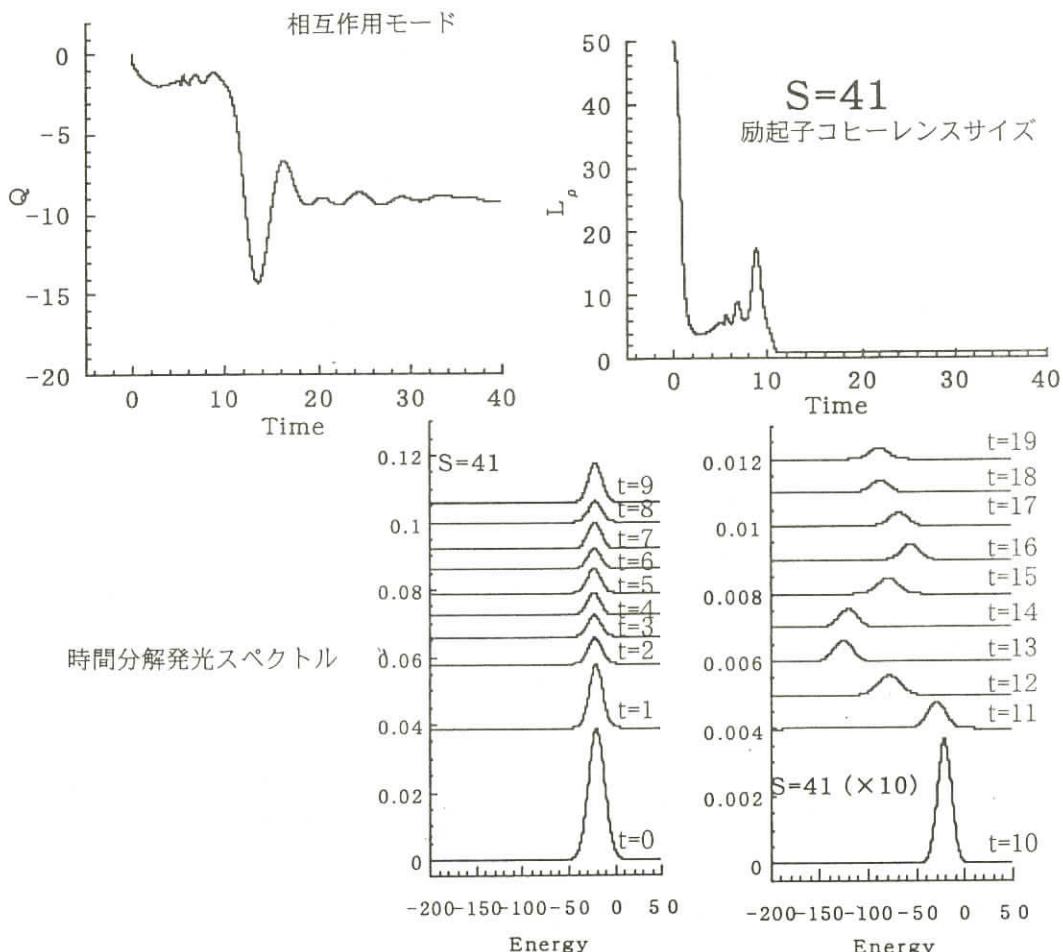
これらの結果は魚住・萱沼による励起子リュードベリ系列の励起状態の閉じ込めに関する理論計算<sup>[1]</sup>とも良い一致が見られる。さらに、以前に測定されていた1S励起子発光の一光子励起スペクトル中に現れた閉じ込めの量子数ns状態と同定されていた構造は、リュードベリ系列のnS状態に起因するとした方が相応しいことも確かめられた。

[1] T. Uozumi, et al., Phys. Rev. B59 (1999) 9826.

## 1次元励起子ポーラロンの超放射と励起子コヒーレンスサイズ

大阪府立大学総合科学部 田 中 智

パルス光励起によって作られた空間的にコヒーレントな励起子は、励起子・格子相互作用によってそのコヒーレンスを失い、self-trapped stateへ緩和する。空間的なコヒーレンスが保たれているときには、超放射などの光学的な非線形性が強く現れるが、コヒーレンスの消失とともにこれらの性質が失われる。励起子・格子相互作用によるself-trappingによって超放射が消失していく様子を、有限サイトの1次元励起子ポーラロンモデルをとり、時間依存変分法により時間分解発光スペクトルの計算を行って調べた結果、Free exciton stateからSTE stateへの乗り移りに時間遅れが生じ、この時間、大きな強度の超放射が観測されることが分かった。時間分解発光スペクトルの強度とピーク位置は、励起子の空間的コヒーレンスサイズと相互作用モードの時間発展をよく反映する。



## ハロゲン架橋白金錯体類似三次元化合物の蛍光スペクトルと緩和

横浜国大工 栗 田 進

擬一次元ハロゲン架橋白金錯体は、一次元半導体の典型的な物質としてソリトン、ポーラロン、励起子といった素励起状態の研究材料となっている。その中でも  $[Pt(en)_2][Pt(en)_2X_2](ClO_4)_4$  ( $X=Cl, Br, I$ , en : エチレンジアミン, 以下 Pt-X と略す) は最も良く研究されている物質である。この物質は… $Pt^{2+}$ …X– $Pt^{4+}$ –X… $Pt^{2+}$ …X– $Pt^{4+}$ –X…のようにハロゲンイオンをはさんで 2 値と 4 値の白金が交互に一次元的に並んでいる。基礎吸収端は  $Pt^{2+}$  から  $Pt^{4+}$ への電荷移動 (CT) によるものである。最近、物性研の末元グループが、この CT 吸収バンドを励起したときに生ずる CT 励起子の緩和を研究し、CT 励起子が自己束縛励起子 (STE) 状態へ緩和して行く過程と緩和後の波束の運動を時間分解発光スペクトルにおいて見事に観測している。それによると、Pt-Cl (Pt-Br) では、STE 状態に落ち込んだ励起子は 0.21 (0.43) ps の緩和時間で冷え、その後、STE 励起子は約 25 (5.5) ps の発光寿命で消滅することがわかった。この実験は、最新のフェムト秒レーザー装置を用いて行われたものである。

このような STE 状態の早い冷却の原因を探る目的と強い電子格子相互作用の下での緩和を研究するために Pt-Cl と同じ分子からなる化合物、 $[Pt(en)_2Cl_2](ClO_4)_2$  (以下  $Pt(4+)$ -Cl と約す) を合成した。この結晶は斜方晶で、Pt-Cl のような一次元的な構造は無く、Pt は 2 個の Cl と 4 個の N からなる八面体の中心にある。この結晶の最低エネルギーの吸収帯は 3.3 eV にあり、それは 4 値の白金原子内の d-d 遷移であることが知られている。この吸収帯の光励起による発光スペクトルは微細構造を持つガウス型で、微細構造は 46.38 meV のフォノンが約 20 個重畠したものである。このスペクトルから電子格子結合定数 (ホアン・リー因子) を計算すると、9.52 となり、強い電子格子相互作用系であることがわかった。なお、この発光スペクトルで見られるフォノンは、ラマンのデータから白金を中心とする 2 個のハロゲンの対称伸縮振動によるフォノンが主たるものであることがわかった。<sup>1)</sup>

励起状態の緩和を時間分解発光スペクトルから調べた。その結果、光励起後約 1 ns で励起最低状態に緩和し、その状態から  $130 \mu s$  の発光寿命で消滅することが分かった。<sup>2)</sup> これらの時間は Pt-X に比べると  $10^3$  乃至  $10^6$  も永くなっている。これは  $Pt(4+)$ -Cl では Pt 原子内の励起で、しかも相互作用する格子が隣接するハロゲンに限られていることによるものと思われる。これに対して、Pt-X では鎖状の格子全体が緩和に関与しているばかりでなく、STE 状態よりも低エネルギーにソリトンなどの非線型励起状態があり、多数の緩和経路が存在するためである。極端に寿命の長い  $Pt(4+)$ -Cl は励起状態の緩和を研究するのに適した材料であると思われる。

1) K. Sakata et al., J. Phys. Soc. Jpn., **69** (2000) 955

2) K. Sakata et al., J. Phys. Soc. Jpn., **69** (2000) No.5

## 一次元白金ジメチルグリオキシム錯体における緩和励起状態の波束運動と励起光チャーピ依存性

物質研 岩井伸一郎

$d^8$ 金属ジメチルグリオキシム錯体( $M(dmg)_2$ )は、中心金属M(Pt,Ni,Pd)の周りに窒素が4配位した平面分子である。単結晶や薄膜においては、この分子が積み重なることにより分子レベルの一次元鎖が形成され、主鎖上に広がったいわゆる一次元励起子により比較的大きな光学非線形応答が見られることが報告されている。この系の際立った特長は、中心金属や配位子の組み合わせを変えることにより励起子吸収の波長を可視～近赤外領域において連続的に変化させることができることとともに、励起子吸収を共鳴励起した場合の吸収変化が、 $<1\text{ps}$ の超高速非線形光学応答成分を有することである。我々は、この高速成分の起源を明らかにするために、フェムト秒分光法による研究を行った。また、フェムト秒チャーピパルスによる励起状態の分布や波束運動の制御の可能性についても検討した。

フェムト秒ポンププロープ分光(時間分解能： $200\text{fs}$ 、励起子共鳴励起@ $1.48\text{eV}$ )によって測定された白金ジメチルグリオキシム( $Pt(dmg)_2$ )の吸収スペクトルには、励起子吸収帯(ピークエネルギー= $1.48\text{eV}$ @ $80\text{K}$ )の低エネルギー側の透明領域に励起状態吸収が観測される。この系では、発光が観測されない( $800 - 2000\text{nm}$ )ため、直接的な証拠は得られていないが、過渡吸収スペクトルの励起波長依存性などの結果から、この誘導吸収は、自己捕獲励起子(STE)などの緩和励起状態によるものと考えられる。誘導吸収の時間発展は、光励起によって生成した自由励起子が、STEへと緩和する過程、および、STEの断熱ポテンシャル面上での熱平衡化によるものとして説明できるが、その時間スケール( $<50\text{fs}$ および $\sim200\text{fs}$ )は、1次元鎖方向の分子間伸縮運動の1周期( $400\text{fs}$ )よりも明らかに速い。従って、分子間伸縮振動ではなく、より高振動の分子内振動と励起子の相互作用が緩和を支配していることが示唆される。こ

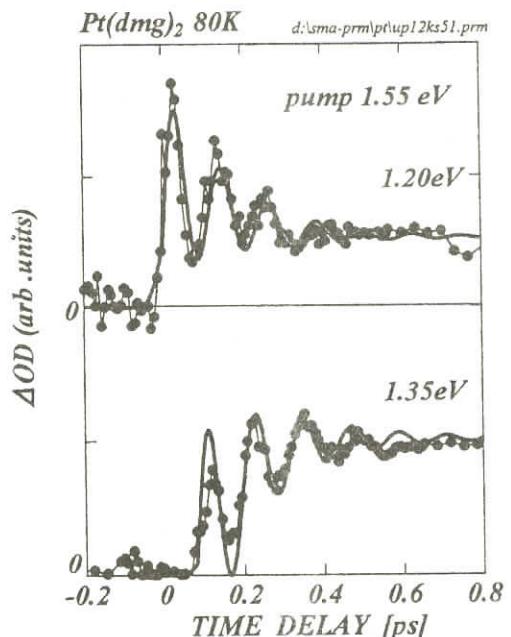


図1：誘導吸収の低エネルギー側(1.20eV)と高エネルギー側(1.35eV)において観測される時間発展。

太線：指數関数とsin関数によるfit。

1.20eV：減衰 150fs, 26ps,

1.35eV：立ち上がり 120fs, 減衰 26ps。

振動周期と振動減衰定数は、いずれの観測エネルギーにおいても、それぞれ120fsと170fs。

のこととは、よく知られている（たとえば、ポリジアセチレン:PDAやハロゲン架橋錯体:MXなどの）1次元電子系の緩和が、主鎖方向の伸縮振動との相互作用により特徴づけられるのとは大きく異なる。

更に高い時間分解能(60fs)の実験(図1)から、STEの誘導吸収には、周期120fs、減衰定数170fsの明確な振動構造が存在することがわかる。これらの結果から、時間分解能以下で生成される非平衡STEは、断熱ポテンシャル面上を周期120fsで振動する波束として記述できる。波束の振動周期(=120fs)から得られる振動エネルギー $270\text{cm}^{-1}$ は、分子内のbending modeに対応する。従って、このモードがSTEへの緩和に関係しているものと考えられる。

また負チャーピ(二次分散係数 $D_c = -750\text{fs}^2$ )によって励起をおこなった場合、強励起下( $1.5\text{mJ/cm}^2$ )においては、誘導吸収は、(transform limited (TL) パルス励起の場合の寿命は、26psであるのに対し,) 励起パルス幅程度の時間内に完全に減衰する。この現象は、いわゆる“pump-dump”機構として理解できる。ところが弱励起下( $0.1\text{mJ/cm}^2$ )においては、減衰時間には顕著な変化はみられず、振動成分のみが著しく増大する。強励起下においては、(pump-dump 機構によれば) パルスの前半部(高周波成分)によって生成された励起状態波束の運動がパルスの後半部(低周波成分)と同期することにより、誘導放出が効率的に起こると考えられる。それに対し、弱励起下においては、誘導放出の寄与が小さくなり、パルス前半部によって生成された波束と、パルス後半部による基底状態から励起状態への励起が同期して、波束が成長する効果があらわになるのではないかと考えらる。

本研究は、鎌田俊英主任研究官(物質研)、山本薫博士(分子研)、村田重夫主任研究官(物質研)、太田俊明教授(東大理)との共同研究である。また、本研究の一部は、科学庁COE育成プロジェクト「光反応制御」の一環として行われた。

### 超高速発光分光による局在電子状態の研究

東大物性研　末　元　　徹

#### 1. 時間分解発光分光について

近年の短パルスレーザーと超高速分光法の発展により、典型的なフォノンの振動数(数 $100\text{cm}^{-1}$ )程度の振動ならば、実時間軸上で直接観測することができるようになってきた。これにより時間分解能を極限まで高めることができるだけでなく、今まで余り問題にされなかった振動の位相や相互作用の符号を議論することも可能になってきた。このような視点から新しい光物性の方向を開拓することを目指して、発光により波束の観測やインパルス励起によるコヒーレントフォノンの研究などを行っている。波束振動を実時間で観測する方法はいくつかあるが、発光による方法

は通常の発光測定からポテンシャル曲線が知られていれば、スペクトルから原子の位置を割り出せるという特徴があり、光誘起相転移の解明などに役立つものと考えられる。

## 2. 擬1次元白金錯体

我々は和周波発生を利用した上方変換の方法を用いて、擬1次元ハロゲン架橋白金錯体Pt-Clにおける自己束縛励起子のダイナミクス（生成や冷却緩和過程）を明らかにした。Pt-Brでは自己束縛に伴う局在振動を発光強度の振動として初めて捉えることができた。

今回は、更にPt-Iについても時間分解分光を測定した。その結果、発光寿命は発光バンドのいろいろなエネルギー位置で数百フェムト秒程度あり、Pt-ClやPt-Brとはかなり振舞いが異なることが分かった。

## 3. KI:F中心

アルカリハライドのF中心は、固体における電子格子相互作用の強い系のモデルとして長年研究されてきたが、最近振動緩和の振舞いを超高速時間領域における測定で追跡することが可能になってきた。例えばNisoliらによって過渡吸収を用いた振動の実時間観測が報告されているが、励起状態と基底状態の干渉によって現象が複雑になり、解析が容易ではなかった。我々はこの系における電子格子緩和を時間分解発光の手法により解明しようとしている。図1は励起光に対して平行および垂直偏光の発光減衰曲線である。F中心の寿命は一般にマイクロ秒程度といわれているにもかかわらず、2 ps程度の非常に短い減衰が観測されている。これは格子緩和に伴う振動エネルギーが散逸する前のホットルミネッセンスに対応しているものと思われる。

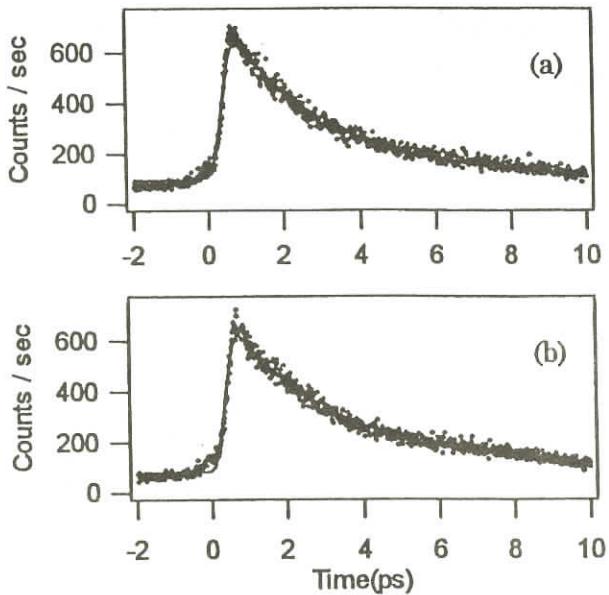


図1 KI:F中心の1.05eVにおける発光減衰曲線,  
(a)平行偏光成分, (b)垂直偏光成分

## 強相関一次元系の光励起状態と非線形光学応答

東京大学新領域創成科学研究科 岡本 博  
岸田 英夫

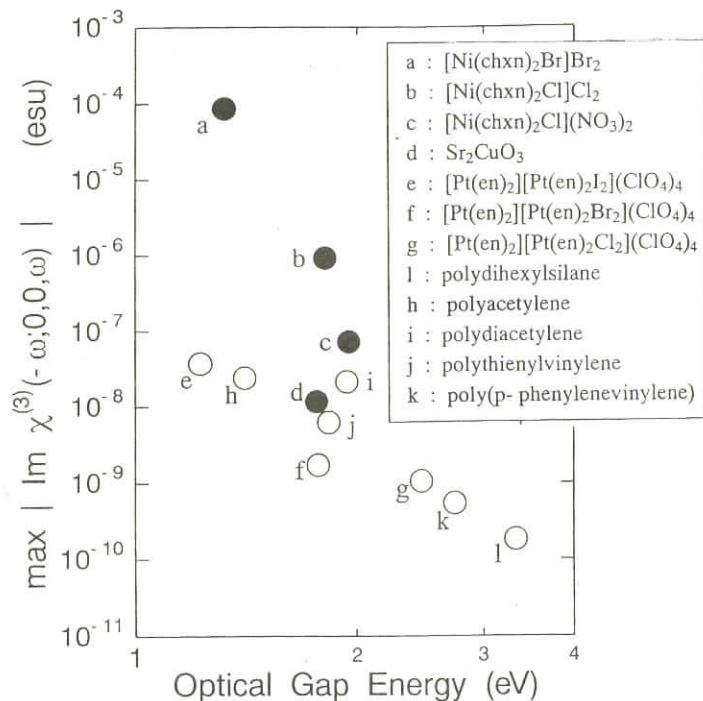
ハロゲン架橋Ni錯体は、Niとハロゲンイオン(X=Cl,Br)が交互に並んだ一次元鎖



からなる。このNi錯体は、一次元銅酸化物(Sr<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub>, Ca<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub>等)と同様ないわゆる電荷移動絶縁体であり、強相関一次元系の典型的なモデル物質とみなすことができる。このようなスピノの自由度をもった強相関系の光励起状態の性質については十分な理解がなされていないのが現状である。このため、我々は、電場変調反射分光、光伝導度測定、発光測定によってNi錯体の光励起状態に関する研究を行なってきた。本研究会では、とくに強相関一次元系の巨大非線形光学応答という側面を紹介する。

中心対称性のある構造では、最低次の非線形光学応答は三

次となる。この三次の非線形光学応答は光双安定性や光スイッチング、第三高調波発生など多彩な非線形光学現象を支配するものであり、応用の観点から大きな三次の非線形光学定数 $\chi^{(3)}$ をもつ物質が望まれている。一般に、一次元系では、電子が一方向に閉じ込められていいるために大きな $\chi^{(3)}$ が観測される。いろいろな物質に対してこの $\chi^{(3)}$ を比較するには、電場変調分光(外部電場の印加による吸収係数や反射率の変化を測定する手法)を用いるのが最も簡便で有効な方法である。図は、電場変調分光により求められた $\chi^{(3)}$ の最大値( $\max |Im \chi^{(3)}(-\omega, 0, \omega)|$ )を光学ギャップの関数としていろいろな一次元系について比較したものである。図中の○は、バンド絶縁体であるポリシラン、および、パイエルス絶縁体であるπ共役ポリマーやPt錯体を示している。一方図中黒丸は、強相関一次元系(モット絶縁体)であるNi錯体および一次元銅酸化物の結果である。三



つのNi錯体を比較すると、 $[Ni(chxn)_2Cl](NO_3)_2$ ,  $[Ni(chxn)_2Cl]Cl_2$ ,  $[Ni(chxn)_2Br]Br_2$ の順に $\chi^{(3)}$ が増加しているが、これは、架橋ハロゲンやカウンターイオンの違いによってこの順にバンド幅が増加していることに関係している。図からわかるように、Ni錯体の $\chi^{(3)}$ は、他の一次元系のそれに比べてけた違いに大きい。このような $\chi^{(3)}$ の著しい増大には、奇と偶の対称性を持った第一、第二励起状態のエネルギーが近接しているために励起状態間の振動子強度が増大していることが関係しており、これは強相関一次元系の特徴であると考えられる。

### サブ5フェムト秒実時間分光

東大院理 小林孝嘉

可視サブ5フェムト秒パルスを発生する非平行光パラメトリック増幅器<sup>[1]</sup>を光源として、(1)ポリビニルアルコール中にドープされたクレジルバイオレット(CV)色素分子、(2)ポルフィリンJ会合体、(3)金属ハロゲン混合原子価錯体(MX)のサブ5フェムト実時間分光を行った。

#### (1) CV

透過プローブ光強度がring distortion modeの60fs周期で振動する様子が観測された。この振動波形をスペクトログラム解析した結果、この分子振動は変調周期約400fs、周波数及び振幅変調の両方をほぼ逆位相で受けていることがわかった。この変調は、濃度及び溶媒に関係無く見られるので、ring distortion modeと他の振動モードとの結合によると結論づけられる。

#### (2) J会合体

中のフレンケル励起子に結合した、コヒーレントな分子振動を初めて観測したので、報告する。スペクトル幅250nmのプロードなレーザースペクトルは、ポルフィリン(tetraphenylporphine tetrasulfonic acid) J会合体の最低励起一重項状態(Qバンド)を完全におおっており、Qバンド共鳴励起が可能である。時間分解透過率変化と、そのフーリエ変換を図1に示す。1.77eV以下では褪色が、1.77eV以上では誘導吸収が見られた。この誘導吸収は、多励起子状態への遷移によるもの( $|n+1\rangle \leftarrow |n\rangle (n > 0)$ )であり、パウリの排他律により一励起子状態への遷移( $|1\rangle \leftarrow |0\rangle$ )より高エネルギー側に存在する。褪色は約2psの時定数で回復しているが、これはこれまでの100fsポンプ・プローブ分光の結果から、Q励起子の熱化過程によるものと考えられる。透過率変化の振動成分をラマンスペクトルと比較し $241\text{cm}^{-1}$ のruffling modeと同定した。このモードは、会合により30倍程度増強することがAkinsらにより報告されている<sup>[2]</sup>。図2に $241\text{cm}^{-1}$ 、振動成分の位相(点)と振幅(棒)を示す。振動の振幅は1.77eVにおいて最小になり、同時に、褪色と誘導吸収が入れ替わっている。また、位相スペクトルから、褪色と誘導吸収の信号強度が同位相で増減しているのがわかる。我々は、透過率変化における振動の起源が、ruffling modeを介した、Bバンド(第二励起状態)からQバンドへのintensity borrowingによる、Qバンドの双極子モーメントの

変調によるものと解釈することで、実験結果を説明できると考えた。双極子モーメントの変調は、実験結果から  $\delta\mu/\mu \approx 8 \times 10^{-3}$  程度であると見積もった。

### (3) MX

290fsの周期で振動しながら時定数約2000fsで減衰する負の反射率変化が観測された。この振動の起源は、二つの緩和時定数と位相項を持つ成分から成り、基底状態によるものと励起状態によるものに分離できた。

- [1] A. Shirakawa, I. Sakane, M. Takasaka, and T. Kobayashi, Appl. Phys. Lett. **74**, 2268 (1999)
- [2] D. Akins *et al*, J. Phys. Chem. **100**, 14390 (1996).

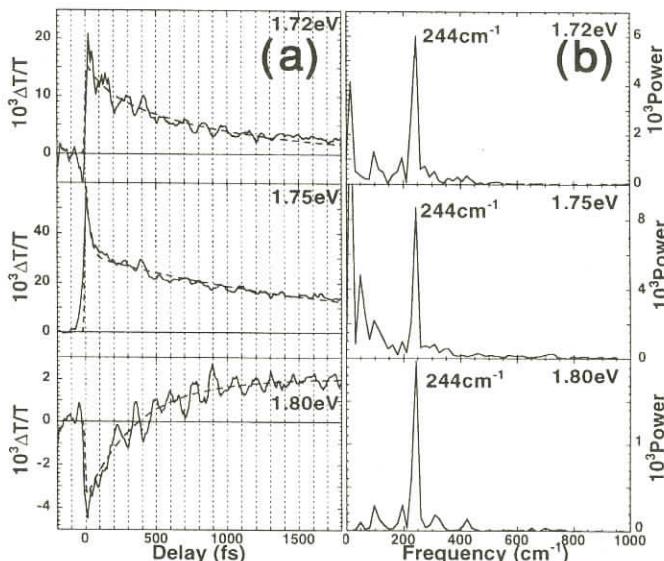


図 1

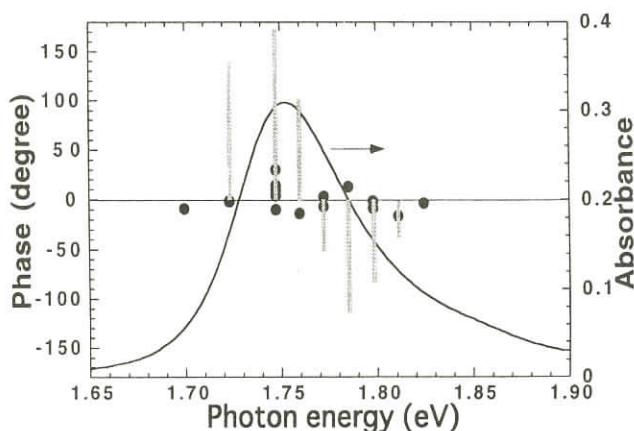


図 2

## 光合成アンテナ系における光学禁制励起子と励起移動

電 総 研 向 井 宏一郎

阿 部 修 治

筑波大物質工 住 齊

光合成細菌のアンテナ系は、回転対称性の高い環状の構造を持つ。虹色光合成細菌では、太陽光は辺縁系アンテナLH2により吸収され、そのエネルギーはLH2内でB800からB850へと約1.2ピコ秒で移動し、そこからコアアンテナLH1へと数ピコ秒で伝達される。LH1から反応中心への励起移動は数+ピコ秒で起こる。これら高速な励起移動が、光禁制な励起子準位を介した励起移動により実現されていることを示した。

B800の蛍光スペクトルとB850の吸収スペクトルの重なりが小さいために、Forsterの式を直接この過程に適用すると、観測されるサブピコ秒の励起移動速度を説明することができない。励起ドナーとアクセプターの間の励起移動相互作用は、Forsterの式では遷移双極子間相互作用により計算される。しかしLH2では、色素集合体であるB800とB850との間の距離は、集合体間の距離に比べて大きないので、励起移動相互作用の、より高次の項が重要となる。これにより、光吸収に寄与しない、光禁制な励起子状態間の励起移動が可能となる。この効果を取り入れて励起移動速度を計算すると、観測される速度をよく再現することが示せた。

LH1から反応中心への励起移動において、LH1の16回回転対称性を考慮すると、LH1の最低準位と反応中心との励起移動相互作用の大きさはゼロとなる。このため、計算では低温での遅い励起移動速度が導かれるが、観測される励起移動速度の温度依存性は小さい。しかし実際の系では、LH1の回転対称性を破るいくつかの要素が存在する。一つはタンパク質構造の乱れであり、これにより波動関数の対称性が破れる。また、C字型構造を持つLH1の存在が報告されている。これらの効果を考慮にいれると、LH1の最低準位と反応中心との励起移動相互作用はゼロとはならず、計算により得られる励起移動速度の温度依存性は実験での値に近付く。

アンテナ系での励起移動過程では、光禁制な励起子状態を介する励起移動が重要である。光禁制な準位が励起移動に関わる方法には2通りある。一つはドナー／アクセプターの距離が近いため、励起移動相互作用の高次の項が大きな寄与を示す場合。LH2のB800からB850への励起移動がこれに相当する。もう一つは、対称性を破ることで励起移動が可能になる場合であり、LH1から反応中心への励起移動がこのケースである。これらにより、光禁制なものを含む、広いエネルギーにわたって存在する多くの励起子準位が励起ドナー／アクセプターとして機能することになり、アンテナ系の間での高速な励起移動が実現されている。その結果、太陽光のエネルギーは、高い効率で反応中心へと伝達されることになる。

### References

- [1] K. Mukai, S. Abe, H. Sumi, J. Phys. Chem. B 103, 6096 (1999)

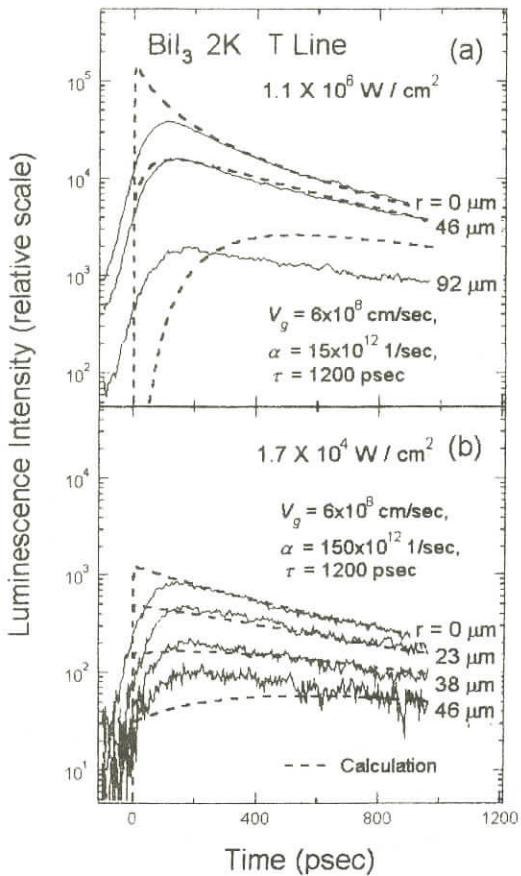
## 層状半導体結晶励起子の非線形光学応答とダイナミックス

大阪市立大学 大学院理学研究科・理学部 唐沢 力

層状半導体結晶は、結合の強い異方性により励起子のダイナミックスに特異な舞台を提供する。特に励起子のダイナミックスを知る上で、その空間的挙動が注目されるが、さらに励起子間相互作用、多体効果、マクロな量子現象などとの関連で実験的観測をどのように行うかについて興味が持たれる。

本講演では、層状結晶  $\text{BiI}_3$  中の積層欠陥界面に局在する励起子(SFE)系の、特に高密度に励起した場合の空間的挙動について報告する。さらに、同じ空間分解分光法を、層状結晶GaSeの母体励起子系を光強励起した場合に適用して得た結果にも触れる。

$\text{BiI}_3$  SFE系は、束縛エネルギーが大きくて高密度でも安定で、重心運動が天然の二次元界面に制限されており、観測される空間的挙動は二次元運動として扱える利点がある。また、空間的にマクロな拡がりが観測できるので、レーザー光により共鳴域をスポット励起して、スポットから外側での励起子の振る舞いを空間分解したポンプ・プローブ吸収や<sup>1)</sup>、共鳴発光の空間的分布の時間発展として捉えられる。空間分解発光測定の結果の一例を図に示したが、励起スポット中心からの各距離 $r$ における発光強度の時間減衰特性は、励起光強度に強く依存し、励起子の高密度効果が顕著に現れる。強励起においては(図(a))弱励起下(図(b))に比べ小さい $r$ 域での早い非指数関数的減衰が特徴的である。この結果を、緩和減衰(発光消滅時定数:  $\tau$ )と波動性(伝播速度:  $V_g$ )を含む古典的二次元電信方程式を解いて合わせた(計算結果: 破線)。励起子運動のコヒーレンス



度をあらわすパラメーター $1/\alpha$ は、高い励起密度で大きくなり、高密度で励起子がコヒーレントな運動を生じていることを示した。この結果を、空間分解ポンプ・プロープ法により得た、高密度化によるSFE遷移線の青方シフトの結果とも比較した。この特徴は、位相情報を含むSFE励起子共鳴励起で得た四光波混合信号の特性にも現れた<sup>2)</sup>。

層状結晶GaSeの励起子を光強励すると、束縛励起子の状態飽和と、固有自由励起子発光の空間的拡がりの増加が現れる。また、高密度励起子効果としては、励起子同士の非弾性散乱による発光と、その誘導放射過程で特徴付けられる<sup>3)</sup>。この過程が、励起光スポットの外にも広がって観測された。

- 1) H. Kondo, H. Mino, I. Akai, T. Karasawa; Phys. Rev. B58 (1998-II) 13835-13846
- 2) T. Karasawa, H. Mino, M. Yamamoto; J. Lumin. (2000) to be published
- 3) M. Yamamoto, H. Mino, I. Akai, T. Karasawa, V.F. Aguekian; J. Lumin. (2000) to be published

### ハロゲン化鉛結晶における励起子の電荷分離型緩和

京都大学総合人間学部 林 哲 介

京都大学大学院人間・環境学研究科 岩 長 祐 伸

#### はじめに

PbCl<sub>2</sub> や PbBr<sub>2</sub> 結晶では、低温でストークスシフトの大きい発光が生じ、励起子や電子・正孔の強い格子緩和が起こっていると考えられる。しかし、これらの結晶を励起子帯で光照射した場合とバンド間遷移域での場合とでは、異なる発光帯が観測されている。また、バンド間遷移域で誘起される発光は  $t^{-1}$  で変化する長い減衰を示すことが知られている<sup>1)</sup>。これらからは一見、励起子の場合と自由電子・正孔の場合とで異なる格子緩和が生じていると思われる。しかし、この結晶の価電子帯上端も伝導体下端も共にほとんど Pb イオンの 6s と 6p 状態からなっていることからすると、全く異なる緩和構造が生じるのが本当なのか疑問がある。各発光の固有性を明らかにする必要があり、2 光子および 3 光子励起の方法を用いて詳細に調べてみた。

#### 結果と考察

PbBr<sub>2</sub>を励起子帯で光励起すると 2.73 eV にピークを持つ発光(B発光)が観測されるが、バンド間遷移域での励起では 2.62 eV にピークのある BG 発光が誘起される。2 光子励起により励起子帯を励起すると 1 光子励起の場合と異なり、2 つの発光帯が重なって観測された。バンド間遷移で誘起される BG 発光が  $t^{-1}$  で変化する長い減衰曲線を持つことから、時間分解発光スペクトルを

詳細に測定した結果、2光子励起、1光子励起のいずれの場合にも、励起子帯での励起でもB G発光が誘起されていることが確認された。さらに3光子励起でも、このことがいっそう明瞭に確認された。2光子励起下での発光の励起強度依存性を調べた結果、B G発光が正確に励起強度の2乗に比例するのに比べ、B発光は強度の飽和を起こすことが解った。これらの結果、励起子帯で誘起されたB発光は extrinsic origin であることが明らかになった。

B G発光の時間応答は  $t^{-1}$  で変化する長い減衰を持っているが、時間分解測定から発光が励起子帯励起で誘起される場合にも同様の減衰であることが確認された。この減衰曲線は、空間的に分布した局在電子と局在正孔のトンネル過程を経た再結合と考えたモデルによって正確に再現することができ、このことからこの結晶では、クーロン力によって束縛されている励起子が自己束縛電子(STEL)と自己束縛正孔(STH)に分離して局在する特異な格子緩和が生じていると考えられる。このことは  $PbCl_2$  で STEL, STH の生成が X 線照射 ESR で確認されていることと符合する。<sup>2)</sup> 同様の結果は  $PbCl_2$  においても確認された。

励起子と音響フォノンの相互作用を解析した Sumi の理論によると、電子、正孔のフォノンとの相互作用が強く、かつその結合定数の符号が異なる場合にこのような電荷分離型の自己束縛が起こることが示されている。<sup>3)</sup> 今回のハロゲン化鉛結晶での結果は、このようなタイプの格子緩和が起こっていることが確認された初めての実験結果である。

- 1) M. Kitaura and H. Nakagawa: J. Elec. Spec. Relat. Phenom. **79**, 171 (1996).
- 2) S.V. Nistor, E. Goovaerts, M. Stefan and D. Schoemaker: Nucl. Instrum. Methods, B**141**, 538 (1998).
- 3) A. Sumi: J. Phys. Soc. Japan: **43**, 1286 (1977).

### NaCl結晶中の超構造相 $Na_6CdCl_8$ での緩和励起子発光

福井大・工 中川英之

NaClに  $CdCl_2$  を添加した結晶では、 $Na_6CdCl_8$ (または 6 NaCl: $CdCl_2$ )の構成をもつサブミクロンサイズの超構造相が NaCl 母体結晶中に生成され、Suzuki 相として知られている<sup>[1]</sup>。この構造は、母体 NaCl 格子の約 2 倍の格子定数をもつ f.c.c. 格子構造をもち、NaCl 結晶単位胞において角の  $Na^+$  が  $Cd^{2+}$  と陽イオン空格子とで交互に置換されたものになっている。面心位置の  $Na^+$  および  $Cl^-$  福格子は NaCl と同じであるが、 $Cl^-$  は元の位置からずれている。

この系については、すでに様々な方法(X線回折<sup>[1]</sup>、誘電緩和<sup>[2]</sup>、イオン熱電導<sup>[3]</sup>、ラマン散乱<sup>[4]</sup>、電子顕微鏡<sup>[5]</sup>)を用いて研究されており、添加された  $Cd^{2+}$  は孤立置換イオン、 $Cd^{2+}$ -Vacancy(I-V) ダイポール、ダイポール集合体、凝集体(Suzuki 相)として存在すること、熱

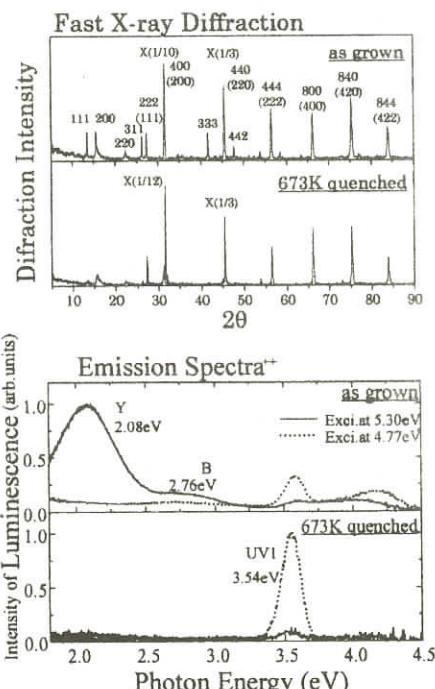
処理によりこれらの存在比が変化することなどが知られている。本研究では、NaCl-CdCl<sub>2</sub>混晶における光吸収および発光スペクトルを測定し、超構造相における電子励起状態とその格子緩和過程について調べた。また、Suzuki相の存在を確認し、その構造を決めるため、粉末X線回折測定も行った。

吸収スペクトル構造は、4.25~5.0eV(LE), 5.0~6.0eV(HE)領域の2本の幅広い吸収帯からなっている。LE領域励起により、2.64(BG), 3.14(V), 3.56eV(UV1)にピークをもつ発光帯が観測され、これらは孤立Cd<sup>2+</sup>, I-V dipoles, dipole aggregates等の不純物局在中心によるものに同定される。これらの発光に対する励起スペクトルは比較的鋭い構造になっており、LE領域の吸収構造は各種局在中心による吸収帯が重なりあったものであることを示している。一方、HE領域励起では、2.08 eV(Y)及び2.76 eV(B)にピークをもつ発光帯が現れる。これらの発光に対する励起スペクトルはHE領域全域に広がったものとなっており、吸収に関与する電子状態がバンド的なものであることを示唆している。Y及びB発光はX線回折により超構造相の存在が確認される結晶でのみ現れ、673KからRTへの熱クエンチ操作(急冷)により超構造相を消滅(I-V dipolesに分解)させると観測されなくなる。また、熱アニール操作(徐冷)により、超構造相を成長させると再び観測されるようになる。従って、Y, B発光は超構造相結晶の電子励起(励起子)の格子緩和状態からの発光であると同定できる。ま

た、Y, B発光の相対強度は、CdCl<sub>2</sub>の添加濃度によって変化し、低濃度ではBが、高濃度ではYが支配的になる。これは、生成される超構造結晶のサイズの違いによるものと考えられる。

#### References

- [1] K.Suzuki:J.Phys.Soc.Jpn. **16** (1961) 61-78.
- [2] R.W.Dreyfus:Phys.Rev. **121** (1961) 1675.
- [3] R.Capelletti, E.de Benedetti:Phys. Rev. **165** (1968) 191-985.
- [4] W.Spengler, R.Kaiser:phys. stat. sol.(b) **66** (1974) 107-116.
- [5] A.L.Guerrero, E.P.Butler, P.L. Pratt, L.W.Hobbs:Philos. Mag. A **43** (1981) 1359-1376.



NaCl:Cd<sup>++</sup>(14.3mol%仕込)結晶の673Kからのquenchingによるスペクトルの変化

## ZnOエピタキシャル薄膜の高密度光励起キャリアのダイナミクス

横浜国大工 武田 淳

陣内秀夫

栗田 進

東北大金研 Yefan Chen

八百隆文

ZnOは、大きな励起子結合エネルギー(60meV)を持つワイドギャップ半導体であり、室温におけるレーザ発振が確認されるなど、励起子を用いた青色光デバイスとして最近注目されてる<sup>[1,2]</sup>。光励起キャリアの動的過程は、これまでポンプ-プローブ過渡吸収分光、up-conversion発光分光により報告されている<sup>[3,4]</sup>。

今回我々は、高密度励起状態の動的過程をさらに詳細に検討するため、光カーゲート法による時間分解発光スペクトルの測定を行った。励起光にはTi:sapphire再生増幅レーザの第2高調波(～380nm)を、ゲート光には基本波(～760nm)を用いた。システムの時間分解能は約300fsである<sup>[5]</sup>。尚、380nm(3.26eV)の励起波長は、ZnOの励起子を直接生成することに対応している。試料には、サファイア(0001)基板上に成長させたZnOエピタキシャル薄膜(MgOバッファー層有り及び無し)を用いた。

試料を高密度に励起すると、励起子間散乱によるP発光が3.2eV付近に見られる。更に励起強度を上げるとP発光は消失し、かわりに電子-正孔プラズマによるEHP発光が～3.1eV付近に観測される。時間分解発光測定から、1) EHP発光強度は～1psで立ち上がり数psで減衰すること、2) 発光エネルギーが高いほど立ち上がり時間は短く減衰時間は長いこと、3) EHP発光のピーク位置は時間とともにまずは低エネルギー側にシフトし、その後高エネルギー側にシフトしていくこと、を見いだした。1psのEHP発光の立ち上がり時間は、高密度励起子状態から電子-正孔プラズマ状態へ転移する時間と考えられる。EHP発光帯の低エネルギーシフトはバンドギャップリノーマリゼーション、その後の高エネルギーシフトは主に電子-正孔が輻射再結合しキャリア密度が減少したためのバンドギャップの回復をあらわしているものと思われる。

### References

- [1] D. M. Bagnall et al., Appl. Phys. Lett. **73**, 1038 (1998).
- [2] Z. K. Tang et al., Appl. Phys. Lett. **72**, 3270 (1998).
- [3] A. Yamamoto et al., Appl. Phys. Lett. **75**, 469 (1999).
- [4] A. Yamamoto et al., International Conference on II - VI Compounds (1999).
- [5] J. Takeda et al., J. Lumin. **87-89**, 927 (2000).

## ZnOエピタキシャル薄膜における高密度光励起状態

東北大学大学院 理学研究科 物理学専攻 山本 愛士

近年、短い波長の光学素子への応用としてワイドバンドギャップ半導体の研究が多くなされている。ZnOも、ワイドバンドギャップを有するII-VI族化合物半導体のひとつであり、励起子の束縛エネルギーが60meVと大きく、また励起子分子の結合エネルギーも14.7meVと大きいことが特徴である。1997年に、エピタキシャル薄膜の成長に成功し、室温において光励起によるレーザー発振が初めて観測された。このレーザー発振は、励起子間散乱及び電子・正孔プラズマ(EHP)に起因していると報告されている。我々は、ZnOにサブピコ秒パルスレーザーを照射し、ポンプ・プローブ分光による吸収スペクトルの時間変化及びアップ・コンバージョン法による発光の時間変化の観測を行った。また、励起子分子による発光についても言及する。

ポンプ・プローブ分光及びアップコンバージョン測定に用いた試料は、サファイヤ(0001)基板にplasma enhanced MBE法により厚さ233nm成長させたZnOエピタキシャル膜である。用いたレーザーは、モードロックNd:YLFレーザー励起の色素レーザーを增幅したもののが第二高調波(光子エネルギー4.05eV、パルス幅約500fs、繰り返し1kHz)である。ポンプ・プローブ分光による差吸収スペクトルの時間変化には、3.330eV付近の励起子吸収の飽和、その低エネルギー側(~3.272 eV)にバンドギャップrenormalizationによる吸収の増大、及びEHPによる光学利得(~3.22eV)が観測された。発光の時間分解測定には、時間原点付近でのホットな電子・ホールの輻射再結合と、その後準安定になったEHPによる発光が観測された。renormalizeしたバンドギャップが、もとのバンドギャップへと高エネルギーシフトしていく様子も観測された。

これまでのところエピタキシャル膜において励起子分子による発光を測定した例は、我々の知る限り無いようである。そこで、サファイヤ基板とZnOとの格子ミスマッチを軽減するためにGaNの緩衝層を4 μm設け、その上にZnOを2 μmエピタキシャル成長したものを使用して、発光の励起強度依存性を測定した。励起レーザーとしては、QスイッチNd:YAGレーザーの第3高調波(波長:355nm、パルス幅:7ns、繰り返し:10Hz)を使用した。励起強度を上げていくと、150W/cm<sup>2</sup>以上で3.35 eV新しい発光(M)が現れ、470W/cm<sup>2</sup>以上で3.32eV付近に励起子間散乱による発光(P)が現れ出す。Mバンドの発光の積分強度は、励起密度に対しおよそ1.5乗で非線形に増大することがわかった。また、2光子励起スペクトルやその偏光依存性からも、Mバンドは、励起子分子によると考えられる。励起子分子の結合エネルギーを見積もると15meVとなり、バルクで報告されている値14.7meVとよく一致した。

以上のことから、エピタキシャル薄膜で初めて励起子分子の発光が観測されたものと考えている。本研究は、当研究室の木戸 健夫氏、宮島 顕祐氏、後藤 武生教授と東北大学金属材料研究所のYefan Chen氏、Hang Ju Ko氏、八百隆文教授との共同研究である。この研究の一部は、東北大

学金属材料研究所の附属新素材設計開発施設における共同利用研究により行った。

## 微視的非局所応答理論：最近の発展

阪大院基礎工 張 紀久夫

「電磁場と誘起分極（電流密度）をセルフコンシスティントに決める」微視的非局所応答理論/1/により得られた最近の研究結果：

### 1. 共鳴 Bragg reflectorと光の結合強度/2/

N枚の原子面（または量子井戸等）を等間隔で並べ、共鳴周波数に対して Bragg条件が満たされるようにした Bragg reflectorと共に光の結合強度をNの関数として調べた。結合強度の目安として振動子強度は役に立たないので、より一般性のある「共鳴準位の輻射寿命幅」を用いて解析した。垂直入射の反射率を  $N=1, 2, \dots$  に対して計算すると、Nの小さい場合は輻射寿命幅に一致する幅のローレンツ曲線になるが、Nが大きくなると（フォトニックギャップなどによくある）シルクハット型の曲線になる。この系はNが大きいとき共鳴準位のあるフォトニック結晶になるので、後者のスペクトルはその極限に対応している。フォトニックバンド描像とスペクトルの変遷を理解するために、反射振幅の極を表す複素振動数をNの関数として計算した。

### 2. 球内弱閉じ込め励起子の準位構造と光応答/3/

励起子の縦横分裂効果およびそれに対する下地誘電率の効果（バルク的遮蔽と鏡像電荷の効果）を加えた励起子の準位構造を計算し、次にそれらの準位の光応答を計算した。光応答においても、下地誘電率は Mie共鳴の効果を与え、特に閉じ込めの半径が大きくなるときにその効果が顕著になる。このような取り扱いによって初めて、共鳴準位の縦横（および表面）モード特性、各準位の輻射シフト及び幅、および各サイズ量子化準位のスペクトル強度をきちんと議論できる。巨視的応答理論において A B C を仮定したスペクトル計算との対応も調べている。

### 3. 薄膜中の弱閉じ込め励起子系による 3 次非線形応答の 2 重共鳴増大

非局所応答の特徴は「線型・非線型の全ての素過程において電気双極子遷移だけが主役となる」巨視的応答理論と違って、より高次の多重極遷移も条件次第では特に大きな寄与をし得る所にある。既にポンプ・プローブ過程に対してこのような NIDORES(Nonlocality induced double resonance in energy and size) 効果が顕著に出現し得ることを予言してきたが/4/、実験的にも信号が得やすく理論的にもさらなる増強効果が期待されるDFWMの信号強度を CuCl に対して計算し、その振動数および膜厚依存性を調べて顕著な共鳴効果があることを示した/5/。これに対して三菱グループから GaAs の弱閉じ込め励起子に対する DFWM の実験が報告され/6/、膜厚とエネルギーに対する 2 重共鳴効果という点で理論の予測と定性的に合致することが分かった。

GaAsに対する理論計算も実行中で、実験との対応も定量的段階に入り、非局所応答理論ならではの特質が確立されつつある。

#### References

- /1/. K. Cho: Prog. Theor. Phys. Suppl. **106** (1991) 225; J. Lumin. **87-89** (2000) 7, /2/. T. Ikawa and K. Cho: J. Lumin. **87-89** (2000) 305, /3/. H. Ajiki and K. Cho: Proc. EXCON'98(Electrochem. Soc) p.262 ; Phys. Rev. B, 投稿中; 辻哲矢:修士論文(阪大院基礎工, 2000), /4/. H. Ishihara and K. Cho: Phys. Rev. B**53** (1996) 15823, /5/. H. Ishihara, T. Amakata, and K. Cho: J. Lumin. **87-89** (2000) 850, /6/. K. Akiyama, N. Tomita, Y. Nomura, T. Isu, H. Ishihara and K. Cho: Proc. Int. Conf. on "Modulated Semiconductor Structures" Fukuoka 1999, to be published in Physica E.; K. Akiyama, N. Tomita, Y. Nomura and T. Isu: Appl. Phys. Lett. **75**, 475 (1999)

#### ZnO/(Zn,Mg)O量子井戸における誘導放出機構

理研PDC 牧野 哲征

孫漢東

N.T.トゥアン

瀬川 勇三郎

香港科技大学物理 湯子康

G.K.L.ウォング

東工大総理工, 応セラ研 川崎 雅司

大友 明

田村 謙太郎

鯉沼 秀臣

近年、酸化物II-IV族化合物半導体であるZnO, MgO, CdOおよびそれらの混晶を用いた短波長発光素子を目指した材料開発研究が非常に活発になってきている。しかし、これら材料系の基礎的な物性・光物性に関しては、いまなお不明な点が多く、結晶成長技術、結晶構造解析、発光機構、レーザー発振機構の解明などの観点から、基礎研究が行われている。適当なMg組成をもったMgZnO障壁層と組み合せれば量子井戸構造が形成可能である。ZnO/(Zn,Mg)O量子井戸において吸収エネルギーから70-80meVのストークスシフトを有する誘導放出帯を観測した。この誘導放出は室温以上(100°C)でも起こりうるものである。残念なことに室温での誘導放出スペクトル

は、励起光源の一発一発の強度揺らぎでスペクトル形状が大きく変わるなど、その誘導放出機構を議論するには、曖昧さがあった。そこで、我々は、熱的原因など非本質的な部分を除き、より鋭いスペクトル構造が得られると期待される低温(5K)での測定を行うことにした。誘導放出を起こす発光帯のストークスシフトはZnOバルクの励起子束縛エネルギーにだいたい等しく、また励起強度に対し、ピーク位置は依存しなかった。これらの実験事実より、この発光帯は励起子間の散乱によるオージェ過程的な、所謂P発光であるとアサインされた。さらに励起強度を上げると、誘導放出はより大きなストークスシフトを持つ、電子正孔プラズマを起源とするものに変化する。要するに室温スペクトルの曖昧さはP発光とプラズマ発光の観測され始める励起強度が近いためと結論できる。それに対し、低温では、励起強度領域に明確な差が見られた。この温度依存性は、室温では励起子の熱的イオン化が起こりやすい事実から説明可能である。低温極限では、励起子吸収エネルギーとP発光エネルギーの差は励起子の束縛エネルギー( $E_b^{ex}$ )に対応するため、我々は束縛エネルギーの井戸幅( $L_w$ )依存性を実験的に決定することが出来た。井戸幅を薄くしていくと束縛エネルギーは増加した(表参照)。これは量子閉じこめ効果による増加と説明することができる。また我々は吸収半幅の温度変化より、励起子格子結合定数( $\Gamma_{LO}$ )の井戸幅依存性を実験的に決定した。結合定数は井戸幅を減ずるとともに、単調に減っていった。バルクの酸化亜鉛においては、励起子束縛エネルギーが光学フォノンのエネルギーよりも大きいのに対し、量子井戸構造においてはその大小関係が逆転することに起因している。発光スペクトルから評価する限り、量子井戸において光学フォノンのエネルギーは変化しなかった。つまり、束縛エネルギーの井戸幅依存性と、結合定数の依存性は矛盾無く説明できる。

Num.	$L_w$ (nm)	$\Gamma_{LO}$ (meV)	$E_e^{xb}$ (meV)
1	4.65	$341.55 \pm 16$	71.3
2	4.23	$308.05 \pm 25.7$	72
3	3.7	$283.56 \pm 23$	77
4	2.79	$255 \pm 32$	81
5	2.35	$243.96 \pm 110$	NA
6	1.75	$205.3 \pm 180$	86
7	1.29		85

## 半金属・半導体における格子振動のフェムト秒実時間観測及び制御

金属材料技術研究所 第2研究グループ 長谷宗明

近年、フェムト秒（1000兆分の1秒）パルスレーザーの導入により、凝縮系における電子・格子の量子状態のダイナミックス解明が進んでいるが、これまでダイナミックスの制御を行ったという例はあまり多く報告されていない。半導体における電子の集団運動（プラズモン）の時間発展を理解し、且つ制御するには、プラズモンとクーロン相互作用を通じて結合するLOフォノンの動きを捕らえ、且つ制御することが重要であると考えられる。また強誘電体など構造相転移物質においては、フォノン（ソフトモード）の周波数が結晶構造の変化に直接結びつけられるので、ソフトモードを制御できれば、構造相転移を光で制御できる可能性も開ける。ここでは、フォノンを制御するという事に焦点を当て、半金属・半導体中に発生させた位相の揃った原子の集団振動（コヒーレントフォノン）をフェムト秒時間分解反射率測定法によって実時間観測し、さらにコヒーレントフォノンの振幅を制御した結果について述べる。

テラヘルツの高周波数で振動する光学フォノンを制御するために、マイケルソン干渉計または空間光変調素子（SLM）を用いて、フェムト秒の繰り返しを持つ光パルス列を発生させた。Fig.1は、複数のフォノンモードが存在するBi-Sb混晶系において、コヒーレントフォノンの選択励起を行った結果である。Bi-Biの結合に関する振動周期（340 fs）に一致したパルス列で試料を励起すると、Bi-Biモードのみが次第に強くなることがよく分かる。しかし、この実験では1パルス当た

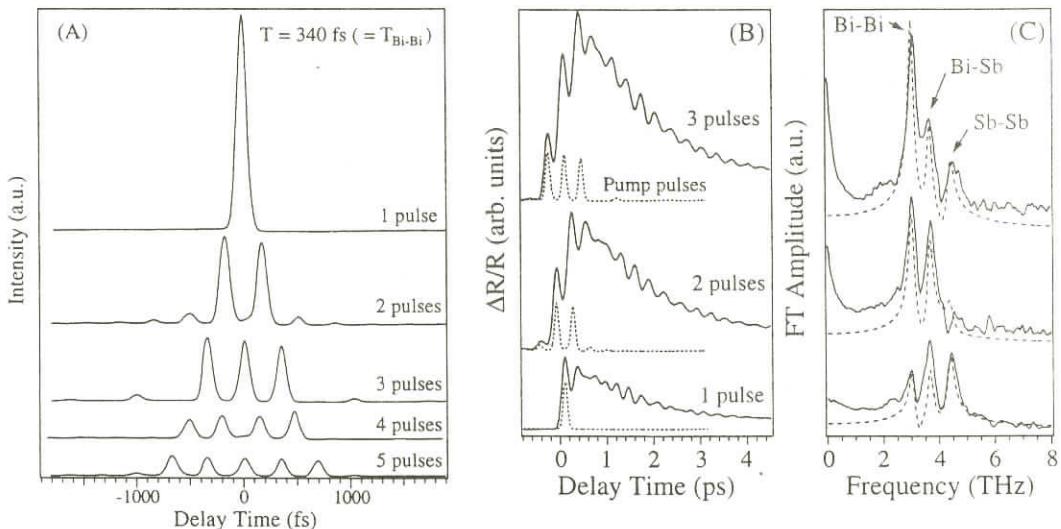


Fig.1. (A) THz-rate pulse trains obtained by using SLM (spatial light modulator).  
(B) Selective excitation of coherent phonons in the  $\text{Bi}_{0.31}\text{Sb}_{0.69}$  mixed crystal system.  
(C) Fourier transformed spectra of the time domain data (B).

りのエネルギーが、 $1nJ$ 以下と低いので、結晶の構造相転移を起こせるほど、コヒーレントフォノンの振幅が大きくできないという欠点がある。講演では、数  $\mu J/pulse$  のエネルギーまで增幅できる Ti:sapphire laser amplifier system を用いて、相転移物質のコヒーレントフォノンを測定した結果についても述べる。なお本研究は、大阪大学工学部応用物理学専攻における成果をまとめたものであり、かつ金材技研において継続している課題である。

#### References

- [1] M. Hase, T. Itano, K. Mizoguchi, and S. Nakashima, Jpn. J. Appl. Phys. **37** (1998) L281 - L283.
- [2] M. Hase, K. Mizoguchi, and S. Nakashima, J. Luminescence, in press (2000).
- [3] M. Hase, K. Ishioka, M. Kitajima, K. Ushida, and S. Hishita, Appl. Phys. Lett. **76** (2000) 1258.

### アモルファス半導体における量子閉じ込め効果？

奈良先端科学技術大学院大学 金光義彦

間接遷移型半導体である結晶シリコン(c-Si)と良質の酸化膜SiO<sub>2</sub>を組み合わせることにより作製されたc-Si/SiO<sub>2</sub>量子井戸や量子点は、量子効率の高い可視発光を示す。この可視発光のメカニズムを詳しく研究することにより、c-Si/SiO<sub>2</sub>系量子構造の電子構造や励起子物性に関して非常に多くの知見が得られた。

一方、発光するシリコン物質として水素化アモルファスシリコン(a-Si:H)がある。構造の乱れにより波数選択則の破れが起こり1.3 - 1.4eV付近に強い発光が観測される。この良質のa-Si:Hをベースとしたナノ構造を作製すれば、量子閉じ込め効果と構造の乱れの組み合わせにより、c-Siにはない新規な光学応答を示す材料が開発できるとする考えがある。しかし a-Si:Hのような乱れた系では、電子の波動関数はアトミックスケールで局在しており、量子化した準位が観測できるのかどうか素朴な疑問が生じる。

1983年にa-Si:H/a-SiN:Hの多層膜が初めて作製され、その試料において吸収スペクトルのサイズ効果が報告された<sup>[1]</sup>。それ以来、アモルファス半導体の量子サイズ効果については活発に議論されている。これまでa-Si:H/a-SiN:Hまたはa-Si:H/a-SiC:Hの多層膜を用いて多くの実験や追試が試みられたが、量子化された準位の証拠は得られていないというのが一般的な意見である（多くの実験は再現性に問題があることが指摘されている）<sup>[2]</sup>。

本講演では、従来のa-Si:H/a-SiN:Hまたはa-Si:H/a-SiC:Hの多層膜と異なり、効率よく可視発光するa-Si:H/a-SiO<sub>2</sub>多層膜を作製し、c-Si/a-SiO<sub>2</sub>量子井戸のサイズ効果<sup>[3]</sup>と比較する

ことによりアモルファス半導体の発光特性のサイズ効果について議論した。これまでに我々のグループで行ったa-Si:H/a-SiO<sub>2</sub>多層薄膜の実験は以下のようにまとめられる。(1)膜厚の減少とともに発光のピークエネルギーはブルーシフトする。(2)発光寿命は膜厚の減少とともに短くなる。(3)膜厚の減少とともに発光の温度消光が改善される。(4)多層膜ではバンドテイル状態の電子状態を反映するUrbachエネルギーの増大が観測される。これらの結果から、アモルファス半導体における電子のアンダーソン局在と量子閉じ込めについて議論した。

- [1] B. Abeles and T. Tiedje, Phys. Rev. Lett. **51** (1983) 2003.
- [2] T. Searle, *Properties of Amorphous Silicon and Alloys* (IEE, 1998).
- [3] Y. Kanemitsu and S. Okamoto, Phys. Rev. B **56** (1997) R15561.

### フォトニック結晶から時空間機能材料へ

理化学研究所 フロンティア研究システム 時空間機能材料研究グループ

励起子工学研究チーム 石原照也

フォトニック結晶は透明な誘電体の周期構造であり、Yablonovitchの提唱以来多くの研究がなされている。一方、Fabry-Perot微小共振器に量子井戸などの活性層を挿入し、共振器によって制限された電磁波モードと量子井戸内の励起子が強く結合することによって生じた共振器ポラリトンも、Weisbuchらの実験以来、盛んに研究されている。われわれはこれまでに石英基板上に作製した周期構造に半導体薄膜を形成した導波路構造で、同様の強結合状態が生じることを報告してきた。周期構造と励起子が共鳴したこのような系は光と物質の両方を制御した「新物質」とみなせるもので、光物理研究のあらたなターゲットのひとつとなろう。

昨年10月より、理化学研究所ではあらたなフロンティア研究として、時空間機能材料研究グループを発足させた。局所時空間機能（原正彦）、散逸階層構造（下村政嗣）、励起子工学（石原照也）、トポケミカルデザイン（国武豊喜）の4チームからなり、研究期間は8年間である。このグループのターゲットは時空間のパターン形成とそのメカニズムの解明である。

励起子工学チームでは「混沌からの秩序」を重要なキーワードと位置付け、1)励起子超放射とその拡張、2)ポラリトニック結晶の機能開拓、3)超高速巨大光学非線型系の探索などを行っていこうと考えている。たとえば「インコヒーレントなフォトンを融合させて大きなエネルギーのフォトンを生成させる(フォトンフェュージョン)はいかにして可能か?」といった問題に取り組んでいきたい。

時空間機能材料グループは世界における、パターン形成のセンターとして役割を果たすべく、準備を行っている。このような研究に興味をもたれる方とは積極的に共同研究や研究交流を行ってゆく予定である。賛同者はご連絡をお願いします。

## 物性研究所短期研究会報告

### 強光子場中の原子分子ダイナミクス

日 時 2000年 6月 5日～6月 6日（2日間）

場 所 東京大学物性研究所 6階大講義室

世話人 山内 薫（東大・理）  
渡部 俊太郎（東大・物性研）  
小森 文夫（東大・物性研）  
吉信 淳（東大・物性研）  
中島 信昭（阪市大・理）  
河野 裕彦（東北大・理）  
染田 清彦（東大・総合文化）  
池田 研介（立命館大・理工）

近年の超短パルスレーザー光の開発は、レーザーによって達成できる光子場強度を飛躍的に向上させた。その結果、強光子場中において、光の場を単なる摂場では取り扱う事の出来ない「光と原子・分子が一体となった状態」（これを光の衣を着た（ドレスト）状態と呼ぶ）を作ることが現実に可能となってきた。そして、「越闊イオン化」や「越闊解離」のような新しい現象が観測されるようになった。

このような強光子場における原子・分子のダイナミクスに関する研究は、欧米各国では未だ胎動期にあり、散発的に研究が行われているに過ぎない。一方、現在の日本においては、物性研先端分光部門の渡部教授を中心とするグループが、世界に先駆けて、高輝度かつ短パルスレーザーの開発を推進している。さらに、提案者らの実験および理論の研究グループによって、コヒーレンスは元よりレーザーによる強光子場を用いた原子分子分光実験と関連する理論研究が展開されている。

このような背景を考えれば、本研究会において、独自の学際的研究展開を行っている第一線の研究者が集まり、議論することは、きわめて有意義である。そして、それが「レーザー光と原子・分子系の相互作用の本質」を理解するための新しい分野の発展に結び付く可能性が高い。さらに、今後のこの分野のさらなる発展の基礎を築くために本研究会を提案するに至った。

プロ グ ラ ム

第1日目：平成12年6月5日（月）

10:00～10:10 山内 薫（東大理）

はじめに

座長 山内 薫（東大理）

10:10～10:40 宅間 宏（電通大）

「強高電場科学の展望」

10:40～11:20 渡部 俊太郎（物性研）

「超短パルス高出力レーザーと物性研究」

11:20～12:00 緑川 克美（理研）

「位相整合による高次高調波発生効率の最適化」

12:00～13:00 昼休み

座長 中島信昭（大阪市理）

13:00～13:40 加藤義章（原研）

「高出力超短パルスレーザーによるX線の発生と利用」

13:40～14:20 上坂 充（東大工）

「12TW50fsレーザーを用いた時間分解X線回折」

14:20～14:40 休憩

座長 染田清彦（東大総合）

14:40～15:20 中村宏樹（分子研）

「Floquet表示、非断熱遷移、そして制御」

15:20～16:00 中嶋 隆（京大エネ理工研）

「位相制御された2色レーザーによる光イオン化」

16:00～16:20 休憩

座長 河野裕彦（東北大理）

16:20～17:00 藤村勇一（東北大理）

「化学反応の量子制御」

17:00～17:40 染田清彦（東大総合）

「強光子場中の分子の準安定状態」

18:00~20:00 懇親会

第2日目：平成12年6月6日（火）

座長 戸田幹人（京大理）

9:30~10:00 山内 薫（東大理）

「強光子場中の分子の振るまい」

10:00~10:40 池田研介（立命館大）

「周期摂動系の複素力学構造が観測できるか？」

10:40~11:00 休憩

座長 菱川明栄（東大理）

11:00~11:40 川崎昌博（京大工）

「分子配向・多光子励起・光位相による光分解過程の制御」

11:40~12:20 酒井広文（東大理）

「高強度レーザー電場による中性分子の配向と配列」

12:20~13:20 昼休み

座長 酒井広文（東大理）

13:20~13:40 中島信昭（大阪市理）

「C<sub>60</sub>, ペンタクロロベンゼンの高強度レーザー科学」

13:40~14:00 清水政二（大阪市理）

「超高強度フェムト秒レーザーによるベンゼン分子のクーロン爆発過程」

14:00~14:40 河野裕彦（東北大理）

「化学における非共鳴レーザー誘起電子移動の役割」

14:40~15:10 菱川明栄（東大理）

「多電子分子におけるドレスト状態の観測」

15:10 閉会

15:30~16:30 東大物性研先端分光実験施設見学会

## 高光電場科学の展望

電気通信大学 宅間 宏

最近のレーザー技術の進歩によって、通常の研究室内で、比較的容易に $10^{14} - 10^{20} \text{ W/cm}^2$  の高強度光照射を実現できるようになった。この領域に入ると、光電場が物質中の電子に作用する電気力  $eE_{\text{opt}}$  が、物質中の電子に働く束縛力と同程度あるいはそれ以上になって、従来の摂動理論の成立範囲を逸脱し、もろもろの新現象が観測されるようになる。このような領域をここでは「高光電場科学」と仮称する。

この領域のさまざまな現象は、光電場の物質に及ぼす影響の大きさによって全く異なった様相を呈することが期待される。ここでは次の3段階にわけて考える。

### 1. $eE_{\text{opt}} < (\text{物質中の束縛力})$

この領域では物質の状態はそのまま保たれるが、強い光電場の物質に及ぼす影響を十分考慮して、いわゆる“dressed state”を考えると理解しやすい。光電場が強くなるにしたがって物質は光子一個ではなく、多光子と結合してほぼ縮重した状態が同等の重要性を持つようになる。また、高光電場は、通常10 ps 程度の短時間に印加されるので、これらの多光子結合状態の結合状態得を初期条件として考える必要も生じる(sudden change approximation)。いっぽう、この領域では従来の概念に基づく理論的解析の延長として考え易く、またその応用としてさまざまな物質の制御方式（いわゆる量子制御等）が考えられ、高光電場現象の入り口とは言え、学術的にも実用的にも重要な新領域である。

### 2. $eE_{\text{opt}} >> (\text{物質中の束縛力})$

この領域に入ると、従来の物質の固有状態をそのまま拡張することが困難となり、全く新しい学術領域を創成する必要がある。物質中の電子が束縛を離れて飛散しそれに伴うイオンの Coulomb 力による飛散（クーロン爆発）のような非熱的な物質の破壊現象が観測されるが、その中に成立する法則性は未知であって、粒子モデル解析を含む、第1原理に基づく新たな研究努力が必要である。

### 3. 相対論的領域

さらに光電場が強くなって、電子の光周波数の振動の最高速が光速度に近くなると、各種の相対論的效果が観測される。また電子に働く光磁界の力が無視できなくなり、電子は直線運動でなく、光電磁場によって8字形の運動を行うことになる。これらの結果による新たな短波長光発生の機構も予測される。その他プラズマ周波数の相対論効果は臨界密度を下げ、また光束の自己束縛などの新しい非線形現象も期待される。

## 超短パルス高出力レーザーと物性研究

東京大学物性研究所 渡 部 俊太郎

### (1) 高繰り返し超短パルス高出力レーザー

物性研究所では(1)10Hz, 20TW TiS レーザー (2)kHz, 0.7TW TiS レーザー (3) 5 kHz, 0.2TW TiS レーザー (4)200Hzサブ TW KrF が稼動もしくは準備中である。このうち高繰り返し TiS レーザーは全固体化を達成した。

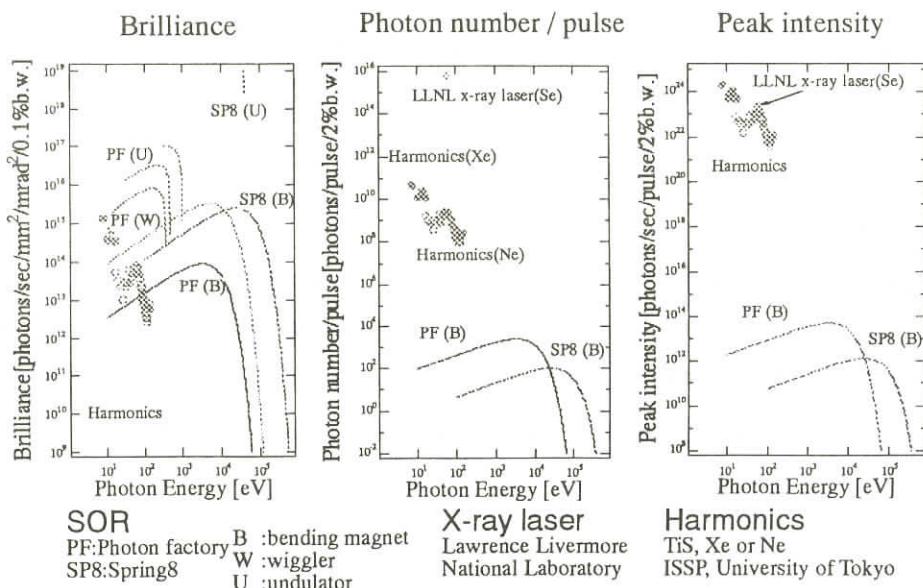
### (2) 高次非線形効果

これらのレーザーシステムを用いて高次高調波の発生を行っている。高次高調波はアト秒パルス発生の有力候補である。高調波でアト秒を発生するためにはその位相を測定し、パルス圧縮を行う必要がある。VUV FROG のための努力を紹介する。

### (3) 高次高調の物性研究への応用

図は放射光、X線レーザー、高次高調波を比較したものである。高次高調波の特徴は超短パルス、高ピーク出力、コヒーレンスにある。この特徴を利用してアルカリーハライドからの内殻励起オージュフリー発光のフェムト秒時間分解を行っている。

他方高調波は励起光の性質をそのまま受け継ぐので、狭帯域極端紫外光の発生も可能である。この光源を用いた高分解能光電子分光について述べる。



## 高輝度高次高調波の発生

理化学研究所 レーザー物理工学研究室 緑川克美

### 1. はじめに

最近、高次高調波の発生に関して理論および実験の両面から大きな進展が見られ、出力強度や波長ばかりでなく、そのビーム品質やスペクトル輝度の制御も可能になってきた。今回は、励起レーザー光のガイディングによる高調波発生効率の改善の実験結果に加えて、位相整合や媒質による吸収、イオン化等の巨視的な要因を考慮したモデル計算の結果に基づく高次高調波の発生の最適化について報告する。

### 2. 空ファイバー中の高調波の発生

高強度フェムト秒レーザーを原子や分子気体中に集光して得られる高次高調波波長域は、いわゆる“水の窓”にまで達している。しかし、基本波からの変換効率が低いため、応用に十分な光子数が得られていない。われわれは、高強度フェムト秒レーザーを中空ファイバーによりガイディングすることにより、高次高調波の変換効率を大幅に改善することに成功した。これは、簡単なシミュレーションモデルにより高強度レーザー電場による中性原子の非線形屈折率の変化とプラズマによる分散が釣り合い、位相整合が満たされたためであると考えられた。

### 3. 軟X線領域での位相整合による高効率高次高調波の発生

中空ファイバー中の高次高調波の発生法をさらに短波長域に発展させ波長16nm近傍(49次)で変換効率を従来法に比べて約2桁向上させることに成功した。この方法は、超短パルス高強度レーザーをガス媒質中に集光照射したときに生じる自己チャネリングという現象を利用している。これによって、軟X線領域において、初めて位相整合が満たされた非線形波長変換が可能なことが実証された。

### 4. 高調波発生の最適化

位相整合による高調波発生効率の最適化を行うため、Arガスを媒質として27次高調波の発生効率と同時にビーム品質の測定を行い、自己吸収と巨視的位相整合条件を考慮したモデル計算の結果と比較し、よい一致が得られた。また、このモデル計算の結果から、さらに伝搬長を長くすることによりサブフェムト秒のXUVパルスの発生が可能であることが示唆された。

## 高出力超短パルスレーザーによるX線の発生と利用

日本原子力研究所 関西研究所 光量子科学研究センター 加藤 義章

### 1. 光量子科学研究センターの概要

高出力超短パルスレーザーにより、高強度場科学、超高速科学、小型X線源開発等の新しい研究が可能となる。光量子科学研究センターでは、100TW, 20fs, 10Hzのチタンサファイアレーザー、20TW, 1ps, 1 shot/10min の Nd:ガラスレーザー、小型電子加速器 (150MeV Microtron) 等を整備し、昨年9月より京都府木津地区に新設された研究施設で活動を開始している。多くの方にこれらの施設を利用いただき、高度の成果を出していきたいと考えている。  
(今年秋に共同研究の公募をする予定である。)

### 2. X線レーザーの研究

高輝度コヒーレントX線源の開発を目指して、X線レーザー研究を実施している。最近、超短パルスレーザー照射金属ターゲットからの特性X線を用いたGaAs結晶の時間分解構造解析の実験結果が最近米国で発表されているが、一回折データを得るのに数100ショット照射を必要としている。より高輝度のX線源を使用すれば、再現性のない事象でも単一ショットでの測定が可能となる。

現在、12nmまでの軟X線レーザー発振を得ており、条件の最適化による性能向上、高次高調波光の注入増幅によるコヒーレンスの向上を計画している。

### 3. 超短パルスレーザー光とクラスターの相互作用

クラスターと超短パルスレーザー光との相互作用に関する興味深い報告が数多くされている。江潤卿氏（阪大、現在光量子研究センター研究員）は、チタンサファイアレーザーによるC<sub>60</sub>のクーロン爆発を調べ、C<sup>4+</sup>までの生成を観測した。他方ドイツでの248nmレーザーを用いた実験では、同程度の照射強度で、C<sup>6+</sup>の生成を観測しており、相互作用の強い波長依存性を示している。我々はC<sup>6+</sup>とHeとの電荷交換による再結合型X線レーザーの可能性を検討しているが、一般的に分子とレーザー光の相互作用においても、レーザー波長依存性は重要な要因となる可能性がある。

なお最近、イリノイ大学C. K. Rhodes教授より、キセノンクラスターをKrFエキシマーレーザー(248nm)で強励起し、2.8Åでの強いX線增幅を観測したとの報告がなされた。本課題との関連においても、興味深い報告である。

## 12TW50fsレーザーによる時間分解X線回折

東京大学大学院工学系研究科附属原子力工学研究施設 上坂 充

フェムト秒量子ビームポンプ&プローブ分析研究を推進するべく、東大原施に1998年（平成10年）年度中にフェムト秒高速量子現象研究施設が構築された。そのシステム構成は、

1. フェムト秒ライナック・レーザー同期システム
2. 12TW50fsテーブルトップレーザーシステム
3. 分析システム（X線解析、X線CCDカメラ、IPリーダー、XPS、FTIR）

である。フェムト秒ライナック・レーザー同期システムでは、従来のピコ秒精度同期実績を発展させ、数分間で330fs(fms)、数時間1.9ps(rms)に同期精度を達成した。長時間での時間ジッターの原因は、主にライナック加速管の数度の温度変動であることがわかった。次年度早々に、0.01°C以内の温度コントロールシステムを導入する。また、レーザーフォトカソード高周波電子銃の銅カソードにて、 $250\ \mu J$  267nmレーザー光照射により、 $7nC/7ps = 1\ kA$  の世界最高電流を記録した。この最大の要因はNEGポンプ導入によるキャビティでの $10^{-10}$ Torr台の高真空の達成である。すでにこのシステムを使った水・超臨界圧水の放射線化学分析実験がスタートしている。12TW50fsテーブルトップレーザーシステムでは、レーザープラズマ航跡場加速方式によって10fsレベルの電子ビームの生成、レーザープラズマ中のイオン爆発、およびアルフベン波、後方ラマン散乱波によるフェムト秒イオンビームの生成を目指す。原研光量子科学研究センターの協力を得て行ったPIC-2Dコードによる数値解析により、20MeV12fs(FWHM) 数 + pC 3 π mm.mrad の電子ビーム生成の結果を得た。実験は5月以降予定している。すでに銅固体ターゲット照射によるMeV クラスイオンビーム生成はCR39フィルム測定により確認した。（～1000個/ショット）。このシステムをつかったポンプ&プローブ分析に関して、ビームスプリッタよりレーザーパルスをポンプ・分析パルスを分岐し、様々なビームを変換生成し、光路調整によって遅延をつければ、 $5\ \mu m$ 位置設定精度は33fs時間精度となる。しかも遅延方式はすべてエレクトロニクスに頼ることなく全く受動的であるため、時間的ジッターが全くなくなる。これにより33fs精度のポンプ&プローブ分析が可能となる。本システムは超小型・低コスト放射線源として革新的である。このシステムによる時間分解X線回折実験をすでに始めており、銅固体ターゲット照射によるレーザープラズマX線の生成とGaAs,Si,Ge等の半導体単結晶のX線回折像取得に成功している。さらに、得られたX線回折結果から、GaAs内の定在波光学フォノンと非平衡熱膨張、進行波音響フォノンと衝撃波過程における原子の動画像化に成功した（OPEN-GL 使用）。これは、4次元（3次元空間+時間）の顕微鏡の実現を意味する。

今後シンクロトロン放射光も加えたフェムト秒量子ビームポンプ&プローブ分析研究を推進していく予定である。

## Floquet 表示, 非断熱遷移, そして制御

分子科学研究所 中村宏樹

### I. 制御理論概観

レーザーを用いた分子過程の制御については、以下の様な幾つかの方法（理論）が提唱されている[1]：(1)コヒーレントコントロール, (2)チャープパルスの利用, (3)断熱通過, (4)パルス波形による制御（最適制御理論）, (5)パンプーダンプ法, (6)ピーパルス。これらの方法の概要を先ず説明する。これに加えて最近、我々は「レーザー場（周波数及び強度）の周期的掃引による完全制御」及び「完全反射現象の利用による制御」を提唱している[2-4]。

### II. 非断熱遷移の重要性

非断熱遷移の概念は大変学際的で、物理、化学生物等の自然科学のみならず、経済学や日常生活に於いてさえ現われる。化学物理に於いてはポテンシャルエネルギー曲線の交差における状態遷移が最も典型的である。分子過程が効率良く起っている時には準位交差が何処かで起っていると思ってほぼ間違いない。レーザーの素晴しさはこの様な準位の交差を人工的に作りだし、しかもそこで遷移（非断熱遷移）を制御する可能性を与えてくれる事にある。非断熱遷移の理論には時間に依存しない場合の定常状態間遷移の理論と時間に依存する場合の理論とがある。理論としては前者の法が難しく、こちらの理論が出来れば後者に容易に転用出来る。レーザー場を時間の関数として積極的に用いる場合には後者の時間に依存する非断熱遷移の理論を駆使する。我々は最近、Landau,Zener, Stueckelberg 以来未解決のままであった全ての問題を解決する定常状態間の非断熱遷移の理論の完全解を得る事に成功した[5-7]。この理論を用いて新しい制御のアイディアを実現しようとしている。

### III. レーザー場中の分子 — Floquet表示

分子とレーザーとの相互作用に関しては、通常、半古典的表式での双極子相互作用近似で表現するので十分であると考えられている。さらに、レーザーの周波数 $\omega(t)$ 、強度 $I(t)$ 及び位相 $\phi(t)$ が周期 $T (=2\pi/\omega)$ の間に激しく変化しないと仮定すると、光子の衣を着た分子状態( $E(j,n)=E(j)+nh\omega$ ,  $n=-2, -1, 0, 1, 2, \dots$ )を得ることが出来、動力学過程もこの状態(Floquet states或いはdressed statesという)を基礎にして論じる事が出来る。つまり、動力学過程は $\omega$ ,  $I$ ,  $\phi$ の時間依存性を陽に考慮に入れた時間依存のSchroedinger方程式を解き、Floquet状態間の遷移を調べる事となる[8]。この際、 $\omega$ ,  $I$ ,  $\phi$ の時間依存性に応じて様々な非断熱遷移が現われる。上式で $E(j)$ は $j$ -番目の分子の状態を表わし、 $n$ は分子が吸収( $n>0$ )或いは放出( $n<0$ )した光子の数を表わす。

#### IV. 分子過程制御の新提案[2-4]

上述したようにレーザー場によってポテンシャル交差を人工的に作りだし、しかもそこでの非断熱遷移を制御することが出来る。

##### (IV-1) 完全反射現象の利用

分子の座標の関数としてのポテンシャルエネルギー曲線が異符号の傾きで交差すると交差点より上の離散的なエネルギーの所で完全反射現象が起きる[5-7,9]。Floquet状態はレーザーの周波数を変える事によって上下させる事が出来るから、周波数を調節することによって粒子の透過を進めたり止めたりする事が出来る。一次元及び二次元モデルでの分子の光分解の制御の計算例を示す。原理的には周波数を調節する事によって好きな方向への分解を高い効率で進める事が可能となる。また、分解型の電子励起状態のポテンシャル障壁（遷移状態）が片寄って存在するために通常の光分解では起り得ない方向へも上述の方法を用いて分解を起こさせる事が出来る。この完全反射現象は非断熱遷移（非断熱トンネルと言う）の所での量子力学的干渉効果によって起っているので、一次元の場合には“完全”であるが、多次元の場合には完全ではなくポテンシャルエネルギー曲面が都合の良いトポグラフィーを有していく必要がある。

##### (IV-2) 周期掃引による制御

レーザー周波数 $\omega(t)$ や強度 $I(t)$ 等を $x$ -座標とした時のFloquet状態表示を考える。エネルギー曲線の交差の所でこれらの変数を周期的に掃引すると量子力学的干渉効果を引起すことが出来る。掃引の速さ、幅、回数等を旨く選ぶ事によって交差点での非断熱遷移を好きな方向に100%の効率で起こさせる事が出来る。しかも、我々は基本的な非断熱遷移モデルに対して解析的な理論を持っているので、これらの制御変数の最適条件を理論から求める事が可能である。多準位問題の場合には、個々の交差点で場を掃引して最終的に望みの状態の存在確率を1にする事が出来る。レーザーの強度あるいは周波数空間での波形の制御の精度に応じて好ましい非断熱遷移（Landau-Zener型、Rosen-Zener型、指數関数型等）と制御方法を考える事が出来る。交差点が互いに接近していて個々の交差点での非断熱遷移の制御が行いにくい場合や、準位数が多くて個々の交差点で一々掃引制御をするのが大変な場合には、多準位をまたがって一度に掃引する事も可能である。以上の考察はエネルギー準位間の遷移の制御に対応している。つまり、変数は時間（或いは時間に依存するレーザー変数）のみであり、一次元の非断熱遷移の理論がそのまま適用出来る。分子の分解等の動的な過程の場合には、分子の空間座標とレーザー場の時間との少なくとも二変数の問題として取り扱う必要がある。具体的な計算はレーザー場の中での波束の運動を追跡する事によってなされるが、現象の基本的な理解には上述の一次元理論がやはり大変役に立つ。

## V. まとめ

分子過程における非断熱遷移の重要性から、レーザーによって人工的に作った非断熱遷移を制御する事は化学反応の制御に向けた一つの有望なアイディアであると考えている。

今後、(1)多準位の制御、(2)様々な分子の動的過程の制御、(3)有効なパルス波形の探索等の研究を進めて行きたい。また、解析理論的には、(1)新しい変分法の開発、(2)R-行列法を用いた多準位問題及び動力学問題の定式化を行いたい。

## 文 献

- [1] 例えは、 R.J.Gordon and S.A.Rice, Annu.Rev.Phys.Chem. 48, 601 (1997).
- [2] Y.Teranishi and H.Nakamura, Phys.Rev.Lett. 81, 2032 (1998).
- [3] Y.Teranishi and H.Nakamura, J.Chem.Phys. 111, 1415 (1999).
- [4] Y.Teranishi, K.Nagaya, and H.Nakamura, "Quantum Control of Molecular Reaction Dynamics" edited by R.J.Gordon and Y.Fujimura (World Scientific, Singapore, in press).
- [5] H.Nakamura and C.Zhu, Comments Atom. Molec.Phys. 32, 249 (1996).
- [6] H.Nakamura, "Dynamics of Molecules and Chemical Reactions" edited R.E.Wyatt and J.Z.H.Zhang (Marcel Dekker, New York, 1996), p.473.
- [7] C.Zhu, Y.Teranishi, and H.Nakamura, Adv.Chem.Phys. (in press).
- [8] S.I.Chi, "Advances in Multiphoton Processes and Spectroscopy, Vol.2" (World Scientific, Singapore, 1986), p.739.
- [9] L.Pichl, H.Nakamura, and J.Horacek, J.Chem.Phys. 113, (in press).

## 位相制御された2色レーザーによる光イオン化

京都大学エネルギー理工学研究所 中嶋 隆

レーザー光の相対位相制御(Phase Control)により、種々の原子や分子の光吸収反応を制御できることは、理論的にも実験的にも既にかなり明らかにされた。制御される2色のレーザー光には、通常、周波数 $\omega$ の光とその2倍波または3倍波の光が用いられる。Phase Controlに関するこれまでの多くの研究は、レーザー光の相対位相を変化させることにより、どのように量子系の光吸収過程が影響を受けるか、という類のものがほとんどで、量子系の位相因子を測定する為に光の(相対)位相を「積極的に」利用するという研究はこれまでのところ報告はない。

ここでは、位相制御された2色レーザー光を用いて、原子の連続状態波動関数(s,p,d波)間の

位相差を直接的に測定する方法を考えた (Nakajima, Phys.Rev. A 61, 41403 (2000))。ここで強調したいのは、連続状態波動関数の位相因子を正確に求めることは、アルカリ金属原子のような1価電子原子にあっても実験的にも理論的にも容易ではない、ということである。実験的な手法としては、光電子の角度分布から各波間の位相差を間接的に求めることができるが、この場合、得られた位相差は、動径方向の遷移行列要素の値に強く依存するため、結局動径方向の遷移行列要素がかなり正確にわかっていないければ位相差も正確には決められない、ということになる。また、理論的には、連続状態波動関数の位相因子は、価電子とイオン核内電子との多体相互作用が正しく記述できなければ正確には求まらず、ハートリーフォックのような平均場近似を越えた非常に厳密な取り扱いを必要とするため、やはり容易には求められない。

我々の考えた系では、基底状態 (s状態) にあるアルカリ原子が、位相制御された2色レーザー光(周波数 $\omega$ ,  $2\omega$ )によって連続状態に励起される。この時、アクセス可能なチャンネルは1光子遷移ではp波, 2光子遷移ではs,d波であり、各波のphase shiftはそれぞれ異なる。当然の事ながら、1光子遷移と2光子遷移では終状態のパリティが異なるため（数学的には波動関数の角度成分（球面調和関数）の直交性によって）、たとえレーザーの位相位相 $\phi$ を変化させても角度積分した光電子信号は2色光励起下であっても何ら干渉効果を示さないが、角度分解した光電子信号には $\phi$ を変化させるにつれ干渉効果が見られる。この干渉効果には、s,p,d各波のphase shiftsと2色レーザー光間の位相差 $\delta$ が関与しているが、これだけでは特定の2チャンネル間（例えばs波とp波）の位相差は決定できない。それは、第3のチャンネル（例えばd波）からの寄与を分離できないからである。しかし、直線偏光した2色レーザーによる光電子信号をある特定の角度(magic angle)で観測すればd波の寄与がゼロになり、この観測角での光電子信号Iを2色レーザーの相対位相 $\phi$ の関数としてプロットしてやれば、 $I(\phi) \propto \sin(\delta + \phi)$ の関係からs波とp波の位相差 $\delta$ が明確に決定できる。同様に、円偏光レーザーを用いれば今度はp波とd波の位相差が決定できる。

## 化学反応の量子制御

東北大学大学院理学研究科 藤村 勇一

フェムト秒パルス光の整形・高出力化等にみられるレーザーの技術の進歩はめざましい。分子科学の領域では、分子設計や化学反応制御にレーザーが応用されはじめている。特に、レーザーと分子とのコヒーレント相互作用を直接細工して反応を制御（量子制御、あるいは、コヒーレント制御とよばれる）し、望みの生成物を得る方法の確立に興味がもたれている。ここでは、はじめに、2つの量子制御法（量子状態遷移間の干渉を利用するものと、レーザーパルスの最適制御法によるもの）についてそれらの特色をまとめた。次に、我々が開発した後者に属する制御法（量子力学制

御法) 1~3) のアウトラインを述べた。その制御法の応用として、有機化学、生化学等で重要な反応であるエナンチオマー（鏡像異性体）のレーザー誘起選択分離制御をとりあげた。4) この制御によって、ラセミ体（L体、D体50% : 50%）からL(D)体の片方をほぼ100%の確率で得されることを示した。モデル分子として、H<sub>2</sub>POSHをもちいた。単純化した1次元モデルでは、S H基のねじれ振動2重井戸ポテンシャルの2つの最小エネルギー位置がL体、D体に対応する。ポテンシャル曲線及び双極子モーメントはab initio MO法によって評価した。これらの分子情報を、我々の量子制御理論式に代入して、この反応の最適制御パルス（ポンプーダンプ光）形と選択反応の時間発展を得た。我々の制御シナリオは、極低温条件下では、偏光したパルスレーザー（ポンプ光）によって振動励起状態に核波束をつくり、その波束が運動してL(D)体構造をとる時刻に第二の偏光したパルス（ダンプ光）を照射することによってエナンチオマーが分離生成されていることがわかった。有限温度条件下でのL(D)体選択分離制御のシナリオを密度行列法によって評価することができた。さらに、回転効果をとりいれた、エナンチオマーのレーザー誘起選択反応についても述べた。

#### 参考文献

- 1) M. Sugawara and Y. Fujimura, J. Chem. Phys. 100, 5646(1994).
- 2) Y. Watanabe, H. Umeda, Y. Ohtsuki, H. Kono and Y. Fujimura, Chem. Phys. 217, 317(1997).
- 3) Y. Ohtsuki, H. Kono and Y. Fujimura, J. Chem. Phys. 109, 9318(1998).
- 4) Y. Fujimura, L. Gonzalez, K. Hoki, J. Manz and Y. Ohtsuki, Chem. Phys. Letts. 306, 1(1999).

#### 強光子場中の分子の準安定状態

東京大学大学院総合文化研究科 染田清彦

分子を極限的に強い静電場の中に置けば、電界イオン化あるいはトンネルイオン化により分子はたちどころにイオン化し、クーロン爆発により破壊されてしまう。しかし、強レーザー場で分子に作用するのは周期性を持った交代電場であり、電子は往復運動を強いられる。したがって、交代電場の最大振幅と振動数の組合せによっては静電場の場合とは異なる機構のイオン化が支配的となるであろう。本研究では、交代電場に特徴的な現象に注目する。

周期的な外力にさらされた系の量子力学的な「定常」状態を記述するためにFloquet描像を用いる。Floquet描像では波動関数をフーリエ成分に分解し、周期解（擬定常状態）を構成する。各

フーリエ成分 (Floquet成分) は連立シュレディンガー方程式の解として与えられる。

分子の振電状態を波動関数の表示の基底にとったFloquet描像では、分子のイオン化は、連続状態に埋まった準束縛状態（共鳴状態）の崩壊で表される。本研究では酸素分子が最も浅い分子軌道から電子を失うイオン化についてモデルを考えた。中性酸素分子の振動準位（複数）が、イオン化連続状態に埋め込まれており、連続状態との相互作用により崩壊する。相互作用の強さは、遷移双極子モーメントに比例し、レーザー強度の平方根に比例する。光子場の振動数は、1光子吸収でもイオン化が起こるような値に設定した。

レーザー強度が増加すると、中性分子の振動準位を表す共鳴状態の寿命が短くなり、そのエネルギー幅（共鳴幅）が広くなっていく。共鳴幅が準位間隔と同程度になると「重なり共鳴」と呼ばれる現象が起こる。重なり共鳴が起こると、共鳴状態の混合が起こり、共鳴状態が性格の異なる二つの族に分岐を起こす。その結果、いくつかの共鳴状態（短寿命枝）は共鳴幅がレーザー強度とともに増加を続けるが、他の共鳴状態（長寿命枝）は共鳴幅が狭くなっていく。すなわち、レーザー強度の増加とともに寿命が長くなるという逆説的な挙動を示す。

実際、酸素分子のイオン化の場合についてモデル計算を行うと重なり共鳴現象が見出された。平均イオン化速度をレーザー強度の関数としてみると、レーザー強度が弱いとき平均速度は強度に比例するが、重なり共鳴の領域に入ると逆比例することが見出された。また、放出電子の運動エネルギーのスペクトル（すなわち強光子場での光電子スペクトル）は、重なり共鳴領域で、通常の光電子スペクトルの振動構造とは異なるパターンを示す。これは分子と光子場が結合することにより、共鳴状態、すなわち中性分子の振動状態、の再編成が起こっていることを反映していると解釈できる。

### 強光子場中の分子の振るまい

東京大学大学院理学系研究科 山内 薫

これまでの光化学反応や分子分光学においては、光と分子の相互作用は、あくまで摂動領域の範囲内にあった。われわれは、光によって分子の固有状態から固有状態への遷移を観測し、そのエネルギー準位や解離反応の追跡などを行ってきた。しかしながら、一方で、分子と光の相互作用を光の場を強くすることによって大きくすることができれば、分子は光と強く結合した状態を構成することになり、そこで起こる現象から、分子のより本質的な理解が深まるものと期待される。

私の研究室では、光子場強度を  $1 \text{ PW}/\text{cm}^2$  から  $10 \text{ PW}/\text{cm}^2$  ( $1\text{P}=10^{15}$ ) 程度までに増加させることによって、分子の強光子場での振る舞いについて研究を行っている。水素原子において電子が感じるクーロン場の大きさはおよそ  $10\text{PW}/\text{cm}^2$  程度であるから、これほど強い光子場に分子を置いた場合、分子内の電子は外から加えられた交番電場によって強くゆすられることになる。したがって、

そのような状態では、分子内のポテンシャルという描像は成り立たなくなる。このように光と分子が強く結合した状態のことを「光のドレスをまとった状態」という意味でドレスト状態と呼んでいる。

われわれは、2原子分子や3原子分子を中心に、強光子場中での分子の振る舞いを、質量選別運動量画像法によって観測し、ドレスト状態の生成に伴って分子の構造が強光子場中で大きく変化することを見出した。この構造変形は、100fs以内という極めて短い時間領域で起こっており、このような現象は強光子場中の分子に共通に観測される現象であると考えられる。

光子場強度をさらに増加させた場合には、その電場強度は分子内クーロン場の大きさを超えるため、電場によって歪んだクーロン場から電子が放出されはじめ、価数の高いイオンが生成される。その結果分子は、光と分子の相互作用が終了するや否や、化学結合の解裂が起こる。この現象がクーロン爆発と呼ばれる現象であり、その現象についても、光子場強度を変化することなどによって解明を試みている。

一方、電場強度が1TW/cm<sup>2</sup>から1PW/cm<sup>2</sup>程度までの比較的弱い光子場中では、分子の光の偏光軸方向への配向や分子ビームの偏向などの現象が観測されており、配向現象からは分子の分極率などの基本的な情報が得られるものと注目している。

さらに、強光子場を利用して、高次高調波を発生させることができ、真空紫外や極端紫外の強いパルス光源を製作しており、10nm程度までの高輝度超短パルスレーザー光源により、極端紫外領域にある分子の超励起状態の研究についても進めているところである。

このように、分子の強光子場における振る舞いについての研究は、その端緒がようやく開かれたところであり、分子過程の光子場中の制御の問題も含め、これからの分子科学のフィールドとして広がっていくものと考えている。

#### 参考文献

- [1] A. Hishikawa, A. Iwamae, and K. Yamanouchi, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1127 - 1130 (1999).
- [2] A. Hishikawa, A. Iwamae, and K. Yamanouchi, *J. Chem. Phys.*, **111**, 8871 - 8878 (1999).
- [3] A. Iwamae, A. Hishikawa, and K. Yamanouchi, *J. Phys. B: At. Mol. Opt.*, **33**, 223 - 240 (2000).
- [4] S. Liu, A. Hishikawa, A. Iwamae, and K. Yamanouchi, *Advances in Multiphoton Processes and Spectroscopy* Vol.13, World Scientific (2000), *in press*.
- [5] 菊川明栄, 山内 薫, 季刊化学総説, **44**, 232 - 243 学会出版センター (2000).
- [6] K. Yamanouchi, A. Hishikawa, A. Iwamae, and S. Liu, *Physics of Electronic and Atomic Collisions, AIP Conference Proceedings 500*, edited by Itikawa et

al., pp.182-191 (2000).

[7] 菅川明栄, 山内 薫, 分光研究, 49, 62-71 (2000).

## 複素古典力学構造と時間依存トンネル効果

立命館大学理工学部物理科学科 池田研介

この研究は高橋公也, 首藤啓, 大西考明, 吉本章雄の諸氏(通称混沌的道効果研究会)との共同研究の成果の一部である。

多次元系のトンネル効果の研究は, Langerの無限次元確率過程における臨界液滴理論や, その場の理論への応用であるinstanton理論(Dashen, Colemanら)にその典型例を見るように, 無限あるいは非常に多次元の空間の中から低次元(実際には1次元)のトンネル経路を切り出す方法の展開という方向へと発展させてきた。MillerやMuncusあるいはそれを継ぐ理論化学者による反応の量子論の研究に於いても同様の方向への発展がなされた。雑多な自由度の中から本質的に効く経路のみを切り出すこの考え方は確かに物理学の王道である。

しかし, このような自由度縮約主義は多次元問題を全て一次元問題に還元し, 真の多次元効果を見えなくしてしまう恐れがある。我々は上述した従来の理論的発想を逆転させ少数次元の空間でのトンネル現象に顕在化する多次元効果とはなにか?という観点から, できるだけ単純な少数自由度多次元モデルを用いて トンネル効果に於ける多次元効果のモデリングを確立したい。

本講演では, 多次元トンネルモデルの最も簡単なversionであるharmonically bounded scattering systemを考察する。この系は入射channel数が大きい極限で周期的外場が作用する下でのトンネル効果と同一視できて, 本研究会のテーマとも共通部分が見出せるであろう。

我々は従来半古典トンネル描像の中心概念であったinstanton描像が, 本質的に多次元性が効く領域でどのような本質的変更を蒙るかを, 複素領域に拡張されたNewton力学に基づく半古典論にもとづいて考察した。(Takahashi and Ikeda, Ann. Phys.(in press)) その結果以下の事実が判明した。

(1) 周期摂動強度が小さく多自由度効果が小さいかぎりinstantonからの摂動展開が成功する。摂動級数の収束半径はinstanton解の分岐特異点に関係して定まる。

この領域は perturbed-instanton regime と呼べる。散乱固有状態やその漸近挙動(S-行列)には質的变化は見られない。(Takahashi and Ikeda I; preprint)

(2) 摂動強度が臨界値をこすと, 古典軌道の分岐型特異点の運動が顕在化する。そこでは特異点が発散的挙動するような古典軌道成分がトンネルに重要な寄与をなすに到る。その結果, 反射型instantonと透過型instanton軌道が融合して複素ヘテロクリニック構造が形成され, 複素安定不

安定多様体対(complex stable - unstable manifolds:CSUM)を経由する軌道がトンネル効果を支配する。(Takahashi and Ikeda 2; preprint)

(3) 更に摂動強度が大きい領域では、トンネル軌道そのものがchaos的になる。我々の系は実面での topological entropyが0であるという意味で全く chaosを持たない。しかし複素空間には擬 horse - shoe構造をもつJulia集合が存在し、その近傍をすりぬける軌道が高度の階層構造をもつトンネル軌道としてトンネル確率を支配する。(Onishi, Shudo, Ikeda, Takahashi; preprint)

これら複素面の力学的構造の存在は観測量にどう反映されるだろうか？例えば、CSUMの卓越が散乱光のヘテロ検波情報やS-行列の構造に明確に反映されることが次第に判明しつつある。

注：摂動展開の破綻は通常のカオスのように自然境界の存在によっておこるのではなく破綻の彼岸では摂動級数が条件収束する領域が存在する。その意味でこの破綻は複素古典力学における Stokes現象とも考えられる。更に条件収束域の彼方に自然境界が存在しそれが(3)の領域に対応する。しかし級数の再和という見地からの研究はこれから課題である。

### 分子配向・多光子過程・光位相による光分解過程の制御

京都大学大学院工学研究科・分子工学専攻 川崎昌博

#### [はじめに]

分子と光子のコヒーレントな相互作用によって反応を直接制御する「量子制御」は、従来の化学反応制御と異なった原理に基づくものである。その理論に関して多くの報告があるが、それを実証した実験結果はまだ少ない。我々は、画像分光法とnsレーザーを用いて光解離反応分岐比・空間角度分布の実験的量子制御を試みた。

#### [実験]

用いた画像分光法は、光吸収より生じた解離生成物をイオン化し加速電極で反跳させる。イオンが蛍光スクリーンに衝突して発した蛍光画像をCCDカメラで撮影する。

#### [結果] 分子配向

中性分子のアラインメントは、分子の分極率 $\alpha$ が非等方的であるなら、非共鳴光によって発生する電場を分子が感じることにより起こる。1.06 μmのYAGレーザー光によって気相 CH<sub>3</sub>I 分子の空間的方向をそろえることに成功し、そのアラインメントの様子を画像分光法を用いて観測した。この配向した分子に対する光分解光の偏光方向 $\chi$ を変えることにより、特定の解離状態のみ生成することが可能となる。

### 多光子過程

化学反応の分岐比を制御する方法のひとつとして、分子振動を赤外レーザー励起することで特定のポテンシャル曲面を選択できればよい。これまでに基底状態分子、HNCO, CH<sub>3</sub>Cl, HOD, の振動励起による解離分岐比制御の報告例はある。我々は電子励起分子の振動励起の後、解離することによる光解離の分岐比制御を試みた。

### 光位相

分子に2つのレーザー光 $\omega_3, 3\omega_1$ を同時に照射すると、通常の一光子( $\omega_3$ )吸収、三光子( $3\omega_1$ )吸収だけでなく、これら2つの光の位相差に対応する干渉項が生じる。つまり、一光子( $\omega_3$ )吸収、三光子( $3\omega_1$ )吸収の遷移確率をそれぞれP<sub>1</sub>, P<sub>3</sub>とする時、分子の光遷移確率Pは、P<sub>1</sub>, P<sub>3</sub>だけではなく干渉項P<sub>13</sub>を加えた次式のように表される。

$P(\Delta\phi, \delta_{13}) = P_3 + P_1 + 2 | P_{13} | \cos(\Delta\phi + \delta_{13})$  ここで $\Delta\phi$ は $\omega_3$ と $3\omega_1$ の相対的な位相差であり、上式より $\Delta\phi$ を変えることにより遷移確率を変えることが出来る。実際、アンモニア・アミン類・ヒドラジンなどの一般的な無機・有機分子において光吸収確率を制御した。もし、遷移位相 $\delta_{13}$ の異なる複数の分解過程が存在すれば、レーザー光 $\omega_3, 3\omega_1$ の相対的な位相差 $\Delta\phi$ を変えることにより、反応分岐比の量子制御が可能となる。

A. Sugita, M. Mashino, M. Kawasaki, Y. Matsumi, R. Bersohn, G. Trott - Kriegeskorte, K-H Gericke, "Effect of molecular bend on the photodissociation of OCS" J. Chem. Phys. 112, 7095 (2000)

A. Sugita, M. Kawasaki, Y. Matsumi, R. J. Gordon and R. Bersohn, "Control of photofragment velocity anisotropy by optical alignment", J. Chem. Phys. 112, 2164 (2000)  
X-B. Wang, R. Bersohn, K. Takahashi, M. Kawasaki and H. L. Kim, "Phase control of absorption in large polyatomic molecules" J. Chem. Phys. 105, 2992 (1996).

川崎昌博, 杉田明宏, 「化学反応のレーザー光による量子制御」レーザー研究, 27, 399 - 403 (1999)

中島 隆, 川崎昌博, 「光励起過程の位相制御」, 分光研究, 48, 5 (1999)

## 高強度レーザー電場による中性分子の配向と配列

東京大学大学院理学系研究科 酒井広文

### [1] 高強度レーザー電場による中性分子の配向

直線偏光したレーザー光と非共鳴誘起双極子との相互作用により、分子をレーザー光の偏光方向に配向させるトルクが働く。結果として、分子がレーザー光の偏光方向を中心とするある一定の角度範囲内で振動するいわゆるpendular statesが生成されると期待できる。筆者らは、高強度ナノ秒レーザーパルスを用いて中性分子を配向することに成功し、その最も確実な証拠を得ると共に配向度を定量的に評価した。<sup>1, 2</sup>

ここではサンプルとしてヨウ素分子を用い、配向用レーザー光としてNd:YAGレーザーの基本波（波長：1.064 μm, 最大強度： $1.4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ）を用いた。YAGレーザーパルス中で分子が配向している様子を観測するために、YAGレーザーパルスの瞬時強度が最大の時、フェムト秒励起レーザーパルス（波長：688nm, 強度： $3.0 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ）で分子を解離した。分子を解離することにより配向した分子の方向を固定することが出来る。解離が終了するのに十分な遅延時間（～250ps）の後、別のフェムト秒レーザーパルス（波長：800nm, 強度： $7.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ）でフラグメントをイオン化した。フラグメントイオンを2次元検出器で観測することにより分子の配向状態を決定することが出来た。

YAGレーザー光を用いない時にランダムな方向を向いていた分子が、YAGレーザー光を用いることによりレーザー光の偏光方向に配向している様子を観測することが出来た。一定のレーザー強度に対しては、初期回転温度が低い分子ほどより良く配向されることが確認された。逆に、一定の初期回転状態分布を持つ分子に対しては、レーザー強度を上げることによって分子をより良く配向させることが出来た。得られた配向度の最大値は《cos<sup>2</sup> θ》 = 0.81であった（θはYAGレーザー光の偏光方向と分子軸のなす角度である）。I<sub>2</sub> の他に ICl, CS<sub>2</sub>, CH<sub>3</sub>I, および C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>I についても実験を行い、いずれも配向できることを確認した。

### [2] 配向した分子を用いたenhanced ionizationの観測

上記の技術の応用し、配向した分子中の高効率多価分子イオンの生成に関して新しい知見を得た。フェムト秒高強度レーザーパルスによる分子の多光子イオン化過程は、レーザー光の偏光方向と分子軸の方向との関係により事情が大きく異なる。レーザー光の偏光方向が分子軸と垂直の時は、イオン化の過程は核間距離にかかわらず原子様である。ところが、偏光方向が分子軸と平行の時は、イオン化の速度は核間距離に強く依存し、いわゆるcritical distanceでは、平衡核間距離の時よりも何桁も増大すると理論的に予想されている。この現象はenhanced ionizationと呼ばれている。

筆者らは、中性分子の配向技術を用いて、イオン化用レーザー光の偏光方向と分子軸の方向が平行の時とランダムな時のイオン収率の違い等を定量的に評価した。詳細な解析の結果、以下の知見を得た。1) 配向した分子の分子軸がイオン化用レーザーの偏光方向と平行の時、レーザーの強度が同一でもより多価のイオンをより高効率に生成できる。2) このことは、enhanced ionizationから予想される結果と両立し、今回の実験結果は、同メカニズムの新しい視点からの実証であると考えられる。3) 今回の実験では、イオン化用レーザーパルスのリーディングエッジが核間距離の増大に寄与していると考えられる。従って、第1パルスで分子を解離し、critical distance付近でイオン化用レーザーパルスを照射すれば、より一層多価のイオンをより一層高効率に生成出来ると予想される。4) イオン化用レーザー光の偏光方向と分子軸のなす角を調整することにより、分子イオンの価数、即ちプラズマ状態の制御が可能である。

### [3] 中性分子の配列制御に関する数値シミュレーション

[1] で述べた、中性分子の配向実験では、異核種2原子分子のA-Bの場合、配列A-BとB-Aは区別されていない。分子の配列を制御し、全ての分子をA-BまたはB-Aに揃えることが出来れば、化学反応ダイナミクスにおける配置効果の研究や、光解離生成物の選択的制御等に有効であることは自明である。

筆者らは、2波長レーザー光の重ね合わせにより生成される非対称電場（即ち、非対称ポテンシャル）を用いた中性分子の配列制御の可能性について検討した。分子の回転周期に比べて配列がゆっくり進む状況（adiabatic regime）で、シュレーディンガ方程式を数値的に解いて、orientation parameter  $\langle \cos \theta \rangle$  と alignment parameter  $\langle \cos^2 \theta \rangle$  のレーザー強度依存性やレーザーパルス内の時間発展等を評価した。ここで、 $\theta$  はレーザー電場の偏光方向と分子軸のなす角である。モデル分子とFCN分子について計算を行い、上記のアプローチにより配列制御できる可能性があることが分かった。<sup>3</sup>

1. Hirofumi Sakai, C. P. Safvan, Jakob Juul Larsen, Karen Marie Hilligesøe, Kasper Hald, and Henrik Stapelfeldt, "Controlling the alignment of neutral molecules by a strong laser field," *J. Chem. Phys.* **110**, 10235 - 10238 (1999).
2. Jakob Juul Larsen, Hirofumi Sakai, C. P. Safvan, Ida Wendt-Larsen, and Henrik Stapelfeldt, "Aligning molecules with intense nonresonant laser fields," *J. Chem. Phys.* **111**, 7774 - 7781 (1999).
3. Tsuneto Kanai, Hirofumi Sakai, Jakob Juul Larsen, and Henrik Stapelfeldt, "Numerical simulations of molecular orientation using strong, nonresonant, two-color laser fields," in preparation.

## C<sub>60</sub>, ペンタクロロベンゼンの高強度レーザー科学

大阪市立大院理 中島信昭

### 1. はじめに

表記の分子に最大  $1.0 \times 10^{16} \text{ W}(10 \text{ PW})\text{cm}^{-2}$ , 120fs, 800nmの高強度レーザーパルスを照射した。(阪大レーザー研との共同研究) 異方的クーロン爆発を観測し, シミュレーションと比較した。その結果, 分子内での電子ホッピングがこのサイズでは重要であることが示した。ペンタクロロベンゼンでは,  $0.1 \text{ PW}\text{cm}^{-2}$  以下の照射強度で, 非共鳴多光子イオン化が観測された。

### 2. 実験と結果

#### 2.1 励起レーザー

阪部らが阪大レーザー研で開発した, T<sup>6</sup> レーザーを用いた。再大出力500mJ/pulse, 120fs, 10Hzである。<sup>1)</sup>

#### 2.2 クーロン爆発, C<sub>60</sub>の場合

2-3 原子分子, D<sub>2</sub>Oなどのクラスターのクーロン爆発は, 近年, 詳しく研究されている。上記の中間にあたるC<sub>60</sub>, ベンゼンでも同様の報告はあるが, それらは数 PW cm<sup>-2</sup> 以下の実験であった。今回, C<sub>60</sub>を10PW cm<sup>-2</sup>, 120fs, 800nmで励起し, 生成した炭素多価イオンの相対的強度のレーザーの偏光方向依存性, イオンの運動エネルギー分布を測定した。C<sup>4+</sup>イオンはレーザーの偏光方向とイオンの飛行方向が平行になった時, 最大強度となり, クーロン爆発が異方的であることが示された。シミュレーションとの比較から, この爆発は最初は電子放出が起き, 次に, 炭素原子間での電子ホッピングが起き, ついには異方的クーロン爆発に至る, と考えられる。電子衝突励起イオン化の寄与は小さいと推定した。<sup>5)</sup> 2-3 原子分子のクーロン爆発は異方的であり, D<sub>2</sub>Oなどのクラスターではクラスター内での電子衝突励起により, 等方向的な爆発となることが知られている。C<sub>60</sub>ではこれらの中間的様相を示した。<sup>2)</sup>

#### 2.3 効率の高いイオン化, ダイオキシン類検出に応用できるか?

ダイオキシンのレーザーによるリアルタイム計測の実現は目前とされている。その場合, 塩素が1~4個置換された分子を共鳴多光子イオン化(REMPI), レーザー誘起蛍光(LIF)法で計測している。しかし, 毒性の高いダイオキシン類は塩素4~6置換物であるため, 塩素が多置換された分子の微量検出の方法を探ることは重要である。ここでは5ヶの塩素原子を含むペンタクロロベンゼンを調べることにした。この分子は焼却炉のダイオキシンTQE推定の尺度に利用できるが, REMPI, LIF法による検出の報告例はない。レーザー照射強度が $\leq 1 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  のとき, この分子の親イオンを主生成物として観測することができた。非共鳴の多光子イオン化が起きたと推定した。それ以上の強度では分子の分解が起こり始めた。<sup>3)</sup>

## 2.4 X線への変換とその利用 チタンのK $\alpha$ 線を観測している。<sup>4)</sup>

### 3. 謝 辞

阪部グループ（阪大レーザー研，阪大院工），江（現，原研），清水（大阪市大），沖原（阪大レーザー研）らの成果を基に報告した。記して謝意を表す。

### 4. 参考文献

1. Skabe, et al., *Rev. Laser Eng.* **25** (1997) 890; レーザー研究, 25(1997)855.
2. Kou, et al., *J. Chem. Phys.* **112** (2000)5012.
3. 中島, (財) レーザー総研, 環境保全委員会, 第6章, 2000.3.
4. 沖原, 修論, 2000.3 阪大レーザー研.

## 超高強度フェムト秒レーザーによるベンゼン分子のクーロン爆発過程

大阪市立大・理 清水政二

超高強度レーザー場中における分子の振る舞いは、分子配向、ドレスト状態の生成、多重電離に伴うクーロン爆発など、今までにない新しい現象として認識されている。その中でも2, 3原子分子に対するクーロン爆発過程では、分子の超高速配向、レーザーの偏光方向に配置した分子のイオン化が促進される enhanced ionization, ある核間距離においてイオン化が促進される臨界距離の存在、などが議論されている。我々は、より大きな分子に対してこのような現象を明らかにするために、ベンゼン分子に対して超高強度レーザーを照射し多重電離に伴うクーロン爆発を観測した。

ベンゼン分子に $8.0 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ , 120fs, 800nm, のレーザーを照射したところ、H $^+$ , C $^{+-4+}$ , イオンが観測された。レーザーの偏光方向に対する各イオンの運動エネルギーを測定すると、H $^+$ , C $^{2+-4+}$ イオンではレーザーの偏光方向に対して平行方向に、高エネルギーイオンが検出された。これによりベンゼン分子のクーロン爆発は、レーザーの電場方向に対して強い異方性を持つことが分かった。

ベンゼン分子のクーロン爆発過程の反応経路について、分子動力学シミュレーションにより検討した。空間的にランダムに存在するベンゼン分子の中でレーザー電場方向に対する初期配置によって、生成する炭素イオンの運動エネルギーが異なることが観測された。また、レーザー強度の違いにより、生成する炭素多価イオンの値数が決定され、クーロン爆発における反応経路が異なることが分かった。以上の結果より、ベンゼン分子のクーロン爆発に対するレーザー照射実験では、異なるレーザー強度による反応が同時に観測されており、それぞれの炭素多価イオンのスペクトルは、

その反応経路によって支配されていることを強く示唆している。

## 化学における非共鳴レーザー誘起電子移動の役割

東北大学大学院理学研究科化学専攻 河野 裕彦

**【序】**我々のグループではクーロンポテンシャル系の波束計算法を開発し、強レーザー場中の分子の電子・核ダイナミクスの研究を行ってきた<sup>1)</sup>。レーザー場中での断熱的な電子移動と非断熱性の観点から、特定の核間距離でトンネル型イオン化が促進される機構などが明らかになりつつある。ここでは、多電子系ダイナミクスのプロトタイプである水素分子の電子運動のシミュレーションを行い、レーザーによるイオン結合性状態（電子対）の生成機構とそのイオン化ダイナミクスにおける役割を明らかにする。

**【理論】**我々は困難とされている2電子系の時間依存Schrödinger方程式を厳密に解くことに成功した。核間距離Rを固定したH<sub>2</sub>を考え、レーザーの偏光方向を分子軸（z軸とする）と平行とする。全ハミルトニアンHは、次の3つの部分からなる。電子1と核との相互作用及びレーザー場との相互作用の部分（H<sub>1</sub>）、電子2の部分（H<sub>2</sub>）、電子の全角運動量と電子-電子間反発の2電子部分（H<sub>12</sub>）である。時間発展の演算子（e<sup>-iΔtH</sup>）は次のようにして作用させる。

$$\exp(-i\Delta t H) \approx (1+i\Delta t H_{12})^{-1} U(H_1) U(H_2) (1-i\Delta t H_{12})$$

ここで、U(H<sub>j</sub>)はH<sub>2</sub><sup>+</sup>の電子jの時間発展演算子と同じあり、これらの時間発展演算子の作用には、数値的に発散するクーロンポテンシャルを扱えるDual Transformation法<sup>2)</sup>を用いる。

**【結果】** R=4a.u.とし、主に1sの線形結合からなる共有結合性の状態を初期状態（図の円で囲まれた部分）とする。2電子が各々別の核に付いている。レーザーの条件は波長720nm（共鳴する特定の電子状態はない）、強度2.8×10<sup>14</sup>W/cm<sup>2</sup>とする。電子座標z<sub>1</sub>とz<sub>2</sub>についての時刻3/4周期における確率分布（他の自由度は積分）を図に示す。このときの電場は負である。レーザによって左の核から電子が移動すると、右の核はほぼH<sup>-</sup>とみなせるイオン結合性状態になる。結果をまとめると、H<sub>2</sub>のイオン化には二つの機構がある。1つは共有結合性状態からのイオン化であり、もう一つは低い井戸（z×電場強度<0の核）に生成したイオン結合性状態からのイオン化である。前者のイオン化は原子的であり、R依存性は小さい。後者のイオン化確率はその電子間反発のため前者より大きい。従って、レーザーによって核間距離が伸びていく際のイオン化確率のR依存性はイオン結合性状態の生成確率（Rとともに減少）とそこからのイオン化確率（Rとともに増大）に支配される。結局、R~6a.u.でイオン化確率は極大をとる。強レーザー場中では実効電荷の大きい電子対が容易に生成し、電子ダイナミクスを支配する。また、Rが大きいと

2電子同時イオン化が起こることもわかった。このような「電子運動の法則」の確立はレーザー誘起化学結合や多サイト間電子移動の制御という新たなフィールドにつながる。

- 1) I. Kawata, H. Kono, and Y. Fujimura, J. Chem. Phys. **110**, 11152 (1999).
- 2) I. Kawata and H. Kono, J. Chem. Phys. **111**, 9498 (1999).

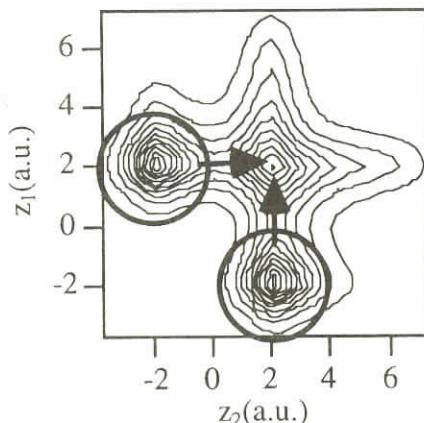


図 約3/4周期後の水素分子の2電子の確率分布。レーザーによって結合長が伸びているとする( $R=4$  a.u.)  
初期状態は共有結合性の基底状態。

#### 多電子分子におけるドレスト状態の観測

東京大学大学院理学系研究科 菱川明栄

近年、高強度光子場 ( $\sim 1 \text{ PW/cm}^2$ ) 中の分子ダイナミクスの理解に向けて研究が、簡単な電子準位構造を持つ  $\text{H}_2^+$ を中心精力的に行われ、その結果、強光子場における核ダイナミクスは、分子と光子場が強く結合して形成された。「ドレスト状態」のポテンシャルに基づいて説明できることが示された[1]。 $\text{H}_2^+$ においては、主に2つの電子状態 ( $1\text{s}\sigma_g$ ,  $2\text{p}\sigma_u$ ) がドレスト状態の生成に寄与しているが、一般に、複数の電子を持つ分子においては多数の電子状態が近接して存在し、それらが光子場との強い相互作用により結合していると予想される。本研究では比較的単純な電子構造を持つ  $\text{O}_2^+$  イオンに着目し、多電子系における状態間相互作用ネットワークがいかに形成され、強光子場中における分子ダイナミクスを決定づけているかを明らかにすることをめざした。

高輝度フェムト秒光パルス(800nm, 100fs, 10Hz)，またはその第2次高調波(400nm)を、高真空チャンバー ( $\sim 10^{-8}$  Torr) に集光することによって  $1 \text{ PW/cm}^2$  程度の光子場を発生させた。光

子場との相互作用によって  $O_2$  から生成した  $O^+$  イオンの運動量ベクトル分布を質量選別運動量画像(MRMI)法[2]により測定した。

波長400nmにおける  $O^+$  イオンのMRMI画像(図1)には、クーロン爆発過程  $O_2^{2+} \rightarrow O^+ + O^+$  ; (1, 1) の他に、解離過程  $O_2^+ \rightarrow O^+ + O$  に由来する 3 つのピーク (a – c) が観測され、これらはレーザー偏光方向 ( $\varepsilon$ ) に強い空間異方性を示すことが明らかになった。このことは、同じ対称性をもった電子状態間の結合が強光子場における解離過程を支配していることを意味している。観測されたピークは主として 4 重項状態  $a^4\Pi_u$  を始状態とした  $a^4\Pi_u - b^4\Pi_g - 2^4\Pi_u - 5^4\Pi_g$  状態間結合による越閾解離(ATD)[1]に由来するものと帰属できた。また、波長を800nmとした場合において観測されたピークに対しても同様の帰属ができることがわかり、ドレスト状態が主として同じ電子対称性をもつ少数の電子状態間の結合によって生成することが明らかとなった。

#### [参考文献]

- [1] A.Giusti-Suzor, F.H. Mies, L.F. DiMauro, E. Charron, and B.Yang, *J.Phys. B* **28** (1995) 309.
- [2] A.Hishikawa, A.Iwamae, K.Hoshina, M.Kono, and K.Yamanouchi, *Chem. Phys.* **231** (1998) 315.

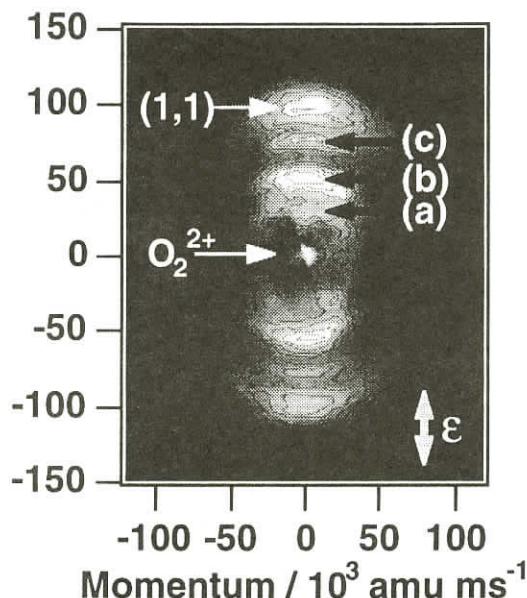


図1：光子場強度 ( $\sim 1 \text{ PW/cm}^2$ ) における  $O_2^+$  から生成した  $O^+$  のMRMI 図

## 物性研究所談話会

日 時 2000年5月10日（水）11時～12時

場 所 物性研究所 研究本館 6階講義室

講 師 江 澤 潤 一

所 属 東北大学大学院理学研究科（物理）

題 目 量子ホール効果における巨視的コヒーレント現象

要 旨

理想的な2次元状態を実現する半導体界面上で引き起こされる量子ホール効果の特異な現象には我々の想像を越えるものがある。電子の電荷が基本電荷である、という物理法則を壊すことなく、分数量子ホール状態では準粒子は分数電荷をもつ。

2次元電子系の世界は極めて特異であり、巨視的に見れば、電子もボソン的に振る舞うことがある。ボソン的に振る舞う電子は凝縮できる。この系にはスピンと電荷がコヒーレントに結合した全く新しいタイプの集団励起であるスカーミオンが存在する。

更に興味深い対象は、2次元電子系を2枚平行に近接配位した2層量子ホール系である。両層間での電子数差と位相差に関して、巨視的コヒーレンスが発生し得る、という予測が成り立つ。このコヒーレンスに伴うスカーミオン励起も存在すると考えられる。東北大学・NTT物性基礎研の共同研究による実験はその証拠を与える。

位相差に関する巨視的コヒーレンスといえば、超伝導ジョセフソン接合がすぐ思い浮かぶ。それとの類似性が何処まで成り立つか、も重要な課題である。例えば、マイスナー効果は存在しないが、ジョセフソン類似トンネル現象は存在する。

量子ホール効果における巨視的コヒーレント現象に関する理論とこれをサポートする我々東北大NTTグループの実験を概説する。本講演は、2000年アメリカ物理学学会凝縮系部門(March20-24, Minneapolis)での招待講演の内容を敷衍したものである。

日 時 2000年5月23日(火) 午前10時30分～12時

場 所 物性研究所 A 615号館

講 師 Prof. Anders Nilsson

(Department of Physics, Uppsala University, Sweden)

題 目 An Atom Specific Look at Chemical Bonding using X-ray Spectroscopy

要 旨

When a molecule is adsorbed on a metal surface by chemical bonding new electronic states are formed. The direct observation and identification of these states has been an experimental challenge. Their signature is often obscured by bulk substrate states. In the following contribution I will show how X-ray emission in spite of its inherent bulk sensitivity, can be used to investigate adsorbed molecules. Due to the localization of the core-excited intermediate state, XE spectroscopy allows an atom specific separation of the valence electronic states. Thus the molecular contributions to the surface chemical bond can be separated from those of the substrate. Furthermore, angle dependent measurements make it possible to determine the symmetry of the molecular states, i.e. the separation of pi and sigma type states. In all we can obtain an atomic view of the electronic states involved in the formation of the chemical bond to the surface. Hydrogen bonding in water holds the key to the peculiar behaviour of liquid water and determines the chemistry of biological and geological systems. Although several experimental techniques have been widely used the hydrogen bonding networks in water are still not well understood. Using X-ray absorption spectroscopy I will demonstrate how we can learn about the changes in chemical bonding of water due to hydrogen bonding and how it is related to the structure of the liquid phase.

日 時 2000年7月3日(月) 午後1時30分～2時30分  
場 所 物性研究所 A615号室  
講 師 Prof. Peter Prelovsek  
(所属) (University of Ljubljana, and J. Stefan Institute, Slovenia)  
題 目 Normal State Properties of Cuprates:  $t$ - $J$  Model vs. Experiment  
要 旨

We discuss some recent results for the properties of doped antiferromagnets, obtained by the finite-temperature Lanczos method for the planar  $t$ - $J$  model, with the emphasis on the comparison with experimental results cuprates. Among the thermodynamic properties the chemical potential, entropy and specific heat are considered, as well as their relation to the thermoelectric power. At the intermediate doping several quantities, e.g. the optical conductivity, the dynamical spin structure factor and spectral functions reveal a marginal Fermi-liquid behavior, even quantitatively close to the one found in experiments. It is shown that the universal form of the optical conductivity follows quite generally from the overdamped character of single-electron excitations.

## 人 事 異 動

研究部門等

所 属	職・氏名	発令日	備 考
極限環境物性研究部門 (石本研)	助手 秋元彦太	12. 5. 30	辞職(休職中)

所 属	職・氏名	発令日	備 考
物性理論研究部門 (今田研)	助手 浅川仁		平成12年5月31日死亡

## 東京大学物性研究所の教官公募の通知

下記により助教授又は教授の公募をいたします。適任者の推薦、希望者の応募をお願いいたします。

### 1. 研究部門名及び公募人員数

新物質科学研究部門 助教授又は教授 1名

### 2. 研究内容

当部門では、新物質の開発と精密な物性測定の緊密な連携により、新しい物性現象の発見・解説を目指している。本公募では、興味ある物性の発現を目指して、新規な分子性物質の探索・合成を行う研究者を求める。優れた物質合成の手腕を有し、所内外の研究者と協力して新規な物性を追求するとともに、分子性物質の持つ多様な可能性に根ざした新しい分野を切り開く意欲のある研究者を期待する。

### 3. 公募締切

平成12年9月29日(金) 必着

### 4. 就任時期

決定後なるべく早い時期を希望する。

### 5. 提出書類

#### (イ) 推薦の場合 :

- 推薦書（健康に関する所見を含む）
- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（5編以内）
- 研究業績の概要（2000字程度）
- 研究計画書（2000字程度）

#### (ロ) 応募の場合 :

- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（5編以内）
- 研究業績の概要（2000字程度）
- 研究計画書（2000字程度）
- 健康診断書

○所属の長などによる本人に関する意見書（宛先へ直送）

6. ①書類提出先

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5丁目1番5号

東京大学物性研究所 総務課人事掛

電話 0471(36)3205

e-mail: jinji-kakari@issp.u-tokyo.ac.jp

②問い合わせ先

東京大学物性研究所 新物質科学研究部門 部門主任 瀧川 仁

電話 0471(36)3225

e-mail: masashi@issp.u-tokyo.ac.jp

7. 注意事項

新物質科学研究部門助教授（教授）応募書類在中、又は意見書在中の旨を朱書し、郵送の場合  
は書留で郵送のこと。

8. 選考方法

東京大学物性研究所教授会で審査決定いたします。ただし、適任者のない場合は、決定を保留いたします。

平成12年6月1日

東京大学物性研究所長

福山秀敏

## 東京大学物性研究所の教官公募の通知

下記により助教授の公募をいたします。適任者の推薦、希望者の応募をお願いいたします。

### 1. 研究部門名及び公募人員数

先端領域研究部門 助教授 1名

### 2. 研究内容

物性研究所先端領域研究部門では表面・界面・人工物質・極微細系を対象とする物性研究を推進している。本公募では、これらに関連する分野における独創的な研究を遂行し、ナノスケール領域で展開される物性科学を探求する意欲的な若手研究者を求める。

### 3. 公募締切

平成12年9月29日(金) 必着

### 4. 就任時期

決定後なるべく早い時期を希望する。

### 5. 提出書類

#### (イ) 推薦の場合 :

- 推薦書（健康に関する所見を含む）
- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（5編以内）
- 研究業績の概要（2000字程度）
- 研究計画書（2000字程度）

#### (ロ) 応募の場合 :

- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（5編以内）
- 研究業績の概要（2000字程度）
- 研究計画書（2000字程度）
- 健康診断書
- 所属の長などによる本人に関する意見書（宛先へ直送）

6. ①書類提出先

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5丁目1番5号  
東京大学物性研究所 総務課人事掛  
電話 0471(36)3205  
e-mail:jinji-kakari@issp.u-tokyo.ac.jp

②問い合わせ先

東京大学物性研究所 先端領域研究部門 部門主任 家 泰弘  
電話 0471(36)3300  
e-mail:iye@issp.u-tokyo.ac.jp

7. 注意事項

先端領域研究部門助教授応募書類在中、又は意見書在中の旨を朱書し、郵送の場合は書留で郵送のこと。

8. 選考方法

東京大学物性研究所教授会で審査決定いたします。ただし、適任者のない場合は、決定を保留いたします。

平成12年6月1日

東京大学物性研究所長

福山秀敏

## Technical Report of ISSP 新刊リスト

### Ser. A

- No. 3544** Interplay between Raman and Fluorescence-Like Components in Resonant X-ray Emission Spectra of Degenerate  $d^0$  and  $d^1$  Systems, by Tsuyoshi Idé and Akio Kotani.
- No. 3545** Resonant X-Ray Emission Specctroscopy in Solids, by Akio Kotani and Shik Shin.
- No. 3546** Anomalous Magnetoresistance by Dephasing in a Disordered Layer with Ferromagnetic Boundary, by Gen Tanaka and Hidetoshi Fukuyama.
- No. 3547** Incoherent Charge Dynamics in Perovskite Manganese Oxides, by Hiroki Nakano, Yukitoshi Motome and Masatoshi Imada.
- No. 3548** Spin Correlation in Hole-Doped Ladder Cuprates, by Shigeki Fujiyama, Masashi Takigawa, Naoki Motoyama, Hiroshi Eisaki and Shin-ichi Uchida.
- No. 3549** Influence of Quasi-Bi-Stripe Charge Order on the Resistivity and Magnetism in a Bilayer Manganite  $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ , by M. Kubota, Y. Oohara, H. Yoshizawa, H. Fujioka, K. Shimizu, K. Hirota, Y. Moritomo and Y. Endoh.
- No. 3550** Magnetic Phase Transition of the Perovskite-type Ti Oxides, Masahito Mochizuki and Masatoshi Imada.
- No. 3551** Pseudogap due to Antiferromagnetic Fluctuations and the Phase Diagram of High-Temperature Oxide Superconductors, by Hitoshi Shimahara, Yasumasa Hasegawa and Mahito Kohmoto.
- No. 3552** Phase Transition between  $d$ -Wave and Anisotropic  $s$ -Wave Gaps in High Temperature Oxides Superconductors, by Iksoo Chang, Jacques Friedel and Mahito Kohmoto.
- No. 3553** Search for Precursor of Pressure-Induced Amorphization of Molecular Crystal  $SnI_4$  : Thermodynamic Stability of Low-Pressure Crystalline Phase, by Yasuhiko Fujii, Kazuhiro Fuchizaki and Shuichi Sugiyama.

- No. 3554** X-Ray Anomalous Scattering Study of a Charge-Ordered State in  $NaV_2O_5$ , by H. Nakao, K. Ohwada, N. Takesue, Y. Fujii, M. Isobe, Y. Ueda, M. v. Zimmermann, J. P. Hill, D. Gibbs, J. C. Woicik, I. Koyama, Y. Murakami.
- No. 3555** Effect of Surface Structures on Crystal Truncation Rod Scattering under the Bragg Condition, by Toshio Takahashi, Wataru Yashiro, Masamitsu Takahashi, Shuji Kusano, Xiao Wei Zhang and Masami Ando.
- No. 3556** Neutron Scattering Studies on Quantum Spin Systems - Spin Excitations in  $KCuCl_3$  and  $Na_2O_5$  -, by Kazuhisa Kakurai, Masakazu Nishi, Kenji Nakajima, Tomoyuki Yoshihama, Masahiko Isobe, Yutaka Ueda, Tetsuya Kato, Hidekazu Tanaka, Andreas Hoser and Hans A. Graf.

## 編 集 後 記

物性研だよりの7月号をお届けいたします。

柏に移転して三ヶ月がたちましたが、実験装置の立ち上げもかなり進んだことと思います。移転期間中には実験できなかったことでフラストレーションがたまつた人も多かったことでしょう。が、研究に対する熱意を再確認する良い機会であったかもしれません。蓄積されたアイディアと情熱を今後一気に爆発させ、物性研として何か大きな成果があがることを願ってやみません。

研究施設も充実しましたが、卓球台やエアロバイクも設置されましたし、仮眠室やシャワールームも以前よりはるかに快適になりました。喫煙スペースもできたので、六本木の時のように廊下で煙草を吸う人とすれ違うストレスもなくなりました。六本木的な娯楽が近くにないのは残念ですが、この点については週末に発散させるしかないでしょうか。

なお、次号の原稿締切りは8月10日です。

所属又は住所変更の場合等は事務部共同利用掛までご連絡願います。

陰 山 洋  
瀧 川 仁

