

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：13501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04621

研究課題名(和文) コヒーレントに励起された複数の光近接場プローブを用いた結晶内分極構造の観察

研究課題名(英文) Visualization of crystal polarization utilizing coherently excited nearfield probes

研究代表者

東海林 篤 (SYOUJI, Atsushi)

山梨大学・大学院総合研究部・准教授

研究者番号：40392724

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：結晶内には多様な素励起の分極が存在し、その分極構造が可視化できれば様々な応用へとつながる。本研究では双極子の他に、非輻射的な多重極子なども対照とし、複数の光近接場プローブを用いてスキャンすることで試料表面の多重極分極の空間構造を可視化しようという研究である。これまでのところ、空間構造を持つ光を用いるとこれまで一光子遷移禁制と考えられてきた多重極分極であっても一光子過程を使って観察可能であることを実証した。この結果はレーザーと自然放出光では物質との相互作用に違いがあることを示し、また光のビーム形状を変えることで物質の蛍光色が変わりうることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Various type polarizations of elemental excitation are existed in the crystal. The information of the polarization structure induces various application. In this study, we tried to perform visualize the radiative and non-radiative polarization structure by scanning of multi-nearfield probes. So far, we realized to excite one of the non-radiative multipole exciton states by one photon process. The result shows that the interaction between Laser and matters is different from spontaneous emission light and one. In addition, luminescence color has been shown to be controllable by modulating the light beam shape.

研究分野：半導体の光物性

キーワード：亜酸化銅 近接場プローブ コヒーレント

1. 研究開始当初の背景

近年の微細加工技術の進歩により励起子や表面弾性波、プラズモンなどといった様々な分極を利用したナノスケールサイズの様々なデバイスが作製され応用研究がなされている。また基礎研究においても様々な分極状態についての議論がおこなわれており、微小な金の針に光を当てプラズモンを介してエネルギーを伝搬させる手法や、キラルな形状をした微小金属構造体、左手系、透明マントなど多岐に渡った研究がなされている。これらは従来からよく知られている双極子や四重極子といった多重極子を利用した研究であるが、最近トロイダルな分極についての研究も進められており、分極に関する研究は今ホットな話題となっている。これら分極の持つ空間構造は理論やシミュレーションに基づいて研究が行われ、出力は計画通り計測にかかっているのであるが、実験的にこれら内部の分極構造が直接可視化できるようになればこれまで気がつかなかった様々な細かい影響や実験と理論とのずれなどを議論することができるようになり、分極構造に対する理解が進んで更なる研究発展と微細加工技術をより迅速に進めていくことが可能になると期待される。しかし、双極子は従来の近接場プローブ顕微鏡で観察できるものの、四次以上の高次の多重極子は輻射的ではない上に探針を近接することでモードに変化が起こり、局所的にでも輻射可能な部位から輻射するといったことが生じることから、分極構造全体を観察するということが困難である。

2. 研究の目的

本研究は物質内の分極構造、とりわけ四重極子といった非輻射的な多重極子の分極の空間構造を複数の近接場プローブを用いて観察しようとするものである。

3. 研究の方法

本研究では試料としてバルクの亜酸化銅結晶を用い、その亜酸化銅結晶中のオルソ励起子を狙うことにした。亜酸化銅のオルソ励起子は古くからよく研究されており、どのようなエネルギー準位にどのような分極が存在するかが詳しく調べられているからである。加えて、四重極子遷移のエネルギーが双極子遷移から遠く離れているため双極子遷移の非常に強いバックグラウンドによって観察対象である四重極子遷移が覆い隠されてしまう恐れがないためである。実験は、熱による格子振動によってオルソ励起子のスペクトル形状がぼやけることのないよう 5K の低温で行った。

本研究における測定系は、以下の構成となっている。二本の金属製光近接場プローブを互いに向かい合わせに設置し、原子間力を用いてフィードバックをかけながら試料へ近接させる。これらプローブの先端へ外部から

光を照射するとプローブ先端は互いにコヒーレントに分極することになる。ここでその先端を試料への近接を保ったまま試料表面上をラスタースキャンすると、二つのプローブ先端の試料表面における相対位置関係が、試料表面における素励起の分極構造と一致したときのみプローブのエネルギーが共鳴的に試料へ流れ込み、フォノンサイドバンドや低エネルギー側にある束縛励起子などからの蛍光が観測されることになる。従って、蛍光の強度を観測しながらその強度をラスタースキャンの際の位置毎にプロットしていくことで分極構造を可視化していく。

4. 研究成果

亜酸化銅中のオルソ励起子は、外部から照射された光によって四重極子遷移を行うが、その分極構造は光の進行方向となっていることから結晶の奥行き方向の形状をしている。プローブの先端を結晶へ差し込むことは不可能であり、この研究で狙う四重極子の分極構造が結晶の面内に存在しないのであれば原理的に測定は不可能である。しかし、近年他の研究者の報告により三種類あるオルソ励起は互いに長距離の交換相互作用を行うことで四重極子許容・二光子禁制の励起子と四重極子禁制・二光子許容の励起子に分裂するということがわかった。四重極子許容・二光子禁制の励起子は通常の光学系を用いて一光子励起できる励起子であるが、四重極子禁制・二光子許容の励起子は二光子過程を用いなければ励起できない励起子である。一光子過程で容易に観測できる励起子状態は通常の光学系で観測できることから我々の研究対象ではない。従って、我々が研究で観測しようとしている励起子は、四重極子禁制・二光子許容な励起子ということになる。そこで今後本研究を遂行していくためには、四重極子禁制・二光子許容な励起子が一光子で励起可能なのか否かということを含め明確にしておかなければならないことが判明した。

近年、光の空間モードを用いてラゲールガウスビームと呼ばれる光渦を作製し、穴開け加工を行ったり、渦の角運動量を用いて物体を回転させたり、或いは反射や屈折の際の渦のゆがみ具合を調査したりなどの研究が盛んに行われている。光の空間モードは光ビーム断面の空間各点においてコヒーレントに位相が分布している状態である。一方、物質中のコヒーレント状態というと主に光と同じ波数方向または試料の厚さのことを指すが、試料の面内のコヒーレンスも当然持っている。例えば、二つのパルスレーザーを試料面上で少し離して照射すると互いに横方向へ伝搬し合って和周波光や差周波光が生成されることはよく知られている。そこで、励起子が試料の面直方向のみならず面内にもコヒーレンスを持っているならば、空間モードを持った光の空間構造を励起子に転写す

ることができるのではないかと考えられる。つまり、これまで光と素励起との相互作用はエネルギー保存則と波数保存則、そして角運動量保存則（偏光）が重視されてきた。しかし、光も素励起もそれぞれ空間的にコヒーレントに広がっている場合を考えると、素励起がコヒーレントに励起される際には光の位相も保存されるべきであり、さらにその位相が空間的に分布している場合には試料表面の各部位において位相が保存されることから、結局、光の空間モードも保存されなければならぬということになる。

空間モードを持った光によって空間モードを持った四重極子禁制・二光子許容のオルソ励起子がどれだけの遷移確率を示すかは、光と励起子の波動関数の重なり合いを求めればよく、それを簡単に求めるには点群における結合係数の計算を遂行すればよい。亜酸化銅結晶の(001)面に対して縦・横エルミートガウスビームと縦・横偏光の組み合わせの光を照射すると、両者とも縦あるいは横の場合と、縦横あるいは横縦の場合で 1:0 という遷移確率の比率となった。実験を行ってみたところ、四重極子許容・二光子禁制の励起子がごく近傍に位置してエネルギー的に区別できないため、差分を求めることにした。実験の結果、オルソ励起子のフォノンレプリカの発光強度に対して（縦縦・縦横・横縦+横横）の演算を施したところおよそ 1.4%の発光増強が観測されることがわかった。同様に、(111)面の試料に対しては、理論的に 0.11:0.06 であり、実験を行ったところ 0.3% 発光増強が観測された。これらの発光増強の大きさを評価すべく両者の比を取り、実験的に得られた(001)面で観測される四重極子許容・二光子禁制の励起子の振動子強度と(111)面で観測される四重極子許容・二光子禁制の励起子の比を求めたところ、誤差範囲内で理論値に収まっていることが明らかとなった。この実験でフォノンレプリカの発光強度の増強が観測されたことから確かに空間モードを持つ光によって空間モードを持つ四重極子禁制・二光子許容の励起子が一光子によって励起できることが実証できた。

この実験は、四重極子禁制・二光子許容の励起子が一光子で励起可能かとの実証のために進めてきた研究であったが、少し条件を変えると、光学遷移禁制の励起子・パラ励起子を励起できることが明らかとなった。亜酸化銅のパラ励起子はその励起子が持つ規約表現が光と一致しないことから一光子を含めて二光子や三光子過程を経ても励起できないことが明らかとなっている。それ故、従来は外部から局所的な圧力を加えたり、磁場を印可したり、或いはオルソ励起子から緩和してくるのを待つことにより励起を行ってきた。亜酸化銅中のパラ励起子は励起子のボーズ凝縮で非常によく研究されており、パラ励起子が光で励起可能になればボーズ凝縮に関する研究がより進むものと期待される。

パラ励起子はオルソ励起子と異なり、スピンはトリプレット状態となっている。従って電気双極子や四重極子を介しての励起はできない。しかし、アルカリハライド中のパラ励起子の励起と同様に、磁気双極子を介せば励起できる可能性がある。そこで本研究では磁気双極子と光の空間モードを組み合わせるによりパラ励起子を励起することを試みた。レーザーの波長をパラ励起子のエネルギー位置に固定し、空間モードを持った光によって試料を励起。パラ励起子のフォノンレプリカの観測を行ったところ、わずかな発光ピークが観測された。この発光はレーザーの波長をパラ励起子からずらすと観測されなくなり、確かにパラ励起子が一光子で励起できていることが明らかとなった。

以上の研究により、従来一光子では励起できないとされてきた励起子であっても、光の空間モードを用いれば励起できる可能性があることが明らかとなった。小学校から大学に至るまで光は波だとならば、レーザーのような綺麗な波を頭に描き、そしてマクスウェル方程式として平面はや球面波を扱い、これまでの光学遷移の研究は行われてきた。しかし、綺麗な波は横シングルモードのレーザーだけであり、太陽光や炎、LED、蛍光灯などといった身近にある自然放光の空間モードはでたらめである。本研究の成果は、そのようなでたらめな空間モードを持つ光とレーザー光は物質との相互作用に違いがあるかもしれないということを明らかにした研究ともなっている。また一方、光の空間モードによって物質の発光強度を操作することができるということから、この研究をさらに進めていくと、『光の空間モード即ち、光のビーム形状を操作することにより物質の発光色を変える』ことができるといったこれまで考えられなかったような応用へつながら期待され、このような物理現象が起き得ることを提案したのは本研究が初めてである。

四重極子禁制・二光子許容のオルソ励起子が一光子で励起可能であることが実証できたので、プローブを用いた励起を試みることにした。オルソ励起子の一光子励起可能性について研究を進めていたため、計画より遅くなってしまった。これまでのところ、プローブ先端を水晶振動子で振動させ、試料へ近接したときの原子間力による振動数変化を AM 検出してフィードバック制御を行うプローブ測定系の構築を行っている。今後さらに光学系の構築を行い、測定を行っていく予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 12 件)

A. Ishikawa, R. Okada, K. Uchiyama, H. Hori, K. Kobayashi, Quantum Coherent

Dynamics Enhanced by Synchronization with Nonequilibrium Environments, Journal of the Physical Society of Japan, 査読あり、Vol. 87、2018、pp.054001/1-10、DOI: 107566/JPSJ.87.054001

Syouji Atsushi、Saito Shingo、Otomo Akira、Creation of Excitons Excited by Light with a Spatial Mode、Journal of the Physical Society of Japan、査読あり、vol86、2017、pp.124720、DOI: 10.7566/JPSJ.86.124720

Sezaki Riku、Ishikawa Akira、Miyajima Kensuke、Kobayashi Kiyoshi、Theory of superfluorescence-laser crossover in a cavity QED system、J Applied Physics A、査読あり、vol123、2017、pp.690/1-9、DOI: 10.1007/s00339-017-1301-y

Ishikawa Akira、Okada Ryo、Uchiyama Kazuharu、Hori Hirokazu、Kobayashi Kiyoshi、Quantum Coherent Dynamics Enhanced by Synchronization with Nonequilibrium Environments、Journal of the Physical Society of Japan、査読あり、vol87、2018、pp.054001、DOI: 10.7566/JPSJ.87.054001

T. Kouno、M. Sakai、H. Takeshima、S. Suzuki、A. Kikuchi、K. Kishino、K. Hara、Microsensors based on a whispering gallery mode in AlGaIn microdisks undercut by hydrogen-environment thermal etching、Applied Optics、査読あり、Vol.56、2017、pp.3589、DOI: 10.1364/AO.56.003589

N. Yokoshi、K. Odagiri、A. Ishikawa、H. Ishihara、Synchronization Dynamics in a Designed Open System、Physical Review Letters、査読あり、Vol.118、2017、203601/1-5、DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.203601

H. Sekiguchi、M. Sakai、T. Kamada、H. Tateishi、A. Syouji、A. Wakahara、Optical sites in Eu- and Mg-codoped GaN grown by NH₃-source molecular beam epitaxy、Applied Physics Letters、査読あり、Vol.109、2016、151106/1-4、DOI: 10.1063/1.4964519

T. Kouno、S. Suzuki、M. Sakai、K. Kishino、K. Hara、Periodic Radiation Patterns and Circulating Direction of Lasing Light by Quasi Whispering Gallery Mode in Hexagonal GaN Microdisk、Journal Physical Society of Japan、査読あり、Vol.85、2016、053401、DOI: 10.7566/JPSJ.85.053401

T. Kouno、M. Sakai、K. Kishino、A. Kikuchi、N. Umehara、K. Hara、Crystal structure and optical properties of a high-density InGaIn

nanoumbrella array as a white light source without phosphors、NPG Asia Materials、査読あり、Vol.8、2016、e289/1-7、DOI: 10.1038/am.2016.99

T. Tamaya、A. Ishikawa、T. Ogawa、K. Tanaka、Higher-order harmonic generation caused by elliptically polarized electric fields in solid-state materials、Physical Review B、査読あり、Vol.94、2016、241107(R)/1-6、DOI: 10.1103/PhysRevB.94.241107

A. Ishikawa、K. Miyajima、M. Ashida、T. Itoh、H. Ishihara、Theory of superfluorescence in highly inhomogeneous quantum systems、Journal of the Physical Society of Japan、査読あり、Vol.85、2016、034703/1-9、DOI: 10.7566/JPSJ.85.034703

T. Tamaya、A. Ishikawa、T. Ogawa、K. Tanaka、Diabatic Mechanisms of Higher-Order Harmonic Generation in Solid-State Materials under High-Intensity Electric Fields、Physical Review Letters、査読あり、Vol.116、2016、016601/1-5、DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.016601

[学会発表](計 21 件)

A. Syouji、S. Saito、A. Otomo、Beyond plane wave interaction in exciton creation;excitation by light with a spatial mode、The 11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF011 (国際学会) 2017 年

R. Sezaki、A. Ishikawa、K. Miyajima、K. Kobayashi、Theory of superfluorescence-laser crossover in a cavity QED system、The 11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF011 (国際学会) 2017 年

T. Yazaki、R. Okada、A. Ishikawa、K. Kobayashi、Foundation of optical near fields from a quantum dynamics viewpoint、The 11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF011(国際学会) 2017 年

R. Okada、T. Yazaki、K. Uchiyama、H. Hori、A. Ishikawa、K. Kobayashi、Non-resonant collective quantum dynamics、The 11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF011 (国際学会) 2017 年

T. Kougo、A. Ishikawa、K. Kobayashi、Multipolar expansion theory including toroidal moments and its application、The

11th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF011(国際学会)2017年

東海林 篤, 齋藤 伸吾, 大友 明、空間モードを持った光による励起子生成、第 65 回応用物理学会 春季学術講演会、2018 年

樋口 滉, 東海林 篤、透明磁性誘電体 Ce:YIG ナノ粒子の作製および磁気光学効果の測定、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年

矢崎 智昌, 岡田 遼, 石川 陽, 小林 潔、光近接場量子ダイナミクスにおける Non-Markovian 過程の理論、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017 年

岡田 遼, 矢崎 智昌, 内山 和治, 堀 裕和, 石川 陽, 小林 潔、局所環境支援励起移動ダイナミクス II、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017 年

瀬崎 陸, 石川 陽, 宮島 顕祐, 小林 潔、共振器 QED 系における超蛍光 レーザークロスオーバーの理論、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017 年

栗原和也, 岩本 亘平, 酒井 優, 石川 陽, 堀裕和, 岸野克巳, 小林 潔、近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2017 年

岩本 亘平, 酒井 優, 石川 陽, 堀裕和, 岸野克巳, 小林 潔、近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017 年

向後 敬志, 石川 陽, 小林 潔、トロイダル多重極子を含む光と物質の相互作用理論、日本光学会ナノオプティクス研究グループ第 24 回研究討論会、2017 年

岩本 亘平, 栗原和也, 酒井 優, 石川 陽, 堀裕和, 岸野克巳, 小林 潔、近接場光局所励起・観察によるキャリア輸送現象の解明、日本光学会ナノオプティクス研究グループ第 24 回研究討論会、2017 年

A. Syouji, K. Fukushima, H. Ishihara, Enhancement of the diffraction light intensity imbalance using two dimensional photonic crystals, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF010 (国際学会) 2015 年

M. Sakai, Y. Miwa, A. Syouji, A. Ishikawa, K. Uchiyama, K. Kobayashi, T. Matsumoto, K. Kishino, H. Hori, Development of

Multi-Probe SNOM for Investigation of Carrier Dynamics in Semiconductor Quantum Wells, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF010(国際学会)2015 年

A. Ishikawa, T. Suwa, K. Uchiyama, T. Matsumoto, H. Hori, K. Kobayashi, Contr 4-3 Optical near-field driven dynamics of open nanosystems embedded in structured environments, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF010 (国際学会) 2015 年

A. Ishikawa, M. Sakai, K. Iwamoto, T. Kougo, Y. Miwa, K. Uchiyama, H. Hori, K. Kobayashi Theory of Spatiotemporal Carrier Dynamics in a Semiconductor Quantum Well, The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, APNF010 (国際学会) 2015 年

東海林篤, 酒井優, 原正則, 松島永佳, 犬飼潤治, CARS 分光法によるナフィオン膜の乾燥過程の解析、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年

東海林篤, 福島 宏一, 石原 一, Ce:YIG 製二次元磁性フォトリック結晶の作製と磁気光学観察、日本光学会 ナノオプティクス研究グループ 第 2 2 回研究討論会、2016 年

②東海林篤, 齋藤 伸吾, 大友明、光の空間モードによる空間モードをもった励起子の生成、日本物理学会 2016 年秋季大会

〔図書〕(計 1 件)

東海林篤、PEFC の内部現象・反応機構と評価・解析技術、第 5 章 6 節、S&T 出版、ISBN:978-4-907002-47-3

〔その他〕

ホームページ等

山梨大学大学院 総合研究部 工学域物質科学系(クリスタル科学研究センター)

<http://nerdb-re.yamanashi.ac.jp/Profiles/337/0033681/profile.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

東海林 篤 (SYOUJI, Atushi)

山梨大学・大学院総合研究部・准教授
研究者番号：40392724

(2) 研究分担者

酒井 優 (MASARU, Sakai)

山梨大学・大学院総合研究部・准教授
研究者番号：10371709

(3) 研究分担者

石川 陽 (AKIRA, Ishikawa)
山梨大学・大学院総合研究部・准教授
研究者番号： 10508807