

令和 2 年 7 月 13 日現在

機関番号：50104

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05084

研究課題名(和文) IV族プラズマフォトンクスによる凝縮系の全赤外高感度コヒーレント分光

研究課題名(英文) Highly sensitive coherent spectroscopy in condensed matters by plasma photonics with IV elements

研究代表者

松原 英一 (Matsubara, Eiichi)

旭川工業高等専門学校・一般理数科・准教授

研究者番号：10421992

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：高電場印加したダイヤモンド基板を非線形媒質に使い、空気プラズマから発生する超広帯域コヒーレント赤外パルスの検出感度を空気の場合より電場強度で約100倍に増強できることを見出した。また、中空ファイバー圧縮法に比べてスルーブットが高く、安定性が高いマルチプレート圧縮法により、波長帯域670-930 nm、時間幅サブ20 fs、エネルギー約300 μ Jの高強度極短光パルスを発生させた。これを空気プラズマ誘起の光源として用いることで、中空ファイバー圧縮パルスを用いた場合と同じ200 THzにおよぶ連続スペクトルをもつ超広帯域コヒーレント赤外パルスの発生を実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高速かつ超広帯域の赤外分光技術は物質科学などの基礎研究のみならず、工業製品の内部検査、農作物の品質検査などの応用分野でも重要である。本研究では、可視や紫外域のデータが無くても、物質の誘電率や光学伝導度の実部と虚部を同時に決定できるコヒーレント赤外分光にもちいる媒質を、2つのプロセスにおいて、気体の利点を損なうことなく気体から固体へと移行することができることを実証した。これにより、コヒーレント赤外分光に必要なレーザー光源のスペックを下げ、低コスト化をもたらすとともに、励起光源の強度安定化による高性能化が可能となった。

研究成果の概要(英文)：Using a high-voltage biased diamond crystal as a nonlinear medium, we improved the sensitivity of coherent detection of ultrabroadband infrared pulses by 100 times compared with the case using air. We also adopted the multi-plate compression technique to the generation of intense extremely short pulses for inducing plasma in air, and achieved the formation of optical pulses with a wavelength range of 670-930 nm, duration of sub-20 fs, and pulse energy of 300 μ J. Using these pulses, we generated the ultrabroadband coherent infrared pulses with a continuous spectral range of 1-200 THz.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：赤外分光 非線形光学 テラヘルツ 空気プラズマ 超高速分光 マルチプレート圧縮

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

超短光パルスによる物質制御が新たな展開を迎え、新しい物質相の発現に直結する振動の誘起や、テラヘルツから中赤外の低周波パルス励起により、マクロなコヒーレント現象が実現されるようになった。ペロフスカイト型遷移金属酸化物をはじめとした強相関電子系ではラマン活性や赤外活性、共鳴や非共鳴現象の区別ができず、幅広い周波数帯域をもつプローブ光で、すべての光学応答を一括して観測し、議論する必要があった。そのためには低周波数領域のキャリアエンベロープ位相 (carrier envelope phase, CEP) が制御された光パルス発生と超広帯域検出技術が必要不可欠であった。特に 3 次の非線形過程を含めた凝縮系のコヒーレント過渡応答を 2 次元分光として抽出するためには、弱励起での応答を見る必要があった。

空気プラズマをコヒーレント赤外パルスの発生および検出のための媒質として用いるエアフォトンクスは、赤外の幅広い周波数帯域での応答を一括してプローブするための有望な手法であった。この手法では、フォノン等による媒質の吸収がないため、周波数帯域は入射光のバンド幅のみによって決まる。光混合過程による発生の時点で CEP が一定であるので、高価で煩雑な CEP 制御装置を必要としない。我々はそれまでにチタンサファイア再生増幅レーザーパルスの中空ファイバー法で 10 fs にまで圧縮した光パルスを使用することによって、テラヘルツ帯から近赤外 (200 THz) に達する連続スペクトルをもつ超広帯域の赤外パルスを発生させ、そのほぼ全周波数成分を、空気を媒質とした電場誘起第 2 高調波発生にて計測できることを実証していた。これをシリコンや InSb といった半導体の時間分解分光に適用することで、光励起後の誘電関数の時間発展に追従することができるようになった。しかし、空気の非線形性は非常に小さいため、強励起の実験にしか適用できず、本来見たい凝縮系の弱励起下でのコヒーレント過渡応答を検出するには、やや感度不足であった。

2. 研究の目的

本研究では、エアフォトンクスの利点・技術をそのまま生かし、凝縮系に展開することが可能な IV 族プラズマフォトンクスを展開することを目的とした。すなわち、全赤外領域での発生効率および検出感度を向上させた時間分解分光系を実現させるための非線形媒質として、IV 族元素であるシリコンとダイヤモンド、およびその化合物に着目した。

まず、赤外パルスのコヒーレント電場検出の媒質として、ダイヤモンド単結晶に着目した。ダイヤモンド単結晶は、赤外領域にフォノンによるわずかな吸収があるものの、それを除くほぼ全ての赤外周波数帯域で (シリコンはバンドギャップ以下で) 透明である。それにともなって、屈折率分散が小さいので、幅広い周波数帯域での同時位相整合が期待できる。固体であるダイヤモンドには入射光強度に対するダメージ閾値があるが、3 次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ が空気に比べて 4 桁も大きいので、より低強度の入射光に対して充分大きな非線形効果が期待できる。エアフォトンクスでは、空気中に設置した電極間に被測定光を集光するとともに、高 DC 電場を印加し、さらにその極性をパルス毎に交互に変えて電場誘起第 2 高調波の差分をとることで、位相の情報を含めた光電場波形を検出しているが、媒質をダイヤモンドにすることで、周波数帯域を損なわず、より高感度な光電場検出が期待される。

次に、空気プラズマを誘起するための光源である高強度極短光パルスの発生の際、再生増幅されたレーザーパルスをパルス圧縮するための広波長帯域化を起こす非線形媒質として、石英に着目した。従来の気体を非線形媒質として用いる中空ファイバー圧縮法では、入射ビームポイントの揺らぎによる出射光の強度やスペクトルの変動が問題となっていた。また、中空ファイバーのスループットは最大で約 40% であり、低効率であるという問題があった。複数の薄い石英基板にレーザーパルスを照射することで、自己収束等によるパルス破壊を起こさずに、必要なパルス広波長帯域化が図れるという報告が最近なされた。本研究ではこの手法を取り入れ、赤外分光の性能を向上し、必要なレーザースペックを下げることを目的とした。

3. 研究の方法

[ダイヤモンド基板による超広帯域コヒーレント赤外パルスの検出]

レーザー加工によって切り出される一般的な市販のダイヤモンド基板は、加工時に端面がグラファイト化して導電性が生じてしまい、高電圧を印加することができない。そこで、ダイヤモンド基板を劈開で $5 \times 1.5 \times 0.5$ mm 程度の短冊状に加工し、端面を研磨する加工を業者に依頼した。この手法での問題は、劈開面が基板の表面と垂直にならないことである。研磨によって端面を表面と垂直にすることは原理的には可能だが、ダイヤモンドは非常に硬いため、時間とコストがかかる。そのため、劈開面を簡易研磨した結晶で、テラヘルツ波の検出を試すことにした。この結晶を電極間に挟んで高電圧を印加し、十分な絶縁性をもつことを確認し、これを以って導電性の問題を解決した。

空気プラズマによるコヒーレント赤外波発生・検出系で、空気を検出に使用して信号が測定できるように調整した状態で、電極間に加工した短冊状のダイヤモンドを挟んで電圧を印加した。挟み方は、基板の表面および裏面が電極に接するようにし、端面にサンプリング光を入射するようにした。空気による検出の場合、サンプリングパルスのエネルギーは数十 μJ 程度が必要であるが、ダイヤモンドの場合は数 μJ 以上の強度にすると非線形効果やダメージが起こる。そのため、それらが起こらない範囲でできるだけ高いパルスエネルギーとした。

[石英マルチプレートによる励起光減の波長広帯域化]

最近考案されたマルチプレート圧縮法を用いた。これは、自己位相変調を用いたパルス広帯域化のための媒質として用いている中空ファイバー中の希ガスの代わりに、石英などの透明な固体媒質を自己収束が起きにくいように 100 μm 程度の厚みまで薄くしたものをを用いるものである。薄くすることによって自己位相変調も起きにくくなるが、枚数をかせぐことで自己収束を抑制しつつもパルス圧縮に必要なパルス広帯域化が得られる。

4. 研究成果

[ダイヤモンド基板による超広帯域コヒーレント赤外パルスの検出]

本研究では、短冊状のダイヤモンド単結晶に超広帯域赤外光、および時間幅約 10fs の可視-近赤外プローブパルスを入射し、パルス毎に極性が変わる疑似 DC 高電場を印加することで電場誘起第二高調波を発生させ、これを光電子増倍管で検出することにより赤外電場波形を測定する。前年度で 6 μJ のプローブ光エネルギーで、空気の場合の約 6 倍の信号強度を得るという、原理実証となる実験結果が得られたことを受けて、当該年度では、まずダイヤモンドの研磨精度を向上させることにより、ダイヤモンド結晶中での屈折によるビーム伝搬方向の変化を抑制することができた。また最大 1.4 μJ のプローブ光エネルギーで、1-150 THz、75 nJ の微弱なプローブ光エネルギーで 1-80 THz の周波数帯域の信号を観測した。およそ 0.05-5 μJ の領域で空気とダイヤモンドを使用した際の感度を比較したところ、ダイヤモンドを使って空気の場合の 100 倍近い感度増強が確認された。

[石英マルチプレートによる励起光減の波長広帯域化]

焦点距離 3m のレンズで集光した高強度チタンサファイアレーザー増幅パルスを厚さ 100 μm の合成石英基板 5 枚に入射し、反射率を最小にするための角度調整と、最大のパルス広帯域化を得るための位置の調整を行うことで、中空ファイバー圧縮の場合に匹敵する 670-930 nm の波長帯域にパルス広帯域化し、これをチャープミラーで位相補償することで、サブ 20 fs 程度の時間幅にパルス圧縮することができた。中空ファイバー圧縮法の場合、スルーput (エネルギー効率) が 30~40% であったのに対し、マルチプレート圧縮法では 85% のスルーput が得られた。レーザーのビーム位置の揺らぎによる出射光強度の変動の影響が少ないため、安定性の向上も図ることができた。このパルスを使って空気プラズマを誘起し、発生した超広帯域コヒーレント赤外パルスのスペクトルを MCT 検出器付きの分光器で測定した。その結果、MCT の低周波側の観測限界である 60 THz から 200 THz に至る連続スペクトルを観測した。発生原理上、この赤外パルスの低周波端は 1 THz 以下である。この観測帯域は、中空ファイバー圧縮法の場合に匹敵する。このように、初めてマルチプレート圧縮光パルスを用いた超広帯域コヒーレント赤外パルスの発生を実証した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Chris de Weerd, Gomez Leyre, Capretti Antonio, Lebrun Delphine M., Matsubara Eiichi, Lin Junhao, Ashida Masaaki, Spoor Frank C. M., Siebbeles Laurens D. A., Houtepen Arjan J., Suenaga Kazutomo, Fujiwara Yasufumi, Gregorkiewicz Tom	4. 巻 9
2. 論文標題 Efficient carrier multiplication in CsPbI ₃ perovskite nanocrystals	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-018-06721-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Kobayashi Masataka, Arashida Yusuke, Yamashita Genki, Matsubara Eiichi, Ashida Masaaki, Johnson Jeremy A., Katayama Ikufumi	4. 巻 44
2. 論文標題 Fast-frame single-shot pump-probe spectroscopy with chirped-fiber Bragg gratings	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 163 ~ 166
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.44.000163	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Inaba Tomohiro, Kojima Takanori, Yamashita Genki, Matsubara Eiichi, Mitchell Brandon, Miyagawa Reina, Eryu Osamu, Tatebayashi Jun, Ashida Masaaki, Fujiwara Yasufumi	4. 巻 123
2. 論文標題 Quantitative study of energy-transfer mechanism in Eu, ⁰ -codoped GaN by time-resolved photoluminescence spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 161419 ~ 161419
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5011283	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Eiichi MATSUBARA	4. 巻 53(2)
2. 論文標題 Active learning of the physics of radiology in a seminar for third year students	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Osaka Dental University	6. 最初と最後の頁 127 ~ 132
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.18905/jodu.53.2_127	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 9件）

1. 発表者名 Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida
2. 発表標題 Solid-state Biased Coherent Detection of Ultrabroadband Infrared Pulses Using Single Crystal of Diamond
3. 学会等名 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida
2. 発表標題 Solid-state Biased Coherent Detection of Ultrabroadband Infrared Pulses Using Single Crystal of Diamond
3. 学会等名 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masaya Nagai, Eiichi Matsubara, Masaaki Ashida, Masanori Fuyuki, Keigo Kawase, Akinori Irizawa, Goro Isoyama, Jun Aoki, Michisato Toyoda
2. 発表標題 Mass Spectrometry for The Organic Solids Using an Intense THz Free Electron Laser Pulse
3. 学会等名 The 43rd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida
2. 発表標題 Responsibility of Plasma Current for The Generation of The Highest Frequency Part of Ultrabroadband Coherent Infrared Pulses With 200-THz Bandwidth
3. 学会等名 The 43rd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松原 英一, 永井 正也, 芦田 昌明
2. 発表標題 電場印加ダイヤモンド単結晶による広帯域赤外波電場検出
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Huong Mai Duongthi, Shunpei Nobusue, Eiichi Matsubara, Masaaki Ashida, Hirokazu Tada
2. 発表標題 One-Dimensional Single Crystals of Lead Bromide Organic-Inorganic Hybrid Perovskites: Structure and Optical Properties
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Mai Huong Duong, Shunpei Nobusue, Eiichi Matsubara, Hirokazu Tada, Masaaki Ashida
2. 発表標題 Optical Properties of One-Dimensional Single Crystals Based on Lead-Bromide Hybrid Perovskites
3. 学会等名 MRS Fall Meeting
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Nagai, E. Matsubara, M. Ashida, M. Fuyuki, K. Kawase, A. Irizawa, G. Isoyama, J. Aoki and M. Toyoda
2. 発表標題 Soft desorption from the hydrogen bonded solids using intense THz pulses
3. 学会等名 The seventh international conference on Optical Terahertz Science and Technology (OTST2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masaya Nagai, Eiichi Matsubara, Masaaki Ashida, Masanori Fuyuki, Keigo Kawase, Akinori Irizawa, Goro Isoyama, Jun Aoki, Michisato Toyoda
2. 発表標題 Excitation Frequency Dependence Of The Desorption Of Hydrogen-bonded Solids Using Picosecond THz Free Electron Laser Pulses
3. 学会等名 The 42th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida
2. 発表標題 Mechanism For Intensity Enhancement Of Ultrabroadband Coherent Infrared Pulses From Two-color Excited Air Plasma
3. 学会等名 The 42th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Eiichi Matsubara
2. 発表標題 Extension of the spectral range of terahertz time domain spectroscopy using ultrashort laser pulses and its application to solid state physics
3. 学会等名 International Workshop on Optoelectric Perception (IWOP2017) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masaaki Ashida, Eiichi Matsubara, and Masaya Nagai
2. 発表標題 Extreme terahertz spectroscopy with highly intense and ultrabroadband sources
3. 学会等名 The 4th International Symposium on Microwave/Terahertz Science and Applications (MTSA 2017) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 田丸隼也、松田拓也、松原英一、 Thi-Mai Huong Duong、 信末俊平、 畠田博一、 芦田昌明
2. 発表標題 1次元ビリジン鉛ハライド系ペロブスカイト結晶の光学特性
3. 学会等名 第28回光物性研究会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松原英一、永井正也、芦田昌明
2. 発表標題 空気プラズマからの超広帯域コヒーレント赤外波の発生メカニズム
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----