

令和 3 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K15462

研究課題名（和文）LD直接励起レーザーを用いた高強度高周波テラヘルツ波発生とその応用

研究課題名（英文）Generation of intense THz-to-MIR pulses with a LD direct pumped laser

研究代表者

神田 夏輝（Natsuki, Kanda）

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：60631778

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：周波数が数十テラヘルツの高周波テラヘルツ領域では、高強度光源を用いた高速な物性制御への応用が注目を集めており、位相安定な高強度光源が求められている。本研究では近年利用可能となってきた安定なLD直接励起Yb系レーザーを用いて位相安定な高周波テラヘルツパルスの発生を行った。さらにこの周波数帯を光パラメトリック増幅過程により直接増幅できる技術を開発し、位相安定な高強度光源を実現した。本研究の手法を用いた光源による超高速分光や物性制御への応用が期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では高周波テラヘルツ領域における位相安定な高強度光源を実現した。この光源は超高速分光や物性制御の研究への応用が期待される。また、本研究で開発したLD直接励起Yb系レーザーのパルス幅圧縮技術やパルス内差周波発生技術、および光パラメトリック増幅による高周波テラヘルツパルス増幅技術などの要素技術は、今後この分野における重要な技術となるものである。

研究成果の概要（英文）：Observation of ultrafast light-matter interaction and material control with intense pulses in THz-to-MIR region are attracting great attentions. For those applications, phase stable intense light sources are strongly desired. In this research, we demonstrated generation of highly phase stable pulses in THz-to-MIR region by using a LD direct-pump Yb based laser with a high stability. We also proposed and demonstrated the direct amplification of THz-to-MIR pulses with optical parametric amplification process. Combining them, a phase stable intense light source in THz-to-MIR region was achieved in this research. Our light source should be applied to ultrafast spectroscopy and material control.

研究分野：光物性

キーワード：テラヘルツ・中赤外 非線形光学

1. 研究開始当初の背景

近年のフェムト秒レーザー光源と波長変換技術の向上により、様々な波長の超短パルスを駆使した物質中の励起状態の超高速現象の観測や制御の研究が盛んに行われるようになった。特に周波数が数十 THz 程度の高周波テラヘルツ帯はテラヘルツ帯と中赤外領域の狭間に位置し、超高速現象の観測や制御の点でも特徴的な周波数帯である。テラヘルツと同様に低い光子エネルギーのためにバンドギャップを超える電子励起を抑制でき、高強度光源でも物質の破壊を起こしにくく、物性制御への応用が期待される。さらに、テラヘルツに比べて波長変換の効率も高く、波長が短いために高密度に集光することもでき、高い電場強度が実現可能である。近年では超短パルス技術を駆使することで、キャリアエンベロープ位相 (CEP) の固定された状態で電場尖頭値が数十 MV/cm にも及ぶ極めて強い光パルスの発生が可能となってきた。

従来、このような超高速、高強度パルス光源は繰り返し周波数 1 kHz 前後のチタンサファイア (Ti:S) レーザーをベースに実現されてきた。一方で、近年では Yb 系のレーザー媒質をレーザーダイオード (LD) で励起したフェムト秒パルスレーザー・再生増幅器が実現され、普及し始めている。Ti:S レーザーでは通常緑色の光で励起を行うために LD 励起固体レーザーの第二高調波が用いられるのに対し、Yb 系媒質は近赤外で励起できるため LD での直接励起が可能であり、高い安定性が実現できる。さらに励起波長と発振波長の差が Ti:S レーザーと比べて非常に小さいため、結晶の過熱を抑制し、数百 kHz から 1 MHz に達するほどの高繰返し性が可能である。しかしながら、Ti:S 結晶は非常に広い利得帯域を持ち数 fs の短いパルス幅も発生可能であるのに対して、Yb:YAG などの Yb 系材料の多くでは典型的に 200 fs 程度のパルス幅しか得られないという欠点がある。LD 直接励起 Yb 系レーザーの高い安定性と高繰返し性を活かした高周波テラヘルツ発生、及びそのためのスペクトルの広帯域化・超短パルス化は、今後この分野における重要な課題になると考えた。

2. 研究の目的

本研究では、近年利用可能となってきた LD 直接励起の高安定な Yb レーザーをベースとして、高い安定性と高繰返し性を活用しつつバンド幅の狭さを克服した、新たな高強度高周波テラヘルツ光源の実現を目指して研究を行った。

3. 研究の方法

本研究では Yb ベースのレーザーの高い安定性を生かした位相安定な高強度高周波テラヘルツ光源の新たな方式を提案した (図 1)。位相安定性のためにパルス内差周波発生で高周波テラヘルツを発生させることと、高周波テラヘルツ波をシグナル光として直接増幅を試みるのが大きな特徴である。まず Yb:YAG 再生増幅器の出力の一部をパルス圧縮し、高周波テラヘルツ波の発生・検出が可能な短パルスの生成を行った。それをを用いてパルス内差周波発生により位相安定な高周波テラヘルツパルスを発生させた。これをシード光とし、レーザー出力の残りをポンプ光とした光パラメトリック増幅 (OPA) を行い、位相安定性を保ったまま高強度化を行った。

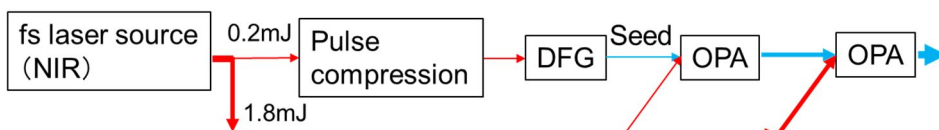


図 1 : 本研究で提案した高強度高周波テラヘルツ光源の方式

4. 研究成果

高強度高周波テラヘルツ光の時間領域分光を行うために超短光パルスの圧縮方法を確立した。パルス幅 255 fs の Yb:KGW 再生増幅器の出力の一部を 2 段階のマルチプレートブロードニングと分散補償により 11 fs まで圧縮することに成功した。この圧縮方法では複数枚の非線形媒質を通過するが、元のレーザー光源が非常に安定しているため、圧縮後においてもショットごとの短期安定性で 0.06%、6 時間の長期的なパワー変動で 0.2% 以下という非常に安定した圧縮パルスを得ることができた。

そして非線形光学結晶 GaSe によるパルス内差周波発生により、受動的に CEP の固定された 50 THz にまで及ぶ広帯域な高周波テラヘルツパルスの発生・検出を実現し、数時間にわたって積算可能な位相安定性を有していることを実証した。このような長時間での安定性は分光応用において積算による S/N の向上が可能であること素意味し、実用上非常に重要である。

さらに、高強度高周波テラヘルツ光源の実現に向けて要素技術として、光パラメトリック増幅過程のシグナル光としての増幅を高周波テラヘルツ領域で実証した (図 2 a)。シード光には同様に GaSe 結晶でのパルス内差周波発生を用いたが、厚さ 1 mm の結晶で位相整合を満たすことで

狭帯域なパルス発生を行った。Yb:KGW 再生増幅器の残りの出力で励起された GaSe 結晶にこのシード光を入射させたところ、光パラメトリック増幅に成功した (図 2 b, c)。1 段階の増幅で 100 倍以上のパルスエネルギーの増幅が見られ、GaSe 結晶への入射角により位相整合条件を制御することで周波数を選択できることを示した。さらにもう 1 段の光パラメトリック増幅を構築し、2 段階の増幅にも成功した。2 段階の増幅においても入射角による位相整合条件の制御で 17~45 THz の範囲で周波数を選択して増幅することができた。OPA においてシグナル光としての増幅としては前例のない長波長領域での増幅に成功した。増幅後のパルスの電場尖頭値は 2 MV/cm を超え、高強度パルスを用いた物性制御などへの応用に利用できる光源を実現できた。

本手法ではシード光にはパルス内差周波過程を用いているため、従来手法の 2 波長の 2 本のビームの差周波の場合に問題となる光路長揺らぎに起因する位相揺らぎが生じにくいという利点を持つ。さらに、この安定なシード光をシグナル光として増幅を行っているため、2 段階の増幅後でも、メカニカルなフィードバック機構を用いることなく、6 時間にわたって 16 mrad の位相揺らぎに抑えられた。従来手法の 2 波長のパルス間差周波発生的手法においては光路長の揺らぎが問題となり、フィードバックをかけても典型的には 100 mrad 程度の揺らぎが存在していた。それに対し、本手法ではパルス内差周波発生による位相安定なシード光を光パラメトリック過程でシグナル光として増幅しているために高い安定性が得られたと考えられる。

さらに、本研究では電場の時間波形を直接観測できているため、光パラメトリック増幅の時間領域観測を行った (図 2 d)。ポンプ光とシード光の時間遅延を変化させて出力を調べることで、両者のタイミングが一致するときに増幅されていることを確認した。さらに、ポンプ光が先に入射する条件においては著しい出力の減少が観測された (図 2 e, f)。これはポンプ光の 2 光子吸収により生成されたキャリアが高周波テラヘルツ帯での吸収を引き起こすためであり、OPA の位相整合を満たさないポンプ光の偏光でも確認された。この 2 光子励起キャリアの立ち上がり時間が OPA の増幅ピークよりもわずかに後ろの時刻にあることを見出し、2 光子吸収のある系においても OPA が実現しうることに對する解釈を得ることができた。高強度な高周波テラヘルツ光源のためのレーザーと非線形光学結晶の組み合わせに関して、Yb 系レーザーと GaSe は現状では最も現実的な選択肢の一つであるが、このような 2 光子吸収が起きてしまう系でも増幅できることは重要な知見である。また、本研究で実現した高周波テラヘルツ帯のシグナル光としての増幅技術は、他の方法で発生させた高周波テラヘルツパルスの増幅にも適用できるものであり、複数段の増幅によるさらなる高強度化などへ非常に重要な要素技術である。

本研究での成果により、当初目標とした高強度高安定な高周波テラヘルツ光源の実現に成功し、物質の光励起状態の超高速分光や物性制御への道が拓かれた。

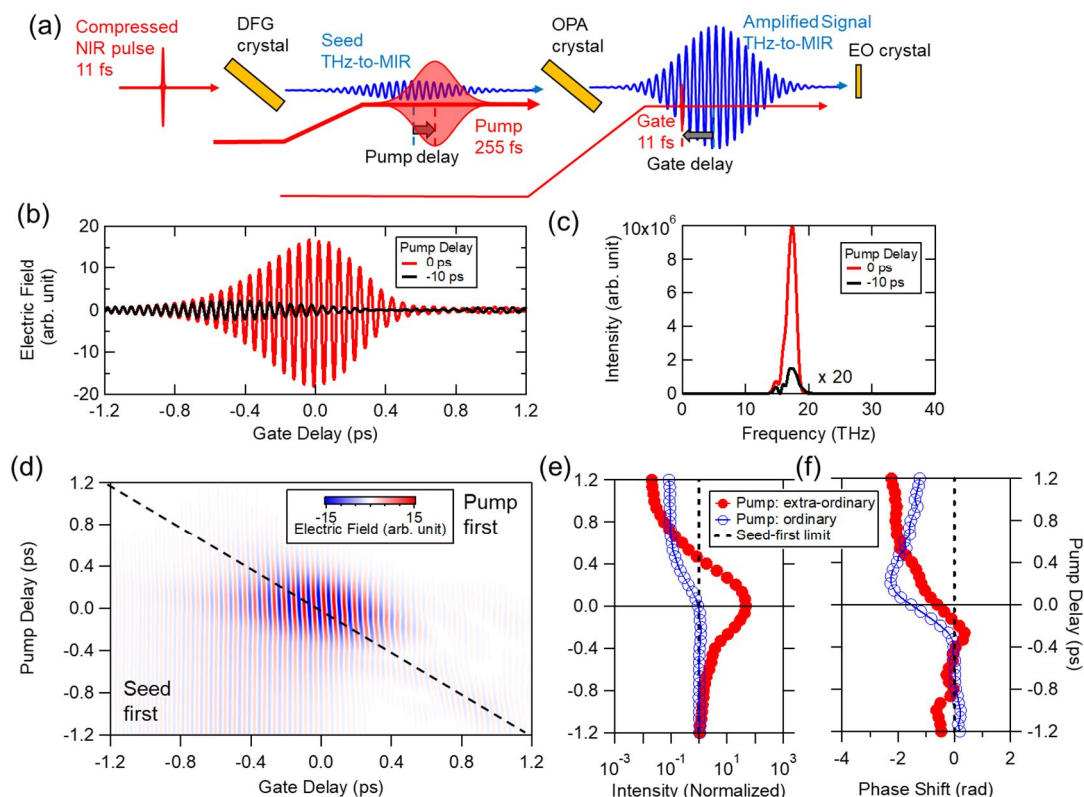


図 2 : 高周波テラヘルツ帯での光パラメトリック過程の観測。(a)実験概念図。(b) 増幅の有無での電場時間波形、(c) パワースペクトル。(d) OPA 出力の電場波形のポンプ遅延時刻依存性。(e)強度、(f)位相のポンプ遅延時刻依存性。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Bing Cheng, Natsuki Kanda, Tatsuhiko N. Ikeda, Takuya Matsuda, Peiyu Xia, Timo Schumann, Susanne Stemmer, Jiro Itatani, N. P. Armitage, and Ryusuke Matsunaga	4. 巻 124
2. 論文標題 Efficient Terahertz Harmonic Generation with Coherent Acceleration of Electrons in the Dirac Semimetal Cd ₃ As ₂	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 117402
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.124.117402	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 Natsuki Kanda, Nobuhisa Ishii, Jiro Itatani, and Ryusuke Matsunaga	4. 巻 arXiv:2005.03538
2. 論文標題 Time-domain spectroscopy of optical parametric amplification for phase-stable terahertz-to-midinfrared pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 arXiv (Optics)	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） なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 Natsuki Kanda, Nobuhisa Ishii, Jiro Itatani, and Ryusuke Matsunaga	4. 巻 29
2. 論文標題 Optical parametric amplification of phase-stable terahertz-to-mid-infrared pulses studied in the time domain	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 3479-3489
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.413200	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12件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 神田夏輝, 石井順久, 板谷治郎, 松永隆佑
2. 発表標題 マルチプレートブロードニングによる高周波テラヘルツ時間領域分光
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神田夏輝, 石井順久, 板谷治郎, 松永隆佑
2. 発表標題 高周波テラヘルツ帯における光パラメトリック増幅
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神田夏輝, Bing Cheng, 池田達彦, 松田拓也, 夏沛宇, Timo Schumann, Susanne Stemmer, 板谷治郎, N. P. Armitage, 松永隆佑
2. 発表標題 ディラック半金属における高効率テラヘルツ高調波発生
3. 学会等名 シンポジウム テラヘルツ科学の最先端
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神田夏輝, Bing Cheng, 池田達彦, 松田拓也, 夏沛宇, Timo Schumann, Susanne Stemmer, 板谷治郎, N. P. Armitage, 松永隆佑
2. 発表標題 ディラック半金属Cd ₃ As ₂ 薄膜における超高効率テラヘルツ高調波発生
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松永隆佑, 神田夏輝, 松田拓也
2. 発表標題 Yb系レーザーによるテラヘルツポンプ-テラヘルツプローブ分光系開発とディラック半金属のサブサイクル分光
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 池田達彦, 神田夏輝, Bing Cheng, 松田拓也, 夏沛宇, Timo Schumann, Susanne Stemmer, 板谷治郎, N. P. Armitage, 松永隆佑
2. 発表標題 ディラック半金属におけるテラヘルツ高次高調波発生の理論
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 神田夏輝, Bing Cheng, 池田達彦, 松田拓也, 夏沛宇, Timo Schumann, Susanne Stemmer, 板谷治郎, N. P. Armitage, 松永隆佑
2. 発表標題 ディラック半金属Cd3As2薄膜における高効率テラヘルツ高調波発生の観測とサブサイクル分光
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Natsuki Kanda, Bing Cheng, Tatsuhiko N. Ikeda, Takuya Matsuda, Peiyu Xia, Timo Schumann, Susanne Stemmer, Jiro Itatani, N. P. Armitage, and Ryusuke Matsunaga
2. 発表標題 Subcycle time-resolved study for efficient terahertz high harmonic generation in Dirac semimetal Cd3As2
3. 学会等名 SPIE OPTO Ultrafast Phenomena and Nanophotonics XXIV (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 神田夏輝, Bing Cheng, 池田達彦, 松田拓也, 夏沛宇, Timo Schumann, Susanne Stemmer, 板谷治郎, N. P. Armitage, 松永隆佑
2. 発表標題 3次元ディラック半金属Cd3As2薄膜における室温高効率テラヘルツ高次高調波発生と非平衡ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 池田達彦, 神田夏輝, Bing Cheng, 松田拓也, 夏沛宇, Timo Schumann, Susanne Stemmer, 板谷治郎, N. P. Armitage, 松永隆佑
2. 発表標題 ディラック半金属におけるテラヘルツ高次高調波の発生機構と電子の散乱・緩和時間依存性
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松田拓也, 神田夏輝, 池田達彦, 松永隆佑
2. 発表標題 空間反転対称性の破れたワイル半金属 WTe_2 のテラヘルツ非線形応答
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 神田夏輝, 室谷悠太, Timo Schumann, Susanne Stemmer, 吉信淳, 松永隆佑
2. 発表標題 3次元ディラック半金属 Cd_3As_2 薄膜の中赤外光励起ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>東京大学物性研究所松永研究室 https://matsunaga.issp.u-tokyo.ac.jp/publications.html</p>
--

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
研究協力者	松永 隆佑 (Matsunaga Ryusuke)		
研究協力者	板谷 治郎 (Itatani Jiro)		
研究協力者	石井 順久 (Ishii Nobuhisa)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関