

令和 5 年 5 月 22 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K22478

研究課題名（和文）高強度中赤外電場下におけるスピン依存伝導のサブサイクル分光観測

研究課題名（英文）Subcycle observation of spin-dependent transport under intense mid-infrared electric field transient

研究代表者

栗原 貴之（Kurihara, Takayuki）

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：60880151

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、高強度電場下の電子ダイナミクスにおけるスピン自由度の影響を検出するために必要な、高い安定性を持った数サイクル赤外光源の開発を行った。Yb再々増幅レーザーをポンプ光として用い、インライン差周波発生とパラメトリック増幅によって2 μm帯においてキャリアエンベロープ位相が固定された数サイクル中赤外パルス光の発生に成功した。また、テラヘルツ時間領域分光を用いて半導体GaAs中の電子ダイナミクスにおけるスピン偏極効果をプローブし、光誘起異常ホール効果を捉えた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高強度光電場下で生じる様々な非線形電子応答は物質の特性を観察・制御するために欠かせない手法となりつつあり、電子デバイスや材料開発にとって重要な知見を与える。そうしたダイナミクスを非常に感度よく検出するためには光源の安定性が欠かせない。今回確立したレーザー光源は同種の光源としては最高レベルの安定性を持ち、将来的には様々な物質系における非線形応答の精密測定に応用できると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this work, we have developed an infrared light source with a very high amplitude- and phase stability that is suitable for future applications in the high-field effect in correlated materials. By employing the Yb:KGW laser as a pump source and parametrically amplifying the carrier-envelope phase locked seed pulses generated by the inline difference frequency mixing, we generated the few-cycle mid infrared transients around 2 μm with approximately 2 cycle pulse duration and tens of microjoule output power at 100 kHz. Additionally, we revealed a spin-dependent transport dynamics of a photoexcited carrier by circularly polarized optical pump-terahertz polarization spectroscopy.

研究分野：超高速科学

キーワード：中赤外 パラメトリック増幅 光源開発 スピンホール効果 テラヘルツ

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

超短パルスレーザーの普及により、数サイクル程度の高強度光電場下で生じる特異な電子ダイナミクスは近年盛んに調べられるようになってきている。特に、固体中に破壊閾値近い高強度電場を照射した際に生じる高次高調波発生やドレスト状態などの現象はバンド構造を強く反映し、非平衡な物性を観察するための重要な方法論となりつつある。様々な物質系について研究がおこなわれてきたが、こうした非線形電子ダイナミクスに際してスピン状態がどのような影響を与えるかについては、いくつかの理論予測はあるものの、実験的な検証は進んでいない状況にある。これは、強電場効果に対してスピン系の与える影響は比較的小さいため、それを精密に検出するには極めて高い安定性をもったレーザー光源と検出系の開発が必要なためであると考えられる。

2. 研究の目的

そこで本研究では、固体中電子の非線形ダイナミクスの高精度検出という応用をターゲットとした、高安定な赤外レーザー光源を開発する。また、固体に位相安定な数サイクルパルスレーザーを照射して偏光応答を検出することで、電子ダイナミクスにおけるスピン状態の影響の観測に向けた基礎検証実験を行う。

3. 研究の方法

高強度電場効果を実現するためには、「電場強度が十分強い」「パルス幅が数サイクル」「キャリアエンベロープ位相 (CEP) 固定」な赤外レーザーが必要である。従来こうした光源の多くは 1 kHz 程度のチタンサファイヤレーザーをソースとした光パラメトリック増幅器 (OPA) によって実現されてきた。チタンサファイヤはパルスエネルギーが高く増幅帯域が広い利点があり過去 20 年間の光物性研究で中心的に用いられてきたが、近年勃興しつつある Yb ドープ系を増幅媒体とした固体レーザー (Yb:KGW など) はチタンサファイヤに比べて平均パワーが大きい、繰り返し周波数が高い、パルス毎の揺らぎが小さい、という特徴を有し、高いダイナミックレンジが必要となる精密な物性計測においてはチタンサファイヤレーザーよりも適していると考えられる。このことから、Yb レーザーを用いた OPA による高安定中赤外レーザー開発に着手することにした。

そのほか、高強度電場下のスピン伝導調査の前段階として、コヒーレント電磁場下における電子・スピンドイナミクスのサブサイクル分光が容易である THz 波を用いた THz 時間領域分光法を半導体や反強磁性体に対して適用し、スピン依存の電子伝導やスピンドイナミクス観測に向けた最適な物質系とプローブ方式の検討を行った。

4. 研究成果

主要な研究成果の概要を以下に記す。

(1) 高安定中赤外光源の開発 (T. Kurihara et al., *Opt. Express*, 31(7), 11649–11658 (2023))

位相がなるべく安定な数サイクル中赤外光を発生するために、パルス内インライン差周波発生 (DFG) によって CEP を固定し、これを縮退 OPA で増幅する、という方式を確立した。ワンボックス型の高繰り返し Yb:KGW 再生増幅レーザー (100 kHz, 400 uJ, 260 fs) をソースとして、イットリウムアルミニウムガーネット (YAG) 結晶中のバルクフィラメンテーションにより、500 nm - 1400 nm をカバーするコヒーレントなスーパーコンティニューム光を発生した。これを時間的に圧縮して BiB306 (BiBO) 結晶に照射し、700 nm 成分と 1030 nm 成分で差周波発生を行ったところ、1600 nm - 2500 nm 帯域のブロードバンドで CEP 安定な中赤外パルス光を得られた。これをシード光として、BiBO 結晶の縮退 OPA で 2 段階増幅することにより、スペクトル幅を 1700 nm - 2500 nm と広帯域に保ったまま、数 10 uJ のパルスエネルギーを得られた (図 1 (a))。これを分散媒質中の透過とカスタムデザインのチャープミラーでの反射を用いて圧縮することで、中心波長 2100 nm、パルス幅およそ 2 サイクルの中赤外パルス発生に成功した (図 1 (b))。シード光発生方式として従来多く用いられていた 2 色干渉計ではなく、差周波発生に関わる全ての光が共通の光学素子を通過するインライン DFG 方式を用いたことで、各波長のパス長さが機械的不安定性に対してロバストになった。その結果、長期オペレーションにおける CEP 揺らぎを 100 rad 以下に抑えられた (図 1 (c))。これは 2 um 帯域における同様の OPA と比べても世界最高レベルに近い安定性である。また、平均出力の揺らぎは 10^{-3} 程度であり、元のポンプソースとほぼ同等であることが確かめられた (図 1 (d))。これらより、物性応用に耐えうる高い安定性を持った中赤外光源の開発に成功した。

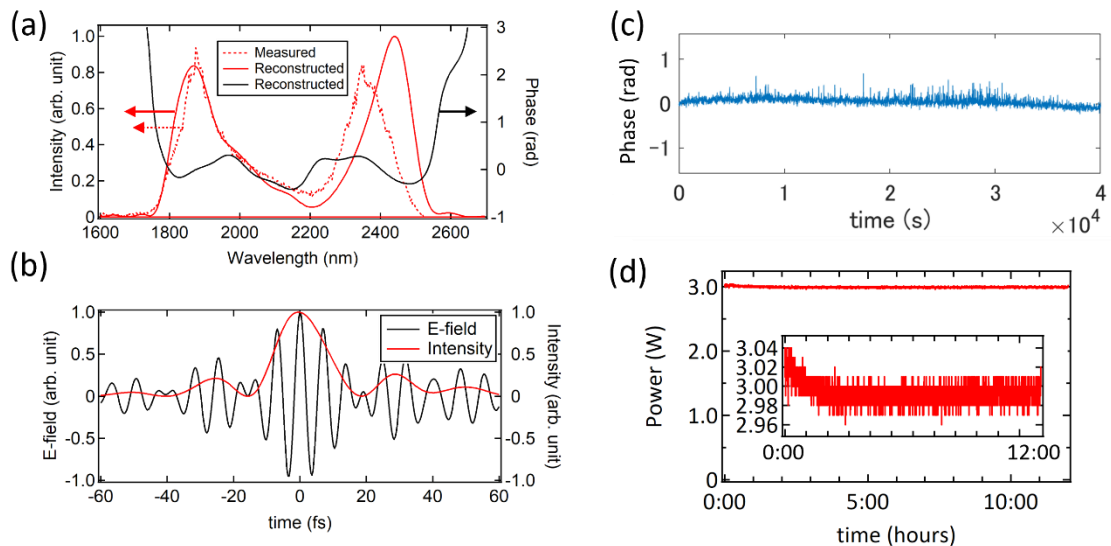


図 1 : 構築した 2 μm 帯の数サイクル中赤外レーザーパルス。(a) FROG 計測から再構築された振幅・位相スペクトル, (b) (a)から計算された実時間波形, (c) f-2f 測定により計測された 11 時間にわたる CEP 揺らぎの長期安定性, (d) 12 時間にわたる強度揺らぎの長期安定性。T. Kurihara et al., Opt. Express, 31(7), 11649–11658 (2023)より引用。

(2) GaAs における THz 異常ホール効果 (T. Fujimoto et al., arXiv:2305.09155 (2023))

コヒーレントな電場下でのサブサイクル分光が容易である THz 帯に着目して, 光ポンプによりスピン偏極した電子のダイナミクスを調べた。MBE 成長したバルク GaAs 結晶に対して GaP 結晶の光整流で発生した THz 波を透過させ, 時間遅延をつけた円偏光ポンプパルス照射した際の THz 波の偏光回転を調べた。その結果, 透過 THz 波は偏光回転を生じ, その方向はポンプヘリシティに応じて反転することがわかった。この効果はポンプ円偏光波長がバンドギャップ付近の際に顕著であり, ポンプ光から数 10 ps の間持続することが見いだされた。これらは円偏光によりスピン偏極した電子系による異常ホール効果として解釈できた。スペクトル形状を理論と詳細に比較することで, THz 帯域の光励起異常ホール効果においては, DC 領域で調べられてきた通常伝導と比べて不純物等の外因的スピン散乱よりも, バンド自体による内在的なスピン軌道効果の影響が主体であることがわかった。

(3) 高強度 THz 波で励起されたマグノン非線形性の観測 (T. Kurihara, et al., Commun Phys 6, 51, 1-6 (2023))

キュント型反強磁性体であるオルソフェライトは THz 帯域に磁気共鳴を持ち, 高強度 THz 波による大振幅なマグノン励起が可能である。励起されたマグノンダイナミクスは多くの場合小さく, 通常用いられるファラデー回転やカー回転などの磁気光学効果では線形応答に埋もれる問題があった。これに対し, 近赤外プローブ光の吸収を検出することによる磁気複屈折効果を用いて, 高強度 THz 波で励起されたマグノンの非線形ダイナミクスをより高感度に検出できることを実験的に見出した。LiNbO3 の光整流効果による高強度 THz 波をオルソフェライト YFeO3 に照射し吸収を検出したところ, 線形応答である疑似強磁性モード (qFM) の 2 次高調波信号が観測された。Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を用いたスピンドイナミクス計算と磁気複屈折効果を取り入れた理論解析との比較から, これは従来の線形応答では qFM 運動に際して一定であると考えられてきた副格子スピン間のキュント角が, 非線形応答領域では周期的に変調を受けていることを意味していると解釈できた。より詳細な解析計算との比較から, このようなキュント角変調は qFM モードと独立なもう一つのマグノンモードである疑似反強磁性モード (qAFM) の間の混成を表す可能性が示唆された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kurihara Takayuki, Yang Tianqi, Mizuno Tomoya, Kanai Teruto, Itatani Jiro	4. 巻 31
2. 論文標題 Highly CEP-stable optical parametric amplifier at 2 μm with a few-cycle duration and 100 kHz repetition rate	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 11649 ~ 11649
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.481126	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 -
1. 著者名 Kurihara Takayuki, Bamba Motoaki, Watanabe Hiroshi, Nakajima Makoto, Suemoto Tohru	4. 巻 6
2. 論文標題 Observation of terahertz-induced dynamical spin canting in orthoferrite magnon by magnetorefractive probing	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 51
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s42005-023-01167-3	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 -
1. 著者名 Schoenfeld Christoph, Sulzer Philipp, Brida Daniele, Leitenstorfer Alfred, Kurihara Takayuki	4. 巻 47
2. 論文標題 Passively phase-locked Er:fiber source of single-cycle pulses in the near infrared with electro-optic timing modulation for field-resolved electron control	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 3552 ~ 3552
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.461076	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 Nakajima Makoto, Isoyama Goro, Kurihara Takayuki	4. 巻 49
2. 論文標題 Magnetic Domain Control of ErFeO ₃ by Intense Terahertz Free Electron Laser Pulses	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 IEEE Transactions on Plasma Science	6. 最初と最後の頁 3344 ~ 3350
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TPS.2021.3112456	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 -

1. 著者名 Fitzky Gabriel、Nakajima Makoto、Koike Yohei、Leitenstorfer Alfred、Kurihara Takayuki	4. 巻 127
2. 論文標題 Ultrafast control of magnetic anisotropy by resonant excitation of 4f electrons and phonons in Sm0.7Er0.3FeO3	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 107401-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.127.107401	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

[学会発表] 計7件(うち招待講演 0件/うち国際学会 2件)

1. 発表者名 栗原 貴之、水野 智也、金井 輝人、板谷 治郎
2. 発表標題 Yb固体レーザーをベースとしたCEP安定2um帯OPAの開発
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 栗原貴之、楊 添淇、水野 智也、金井 輝人、板谷 治郎
2. 発表標題 2 um帯におけるCEP安定、高繰り返し、高出力OPAの開発
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Gabriel Fitzky, Alfred Leitenstorfer, Makoto Nakajima, Yohei Koike, and Takayuki Kurihara
2. 発表標題 Ultrafast Control Of Magnetic Anisotropy By Resonant 4f Electronic And Phonon Excitations In Sm0.7Er0.3FeO3
3. 学会等名 IRMMW-THz 2021 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Kurihara, M. Nakajima, T. Shimizu, Y. Koike, and G. Isoyama
2. 発表標題 Manipulation of ferromagnetic domain by the terahertz free electron laser excitation
3. 学会等名 45TH INTERNATIONAL CONFERENCE ON INFRARED, MILLIMETER, AND TERAHERTZ WAVES (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 栗原貴之, Gabriel Fitzky, 弘田和將, 小池遥平, 邱紅松, 中嶋誠, Alfred Leitenstorfer
2. 発表標題 中赤外f-f電子共鳴によるSm0.7Er0.3Fe03のスピンの再配列相転移
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 栗原 貴之, 楊 添淇, 水野 智也, 金井 輝人, 板谷 治郎
2. 発表標題 Yb:KGWレーザー高調波による白色光スーパーコンティニューム発生
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第41回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takayuki Kurihara, Christoph Schoenfeld, Daniele Brida, Alfred Leitenstorfer
2. 発表標題 Development and characterization of a high repetition, quasi single cycle near infrared light source with passively stabilized carrier envelope phase and its application to quantum interference in semiconductor electrons
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第41回年次大会
4. 発表年 2021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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------