

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：12701

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760045

研究課題名(和文)超短パルスレーザーによる高強度THz波発生メカニズムの解明とその物性測定への応用

研究課題名(英文)Generation mechanism of high-power terahertz field from the plasma induced by two color optical pulses and the applications

研究代表者

南 康夫(MINAMI, Yasuo)

横浜国立大学・工学研究院・研究教員

研究者番号：60578368

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：2色の超短パルス光誘起プラズマにより、高強度テラヘルツ波を発生させる手法を確立し、最大電場1.4 MV/cmのテラヘルツ波を得ることに成功した。この高強度テラヘルツ波発生法を確立したのち、高強度テラヘルツ分光法、光ポンプ-テラヘルツプローブ分光法、高強度テラヘルツポンプ-テラヘルツ分光法といった各種分光法を開発した。開発した分光法により、各種白金錯体、半金属薄膜、金属薄膜を測定試料とし、物質内のキャリアダイナミクスを観察した。いくつかの物質において、高強度テラヘルツ波によるキャリアの非線形応答を発現、観察することに成功した。この非線形応答の起源を物性物理学的知見から明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We successfully generated intense terahertz field with 1.4 MV/cm from the plasma induced by two-color pulses. Using the method, we developed the intense terahertz spectroscopy, optical pump-terahertz probe spectroscopy, and terahertz pump-terahertz probe spectroscopy. We applied the spectroscopies to halogen-bridged platinum complexes, semiconductors, semimetals, and metals. Then, in some specimens, nonlinear carrier dynamics were observed, whose dynamics were successfully explained by the simple methods.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用光学・量子光工学

キーワード：テラヘルツ科学 非線形光学 テラヘルツ分光学 超高速分光 高強度テラヘルツ波

### 1. 研究開始当初の背景

高強度テラヘルツ波は、THz 域にエネルギーを持つ自由度の素励起、非線形 THz スペクトロスコーピー、テラヘルツイメージングなどへの応用が期待されており、様々な発生手法が研究されている。自由電子レーザーやシンクロトロンによる大掛かりな装置によって 1 MV/cm を超えるテラヘルツ波の発生が可能となった一方で、テーブルトップサイズの装置での高強度テラヘルツ波発生も可能となりつつある。特に最近、超短パルスレーザーの基本波と 2 倍波によって励起された気体プラズマから高強度テラヘルツ波を発生させることが可能となり、強力かつ拡張性の高いテラヘルツ波源として発展が期待されている。このテラヘルツ波は超短パルスレーザーにより励起されたプラズマによる光整流効果によって発生すると考えられていたが、Kress らによると束縛電子と自由電子の 3 次の非線形係数では高い強度のテラヘルツ波発生は説明できない。ところが、Xie らは、発生したテラヘルツ波の電場が 3 次の非線形感受率を介した光整流効果によることを実験的に検証した。一方、Kim らは実験結果が、気体分子のイオン化過程におけるプラズマ電流によるテラヘルツ波発生の計算とよく一致することを確かめた。Xie らによる説、Kim らによる説はどちらも尤もらしく、よくテラヘルツ波発生のメカニズムを説明しているようだが、ともにテラヘルツ波発生メカニズムを説明するための直接的な実験を行ってはおらず、説得力に欠ける。つまり、超短パルスレーザーの基本波と 2 倍波による気体プラズマからの高強度テラヘルツ波発生メカニズムは未だ解明されていないと言える。そこで申請者は、テラヘルツ波発生メカニズムの解明に向けて実験的側面からアプローチする。

### 2. 研究の目的

近年、超短パルスレーザーの基本波と 2 倍波によって励起された気体プラズマから高強度テラヘルツ波を発生させることが可能となった。このテラヘルツ波発生メカニズムには、プラズマ内での基本波と 2 倍波の光整流効果によるものと、気体分子のイオン化過程のプラズマ電流によるものの 2 通りが考えられているが、未だ発生メカニズムは明らかになっていない。この手法によるテラヘルツ波発生メカニズムの解明は、発生するテラヘルツ波のさらなる高強度化を図る上で必要不可欠である。本研究の目的は、プラズマからの高強度テラヘルツ波発生メカニズムを実験的手法により明らかにし、それを物性測定に適用することである。

### 3. 研究の方法

現在までに申請者は、フェムト秒レーザーを用いて予め気体中にプラズマを作っておき、そこに基本波と 2 倍波を入射し、テラヘ

ルツ波を発生させるという実験を行っている。ディレー光学素子により、Prepulse - Main Pulse 間の時間間隔を 0 ~ 2 ns の領域で変えられる。Prepulse に励起されたプラズマの寿命は 100 ps のオーダーであり、時間間隔を 0 ~ 2 ns の領域で変えられることはテラヘルツ波発生のメカニズムを明らかにする上で必要不可欠である。Main Pulse によって発生したテラヘルツ波電場の、Prepulse - Main Pulse 間の時間間隔依存性から、Prepulse によってプラズマが発生し、その後 Main Pulse によってテラヘルツ波が発生するが、テラヘルツ波は大きく抑制された後、数 100 ps で大きく回復し、さらにゆっくりと回復する。この数 100 ps の回復時間はプラズマの寿命とよく一致し、Prepulse によるプラズマの存在が Main Pulse からのテラヘルツ波発生を抑制することを意味している。この事実は、Xie らの主張した、プラズマの 3 次の非線形感受率を介した光整流効果によりテラヘルツ波が発生するという説を否定するものである。

現在までの実験により、申請者はこの特異な現象を徹底的に研究することで、テラヘルツ波発生のメカニズムを解明し、高強度化の手掛かりを得ようという考えに至った。超短パルスレーザーの基本波と 2 倍波によって励起された気体中プラズマによるテラヘルツ波発生メカニズムを明らかにする。申請者が現在までに行った実験から、プラズマの存在により、Main Pulse から発生するテラヘルツ波が抑制されること、テラヘルツ波発生強度の回復には早いプロセスと遅いプロセスの 2 つのプロセスがあること、そして、早いプロセスの緩和時間が励起されたプラズマの寿命によく一致することが分かっている。この抑制の原因をつきとめ、テラヘルツ波発生のメカニズムが気体分子のイオン化過程におけるプラズマ電流によるものであることを直接観察する。具体的には、Prepulse によって励起されたプラズマの寿命を、Streak Camera を用いた発光スペクトル観察から測定する。また、Z スキャンを Prepulse と Main Pulse の時間間隔を変えて行い、THz 波発生強度回復の遅い緩和プロセスの原因を明らかにする。

### 4. 研究成果

2 色の超短パルス光を気体中で集光してプラズマを発生させ、そこからテラヘルツ波を発生させる手法により最大電場 1.4 MV/cm のテラヘルツ波を得ることに成功した (図 1)。

この高強度テラヘルツ波発生法を確立したのち、高強度テラヘルツ分光法、光ポンプ - テラヘルツプローブ分光法、高強度テラヘルツポンプ - テラヘルツ分光法といった各種分光法を開発した。

開発した分光法により、各種白金錯体 (図 2)、半金属薄膜 (図 3)、金属薄膜 (図 4) を測定試料とし、物質内のキャリアダイナミクスを観察した。いくつかの物質において、高

強度テラヘルツ波によるキャリアの非線形応答を發現、観察することに成功した。この非線形応答の起源を物性物理学的知見から明らかにした。

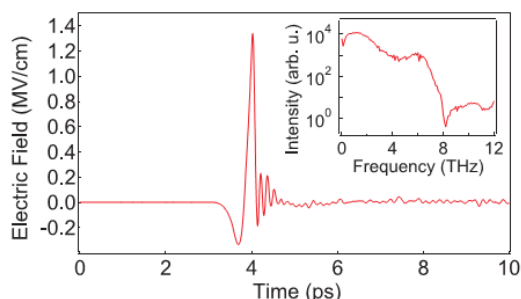


図 1 高強度テラヘルツ波の時間波形とパワースペクトル

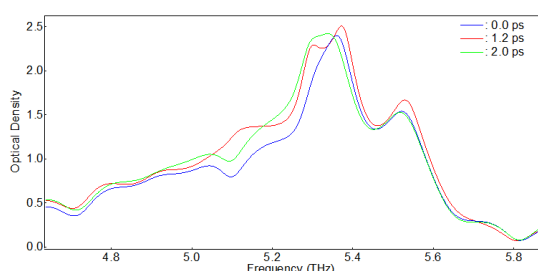


図 2 光ポンプによる白金錯体の THz 域の吸収変化。

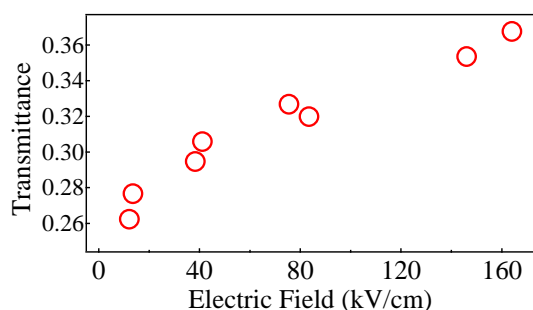


図 3 ビスマス薄膜のテラヘルツ波透過率の照射テラヘルツ波電場依存性。

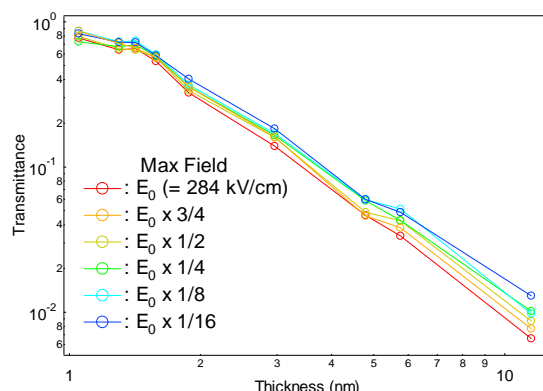


図 4 金薄膜のテラヘルツ波透過率の膜厚依存性と照射テラヘルツ波電場依存性。

## 5 . 主な発表論文等

(雑誌論文)(計 9 件)

Y. Minami, H. Yamaki, I. Katayama, and J. Takeda, "Broadband Pump-Probe Imaging Spectroscopy Applicable to Ultrafast Single-Shot Events," *Appl. Phys. Express* **7**, 022402 (2014). 査読有

DOI: 10.7567/APEX.7.022402

Y. Minami, Y. Hayashi, J. Takeda, and I. Katayama, "Single-shot measurement of a terahertz electric-field waveform using a reflective echelon mirror," *Appl. Phys. Lett.* **103**, 051103 (2013). 査読有

DOI: 10.1063/1.4817011

Y. Minami, T. Kurihara, K. Yamaguchi, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Longitudinal terahertz wave generation from an air plasma filament induced by a femtosecond laser," *Appl. Phys. Lett.* **102**, 151106 (2013). 査読有

DOI: 10.1063/1.4802482

K. Yamaguchi, T. Kurihara, Y. Minami, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Terahertz Time-Domain Observation of Spin Reorientation in Orthoferrite  $\text{ErFeO}_3$  through Magnetic Free Induction Decay," *Phys. Rev. Lett.* **110**, 137204 (2013). 査読有

DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.137204

Y. Minami, T. Kurihara, K. Yamaguchi, M. Nakajima, and T. Suemoto, "High-power THz wave generation in plasma induced by polarization adjusted two-color laser pulses," *Appl. Phys. Lett.* **102**, 041105 (2013). 査読有

DOI: 10.1063/1.4789773

Y. Minami, T. Yogi, and K. Sakai, "Rotational relaxation in diatomic gas at high temperature observed with Brillouin scattering spectroscopy," *J. Opt.* **13**, 075708 (2011). 査読有

DOI: 10.1088/2040-8978/13/7/075708

Y. Minami, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Effect of preformed plasma on terahertz-wave emission from the plasma generated by two-color laser pulses," *Phys. Rev. A* **83**, 023828 (2011). 査読有

DOI: 10.1103/PhysRevA.83.023828

(学会発表)(計 99 件)

I. Katayama, Y. Hayashi, K. Masuda, Y. Minami, and J. Takeda, "Single-shot Terahertz Spectrometer Using an Echelon Mirror and Air Plasma," The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR 2013), Abstracts p. 62, Kyoto, Japan, July 2013.

M. F. Avila-Ortega, I. Katayama, Y. Minami, J. Takeda, and M. Kitajima, "Ultrafast Dynamics of the Interlayer Shearing Mode in Au Graphite Nanostructures," The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR 2013), Abstracts p. 62, Kyoto, Japan, July 2013.

- T. Ohshima, Y. Minami, I. Katayama, and J. Takeda, "Broadband THz Time-Domain Spectroscopy of Halogen-Bridged Platinum Complexes," The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR 2013), Abstracts p. 62, Kyoto, Japan, July 2013.
- I. Katayama, Y. Ikegaya, Y. Minami, and J. Takeda, "Control of Phonon Polariton Propagation in LiNbO<sub>3</sub> Single Crystals," The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2013), Abstracts p. JTh2A.25, San Jose, USA, June 2013.
- K. Sato, I. Katayama, K. Tahara, Y. Minami, J. Takeda, K. Yanagi, and M. Kitajima, "Resonant Enhancement of Coherent High-Order Phonons in Single-Walled Carbon Nanotubes," The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2013), Abstracts p. JTh2A.46, San Jose, USA, June 2013.
- T. Takizawa, I. Katayama, Y. Minami, M. Kitajima, and J. Takeda, "E-mode Phonon-Polariton Dispersion in LiNbO<sub>3</sub> Probed via Frequency-Resolved Coherent Phonon Spectroscopy," The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2013), Abstracts p. JTh2A.39, San Jose, USA, June 2013.
- Y. Minami, Y. Hayashi, J. Takeda, and I. Katayama, "Single-Shot Observation of THz Field with a Reflective Echelon Mirror," The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2013), Abstracts p. CW1K.2, San Jose, USA, June 2013.
- J. Takeda, Y. Ikegaya, H. Sakaibara, Y. Minami, and I. Katayama, "Single-Shot Time-Frequency Mapping of Coherently Controlled Phonon-Polariton Propagations in Ferroelectric LiNbO<sub>3</sub>," International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology 2013 (OTST 2013), Abstracts p. 62, Kyoto, Japan, April 2013.
- I. Katayama, Y. Hayashi, Y. Minami, and J. Takeda, "Single-shot Detection of Terahertz Electric-Field Waveform Generated Using a Grating-coupled LiNbO<sub>3</sub> Single Crystal," International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology 2013 (OTST 2013), Abstracts p. 115, Kyoto, Japan, April 2013.
- Y. Minami, T. Ohshima, I. Katayama, and J. Takeda, "Observation of the asymmetric stretch mode in PtX with a broad-band THz Spectroscopy," International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology 2013 (OTST 2013), Abstracts p. 336, Kyoto, Japan, April 2013.
- K. Yamaguchi, T. Kurihara, Y. Minami, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Study of Spin Reorientation Phenomena in Erbium Orthoferrite Observed by Free Induction Decay Signals After Half Cycle THz Pulse Excitation," International Symposium on Frontiers in Terahertz Technology 2012 (FTT 2012), Pos. 2 31, Nara, November 2012. (Student Best Presentation Award)
- K. Yamaguchi, T. Kurihara, Y. Minami, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Observation of Spontaneous Spin Reorientation in ErFeO<sub>3</sub> with Terahertz Time Domain Spectroscopy," 37th International Conference on Infrared and Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2012), Abstracts p. Thu-B-4-3, Wollongong, September 2012. (Student Award (First Place))
- 南康夫, Thang Duy Dao, 長尾忠昭, 武田淳, 北島正弘, 片山郁文, "THz 波による半金属ピスマスの光励起キャリアダイナミクス計測," 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 講演予稿集 p. 04-216, 相模原, 2014 年 3 月 18 日.
- 吉岡克将, 南康夫, Thang Duy Dao, 長尾忠昭, 首藤健一, 武田淳, 北島正弘, 片山郁文, "高強度 THz 波を用いた金微細構造における非線形光学応答," 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 講演予稿集 p. 04-215, 相模原, 2014 年 3 月 18 日.
- 南康夫, "半金属ピスマス内ディラック様バンドのキャリアダイナミクスの相対論的効果," 新学術領域研究「コンピュティクスによる物質デザイン: 複合相関と非平衡ダイナミクス」平成 25 年度第 2 回研究会, P38, 東京, 2014 年 3 月 10 日.
- 南康夫, 荒木光太郎, Thang Duy Dao, 長尾忠昭, 武田淳, 北島正弘, 片山郁文, "ピスマス薄膜内キャリアのテラヘルツ波応答," 第 24 回光物性研究会, 論文集 pp. 135-138, 大阪, 2013 年 12 月 13 日.
- 南康夫, 荒木光太郎, Thang Duy Dao, 長尾忠昭, 武田淳, 北島正弘, 片山郁文, "高強度テラヘルツ波による半金属薄膜内キャリアの非線形ダイナミクス," 日本物理学会 2013 年秋季大会, 講演概要集 p. 685, 徳島, 2013 年 9 月 27 日.
- 荒木光太郎, 南康夫, Duy Thang Dao, 長尾忠昭, 武田淳, 北島正弘, 片山郁文, "THz 時間領域分光法を用いた半金属ピスマスの非線形応答," 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 講演予稿集 p. 04-216, 京田辺, 2013 年 9 月 18 日.
- 南康夫, 林 勇介, 片山 郁文, 武田 淳, "シングルショットでの THz 波観察," 第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 講演予稿集 p. 04-194, 厚木, 2013 年 3 月 29 日.
- 荒木光太郎, 南康夫, 片山郁文, 武田淳, "パルス面傾斜法を用いた高強度テラヘルツ波の発生とその応用," 第 8 回ナノテク交流シンポジウム, 予稿集 p. 66, 横浜, 2013 年 3 月 6 日.
- 21 増田開晴, 林勇輔, 南康夫, 片山郁文, 武田淳, "反射型エシエロンを用いたプラズ

- マによるテラヘルツ波のイメージング," 第 8 回ナノテク交流シンポジウム, 予稿集 p. 68, 横浜, 2013 年 3 月 6 日.
- 22 林勇輔, 南康夫, 片山郁文, 武田淳, "反射型エシエロンを用いたテラヘルツ電場波形のシングルショット測定," 第 23 回光物性研究会, 論文集 pp. 81-84, 大阪, 2012 年 12 月 7 日.
- 23 林勇輔, 南康夫, 片山郁文, 武田淳, "反射型エシエロンを用いたテラヘルツ波のシングルショットイメージング," 2012 年テラヘルツ分光シンポジウム, 講演要旨集 p. 49, つくば, 2012 年 10 月 25 日.
- 24 大島拓也, 南康夫, 片山郁文, 武田淳, "擬一次元白金錯体の広帯域テラヘルツ時間領域分光," 2012 年テラヘルツ分光シンポジウム, 講演要旨集 p. 55, つくば, 2012 年 10 月 25 日.
- 25 山口啓太, 中嶋誠, 南康夫, 末元徹, "テラヘルツ波ダブルパルスによる弱強磁性体における超高速スピン制御," 第 72 回応用物理学会学術講演会, 講演予稿集 p.04-177, 2011 年 8 月.  
(講演奨励賞受賞)
- 26 南康夫, 中嶋誠, 山口啓太, 末元徹, "2 色超短パルス光励起プラズマからの高強度 THz 波発生におけるプレパルス光照射の効果とプレパルス光励起プラズマの性質," 第 72 回応用物理学会学術講演会, 講演予稿集 p.04-158, 2011 年 8 月.

〔その他〕

ホームページ

<http://www.ultrafast.ynu.ac.jp/minami/index.html>

<http://www.ultrafast.ynu.ac.jp/minami/eng.html>

[http://er-web.jmk.ynu.ac.jp/html/MINAMI\\_Yasuo/ja.html](http://er-web.jmk.ynu.ac.jp/html/MINAMI_Yasuo/ja.html)

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

南 康夫 (MINAMI, Yasuo)

横浜国立大学・大学院工学研究院・知的構造の創生部門・研究教員

研究者番号：6 0 5 7 8 3 6 8