

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25820144

研究課題名(和文)量子固体を用いた高強度中赤外・テラヘルツ光源の開発

研究課題名(英文)Development of an intense mid-infrared and THz light source by using quantum solid

研究代表者

宮本 祐樹 (Yuki, Miyamoto)

岡山大学・極限量子研究コア・助教

研究者番号：00559586

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：中赤外からテラヘルツ領域の光は様々な分野への応用が進められており、光源開発を含めた各種の技術研究も盛んにおこなわれている。本研究の目的は固体水素ラマンシフターによる高強度・狭線幅・波長可変中赤外～テラヘルツ光源の開発である。研究代表者は中赤外からテラヘルツ領域で使用可能なラマンシフター用の高品質固体水素を簡便に作成する方法を確立し、3色のレーザー光を用いて狭線幅で波長可変な中赤外のパルスを発生させることに成功した。

研究成果の概要(英文)：Light at mid-infrared and THz region has been applied to various fields and a variety of techniques including light sources has been intensively investigated. A purpose of this work is development of an intense, narrow linewidth, and tunable light source emitting mid-infrared and THz photons by using a solid parahydrogen Raman shifter. A method of preparing high quality solid parahydrogen which can be used as Raman shifter in mid-infrared to THz region was developed and narrow linewidth, tunable mid-infrared was generated using the shifter with three laser pulses.

研究分野：分子科学

キーワード：テラヘルツ 固体水素

1. 研究開始当初の背景

光と電波の中間に位置し、両者の特性を併せ持つテラヘルツ領域の光は、近年、科学技術分野から産業分野まで様々な応用が進められている。光源開発を含め、技術研究も各分野で盛んにおこなわれている。光源としては、マイクロ波の技術が使えるサブテラヘルツ領域 (< 1 THz) では後進波管などの実用的な波長可変コヒーレント光源があるが、1 THz 以上の領域では、マイクロ波技術も一般的な光学の技術もそのままでは適応が難しいため、周波数掃引可能な狭線幅光源の開発はあまり進んでいない。特に光学分野で一般的な非線形媒質による波長変換の応用が、位相整合条件が厳しいこと、また媒質がその領域で透明でなければならないことから制限されている影響が大きい。1 THz から中赤外にかけての、狭線幅かつ波長可変な光源の開発、またその高出力化は今後のさらなる応用に向けて重要である。

2. 研究の目的

本研究の目的は固体パラ水素ラマンシフターによる高強度・狭線幅・波長可変な中赤外～テラヘルツ光源の開発である。固体パラ水素 (以下、固体水素) は量子固体と呼ばれる特徴的な媒質の一つである。一般的に固体は周囲との相互作用が大きいことコヒーレンス時間が短い、量子固体の性質から固体水素のコヒーレント時間は例外的に長いことが本研究では重要である。長いコヒーレンス時間と固体の高い密度により、高密度かつ高コヒーレントな振動状態を用意することができ、高コヒーレント媒質を用いることで高効率な誘導ラマン散乱を発生させることができること期待される。さらに固体水素は、いくつかの回転遷移や振動遷移、およびフォノンバンドを除き、基本的にテラヘルツ領域から可視領域まで透明である。以上の性質から固体水素をラマンシフターとして用いることで光領域から中赤外・テラヘルツ領域への効率よい波長変換が可能であると考えられる。本研究では (1) 中赤外～テラヘルツ領域で使用可能な高品質固体水素の簡便な作成法の確立、および (2) それを用いた中赤外・テラヘルツ光の発生、を目指す。

3. 研究の方法

(1) 高品質固体水素の簡便な作成法

光学品質の固体パラ水素を得る手法はいくつか知られているが、もっとも高品質な (光学的に透明で損傷閾値が高い) 結晶が得られる手法は高圧液体水素から単結晶を作成する方法である [1]。しかしこれまで行われてきた方法は温度制御、圧力制御等が煩雑であり、波長変換デバイスとして考えた場合、より簡便な手法が望ましい。またこれまで固体水素用セルに使われてきた光学窓材はテラヘルツに対して透明ではないものが多いため、窓材の検討も必須である。

本研究では、新たな手法として市販の水素ガスシリンダーの圧力をそのままセルにかける手法を開発する。まず、ノーマル水素ガス (オルソ水素 75%) は通常のシリンダーから高圧のまま、14K 程度に冷却された酸化水酸化鉄触媒からなるコンバーターを通りパラ水素に変換される (オルソ水素 ~0.01%)。続いて、パラ水素はステンレス製のセルに流し込まれる。セルの下部には、冷凍機のコールドヘッドからのばされた銅製のコールドポストが差し込まれており、熱伝導の悪いステンレス部分からは結晶成長せず、温度の低いコールドポストからのみ結晶が成長する。このようにしてできた結晶は単結晶に近いことが知られている。

前述のように本研究では固体水素セルの窓材の選定が重要である。まず可視光領域からテラヘルツ領域まで透明である必要がある。また 4 K 程度の低温、数十気圧程度の高圧に耐えることも必須である。さらに熱伝導が悪いと窓と結晶の境界面での結晶成長が悪くなり、結晶表面における損傷が問題になる可能性がある。そのため熱伝導度が低温においても高いことが望ましい。そこで本研究ではダイヤモンド窓を採用する。ダイヤモンドは紫外からテラヘルツ領域まで透明であり、高強度で熱伝導率も高いため本研究には最適な窓材と考えられる。

(2) 固体水素による中赤外～テラヘルツ光の発生

以上で開発した結晶をラマンシフターとして用い、中赤外～テラヘルツ領域の光の発生を試みる。2 本の高強度のナノ秒可視光パルスレーザーにより誘導ラマン散乱を起こし、高コヒーレントな固体パラ水素の振動励起状態を用意する。そこにさらに近赤外領域のパルス OPO レーザーを入射して、1 次ストークス光または 2 次ストークス光として中赤外～テラヘルツ領域の誘導ラマン光を得る。このように 3 本のレーザーを用いる利点は、まず高強度の可視光レーザーが使えるので、より高いコヒーレント状態の作成が可能であること、さらに発生する光周波数を掃引する場合に、近赤外光の周波数のみで制御可能である点である。

4. 研究成果

本研究で作成したダイヤモンド窓高圧固体水素用のセルの写真を図 1 に示す。光学窓の径は 6 mm で厚さ 10 mm である。ダイヤモンド窓は化学気相成長法により作られた人口ダイヤモンドで、厚さは 0.5 mm である。ダイヤモンドは高い弾性限界を持つため、この厚さで数十気圧の高圧に耐えることができる。下部の銅の丸い円盤が冷凍機のコールドヘッドであり、セル下部からステンレス部に差し込まれている銅製のコールドポストと熱的に接続されている。このセルを真空にしたクライオスタット内で 4 K 程度まで冷却

した。そのまま上部の導入管より、流量を 0.1 SLM (標準リットル毎分) に制御しながらパラ水素ガスを導入すると、セルは低圧で成長した質の悪い固体で埋まってしまい、高品質な固体を得ることができなかった。そこでセルにヒーターで 1W 程度の熱を与えながらガスを流したところ、セルの温度が徐々に上がり、セル内に液体水素を溜めることができた。約 10 分で 10 K・8 気圧程度の液体水素が得られた。この時点でヒーターを切るとセルの温度は下がり始め、透明な固体がセルのクールドポスト側から成長し始めるのが観測された。その後 10-20 分で透明な固体がセルの全体を埋めた。セルが完全に 4 K に戻っても結晶はほぼ透明なままであった。



図 1 ダイヤモンド窓高圧固体水素セル

このようにして得られた結晶の損傷閾値を測定した。測定にはコヒーレント生成用の誘導ラマン散乱に用いる Nd:YAG レーザーの二倍波 (532 nm) と色素レーザー (684 nm) を用いた。レーザー光を $f=1000$ mm のレンズで集光し、セルの位置でビームプロファイラによりそれぞれの径を測定した。ビーム直径はおよそ 2 mm であった。レーザー強度を徐々に上げていくと、およそ 3 mJ でダイヤモンド窓がダメージを受け、非可逆的な黒色のスポットを形成した。この時のエネルギー密度は、レーザーの時間幅をおよそ 5 ns とするとおよそ 20 MW/cm² である。この値は報告されているダイヤモンドの損傷閾値 (5 GW/cm² at 532 nm, 1 ns) の 1/100 以下である。この文献値との違いの原因は窓材の表面状態や、レーザーの空間強度分布などが考えられるが、現在のところ、よくわかっていない。一方で高圧液体から生成した固体水素の損傷閾値としては 180 MW/cm² と報告されており [2]、本研究の 20 MW/cm² が下限値であることを考えると、固体水素としては十分に高品質なものを得ることができたと言える。

ラマン散乱による中赤外～テラヘルツ発生実験を行うために図 2 に示す実験システムを構築した。誘導ラマン散乱は Nd:YAG レーザーの倍波 532 nm と、別の Nd:YAG レーザーの倍波で励起した色素レーザー (Dye

Laser) 683 nm で行う。ラマン散乱を起こすには、この 2 色のパルスは同期していなければならないため、Delay Generator によって 2 台の Nd:YAG レーザーを制御している。2 色のパルスはダイクロイックミラー (DCM) を用いて同軸に揃えられる。683 nm のパルスの一部は波長計に導入され、その波長をモニターした。

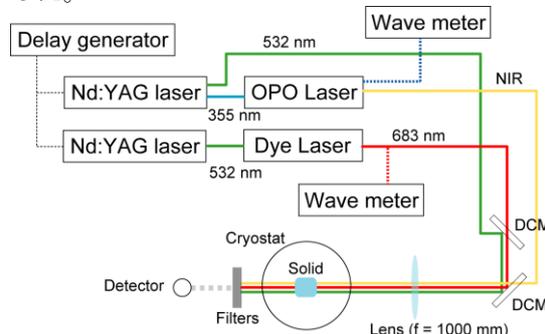


図 2 実験の概略図

中赤外～テラヘルツ光を発生させるための近赤外光 (NIR) は、Nd:YAG レーザーの 3 倍波 (355 nm) で励起した OPO レーザーから発生させた。この近赤外光パルスも上記 2 色のパルスと同期させなければならないが、532 nm のパルスと同一のレーザーが分岐して発生させているために Delay Generator では制御できない。そこで近赤外光の光路長を調整し同期を取った。ピーク時間のズレは 1~2 ナノ秒程度であると見積もられる。近赤外光の波長は、OPO 過程で同時に発生している可視光を波長計で測定することで、間接的にモニターした。DCM で 3 色のパルスを同軸にそろえ、レンズで集光しながらクライオスタット中の固体水素に照射する。クライオスタット透過後、これらのパルスは各種フィルターで除去され、近赤外パルスのストークス光として発生した中赤外～テラヘルツ光のみがディテクターに届く。フィルターはゲルマニウムやシリコン、ポリエチレンなどを、発生させる光の周波数領域によって交換して用いた。ディテクターは中赤外に高い感度をもつ MCT ディテクターとテラヘルツから可視光まで感度をもつパイロエレクトロニック型のディテクターを使用した。

まず、可視光レーザーの誘導ラマン散乱によりコヒーレンスが生成されていることを確認するために、可視の 2 色のパルスのみを入射し、高次のラマンサイドバンドを確認した。ストークス光として 4 次の赤外光までの発生が観測され (現在の実験では、ストークス光は 4 次が最高次である)、高いコヒーレンスが生成されていることがわかった。図 3 に 3 次ストークス (波長 1.6 μm) の強度の 683 nm と 532 nm のパルス間のディレイに対する依存性を示す。図からわかるように、ディレイへの依存は比較的穏やかであり、使用している Delay Generator で充分制御できている。一方で、683 nm の波長に対しては非常に敏感であり、ピークの波長から 0.002 nm

ずれると3次ストークス光の強度は1/100以下まで減少した。これは現在使用している色素レーザーで制御可能な波長の限界であり、詳細な研究にはより精密に波長を制御することができるレーザー（たとえば連続波レーザーを注入同期したパルスレーザーなど）を使う必要があると考えられる。

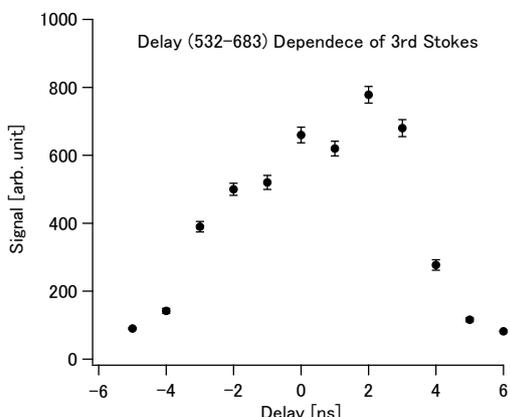


図3 532 nm の3次ストークス光の強度のディレイ依存性

今回の実験では中赤外～テラヘルツ発生用の近赤外光として1200 nm付近の光を用いた。この場合、1次ストークス光として2.2 μm付近の中赤外光が、また2次ストークス光として1 THz 付近の光が得られる。得られた中赤外光のスペクトルを図4に示す。図の横軸は発生した中赤外光の波数である。固体水素のラマン線幅は非常に狭いため、ストークス光の線幅は使用したレーザーによって決まっていると考えられるので、使用したナノ秒パルスレーザーと同等の狭線幅で掃引可能な中赤外光が得られたことを示している。4500 cm⁻¹ 付近のディップは、固体水素の吸収によるものである。また4450 cm⁻¹ 以下で出力が落ちているのは、クライオスタットの窓材の吸収によるものである。以上の結果から本研究の基本原則は確立されたといえる。

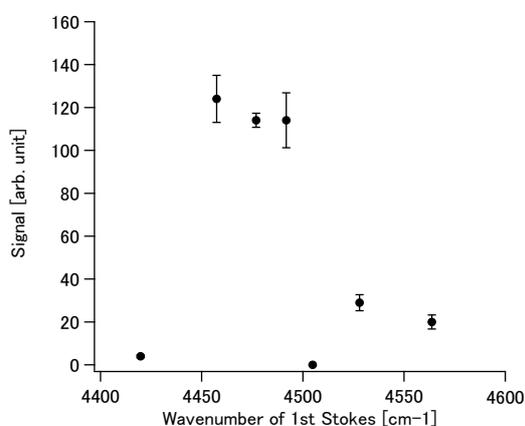


図4 近赤外光の1次ストークス光のスペクトル

本研究の成果および今後の展望をまとめる。中赤外からテラヘルツ領域でラマンシフ

ターとして使用可能な高品質固体水素の作成方法を確立し、それを用いたラマンシフター光源システムを構築した。2色の可視光を用いた誘導ラマン散乱により固体水素の振動状態間にコヒーレンスを用意し、そこに近赤外光を入射することで狭線幅・波長可変な中赤外光の発生に成功した。これにより本研究の基本原則は確かめられたといえる。研究代表者の知る限りでは、このような手法で中赤外光を発生した実験はこれまでなく、今後の発展が期待できる。今後はより最適な条件を探索し、発生する光の強度を上げるとともに、テラヘルツ光の観測を目指す。本研究の出力は、ダイヤモンド窓の損傷により励起光強度が制限されたことで抑えられている。より高品質な窓材を使うことで大きく改善する見込みがある。さらに励起レーザーを、線幅がフーリエ極限で空間モードが良い高品質なものにすることでさらなる改善も見込まれる。現在、そのような実験を計画中である。また本研究では2次ストークス光としてテラヘルツを発生させることを目指したが、注入する近赤外光の波長をより長波長にすることで、一次ストークス光としてテラヘルツを発生させることも可能であり、テラヘルツに特化する場合は有効であると考えられる。今後の課題である。

<引用文献>

- [1] M. Suzuki et al., J. Low. Temp. Phys. **111**, 463 (1998)
- [2] J. Q. Liang et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 2474 (2000)

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 1件)

- ① “Observation of coherent two-photon emission from the first vibrationally excited state of hydrogen molecules”
Yuki Miyamoto, Hideaki Hara, Susumu Kuma, Takahiko Masuda, Itsuo Nakano, Chiaki Ohae, Noboru Sasao, Minoru Tanaka, Satoshi Uetake, Akihiro Yoshimi, Koji Yoshimura, Motohiko Yoshimura
Prog. Theor. Exp. Phys. 113C01 (2014) [査読有] DOI: 10.1093/ptep/ptu152

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宮本 祐樹 (MIYAMOTO, Yuki)

岡山大学・極限量子研究コア・助教

研究者番号: 00559586