

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H02117

研究課題名(和文)ベクトル電場波形整形パルスによる時間反転対称性の破れた量子系の生成と制御

研究課題名(英文)Generation and control of time-reversal-symmetry-broken quantum systems by vector electric-field shaped pulses

研究代表者

三沢 和彦 (Kazuhiko, Misawa)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80251396

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究代表者が有するベクトル電場波形整形技術の高強度化および高機能化に取り組み、キラリティ誘起の多体系量子状態制御に活用可能な光源として確立した。高いパルスエネルギーに耐えるために、回折格子対とマイケルソン干渉計を応用したベクトル電場波形整形装置を開発した。ベクトル電場波形整形パルスの物性研究への活用として、2次元電子系にベクトル電場波形整形パルスを照射した際のキャリア応答の測定および制御を試みた。その結果、エンベロープヘリシティでフリップする電流を観測した。これにより、本研究課題で提案した「ベクトル波形整形パルスによる二次元電子系の操作」に成功したものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：We have worked on improvement of vectorial electric field waveform shaping technology and established it as a light source useful for control of chirality-induced quantum systems. To use high pulse energies, we developed a vectorial electric field waveform shaping apparatus using a diffraction grating pair and a Michelson interferometer. We tried to measure and control the carrier dynamics of the two dimensional electron system under irradiation of the vector-field shaped pulses. Inversion of the direction in photo-current was observed by changing the envelope helicity of the incident pulses. We consider that this is a successful demonstration of control in two-dimensional electron system by vector-field shaped pulses proposed in this research plan.

研究分野：超高速光科学、量子エレクトロニクス、光物性物理学

キーワード：ベクトル波形整形 キラリティ電磁場 エンベロープヘリシティ 時間反転対称性の破れ 半導体中キャリアのTHz応答 二次元電子系 時間分解偏光分光法

1. 研究開始当初の背景

光の「電場」や「磁場」を電子系と結合させ、量子論的コヒーレンスを保ったまま、平衡状態では実現できない量子状態を動的に生成する手法をコヒーレント量子制御と呼ぶ。コヒーレント量子制御の実現には、電場波形を精密に制御したレーザーパルス光源が必要不可欠である。本研究代表者は、光の持つ直交偏光成分を独立に操作できるベクトル波形整形器を独自に開発し、近赤外域フェムト秒パルスの電場ベクトルの時間変化を任意に制御することに成功した。さらに、このベクトル波形整形パルスを非線形光学効果で波長変換することにより、テラヘルツ周波数帯での偏光状態を任意に設計し操作できるという新しい方式を実証した。

ベクトル波形整形によって生成されるキラリティを持つ光パルスの特徴的な例は、時々刻々と偏光方位角が回転していく「ねじれ偏光パルス」である。このパルスは、そのねじれた包絡線(エンベロープヘリシティ)により、物質に角運動量を転写することが可能である。本研究代表者らも、 α -石英結晶を対象に、原子核が平衡位置の周りを右回りあるいは左回りに回転する格子振動軌道を、選択的に励起することに成功した。さらに、キラリティのある光電場の照射は、時間反転対称性を破ることとほぼ等価である。一般的には、時間反転対称性の破れは、定常磁場を印加することで実現される。二次元電子系に対する量子ホール効果の発現、磁性体に対する磁化の誘起などは、その代表的な例である。

しかし、二次元量子ホール状態の実現に磁場は必須ではなく、時間反転対称性が破られれば発現することが理論的に示されている。東京大学(現所属 Max Planck Institute)の岡らは、二次元系への円偏光照射により無磁場下で量子ホール状態が生成できることを理論的に提案した。さらに、青山学院大学(現所属 茨城大学)の佐藤と前述の岡は、光照射により、無磁場下で反強磁性体中に磁化を誘起することも理論的に提案した。

このように、時間反転対称性をキラリティのある電場波形で破ることにより、平衡状態では実現し得ない動的な量子状態を実現できれば、非平衡過程の制御として学術的価値は極めて高い。

2. 研究の目的

本研究課題では、キラリティのある電場波形を用いて、時間反転対称性を破ることにより、平衡状態では実現し得ない動的な量子状態を実現することを目標とする。

まず、本研究代表者が世界に先駆けて開発したベクトル電場波形整形技術の高強度化および高機能化に取り組み、キラリティ誘起の多体系量子状態制御に活用可能な光源として確立することを目的とする。ベクトル電場波形で系の時間反転対称性を破って量子状態を発現させるために調整すべきパラメータは、

主に電場強度と電磁場の周波数の2つである。そこで、テラヘルツ帯域任意偏光制御技術の中赤外域にも適用し、電磁波周波数の可変範囲を拡張する。

ベクトル電場波形整形パルスの物性研究への活用として、二次元電子系での光誘起量子ホール効果の測定に対象を絞り、二次元電子系にベクトル電場波形整形パルスを照射した際のキャリア応答の測定および制御を試みる。

本研究は、固体物理学に光科学の立場から新たな手法と視点を持ち込むものである。光を自在に制御する新しい手法を考案しそれを実証するという基礎的意義にとどまらず、赤外・テラヘルツ帯域の電磁波制御技術を物性物理学へ応用できる可能性を大きく広げることからも、普遍性が期待できる。

3. 研究の方法

3-1 ベクトル電場波形整形技術の高強度化および高機能化

時間反転対称性を破って量子状態を発現させるために必要とする電磁場は、

- ①テラヘルツ周波数帯から中赤外域
- ②円偏光
- ③周波数チャープをもつ
- ④電磁場強度がなるべく強い

といった条件を満たす必要がある。

ベクトル波形整形は、パルスの時間波形を周波数領域のフーリエ合成を用いて行う。図1のように、直線偏光の近赤外域レーザーパルスを回折格子と球面鏡でスペクトル成分に分散させた後、パルスに含まれる独立な左右円偏光の位相をスペクトル成分ごとに空間光変調器により個別に調整する。位相変調された近赤外域パルスを非線形光学結晶に入射し、光整流過程を用いることで、テラヘルツ周波数帯で時間に依存する任意の偏光状態をもつベクトル波形整形パルスに変換できる。

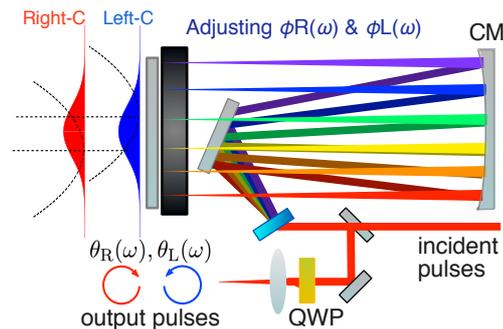


図1: ベクトル波形整形装置の基本構成

これまで光源はモード同期チタンサファイアレーザー発振器(パルス繰り返し 80MHz, パルスエネルギー5nJ)であったが、本計画では光源を現有のチタンサファイア再生増幅器(パルス繰り返し 10kHz, パルスエネルギー 0.6mJ)に変更して高出力化を図った。パルスエネルギーを高くすると、空間光変調器の損傷閾値を超えるため、ベクトル電場波形整形装置の構成も新たに設計し直す必要がある。

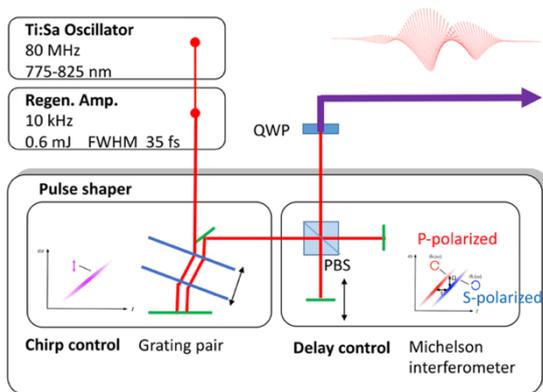


図 2：高出力レーザーパルスのベクトル電場波形整形装置

図 2 に、高出力レーザーパルスのベクトル電場波形整形装置を示す。光源として、繰り返し 10kHz、パルスエネルギー 0.6mJ、中心波長 800nm、パルス幅 35fs のチタンサファイア再生増幅器を使用した。

今回の研究で主に生成しようとしているねじれ偏光パルスは

$$\begin{pmatrix} E_x(t) \\ E_y(t) \end{pmatrix} = \tilde{E}(t) \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{\omega_1 - \omega_2}{2}t\right) \\ \sin\left(\frac{\omega_1 - \omega_2}{2}t\right) \end{pmatrix} \cos\left(\frac{\omega_1 + \omega_2}{2}t\right)$$

のように表される。この式は、搬送波周波数 $(\omega_1 + \omega_2)/2$ を持つ直線偏光の偏光方位角が、周波数 $(\omega_1 - \omega_2)/2$ で回転していく様子を表している。上式は

$$\begin{pmatrix} \tilde{E}(t) \cos\left(\frac{\omega_1 - \omega_2}{2}t\right) \cos\left(\frac{\omega_1 + \omega_2}{2}t\right) \\ \tilde{E}(t) \sin\left(\frac{\omega_1 - \omega_2}{2}t\right) \cos\left(\frac{\omega_1 + \omega_2}{2}t\right) \end{pmatrix} = \frac{\tilde{E}(t)}{2} \begin{pmatrix} +\cos\omega_1 t \\ +\cos\omega_1 t \end{pmatrix} + \frac{\tilde{E}(t)}{2} \begin{pmatrix} +\cos\omega_2 t \\ -\sin\omega_2 t \end{pmatrix}$$

と変形できて、この式は、ねじれ偏光パルスが、周波数が ω_1 の右円偏光パルスと ω_2 の左円偏光パルスの重ね合わせであることがわかる。したがって、ねじれ偏光パルスの偏光方位角が回転する周波数(エンベロープヘリシティ)は、互いに逆回りする 2 つの円偏光パルスの周波数差を変えることで調整できる。それには、パルスに線形チャープをかけると瞬時周波数が時刻に比例することを利用する。直線偏光を持つパルスの群遅延分散を回折格子対で与える。直線偏光を 45 度傾けて偏光ビームスプリッタに入射して P 偏光と S 偏光に分ける。それぞれの出射パルスを平面鏡で正面に反射させて偏光ビームスプリッタに戻して合波させる。これにより、互いに直交した直線偏光が 2 光路を進むマイケルソン干渉計を構成する。干渉計内の片方の光路にある平面鏡を自動位置決めステージに載せて、所望の光路長に調整可能とする。マイケルソン干渉計から出力された時間遅延調整可能な p 偏光および s 偏光成分を、4 分の 1 波長板を用いて、右回りおよび左回りの円偏光に変換する。パルスに与えた線形チャープを $\omega = \omega_0 + \alpha t$ とすると、左右円偏光パルスの時間差が τ のときに、瞬時周波数の差は $\omega_1 - \omega_2 = \alpha\tau$ となる。し

たがって、エンベロープヘリシティ $\alpha\tau/2$ はマイケルソン干渉計の 2 光路の時間差を変えることで調整できる。

このねじれ偏光パルスを非線形光学結晶で波長変換することにより、周波数や帯域を自在に操作された円偏光テラヘルツ周波数帯のパルスを発生できる。テラヘルツパルスを発生させる光学結晶として GaP(111) を用いた。

3-2 電場波形整形パルス励起による時間分解偏光分光法の開発

本研究計画においては、静磁場の代わりにキラリティのあるパルス光を印加するため、観測すべき現象は光誘起量子ホール効果と光誘起磁化ともに、パルス光を照射した直後からの過渡的な過程となる。そこで、時間反転対称性が破れたことによるファラデー回転を検出するための時間分解偏光分光法を開発する。具体的には、

①近赤外域ベクトル波形整形パルス励起 + テラヘルツ帯プローブ

②テラヘルツ帯ベクトル波形整形パルス励起 + テラヘルツ帯プローブ

の 2 通りの組み合わせで測定装置を製作した。

さらに、超伝導マグネットシステムを分光測定装置に組み込み、低温下で磁場印加の有無を比較できるようにした。

3-3 二次元電子系試料の作成と評価

光誘起量子ホール効果を観測するために適した試料を探索する。変調ドープ GaAs/AlGaAs 量子井戸半導体中の二次元電子系に電極を付加した試料を以下の条件で作製した。

- 10 nm 幅の変調ドープ量子井戸
- $E_g = 1.51$ eV (820 nm)
- 電子密度 $n_s = 2.6 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$
- 移動度 $\mu = 310,000 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$

3-4 二次元電子系のベクトル波形整形パルス照射による電子輸送特性の制御

モード同期チタンサファイアレーザーからの光パルスを、ベクトル波形整形器に導入した。独立した直交偏光の各周波数成分の位相を、空間光変調器で任意に制御しフーリエ合成することで、任意のテラヘルツ周波数で回転するねじれ偏光パルスを生成した。このねじれ偏光パルスを用いて、0~50THz の範囲で半導体中キャリアのテラヘルツ応答を調べた。試料は、He クライオスタット内に置いた (001) 面の変調ドープ GaAs/AlGaAs 量子井戸半導体である。右回りねじれ照射と左回りねじれ照射との差信号を検出した。

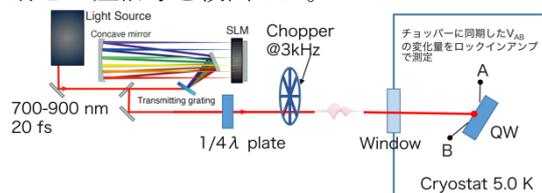


図 3：ベクトル波形整形パルス照射による電子輸送特性の制御実験

4. 研究成果

4-1 ベクトル電場波形整形技術の高強度化および高機能化

パルスエネルギー270 μ J、偏光回転周波数0.1~10THzの偏光回転パルスを実現した。そのパルスに対して、テラヘルツ周波数帯域のパルスに変換する光学系を測定系直前に配置し、テラヘルツ周波数帯域のパルスの発生を確認した。生成した高強度ねじれ偏光パルスの時間波形および偏光状態を、偏光分割和周波発生 (SFG) 相互相関によって測定した。

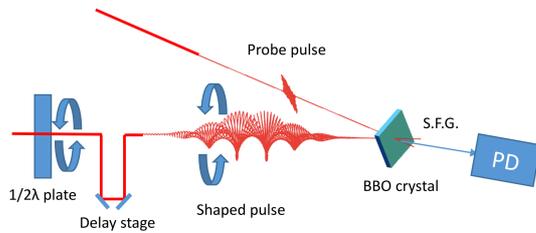


図4：偏光分割和周波発生相互相関法

図5に偏光分割相互相関波形の測定結果を示す。パルスのエンベロープヘリシティは3.7 THzに調整した。偏光方位を変えて相互相関波形を測定すると、ピークの時間位置がシフトしていく様子が見られる。これは、偏光主軸が時間とともに回転していく様子を表している。図6は、相互相関波形をフーリエ変換して求めたエンベロープヘリシティのスペクトルを示す。マイケルソン干渉計の光路差を変えることによって、ねじれ周波数が系統的に調整できることが確かめられた。この結果は、誘導ラマン励起あるいは差周波発生で任意の周波数同調が可能となることを示している。図6では、調整範囲は0.1~3THzであるが、図7ではさらにマイケルソン干渉計を改良することで10THzのねじれ周波数を実現できた。これにより、物質に角運動量を転写するための基盤的技術として、ベクトル電場波形整形技術の高強度化を達成した。

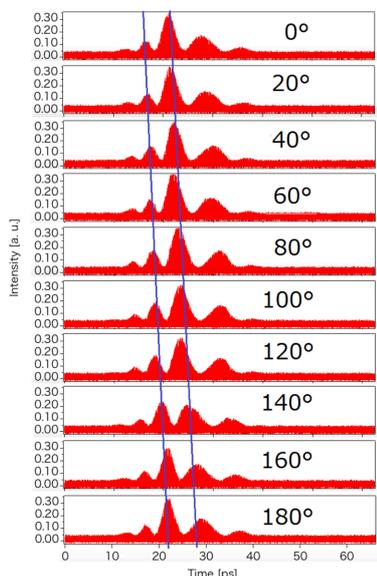


図5：偏光分割相互相関波形の測定結果

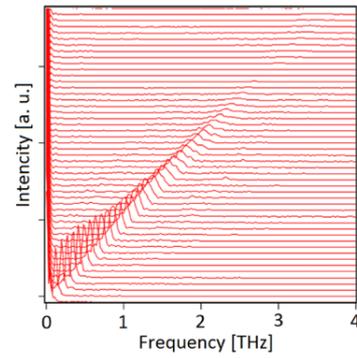


図6：ねじれ周波数を0.1~3THzに調整したフーリエ変換ねじれ周波数スペクトル

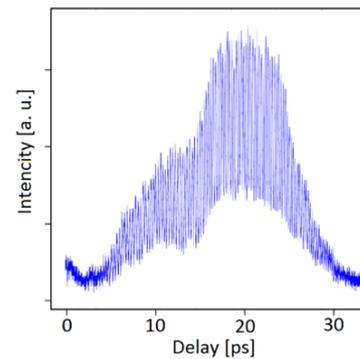


図7：ねじれ周波数10THzに調整したときの相互相関波形

続いて、ねじれ偏光パルスを非線形光学結晶に入射し、差周波発生によるテラヘルツ電磁波の生成を確認した。使用した非線形光学結晶は0.45 mm厚のGaP[111]である。この場合、回転していくパルスエンベロープがベクトル電場に直接変換されるため、円偏光パルスが生成される。ねじれの回転方向を逆転させることで、円偏光の向きも反転させることができる。

図8は、電気光学サンプリング法で測定したテラヘルツ電磁波の電場波形を示す。入力の近赤外レーザー光として、繰り返し10 kHz、パルスエネルギー0.6 mJ、パルス幅35 fsのチタンサファイア再生増幅器出力を用いて、繰り返し10 kHz、パルスエネルギー600 μ J、ピーク電場強度509 V/cmのテラヘルツ帯パルスが得られた。

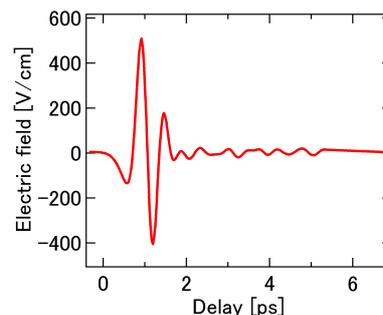


図8：テラヘルツ電磁波の電場波形

4-2 二次元電子系のベクトル波形整形パルス照射による電子輸送特性の制御

電子系の量子状態の観測のために液体ヘリウム使用環境を完成させ冷凍機を試運転し試料温度 4.2K を確認した。また強磁場を印加した対照実験のために超伝導マグネットによる試料印加磁場 6T を確認した

特に近年、テラヘルツ周波数帯の円偏光照射によって半導体中の光生成電流の方向を切り替えられる現象が注目されている。二次元電子系として、3-3 で述べた GaAs/AlGaAs 量子井戸半導体にホールバーを加工した試料を準備し、近赤外域波形整形パルスを照射して基礎データを取得した。

その結果、電極間の領域にねじれ偏光パルスを照射した場合にのみ、大きな光起電力信号を観測した。エンベロープヘリシティの向きを逆転させると、光起電力信号の方向も正負が反転した。さらに、ねじれ偏光パルスを生成する際の線形チャープ量を変化させながら、光起電力信号の THz 周波数依存性を測定した。ねじれ周波数の増加に伴う光起電力信号の単調増加は、群遅延分散 8000~20000 fs² で観察された。

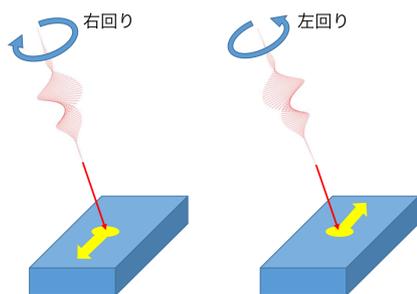


図9：本研究で観測したねじれ偏光パルス照射による二次元電子輸送特性の変化

エンベロープヘリシティでフリップする電流を観測したことは、運動量方向にスピン分裂した伝導帯サブバンドの占有数が、ねじれ偏光パルスの照射によって片方のスピンバンドに偏ることを示唆する。詳細な解釈は、現在検討中であるが、実験結果からは、本研究課題で提案した「ベクトル波形整形パルスによる二次元電子系の操作」に成功したものと考えられる。

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 14 件)

- 1) H. Ito and K. Misawa, “Development of vector-field shaping system of high power laser pulses for photon-induced time-reversal symmetry-breaking,” Proceedings of IC0-24 (2017) (査読あり)
- 2) Y. Obara, H. Ito, T. Ito, N. Kurahashi, S. Thurmer, H. Tanaka, T. Katayama, T.

Togashi, S. Owada, Y. Yamamoto, S. Karashima, J. Nishitani, M. Yabashi, T. Suzuki, and K. Misawa, “Femtosecond time-resolved X-ray absorption spectroscopy of anatase TiO₂ nanoparticles using XFEL,” Structural Dynamics 4, 044033 (2017) (査読あり)

3) T. Ito, Y. Obara, and K. Misawa, “Single-beam phase-modulated stimulated Raman scattering microscopy with spectrally focused detection,” J. Opt. Soc. Am. B 34, 1004-1015 (2017) (査読あり)

4) H. Takada, Y. Chiba, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and K. Misawa, “41-fs, 35-nJ, green pulse generation from a Yb-doped fiber laser system,” Opt. Express 25, 2115-2120 (2017) (査読あり)

5) Y. Miura, S. Kashiwaya, and S. Nomura, “Frequency modulation technique for wide-field imaging of magnetic field with nitrogen-vacancy ensembles,” Japanese Journal of Applied Physics 56, 04CK03 (2017) (査読あり)

6) 伊藤宙陸, 三沢和彦, “時間的に偏光制御された近赤外域フェムト秒パルスの高強度化” 信学技報 116, 63-66 (2016) (査読なし)

7) K. Misawa, “Applications of polarization-shaped femtosecond laser pulses,” Advances in Physics: X 1, 544-569 (2016) (査読あり)

8) M. Kawagishi, Y. Obara, T. Suzuki, M. Hayashi, K. Misawa, and S. Terada, “Direct Label-Free Measurement of the Distribution of Small Molecular Weight Compound Inside Thick Biological Tissue using Coherent Raman Microspectroscopy,” Biophysical Journal 110, 493A (2016) (査読あり)

9) Y. Shibata, S. Nomura, R. Ishiguro, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, Y. Nago, and H. Takayanagi, “Magnetic field imaging of a tungsten carbide film by scanning nano-SQUID microscope,” Supercond. Sci. Technol. 29, 104004 (2016) (査読あり)

10) S. Nomura, S. Mamyouda, H. Ito, Y. Shibata, T. Ohira, L. Yoshikawa, Y. Ootuka, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, H. Tamura, T. Akazaki, “Circularly polarized near-field scanning optical microscope for investigations of edge states of a two-dimensional electron system,” Appl. Phys. A 121, 1341-1345 (2015) (査読あり)

11) Y. Shibata, S. Nomura, H. Kashiwaya, S. Kashiwaya, R. Ishiguro, and H. Takayanagi, “Imaging of current density distributions with a Nb weak-link scanning nano-SQUID microscope,” Sci. Rep. 5, 15097; doi: 10.1038/srep15097 (2015) (査読あり)

12) S. Mamyouda, H. Ito, Y. Shibata, S. Kashiwaya, M. Yamaguchi, T. Akazaki, H. Tamura, Y. Ootuka and S. Nomura, “Circularly polarized near-field optical

mapping of spin-resolved quantum Hall chiral edge states,” Nano Lett. 15 (4), 2417-2421 (2015) (査読あり)

13) M. Kawagishi, Y. Obara, T. Suzuki, M. Hayashi, K. Misawa, and S. Terada, “Direct label-free measurement of the distribution of small molecular weight compound inside thick biological tissue using coherent Raman microspectroscopy,” Scientific Reports 5, 13868 (2015) (査読あり)

14) Y. Ogi, Y. Obara, T. Katayama, Y. I. Suzuki, S. Y. Liu, N. C. M. Bartlett, N. Kurahashi, S. Karashima, T. Togashi, Y. Inubushi, K. Ogawa, S. Owada, M. Rubesova, M. Yabashi, K. Misawa, P. Slavicek, and T. Suzuki, “Ultraviolet photochemical reaction of $[\text{Fe}(\text{III})(\text{C}_2\text{O}_4)_3]^{3-}$ in aqueous solutions studied by femtosecond time-resolved X-ray absorption spectroscopy using an X-ray free electron laser,” Struct. Dynamics 2, 034901 (2015) (査読あり)

[学会発表] (計 12 件)

1) 中野徹生, 伊藤宙陸, 野村晋太郎, 三沢和彦, “ベクトル電場波形整形パルス照射による二次元電子系試料光起電力の円二色性” 日本物理学会第 73 回年次大会 (2018 年)

2) H. Ito and K. Misawa, “Development of vector-field shaping system of high power laser pulses for photon-induced time-reversal symmetry-breaking” IC0-24, (2017)

3) 谷川大貴, 中野徹生, 伊藤宙陸, 野村晋太郎, 三沢和彦, “ベクトル電場波形整形パルス照射による二次元電子系試料の光起電力効果” 日本物理学会第 72 回年次大会 (2017/03)

4) 飯田耀, 伊藤宙陸, 小西邦昭, 湯本潤司, 三沢和彦, 五神真, “波形整形された高強度超短光パルスによるモード選択的フォノン励起” 日本物理学会第 72 回年次大会 (2017/3/18)

5) K. Misawa, “Femtosecond Time-resolved X-ray Absorption Spectroscopy of Liquids Using the SPring-8 Angstrom Compact Free-Electron Laser (SACLA),” Frontiers in Optics / Laser Science 2017 Washington, District of Columbia, USA (17-21 September, 2017) 招待講演

6) T. Ito, Y. Obara, and K. Misawa, “Direct Visualization of a Small-Molecule Drug by Phase-Modulated Stimulated Raman Scattering Microscopy,” in “2017 European Conference on Lasers and Electro-Optics” (Optical Society of America, 2017), CL-3.2 WED.

7) K. Matsuura, T. Ito, Y. Obara, and K. Misawa, “Diffusion Measurement of Anesthetic Molecules Using Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy,” in “2017 European Conference on Lasers and Electro-Optics,” (Optical Society of America, 2017), CL-3.3 WED.

8) 伊藤宙陸, 三沢和彦, “電子輸送制御に向

けた高強度近赤外域フェムト秒パルスの時間的な偏光操作” 2016 年度日本物理学会秋季大会 16aAL-9 (2016/09)

9) 伊藤宙陸, 三沢和彦, “時間的に偏光制御された近赤外域フェムト秒パルスの高強度化” 電子情報学会レーザー・量子エレクトロニクス研究会 LQE-14 (2016/05)

10) K. Misawa, “Interdisciplinary Research Initiative of Photon-nano Science in TUAT,” IRAGO Conference, Chofu (1 November, 2016)

11) K. Misawa, “Vector-field control of ultrashort laser pulses for angular momentum transfer,” The First Symposium of Chiral Molecular Science and Technology, Chiba, Japan (29 February, 2016)

12) H. Takada, Y. Chiba, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and K. Misawa, “Ultrafast green pulse generation from yb-doped fiber laser system,” in “Lasers Congress 2016 (ASSL, LSC, LAC),” (Optical Society of America, 2016), JTh2A.32

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三沢 和彦 (MISAWA Kazuhiko)
東京農工大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：80251396

(2) 研究分担者

香取 浩子 (KATORI Hiroko)
東京農工大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：10211707

野村 晋太郎 (NOMURA Shintaro)

筑波大学・数理物質系・准教授
研究者番号：90271527

佐藤 正寛 (SATO Masahiro)

茨城大学・理学部・准教授
研究者番号：90425570

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし