

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：34408

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17683

研究課題名(和文)位相ロックした超広帯域赤外パルスによる超伝導体のコヒーレント伝導制御

研究課題名(英文)Coherent transport control of super conductors by phase-locked ultrabroadband infrared pulses

研究代表者

松原 英一 (MATSUBARA, Eiichi)

大阪歯科大学・歯学部・講師

研究者番号：10421992

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)：波長板を使った入射光パルスの偏光調整により、超広帯域コヒーレント赤外パルスの発生効率を数倍程度向上させた。発生効率に関する群遅延補正の効果と、結晶による分散の影響を調べるため、第2高調波発生用の BaB2O4(BBO)結晶と群遅延補正用の BBO結晶の厚みを変えて測定した結果、2パルスの相対位相の乱れ等によって群遅延補正の効果は限定的であり、BBO結晶の厚みが薄く、BBO結晶を使用しないときに最も高い発生効率を得られることがわかった。入射光パルス波形を多波長成分で合成し、空気プラズマ中での負の屈折率分散を取り入れた、プラズマ電流モデルによるシミュレーションを行い、実験結果を再現した。

研究成果の概要(英文)：We enhanced the intensity of ultrabroadband coherent infrared pulses by controlling the polarization of input two pulses. To examine the effects of group delay compensation and material dispersions in crystals, we varied the thicknesses of BaB2O4 (BBO) and BBO crystals and examined the dependence. We obtained the highest generation intensity when we employed the thinnest BBO crystal and no BBO crystal. This means that the effect of group delay compensation is limited mainly by the increase of dephasing effect between two-color pulses. We carried out the numerical simulation using plasma-current model, in which we explicitly examined the spectral phase of input pulses and included the effect of the negative dispersion in air plasma on the profile of two-color pulses, and reproduced the experimental result.

研究分野：量子エレクトロニクス 光物性

キーワード：テラヘルツ波 超短光パルス コヒーレント分光 プラズマ

1. 研究開始当初の背景

超伝導に近いが超伝導にはならない組成の2次元銅酸化物に、非対称な格子振動に共鳴する波長 $15 \mu\text{m}$ の中赤外パルス照射することによって、超伝導相に転移することをテラヘルツ領域の過渡反射分光で見出したと主張する研究報告がなされた (Fausti et al., Science 2011)。これは、本当であれば光照射による「室温超伝導」の実現を期待させる画期的な発見である。超伝導体はジョセフソン現象に代表されるように、伝導に物質として位相がそろった状態が如実に表れる格好の舞台であり、空間的・時間的に波形整形された光パルスによって、単なる光照射では実現できない、マクロに位相がそろった量子現象の発現が期待された。

本研究では、時間幅約 10 fs の2色の高強度極短光パルスを空気中に集光することで、プラズマを生成し、そのプラズマから全赤外領域 ($1\text{--}200 \text{ THz}$) をカバーする超広帯域かつコヒーレントな光パルスの発生を実現し、空気を媒質とした電場誘起第2高調波発生法を用いることで、 $1\text{--}150 \text{ THz}$ の周波数帯域での電場波形検出を達成させていた。

2. 研究の目的

超広帯域コヒーレント赤外パルスの波形を成形して、銅酸化物高温超伝導体の伝導状態をコヒーレントに制御するため、超広帯域コヒーレント赤外パルスの高強度化と、コヒーレント検出の周波数帯域を向上させることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 超広帯域コヒーレント赤外パルスを発生させる際、非線形結晶 ($\beta\text{BaB}_2\text{O}_4$ (βBBO) 結晶) を集光用の放物面鏡のあと、焦点のわずか手前におき、第2高調波を発生させている。タイプIの位相整合では、基本波と第2高調波の偏光が互いに直交するので、合成波の電場ベクトルは2パルスの電場強度の和よりも小さくなる。そこで、基本波には半波長板、第2高調波には全波長板として働くデュアル波長板を用いて2色パルスの偏光をそろえ、超広帯域コヒーレント赤外パルスの強度と周波数帯域が向上するかどうかを調べた。

(2) 上記のように第2高調波を発生させ、そのあとにデュアル波長板をおくと、2パルスの群速度の違いによって遅延が生じる。本研究で使用する光パルスの時間幅は約 10 fs であり、厚さ $43 \mu\text{m}$ のデュアル波長板によって生じる群遅延差は 8 fs であるので、2パルスの時間的重なりは大きく損なわれる。フェムト秒パルスの群遅延差は、 $\alpha\text{BaB}_2\text{O}_4$ (αBBO) 結晶の複屈折性を利用して補正が可能なが知られている。そこで、偏光制御に加えて、群遅延の補正によって、超広帯域コヒーレント赤外パルスのさらなる発生効率増強が可能かどうかを調べた。

(3) 時間幅の短い光パルスが非線形結晶等の

固体結晶中を伝播する際には、材料分散によってスペクトル位相が変化する。これまで、空気プラズマからの広帯域テラヘルツ波の発生についてのシミュレーションはいくつも報告されてきたが、それらは全て単一波長の搬送波にガウシアンなどの包絡波形を乗じたものであり、入射光パルスのスペクトル位相を考慮した評価はなされていなかった。そこで、非線形光学結晶の材料分散が超広帯域コヒーレント赤外パルスの発生効率にどう影響するのか、また αBBO 結晶による群遅延補正は発生効率の向上に寄与するのかどうかを検証するために、多波長成分で入射光パルスの電場波形を合成し、プラズマ電流モデルを使ったシミュレーションを行った。

4. 研究成果

(1) デュアル波長板 (基本波に対して真のゼロ次半波長板) を使って2パルスの偏光を調整したところ、超広帯域コヒーレント赤外パルスの発生効率を全周波数帯域で数倍程度向上させることができた。また、その増加率は高周波ほど大きかった。このことは、高周波成分の発生に高次の非線形光学過程が関与していることを示唆する。強度が増大した赤外パルスに対してコヒーレント電場検出を行ったところ、モノサイクルのシャープな電場の時間波形が観測された。最も振幅が大きい正負の電場ピークの時間差はわずか 6 fs であり、従来の半分程度に短縮された。電場の時間波形をフーリエ変換したところ、強度スペクトルの高周波端を 200 THz 以上に拡張できたことがわかった。

(2) 超広帯域コヒーレント赤外パルスの発生効率に関する群遅延補正の効果の有無と、結晶による分散の影響を調べるため、第2高調波発生用の βBBO 結晶と群遅延補正用の αBBO 結晶の厚みをそれぞれ $0.1\text{--}0.5 \text{ mm}$ の範囲で変えて、超広帯域コヒーレント赤外パルスのスペクトル測定を行った。その結果、厚さ 0.1 mm の βBBO 結晶を使用し、 αBBO 結晶を挿入しないときに最も高い発生効率を得られることがわかった。また、 0.1 mm の βBBO 結晶を使用したときは、いずれの厚みの αBBO 結晶でも群遅延補正の効果はみられず、むしろ著しく強度が減少することがわかった。厚さ 0.3 mm の βBBO 結晶の場合もやはり αBBO 結晶なしのときに一番強度が強かったが、 αBBO 結晶を挿入して厚みを増やしていくと、厚さ 0.2 mm のときに局所ピークがみられた。厚さ 0.3 mm の βBBO 結晶の場合は αBBO 結晶の厚さが 0.3 mm のときに、最も発生効率が高かった。 βBBO 結晶の厚さが 0.1 mm のときは群遅延補正の効果がみられなかったことから、このときプラズマ発生時の2パルスの時間的重なりは保たれていると考えられる。結晶の材料分散のみを考慮した場合は、デュアル波長板によって生じた群遅延差を補償する機構はない。しかし、プラズマ中では、屈折率分散が金属の場合と同じド

ルードの式に従うことを考慮すると、正の群遅延差が補正されることを説明できる。 β BBO 結晶の厚さが 0.3 mm と 0.5 mm のときに群遅延補正の効果はそれぞれ局所ピーク、最大ピークの発現として一定量みられたものの、いずれも β BBO 結晶の厚さ 0.1 mm のときの発生効率を上回ることができなかつた。このことは、 α BBO 結晶の表面および裏面における反射ロス、分散による 2 パルスの相対位相の乱れ、パルスの時間幅広がりによって、 β BBO 結晶の厚さ 0.1 mm のときの最適条件 (α BBO 結晶なし) を上回ることができないためと考えられる。

(3) 前項の実験結果に対する推測を実証するため、シミュレーションを行った。これまで、空気プラズマからの広帯域テラヘルツパルス発生のシミュレーションは多く報告されているが、いずれもガウシアン等の包絡波形をもった単一の搬送波長成分で入射パルスをモデル化しており、スペクトル位相、特に波長ごとに異なる 2 パルスの相対位相のずれに関する考察はなされていなかった。そこで、本シミュレーションでは多波長成分で入射光パルスを合成し、プラズマ中での負の屈折率分散を取り入れた。なお、計算で用いたのは Ammosov-Delone-Krainov のイオン化レートを仮定したプラズマ電流モデルである。このシミュレーションによって、 β BBO および α BBO 結晶の厚みを増すことによって発生効率が減少すること、群遅延補正による局所ピークがみられることについて実験結果を再現することができた。最適な α BBO 結晶の厚みの絶対値については、実験結果の定量的な再現には至らなかったが、これは β BBO 結晶による分散を考慮する際に、既に発生した第 2 高調波パルスが基本波パルスと同時に結晶中に入って伝播するとした仮定に帰すると考えており、結合方程式を取り入れた、より正確なモデルの過程によって実験結果を定量的に再現できると考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

G. Yamashita, E. Matsubara, M. Nagai, C. Kim, H. Akiyama, Y. Kanemitsu, M. Ashida, “Sensitive monitoring of photo-carrier densities in the active layer of a photovoltaic device with time-resolved terahertz reflection spectroscopy” Appl. Phys. Lett. 査読有 Vol. 110, pp. 071108 (1)–(4) (2017). DOI: 10.1063/1.4975631

Eiichi Matsubara, Takeshi Mochizuki, Masaya Nagai, and Masaaki Ashida, “Self-polarized terahertz magnon absorption in a

single crystal of BiFeO_3 ” Phys. Rev. B 査読有 Vol. 94, pp. 054426 (1)–(6) (2016).

DOI:10.1103/PhysRevB.94.054426

Eiichi Matsubara, Takeshi Mochizuki, Masaya Nagai, Toshimitsu Ito and Masaaki Ashida, “Ultrafast near-infrared nonlinear absorption in a multiferroic single crystal of bismuth ferrite” Jpn. J. Appl. Phys. 査読有 Vol. 54, pp. 092201(1)–(5) (2015).

DOI: 10.7567/JJAP.54.092201

〔学会発表〕(計 8 件)

松原 英一, 永井 正也, 芦田 昌明, 「非線形結晶の分散を取り入れた空気プラズマからの超広帯域コヒーレント赤外波スペクトルのシミュレーション」, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 2017 年 3 月 14 日, パシフィコ横浜 (神奈川県横浜市)。

Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida, “Extension of the high frequency limit of time domain spectroscopy up to 200 THz using two-color pumped air plasma”, 41th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2016), September 26th 2016, Copenhagen (Denmark).

Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida, “Dependence of the generation efficiency of air-plasma based ultrabroadband coherent infrared pulses on the thickness of optical components”, JSAP-OSA Joint Symposia, September 14th, 2016, Niigata (Japan).

Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida, “Enhancement of intensity of ultrabroadband coherent infrared pulses generated from air Plasma by controlling polarization of driving pulses”, CLEO 2016, June 6th, 2016, San Jose (USA).

松原 英一, 永井 正也, 芦田 昌明, 「空気プラズマ光源をもちいた超広帯域赤外時間分解分光系の開発」, 日本物理学会第 71 回年次大会 2016 年 3 月 21 日, 東北学院大学 (宮城県仙台市)。

Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida, “Recent progress on the generation of ultrabroadband coherent infrared pulses”, JSAP-OSA Joint Symposia, September 15th, 2015, Nagoya (Japan).

Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, Masaaki Ashida, “Visualization of extended-Drude response of photoexcited carriers in InSb by ultrabroadband infrared time-domain spectroscopy”, CLEO/Europe-EQEC 2015,

June 21th, 2015, Munich (Germany).
Eiichi Matsubara, Tomohide Morimoto,
Masaya Nagai, Masaaki Ashida,
“Extended-Drude response of photocarriers
in InSb revealed with ultrabroadband
infrared time-domain spectroscopy”,
Conference on Lasers and Electro-Optics
(CLEO) 2015, May 11th, 2015, San Jose
(USA).

6 . 研究組織

(1)研究代表者

松原 英一 (MATSUBARA, Eiichi)

大阪歯科大学・歯学部・講師

研究者番号： 10421992