

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：50104
研究種目：基盤研究(C) (一般)
研究期間：2020～2022
課題番号：20K05372
研究課題名(和文)ダイヤモンドナノ-マイクロフォトンクスによるコヒーレント赤外センシング技術の開拓

研究課題名(英文) Development of coherent infrared sensing technique by diamond nano-micro photonics

研究代表者
松原 英一 (Matsubara, Eiichi)
旭川工業高等専門学校・人文理数総合科・准教授

研究者番号：10421992
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)：本研究は、ダイヤモンド微細構造を使った赤外領域のコヒーレントセンシング技術の開発を目的とし、特に使用する非線形媒質を気体から固体に転換することに着目した。まず、空気に替えてダイヤモンド結晶を検出用の非線形媒質として使用することで、超広帯域コヒーレント光パルスの電場検出感度を向上させた結果をまとめて論文発表した。また、従来の希ガス充填中空ファイバー圧縮法に替えて、5枚の石英板によるマルチプレート圧縮法により、チタンサファイアレーザー光を時間幅20fsに圧縮し、従来の約1/4の強度のレーザー光にて2色パルス励起の空気プラズマから1-200THzの帯域での赤外光の発生させることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

赤外分光は、化学物質の同定に有用であるばかりでなく、その制御にも使用することで、従来になかったデバイスの開発をもたらす重要な技術の一つである。空気プラズマを使った広帯域赤外パルスによる物質の分光分析が行われているが、高強度のレーザー光が必要であることや、気体による高次の非線形性を利用しているため、安定性が不十分であるという問題点があった。本研究では、プラズマ励起用のパルス光を発生させる過程と、電場検出を行う過程の2点において、気体でなく固体を使うことで、必要なレーザー光の強度を1/4以下に減らすことができた。本研究成果は赤外発生媒質も固体化した全固体赤外分光技術の実現に向けて重要といえる。

研究成果の概要(英文)：In the present study, we aimed the development of coherent infrared sensing technique using diamond microstructures. Especially we focused on the transformation from gas to solid in nonlinear media. First, we summarized the result of coherent detection using diamond and published it in Applied Physics Express. Second, we employed the multiplate compression to produce 20-fs driving pulses for the two-color excitation of air plasma emitting ultrabroadband coherent infrared pulses. Compared with the ordinal hollow fiber compression, the required energy of the laser was reduced by one-fourth.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：非線形光学 超光速分光 テラヘルツ 赤外分光 ダイヤモンド プラズマ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

超短光パルスによる物質制御は近年新たな展開を迎え、光による超伝導などの物質相の発現や、テラヘルツから中赤外の低周波パルス励起により、高次高調波といったマクロなコヒーレント現象を作り出すなどの報告がなされていた。遷移金属酸化物をはじめとした強相関電子系では、物性解明のために幅広い周波数帯域をもつプローブ光で全ての光学応答を一括して観測し、議論する必要がある。そのためには低周波数領域のキャリアエンベロープ位相が制御された光パルス発生と超広帯域検出技術が必要不可欠であった。

空気プラズマをコヒーレント赤外パルスの発生・検出のために用いるエアフォトニクスは、多くの研究者によって発展し、赤外の幅広い周波数帯域での応答を一括してプローブするための手法として取り入れられてきた。我々は高強度レーザーパルス中空ファイバー法で 10 fs にまで圧縮した光パルスを使用することによって、テラヘルツ帯から近赤外 (200 THz) に達する連続スペクトルをもつ超広帯域の赤外パルスを発生させ、そのほぼ全周波数成分を、空気を媒質とした電場誘起第 2 高調波発生にて計測できることを実証した。

次に我々は、空気の利点であるギャップレスの周波数帯域を損なうことなくコヒーレント赤外波検出の感度を向上させるため、ダイヤモンド結晶に着目し、これを空気の代わりに検出の媒質として用いることで、サブ μm のプローブ光強度領域において空気を使った場合よりも感度を 2 桁向上させることができた。しかし、ダイヤモンド結晶の潜在的な可能性を十分に生かし切れたとはいえず、さらなる高感度化が可能であると考えた。

2. 研究の目的

ナノメートルスケールの物体と光との相互作用を研究するナノフォトニクスやプラズモニクスが発展し、基礎・応用の両面で多くの成果がもたらされていた。非線形光学結晶をナノスケールまで微小化することで非線形光学効果を高めたり、半導体結晶表面に金属の微細構造を作製することで表面プラズモン効果を利用し、局所的に電場強度を高めたりすることで、非線形信号強度を向上させたりすることが可能になっている。一方、光波混合や波長変換などの非線形光学現象を効率よく起こすには、位相整合を満たすことが重要な課題となるが、これには導波路効果を利用した物質の実効的な屈折率の変調が有効であった。そこで我々は、これらの知見をもとにした、新たな赤外コヒーレントセンシングの高感度化の試みを着想した。

本分光手法を実用化させるためには、非線形性の増大による赤外コヒーレントセンシングの高感度化する一方で、必要とするレーザーのスペックを落とし、低コスト化することも急務である。そのためには、本光学系の中で使用している気体媒質の固体化が有効である。そこで、まずプラズマを発生させるための励起光源を得る過程での媒質の固体化に取り組んだ。従来の気体を非線形媒質として用いる中空ファイバー圧縮法では、入射ビームポインティングの揺らぎによる出射光の強度やスペクトルの変動が大きいほか、スルーputは最大で約 40% であり、低効率であるという問題があった。複数の薄い石英基板にレーザーパルスを照射することで、自己収束等によるパルス破壊を起こさずに、必要なパルス広波長帯域化が図れるという報告が最近なされ、様々な実験にも応用されている。本研究ではこの手法を取り入れ、プラズマの励起光源を低強度のレーザーで得られるようにすることを目的とした。

3. 研究の方法

[フェムト秒光源の設置と分散補償]

本研究では、主たる実験を共同研究先の大阪大学へ出張して行う一方、コロナ禍等により出張が制限される時期が続いた。そのため、自校で実験設備を整備し、予備的な実験・研究を実施できる環境構築を試みた。

中でも光源の整備については、宇都宮大学・東口教授の協力を得て、フェムト秒 Yb ファイバーレーザー発振器と増幅器を導入した。発生・増幅したレーザーパルスに対し、自己相関器を作製し、使用することで時間幅を評価した。さらに、透過型回折格子対を使って、分散の補償を試みた。

[マルチプレート法によるプラズマ励起光源の固体化]

本研究では、赤外領域のコヒーレントセンシング技術の開発を目的としており、ダイヤモンドの微細構造化によるさらなる高感度化を目指す一方で、発生・検出媒質の固体化という大きな視点に立ち、発生過程に使用する非線形媒質の固体化に先行して取り組むこととした。特に、マルチプレートを使ってスペクトル広帯域化させた光波の分散をチャープミラー対により補償し、その光パルスのスペクトル位相と時間波形を SPIDER 法によって評価することで、超広帯域赤外パルスの発生に適した光パルス圧縮のあり方を詳細に議論し、論文にまとめることに注力した。

4．研究成果

[フェムト秒光源の設置と分散補償]

導入したフェムト秒 Yb ファイバーレーザー装置は発振器と増幅器からなる。発振器は中心波長 1035nm、繰り返し周期 40MHz、平均出力約 85 mW の光パルスを出力することができるものである。これを Yb ドープファイバー中にて LD を励起光源として増幅することで、平均出力は最大 1W となった。レーザーの出力安定と保護のため、発振器および増幅器全体を囲うアクリルの箱を設計し、作製を完了した。

次に、自己相関器を設計・構築し、増幅後のレーザーパルスの時間幅を計測した。その結果、フーリエ変換限界時間幅が 1ps 以下であるのに対して、ファイバーや媒質中の屈折率分散によるチャープにより 15~20 ps に引き伸ばされていることがわかった。これは、負分散ミラーを用いて現実的な反射回数で補償できる範囲を超えているため、高効率の透過型回折格子対を用いて補償したところ、約 500fs の時間幅に圧縮することができた。この圧縮光学系のスループットは約 50%であった。主たる損失は回折格子によるものである。

[マルチプレート法によるプラズマ励起光源の固体化]

大阪大学・芦田研究室にてマルチプレートを用いた圧縮光による赤外光の発生の実験を行った。従来の希ガス充填中空ファイバーを用いた圧縮に代えて、厚さ 0.1 mm の 5 枚の石英板を用いてスペクトル広帯域化した光パルスの分散を、広帯域チャープミラー対で補償し、このパルスを使って空気プラズマを 2 色励起することで 1-200THz の帯域をもつコヒーレントな赤外パルスの発生を達成した。特に、マルチプレート法で圧縮した光パルスのプロファイルを SPIDER 法により測定したところ、時間幅が最短の 20fs の時に最も広波長帯域の赤外光が発生することがわかった。また、マルチプレートの透過率の入射光強度依存性を計測したところ、

入射光強度を上げていくにつれて石英による多光子吸収によって透過光強度が減少することを見出し、これがマルチプレート圧縮法で得られるパルス光強度の上限を決めることを明らかにした。さらに、発生した赤外光を使ってPET樹脂の透過スペクトルを測定し、汎用のFTIRで測定したスペクトルと同様の吸収構造を示すことを確認した。これは、本装置の実用化が可能であることを示すものである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Matsubara Eiichi, Nagai Masaya, Ashida Masaaki	4. 巻 14
2. 論文標題 Coherent detection of ultrabroadband infrared pulses using a single crystal of diamond	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 032005 ~ 032005
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/abdef4	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 Timmerman Dolf, Matsubara Eiichi, Gomez Leyre, Ashida Masaaki, Gregorkiewicz Tom, Fujiwara Yasufumi	4. 巻 5
2. 論文標題 Direct Visualization and Determination of the Multiple Exciton Generation Rate	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 21506 ~ 21512
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsomega.0c02067	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 該当する

1. 著者名 松原 英一、篁 耕司	4. 巻 29
2. 論文標題 ローレンツ力から学ぶ電磁気学	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 大学の物理教育	6. 最初と最後の頁 32 ~ 35
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11316/peu.29.1_32	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 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 松原英一, 芦田昌明
2. 発表標題 マルチプレート圧縮法で生成した光パルスによる超広帯域コヒーレント赤外パルスの発生
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 Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, and Masaaki Ashida
2. 発表標題 Generation of Ultrabroadband Coherent Infrared Pulses of the Frequency Range of 1 - 200 THz Using Multiplate-Compressed Driving Pulses
3. 学会等名 The 46th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2021) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Eiichi Matsubara, Masaya Nagai, and Masaaki Ashida
2. 発表標題 Gapless Sensitive Detection of Ultrabroadband Infrared Pulses in the Frequency Range of 1 - 150 THz Using Single Crystal of Diamond
3. 学会等名 The 46th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2021) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Eiichi Matsubara, Masaaki Ashida
2. 発表標題 Ultrabroadband infrared coherent spectroscopy using solids as nonlinear media
3. 学会等名 15th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics(CLEO-PR 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022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
---------	---------