

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：24506

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14620

研究課題名（和文）テラヘルツ波とX線パルスによるサブサイクル時間分解分光の実現に向けた光源開発

研究課題名（英文）Light source development for sub-cycle time-resolved spectroscopy using terahertz waves and X-ray pulses

研究代表者

金島 圭佑（Kaneshima, Keisuke）

兵庫県立大学・理学研究科・助教

研究者番号：30804025

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究の目的は、放射光X線パルスと同期可能なファイバーレーザーシステムおよびそれを用いたテラヘルツ波源を開発し、X線と近赤外光、さらにはX線とテラヘルツ波を組み合わせた時間分解分光を実現することである。

研究においては、コンパクトかつ持ち運び可能な超短パルスフェムト秒ファイバーレーザーシステム（パルス幅35 fs）および放射光とのタイミング同期システムを開発し、実際に放射光と同期させたうえで性能を評価した。この成果はJournal of Synchrotron Radiation誌に発表した。また、本システムを用いたテラヘルツ波の発生と評価にも成功しており、近く成果を発表する予定である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発したファイバーレーザーシステムおよびタイミング同期電子回路は、コンパクトで持ち運び可能な設計となっている。これにより、レーザーのパラメータ調整やアラインメントを事前に行った状態で、放射光施設に持ち込むことが可能となる。本システムを使用することで、従来よりも容易に放射光X線を用いた時間分解分光を実現できる。この技術は、X線を用いた時間分解分光の学術的・産業的応用において、大きな意義を持つ。

研究成果の概要（英文）：The objective of this research is to develop a fiber laser system that can synchronize with synchrotron X-ray pulses and use it to generate terahertz waves. This will enable time-resolved spectroscopy combining X-rays with near-infrared light and X-rays with terahertz waves.

The research involved developing a compact, portable ultrashort pulse femtosecond fiber laser system (pulse width 35 fs) and a timing synchronization system with synchrotron radiation. The performance of this system was evaluated following actual synchronization with synchrotron radiation. These results were published in the Journal of Synchrotron Radiation. Additionally, the generation and evaluation of terahertz waves using this system were successful, and the findings will be published soon.

研究分野：超高速光科学

キーワード：放射光 ファイバーレーザー テラヘルツ波 時間分解分光

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

放射光 X 線パルスとレーザーパルスを同期させた時間分解分光は、物質中で起こる量子ダイナミクスについての理解を深めるために重要ツールとなっている。これは一般に可視・近赤外光を用いた分光に比べて、X 線をプローブ光として利用した分光から得られる情報は豊かであることによる。例えば、(a) 元素選択性がある、(b) 非弾性散乱を通じてアクセスできるエネルギー領域が極めて広い (meV ~ 数十 keV)、(c) 結晶構造や電荷・磁気・軌道秩序構造などに関する直接的な情報を得られる、といった利点がある。また、X 線をポンプ光として利用した場合には、これまでにあまり調べられてこなかった、内殻励起に伴う物質中でのダイナミクスに関する知見を得ることが可能となる。

しかしながら、放射光 X 線とレーザーを組み合わせた実験を行う場合、X 線のみを使用する実験に比べて、複雑な手順が必要となる。従来のレーザーシステム、例えばチタンサファイアモード同期レーザーシステムは特定のビームラインにのみ据え付けられているため、時間分光を行えるビームラインは限られている。また、現地での調整に多くの時間を要し、限られたビームタイムを消費することになる。

2. 研究の目的

本研究では、放射光と同期可能かつコンパクトで持ち運び可能なレーザーシステムを開発し、放射光 X 線とレーザーパルス光を組み合わせた時間分解分光へのハードルを下げることを目的とした。これにより、X 線時間分解分光を利用した研究が加速し、物質中の電子ダイナミクスの測定や制御、それらを通じた新材料の開発等が活発化すると期待できる。

また、さらに挑戦的な目標として、開発したレーザーシステムを用いて電場波形が制御されたテラヘルツ波を生成し XFEL と組み合わせることで、サブサイクル X 線分光の実現を目指した。

3. 研究の方法

上記の目的を達するため、本研究では、放射光と同期可能かつ持ち運び可能なファイバーレーザーシステムの開発を行った。ファイバーレーザーはコンパクトで軽量、かつ低コストで構築可能である。また、ファイバーの融着接続や切断のみで共振器の長さを調整でき、繰り返し周波数の異なる様々な放射光施設や動作モードとの同期に対応可能である。

本研究では、放射光と同期可能なファイバーレーザーシステムの開発を中心として、その方法を 5 段階に分割して進めた。

(1) 放射光と同期可能な、エルビウムファイバーレーザー光源の開発

非線形偏波回転を利用したモード同期共振器、増幅器、パルス圧縮器を開発する。繰り返し周波数については SPring-8 の A モード運転をターゲットとした 42 MHz とする。放射光とレーザーのタイミング同期については、放射光施設のマスターオシレータ (500 MHz) を参照信号とする位相同期ループ (PLL) により、ピエゾ素子を用いた共振器長のフィードバック制御を行うことで実現する。ここでは、実験室に 500 MHz の参照信号を用意し、その 1/12 倍 (~42 MHz) の信号に対してレーザーの繰り返し周波数をロックする。光バランス検出を利用した、より高精度な同期も試みたい。

(2) 開発したレーザー光源を利用したテラヘルツ波の発生・検出系の開発

(1) で発生させたレーザーパルス光を、有機非線形光学結晶 DAST を用いてテラヘルツ波に変換する。DAST の位相整合条件を考えると、波長 1500 nm 付近の光を用いることで、効率よくテラヘルツ波を生成できる。これがエルビウムファイバーレーザー (発振波長 1550 nm 付近) を開発する理由である。電気光学サンプリング法を用いたテラヘルツ波の検出系も開発する。また、テラヘルツ波の強度変化を高速で検出するための、シングルショット検出系の開発も併せて行いたい。

(3) 上記で開発した光源を放射光施設に持ち込み、タイミング同期の確認・評価

実際に放射光 X 線とレーザー光を検出することで、それらの間のタイミング同期を確認する。X 線ストリークカメラやスペクトラムアナライザを用いて、タイミングジッターの評価も行う。ここまでの成果 (放射光 X 線と同期したテラヘルツ光源の開発) を論文にまとめる。

(4) テラヘルツ波と放射光 X 線を組み合わせた時間分解分光

とくに、X 線励起された半導体のテラヘルツ応答に関するダイナミクスに注目して実験を進める。X 線による内殻励起後の電荷・スピン・フォノンダイナミクスについての研究は黎明期にあり、実験報告も少ない。また、チタンサファイアレーザーの波長域 (800 nm) から外れた領域での応答はほとんど報告されていない。本研究で系統的な実験を行い、内殻励起から始まる動的な物性に関する知見を得る。

(5) テラヘルツ波とXFELを組み合わせたサブサイクル時間分解分光

本研究の大目標であるが、研究期間内での実現は容易ではないと考える。XFELのビームタイムが本研究期間内に確保できるかに加えて、XFELの低い繰り返し周波数(30 Hz)でS/Nの良いデータを取るための工夫が必要となる。

4. 研究成果

本研究の期間内においては、研究の方法で述べた事項(1)-(3)についてはおおむね達成し、(4)、(5)については未達となった。これらについては今後の課題としたい。以下、(1)-(3)で得られた成果について述べる。

(1) 放射光と同期可能な、エルビウムファイバーレーザー光源の開発

エルビウム添加ファイバーを利得媒質とするモード同期発振器および増幅器を開発した。共振器の繰り返し周波数はSPring-8のAモード運転と同期させることを念頭に置き、42.38 MHzに設定している。共振器は正の分散を持ち、散逸ソリトンモード同期により、中心波長1560 nm、パルス時間幅5 ps、平均出力60 mWのパルス列を出力する。共振器出力光を増幅器で増幅し、光ファイバー中での非線形光学効果を用いたスペクトル広帯域化および分散補償により、中心波長1600 nm、パルス時間幅35 fs、平均出力190 mW(パルスエネルギー4.5 nJ)の出力を得た。

モード同期発振器の共振器長はピエゾ素子により制御可能であり、フィードバック制御により外部参照信号に対するパルス光の同期が可能となっている。本研究では、同期のためのエレクトロニクスも開発した。その際、FPGA(field programmable gate array)を用いた汎用制御器等を活用し、限られた予算内で光源およびフィードバック制御回路を開発した。

本システムは、450 mm x 300 mmのブレッドボード上に構成されており、容易に持ち運びが可能である。試料の設置やアライメントを研究室で行った後、放射光施設に持ち込むことで、即座に放射光X線とレーザーを組み合わせた実験が行える。また、レーザーが設置されていないビームラインでも、放射光と同期したレーザーパルス光を利用可能となる。

(2) 開発したレーザー光源を利用したテラヘルツ波の発生・検出系の開発

(1)で開発したレーザーシステムと、有機非線形光学結晶4-N,N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium tosylate(DAST)を組み合わせることで、放射光と同期可能かつ持ち運び可能なテラヘルツ波源を開発した。また、レーザーシステムの出力光の2倍波と半導体結晶ZnTeを用いて、電気光学サンプリング法によるテラヘルツ電場波形の測定を行った。図1(a)に測定された実時間電場波形、図1(b)にそのパワースペクトルを示した。2 THzにパワースペクトルのピークが観測されたが、これはファイバーレーザーの波長(1600 nm)とDAST結晶の位相整合条件から予測されるピークと一致している。

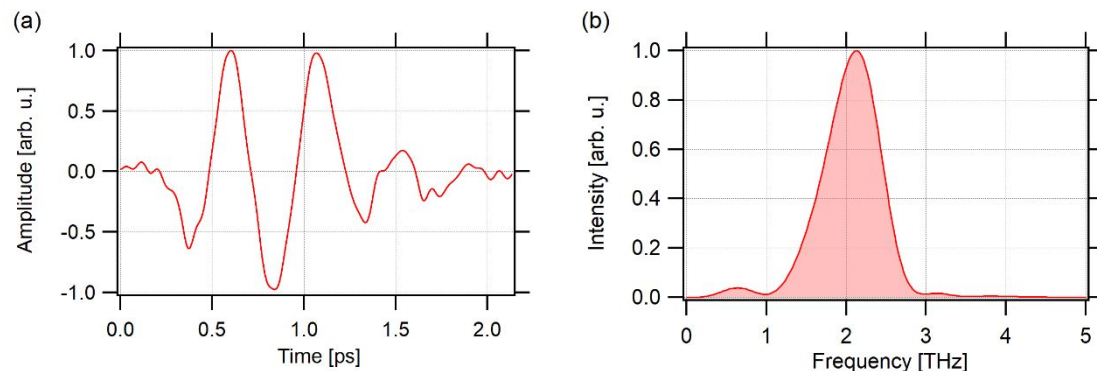


図1. 開発したレーザーシステムとDAST結晶を用いて発生させたテラヘルツ波の測定結果。(a)電気光学サンプリングで得られたテラヘルツ波の時間波形、(b)テラヘルツ波のパワースペクトル。

本成果については、テラヘルツ波のより詳細な評価およびX線との同期に関する実証実験を行ったうえで、成果をまとめて学術誌に投稿予定である。

(3) 上記で開発した光源を放射光施設に持ち込み、タイミング同期の確認・評価

開発したシステムをSPring-8に持ち込み、SPring-8の508.58 MHzの基準信号と同期させた。その状態で、16 GHz帯域の超高速オシロスコープおよび周波数カウンタを用いて、短期的なジッターおよび長期的な周波数安定性を評価した。その結果、タイミングジッターは9 ps以下であり、長期的な周波数安定性にも問題がないことが確認できた。

(1)と(3)の研究成果をまとめて、Journal of Synchrotron Radiation誌に発表した(オープンアクセス)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Keisuke Kaneshima, Takumi Minami, Takumi Kyoda, Yoshihito Tanaka	4. 巻 1
2. 論文標題 Dispersion measurement of an objective lens for ultrafast microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optics Continuum	6. 最初と最後の頁 1939-1945
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OPTCON.453567	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 -

1. 著者名 Keisuke Kaneshima, Takumi Kyoda, Shuta Sugeta, Yoshihito Tanaka	4. 巻 31
2. 論文標題 Development of a portable and cost-effective femtosecond fibre laser synchronizable with synchrotron X-ray pulses	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Takumi Kyoda, Shuta Sugeta, Yoshihito Tanaka, Keisuke Kaneshima
2. 発表標題 Portable femtosecond fiber laser system synchronizable with synchrotron X-ray pulses
3. 学会等名 The 13th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2024)（国際学会）
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

兵庫県立大学研究者情報 https://cv01.ufinity.jp/u_hyogo/index.php?action=pages_view_main&active_action=cvclient_view_main_init&cvid=kaneshima&display_type=cv&block_id=216#_216 研究者webサイト https://kaneshima.info/
--

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
---------	---------