

新規絶縁体材料における高密度光励起と相転移現象のダイナミクス — 高強度テラヘルツ波発生とその応用 —

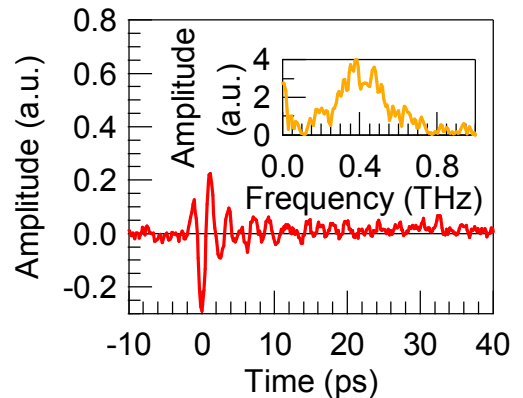
研究代表者：芦田昌明（大阪大学 大学院基礎工学研究科）

研究分担者：田中耕一郎（京都大学 物質-細胞統合システム拠点）

本研究では、基底状態においても電子相関が強く、一体近似が成立しない新規絶縁体材料を対象として、光励起によって生成される電子正孔多体系のダイナミクスを研究する。その応答が最も顕著に現れるものと考えられる、テラヘルツ帯を中心とする低エネルギー域における分光実験が主たる研究手段となる。その際、有力な新規手法として、電場の直接検出によって位相も測定でき、強度のみを計測する従来の分光法に比べて格段に豊富な情報が得られる、時間領域分光法を採用する。今回は特に、時間領域分光法の適用範囲を大幅に広げる、高強度テラヘルツ波発生法の開発とその非線形分光への適用に関して報告する。

1. 放射光施設における高強度テラヘルツ波発生とその電場検出（A03 班の研究者横浜国立大の片山郁文氏、分子科学研究所極端紫外光施設の阿達正浩氏、全炳俊氏、木村真一氏、加藤政博氏らとの共同研究）

放射光施設における高強度光発生は、X 線領域を始めとして、あらゆる波長で利用、研究が行われている。テラヘルツ帯を含む遠赤外域においても、コヒーレントな高強度光源の開発が進められている。その中でも、分光実験に多用されるストレージリングにおいては、再生増幅器のような高強度レーザーをアンジュレータ内を運動中の電子バンチに照射し、偏極磁石へ導くことにより高強度のテラヘルツ波を発生させるレーザーバンチスライミング法が有力な手段である。我々はこの方法によって発生された高強度テラヘルツ波の電場を検出することに初めて成功した。電気光学サンプリングのプロブ光には Ti:Sapphire 再生増幅器のシード光を用い、それを光ファイバーによって 20m 程度伝搬させることで、安定かつ簡便な電場検出法を確立することができた。右図は得られた時間波形である。コヒーレントなテラヘルツ波が発生していることが明白となった。また、挿入図の強度スペクトルはフーリエ分光器で定常測定した結果と一致した。



2. テーブルトップ高強度テラヘルツ波発生と非線形分光

上記とは対照的に、卓上レーザー装置のみによる高強度テラヘルツ波発生も試み、テラヘルツ領域の非線形分光を目指した。誘電体結晶である LiNbO_3 を発生源として位相整合条件を満たすように励起光の角度周波数分散および空間パルス面制御を行うなど発生方法の最適化を行った。その結果、現時点では Ti:Sapphire 再生増幅器励起で $0.5\mu\text{J}$ （ピーク電場強度 200kV/cm ）の広帯域テラヘルツ波パルスの生成に成功している。光周波数変調について詳細に検討した結果、以下の通り、非線形結晶内で発生したテラヘルツ電場が光位相変調を起こすことでパルス圧縮が生じていることが分かった。パルス幅が 500fs 程度と広い Yb ドープファイバーレーザーを用いて発生したテラヘルツ波の励起光強度依存性を調べ、励起強度の増大と共にテラヘルツ波のパルス幅が狭くなり、また発生効率も増大することを見いだした。テラヘルツ波の時間波形は励起光の波束の波形を直接反映していることから、励起光のパルス圧縮およびテラヘルツ波の高強度広帯域化が生じることが分かった。

現在得られている電場強度 200kV/cm は原子中の内部電場や pn 接合の界面の電場強度に匹敵し、容易に非線形な応答を示すことになる。このことから物質相をつかさどる分子間力を直接外から入射するテラヘルツ電場によって制御することが可能となるものと考えられる。実際、L-アルギニンペレットにおいて吸収飽和を、 ZnSe/ZnMgSSe 多重量子井戸において励起子吸収スペクトルの大きな変化を観測した。さらに、量子常誘電体 SrTiO_3 薄膜においても、吸収ピークの高周波シフトを観測した。