

「放射光と同期した超短パルステラヘルツ波源の開発」

兵庫県立大学 理学研究科 金島 圭佑

1 研究の背景と目的

物質の機能や反応を、原子核や電子の観点から解き明かすことは、現代科学の大きな目標のひとつである。原子核や電子の運動は極めて速く、その時間スケールはピコ(10<sup>-12</sup>)秒からアト(10<sup>-18</sup>)秒と考えられている。超短パルス光技術を用いた時間分解分光は、これらの超高速ダイナミクスを観測するための唯一の手法として、極めて重要である。

本研究では、放射光 X 線と超短パルステラヘルツ波を組み合わせた時間分解分光の実現を目的とした光源開発を行う。近年、X 線で励起された物質は、可視・近赤外光で励起された場合とは異なる過渡応答を示すことに注目が集まっている [1]。また、X 線で励起された物質の状態を、これまでに用いられてきた可視・近赤外領域の光だけでなく、テラヘルツ波を用いて観測できるようになれば、物質中で起こる比較的低いエネルギー領域の現象（例えばバンド内遷移やスピン・磁性ダイナミクスなど）の追跡も可能となる。そこで、近年発展著しい超短パルスファイバーレーザー技術を用いた、放射光 X 線とタイミング同期可能なテラヘルツ波源の開発を試みた。

SPring-8 等の放射光施設で利用できる X 線の時間構造は、数 10 ps（ピコ秒, 10<sup>-12</sup>秒）の時間幅をもつパルス状の X 線が一定間隔で並んだものとなっている（図 1）。筆者はこれまでに、このような X 線パルスとタイミング同期した光パルスを発生可能なファイバーレーザーの開発に取り組んできた。ファイバーレーザー技術を用いることで、レーザーシステムの小型化が可能となり、大学の研究室と放射光施設との間で容易に持ち運び可能となる。放射光施設に備え付けのレーザー光源だけでなく、各研究者がそれぞれの研究室で開発したレーザー光源をそのまま放射光施設に持ち込んで実験できるようになれば、放射光施設を利用した時間分解分光の研究は、より活発化すると期待できる。

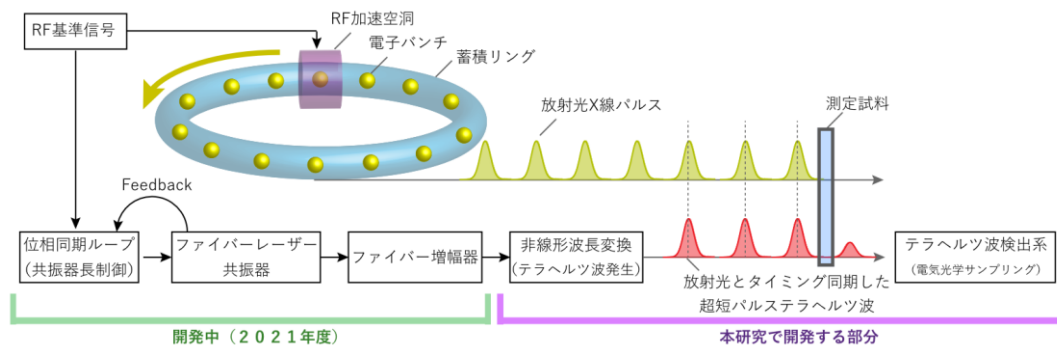


図 1. 本研究の概要.

## 2 研究方法・研究内容

本研究は、放射光技術と先駆的なレーザー技術を組み合わせることで、X線とテラヘルツ波を用いた時間分解分光を実現させようとするものである。先駆的なファイバーレーザー技術および有機非線形光学結晶を用いて、放射光と同期可能かつコンパクトで持ち運び可能な超短パルステラヘルツ波源を開発する。

筆者はこれまでに、放射光とタイミング同期可能なレーザーシステムの開発に取り組んできており、SPring-8のAモード運転（繰り返し周波数 42.3 MHz）とタイミング同期可能なファイバーレーザーシステム（波長 $\sim 1.6 \mu\text{m}$ ，時間幅  $\sim 100 \text{ fs}$ ）を開発済みである。本システムの出力光を、有機非線形光学結晶 DAST (4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate)を用いた差周波発生を通じて、テラヘルツ波に変換する。DASTの非線形光学係数は他の無機非線形光学結晶と比べて大きいいため、パルスエネルギーの小さなファイバーレーザーであっても、高い変換効率が期待できる。また、DASTの位相整合条件および吸収を考慮すると、波長  $1.5 \mu\text{m}$  程度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とが知られている [2]。

発生したテラヘルツ波を検出するためのシステムも併せて開発する。検出には、ファイバーレーザーの出力光の2倍波（波長 $\sim 0.8 \mu\text{m}$ ）と半導体結晶 ZnTe を用いた電気光学サンプリング法を利用する。本条件では位相整合条件が満たされているため、厚い結晶を用いた高効率な検出が可能となる。本実験では、厚さ  $1 \text{ mm}$  の ZnTe 結晶を用いた。

## 3 研究成果

本研究で開発した、テラヘルツ波の発生・検出システムの全体図を図 2 に示した。ファイバーレーザーシステムは  $450 \times 600 \text{ mm}$ ，テラヘルツ発生検出システムは  $300 \times 450 \text{ mm}$  のブレッドボード上に収まっており、ともに容易に持ち運びが可能となっている。

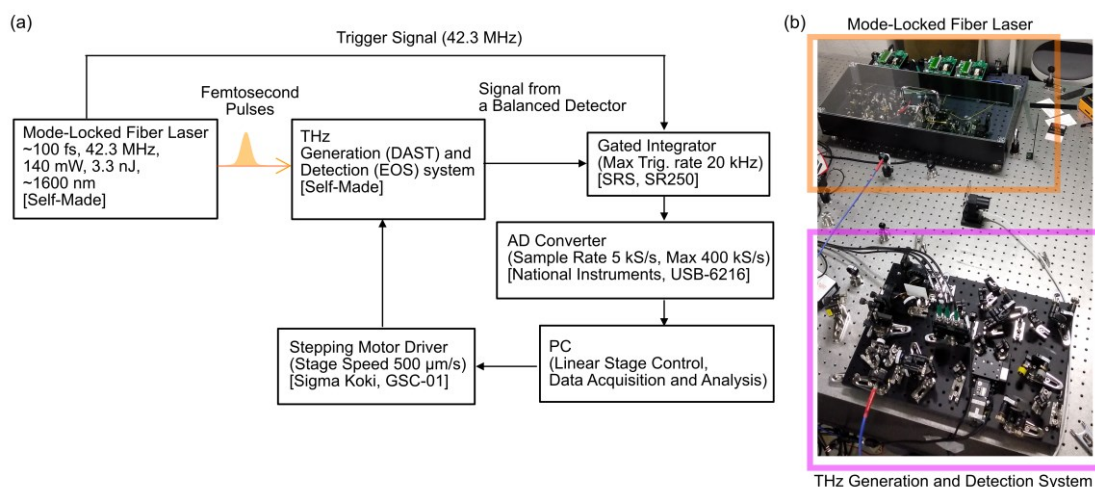


図 2. (a)テラヘルツ波の発生・検出システムの全体図， (b)光学系の写真。

図3に、テラヘルツ波の発生・検出システムの光学系概略図を示した。ファイバーレーザーの出力の一部を、非線形光学結晶 BiBO ( $\text{BiB}_3\text{O}_6$ ) を用いて2倍波に変換した後、ハーモニックセパレータで分離、基本波をテラヘルツ波の発生、2倍波を電気光学サンプリングのプローブ光に用いた。テラヘルツ波に変換されなかった基本波は高密度ポリエチレン(HDPE)を用いて消光した。テラヘルツ波とプローブ光は酸化インジウムスズが成膜された石英ガラス板を用いて同軸で重ね合わせられたのち、軸外し放物面鏡(OAP)によって ZnTe 結晶に集光される。ZnTe 結晶内では、テラヘルツ電場による電気光学効果を通じて、2倍波の偏光状態が変化する。この偏光状態の変化を検出することで、テラヘルツ波の電場波形を復元できる(電気光学サンプリング法)。

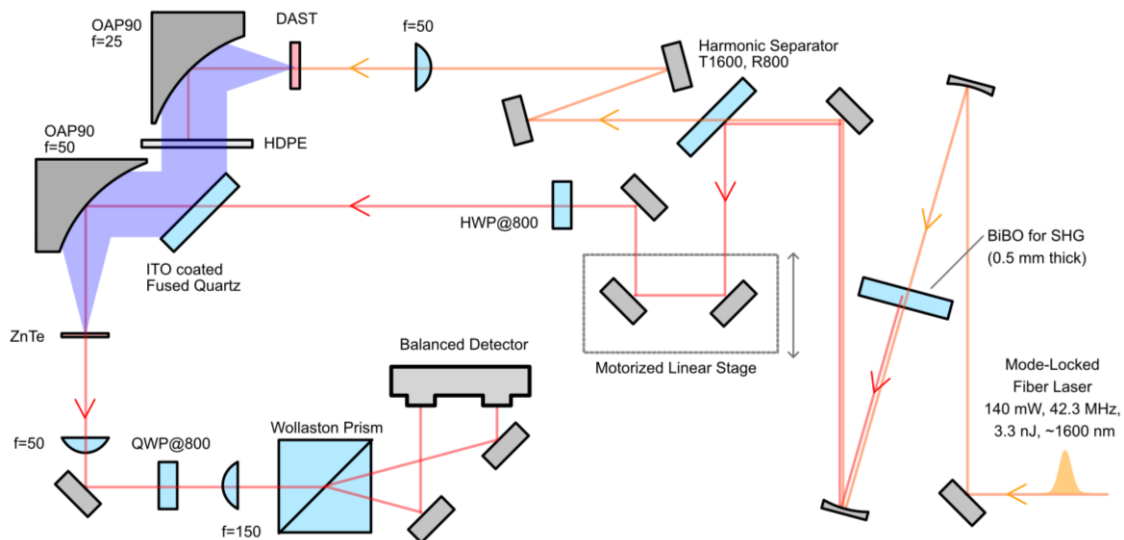


図3. テラヘルツ波発生・検出システムの光学系概略図。

図4に検出されたテラヘルツ波の電場波形およびそのパワースペクトルを示した。中心周波数は、DASTの位相整合条件から予想される $\sim 2$  THzであった。本研究を通じて、テラヘルツ波の観測は可能となったが、現状では信号ノイズ比が良くないため、波形を取得するために測定を繰り返して平均化を行う必要がある。今後、ロックイン検出を導入することで、一波形を取得するために必要な時間を短縮していきたい。

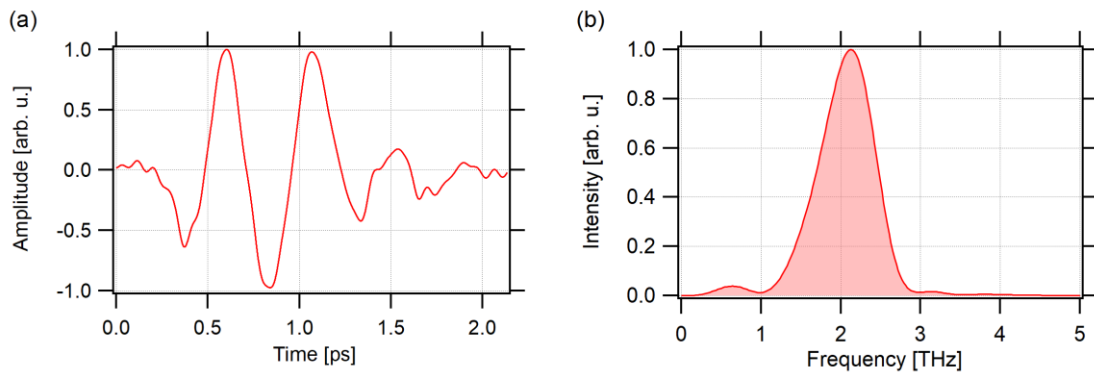


図4. (a) テラヘルツ波の電場波形, (b) そのパワースペクトル。

本研究の成果を踏まえ、今後は次のような展開を考えている：

① 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・評価を行う

開発したレーザー光源およびテラヘルツ発生・検出系を放射光施設 (SPring-8 もしくは NewSUBARU) に持ち込み、その動作および放射光 X 線と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。また、X 線とテラヘルツ波を試料に同時に照射した際の、テラヘルツ波の透過率変化を調べるなど、時間分解分光に向けた予備実験を行う。

② 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

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。テラヘルツ応答を観測することで、物質中での電荷のバンド内遷移ダイナミクスやスピン・磁性ダイナミクスに関する知見が得られると期待できる。

4 生活や産業への貢献および波及効果

本研究を通じて、放射光とレーザーを組み合わせた時間分解分光実験がさらに進歩すれば、電子ダイナミクスの観点から物質中の過渡現象の理解が深まり、材料の開発や高性能化、新原理にもとづくデバイス作製などにつながると期待される。特に、X 線により内殻励起された物質の過渡状態については未踏の研究領域となっており、その理解を深めることで、X 線による物質の損傷・加工メカニズムの理解等にもつながる可能性がある。

また、放射光 X 線パルスとレーザーパルス間の非線形相互作用の研究 (X 線非線形光学) へと発展させられる可能性もある。X 線領域における非線形光学は基礎科学としての重要性に加えて、その応用により放射光ビームライン技術・レーザー技術の更なる進歩につながる点でも重要である。

参考文献

- [1] S. M. Durbin et al., “X-ray pump optical probe cross-correlation study of GaAs,” *Nature Photonics* **6**, 11 (2012).
- [2] M. Jazbinsek, L. Mutter, and P. Günter, “Photonic applications with the organic nonlinear optical crystal DAST,” *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **14**, 1298 (2008).