

研究報告書

「テラヘルツ電磁波による高速電子スピン操作」

研究期間：平成 19 年 10 月～平成 23 年 3 月

研究者：永井 正也

1. 研究のねらい

原子の内部電場に相当する 20MV/cm は非線形分光の目安となる電場強度であり、現在の超短パルスレーザーを用いれば容易に到達できる。しかし電磁波における磁場成分は 7T にも達し、スピンを容易に駆動するのに十分な磁場強度である。磁気共鳴は低周波数において一般に見られるのであるが、二価鉄や分子磁石などの偶数スピン系ではゼロ磁場分裂での磁気遷移が THz 領域に現れる。したがって高強度の THz 電磁パルスを用いればスピン操作を高速でかつ容易に行える可能性がある。

本提案では超短パルスレーザーの波長変換技術を駆使することで高強度の THz 電磁パルスを発生させ、また高感度検出技術を駆使することで線幅の狭い磁気遷移を高精度で分光を行う。そして、高強度光源を用いたスピンエコーなどの非線形応答を時間領域で計測し、新しいスピン操作の方法論の確立を狙う。このために簡便な高強度 THz 電磁パルス発生法と高いダイナミックレンジを持つ検出手法を開拓し、非線形分光の手法をまず大きな振動子強度を持つ電気双極子許容遷移を用いて確立する。そしてこれらを磁気共鳴のある系に適用する。

2. 研究成果

1) 光整流過程を用いた高強度 THz 電磁パルス発生法の確立

さきがけ研究を遂行するために必要な超短光パルスを用いた高強度 THz 電磁パルスの発生において、まず非線形結晶の光整流過程に注目した。反転対称性のない透明媒質に高強度光パルスを照射すると、光パルス強度の包絡線にその波形が対応する 2 次の非線形分極 $P^{(2)}(t)$ が媒質中に形成される。この非線形分極が輻射源となり、 $P^{(2)}(t)$ の 2 階微分の波形のモノサイクル THz パルスが放射される。LiNbO₃ など大きな $\chi^{(2)}$ を持つ誘電体は高い発生効率が期待できる。しかし屈折率の THz 領域と可視領域の不整合から位相整合条件がとりにくく、励起光に対して非同軸方向に THz 光が弱く放出される。逆に THz 光の伝播方向に対して非線形分極のパルス面が THz 光の位相と整合するように励起光の波面を空間制御すれば、高効率で THz パルスが発生できる。

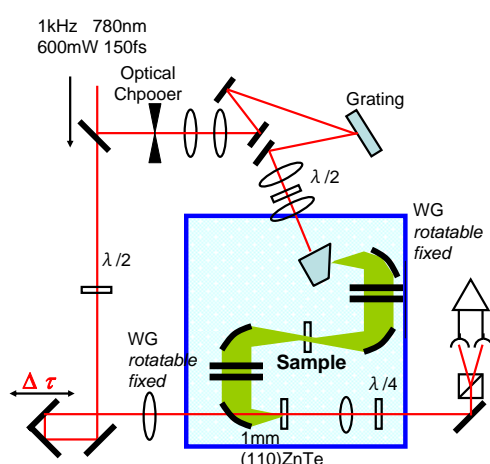


図 1: 高強度 THz パルス発生の実験配置。

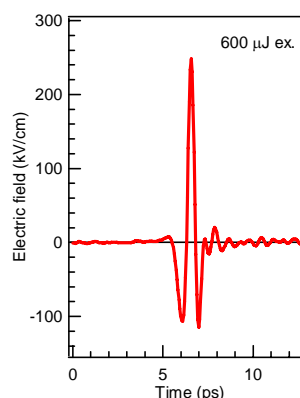


図 2: パルス面制御した光励起による LiNbO₃ 結晶から発生した THz パルスの電場波形。

図 1 に京都大学で行った高強度 THz パルス発生の実験配置を示す。再生増幅されたチタンサファイヤレーザー (1 KHz, 570 mW, 780 nm, 150 fs) からの光を THz 波発生用と検出用に無偏光ビー

ムスプリッターで二つに分ける。励起光はホログラフィック回折格子 1800 /mm とレンズ2枚を用いて波面の空間制御を行い、2×3mmのスポットサイズで結晶に照射した。ここで回折格子とレンズを用いることが、角度周波数分散も同時に制御することになる。非線形結晶はOXIDE社製の1.5 % MgドープされたLiNbO₃を5×5×5 mm³、62°の角度でカットしている。なお励起光が入射する面を近赤外無反射コートしている。発生したTHz電磁波は軸はずし放物面鏡でガイドし、検出用の(110)カットのGaP結晶に照射した。そして電気光学過程によるサンプリング光の偏光回転の大きさから電場強度を評価した。

図2は室温におけるLiNbO₃結晶から放出したテラヘルツパルスの電場波形である。Ti:サファイヤレーザーからの光を入射すると発生するTHzパルスの最大電場強度は250 kV/cmにも達する。これは磁場に換算すると800 gaussである。この時間積分はエネルギー密度に対応し、33μJ/cm²となる。パイロエレクトリック検出器で検出したテラヘルツ光強度は550nJであり、変換効率としては9×10⁻⁴にも達する。

2) 再帰非線形過程を用いた THz パルス発生の高効率広帯域化の実現

高強度THzパルス発生の際に非線形結晶中には常に強い電場が当然のことながら存在している。この強い電場は非線形結晶内部で励起光の包絡線の波形を大いに歪調する。この条件を巧みに利用することで図3のように励起パルスのパルス幅を縮めることが可能であり、結果としてさらなるTHzパルスの発生を誘起し、また帯域に大幅に改善することができる。そこでサブピコ秒Ybドープファイバーレーザに注目し、広帯域で高強度のTHzパルス発生に成功した。このレーザーはエネルギー変換効率が非常に高いことから産業用途に用いられるものの、サブピコ秒程度のパルス幅しか得ることはできないため、THzパルス発生には不向きと考えられてきた。図4aはこの光パルスをLiNbO₃結晶に照射することで発生したTHzパルスの電場の時間波形を示す。弱励起下ではパルス幅0.6psに対応するTHzパルスが放射している。しかし励起光強度とともに発生したTHzパルスの波形が変化している。図3bは電場の最大最小の時間幅を示しており、これはおよそ励起光のパルス幅に対応している。したがって励起光のパルス幅が入射光強度とともに結晶中で変化していることが分かる。下に発生したTHzパルスの電場の最大値(図3c)をあわせて示しており、パルス幅が短くなる入射光強度で出力電場強度が大きく増大する様子が見て取れる。これらの結果は、大面積THzイメージング用の汎用光源としても期待される。また再帰的非線形過程を考慮した位相制御を行うことでハーフサイクルに近いTHzパルス発生も可能であると考えられる。

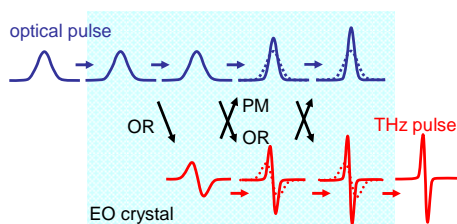
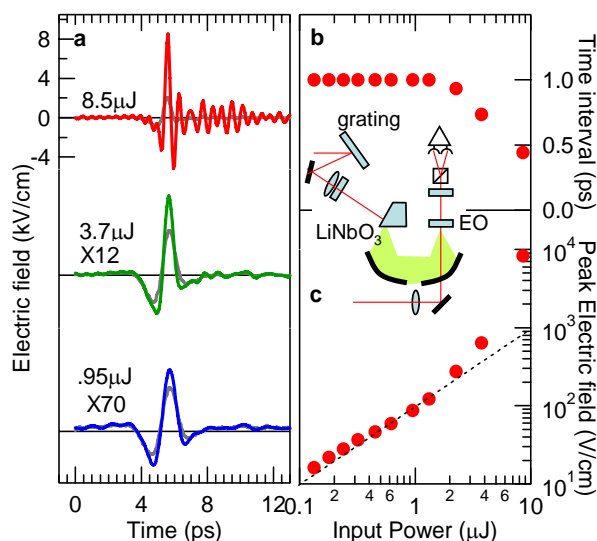


図3: カスケード $\chi^{(2)}$ 過程によるパルス圧縮の概念図。

図4: Ybファイバーレーザを用いた異なる励起強度でのTHzパルス。(a)電場波形、(b)電場の最大最小の時間幅、(c)最大電場強度。



3) 有機結晶の分子間振動における量子準位の駆け上がりの観測

高強度 THz パルス光源を用いた非線形分光の手法を確立するために、まず巨大な振動子強度を持つ分子性結晶の THz 振動を用いて非線形分光を行った。たんぱく質などの巨大分子にお

る THz 振動には水素結合を介した非調和性があり、その大振幅運動によって分子の配位に関するような巨視的応答が見られる。図 5 は異なる電場強度でのアルギニンペレットの光学密度を示す。電場波形は挿図に示し、電場強度のみをワイヤグリッド偏光子対を用いて減衰させた。弱い電場領域では 1.0THz を中心とした吸収が見られる。この振動ピークは水溶液にすると見られないことから、分子間振動に起因する吸収と考えられる。この吸収は低温にすると徐々に高周波数側にシフトする。分子間振動における非調和ポテンシャルの離散準位を考え振動モードが熱的に分布することで、このようなスペクトルシフトを説明できる。すなわち低温ではモードが最低エネルギー状態に分布するのだが高温では励起状態にモードが分布する。この際に準位間隔は高い励起状態では狭くなるため、結果として吸収スペクトルは温度とともに低周波シフトする。このような非調和性を持つ振動子に強い THz 電場を印加すると、この吸収ピークは徐々に減少しそれに入れ替わるように 0.4 THz 以下の成分が増加していく。このような応答は最大電場強度が 25 kV/cm 以上でこのような非線形な応答が顕著に現れる。

これらの実験は大振幅振動を THz パルスでコヒーレントに駆動した結果大きな非線形性を得たと考える。得られたスペクトル形状はスペクトルの重みがより低周波数側に移行(すなわちソフト化)したように見える。これは非調和ポテンシャル中の振動モード分布がより高いエネルギーに駆け上がり、結果として誘起分極が大きくなったことを示唆している。

非調和振動については溶液系の光カー効果などの非線形現象を説明する古典モデルが数多く提唱されている。これらの系は熱浴との相関が強い非調和性があり、スペクトル形状のブロードニングを引き起こしてしまう。しかし、この試料は温度依存性から非調和ポテンシャルの形状を量子準位を仮定してある程度説明できる。それゆえに熱散逸を起こす前にインパルスの励起によるスペクトル形状の変化が起きると考えて議論できる。このようなコヒーレント過渡応答は 2 準位系では Bloch マスター方程式を用いて議論される。そこでこのモデルを多準位系に拡張して解析を行ったところ図4に示すように実験結果を再現できることを見出した。またそのスペクトル形状の変化から 20 段の量子準位の駆け上がりが観測されたと見積もられる。これは明らかに平衡状態からかけ離れたものである。このような多段の駆け上がりはモノサイクルパルスが持つ非常に広いスペクトル幅によって様々な遷移の周波数を網羅したものであるからである。

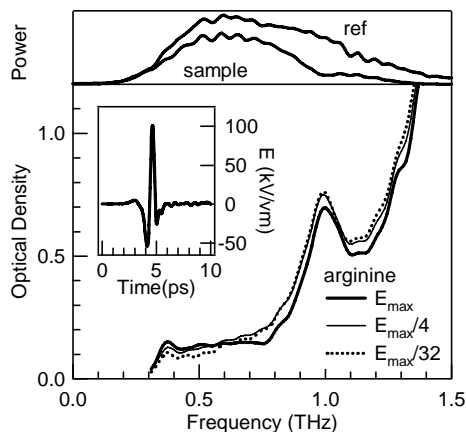


図 5: L-アルギニンペレットにおける異なる電場強度を持つ THz パルス(挿図に電場波形を示す)を入射し透過スペクトルを測定した際の光学密度スペクトル。上に入射光と透過光のスペクトルを示す。

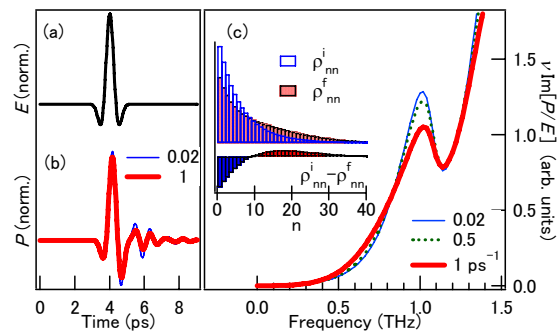


図 6: (a) 入射電場波形と(b) 誘導分極の時間依存性。(c) 異なる電場強度 $\mu^{(a)} E_0 / \hbar = 0.02, 0.5, 1 \text{ ps}^{-1}$ におけるフーリエ変換したスペクトル $v P / E$ 。挿図は初期状態、過状態における ρ^{in}_{nn} と最大電場強度で入射した際の密度行列の変化 $\Delta \rho^{(a)}_{nn}$ 。

3. 今後の展開

本提案の狙いでも述べたように、原子の内部の電場である $e/\epsilon_0 a_B^2 = 20$ MV/cm強度以上のDC電場をかけると固体媒質はイオン化してしまう。これは非線形光学応答が顕著に発現する電場強度の目安でもあり、本研究で構築した光源はこの電場強度に近づいたといえる。また固体媒質の緩和時間の多くはピコ秒の時間スケールであり、THzパルスはこのピコ秒の時間だけ電場が持続するとみなせる。この場合、緩和時間が短い系では印加された準DC的な強電場として物質の内部電場を直接支配することができ、逆に緩和時間が長い系ではモノサイクルパルス励起でコヒーレントに電気双極子許容の巨視的運動を駆動させながら新しい物質の状態に到達することも期待できる。実際に世界各国の研究者がこのようなTHzパルスに注目しており様々な系での非線形信号が報告されている。このことから高強度THzパルスは超高速光技術における新しい物質操作の概念を切り開くものと考えられる。

THz電磁パルスを用いたスピン制御においては、既にTiO₂の反磁性共鳴において実験的に例示されている。しかし他の系に適用するためには、大きな非線形性を持つ電気双極子許容遷移の寄与を抑える必要がある。1Tを超える電磁パルスの磁場が実現したとしても、巨大な電場成分によって、電子系が大いに変調される可能性がある。今後は金属の周期構造を用いて電場と磁場の空間分布を分離し、またTHzパルスの波形を制御することで、磁気遷移だけを選択的に励起することが今後重要であると考えられる。

4. 自己評価

さきがけ研究では高強度 THz 電磁パルスの磁場成分を用いて磁気共鳴を駆動することを目的とした。限られた装置や耐震補強工事などの厳しい研究環境の中で光源開発を行ってきたが、研究者の持つ技術や知見を最大限に生かした装置開発は、当初の目的を達成できたと考えられる。また THz 領域の非線形分光の手法を確立するために、半導体、誘電体、有機結晶、水など振動子強度の大きな系で実験を行っており、THz 非線形分光と物質操作という新しい研究分野の構築につながる結果を見出した。この点は当初の計画以上の成果を挙げたと評価できる。

ただし研究期間の時間的制約からこれらの光源を分子磁石の系に適用することはできず、スピンエコーの実験まで至らなかった点が残念である。いくつかの研究グループでは高強度 THz パルスを用いたスピン操作に関連した現象が報告されており、今後も継続して研究を行ってきたい。

5. 研究総括の見解

高強度の THz 電磁パルス光源開発と、高強度光源を用いた新しいスピン操作の方法論の確立を狙ったもので、オリジナルなアイデアで世界最高出力のテラヘルツ電磁波発生を成功させ、更に、高強度テラヘルツ電磁パルスで分子ネットワーク操作を世界で始めて実現した。

主たる成果は次の3点である。

- 1) 光整流過程を用いた高強度 THz 電磁パルス発生法の確立
- 2) 再帰非線形過程を用いた THz パルス発生の高効率広帯域化の実現
- 3) 有機結晶の分子間振動における量子準位の駆け上がりの観測

テラヘルツ電磁波が発生する過程で EO 効果を介した励起光のパルス圧縮を巧みに利用することで、「ファイバーレーザー」を用いたものでは世界最高出力(出力電場強度 8 kV/cm)・高帯域(2 THz) の THz 電磁波の発生に成功した。これは半導体電子デバイス中に印加される電場強度に匹敵し、次世代の超高速エレクトロニクスの構築や高感度テラヘルツ電磁波イメージ検出への応用が大いに期待できる。

また、パルス幅1psで、100kV/cm を超える電場を持続させるテラヘルツ電磁パルスの発生にも成功し、結晶中の分子を大振幅で揺さぶり、熱平衡状態では実現できないような分子変位を実現することに世界で初めて成功した。これは、化学合成における反応促進や、創薬における有機分子結晶の精製での活用が考えられる。

研究成果は主に3編の原著論文に纏められ、その高い評価は、「日本物理学会 若手奨励賞」

受賞に結びついている。また、産業界へのインパクトも高く2件の新聞発表、1件の特許出願を行っている。

本技術の応用範囲は広く、超高速通信に必要な半導体デバイスの超高速スイッチ制御を実現するテラヘルツエレクトロニクスへの展開、高強度・高繰り返しの特徴を生かすことによる小型のテラヘルツ動画イメージングシステムへの展開、タンパク質などの巨大分子の運動制御による機能発現への展開などが挙げられる。今後本研究を発展させ、高強度 THz パルスを用いた超高速光技術における新しい物質操作の概念を切り開くことを期待する。

6. 主要な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

	1. M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka, "Ladder Climbing on the Anharmonic Intermolecular Potential in an Amino Acid Microcrystal via an Intense Monocycle Terahertz Pulse", <i>Physical Review Letters</i> , 105 ,203003 (2010).
	2. M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka, "Enhancement of terahertz wave generation by cascaded $\chi^{(2)}$ processes in LiNbO_3 ", <i>Journal of Optical Society of America B</i> , 26 , (9), A101 (2009).
	3. M. Nagai, M. Jewariya, Y. Ichikawa, H. Ohtake, T. Sugiura, Y. Uehara, and K. Tanaka, "Broadband and high power terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via $\chi^{(2)}$ cascaded processes in LiNbO_3 " <i>Optics Express</i> , 17 ,(14) 11543 (2009).

(2)特許出願

研究期間累積件数:1件

発 明 者: 市川雄貴、大竹秀幸、永井正也、田中耕一郎
 発明の名称: "テラヘルツ波発生装置およびテラヘルツ波発生方法"
 出 願 人: アイシン精機株式会社、国立大学法人京都大学
 出 願 日: 2008/11/11

(3)その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

主要な学会発表 (国際会議 招待講演)

1. M. Nagai "Nonlinearity in terahertz photon physics", <i>Advanced Photons and Science Evolution 2010</i> (2010年6月14日 大阪)
2. M. Nagai "THz nonlinear spectroscopy with intense monocycle THz pulse" <i>The Asia Pacific Laser Symposium (APLS), APLS 2010</i> (2010年5月14日 済州島 韓国)
3. M. Nagai, "Molecules driven by intense THz pulses", <i>Program of 14th East Asian Workshop on Chemical Dynamics</i> (2010年5月11日 奈良)
4. M. Nagai, "Intense THz pulse generation and THz nonlinear spectroscopy", <i>Asian Conference on Ultrafast Phenomena (ACUP)</i> , (Taipei, Taiwan, Jan. 10-13, 2010).
5. M. Jewariya, M. Nagai, K. Tanaka, "Terahertz nonlinear transmission spectroscopy of amino-acid microcrystals", <i>34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW/THz2009)</i> , (Busan, Korea, Sep. 24, 2009).

受賞

永井正也 "高強度テラヘルツ電磁パルスと光物性への応用"
 日本物理学会 第4回若手奨励賞(2010年3月20日)

著作物

1. 永井正也, “3.4 角度波面整合放射(フェムト秒レーザー励起)”,3.5 ガスプラズマからの THz パルス発生”, テラヘルツ波新産業 (斗内政吉監修) シーエムシー出版 2011 年 1 月発刊
2. 永井正也, 田中耕一郎, “LiNbO ₃ を用いた高強度広帯域モノサイクルテラヘルツ電磁パルス発生”, レーザー研究, 37, (5) 350-354(2009).
3. 永井正也, “非線形光学結晶からのテラヘルツ発生:無機非線形結晶”, pp.117-119 “テラヘルツポンププローブ分光”, pp 423-425 “表面モード”, pp.517-519 テラヘルツテクノロジーフォーラム編 「テラヘルツ技術総覧」(2007 年 NGT 出版)