

## 研究終了報告書

## 「ベクトル波形制御された高強度高周波テラヘルツパルスによる物質制御」

研究期間:2020年10月～2024年3月

研究者:神田夏輝

## 1. 研究のねらい

周波数が数十 THz の高周波テラヘルツ領域は、高強度パルスによる固体の物性制御の観点で興味深い周波数領域である。可視光・近赤外領域に比べると光子エネルギーが小さく、バンドギャップを超える電子励起を抑制できるため、高強度光源でも物質の破壊を起こしにくい。1THz 近傍のテラヘルツ領域と比較しても、高効率なエネルギー変換と同時に集光径を小さくすることでより巨大な電場発生が可能であり、キャリア-エンベロープ位相を固定した電場尖頭値が数十 MV/cm にも及ぶ極めて強い光パルスの発生が可能となってきた。このような高速に時間変化する光電場を用い、光と物質のコヒーレントな相互作用によってフロッケ状態の観測や固体高次高調波発生などの研究も実現し、超強電場と物質の非摂動論的相互作用の研究が現在世界的規模で行われている。

そこで、本研究では偏光の自由度を加え、新たな超高速物性制御の研究を切り拓くことをねらいとした。高周波テラヘルツ領域において、高速に時間変化する光電場の偏光成分まで操作し、さらには時々刻々と変化する電場ベクトルの軌跡まで自在に制御した「ベクトル波形整形」を導入することを考えた。電場強度が MV/cm 級の高強度なベクトル整形パルスを実現することで、強電場による高速物性制御への新たな自由度付加の道が拓かれ、近年大きな注目を集めるトポロジカル物質の研究においても超高速な相制御として重要な展開をもたらすものと期待した。

本研究では、このようなベクトル波形整形された高強度高周波テラヘルツパルス発生技術の確立のため、この波長帯における偏光精密計測法の開発、ベクトル波形整形の実現、ベクトル整形パルスの高強度化、の3段階に分けて研究を計画した。さらに、生成したベクトル整形パルスを用いた物性制御として、フロッケ-ワイル状態の超高速制御を計画して研究を行った。

## 2. 研究成果

## (1) 概要

高周波テラヘルツ帯でのベクトル波形整形技術の開発を行った。ベクトル整形パルスの評価のために、任意の電場ベクトルの向きと大きさを測定する手法を確立した。そして、近赤外偏光波形整形技術を用いて、高周波テラヘルツ帯での円偏光パルス及び逆回り二色円偏光の波形整形に成功した。

また、ベクトル整形パルスの応用として考えたディラック半金属の超高速制御に関連して、ディラック半金属のキャリアダイナミクスやフロッケ状態の応答などを高周波テラヘルツパルスを用いたポンププローブ実験で明らかにした。

## (2) 詳細

### 1. 高周波テラヘルツ帯偏光計測法の開発

本研究で目標とするベクトル整形された高周波テラヘルツ波の評価のため、電場ベクトルの向きと大きさを測定する手法を開発した。

パルス幅 160fs の Yb:KGW 再生増幅器の出力をマルチプレート法でパルス圧縮し、高周波テラヘルツ発生・検出系を構築した。そして検出用のゲート光に光弾性変調器 (PEM) で偏光変調を加えることで、電気光学検出信号の変調からマルチテラヘルツ電場の大きさと向きを抽出することに成功した。

図 1(a)に示す通り、直線偏光を正しく直線として測定できることを確認した。さらに、33THz 用の  $\lambda/4$  波長板を挿入し、円偏光的な偏光状態を生成して測定した。図 1(b)に示す通りヘリシティを持った電場ベクトル軌跡が測定され、波長板の角度を変えることでヘリシティが反転することも確認した。

さらに、電場ベクトル方向の決定精度及び確度についての評価を行った。ワイヤーグリッド偏光子で直線偏光を生成し、図 1(c)のように繰り返し測定による統計誤差から決定精度を見積もった。1 秒間の積算で 1.7mrad という精度が得られた。さらに、既知の偏光子角度と計測された電場ベクトル方位角を比較することで、確度の評価を行った。 $-90^\circ \sim +90^\circ$  の全域にわたって正しく測定できており、図 1(d)のように 1mrad オーダーの小さい角度範囲においても正しく測定できることが確かめられた。

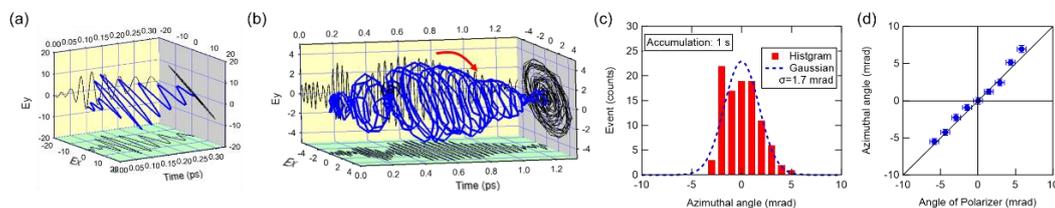


図 1: 偏光計測結果。(a)直線偏光、(b)円偏光。(c)電場方向決定精度の評価、(d)確度の評価。

### 2. 高周波テラヘルツ帯ベクトル整形パルスの発生

本研究では、差周波発生過程における結晶の対称性と偏光選択則の理解に基づき、近赤外パルスに偏光波形整形を施すことでベクトル整形された高周波テラヘルツパルスの発生を行った。本研究期間において、円偏光パルス及び二色逆回り円偏光パルスの生成と制御に成功している。

そのような波形制御のために、図 2(a)に示すような近赤外波形整形器を構築した。デュアルマスクの空間光変調器を導入し、4f 光学系の波形整形器を構築した(図 2(a))。 $\lambda/4$  波長板を組み合わせることで、空間光変調器の 2 枚の位相変調マスクをそれぞれ左右円偏光の位相制御に用いることができる。このシステムで整形した近赤外パルスを三回対称な高周波テラヘルツ発生結晶に入射させ、発生した高周波テラヘルツ電場ベクトルの波形を項目 1 で開発した偏光計測法を用いて測定した。

高周波テラヘルツ円偏光パルスの波形整形において、SLM に与える位相変調を陽的に

決められるチャープ制御法を適用し、所望の高周波テラヘルツ発生のための近赤外波形整形を行った。中心周波数 25THz、パルス幅 75fs の左回り円偏光を目標波形として与えた時に得られた測定結果を図 3(b)に示す。図 3(c)に設計波形との比較を示すが、非常に良い一致を示している。この手法により左右円偏光の切り替え、中心周波数、パルス幅、CEPの制御を実証した。

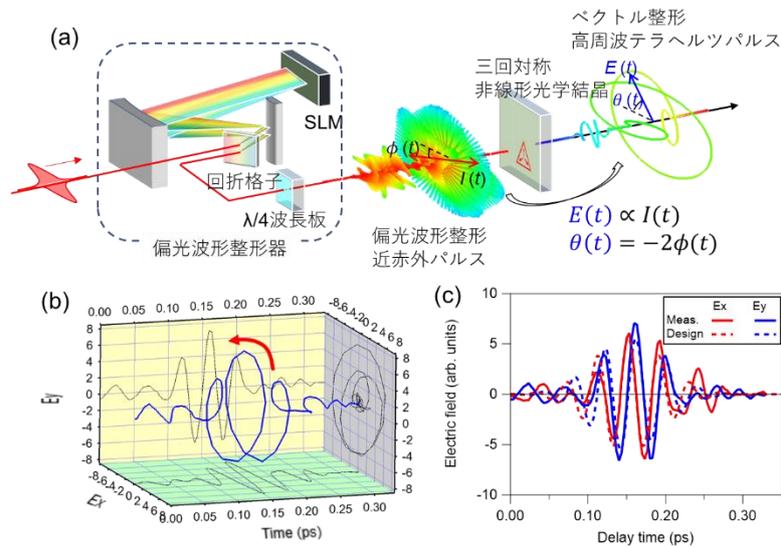


図 2: (a)ベクトル波形整形模式図、(b)円偏光高周波テラヘルツパルス(c)設計波形との比較

さらに、近年フロッケエンジニアリングの観点でも注目を集める逆回り二色円偏光パルスの生成を行った。二つの周波数の逆回りの円偏光を重ねると、その周波数比に応じて異なる対称性を持つ電場ベクトル軌跡が生じる。そのようなパルスを生成するための近赤外パルスの整形方法を考案した。図 3(a)に示すスペクトログラムのように、広帯域な近赤外スペクトルの中の3つの周波数バンドのみを使用し、それぞれの円偏光の向きを図 2(a)の SLM で制御する方法である。使用しない周波数成分については時間遅延に対応する位相を与えようで円偏光とする。これにより、三回対称な系での偏光選択則から、所望の逆回り二色円偏光が得られる。なお、この時は図 2(a)の  $\lambda/4$  波長板を取り除く。

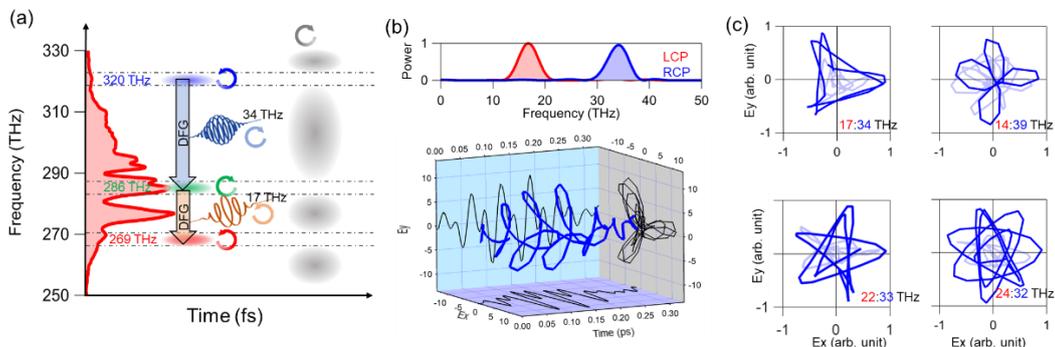


図 3: (a) 逆回り二色円偏光発生のためのアイデア、(b)周波数比 1:2 の逆回り二色円偏光、(c) 周波数比の制御。

図 3(b)に 17THz と 34THz の逆回り二色円偏光の測定結果を示す。円偏光基底でのパワースペクトルが設計通り得られている。また、周波数比 1:2 に対応し、三回対称な電場ベクトルの軌跡を描いている。SLM の制御により周波数比(図 3(c))、強度比、相対位相、ヘリシティなど逆回り二色円偏光における多くのパラメータをプログラマブルに操作できることを実証した。

### 3. ディラック半金属の円偏光誘起異常ホール伝導の観測

本研究ではベクトル波形整形されたマルチテラヘルツパルスによる物性制御として、3次元ディラック半金属に対する円偏光照射時のフロッケ-ワイル状態の制御を目標の一つにした。そのために、高周波テラヘルツ領域におけるポンププローブ実験システムを構築し、時間分解能 28fs で 10~45THz の広帯域な複素応答関数変化の計測を可能にした。

まず、3次元ディラック半金属  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  のキャリアダイナミクスを調べるため、波長  $2\mu\text{m}$  での励起後の高周波テラヘルツ帯の応答関数の変化を調べた。図4(a)に光学伝導度実部の変化を示す。励起後に低周波側に吸収の増加が見られ、Drude 応答が形成されている。また、高周波側は吸収の減少が見られ、パウリブロッキングによるブリーチングが起きていることがわかる。また、図4(a)右側には縦波吸収に対応する損失関数を示している。励起前のキャリア密度に応じた 10THz 付近のピークが、光励起によるキャリア増大でブロードになった後に高周波側の新たなピークとなる。これは 500fs 程度の時間で準熱平衡化が起こり、Drude 応答で記述される一つの集団運動に移行する過程をとらえたものとなっている。また、このポンププローブ実験から、高周波テラヘルツ領域ではプラズマ周波数が励起前後で横切るために、屈折率の急激な減少が起こることがわかった。

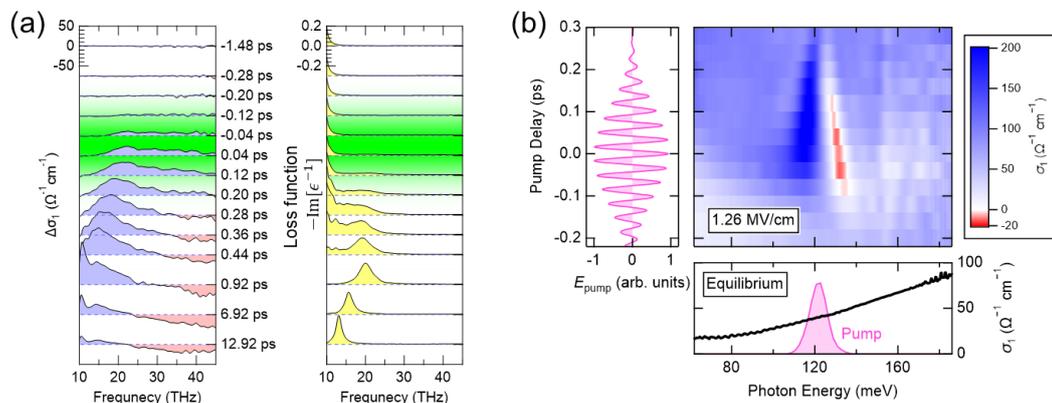


図 4: ディラック半金属  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の高周波テラヘルツ帯ポンププローブ。(a)波長  $2\mu\text{m}$  で励起した際の応答関数変化。左:伝導度実部の変化、右:損失関数。緑の領域はポンプ照射の時間を示す。(b)周波数 30THz で励起した際の伝導度変化。左:ポンプ時間波形、下:平衡状態での伝導度スペクトルとポンプスペクトル。

次に、高周波テラヘルツパルスで励起した際の高周波テラヘルツ応答について調べた。高強度・狭帯域の高周波テラヘルツパルスで励起を行うことで、時間について周期的な光電場で駆動されたフロケ状態が生成される状況を調べた。図4(b)に伝導度スペクトルを示す。ポンプ照射時に大きな伝導度変化が起きており、スペクトル形状はポンプの低周波側でピーク、高周波側でディップを持つ分散型の形状となった。上述のように大きな屈折率変化が起こる場合には、フロケサブバンド間の共鳴による誘導レイリー散乱が支配的になり、この効果で分散型のスペクトルが説明されることを明らかにした。

さらに、Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub>に対して円偏光マルチテラヘルツパルスを照射し、1THz帯のテラヘルツパルスの偏光回転プローブの実験を行った(図5(a))。テラヘルツ時間領域分光を用いることで、異常ホール伝導の時間分解測定を実現している。ポンプ周波数は33THzであり、波長板を用いて円偏光を生成した。ポンプ光の円偏光のヘリシティに応じて反転する偏光回転を観測され、横伝導度スペクトル $\sigma_{yx}(\omega)$ が得られた(図5(b))。ポンプ照射時に大きな信号が得られるが、振動する成分やpsオーダーの比較的長く続く成分も観測され、複数の起源が存在することが示唆された。伝導度の符号も含めた詳細な考察を行い、照射中にはプローブのテラヘルツ電場誘起インジェクション電流によるテラヘルツ放射、照射後には励起されたキャリアの時間反転対称性の破れが支配的になっていることを明らかにした。

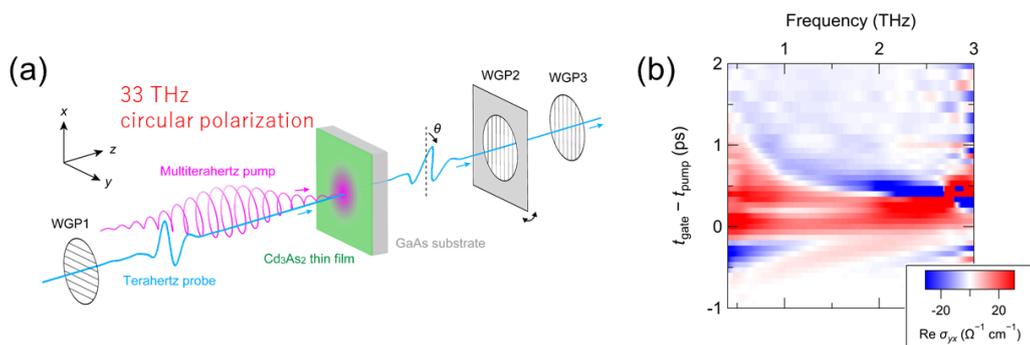


図 5: (a)円偏光誘起異常ホール伝導測定の様式図、(b)異常ホール伝導度スペクトルの時間変化。

### 3. 今後の展開

本研究で開発した高周波テラヘルツ域での高精度偏光計測法は、より一般的にこの周波数帯の偏光分解時間領域分光を可能にする有用な手法である。偏光計測により物質のカイラリティー検出やひずみ計測にも適用できると考えられる。

また、本研究で実現したベクトル整形高周波テラヘルツパルスは、光電場で駆動する物性制御の基礎研究において重要なツールとなると考えている。固体中で電子が加速される方向を自在に制御することができ、非摂動的な高調波発生機構の解明と固体ベースでの広帯域波長変換システムの開発にも大きく寄与する可能性があると考えている。本さきがけ研究では光電場によるトポロジカル半金属の制御に注目したが、光電場に付随して生じるスピンのベクトル制御を活かした研究展開なども考えられる。逆回り二色円偏光パルスは、近年ディラック半金属のフロケ状態制御や二次元物質のバレー制御に関する理論提案もなされている。今後実証実験が行われるうえで、本さきがけ研究成果は重要な要素技術になると考えている。

#### 4. 自己評価

##### 研究目的の達成状況

おおむね順調に目標を達成していると考えている。研究提案時の項目である(1)偏光精密計測法の開発、(2)ベクトル波形整形の実現、(3)ベクトル整形パルスの高強度化、(4)フロッケ-ワイル状態の超高速制御について、状況を述べる。

##### (1) 偏光精密計測法の開発

計画通り、任意の電場ベクトル軌跡を描く高周波テラヘルツパルスの計測法を確立した。データ解析において当初想定していなかった1THz帯との違いが生じたが、高周波テラヘルツ帯で適用できる解析法を提案、実証した。この内容は論文誌 (*Optics Express*) に掲載された。

##### (2) ベクトル波形整形の実現

これに関しても、目標を達成できた。SLMによる広帯域近赤外パルスの偏光波形整形を実現し、円偏光マルチテラヘルツパルスの波形整形に成功した。さらに、当初の計画には無かった逆回り円偏光パルスの生成および制御にも成功した。これらの成果は1件の投稿済み論文と1件の執筆中論文にまとめている。

##### (3) ベクトル整形パルスの高強度化

高強度化に関しては、まだ実施中で目標を達成できていない。MV/cm 級の電場強度を提案したが、現在 100kV/cm 程度にとどまっている。

提案した増幅用断熱位相整合結晶の作製のため、GaSe 結晶の劈開方法、およびレーザーによる加工方法の検証実験は実施済みである。量産と積層化が課題となっている。また、提案時の代案として高強度レーザーパルスの圧縮についても現在実施中である。

##### (4) フロッケ-ワイル状態の超高速制御

ディラック半金属においてポンプローブ実験を実施し、励起状態のダイナミクスに関して多くの知見を得ることができた。それらの成果は4件の出版済み論文にまとめている。これらのポンプローブ実験では直線偏光または円偏光の高周波THzパルスを用いており、ベクトル整形パルス照射は今後の課題である。

##### 研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)

研究実施体制は、おおむね提案時通り適切であった。

東京大学物性研究所松永研究室では期間中に本研究で使用したYb:KGWレーザーが追加購入され、多くの時間で占有して実験を進めることができた。期間中に空調設備の老朽化、改修工事により一部計画から順番を変えて実施したが、多くの成果を得ることができた。

最終年度は理化学研究所へ異動したが、物性研究所のリサーチフェローの身分も取得し、順調に研究を継続している。Yb:KGWレーザーが松永研究室所有のため、実験は主に松永研究室の学生、スタッフと協力して進めている。理化学研究所でもYb:KGWレーザーを現在調達中であり、実験準備を進めている。また、スタートアップ支援も活用し、理研サイトでも物性研での実験準備を行う環境を整えている。

研究費は適切に執行している。当初の計画通り、光弾性変調器や空間光変調器などの高額物品もそろえることができた。

### 研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果

本研究で開発した高周波テラヘルツ域での高精度偏光計測法やベクトル波形整形技術は、分光技術としても重要であり、物質のカイラリティ検出やひずみ計測にも適用できると考えられる。本研究において高周波テラヘルツ帯で実証した要素技術は、他の周波数帯へ適用できるものもあり、テラヘルツや中赤外領域への波及効果も考えられる。

また、本研究で得られたディラック半金属のキャリアダイナミクスや高周波テラヘルツ波照射時の応答に関する知見は、今後のディラック半金属の光制御の研究において重要な情報となる。近年のフロッケーエンジニアリングの研究の盛り上がりも鑑みて、本研究で実現した円偏光パルスや逆回りに色円偏光パルスは当該分野での実験研究の扉を開くものとなる。

### 想定外の展開による成果、研究者として飛躍につながるような成果

ベクトル波形整形において、逆回り二色円偏光パルスの生成は当初計画していなかった想定外の成果であった。

当初の計画では、近赤外パルスに対するチャープ制御法を適用することで任意の高周波テラヘルツ波形が生成できると考えていたが、瞬間的な帯域が不足するために十分な制御性が発揮できないという想定外の状況となった。一方で、逆回り二色円偏光パルスによる物性制御に関する理論提案が複数のグループから本研究期間内に報告された。そこで本さがけ研究の技術を活用し、高周波テラヘルツ帯での逆回り二色円偏光パルス発生に取り組み、実証することができた。逆回り二色円偏光パルスの多くの自由度を制御できる手法を考案することができ、本成果を論文にまとめ現在投稿準備中である。このようなパルスを先駆けて実証することで、実験家・理論家の双方から注目される成果となったと考えている。

本さがけ期間中に、東京大学物性研究所から理化学研究所超高速コヒーレント軟X光学研究チームへ異動することとなった。本さがけで培った要素技術は高周波テラヘルツのみならずより短波長の中赤外領域へも展開していくことが考えられ、高次高調波発生のための光源技術としても重要である。また、逆回り二色円偏光パルスは円偏光高次高調波発生にも用いられる技術であり、現職でも取り組んでいく予定である。このように、本さがけ研究に取り組んだことは研究者として飛躍につながるきっかけとなった。

## 5. 主な研究成果リスト

### (1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数： 11件

1. **Natsuki Kanda**, Yuta Murotani, Takuya Matsuda, Manik Goyal, Salva Salmani-Rezaie, Jun Yoshinobu, Susanne Stemmer, Ryusuke Matsunaga, "Tracking Ultrafast Change of Multiterahertz Broadband Response Functions in a Photoexcited Dirac Semimetal  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  Thin Film," *Nano Lett.* **22**, 2358–2364 (2022).

概要： 3次元ディラック半金属  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  に対し、近赤外光で光励起を行い、高周波テラヘルツ時間領域分光を用いることで 10~50THz における複素応答関数のダイナミクスを

計測した。励起直後の準熱平衡化のダイナミクス、および準熱平衡化後の Drude 応答による巨大な屈折率変化を明らかにした。

2. Yuta Murotani\*, Natsuki Kanda\*, Tatsuhiko N. Ikeda, Takuya Matsuda, Manik Goyal, Jun Yoshinobu, Yohei Kobayashi, Susanne Stemmer, and Ryusuke Matsunaga, "Stimulated Rayleigh Scattering Enhanced by a Longitudinal Plasma Mode in a Periodically Driven Dirac Semimetal  $Cd_3As_2$ ", Phys. Rev. Lett. **129**, 207402 (2022). (\*: equal contribution)

概要: 3次元ディラック半金属  $Cd_3As_2$  において、高強度なマルチサイクルの高周波テラヘルツパルスを照射した際に、高周波テラヘルツ帯の伝導度スペクトルに大きな分散型の構造が現れることを見出した。光照射により大きな屈折率変化が起こる場合には、フロクサブバンド間の共鳴による誘導レイリー散乱が支配的になり、この効果で分散型のスペクトルが説明されることを明らかにした。

3. Natsuki Kanda, Mayuri Nakagawa, Yuta Murotani, and Ryusuke Matsunaga, "Time-domain characterization of electric field vector in multi-terahertz pulses using polarization-modulated electro-optic sampling", Opt. Express **32**, 1576 (2024)

概要: 高周波テラヘルツパルスの電場ベクトルの時間波形を計測する手法を確立した。電気光学サンプリングにおいて、ゲート光パルスに偏光変調を施すことで変調された信号を計測し、そこから各遅延時間における電場ベクトルの大きさと向きを決定する手法を開発した。

## (2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件(特許公開前のもも含む)

## (3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

### 受賞

第16回(2022年)日本物理学会若手奨励賞(領域5)

### 解説記事

- 1) 神田 夏輝, 石井順久, 板谷治郎, 松永 隆佑, “パルス内差周波発生法と光パラメトリック増幅による位相安定高強度マルチテラヘルツパルス発生” レーザー研究, 第 50 巻第 6 号 p. 286-290 (2022/6/20発行)
- 2) 室谷悠太, 神田夏輝, 松永隆佑, “ディラック半金属  $Cd_3As_2$  における赤外広帯域超高速応答とスローライト生成”, 固体物理 50, 411 (2023). (2022/9/15発行)
- 3) 室谷悠太, 神田夏輝, 松永隆佑, “光誘起異常ホール効果を解き明かすテラヘルツ偏光計測”, 光アライアンス 35, 44 (2024). (2024/2/1発行)

### 国際会議招待講演

- 1) Natsuki Kanda, Yuta Murotani, and Ryusuke Matsunaga, "Ultrafast terahertz spectroscopy and Floquet engineering in a 3D Dirac semimetal  $Cd_3As_2$ ", Future Materials 2022 3rd International Conference on Materials Science & Nanotechnology (Rome-Online), Oct. 7, 2022 (Invited)
- 2) Natsuki Kanda and Ryusuke Matsunaga, "Phase-stable multi-terahertz light sources and broadband time-domain spectroscopy in a Yb-based regenerative amplifier", 3rd

International Conference on Optics, Photonics and Lasers (Online), Nov. 9, 2022 (Invited)