

論文の内容の要旨

論文題目 時空間モルフォロジー制御によるテラヘルツ振動のベクトルの操作

氏名 神田 夏輝

1. 背景

周波数が 0.1~10 テラヘルツ (THz) 程度の領域は THz 周波数領域と呼ばれる。この周波数領域に対応する物理現象は、半導体中のキャリアのプラズマ応答、分子の回転振動、分子間振動、固体中のフォノン、反強磁性共鳴、超伝導ギャップなど多岐に渡っており、THz 領域は物性研究にとって重要な周波数帯である。また、紙やプラスチックに対する透過性が高く、水分子との相互作用が強いため、産業応用やバイオ応用といった幅広い応用も期待される。

この THz 領域はフォトニクスとエレクトロニクスの間領域に位置しているため、利用が遅れてきた領域である。しかし、近年の超短パルスレーザー技術の進歩に伴い、コヒーレントな THz 電磁波の発生・検出技術が進歩し、急速に普及してきている。また、超短パルス光による励起を用いて誘導ラマン的な過程により THz 領域に相当するエネルギーの素励起を行い、それらをコヒーレントに制御する研究も盛んに行われている。

この周波数領域における次の目標として、テラヘルツ振動のベクトル的な制御が挙げられる。THz 電磁波においては、振動のベクトル自由度は偏光に相当する。THz 偏光計測は非接触ホール測定や DNA、たんぱく質のキラリティー検出といったスカラー測定では得られない情報を得ることができるため、重要な技術である。しかし、THz 領域での偏光制御素子は未だ限られており、偏光計測においてもこの点が大きな制約となっている。また、物質中の THz 振動においては、スカラー量の振動を多次元に拡張することで制御の自由度を増やすことができる。さらに、これらの THz 振動はしばしばテラヘルツ電磁波を放射するため、偏光制御された THz 電磁波発生源としての応用も期待できる。

2. 目的

以上のような背景の中で、本研究では時空間モルフォロジーを制御することで THz 領域の偏光制御や物質中での振動のベクトル的な制御を行うことを目的とした。

振動のベクトル的な制御において「ねじれ」の概念は重要な役割を果たし、本研究では時空間モルフォロジーにねじれを導入した。空間的なねじれは構造のキラリティーに対応する。近年の微細加工技術の進歩により光の波長以下の人工構造が作製可能となり、それらによる光波制御の研究が盛んに行われているが、構造をキラルな形状にしたときには光学活性が生じ、偏光回転を起こすことができる。光学活性による旋光性は入射偏光に関係なく同じ大きさの偏光回転を与えることができ、新たな偏光制御の手法となりうるものである。一方で、時間方向のねじれは時間的に偏光が変化する光パルスに対応し、これを励起光に用いることで物質中の励起を二次元的なものにすることができる。これは時間的にねじれたパルスが振動の左右円運動を非等価に励起していることによるものである。

3. 成果

3-1. キラル格子の光励起によるテラヘルツ光学活性の動的制御

高抵抗 Si 基板上の単層金属キラル格子構造に対する光照射により、光励起キャリアの効果によってテラヘルツ領域における旋光性を発現させることに成功した(図 1)。金属格子の形状がアキラルな場合には光励起を行っても THz 偏光回転はほとんど観測されないのに対し、キラルな場合には偏光回転が観測され、励起強度を大きくするにしたがって偏光回転も増大することが明らかになった。また、キラルティーが逆向きのキラル格子の場合には偏光回転の向きが反転した。

これは、光励起を行う際に金属キラル格子構造がマスクの役割を果たし、金薄膜がない部分のみ Si 基板が励起されるためである(図 1(b))。これにより、Si 基板中にはキラル格子構造の形状を反映したキラルなキャリア分布が生成される。このキャリア分布が三次元キラルティーを増大し、金属キラル構造との二層構造を形成することにより、光励起によって大きな光学活性が生じることが明らかになった。

また、数値計算によるシミュレーションにおいても、キャリア応答を Drude モデルで表現し、キラルな金薄膜とキラルなキャリア分布を仮定することで、透過スペクトルと偏光回転スペクトルの実験結果をよく再現することができた。

この結果は、光励起キャリアによって形成される三次元キラルモルフォロジーによって THz 波に対する旋光性の制御が可能であることを示した初めての結果である。

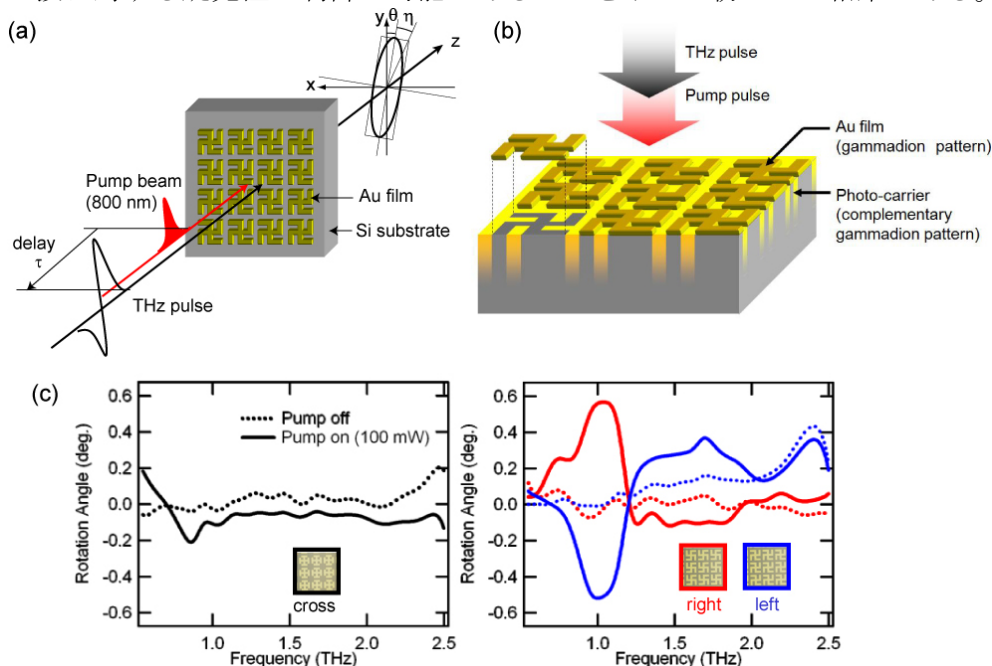


図 1 : (a)キラル格子に対する光励起の実験の模式図。(b)光励起によるキラルなキャリア分布の生成。(c)アキラル、およびキラルパターンでの偏光回転スペクトル。

3-2. 光誘起テラヘルツ光学活性の過渡応答測定

光励起キャリアによる旋光性は、三次元モルフォロジーによって生じるという特徴により、その応答速度はキャリアの寿命ではなく、キャリア拡散の効果が支配的になるということを実験的に明らかにした。

また、この効果の時間ダイナミクスを詳細に調べるために、低繰り返し光励起と高繰り返しの THz 検出を組み合わせた計測法の開発を進めた。この方法により、通常の単一の繰り返し周波数の光パルスを用いた光学遅延では困難なナノ秒から数マイクロ

秒までの広い時間スケールのダイナミクスを THz 領域で周波数分解して検出することが可能になった。その結果、キラリ格子に対する光励起で生じるキラリティーの起源が Si 基板内のキラリ形状のキャリア分布であり、緩和メカニズムがキャリア寿命だけでなくキャリア拡散による分布の均一化にもよる、ということを確認することに成功した。

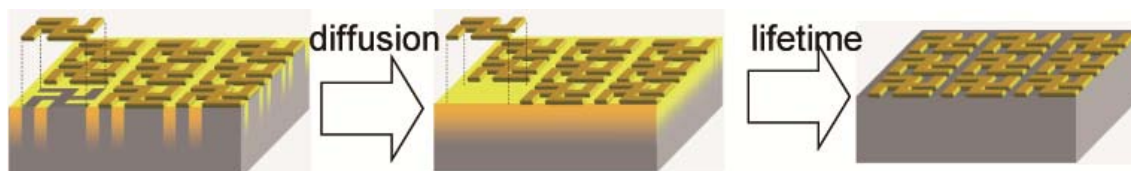


図 2: 光励起後のダイナミクスの模式図。

3-3. 空間光変調によるテラヘルツ光学活性の動的制御

上述の金属キラリ格子構造に対する光励起では、励起強度を変化させることで偏光回転の大きさを動的に制御することができた。しかし、キャリア分布の形状はキラリ格子構造の形状で決定されるために、キラリティーの向きは動的に変化させることはできない。そこで、空間光変調技術を用いて励起光ビームの空間パターンをキラリな形状にすることにより、金薄膜キラリ格子を用いることなくキラリなキャリア分布を直接生成した。

二次元反射型空間位相変調器を用いて強度変調を行い、試料上に縮小投影を行うことで、空間パターンが卍型の周期構造を持つ励起光を生成した (図 3(a))。このようなパターンを持ったビームにより、前章と同様の高抵抗 Si に対して光励起を行った。THz 波の偏光回転スペクトルを図 3(b)に示す。キラリなパターンでは偏光回転が観測され、キラリティーの向きにより偏光回転の符号が反転している。このように、光のみにより三次元キラリティーを誘起できることに成功した。

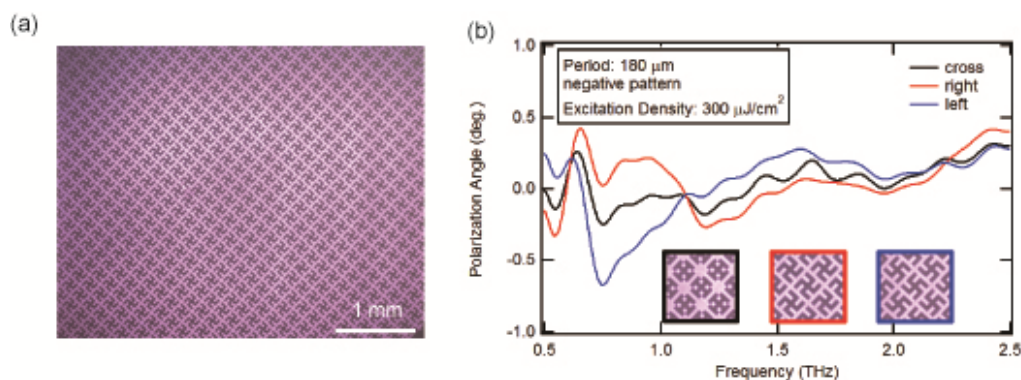


図 3: (a)空間光変調により生成した励起光の空間プロファイル。(b)光でパターンを書き込んだ時の THz 偏光回転スペクトル。

3-4. 反強磁性体 NiO におけるテラヘルツ磁化振動のベクトルの制御

超短パルスレーザー技術の進歩に伴い、磁化を光によって超高速に制御する手法が注目を集めている。特に、誘導ラマン的な非線形光学効果を用いた手法においては過熱の問題を避けることができ、非熱的で超高速な制御が可能となる。本研究では THz 領域に強い反強磁性共鳴が観測される酸化ニッケル(NiO)に注目し、超短パルス光を用いた非線形光学応答による磁化制御を行った。

NiO はスピン配列の仕方により 12 種類の磁気ドメインを形成する。通常の結晶では

12 種類のドメインがランダムに分布しており、ドメインサイズより十分大きい領域で平均化すると(111)軸に関して実効的に三重回転対称性を持つ。三重回転対称性を持つ系では直線偏光の励起光で誘導ラマン的に磁気振動を生成した場合、磁気振動の方向が励起偏光角の2倍になることが明らかになっている。この偏光依存性から、偏光が互いに45度傾いた励起パルスでは生じる磁化振動の方向が直交する。これらの2種類の直交した振動は二次元磁化振動の完全直交基底となる。そのため、偏光を45度ねじったダブルパルスを用いてパルス間隔を適当に選ぶことで直交する振動の位相差を変えることができ、磁化ベクトルの軌跡を二次元的に制御できる(図4(a))。また、NiOの反強磁性共鳴は赤外活性でもあり、コヒーレントな磁化振動は磁気双極子放射によりコヒーレントなTHz電磁波を放射する。このTHz波の偏光を観測することでNiO中の振動磁化の偏波を検出することができる。

図4(b)に偏光が45度ねじれたダブルパルスによる励起を行ったときの、THz放射の円偏光度とパルス間隔の関係を示す。パルス間隔を変えることで円偏光度が連続的に変化し、左右完全円偏光から直線偏光まで任意の楕円率を実現できた(図4(c), (d))。これは、反強磁性体の磁化制御の新しい手法として注目すべき成果である。

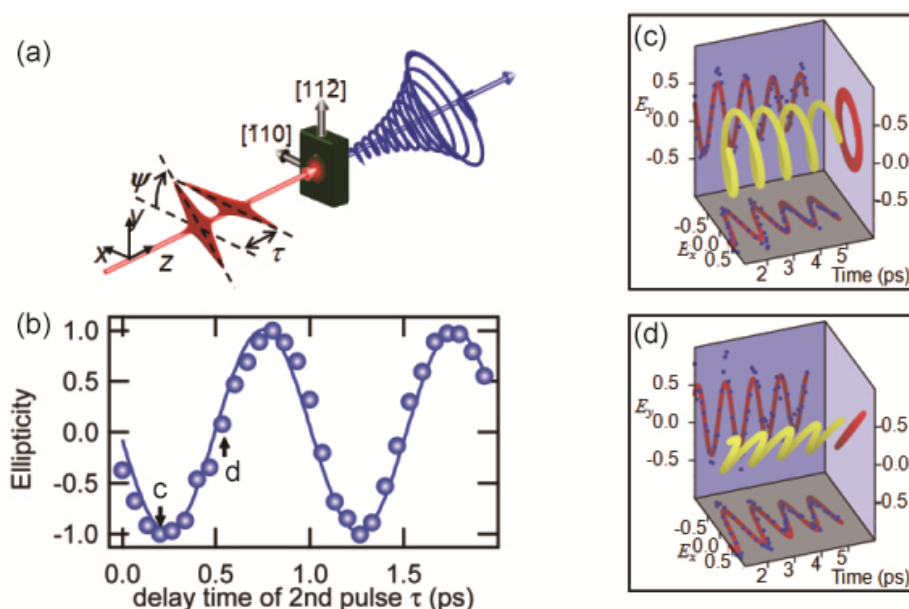


図4: (a)ねじれダブルパルスによる励起と振動磁化からのTHz放射。(b)ねじれダブルパルスによる励起での磁化振動の円偏光度。(c), (d)は円偏光、直線偏光のときのTHz放射の電場の軌跡。

4. まとめ

本研究ではTHz領域の振動をベクトル的に制御するために、時空間モルフォロジーを制御し、特に時空間のねじれに着目した。空間のモルフォロジー制御により、キラリな形状を用いて光学活性を発現させ、THz電磁波の偏光制御を行った。さらに、THz光学活性を光によって動的に制御することに成功した。また、時間のモルフォロジー制御を行い、偏光ねじれダブルパルスを用いることで、THz領域の反強磁性共鳴を操作し、磁化の振動をベクトル的に制御することに成功した。この手法は、偏光波形整形パルスを用いることでより一般に拡張でき、周波数選択的かつ円選択的なTHz振動の励起に発展させられるものである。