

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔令和4（2022）年度 中間評価用〕

令和4年3月31日現在

研究期間：2020年度～2024年度
課題番号：20H05670
研究課題名：極限単一アト秒パルス分光法で拓くペタヘルツスケール光物性

研究代表者氏名（ローマ字）：小栗克弥（Oguri Katsuya）
所属研究機関・部局・職：日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・フロンティア機能物性研究部・部長
研究者番号：10374068

研究の概要：

既存の最高品質の高周波を遙かに凌駕する精度で制御可能となった光は、ペタヘルツ(PHz： 10^{15} Hz)周波数で物質中の電子を精密に操ることができる電界(PHz 波)である。その制御の本質は、光の1周期相当の時間スケール(PHz スケール)における、光波電界と固体電子系の相互作用に帰着する。本研究では、光波電界と、位相・スピン・並進といった固体電子系の基本自由度との相互作用ダイナミクスを明らかにする。

研究分野：光工学および光量子科学関連

キーワード：アト秒科学、超高速光科学、アト秒時間分解分光、超短パルスレーザ

1. 研究開始当初の背景

21世紀初頭に発明されたアト秒光源技術、光格子時計技術、そして光位相安定化技術という3つの革新的光技術は、光を、時間領域において 10^{-18} 秒スケールで計測すると共に、周波数領域において 10^{-18} 精度で制御可能な振動電界として取り扱うことを可能にした。光は、もはやエネルギーの塊ではなく、1ペタヘルツ(PHz： 10^{15} Hz)に迫る極めて高い周波数を有し、精密にエンジニアリングが可能な電磁波、すなわち”ペタヘルツ(PHz)波”として再定義できる。この光のパラダイム転換を積極的に活用し、従来の光技術・光科学において、あまりに高い振動数のため無視されてきた光の“電界振動”と固体電子系の“応答”に着目して、新しい物性現象と光-電子機能を創出することが本研究の狙いである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、位相(分極)、スピン(磁性)、並進(電流)といった固体電子系の基本自由度と光波電界の相互作用に由来するアト秒領域における非平衡電子・スピンのコヒーレント応答とそのデコヒーレンスなど最初期緩和ダイナミクスを明らかにする方法論を開拓し、“PHz スケールの固体光物性”という新しい学問領域を創造することである。本研究により、従来の固体光物性で仮定されている包絡線近似や回転波近似といった光波の振幅のみを取り扱う近似の枠組みを超え、振動電界を直接取り扱う、すなわち、振幅と位相の両方を制御ノブとすることで多様な物質における PHz スケール光物性を切り拓く。

3. 研究の方法

本研究では、(i)極限単一アト秒分光プラットフォームの開発と物性計測、(ii)高品質二次元結晶など材料作製・評価・プロセス、(iii)第一原理計算・実時間量子シミュレーション、の3要素技術を組み合わせ、PHz スケール光物性の枠組みを創出する。そのために、我々がこれまで開発してきたアト秒時間分解分光技術をベースに、MHz 級高繰返し化、高計測感度化、波数空間マッピング、スピン計測といったこれまでにない単一アト秒時間分解分光技術を開発する。新規分光技術の開発と並行して、グラフェン、遷移金属ダイカルコゲナイト(TMDC)からトポロジカル絶縁体まで広くカバーする二次元結晶やその積層構造作製の高品質化・大面積化を追求し、材料の多様性に由来する新奇 PHz スケール物性を探索する。そして、時間依存密度行列法(TD-DM)法のスピン自由度記述への拡張など、第一原理計算・実時間量子シミュレーション技法を発展させるなど、理論・実験の両面からアプローチする。

4. これまでの成果

(1)MHz 級繰返しアト秒パルス発生に向けた数サイクルパルス発生

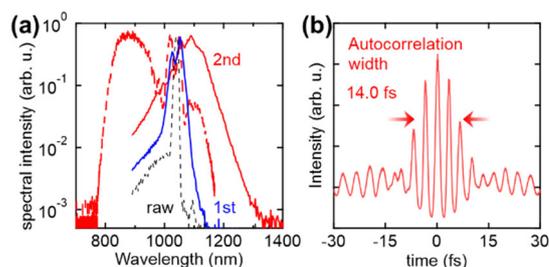
既存のアト秒時間分解分光技術と比べて、データ S/N 比の向上・高感度化、測定時間の短縮など固体精密計測技術としての性能の桁違いの向上を図るため、50 eV 領域 500 as 級の 1MHz 級繰返しの単一アト秒時間分解分光技術の実現を目指している。これまでに、80W 平均出力、パルス幅 184fs、最高パルスエネルギー 1mJ の Yb:KGW 結晶レーザを導入し、単一アト秒パルス発生に必要な数サイクルパルス化技術を実現した。時間分解分光システムのプローブ光源として組み込むことを想定した場合、シンプルな構成、容易なアラインメント、そしてコンパクトなサイズなどが望ましい。我々は、薄い透明材料板を複数枚並べ自己位相変調効果によるスペクトルの広帯域化を効率的に引き起こしチャープミラー等で圧縮し

て短パルス化を図るマルチプレート圧縮(Multi plate compression: MPC)を2段階で構成し、250kHz 繰返し・パルス幅 9.8fs (相関幅 14fs)・パルスエネルギー45μJの3サイクルパルス化に成功した(図1)。

(2)二次元 TMDC 物質におけるダイナミックバンドイメージング

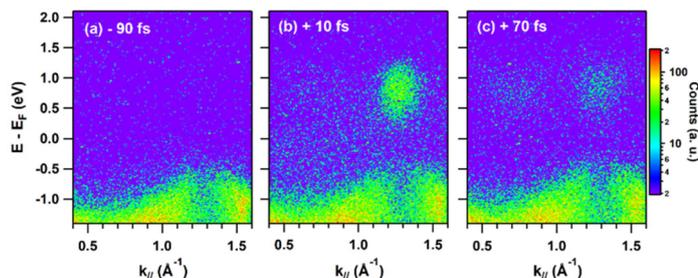
光波電界で駆動される固体電子系のコヒーレント応答とデコヒーレンス過程・電子緩和過程におけるブリルアンゾーン全域に渡るアト秒ダイナミックバンドイメージングを目指している。今回、5fs 級の高次高調波プローブ光をベースにした時間分解 ARPES システムにより、バンドギャップに近い光子エネルギー1.5eV の近赤外パルスを照射した WSe₂ 結晶の光励起最初期緩和ダイナミクス計測を実現した。K 点においてバンド間遷移により、伝導帯に過渡ポピュレーションを生成させ(図2(b))、励起直後約30fs という極めて速い時定数でK 点からΣ点の大きな運動量変化を伴うバレー間緩和が起こることを明らかにした(図2(c))。

このようなバンド間遷移による実キャリア励起に伴う超高速緩和に加えて、ポンプ光の励起強度を上げることによって、物質電子系の固有状態と光波がコヒーレントに結合した光ドレスト状態のバンドイメージングにも成功した。



【図1】MPC法を用いたパルス圧縮(250kHz 繰返し)。広帯域化したスペクトル(a)と、圧縮パルスの自己相関波形(b)。

【図1】MPC法を用いたパルス圧縮(250kHz 繰返し)。広帯域化したスペクトル(a)と、圧縮パルスの自己相関波形(b)。



【図2】30fs 近赤外パルスで励起した WSe₂ の過渡 ARPES スペクトル。パルス照射前-90fs (a)、照射後+10fs (b)、照射後+70fs (c)

5. 今後の計画

(1)繰返し周波数 1MHz 級単一アト秒時間分解分光法の開発: これまでに実現したサブ MHz 繰返し・80W 級平均出力の Yb 系固体レーザをベースとした高強度サブ 10 fs パルス光源を用いてアト秒パルス発生を行う。発生したアト秒パルスについて、二重光学ゲート(DOG)法により単一アト秒パルス化を図ると共に、繰返し周波数と平均発生強度の最適化を図り、100 kHz~1 MHz 級繰返しにおける単一アト秒時間分解吸収(反射)分光システムを開発する。

(2)非摂動的コヒーレント応答・デコヒーレンス過程のアト秒バンドイメージング: これまでに達成し5fs 高次高調波ベース時間分解 ARPES による光ドレストバンドの計測実験を進め、WSe₂や WS₂、MoS₂ など TMDC における PHz スケールのフロケバンド観測を目指す。本実験では、超高速バレー間散乱の他に、バンド内電子再分布、バンドギャップリノマリゼーションなど、従来計測技術では捉えることができていない現象を捕捉しつつあり、超高速デコヒーレンス・緩和過程の計測実験も並行して進める。

(3) 光波電界駆動スピンダイナミクスの計測: アト秒時間分解磁気カー効果分光法を開発し、強磁性体薄膜またはその積層構造において、光誘起サイト間スピン輸送現象に代表される PHz スケールのスピン応答現象の観測に取り組む。また、リアルスピンと同様に2値の状態をとる擬スピントロニクス系の光波電界制御を実現するため、TMDC におけるバレー自由度に着目し、近赤外-中赤外サブサイクル ARPES 分光法を用いた擬スピン系ダイナミックバンドイメージングに取り組む。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- (1) "Atomic real-space perspective of light-field-driven currents in graphene," Y. Morimoto, Y. Shinohara, K. L. Ishikawa, P. Hommelhoff, New Journal of Physics **24**, 033051-1~12 (2022).
- (2) "Correlation between structures and vibration properties of germanene grown by Ge segregation," S. Mizuno, A. Ohta, T. Suzuki, H. Kageshima, J. Yuhara, and H. Hibino, Appl. Phys. Express **14**, 125501 (2021).
- (3) "High-order nonlinear dipole response characterized by extreme ultraviolet ellipsometry," K.-Y. Chang, L.-C. Huang, K. Asaga, M.-S. Tsai, L. Rego, P.-C. Huang, H. Mashiko, K. Oguri, C. Hernández-García, and M.-C. Chen, Optica **8**, pp. 484-492 (2021).
- (4) "Dynamic electron energy and momentum mapping for ultrafast intervalley relaxation in layered WSe₂," H. Yamaguchi, K. Kato, H. Mashiko, Y. Sekine, H. Hibino, I. Katayama, J. Takeda, and K. Oguri, Tu3A.4, The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena (UP 2020).

7. ホームページ等