

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔令和2（2020）年度 研究進捗評価用〕

平成29年度採択分
令和2年3月31日現在

テラヘルツ高強度場物理を基盤とした非線形フォトエレクトロニクスの新展開

New development of nonlinear photoelectronics based on terahertz strong field physics

課題番号：17H06124

田中 耕一郎 (TANAKA, KOICHIRO)

京都大学・大学院理学研究科・教授



研究の概要（4行以内）

赤外域からテラヘルツ領域の非線形フォトエレクトロニクスの材料として低次元の電子系を有する単層半導体、グラフェン、カーボンナノチューブを用いることを想定し、赤外域からテラヘルツ帯における極端非線形光学効果およびその発現機構を明らかにする。特に、高次高調波発生に着目し、様々な物質に適用可能な物理メカニズムの解明をおこなった。

研究分野：光工学および光量子科学関連、半導体、光物性および原子物理関連

キーワード：非線形光学、高強度場物理、テラヘルツ分光、赤外分光、超高速現象

1. 研究開始当初の背景

300 GHzを超えるようなテラヘルツ帯のフォトエレクトロニクスは、次世代の高速通信や非破壊検査、セキュリティなどへの応用展開が期待される先端領域である。光源や検出器の開発は進んでいるものの、信号変調やヘテロダイン検波といった高感度検出を担う際に必要なミキサやスイッチ、増幅器を支える非線形フォトエレクトロニクスはほとんど進展していない。その理由として、非線形効果を詳細に調べるための高強度光源がなかったことと、テラヘルツ帯で高い効率を示す非線形光学材料の検討が進んでいないことがあげられる。特に、周波数通倍（整数倍の周波数の光を生成する技術、高調波発生）においてはその動作原理において明確な「テラヘルツ技術ギャップ」が存在する。

2. 研究の目的

研究代表者は最近単一原子層物質であるグラフェンと単層 MoS₂に赤外領域の短パルスレーザーを照射することによって、紫外域にまで及ぶ高次高調波発生の観測に成功した。本研究では、このような固体の高次高調波発生の起源を解明し、励起波長依存性や物質依存性を明らかにすることで赤外域の非線形光学効果とこれまで行ってきたテラヘルツ帯の非線形フォトエレクトロニクスの結果を統一的に理解することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、テラヘルツ帯の非線形光学材料として、低次元の電子系を有する単層半導

体、グラフェン、カーボンナノチューブを用いる。まず、赤外域からテラヘルツ帯までの広い周波数帯で実験を行えるように高次高調波発生の実験システムを改良し、励起周波数依存性や偏光依存性を明らかにする。バンド分散が異なる材料系での結果を比較し、テラヘルツ帯における非線形光学応答がバンド内過程とバンド間過程の協調と競合で説明可能か検討すると共に、高強度場物理の観点からも非線形光学応答の物理機構の解明を行う。また、将来的に低出力の光源においても非線形効果を効率よく発現させるために、金属構造を積極的に利用するとともに、走査型トンネル顕微鏡 (STM) の針を金属ポイントコンタクトとして用いて、テラヘルツ帯での新規な非線形光学応答を探索する。以上から、非線形フォトエレクトロニクスと非線形光学の融合である「非線形フォトエレクトロニクス」の基礎学理を構築する。

4. これまでの成果

(a) 高次高調波観測システムの構築

高出力チタンサファイア再生増幅器と同期2出力パラメトリック増幅器を導入し、それにSiとInGaAsのアレイ検出器を有する分光システムを組み合わせることで、中赤外光 (MIR) を励起光とする高次高調波観測システムを完成させた。これにより、系統的な高次高調波発生の研究が可能となった。

(b) 高次高調波発生におけるバンド間共鳴効果の発見

遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDCs) の4種類の物質の単一層材料において高次高調

波発生を行い、偶数次がバンドネスティングに起因する光吸収領域で増強されることを見出した。半古典的な理論でこの増強が説明できたことから、偶数次においてバンド間極の寄与が重要な役割を果たしていることを初めて明らかにした。

(c) 高次サイドバンド発生がフロケ状態におけるラマン散乱であることの発見

TMDsの一つであるMoS₂において、高次サイドバンドの偏光依存性を実験的に決定し、動的対称性という概念を用いることで、サイドバンドがフロケ状態からのラマン散乱と見做すことができることを明らかにした。これは固体の高次サイドバンド生成の偏光選択則を物理的に解明した最初の研究である。

(d) 高次高調波発生下でのコヒーレントフォノン生成

赤外パルス励起によるGaSeにおけるコヒーレントフォノンの生成効率が飽和する現象を見出した。これは、電子状態がフロケ状態となることで、駆動力が飽和することに起因している。

(e) SWCNTにおける高次高調波発生

系統的にバンドギャップを改変した単層カーボンナノチューブ (SWCNT) をゲル吸着クロマトグラフィー法および密度超遠心法を用いて用意し、発生する高次高調波のスペクトルを明らかにした。

(f) SWCNT-FETにおける高次高調波発生のキャリア注入効果

バンドギャップが大きい(6,5)SWCNT薄膜に対して、イオン液体をゲート電解質として用いたFETデバイスを作製し、キャリア注入を行って高次高調波発生の効率を調べた。これは、デバイスを用いてキャリア数を制御して高次高調波の発生効率を制御した世界で初めての結果である。

(g) 黒リンにおける高次高調波発生の異方性

高い異方性をもつ固体における高調波のメカニズムを調べるために、黒リンからの高次高調波発生とその結晶方位依存性を測定し、異方性の起源をあきらかにした。

(h) 金属超薄膜からの高次高調波発生

我々は10 nm程度の超薄膜金属において高次高調波発生の実験を行った。その結果、7次までの低次の高調波を観測した。簡単なモデルにより、金属にもともと存在するキャリアのバンド内加速による電流が高調波の主要な寄与であることを示した。

(i) 金属-絶縁体相転移を示す系からの高次高調波発生

金属-絶縁体相転移を示す系において、金属相から絶縁相へと転移させることで、5次高調波の発生効率が300倍と桁違いに増加することを明らかにした。

5. 今後の計画

研究の後半においては、高次高調波発生の励起波長依存性およびサブサイクル応答の解明を行う。ナノ構造やデバイス構造において、高次高調波発生のメカニズムを明らかにするとともに、THz-STMを用いて新たな非線形光学効果を見出す。最終的には、非線形エレクトロニクスと非線形光学の融合である「非線形フォトエレクトロニクス」の基礎学理を構築する。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

(代表的な発表論文)

1. K. Uchida, K. Nagai, Y. Yoshikawa, K. Tanaka, Phys. Rev. B 101, 094301 (2020).
2. T. Ichii, T. Arikawa, K. Omoto, N. Hosono, H. Sato, S. Kitagawa, and K. Tanaka, Commun. Chem. 3, 1 (2020).
3. 田中耕一郎, 吉川尚孝, 内田健人, 永井恒平「固体における極端非線形光学—高次高調波発生の光物性—」 固体物理 Vol. 54 No. 11 (通巻645号) 2019.
4. N. Yoshikawa, K. Nagai, K. Uchida, Y. Takaguchi, S. Sasaki, Y. Miyata, and K. Tanaka, Nat. Commun. 10, 3709 (2019).
5. Y. Ichinose, A. Yoshida, K. Horiuchi, K. Fukuhara, N. Komatsu, W. Gao, Y. Yomogida, M. Matsubara, T. Yamamoto, J. Kono, K. Yanagi, Nano Lett. 19, 7370-7376 (2019).
6. Y. Yomogida, Y. Miyata, K. Yanagi, Appl. Phys. Express 12, 085001 (2019).
7. Y. Minami, B. Ofori-Okai, P. Sivarajah, I. Katayama, J. Takeda, K. A. Nelson, and T. Suemoto, Phys. Rev. Lett. (2020) accepted.
8. K. Yoshioka, I. Igarashi, S. Yoshida, Y. Arashida, I. Katayama, J. Takeda, and H. Shigekawa, Opt. Lett. 44, 5350-5353 (2019).
9. K. Yanagi, R. Okada, Y. Ichinose, Y. Yomogida, F. Katsutani, W. Gao, and J. Kono, Nat. Commun., 9 (2018) 1121.
10. I. Katayama, H. Kawakami, T. Hagiwara, Y. Arashida, Y. Minami, L.-W. Nien, O. S. Handegard, T. Nagao, M. Kitajima, and J. Takeda, Phys. Rev. B 98, 214302 (2018).
11. K. Uchida, T. Otobe, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, K. Tanaka, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and H. Hirori, Phys. Rev. B 97, 165122 (2018).

(受賞)

1. 光・量子エレクトロニクス業績賞 (2019/3), 田中耕一郎
2. 仁科記念賞 (2018/12), 田中耕一郎

7. ホームページ等

京都大学大学院理学研究科光物性研究室
<http://www.hikari.scphys.kyoto-u.ac.jp/jp/>