

令和 5 年 6 月 28 日現在

機関番号：51201

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01905

研究課題名（和文）高強度テラヘルツ光を用いたディラック電子系のトポロジー制御

研究課題名（英文）THz Control of Floquet Topological Insulator in Massless Dirac Fermions

研究代表者

山下 将嗣（Yamashita, Masatsugu）

一関工業高等専門学校・その他部局等・准教授

研究者番号：10360661

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：高品質グラフェンに円偏光テラヘルツ光（ $\sim 100\text{nJ/pulse}$ ）を照射し、THz分光を行った結果、励起光の偏光状態（右回り、左回り）に応じて、プローブTHz光の偏光が変化する結果が得られ、THz光誘起ホール効果が発現させることに成功した。さらに、円偏光THz光照射によって、グラフェンのトポロジーを制御した状態で、CEP制御した中赤外光を照射し、HHGの観測を行った結果、奇数次に加えて偶数次HHGの観測に成功した。これらの結果から、 $100\text{nJ/pulse}$ 程度のTHz円偏光励起によっても、時間反転対称性(TRS)が破れ、Floquetトポロジカル絶縁体が発現したことを示唆する結果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果はTHz円偏光パルス照射によって時間反転対称性を破ることで、グラフェンMassless Dirac電子系(MDF)を非自明なFloquetトポロジカル絶縁体(FTI)へ転移させ、MDFの量子物性を制御する手法として期待できる。THz光を用いることで中赤外、近赤外励起光を用いるよりも1/10以下の低い照射強度でトポロジカル層の制御が可能であることが示された。

本手法を発展させてトポロジカル絶縁体や超伝導体に適用することにより、スピン量子ホール効果・スピン流の超高速制御、トポロジカル超伝導体・トポロジカル量子ビット（マヨナラ粒子）の実現・制御技術として期待できる。

研究成果の概要（英文）：We performed THz spectroscopy of massless Dirac fermions in graphene under circularly polarized THz pump pulse ( $\sim 100\text{ nJ/pulse}$ ) irradiation and successfully observed the rotation of the polarization state of THz probe pulse, indicating the photo-induced Hall effect. Furthermore, we successfully measured the even order of high harmonic generation of mid infrared under circularly polarized THz pulse irradiation. This indicates the time reversal symmetry breaking of massless Dirac fermion and the emergence of photo-induced Berry curvature and Floquet topological insulator phase in graphene.

研究分野：光量子工学

キーワード：テラヘルツ光 ディラック電子系 トポロジー 高次高調波

## 1. 研究開始当初の背景

超短光パルス・THz 技術の進展に伴い、高強度な光・THz パルスを用いた極端な非線形光学効果による物質の量子状態などの超高速物性制御技術の実現が期待されている。一方、グラフェンやトポロジカル絶縁体、3次元ワイル/ディラック半金属など多くの固体電子系で massless Dirac Fermion (MDF) が発見されており、その多彩な物性が注目されている。MDF は時間反転対称性 (TRS) や空間反転対称性によって保護されており、これらの対称性を破ると Dirac 点にギャップが開き絶縁体 (図 1a) となる。空間反転対称性の破れではトポロジカルに自明な絶縁体 (図 1b)、TRS の破れでは非自明なトポロジカル絶縁体 (図 1c) となることが予測されている。近年、高強度円偏光パルス照射によって TRS を破ることで、非自明な Floquet トポロジカル絶縁体 (FTI) へ転移させ、MDF の量子物性を制御する手法が提案されている。本手法を発展させてトポロジカル絶縁体や超伝導体に適用することにより、スピン量子ホール効果・スピン流の超高速制御、トポロジカル超伝導体・トポロジカル量子ビット (マヨナラ粒子) の実現・制御技術として期待できる。特に、量子コンピューティングではエラー訂正問題が量子ビットの多ビット化において最大の課題であり、エラー訂正不要なトポロジカル量子ビットの実現とその制御は極めて重要である。このような背景から本研究の核心をなす学術的な問いは「光によるトポロジーの制御は可能なのか」ということである。

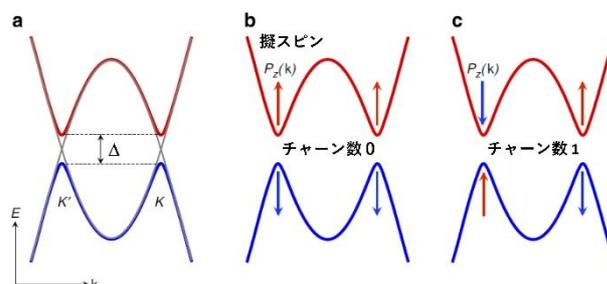


図 1 (a)対称性の破れと Dirac 電子系のギャップ生成、(b)空間反転対称性、(c)時間反転対称性の破れ

## 2. 研究の目的

本研究では高強度円偏光 THz 光照射による FTI 実現と光誘起 Berry 曲率に着目した実証研究を目的とする。まず THz 光を用いる理由は、サブピコ秒の超高速制御への展開が期待できること、また、可視・紫外光の 1/10000 以下の光強度で FTI 転移が実現すれば、光損傷を回避できることが挙げられる。また、FTI の検証には、Dirac 点に誘起されるバンドギャップ (擬ギャップ)  $\Delta$  と、非自明な絶縁体で非ゼロとなるトポロジカル不変量 (チャーン数) を決定する Berry 曲率を実験的に観測することが重要である。そこで本研究では THz 励起広帯域 THz 分光や THz 光誘起ホール効果、高次高調波発生 (HHG) 測定により、擬ギャップ  $\Delta$  及び Berry 曲率を測定することにより、FTI の検証を行う。

本研究の独自性・創造性は、FTI 実現に THz 光を用いる点と、その実証に光誘起 Berry 曲率を測定することにある。従来の FTI 研究において、固体電子系では唯一中赤外光により Dirac 点近傍のギャップ生成に成功 (Wang, Science 2013) しているが、それが本当に光誘起 Berry 曲率によるトポロジカルに非自明な絶縁体なのか、まだ十分検証されていない。

なぜ擬ギャップ  $\Delta$  と光誘起 Berry 曲率を捉えることが FTI 転移の実証となるか? について以下に説明する。時間的な振動ポテンシャル中の電子状態を記述する Floquet 理論によると、グラフェン MDF の電子状態は、図 2 に示すように光電場との相互作用によって、大きく変化する。直線偏光 (図 2a) ではエネルギー間隔  $\Omega$  で Floquet サイドバンドが形成されてバンド交差点でギャップが開くが、対称性は破れないため Dirac 点にギャップは開かない。それに対して円偏光 (図 2b-d) では対称性が破れ Dirac 点に擬ギャップ  $\Delta$  が開き、光電場強度  $A_{\max}$  に依存して変化する。一方、グラフェンの Berry 曲率は、六方格子内の 2 つの副格子に電子が存在する確率振幅 (擬スピン) の波数空間表示 ( $P_x, P_y, P_z$ ) を用いて表され、 $P_x$  と  $P_y$  の Dirac 点 (K 点,  $K'$  点) 近傍での巻数と  $P_z$  の符号に依存する (図 2e-g)。グラフェン MDF の擬スピン ( $P_x, P_y$ ) は平衡状態で巻数 0 の  $S_0$  層であるが、 $A_{\max}$  が増大すると巻数 1 の  $S_1$  相 (図 2e)、巻数 2 の  $S_2$  相 (図 2f)、さらに  $S_1$  相が反転した巻数 -1 の  $S_1'$  相 (図 2g) へ変化し、光誘起 Berry 曲率が発生する。さらにカイラリティの異なる K 点と  $K'$  点で  $P_z$  の符号が異なることから全ブリュアン帯の光誘起 Berry 曲率はキャンセルせず、チャーン数が有限値に変化して FTI が実現する。従って、 $\Delta$  と Berry 曲率の  $A_{\max}$  依存性

を詳細に調べることで FTI 転移を実証できると考える。

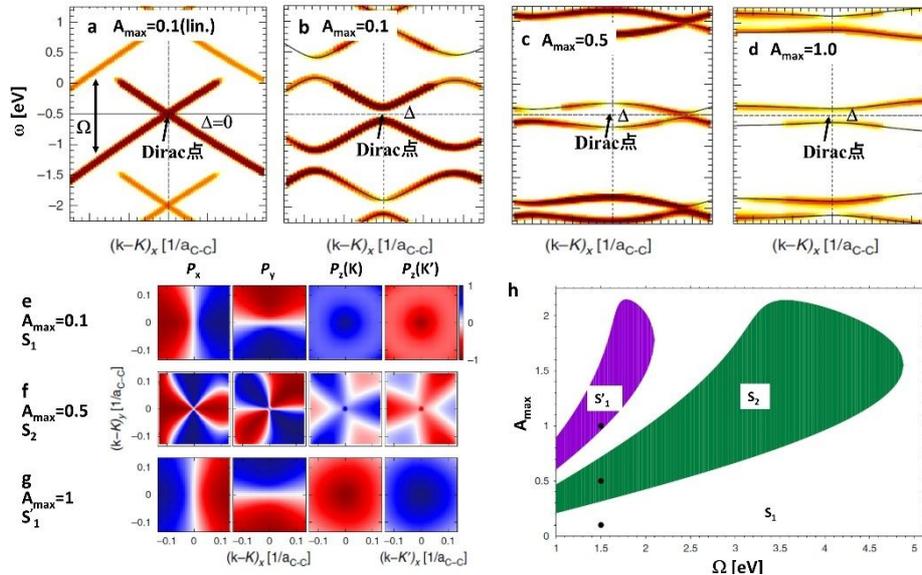


図 2 a)直線偏光、(b)-(d)円偏光照射時のグラフェン( $E_F=0\text{eV}$ , Dirac 点  $-0.5\text{eV}$ )の光電子分光スペクトルの計算結果(光子エネルギー $\Omega=1.5\text{eV}$ )、(e)-(g)擬スピン相の光電場  $A_{\text{max}}$  依存性、(h) $\Omega$  と  $A_{\text{max}}$  に対する擬スピン相 ( $S_1, S_2, S_1'$ ) の関係 (Sentef, NComms, 2015)

図 2h に照射光子の $\Omega$ と  $A_{\text{max}}$  を変化させた時の FTI 相の変化を示す。 $\Omega = 1.5 \sim 5\text{eV}$  で、擬スピン相の変化を観測するためには  $100\text{ MV/cm}$  級の光電場が必要であり、多くの物質で光損傷閾値を超える可能性が高い。一方、エネルギーの低い THz 光を使えば  $100\text{ kV/cm}$  程度の光電場での擬スピン相が変化することから、光損傷を回避して FTI の擬スピン相変化検証が可能になる。(図 2h で低エネルギー側ほど相転移に必要な  $A_{\text{max}}$  が小さくなることに注目)

### 3. 研究の方法

本研究では THz 光照射によるグラフェン MDF の FTI 転移の実現とその実証を主眼とし、FTI 擬ギャップ測定と光誘起 Berry 曲率の測定を行う。特に、Berry 曲率は波数空間で磁場と同様の働きを示すことから、光誘起 Berry 曲率の有効磁場に起因する光誘起ホール効果や HHG スペクトルの変化が予想され、本研究ではこれらの実験に取り組む。

#### 1) THz 光照射による誘起するグラフェン FTI 擬ギャップ $\Delta$ の広帯域分光

グラフェン FTI を THz 光で実現するために、周波数 $\Omega=12.4\text{meV}$  (3THz)でパルス幅 3.3ps(10 周期)程度を有する高強度円偏光 THz 光源( $A_{\text{max}}>500\text{ kV/cm}$ )を開発する。このような THz 光源は、高強度フェムト秒レーザーをビームスプリッターで分け、それぞれ光パルスに異なる 2 次分散チャープを与えて後、重ね合わせた光パルスと有機非線形光学結晶を利用して実現する。重ね合わせた 2 つのパルス内の各時刻で中心周波数が $\Omega$ ずれるように分散制御すると、差周波発生により周波数 $\Omega$ の電磁波のみが発生する。DAST 等の有機非線形光学結晶は非常に高い非線形光学定数を有し、位相整合条件を満たす波長  $1.5\mu\text{m}$  帯で励起することにより、高強度な THz 光源が実現できる。これをグラフェン MDF に照射して擬ギャップ $\Delta$ を生成し、反射型広帯域 THz 分光装置 ( $2 \sim 70\text{ meV}$ )により光学伝導度スペクトル $\sigma(\omega)$ の測定を行う。擬ギャップ $\Delta$ は THz 電場に依存し、 $A_{\text{max}}=250\text{ kV/cm}$  程度で Wannier-Stark 効果によってフラットバンド(図 2d)が形成されるまで、 $0 \sim 2\Omega$  ( $0 \sim 25\text{ meV}$ )の間で増大・縮小を繰返し、プローブ THz 光の周波数 $\omega>\Delta$ では擬ギャップ間遷移によって $\sigma(\omega)$ が増大すると予想される。実験はクライオスタットで試料を極低温  $4\text{K}$  ( $\approx 0.3\text{ meV}$ )に冷却して熱励起キャリアを低減するとともに、励起 THz 光は垂直、プローブ THz 光は斜入射配置として、励起 THz 光が検出器に入らないようにする。広帯域な THz プローブ光( $2 \sim 70\text{ meV}$ )の発生・検出技術は既の実現済である。

グラフェンは基板等の外部要因でキャリアドーピングされ、フェルミ準位( $E_F$ )が Dirac 点から移動しているため、 $\Delta$ 測定には  $E_F$  を Dirac 点に制御する必要がある。そこで、グラフェン電界効果トランジスタ(G-FET)を試料とし、ゲート電圧によって  $E_F$  を Dirac 点に制御する。 $\Delta<\Omega$ の場合には、擬ギャップ生成と同時に光キャリア励起も起こるため、光キャリア分布を考慮して $\sigma(\omega)$ を解析することにより $\Delta$ を見積もり、理論計算と比較する。

## 2)光誘起ホール効果及び HHG 測定による光誘起 Berry 曲率の検証

光誘起 Berry 曲率を検出するために、G-FET 試料を用いて光誘起ホール効果及び、中赤外光励起による HHG を測定する。光誘起ホール効果では、横コンダクタンス( $G_{xy}$ )の変化を横光電流( $J_y$ )として測定する。光電場  $A_{\max}(\Omega=1\text{eV})$  に対して図 3a のような  $G_{xy}$  の変化が予測されている。実験は、光・熱励起キャリアの影響を低減するために、 $\Delta>\Omega$  を満たす THz 光電場 ( $\Omega=12.3\text{meV}$  の場合、 $A_{\max} \sim 100\text{ kV/cm}$  と推定)と  $\Delta$  の 1/10 以下の試料温度が必要であり、4K (0.3meV) で測定を行う。一方、固体電子系からの HHG は、高強度光電場で駆動される非線形光電流が起源と考えられており、キャリアエンベロープ位相を固定した高強度レーザー (30MV/cm) が必要だが、中赤外光では差周波発生により比較的容易に実現できる。図 3(b)のように、単層  $\text{MoS}_2$  では空間反転対称性の破れによって Berry 曲率が有限の値を持ち、バルク  $\text{MoS}_2$  では禁制の偶数次 HHG 放射スペクトルが観測される。一方、グラフェンでも通常奇数時の HHG しか観測されないため、偶数次 HHG が測定できれば、光誘起 Berry 曲率を検証できると考えられる。

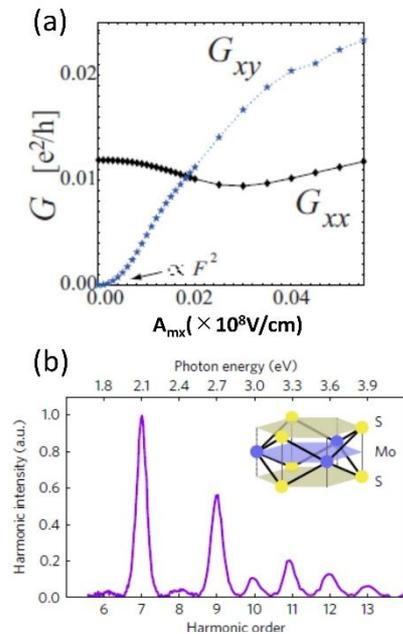


図 3 Berry 曲率測定 (a)光誘起ホール効果によるグラフェン縦・横コンダクタンス変化。(b)単層  $\text{MoS}_2$  からの高次高調波発生スペクトル ((a) Oka, PRB2009, (b) Liu, Nphys2017)

## 4 . 研究成果

高強度フェムト秒レーザーを用いて狭帯域 THz 光源を開発し、THz 光励起 THz 分光測定系を構築した。構築した実験系を用いて、高品質グラフェン FET に円偏光テラヘルツ光 ( $\sim 100\text{ nJ/pulse}$ ) を照射し、THz 分光を行った結果、励起光の偏光状態 (右回り、左回り) に応じて、プローブ THz 光の偏光が変化する結果が得られ、THz 光誘起ホール効果が発現させることに成功した。さらに、円偏光 THz 光照射によって、グラフェンのトポロジを制御した状態で、CEP 制御した中赤外光を照射し、HHG の観測を行った結果、円偏光励起がない場合は奇数次 HHG のみ観測されたのに対して、円偏光励起下では、奇数次に加えて偶数次 HHG の観測に成功した。これらの結果から、100nJ/pulse 程度の THz 円偏光励起によっても、時間反転対称性 (TRS) が破れ、Floquet トポロジカル絶縁体が発現したことを示唆された。これは中赤外光を用いた場合よりも 1 桁以上小さい。一方で、擬ギャップの大きさや光誘起 Berry 曲率の検証を行うためには、THz 分光スペクトルや HHG のスペクトルデータの SN 比が十分ではなく、測定系の感度向上により、SN 比の向上を図る必要がある。

本研究成果は THz 円偏光パルス照射によって時間反転対称性を破ることで、グラフェン Massless Dirac 電子系 (MDF) を非自明な Floquet トポロジカル絶縁体 (FTI) へ転移させ、MDF の量子物性を制御する手法として期待できる。THz 光を用いることで中赤外、近赤外励起光を用いるよりもよりより 1/10 以下の低い照射強度でトポロジカル層の制御が可能であることが示された。

本手法を発展させてトポロジカル絶縁体や超伝導体に適用することにより、スピン量子ホール効果・スピン流の超高速制御、トポロジカル超伝導体・トポロジカル量子ビット (マヨナラ粒子) の実現・制御技術として期待できる

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Masatsugu Yamashita and Chiko Otani	4. 巻 3
2. 論文標題 Intrinsic and extrinsic effects on intraband optical conductivity of hot carriers in photoexcited graphene	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW RESEARCH	6. 最初と最後の頁 13150
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.3.013150	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Sho Ikeda, Chiko Otani, and Masatsugu Yamashita	4. 巻 3
2. 論文標題 Hot carrier dynamics and electron-optical phonon coupling in photoexcited graphene via time-resolved ultrabroadband terahertz spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW RESEARCH	6. 最初と最後の頁 43143
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.3.043143	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Masatsugu Yamashita, Sho Ikeda, Chiko Otani
2. 発表標題 Hot carrier dynamics and electron-optical phonon coupling studied by time resolved THz spectroscopy
3. 学会等名 9th Russia-Japan-USA-Europe Symposium on Fundamental & Applied Problems of Terahertz Devices & Technologies（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Masatsugu Yamashita, Sho Ikeda, Chiko Otani
2. 発表標題 Hot carrier dynamics and electron-phonon coupling in photoexcited graphene investigated by time-resolved terahertz spectroscopy
3. 学会等名 第9回「光量子工学研究」－エクストリームフォトニクスが拓く未来の光科学－
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山下将嗣, 池田翔, 大谷知行
2. 発表標題 時間分解THz分光による グラフェン電子フォノン結合定数の評価
3. 学会等名 第69回応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉峯功 山下将嗣 保科宏道 齋藤美紀子 南出泰垂 大谷知行
2. 発表標題 Optical Generation of High-power Terahertz Pulses for Tunable Wave Source
3. 学会等名 2018 43rd International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉峯功 山下将嗣 保科宏道 齋藤美紀子 南出泰垂 大谷知行
2. 発表標題 Polarization and frequency control of terahertz pulse emission via nonlinear optical effect
3. 学会等名 理研シンポジウム 第6回「光量子工学研究」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山下将嗣 吉峯功 大谷知行
2. 発表標題 Floquet topological phase transition by high power terahertz wave
3. 学会等名 理研シンポジウム 第6回「光量子工学研究」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉峯功 山下将嗣 保科宏道 齋藤美紀子 南出泰垂 大谷知行
2. 発表標題 光パルスを用いた高強度テラヘルツ波発生における偏光・周波数制御
3. 学会等名 シンポジウム「テラヘルツ科学の最先端V」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉峯功 山下将嗣 保科宏道 齋藤美紀子 南出泰垂 大谷知行
2. 発表標題 Optical terahertz emission for waveform shaping of high-power terahertz pulses
3. 学会等名 The 19th EA Sub-mm-wave Receiver Technology Workshop and the 5th Riken-NICT Joint Workshop on Terahertz Technology (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉峯功 山下将嗣 保科宏道 齋藤美紀子 南出泰垂 大谷知行
2. 発表標題 有機非線形結晶を用いた高強度テラヘルツ波発生とその偏光制御
3. 学会等名 電子デバイス研究会「ミリ波・テラヘルツ波デバイス・システム」
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------