

令和 4 年 6 月 10 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03701

研究課題名（和文）テラヘルツパルスを用いた超高速実空間イオン制御に関する研究

研究課題名（英文）Ultrafast real-space ion control using terahertz pulses

研究代表者

南 康夫（MINAMI, Yasuo）

徳島大学・大学院社会産業理工学研究部（理工学域）・准教授

研究者番号：60578368

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：超イオン伝導体中では可動イオンがポテンシャル障壁によりトラップされており、電圧の印加によって可動イオンはポテンシャル障壁を乗り越えてホッピングしながら移動することが知られている。本研究では、室温で超イオン伝導体にピコ秒のテラヘルツ波パルス照射して可動イオンを移動させ、直流電流を誘起する。そして、誘起された電流を直接的に電流計で計測し、可動イオンのピコ秒のダイナミクスを明らかにすることを目的とする。特に、室温でマクロな電流を誘起し、それを計測することができれば、イオンの運動を利用した超高速スイッチング素子の基礎を構築できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超イオン伝導体中の可動イオンを高強度テラヘルツ波によって室温で超高速移動させ、マクロな電流として捉えることに成功した。そして、テラヘルツ波照射下での可動イオンのダイナミクスとシミュレーションによって明らかにした。特に、室温でマクロな電流を誘起し、それを実際に一般的な電流計で計測することができたことはミクロな現象とマクロな現象を、また、光学現象と電気磁気学現象をつなぐ研究となった。この研究により、イオンの運動を利用した超高速スイッチング素子の基礎を構築できる。

研究成果の概要（英文）：In superionic conductors, mobile ions are trapped by a potential barrier. Application of voltage bias enables the mobile ions move over the potential barrier. In this study, picosecond terahertz-wave pulses were irradiated to superionic conductors at room temperature to induce DC current by moving the mobile ions. Then, simulations and semi-quantitative analysis revealed that the mobile ions start and end their migration in one picosecond.

研究分野：テラヘルツ科学、超高速物理学、光物性物理学

キーワード：テラヘルツ 超高速現象 イオン伝導体 光物性物理学 高強度テラヘルツ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、時間幅 100 fs を切る超短パルスレーザー光源を比較的容易に入手できるようになったため、サブピコ秒の超高速分光技術が大きく発展した。その応用技術は分野を問わず国内外で幅広く展開している。一方、キャリアの制御はインダクターや電気記録において長い歴史を持ち、センサー、メモリ、スイッチ、トランジスターの開発にも利用されている。最近では、超高速化への要求が高まっており、デバイスの小型化や新材料の探索がなされるなど、古典的な強誘電体や半導体のみならず、それらのナノ構造体やメタマテリアルなどの研究も進んでいる。しかし、スイッチングに時間を要することが問題となり、ピコ秒以下の電荷制御が実現されているものはごく限られている。この超高速化の要求を満たす方法のひとつとして高強度テラヘルツ波と超イオン伝導体を組み合わせた手法を提案する。これまでに我々は超高速分光、テラヘルツ分光によってキャリアやイオンの観測・制御を行ってきた。上述の要求から、我々はテラヘルツ波を利用し超イオン伝導体内の可動イオンをピコ秒で実空間制御することを目指した。我々は、すでに電子を細針-金属基板間で電子をトンネル伝導させることに成功するなど、電子の制御においては一定の成果を上げているため、その知見を活かし、電子ではなくイオンを制御しようという発想である。予備的な実験から、「交流」のテラヘルツ波の照射により、イオンが「直流」の電流として流れているのではないかと、という段階まで来ており、目的達成のためにより詳細な実験と解析を行う。

2. 研究の目的

上述の研究開始当初の背景から、本研究では、イオンが物質内を比較的容易に移動する超イオン伝導体をプラットフォームとして、テラヘルツ波でのイオンマニピュレーションの基礎を築くことを研究全体の目的とした。以下に具体的な研究の目的を述べる。

(1) テラヘルツ波誘起電流計測

交流のテラヘルツ波の照射によって超イオン伝導体内の可動イオンを動かし、直流のマクロな電流を取り出す。

(2) テラヘルツ分光

高強度テラヘルツ波分光法と、高強度テラヘルツ波ポンプ-テラヘルツ波プローブ分光法を用い、テラヘルツ波のスペクトル計測の観点から、可動イオンの運動状態を観測する。

(3) シミュレーション

可動イオンのダイナミクスをシミュレーションによって解析する。そして、実際の実験に用いたテラヘルツ波の波形や試料の特性から、可動イオンの時間分解ダイナミクスを明らかにする。また、実際の実験の特性以外にもシミュレーションの条件を変更することで、イオンの運動制御においてより重要となる条件を探索する。

3. 研究の方法

本研究を通して利用した高強度テラヘルツ波発生・照射系を図 1 に示す。光源には、中心波長 800 nm、パルス時間幅 100 fs、繰り返し周波数 1 kHz の Ti:sapphire 再生増幅フェムト秒レーザーを用いた。光源からの光をテラヘルツ波発生用とテラヘルツ波検出用に分けた。テラヘルツ波発生用の光を回折格子によってパルス面を傾斜させたのち LiNbO₃ 結晶に入射してパルス面傾斜法にて高強度テラヘルツ波を発生させた。発生したテラヘルツ波を 2 個の放物面鏡を用いて試料位置に集光した。試料の位置

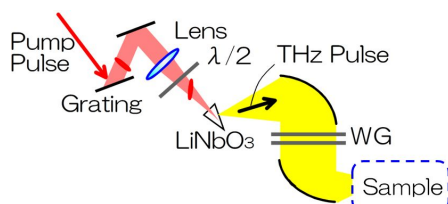


図 1 高強度テラヘルツ波発生・照射系。

とそれ以降の系は、実験の種類によって変更した。

研究対象の試料には物性がよく調べられている超イオン伝導体の Na^+ ・ベータ・アルミナを用いた。ノンストイキオメトリック結晶をストイキオメトリック化し、研磨して所望のサイズの試料を得た。

以下に、研究の目的で述べた項目ごとに研究の方法を書く。

(1) テラヘルツ波誘起電流計測

図1の試料の位置に、図2(a)に示すように試料と電流測定系を設置した。そして、高強度テラヘルツ波を試料に照射し、可動イオンの非線形応答を利用して電流を誘起・計測した。電流計測には市販の電流計を用いた。

(2) テラヘルツ分光

図1の試料の位置に、図2(b)に示す系を設置して高強度テラヘルツ波分光法を、図2(c)に示す系を設置して高強度テラヘルツ波ポンプ-テラヘルツ波プローブ分光法をそれぞれ行い、テラヘルツ波のスペクトルから可動イオンの運動を観測した。

(3) シミュレーション

可動イオンのダイナミクスをシミュレーションによって解析した。シミュレーション内での可動イオンやテラヘルツ波の配置を図3に示す。照射するテラヘルツ波の時間波形形状、強度を変えてシミュレーションを行い、実験結果を再現した。また、試料内で可動イオンをトラップしているポテンシャルの形状を変えたり、照射テラヘルツ波の位相を変えたりして、イオンの運動制御に適した条件を探索した。

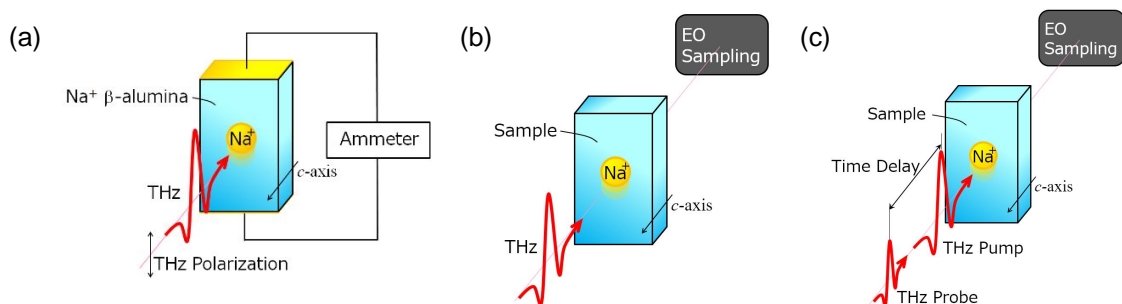


図2 (a)可動イオンの非線形応答を利用して電流を誘起・計測する測定系。(b)高強度テラヘルツ波分光法の測定系。(c) 高強度テラヘルツ波ポンプ-テラヘルツ波プローブ分光法の測定系。

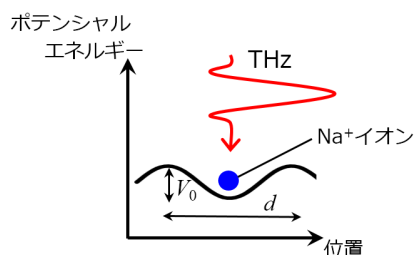


図3 シミュレーションに用いた可動イオンやテラヘルツ波の配置。

4. 研究成果

研究の目的、研究の方法で述べた項目ごとに成果を述べる。

(1) テラヘルツ波誘起電流計測

図2(a)に示す系で、試料に照射するテラヘルツ波の強度を変調して、可動イオンの移動を誘起し電流として計測した。誘起された電流の、テラヘルツ波の極性と極値の依存性を図4に示す。テラヘルツ波の電場の極値の絶対値が 50 kV/cm 以下のときは使用した電流計で電流を捉えることはできなかった。このとき、可動イオンは可動イオンを捉えているポテンシャルの底で振動しており移動が誘起されていないと考えられる。テラヘルツ波の電場の極値の絶対値が 50 kV/cm 以上のときは、可動イオンがポテンシャル障壁を乗り越えて別のサイトへ移動し、電流となり、電流計で捉えることに成功した。電場の

絶対値が大きくなるほど非線形的に電流値が大きくなっており、テラヘルツ波の電場が 100 kV/cm 程度で 1 pA 程度の電流が流れている。テラヘルツ波の極性によって電流が流れる向きが異なることは、テラヘルツ波の電場がイオンの移動を誘起している確固たる証拠である。

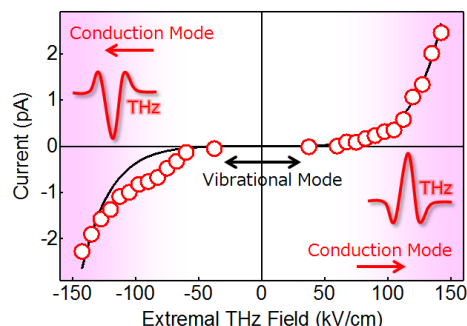


図 4 テラヘルツ波の照射によって誘起された電流のテラヘルツ波の電場極値依存。

(2) テラヘルツ分光

図 2(b)に示す高強度テラヘルツ分光法の測定系で、高強度テラヘルツ波を Na^+ ベータ・アルミナに照射したときのスペクトル変化を測定したものを図 5(a)に示す。照射するテラヘルツ波が弱い場合には 1.8 THz に可動イオンの振動(振動モード)による吸収が見られるが、照射するテラヘルツ波を強くすると吸収スペクトルが消失している。この結果は、照射するテラヘルツ波の強度を高くすると可動イオンの振幅が大きくなり、可動イオンがポテンシャル障壁を乗り越えて伝導している(伝導モード)証拠となる。

次に、図 2(c)に示す高強度テラヘルツ波ポンプ-テラヘルツ波プローブ分光法の測定系で、振動モードから伝導モードへと変化するのに要する時間、伝導モードから振動モードへと変化するのに要する時間を調べた。図 5(b)にプローブ・テラヘルツ波の透過率の、ポンプ・テラヘルツ波-プローブ・テラヘルツ波間の時間間隔依存性を示す。ポンプ・テラヘルツ波とプローブ・テラヘルツ波を同一の結晶内で発生させたため、ポンプ・テラヘルツ波を発生しているときにはプローブ・テラヘルツ波の波形形状が崩れる。その影響が図 5(b)内の網掛け部分に現れており、見かけ上、プローブ・テラヘルツ波の透過率が減少している。実際は上述の乱れが原因であり、網掛け部分の透過率変化について議論できない。網掛け部分以外では、透過率変化はほぼなく、したがって振動モードから伝導モードへの変化と、伝導モードから振動モードへの変化はテラヘルツ波の照射下でのみ起こり、したがって、それぞれに要する時間は 1 ps 未満ということがわかった。

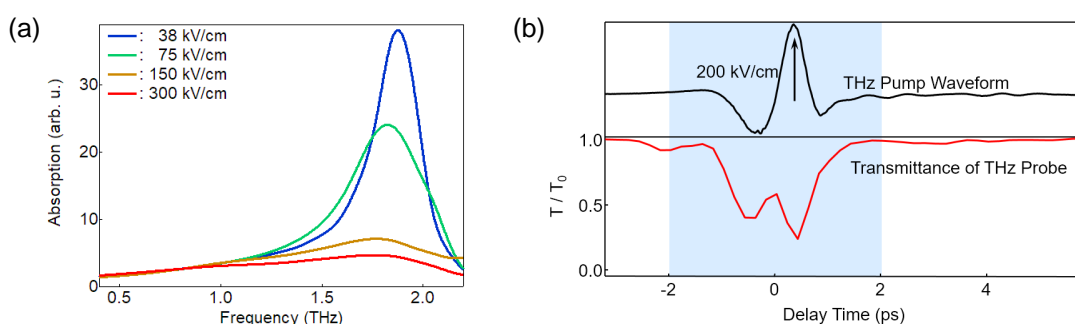


図 5 (a)試料の吸収スペクトルのテラヘルツ波強度依存。(b)高強度テラヘルツ波ポンプ-テラヘルツ波プローブ分光法によって求めたテラヘルツ波の透過率の時間変化。

(3) シミュレーション

図 3 に示す配置で、試料にテラヘルツ波を照射したときの可動イオンの運動をシミュレートした。試料に誘起される電流のテラヘルツ波の電場極値依存性を図 6 に示す。図 4 に示す実験結果の傾向を再現できたが、電流の誘起に必要なテラヘルツ波の電場の値と誘起される電流の値が実験結果と大きく異なる。シミュレーションと実験とで大きな違いの出る原因として、実験では熱の影響で可動イオンが動きやすくなっていること、実験に用いた試料が単一結晶でないことや、欠陥や不純物が存在し、可動イオンのみならず電子が励起されている可能性があること、光励起されたキャリアが直接電流として検出

されている可能性があること、光励起・蓄積されたキャリアが可動イオンを駆動する力となっている可能性があること、計算では可動イオンを捕捉しているポテンシャル形状を単純な形状にしたこと、可動イオン間の相互作用を考慮していないことなどが原因として考えられる。上述のように、電流値、テラヘルツ波の電場の値と誘起電流の値は異なるものの、シミュレーション上で可動イオンの運動をモニターすることができる。弱いテラヘルツ波を照射した場合と高強度テラヘルツ波を照射した場合の可動イオンの位置変化を図 7(a),(b)にそれぞれ示す。弱いテラヘルツ波を照射した場合には、可動イオンがテラヘルツ波によって一時的にわずかに変位するが、テラヘルツ波が透過した後は捕捉しているポテンシャルの底で振動している。他のサイトへ移動しないため、電流が流れることはなく、図 4、6 の振動モードの運動に対応したものとなる。高強度テラヘルツ波を照射した場合には、可動イオンがテラヘルツ波によって変位し、他のサイトへ移動したのち、移動先のポテンシャルの底で振動している。イオンが移動するため電流が流れ、図 4、6 の伝導モードの運動に対応したものとなる。他のサイトへ移動自体は 1 ps 以内に完了していることがわかるが、このことは上述の高強度テラヘルツ波ポンプ-テラヘルツ波プローブ分光法によって明らかになった振動モードから伝導モードへと変化するのに要する時間、伝導モードから振動モードへと変化するのに要する時間が 1 ps 未満という結果と良く対応している(図 5(b))。

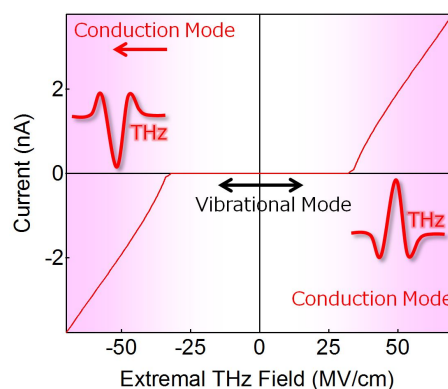


図 6 テラヘルツ波の照射によって誘起された電流のテラヘルツ波の電場極値依存。

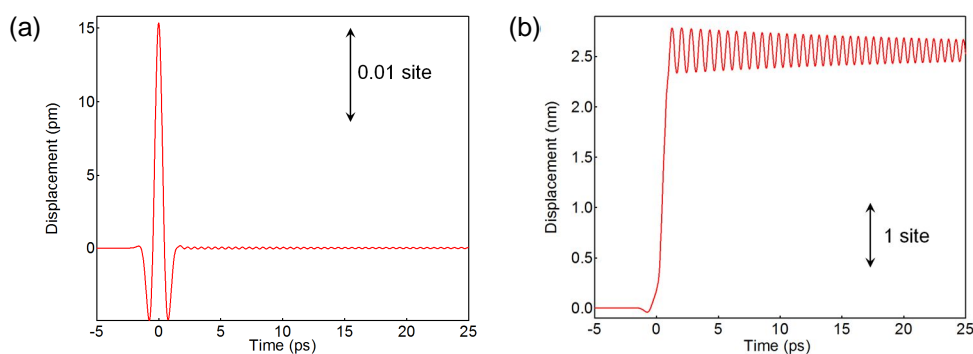


図 7 テラヘルツ波照射によって引き起こされる可動イオンの運動。(a)弱いテラヘルツ波を照射したときの可動イオンの位置変化。(b)高強度テラヘルツ波を照射したときの可動イオンの位置変化。

テラヘルツ波の強度と電流値の絶対値が実験値と異なるものとなったため、シミュレーションに加えて半定量的な解析を行った。半定量的な解析に用いたモデルでは、熱運動によって可動イオンが移動し、テラヘルツ波の電場によってポテンシャルが傾いて可動イオンの移動に偏りができるものとした。半定量的な解析によってテラヘルツ波を照射したときの可動イオンの運動を再現したところ、可動イオンの電荷が実効的に増大していること、可動イオンが集団的に運動していること、可動イオンをトラップしているポテンシャルが実効的に長くなっていることなどを示唆する結果が得られた。

高強度テラヘルツ波へのイオン応答の非線形性を利用して、交流のテラヘルツ波で直流の電流を流すことに成功した。サブピコ秒間のみイオンが動いて、電流となっていることがわかった。実験はすべて室温で行ったものであり、今後の応用の展開が期待でき、イオンを超高速動作させて利用する「超高速イオニクス」へつながると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yasuo Minami, Benjamin Ofori-Okai, Prasahnt Sivarajah, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, Keith A. Nelson, Tohru Suemoto	4. 巻 124
2. 論文標題 Macroscopic Ionic Flow in a Superionic Conductor Na ⁺ -Alumina Driven by Single-Cycle Terahertz Pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 147401 1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.124.147401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 南 康夫	4. 巻 55
2. 論文標題 テラヘルツ波で超イオン伝導体のイオンを移動 ~「超高速イオニクス」へ~	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 セラミックス	6. 最初と最後の頁 849-849
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 南 康夫
2. 発表標題 テラヘルツ波による超高速イオン駆動
3. 学会等名 第7回超高速光エレクトロニクス研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 南康夫, 片山郁文, 武田淳, 末元徹
2. 発表標題 テラヘルツ波照射によるイオン伝導体内の超高速イオン伝導の半定量的解析
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Minami Yasuo、Ofori-Okai Benjamin、Sivarajah Prasahnt、Katayama Ikufumi、Takeda Jun、Nelson Keith A.、Suemoto Tohru
2. 発表標題 Ionic Current in Superionic Conductor Na+ Beta-Alumina Induced by Terahertz Electric Fields
3. 学会等名 International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019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
研究分担者	末元 徹 (SUEMOTO Tohru) (50134052)	電気通信大学・大学院情報理工学研究所・客員研究員 (12612)	

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
---------	---------