

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23244065

研究課題名(和文) 高強度テラヘルツ電場によって実現する新しい物質状態

研究課題名(英文) New material state realized by strong terahertz electric field

研究代表者

田中 耕一郎 (Tanaka, Koichiro)

京都大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：90212034

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,700,000円、(間接経費) 11,010,000円

研究成果の概要(和文)：高強度テラヘルツ電場によって誘起される固体内の電子の極限的な加速や極端に非平衡な電子系の生成を目指して、高強度テラヘルツ光源の開発をおこなった。グラフェンや半導体量子井戸においては、極端に高いエネルギー状態まで電子が加速され、衝突イオン化過程によってキャリア増幅がおきることを明らかにした。また、高強度テラヘルツ電場下での固体電子系で期待される極端な非線形光学過程を記述可能な理論を構築し、高次高調波発生のテラヘルツ強度依存性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this study, we developed a strong terahertz light source to accelerate electrons in solids and to realize an extraordinary non-equilibrium electron system. In graphene and quantum well systems, we observed electrons are excited to the highly energetic state by the strong terahertz pulse and induce carrier multiplication via impact ionization process. In addition, we constructed a theory that can describe extremely nonlinear optical processes of electrons under strong terahertz light field, such as higher harmonic generation in solids.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：光物性 テラヘルツ分光 高強度テラヘルツ光

## 1. 研究開始当初の背景

外部からの照射で新しい固体の光物性や物質状態を創り出すことが様々な材料系で探求されてきた。照射という極端な非平衡条件下で基底状態と異なる物性が現れること自身は光励起状態を考えるとそんなに珍しいことではないが、励起状態間の協力的な相互作用により準安定な凝縮相が現れるという「光誘起相転移」という概念はこの既存の概念を大きく変革し、非平衡条件下での新しい物性発現のシナリオを提示することになった。研究代表者は、①光誘起相転移においては熱的相転移には現れない状態が出現する可能性があること、②2つの秩序が同時に変化する熱的相転移をもつ物質でも光誘起相転移によって得られた準安定状態からの緩和では2つの秩序が時間的に分離して転移が生じること、③このような動的相スイッチ機構は相互作用する2種類のイジング擬スピンをもちいた数理モデルにより説明されることを明らかにした。また、最近では、物質に内在する協力的相互作用が新規な時空間秩序を生み出すことを発見した。

一方、研究代表者は2010年にフェムト秒レーザーをニオブ酸リチウム結晶に照射することにより、中心周波数1 THzで世界最高レベルの $1 \mu\text{J/pulse}$ 以上のパルスエネルギーをもつテラヘルツ光の発生に成功した。これは、1MV/cm オーダーの高強度テラヘルツ電場の生成が可能になったことを意味しており、高強度テラヘルツ電場による物質駆動や極端に非平衡な電子系の生成が期待される。

## 2. 研究の目的

本研究では次の目的を掲げた。

(1) 1 THz より高い周波数帯で高強度テラヘルツ光を発生する装置を構築し、最適な発生条件を実験で見いだす。

(2) 高強度テラヘルツ光を用いてグラフェンにおけるディラック電子系の励起をおこない、極端な非平衡状態の電子系を生成する。

(3) 1MV/cm オーダーの電場強度を発生可能な高強度テラヘルツ光源をもちいて、半導体中の束縛電子をイオン化および加速し、電子-正孔対を生成する。また、高強度テラヘルツ光の磁場成分をもちいて、磁性体中のマクロな磁化の制御を試みる。

(4) 高強度テラヘルツ光を固体電子系に照射したときに生じる非線形な光学応答を記述する理論を構築し、高次の高調波スペクトルを計算する。

## 3. 研究の方法

上記目的を達成するために、以下のような方法を用いた。

(1) 35フェムト秒のパルス幅を有する高強度フェムト秒チタンサファイアレーザーを空気に集光することにより、空気プラズマを生成し、プラズマからの高強度テラヘルツ光生成をおこなう。この際、チタンサファイアレーザーの基本波ばかりでなく2倍高調波も同時に空気を集光することによって、空間的に異方的な電場分布を生成し、テラヘルツ光発生最適化をおこなう。空気は吸収がほとんどないために、高周波域にピーク周波数があるテラヘルツ光の発生が期待される。

(2) グラフェンは電子の散乱過程や格子フォノンとの相互作用が速いことが予想されるので、(1)の高強度テラヘルツ光源をもちいて、極端な非平衡状態の電子系を生成する。また、極端な非平衡状態まで励起された電子や正孔の分布を測定するために、近赤外域の光をもちいてグラフェンの光吸収変化を測定する。

(3) ニオブ酸リチウム結晶をもちいて発生した1MV/cm オーダーの高強度テラヘルツ電場を高品質の半導体量子井戸に照射し、励起子発光をプローブすることにより、高強度テラヘルツ電場による電子・正孔対生成メカニズムに関して調べる。また、磁性体の表面に金属構造体を付加することにより、近接場磁場を増強することによって、磁性体中のマクロな磁化の制御をおこなう。磁化の観測を近赤外光のファラデー回転をもちいて行うことによって確実に、近接場磁場による駆動効果だけの情報を抽出する。

(4) 半導体に高強度テラヘルツ光が垂直入射した際のダイナミクスを非摂動的かつ非断熱的に記述し、その際に生じる高次高調波発生のダイナミクスを理論的側面から考察する。強電場によるゼナートンネル効果を考慮するために、伝導帯と価電子帯のバンドミキシングを考慮することによってハミルトニアンを導出する。このハミルトニアンから電子密度及び分極密度の時間発展方程式を導き、光電流を計算する。そのFourier変換を計算することによって、半導体から生じる高次高調波などの非線形光学過程を議論する。

## 4. 研究成果

(1) 空気プラズマ法を用いた広帯域テラヘルツパルスの発生過程を明らかにするため、

従来のポッケルス効果を用いた測定に加え、位相整合条件を必要としないカー効果を用いた測定を行い、0.5~7.5 THz の低周波域および 20~50 THz の高周波域のテラヘルツ光の偏光と強度を高感度かつ時間分解して検出した。低周波成分と高周波成分の空間分布を測定したところ、遠方場ではいずれもドーナツ型の形状をしているが、集光点において高周波成分は回折限界付近まで集光できていることがわかった。励起レーザーの基本波と2倍波の相対伝搬波位相及び偏光方向を系統的に制御しながら測定を行った結果、発生するテラヘルツパルスの低周波成分と高周波成分で最適な相対伝搬波位相に差異があることを見いだした。この結果から高周波成分発生には4光波混合過程が主要な役割を果たしているのに対し、低周波成分発生には空気プラズマ中の電子加速が重要であることがわかった。

(2) 空気プラズマを用いたテラヘルツ高強度テラヘルツポンプ近赤外プローブの実験系を構築し、テラヘルツ光照射によって、グラフェンの近赤外領域での吸収が14%にもおよぶ吸収飽和を示すことを明らかにした。テラヘルツ光の光子エネルギーは近赤外光の100分の1程度であることから、この吸収飽和はテラヘルツ光により作られた極めて非平衡な電子状態を反映しているものと考えられる。このキャリアダイナミクスを定量的に理解するため、ボルツマン方程式を用いたシミュレーションを行うことにより実験結果を再現した。その結果、キャリア数を増やす衝突イオン化過程が重要な役割を果たしていることがわかった。この結果は、Physical Review Letters [雑誌論文の6]に掲載された。

(3) 可視光領域の連続光と高強度テラヘルツパルスを使った、時間分解発光分光法により非ドープ GaAs/AlGaAs 量子井戸の光キャリアダイナミクスを調べた。高品質の試料では1MV/cm程度の電場では、以前観測された衝突イオン化は観測されず、連続光を照射しているときのみ、テラヘルツ光パルスを照射したときに GaAs 井戸層から励起子発光が観測された。定常的に光励起しているときの発光強度に比べて、テラヘルツパルスを照射することで10000倍もの発光強度の増大が観測された。この結果は、テラヘルツ電場によって、AlGaAs バリア層の束縛準位に捕獲された光キャリアのイオン化が起きていることを示しており、可視光領域では検知できない微量の不純物準位の新たな測定法としての応用

が期待される。これらの結果は、Physical Review Letters 誌とPhysical Review B 誌に論文として発表した [雑誌論文の11と13]。

また、高速スピントロニクス材料への応用が期待される反強磁性体  $\text{HoFeO}_3$  上に近接場での磁場増強を示すスプリットリング共振器型の金属構造体を作成した。スプリットリング共振器型のギャップに平行にテラヘルツ電場パルスを照射した場合、リングの周回上に変位電流が流れ、試料に垂直方向に磁場が発生する。FDTD シミュレーションの結果、金属構造の共振周波数において数十倍の磁場の増強が可能であることを確認した。反強磁性体材料である  $\text{HoFeO}_3$  は、テラヘルツ周波数帯において反強磁性共鳴を示すことが知られている。増強した磁場によって誘起する磁化変化を観測するための、ファラデー回転測定をおこなった。その結果、磁化変動の振幅がテラヘルツパルス時間幅内で増大していく様子をとらえることに成功した。Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を用いた理論解析により30倍程度に増幅された磁場によってスピン歳差運動が誘起されることがわかり、従来の可視円偏光パルスを用いた実験よりも500倍以上効率良く磁化変化を誘起できていることを明らかにした。

(4) 伝導帯と価電子帯のバンドミキシングを考慮したハミルトニアンを用いて、半導体から生じる高次高調波を考察した。その結果、高次高調波の発生特性が外場強度に依存して3つの領域に分類できることが分かった: (1) 摂動領域, (2) ゼナートンネル領域, (3) 半金属領域である。領域(1)における高次高調波の強度は冪乗に反比例して減衰するが、領域(2)及び領域(3)における高調波は、強度一定の領域と減衰領域に区分できることが分かった。これらの特性を理解するためにトンネルイオン化とゼナートンネル効果の現象論的類似性から古典的モデルを考察し、対応するカットオフ則を見いだした。その結果、領域2及び領域3におけるカットオフエネルギーは電子(正孔)の有効質量に依存しないことがわかった。そのためグラフェンから生じる高次高調波は任意強度の外場に対して、領域(3)としての性質を示すことが分かった。

5. 主な発表論文等  
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 14 件)

1. 廣理英基, 田中耕一郎, 超高強度テラヘルツ光源の新展開, オプトロニクス, 有, 30, 86-92, 2011.
2. 永井正也, 廣理英基, 田中耕一郎, 高強度テラヘルツパルスが創る物性, 日本物理学会誌, 有, 66, 919-922, 2011.
3. 田中耕一郎, 廣理英基, 高強度テラヘルツ光による非線形光学現象, 固体物理, 有, 46, 129-137, 2011.
4. 田中耕一郎, テラヘルツ領域のエバネッセント光をもちいた水溶液の研究, 表面科学, 有, 32, 785-791, 2011.
5. 廣理英基, 田中耕一郎, 高強度テラヘルツパルスで誘起する非線形光学現象, 有, 応用物理学会誌, 有, 81, 291-297, 2012.
6. Shuntaro Tani, Francois Blanchard, and Koichiro Tanaka, Ultrafast Carrier Dynamics Under High Electric Field In Graphene, Phys. Rev. Lett., 有, 109, 166603, 2012.
7. F. Blanchard, K. Ooi, T. Tanaka, A. Doi, and K. Tanaka, Optics Express, 有, 20, 19395-19403, 2012.
8. M. Hishida, K. Tanaka, Transition of the hydration state of a surfactant accompanying structural transitions of self-assembled aggregates, Phys.: Condens. Matter, 有, 24, 284113, 2012.
9. 田中耕一郎, 廣理英基, 高強度テラヘルツ光発生と非線形テラヘルツ分光, レーザー研究, 有, 40, 480-485, 2012.
10. F. Blanchard, A. Doi, T. Tanaka, and K. Tanaka, Real-Time, Subwavelength Terahertz Imaging, Annu. Rev. Mater. Res. 有, 43, 11.1-11.23, 2013.
11. K. Shinokita, H. Hirori, K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer and K. W. West, Terahertz-Induced Optical Emission of Photoexcited Undoped GaAs Quantum Wells, Phys. Rev. Lett., 有, 111, 2013, 67401.
12. Tobias Kampfrath, Koichiro Tanaka and Keith A. Nelson, Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients, Nature Photonics, 有, 7, 2013, 680-690.
13. Y. Mukai, H. Hirori, and K. Tanaka, Electric field ionization of gallium acceptors in germanium induced by single-cycle terahertz pulses, Phys. Rev. B 有, 87, 2013, 201202(R).
14. D. Armand, H. Taniguchi, Y. Kadoya, T. Tanaka, and K. Tanaka, Terahertz full

horn-antenna characterization, Appl. Phys. Lett., 有, 102, 2013, 141115.

[学会発表] (計 83 件)

以下は招待講演を中心に抜粋

1. Koichiro Tanaka, Nonlinear spectroscopy using intense THz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm, CLEO Europe 2011 (招待講演), Munich, Germany, 2011年6月17日-20日.
2. Koichiro Tanaka, High Power THz Wave Generation and Its Application to Nonlinear Spectroscopy, International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 10 (招待講演), Hotel auf der Wartburg, Eisenach, Germany, October 16-20, 2011.
3. Koichiro Tanaka, Long-range hydration effect of lipid membrane studied by terahertz time-domain spectroscopy, 2012 Photonics West (招待講演), The Moscone Center, San Francisco (米国), 2012年1月24日.
4. Koichiro Tanaka, Nonlinear transport phenomena driven by intense terahertz electric field, Gordon Research Conference (招待講演), Ultrafast Phenomena in Correlated Systems, Galvez Hotel, Huston USA, 2012年2月21日.
5. Koichiro Tanaka, Terahertz Near-field Microscope working at Video Rate, International Forum on Terahertz Spectroscopy and Imaging, 5th Workshop on Terahertz Technology (招待講演), March 6th - 7th, 2012, Fraunhofer-Zentrum Fraunhofer Platz 1, Kaiserslautern (Germany)
6. Koichiro Tanaka, Nonequilibrium Fluctuation of Photo-Induced Phase under Steady Light Irradiation in the Spin Crossover Complex, 4th International Conference on Photoinduced Phase Transitions and Cooperative Phenomena (PIPT4) (招待講演), Wroclaw, Poland, 6/28 - 7/2.
7. Koichiro Tanaka, Terahertz Nonlinear Spectroscopy with Intense Half-Cycle Pulses, The 1st Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS'12) (招待講演), 2012年04月26日~2012年04月27日, Pacifico Yokohama, Yokohama (Japan)
8. Koichiro Tanaka, Terahertz Near-Field Microscope for bio-sensing Biophotonics Symposium: Terahertz Waves & Interactions with Biological Structures (招待講演), 2012年06月29日~2012年06月29日, University of California, Davis, Sacramento, CA (USA)

9. Koichiro Tanaka, Nonlinear Terahertz Spectroscopy in Solids with Single-Cycle Terahertz Pulses, 18th Ultrafast Phenomena Conference (UP2012) (招待講演) 2012年07月09日~2012年07月13日, Lausanne (Switzerland)
10. Koichiro Tanaka, High-Power Terahertz Generation and Terahertz Nonlinear Spectroscopy, 34th International Free Electron Laser Conference (FEL2012) (招待講演) 2012年08月26日~2012年08月31日, Nara (Japan)
11. Koichiro Tanaka, Terahertz spectroscopy in solids with single-cycle terahertz pulses, DYCE International Workshop (招待講演) 2012年08月07日~2012年08月11日, Kussharo, Hokkaido (Japan)
12. Koichiro Tanaka, Nonlinear carrier dynamics induced by intense terahertz wave, 37th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz2012) (招待講演) 2012年09月23日~2012年09月28日, University of Wollongong, Wollongong (Australia)
13. Koichiro Tanaka, Terahertz Spectroscopy in Solids with Single-Cycle Terahertz Pulses, International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2012) (招待講演), 2012年11月27日~2012年11月29日 Nara (Japan)
14. Koichiro Tanaka, Terahertz Photonics for Material Science, The 1st WPI Workshop on Materials Science -the 10th France-Japan Workshop on Nanomaterials (招待講演), 2013年06月06日~2013年06月09日, Kyoto, Japan
15. Koichiro Tanaka, Nonlinear Terahertz Spectroscopy in Semiconductors 2013 International Symposium on Microwave/Terahertz Science and Applications (MTSA 2013) (招待講演) 2013年07月22日~2013年07月23日, Shanghai, China
16. Koichiro Tanaka, Nonlinear Terahertz Spectroscopy in Semiconductors, The International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (DPC2013) (招待講演), 2013年08月04日~2013年08月09日, Fuzhou, China
17. Koichiro Tanaka, Nonlinear Terahertz Spectroscopy, The 6-th Asian Summer School and Symposium on Laser-Plasma Acceleration and Radiation (招待講演), 2013年09月03日~2013年09月06日, Kizu, Japan
18. Koichiro Tanaka, Terahertz Nonlinear Spectroscopy, The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR 2013) (招待講演), 2013年06月30日~2013年07月04日, Kyoto, Japan
19. H. Hirori, K. Tanaka, High-power Terahertz Pulse Generation and Application to Nonlinear THz Spectroscopy, Nonlinear Optics (NLO2013) (招待講演), The Fairmont Orchid, Kohala Coast, Hawaii, USA, July 21-26, 2013.
20. H. Hirori, High-power Terahertz Pulse Generation and Application to Nonlinear THz Spectroscopy, The 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON18) (招待講演), Kunibiki Messe, Matsue, Japan, July 22-26, 2013.
21. Koichiro Tanaka, Nonlinear Terahertz Spectroscopy in Dirac Electron System, 21st International Conference on Applied Electromagnetics and Communications (ICECom2013) (招待講演), Dubrovnik, Croatia October 14-16, 2013,
22. Yoshito Onishi, Zhi Ren, Kouji Segawa, Yoichi Ando, and Koichiro Tanaka, Transient spin polarized current induced by femtosecond pulse excitation in topological insulators, Swiss-Kyoto Symposium (招待講演), Zurich, Switzerland, Nov. 21-22, 2013.
23. Koichiro Tanaka, Introduction to Structural Transitions and Molecular Materials Session, Gordon Research Conferences on Ultrafast Phenomena in Cooperative System (招待講演), Ventura, USA, Feb. 2-7, 2014.
24. Shuntaro Tani and Koichiro Tanaka, Nonlinear Current Induced by Strong Terahertz-wave Irradiation in Graphene, International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology (OTST) 2013, Kyoto, April 1-5, 2013.
25. Tomohiro Tamaya, Akira Ishikawa, Tetsuo Ogawa, and Koichiro Tanaka, Theory of Carrier Dynamics in graphene under High-intensity Electric Fields, International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology (OTST) 2013, Kyoto, April 1-5, 2013.
26. Keisuke Shinokita, Hideki Hirori, Toshimitsu Mochizuki, Hidefumi

- Akiyama, Loren N. Pfeiffer, Ken W. West, and Koichiro Tanaka, THz-wave activation of trapped carriers in GaAs multiple quantum wells, International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology (OTST) 2013, Kyoto, April 1-5, 2013.
27. François Blanchard, Manuel Tsotsalas, Atsushi Doi, Tomoko Tanaka, Shuhei Furukawa, Susumu Kitagawa, and Koichiro Tanaka, Subwavelength terahertz spectroscopy of methanol trapping in porous coordination polymer nanocrystals, International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology (OTST) 2013, Kyoto, April 1-5, 2013.
28. Krushna Mavani, Dhanvir Singh Rana, Masaya Nagai, Masayoshi Tonouchi, and Koichiro Tanaka, Ultrafast Photo-induced Effect and Corresponding Magnetization of Pr 0.5 Sr 0.5 MnO 3 Thin Film as Investigated by Visible Pump Terahertz Probe Spectroscopy, International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology (OTST) 2013, Kyoto, April 1-5, 2013.
29. Naotaka Yoshikawa, Hideki Hirori, Hiroshi Watanabe, Takao Aoki, Ryosuke Kusuda, Christian Wolpert, and Koichiro Tanaka, Generation of trions in CdSe/ZnS core/shell quantum dots under high-density excitation, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems 13th (OECS 13), Rome, Italy, September 9-13, 2013.
30. Koichiro Tanaka, Hideki Hirori, and Keisuke Shinokita, Photoluminescence Flash Stimulated by a Strong Single-Cycle Terahertz Pulse in GaAs Quantum Wells, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems 13th (OECS 13), Rome, Italy, September 9-13, 2013.
31. Yoshito Onishi, Zhi Ren, Mario Novak, Kouji Segawa, Yoichi Ando, and Koichiro Tanaka, Transient spin polarized current induced by femtosecond pulse excitation in topological insulators, Gordon Research Conference (Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems), Ventura, United States, February 2-7, 2014.
32. Shuntaro Tani and Koichiro Tanaka, Ultrafast Carrier Dynamics In Graphene under a High Electric Field, Gordon Research Conference (Ultrafast Phenomena in Cooperative Systems), Ventura, United States, February 2-7, 2014.
6. 研究組織
- (1) 研究代表者  
田中耕一郎 (TANAKA, Koichiro)  
京都大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：90212034
- (2) 研究分担者  
廣理英基 (HIRORI, Hideki)  
京都大学・物質-細胞統合システム拠点・特定助教  
研究者番号：00512469
- 有川敬 (ARIKAWA, Takashi)  
京都大学・大学院理学研究科・助教  
研究者番号：70598490
- 白井正伸 (HIRORI, Hideki)  
京都大学・物質-細胞統合システム拠点・特定助教  
研究者番号：30303803  
(平成 23 年 4 月 1 日から平成 24 年 3 月 31 日まで)
- 菱田真史 (HISHIDA, Masafumi)  
京都大学・物質-細胞統合システム拠点・特定研究員  
研究者番号：70519058  
(平成 23 年 4 月 1 日から平成 24 年 3 月 31 日まで、それ以降は連携研究者)
- ブランチャード フランソワ (Blanchard, Francois)  
京都大学・物質-細胞統合システム拠点・特定研究員  
研究者番号：00571358  
(平成 23 年 4 月 1 日から平成 24 年 3 月 31 日まで、それ以降は連携研究者)
- (3) 連携研究者  
小川哲生 (OGAWA, Tetsuo)  
大阪大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：50211123
- 石川陽 (ISHIKAWA, Akira)  
山梨大学・医学工学総合研究部・助教  
研究者番号：10508807
- 谷峻太郎 (TANI, Shuntaro)  
京都大学・物質-細胞統合システム拠点・特定研究員  
研究者番号：80711572  
(平成 25 年 4 月 1 日から参加)