

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 25 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26286061

研究課題名(和文) テラヘルツ金属メタマテリアルが織り成す超高速電場誘起現象とデバイス応用

研究課題名(英文) Ultrafast electric field induced phenomena caused by terahertz metallic metamaterial and device application

研究代表者

廣理 英基 (Hirori, Hideki)

京都大学・物質-細胞統合システム拠点・准教授

研究者番号：00512469

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ナノ構造半導体や次世代の電子材料における高速電場誘起現象を解明するために、世界最高強度のTHzパルスの電磁場成分を金属メタマテリアルによって増強し、従来技術では実現できない超高速電場応答計測技術を創出することを目的とした。これにより、主に2つの成果を得た。THz光と励起子(GaAs)が強く結合したドレスト状態を形成することによって、THz光の周期よりも短い周期のサブサイクル応答を示すこと明らかにした。高強度のテラヘルツパルス光源と、スプリットリング共振器(SRR)による共鳴的な磁場増強効果を利用し、傾角反強磁性体における非線形反強磁性共鳴の観測に成功した。

研究成果の概要(英文)：In this research, in order to elucidate ultrafast electric field induced phenomena in nanostructured semiconductors and next-generation electronic materials, it aimed to create an ultrafast measurement method for the electric-field induced phenomena with the world's highest intensity THz pulse enhanced by metallic metamaterials. This gave us two main results. It is revealed that a subcycle response with a period shorter than the period of the THz light is demonstrated caused by a dressed state in which the THz light and the exciton (GaAs) are strongly coupled. We succeeded in observing the nonlinear antiferromagnetic resonance in the antiferromagnet by utilizing resonant magnetic field enhancement effect by high intensity terahertz pulse light source and split ring resonator (SRR).

研究分野：テラヘルツ非線形分光

キーワード：半導体 磁性体 高強度テラヘルツ 非線形光学 超高速分光 メタマテリアル 相変化材料 金属絶縁体転移

1. 研究開始当初の背景

近年の急速な情報通信技術の高速化と大容量化の要請から、半導体電子デバイスにおける素子の最小加工寸法は10nm以下にせまる微細化が進み、デバイスの駆動電場の高電場・高周波化が進んでいる。このため固体メモリーにおける電荷蓄積やトランジスタにおける電流制御が従来の半導体材料では十分に行えない「微細化の限界」が問題となっている。このような物理的な限界を突破し新たな固体メモリーやスイッチング電子デバイスを実現するためには、次世代の電子材料において、高電場誘起現象を微視的な観点から理解し活用することが肝要である。

2. 研究の目的

従来の電気伝導測定技術では電子デバイスの高周波数極限であるサブTHz (1THz=1000GHz) 周波数帯に生じる超高速現象の素過程を調べることは不可能であり、また高電場現象はしばしばカタストロフィックな破壊効果をもたらすために測定そのものが困難である。本研究では、ナノ構造半導体や次世代の電子材料における高速電場誘起現象を解明するために、世界最高強度のTHzパルスの電磁場成分を金属メタマテリアルによって増強し、従来技術では実現できない非破壊・非接触な超高速電場応答計測技術を創出する。これによりナノエレクトロニクス並びにパワーエレクトロニクスデバイス開発に資する超高速電場誘起現象の学理を構築する。

3. 研究の方法

(1) テラヘルツサイドバンド生成とサブサイクル光学応答

エレクトロニクス技術の高周波極限であるテラヘルツ (THz) 周波数帯で動作する高速光変調素子の実現には、THz光電場下での固体中電子系の光学応答の理解が重要である。特に、半導体中の励起子は大きな振動子強度をもちTHz光と強く相互作用するため、大きな光学変調が期待される。先行研究ではTHz光照射下で励起子共鳴光の高次サイドバンド生成が観測されているが、励起子のコヒーレンスがサイドバンド放射に主要な役割を果たしているかどうかは解明されておらず、実際にコヒーレントな光変調に利用可能であるかは明らかでない。本研究では、位相安定な狭帯域THz光源を利用することで励起子のサブサイクル応答を観測し、THz光と励起子が強く結合したドレスト状態がコヒーレントな光学応答の起源であることを明らかにした。

(2) ピコ秒高強度電場励起によるVO₂薄膜の超高速反射率変化

遷移金属酸化物である二酸化バナジウム

(VO₂)は強い電子相関のために電荷が局在したモット絶縁体となり、温度、圧力、光励起、電場印加などの外場によって電子相関が融解し金属状態へと相転移することが知られている (MI転移)。近年、高強度THzパルス発生技術の発展によりサブピコ秒の瞬間電場を物質に印加することが可能となり、クーロン反発によって局在した自由キャリアの脱離がMI転移を誘起することが報告されている。VO₂では強い電子相関に起因してキャリアの衝突イオン化確率が典型的な半導体と比べて大きく、効率的なキャリア増幅効果が期待されるがMI転移との関係は未解明である。本研究では電場誘起MI転移における衝突イオン化の効果の知見を得るため、VO₂試料に対し光励起によるキャリア生成の後、高強度THzパルスによる電場印加を行い、THz電場の効果を過渡反射率測定によって調べた。

(3) 高強度THz電場による超格子(GeTe)₂/Sb₂Te₃の構造変化

カルコゲナイド系化合物合金 Ge₂Sb₂Te₅ (GST) は、最も代表的な書き換え可能な光ディスクとして使用されている記録材料である。近年、超格子構造を有するGST結晶において、電場パルスの印加による記録状態と消去状態の結晶相の書き換え (構造変化) は潜熱による融解を伴わずに原子イオンの変位によって生じることが予想され、ナノ秒を遙かに超える高速かつ省エネルギーのスイッチング電子デバイスへの応用が期待されている。高電場を印加した場合にはキャリアが加速運動によって高い運動エネルギーを持つことでキャリア増幅が生じ、この過程が構造変化を誘起していることが示唆されているが、キャリアダイナミクスと構造変化との関係は未解明である。本研究では、優れたスイッチング動作を示す超格子結晶 ((GeTe)₂/Sb₂Te₃) に対し、高強度THz電場パルスで生じる構造変化の評価、過渡反射率測定によるキャリアダイナミクスを測定した。

(4) スプリットリング共振器の高強度テラヘルツ近接磁場による非線形反強磁性共鳴励起

絶縁性反強磁性体はテラヘルツ帯域にまで達する高周波磁気応答から、高速磁気光学素子やスピンドバイスへの利用が期待されている。磁気スイッチングなどへの応用を考える際には非線形領域におけるスピンドダイナミクスの理解が必須であるが、十分な強度のテラヘルツ磁場発生は技術的に困難であった。本研究で我々は高強度のテラヘルツパルス光源と、スプリットリング共振器 (SRR) による共鳴的な磁場増強効果を利用し、傾角反強磁性体における非線形反強磁性共鳴の観測に成功した。

4. 研究成果

(1) テラヘルツサイドバンド生成とサブサイクル光学応答

図1(a)はTi:sapphire レーザーを光源としてパルス面傾斜法で発生させた THz 電場時間波形の一部である。図 1(b)と(c)で示すように、THz 光電場に対する GaAs 量子井戸の励起子吸収変化を、THz 周期以下の時間分解能 (100fs) で測定し、THz 周期より高速なサブサイクル振動を観測した。この振動は THz 周波数の偶数倍高調波成分をもち、その振幅スペクトルはドレスト状態のエネルギー位置にピーク構造を持つことがわかった。理論解析により、サブサイクル応答はドレスト状態からのサイドバンド再放射とプローブ光との干渉に起因することが示された。本結果は、励起子サイドバンド放射が THz 光の位相を反映しており THz 帯の光コムなど高速光学変調素子に利用できることを示している。

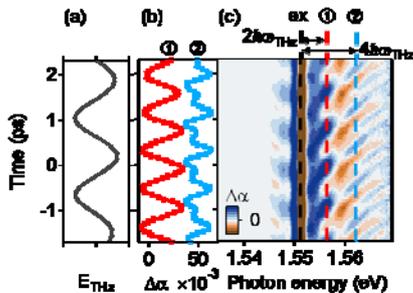


図 1 : (a) THz 電場の時間波形。(b)、(c) は吸収変化の時間波形。(b) における 2つの曲線 (①、②) は、図中(c)において、異なる光子エネルギーで吸収変化に対応する。

(2) ピコ秒高強度電場励起による VO₂ 薄膜の超高速反射率変化

図 2 の実線は、室温 (297 K) において励起光パルス (400 nm、500 μJ/cm²) を VO₂ 薄膜試料に照射して 100 ps 後に、THz 電場パルス (パルス幅 1 ps) を照射したときの過渡的反射率変化を示している (遅延時間τ=0 で THz パルス照射)。試料表面には THz 電場を増強するためにアンテナ構造 (Au) を付加した。光励起がない場合には、THz 照射直後に反射率が減少し、10 ps 以降に準安定な金属相の生成が示唆される。光励起がある場合は、緩やかな立ち上がりを示し、反射率変化の増大が見られた。これは光励起によって作られたキャリア密度が THz 電場による衝突イオン化によって増大し、そのことが金属相ドメインの生成を促進しているためであると考えられる。

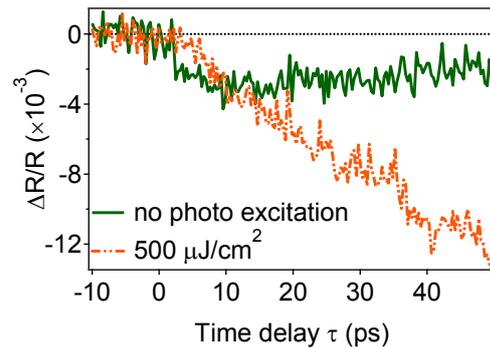


図.2. THz 誘起のプローブ光反射率変化の時間波形。緑実線 (光励起なし)、橙破線 (光励起密度 500μJ/cm²)。

(3) 高強度 THz 電場による超格子 (GeTe)₂/Sb₂Te₃ の構造変化

図 3 は THz 波照射前後における試料のラマンスペクトルである。試料表面には電場を増強させるために金属ダイポールアンテナを製作している。図中の実線 (赤色) が示すように、高強度 THz パルス照射すると、アンテナ近傍の電場が増強される領域において新たなラマンピーク (64, 120, 140 cm⁻¹) が観測された。64 cm⁻¹ のピークはバルク Te (アモルファス構造) に固有な振動モードと予想され、その他 (120, 140 cm⁻¹) は Te-Te 原子間の A1 と ETO モードに同定される。高強度 THz パルス照射することによって、構造変化が起き、偏析によってバルク Te に近い凝集状態ができていることを示唆している。こ

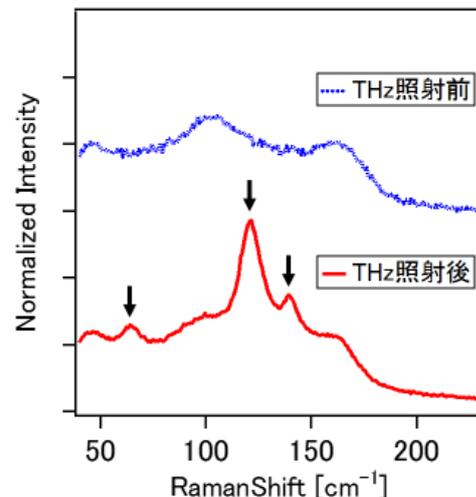


図 3. 試料のラマンスペクトル。青点線は THz 波照射前のスペクトル。赤線は THz 波を照射後のスペクトル。黒矢印は出現した新たなピーク位置を指す。

これらのピーク強度は、THz パルスの強度に対して非線形に増大することがわかった。

(4) スプリットリング共振器の高強度テラヘルツ近接磁場による非線形反強磁性共鳴励起

図 4(a)に HoFeO₃ 単結晶 (c 面カット) 上に作製した SRR 構造 (Au, 厚さ 250 nm) を示す。SRR 構造は LC 共振周波数が HoFeO₃ 反強磁性共鳴 (AF モード) の周波数 ($\nu_{AF}=0.57$ THz) に一致するように設計した。テラヘルツパルス照射により LC 共振が励起されると SRR 上を流れる環状電流が構造近傍に高強度磁場を発生させる。図 4(b) は電磁場解析より求めた LC 共振周波数の磁場強度を入射磁場に対する振幅比で図示したものである。図 4(c) (上部) は、励起強度 $I=145 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ と $14.5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ のテラヘルツパルス照射後の磁化変化を時間分解磁気カー効果により測定したものである。2 つの励起強度で磁化振動の周期に違いがあらわれている。図 4(c) (下部) は解析信号法により決定した振動の中心周波数の時間変化を示している。低強度励起の場合では磁化振動の周波数が全時間にわたりほぼ一定であるのに対し、高強度励起では大きな周波数シフトが 30 ps 以降まで継続している。高強度励起における周波数シフトは大振幅駆動された磁化運動の非調和性に由来することがわかった。

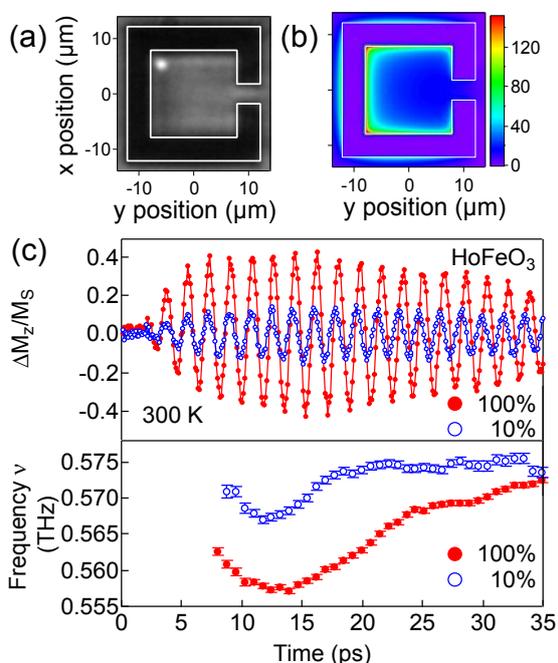


図 4. (a) SRR 金属構造。白点はプローブスポット。(b) LC 周波数における磁場振幅増強度。(c) 磁化変化(上部)と周波数(下部)の時間発展。磁化変化は自発磁化で規格化している。

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 8 件)

1. Y. Okimoto, S. Naruse, R. Fukaya, T. Ishikawa, S. Koshihara, K. Oka, M. Azuma, K. Tanaka, H. Hirori, “Ultrafast control of the polarity of BiCoO₃ by optical excitation as investigated by femtosecond spectroscopy,” *Physical Review Applied* 誌, 2017 年(accepted).
2. K. Uchida, T. Otobe, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. Tanaka, H. Hirori, “Subcycle optical response caused by a terahertz dressed state with phase-locked wave functions,” *Physical Review Letters* 誌, 117 巻, 277402 頁, 2016 年.
3. H. Hirori, K. Tanaka, “Dynamical nonlinear interactions of solids with strong terahertz pulses,” *Journal of the Physical Society of Japan* 誌, 85 巻, 082001 頁, 2016 年.
4. Y. Mukai, H. Hirori, T. Yamamoto, H. Kageyama, K. Tanaka, “Nonlinear magnetization dynamics of antiferromagnetic spin resonance induced by intense terahertz magnetic field,” *New Journal of Physics* 誌, 18 巻, 013045 頁, 2016 年.
5. K. Uchida, H. Hirori, T. Aoki, C. Wolpert, T. Tamaya, K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, and H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, “Time-resolved observation of coherent excitonic nonlinear response with a table-top narrowband THz pulse wave,” *Applied Physics Letters* 誌, 107 巻, 221106 頁, 2015 年.
6. H. Hirori, “Dynamical control of optical properties by using a terahertz dressed state,” *Proc. SPIE* 誌, 10102 巻, 1010207 頁, 2017 年.
7. K. Uchida, H. Hirori, T. Aoki, C. D. Wolpert, K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, “Time-resolved observation of excitonic dynamics under coherent terahertz excitation in GaAs quantum wells,” *Proc. SPIE* 誌, 9361 巻, 93611L1 頁, 2015 年.
8. 廣理英基, “高強度テラヘルツパルス光源の新展開”, *日本物理学会誌*, 71 巻, 34 頁, 2016 年 (表紙イメージが採択) .

[学会発表] (計 7 件)

9. “Dynamical nonlinear interactions of solids with strong terahertz pulses”,

- H. Hirori, 2017 Photonics West, The Moscone Center, San Francisco (USA), 2017年1月28-2月2日。(招待講演)
10. “Sub-cycle control of optical properties by using THz-induced excitonic dressed state”, H. Hirori, K. Tanaka, Workshop on Bright THz Source and Nonlinear THz Field-Matter Interaction 2016, Rochester 大学, Rochester (USA), 2016年6月16-17日。(招待講演)
 11. “High-power Terahertz Pulse Generation and Application to Nonlinear THz Spectroscopy”, H. Hirori, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 神戸大学, 神戸市 (日本), 期間: 2014年11月13-14日。(招待講演)
 12. “高強度テラヘルツ光源の超高速・原子スケール物性研究への応用”, 廣理英基, 光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2017, 大阪大学 吹田キャンパス (大阪), 2017年5月9日~10日。(招待講演)
 13. “超高強度 THz パルスによる電気・磁モード励起と物性制御”, 廣理英基, レーザー学会学術講演会 第36回年次大会, 名城大学 天白キャンパス (名古屋), 2016年1月9日~11日。(招待講演)
 14. “高強度 THz パルスによる電気・磁気光学応答の超高速制御”, 廣理英基, 応用物理学会・量子エレクトロニクス研究会, 東京大学山中寮内藤セミナーハウス (山梨県), 2015年12月18-20日。(依頼講演)
 15. “高強度 THz パルスによる電気・磁気光学応答の超高速制御”, 廣理英基, 第63回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学 (東京都), 2015年3月19-22日。(招待講演)

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

廣理英基 (HIRORI, Hideki)

京都大学・物質—細胞統合システム拠点・准教授

研究者番号: 00512469

(2) 研究分担者

望月敏光 (MOCHIZUKI, Toshimitsu)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・研究員

研究者番号: 30549572

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし