

科学研究費助成事業（特別推進研究）公表用資料
〔令和3（2021）年度 中間評価用〕

令和元年度採択分
令和3年3月31日現在

ナノ物質科学と強電場非線形光学の融合による
フォトニクスの新展開

Fusing nanomaterials and strong electric field
nonlinear optics for new advances in photonics

課題番号：19H05465

金光 義彦 (KANEMITSU Yoshihiko)

京都大学・化学研究所・教授



研究の概要（4行以内）

本研究では、特異な電子状態を持つ固体結晶や構造制御したナノ物質を作製できる物質科学と高強度レーザー技術を融合し、強電場光科学の深化と応用展開を図ることを目指す。レーザーパルス電場により物質中の電子の運動や光学遷移を操作し、高次高調波発生などの強電場下で起こる新規な現象の探求と機構解明を行い、新しい光科学・フォトニクスの創成に挑戦する。

研究分野：物性物理学、光量子科学

キーワード：光物性、ナノ物質、強電場非線形光学、高次高調波発生、テラヘルツ分光

1. 研究開始当初の背景

近年の高強度・超短パルスレーザー技術の進展により、新しい光科学や物質科学が拓かれつつある。固体を形成するクーロン力に匹敵する強さの電場を生み出すことができ、高強度レーザーパルスの照射時に全く新しい現象の観測が可能となった。そのひとつに、入射電場の整数倍の周波数を持つ高次高調波の発生があり、赤外線からX線に至る幅広い波長をカバーする光源やアト秒パルス光源など新たなフォトニクス技術への応用が期待されている。さらに、レーザーの持つ強い光電場は、ツェナートンネリングなどの高電場現象を誘起し、固体の電子状態を劇的に変化させることも可能であり、物質相の制御技術や光周波数で動作する高速な光スイッチング技術などへの応用が期待されている。高強度レーザーを基盤とした光科学は、新しいフォトニクスを切り開くと期待されている。

2. 研究の目的

本研究では、特異な電子状態を持つ固体結晶やナノスケールで精密構造制御したナノ物質を創製できる物質科学と精緻な先端レーザー技術を融合し、新しいフォトニクス技術としての強電場光科学の深化と応用展開に挑戦する。実空間およびエネルギー空間において構造制御したナノ物質中の電子運動をレーザー電場で精密に制御し、高次高調波発生などの強電場下で起こる新規現象の解

明とともに新たな分光技術の開発を可能にする強電場光科学分野の創成を目指す。

3. 研究の方法

高強度なテラヘルツや中赤外レーザー技術を用いて、固体を形成するクーロン力に匹敵する強さの光電場パルスを試料に照射し、その非線形光学応答を研究する。試料としては、新規な電子構造を持つ物質、構造制御されたナノスケールの物質、さらには単原子層物質などを用いる。光電場の位相が制御された光パルスを用いた超高速分光により、強い電場下でのナノ物質の特性を明らかにし、新しい光学現象の発見に挑む。さらに、位相や偏光などの特性が精密に制御された強電場光パルスやテラヘルツパルスの発生技術を利用して、結晶やナノ物質の電子運動や電子状態の制御に挑み、強電場光科学の深化と応用展開を目指す。

強電場光技術とナノ物質光科学・固体光物性の融合による新しい基盤的な光科学分野の開拓により、物質制御技術、光加工技術、さらには光エネルギー変換技術などの開発へ展開する。

4. これまでの成果

固体結晶からの高調波は、現象論的にはレーザー電場によって励起されるキャリア（電子と正孔）が非調和なバンドポテンシャル内を加速運動することで生じる非線形光電流からの電磁波放射である。非線形光電流の発

現メカニズムを明らかにするために、バンド間遷移およびバンド内運動の寄与を、特色あるバンド構造を有する2種類の半導体試料を用いて研究した。大きな線形吸収係数を持つペロブスカイト半導体では、高次高調波発生の発生効率が異方的な結晶角度依存性を示すことを明らかにした。発生効率の角度依存性は、キャリアの非線形な励起の異方性を反映し、電場中でのみ生成される仮想励起で生じることが分かった。一方、層状半導体 GaSe は、バンド端の線形吸収係数が小さく、励起過程による寄与が少ない物質である。この物質を用いることで、バンドの非調和性を反映したバンド内電流によって、高次高調波の特性が説明できた。

さらに、レーザー光を制御することで層状半導体 GaSe 内に発生する非線形電流を操作し、高次高調波を制御することにも成功している。励起光として2つの光パルスを用い、波数空間上のキャリア運動を二次元に拡張し(図1)、非線形電流とキャリアの運動の相関を明らかにした。この成果は、非摂動領域の光波混合の理解とともに高次高調波の制御などの応用の上でも極めて重要な意義がある。

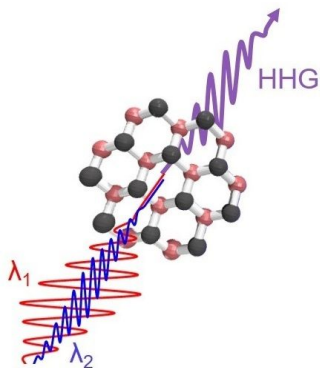


図1：半導体 GaSe における2色レーザー励起による和周波高次高調波発生(HHG)。

5. 今後の計画

ナノ物質では、大きなバルク結晶(バンド電子)と小さな原子・分子(離散化準位の電子)との中間に位置する領域でサイズを変化させることが可能である。バンド内電子の加速運動や励起状態を制御でき、精密な分光により高調波発生のメカニズムに新たな知見を与えることが期待される。ナノ粒子などのナノ物質の電子構造と高次高調波発生の関係を解明する。さらに、ディラック電子系などの量子物質を研究対象とすることで、高次高調波発生の高効率化を目指す。

電子運動を制御する外部自由度として磁場の印加に着目した実験を行う。特に、荷電粒子である電子の運動はテラヘルツ電場と

非常に強く結合することが期待される。磁場中での電子の運動をテラヘルツ分光により捉え、極端な非線形応答を解明する。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

1. F. Sekiguchi, H. Hirori, G. Yumoto, A. Shimazaki, T. Nakamura, A. Wakamiya, and Y. Kanemitsu: Enhancing the hot-phonon bottleneck effect in a metal halide perovskite by terahertz phonon excitation. Phys. Rev. Lett. 126, 077401 (2021).
2. Y. Ogawa, H. Tahara, N. Igarashi, Y. Yamada, and Y. Kanemitsu: Spectral characterization of the Rashba spin-split band in a lead halide perovskite single crystal by photocurrent heterodyne interference spectroscopy. Phys. Rev. B 103, L081201 (2021).
3. K. Nakagawa, H. Hirori, Y. Sanari, F. Sekiguchi, R. Sato, M. Saruyama, T. Teranishi, and Y. Kanemitsu: Interference effects in high-order harmonics from colloidal perovskite nanocrystals excited by an elliptically polarized laser. Phys. Rev. Mater. 5, 016001 (2021).
4. K. Ohara, T. Yamada, T. Aharen, H. Tahara, H. Hirori, H. Suzuura, and Y. Kanemitsu: Impact of spin-orbit splitting on two-photon absorption spectra in a halide perovskite single crystal. Phys. Rev. B 103, L041201 (2021).
5. Y. Sanari, H. Hirori, T. Aharen, H. Tahara, Y. Shinohara, K. L. Ishikawa, T. Otobe, P. Xia, N. Ishii, J. Itatani, S. A. Sato, and Y. Kanemitsu: Role of virtual band population for high harmonic generation in solids. Phys. Rev. B 102, 041125(R) (2020).
6. Y. Sanari, T. Otobe, Y. Kanemitsu, and H. Hirori: Modifying angular and polarization selection rules of high-order harmonics by controlling electron trajectories in k-space. Nat. Commun. 11, 3069 (2020).

受賞

金光義彦：第48回加藤記念賞(2019年11月)

田原弘量：第15回日本物理学会若手奨励賞(領域5)(2021年3月)

7. ホームページ等

<https://www.scl.kyoto-u.ac.jp/~opt-nano/>