

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：14301

研究種目：特別推進研究

研究期間：2019～2023

課題番号：19H05465

研究課題名（和文）ナノ物質科学と強電場非線形光学の融合によるフォトリクスの新展開

研究課題名（英文）Fusing nanomaterials and strong electric field nonlinear optics for new advances in photonics

研究代表者

金光 義彦（Kanemitsu, Yoshihiko）

京都大学・化学研究所・教授

研究者番号：30185954

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 429,300,000 円

研究成果の概要（和文）：特異な電子状態を持つ固体結晶や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、強電場光科学の深化と応用展開を目指し研究を推進した。半導体ナノ結晶からの高次高調波発生の観測、レーザー電場やそれによって誘起される磁場を活用した電子運動や光学遷移の制御、固体の電子状態の観測手法の開発、結合した半導体ナノ結晶薄膜の量子協同効果の発見などを行った。新しい光科学と次世代のフォトリクスの基盤技術の開拓を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、特色ある電子状態を持つ固体結晶やユニークなナノ物質を創製できる物質科学と最先端の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行ってきた。レーザー光電場によって駆動することではじめて観測される新たな電子・スピン状態の創成と理解は、光物理や固体物性などの基礎科学の深化のみでなく、アト秒パルス光源などの新しいフォトリクス技術、超高速エレクトロニクス、太陽電池などの光電デバイスの開発にも繋がるものである。

研究成果の概要（英文）：By combining materials science - specifically the unique electronic states of solid-state crystals and nanomaterials - with cutting-edge laser technology, we have promoted research that deepens our understanding of high-field nonlinear photophysics and photonics. We have observed high-order harmonic generation from semiconductor nanocrystals, controlled electronic motion and optical transitions using laser-induced electric and magnetic fields, developed methods for observing electronic states in solids, and discovered quantum cooperative effects in electronically coupled nanocrystal thin films. We advanced fundamental optical science and technology for the next generation of photonics.

研究分野：光物性物理学、フォトリクス

キーワード：非線形光学 高次高調波発生 半導体 半導体ナノ構造 高強度テラヘルツ

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

固体中の周期的ポテンシャルにおける荷電粒子(電子と正孔)の運動の深い理解は、量子力学の最大の成功の一つであり、固体物理学を大きく発展させるとともに、我々の生活基盤を形成するエレクトロニクス技術の進化を引き起こしてきた。近年の高強度レーザー技術の進展によって、固体内原子の周りの電子雲を形成するクーロン力(10 V/nm)に匹敵する強さの電場を生み出すことができるようになり、その高強度レーザーパルスの照射時に新しい現象の観測が可能となった。そのひとつに、高強度テラヘルツや中赤外光パルスの照射による固体結晶からの高次高調波発生がある。入射光電場の整数倍の周波数をもつ高次高調波の発生は、赤外線からX線に至る幅広い波長の光源やアト秒(10^{-18} 秒)パルス光源など新たなフォトニクス技術の展開を引き起こすと期待されている。これまでは、希ガス原子への高強度レーザー照射による高次高調波発生が多く研究され、コヒーレント極短波長光源技術として確立しつつある。この技術からアト秒科学、超高強度場物理やコヒーレント軟X線分光学など新しい光科学が生まれ、さらに原子・分子系に適用することで高強度場分子化学やアト秒分子科学などへ発展し、国際的に活況を呈している。しかし固体結晶における高調波発生は、原子・分子における離散的エネルギー準位に基づく高調波発生とは異なり、光電場によって極めて短い時間に強く駆動された励起電子のバンド内での運動に起因する。光電場の一周以内の間に強く駆動された励起電子が、伝導帯ポテンシャルの非調和領域を弾道的に運動して生じる非線形電流に起因して高調波が発生すると考えられるが、そのメカニズムは未解明である。さらに、強電場レーザー光が誘起する新しい構造相転移や光電現象が観測され、新たな光物理学やフォトニクス応用が開拓されつつある。高次高調波発生をはじめとする固体の非線形光学現象の深い理解は、強電場光科学の確立に重要であり、赤外線からX線に至る幅広い波長に達する超広帯域光源や検出器、さらにはアト秒パルス光源などの新しいフォトニクス技術の開発・応用をもたらすと期待される。

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に構造制御したナノ物質を創製できる物質合成科学と精緻な先端レーザー技術を融合し、物質固有の電子状態の特性を活かした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を図ることを目指し、新しい分野開拓に挑戦する。特に、結晶バンド内における電子運動に起因した高調波発生メカニズムを解明する目的で、ナノ構造物質や原子層物質などを活用する。固体からの高調波発生は、現象論的には気体とは異なりレーザー電場によるキャリア(電子と正孔)のバンドポテンシャル内で加速運動が重要と考えられている。空間・エネルギー的に電子状態を精密制御したナノ物質とパルス状態を操作したレーザーによって電子の運動を制御し、レーザーの高次高調波発生などの強電場下で起こる新規な現象の機構解明を行う。高調波の光源としての特性(周波数、偏光、強度、位相)を操作できる光技術を確認し、それを用いて電子状態の情報の取得や強電場下で起こる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

ナノ物質・ナノ構造体による電子状態の制御とフェムト秒レーザー技術による光電場の精密制御により電子の固体内の運動を操作し、高調波発生や非線形光学現象を活用した新しい強電場フォトニクス技術の開発を目指した。主な研究項目は以下である。

(1) 新規電子材料、ナノ構造化による物性制御と高調波発生

特色ある半導体材料とナノ物質の利用により、高次高調波発生メカニズムの解明を目的とした。ナノ結晶をはじめとしたナノ物質では、そのサイズを変えることによりエネルギー準位(特にエネルギー間隔)や運動できる空間領域を操作できるため、バンド内電子のコヒーレントな運動とバンド間の遷移を区別できる。ナノ結晶量子ドットにおける高次励起マルチエキシトン状態の操作に戦略的に取り組み、未知の現象の発見・解明に向けた研究を行う。

(2) 外場による電子状態制御と高調波発生

励起光の特性(周波数、偏光、強度、位相)を制御することによって、キャリア運動を操作し高調波の特性制御を行う。特色ある電子状態を持つペロブスカイト半導体や単原子層半導体などにおいて非線形電流を制御し、磁場や電場による電子状態操作により新しい光学現象の発見を目指す。

(3) 電子系の強電場サブサイクル時間・ナノスケール空間応答の解明

高調波発生は、レーザー光パルスの電場によって駆動された電子系と光とのコヒーレントな相互作用がその起源であり、それを利用することにより極限的短時間における電子の運動を追跡するサブサイクル電子応答(電場振動1周期以内の電子ダイナミクス)計測システムの構築も可能となる。この基盤技術の開発を行い、固体中の超高速電子ダイナミクスの操作を目指す。高度な時間分解測定技術に加えてナノスケールの顕微鏡技術、金属ナノプローブ顕微鏡や金属メタマテリアル共振器による近接場増強を使った分光技術を開発する。

4. 研究成果

新規な電子状態を持つナノ構造物質とバルク結晶を対象として、レーザー強電場励起により物質の非線形応答を究明し、高次高調波発生などの非線形光学現象の理解とともに新たなフォトニクスの開拓を目指した。以下に、主な研究成果を研究項目別にまとめた。

(1) 新規電子材料、ナノ構造化による物性制御と高調波発生

新規電子材料ハライドペロブスカイトの非線形分光と電子構造の究明

ハライドペロブスカイトは大きな遷移双極子モーメントを持つため、光との強い相互作用に起因する物性発現の舞台としても注目を集めている。しかし、その電子構造に関してはまだ未解明な点が多く、新たな光学現象の開拓に向けて、バンド構造の詳細な理解や非線形光学応答の理解が必要となる。波長可変フェムト秒レーザーを励起光源とした Z-scan 法による非線形光学スペクトル測定系を構築し、ペロブスカイト半導体 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbCl}_3$ 単結晶の大きな非線形吸収が励起子効果によることを解明した。バンド構造をより詳細に理解するために、直線偏光の偏光角依存性や円偏光励起測定が可能となるよう Z-scan 測定系を拡張し、2光子吸収の2色性スペクトルからスピン軌道相互作用を反映した電子状態分裂の大きさを実験的に初めて決定した。さらに、レーザー電場の干渉をベースにしたヘテロダイン干渉計を構築し、それによりバンド端近傍の巨大なスピン軌道相互作用に起因したラシュババンドが形成されることを明らかにした。また、新規強誘電材料の金属フリーハライドペロブスカイトに対し、偏光分解第二高調波(SHG)測定と偏光分解発光測定とを同時に行うことで、SHG 信号から結晶方位および強誘電分極の方位を決定しつつ、強誘電分極方向で発光が強くなるという発光の異方性を明らかにした。単一の結晶相で発光と強誘電性が共存し、互いに相関するという特異な性質を持つことを初めて示した。ペロブスカイト半導体の高い吸収の異方性の特徴を活かし非線形励起過程と高次高調波発生との関係解明を世界に先駆けて行った。高次高調波発生の発生効率の結晶角度依存性を測定し、異方的な発生効率を観測した。理論的考察から、高調波の発生効率は、キャリアの非線形励起に由来することを明らかにした。

ペロブスカイトナノ結晶における非線形応答のバイエキシトンダイナミクス

ペロブスカイトナノ結晶は高い発光量子効率とバンドギャップの操作性に優れたナノ半導体材料であり、高効率な次世代発光・光電デバイス材料として大きな注目を集めている。我々は単一ナノ結晶顕微分光法を用いて、低温での発光スペクトルに現れるマルチピーク構造がエキシトン(電子と正孔の2粒子状態)、トリオン(3粒子状態)、バイエキシトン(4粒子状態)などに由来することを初めて見出した。さらにナノ結晶におけるエキシトン・フォノン相互作用やトリオン・バイエキシトン束縛エネルギーの詳細を明らかにし、発光デバイス材料や非線形光学材料としての特性理解に重要な知見を与えた。また、ナノ結晶フィルムを作製し光電流ダイナミクスを測定することにより、トリオンがその光電特性に大きく寄与することを見出した。これらのトリオンやバイエキシトンは、ナノ結晶の非線形光学応答や光学利得(レーザー発振)などを支配することを示した。

発光・光電特性の理解に加え、我々はペロブスカイトナノ結晶の集団試料を強く光励起することにより、特異な非線形光学応答を発見した。ダブルポンプ法という超高速レーザー分光手法を構築し光学利得ダイナミクスを測定することで、ポンプ光によって生成されるホットなバイエキシトンやエキシトンの対称性を操作することにより光学利得特性が向上することを見出した。また、円偏光ポンプ・プローブ分光測定を行うことにより、強い近赤外光を照射することで、エキシトン準位が光照射中のみ巨大にシフトする特異な超高速非線形光学応答が生じることを発見した。この起源がスピン軌道相互作用によって生じた多準位電子状態における Autler-Townes 効果であることを明らかにし、スピン軌道相互作用に起因した新奇な非線形光学を開拓し、新しい光変調の可能性を示した。

ナノ結晶の高次分極と量子協同効果の発見

コロイド半導体量子ドットは、サイズと組成を変えることで光吸収エネルギーや発光エネルギーを自在に制御できる材料であり、これまでに弱光電場下における線形光学応答として、太陽電池や発光ダイオードなどの光電デバイス応答について研究が進められてきた。しかし、高強度レーザー照射下のような、強光電場下における非線形光学応答はほとんど理解されていない。我々は、強光電場下で現れる非線形なコヒーレント応答を計測するために、PbS 量子ドットを結合させた量子ドット薄膜を作製した。高次分極による応答をとらえるために、2つのレーザーパルス光の位相を固定(ロック)して計測する光電流量子干渉分光法を開発した。この手法を用いて、エキシトン分極による量子干渉信号を計測し、高調波コヒーレント信号を光電流で検出することに成功した。さらに、非結合の量子ドット溶液と比べて結合量子ドット膜では、高次コヒーレント応答の信号強度は増大し、量子ドット同士が結合することで集団的な増強効果が現れることを明らかにした。

この量子協同効果の解明を目指し、量子ドット間をつなぐ有機分子の長さを変えた実験を行った。アルキル鎖の原子数を変えた複数の試料を作製し、光電流量子干渉信号の増強度を比較したところ、分子長が短くなるとともに、高次コヒーレント信号が増大していくことが分かった。照射するレーザー光の強さと有機分子の長さを変えた結果を詳細に解析することで、隣接する

量子ドットで共有されたマルチエキシトン状態が非線形光電流信号の増大を引き起こしていることを明らかにした。非線形な光電流が増大していることは、照射した光のエネルギーが物質の中で高いエネルギーに変換されて電流として取り出せることを意味しており、赤外線のような低いエネルギーの光を有効利用した新しい光電デバイス技術につながる重要な過程を明らかにした。

ナノ結晶量子ドットからの高次高調波発生の発見

固体の高次高調波発生は、原子・分子ガスとは異なり、バンド内を光電場によってごく短時間に強く駆動された励起電子の運動に起因すると考えられている。しかし、これまで研究対象となった多くの物質は単純なバンド構造を持つバルクの半導体に限られ、固体の高調波発生メカニズムの解明には至っていなかった。そこで、電子状態を操作可能で高品質なハロゲン化鉛ペロブスカイト CsPbBr₃ 半導体ナノ結晶に着目し、その高次高調波発生の観測に世界で初めて成功した。さらに、レーザー照射に対する耐性が高く、精密にサイズ制御が可能な半導体ナノ結晶(CdSe, CdS)を対象として研究を進めた。直径が約 2 nm より大きくなるにつれて高調波強度が 100 倍程度増大することを世界に先駆けて発見した。半導体ナノ結晶の電子状態のサイズ効果を取り込んだ理論計算によって、観測されたサイズ依存性を再現することにも成功した。これらの結果から、レーザー励起によって生じるバンド間の多光子遷移に加えて、電子の加速運動(バンド内遷移)によって多光子吸収が増強され、励起キャリア密度が増大し、高調波発生効率も増大することを明らかにした。これらの成果は固体高調波発生の本質的な理解を与え、光強電場で電流を制御する次世代の強電場フォトニクス基礎を与えるものである。

(2) 外場による電子状態制御と高調波発生

テラヘルツ光電場による電子状態およびキャリアダイナミクスの操作

半導体におけるキャリアとフォノンとの相互作用は、光励起されたキャリアの散乱やエネルギー緩和とダイナミクスの素過程を与える重要な要素である。我々は、高強度のテラヘルツパルス励起とストリークカメラを用いた時間分解発光測定系を組み合わせた独自の実験系を構築することで、ハライドペロブスカイト半導体において、フォノン吸収過程の増大によるキャリアエネルギーの緩和レートの遅速化(ホットフォノンボトルネック効果)をテラヘルツパルスによって直接引き起こすことに成功した。また、本研究では、金属スプリットリング型共振器の一部をナノサイズ化することにより、真空中の量子揺らぎがもたらすテラヘルツ波の電場成分を 600 倍に増強し、外部光を使わない方法で、フォノンの共鳴周波数を制御する真空ラビ分裂の観測に成功した。光の量子揺らぎにより物質中のフォノンを操作する技術は、固体物性の新たな制御法を提示したものであり、全く新しい光電子デバイス開発につながると期待される。単一ペロブスカイトナノ結晶の電子状態を外部電場によって制御することにも成功した。

励起光の偏光操作による高次高調波発生の制御

典型的な半導体である GaAs バルク結晶の(100)面に対して、直線偏光の中赤外光励起によって発生した高次高調波を測定し、結晶方位による異方性や発生する高調波の偏光状態を研究した。GaAs は磁性や複屈折も持たないが、対称性の低い結晶方向[100]軸と[110]軸の間の方向に光電場が印加されたとき、励起偏光と直交する方向にも高調波が発生することを見出した。特に、励起光強度が強くなり摂動論を逸脱する領域に突入すると、この直交性偏光成分の影響が支配的になり、発生する高調波は楕円偏光になることを発見した。さらに、この非摂動領域で励起光の偏光(楕円率)を操作することで、高調波の偏光を直線偏光に近づけることに成功し、同時に高調波強度の顕著な増大が生じることを発見した。これらの高調波の特性は、レーザー光電場励起により引き起こされる広範囲のバンド空間上での超高速な電子運動によってもたらされ、ペタヘルツエレクトロニクスなどの新たな光デバイス技術開発において重要な知見である。

2 波長励起による電子状態の制御と高次高調波発生

層状半導体 GaSe は、大きな波数を持つバンド電子状態において強い非調和性を示す物質であり、高次高調波発生と電子状態の関係を調べる上で理想的な物質である。ここでは、高調波の直交する偏光に対して結晶角度依存性とその強度依存性を系統的に測定し、励起強度の増加とともに結晶角度依存性の異方性が徐々に顕著になる実験結果を得た。観測した高次高調波の結晶角度依存性は、励起された電子が Γ 点から大きく離れた波数領域まで加速され、また 2 波長レーザー励起によるバンド内電流の操作によってもたらされることを明らかにした。この結果は、高次高調波発生の観測が、従来の分光法では入手できないブリルアンゾーン全域にわたる電子状態の情報を取得できる有望な手法であることを示している。さらに、固体高次高調波の理解と制御を目指して、単層グラフェンにおいて、テラヘルツ光照射による中赤外光励起で発生する高調波強度の変化を測定した。テラヘルツ強電場がもたらす系の反転対称の破れが偶数次の高調波発生をもたらすことを発見した。

高強度テラヘルツ磁場パルスの生成と超高速スピン材料への応用

従来のスピントロニクス材料として利用されている GHz 帯域で動作する強磁性体よりもはるかに高速なテラヘルツ帯で応答可能な反強磁性体が精力的に研究されている。我々は、強電場光

パルスの新たな活用方法として、螺旋状の金属メタマテリアル構造を用いた強磁場パルスの発生法を開発した。この金属構造に、テラヘルツ電場パルスを照射すると構造内に瞬間的に電流が発生し、1 テスラを超える強力な磁場パルスを発生することを実証した。この高強度な磁場を、反転対称の破れたスピン構造を持つ反強磁性体 HoFeO_3 に照射し、巨大なスピン振動による非線形な応答を観測し、これに伴うスピン振動の高次高調波発生を観測した。

テラヘルツ電流が引き起こす特異な超伝導スイッチング動作の発見

ナノ構造により機能性を付与した物質において発現する新奇な非線形現象を探求するため、特色ある超伝導薄膜にテラヘルツ波を照射する実験を行った。人工ナノ超格子構造によって対称性を破った超伝導体は、臨界電流が電流の正負に応じて異なるという超伝導ダイオード特性を示すため、近年大きな注目を集めている。この新奇な超伝導体を高強度のテラヘルツ波によって駆動する実験を行うため、低温・磁場・電流印加下でテラヘルツ分光を行う測定系を構築した。

直流電流の流れている超伝導にテラヘルツパルスを照射すると、臨界電流が大きく変化する様子が観測された。特に、超伝導ギャップよりも低いエネルギーのテラヘルツ波を照射した場合、テラヘルツ電場の向きに敏感な臨界電流の減少が起こる。この振る舞いは、テラヘルツ波のような低エネルギーフォトンの偏光状態を検出できることを示している。さらに、テラヘルツ波照射下で超伝導体の電流-電圧特性を詳しく調べると、一度破壊された超伝導が臨界電流より大きい電流下で再び出現するという特異な振る舞いが観測された。この直流電流に対して非単調な超伝導破壊は、超伝導体内の磁気ボルテックスがテラヘルツ電流からローレンツ力を受けて引き起こされるピン止めと解放のダイナミクスで理解できることを明らかにした。このような特異な超伝導スイッチングは既存のデバイスには存在しない動作であり、今後の超伝導素子開発に新たな知見を与えると期待される。

(3) 電子系の強電場サブサイクル時間・ナノスケール空間応答の解明

高強度・高安定な中赤外レーザー光源の開発

固体の電子運動を光電場で精密に操作し、高次高調波発生などの強電場下で起こる現象の本質的な理解を得るために、バンドギャップに比べて小さなフォトンエネルギーを持つ高強度な中赤外光やテラヘルツ光パルス発生技術が必要である。特に、高次高調波発生と光電場パルスの位相との関係を明らかにするために、キャリアエンベロープ位相が固定された中赤外パルス光源 ($3\text{-}7\ \mu\text{m}$) の開発を行った。差周波発生過程において、 KTiOAsO_4 (KTA) 非線形結晶を用いることにより、 $3\ \mu\text{m}$ 帯の中赤外光パルスを高効率に発生した。光パルスの短パルス化のために周波数チャープを制御し、そのパルス特性を周波数分解光ゲート法で評価した結果、2 サイクルの電場周期をもつ $20\ \text{fs}$ 程度の光パルスであることが分かった。また、 LiGaS_2 非線形結晶を用いることにより、 $7\ \mu\text{m}$ 帯の中赤外光パルスを高効率に発生させ、その電場波形を電気光学測定によって評価した。キャリアエンベロープ位相は 360 アト秒の範囲内の極めて高い安定性を数時間にわたって持続することが分かり、固体電子のアト秒ダイナミクスの研究に必要な光源開発に成功した。

空間分解イメージング分光の開発と励起子非線形応答

サブピコ秒・サブマイクロメートルの時空間分解能をもち、偏光回転角を高精度に測定できる偏光分解ポンプ・プローブ顕微分光法を新たに開発し、ファラデー回転角の時空間分解イメージングから室温における2次元励起子スピンの時空間ダイナミクスを観測した。新規な2次元半導体である層状ハライドペロブスカイトでは大きな束縛エネルギーを持つ励起子が存在し、その励起子状態は励起子スピン ± 1 で特徴づけられる。また、長いスピン緩和時間を示すため、従来の物質とは異なり室温における励起子スピン輸送が期待できる。ポンプ強度が弱い時、励起子スピンはポンプビーム形状を反映したガウシアン形の空間パターンを保ちながら緩和していく。一方で、ポンプ強度を強くしていくと、励起から時間が経つにつれ励起子スピンの空間パターンがリング状になり、同時にピコ秒スケールの超高速な励起子スピン輸送が生じることを見出した。このような強励起条件における特異な励起子スピンの時空間ダイナミクスが、励起子-励起子交換相互作用に起因していることを明らかにした。2次元層状ハライドペロブスカイトでは有機分子の種類を工夫することにより、室温で強誘電性を示す試料も作製できる。そこで我々は、偏光分解 SHG イメージング測定系を構築し、強誘電2次元層状ハライドペロブスカイトにおける強誘電特性および非線形光学特性を明らかにした。

テラヘルツ STM の開発

物性やデバイスの機能を担う電気伝導や光電変換、磁性による情報の保持などは主に電子(キャリア)が担っており、固体における非平衡電子ダイナミクスの観測手法の確立は重要な課題である。そこで、フェムト秒時間分解能と原子スケールの空間分解能を両立させるために、テラヘルツ (THz) 強電場パルスをトンネルバイアスに利用した走査トンネル顕微鏡 (STM) である THz-STM を研究開発した。テラヘルツパルスを試料と探針の間に形成したトンネル接合に集光することにより瞬時トンネル電流を発生させ、フェムト秒の時間分解計測が可能なることを検証した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計50件（うち査読付論文 47件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 29件）

1. 著者名 Sekiguchi Fumiya, Narita Hideki, Hirori Hideki, Ono Teruo, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 15
2. 論文標題 Anomalous behavior of critical current in a superconducting film triggered by DC plus terahertz current	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 4435
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-024-48738-8	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 Maruyama Kei, Zhang Zhenya, Takumi Mihar, Satoh Takuya, Nakajima Makoto, Kanemitsu Yoshihiko, Hirori Hideki	4. 巻 17
2. 論文標題 Tesla-class single-cycle terahertz magnetic field pulses generated with a spiral-shaped metal microstructure	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 022004 ~ 022004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ad2909	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 Hirori Hideki, Sato Shunsuke A., Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 15
2. 論文標題 High-Order Harmonic Generation in Solids: The Role of Intraband Transitions in Extreme Nonlinear Optics	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 2184 ~ 2192
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.3c03415	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 Cho Kenichi, Sato Takao, Yamada Takumi, Sato Ryota, Saruyama Masaki, Teranishi Toshiharu, Suzuura Hidekatsu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 18
2. 論文標題 Size Dependence of Trion and Biexciton Binding Energies in Lead Halide Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 5723-5729
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.3c11842	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 -

1. 著者名 Tahara Hirokazu, Sakamoto Masanori, Teranishi Toshiharu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 19
2. 論文標題 Coherent electronic coupling in quantum dot solids induces cooperative enhancement of nonlinear optoelectronic responses	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 744 ~ 750
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41565-024-01601-9	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 -

1. 著者名 Sekiguchi Fumiya, Sakamoto Minoru, Nakagawa Kotaro, Tahara Hirokazu, Sato Shunsuke A., Hirori Hideki, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 108
2. 論文標題 Enhancing high harmonic generation in GaAs by elliptically polarized light excitation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.108.205201	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 -

1. 著者名 Zhang Zhenya, Sekiguchi Fumiya, Moriyama Takahiro, Furuya Shunsuke C., Sato Masahiro, Satoh Takuya, Mukai Yu, Tanaka Koichiro, Yamamoto Takafumi, Kageyama Hiroshi, Kanemitsu Yoshihiko, Hirori Hideki	4. 巻 14
2. 論文標題 Generation of third-harmonic spin oscillation from strong spin precession induced by terahertz magnetic near fields	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1795
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-023-37473-1	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 Nakagawa Kotaro, Ishii Nobuhisa, Kanemitsu Yoshihiko, Hirori Hideki	4. 巻 16
2. 論文標題 Mid-infrared pulse generation using multi-plate white-light generation and optical parametric amplification in LiGaS ₂ crystals	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 032001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/acbd83	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 Sekiguchi Fumiya, Yumoto Go, Hirori Hideki, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 106
2. 論文標題 Polarization anomaly in high harmonics in the crossover region between perturbative and extreme nonlinearity in GaAs	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L241201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.L241201	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 Cho Kenichi, Tahara Hirokazu, Yamada Takumi, Suzuura Hidekatsu, Tadano Terumasa, Sato Ryota, Saruyama Masaki, Hirori Hideki, Teranishi Toshiharu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 22
2. 論文標題 Exciton-Phonon and Trion-Phonon Couplings Revealed by Photoluminescence Spectroscopy of Single CsPbBr3 Perovskite Nanocrystals	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 7674 ~ 7681
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.2c02970	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 -

1. 著者名 Yumoto Go, Sekiguchi Fumiya, Hashimoto Ruito, Nakamura Tomoya, Wakamiya Atsushi, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 8
2. 論文標題 Rapidly expanding spin-polarized exciton halo in a two-dimensional halide perovskite at room temperature	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabp8135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abp8135	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 Nakagawa Kotaro, Hirori Hideki, Sato Shunsuke A., Tahara Hirokazu, Sekiguchi Fumiya, Yumoto Go, Saruyama Masaki, Sato Ryota, Teranishi Toshiharu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 18
2. 論文標題 Size-controlled quantum dots reveal the impact of intraband transitions on high-order harmonic generation in solids	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Physics	6. 最初と最後の頁 874 ~ 878
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41567-022-01639-3	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 Handa Taketo, Hashimoto Ruito, Yumoto Go, Nakamura Tomoya, Wakamiya Atsushi, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 8
2. 論文標題 Metal-free ferroelectric halide perovskite exhibits visible photoluminescence correlated with local ferroelectricity	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabo1621
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abo1621	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 Yamada Yasuhiro, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 14
2. 論文標題 Electron-phonon interactions in halide perovskites	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 48
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41427-022-00394-4	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 Tahara Hirokazu, Sakamoto Masanori, Teranishi Toshiharu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 104
2. 論文標題 Collective enhancement of quantum coherence in coupled quantum dot films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L241405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.L241405	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 Sanari Yasuyuki, Sekiguchi Fumiya, Nakagawa Kotaro, Ishii Nobuhisa, Kanemitsu Yoshihiko, Hirori Hideki	4. 巻 46
2. 論文標題 Generation of wavelength-tunable few-cycle pulses in the mid-infrared at repetition rates up to 10kHz	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 5280 ~ 5283
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.440228	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 Zhang Zhenya, Hirori Hideki, Sekiguchi Fumiya, Shimazaki Ai, Iwasaki Yasuko, Nakamura Tomoya, Wakamiya Atsushi, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 3
2. 論文標題 Ultrastrong coupling between THz phonons and photons caused by an enhanced vacuum electric field	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 L032021
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.3.L032021	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 Yamada Yasuhiro, Mino Hirofumi, Kawahara Takuya, Oto Kenichi, Suzuura Hidekatsu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 126
2. 論文標題 Polaron masses in CH ₃ NH ₃ PbX ₃ perovskites determined by Landau level spectroscopy in low magnetic fields	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 237401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.126.237401	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 Tachizaki Takehiro, Hayashi Kan, Kanemitsu Yoshihiko, Hirori Hideki	4. 巻 9
2. 論文標題 On the progress of ultrafast time-resolved THz scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 060903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0052051	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 Yumoto Go, Hirori Hideki, Sekiguchi Fumiya, Sato Ryota, Saruyama Masaki, Teranishi Toshiharu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 12
2. 論文標題 Strong spin-orbit coupling inducing Autler-Townes effect in lead halide perovskite nanocrystals	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 3026
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-021-23291-w	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 Sekiguchi Fumiya, Hirori Hideki, Yumoto Go, Shimazaki Ai, Nakamura Tomoya, Wakamiya Atsushi, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 126
2. 論文標題 Enhancing the Hot-Phonon Bottleneck Effect in a Metal Halide Perovskite by Terahertz Phonon Excitation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 077401(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.126.077401	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 Ogawa Yoshihiro, Tahara Hirokazu, Igarashi Nanako, Yamada Yasuhiro, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 103
2. 論文標題 Spectral characterization of the Rashba spin-split band in a lead halide perovskite single crystal by photocurrent heterodyne interference spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L081201(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.L081201	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 -

1. 著者名 Nakagawa Kotaro, Hirori Hideki, Sanari Yasuyuki, Sekiguchi Fumiya, Sato Ryota, Saruyama Masaki, Teranishi Toshiharu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 5
2. 論文標題 Interference effects in high-order harmonics from colloidal perovskite nanocrystals excited by an elliptically polarized laser	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 016001(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.016001	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 Ohara Keiichi, Yamada Takumi, Aharen Tomoko, Tahara Hirokazu, Hirori Hideki, Suzuura Hidekatsu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 103
2. 論文標題 Impact of spin-orbit splitting on two-photon absorption spectra in a halide perovskite single crystal	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L041201(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.L041201	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 Sanari Yasuyuki, Hirori Hideki, Aharen Tomoko, Tahara Hirokazu, Shinohara Yasushi, Ishikawa Kenichi L., Otake Tomohito, Xia Peiyu, Ishii Nobuhisa, Itatani Jiro, Sato Shunsuke A., Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 102
2. 論文標題 Role of virtual band population for high harmonic generation in solids	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 041125(R)(1-7)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.041125	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 該当する

1. 著者名 Sanari Yasuyuki, Otake Tomohito, Kanemitsu Yoshihiko, Hirori Hideki	4. 巻 11
2. 論文標題 Modifying angular and polarization selection rules of high-order harmonics by controlling electron trajectories in k-space	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 3069(1-7)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-16875-5	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 Kobiyama Etsuki, Tahara Hirokazu, Sato Ryota, Saruyama Masaki, Teranishi Toshiharu, Kanemitsu Yoshihiko	4. 巻 20
2. 論文標題 Reduction of Optical Gain Threshold in CsPbI ₃ Nanocrystals Achieved by Generation of Asymmetric Hot-Biexcitons	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 3905 ~ 3910
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.0c01079	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 -

1. 著者名 K. Ohara, T. Yamada, H. Tahara, T. Aharen, H. Hirori, H. Suzuura, and Y. Kanemitsu	4. 巻 3
2. 論文標題 Excitonic enhancement of optical nonlinearities in perovskite CH ₃ NH ₃ PbCl ₃ single crystals	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Materials	6. 最初と最後の頁 111601(R)(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.3.111601	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143件(うち招待講演 43件/うち国際学会 32件)

1. 発表者名 Y. Kanemitsu
2. 発表標題 Exciton-Exciton and Exciton-Phonon Interactions in Halide Perovskite Nanocrystals
3. 学会等名 12th International Conference on Quantum Dots (QD2024) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Y. Kanemitsu
2. 発表標題 Photophysics of lead halide perovskite semiconductors
3. 学会等名 Asia-Pacific International Conference on Perovskite, Organic Photovoltaics and Optoelectronics (IPEROP24) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 H. Hirori
2. 発表標題 Magnetic Floquet engineering with Tesla-class THz fields
3. 学会等名 Physics of Open Systems and Beyond (POS & BYD) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Kanemitsu and G. Yumoto
2. 発表標題 Exciton Photophysics of Halide Perovskites for Novel Applications
3. 学会等名 2023 MRS Spring Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 金光義彦
2. 発表標題 ナノ粒子量子ドットの40年：誕生からペロブスカイトナノ粒子まで
3. 学会等名 2024年 第71回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 金光義彦
2. 発表標題 量子ドットの誕生から最新の研究まで
3. 学会等名 日本物理学会 2024年春季大会（招待講演）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 廣理英基
2. 発表標題 テスラ級のテラヘルツ磁場パルスを用いた磁気的フロッケエンジニアリングと超高速スピン制御
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第44回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 廣理英基
2. 発表標題 高強度テラヘルツ磁場パルスが誘起する非線形スピン応答
3. 学会等名 日本物理学会北海道支部講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Kanemitsu and T. Yamada
2. 発表標題 Probing halide perovskite photocarrier dynamics with nonlinear optical spectroscopy
3. 学会等名 Asia-Pacific International Conference on Perovskite, Organic Photovoltaics and Optoelectronics (IPEROP23) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 H. Tahara and Y. Kanemitsu
2. 発表標題 Photocurrent Detection of Cooperative Exciton Quantum Interference in Nanocrystal Thin Films
3. 学会等名 242nd ECS Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田原弘量
2. 発表標題 ナノ構造半導体における強結合と光電機能
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 田原弘量
2. 発表標題 ナノ構造半導体における量子コヒーレンスと光電機能
3. 学会等名 2023年 第70回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 廣理英基
2. 発表標題 高強度テラヘルツ磁場パルスが誘起する非線形スピン応答
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 廣理英基
2. 発表標題 高強度テラヘルツ非線形分光
3. 学会等名 電気学会「光・熱・電気との相互作用を活用した高機能磁気デバイス技術調査専門委員会」（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Kanemitsu
2. 発表標題 Optical Responses of Halide Perovskites
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Hirori and Y. Kanemitsu
2. 発表標題 Extremely nonlinear interaction of strong laser fields with solids
3. 学会等名 ナノ学会 ナノ構造・物性 - ナノ機能・応用部会合同シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田原弘量
2. 発表標題 ナノ構造半導体における光励起状態の位相制御と量子光物性開拓
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Tahara and Y. Kanemitsu
2. 発表標題 Coherent Spectroscopy of Multiple Excitons in Quantum Dot Nanocrystals
3. 学会等名 8th International Symposium on Control of Semiconductor Interfaces（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田原弘量, 金光義彦
2. 発表標題 多重励起パルスとコヒーレント分光で制御する電子正孔系の量子ダイナミクス
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第40回年次大会（招待講演）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計5件

産業財産権の名称 積層体	発明者 廣理英基、金光義彦、章振亜	権利者 京都大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-090139	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 加工装置、加工方法	発明者 廣理英基、金光義彦、林寛、水落憲和、森下弘樹、西川	権利者 京都大学、金沢大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-082425	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 高次高調波発生材料	発明者 金光義彦、廣理英基、佐成晏之、中川耕太郎、寺西利治、他	権利者 京都大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-147109	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 コヒーレント光生成装置	発明者 金光義彦、廣理英基、佐成晏之、乙部智仁	権利者 京都大学、量子科学技術研究開発機構
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-205285	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 NV中心作製方法およびダイヤモンド粒子の製造方法	発明者 水落憲和、藤原正規、林寛、蘇梓傑、森岡直也、金光義彦	権利者 京都大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2024-031271	出願年 2024年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

<p>金光研究室ホームページ https://www.scl.kyoto-u.ac.jp/~opt-nano/</p>

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	廣理 英基 (Hirori Hideki) (00512469)	京都大学・化学研究所・准教授 (14301)	
研究分担者	田原 弘量 (Tahara Hirokazu) (20765276)	京都大学・白眉センター・特定准教授 (14301)	

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

ドイツ	Max Planck Institute			
-----	----------------------	--	--	--