

令和 4 年 5 月 20 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14624

研究課題名（和文）ベリール位相とフロクエ描像に基づいた固体における高次高調波発生機構の解明

研究課題名（英文）Elucidation of a mechanism of high-harmonic generation in solids based on Floquet subband picture

研究代表者

玉谷 知裕 (Tomohiro, Tamaya)

東京大学・物性研究所・特任研究員

研究者番号：20633697

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、これまでに研究代表者が独自に培ってきた高強度光照射下の半導体における非線形光学応答理論を進展させることで、従来の理論では解明されていない高強度光物理現象の統一的理解を作り出すことに成功した。この理解はフロクエ・サブバンド描像を基礎としており、従来の3ステップモデルでは理解することが困難な、固体における高次高調波発生の励起光強度に対する非単調な振動構造の存在を予測する。GaAsを用いた高次高調波の実験を行った結果、確かにこの振動構造が確認できた。本研究で得られた成果は、高強度光物理現象を理解するための基礎を与えると共に、固体を用いた光デバイス開発の指針を示すものと期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体における高次高調波の発生機構はこれまで主に3ステップモデルに基づいて理解されてきた。しかしながらこの理解では高次高調波と他の高強度光物理現象との関係性が不明瞭なままである。以上を踏まえ、本研究では他の高強度光物理現象と矛盾のない高次高調波の発生機構と物理的描像を提示した。本研究で得られた描像は非摂動論的な領域における非線形光学現象の基礎的かつ統一的理解を与えると共に、新たな光源開発の指針を示すものとなる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we propose a novel picture of high-harmonic generation (HHG) in solids by expanding our original theory published in the previous works. The picture proposed in this study is based on the Floquet subband that is derived from a concept of a temporally changing band structure. This subband picture suggests a peculiar feature of HHG intensity that becomes a non-monotonic function of the incident light amplitude. By comparing to an experiment of GaAs, we could identify this non-monotonic behavior as a function of the excitation light fields and confirm the consistency between our theory and experimental results. The picture proposed in this study not only reveals the origin of the plateau structure in HHG spectra, but also provides a connection to other high-field phenomena.

研究分野：光物性

キーワード：半導体 高次高調波発生 フロクエ理論 GaAs せん断応力 ベリール位相 電気分極

1. 研究開始当初の背景

高輝度・高効率次世代レーザー開発への有用性から固体を用いた高次高調波発生が強い注目を集めている。原子気体を用いた高次高調波の発生機構は一つの原子に注目した3ステップ模型によって理解されることが知られているが、固体における高次高調波発生についても同様に3ステップ模型に基いた研究が進められている。しかし、1つの原子に着目した本模型では周期的に配列した多数の原子の影響を記述できない。さらにこの3ステップ模型に基づいた考え方では、高次高調波発生と他の高強度光物理現象の関係が不明瞭である。そのため、固体の高次高調波の性質を正しく記述し、本現象と他の高強度光物理現象との関係性を適切に理解するためには、原子の空間的な周期性を考慮した新しい理論モデルを導入する必要がある。

この目的のため研究代表者は、これまで高強度光照射下の半導体における光学応答を取り扱うための独自の理論を構築し、固体における高次高調波発生の現象に対する物理的知見を培ってきた。この理論の最大の特徴は「物質のバンド構造が時間と共に変化する」という点にある。本理論を基礎に研究代表者が、この「時間と共に変化するバンド構造」の概念をより深く考察した結果、高強度光によって変調される物質のバンド構造が、入射周波数の整数倍のエネルギーで特徴づけられるフロッケ・サブバンドを生み出しているということに気がついた。この高強度にすると初めて出現するフロッケ・サブバンドの存在は既によく知られた3ステップ模型では説明することができず、プラトー構造の起源に関する研究に新たな視点を付与すると期待される。さらに固体では、高次高調波発生にとって中心的な概念となる電気分極が、結晶中の原子の周期性によって一意的に定義することはできないという問題が存在する。そのため、近年実験で観測されている固体特有の高次高調波の性質を説明するには、本理論を発展させ、物質を構成する原子の軌道混成から定義される分極の概念をベリ一位相を用いて記述する必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、半導体に高強度光を照射した際に生じるフロッケ・サブバンド描像を基礎として、従来の3ステップ模型では不可能であった固体における高強度光物理現象の統一的理解を提示することを目的とする。さらに本模型を発展させることで、物質を構成する原子の軌道混成から定義される分極の概念をベリ一位相を用いて記述し、固体における高次高調波の新たな制御方法を探索する。

3. 研究の方法

進めた研究内容は下記の通りである。

(1) THz光とNIR光の同時照射により発生する高次のサイドバンド生成の理論的研究

高強度光を照射した半導体におけるフロッケ・サブバンド描像の正当性は、テラヘルツ (THz) 光と近赤外光 (NIR) 光を用いたポンプ・プローブ分光法によって確認できるものと期待される。そこで申請者はこれまで自身が構築してきた理論をTHz光とNIR光双方が同時に照射された半導体に適用することで、高次のサイドバンド生成の理論を構築した。そして発生する高次のサイドバンド生成の性質がNIR光の周波数やTHz光の強度に依存してどのように変化するかを考察した。

(2) GaAsにおける高次高調波発生の理論構築及び実験結果との比較

(1)で得られた理論の正当性を確認するため、光物性分野で典型的な半導体と見做されているGaAsに着目した高次高調波発生の実験を行った。そして得られた非摂動的な領域における

高次高調波の実験結果と、(1)で得られた物理的見解や描像を比較することで、研究代表者が示した理論の正当性についての議論を行なった。

(3) せん断応力を印加したGaAsから発生する高次高調波の理論構築と制御方法の提案

(1)、(2)で得られた本理論の知見を基礎として、せん断応力を印加したGaAsから発生する高次高調波の理論モデルを構築した。本モデルを用いた数値計算を実行することにより、せん断応力がGaAsにどのような影響を与えるかということを議論にすると共に、これまで原子分子気体の分野には存在しない新たな高次高調波発生の制御方法を提示した。

4. 研究成果

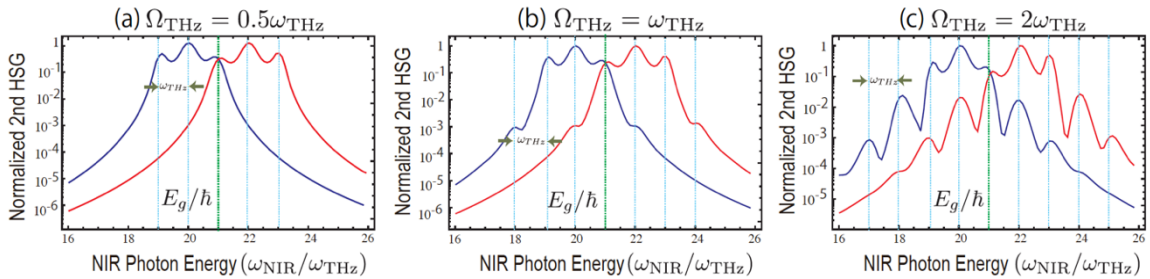


図1: ± 2 次のサイドバンド強度の NIR 光周波数依存性を示したものの。図(a)-(c)はそれぞれ異なる THz 光強度に対応している。本計算においてバンドギャップエネルギーは $E_g = 21\hbar\omega_{\text{THz}}$ とした。

(1) THz光とNIR光の同時照射により発生する高次のサイドバンド生成の理論的研究

弱強度のNIR光と高強度のTHz光によって生じる高次のサイドバンドスペクトルの強度は、THz光の強度とNIR光の周波数に依存して変化することが予想される。図1に ± 2 次のサイドバンドスペクトルの強度が、NIR光の周波数に対しどのように変化するかを示した。図1(a)-(c)はTHz光の強度がそれぞれ $\Omega_R = 0.5\omega_{\text{THz}}$, $\Omega_R = \omega_{\text{THz}}$, $\Omega_R = 2\omega_{\text{THz}}$ のときを示しており、青線と赤線は ± 2 次のサイドバンドの強度に対応している。これらの図からTHz光の強度が大きくなるにつれ、NIR光周波数に対する ± 2 次のサイドバンド強度は、 ω_{THz} の整数倍の周波数でバンドギャップエネルギー $E_g = 21\hbar\omega_{\text{THz}}$ の近傍に新たなピークを示すようになることが分かる。理論解析の結果、これらのピークは、図2(a)に示すように「時間と共に変化するバンド構造」の概念から生じているフロック・サブバンドであることが分かった。加えて価電子帯から k 番目のサブバンドへの遷移確率はベッセル関数 $J_k(\Omega_{\text{THz}}/\omega_{\text{THz}})$ で見積もれることも分かった。実際、図2(a)の(A)-(C)に示すようにNIR光の周波数を調節することによって-1~-3次のサブバンドに共鳴させた際の2次のサイドバンドの強度は、

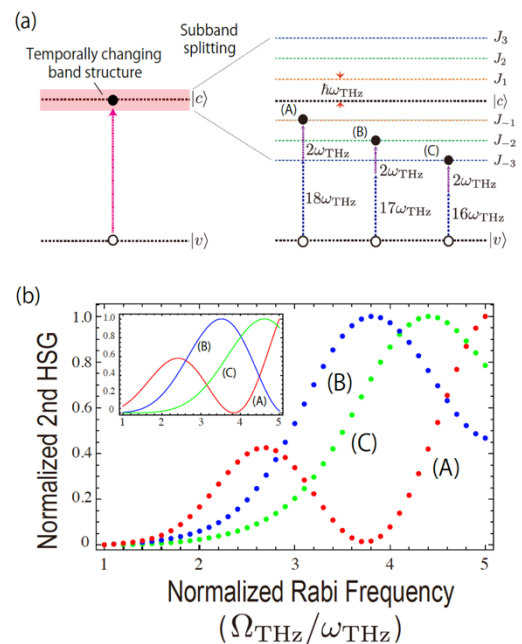


図2: (a) 時間と共に変化するバンド構造から生じるフロック・サブバンド準位を図示したもの。(b)-1~-3次のフロック・サブバンドに共鳴させた際の(図2(a)の(A)-(C))、THz光強度に対する2次のサイドバンドスペクトルの強度を示したものの。

THz光強度に対しベッセル関数の性質を反映した非単調な振動構造を示すことが確認できた(図2(b))。これらの高次のサイドバンド生成の性質は、従来の3ステップ模型で説明することは困難である。さらに研究代表者は、このフロッケ・サブバンド描像を用いて高次高調波発生におけるプラトー形成機構を説明すると共に、他の高強度光物理現象との関係性を明らかにした。これらの成果はPhys. Rev. B **100**, 081203(R) (2019)に掲載された。

(2) GaAsにおける高次高調波発生の理論構築及び実験結果との比較

(1)の研究で研究代表者は、固体における高次高調波の発生機構はフロッケ・サブバンド描像に基づいて理解できることを示した。そして価電子帯から k 番目のサブバンドへの遷移確率は、入射光強度と周波数の比を引数とするベッセル関数で表現されることも証明した。以上の考察が正しければ、固体から発生する高次高調波発生の励起光強度依存性には、非摂動論的な領域において非単調な振動構造が出現するはずである。具体的には、固体から発生する第 n 次の高次高調波の励起光強度依存性は、摂動論的な領域では外場強度の冪乗則($I \propto E_0^{2n}$)に従うのに対し、非摂動論的な領域では非単調な振動構造を示すことが期待される。以上の考察に従い、研究代表者は、典型的な半導体と知られているGaAsに着目し、そこから発生する高次高調波の励起光強度依存性について理論と実験、両側面から比較・考察するというを行った。実験は図3(a)に示したように反射光配置を用いて行った。反射光配置を用いた実験では、透過光配置を用いた実験と比較して物質中の光伝搬効果が抑制されるため、より正確に高次高調波の励起光強度依存性を測定することができる。光の偏向軸はGaAsの(110)方向とした(図3(b))。図3(c)と(d)に得られた高次高調波スペクトルを示す。GaAsから発生する高次高調波は基本奇数次のみであることが確認できた。

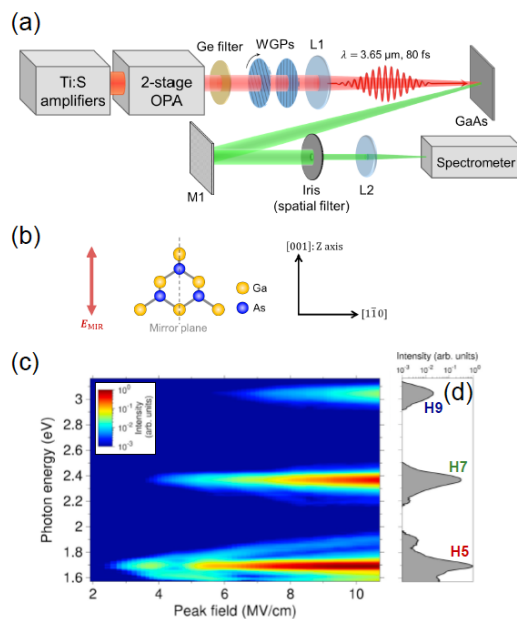


図3: (a) 反射光配置を用いた高次高調波発生の実験図。(b) GaAsの(110)方向の模式図と入射光の偏向軸を示したもの。(c) 5次、7次、9次の高次高調波スペクトルの励起光強度依存性 (d) 励起光強度が10MV/cmのときの高次高調波スペクトル

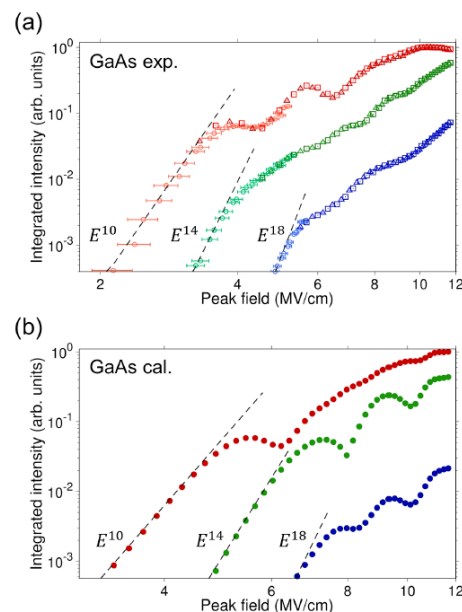


図4: GaAsから発生した高次高調波の入射光強度依存性の(a)実験及び(b)理論結果の図。赤線、青線、緑線はそれぞれ5次、7次、9次の高次高調波に対応している。

図4(a)にGaAsから発生する5次、7次、9次の高次高調波の励起強度依存性を示す。赤線、緑線、青線はそれぞれ5次、7次、9次の高次高調波に対応している。この図を見ると当初の予想通り、第 n 次の高次高調波の励起強度依存性は、摂動論的な領域では外場強度の冪乗則($I \propto E_0^{2n}$)に従う一方、非摂動論的な領域では非単調な振動構造を示すことが確認できた。これらの傾向を確認するために、研究代表者はLuttinger-Kohn模型を用いた非線形光学応答理論を構築し、高次高調波の励起強度依存性を計算した。その結果、実験と同様の高次高調波の励起強度依存性が得られた(図4(b))。これらの振動構造は高次高調波に特有のものではなく、動的フランツ・ケルディッシュ効果やトンネル効果の凍結、超閾電離の現象にも普遍的に見られるものであり、従来の3ステップ模型で説明するのは困難なものである。以上のように研究代表者は、理論と実験の比較により、非線形光学の摂動論から非摂動論へのクロスオーバーを理解することに成功した。これらの成果はPhys. Rev. B **104**, L121202 (2021)に掲載された。

(3) せん断応力を印加したGaAsから発生する高次高調波の理論構築と制御方法の提案

これまでの研究で研究代表者は、原子分子気体を用いた高次高調波発生と固体を用いた高次高調波発生は統一的な視点から理解可能であることを示してきた。具体的には気体と固体双方から発生する高次高調波は非線形光学という一つの物理体系に基いて理解できるということを証明してきた。これら2つ系における高次高調波は同一の発生機構に起因しているため、偏光ゲート法を初めとする光制御方法が有効であると期待される。しかしながら固体には気体には存在しない操作性が存在しており、これらの操作性に対し高次高調波の性質を考察することで、気体では不可能であった新たな応用の可能性が生じる。この考え方に基いて研究代表者は、(2)で構築した理論を拡張し、せん断応力を印加したGaAsにおける高次高調波発生を理論を構築した。数値計算を実行した結果、直線偏光の光によって生じる高次高調波の偏光軸はせん断応力によって回転することが分かった(図5(a))。この結果は、せん断応力を印加した物質に右周りと左周りの異なる楕円偏光の光を入射させると、それぞれ性質が異なる高次高調波を放出するというを示唆する(図5(b))。実際、右周りと左周りの楕円偏光を照射した、せん断応力下のGaAsから発生する高次高調波を数値計算を用いて考察したところ、予想通り、それぞれで異なる性質(相反性)をもつ高周波光が確認できた。これらせん断応力による高次高調波の制御は気体には存在しない固体特有の物理であり、今後の更なる考察が必要であると考えられる。これらの成果はPhys. Rev. B **103**, 205202 (2021)に掲載された。

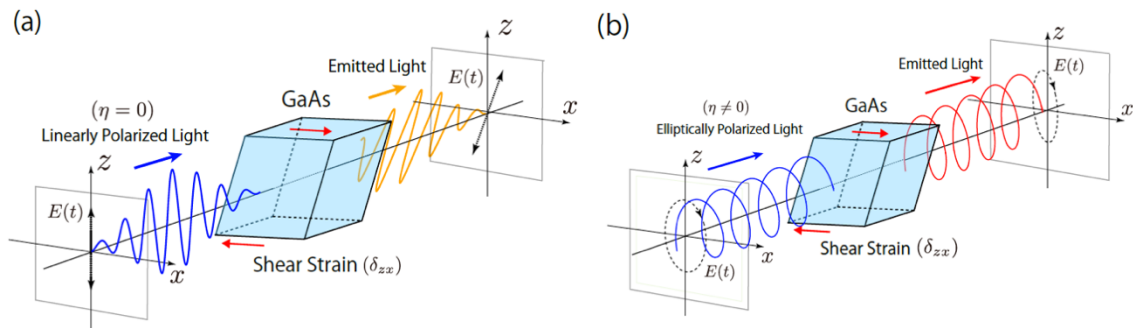


図5: (a) せん断応力を印加した直線偏光励起下の GaAs から発生する高次高調波の模式図。得られる高次高調波の偏光軸はせん断応力により回転する。(b) せん断応力を印加した楕円偏光励起下の GaAs から発生する高次高調波の模式図。得られる高次高調波は、右周りと左周りの楕円偏光の光に対し異なる応答(相反性)を示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Toimohiro Tamaya and Takeo Kato	4. 巻 103
2. 論文標題 Piezo-optic effect of high-harmonic generation in semiconductors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205202(10)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.205202	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 Tomohiro Tamaya and Takeo Kato	4. 巻 100
2. 論文標題 Subband picture of high-harmonic generation in solids	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 81203
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.081203	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 P. Xia, T. Tamaya, C. Kim, F. Lu, T. Kanai, N. Ishii, J. Itatani, H. Akiyama, and T. Kato	4. 巻 104
2. 論文標題 High-harmonic generation in GaAs beyond the perturbative regime	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L121202
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.L121202	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 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 玉谷知裕, 加藤岳生
2. 発表標題 せん断応力を印加したグラフェンから発生する高次高調波の特性について
3. 学会等名 日本物理学会春季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 玉谷知裕, 夏沛宇, Faming Lu, 金井輝人, 石井順久, 板谷治郎, 金昌秀, 秋山英文, 加藤岳生
2. 発表標題 GaAsを用いた非摂動論的な領域における 高次高調波の特性について
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 玉谷知裕, 加藤岳生
2. 発表標題 GaAsの高次高調波におけるピエゾ光学効果
3. 学会等名 日本物理学会春季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 玉谷知裕, 加藤岳生
2. 発表標題 サブバンド描像に基づいた固体における高次高調波の発生機構
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 玉谷知裕, 夏沛宇, Faming Lu, 金井輝人, 石井順久, 板谷治郎, 金昌秀, 秋山英文, 加藤岳生
2. 発表標題 GaAsにおける反射配置を用いた高次高調波発生の実験結果と理論解析
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 夏沛宇, 玉谷知裕, Faming Lu, 金井輝人、石井順久、金昌秀、秋山英文、加藤岳生、板谷治郎
2. 発表標題 バルクGaAsにおける反射配置での高次高調波発生の実験と理論解析
3. 学会等名 日本応用物理学会
4. 発表年 2020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

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