

令和 4 年 5 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15198

研究課題名（和文）ワイル半金属における赤外応答光電流ダイナミクスのテラヘルツ放射分光

研究課題名（英文）Terahertz emission spectroscopy of mid-infrared active photocurrent dynamics in Weyl semimetals

研究代表者

五月女 真人（Soutome, Masato）

東京大学・先端科学技術研究センター・特任助教

研究者番号：40783999

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：光吸収に伴って電流が生じる光電流は太陽電池や光検出器などに広く用いられている物理現象である。最近、反転対称性の破れた系では、電子雲がコヒーレントに瞬時に伝搬する「シフト電流」という光電流が、新型太陽電池の基礎になりうると理論が提唱されはじめた。本研究では、フェムト秒パルスレーザー照射による光電流からアンテナ放射される電磁波（テラヘルツ帯）を観測・解析することによって、この量子力学的光電流である「シフト電流」の超高速ダイナミクスやその大きさを評価した。高い光電変換効率が提唱されはじめた物質群を対象に、幅広い励起波長帯でテラヘルツ波発生を観測し、光電流の超高速ダイナミクスを解明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

シフト電流のモデル物質として、化合物半導体CdSにおける励起子共鳴励起でのシフト電流ダイナミクスを観測することに成功した。シフト電流の励起光子エネルギー依存性に励起子共鳴でピークが見られ、その振幅がシフト電流の理論と定量的に一致することを見出した初めての研究である。将来の光電変換デバイス（太陽電池・光検出器など）の基本原理となる現象について電極などの影響を受けずに観測できることを示した。

研究成果の概要（英文）：Photocurrent in semiconductors is widely used in photodetectors and solar cells. Recently, quantum mechanical theory of semiconductors proposed that shift-current, in which the electron cloud propagates coherently instantly, can be the basis of a new type solar cell. In this study, we experimentally evaluated the sub-picosecond dynamics of shift-current and its amplitude by observing terahertz electromagnetic waves emitted from the shift-current. We clarified ultrafast dynamics of photocurrent in a prototypical semiconductor CdS. We measured the excitation photon energy dependence (0.5-2.6 eV) of terahertz emission, and found a peak structure on its exciton resonance.

研究分野：光物性物理学

キーワード：シフト電流 光電流 太陽電池 テラヘルツ 超高速分光 半導体

1. 研究開始当初の背景

光吸収に伴って電流が生じる光電流は太陽電池や光検出器などに広く用いられている物理現象である。そこでは、電子と正孔が粒子として移動するという古典的描像が信じられてきた。しかし最近、電子雲がコヒーレントに瞬時に伝搬する「シフト電流」という光電流の描像が近年の新型太陽電池の基礎であると理論が提唱されはじめた。シフト電流は「瞬時に」単位格子を超えて伝搬する非局在性を持ち、これが高効率性に関連しているという理論が提唱されていた。これまでの研究で我々は、近赤外～可視域(0.5-2.6eV)においてシフト電流感受率を評価する研究を行ってきた。この実験技術を生かすことで、将来の赤外光電変換デバイスでの光電効果の基礎原理となるシフト電流の超高速ダイナミクスを観測できることが期待された。

2. 研究の目的

本研究の目的は、超短パルスレーザー照射による光電流からアンテナ放射される電磁波(テラヘルツ帯)を観測・解析することによって、量子力学的光電流である「シフト電流」の超高速ダイナミクスやその大きさを評価することであった。本研究では、高い光電変換効率が提唱されはじめた物質群で幅広い励起波長帯でシフト電流を観測し、光電変換デバイス応用の端緒を開くことを目指した。

3. 研究の方法

パルス光がシフト電流を生じさせると、この過渡的光電流の時間変化から電磁波が放射される。サブピコ秒のレーザー光を用いた場合には、テラヘルツ帯の電磁波が発生し、これを検出/波形解析することにより、試料中の電流ダイナミクスが再現できる。本研究では、フェムト秒レーザー照射時の光電流から結晶外に放射されるテラヘルツ波を観測する。テラヘルツ波形から結晶内での光電流ダイナミクスを抽出することができ、これを用いて光電流のサブピコ秒ダイナミクスを明らかにすることができる。機械学習アルゴリズムを用いた解析手法により、その光電流の起源やダイナミクスの本質を抽出できる。テラヘルツ放射分光には、回路の影響を受けずに量子力学的光電流の発生効率やダイナミクスを観測できる利点がある[1]。

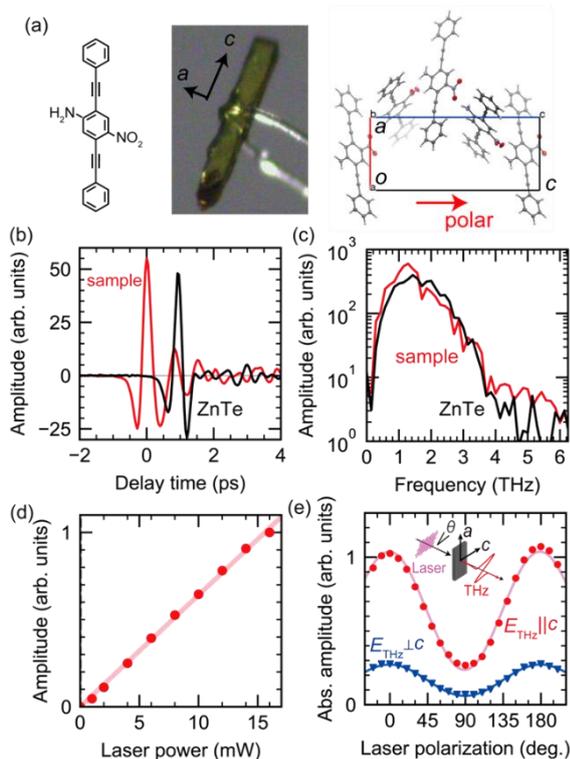


図 1. 4-nitro-2,5-

bis(phenylethynyl)aniline 単結晶からの光整流効果による THz 波発生。(a) 分子構造と結晶構造。長軸方向は約 1mm。厚み 200 μ m。(b) 200 μ m 厚(110)ZnTe との テラヘルツ 波形の比較。(c) 絶対振幅スペクトル。(d) テラヘルツ振幅のレーザーパワー依存性。(e) 入射偏光依存性。[2]

4. 研究成果

中赤外域に分子内・分子間振動モードによる吸収ピークを持つことが多い有機非線形光学結晶を候補物質として幅広い波長帯でテラヘルツ波発生を探索した。吸収のない近赤外光励起で非線形光学効果による高効率なテラヘルツ波発生が見いだした (図 1) [2]。本物質では、吸収帯の波長のレーザーパルス励起でもテラヘルツ波発生が見られ、シフト電流からのテラヘルツ波発生が示唆された。有機分子性結晶の多くは中赤外域には分子振動モードを起源とする光学フォノン吸収があることから、中赤外光吸収による光電流も期待される。

さらに本研究では、2K の低温環境で熱の影響を少なくしながらシフト電流からのテラヘルツ波発生を観測する実験系を構築した。シフト電流のモデル物質として、化合物半導体 CdS における励起子共鳴励起でのシフト電流ダイナミクスを観測することに成功し (図 2)、そのスペクトルがシフト電流の理論と定量的に一致することを見出した (図 3) [3]。

中赤外光 0.2-0.5eV のフェムト秒パルスは光学材料での吸収・回折などの影響で特殊な光学系が必要であった。本研究では、0.3eV の中赤外パルス励起で反射光の方向に発生するテラヘルツ波を観測するシステムを構築した。ワイル半金属のみならず、中赤外に光吸収を持つ反転対称性の破れた有機・無機結晶では、シフト電流を起源とする光電流の発生が期待される。さらに、強磁性体でかつ強誘電体でもあるマルチフェロイック材料ではバンドギャップ以下の光励起でもシフト電流が生じるという理論も提唱されるなどしている。超高速光電流の研究が未開拓なこの波長帯で、今後も様々な材料で研究を行う計画である。

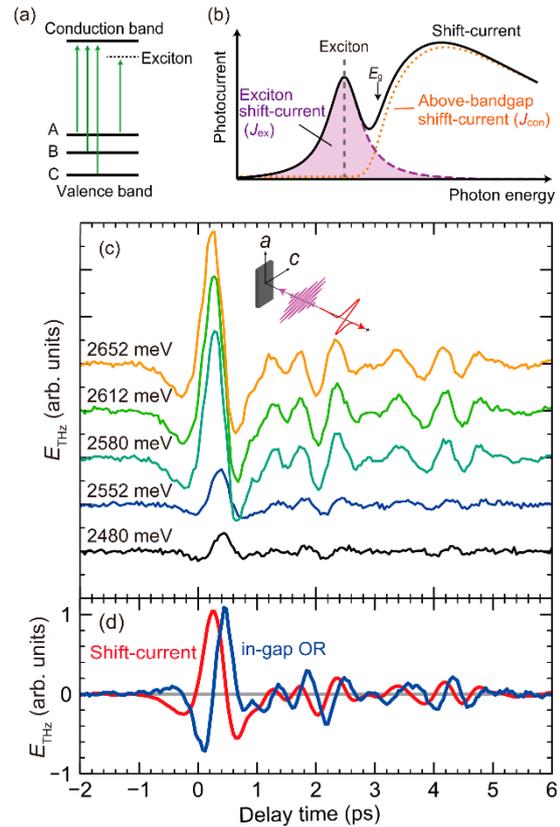


図 2. CdS のバンド構造・励起子のエネルギーバンド構造の模式図。(b) 励起子共鳴でのシフト電流のスペクトルの模式図。(c) CdS(1100) 単結晶、温度 2K で観測されたテラヘルツ波形(レーザー・テラヘルツ波ともにc軸偏光, 見やすくするためオフセットをしてプロット)。テラヘルツ波の波長依存性の因子分析で得られた 2 成分の波形。[3]

[1] 中村 優男, 五月女 真人, 小川 直毅, 川崎 雅司, “空間反転対称性の破れた物質における量子力学的な光起電力「シフト電流」”, 応用物理 90 巻 2 号 p. 98-102 (2021) (査読あり) .

[2] M. Sotome, T. Ogaki, K. Takimiya, and N. Ogawa, “Highly-efficient terahertz emission from hydrogen-bonded single molecular crystal 4-nitro-2, 5-bis(phenylethynyl) aniline”. Optics Express 29, 10048-10058 (2021) (査読あり) .

[3] M. Sotome, M. Nakamura, T. Morimoto, Y. Zhang, G.-Y. Guo, M. Kawasaki, N. Nagaosa, Y. Tokura and N. Ogawa, “Terahertz emission spectroscopy of ultrafast exciton shift-current in non-centrosymmetric semiconductor CdS”, Physical Review B 103, L241111 (2021) (査読あり) .

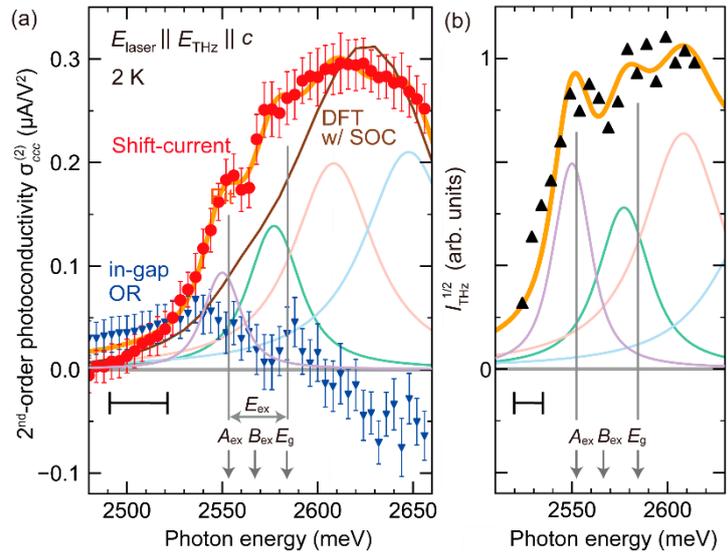


図 3. テラヘルツ波の解析によって得られた CdS でのシフト電流の励起光子エネルギー依存性。(a) 赤点：シフト電流成分、青点：光整流効果成分。A 励起子に共鳴してピークが見られた。バンドギャップ以上ではスピン軌道相互作用(SOC)を含めた第一原理計算(DFT)と定量的に一致した。(b) 励起光を狭帯域にした場合のテラヘルツ振幅。[3]

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 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 中村 優男、五月女 真人、小川 直毅、川崎 雅司	4. 巻 90
2. 論文標題 空間反転対称性の破れた物質における量子力学的な光起電力「シフト電流」	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 応用物理	6. 最初と最後の頁 98 ~ 102
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11470/oubutsu.90.2_98	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 Sotome Masato, Ogaki Takuya, Takimiya Kazuo, Ogawa Naoki	4. 巻 29
2. 論文標題 Highly-efficient terahertz emission from hydrogen-bonded single molecular crystal 4-nitro-2,5-bis(phenylethynyl)aniline	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 10048 ~ 10048
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.418312	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 Sotome M., Nakamura M., Morimoto T., Zhang Y., Guo G.-Y., Kawasaki M., Nagaosa N., Tokura Y., Ogawa N.	4. 巻 103
2. 論文標題 Terahertz emission spectroscopy of ultrafast exciton shift current in the noncentrosymmetric semiconductor CdS	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L241111-
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.L241111	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 該当する

〔学会発表〕 計0件

〔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
---------	---------