

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料  
〔令和5（2023）年度 中間評価用〕

令和5年3月31日現在

研究期間：2021～2025  
課題番号：21H05017  
研究課題名：固体の高強度場光科学の学理構築と物質科学への展開  
研究代表者氏名（ローマ字）：田中 耕一郎（TANAKA Koichiro）  
所属研究機関・部局・職：京都大学・理学研究科・教授  
研究者番号：90212034

研究の概要：

高強度光場と固体物質との相互作用の結果生じる非線型光学現象の学理を明らかにするために、様々な物質系の高次高調波発生の系統的な研究を行う。通常の半導体と全く異なる特性が観測されたモット絶縁体における高次高調波発生のメカニズムを明らかにした。また、励起光の1サイクルの中での電子状態の分布やコヒーレンスを明らかにすることが可能なサブサイクル時間分解分光の開発を進める。

研究分野：光工学および光量子科学関連

キーワード：極端非線形光学、超高速レーザー分光、光物性

1. 研究開始当初の背景

固体における光（電磁波）の非線形応答は、電磁波によって駆動された電流や交流分極が大きな非線形性を持つために生じる。マイクロ波やミリ波の周波数領域では、PN 接合やトンネル接合において伝導帯の電子（価電子帯のホール）がバンド内の電場加速に対して非線形な電流成分を生成（バンド内駆動）することを用いて実現している。一方、可視光のような光学領域では、光励起によりつくられる仮想的なバンド間電子—正孔対が非線形分極を生成（バンド間駆動）することを用いて、高調波発生を実現している（非線形光学）。しかし、上記の2つの周波数領域の間にあるテラヘルツ域（300 GHz ~ 30 THz）から赤外域（30 THz ~ 300 THz）の周波数領域では、どちらの機構が主要な役割を果たすかは全くわかっていなかった。2010 年ごろから固体の高次高調波発生を用いてテラヘルツ帯～赤外域の非線形応答を調べる機運が高まり、多くの研究が報告されてきた。これらの研究から、半導体や絶縁体における高次高調波発生の起源はトンネル過程（Zener-Tunneling）で生成された電子・正孔対であり、発生した高調波の振動数が固体のバンドギャップより低い（高い）場合はバンド内（バンド間）駆動メカニズムが主要な役割を果たすことがわかってきた。

2. 研究の目的

本研究においては、高強度光場と固体物質との相互作用の結果生じる非線型光学現象の学理構築を目指す。特に、通常の半導体での高次高調波発生メカニズムでは説明がつかない高次高調波発生が確認されたモット絶縁体をはじめとする強相関電子系に着目し、高次高調波発生の偏光依存性や波長依存性の研究を系統的に進める。最終的には、高次高調波発生を含む高強度光場を用いた光科学を物質科学のツールとして応用展開することを視野に入れる。

3. 研究の方法

通常の半導体と全く異なる特性が観測されたモット絶縁体における高次高調波発生のメカニズムを明らかにする。そのために、高次高調波発生の偏光依存性や波長依存性の研究を系統的に進める。また、励起光の1サイクルの中での電子状態の分布やコヒーレンスを明らかにすることが可能なサブサイクル時間分解分光やサイドバンド分光を高次高調波発生の条件下で行う。モット絶縁体をはじめとする強相関電子系材料においては、高強度光場下での荷電粒子対生成は通常の半導体のもの（Zener-Tunneling）とは全く異なる可能性があることから、極端な非線形応答を記述する理論構築を同時に進める。また、同じ物質でもキャリアドーピングにより高次高調波発生が変化することから、電荷注入効果について系統的な研究を進める。さらに、通常の絶縁体（半導体）やディラック電子系に対しても同様の実験を行い、個別の物質だけに留まらず、様々な物質系において普遍的な学理構築を目指す。

4. これまでの成果

通常の半導体とは異なる高次高調波発生が観測されたモット絶縁体や電荷秩序絶縁体に関して高次高調波の研究を実験、理論の両面から行なった。また、フロクダイナミクスに関する研究を進めた。

(a)  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$  における高次高調波発生

典型的なモット絶縁体  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$  のギャップエネルギーが室温から低温にすることで2倍以上増大することを利用して、モット絶縁体における高次高調波発生のギャップエネルギー依存性を調べた。モット絶縁体  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$  では高次高調波強度が低温で室温と比べて最大で数百倍増大するという顕著な変化が生じることが分かった（図1）。励起中赤外光エネルギーを変えた実験も組み合わせることで、高調波の温度依存性がギャップと高調波放射エネルギーのみに依存したシンプルな経験則に従うことが分かった。

(b) Mott 絶縁体からの高次高調波発生の理論

上述の  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$  のギャップ増大に伴う指数的な高次高調波強度の増大という特異な振る舞いを説明す

るべく、強相関電子系の標準模型である Hubbard 模型の理論解析を行った。この系では低温で反強磁性秩序が発達し、ギャップが増大する。解析の結果、 $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$  と同様の振る舞いが再現できた。この特性の起源は、強いスピンと電荷の結合であることがわかった。即ち、空間次元 2 以上の系では電荷運動に伴う強いスピン・電荷結合が発達し、高調波発生の起源であるダブロン・ホロンペアのコヒーレンスに強い温度依存性をもたらす。我々の理論は、同様の現象が次元性の高い幅広い強相関系で発現することを示唆し、強相関電子系特有の異なる自由度間の強い相関が高次高調波発生の特異な振る舞いをもたらすことを明示している。理論のさらなる発展に Hubbard 模型を超えた幅広い模型での解析を開始した。

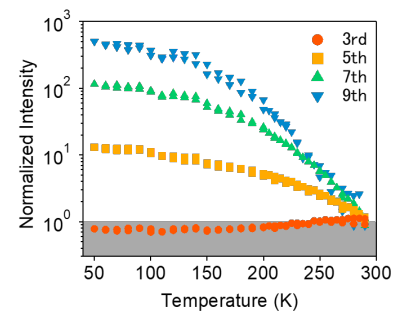


図1  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$  HHG 強度の温度依存性

### (c) 単層 $\text{WSe}_2$ 励起子のフロッケ状態ダイナミクスの観測

高強度な光照射下では、光と物質の相互作用により電子構造が大きく変調されたフロッケ状態と呼ばれる電子状態が誘起される。本研究では、遷移金属ダイカルコゲナイドの一種である単層  $\text{WSe}_2$  において、励起子のフロッケ状態ダイナミクスの観測に成功した。図 2 は単層  $\text{WSe}_2$  に、中赤外光照射した際に観測される高次高調波スペクトルである。通常観測される入力光子エネルギーの整数倍のエネルギーの放射に加えて、励起子共鳴 (1.65 eV) でもコヒーレントな放射が観測された。数値計算からこの励起子共鳴からの放射は、パルス励起によって励起子共鳴に巨大なエネルギー構造の時間的な変化がおき、それによって異なるフロッケ状態への非断熱的な遷移と、断熱的な時間発展が起きていることが分かった。この結果は、固体におけるフロッケ状態ダイナミクスをはじめ実験的に明らかにしたものである。

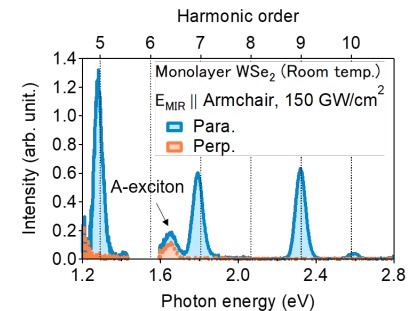


図2 単層  $\text{WSe}_2$  の高次高調波スペクトル。

## 5. 今後の計画

長距離クーロン力によって価数が秩序化する電荷秩序絶縁体や励起子絶縁体候補物質  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  や第 II 種ワイル半金属である  $\text{Td-WTe}_2$  において高強度赤外光励起下での極端非線形光学現象を探索する。特に、高調波発生やサイドバンド生成などの実験を進め、高強度光励起下での電子系の応答に関する知見を得る。また、光の 1 サイクル内でどのような電子状態の変化が起きているかを調べる分光手法の開拓を行い、それを極端非線形光学現象の解明に提供する。また、半導体(6,5)型 SWCNT、 $\text{MoS}_2$ 、 $\text{WS}_2$  といった系統的にバンドギャップが異なる試料に対して、その高次高調波のフェルミレベル依存性を解き明かし、高調波発生とバンドギャップ構造・フェルミレベルとの関係を解き明かす。理論的には、一軌道 Hubbard 模型では記述できない軌道自由度や秩序相の影響の重要性が示唆されている。一軌道 Hubbard 模型を超えた模型を解析し、様々な秩序相からの高次高調波発生の特性を明らかにすることで、強相関電子系からの高次高調波発生の普遍的な理解を目指す。

最終的に、個別の物質だけに留まらず、様々な物質系に適用可能な高強度光場と物質との相互作用に関する学理の構築を目指す。

## 6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

1. [Yuta Murakami](#), Kento Uchida, Akihisa Koga, [Koichiro Tanaka](#), and Philipp Werner, “Anomalous Temperature Dependence of High-Harmonic Generation in Mott Insulators”, *Phys. Rev. Lett.* **129**, 15740 (2022). 査読有
2. K. Uchida, G. Mattoni, S. Yonezawa, F. Nakamura Y. Maeno, [K. Tanaka](#) "High-order harmonic generation and its unconventional scaling law in the Mott-insulating  $\text{Ca}_2\text{RuO}_4$ ", *Phys. Rev. Lett.* **128**, 127401 (2022). 査読有
3. Ryota Aoki, Kento Uchida, and [Koichiro Tanaka](#) "Excitation polarization-independent photo-induced restoration of inversion symmetry in  $\text{Td-WTe}_2$ ", *AIP Advances* **12**, 045309 (2022). 査読有
4. Kento Uchida, Satoshi Kusaba, Kohei Nagai, Tatsuhiko N. Ikeda, [Koichiro Tanaka](#) "Diabatic and adiabatic transitions between Floquet states imprinted in coherent exciton emission in monolayer  $\text{WSe}_2$ ", *Sci. Adv.* **8**, eabq7281 (2022). 査読有
5. [Yuta Murakami](#), Michael Schüler, “Doping and gap size dependence of high-harmonic generation in graphene: Importance of consistent formulation of light-matter coupling” *Phys. Rev. B* **106**, 035204 (2022). 査読有

## 7. ホームページ等

1. <https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research-news/2022-03-28>
2. <https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research-news/2022-12-28-0>