

令和 5 年 5 月 22 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K13858

研究課題名（和文）空間反転対称性の破れたワイル半金属における非線形テラヘルツ応答の解明

研究課題名（英文）Study of nonlinear terahertz response in Weyl semimetals with broken inversion symmetry

研究代表者

松田 拓也（Matsuda, Takuya）

東京大学・物性研究所・特別研究員

研究者番号：30881239

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：空間反転対称性の破れたワイル半金属はその非相反性に由来して2次の非線形相互作用が現れる。これまではdcあるいはエネルギーの高い光（0.1～1 eV）によって電磁応答が調べられてきており、そのギャップを埋めるテラヘルツ分光がフェルミ面近傍の応答を探るという点で重要である。本研究ではワイル半金属Td-WTe<sub>2</sub>におけるテラヘルツ帯の電磁応答を調べた。室温で第2高調波および第3高調波発生の観測に初めて成功した。また、テラヘルツ帯の室温非線形ホール効果の寄与は十分小さいことがわかった。さらに、Td-WTe<sub>2</sub>のような微小試料のテラヘルツ応答の計測を可能にするオンチップテラヘルツ分光計測技術を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では空間反転対称性の破れたワイル半金属のテラヘルツ応答を調べたが、特に室温で高効率な第2および第3高調波発生を観測したことは、基礎物理学的側面のほかテラヘルツ周波数変換素子などの高速エレクトロニクス応用においても重要であると考えられる。また、オンチップテラヘルツ分光計測技術開発を進めたことは、従来のテラヘルツ分光測定ではなしえない剥片試料にも適用できるため、今後、様々な物質の低エネルギー応答の理解が進むことが期待される。

研究成果の概要（英文）：Weyl semimetals with broken inversion symmetry exhibit a second-order nonlinear interaction owing to its nonreciprocity. So far, the electromagnetic response has been investigated by dc or high-frequency light (0.1-1 eV), and terahertz spectroscopy, which fills the gap between dc and high-frequency light, is very important in that it explores the response near the Fermi surface.

In this study, we investigated the electromagnetic response of the Weyl semimetal Td-WTe<sub>2</sub> in the terahertz frequency. We have successfully observed the second and third harmonic generation at room temperature for the first time. We also found that the contribution of the room-temperature nonlinear Hall effect in the terahertz frequency is sufficiently small. Furthermore, we developed on-chip terahertz spectroscopy measurement system which enables the measurement of the terahertz response of tiny or flake samples such as Td-WTe<sub>2</sub>.

研究分野：光物性

キーワード：テラヘルツ ワイル半金属 非線形応答

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

固体中の電子に対して幾何学的な位相に起因したベリー曲率が作用して興味深い応答を示すことは、**80** 年代の量子ホール状態の研究を契機として物性物理学に多大な影響を及ぼしたが、近年ではトポロジカル絶縁体やトポロジカル半金属の発見とともに、ベリー曲率に由来した電磁応答が一層大きな注目を集めている。トポロジカル半金属の中でもカイラリティを持ったワイル点ペアになって現れるワイル半金属は、時間反転あるいは空間反転対称性の破れによってその性質が保護されており、その特異なバンド構造が外部擾乱に対して極めて強靱であるという点で非常に興味深い物質系である。そのうち時間反転対称性の破れたワイル半金属は磁化によらないベリー曲率に由来した巨大異常ネルンスト効果や反強磁性体における巨大異常ホール効果などを示すため、基礎から応用を見据えた研究まで盛んに行われている。一方、空間反転対称性の破れたワイル半金属の大きな特徴は、その非相反性に由来して2次の非線形相互作用が現れることであり、特にその応答の巨大さが大きな注目を集めている。これまで中赤外から近赤外の光を用いた研究がなされてきたが、この高いエネルギー帯 (**0.1–1 eV**) ではワイル点という線形のエネルギー分散が現れることとの直接的な関係性がないと考えられ、またフェルミ面近傍のワイル点ではベリー曲率が発散的に大きくなる。そのため、このトポロジカルな性質と電磁応答の関係を探るためには、テラヘルツ分光によって **meV** の低エネルギー応答を調べることが重要である。また申請当時、空間反転対称性の破れたワイル半金属におけるテラヘルツ非線形応答に関する研究例は存在せず全くの未解明であった。

### 2. 研究の目的

本研究では空間反転対称性の破れたワイル半金属のテラヘルツ非線形応答の解明を目的とする。研究対象物質は、異方性が強く高い易動度を有する遷移金属ダイカルコゲナイト **Td-WTe<sub>2</sub>** を用いる。これまでに **Td-WTe<sub>2</sub>** のテラヘルツ帯 (特に **1 THz** 以下) の線形応答も十分に明らかになっていなかったため、テラヘルツ線形応答を室温から低温まで調べる。**Td-WTe<sub>2</sub>** の厚みを機械剥離で薄くするとそれに伴い試料面積も小さくなってしまうため、テラヘルツ電磁波による分光測定が難しくなる。そこで、回折限界で律速されない電流ベースのオンチップテラヘルツ分光計測の技術開発を、テラヘルツ電磁波を用いた分光測定による応答解明と並行して進める。

### 3. 研究の方法

テラヘルツ非線形応答を調べるために、中心周波数 **1 THz** で電場尖頭値 **500 kV/cm** を超える高強度テラヘルツ波パルス光源を整備する。テラヘルツ高調波測定を行うため、試料に入射するテラヘルツ波パルスをバンドパスフィルターで狭帯域化する。非線形応答の結晶方位依存性を調べるために、偏光分解非線形テラヘルツ分光計測系を構築する。**Td-WTe<sub>2</sub>** に対してテラヘルツ透過測定を行うために試料を機械剥離で薄くし、厚みは白色干渉計を用いて評価する。オンチップテラヘルツ分光計測の技術開発については、試料に強いテラヘルツ電流を流すことができる回路構造の設計を、**FDTD** 法による電磁界解析によって行う。設計した構造をもとに **LT-GaAs** 基板上に金電極を蒸着するほか、テラヘルツ電流の発生・検出のために基板上に光伝導スイッチを発生と検出それぞれの箇所で作製する。光伝導スイッチにフェムト秒レーザーパルスを照射することで生じたテラヘルツ高速電流は電極を伝搬して検出用の光伝導スイッチに到達する。検出用の光伝導スイッチはプローブ光パルスが当たっている瞬間のみ **LT-GaAs** が良導体になるため、発生した光電流とプローブ光パルスのタイミングが重なっているときだけ電流計に信号が流れる。これは従来のテラヘルツ電磁波を用いたテラヘルツ時間領域分光法を発展させたものであり、本研究では **10 mm** 角程の基板上で分光測定が可能な技術を開発する。

### 4. 研究成果

#### (1) ワイル半金属 **WTe<sub>2</sub>** におけるテラヘルツ線形応答の温度依存性

厚み **1.5 μm** の均一なエリア (**500 μm** 角程) の大面積 **Td-WTe<sub>2</sub>** 試料作製に成功した。その試料を用いてテラヘルツ線形透過測定を行ったところ、**b** 軸と入射電場が平行方向のテラヘルツ応答は室温から **50 K** まで **Drude** モデルで説明でき、温度減少とともに伝導度の増加が見られ、典型的な金属的振る舞いを示すことがわかった。一方、**a** 軸と入射電場が平行方向のテラヘルツ応答については、室温で伝導度スペクトル実部において **~0.8 THz** にピークが見られることがわかった。先行研究の第一原理計算では **0.86 THz** に赤外活性フォノンが存在することが示されており、本研究で捉えた伝導度スペクトル実部のピークはフォノン吸収によることが考えられる。また、温度を冷やしていくと、そのピークの線幅が細くなる振る舞いを示したこともフォノンによる吸収であることを支持する結果である。室温から **160 K** ほどまでの伝導度スペクトルはフォノン吸収による **Lorentz** モデルと **Drude** モデルの2成分で説明できることがわかったが、**150 K** より低温では吸収ピークは残るものの、**Drude** モデルによる解析では説明できない特異なスペクトルを示すことがわかり、この原因の1つに **Lifshitz** 転移の影響が考えられる。また、室温

に絞ってエネルギー透過率の厚み依存性を調べたところ、厚み方向に対して均一ではないバルクと表面で異なるテラヘルツ帯応答関数を有することを示唆する結果を得た。

### (2) ワイル半金属 **WTe<sub>2</sub>** における室温テラヘルツ非線形応答の観測

高調波発生を観測を通して非線形応答を調べた。高強度テラヘルツ波を微小剥片 **Td-WTe<sub>2</sub>** に照射し試料から透過したテラヘルツ波を計測したところ、室温で第 2 高調波および第 3 高調波発生を観測に初めて成功した。また、試料の厚みが高調波発生に与える影響について調べたところ、第 3 高調波は数  $\mu\text{m}$  という比較的厚い試料においても高効率に発生することが明らかとなった。次に 2 次のテラヘルツ非線形応答の結晶方位依存性を調べた。**Td-WTe<sub>2</sub>** の対称性から表面では **ab** 面内で 2 次の非線形応答を示すことが知られており、「入射偏光 || **b** 軸、放射偏光 || **b** 軸」のほか「入射偏光 || **a** 軸、放射偏光 || **b** 軸」も許される。後者は特に非線形ホール効果と呼ばれ近年注目を集めている。本実験から「入射偏光 || **b** 軸、放射偏光 || **b** 軸」における第 2 高調波発生を観測したが、「入射偏光 || **a** 軸、放射偏光 || **b** 軸」における第 2 高調波発生は我々の測定系の範囲では観測されなかった。このことから、テラヘルツ帯の非線形ホール効果は室温では十分小さいと考えられる。

### (3) 電流ベースのオンチップテラヘルツ分光計測の技術開発

試料を配置する場所で電流密度が高くなり、また、流れる電流の反射ロスをなるべく抑えた導波路構造の設計を、**FDTD** 法による電磁界解析を用いて行った。次に、**LT-GaAs** 基板に金を蒸着し電極と光伝導スイッチを作製した。中心波長 **1030 nm**、パルス幅 **160 fs**、繰り返し **200 kHz**、パルスエネルギーが **30  $\mu\text{J}$**  のフェムト秒再生増幅器レーザーの 2 倍波 (**515 nm**) を用いて、作製したオンチップテラヘルツ分光計測システムの動作確認を行った。その結果、パルス幅が **30 ps** を切るテラヘルツ電流の発生・検出に成功した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4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 Murotani Yuta, Kanda Natsuki, Ikeda Tatsuhiko N., Matsuda Takuya, Goyal Manik, Yoshinobu Jun, Kobayashi Yohei, Stemmer Susanne, Matsunaga Ryusuke	4. 巻 129
2. 論文標題 Stimulated Rayleigh Scattering Enhanced by a Longitudinal Plasma Mode in a Periodically Driven Dirac Semimetal Cd3As2	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.129.207402	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 Matsuda Takuya, Higo Tomoya, Koretsune Takashi, Kanda Natsuki, Hirai Yoshua, Peng Hanyi, Matsuo Takumi, Yoshikawa Naotaka, Shimano Ryo, Nakatsuji Satoru, Matsunaga Ryusuke	4. 巻 130
2. 論文標題 Ultrafast Dynamics of Intrinsic Anomalous Hall Effect in the Topological Antiferromagnet Mn3Sn	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.130.126302	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18件（うち招待講演 4件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 松永隆佑, 神田夏輝, 松田拓也
2. 発表標題 トポロジカル半金属を用いたテラヘルツ高速エレクトロニクス・スピントロニクス
3. 学会等名 令和3年度テラヘルツ応用システム研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ryusuke Matsunaga, Natsuki Kanda, Yuta Murotani, and Takuya Matsuda
2. 発表標題 Terahertz and multiterahertz nonlinear responses in 3D Dirac semimetal Cd3As2
3. 学会等名 9th Russia-Japan-USA-Europe Symposium on Fundamental & Applied Problems of Terahertz Devices & Technologies（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ryusuke Matsunaga, Natsuki Kanda, Yuta Murotani, and Takuya Matsuda
2. 発表標題 Nonequilibrium dynamics of broadband response functions in Dirac semimetal Cd <sub>3</sub> As <sub>2</sub> studied by multiterahertz spectroscopy
3. 学会等名 VIII Ultrafast Dynamics and Ultrafast Bandgap Photonics (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松永隆佑, 神田夏輝, 松田拓也, 室谷悠太
2. 発表標題 3次元トポロジカル半金属によるテラヘルツ高速エレクトロニクス・スピントロニクス
3. 学会等名 シンポジウム「テラヘルツ科学の最先端VIII」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 室谷悠太, 神田夏輝, 池田達彦, 松田拓也, Manik Goyal, 吉信淳, 小林洋平, Susanne Stemmer, 松永隆佑
2. 発表標題 テラヘルツ駆動されたディラック半金属Cd <sub>3</sub> As <sub>2</sub> における誘導レイリー散乱と室温無散逸スローライト生成
3. 学会等名 シンポジウム「テラヘルツ科学の最先端VIII」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shunsuke Tanaka, Tomohiro Fujimoto, Yuta Murotani, Takuya Matsuda, Natsuki Kanda, Ryusuke Matsunaga, and Jun Yoshinobu
2. 発表標題 Surface electron dynamics on clean and chemisorbed Pt(111) surfaces studied by terahertz-field-induced second harmonic light
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松田拓也, 神田夏輝, 肥後友也, 是常隆, 中辻知, 松永隆佑
2. 発表標題 ワイル反強磁性金属Mn <sub>3</sub> Sn薄膜における異常ホール伝導度の光励起ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 室谷悠太, 神田夏輝, 池田達彦, 松田拓也, Manik Goyal, 吉信淳, 小林洋平, Susanne Stemmer, 松永隆佑
2. 発表標題 周期的光電場に駆動されたディラック半金属における誘導レイリー散乱とスローライト生成
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 神田夏輝, 室谷悠太, 松田拓也, Manik Goyal, 吉信淳, 小林洋平, Susanne Stemmer, 松永隆佑
2. 発表標題 3次元ディラック半金属Cd <sub>3</sub> As <sub>2</sub> 薄膜における円偏光誘起異常ホール効果の観測
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Natsuki Kanda, Yuta Murotani, Tatsuhiko N. Ikeda, Takuya Matsuda, Manik Goyal, Jun Yoshinobu, Yohei Kobayashi, Susanne Stemmer, and Ryusuke Matsunaga
2. 発表標題 Ultrafast dynamics of a photoexcited and periodically-driven Dirac semimetal Cd <sub>3</sub> As <sub>2</sub> studied by multiterahertz time-domain spectroscopy
3. 学会等名 CLEO 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松永隆佑、松田拓也
2. 発表標題 トポロジカルWeyl反強磁性体Mn <sub>3</sub> Snにおけるテラヘルツ高速スピントロニクス
3. 学会等名 電気学会調査専門委員会第11回「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」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松田拓也, 肥後友也, 是常隆, 神田夏輝, 平井誉主在, Hanyi Peng, 松尾拓海, 吉川尚孝, 島野亮, 中辻知, 松永隆佑
2. 発表標題 ワイル反強磁性金属Mn <sub>3</sub> Snにおける高密度励起による有効質量の軽いキャリアの出現
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 室谷悠太, 神田夏輝, 岡隆史, 松田拓也, Manik Goyal, 吉信淳, 小林洋平, Susanne Stemmer, 松永隆佑
2. 発表標題 三次元ディラック半金属Cd <sub>3</sub> As <sub>2</sub> における円偏光誘起異常ホール効果とその起源
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松田拓也, 肥後友也, 是常隆, 神田夏輝, 平井誉主在, Hanyi Peng, 松尾拓海, 吉川尚孝, 島野亮, 中辻知, 松永隆佑ける巨大異常ホール効果の超高速非平衡ダイナミクス”、
2. 発表標題 ワイル反強磁性体Mn <sub>3</sub> Snにおける巨大異常ホール効果の超高速非平衡ダイナミクス
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takuya Matsuda
2. 発表標題 Extreme nonequilibrium states in strongly-correlated Weyl antiferromagnet studied by terahertz spectroscopy
3. 学会等名 2nd International Symposium on Trans-Scale Quantum Science
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松田拓也, 肥後友也, 是常隆, 神田夏輝, 平井誉主在, Hanyi Peng, 松尾拓海, 吉川尚孝, 島野亮, 中辻知, 松永隆佑
2. 発表標題 高密度励起したワイル反強磁性体Mn <sub>3</sub> Snにおける有効質量の軽いキャリアの出現
3. 学会等名 第33回光物性研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田中宏明, A. V. Telegin, Yu. P. Sukhorukov, V. A. Golyashov, O. E. Tereshchenko, A. N. Lavrov, 松田拓也, 松永隆佑, 明石遼介, M. Lippmaa, 新井陽介, 室隆桂之, 出田真一郎, 田中清尚, 近藤猛, 黒田健太
2. 発表標題 SX-ARPES で調べる強磁性スピネル HgCr <sub>2</sub> Se <sub>4</sub> の半導体的電子状態
3. 学会等名 第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 亀山理紗子, 田中駿介, 松田拓也, 室谷悠太, 神田夏輝, 松永隆佑, 吉信淳
2. 発表標題 2色レーザー誘起エアプラズマにより発生したTHzパルスを用いた振動和周波発生分光法
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年



〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<https://matsunaga.issp.u-tokyo.ac.jp/publications>

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