

令和 6 年 5 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18684

研究課題名（和文）フォノン励起を用いた高効率テラヘルツ光起電力効果の実現

研究課題名（英文）Efficient terahertz photovoltaic effect by phonon excitation

研究代表者

岡村 嘉大（Yoshihiro, Okamura）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・助教

研究者番号：20804735

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、物質のトポロジカルな性質を活用することで、バンド間遷移を介さない、フォノン励起に由来した光起電力効果の観測を目指す。これまで光電流生成にはバンド間遷移が必要であると考えられてきたが、低エネルギー励起でも電子励起との相互作用を媒介することで光起電力効果が発現する可能性がある。実際に典型的な強誘電体として知られるBaTiO<sub>3</sub>やSbSIにおけるソフトフォノンをテラヘルツ光励起することで光電流の観測に成功した。さらには、光起電力効果のモード依存性・スペクトル応答・性能指数・第一原理計算との比較など、多角的な観点から学理構築を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

テラヘルツ波は、次世代通信や車載レーダーなどにも応用が期待され、今回のテラヘルツ領域の光起電力効果は、検出器への応用として非常に大きな需要がある。この帯域の検出器はボロメータと呼ばれる熱感知型のものが一般に使われているが、液体ヘリウムによって冷却し熱雑音を取り除く必要があるのに加え、応答速度も非常に遅いという問題点がある。その点、今回の方法は冷却を必要とせず、応答速度もピコ秒にも到達しうる非常に短いものになる。またフォノンに注目したが、電気分極とカップルする素励起に対してこのアイデアが適用できる可能性が示唆され、基礎科学・応用の両面から重要な現象を明らかにできた。

研究成果の概要（英文）：By taking advantage of the topological properties of materials, we aim to observe the bulk photovoltaic effects through the phonon excitations in ferroelectric materials. Although it has been believed that interband transitions are indispensable for photocurrent generation, photovoltaic effects may occur even with low-energy excitations, mediated by interactions with electronic excitations. In fact, we have successfully observed photocurrent by terahertz photoexcitation of soft phonons in BaTiO<sub>3</sub> and SbSI, which are known as typical ferroelectrics. We have discussed the photovoltaic effect from multiple perspectives, including mode dependence, spectral response, performance index, and comparison with first-principles calculations.

研究分野：光物性物理

キーワード：光起電力効果 テラヘルツ光 トポロジ

### 1. 研究開始当初の背景

光起電力効果は、光エネルギーを電気エネルギーに変換するものであり、太陽光発電など、クリーンエネルギー生成原理として現代科学の最も重要なテーマの一つである。近年では、半導体界面の *p-n* 接合を用いた積層デバイス構造の改良によって、発電効率を改善させる試みがなされているが、一方で強誘電酸化物において巨大な「バルク光起電力効果」が観測され、大きな注目を集めている。このバルク光起電力効果は、照射時に物質から光起電力が生じる効果であり、物質固有の性質を反映し複雑なデバイス構造を必要としないため、新たな原理として用いることができる可能性がある。特にその微視的機構として盛んに研究されているのが、シフト電流機構である。これは、光励起によって実空間における電子分布（波動関数）の重心が「シフト」し、定常的な光電流が流れる機構である（図 1(a)）。波動関数の実空間的シフトは、電子バンドのトポロジカルな量（ベリー接続）と関係するため、シフト電流は高速応答かつ結晶欠陥などに対しても堅牢であるといった利点があり、この機構をベースとした物質設計や物質探索が精力的に行われている。最近では、ワイル半金属などのトポロジカルな物質において巨大なシフト電流が報告され、物質科学の観点からも注目を集めている。

一方で、シフト電流機構を含めて、これまでの光起電力効果の研究では、半導体や絶縁体のバンド間遷移（電子励起）における光電流生成に焦点が当てられ、可視・近赤外領域において研究が行われてきた。一方でテラヘルツ帯を始めとする遠赤外領域は、これらのエネルギースケールから3ケタも低く、光起電力効果を実現するためにはバンドギャップの小さな物質を用いる必要がある（図 1(b)）。そのような物質では、高い伝導度によって必ず大きな熱雑音が伴うため、遠赤外線検出などには非常に不利であった。事実、一般的な遠赤外線検出器は熱感知を原理とするものであり、応答速度が遅い上に、測定精度を担保するにはヘリウム冷却が必要になるという問題があった。

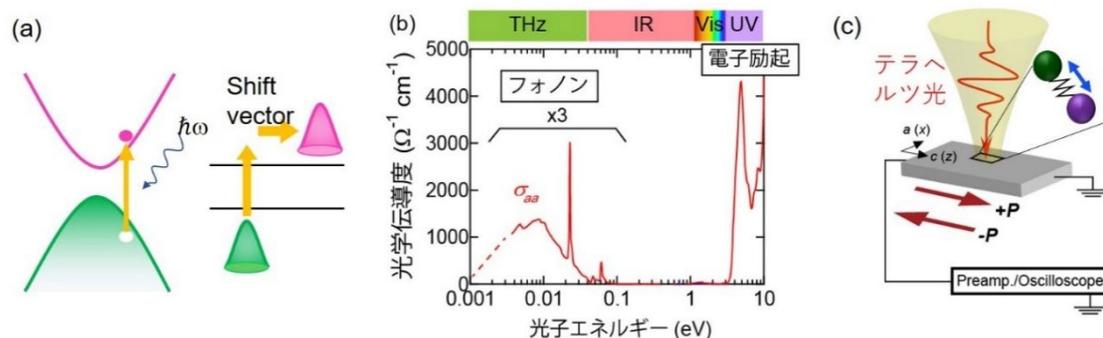


図 1 : (a)シフト電流の概念図。(b)低エネルギー励起と電子励起の関係。例として BaTiO<sub>3</sub> の光学伝導度スペクトルを示した。(c)実験の概念図。

### 2. 研究の目的

本研究では、テラヘルツや遠赤外領域の光起電力効果の実現を目指し、バンド間遷移を起こさない、低エネルギー素励起による光起電力効果の観測を目指した。より具体的には、シフト電流は光励起時の分極変化として直感的には理解できるため、分極変調が可能な素励起についても光電流を生成できる可能性があると考え、テラヘルツ光により強誘電体中のソフトフォノンを励起した時のシフト電流の観測を目指した。

### 3. 研究の方法

本研究では、まずパルス面傾斜法によって 1 uJ 程度の高強度テラヘルツ光パルスを発生させた。このテラヘルツ光をサンプルに照射し、オシロスコープを用いた電気測定によってパルスごとの光電流の測定を行った（図 1(c)）。また、偏光子やバンドパスフィルターを用いることで、フォノンのモード依存性やスペクトル応答なども系統的に調べた。

### 4. 研究成果

まずは、キャパシタンスにも用いられている最も有名な強誘電体である BaTiO<sub>3</sub> において、テラヘルツ光起電力効果の実験を行った（図 2 (a)）。電気分極の方向に対応して光電流の符号が反転し、常誘電相において信号が消失するというバルク光起電力効果と整合する振る舞いを観測した（図 2 (b)）。ここで特筆すべきことに、この光電流は外部電圧に依存しないため、フォトキャリアを媒介していないという、従来の電子励起の光電流では考えられない性質をもつことがわかった（図 2 (c)）。さらに、フォノンモードに対して顕著な依存性を示し、原子の変位ダイナミクスが重要であることもわかった。これらの実験結果からフォノン励起のシフト電流が強く示唆されたため、理論モデルを構築し第一原理計算を行ったところ、観測された光電流がやはりシフト電流機構によってよく説明できることがわかった。この研究により、フォノン励起が電子

励起と同程度の非常に大きな光起電力効果を示すという驚くべき結果が得られた。これは光キャリア生成が光起電力効果には必須というこれまでの常識を覆すものである。

次に  $\text{BaTiO}_3$  と同様に大きな電気分極をもつ強誘電体であり、なおかつ近年電子励起による大きなシフト電流生成が確認されている  $\text{SbSI}$  を扱った (図 2 (d))。この物質においてもテラヘルツ光照射によりソフトフォノン励起によるシフト電流の観測に成功した。光電流値は  $\text{BaTiO}_3$  の 10 倍程度も大きいものであり、また性能指数であるグラス係数 (= 光電流値をパワーで規格化した値) を定量的に見積もったところ、ほかの物質の電子励起のものと同程度も大きいことがわかった (図 2 (e))。加えてバンドパスフィルターを用いてテラヘルツ光電流のスペクトル応答の測定し、ソフトフォノン励起に対応する共鳴ピークの観測に成功した。第一原理計算によってスペクトル応答を評価し、スペクトルの形状や大きさがシフト電流機構によって説明できることがわかった。

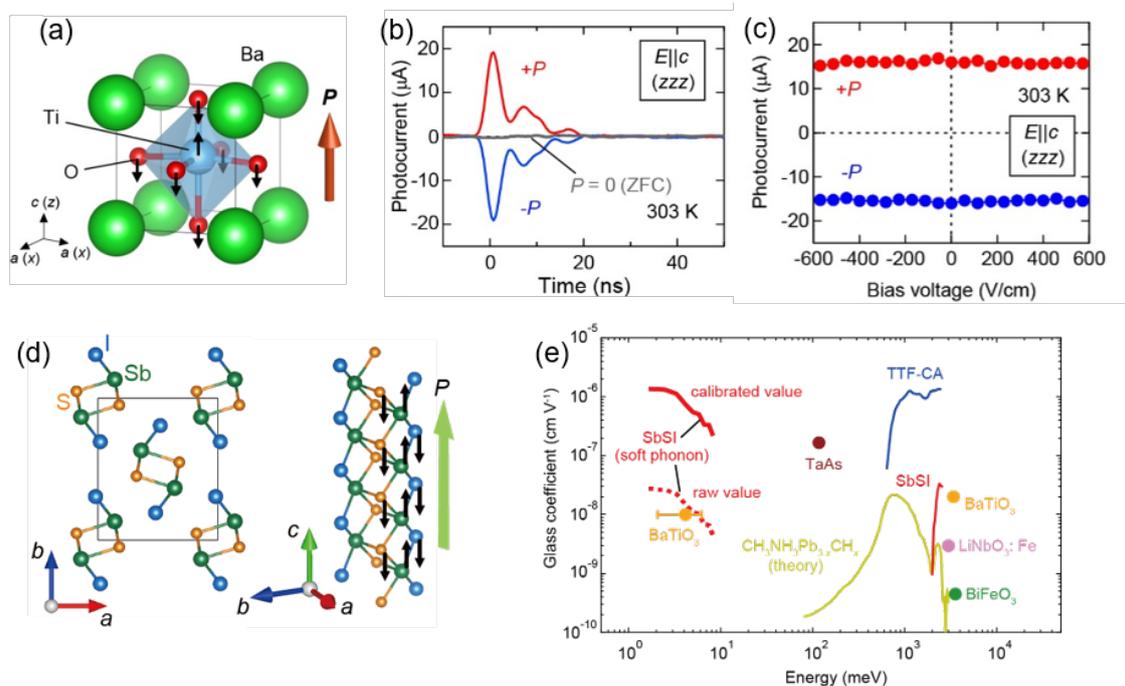


図 2 : (a)  $\text{BaTiO}_3$  の結晶構造。(b) テラヘルツ光電流。分極反転により符号が反転し(赤・青線)、またネットの分極がゼロになるマルチドメイン状態では光電流がゼロなる(灰色線)。(c) 光電流の外部バイアス依存性。(d)  $\text{SbSI}$  の結晶構造。(e) 様々な物質のグラス係数。

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 Handa H., Okamura Y., Yoshimi R., Tsukazaki A., Takahashi K. S., Tokura Y., Takahashi Y.	4. 巻 109
2. 論文標題 Terahertz field driven giant nonlinear phonon response in ferroelectric semiconductor In-doped (Sn,Pb)Te	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review B	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/PhysRevB.109.L081102	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 Y. Okamura, H. Handa, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura & Y. Takahashi	4. 巻 7
2. 論文標題 Terahertz lattice and charge dynamics in ferroelectric semiconductor $\text{Sn}_x\text{Pb}_{1-x}\text{Te}$	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41535-022-00501-2	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 Y. Okamura, T. Morimoto, N. Ogawa, Y. Kaneko, G-Y. Guo, M. Nakamura, M. Kawasaki, N. Nagaosa, Y. Tokura, Y. Takahashi	4. 巻 119
2. 論文標題 Photovoltaic effect by soft phonon excitation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1073/pnas.2122313119	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3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 岡村嘉大
2. 発表標題 Terahertz bulk photovoltaic effect by soft phonon in ferroelectrics
3. 学会等名 The 14th APCTP Workshop on Multiferroics（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 岡村嘉大、森本高裕、小川直毅、金子良夫、グアンユウグオ、中村優男、川崎雅司、永長直人、十倉好紀、高橋陽太郎
2. 発表標題 強誘電体BaTiO3におけるソフトフォノン誘起の光起電力効果
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡村嘉大、森本高裕、小川直毅、金子良夫、グアンユウグオ、中村優男、川崎雅司、永長直人、十倉好紀、高橋陽太郎
2. 発表標題 Photovoltaic effect by soft phonon excitation in ferroelectric BaTiO3
3. 学会等名 APS March meeting (国際学会)
4. 発表年 2023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
---------	---------