

平成30年6月27日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26247052

研究課題名(和文) 超高強度テラヘルツ電磁場による半導体電子状態の動的制御

研究課題名(英文) Dynamical control of electronic states using extremely strong terahertz light

研究代表者

田中 耕一郎 (Tanaka, Koichiro)

京都大学・理学研究科・教授

研究者番号：90212034

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 28,500,000円

研究成果の概要(和文)：固体における極端な非線形光学現象を観測するために、20 THz以上の周波数を有する高強度テラヘルツ光源および1 THz近傍で0.1 THz以下の線幅とつ波長可変高強度テラヘルツ光源を構築した。半導体試料において1s励起子準位の巨大なラビ分裂や光吸収のサブサイクル応答を観測した。また、MoS₂やグラフェンのような単一層物質において高次高調波発生を初めて確認し、原子気体系とは異なる固体特有の特徴を有することを明らかにした。また、これらを説明する理論モデルを提案した。

研究成果の概要(英文)：In order to observe extreme nonlinear optical phenomena in solids, we have constructed two high-intensity terahertz light sources: one is a short pulse source which spectrum includes high frequency components over 20 THz and the other is a tunable narrow-bandwidth (< 0.1 THz) source with peak frequency of about 1 THz. With the tunable THz light source, we have confirmed a huge Rabi-splitting of 1s exciton level and sub-cycle light modulation in the exciton absorption. With high frequency source with 60 THz in peak energy, we observed high-harmonic generation in monolayer MoS₂ and graphene for the first time. The high harmonics generation has unique properties that comes from solid state nature of electrons, which is quite different from that of the atomic gas system. We proposed theoretical models for these extreme nonlinear effects in solids.

研究分野：光物性物理学、テラヘルツ光科学

キーワード：テラヘルツ非線形光学 テラヘルツ分光 非線形光学 半導体光学 超高速レーザー分光 高次高調波発生

1. 研究開始当初の背景

固体に強い光電磁場を照射して全電子が大振幅に一斉運動をする状況下では、強い電磁場と電子の間の相互作用が、平衡状態で均衡する元々の電子間相互作用をはるかに凌駕する状況が出現する。例えば、バンドギャップエネルギー Δ 、格子定数 a をもつ半導体に $E_c = \Delta / (ea)$ (ここに e は素電荷) 以上の電場を印加すると隣り合った原子間の価電子帯と伝導帯のエネルギーが拮抗し、トンネル効果により電子と正孔が対生成することが期待される。これは Zener トンネル効果と呼ばれる現象であるが、量子電磁力学において電場印加により「真空」が壊れて、電子-陽電子対生成がおきる Schwinger 機構と共通した物理がそこにある。

これまで、研究代表者は 1 THz の周波数において 1.2 MV/cm の世界最高の電場強度を達成した。それを持ちいて、荷電粒子の加速機構を実現し、巨大なキャリア増幅が可能であることを GaAs 多重量子井戸で示した。さらに、グラフェンの線形分散上の電子系を加速し、フェルミ準位より 1eV 以上高いエネルギー状態まで電子分布が達する非平衡状態の生成とキャリア増幅に成功した。この現象には、高強度テラヘルツ光による荷電粒子の 1 ピコ秒以内での爆発的な加速が背景にある。

しかし、このような 1 THz 近傍の高強度テラヘルツ光による励起では、キャリア加速やキャリア増幅過程と様々な散逸過程が同時におきる事が明らかになった。さらに、このような物理過程の複雑さに加えて、印加時間が長いために不可逆的な破壊の条件にも近いことがわかってきた。このような結果から、破壊を避けて、物質中の電子を大振幅に駆動することによって現れる電子状態を観測するためには、電子-電子散乱や電子-格子散乱の影響が現れないもっと速い時間スケールでの高強度電場の印加が必要である、との着想を得るに至った。

2. 研究の目的

本研究においては、半導体に高強度テラヘルツ電磁場を照射し、物質中の電子を大振幅に駆動することによって、固体電子状態を瞬時に変化させ、バンド構造やその次元性、電気伝導特性、光学特性などの物性を劇的に変容させる。そのために、キャリア周波数がパルス包絡関数と位相ロックされた 20 THz 以上の周波数を有するテラヘルツ高強度光源を構築し、半導体試料に照射する。テラヘルツ電磁場の 1 周期内や数周期後におきる物理現象や光学応答を精密に計測することにより、高強度テラヘルツ電磁場下で現れる新秩序や新しい物性を見だし、極端な非平衡状態の解明をおこなう。

3. 研究の方法

20 THz 以上の周波数を有するテラヘルツ超高強度光源として、空気プラズマとパラメトリック増幅の 2 つの高強度テラヘルツ発生法を採用するとともに、極短時間での分光計測が可能なプローブ光をもちいた計測システムを構築する。これより、半導体の基底状態を大きく変革して新しい物質状態を生み出す。高強度テラヘルツ電磁場印加下で半導体に発現するフローケ・ブロッホ状態や Zener トンネル効果の観測、極端な非線形現象の発現に着目して研究をすすめた。

4. 研究成果

(1) テラヘルツ高強度光源の開発

テラヘルツ領域においてバンド間遷移が関わる高強度電場が誘起する極端な非線形現象を調べるために 20 THz 以上の周波数を有する高強度光源の開発を行なった(a, b, c)。また、半導体励起子における極端な非線形現象を調べることに特化した波長可変狭帯域テラヘルツ光源の開発も行なった(d)。

(a) 空気プラズマテラヘルツ光源の開発

20 THz 以上の周波数を有する高強度テラヘルツパルス光源を得るため、空気プラズマテラヘルツ発生法を用いた光源システムを構築し、その最適化を行った。その結果、図1に示すように、20 THz 以上の高周波成分を有し、ピーク値として 100 kV/cm 以上の電場強度を持つテラヘルツパルスの発生に成功した。

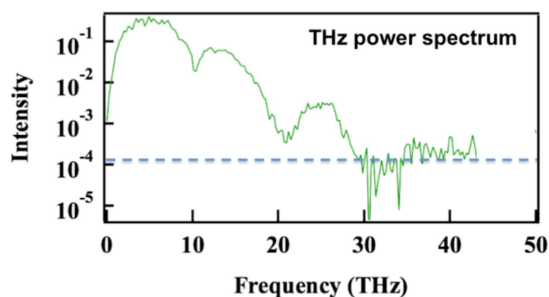


図1. 空気プラズマ法によって得られた高強度テラヘルツ光のパワースペクトル

(b) 超短赤外パルスと有機結晶を用いた光源の開発

東京大学物性研究所との共同研究で、赤外超短パルス光源を励起光源として、有機非線形光学結晶の一つである DAST 結晶を用いたテラヘルツ光源システムを構築した。これにより、20 THz 以上の高周波成分を有し、ピーク値として 1 MV/cm 以上の電場強度を持つ超短テラヘルツパルス光発生に成功した。

(c) 中赤外パラメトリック増幅フェムト秒光源による非線形分光システムの開発

チタンサファイアフェムト秒再生増幅光源を用いてパラメトリック増幅を行い、シグナル光とアイドラー光の差周波発生を行って、**60 THz** で **10 μJ** /パルスのパルス光を発生した。この光の偏光状態を任意に制御可能な液晶変調器とパルス圧縮システムを整備し、任意の偏光状態で高次高調波発生を観測可能な測定システムを完成させた。

(d) 波長可変狭帯域テラヘルツ光源の開発

高強度フェムト秒パルスレーザーのパルス整形技術とパルス波面傾斜技術をもちいた LiNbO_3 結晶による高強度テラヘルツ光発生と組み合わせることにより、**図2**に示すように、**0.5 THz – 2.0 THz** の間で波長可変であり **50GHz** 以下の線幅と、**10 kV/cm** 以上の最大電場強度を有する光源の構築に成功した。

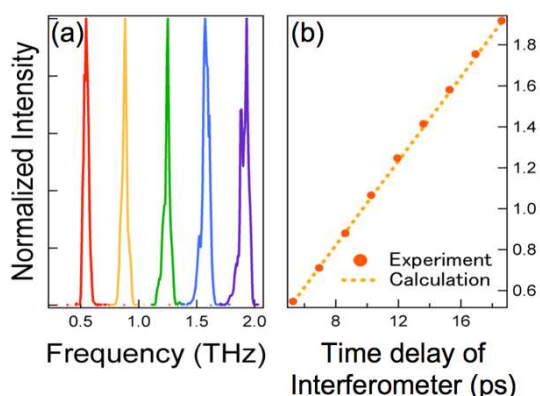


図2: (a)狭帯域テラヘルツパルスのパワースペクトル。(b)テラヘルツ周波数のマイケルソン干渉計における時間間隔依存性。

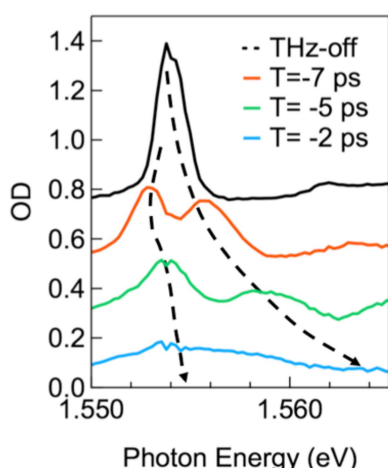


図3: 高強度テラヘルツ光照射下での巨大ラビ分裂。一番上の曲線は、テラヘルツ光照射がない場合の励起子吸収である。図中の T は吸収スペクトルの観測時間をあらわし、-7ps, -5ps, -2ps の順でその瞬間のテラヘルツ電場強度が大きい。照射がない場合からどんどん分裂が大きくなるのがわかる。

(2) GaAs 励起子における巨大ラビ分裂の観測

(1)の(d)で開発した光源を用いて、**GaAs** 量子井戸中の励起子準位の非線形応答を観測した。テラヘルツ光を励起子の **1s-2p** 遷移に共鳴させることで、**図3**に示すような、テラヘルツ光のキャリア周波数と同程度の巨大な励起子吸収のラビ分裂を観測した。さらにテラヘルツ光の強度をあげることにより、従来の予想を上回る励起子吸収のブルーシフトが観測された。これらを説明する物理メカニズムを考察し、論文を出版した。

(3) GaAs 励起子におけるドレド励起子生成によるサブサイクル内光学変調の観測

パルス波面傾斜技術をもちいた LiNbO_3 結晶による高強度テラヘルツ光発生とバンドパスフィルターを用いて数サイクル以上のパルス幅と **60 kV/cm** 以上の最大電場強度のテラヘルツ光を発生させた。**GaAs** 量子井戸中の励起子の **1s-2p** 遷移には非共鳴な励起条件下で、過渡的なバンド間遷移近傍の吸収変化を詳細に調べた。これにより、テラヘルツ光のサブサイクル内で大きな変化が生じることを明らかにした。励起子のドレド状態形成により、このことが理解できることを示した。これらの現象を説明する理論を構築した。

(4) MoS₂ における共鳴ラマン効果

単層半導体 MoS_2 の非線形光学の研究を進める第一段階として、共鳴ラマン散乱の系統的な実験を行い、共鳴条件下で偏光選択則が大きく変わることを明らかにした。この共鳴2次光学過程が直線偏光励起下で発光の偏光が励起光の偏光状態を保持する現象（ヴァレイコヒーレンス）と密接な関係があることを指摘し、論文にまとめた。

(5) 単層 MoS₂ およびグラフェンにおける高次高調波発生を観測と理論構築

単層半導体 MoS_2 において、(1)の(c)の光源システムを用いて、高次高調波発生の実験を行った。その結果、**図4**に示すように、偶数次を含む **15** 次以上の高次高調波の観測に成功した。偶数次にはバンド構造への共鳴効果があることを確認した。グラフェンにおいて高次高調波発生の実験を行った。その結果、偶数次は確認されず、9次までの高調波が現れることを確認した。また、楕円偏光依存性を測定したところ、楕円偏光度が **0.3** の近傍で高調波強度が最大となり、その際の偏光の主軸方向は入射偏光に対してほぼ垂直となることがわかった。この実験結果を説明するために、半導体における高強度テラヘルツ光を用いた高次高調波発生に関する理論の構築を行った。簡単なバンド構造の場合の高次高調波発生には大きく分けて3つの強度領域が存在し、

グラフェンの実験で得られたような特異な楕円偏光依存性を有することを明らかにした。これらをまとめて論文を出版した。

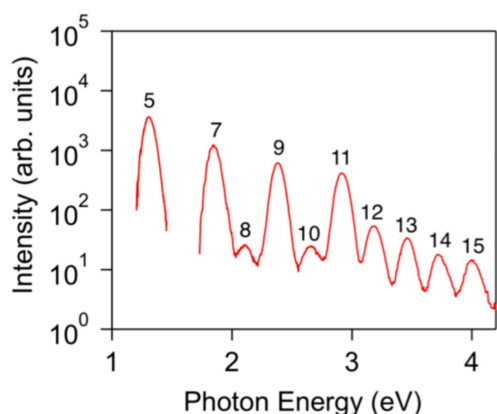


図4: MoS₂における高次高調波発生。温度は常温である。励起光の光子エネルギーは 0.26 eV であり、偏光は MoS₂ の Mo-Mo 方向に向いている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 20 件)

(代表的な論文)

1. "Impact ionization dynamics in silicon by MV/cm THz fields", Abebe Tilahun Tilahun Tarekegne, Hideki Hirori, Koichiro Tanaka, Krzysztof Iwaszczuk and Peter Uhd Jepsen, *New J. Phys.* 19, 123018 (2017).
2. "Focusing light with orbital angular momentum by circular array antenna", Takashi Arikawa, Shohei Morimoto, and Koichiro Tanaka, *Optics Express* Vol. 25, Issue 12, pp. 13728-13735 (2017).
3. "High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation", Naotaka Yoshikawa, Tomohiro Tamaya, and Koichiro Tanaka, *Science* 356, 736-738 (2017).
4. "Light-induced electron localization in a quantum Hall system", T. Arikawa, K. Hyodo, Y. Kadoya, and K. Tanaka, *Nature Physics*, doi:10.1038/nphys4078 (2017).
5. "Raman-like resonant secondary emission causes valley coherence in CVD-grown monolayer MoS₂", N. Yoshikawa, S. Tani, and K. Tanaka, *Phys. Rev. B*, 115491 (2017).
6. "Subcycle Optical Response Caused by a Terahertz Dressed State with Phase-Locked Wave Functions", K. Uchida, T. Otobe, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. Tanaka, and H. Hirori, *Phys. Rev. Lett.* 117, 277402 (2016).

7. "Improving time and space resolution in electro-optic sampling for near-field terahertz imaging", F. Blanchard, and K. Tanaka, *Optics Letters* 41, pp. 4645-4648 (2016).
8. "Diabatic Mechanisms of Higher-Order Harmonic Generation in Solid-State Materials under High-Intensity Electric Fields", T. Tamaya, A. Ishikawa, T. Ogawa, and K. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* 116, 016601 (2016).
9. "Nonlinear magnetization dynamics of antiferromagnetic spin resonance induced by intense terahertz magnetic field", Y. Mukai, H. Hirori, T. Yamamoto, H. Kageyama and K. Tanaka, *New J. Phys.* 18 013045 (2016).
10. "Time-resolved observation of coherent excitonic nonlinear response with a tabletop narrowband THz pulse wave", K. Uchida, H. Hirori, T. Aoki, C. Wolpert, T. Tamaya, K. Tanaka, T. Mochizuki, C. Kim, M. Yoshita, H. Akiyama, L. N. Pfeiffer and K. W. West, *Appl. Phys. Lett.* 107, 221106 (2015).
11. "High-Voltage Breakdown and the Gunn Effect in GaAs/AlGaAs Nanoconstrictions", R. Chen, W. Gao, X. Wang, G. R. Aizin, J. Mikalopas, T. Arikawa, K. Tanaka, D. B. Eason, G. Strasser, J. Kono, and J. P. Bird, *IEEE Transactions on Nanotechnology* 14, 524 (2015).
12. "Ultrafast carrier relaxation through Auger recombination in the topological insulator Bi_{1.5}Sb_{0.5}Te_{1.7}Se_{1.3}", Yoshito Onishi, Zhi Ren, Kouji Segawa, Wawrzyniec Kaszub, Maciej Lorenc, Yoichi Ando, and Koichiro Tanaka, *Phys. Rev. B* 91 085306 (2015). selected as an Editor's suggestion.
13. "Antiferromagnetic resonance excitation by terahertz magnetic field resonantly enhanced with split ring resonator", Y. Mukai, H. Hirori, T. Yamamoto, H. Kageyama, and K. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.*, 105, 022410 (2014).

[学会発表] (計 49 件)

(代表的な海外招待講演)

1. Koichiro Tanaka, Non-linear terahertz response of carriers in low dimensional system, The 16th Photonics North Conference 2014, Montreal, Canada 2014 5/29-30
2. Koichiro Tanaka, Nonlinear Electric and Magnetic Control of Low Frequency Excitations in Solids, The 12th International Conference on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in

- Semiconductors, Bremen Germany, 2014
9/22-29
3. Koichiro Tanaka, Nonlinear optical phenomena induced by femtosecond pulse excitation in topological insulators, OTST2015 Optical Terahertz Science and Technology, 2014, San Diego, USA, 2015 3/8-12
 4. Koichiro Tanaka, Terahertz Nonlinear Magnetic Response in Antiferromagnets, CLEO2015 (The Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics Conference), San Jose, USA, 2015 5/10-12
 5. Koichiro Tanaka, Strong Terahertz-Field Effect on Electron-Hole System in Quantum Wells, FIO2015 (Frontiers in optics), 2015 10/18-22
 6. Koichiro Tanaka, Nonlinear properties of semiconductor materials under extremely high intensity THz radiation, Spain-Japan Joint Workshop on Millimeter-wave and Terahertz, Madrid, Spain, 2016 3/17-18
 7. Koichiro Tanaka, Observation and control of spoof surface localized plasmon using THz nearfield microscope, IRMMW-THz2016, Copenhagen, Denmark, 2016 9/25-30
 8. Koichiro Tanaka, Terahertz Nearfield Plasmonics Using Vortex Beam, International Symposium on Terahertz Nano-Science (Teranano VII), Paris, France 2016 10/2-4
 9. Koichiro Tanaka, Nonlinear Properties of Semiconductors Under High Intensity THz Radiation, IW-FIRT2017, Fukui, Japan 2017 3/7-9

[図書] (計 1 件)

電磁気学 II (基幹講座 物理学)、大野木 哲也, 田中 耕一郎 (共著) 東京図書 (2017/10/10)
ISBN-13: 978-4489022456

[その他]

WEB での情報提供
京都大学大学院理学研究科
<http://www.hikari.scphys.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中耕一郎 (Koichiro Tanaka)
京都大学大学院理学研究科・教授
研究者番号：90212034

(2) 研究分担者

廣理英基 (Hideki Hirori)
京都大学・物質・細胞統合システム拠点・特定准教授
研究者番号：00512469

(3) 研究分担者

谷峻太郎 (Shuntaro Tani)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号：80711571