

# 固体結晶からの高次高調波発生の特光分解測定

～ 高調波の特光に電子状態の異方性が映し出されることを実証 ～

極限コヒーレント光科学研究センター 石井 順久、板谷 治郎

## 研究背景

近年、極短パルスレーザー技術の発展により、フェムト(10<sup>-15</sup>)秒の持続時間を有する高強度光パルスが中赤外領域(光の波長で3-10 μmの帯域)で発生可能である。そのピーク電力は1 GWに達し、光を集光することで10 GV/m以上の電場強度が達成可能になっている。中赤外光パルスの光子エネルギーは、半導体や絶縁体のバンドギャップエネルギーに比べ十分低いため、試料を破壊することなく、数GV/m程度の高強度電場が印加可能である。この値は、直流電場による典型的な絶縁耐力である10-100 MV/mを二桁以上上回り、今までにない強電界下で、固体の応答が観測可能になりつつある。

2010年にスタンフォード大学の研究グループが、高強度電場下での固体の極端非線形応答の先駆けとなる実験を行った。高強度赤外レーザーを照射した酸化亜鉛結晶から、赤外レーザーの光周波数の25倍までの周波数成分を持つ、高次高調波と呼ばれる光放射が観測された[1]。高調波の光子エネルギーは9 eV程度まで達しており、酸化亜鉛のバンドギャップエネルギーを超えている。この実験以来、世界各地で固体高調波発生や強電場下での過渡吸収測定等

の実験が行われている。しかし、これまでの実験では、物質と光電場共に1次元的に取り扱っており、3次元の自由度を有する試料と2次元の特光状態を有する光電場の相互作用を記述するには不十分であった。本研究では、中赤外光パルスを照射したセレン化ガリウム結晶(Gallium Selenide, GaSe)からの高次高調波の特光を分解して測定した。高調波の特光状態は結晶方位に依存し、その依存性が、最も低いエネルギーの伝導帯の曲率テンソルによって記述できることを示した(物性研プレスリリース、<http://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/news2.html?pid=5281>)[2]。

## 研究内容

板谷研究室で開発した波長5 μmの高強度中赤外レーザー[3]を集光し、1 GV/m程度の電場をGaSe結晶に印加した。高次高調波スペクトルを特光分解(直線特光の赤外電場に平行と直交する2成分に分解)し、その結晶方位依存性を測定した(図1)。偶数次高調波の平行・直交成分はいずれも60度の周期を呈し、奇数次高調波の場合は平行成分が60度、直交成分が30度の周期を呈することを見出した。偶数次高調波は、GaSe結晶(図2(a)参照)の反転対

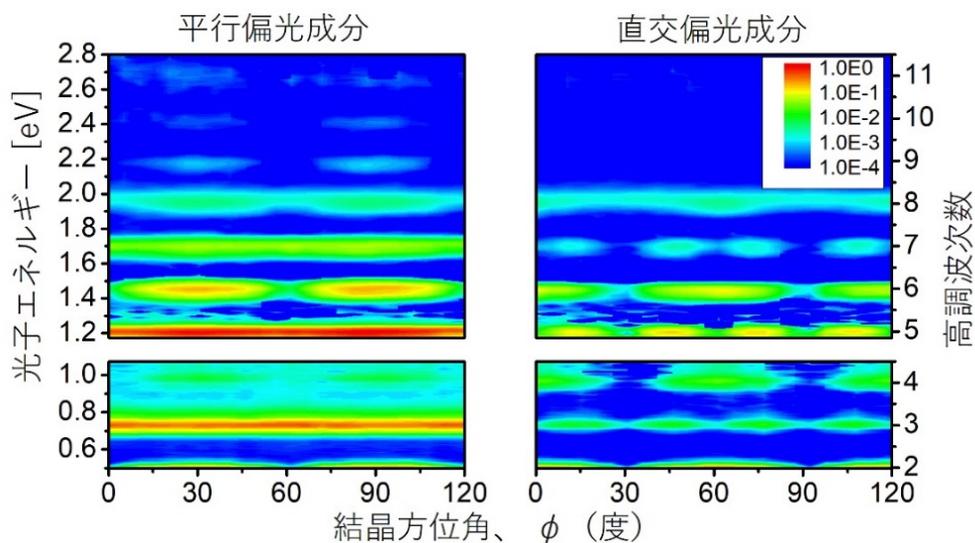


図1. 高次高調波スペクトルの特光分解測定と結晶方位依存性



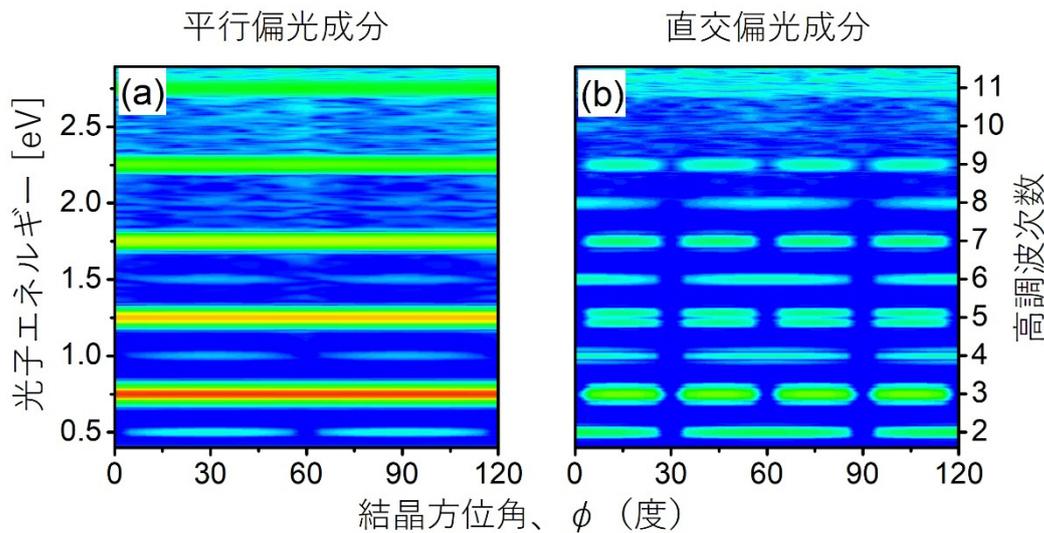


図 3. 3次元量子計算による偏光分解した高次高調波スペクトルの結晶方位角依存性

間電流のみが、奇数次高調波では両成分が寄与することが明らかになった。特に GaSe では、9 次以下の奇数次高調波でバンド内電流の寄与が強いことがわかり、前述の解析的なモデルの適応が可能であることが示された。

### まとめと展望

本研究では、高強度中赤外電場を印加された固体結晶から放射される高次高調波の 2 次元偏光状態を測定した。高次高調波の偏光状態と試料のバンド曲率の異方性を結びつきを明らかにした。将来的には、発生した高次高調波の偏光状態に加えて、時間波形を測定することにより、バンドの形状を再構築することが可能になると期待される。バンド構造決定において全光学的手法を用いることができれば、従来用いられている光電子分光を適用できない、高圧力、高磁場、高電場下の極限状態や、過渡的な状態においてもバンド構築が可能になると期待される。

### 謝辞

本研究は金島圭佑特任助教(研究当時・東京大学理学系研究科物理学専攻博士課程学生、現・北海道大学工学研究院応用物理学部門)、篠原康特任助教(東京大学工学系研究科附属光量子科学研究センター)、竹内健吾氏(研究当時・東京大学理学系研究科物理学専攻修士課程学生)、今坂光太郎氏(東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程学生)、梶智博氏(研究当時・東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻修士課程学生)、芦原聡准教授(東京大学生

産研究所)、石川顕一教授(東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻)との共同研究として行われました。ここに感謝申し上げます。物性研究所の加藤岳生准教授、秋山英文教授、京都大学の田中耕一郎教授にご助言をいただきましたことを感謝申し上げます。

### 参考文献

- [1] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, “Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal,” *Nature Physics* **7**, 138–141 (2010).
- [2] K. Kaneshima, Y. Shinohara, K. Takeuchi, N. Ishii, K. Imasaka, T. Kaji, S. Ashihara, K. L. Ishikawa, and J. Itatani, “Polarization-Resolved Study of High Harmonics from Bulk Semiconductors,” *Phys. Rev. Lett.* **120**, 243903 (2018).
- [3] K. Kaneshima, N. Ishii, K. Takeuchi, and J. Itatani, “Generation of carrier-envelope phase-stable mid-infrared pulses via dual-wavelength optical parametric amplification,” *Opt. Express* **24**, 8660–8665 (2016).