

3次元ディラック半金属 Cd_3As_2 における室温超高効率テラヘルツ高調波発生の観測

極限コヒーレント光科学研究センター 神田 夏輝
物性理論研究部門 池田 達彦
極限コヒーレント光科学研究センター 松永 隆佑

研究背景

高強度レーザーをガス中に絞り込むことによって生じる高次高調波は、レーザーベースでの軟 X 線パルス生成を可能にする手法として、アト秒科学や高分解光電子分光で強力な実験ツールとなっている。近年では固体からの高次高調波発生も報告され、固体ベースでのコンパクトかつ安定な軟 X 線光源の候補として、また非摂動論的非線形応答に対する基礎物理学的な観点から興味を持たれ、活発に研究が行われている。高次高調波発生の研究ではほとんどの場合近赤外から中赤外の光源が用いられるが、我々は中赤外域よりもさらに数十倍波長の長いテラヘルツ周波数帯の高次高調波発生に注目した。この帯域の光(電磁波)は既存のエレクトロニクスよりも周波数が 2、3 桁高いため、テラヘルツ帯における高効率な周波数変換素子を実現することは次世代の高速エレクトロニクスにおいて非常に重要だと考えられる。

松永らは 2014 年、超伝導薄膜から非常に強い第三高調波がテラヘルツ周波数帯で発生することを発見した[1]。これは超伝導体のテラヘルツ周波数帯における非線形応答が非常に大きいことを表しており、実際に宇宙・天文物理学観測における微少マイクロ波の検出素子としてその性質が活用されている。しかし超伝導状態を作るには極低温環境が必要であるため、もしテラヘルツ周波数の高効率な変換が室温で実現すれば非線形素子としての幅広い応用が期待される。

グラフェンをはじめとしたディラック電子系では、周波数の低い電場によりディラック電子をバンド内で加速することで大きな非線形電流が誘起されることが理論的に予測されており[2]、テラヘルツ帯で高効率な高調波発生を実現する物質として期待されていた。しかし実験上は長らくの間テラヘルツ高調波は観測されず、電子の散乱が速いことを懸念してバンド内加速モデルの妥当性が議論されてきた。最近になって巨大加速器ベースの高強度光源を用いた実験によりようやくグラフェンからのテラヘルツ周波数帯の高調波発生が室温で観測され[3]、非線形定数が他の物質と比べて体積当たり 7 桁ほど大きいことが判明した。しかしながら、相互作用長が原子一層に限られているため変換効率としてはそれほど高くなく、またその発生メカニズムについてもディラック電子とは本質的に無関係な解釈が報告されるなど議論が続いている。

そこで本研究では、高品質なヒ化カドミウム Cd_3As_2 薄膜[4]に注目した[5]。 Cd_3As_2 はディラック半金属と呼ばれ、電子が 3 次元的に質量ゼロのように振舞うことが 2014 年頃に発見されて以来、その性質に注目が集まっている(図 1(a))。バルクとしてディラック電子の性質を示す Cd_3As_2 を利用して、効率的に巨視的な非線形電流を発生させることを期待した(図 1(b))。

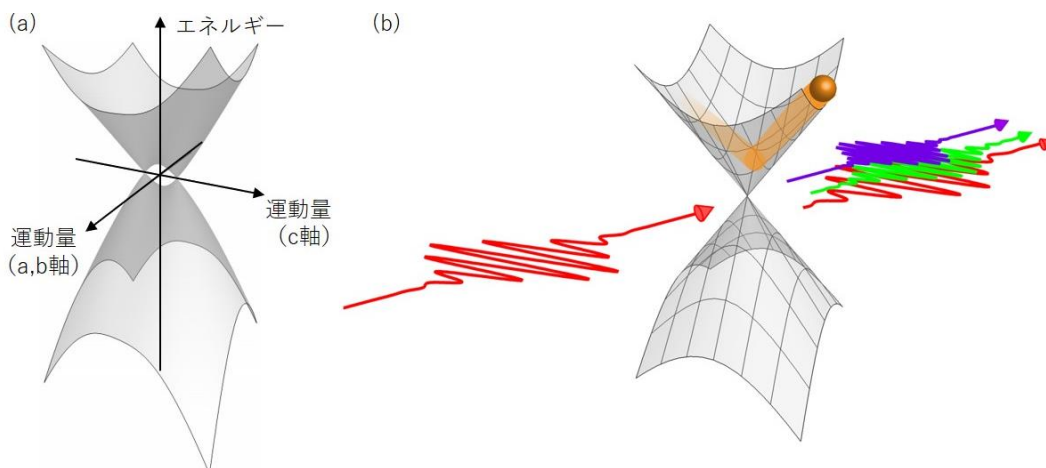


図 1 (a) Cd_3As_2 における電子のディラックコーンの模式図。(b) ディラック電子の加速によるテラヘルツ高調波発生の模式図。

実験結果

テラヘルツ周波数帯の高調波発生を調べるため、物性研究所内のレーザー光源を駆使してテラヘルツパルス発生技術開発を行った。LiNbO₃ 結晶を用いたパルス面傾斜法を適用することで高効率なテラヘルツ波発生を行い、複数枚のバンドパスフィルターを用いることで狭帯域の高強度テラヘルツパルス(周波数 0.8 THz、電場尖頭値 31 kV/cm)をテーブルトップのシステムで実現した。

試料としてカリフォルニア大学サンタバーバラ校の Susanne Stemmer 教授らのグループにより作製された高品質 Cd₃As₂ 薄膜を用いた[4]。GaSb/GaAs 基板上にエピタキシャル成長された厚さ 240 nm の Cd₃As₂ 薄膜で、フェルミエネルギーはディラック点から約 50 meV に位置する[6]。テラヘルツ時間領域分光を用いた線形応答測定により、電子の散乱時間は室温で約 150 fs に及ぶことが明らかとなった。

この Cd₃As₂ 薄膜試料に高強度テラヘルツパルスを照射し、透過したテラヘルツ波の電場時間波形を電気光学サンプリング法により取得した。フーリエ変換により得られたスペクトルを図 2(a)に示す。入射波の 3 倍の周波数である 2.4 THz 付近に明瞭な第三高調波のピークを観測することに成功した。入射電場振幅 31 kV/cm に対し第三高調波の電場振幅は 100 V/cm と見積もられる。この第三高調波の入射電場強度依存性を図 2(b)に示す。弱い電場領域では図中の破線に示すように電場強度の 3 乗で立ち上がり、20 kV/cm を超えたあたりから 3 乗から外れる非摂動論的振る舞いが観測された。また、光源を変更し周波数 0.6 THz の入射電場を用いることで 3.0 THz の第五高調波を観測することにも成功している。

今回開発した光源により、これまで加速器を使わなければ観測が難しかったグラフェンのテラヘルツ高調波をテーブルトップで観測することも可能になり、グラフェンと Cd₃As₂ の詳細な比較も行った(図2)。グラフェンに比べると Cd₃As₂ では表面での反射ロスにより試料内部に入る電場は 5 分の 1 ほどになるものの、発生した第三高調波の電場は 5 倍ほど強いことがわかった。これはグラフェンよりも遥かに大きな体積を活かして周波数変換が非常に効率よく生じているためと考えられる。

さらに、このテラヘルツ高調波発生メカニズムを解明するため、テラヘルツパルスで励起された電子の時間変化を超高速に時間分解して調べる実験を行った。グラフェンのテラヘルツ高調波発生の研究では、その非線形電流の起源が、テラヘルツパルスによって加熱された電子が急速に加熱と冷却を繰り返すという、ディラック電子とは全く関係のない熱力学的モデルによって解釈されていた[3]。しかし本研究で行った精密な時間分解実験から、Cd₃As₂ 薄膜中の電子が冷却に要する時間はグラフェンの電子よりも遥かに長いこと、非線形応答が等方的には現れないことなどが明らかになり(図 3(a))、熱力学的モデルでは説明できない結果が示された。さらに理論計算により発生する第三高調波の大きさと電子の散乱時間の関係を調べたところ、電子の散乱時間がテラヘルツ波の周期よりも十分速いフェムト秒領域であったとしても第三高調波が強く現れることが明らかになった(図 3(b))。また、熱力学的モデルについても理論的検証を行ったところ、Cd₃As₂ 薄膜のテラヘルツ高調波発生の特徴は熱力学的モデルでは全く再現できなかった。これらの結果から、ディラック電子が図 1(b)に示すようにバンド内でコヒーレントに加速されたことによる非線形電流によってよく説明できることが確かめられた。

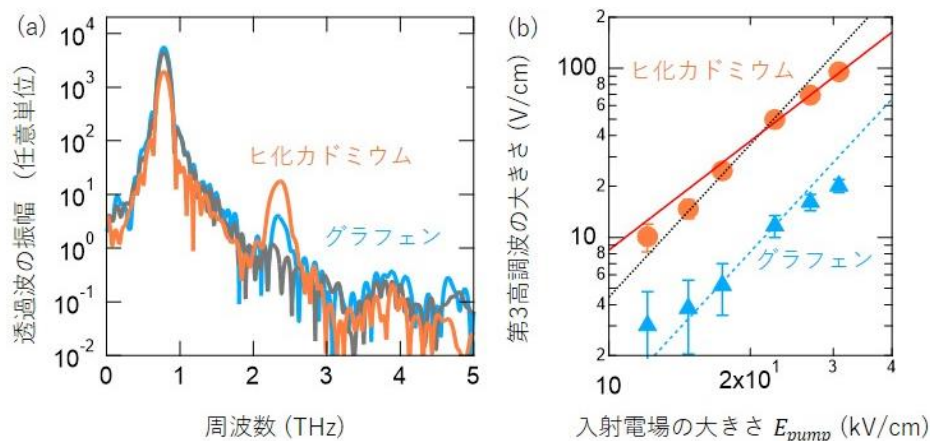


図2 Cd₃As₂およびグラフェンにおける第三高調波の観測

(a) Cd₃As₂およびグラフェンを透過したテラヘルツ電磁場のスペクトル。(b) 第三高調波の入射電場強度依存性。

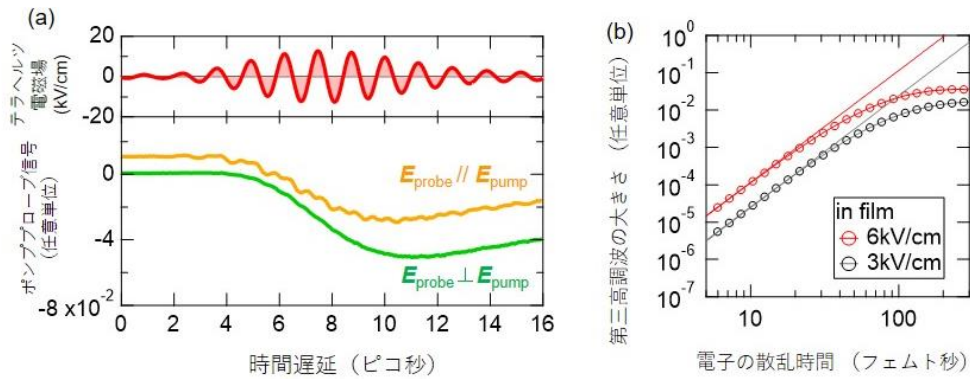


図3 Cd_3As_2 における時間分解観測と理論計算。(a) ポンププローブ分光法によって計測された、テラヘルツ電磁場が照射したときの Cd_3As_2 の超高速時間変化。第三高調波を生み出す非線形性の非等方性を示している。(b) 理論計算によって得られた第三高調波の大きさの電子散乱時間依存性。

このような加速モデル自体は理論的に 2007 年頃から予想されていたが[2]、実験的にはテラヘルツ周波数帯の高調波の観測が難しかったため、実際の物質ではテラヘルツ周波数帯においてこのモデルは成り立たないという解釈が広がりつつあった。本研究では電子の散乱時間を考慮した詳細な計算から、テラヘルツ周波数帯でもこのディラック電子の加速モデルがよく成り立つことを示し、高調波発生メカニズムがディラック電子の特異な非線形電流にあることを明らかにした。

今後の展開

本研究によって Cd_3As_2 薄膜が室温でテラヘルツ高調波を効率よく発生させることが見出され、テラヘルツ電磁場の周波数変換技術実現に向けた新たな指針が得られた。現在はテラヘルツ電磁場をそのまま Cd_3As_2 薄膜に照射しているが、 Cd_3As_2 薄膜は半金属であるため、電磁場のほとんどは表面で反射されてしまう。反射防止コーティングなどの表面加工や、電場を局部的に増強するメタマテリアル技術と組み合わせたり、あるいは電極から直接電場を印加したりすることで周波数変換を更に高効率化することが期待される。また、 Cd_3As_2 のようなディラック半金属と同様に質量ゼロの電子を持つものとして、ワイル半金属が知られている。空間反転対称性の破れたワイル半金属の場合は第二高調波が発生すると考えられ、これはディラック半金属が示す第三高調波よりもさらに高効率に周波数変換が可能になると期待される。ディラック半金属およびワイル半金属は、物質をトポロジーによって分類する現代物理学の最先端研究によって発見された物質群であり、総称してトポロジカル半金属と呼ばれている。本研究によって今後もトポロジカル半金属が示す巨大応答とその機能性についてさらに研究が深まることが期待される。

謝辞

本研究はジョーンズホプキンス大学の N. P. Armitage 教授及び Bing Cheng 博士課程学生(当時)、カリフォルニア大学サンタバーバラ校の Susanne Stemmer 教授及び Timo Schumann 博士、物性研究所の板谷治郎准教授、松田拓也研究員、夏沛宇博士課程学生(当時)との共同研究によるものである。なお本研究は、JST さきがけ(課題番号 JPMJPR16PA)、文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)(課題番号 JPMXS0118068681)、及び文部科学省科学研究費補助金(課題番号 19H01817、19K15462、18K13495)の支援を受けて行われた。

REFERENCES

[1] R. Matsunaga, N. Tsuji, H. Fujita, A. Sugioka, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang, H. Aoki, and R. Shimano, *Science* **345**, 1145 (2014).
 [2] S. A. Mikhailov, *Europhys. Lett.* **79**, 27002 (2007).
 [3] H. A. Hafez *et al.*, *Nature* **561**, 507 (2018).
 [4] T. Schumann, M. Goyal, H. Kim, and S. Stemmer, *APL Mater.* **4**, 126110 (2016).
 [5] B. Cheng*, N. Kanda*, T. N. Ikeda, T. Matsuda, P. Xia, T. Schumann, S. Stemmer, J. Itatani, N. P. Armitage, and R. Matsunaga, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 117402 (2020). (*: equal contribution)
 [6] B. Cheng, T. Schumann, Y. C. Wang, X. S. Zhang, D. Barbalas, S. Stemmer, and N. P. Armitage, arXiv:1905.00309.