

研 究 報 告 書

「超高強度テラヘルツ光のナノ空間制御と物性制御技術への応用」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成26年10月～平成30年3月

研 究 者: 廣理 英基

1. 研究のねらい

近年の急速な情報通信技術の高速化と大容量化の要請から、半導体電子デバイスにおけるメモリー素子の最小加工寸法は 10nm 程度にまで進み、電荷蓄積やトランジスタにおける電流制御が従来の半導体材料では十分に行えない「微細化の限界」が問題となっている。従来の物理的な限界を突破して、新たな固体メモリーや超高速エレクトロニクスを開発するには、材料のナノスケール物性(導電性、磁性、光学特性)を局所的、高速、効率的かつ劇的に変化させ、その物理現象を理解することが極めて重要である。材料の物性を制御する方法として、試料に電極を装着し高電場を印加する方法や、超短パルスレーザーなどのパルス光を用いる方法が利用されている。しかし、電極を用いて DC 電場を印加する方法では印加時間がナノ秒と緩慢となり試料に熱的破壊効果を引き起こす。また、可視光領域の超短秒レーザーでは、パルス持続時間の間に電場は数サイクルの振動を繰り返すためその効果は打ち消し合い、有効的な電場効果をもたらさず効率的な物性制御をしばしば妨げている。

そこで本研究では、ピコ秒(10^{-12} 秒)の持続時間しか持たない世界最高強度のテラヘルツ (THz) 光源を最適化し、従来の DC 電場や超短パルスレーザー技術では不可能な新たな物性制御技術を開発する。これにより、THz 周波数帯で動作する次世代の超高速電子デバイス開発に資する電場・磁場誘起現象を探索しその学理を構築する。とくに THz 光を金属マテリアル構造と結合しマイクロ・ナノスケールの近接場領域に閉じ込めることで電磁場強度を極限的に増大し、高効率で高速な新たな物性制御技術を開発する。

2. 研究成果

(1)概要

本研究では、高強度 THz 光や金属メタマテリアル構造による THz 光の増大を利用して、磁性体中スピンの非線形応答、カルコゲナイト化合物における THz 電場誘起相転移、THz ドレスト状態生成による光学応答の制御など、超高速エレクトロニクス・スピントロニクスにおいて重要な高電場・磁場現象の観測に成功した。これらの現象をナノスケールで顕在化し、さらに観測するために THz パルスをトンネルバイアスに利用した時間分解 STM の開発を行った。

(2)詳細

研究テーマ A「反強磁性体の磁化制御」

絶縁性反強磁性体は THz 帯域に達する高周波磁気応答を示し、高速磁気光学素子やスピンデバイスへの利用が期待される。磁気スイッチングなどへの応用を考える際には非線形領域におけるスピンドायナミクスの理解が重要であるが、従来十分な強度の THz 磁場発生が困難なために物理的機構は未解明であった。本研究では高強度の THz 電場パルスをスプリットリング共振器(SRR)に照射し、傾角反強磁性体 HoFeO_3 単結晶内部に共鳴的な磁場増強をも

たらし、非線形な磁化応答、さらに超高速な磁化制御を目指し研究を行った。SRR 構造は LC 共振周波数が試料の反強磁性共鳴(AF モード)の周波数(0.57 THz)に一致するように設計した。実験では、高強度 THz パルス照射後の磁化変化を時間分解磁気力効果により測定した。低強度励起の場合では磁化振動の周波数が全時間にわたりほぼ一定であるのに対し、高強度励起では大きな周波数シフトが出現することが観測された。高強度励起における周波数シフトは大振幅駆動された磁化運動の非調和性に由来することを解明し、超高速磁化反転の実現に向けた重要な知見を得ることができた。

研究テーマ B「カルコゲナイト化合物の THz 電場誘起相転移」

カルコゲナイト化合物の 1 つである $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST)は、光励起によってアモルファス相から結晶相を双方向に相転移可能な相変化材料であり、これまで CD や DVD 等の光記録材料として広く利用されてきた。電圧パルスでも相変化を伴う電気信号のスイッチングが可能のため、近年、電子デバイスにおける不揮発性メモリー材料としての応用研究が精力的に行われている。従来の電気回路技術を用いる方法では電圧パルスの時間幅は 100ps 程度である。THz 帯で動作するデバイス開発を行う上で、ピコ秒程度の時間幅の高電場パルス下での相変化ダイナミクスを調べることは極めて重要である。本研究では、メタマテリアル構造により 2MV/cm まで増強した THz 電場パルスを GST 試料に印加することにより、印加した THz 電場方向に沿ってアモルファスが 1 次元的に結晶化することをはじめて観測した。印加するパルス数と結晶成長の過程を系統的に測定した結果、電場方向への 1 次元的な結晶成長は、THz 電場で誘起された結晶相の先端で電場集中が生じ、結晶化を促進することが原因であることを明らかにした。すなわち THz 周波数帯の電磁場で高速スイッチング動作させた場合には、従来のナノ秒からマイクロ秒に及ぶ電場パルスによる相変化とは異なり、熱拡散の影響が著しく抑制されることを明確に示している。本手法が THz 帯で動作するデバイス開発における重要なツールになることを示している。

研究テーマ C「THz ドレスト状態の生成と光信号変調」

エレクトロニクス技術の高周波極限である THz 周波数帯で動作する高速光変調素子の実現には、THz 光電場下での固体中電子系の光学応答の理解が重要である。特に、半導体中の励起子は大きな振動子強度をもち THz 光と強く相互作用するため大きな光学変調が期待される。GaAs 中励起子の最低励起状態である 1s 状態と 2p 状態のエネルギー差よりも少し小さいフォトンエネルギーを持つ THz 光を試料に入力すると、励起子準位と THz 光が結合して新たにドレスト状態が生成される。ドレスト状態は印加した THz フォトンエネルギー分だけ時間隔に離れた位置に複数のエネルギー準位を持ち、各準位は量子的な重ね合わせ状態にある。実験では THz 電場に応じて変化する試料の周期的な吸収変化を測定し、ドレスト状態からのサイドバンド放射に起因することを確認した。本研究は光電場の位相をドレスト状態の波動関数の位相に直接転写可能なことを示したはじめての実験例であり、多波長光強度変調素子や任意の時間形状を持つ光パルスを生成する光シンセサイザー技術への応用が期待される。

研究テーマ D「誘電体材料の原子配置の超高速制御」

一般に極性材料は、その反転対称性の破れた独自の結晶構造に由来する「二次の非線形感受率」が存在し、入射した光の周波数の二倍（波長が半分）の光を発生させることができる。これは第二次高調波発生（SHG）とよばれ、非線形光学材料の最も重要な応用例の一つであり、レーザーポインターにおける波長変換技術にも利用されている。そのため、発生できる SHG 強度が大きい、すなわち性能指数が高い非線形光学材料の開発は重要な課題となっている。ビスマスとコバルトからなる酸化物セラミックス結晶（ BiCoO_3 ）において、発生する SHG 強度をテラヘルツレーザー光照射で5割以上増強することに成功した。さらに、その SHG 強度変化のスピードは、照射したテラヘルツ波の波形に追従しており、1ピコ秒（1兆分の1秒）以内に变化しそして元の状態に戻ることがわかった。観測された巨大、かつ高速の非線形光学応答の変化はこれまで全く見られなかったもので、非線形光学材料の機能性を制御する新しい手法を示すものである。THz 光が極性材料の波長変換特性を大きく向上させることができる可能性を示しており、室温かつ非接触での新しい非線形光学材料の性能指数アップの技術は新たな超高速光電子デバイス開発につながることを期待される。

研究テーマ E「時間分解 THz-STM 技術の開発」

本研究では、ナノスケールの物性制御技術の実現や、半導体ナノ粒子やペロブスカイト有機太陽電池材料のナノ表面や局所的なヘテロ界面において生じる未解明な光電変換現象の理解に向けて、光励起キャリアが超短時間にもたらず電子状態の変化ダイナミクスを可視化することを目的とした。このために高強度 THz パルスをトンネル電圧バイアスとして、サブピコ秒の時間分解能とナノメートルの空間分解能を有する『時間分解 STM』技術の開発を行った。2013 年にカナダのグループによって、THz パルスをトンネル電流生成の瞬時電場として利用することで、ピコ秒の時間分解能を備えた THz-STM が実現できることが実験実証された。ドイツのグループも THz-STM 開発で世界をリードしているが、世界的にも THz-STM で時間分解計測を実現できるのはこの2グループ（そしてたったの2例）に限られている。本研究では、代表者が得意とする高強度 THz パルスの発生技術を駆使して、低温超高真空 THz-STM の開発を行った。グラファイトとタングステン探針間に THz パルスを照射しながらトンネル電流を測定し、国内ではじめて THz 誘起電流のみで STM を制御してピコ秒電流によるグラファイトの二次元原子像を取得した。

3. 今後の展開

高強度 THz パルス発生技術という新たな手法を用いることによって、超高速エレクトロニクス・スピントロニクスにおいて重要な高電場・磁場現象の観測に成功し、従来の GHz 帯を超えた THz 帯で動作する光・電子デバイス開発において重要な知見を得た。これらの現象をナノスケールで顕在化し観測するために、THz パルスをトンネルバイアスに利用した時間分解 STM の開発を行っている。これによりナノスケールの物性制御技術を実現するとともに、太陽電池材料や電気発光デバイスにおけるナノ界面で生じるキャリア拡散や電荷分離過程といった従来不可能であった光電変換現象の解明に向けた測定技術が実現される。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本研究では、高強度 THz や金属メタマテリアル構造による増大によって、磁性体中スピンの非線形応答、カルコゲナイト化合物における THz 電場誘起相転移、THz ドレスト状態生成による光学応答の制御、半導体中キャリア密度の 1 億倍に達する巨大増幅など、超高速エレクトロニクス・スピントロニクスにおいて重要な高電場・磁場現象の観測に成功し、その学理構築を行った。これらの成果は、従来の GHz 帯を超えた THz 帯で動作する光・電子デバイス開発において重要な知見として今後の超高速デバイス開発において重要な設計指針となるものと期待でき、当初の目標はおおむね達成したものと言える。相転移現象のナノスケール化を行うために、THz パルスを用いたトンネルバイアスに利用した時間分解 STM の開発を行ってきた。国内ではじめて THz 誘起電流のみで STM を制御してピコ秒電流によるグラファイトの二次元原子像を取得し、時間分解測定についても技術開発を推進できた。現在、ナノスケールの物性制御や空間イメージングや励起強度依存性など系統的な測定の準備がほぼ整った。高強度 THz パルスの応用として、THz-STM 技術開発を行い実験結果も取得できるようになり、本項目についても当初の目標を概ね達成したと言える。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

ピコ秒という短期間に半周期だけ振動する高強度テラヘルツ光をナノスケールの近接場領域に閉じ込めることで強度を増大し、従来のDC電場や超短パルスレーザー技術では不可能な新たな物性制御技術を開発、極限的な高密度・高機能固体メモリや超高速電子デバイス開発に資する新規電子材料の設計指針を与えることを目標とした。

結果、超高強度 THz を半導体などに照射した場合に生じる特異な現象、新規電子材料の THz 電場による構造制御、分極制御など当初の計画を確実に実現した。特筆すべき成果として、超高強度 THz パルスを半導体試料 GaAs に照射するポンプ・プローブ実験で、THz 電場と励起子(電子-正孔対)電子状態が結合して形成されるドレスト状態を確認し、位相がロックしており、コヒーレント制御が可能であることを示した。この成果は、物理的に新しい概念を実証しただけでなく、超高速光デバイス開発に向けて極めて重要な知見を与えたものである。さらに、金属メタマテリアル構造体を反強磁性体 HoFeO_3 試料上に作製することにより、テラヘルツ磁場の 30 倍の増強をもたらし、1 テスラの瞬間的磁場によってスピン励起が可能であることを実証した。本研究成果は、初めてスピン運動の非線形応答を観測したものであり、スピン秩序制御に立脚した高速磁気デバイス開発につながるものである。また、Si において、超高強度 THz 照射により、単一電子が 100fs 以内に 1 億倍に増幅する巨大なキャリア増幅を観測し、超高感度光検出器の可能性を示した。超高強度 THz による相変化、特に原子位置の THz による制御に成功し、相変化が熱ではなく THz 電場の影響であることを証明したことも評価に値する。さらに、革新的な測定装置の構築にも挑戦し、THz-STM 複合系を組み上げ、新しいタイプの時間分解 STM を実現した。論文発表も活発で、期間中に PRL 誌など著名なジャーナルに 8 件の論文を掲載した。

超高強度 THz を半導体などに照射した場合に生じる特異な現象の解明などの当初の計画

を確実に実現し、さらに、測定系の実用化を目指して、当初の計画外の THz 帯時間分解 STM を開発したことを考慮すると、さきがけ期間内に目標以上の高いレベルの成果を実現したと評価できる。

基礎的な知見の集積と応用の準備を適切に進め、加速的に成果を挙げてきている。さきがけ期間中にキャリアのステップアップがあり、文部科学大臣表彰若手研究者賞を受賞するなど、研究者としても大きな飛躍があった。優秀な基礎研究者であるが、さきがけを通して応用を考える姿勢が加わったことで視野が確実に広がっている。若手研究者で分野を超えたネットワークができたことも将来の研究に活かされるであろう。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. A. T. Tarekegne, *H. Hirori *et al.*, “Impact ionization dynamics in silicon by MV/cm THz fields”, New J. Phys. 19, 123018/1–7(2017).
2. Y. Okimoto (1 番目), H. Hirori (9 番目) *et al.*, “Ultrafast control of the polarity of BiCoO₃ by optical excitation as investigated by femtosecond spectroscopy”, Physical Review Applied 7, 040106/1–5 (2017).
3. Y. Mukai, *H. Hirori *et al.*, “Nonlinear magnetization dynamics of antiferromagnetic spin resonance induced by intense terahertz magnetic field”, New Journal of Physics 18, 013045/1–12 (2016)
4. K. Uchida, *H. Hirori *et al.*, “Subcycle optical response caused by a terahertz dressed state with phase-locked wave functions”, Phys. Rev. Lett. 117, 277402/1–5(2016).
5. K. Uchida, *H. Hirori *et al.*, “Time-resolved observation of coherent excitonic nonlinear response with a table-top narrowband THz pulse wave”, Appl. Phys. Lett. 107, 221106/1–5 (2015).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0 件

ただし、2 件の特許出願予定

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

【招待講演(国際会議)】

• H. Hirori, “New progress of ultraintense THz pulse generation technology and nonlinear THz spectroscopy,” International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials, 2014 November 13–14, Kobe, Japan.

• H. Hirori, “Sub-cycle control of optical properties by using THz-induced excitonic dressed state,” Workshop on Bright THz Source and Nonlinear THz Field-Matter Interaction, 2016 June 16–17, Rochester, NY, USA.

• H. Hirori, “Dynamical control of optical properties by using a terahertz dressed state,” Photonic West 2017 (PW 2017), January 28–February 2, The Moscone Center, San Francisco, California, USA.

【著作物】

・廣理英基、” 高強度 THz パルス光源技術の新展開(実験技術)”、日本物理学会誌, 71 巻, 頁 34-39, 発表年 2016

【受賞】

・平成28年4月20日・文部科学大臣表彰若手科学者賞・文部科学省・廣理英基
・第 28 回光物性研究会奨励賞、佐成晏之(指導学生)

【プレスリリース】

・京都大学ウェブサイト:テラヘルツ電磁波の照射による超高速誘電体材料の新しい制御法を発見 ―データを超高速処理する光電子デバイスの開発に期待―