

# 固体における高次高調波の発生機構

玉谷知裕\* (産業技術総合研究所 t-tamaya@aist.go.jp)

レーザーの出現によって、時間的・空間的に光のエネルギーを集約させることが可能になり、その結果、弱い光では生じなかった様々な現象が観測されるようになった。これらの現象は総じて非線形光学現象と呼ばれ、低強度では光と物質の相互作用に関する高次の摂動論で記述される。一方で高強度のレーザー光を物質に入射させると、摂動論では取り扱いが困難な、非摂動論的な非線形光学現象が生じる。このような現象は主に原子分子気体を対象に観測されており、現在までにいくつもの多彩で新奇な物理現象が確認されてきた。

近年、この非摂動論的な光学現象が半導体を初めとする固体材料でも観測されるようになった。固体結晶内部では多数の原子が規則正しく整列していることから、一つの原子だけに注目しているときは質的に異なる新しい現象が生じるのでは、と期待されている。その中でも特に注目を集めているのが固体を用いた高次高調波発生である。原子分子気体を用いた高次高調波の発生機構や制御法は既によく知られており、現在ではアト秒レーザー光源を実現するまでに至っている。しかしながら、固体の高次高調波発生は原子におけるものとは発生原理が異なっており、エネルギースケールも異なるため、新たな手法に基づいた光源開発が期待されている。こうした背景から、非摂動論的な固体の高次高調波発生の機構解明に向けて、国内外で活発な研究が進められている。

原子における非摂動論的な高次高調波の発生機構は、トンネル電離を基礎とした3ステップモデルと呼ばれる単純なモデルに基づいて理解されている。しかしながら、この3ステップモデルは原子一つに着目したモデルであり、内部で多数の原子が規則正しく整列している固体の高次高調波の発生

機構を表現するのに適したモデルではない。固体結晶中の周期性を取り扱うための手法として、物性物理学ではブロッホの定理を基礎とするバンド理論が重要となる。そのため固体における高次高調波の発生機構は、高強度の光電場の存在とブロッホの定理を調和させ、バンド構造中のブロッホ電子の運動を考察することで明らかにできるものと期待される。

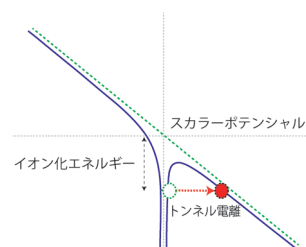
このような考察から我々は、光電場の効果を含めてブロッホの定理を成立させる理論モデルを構築し、固体における高次高調波の発生機構を明らかにした。ここで導入される固体のバンド構造は外場の効果を含めて定義されるので、外場の時間変化に伴いバンド構造も時間的に変化することになる。そして固体における高次高調波の発生機構はこの時間変化するバンド構造上のブロッホ電子の光電場応答により特徴づけられることを明らかにした。直感的には固体における高次高調波の発生機構は、ツェナー効果を基礎とした3ステップモデルで説明され、基本的には原子分子気体と同様の性質を示す。しかしながら、バンド構造の変化がバンドギャップエネルギー以上になる領域では、原子分子気体を越えた新しい性質が期待される。この新しい性質は狭ギャップ半導体やゼロギャップ半導体であるグラフェンで検証可能であることを示し、実際グラフェンを用いた高次高調波の実験で確認することに成功した。

以上のように固体における高次高調波の発生機構は、原子分子気体におけるモデルとの類似性のみならず、固体特有の新規現象の存在を示唆する。この固体特有の特性、新規現象の知見を深めることで新しい光源の開発や、高調波の性質から物質内部のバンド構造や電子状態を探索する高次高調波分光法への展開が期待される。

—Keywords—

**トンネル電離：**

原子における電子の束縛ポテンシャルは、下図に示すように光電場のスカラーポテンシャルによって歪められる。この歪められたポテンシャルの壁を電子がトンネル効果で通り抜けて電離する。この現象は原子に強電場が印加された際に起こり、原子における高次高調波の発生機構を特徴づける。

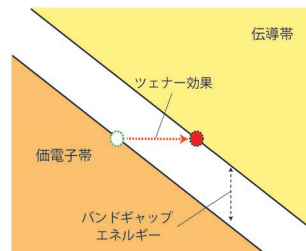


**3ステップモデル：**

原子における高次高調波の発生機構を説明するモデル。上記のトンネル電離で放出された電子がレーザー電場中で振動運動をし、元の親イオンの位置に戻って再結合することで、高次高調波を発生するというもの。

**ツェナー効果：**

固体内部のバンド構造は、下図に示すように光電場のスカラーポテンシャルによって歪められる。この歪められたバンドにおいて、価電子帯の電子がトンネル効果で伝導帯へと通り抜ける。上記のトンネル電離との現象的類似性がみられる。



\* 現所属：東京大学物性研究所 tamaya@issp.u-tokyo.ac.jp