

## 3次元ディラック半金属によるテラヘルツ高次高調波発生

松永隆佑<sup>†</sup> 〈東京大学物性研究所 matsunaga@issp.u-tokyo.ac.jp〉神田夏輝<sup>††</sup> 〈東京大学物性研究所 n-kanda@riken.jp〉池田達彦<sup>††</sup> 〈東京大学物性研究所 tatsuhiko.iked@riken.jp〉

高強度パルスレーザーを気体に照射すると、入射光の整数倍の周波数を持った光が発生する。これは高次高調波と呼ばれ、レーザーを使ってコヒーレントで制御性の高い紫外線や軟X線領域の光パルスを生成できるため、アト秒科学や高分解能光電子分光において活用されている。2014年頃からは固体による**高次高調波発生**も報告されるようになり、よりコンパクトかつ安定な軟X線光源の開発や、固体中で生じる非摂動的な非線形光学応答への興味から、近年活発に研究が進められている。

高次高調波発生の研究では通常近赤外から中赤外の光源が用いられるが、筆者らは中赤外よりさらに数十倍波長が長い、テラヘルツ帯(周波数約1 THz、波長約300 μm程度)の高次高調波発生に注目している。テラヘルツ(10<sup>12</sup> Hz)帯は、情報通信で用いられる電波(10<sup>9</sup> Hz)と可視光(10<sup>15</sup> Hz)のちょうど中間に相当し、技術開発が他より困難な帯域である。この帯域で高効率な周波数変換を実現できれば、次世代の高速エレクトロニクスにおける非線形素子開発に繋がる可能性が期待される。

この点でまず注目されたのは、質量ゼロの相対論的**ディラック電子**を有するグラフェンである。ディラック電子をテラヘルツ電場によってエネルギーバンド内で加速することで巨大な非線形電流が誘起されることが2007年に理論的に予測された。その後グラフェンに高強度テラヘルツパルス照射する実験が数多く行われたが、長らくの間、高調波は観測されなかった。2018年になって巨大加速器から発生させた高強度テラヘルツ光源を用いた実験により、ついにグラフェンからのテラヘルツ周波数帯の高調波発生が観測され、非線形感受率が他の物質と比べて7桁から18桁ほど大

きいという特殊な性質が実証された。しかし、それほど高い非線形感受率を持ちながらなぜそれまでの実験では観測されなかったのかという疑問とともに、高調波の発生メカニズムについてもディラック電子とは無関係な熱力学的解釈が提唱されるなど、解明すべき点が多く残されていた。

筆者らは、グラフェンは原子一層の2次元物質であるために相互作用体積が少なすぎることが周波数変換効率を制限していると考え、代わりに砒化カドミウム(Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub>)に注目した。Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub>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。筆者らはCd<sub>3</sub>As<sub>2</sub>であれば数百nmの厚さの薄膜によってグラフェンより遥かに大きな相互作用体積を実現することができると考え、実際に室温かつテーブルトップ実験で観測可能なほど高効率なテラヘルツ高調波の発生を観測した。さらに、テラヘルツ電場で加速されている真っ只中にある電子の応答を**ポンププローブ分光**によって詳細に調べることによって、この巨大な非線形応答が、確かにディラック電子のバンド内加速モデルで説明されることを実験と理論の両面から明らかにした。

近年ディラック半金属とともに、空間反転または時間反転対称性が破れたワイル半金属にも大きな注目が集まっている。これらは総称してトポロジカル半金属と呼ばれ、3次元的に質量ゼロの電子が存在する。そのためグラフェンに類似した特異な光応答をバルクとして巨視的に引き出すことが可能であり、特に低周波数帯でその特徴が顕在化するため、従来にない機能性を持った光エレクトロニクス素子の実現が期待される。

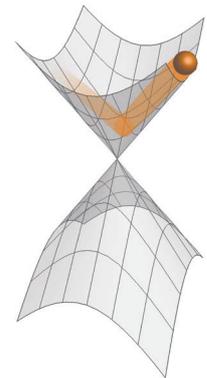
## 用語解説

## 高次高調波発生：

レーザー光を物質に強く集光すると、2倍、3倍の周波数を持つ2次高調波、3次高調波が発生する。この技術は身近なところでも緑色のレーザーポインターなどに使われている。非常に強いレーザーを用いると、その応答は摂動論の範囲を超え、数十倍もの周波数を持つ高次高調波の発生も可能である。

## ディラック電子：

通常の固体における電子は、古典的な自由電子と同様に、エネルギーが運動量の2乗に比例すると近似することができる。しかしある種の固体中では、電子のエネルギーが運動量に比例する。このとき電子は有効質量がゼロとなり、相対論的なディラック方程式に従う特異な振る舞いを示す。その特性に注目した多くの研究が進められている。



## ポンププローブ分光：

強い光で物質の性質を変化させ(ポンプ)、その後の過渡的な性質を微弱な光で観測(プローブ)する実験手法。超短パルス光を使うことで非平衡状態における物質のダイナミクスを時間分解観測することができる。

<sup>†</sup> 編集委員が著者に含まれておりますが、このような場合、会誌編集委員会では別の委員を担当編集委員に選び、記事の公正さを保つという内規に従っております。

<sup>††</sup> 現所属：理化学研究所。