

単一原子層薄膜によって赤外光を1桁波長の短い可視光に変換することに成功 —グラフェンの新しい光機能の発見—

要点

- グラフェンに赤外光を照射すると波長が1桁短い可視光が生成され、楕円偏光状態で効率を最大化できることを世界で初めて発見。
- グラフェンが「ディラック電子状態」を持つことが変換効率の偏光特性に重要な役割を果たしていることを理論的に提示。
- グラフェンの次世代の超高速エレクトロニクスの基幹材料としての利用や赤外光の新しい検出法への応用への道を拓く成果。

概要

京都大学大学院理学研究科教授（高等研究院物質-細胞統合システム拠点連携主任研究者）の田中耕一郎と理学研究科大学院生の吉川尚孝、理学研究科研究員（現職は産業技術総合研究所研究員）の玉谷知裕は、グラフェンに赤外パルス光を照射すると、波長が5分の1、7分の1、9分の1の可視パルス光が生成されることを発見しました。これは「高次高調波発生」と呼ばれる現象であり、炭素の単一原子層（厚さ0.335 ナノメートル、ナノは 10^{-9} ）超薄膜であるグラフェンで実現したのは世界で初めての発見です。可視光の生成効率は赤外光の偏光状態を楕円偏光にすると最大となり、その際生成された可視光の偏光状態は元の赤外光とほぼ垂直になることが明らかとなりました。研究チームは、このような特異な偏光特性は、グラフェンの電子状態がバンドギャップを持たない「ディラック電子状態」に起因することを理論的に示しました。この発見は、グラフェンの新しい光機能を明らかにしたものであり、次世代の超高速エレクトロニクスの基幹材料としての利用や赤外光の新しい検出法への応用への道を拓くものです。本研究成果は、アメリカ科学振興協会（AAAS）によって発行されている「Science」誌において2017年5月19日（米国時間）に公開されました。

（イメージ図を参照）

1. 背景

光の波長を変換する技術は重要な技術であり、すでに我々の社会でいろいろなところで使われています。例えば、緑色のレーザーポインターは 532 nm (ナノメートル) の波長の光ですが、これはレーザーポインターの中でまず波長 1064 nm のレーザー光を発生し、非線形光学結晶という透明な固体を用いて半分の波長 (周波数は 2 倍) である 532 nm のレーザー光を生成しています。これは 2 倍高調波発生と呼ばれる現象です。同様な現象はエレクトロニクスの世界で扱う電波の領域の光でも知られており、周波数を 2 倍、3 倍にする周波数通倍器やオームの法則から逸脱する非線形なデバイスとして利用されています。

1980 年代後半にパルス幅が 100 フェムト秒 (100 超分の 1 秒) の高強度のパルスレーザーを希ガス原子気体に照射すると、波長が数 10 分の 1 (周波数が数 10 倍) の高次の高調波が発生することが発見されました。これは「高次高調波発生」と呼ばれ、強いレーザー光照射下で媒質の非線形性に由来する現象です。現在では、この発生した光が可視から極端紫外線領域に至るまでの超広帯域コヒーレント光源であることを利用して、アト秒パルス生成の手法として使われています。このような原子における高次高調波の発生の物理メカニズムは、カナダの研究者 P. Corkum によって提唱された 3 ステップモデルによってよく理解されています。

このように、高次高調波発生は多くの研究が積み重ねられてきましたが、固体のように気体と異なり高い密度の物質では成功していませんでした。これは、レーザー加工に代表されるように高強度のレーザーを物質に照射すると固体が破壊されてしまうことに起因しています。しかし、数年前に照射するレーザーの波長を赤外の領域に持っていくことで、破壊現象を起こさずに高次高調波を発生可能であることが報告されて以来、研究が盛んになってきました。米国のスタンフォード大学、カナダのオタワ大学、ドイツのレーゲンスブルグ大学やマックスプランク研究所などで、固体結晶に関する論文が矢継早に出されています。様々な理論モデルも提案されていますが、未だに統一見解が取れていないのが現状です。一つには、これまでの研究は厚い固体の結晶が用いられてきたので、光の伝播方向の積み重ね効果が状況を複雑にしてきたことが挙げられます。

今回の研究においては、上で述べた厚さ方向の複雑性を取り除くとともに、なるべくシンプルな構造を持つ固体で実験を行うという狙いのもと、炭素の単一原子層超薄膜であるグラフェンで高次高調波発生の実験を行いました。その結果、世界で初めてグラフェンにおける高次高調波発生を実現したとともに、予想もしなかった楕円偏光依存性を見出したことが世界中の研究者に驚きを与えています。本発見はこれまで統一見解が得られていない固体を用いた高次高調波発生の物理的メカニズムに大きな知見を与えるものと期待されます。

2. 研究手法・成果

本研究においては、35 フェムト秒という短いパルス幅のレーザーからパラメトリック増幅と差周波発生という技法を用いて 4500 nm から 6000 nm の波長の赤外パルス光を生成して、グラフェンに照射し、発生した高調波のスペクトルを計測しました。典型的な結果を、図 1 に示します。横軸は光子エネルギーです (周波数に相当) です。5 次、7 次、9 次の高次高調波が発生しているのがわかります。励起光の強度を変えて測定すると、5 次の高調波は強度の 5 乗ではなく飽和的な振る舞いを示し、ほぼ 2 乗に比例して増加することがわかりました。これは、いわゆる摂動論で理解される領域ではなく、光と物質との強い結合が起きていることを表しています。また、図 1 の結果は直線偏光の赤外光を用いましたが、楕円偏光を用いると変換効率が上がるとともに、結果として出力される可視光の偏光がほぼ 90 度

回転する（垂直の偏光になる）ことを見出しました。同じ実験条件で半導体である MoS₂（二硫化モリブデン）の単一原子層膜においても高次高調波発生を試みたところ、このような奇妙な楕円偏光依存性は見られませんでした。

研究チームでは、この問題に対応するための理論モデルを構築し、解析を進めた結果、グラフェンにおける高次高調波発生と楕円偏光依存性は、グラフェンの電子状態が線形分散をもちバンドギャップを持たない「ディラック電子状態」に起因することを明らかにしました。

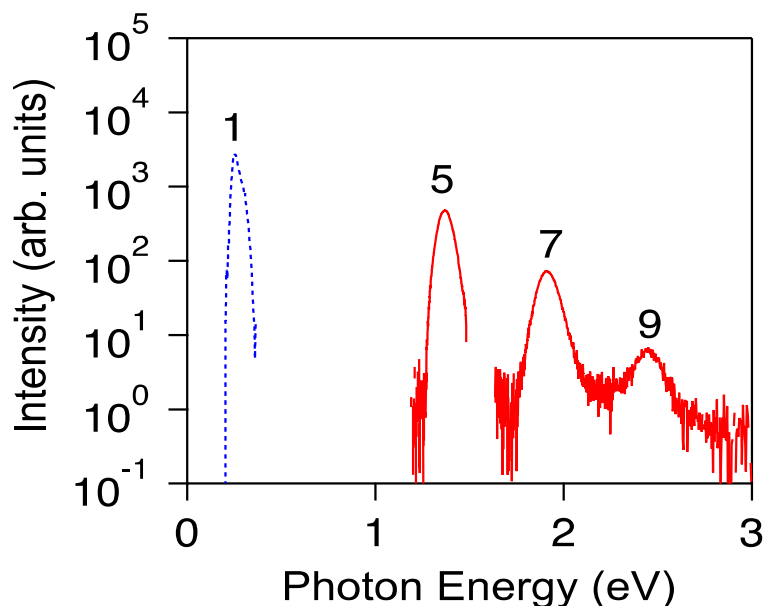


図1. グラフェンの高次高調波スペクトル

3. 波及効果、今後の予定

今回の生成された可視光の強度はまだ弱いですが、グラフェンの積み重ねをうまく制御することにより、積層分だけ生成される可視光の強度を強くすることが期待されます。このような固体材料を用いた高次高調波のエンジニアリングを進めることが今後の課題の一つです。これができれば、赤外から可視に至る非常に幅広い周波数範囲をカバーした新しい光源が実現できます。また、今後赤外光の波長を長くしてテラヘルツ光にすることによって、現在使われているコンピューターの動作周波数（1 ギガヘルツ）や車載レーダー（数十ギガヘルツ）より高速に動作する、テラヘルツ領域の超高速エレクトロニクスへの展開も期待されます。テラヘルツ光領域はセキュリティや超高速広帯域通信への応用がすすめられていますが、大出力光源や高感度の検出器のためのトランジスターのような非線形デバイスが未だに実現できていません。今回の高次高調波発生メカニズムの解明は、このようなテラヘルツ領域の非線形デバイスとしてグラフェンが使える可能性を示しています。今後、デバイス化されたグラフェンに対する同様な研究を進めていく予定です。

4. 研究プロジェクトについて

この研究は以下のプロジェクトによる支援を受けて行われました。

- ・日本学術振興会科学研究費補助金・基盤研究（A）「超高強度テラヘルツ電磁場による半導体電子状態の動的制御」（JSPS KAKENHI Grant Number 26247052）
- ・日本学術振興会特別研究員（DC2）「テラヘルツ光を用いた単層2次元半導体におけるバレー分極の制御」（JSPS fellowship Grant Number 16J10537）

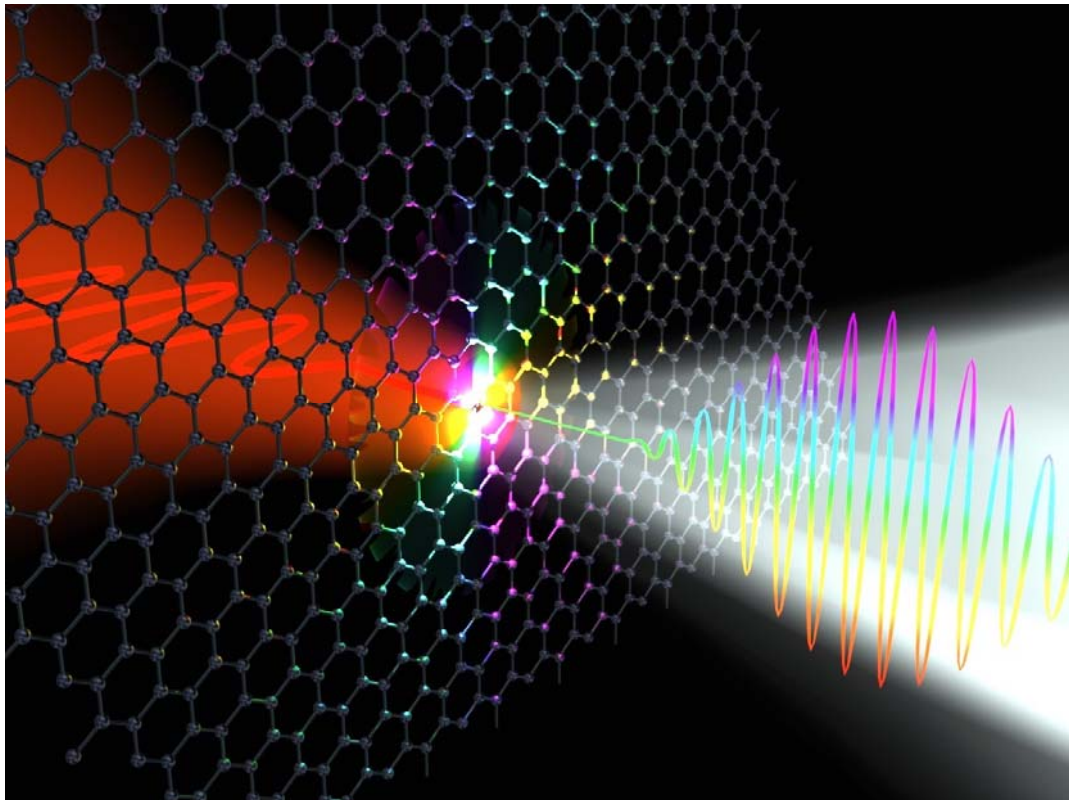
<論文タイトルと著者>

タイトル：High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation

著者：Naotaka Yoshikawa, Tomohiro Tamaya, and Koichiro Tanaka

掲載誌：Science Vol. 356 ISS 6339 (2017).

<イメージ図>



(図の説明)

赤外光パルス（左の赤いビーム）をハニカム構造を持つ単一原子層薄膜であるグラフェンに照射すると、奇数分の1の波長を持つ可視光（右のビーム）への変換が起きることを見出した。