

光と固体の量子力学的な相互作用による新たな光の発生機構を説明
 —高次高調波光の発生機構の解明に向けた新たな知見—

強い極短パルスレーザーが開発されて以来、レーザーと物質の非線形相互作用の研究は常に中心的研究対象でした。特に原子分子にレーザーを照射するとレーザーの光子の数十から数百倍のエネルギーを持つ光子が放出される高次高調波発生(HHG)はアト秒(10^{-18} 秒)パルス光発生過程として利用されています。2011年にはHHGが半導体から発生することが報告され、それ以降固体内電子の新たな非線形現象として注目されると共にその応用が期待されています。

気体からのHHGはレーザー電場による電離・電子の再衝突・脱励起、という3ステップを経て発生します。一方、固体でのHHGは電子・空孔がバンド内を移動する事によるバンド内電流と電子と空孔の再結合によるバンド間電流により発生するためバンド構造を強く反映した現象になると考えられています。

今回ペロブスカイト半導体 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbCl}_3$ 単結晶からのHHGの偏光依存性を計測し、時間依存密度行列計算との比較から上記のバンド内及びバンド間電流由来だけでなくレーザー電場の振動内の時間で起きる過渡的な仮想キャリアの生成消滅がHHG発生の主要原因であることを突き止めました(右図)。このような仮想励起という視点と理解は、高強度なレーザーと物質の非線形な相互作用の理解を促進し、高次高調波を用いた新規な光源開発や物質の分析技術などに応用する際の重要な設計指針を与えることが期待されます。本成果は7月30日 Physical Review B Rapid Communicationに掲載されました。

詳しくは、QSTプレスリリースのWebサイトをご覧ください。
<https://www.qst.go.jp/site/press/42650.html>

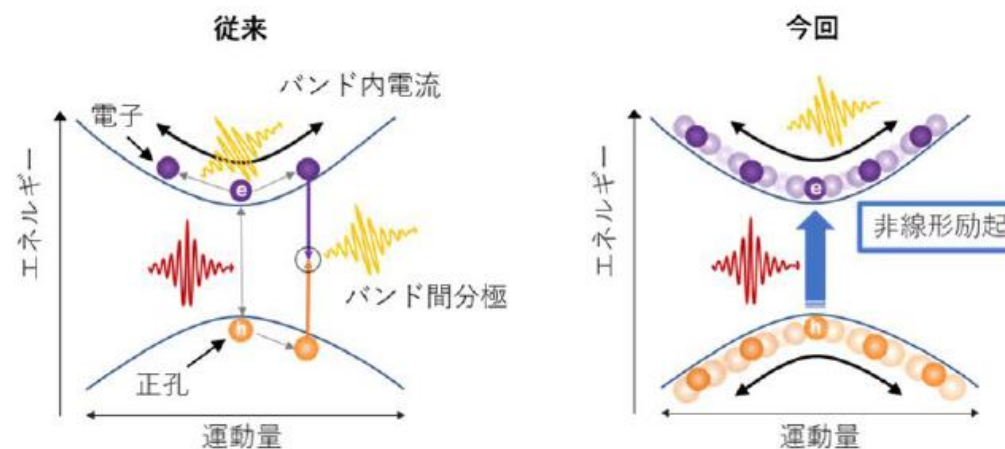


図 従来と今回解明した高次高調波発生機構の概念図。従来のモデルで見落とされていた価電子帯から伝導帯への電子の励起密度の非線形な変化の重要性を今回明らかにしました。右図において、励起キャリアの明るさの強弱は、光電場の振動とともに発生消滅するキャリアの仮想励起を示しています。(プレスリリース資料から転載)