

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：14401

研究種目：新学術領域研究

研究期間：2008～2012

課題番号：20104007

研究課題名（和文）新規絶縁体材料における高密度光励起と相転移現象のダイナミクス

研究課題名（英文）Dynamics of high-density excited states and photo-induced phases in novel semiconductors

研究代表者

芦田 昌明（ASHIDA MASAOKI）

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：6 0 2 4 0 8 1 8

研究成果の概要（和文）：シリコンなど従来の半導体とは異なる新規絶縁体、酸化物などを高密度に光励起した際の物質変化が時間と共にどのように変化するか（ダイナミクス）を研究するため、光の電場の時間波形を測定できる時間領域分光法と呼ばれる手法の広帯域化を行い、電波と光を完全につなぐこと、すなわち振動数 0.1THz (THz=10¹²THz) の遠赤外領域から、世界最高となる 200THz の近赤外領域までカバーすることに成功した。その結果、観測領域の制限でこれまでは測定できなかった物質の応答を調べることができた。さらに、THz 帯の電場の高強度化も進め、世界最高水準の発生効率を実現し、高強度 THz 波照射による物質の変化を見いだすなど、物質の制御へつながる成果を挙げた。

研究成果の概要（英文）：To investigate the dynamics of photo-induced phases of high-density excited states in novel semiconductors, such as oxides, ultrabroadband time domain spectroscopy, which provides electric field detection, has been successfully developed, so that it covers from sub-terahertz up to near-infrared 200 THz, which is the world's highest frequency. As a result, new phonon modes in a quantum paraelectrics were observed. Moreover, the highest terahertz conversion efficiency was achieved and a novel frequency change of the phonon modes in the quantum paraelectrics caused by irradiation of the highly intense terahertz wave, which suggests a new way of material control.

交付決定額

（金額単位：円）

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|---------|------------|------------|-------------|
| 2008 年度 | 20,400,000 | 6,120,000 | 26,520,000 |
| 2009 年度 | 16,900,000 | 5,070,000 | 21,970,000 |
| 2010 年度 | 28,300,000 | 8,490,000 | 36,790,000 |
| 2011 年度 | 16,900,000 | 5,070,000 | 21,970,000 |
| 2012 年度 | 16,900,000 | 5,070,000 | 21,970,000 |
| 総計 | 99,400,000 | 29,820,000 | 129,220,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：テラヘルツ、強相関電子系、酸化物、高密度光励起、光誘起相転移、光物性、空気プラズマ

1. 研究開始当初の背景

|

銅酸化物における高温超伝導の発見以来、電子相関が物性を決定づけるいわゆる強相関電子系の研究が盛んに行われていた。しかし、電気伝導、磁性といった基底状態近傍に関わる現象のみに興味が払われ、光励起状態に関する実験は、超短パルスレーザー技術の普及に伴って、ようやく本格化してきた状況であった。その段階では、計測技術に問題があり、測定できるエネルギー範囲が制限されていたため、特定の素励起のみを観測するに留まるなど、物性の全貌が解明されるにはほど遠かった。

2. 研究の目的

基底状態においても電子相関が強く、一体近似が成立しない絶縁体において、光励起によって生成される電子正孔多体系のダイナミクスを、最新の超高速時間分解分光法を駆使して研究する。特に、励起状態に固有の相関効果「動的相関」による秩序形成、即ち光誘起超伝導転移、絶縁体 - 金属転移など、電子状態の光誘起相転移のダイナミクスの解明を行う。さらに、得られた知見に基づいて光誘起相の制御も試みる。

3. 研究の方法

磁性、超伝導ギャップなど秩序を直接反映する構造が存在するエネルギー領域、 - テラヘルツ域を含む赤外全域 - をカバーする独自の時間領域分光を行うことによって調べる。また、光誘起相転移現象等に重要な役割を演じるフォノン、スピン、誘電応答などがテラヘルツ領域に存在することから、高強度テラヘルツ波を照射することにより、低エネルギー励起をプローブとするだけでなく、相転移現象などの制御も試みる。

上記の研究を進める際、実験装置の性能によって観測領域が制限されたり、励起強度が新現象観測に不足したりすることが生じないよう、赤外分光法の広帯域化及びテラヘルツ波発生の高効率化を精力的に行い、世界最高水準を目指す。

4. 研究成果

(1) 動的電子相関効果の発現と機能性を発見・解明するため、磁気励起や超伝導ギャップなど秩序を直接反映する構造が存在するエネルギー領域であるテラヘルツ域を含む赤外全域をカバーする時間領域分光を開発した。すなわち、媒質の吸収による欠落帯がなく広帯域化が容易な上、損傷閾値が高いため高強度化にも有利な空気プラズマによる赤外パルス発生法を用いて、サブテラヘルツから近赤外域の 200THz に及ぶ周波数領域を完全に切れ目なくカバーすることに成功した。これはコヒーレント赤外光源としては世界最高帯域となっている。さらに、検出にも

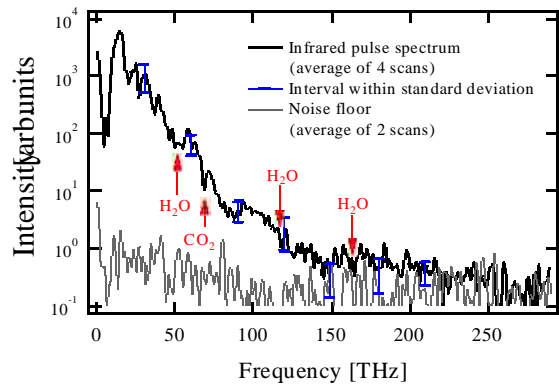


図 1 世界最高帯域の時間領域分光法による電場波形の振幅フーリエ変換スペクトルノイズレベル、代表点での標準偏差、 H_2O と CO_2 による吸収線の代表点も記載

空気プラズマを用いることで、図 1 に示す通り、150THz 付近までの電場形状の直接検出にも成功した。この系を用いて、マルフェロイックス酸化物のエレクトロマグノンや高温超伝導体の超伝導ギャップの観測も行った。こうして、当初目論んだ通り、電子相関の動的応答を観測することができた。

(2) テラヘルツ波の高強度化にも成功し、 $LiNbO_3$ を発生源とした発生方法の最適化を行って、世界最高となる電場強度 1MV/cm を超えるパルス発生に成功した。さらに、この光源を利用して多くの非線形現象を見いだした。例えば、バンドギャップよりも何桁もエネルギーが低いテラヘルツ波の高強度励起によって、バンド端からの発光を初めて観測した。こうした損動的な理解ができない新奇現象を次々に発見した。

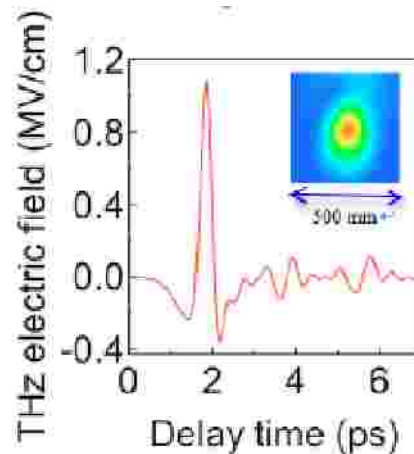


図 2 世界最高強度のテラヘルツ波の時間応答とビームパターン
1MV/cm を超える電場強度を初めて達成

例えば、冒頭で述べた超広帯域テラヘルツ波時間領域分光系を用いてフォノン分散の

様子を明らかにしてきた SrTiO₃ 薄膜を対象に、上記の高強度テラヘルツ波パルスを用いて、大きな格子変形を誘発することによるフォノン周波数の変調の観測に成功した。これは新規誘電転移発現の可能性を示すもので、新たに開発した広帯域測定と高強度励起の組み合わせで、動的電子相関の制御を行う端緒を得た。さらに高強度励起を高温超伝導体にも適用し、超伝導ギャップ以下のエネルギーであるにも関わらず超伝導が壊れること、その様子はテラヘルツ波の波形を制御することによって変化することも見いだしている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計48件)

1. E. Matsubara, M. Nagai, and M. Ashida, Coherent infrared spectroscopy system from terahertz to near infrared using air plasma produced by 10-fs pulses, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 30, pp.1627-1630 (2013), DOI: 10.1364/JOSAB.30.001627, 査読有
2. 田中耕一郎, 廣理英基 “高強度テラヘルツ光発生と非線形テラヘルツ分光”, レーザー研究, 40, 480-485 (2013) (DOI: 無し), 査読有,
3. H. Hirori and K. Tanaka “Nonlinear Optical Phenomena Induced by Intense Single-Cycle Terahertz Pulses”, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 19, 8401110 (2013) (DOI: 10.1109/JSTQE.2012.2221685), 査読有
4. E. Matsubara, M. Nagai, and M. Ashida, Ultrabroadband coherent electric field from far infrared to 200 THz using air plasma induced by 10 fs pulses, Appl. Phys. Lett., 101, 011105 (1-4) (2012) (DOI: 10.1063/1.4732524), 査読有
5. M. Nagai, E. Matsubara and M. Ashida, “High-efficient THz electric pulse generation via optical rectification by suppressing stimulated Raman Scattering”, OSA Technical Digest, 2012, JW2A.54(1-2) (2012) (DOI: 10.1364/CLEO_AT.2012.JW2A.54), 査読有, 謝辞有
6. S. Tani, F. Blanchard, and K. Tanaka “Ultrafast Carrier Dynamics Under High Electric Field In Graphene”, Phys. Rev. Lett., 109, 166603(1-5) (2012)(DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.166603), 査読有
7. 廣理英基, 田中耕一郎 “高強度テラヘルツパルスで誘起する非線形光学現象”, 応用物理学会誌, 81, 291-297 (2012) (DOI: 無し), 査読有
8. H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, and K. Tanaka “Extraordinary carrier multiplication gated by a picosecond electric field pulse”, Nature Communications, vol. 2, 594-1-594-6 (2011) (DOI: 10.1038/ncomms1598), 査読有
9. K. Tanaka, H. Hirori, and M. Nagai “THz Nonlinear Spectroscopy of Solids”, IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 1, 301-312 (2011), (DOI: 10.1109/TTHZ.2011.2159535), 査読有
10. E. Matsubara, Y. Onishi, T. Ishikura, and M. Ashida “Magnetically controlled broadband THz absorption in a multiferroic hexaferrite at room temperature”, CLEO 2011: Technical Digest, JThB110 (2011), (DOI: 10.1109/CLEOE.2011.5942522), 査読有
11. E. Matsubara, Y. Onishi, T. Ishikura, T. Kimura, and M. Ashida “Magnetic-Field Induced Broadband THz Absorption Change in a Multiferroic Hexaferrite at Room

- Temperature ”; Europe CLEO/Europe EQEC 2011:Technical Digest, CC3.2 (2011), (DOI: 10.1109/CLEOE.2011.5942522), 査読有
12. 永井正也, 廣理英基, 田中耕一郎, “高強度テラヘルツパルスが創る物性 ”; 物理学会誌, 66(12), 919-922 (2011), (DOI:無し), 査読有
 13. Y. Minowa, M. Nagai, H. Tao, K. Fan, A. C. Strikwerda, X. Zhang, R. D. Averitt, and K. Tanaka, “Extremely thin metamaterial as slab waveguide at terahertz frequencies ”, IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 097401 (2012), (DOI: 10.1109/TTHZ.2011.), 査読有
 14. I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka, “Ferroelectric soft mode in a SrTiO₃ thin film impulsively driven to the anharmonic regime using intense picosecond Terahertz pulses ”, Physical Review Letters, 108, 097401 (2012), (DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.097401), 査読有
 15. M. Nagai, E. Matsubara, and M. Ashida, “High-efficiency terahertz pulse generation via optical rectification by suppressing stimulated Raman scattering process ”, OPTICS EXPRESS, 20, 6509 (2012), (DOI: 10.1364/OE.20.006509), 査読有
 16. I. Katayama, H. Shimosato, M. Bito, K. Furusawa, M. Adachi, M. Shimada, H. Zen, S. Kimura, N. Yamamoto, M. Hosaka, M. Katoh, and M. Ashida, “Electric field detection of coherent synchrotron radiation in a storage ring generated using laser bunch slicing ”, Appl. Phys. Lett., 100, 111112 (2012), (DOI: 10.1063/1.3694049), 査読有
 17. I. Katayama, R. Akai, M. Bito, H. Shimosato, K. Miyamoto, H. Ito, and M. Ashida, “Ultrabroadband terahertz generation using DAST single crystals”, Appl. Phys. Lett. 97, 021105 (2010) (DOI: 10.1063/1.3463452), 査読有
 18. 片山 郁文, 芦田昌明, 広帯域テラヘルツ分光法とその薄膜評価への応用, Journal of the Vacuum Society of Japan 53, 301-308 (2010) (DOI: 10.3131/jvsj2.53.301)
 19. M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, K. Miyamoto, and H. Ito, “Electric Field Detection of Near-Infrared Light Using Photoconductive Sampling”, Ultrafast Phenomena XVI (Springer Series in Chemical Physics, 2009) 979-981, 査読有
 20. H. Hirori, M. Nagai, and K. Tanaka, “Excitonic Interactions with Intense Terahertz Pulses in ZnSe/ ZnMgSSe Multiple Quantum Wells”, Phys. Rev. B 81, 081305(R) (2010). (Editor's suggestion) (DOI:10.1103/PhysRevB.81.081305), 査読有
- 学会発表) (計 186件)
1. Koichiro Tanaka, Terahertz Nonlinear Spectroscopy with Intense Half-Cycle Pulses, The 1st Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS'12), 2012/4/26-27, Pacifico Yokohama Yokoham, Japan (招待講演), 査読有
 2. E. Matsubara, M. Nagai and M. Ashida

- “Generation of ultrabroadband coherent infrared wave with 200 THz bandwidth using air plasma driven by intense sub 10 fs pulses”, CLEO: Science and Innovations (CLEO_SI) 2012, 2012/5/6-11, San Jose, USA, 査読有
3. M. Nagai, E. Matsubara and M. Ashida “High-efficient THz electric pulse generation via optical rectification by suppressing stimulated Raman Scattering”, Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS) 2012, 2012/5/6-11, San Jose, USA, 査読有
 4. Koichiro Tanaka, Terahertz Near-Field Microscope for bio-sensing, Biophotonics Symposium: Terahertz Waves & Interactions with Biological Structures, 2012/6/29, University of California, Davis, Sacramento, CA, USA, (招待講演), 査読有
 5. E. Matsubara, M. Nagai, and M. Ashida “Generation and detection of ultrabroadband infrared wave exceeding 200 THz”, XVIIIth International Conference on Ultrafast Phenomena (UP2012), 2012年7月8-13日, Lausanne, Switzerland, 査読有
 6. Koichiro Tanaka, Nonlinear Terahertz Spectroscopy in Solids with Single-Cycle Terahertz Pulses, 18th Ultrafast Phenomena Conference (UP2012), 2012年7月9-13日, Lausanne, Switzerland (招待講演), 査読有
 7. M. Ashida, “Ultrabroadband infrared time-domain spectroscopy”, DYCE International Workshop, 2012/8/7-11, Hokkaido, Japan (招待講演), 査読有
 8. K. Tanaka, “Terahertz spectroscopy in solids with single-cycle terahertz pulses”, DYCE International Workshop, 2012/8/7-11, Hokkaido, Japan (招待講演), 査読有
 9. K. Tanaka, “High-Power Terahertz Generation and Terahertz Nonlinear Spectroscopy”, 34th International Free Electron Laser Conference (FEL2012), 2012年8月26-31日, Nara, Japan(招待講演), 査読有
 10. E. Matsubara, M. Nagai and M. Ashida “Generation and detection of ultrabroadband coherent infrared pulse with 200 THz bandwidth”, The 37th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2012), 2012/9/23-28, Wollongong, Australia, 査読有
 11. M. Nagai, M. Kimura, Y. Minowa, M. Ashida, “Phase compensation in THz frequency region using the mirror with metal disk array”, The 37th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2012), 2012年9月23-28日, Wollongong, Australia, 査読有
 12. K. Tanaka, “Nonlinear carrier dynamics induced by intense terahertz wave”, The 37th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz2012), 2012年9月23-28日, Wollongong, Australia (招待講演), 査読有
 13. M. Nagai, M. Kimura, Y. Minowa and M. Ashida, “THz dispersive mirror with metal disk array”, International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT2012), 2012年11月27-29日, Nara, Japan, 査読有
 14. K. Tanaka, “Terahertz Spectroscopy in Solids with Single-Cycle Terahertz Pulses”, International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT2012), 2012年11月

- 27-29日, Nara, Japan (招待講演), 査読有
15. E. Matsubara, Y. Onishi, T. Ishikura, T. Kimura, M. Ashida, Magnetic-Field Induced Broadband THz Absorption Change in a Multiferroic Hexaferrite at Room Temperature, European Conference on Lasers and Electro-Optics and the XIIth European Quantum Electronics Conference 2011, 2012年5月22日, International Congress Center, Munich, Germany, 査読有
16. K. Tanaka, Nonlinear spectroscopy using intense THz pulses with amplitudes exceeding, CLEO Europe 2011, 2011年6月17日, Munich, Germany, (招待講演), 査読有
17. I. Katayama, H. Simosato, M. Bito, K. Furusawa, M. Adachi, M. Simada, H. Zen, S. Kimura, N. Yamamoto, M. Hosaka, M. Katoh, M. Ashida, Coherent Synchrotron Terahertz Radiation Using Electron Bunch Slicing, 35th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves IRMMW-THz2010, 2010 9月5-10日, Rome, Italy, (招待講演), 査読有
18. E. Matsubara, M. Bito, H. Shimosato, M. Ashida, Ultrabroadband Electric Field Generation and Detection from Far Infrared to Optical Communication Frequency, 35th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves IRMMW-THz2010, 2010 9月5-10日, Rome, Italy, (招待講演), 査読有
19. M. Ashida, Ultrabroadband terahertz wave generation and detection with DAST crystal and photoconductive antenna, The 3rd

Korea-Japan Joint Workshop on THz Technology, 2010年12月16-17, Busan, Korea, (招待講演), 査読有

20. M. Ashida, Ultrabroadband THz generation and detection with 5-fs pulses, テラヘルツテクノロジーフォーラム 第2回日韓合同ワークショップ, 2008/10/24-25, 三菱ビルコンファレンススクエアエムプラス 丸の内 (招待講演), 査読有

6. 研究組織

(1) 研究代表者

芦田 昌明 (ASHIDA MASAOKI)
大阪大学・大学院基礎工学研究科 教授
研究者番号: 60240818

(2) 研究分担者

田中 耕一郎 (TANAKA KOICHIRO)
京都大学 学内共同利用施設等 教授
研究者番号: 90212034

(3) 連携研究者

松原 英一 (MATSUBARA EIICHI)
大阪大学・大学院基礎工学研究科 特任助教
研究者番号: 10421992

広理 英基 (HIRORI HIDEMOTO)
京都大学 物質 - 細胞統合システム拠点 特定拠点助教
研究者番号: 00512469

白井 正伸 (SHIRAI MASANOBU)
京都大学 物質 - 細胞統合システム拠点 特定拠点助教 (H24.3 まで連携研究者として参画)
研究者番号: 30303803

渡辺 雅之 (WATA1NABE MASAYUKI)
京都大学 大学院人間環境学研究科 助教
研究者番号: 20240525