研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 2 年 6 月 1 8 日現在

機関番号: 11301 研究種目: 若手研究(B) 研究期間: 2017~2019

課題番号: 17K14317

研究課題名(和文)位相制御サブサイクル近赤外パルスによる強相関電子系の磁性・誘電性制御

研究課題名(英文)Optical control of magnetic/dielectric properties by a phase contoled sub-cycle near infrared pulse in strongly correlated materials

研究代表者

川上 洋平 (Kawakami, Yohei)

東北大学・理学研究科・助教

研究者番号:60731172

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文):高強度の極短赤外パルス光を用いて、強相関電子系の磁性/誘電性の超高速制御を実験的に検証した。自作の光源(パルス幅 <6 fs、瞬時電場強度 >100 MV/cm)を用いて、強相関電子系を対象に時間分解実験を行った。電荷秩序絶縁体 -(BEDT-TTF)213では絶縁体から金属への完全な光誘起相転移とそれに伴う強誘電性の消失(伝導性/誘電性の変化)、有機超伝導体 -(BEDT-TTF)2Cu[N(CN)2]Brでは超伝導転移に敏感な誘導放出と第二点調波発生(光機能性)が観測され、キタエフ型量子スピン液体候補物質 -RuC13では超高速度は原の可能性が表された。 速磁気操作の可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義 超伝導や強磁性、強誘電性、マルチフェロイクスといった特徴的な電気・磁気的性質を示す強相関電子系は次世 代超高速エレクトロニクスを支える候補材料のひとつである。本研究では、その電子物性の超高速光制御を検証 した。極限的な単一サイクル~サブサイクル光を用いた実験から、電荷秩序型有機物質における強誘電性の光消 失、非BCS型有機超伝導体における非摂動論的な電荷駆動や新奇な光機能性を観測し、さらに、量子スピン液体 におけるフェムト秒磁気操作の可能性も示された。これらの結果は、強相関電子系物質と高強度極短パルス光を 組み合わせた次世代超高速エレクトロニクスの基幹技術の創生につながる。

研究成果の概要(英文): Optical controls of magnetic and dielectric properties in strongly correlated materials have been investigated using ultrashort near infrared (NIR) pulses. We have performed time-resolved experiments using the extremely short pulse (instantaneous field intensity > 100 MV/cm, pulse width <6 fs). As a result, we have observed an ultrafast disappearance of ferroelectricity (complete photoinduced insulator to metal transition) in charge ordered organic crystal a-(BEDT-TTF)213 and novel optical functions (stimulated emission and second harmonic generation) sensitive to a superconducting transition in an organic superconductor k-(BEDT-TTF)2Cu[N (CN)2]Br. Furthermore, ultrafast polarization rotation induced by an extremely short circularly polarized pulse has been detected in a quantum spin liquid material a-RuCl3. This result indicates a possibility of femto-second control of the magnetic property.

研究分野: 光物性

キーワード: 超高速ダイナミクス 光誘起相転移 機超伝導体 量子スピン液体 光強電場効果 光磁気効果 第二高調波発生 強相関電子系 有

様 式 C-19、F-19-1、Z-19(共通)

1. 研究開始当初の背景

光電場の位相 (CEP: キャリア - エンベロープ位相) を制御した少数サイクルパルスを用いた高強度場物理の展開が、原子分子系や半導体、誘電体を中心に始まっていた。一方、電子の多体効果 (電子間のクーロン反発やスピン間の交換相互作用、スピン - 軌道相互作用) が顕在化する強相関電子系における高強度場物理は、動的局在や負温度状態の生成、電子相関の斥カー引力変換に伴う光誘起超伝導などが理論的に予測されていたものの、実験による検証は申請者らの報告(動的局在: 移動積分の減少) に限られていた。

2. 研究の目的

近赤外の単一サイクル/サブサイクルパルス(パルス幅 ≤6 fs)を用いた実験から、強相関電子系における高強度場物理の展開を目指した。この極限的な光の超強電場(>100 MV/cm)/磁場(>30 T)は、その物性を支配する微視的な相互作用(電子間のクーロン反発、スピン・軌道相互作用)や電荷移動積分のエネルギー(数100 meV~数 eV)に匹敵する変調を、格子が動き始めるよりもはるかに速い時間内に非破壊的に与えることができる。摂動論の枠を超えた、非摂動論的な電子ダイナミクスに起因する未知の現象の観測が期待できる。本研究では、超伝導や強磁性の発現/安定化の検証をはじめ、新しい非線形応答(伝導性/誘電性/磁性/光機能性)の探索を行った。

さらに本研究で用いた実験システムは、電子間のクーロン反発やスピン - 軌道相互作用、電荷移動の時間スケール(数 fs~数 10 fs)に匹敵する時間分解能(<10 fs)を有するため、非 BCS型超伝導や量子スピン液体など、強相関電子物性の微視的機構の解明も期待できる。

3. 研究の方法

(1) パルス光源の改良と測定系の構築

既存光源の高強度化、短パルス化、位相(CEP)の安定化に向けた改良を行った。さらに、CEPの精密測定/制御システムと、極短円偏光パルスへの変換機構を構築した。

(2) 時間分解ポンプ - プローブ分光

非 BCS 型の有機超伝導体をはじめとする強相関電子系物質を対象に、近赤外極短パルスを用いて時間分解ポンプ - プローブ分光測定(反射/透過配置)を実施した。また、量子スピン液体物質を対象とした実験では、極短円偏光パルスを用いた時間分解磁気光学測定も行った。

(3) 高調波発生分光

位相(CEP)を精密に制御した高強度の近赤外極短パルスを用いて、有機超伝導体や量子スピン液体物質などを対象に高調波発生分光を実施した。

4. 研究成果

(1) 赤外極短パルスの高強度化、短パルス化、位相の精密制御

既存光源の改良によって、赤外極短パルスの高強度化 (>100 MV/cm)、短パルス化 (<6 fs) を達成した。さらに、光電場の位相 (CEP) を調べるための 2f-3f 干渉計を構築した。干渉パターンのリアルタイム測定の結果から、およそ 10 分間での位相のゆらぎが<300 mrad と見積もられた。きわめて高い安定性を示している。さらに位相 (CEP) 制御機構の実装によって、その精密制御が可能となった。

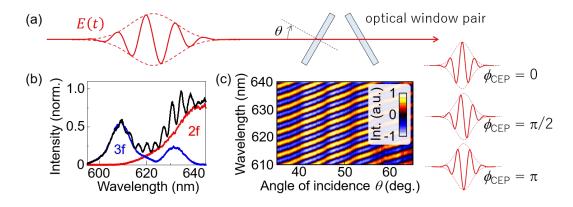


図 1 (a) 光電場の位相 (CEP) 制御の模式図、(b) CEP を反映する 2f-3f スペクトル、(c) 位相制御に伴う 2f-3f 干渉パターンの変化

(2) 有機超伝導体における非線形電荷振動と誘導放出

非 BCS 型の有機超伝導体 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Br を対象に、単一サイクル赤外光(中心 波長 $1.7\,\mu m$ 、パルス幅 $6\,f s$ 、瞬時電場強度> $10\,M V/c m$)を用いた時間分解ポンプ・プローブ測定 を行った。その結果、励起後瞬時($10\,f s$)に誘導放出を反映する赤外ピーク($0.62\,e V$)が観測された(図 $2\,f s$)。そのひとつ目の特徴は、励起光の強度に対して閾値を持って出現する点にある。この非線形な振る舞いは、観測された誘導放出が、高強度の極短赤外光を照射して初めて現れる光強電場効果であることを示している。ふたつ目の特徴は、対象物質の特徴であるモット転移の臨界終点($T_{END}\sim 30\,K$)や超伝導転移($T_{SC}=11.6\,K$)を敏感に反映した温度プロファイルを示す点にある(図 $2\,f s$)の、エネルギースケールに直すと f s00 meV(f s10 に相当する超高速(f s10 に答が、およそ f s2 桁小さいエネルギースケールで特徴づけられる超伝導(超伝導ギャップ:f s3 を敏感に反映する点が興味深い。対象物質における超伝導の微視的な機構に、電荷ゆらぎやクーロン相互作用などの数 f s400 meV の高エネルギーの相互作用が重要な役割を果たしていることを示している。(Nature Photonics f s2 (f s3 (f s4 (f s3 (f s3))

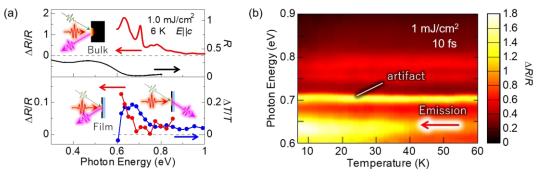


図 2(a) 誘導放出を反映する赤外スペクトル、(b) 誘導放出強度の温度依存性

理論計算からは、観測された誘導放出の起源として BEDT-TTF 分子間の超高速な非線形電荷振動が提唱されている。本研究では、ダブルポンプ - プローブ分光測定によって、この非線形電荷振動を実験的に観測することに成功した。超伝導転移に敏感な誘導放出が、振動周期 6.5 fs、位相緩和時間 70 fs のコヒーレントな非線形電荷振動によって活性化することが明らかとなった。

(3) 有機超伝導体における第二高調波発生

位相(CEP)を精密に制御した極短近赤外光を用いた実験から、有機超伝導体κ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br において、第二高調波発生を観測した。対称心を有する本物質(直方晶、Pnma)で、不活性であるはずの第二高調波(偶数次の高調波)が観測された点が興味深い。その特徴は、試料の冷却と共に超伝導転移に向かって発生強度が増大する点、基本波の位相(CEP)に応じて発生強度が変化する点にある。これらの結果は、観測された第二高調波が、対象物質の特徴である電子相関や超伝導ゆらぎを反映したアト秒~フェムト秒スケールの非線形な電子の運動を反映していることを示している。

(4) 二次元電荷秩序絶縁体における光誘起絶縁体 - 金属転移と強誘電性の光制御

二次元有機伝導体α-(BEDT-TTF)₂I₃ は、電荷秩序転移に伴って強誘電性を示す電子型強誘電体として知られている。極短近赤外パルスを用いて、絶縁体 - 金属転移を反映する反射率と強誘電性(空間反転対称性の破れ)を反映する第二高調波発生の両方をプローブとした時間分解実験を行った。その結果、極短近赤外光の照射によって電荷秩序が完全に(~100%)融解し、金属状態へ移行するとともに強誘電性が消失することが明らかとなった。さらにその後の回復過程において、電荷秩序をほぼ完全に融解した場合にのみ、第二高調波の回復が反射率の回復に対して遅れる様子が観測された。この結果は、光誘起金属状態からの回復過程において、短距離秩序(局所的な電荷の不均化/微視的な強誘電ドメイン構造)が一時的に実現する可能性を示唆している。

(5) 量子スピン液体における超高速磁気制御

量子スピン液体を示すα-RuCl₃を対象に、高強度の極短円偏光パルスを用いた光磁気効果の検証を行った。無磁場下における透過配置の時間分解実験から、励起円偏光のヘリシティに応じて、プローブ光の偏光が逆方向に瞬時に回転する様子を捉えた。数 10 fs の時間スケールでの超高速磁気制御の可能性が示唆される。

本研究で得られた結果は、強相関電子系物質に高強度の極短赤外光を照射することで、新奇な電子物性(伝導性/磁性/誘電性/光機能性)を誘発/制御できることを示している。多彩な電子物性を示す強相関電子系物質と高強度極短光を組み合わせた、次世代超高速エレクトロニクスの基幹技術としての展開が期待される。

5 . 主な発表論文等

「雑誌論文】 計2件(うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)

「無認調文」 前2件(プラ直読刊調文 2件/プラ国際共者 0件/プラオープングプセス 0件)	
1.著者名	4 . 巻
Kawakami Y., Amano T., Yoneyama Y., Akamine Y., Itoh H., Kawaguchi G., Yamamoto H. M., Kishida	12
H.、Itoh K.、Sasaki T.、Ishihara S.、Tanaka Y.、Yonemitsu K.、Iwai S.	
2.論文標題	5.発行年
Nonlinear charge oscillation driven by a single-cycle light field in an organic superconductor	2018年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Nature Photonics	474 ~ 478
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
https://doi.org/10.1038/s41566-018-0194-4	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

1.著者名	│ 4.巻
Kawakami Yohei、Itoh Hirotake、Yonemitsu Kenji、Iwai Shinichiro	51
2.論文標題	5 . 発行年
Strong light-field effects driven by nearly single-cycle 7 fs light-field in correlated organic	2018年
conductors	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	174005-1 ~ 15
担撃終立のDOL / ごごクリナブジークト練団フト	本芸の左伽
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
https://doi.org/10.1088/1361-6455/aad40a	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

〔学会発表〕 計26件(うち招待講演 1件/うち国際学会 5件)

1.発表者名

天野辰哉,赤嶺勇人,大橋拓純,川上洋平,伊藤弘毅,長谷川慶直,佐々木宏也,青山拓也,今井良宗,大串研也,岩井伸一郎

2 . 発表標題

キタエフスピン液体候補物質 -RuCI3における超高速スピンダイナミクス

3 . 学会等名

日本物理学会2019年秋季大会

4.発表年

2019年

1.発表者名

赤嶺勇人,大橋拓純,天野辰哉,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,松野丈夫,岩井伸一郎

2 . 発表標題

5d電子系半金属SrIr03薄膜の超高速光応答II

3 . 学会等名

日本物理学会2019年秋季大会

4.発表年

1.発表者名 川上洋平,天野辰哉,伊藤弘毅,岸田英夫,佐々木孝彦,石原純夫,米満賢治,岩井伸一郎
2 . 発表標題 6 fs単一サイクル近赤外パルスによる有機超伝導体の第2、第3高調波発生
3.学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 大橋拓純,赤嶺勇人,天野辰哉,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,松野丈夫,岩井伸一郎
2.発表標題 ディラック半金属Srlr03薄膜における光キャリアダイナミクス
3.学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4 . 発表年 2019年
1 . 発表者名 川上洋平、天野辰哉、伊藤弘毅、川口玄太、山本浩史、岸田英夫、伊藤桂介、佐々木孝彦、石原純夫、田中康寛、米満賢治、岩井伸一郎
2 . 発表標題 単一サイクル光強電場が駆動する有機超伝導体の非線形電荷振動
3.学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会(招待講演)
4 . 発表年 2019年
1 . 発表者名 川上洋平,天野辰哉,伊藤弘毅,川口玄太,山本浩史,中村優斗,岸田英夫,佐々木孝彦,石原純夫,米満賢治,岩井伸一郎
2.発表標題 6 fs単一サイクル近赤外パルスによる有機超伝導体の第2、第3高調波発生II
3.学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4 . 発表年 2020年

1.発表者名

天野辰哉,赤嶺勇人,大橋拓純,川上洋平,伊藤弘毅,今野克哉,長谷川慶直,佐々木宏也,青山拓也,今井良宗,大串研也,若林裕助, 米満賢治,岩井伸一郎

2 . 発表標題

キタエフスピン液体候補物質 -RuCl3における超高速スピンダイナミクス II

3.学会等名

日本物理学会第75回年次大会

4.発表年

2020年

1.発表者名

大橋拓純,赤嶺勇人,天野辰哉,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,松野丈夫,岩井伸一郎

2 . 発表標題

ディラック半金属SrIrO3薄膜における光キャリアダイナミクス II

3 . 学会等名

日本物理学会第75回年次大会

4.発表年

2020年

1.発表者名

Y. Kawakami, Y. Akamine, T. Amano, H. Itoh, K. Yamamoto, Y. Nakamura, H. Kishida, T. Sasaki, S. Ishihara, K. Yonemitsu, and S. Iwai

2 . 発表標題

Photoinduced charge-order melting triggered by 6 fs single-cycle infrared pulses in -(BEDT-TTF)213

3.学会等名

The 12 International conference on excitonic and photonic processes in condensed matter and nano materials (EXCON2018) (国際学会)

4.発表年

2018年

1.発表者名

T. Amano, Y. Kawakami, Y. Akamine, Y. Yoneyama, H. Itoh, Y. Nakamura, H. Kishida, S. Ishihara, L. Cario, E. Janod, B. Corraze, M. Lorenc, and S. Iwai

2 . 発表標題

6 fs infrared spectroscopy in a Mott insulator V203

3.学会等名

The 12 International conference on excitonic and photonic processes in condensed matter and nano materials (EXCON2018) (国際学会)

4 . 発表年

1	淼	丰	耂	夕

川上洋平,天野辰哉,米山雄登,赤嶺勇人,伊藤弘毅,川口玄太,山本浩史,岸田英夫,伊藤桂介,佐々木孝彦,石原純夫,田中康寛,米 満賢治,岩井伸一郎

2 . 発表標題

6 fs単一サイクル光強電場による有機超伝導体の非線形電荷振動II

3 . 学会等名

日本物理学会2018年秋季大会

4.発表年

2018年

1.発表者名

天野辰哉,赤嶺勇人,川上洋平,伊藤弘毅,長谷川慶直,佐々木宏也,青山拓也,今井良宗,大串研也,岩井伸一郎

2 . 発表標題

ハニカム格子物質 -RuCI3の超高速光応答

3.学会等名

日本物理学会2018年秋季大会

4.発表年

2018年

1.発表者名

天野辰哉,赤嶺勇人,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,石原純夫,Laurent Cario, Etienne Janod, Benoit Corraze, Maciej Lorenc,岩井伸一郎

2 . 発表標題

V203多結晶薄膜における光誘起絶縁体-金属転移の超高速ダイナミクス

3 . 学会等名

日本物理学会2018年秋季大会

4.発表年

2018年

1.発表者名

川上洋平,天野辰哉,赤嶺勇人,伊藤弘毅,川口玄太,山本浩史,岸田英夫,佐々木孝彦,石原純夫,米満賢治,岩井伸一郎

2.発表標題

6 fs単一サイクル光強電場による有機超伝導体の非線形電荷振動III

3 . 学会等名

日本物理学会第74回年次大会

4 . 発表年

-	1	72	#	2 47	
		# 2	セマ	5 2	

天野辰哉,赤嶺勇人,大橋拓純,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,石原純夫,Laurent Cario, Etienne Janod, Benoit Corraze, Maciej Lorenc, 岩井伸一郎

2 . 発表標題

V203多結晶薄膜における光誘起絶縁体-金属転移の超高速ダイナミクス II

3.学会等名

日本物理学会第74回年次大会

4.発表年

2019年

1.発表者名

赤嶺勇人,天野辰哉,大橋拓純,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,松野丈夫,岩井伸一郎

2 . 発表標題

5d電子系半金属Srlr03薄膜の超高速光応答

3.学会等名

日本物理学会第74回年次大会

4.発表年

2019年

1.発表者名

天野辰哉,赤嶺勇人,大橋拓純,川上洋平,伊藤弘毅,長谷川慶直,佐々木宏也,青山拓也,今井良宗,大串研也,岩井伸一郎

2 . 発表標題

ハニカム格子物質 -RuCI3の超高速光応答 II

3 . 学会等名

日本物理学会第74回年次大会

4.発表年

2019年

1.発表者名

赤嶺勇人,天野辰哉,川上洋平,伊藤弘毅,山本薫,中村優斗,岸田英夫,佐々木孝彦,石原純夫,米満賢治,岩井伸一郎

2.発表標題

6fs単一サイクル赤外光によるa-(ET)213の電荷秩序融解II;反射率変化とSHG強度の変化

3 . 学会等名

日本物理学会 第73回年次大会

4 . 発表年

1.発表者名

川上洋平,天野辰哉,米山雄登,赤嶺勇人,伊藤弘毅,川口玄太,山本浩史,岸田英夫,伊藤桂介,佐々木孝彦,石原純夫,田中康寛,米 満賢治,岩井伸一郎

2 . 発表標題

6fs単一サイクル光強電場による有機超伝導体の非線形電荷振動

3.学会等名

日本物理学会 第73回年次大会

4 . 発表年

2018年

1.発表者名

天野辰哉,赤嶺勇人,米山雄登,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,石原純夫,Laurent Cario, Etienne Janod, Benoit Corraze, Maciej Lorenc,岩井伸一郎

2 . 発表標題

反強磁性モット絶縁体V203の赤外6fs分光III

3.学会等名

日本物理学会 第73回年次大会

4 . 発表年

2018年

1.発表者名

Y. Kawakami, Y. Yoneyama, T. Amano, H. Itoh, K. Yamamoto, Y. Nakamura, H. Kishida, T. Sasaki, S. Ishihara, Y. Tanaka, K. Yonemitsu and S. Iwai

2 . 発表標題

Polarization Selectivity of Charge Localization Induced by 7-fs Nearly Single-Cycle Light-Field in an Organic Metal

3.学会等名

12th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2017) (国際学会)

4.発表年

2017年

1.発表者名

川上洋平,天野辰哉,米山雄登,伊藤弘毅,山本薫,中村優斗,岸田英夫,佐々木孝彦,石原純夫,米満賢治,岩井伸一郎

2 . 発表標題

6 fs単一サイクル赤外光による -(ET)213の電荷秩序融解

3 . 学会等名

日本物理学会 2017年秋季大会

4. 発表年

1	びキセク	
- 1	. 架衣石石	

米山雄登,天野辰哉,川上洋平,伊藤弘毅,米山直樹,伊藤桂介,佐々木孝彦,米満賢治,石原純夫,岩井伸一郎

2 . 発表標題

6 fs単一サイクル赤外光によって生成される 型ET塩のドレスト電子状態

3.学会等名

日本物理学会 2017年秋季大会

4.発表年

2017年

1.発表者名

天野辰哉,米山雄登,川上洋平,伊藤弘毅,中村優斗,岸田英夫,石原純夫,Laurent Cario, Etienne Janod, Benoit Corraze, Maciej Lorenc,岩井伸一郎

2 . 発表標題

反強磁性モット絶縁体V203の赤外6 fs分光 II

3 . 学会等名

日本物理学会 2017年秋季大会

4.発表年

2017年

1.発表者名

Y. Kawakami, T. Kato, Y. Yoneyama, T. Amano, H. Itoh, K. Itoh, T. Sasaki, Y. Nakamura, H. Kishida, L. Cario, E. Janod, B. Corraze, M. Lorenc and S. Iwai

2 . 発表標題

Ultrafast orbital excitation by 6 fs pulse in V203

3.学会等名

6th International Conferences on Photoinduced Phase Transitions (PIPT6) (国際学会)

4.発表年

2017年

1.発表者名

Y. Yoneyama, Y. Kawakami, T. Amano, H. Itoh, N. Yoneyama, T. Sasaki, K. Yonemitsu, S. Ishihara and S. Iwai

2 . 発表標題

Ultrafast Mott-criticality driven by strong-field of single-cycle infrared pulse in organic salts

3 . 学会等名

6th International Conferences on Photoinduced Phase Transitions (PIPT6)(国際学会)

4 . 発表年

ſ	1	書	1	計	٠٨.	件

〔産業財産権〕

〔その他〕	
-------	--

有機超伝導体における光の増幅現象を発見-レーザーの原理で超伝導の機構を解明する-
https://www.tohoku.ac.jp/japanese/2018/06/press20180626-02.html

6 . 研究組織

 · 101 / C/NIL/190		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考