

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03800

研究課題名(和文) 高強度単一サイクル赤外光による強相関電子系の高次高調波発生

研究課題名(英文) High-harmonic generation in strongly correlated materials driven by a single-cycle strong infrared pulse

研究代表者

川上 洋平 (KAWAKAMI, Yohei)

東北大学・理学研究科・准教授

研究者番号：60731172

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：光キャリア-エンベロープ位相(CEP)を精密に制御した高強度の単一サイクル近赤外光(パルス幅6フェムト秒)を用いて強相関電子系の高次高調波発生を調べた。要素技術として、超広帯域スペクトルの精密測定手法を開発した。有機超伝導体 型ET塩において、光強電場が駆動するペタヘルツ非線形電流を反映した第二高調波発生を観測した。銅酸化物高温超伝導体YBCOにおいて、CuO₂面とCuO鎖におけるフェムト～アト秒のキャリアダイナミクスが第五高調波に反映される可能性を見いだした。電子強誘電体 型ET塩において、光誘起絶縁体-金属転移に伴って第二高調波が500フェムト秒以内にほぼ完全に消失することを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高次高調波発生は固体の超高速キャリアダイナミクスを調べる新しい手法として注目を集めている。半導体や絶縁体を中心に展開されているこの手法を強相関電子系に適用し、非従来型超伝導や電子強誘電など、強相関系特有の電子物性の微視的起源の解明と超高速光操作の検証を目指した。得られた成果は次世代の強相関光エレクトロニクスの開拓に貢献できる。また、本研究のために開発した精密分光技術は高調波測定以外にも適用可能であり、赤外分光やラマン分光などの広範な分光測定の発展に寄与できる。

研究成果の概要(英文)：High-harmonic generation in strongly correlated materials has been investigated using a carrier-envelope phase (CEP) controlled single-cycle strong infrared pulse. As an experimental method, precise measurement technique of ultrabroadband spectra has been developed. In an organic superconductor k-type ET salt, we have observed second harmonic generation reflecting polarized petahertz nonlinear current driven by a single-cycle strong light field. In a high-temperature superconductor YBCO, polarization dependent 5th harmonic generation probably shows femto/atto-second carrier dynamics in CuO₂ plane and CuO chain. In an organic electronic ferroelectric alpha-type ET salt, we have observed ultrafast (<500 fs) complete suppression of second harmonic generation triggered by photoinduced charge ordered insulator to metal transition.

研究分野：光物性物理学

キーワード：高次高調波発生 強相関電子系 超伝導体 非線形分光 フーリエ分光 時間分解分光 単一サイクル赤外光 キャリアエンベロープ位相

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

固体における非摂動的な電子の駆動とその電子ダイナミクスの観測手法として、高強度のテラヘルツや中赤外パルスレーザーを用いた高次高調波発生が注目を集めていた。たとえば、半導体で発生する高次高調波は電子のバンド内電流やバンド間遷移に起因し、そのスペクトルにはバンド構造の情報が反映される。この手法は材料科学における新しい研究手段として期待され、実験・理論の両側面から、国内外を問わず精力的な研究が開始されていた。しかし、その対象は絶縁体や半導体などの弱相関固体に限定されており、高温超伝導やマルチフェロイクスなどの豊かな電気・磁氣的性質を示す強相関電子系への適用は未開拓の課題であった。

2. 研究の目的

非BCS型の超伝導や量子スピン液体、モット/電荷秩序絶縁体など、強相関電子系のエキゾチックな電気・磁氣的性質は、クーロン反発やスピン-軌道相互作用などの微視的な相互作用を起源に発現する。これらの微視的な、数100 meV ~ 10 eVの相互作用は、フェムト秒~アト秒(数10 fs ~ 数100 as)の超高速電子(電荷・スピン)ダイナミクスとして現れる。本研究では、光キャリア-エンベロープ位相(CEP)を精密に制御した単一サイクルの光強電場(パルス幅6 fs、瞬時電場強度 $\gg 10$ MV/cm)によって固体中の電子を非摂動的に駆動し、電子間クーロン反発やスピン-軌道相互作用を反映した高次高調波を観測する。巨視的な電気・磁気物性の発現における微視的な相互作用の役割の解明を目指すとともに、ペタヘルツ(アト秒の時間スケール)での超高速光操作も検証する。このような極限的な近赤外光パルスを用いた高次高調波発生の研究は光科学の最前線であり、実験手法自体が確立されていない。本研究では、高感度かつ高精度で高次高調波を観測するための要素技術開発も行う。

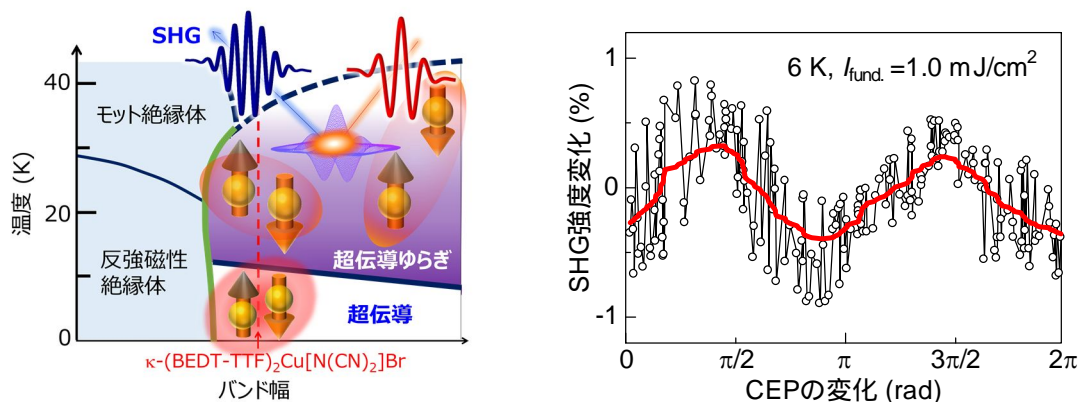
3. 研究の方法

CEPを精密に制御した単一サイクル近赤外光(光の電磁場振動の周期~6 fs)を基本波に用いて、銅酸化物高温超伝導体、有機超伝導体、電子型強誘電体(電荷秩序絶縁体)を対象に高調波分光を行った。これらの実験に並行して、発生する超広帯域な高調波を高感度かつ高精度で観測するための要素技術開発も行った。

4. 研究成果

(1) 有機超伝導体 κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Br における無散乱ペタヘルツ電流と第二高調波発生

CEPを精密制御した単一サイクル近赤外光(パルス幅6 fs)を用いて、有機超伝導体 κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Br の高調波発生を詳しく調べた。詳細な実験から、1) 空間反転対称性が破れていないにもかかわらず第二高調波発生(SHG)が起こること、2) 基本波のCEPに依存してSHG強度が変化することが明らかとなった。試料中の電子が光の高周波強電場によって弾道的に加速されることでフェムト~アト秒スケールの無散乱電流が誘起され、この極短時間の間SHGが活性になったためと考えることができる。すなわち、観測されたSHGは、光強電場によって非摂動的に駆動された多体電子のフェムト~アト秒ダイナミクスを反映する。さらに興味深いことに、このSHG強度は試料の冷却とともに超伝導転移温度 T_c に向かって増大する。この結果は、光電場によって誘起される無散乱電流が超伝導揺らぎによって増強されることを示唆している。[Nat. Commun. 11, 4138 (2020).]



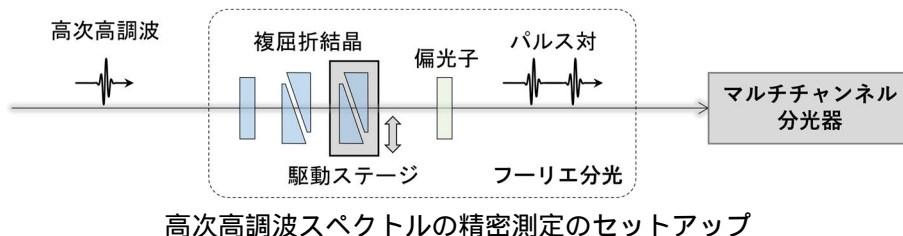
SHG 発生の模式図と CEP に依存して変化する SHG 強度

(2) 高次高調波スペクトルの高感度・精密測定のための要素技術開発

単一サイクル近赤外光によって発生する超広帯域な高次高調波スペクトルの精密測定技術を開発した。複屈折結晶で構成される可視~紫外フーリエ分光システムと回折格子型のマルチチ

チャンネル分光器を組み合わせることで、スペクトル測定の精度を飛躍的に向上することに成功した。各々の分光法を単体で用いた場合よりも 1) ダイナミックレンジを拡大できること、2) 波長分解能を向上できること、3) 広帯域測定時でも波長フィルタが不要なこと、4) 迷光を効果的に除去できることなどの多くの利点が挙げられる。

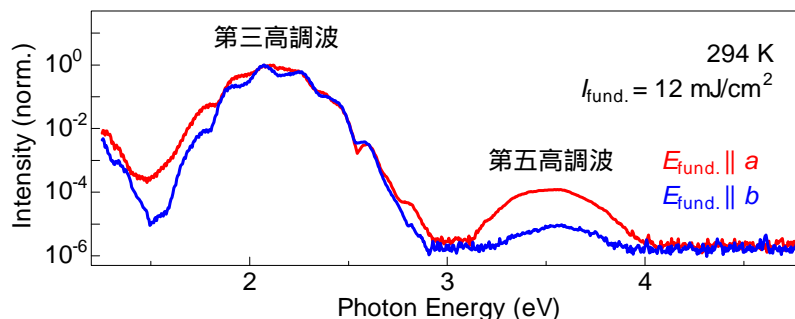
さらに本研究では、広帯域な基本波によって発生する高調波も必然的に広帯域となる点に実験の難しさがある。すなわち、異なる次数の高調波がスペクトル上で重なるため、観測される高調波の次数の同定が困難となる場合がある。この課題を解決するための技術開発にも取り組み、上記のフーリエ分光技術を応用して高調波を“狭帯域化して”観測する手法も開発した。



高次高調波スペクトルの精密測定の設定アップ

(3) 銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の高次高調波発生

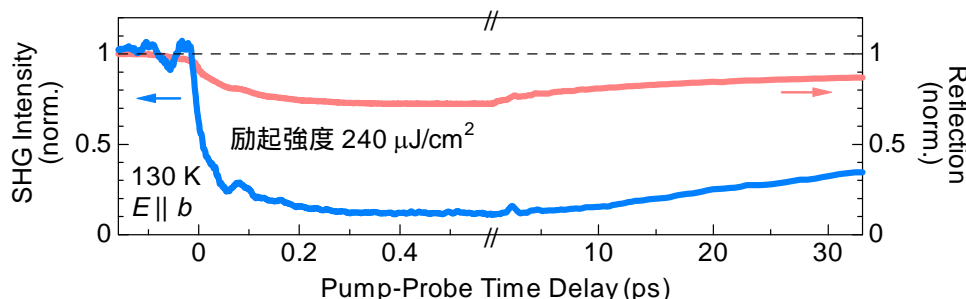
開発した精密測定技術を用いて銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (最適ドーピング、 $T_C = 92 \text{ K}$) の高次高調波発生分光を行い (試料温度 295 K 、基本波強度 12 mJ/cm^2)、第三高調波 (THG) と微弱な第五高調波 (5HG) の観測に成功した。5HG スペクトルの幅は摂動論的な過程から見積もられる値よりも狭く、多体電子のフェムト～アト秒ダイナミクスを反映した非摂動論的な過程によるものと考えられる。さらに特徴的な結果として、THG 強度が基本波の偏光に依らない一方、5HG 強度は基本波の偏光を a 軸に平行とした場合の方が b 軸に平行とした場合よりも約一桁大きいことも明らかとなった。これらの結果は、本物質の特徴である CuO_2 面 (ab 面内) と CuO 鎖 ($\parallel b$ 軸) における超高速 (フェムト～アト秒) キャリアダイナミクスの違いを示唆している。今後の展望として、低温条件下での実験などのさらに発展的な研究によって、超伝導状態における CuO_2 面と CuO 鎖のキャリアの超高速な微視的関連性の解明などが期待できる。



銅酸化物高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (最適ドーピング) の第三および第五高調波スペクトル

(4) 電荷秩序を起源とする電子強誘電体 $\alpha\text{-(ET)}_2\text{I}_3$ の時間分解第二高調波発生分光

電子強誘電体 $\alpha\text{-(ET)}_2\text{I}_3$ を対象に光励起 - SHG プロブ実験を行い、光誘起絶縁体 - 金属転移の詳細なダイナミクスの解明を目指した。SHG 強度と赤外反射率の時間プロファイルを比較することで、光誘起金属 / 強誘電ドメインのメソスコピックな (フェムト秒 - ナノメートルの) 時空間ダイナミクスを示唆する結果が得られた。さらに、光誘起金属ドメインを高密度に生成すると SHG が超高速 ($< 500 \text{ fs}$) にほぼ完全に消失することも明らかとなった。電子強誘電体の非線形光応答を利用したフェムト秒スイッチングナノデバイスへの応用の可能性を示している。



電子強誘電体 $\alpha\text{-(ET)}_2\text{I}_3$ における光励起後の SHG 強度と赤外反射強度の時間プロファイル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kawakami Y., Amano T., Ohashi H., Itoh H., Nakamura Y., Kishida H., Sasaki T., Kawaguchi G., Yamamoto H. M., Yamamoto K., Ishihara S., Yonemitsu K., Iwai S.	4. 巻 11
2. 論文標題 Petahertz non-linear current in a centrosymmetric organic superconductor	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 4138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-17776-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Iwai Shinichiro, Kawakami Yohei, Itoh Hirotake, Yonemitsu Kenji	4. 巻 237
2. 論文標題 Petahertz charge dynamics in a correlated organic superconductor	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Faraday Discussions	6. 最初と最後の頁 353 ~ 367
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2FD00004K	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -
1. 著者名 岩井 伸一郎、川上 洋平、伊藤 弘毅、米満 賢治	4. 巻 77
2. 論文標題 有機超伝導体におけるペタヘルツ電子ダイナミクス	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 304 ~ 309
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11316/butsuri.77.5_304	査読の有無 無
オープンアクセス 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	国際共著 -
1. 著者名 岩井伸一郎、川上洋平、伊藤弘毅、米満賢治	4. 巻 50
2. 論文標題 有機超伝導体におけるペタヘルツ電界誘起光電流操作	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 レーザー研究	6. 最初と最後の頁 313-317
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 Amano T., Kawakami Y., Itoh H., Konno K., Hasegawa Y., Aoyama T., Imai Y., Ohgushi K., Takeuchi Y., Wakabayashi Y., Goto K., Nakamura Y., Kishida H., Yonemitsu K., Iwai S.	4. 巻 4
2. 論文標題 Light-induced magnetization driven by interorbital charge motion in the spin-orbit assisted Mott insulator -RuCl ₃	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 L032032-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.4.L032032	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 天野辰哉、川上洋平、伊藤弘毅、米満賢治、岩井伸一郎	4. 巻 57
2. 論文標題 -RuCl ₃ における光磁気効果と超高速電荷ダイナミクス	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 667-679
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス 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	国際共著 -

[学会発表] 計18件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Y. Kawakami, T. Amano, H. Ohashi, H. Itoh, K. Yamamoto, Y. Nakamura, H. Kishida, T. Sasaki, S. Ishihara, Y. Yonemitsu, and S. Iwai
2. 発表標題 Photoinduced melting of charge-order triggered by a 6-fs infrared pulse in a ferroelectric organic salt -(BEDT-TTF) ₂ I ₃
3. 学会等名 7th International Conferences on Photoinduced Phase Transitions (PIPT7) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 天野辰哉、川上洋平、伊藤弘毅、今野克哉、青山拓也、今井良宗、大串研也、若林裕助、後藤貴太、中村優斗、岸田英夫、米満賢治 岩井伸一郎
2. 発表標題 スピン軌道モット絶縁体 -RuCl ₃ における超高速磁気光学応答
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 昆彬之, 加藤遼, 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 5d電子系ディラック半金属SrIrO ₃ 薄膜における超高速光キャリアダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加藤遼, 昆彬之, 大橋拓純, 天野辰哉, 川上洋平, 伊藤弘毅, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 西寄照和, 大串研也, 岩井伸一郎
2. 発表標題 高温超伝導体YBa ₂ Cu ₃ O _y の超高速準粒子ダイナミクスII
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 川上洋平, 天野辰哉, 伊藤弘毅, 山本薫, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 米満賢治, 岩井伸一郎
2. 発表標題 電子型強誘電体 -(ET) ₂ I ₃ O ₆ fs SHG分光
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大橋拓純, 天野辰哉, 川上洋平, 伊藤弘毅, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 西寄照和, 大串研也, 岩井伸一郎
2. 発表標題 高温超伝導体YBa ₂ Cu ₃ O _y の超高速準粒子ダイナミクス
3. 学会等名 第31回光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 天野辰哉, 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 -RuCl ₃ における超高速光応答
3. 学会等名 第31回光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大橋拓純, 天野辰哉, 川上洋平, 伊藤弘毅, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 西寄照和, 大串研也, 岩井伸一郎
2. 発表標題 高温超伝導体YBa ₂ Cu ₃ O ₇ の超高速準粒子ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 天野辰哉, 大橋拓純, 川上洋平, 伊藤弘毅, 今野克哉, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 若林裕助, 後藤貫太, 中村優斗, 岸田英夫, 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 -RuCl ₃ における超高速スピンダイナミクス III
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川上洋平
2. 発表標題 強相関電子系における光誘起相転移と光強電場効果の研究
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yohei Kawakami, Tatsuya Amano, Hirozumi Ohashi, Hirotake Itoh, Takahiko Sasaki, Kenji Yonemitsu, Shinichiro Iwai
2. 発表標題 Second harmonic generation driven by petahertz non-linear current in a centrosymmetric organic superconductor
3. 学会等名 The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena (UP2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Amano, Y. Kawakami, H. Itoh, T. Aoyama, Y. Imai, Y. Nakamura, H. Kishida, K. Yonemitsu and S. Iwai
2. 発表標題 Ultrafast magnetization driven by spiral current in Kitaev spin liquid -RuCl ₃
3. 学会等名 International Conference on Ultrafast Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 天野辰哉, 川上洋平, 伊藤弘毅, 今野克哉, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 若林裕助, 後藤貫太, 中村優斗, 岸田英夫, 米満賢治, 岩井伸一郎
2. 発表標題 スピン軌道モット絶縁体 -RuCl ₃ における超高速磁気光学応答II
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 昆彬之, 加藤遼, 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 5d電子系ディラック半金属SrIrO ₃ 薄膜における超高速光キャリアダイナミクスII
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加藤遼, 昆彬之, 大橋拓純, 天野辰哉, 川上洋平, 伊藤弘毅, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 西寄照和, 大串研也, 岩井伸一郎
2. 発表標題 高温超伝導体YBa2Cu3Oyの超高速準粒子ダイナミクスIII
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yohei Kawakami
2. 発表標題 Ultrafast SHG spectroscopy of charge ordering ferroelectric -(ET)2I3
3. 学会等名 French-Japan International Research Lab. "Dynamical Control of Materials" Kick-off meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 岩井伸一郎, 天野辰哉, 川上洋平, 伊藤弘毅, 米満賢治
2. 発表標題 超伝導体、強相関電子系におけるベタヘルツ電子駆動
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計6件

産業財産権の名称 高次高調波観測装置、及び高次高調波観測方法	発明者 岩井伸一郎、川上洋平	権利者 国立大学法人東北大学
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2021/045369	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 光スイッチ素子、光スイッチ装置、光通信システム及び光コンピュータ	発明者 岩井伸一郎、川上洋平、天野辰哉、大串研也、米満賢治	権利者 国立大学法人東北大学、学校法人中央大学
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2021/044368	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 キャリアエンベロープ位相測定装置、安定化光源及びキャリアエンベロープ位相測定方法	発明者 川上洋平、岩井伸一郎	権利者 国立大学法人東北大学
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2021/046199	出願年 2021年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 分光装置、分光方法、ラマン散光散乱分析装置、ルミネセンス分光分析装置、及び高次高調波光源観測装置	発明者 岩井伸一郎、川上洋平	権利者 国立大学法人東北大学
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2022/008650	出願年 2022年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 光スイッチ素子、光スイッチ装置、光通信システム及び光コンピュータ	発明者 岩井伸一郎、川上洋平、天野辰哉、大串研也、米満賢治	権利者 国立大学法人東北大学、学校法人中央大学
産業財産権の種類、番号 特許、2020-203352	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 高次高調波観測装置、及び高次高調波観測方法	発明者 岩井伸一郎、川上洋平	権利者 国立大学法人東北大学
産業財産権の種類、番号 特許、2020-205358	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

<p>超伝導体内の電流を光で操ることに成功 究極の短パルスレーザー技術が拓くペタヘルツ電子テクノロジー https://www.tohoku.ac.jp/japanese/2020/08/press20200819-01-peta.html 光による磁気スイッチの新たな原理を発見 超低消費電力・超高速光磁気メモリなどの実現に期待 https://www.tohoku.ac.jp/japanese/2022/08/press20220824-02-light.html</p>

6. 研究組織

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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
フランス	CNRS	レンヌ第一大学	ナント大学