

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔令和5（2023）年度 中間評価用〕

令和5年3月31日現在

研究期間：2021～2025
課題番号：21H04988
研究課題名：高強度テラヘルツ・中赤外パルスによる強相関係の超高速量子相転移の
開拓
研究代表者氏名（ローマ字）：岡本 博 (OKAMOTO Hiroshi)
所属研究機関・部局・職：東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授
研究者番号：40201991

研究の概要：

本研究では、電磁場に対して高い応答性が期待される強相関物質（モット絶縁体、電子誘電体、マルチフェロイクス等）に対し、透明領域において大きな電場（磁場）振幅を持つテラヘルツ或いは中赤外パルスを照射し、量子トンネル過程による絶縁体－金属転移、分子間電子移動による常誘電－強誘電転移、及び、電子（スピン）の量子力学的運動に基づく新しい機構による分極や磁化の制御を実現することを目指す。

研究分野：固体物性、レーザー分光

キーワード：光誘起相転移、非線形光学、強相関係、テラヘルツ光、中赤外光

1. 研究開始当初の背景

近年、固体に光を照射することにより、その電子構造や物性を高速に制御しようという試み（光誘起相転移の研究）が盛んに行われている。この現象を機能として活かすには、光による物性変化をいかに高速・高効率で起こすかが鍵となる。この観点から研究代表者がこれまで注目してきた物質が強相関係であり、その光誘起相転移の典型例として、遷移金属化合物の光誘起モット絶縁体－金属転移や分子性物質の光誘起イオン性－中性転移等がある。しかし、これらの現象において光による電子励起が緩和する過程で生じる系の温度上昇は、しばしば非平衡ダイナミクスの解明（基礎的観点）と高速スイッチの実現（応用的観点）の両面で問題となる。これを解決する有望な方法は、テラヘルツ光や中赤外光を励起に用いる方法である。

2. 研究の目的

本研究では、強い電磁場パルスに対して高い応答性が期待される強相関物質（モット絶縁体、電子誘電体、マルチフェロイクス等）を対象とし、従来より数倍大きい振幅を持つ電磁場パルスを照射することによって、新しい機構による超高速の電子状態変化や相転移の実現を目指す。具体的には、以下の2項目で研究を行う。

- テラヘルツパルスの高強度化による新規電磁場誘起相転移の探索
- 中赤外パルスの高強度化と広帯域プローブの実現による新規電場誘起相転移の探索

3. 研究の方法

テラヘルツパルスの利点は、ほぼ単一サイクルの電磁場パルスが得られることである。これを使えば、物質の一方向に強電場（その垂直方向に強磁場）を印加することができる。本研究では、大きな電場振幅を持つテラヘルツパルスを発生し、その電場にそった電子状態変化を可視から中赤外域に亘る広帯域超短パルスによって検出する。1 MV/cm を遥かに超える電場振幅のパルスを発生させ、様々な系において、量子トンネル過程によるキャリア生成や電子移動を引き金とした新奇相転移を実現する。このパルスは、大振幅の磁場パルスでもある。しかし、単純な強磁性体では磁化のダイナミクスがピコ秒より遅く、この磁場成分だけを使って磁化を制御することは難しい。そこで、スピンと電荷が結合したマルチフェロイック系を主たる対象として、電場と磁場の両者を効果的に用いた磁化制御を目指す。一方、中赤外光では、10 MV/cm を超える電場振幅を得ることが可能である。このパルスは、数サイクルの振動電磁場として得られる。本研究では、高強度の中赤外パルスを励起光に用い、そのパルスに対する物質の応答を時間幅が 10 fs 以下の可視あるいは近赤外の広帯域超短パルスでプローブする手法を確立する。それを用いて、周期強電場に特有のフロッケ状態を介した相転移など、新しい機構に基づく電子相制御を実現する。

4. これまでの成果

(1) 高強度テラヘルツパルスポンプー広帯域プローブ測定系の開発

チタンサファイア再生増幅器 (RA) の出力で励起したオプティカルパラメトリックアンプ (OPA) の出力 (1500 nm) を有機非線形光学結晶 DSTMS に入射することにより、最大振幅が約 5.6 MV/cm のテラヘルツパルスの発生に成功した。また、可視から中赤外のプローブ光と組み合わせた過渡分光測定系を構築した。

(2) 位相固定中赤外パルスポンプー極短パルスプローブサブサイクル測定系の開発

RA の出力の二倍波から光パラメトリック過程で発生する可視光と近赤外光の両者の時間幅を、それぞれ

れ、6.9 fs および 11 fs まで圧縮した。これによって、中赤外パルスポンプ-サブサイクル分光を、可視から近赤外に至る広帯域で行うことが可能となった。

(3) テラヘルツ電場誘起絶縁体-金属転移

(1)で構築したシステムを用いて、一次元モット絶縁体 ET-F₂TCNQ において、テラヘルツパルスで励起した際の広帯域の反射率変化を測定した。誘電率の虚部 ϵ_2 スペクトルを抽出したところ明瞭なドルーデ応答が観測された。反射率変化は、量子トンネル過程に特有の閾値的な電場依存性を示した。以上から、電場による量子トンネル過程によるキャリア生成を介した絶縁体-金属転移が実証された。この金属化のエネルギー効率を光学ギャップより高い 1.55 eV の光励起によるそれと比較したところ、5 倍以上高いことがわかった。この結果は、本手法が、強相関係のキャリアドープに極めて有効であることを示している。励起子絶縁体 Ta₂NiSe₅ については、電場誘起絶縁体-金属転移の比較実験として、ギャップを超える光励起をした場合の反射スペクトル変化を詳細に調べ、金属化を実証するとともに、その機構を解明した。

(4) マルチフェロイック系のテラヘルツ電磁場誘起磁化制御

マルチフェロイック系であるビスマス銅酸化物 Bi₂CuO₄ において、方向二色性を用いた反強磁性ドメインのイメージング手法を開発するとともに、静電場と静磁場を同時に印加することによって、反強磁性相においても、電気磁気(ME)効果によって反強磁性ドメインを反転できることを明らかにした。次に、テラヘルツパルスの電場と磁場の両者を作用させることによって、反強磁性秩序の強度を変化させ、ME 効果を反映する方向二色性を高速に制御できることを実証した。

(5) 電子型誘電体における中赤外電場誘起分極制御

(2)で構築した光源を用いて、中赤外パルスポンプ-第二高調波プローブ測定系を構築し、水素結合型分子性強誘電体の典型物質であるクロコニックに適用した。具体的には、分子間水素結合を構成するプロトン共鳴励起することにより、強誘電分極を高効率かつ超高速に変調できることを実証した。また、この励起手法によって、高速の分極変化に起因する強いテラヘルツ放射が生じることも明らかにした。

(6) 中赤外電場誘起スピンパイエルス相融解

スピンパイエルス系の分子性物質 K-TCNQ において、分子二量体内の電子移動と結合した分子内フォノンの中赤外パルスで励起したとき、反射率変化にフォノンドレストフロッケ状態による高速の振動構造を伴った特異な応答が観測される。このフロッケ状態の応答を定量的に解析する手法を構築した。更に、同じフォノンを励起することによりスピンパイエルス相の融解(不安定化)を目指したところ、スピンパイエルス機構による二量体変位を減少させることに成功した。本現象は、フォノンドレストフロッケ状態を介した電子物性の新しい制御法(フロッケ・エンジニアリング)の典型例と位置付けられる。

(7) モット絶縁体の三次非線形光学効果を用いたテラヘルツパルスの新しい発生法と位相制御法の開発

一次元モット絶縁体[Ni(chxn)₂Br]Br₂ において、2色のフェムト秒パルスによって奇と偶のパリティを持つ二つの励起子を生成することにより、それらの励起子間の量子干渉に起因する電子の空間的変調に基づくテラヘルツ波の発生に成功した。また、2つの励起子の生成時間の差をアト秒の精度で変化させることにより、テラヘルツ波の位相や振幅、さらに周波数を連続的に制御できることを実証した。この手法によるテラヘルツ放射の効率は、典型的なテラヘルツ放射素子 ZnTe のそれより 5 倍程度大きいことがわかった。本手法で発生されるテラヘルツパルスは、今後、物性制御の研究へ有効に活用できる可能性がある。

5. 今後の計画

テラヘルツパルスポンプ-広帯域プローブ測定系、中赤外パルスポンプ-サブサイクルプローブ分光系の開発が順調に進んだ。今後は、テラヘルツパルスを更に高強度化するとともに、より多様な系において、テラヘルツパルスを用いた絶縁体-金属転移の探索、分極制御・磁化制御の実現を進める。また、フェロアキシャル秩序における新しい非線形応答の探索も行う。さらに、中赤外パルスによるフロッケ状態を介した電子状態制御を試み、その機構を解明するとともに新しい物質制御法としての有効性の実証を図る。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- (1) Phase transition and domain formation in ferroaxial crystals, T. Hayashida, Y. Uemura, K. Kimura, S. Matsuoka, M. Hagihala, S. Hirose, H. Morioka, T. Hasegawa and T. Kimura, Phys. Rev. Materials **5**, 124409:1-10 (2021).
- (2) Charge and Lattice Dynamics in Excitonic Insulator Ta₂NiSe₅ Investigated Using Ultrafast Reflection Spectroscopy, T. Miyamoto, M. Mizui, N. Takamura, J. Hirata, H. Yamakawa, T. Morimoto, T. Terashige, N. Kida, A. Nakano, H. Sawa and H. Okamoto, J. Phys. Soc. Jpn. **91**, 23701:1-5 (2022).
- (3) Visualizing rotation and reversal of the Néel vector through antiferromagnetic trichroism, K. Kimura, Y. Otake and T. Kimura, Nature Communications **13**, 697:1-8 (2022).
- (4) Efficient Mott insulator-metal transition by an intense terahertz electric field pulse via quantum tunneling, N. Takamura, T. Miyamoto, S. Liang, K. Asada, T. Terashige, Y. Takahashi, T. Hasegawa and H. Okamoto, Phys. Rev. B **107**, 85147:1-14 (2023).

7. ホームページ等

<http://pete.k.u-tokyo.ac.jp/>