

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K13860

研究課題名（和文）高強度テラヘルツ波による遷移金属ダイカルコゲナイドの秩序変数操作と動的電子相制御

研究課題名（英文）Manipulation of the order parameters and dynamical electronic phase transition in transition-metal dichalcogenides using intense terahertz-wave pulse

研究代表者

吉川 尚孝 (Yoshikawa, Naotaka)

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・助教

研究者番号：20819669

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、電荷密度波(CDW)を示す遷移金属ダイカルコゲナイド薄膜における、低光子エネルギーのテラヘルツ(THz)波による非熱的なCDW融解現象を観測した。その起源を種々のポンププローブ分光によってダイナミクスから追求し、主にTHz波パルスのエネルギーがCDW形成に関わる電子格子部分系へ選択的注入によるものと結論づけた。CDW融解強度以上で新たなフォノン振動を観測し、超高速な格子の変形が示唆された。また、THz波に誘起される非熱的な状態は100 ps以上持続することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は固体電子系の電子秩序相の一種である電荷密度波について、相転移を特徴づける秩序変数の光による操作と動的な相転移を目指したものであり、成果としてテラヘルツ波による非熱的な電荷密度波の融解現象の観測とその起源解明をした。高強度テラヘルツ波を用いることで効率的かつ1ピコ秒スケールの時間で超高速な電荷秩序の制御を実現し、電荷密度波の制御ツールとして低光子エネルギーのテラヘルツ波を用いることが有用であることを示した。省エネルギーの超高速スイッチングの動作原理などに繋がることを期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we observed the nonthermal melting of CDW by low-photon-energy terahertz (THz) waves in a transition-metal dichalcogenide thin film exhibiting charge density waves (CDW). We investigated the mechanism of the nonthermal melting from the dynamics using various pump-probe spectroscopy and concluded that it originates from selective energy injection into the electron and lattice subsystem involved in CDW formation. A new phonon oscillation were observed above the CDW melting intensity, suggesting ultrafast lattice deformation. We also found that the nonthermal state induced by THz waves live for more than 100 ps.

研究分野：光物性

キーワード：光誘起相転移 遷移金属ダイカルコゲナイド テラヘルツ分光 高強度テラヘルツ波 電荷密度波

## 1. 研究開始当初の背景

超伝導、磁性、強誘電、電荷・スピン密度波などの相転移現象は、電子の電荷、スピン、格子といった複数の自由度が絡まり合って発現しており、複数の秩序相を示す物質ではそれぞれの秩序同士が相関の下に存在している。秩序間の相関を理解し制御することは物質機能として重要であるとともに、発現する物性のミクロスコピックな機構の知見を与える。光励起は動的に秩序間の相関を紐解き、また静的な外力では到達し得ない隠れた秩序相の発現といった新奇な現象を引き出す物性制御のツールとして着目されている。従来は照射光として光子エネルギー1 eV オーダーの近赤外～可視光を用いて高エネルギーに励起された電子の緩和過程に現れる準安定状態の研究が行われてきた。最近、その光源開発の進展に伴い、光子エネルギーの小さいテラヘルツ～中赤外光を用いることで電子励起を介さずに実現する光誘起相転移現象が報告されてきている。銅酸化物高温超伝導体や分子性固体においては、中赤外光を用いてフォノンを励起し格子配置を変調することで転移温度以上でも超伝導が発現する光誘起超伝導が報告され、量子常誘電体においてはテラヘルツ波によってソフトフォノンモードを強く励起すると強誘電相へと転移することが報告された。これらは低エネルギーの光を用いることで電子系の温度上昇を抑えた上で特定のモードを励起するという、周波数や強度がよく制御された光を用いることで実現した結果といえる。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は秩序相に現れる秩序変数の振幅モードを光で励起し、秩序変数の駆動による物性制御・相転移を実現することである。研究対象として特に複数の秩序相を示す電荷密度波 (CDW) 相に着目する。CDW の秩序変数の振幅モードは、電子密度の振幅と格子変位の結合振動モードである。ある種フォノンの性質を持つこの振幅モードを高強度テラヘルツ波によって大振幅駆動することで格子変位を伴って電子状態を大きく変調することが期待できる。近年報告されているフォノン励起による相転移現象との違いは、先行研究は超伝導や強誘電と相関するパラメーターとして格子配置を変化させることで相転移を誘起するが、本研究では秩序変数そのものを光で操作して当該あるいは相関する秩序相を制御する点にある。多秩序系が望ましい理由は、競合秩序を持つ系で CDW 振幅モードを励起することで CDW の抑制に伴う競合秩序の発現・増強といった秩序間のカップリングによる相制御を実現するためである。

## 3. 研究の方法

常圧の熱平衡で超伝導と CDW の両方の相を示す層状遷移金属ダイカルコゲナイド  $3R\text{-TaSe}_2$  薄膜を対象に、高強度テラヘルツ波パルスを用いて CDW 振幅モードの振動を誘起し、ポンププローブ分光によってそのダイナミクスから秩序変数の振る舞いを調べる。テラヘルツパルスの強度を一定以上強くすると CDW が融解すると期待され、その超高速ダイナミクスやメカニズム、非熱的な性質を調べる。

時間遅延をつけた2つのテラヘルツ波パルスを用いる、ダブルパルス励起による相転移のコヒーレント制御の実験も行う。1つ目のパルスで誘起された CDW 振幅モードが2つ目のパルスと constructive に干渉するか destructive に干渉するかを制御し、相転移を起こす or 起こさないのコヒーレント制御を目指す。初期過程としてテラヘルツ波による物質のどのような励起が物性の変化を引き起こすか明らかにし、秩序変数の操作と相転移の関係を理解する。

## 4. 研究成果

### (1) 高強度テラヘルツ波励起による CDW 秩序変数の変化と動的 CDW 融解

CDW を示す遷移金属ダイカルコゲナイド薄膜  $3R\text{-Ta}_{1-x}\text{Se}_2$  にテラヘルツパルスを照射した際のダイナミクスを、近赤外光プローブパルスによるポンププローブ分光によって調べた。弱いテラヘルツ波による励起下では CDW の振幅モードのコヒーレント振動が観測され、2光子励起過程で理解できることがわかった。テラヘルツ波の強度を大きくすると、振幅モード振動がソフト化する様子が観測され、動的に CDW が抑制されていることが示唆された。さらに高強度にすると CDW 振幅モードの振動はもはや観測されなくなり、これは CDW の融解に相当する。これらのダイナミクスはギンツブルク-ランダウ理論に基づく自由エネルギーポテンシャルの変化と運動方程式によって理解できることを示した。

### (2) テラヘルツ波励起による CDW 融解の起源および非熱的性質の解明

CDW 融解とテラヘルツ波による注入エネルギーの関係を考察すると、テラヘルツ波誘起の CDW 融解は単純な系全体の温度上昇とは異なる、非熱的な現象であることがわかった。こういった非熱的 CDW 融解の機構には、THz 波による集団励起モードの共鳴励起に由来する格子駆動の機構と、低エネルギーの部分系に効率的にエネルギーが注入される機構が考えられる。これを明らかにするため、ダブル THz 波パルス励起を用いた実験を行い、CDW 振幅モードのコヒーレント制御と CDW 融解の関係を調べた。その結果、観測された CDW 融解が主に THz 波パルスによる CDW 部分系への選択的エネルギー注入によるものであることがわかった。また、CDW が融解する以上の高強度テラヘルツ波励起下において、CDW 相では見られない振動を観測した。その固有振動数から、観測されたモードは熱平衡においては CDW 転移温度以上でのみ観測されるソフトフォノンモードであると考えられ、THz 波パルスによるエネルギー注入は熱平衡の CDW 融解には至らないにもかかわらず格子の再構成を伴う CDW 融解が起きていることを支持する結果を得た。

### (3) 非熱的 CDW 融解状態の準安定性の解明

強いテラヘルツ波で CDW を融解し、その後 CDW 振幅モードがどのように回復するか調べることで非熱的状態の寿命を調べた。その結果、テラヘルツ波誘起の非熱的 CDW 融解状態の寿命は  $\sim 400$  ps あることがわかり、準安定的に相転移が生じていることを明らかにした。一連の研究によって、低光子エネルギーの THz 波を用いて高効率に非熱的な CDW 融解を実現することができ、テラヘルツ波が CDW 秩序の制御ツールとして有用であることを示した。

## 5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Yoshikawa Naotaka, Suganuma Hiroki, Matsuoka Hideki, Tanaka Yuki, Hemme Pierre, Cazayous Maximilien, Gallais Yann, Nakano Masaki, Iwasa Yoshihiro, Shimano Ryo	4. 巻 17
2. 論文標題 Ultrafast switching to an insulating-like metastable state by amplitudon excitation of a charge density wave	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Physics	6. 最初と最後の頁 909 ~ 914
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41567-021-01267-3	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 該当する

1. 著者名 Shimano Ryo, Yoshikawa Naotaka	4. 巻 11999
2. 論文標題 Amplitude mode-driven ultrafast transition into a hidden state in a thin film of transition metal dichalcogenide	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Ultrafast Phenomena and Nanophotonics XXVI	6. 最初と最後の頁 40
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/12.2611742	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 Yoshikawa Naotaka, Narusaka Ushio, Nishizawa Kunio, Matsuoka Hideki, Tanaka Yuki, Nakano Masaki, Iwasa Yoshihiro, Shimano Ryo	4. 巻 1
2. 論文標題 Terahertz pulse-induced melting of charge density wave through the coherent excitation of amplitude mode in 3R-Ta1+xSe2	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Frontiers in Optics + Laser Science 2021	6. 最初と最後の頁 LTu2F.3
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/LS.2021.LTu2F.3	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8件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Naotaka Yoshikawa
2. 発表標題 Nonthermal melting of charge density wave in 3R-Ta1+xSe2 induced by intense terahertz pulse excitation
3. 学会等名 OPICS & PHOTONICS International Congress (OPIC 2024), LSC2024 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 吉川尚孝, 鳴坂潮, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武蔵摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 テラヘルツ波励起による3R-Ta1+xSe2の電荷密度波の非熱的融解
3. 学会等名 第15回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 吉川尚孝, 鳴坂潮, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武蔵摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 高強度テラヘルツ波による3R-Ta1+xSe2の電荷密度波相の非熱的融解ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会 2020年年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鳴坂潮, 吉川尚孝, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武蔵摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 テラヘルツ波を用いた3R-Ta1+xSe2の電荷密度波相の非熱的融解とそのダイナミクス
3. 学会等名 第14回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Naotaka Yoshikawa, Ushio Narusaka, Kunio Nishizawa, Hideki Matsuoka, Yuki Tanaka, Masaki Nakano, Yoshihiro Iwasa, and Ryo Shimano
2. 発表標題 Terahertz pulse-induced melting of charge density wave through the coherent excitation of amplitude mode in 3R-Ta1+xSe2
3. 学会等名 Frontiers in Optics + Laser Science 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉川尚孝, 西澤邦雄, 鳴坂潮, 松岡秀樹, 田中勇貴, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 3R-Ta1+xSe2電荷密度波相のテラヘルツ第3高調波発生
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鳴坂潮, 吉川尚孝, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 高強度テラヘルツ光励起による3R-Ta1+xSe2の電荷密度波相融解のダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会 2022年年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴坂潮, 吉川尚孝, 松岡秀樹, 田中勇貴, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 2次元物質 3R-Ta1+xSe2の高強度テラヘルツ光励起による電荷密度波相融解ダイナミクス
3. 学会等名 第13回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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