

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 18 日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2014～2015

課題番号：26887003

研究課題名(和文)単一サイクル赤外光パルスを用いた強相関電子系の瞬時強電場効果の研究

研究課題名(英文)Strong light field effect in highly correlated systems driven by single cycle infrared pulses

研究代表者

川上 洋平 (Kawakami, Yohei)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：60731172

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,900,000円

研究成果の概要(和文)：光電場の位相が固定された、パルス幅6 fs(1.3サイクル)、瞬時電場強度100 MV/cmにおよぶ極限的な赤外パルス光源を開発し、多体電子系(固体)を対象に、光の高周波強電場が導く極端非平衡を実験的に検証した。>10 MV/cmの高周波強電場が駆動する電荷の局在化(動的局在：電荷の移動積分 t の減少)として、(TMTTF)₂AsF₆(電荷秩序系)におけるプラズマ周波数 $\omega_p(\propto \sqrt{t})$ の減少、 α -(ET)₂I₃(電荷秩序系)における光誘起金属-絶縁体転移(電荷の局在化)、 κ -(ET)₂X(ダイマーモット系)の金属-絶縁体相境界における光誘起モット転移(ダイマーの安定化：金属-絶縁体)を観測した。

研究成果の概要(英文)：Charge localizations (dynamical localization: decrease of transfer integral t) driven by strong light field are investigated by hand-made 6 fs, 1.3 cycle, 100 MV/cm infrared pulses in charge ordered (CO) and dimer-Mott (DM) type organic conductors. Optical freezing of charge motions - decrease of plasma frequency (proportional to the square root of t) in (TMTTF)₂AsF₆ (CO), photoinduced metal to insulator transitions in α -(ET)₂I₃ (CO) and κ -(ET)₂X salts (DM) - are realized by >10 MV/cm electric field of 1.3 cycle infrared pulses.

研究分野：光物性物理学

キーワード：光誘起相転移 超高速分光 強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

近年のレーザー光の位相、振幅の制御技術の飛躍的な発展に伴って、光と物質の相互作用に関する新たな理解が得られ始めている。原子・分子系においては、電場の振動を数周期しか含まない位相制御パルスを用いた実験から、光の高周波強電場が駆動する電子の運動がアト秒X線の発生へとつながる過程が明らかにされている[1]。

一方、固体(多体電子系)においては、電子状態の光制御が光科学の主要な課題のひとつである。強相関電子系を対象に、電子間相互作用によって局在した電荷の秩序を弱い光で効率的に融解する“光誘起絶縁体 金属転移”をはじめとした、光誘起相転移[2,3]の研究が精力的に進められてきた。しかし、位相を制御した高強度・単一サイクルの極限的な光パルスが駆動する極端非平衡の物理は、特に実験面において明らかに立ち遅れている。理論研究からは、動的局在[4,5]、負温度状態の生成や光誘起超伝導[6,7]、反強磁性秩序の増強[8]などの新奇な現象が予測されているが、実験による検証は未開拓であった。

2. 研究の目的

光の電場振動を1サイクルしか含まない単一サイクル赤外パルス(パルス幅6 fs: フェムト秒、中心波長1.7 μm)の高周波・瞬時強電場(>> 10 MV/cm)を用いて、多体電子系の光制御の新たな展開を図る。本研究では、電子間相互作用が物性を支配する強相関電子系を対象に、理論的に予測されている極端非平衡の中でも最も基本的な動的局在(電荷の局在化: 高周波強電場による電子移動積分 t の減少)の実現に焦点を当てる。この現象は、光誘起絶縁体 金属転移(電子相関によって局在した電荷の秩序の光融解)とは逆の電子状態の変化と言える。光を用いた絶縁体 金属間の双方向制御の可能性を秘めており、最も基本的かつ重要な課題といえる。

3. 研究の方法

- (1) 高強度単一サイクル赤外パルスの発生
光電場の位相が固定された、パルス幅6 fs (1.3 サイクル) 瞬時電場強度100 MV/cm におよぶ極限的な赤外パルス光源を開発した。光パラメトリック増幅器から出力される位相が受動的に固定されたアイドラー光(中心波長1.7 μm)を、Kr ガスを充填した中空ファイバーを用いて1.2-2.1 μm まで広帯域化し、チャープミラーと形状可変鏡を併用してパルス圧縮を行った。
- (2) 反射型ポンプ-プローブ分光
高周波・瞬時強電場が引き起こす極端非平衡を実現・観測するために、赤外極短パルスを用いた反射型ポンプ-プローブ分光を行った。光電場の持続時間が極めて短い(6 fs: 1.3 サイクル)のために、10 MV/cm を超える強電場を非破壊的に試料に印加することができる。さらに、本研究で対象とする有機伝

導体においては、サイト間の電荷の運動の時間スケールがおよそ10 fs ($\sim \hbar/t$) であることから、光パルスの瞬時強電場が誘起する電子状態の変化を電荷移動の時間スケールで追跡できる。

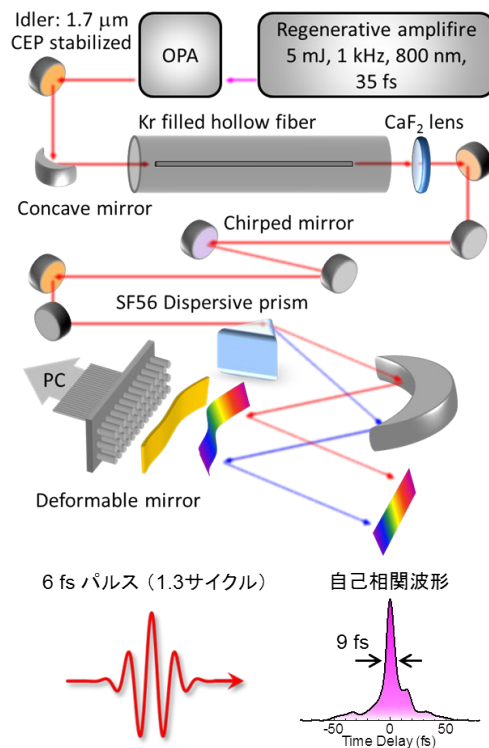


図1. 赤外1.3 サイクルパルス光源の模式図と自己相関波形

4. 研究成果

(1) 二次元有機伝導体 α -(ET)₂I₃ における光誘起金属 絶縁体転移

転移温度 $T_{CO} = 135$ K 以下で電荷秩序(CO)相、 T_{CO} 以上で金属相を示す二次元有機伝導体 α -(ET)₂I₃ は、低温相において光誘起絶縁体 金属転移を示す [9,10]。本研究では、高温金属相において、高周波強電場による電荷の局在化(動的局在)を検証した[11]。

瞬時電場強度 ~ 10 MV/cm の赤外7 fs パルスを照射すると、光励起後 < 50 fs の時間領域において、金属から絶縁体への電子状態の変化を反映するスペクトル形状が現れる(図2 (b)青丸)。極短パルスの高周波強電場がサイト間の電荷の運動を抑制し(動的局在: t の減少) 電荷がET分子上に局在した結果、金属 絶縁体転移が起こることを示している。この時、反射率変化の時間プロファイルには、周期 ~ 20 fs の高周波振動が観測される(図2 (d))。振動のエネルギースケールが $\hbar/20$ fs ~ 0.2 eV であることから、電荷の局在化に伴う電荷ギャップの出現が示唆される。

この結果は、光の高周波強電場による電荷の局在化を介した秩序形成の可能性を示すものと言える。

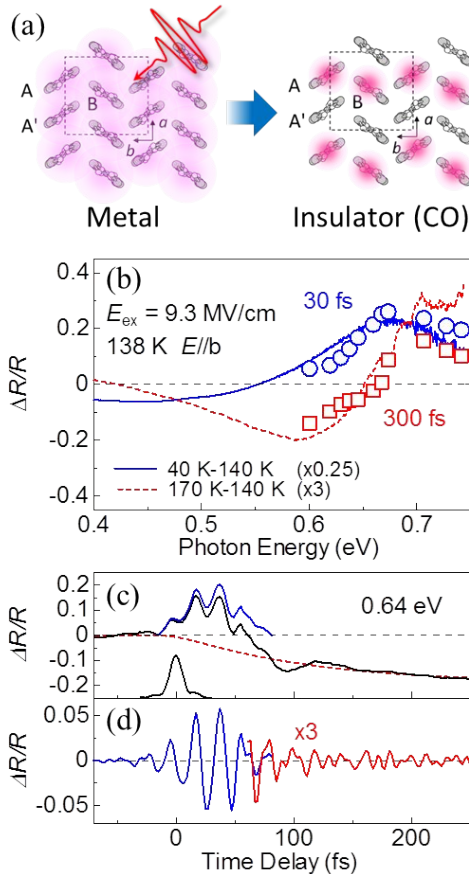


図 2 . (a) α -(ET)₂I₃における電荷局在 (光誘起金属→絶縁体転移) の模式図, (b) 過渡反射スペクトル, (c) 反射率変化の時間発展, (d) 高周波振動成分 (周期 20 fs)

(2) 擬一次元有機伝導体 (TMTTF)₂AsF₆ におけるプラズマ周波数 ω_p の減少

典型的な擬一次元有機伝導体として知られる(TMTTF)₂AsF₆を対象に、高周波強電場 (~ 10 MV/cm) の印加に伴うプラズマ周波数 ω_p の減少を観測した[12]。

この物質は、 $T_{CO}=102$ K 以下で CO 相、 T_{CO} 以上で金属相を示すが、電子相関の効果は比較的弱く、低温から高温までの広い温度領域において、 >0.1 eV の高エネルギー領域の反射スペクトルがローレンツモデルで良く再現される (図 3 (a))。また、散乱周波数 γ が T_{CO} 以上の温度でのみ増大することから、電子間散乱が γ の温度依存性の主要因であることがわかる (挿入図)。

光励起後の過渡反射スペクトルの形状をローレンツモデルで解析することで、 ω_p と γ のダイナミクスを取り出すことができる。図 3 (d) に示すように、光励起後、サイト間の電荷移動の時間スケールに相当する 18 fs の時間をかけて、 ω_p が 2.8 % の減少を示す。その後、 ω_p が電荷ギャップによる変調 (周期 20 fs ~ $\hbar / 0.2$ eV) を伴いながら回復すると共に、 γ が 100 fs の時間スケールで増大する。

これらの結果は、極短パルスの高周波強電場による t の減少を ω_p の低エネルギーシフト

として直接的に捉えたものと言える。また、時間遅れを伴う γ の増大は、電子間散乱によって電荷の運動のコヒーレンスが失われ、電子温度が上昇する過程を反映している。

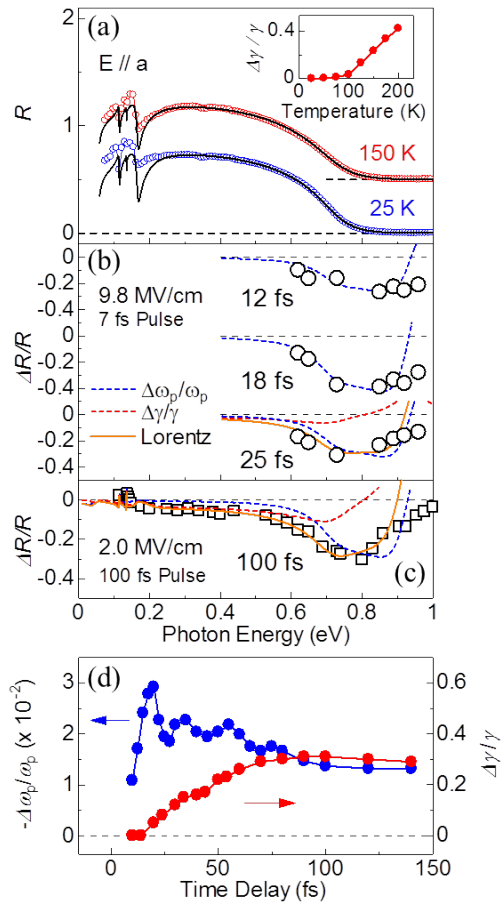


図 3 . (a) (TMTTF)₂AsF₆ の反射スペクトル, (b) 赤外 7 fs パルスを用いて調べた過渡反射スペクトルの時間発展 (15 K), (c) 近中赤外 100 fs パルスを用いて調べた過渡反射スペクトル, (d) ローレンツモデルによって抽出した ω_p と γ の変化の時間発展

(3) ダイマーモット系 κ 型 ET 塩における光誘起モット転移

ET 二分子がダイマーを形成する κ -(ET)₂X (X: アニオン) は、温度や圧力の変化に伴ってモット絶縁体、金属、超伝導などの多彩な電子状態を示す。中でも、金属モット絶縁体の相境界近傍に位置するダイマーモット絶縁体 κ -(d-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br (以下、d-Br) においては、ET ダイマーの結合反結合遷移を弱い光で励起すると、およそ 1 ps の時間をかけて、ダイマーの不安定化を介した絶縁体金属転移が起こる[13]。本研究では、相境界近傍の絶縁体 d-Br と金属相に位置する κ -(h-ET)₂Cu[N(CN)₂]Br (以下、h-Br) を対象とした実験から、光の高周波強電場が駆動する光誘起モット転移の超高速臨界現象を捉えた。

h-Br (金属) および d-Br (絶縁体) 共に、 ≥ 10 MV/cm の強電場を印加すると、電荷がダ

イマー上に局在 (ダイマーが安定化) することを反映し、 <30 fs の時間スケールでダイマー内の遷移エネルギー ω_{dim} が高エネルギーシフトを示す。特に、金属相に位置する h -Br においては、電荷の局在化に伴う金属 絶縁体転移を反映し、温度の低下と共に電荷局在の信号が増大する (図 4 (b) 挿入図)。注目すべきことに、この絶縁化の信号は 20-40 K の温度領域で異常増大を示す。この結果は、金属 絶縁体間の障壁が臨界終点に向かって減少することを反映したものと考えることができる。一方、絶縁体 d -Br においては、光励起後瞬時に起こる電荷局在の信号には特異な温度依存性は現れず、格子変位を伴った絶縁体 金属転移の信号 (励起後 1.2 ps) が低温に向かって増大する (図 4 (c) 挿入図)。これらの結果は、 κ 型 ET 塩における絶縁体 金属間の双方向光制御の可能性を示すと共に、電荷、スピン、格子など多数の自由

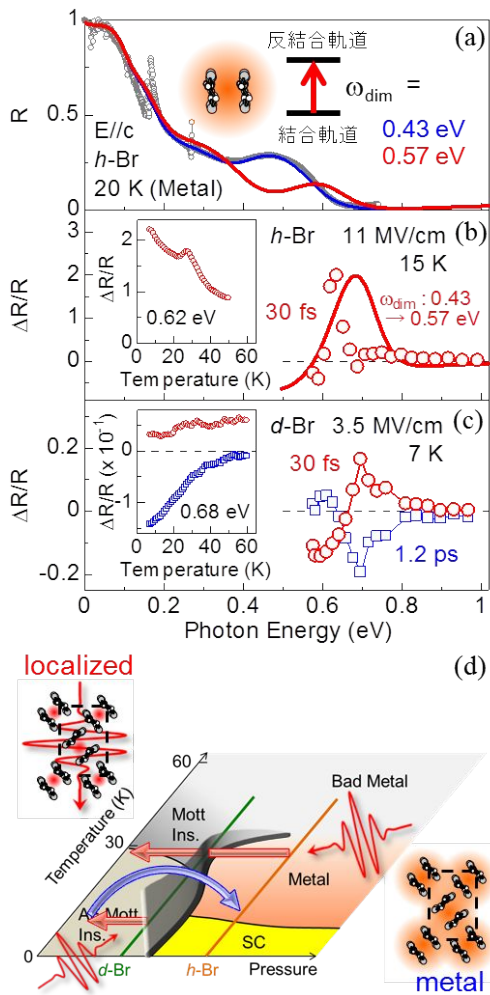


図 4 . (a) h -Br (金属) の定常反射スペクトルとドルーデ・ローレンツフィット, (b) h -Br の過渡反射スペクトルと電荷局在 (30 fs) の温度依存性, (c) d -Br の過渡反射スペクトルと電荷局在 (30 fs) および金属化 (1.2 ps) の温度依存性, (d) κ -(ET) $_2$ X における光誘起モット転移の模式図

度が競合する多体電子系における極端非平衡の物理の更なる展開を期待させる。

<参考文献>

- [1] F. Krausz *et al.*, Rev. Mod. Phys. 81, 163 (2009)
- [2] M. Gonokami, S. Koshihara (eds.), J. Phys. Soc. Jpn. (Special topics) 75, 011001-011008 (2006)
- [3] K. Yonemitsu, K. Nasu Phys. Rep. 465, 1 (2008)
- [4] D. H. Dunlap *et al.*, Phys. Rev. B 34, 3625 (1986)
- [5] Y. Kayanuma *et al.*, Phys. Rev. A 77, 010101(R) (2008)
- [6] N. Tsuji *et al.*, Phys. Rev. Lett. 106, 236401 (2011)
- [7] N. Tsuji *et al.*, Phys. Rev. B 85, 155124 (2012)
- [8] J. Ohara *et al.*, Phys. Rev. B 88, 085107 (2013)
- [9] S. Iwai *et al.*, Phys. Rev. Lett. 98, 097402 (2007)
- [10] Y. Kawakami *et al.*, Phys. Rev. Lett. 105, 246402 (2010)
- [11] T. Ishikawa *et al.*, Nat. Commun. 5, 5528 (2014)
- [12] Y. Naitoh *et al.*, Phys. Rev. B 93, 165126 (2016)
- [13] Y. Kawakami *et al.*, Phys. Rev. Lett. 103, 066403 (2009)

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 3 件)

Y. Naitoh, Y. Kawakami, T. Ishikawa, Y. Sagae, H. Itoh, K. Yamamoto, T. Sasaki, M. Dressel, S. Ishihara, Y. Tanaka, K. Yonemitsu and S. Iwai, Ultrafast response of plasmalike reflectivity edge in (TMTTF) $_2$ AsF $_6$ driven by a 7-fs 1.5-cycle strong-light field, Phys. Rev. B 93, 165126 (2016), DOI: 10.1103/PhysRevB.93.165126, 査読有

T. Ishikawa, Y. Sagae, Y. Naitoh, Y. Kawakami, H. Itoh, K. Yamamoto, K. Yakushi, H. Kishida, T. Sasaki, S. Ishihara, Y. Tanaka, K. Yonemitsu and S. Iwai, Optical freezing of charge motion in an organic conductor, Nature communications 5, 5528 (2014), DOI: 10.1038/ncomms6528, 査読有

(学会発表)(計 17 件)

川上洋平, 内藤陽太, 加藤隆寛, 伊藤弘毅, 米山直樹, 佐々木孝彦, 石原純夫, 岩井伸一郎, κ 型 ET 塩の金属 モット絶縁体相境界における超高速臨界現象, 日本物理学会

第 71 回年次大会, 2016/3/19, 東北学院大学
泉キャンパス(宮城県・仙台市)

S. Iwai, Y. Kawakami, Y. Naitoh, H. Itoh, S. Ishihara, K. Yonemitsu, Strong light-field effects in correlated organic conductors, APS March Meeting 2016, 2016/3/14, Baltimore Convention Center, Baltimore(USA)

T. Ishikawa, Y. Naitoh, Y. Kawakami, H. Itoh, K. Yamamoto, H. Kishida, T. Sasaki, M. Dressel, Y. Tanaka, K. Yonemitsu, S. Iwai, Driving charge and vibrational motions in strongly correlated organic conductors by nearly single-cycle 7 fs, 10 MV/cm infrared strong field, 11th Australasian Conference on Vibrational Spectroscopy, 2015/9/30, The University of Sydney(Australia)

川上洋平, 内藤陽太, 石川貴悠, 加藤隆寛, 伊藤弘毅, 米山直樹, 佐々木孝彦, 岩井伸一郎, 1.3 サイクル 6 fs パルスによるダイマーモット絶縁体の瞬時強電場効果, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015/9/19, 関西大学千里山キャンパス(大阪府・吹田市)

石川貴悠, 内藤陽太, 加藤隆寛, 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, 田中康寛, 米満賢治, 岩井伸一郎, 電荷秩序型有機伝導体における光誘起電荷局在の励起偏光依存性, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015/9/19, 関西大学千里山キャンパス(大阪府・吹田市)

内藤陽太, 川上洋平, 石川貴悠, 加藤隆寛, 伊藤弘毅, 山本薫, 佐々木孝彦, 田中康寛, 米満賢治, 岩井伸一郎, (TMTTF)₂AsF₆ における瞬時強電場効果の超高速ダイナミクス, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015/9/19, 関西大学千里山キャンパス(大阪府・吹田市)

T. Ishikawa, Y. Naitoh, Y. Kawakami, H. Itoh, K. Yamamoto, K. Yakushi, H. Kishida, T. Sasaki, S. Ishihara, Y. Tanaka, Ultrafast optical response of the metallic phase of α -(ET)₂I₃ induced by 7 fs infrared pulse, 11th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets, 2015/9/8, The Monarch Hotel & Convention Center (Germany)

Y. Kawakami, T. Ishikawa, Y. Naitoh, H. Itoh, N. Yoneyama, T. Sasaki, S. Iwai, Charge-vibration dynamics driven by 6 fs, 1.3-cycle infrared pulses in dimer-Mott insulators, 11th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets, 2015/9/8, The Monarch Hotel & Convention Center (Germany)

石川貴悠, 寒河江悠途, 内藤陽太, 川上洋平, 伊藤弘毅, 山本薫, 薬師久弥, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 石原純夫, 田中

康寛, 米満賢治, 岩井伸一郎, 1.5 サイクル赤外パルスが駆動する超高速電荷ダイナミクス; 電子強誘電体 α -(ET)₂I₃ IV, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015/3/22, 早稲田大学早稲田キャンパス(東京都・新宿区)

川上洋平, 内藤陽太, 石川貴悠, 寒河江悠途, 伊藤桂介, 伊藤弘毅, 米山直樹, 佐々木孝彦, 岩井伸一郎, ダイマーモット絶縁体における超高速電荷 振動ダイナミクス, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015/3/22, 早稲田大学早稲田キャンパス(東京都・新宿区)

川上洋平, 石川貴悠, 寒河江悠途, 内藤陽太, 伊藤弘毅, 山本薫, 薬師久弥, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 石原純夫, 田中康寛, 米満賢治, 岩井伸一郎, 1.5 サイクル赤外パルスが駆動する超高速電荷ダイナミクス; 電子強誘電体 α -(ET)₂I₃ III, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014/9/8, 中部大学春日井キャンパス(愛知県・春日井市)

内藤陽太, 川上洋平, 石川貴悠, 寒河江悠途, 伊藤桂介, 伊藤弘毅, 米山直樹, 佐々木孝彦, 岩井伸一郎, ダイマーモット型 κ -ET 塩における超高速電荷ダイナミクス, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014/9/8, 中部大学春日井キャンパス(愛知県・春日井市)

石川貴悠, 寒河江悠途, 内藤陽太, 川上洋平, 伊藤弘毅, 山本薫, 薬師久弥, 中村優斗, 岸田英夫, 佐々木孝彦, 石原純夫, 田中康寛, 米満賢治, 岩井伸一郎, 1.5 サイクル赤外パルスが駆動する超高速電荷ダイナミクス; 電子強誘電体 α -(ET)₂I₃ II, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014/9/8, 中部大学春日井キャンパス(愛知県・春日井市)

寒河江悠途, 石川貴悠, 内藤陽太, 川上洋平, 伊藤弘毅, 山本薫, 薬師久弥, 佐々木孝彦, 石原純夫, 米満賢治, 岩井伸一郎, 1.5 サイクル赤外パルスが駆動する超高速電荷ダイナミクス; 電子強誘電体(TMTTF)₂AsF₆ II, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014/9/8, 中部大学春日井キャンパス(愛知県・春日井市)

〔その他〕
ホームページ等
<http://femto.phys.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川上 洋平 (KAWAKAMI, Yohei)
東北大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号: 60731172