

平成 30 年 6 月 4 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17721

研究課題名(和文) 強相関電子系における光誘起相転移の電子ダイナミクスの解明

研究課題名(英文) Clarification of the electronic dynamics of photoinduced phase transitions in correlated systems

研究代表者

宮本 辰也 (Miyamoto, Tatsuya)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・助教

研究者番号：40755724

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、自作した非同軸オプティカルパラメトリックアンプから発生させた超短パルス光を利用した高時間分解能のポンプ・プローブ分光測定を行うことで、強相関電子系であるモット絶縁体や有機電荷移動錯体における光励起後の電子ダイナミクスを解明した。特に、二次元モット絶縁体であるNd₂CuO₄において、磁気ポーロンの生成や2マグノン励起に関わるコヒーレント振動といった電荷・スピンダイナミクスを実時間観測することに成功した。

研究成果の概要(英文)：In this work, we clarified electronic dynamics after photoexcitation in correlated systems, Mott insulators and organic charge transfer complexes, by performing pump-probe spectroscopy with a high time resolution by using an ultrafast pulse generated from a self-produced noncolinear optical parametric amplifier. Especially, we succeeded in real-time observation of charge-spin dynamics such as generation of magnetic polarons and coherent oscillations related with two-magnon excitations.

研究分野：光物性

キーワード：光誘起相転移 超高速現象 ポンプ プローブ測定 強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

光で物質の物性を広範に制御することは、光物性研究の大きな目標のひとつである。それを実現するための最も重要な現象に光誘起相転移がある。これは、物質に光を照射することによって、その電子構造ががらりと変化する現象である。この光誘起相転移現象を新機能として発展させるには、相転移をいかに高速かつ高効率で起こせるかが鍵となる。この観点から、本研究では、強相関電子系物質に注目する。強相関電子系物質では、光照射によって生じた電子励起や光キャリアが、強い電子間相互作用を通して周囲の電子系やスピン系の高速の変化を誘起すると考えられ、高効率の光誘起相転移が期待される。実際に、光誘起絶縁体—金属転移・光誘起反強磁性—強磁性転移・光誘起中性—イオン性転移を初めとして、これまで数多くの光誘起相転移現象が見出されてきた。

強相関電子系物質の光誘起相転移の最大の特徴は、相転移が電子系の秩序の変化に基づくものであることである。電子系の状態変化に要する時間は、電子トランスファーエネルギーに支配されると考えられる。例えば、遷移金属酸化物のトランスファーエネルギーは約 0.5 eV であり、有機分子性物質のそれは約 0.2 eV である。これらは、それぞれ 8 fs および 20 fs に対応する。すなわち、強相関電子系の光誘起相転移現象は、8–20 fs の時間で生じ得るということである。この時間は、現在一般的に利用されている電気信号によるスイッチング時間 (~1 ns) より格段に短い。そのため、強相関電子系物質の光誘起相転移現象は、次世代の超高速光スイッチングデバイスへの応用が期待される。

光誘起相転移のダイナミクスを観測するには、ポンプ (励起) 光とプローブ (検出) 光の両者をパルス光とするポンププローブ測定が用いられる。この測定に関しては、市販の Ti:Sapphire レーザーで得られる時間幅約 130 fs のパルス光を用いた時間分解能約 200 fs の測定が広く行われている。しかし、この時間分解能では、光誘起相転移の初期過程で生じる電子系の変化を捉えることはできない。遷移金属酸化物を中心とする強相関電子系の電子応答を捉えるには、トランスファーエネルギーから見積もられる時間スケール (8–20 fs) よりも短い時間分解能が必要である。この時間分解能を達成するために必要な超短パルス光を発生可能な装置としては、非同軸オプティカルパラメトリックアンプ (NOPA) が知られている [A. Shirakawa *et al.*, *APL* **74**, 2268 (1999). T. Kobayashi and A. Shirakawa, *Appl. Phys. B* **70**, S239 (2000).].

2. 研究の目的

本研究では、まず、「研究活動スタート支援」の研究課題「強相関電子系の光誘起相転移における電子ダイナミクスの実時間観測」における研究から自作してきた非同軸パラ

メトリックアンプ (NOPA) を改良し、より短い時間幅を持った超短パルス光を発生させる。発生させた超短パルス光を利用した高時間分解能のポンププローブ分光を行うことによって、強相関電子系物質の光誘起相転移の初期電子応答の実時間観測を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

○NOPA から出力されたシグナル光のチャープをチャープミラー対と石英板を利用することで補正し、パルス幅を圧縮する。これらのパルス光を利用して、高時間分解能のポンププローブ測定系を構築する。

○上記の測定系を利用して、一次元及び二次元銅酸化物において光誘起絶縁体—金属転移における電子ダイナミクスを検出し、光誘起金属状態の生成および緩和過程の物理的機構を解明する。

○同様に上記の測定系を利用して、有機電荷移動錯体における光励起後の電子ダイナミクスを解明する。

4. 研究成果

(1) 高時間分解能ポンププローブ分光システムの構築

NOPA を改良することによって、パルス幅 6.5 fs の可視超短パルス光を得ることに成功した。また、この可視超短パルス光を利用した時間分解能 10 fs 以下のポンププローブ分光測定系を構築した。

(2) 二次元モット絶縁体における光キャリアダイナミクスの解明

構築した光学系を利用したポンププローブ分光測定を二次元モット絶縁体である Nd_2CuO_4 に対して行った。モットギャップの高エネルギー側を励起した後のブリーチング信号を反射率変化として測定することによって、光キャリアダイナミクスを観測することができる。その結果、約 18 fs の時間スケールで光キャリアが磁気ポーラロンへと変化することを明らかとした。また、バンドパスフィルタを光検出器前に挿入することで、プローブエネルギー依存性を測定した結果、 $1400\sim 2700\text{ cm}^{-1}$ という高周波数のコヒーレント振動が反射率変化に重畳していることが分かった。この振動成分の周波数は、プローブエネルギーに対して線形に増加する。その傾向と理論的な解析から、観測されたコヒーレント振動は、異なる 2 マグノン励起を伴う電子遷移間の量子干渉が生じることで現れていることが示唆された。これは、マグノンサイドバンドがモットギャップの高エネルギー側に存在する明確な証拠である。また、ノンドープの二次元モット絶縁体における電荷・スピンダイナミクスを実時間観測した初めての研究成果である。さらに、励起光子密度を増加させると金属状態が生成するが、その緩和時間が 10~40 fs であることが

分かった。励起光子密度を大きくすると緩和時間が速くなることから、金属状態の緩和はオージェ再結合によるものであると結論づけた。この成果をまとめた論文は、現在投稿中である。

(3) 一次元モット絶縁体における光キャリアダイナミクスの解明

同様に、構築した光学系を利用したポンププローブ分光測定を、一次元モット絶縁体である塩素架橋 Ni 錯体[Ni(chxn)₂Cl(NO₃)₂]に適用した(chxn: cyclohexanediamine)。モットギャップに対応する励起子遷移を励起した後のブリーチング信号を反射率変化として測定することによって、励起子生成の初期電子過程を実時間観測することができる。得られた反射率変化の時間発展には、4つのコヒーレント振動モードが重畳することが分かった。

2つはラマン散乱スペクトルから得られた振動の周波数と一致することから、フォノンによるものであることが分かった。これらに関しては、励起状態を安定化させるために格子が歪み、それにとまってコヒーレント振動が生じたものであると考えられる。残り2つのモードに関しては、一光子許容励起子と一光子禁制励起子の状態間・一光子許容励起子と連続状態の下端の状態間の量子振動であることが予想された。つまり、励起子生成直後には異なる状態が重なり合っている状態となっているため、状態間の干渉が生じ、結果的に反射率変化に振動構造が現れるということである。

このように、高時間分解能のポンププローブ分光測定を行うことによって、一次元モット絶縁体での励起子生成の初期電子過程を明らかにしたことが、本研究の成果である。

(4) 有機電荷移動錯体における電子・分子内振動相互作用の存在の実証

有機電荷移動錯体における電子と分子内振動間の相互作用を解明するために、キャリアエンベロープ位相安定な中性外光パルスを用いて、NO₂ から発生させた可視超短パルス光をプローブ光としたポンププローブ測定系を新たに構築した。構築した光学系に関して、Applied Physics Express 誌 (Applied Physics Express, 10, 122701 (2017).) で報告した。

有機電荷移動錯体である TTF-CA のイオン性相にこの測定を適用した。キャリアエンベロープ位相安定な中性外光パルスによって分子内振動モードを直接励起することができ、可視超短パルス光をプローブ光とすることで TTF 分子から CA 分子への電荷移動量の変化を直接観測することができる。測定の結果、TTF 分子の分子内振動に伴って電荷移動量が増加する様子を実時間観測することに成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

①Morimoto Takeshi, Sono Naoki, Miyamoto Tatsuya, Kida Noriaki, Okamoto Hiroshi, “Generation of a carrier-envelope-phase-stable femtosecond pulse at 10 μm by direct downconversion from a Ti:sapphire laser pulse”, Applied Physics Express, 10, 122701 (2017).

査読有

DOI: 10.7567/APEX.10.122701

[学会発表] (計 22 件)

①宮本辰也, 稲葉岳, 森本剛史, 真崎勇介, 木下雄斗, 貴田徳明, 岡本博, “三次非線形光学効果を用いた一次元モット絶縁体からのテラヘルツ電磁波発生 III”, (日本物理学会第 73 回年次大会, 東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~25 日)

②T. Miyamoto, T. Morimoto, H. Yamakawa, T. Terashige, N. Kida, S. Horiuchi, and H. Okamoto, “Rapid Control of Ferroelectric Polarization by Strong Terahertz Fields in Electronic-Type Organic Dielectrics”, (The 12th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets (ISCOM2017), Zao Royal hotel, Miyagi, September 24-29, 2017)

③宮本辰也, “有機強誘電体における新規光機能性の探索”, (日本物理学会 2017 年秋季大会, 岩手大学, 2017 年 9 月 21 日~24 日)

④T. Miyamoto, T. Terashige, H. Yada, S. Ishihara, T. Ito, K. Ota, A. Sawa, and H. Okamoto, “Probing ultrafast spin dynamics coupled with charge excitations in the cuprate Mott insulator Nd₂CuO₄”, (international conferences on photoinduced phase transitions (PIPT6), Sendai International Center, June 4-9, 2017)

⑤宮本辰也, 松井裕太, 寺重翼, 大澤尚幸, 矢田祐之, 石原純夫, 渡部裕也, 足立俊輔, 伊藤利充, 岡邦彦, 澤彰仁, 岡本博 “7 fs パルスによる二次元銅酸化物の超高速電荷・スピンドイナミクスの研究 II”, (日本物理学会第 72 回年次大会, 大阪大学, 2017 年 03 月 17 日~20 日)

⑥宮本辰也, 小野貴晃, 森本剛史, 寺重翼, 貴田徳明, 岡本博, “光・テラヘルツ波同時励起による一次元モット絶縁体の光キャリアダイナミクスの制御”, (日本物理学会 2016 年秋季大会, 金沢大学, 2016 年 9 月 13 日~16 日)

⑦T. Miyamoto, “Terahertz-field-induced Mott transition in an ET-based organic molecular compound”, (International Research School: Electronic States and Phases Induced by Electric or Optical Impacts IMPACT 2016, Cargese, France, August 23-September 2, 2016)

⑧T. Miyamoto, T. Terashige, N. Kida, T. Tohyama, H. Okamoto, “Terahertz

Electro-Reflectance Spectroscopy on Mott Insulators”, (EMN Meeting on Terahertz 2016, San Sebastian, Spain, May 14-18, 2016)

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

東京大学大学院 新領域創成科学研究科 物質系専攻 岡本・貴田研究室ホームページ
<http://pete.k.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宮本 辰也 (MIYAMOTO, Tatsuya)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・助教

研究者番号：40755724