

機関番号：12601  
 研究種目：若手研究 (B)  
 研究期間：2009～2010  
 課題番号：21760004  
 研究課題名 (和文) テラヘルツパルスを用いた光誘起絶縁体金属転移ダイナミクスの研究

研究課題名 (英文)  
 Study of the ultrafast dynamics of photo-induced insulator-metal transition using terahertz pulses

研究代表者  
 中嶋 誠 (NAKAJIMA MAKOTO)  
 東京大学・物性研究所・助教  
 研究者番号：40361662

## 研究成果の概要 (和文)：

テラヘルツ波パルスを用いて、超高速過渡現象の観測を行った。VO<sub>2</sub>では光誘起絶縁体金属転移を電気伝導度の変化より測定することに成功した。また強磁性体イプシロン型酸化鉄にてテラヘルツパルスで誘起したバルク磁化歳差運動の時間分解測定に成功した。YFeO<sub>3</sub>においては、強磁性的共鳴・反強磁性共鳴に起因するスピン歳差運動の観測に成功し、さらにダブルパルス励起することにより、スピン歳差運動のコヒーレント制御に成功した。

## 研究成果の概要 (英文)：

We studied the ultrafast dynamics using THz pulses. We succeeded in observing the photo-induced insulator-metal transition by measuring the change of the electric conductivity. We succeeded in observing the coherent bulk-magnetization precession motion induced by THz pulses in  $\epsilon$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. We observed the coherent bulk-magnetization precession motions due to the ferro-magnetic and antiferro-magnetic resonances in YFeO<sub>3</sub>, and succeed the coherent control of the precession motions by the double-pulse excitation.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

## 研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用物性・結晶工学

キーワード：光物性、テラヘルツ波、光誘起相転移、金属絶縁体転移、スピン制御、強磁性

## 1. 研究開始当初の背景

近年、光を単に検出に用いるだけでなく、光によって新しい物質秩序の創成・物質相の制御を行うという新しい光科学の進展が注

目されている。光誘起相転移現象は、結晶構造や電子状態(絶縁体金属転移等)、スピン状態(強磁性転移等)というマクロな性質を、光の照射によって変化させるというも

のであり、光によって物質秩序を制御することができる現象であり、注目を集めている。

この光誘起相転移であるが、種々の物質で生じることが確認されているが、まだその機構や特にダイナミクスについては著しく情報が不足しているのが現状であり、早急に研究されるべき対象であると考えられる。最近になって、その生成機構を解明するために、時間分解測定的重要性が認知されつつあり、いくつかの研究が報告されている。多くは可視域での過渡吸収・反射測定であるが、X線や電子線による時間分解回折分光によって格子構造の時間変化を観測した例も出てきている。

## 2. 研究の目的

本研究は、光（テラヘルツパルスを含む）を単に物質の観察に使うだけでなく、光によって物質相のコントロールを行い、その動的挙動・相転移メカニズムを明らかにすることを主眼にした研究である。

テラヘルツ波パルスを用いた分光研究は、近年、盛んに行われるようになってきているが、これはテラヘルツパルスが従来の遠赤外光源に比べて高い検出感度があること、超短パルス（パルス幅  $\sim 1$ ps）であること、電場振幅と位相情報を測定可能であることから、複素電気伝導度を直接測定できるなどの利点を持つ。そのエネルギー帯（ $3 \sim 300$   $\text{cm}^{-1}$ ）は、自由電子の応答に敏感な領域であり、テラヘルツパルスを光誘起絶縁体金属転移の検出に用いるのは最適である。しかしながら、テラヘルツポンププローブ分光を光誘起絶縁体転移に適用した例は未だ限られている。テラヘルツパルスを用いて、光誘起金属絶縁体転移を超高速時間ダイナミクスで明らかにすることを目指す。またテラヘルツパルスによって、物質状態（電荷・格子・スピン）を制御する試みにも挑戦する。

## 3. 研究の方法

主に、光励起テラヘルツ波検出のテラヘルツ波ポンププローブ分光を行った。光源には、チタンサファイアレーザー増幅器をもちいており、出射されたビームを3つにわけて、テラヘルツ波の発生・検出用および光励起用とした。励起光の波長は800nmであり、励起光およびテラヘルツパルスは試料上で1mmに絞られている。光励起後に、テラヘルツパルスを時間遅延をかけて照射することによって、

サブピコ秒の時間分解測定が可能である。

光誘起絶縁体金属転移の観測用にこれまでの測定より厚めの $\text{VO}_2$ 薄膜を用意した。これまでは励起光の侵入長に比べて薄膜の厚みが薄く基板も光励起していきおり、厚い試料を用意することで基板の影響を極力なくすためである。励起光の侵入長より十分厚い最大670nmの $\text{VO}_2$ 薄膜をいくつか用意した。

スピン歳差運動の測定では、一般的な透過型のテラヘルツ波時間領域分光の配置でテラヘルツ波パルスを照射した後のスピン歳差運動の観測を試みた。

## 4. 研究成果

光誘起絶縁体金属転移の機構の解明にむけて、 $\text{VO}_2$ 薄膜で測定を行った。テラヘルツ波の透過率はおもに電気伝導度を反映したものである。励起直後に急峻に透過率が減少し（電気伝導度が増大に対応）、その後100ps程度までしだいに透過率が減少するという2段階的な透過率の減少が観測された。この観測された振舞いは、電気伝導度の増加（金属相の出現）を反映したものであるが、他のグループによる時間分解X線散乱測定や時間分解電子回折測定（格子構造の時間変化を観測）と非常に似ており、このことは金属に相転移するためには構造転移が必要であることを示しており、このことから光誘起絶縁体金属転移が電子的な転移でなくパリエル的な転移によって生じていることを示していると理解される。

光誘起絶縁体金属転移の研究では、テラヘルツパルスを検出光としてのみ用いたが、テラヘルツパルスによって光誘起現象を起こし、時間分解測定する試みをおこなった。対象を広げ探索した結果、 $\epsilon$ 型酸化鉄ナノ磁性体中の磁気共鳴をテラヘルツパルスで誘起し、スピン（バルク磁化）の歳差運動を時間分解測定することに成功した。この測定では、テラヘルツパルスの磁場成分で直接スピン系を誘起することに成功している。スピン歳差運動から円偏光のテラヘルツ波が放射されることを観測した。これは直線偏光のテラヘルツ波を入射し、円偏光のテラヘルツ波に変換されると見ることもでき、磁気光学効果の測定にも成功した。これらの成果については、Optics Express誌に掲載された。また $\text{YFeO}_3$ では、強磁性共鳴と反強磁性共鳴に起因する2つのスピン歳差運動を誘起・観測することに成功した。さらにダブルパルス励起によって、コヒーレント制御を行うことにも成功した。このような超短磁場パルスでのコヒーレント制御

は初めて達成できたものであり、この成果は Physical Review Letters 誌に掲載された。またこれらの成果については、ローマで行われた国際会議 IRMMW-THz2010 にて発表を行った。

#### 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 12 件)

1. “Effect of preformed plasma on terahertz-wave emission from the plasma generated by two-color laser pulses” Y. Minami, M. Nakajima, and T. Suemoto, Physical Review A 83, 023828 (2011). 査読有り

2. “Intense terahertz emission from undoped GaAs/n-type GaAs and InAs/AlSb structures grown on Si substrates in the transmission-geometry excitation” Elmer Estacio, Satoru Takatori, Minh Hong Pham, Takashi Yoshioka, Tomoharu Nakazato, Marilou Cadatal-Raduban, Toshihiko Shimizu, Nobuhiko Sarukura, Masanori Hangyo, Christopher T. Que, Masahiko Tani, Tadataka Edamura, Makoto Nakajima, John Vincent Misa, Rafael Jaculbia, Armando Somintac, and Arnel Salvador, Applied Physics B (Springer-Verlag 2011). 査読有り

3. “Observation of ultrafast Q-band fluorescence in horse heart cytochrome c in reduced and oxidized forms” T. Suemoto, H. Ebihara, H. Nakao and M. Nakajima, Journal of Chemical Physics 134, 034502 (2011). 査読有り

4. “Dynamics of photoinduced phase transitions studied by infrared and raman spectroscopy” T. Suemoto, R. Fukaya, A. Asahara, M. Nakajima, H. Tokoro, S. Ohkoshi Physica Status Solidi B 248, 477-481 (2011). 査読有り

5. “Effect of lattice deformation on photoinduced phase transition process in RbMn[Fe(CN)<sub>6</sub>]” R. Fukaya, M. Nakajima, H. Tokoro, S. Ohkoshi, and T. Suemoto Physica Status Solidi B 248, 482-485 (2011). 査読有り

6. “Photo-induced phase switching

dynamics in RbMn[Fe(CN)<sub>6</sub>] probed by accumulation free mid-infrared spectroscopy” A. Asahara, M. Nakajima, R. Fukaya, H. Tokoro, S. Ohkoshi and T. Suemoto Physica Status Solidi B 248, 491-494 (2011). 査読有り

7. “Coherent control of spin precession motion with impulsive magnetic fields of half-cycle terahertz radiation” K. Yamaguchi, M. Nakajima, and T. Suemoto, Physical Review Letters 105, 237201 (2010). 査読有り

8. “Ultrafast time domain demonstration of bulk magnetization precession at zero magnetic field ferromagnetic resonance induced by terahertz magnetic field” M. Nakajima, A. Namai, S. Ohkoshi, T. Suemoto, Optics Express 18, 18260-18268 (2010). 査読有り

9. “Study of photo-induced phenomena in VO<sub>2</sub> by terahertz pump-probe spectroscopy” M. Nakajima, N. Takubo, Z. Hiroi, Y. Ueda, T. Suemoto, Journal of Luminescence, 129, 1802-1805 (2009). 査読有り

10. “Photo-induced insulator-metal phase transition observed by the terahertz pump-probe spectroscopy” Makoto Nakajima, Naoko Takubo, Zenji Hiroi, Yutaka Ueda, Tohru Suemoto, Ultrafast Phenomena in Semiconductors and Nanostructure Materials XIII pp7214-25 (SPIE, 2009). 査読有り

11. “Terahertz Radiation from InAs Films on Silicon Substrates Excited by Femtosecond Laser Pulses” C. T. Que, T. Edamura, M. Nakajima, M. Tani, and M. Hangyo, Japanese Journal of Applied Physics (Rapid Communication), 48, 010211 (2009). 査読有り

12. “Photoinduced charge-transfer process in rubidium manganese hexacyanoferrate probed by Raman spectroscopy” R. Fukaya, M. Nakajima, H. Tokoro, S. Ohkoshi, and T. Suemoto, Journal of Chemical Physics, 131, 154505 (2009). 査読有り

[学会発表] (計 20 件)

1. “ナノ強磁性体  $\epsilon$  型酸化鉄におけるテラヘルツ帯磁気光学効果” 日本物理学会 第 66 回年次大会 2011 年春(新潟大学, 2011.3.25-28), 28aHC-11, 中嶋誠, 生井飛鳥, 大越慎一, 末元徹.
2. “2 色超短パルス光励起気体プラズマからの高強度 THz 波発生におけるプレパルス照射の効果” 日本応用物理学会 第 58 回応用物理学関係連合講演会 2011 年春(神奈川工科大学, 2011.3.24-27), 24a-KF-11, 南康夫, 中嶋誠, 末元徹.
3. “RbMnFe シアノ錯体における双方向光誘起相転移のフェムト秒 C≡N 振動分光” 日本物理学会 第 66 回年次大会 2011 年春(新潟大学, 2011.3.25-28), 23aHC-6, 浅原彰文, 中嶋誠, 深谷亮, 所裕子, 大越慎一, 末元徹.
4. “スピン再配列転移物質  $\text{ErFeO}_3$  における THz 時間領域分光” 日本物理学会 第 66 回年次大会 2011 年春(新潟大学, 2011.3.25-28), 28aHC-12, 山口啓太, 中嶋誠, 末元徹.
5. “RbMnFe シアノ錯体の光誘起相における共鳴ラマン分光” 日本物理学会 第 65 回年次大会 2010 年春(岡山大学, 2010.3.20-23), 20pHL-5, 深谷亮, 中嶋誠, 所裕子, 大越慎一, 末元徹.
6. “梯子型塩素架橋白金錯体における超高速時間分解発光” 日本物理学会 第 65 回年次大会 2010 年春(岡山大学, 2010.3.20-23), 21aGT-5, 中尾広行, 中嶋誠, 川上大輔, 高石慎也, 山下正廣, 北川宏, 末元徹.
7. “酸化還元型 Cytochrome C における時間分解発光” 日本物理学会 第 65 回年次大会 2010 年春(岡山大学, 2010.3.20-23), 23aPS-38, 海老原英明, 中尾広行, 中嶋誠, 田島裕之, 末元徹.
8. “低温相 RbMnFe シアノ錯体における光誘起相転移ダイナミクスの過渡 CN 振動分光による観測” 日本物理学会 第 65 回年次大会 2010 年春(岡山大学, 2010.3.20-23), 23aPS-46, 浅原彰文, 中嶋誠, 深谷亮, 所裕子, 大越慎一, 末元徹.
9. “ナノ強磁性体  $\epsilon\text{-Ga}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_3$  におけるテラヘルツ帯磁気光学効果” 日本応用物理学会 2010 年秋期大会(長崎大学, 2010.9.14-17), 16a-F-2, 中嶋誠, 生井飛鳥, 大越慎一, 末元徹.
10. “新奇磁性酸化物 Al 置換型  $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$  のミリ波吸収特性” 日本応用物理学会 2010 年秋期大会(長崎大学, 2010.9.14-17), 14p-F-13, 生井飛鳥, 中嶋誠, 末元徹, 大越慎一.
11. “金属置換型  $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$  の高周波ミリ波透磁率と磁気光学効果の観測” 日本磁気学会 2010 年秋期大会(つくば国際会議場, 2010.9.4-7), 6aF-7, 生井飛鳥, 倉橋真司, 松本和幸, 後藤崇, 中嶋誠, 末元徹, 大越慎一.
12. “サブピコ秒パルス磁場によるコヒーレントバルク磁化歳差運動の観測” 日本物理学会 2010 年秋季大会 2010 年秋(大阪府立大学, 2010.9.23-26), 23aRE-10, 中嶋誠, 生井飛鳥, 大越慎一, 末元徹.
13. “弱強磁性体  $\text{YFeO}_3$  におけるスピン歳差運動のテラヘルツ波ダブルパルスを用いたコヒーレント制御” 日本物理学会 2010 年秋季大会 2010 年秋(大阪府立大学, 2010.9.23-26), 23aRE-11, 山口啓太, 中嶋誠, 末元徹.
14. “金属置換型  $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$  ナノ磁性体のサブテラヘルツ波吸収メカニズム” 日本物理学会 2010 年秋季大会 2010 年秋(大阪府立大学, 2010.9.23-26), 23pRE-1, 生井飛鳥, 中嶋誠, 末元徹, 大越慎一.
15. “超短パルス光励起の気体プラズマによる THz 波発生におけるプレパルス照射の効果” 日本物理学会 2010 年秋季大会 2010 年秋(大阪府立大学, 2010.9.23-26), 24pRC-1, 南康夫, 中嶋誠, 末元徹.
16. “酸化鉄ナノ磁性体におけるサブテラヘルツ帯自然共鳴の観測” 日本応用物理学会 2009 年秋期大会(富山大学, 2009.9.8-11), 10a-M-9, 中嶋誠, 生井飛鳥, 桜井俊介, 大越慎一, 末元徹.
17. “Terahertz emission enhancement from InAs films by means of Si optical coupler” 日本応用物理学会 2009 年秋期大会(富山大学, 2009.9.8-11), 8p-M-6, Christopher Que, 枝村忠孝, 中嶋誠, 谷正彦, 萩行正憲.
18. “アルミニウム置換型  $\epsilon\text{-Fe}_2\text{O}_3$  ナノ磁性体のミリ波吸収特性” 日本物理学会 2009 年秋期大会(熊本大学, 2009.9.25-28), 25aXB-1, 生井飛鳥, 桜井俊介, 中嶋誠, 末元徹, 大越慎一.
19. “時間分解ラマン分光による Si の高密度光励起状態の観測” 日本物理学会 2009 年秋期大会(熊本大学, 2009.9.25-28),

25pXB-11, 深谷亮, 中嶋誠, 末元徹.

20. “希土類オルソフェライト  $\text{YFeO}_3$  における  
テラヘルツ波時間領域分光” 日本物理学会  
2009年秋期大会 (熊本大学, 2009. 9. 25-28),  
27aPS-96, 中嶋誠, 山口啓太, 末元徹.

[その他]

ホームページ等

<http://suemoto.issp.u-tokyo.ac.jp/nak/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

中嶋 誠 (NAKAJIMA MAKOTO)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号: 40361662