

新規絶縁体材料における高密度光励起と相転移現象のダイナミクス

芦田 昌明 (大阪大学大学院基礎工学研究科)

研究分担者：田中 耕一郎 (京都大学物質-細胞統合システム拠点)

本研究では、基底状態においても電子相関が強く、一体近似が成立しない新規絶縁体材料を対象として、光励起によって生成される電子正孔多体系のダイナミクスを研究する。特に、励起状態に特有の相関効果「動的相関」による秩序形成、すなわち光誘起超伝導転移、絶縁体-金属転移など、電子状態の光誘起相転移のダイナミクスの解明に焦点を当てる。具体的には、超伝導ギャップなど秩序を直接反映する構造が存在するエネルギー領域、一テラヘルツ域を含む赤外全域一をカバーする独自の時間領域分光を行うことによって調べる。これまで、1. 超広帯域赤外分光法の開発と 2. 高強度テラヘルツ波発生と非線形分光の研究を進めてきた。

1. 光伝導アンテナを用いた超広帯域赤外時間領域分光

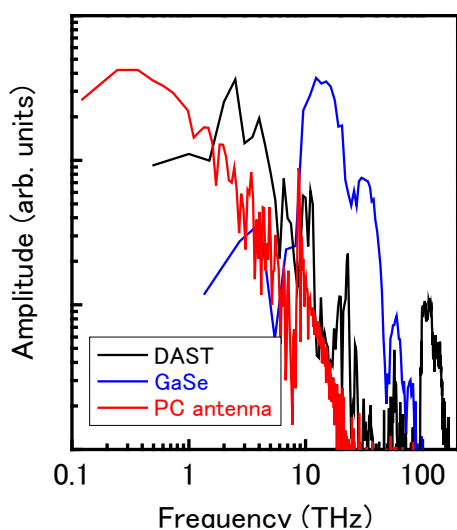


図1 3つの方法で発生した赤外パルス光の電場振幅スペクトル

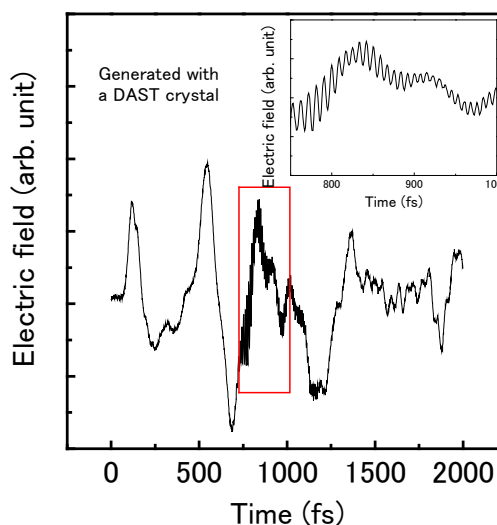


図2 DAST結晶によって発生した赤外パルス光の電場波形

光伝導アンテナを用いた赤外時間領域分光の広帯域化を行い、遠赤外から近赤外に至る赤外パルスの電場検出に初めて成功した。図1は1つのダイポール型光伝導アンテナによって検出した時間波形のフーリエ変換スペクトルである。3つの光源、すなわち光伝導アンテナ (赤線)、DAST結晶 (黒線)、GaSe薄結晶 (青線) を使用した場合を重ねた[1, 2]。強度はピークで規格化してある。また、赤外光の発生・検出には、時間幅 5fs (黒線) あるいは 10fs (赤、青線) の極短パルスレーザーを用いた。0.1THz から 200THz 付近(0.4–800meV)の3桁半に及ぶ赤外領域をカバーできている。また、図2はDAST結晶によって発生した赤外パルス光の電場波形の一例である[2]。赤枠で囲まれた部分の拡大図を右上に示した。周期 10fs を切る超高速振動を観測しており、これが図1の 100THz

以上のスペクトル成分に対応している。また、こうした超広帯域時間領域分光法を使用し、量子常誘電体 SrTiO₃ 薄膜の誘電分散を測定した。その結果、誘電分散を広い赤外域で測定することに初めて成功し、ソフトモードだけでなく、より高い周波数領域に存在する TO2 モードも検出することができた。さらに、ソフトモードの温度変化と膜厚依存性も明らかとした[3]。

2. 高強度テラヘルツ波発生と非線形分光

テラヘルツ領域の非線形分光を目指すために高強度テラヘルツ波発生を行った。誘電体結晶である LiNbO₃ を発生源として位相整合条件を満たすように励起光の角度周波数分散および空間パルス面制御を行うなど発生方法の最適化を行った。その結果、現時点では Ti:Sapphire レーザー励起で 0.5μJ (ピーク電場強度 200kV/cm) の広帯域テラヘルツ波パルスの生成に成功している[4, 5]。光周波数変調について詳細に検討すると、発生用非線形結晶内で発生したテラヘルツ電場が光位相変調を起こすことでパルス圧縮が生じる可能性がある。図 3 は Yb ドープファイバーレーザーを用いて発生したテラヘルツ波の(a)電場波形、(b)時間幅、(c)電場振幅の最大値を表している。励起光強度を上げると共にテラヘルツ波の時間幅が狭くなり、また発生効率が增大している。テラヘルツ波の時間波形は励起光の波束の波形を直接反映していることから、励起光のパルス圧縮およびテラヘルツ光の高強度広帯域化が生じることを見出した[6]。

電場強度 200kV/cm は原子中の内部電場や pn 接合の界面の電場強度に匹敵し、容易に非線形な応答を示すことになる。このことから物質相をつかさどる分子間力を直接外から入射するテラヘルツ電場によって制御することが可能となるものと考えられる。実際、L-アルギニンペレットにおいて吸収飽和を、ZnSe/ZnMgSSe 多重量子井戸において励起子吸収スペクトルの大きな変化を観測した。さらに、量子常誘電体 SrTiO₃ 薄膜においても、吸収ピークの高周波シフトを観測した。

電場強度 200kV/cm は原子中の内部電場や pn 接合の界面の電場強度に匹敵し、容易に非線形な応答を示すことになる。このことから物質相をつかさどる分子間力を直接外から入射するテラヘルツ電場によって制御することが可能となるものと考えられる。実際、L-アルギニンペレットにおいて吸収飽和を、ZnSe/ZnMgSSe 多重量子井戸において励起子吸収スペクトルの大きな変化を観測した。さらに、量子常誘電体 SrTiO₃ 薄膜においても、吸収ピークの高周波シフトを観測した。

参考文献

- [1] M. Ashida, Jpn. J. Appl. Phys. **47** (2008) 8221.
- [2] M. Ashida, R. Akai, H. Shimosato, I. Katayama, K. Miyamoto, and H. Ito, *Ultrafast Phenomena XVI* (Springer Series in Chemical Physics 92, 2009) 979.
- [3] I. Katayama, H. Shimosato, Dhanvir Singh Rana, I. Kawayama, M. Tonouchi, and M. Ashida, Appl. Phys. Lett. **93** (2008) 132903.
- [4] 永井正也, 田中耕一郎, レーザー研究 **37**, (5) 350-354 (2009).
- [5] M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka, Journal of Optical Society of America B, **26**, (9) A101 (2009).
- [6] M. Nagai, M. Jewariya, Y. Ichikawa, H. Ohtake, T. Sugiura, Y. Uehara, and K. Tanaka, Opt. Express **17**, 11543-11549 (2009).

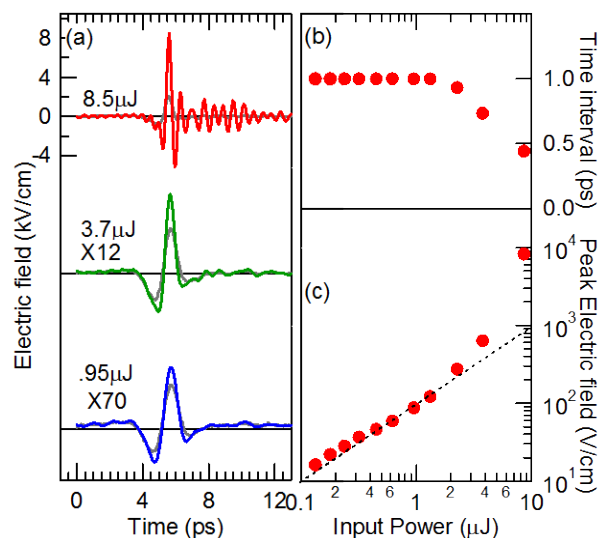


図 3: ファイバーレーザーで発生したテラヘルツ波の入力強度依存性。