

# シングルショット超高速分光による光誘起相転移初期過程の解明

片山 郁文 (横浜国立大学・学際プロジェクト研究センター)

励起状態間の強い相関によって引き起こされる光誘起相転移は、光を用いて物質のマクロな性質を大きく変化させることができる非常に興味深い現象の一つである[1]。この時、相転移は励起状態間の協力的な相互作用を介して誘起されるため、そのダイナミクスは非線形であり、また、光励起状態という非平衡条件下の相転移であることから、熱的な変化では到達し得ないような新しい物質相に転移させることができるかもしれない。また、光励起された物質相は準安定な相であることから長い寿命を持ち、光スイッチや、光メモリーと言った、さまざまなデバイスへの応用も期待される。そこで本研究ではこのような光誘起相転移のダイナミクスに着目し、相転移のメカニズムを分光学的に明らかにすることを目指している。

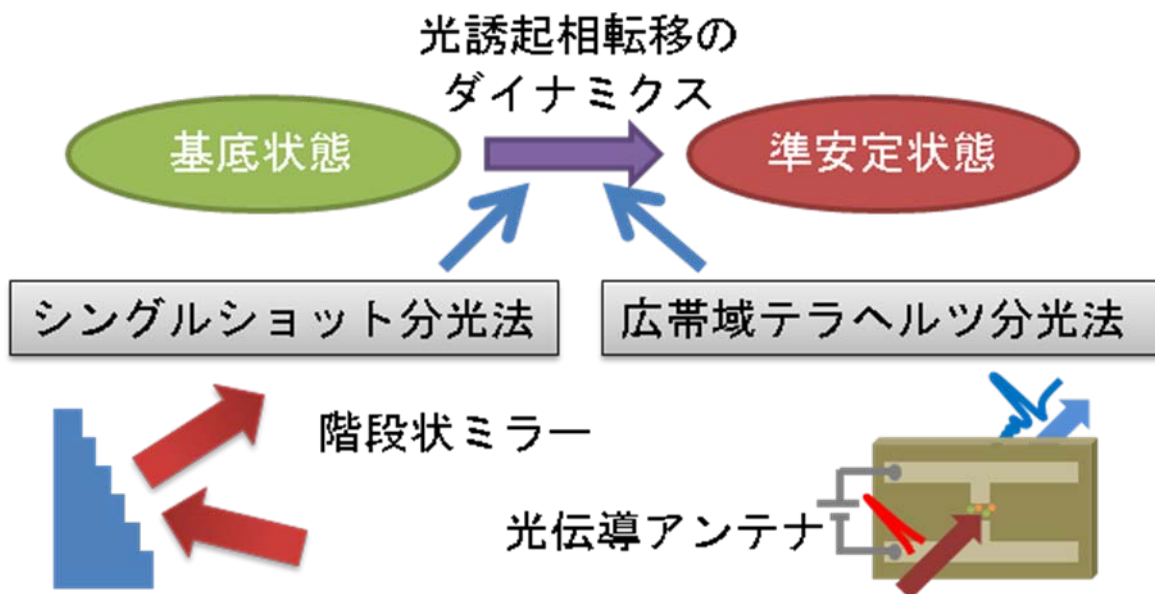
このような光誘起相転移のダイナミクスを明らかにするためには、超短パルスレーザーを用いた時間分解の検出手法が非常に適している。しかしながら、通常の時間分解分光法では、励起光とプローブ光の間の時間間隔をスキャンすることで試料の過渡応答を測定するために、原理的に繰り返しの測定が必要となる。したがって、試料の励起状態は、次の励起光が当たるまでの間に基底状態へと緩和していることが必要となる。ところが、光誘起相転移のような準安定相への転移を考える場合は光誘起相の寿命が非常に長いために、時間分解の測定をするためには、長時間待つか、新しい試料を用意するかしなければならない。通常光誘起相転移を示すような先端的な物質では、多くの試料が得られることが少なく、また寿命も非常に長い場合が多いので、超高速の分光はこれまでに繰り返し測定可能な物質に限られていた[2]。そこで、本研究では、可視領域のポンププローブ分光法をシングルショットで実行可能な系を開発し、光誘起相転移の初期過程を検出することを目的とした。

一方で光誘起相転移において協力的な相互作用を担うのは、テラヘルツ領域の素励起である場合が多い。そこで、本研究では光励起下でのテラヘルツ応答を測定するために光励起、広帯域テラヘルツプローブ分光法の開発も行う。これによって、光誘起相転移のダイナミクスを構造と電子状態の両面から解明することが可能になるものと期待される。当初は繰り返し測定可能な系でのテラヘルツ応答を測定するが、将来的にはシングルショットの分光測定法も組み合わせることで、任意の光誘起相転移物質における時間分解テラヘルツ応答と、可視応答を調べることができるようにすることを目指したい。

シングルショットの分光測定法に関しては、マサチューセッツ工科大学の K. A. Nelson らのグループによって階段型のプリズムを用いた先駆的な研究が行われている[3]。また、励起光を線状に集光し角度をつけてクロスさせることによって、空間的に時間差をつけることを利用した測定手法もある[4]。しかしながら、光誘起相転移物質では大きな試料を得ることが困難であるため後者の手法を使用することが難しい。また、前者の手法では二次元の格子を使用するため解析が難しく、また、プリズムをレーザー光が透過するために、白色光や 10fs 程度の超短パルスを用いた実験に

は使用することができない。そこで、本研究では、反射型の階段ミラーを用いた手法によって、シングルショットの分光法を開発することを目指す。これによって、広帯域で光ポンププローブ分光法を行うことができるかもしれない。

また、テラヘルツ分光法では、光伝導アンテナ素子を反射配置で使い、10fs以下の超短パルスレーザーを用いることによって、通常のテラヘルツ分光法では難しい高周波領域までもカバーした分光測定を行う。これまでに0.1THzから20THzまでの広帯域が測定可能となっている[5,6]。テラヘルツ領域には、強誘電体のソフトフォノンモードやマグノン、低周波フォノン、超伝導ギャップなど、さまざまな物質における相転移を特徴づける素励起が数多く観測されている。従って、光誘起相転移を示す物質においてもその素励起を観測することができれば、協力的相互作用の起源を議論することができる。これらの技術を組み合わせていくことで、光誘起相転移のダイナミクスを明らかにすることが可能となることを期待している。



#### 参考文献

- [1] K. Nasu ed., *Photoinduced Phase Transitions* (World Scientific Publishing, 2004).
- [2] H. Okamoto et al., *Phys. Rev. B* **70** (2004) 165202 .
- [3] P. R. Poulin and K. A. Nelson, *Science* **313** (2006) 1756.
- [4] Furukawa et al., *Appl. Phys. Lett.* **85** (2004) 4645.
- [5] H. Shimosato, *phys. stat. sol. (c)* **3** (2006) 3484.
- [6] I. Katayama et al., *Appl. Phys. Lett.* **93** (2008) 132903.