

平成 27 年度 MERIT 自発融合研究  
電場波形安定な中赤外パルスを用いたサブサイクルポンプ - プローブ測定系  
の構築と二次元銅酸化物における高強度電場効果の測定

新領域創成科学研究科物質系専攻 修士課程二年 森本剛史  
理学系研究科物理学専攻 博士課程二年 金島圭佑

### 1. 著者の紹介

森本剛史 (申請者 1)

物質系専攻 岡本貴田研究室に所属。高強度テラヘルツ波を励起光に用いた物性の制御をテーマとして研究に取り組んでいる。

金島圭佑 (申請者 2)

物性研究所 板谷研究室に所属。超高速・高強度コヒーレント光源の開発、アト秒光科学、固体の高強度場物理などに興味をもって研究を行っている。

### 2. 研究の背景と目的

#### 2.1 光電場における絶対位相の制御

レーザー技術は、その発明以降、絶えず進歩を続けてきた。近年の超短パルスレーザー技術の発展において顕著なのが、(i) 光パルスの高強度化、(ii) アクセスできる波長域の拡大、(iii) 光電場の絶対位相 (Carrier-Envelope Phase, CEP) の制御技

術の進歩、である。ここでは、本自発融合研究の動機に直接的に関わる (iii) について説明する。

図 2.1 (a) に示すように従来のパルスレーザーでは光電場の包絡線はパルスごとに変わらないが、包絡線内部における電場の振動波形はパルスごとに異なる。パルスごとに異なる振動電場の位相 (CEP) を検出・制御できるようになったことで、電場の振動波形を不変に保つことができるようになった (図 1b)。なお、これら光電場の位相制御技術に関連して、2005 年のノーベル物理学賞が J. Hall, T. Hänsch らに与えられている。

光電場の絶対位相制御技術を含む(i)~(iii)の技術の発展により、2 周期程度の光電場振動からなる CEP 安定な高強度光パルスが生成可能になった。その結果、高次高調波発生過程における電子の運動を電場の位相変化を通じて制御することで、アト秒 ( $10^{-18}$  秒) 領域の時間幅をもつ光パルスを真空紫外領域で作り出せることが分かり、アト秒領域の超高速光科学 (アト秒光科学) が急速に進展

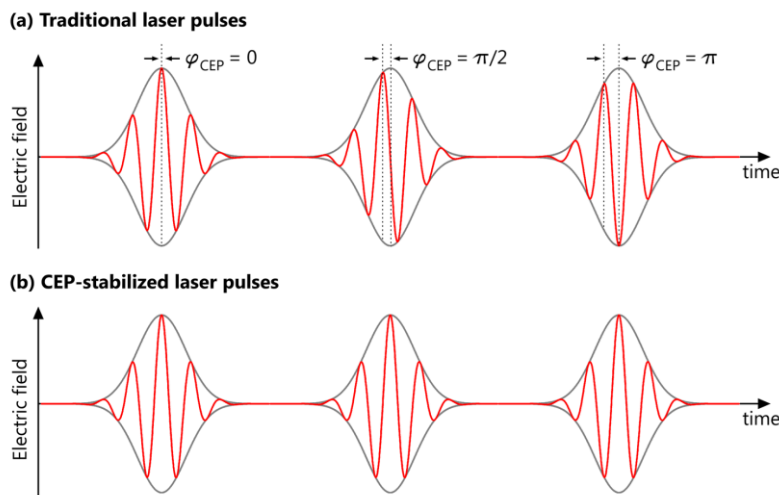


図 2.1 (a) 従来のレーザーからの出力、(b) CEP 安定なレーザーからの出力

しつつある [1]。

その一方で、近赤外域の超短パルスから差周波発生を用いて CEP 安定な THz パルスを発生させる技術も進歩した。特に、J. Hebling らによって LiNbO<sub>3</sub> を用いたパルス面傾斜法 [2] が発明されたことで、CEP 安定な THz パルスをを用いて ~1 MV/cm の電場を作り出せるようになった。

## 2.2 サブサイクル分光

例えば、原子からの高次高調波発生においては (1) 高強度の光電場による電子のトンネルイオン化, (2) 光電場による電子加速, (3) 加速された電子と原子核との再衝突, という過程が光電場の 1 周期以内という非常に短い時間で起こる (図 2.2)。高次高調波発生は、非摂動論的な領域における非線形性の大きな現象であるため、光電場の振幅がわずかに変化しただけで、得られる高次高調波のスペクトルは大きく変化する。このような光電場の包絡線ではなく振動波形そのものに敏感で、光電場の 1 周期よりも短い時間スケールで起こる高強度場現象を解明するためには、光電場の振動波形そのものに対する応答を実時間領域で調べる必要がある。

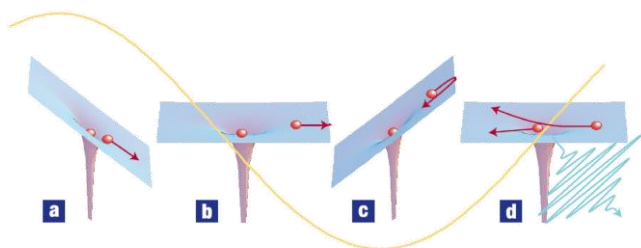


図 2.2 原子からの高次高調波発生[3]. 黄色線は各時点でのレーザー電場を表している。(a) 電場のピーク近傍で、原子核に束縛されていた電子がトンネルイオン化する。(b)-(c) レーザー電場中で電子は自由電子として運動する。まずレーザー電場によって親イオンから引き剥がされ、電場の符号変化に伴って親イオンへと引き戻される。(d) 電子が親イオンと再結合し、高次高調波が放射される。

アト秒光科学においては、アト秒パルスを発生させるのに用いた CEP 安定な近赤外光をポンプ光、発生した真空紫外領域のアト秒パルスをプローブ光とするポンプ-プローブ分光を行うことで、近赤外電場の振動波形に対する実時間応答を近赤外光の 1 振動周期以下の時間分解能で調べることができる。アト秒ストリーク法 [3,4]、アト秒過渡吸収分光法 [5] などがこれにあたる。このように、CEP 安定な長波長電場と、長波長電場の 1 周期よりも短い時間幅をもつ短波長光パルスを組み合わせた分光法をサブサイクル分光と呼ぶことにする (図 2.3)。一方で THz 光科学においては、CEP 安定な THz 波をポンプ光、THz の発生に用いた近赤外パルスをプローブ光とすることで、サブサイクル分光を行うことができる。(Electro-Optic Sampling, EO サンプリング) [6]、THz-Pump/Optical-Probe 分光などが THz 領域におけるサブサイクル分光の例として挙げられる。

## 2.3 CEP 安定な高強度中赤外パルス発生への動機と自発融合研究に至った経緯

前述した THz 光科学の領域においては、CEP 安定かつ高強度な THz 波が発生可能になったことにより、固体中の高強度場物理学という新しい領域の研究が行われ始めている [7,8]。THz 波の光子エネルギーは固体のバンドギャップよりもはるかに小さいため、固体を破壊することなく、これまでにない強度の電場を固体中に作り出せる。電子のバンド内ダイナミクスを強く駆動することで、光

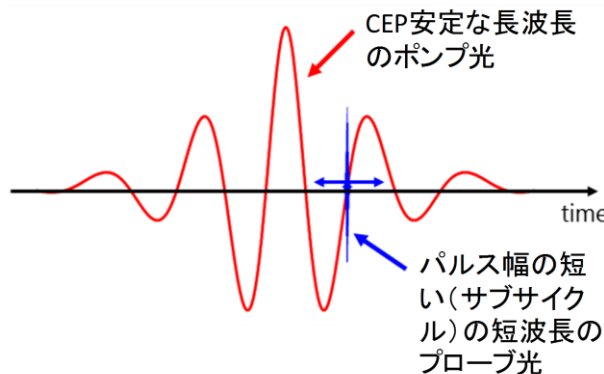


図 2.3 サブサイクル分光の概念図

電場に対する固体の極端な非線形応答や、新奇な過渡状態の出現が観測され始めている。

THz 領域 (~1 THz) において ~1 MV/cm の電場強度が達成されている一方、中赤外領域 (~30 THz) では、さらに高い電場強度 ~100 MV/cm が報告されている [9]。これは、THz 波の場合より集光スポットを小さくできる、パルス幅が短いといった理由による。高強度の中赤外パルスをバルク半導体に照射し、結晶が破壊される寸前の強電場 (~数十 MV/cm) で電子を加速することで、ブロッホ振動に伴う固体からの高次高調波発生も観測され始めている [10,11]。

CEP 安定な高強度中赤外や THz パルスを利用したサブサイクル分光システムは、固体中の高強度場物理の研究を進める上で非常に重要である。しかし、CEP 安定かつ高強度な THz 波を用いたサブサイクル分光のシステムは、前述した Hebling らの手法によって確立されたテラヘルツ波発生技術によって実現できる一方で、CEP 安定な高強度中赤外パルスを用いたサブサイクル分光システムの構築は、下記の理由により容易ではない。

(1) 高強度の中赤外パルス発生のためには、複数の光パラメトリック増幅器 (Optical Parametric Amplifier, OPA) からなる複雑なシステムが必要であり、高度な光源開発技術が必要とされる。

(2) 中赤外光の振動周期は THz 波に比べて短いため、サブサイクルの時間幅を持つプローブ光の生成が難しい。例えば、波長 9  $\mu\text{m}$  の中赤外光の振動周期は 30 fs である。

3.1 で詳述するが、申請者 2 は CEP 安定な高強度中赤外光とそれをプローブするための超短パルスの生成に成功し、上記 (1)、(2) の課題を克服した。一方で、申請者 1 はこれまで CEP 安定な高強度 THz 波を用いて強相関電子系を中心とした物質の物性制御に取り組んできた。そのような二人が協力することで、「CEP 安定な高強度中赤外光を励起光とし、それに対する強相関電子系物質の応答をサブサイクル分光によって観測する」というこれまで実現が難しかった研究が行えるのではないかと考えた。これが本自発融合研究へと至った経緯である。

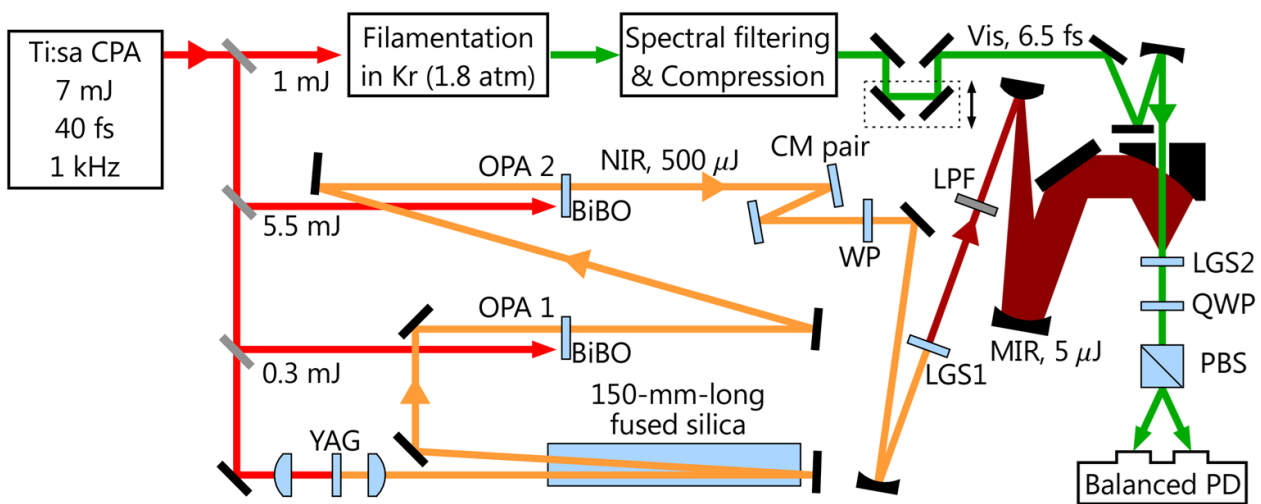


図 3.1 実験セットアップの模式図 [12]。YAG ; 4 mm 厚の  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (YAG) 結晶、BiBO ; 1 mm 厚の  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  (BiBO) 結晶、CM pair ; 近赤外超広帯域チャープミラー対、WP ; 波長板、LGS1 ; 1 mm 厚の  $\text{LiGaS}_2$  (LGS) 結晶、LPF ; ローパスフィルタ、LGS2 ; 15  $\mu\text{m}$  厚の LGS 結晶、QWP ; 1/4 波長板、PBS ; 偏光ビームスプリッター。

### 3. 実験方法と対象物質

#### 3.1 CEP 安定な MIR パルスと可視超短パルスの光学系

上述の課題 (1) を克服するため、申請者 2 人は Dual-wavelength OPA と名付けた新たな手法を提案・実証し、簡潔なセットアップで CEP 安定な高強度中赤外パルスの生成に成功した [12]。また、ガス媒質中でのフィラメンテーションを利用したスペクトルの広帯域化と、誘電体多層膜鏡を利用したスペクトル整形・パルス圧縮を組み合わせることで、時間幅 6.5 fs のプローブ光を可視領域 (520-700 nm) で生成することに成功し、課題 (2) も克服した [13]。

実験セットアップを図 3.1 に示した。このシステムの詳細については参考文献 [12] に記したので、ここでは詳述しない。本システムの特徴は、図 3.2 のように物質分散と広帯域なパラメトリック増幅器をうまく利用した波長選択的な増幅 (Dual-wavelength OPA) を行うことで効率的かつ安定な中赤外光の発生 (5-11  $\mu\text{m}$ , 5  $\mu\text{J}$ , 70 fs, 1 kHz) を可能にしていることである。中赤外光は図 3.1 の軸外し放物面鏡の焦点で直径 32  $\mu\text{m}$  ( $1/\text{e}^2$  Intensity、ナイフエッジ法で測定) に集光されており、56 MV/cm の電場強度を達成できる。

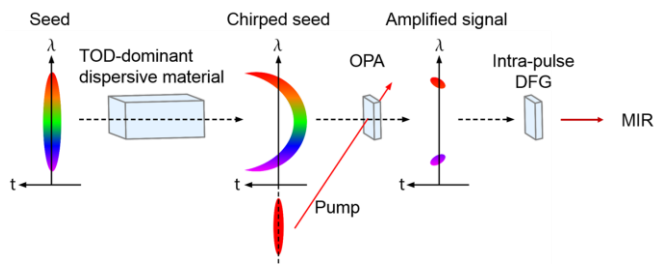


図 3.2 Dual-wavelength OPA の概念図

#### 3.2 二次元銅酸化物

本節では本研究において中赤外パルス励起を行った二次元銅酸化物について述べる。対象としたのは  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ 、 $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  という二つの二次元銅酸化物である。以下この二つの物質をそれぞれ NCO、SCOC と表記する。二次元銅酸化物は高温

超伝導体の母物質としてよく知られているが、ノンドープにおいても Mott 絶縁体として興味深い物性を示す。図 3.3 に NCO と SCOC の結晶構造を示した。電子的な物性で重要となるのは、Cu 原子と O 原子によって形成される二次元面 ( $\text{CuO}_2$  平面) である。NCO では Cu 原子の周りに 4 つの O 原子が配位しているのに対し、SCOC では c 軸方向に Cl 原子が配位して八面体の構造をとっている。Cu 原子には 3d 軌道に 9 つの電子が収容されている。今考える状況では配位子場分裂によって  $3d_{x^2-y^2}$  軌道が最高の準位となるので、そこに一つ電子が収容される。バンド理論においてはこのような物質は金属となるが、NCO、SCOC の場合には強いオンサイトクーロン反発  $U$  によって  $3d_{x^2-y^2}$  のバンドが上部ハバードバンドと下部ハバードバンドに分裂し、Mott 絶縁体となる。分裂したバンドの間には酸素の 2p 軌道からなるバンドが存在しており、最低の光学励起は O の 2p から Cu の  $3d_{x^2-y^2}$  への遷移 (CT 遷移) となる (図 3.4)。

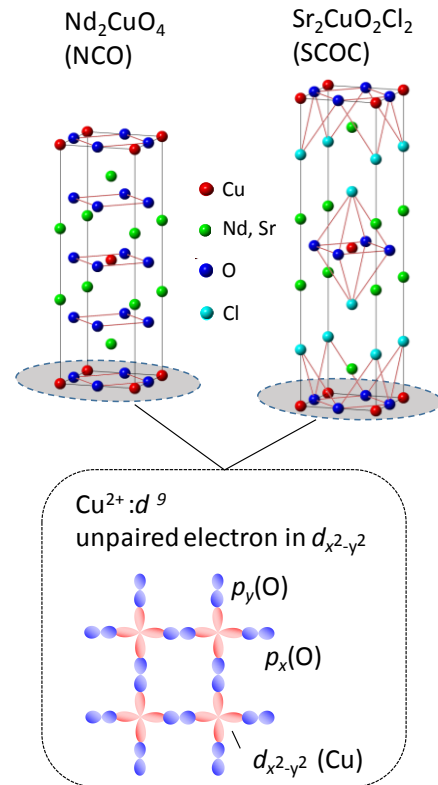


図 3.3 NCO と SCOC の結晶構造



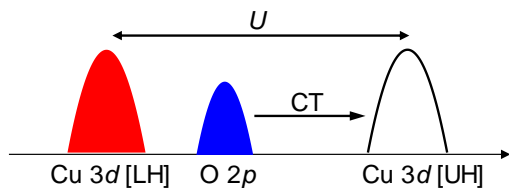


図 3.4 NCO と SCOC のバンド構造

本研究で二次元銅酸化物を対象として選んだ理由は、中赤外パルス励起によって強相関電子系特有の大きな光学応答が、今回使用するプローブのエネルギー領域に生じると期待したからである。今回の実験では、6.5 fs という短い時間幅のパルスを発生させる都合上、プローブ光の光子エネルギーを変化させることはできない。そのため、プローブ光のエネルギー領域 (1.5 eV~2.5 eV) で大きな応答が生じる必要がある。図 3.5 に示したように、NCO と SCOC の Mott ギャップは 1.5 eV から 2 eV に位置しており、中赤外励起によってこの領域に大きな応答が生じる可能性は高い。例えば、テラヘルツ波を励起光とした場合には、Mott ギャップ近傍で時間発展が電場波形の 2 乗に一致する反射率変化が生じることが申請者 1 の所属する研究室の研究によってわかっている (図 3.6、[14])。この応答はテラヘルツ電場によって生じる 3 次の非線形光学応答として理解することができる。このことから、今回の中赤外パルス励起の場合でも、Mott ギャップ近傍に大きな応答が生じるのではないかと考え実験を行った。

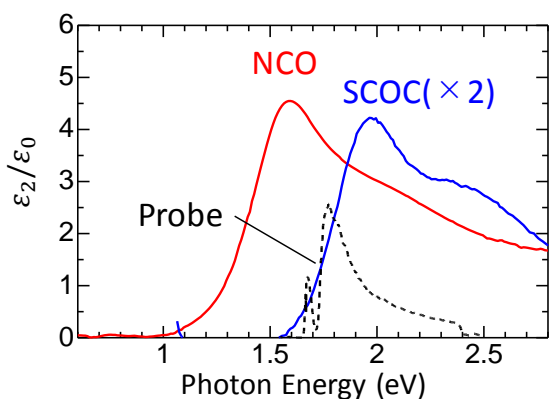


図 3.5 NCO と SCOC の定常 $\epsilon_2$ スペクトルとプローブ光のスペクトル

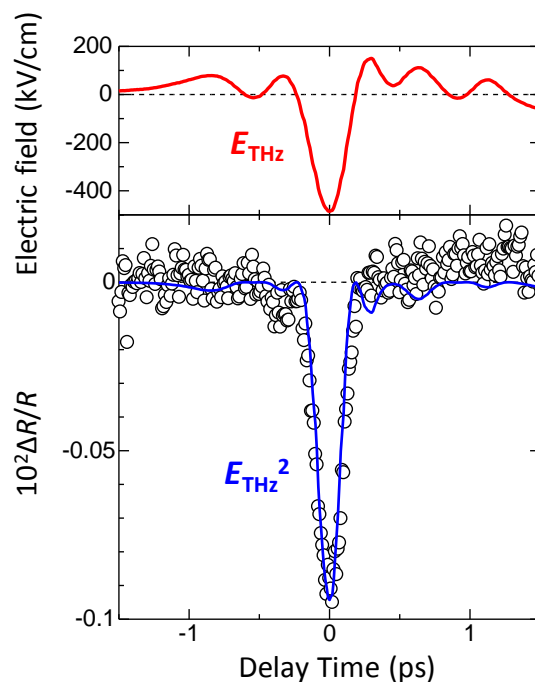


図 3.6 THz 波励起によって生じる NCO の過渡反射率変化。(上) ポンプ光として用いた THz 波の電場波形、(下) 反射率変化の時間発展 (黒丸) と THz 電場波形の二乗 (青線)

### 3.3 ポンプ - プローブ分光法と EO サンプルング

本節では、本研究の実験手法であるポンププローブ分光法と中赤外パルスの電場波形を測定するための手法である EO サンプルングについて述べる。図 3.7 にポンプ - プローブ分光法の概念図を示した。この手法では、ポンプ光で試料を励起し、その結果を生じる電子・格子・スピン系の変化をプローブ光の反射率や透過率の変化を通じて観測する。ディレイステージを用いて光路長を変化させることで、試料が励起された後の変化を時間的に追跡することができる。また、同様の実験配置で試料の代わりに EO 結晶を置くことで、Electro-Optic sampling (EO サンプルング) を行い、中赤外パルスの電場波形を計測することもできる。EO サンプルングでは、中赤外パルスの電場によって EO 結晶の屈折率が変化し、そこを透過するプローブ光の偏光状態が変化するので、それを検出する。このようにすることで、中赤外パルスの電場波形

を直接計測することができる。EO サンプリグは、THz パルスの電場波形を取得する際に広く採用されている手法である [6]。中赤外パルスに対してこの手法を適用するには、中赤外パルスの電場周期よりも短いパルス幅を持つプローブ光（サンプリグパルス）が必要である。本研究では銅酸化物のポンプ - プロブ測定に使用するのと同じ 6.5 fs の可視超短パルスを EO サンプリグのプローブ光として用いた。

#### 4. 実験結果と考察

本章では自発融合研究で得られた結果について述べる。まず、4.1 節で EO サンプリグを行うことで得られた中赤外パルスの電場波形について述

べる。続く 4.2、4.3 節で CEP 安定な中赤外パルスを励起光として、二次元銅酸化物 SCOC、NCO においてポンププロブ分光を行った結果について述べる。

#### 4.1 EO サンプリグ

図 4.1 に EO サンプリグを行うことにより得られた中赤外パルスの電場波形を示す。まず重要なのが、電場波形の測定に成功したということである。CEP が不安定なパルスの場合には、一つ一つのパルスを積算した結果、信号が打ち消されてしまう。よって、EO サンプリグで電場波形が測定できたということは、CEP が安定な中赤外パルスが発生していることを保証している。また、今

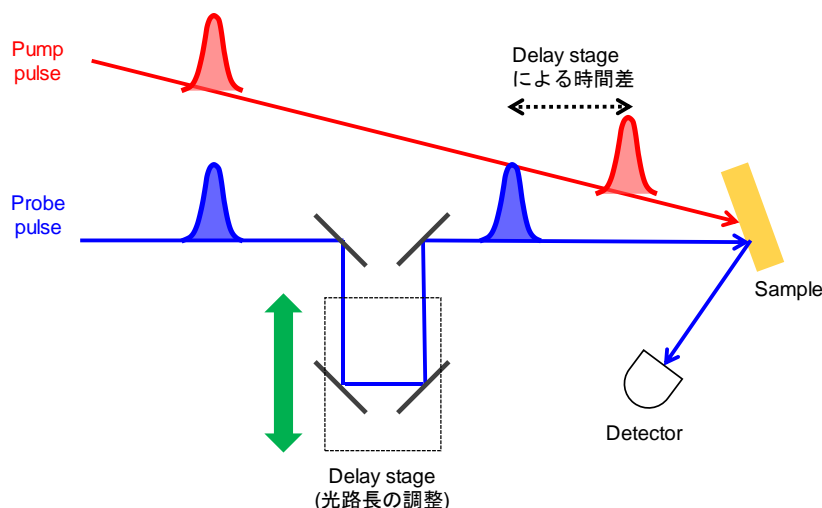


図 3.7 ポンプ - プロブ分光の実験配置

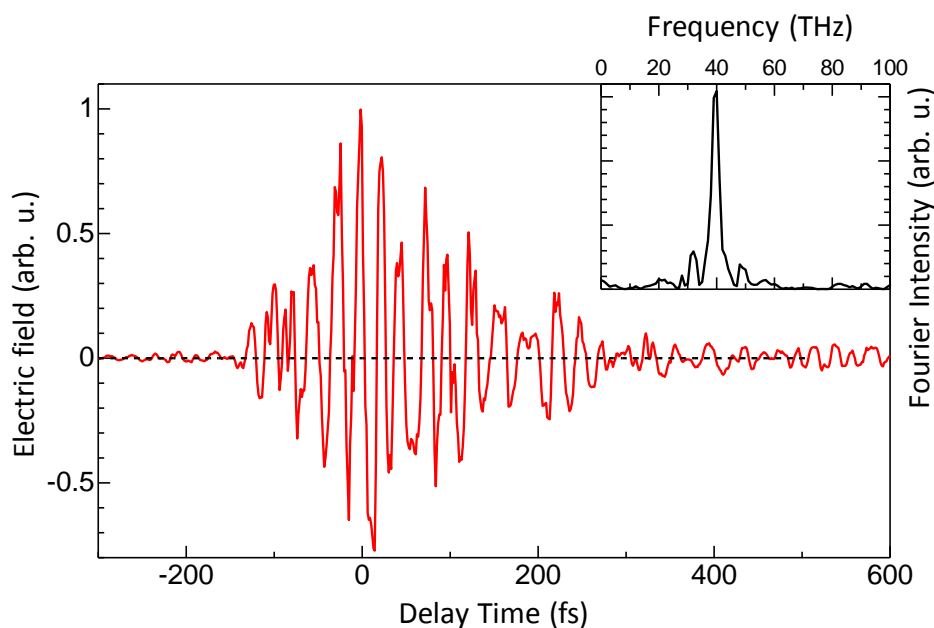


図 4.1. EO サンプリグにより測定した中赤外パルスの電場波形。挿入図は電場波形のフーリエ変換

回の EO サンプリングのサンプリングパルスには後のポンプ - プロブ測定で使用するプロブ光と同じ可視の超短パルスを用いている。よって、EO サンプリングに成功したということは、ポンプ - プロブ測定系の基本的なセットアップが整ったことを意味している。

EO サンプリングにより取得した電場波形から、中赤外パルスの電場周期は約 26 fs、パルス幅は強度の半値全幅で約 80 fs であることがわかる。また、挿入図に示した電場波形のフーリエ変換から、中赤外パルスの中心周波数が約 40 THz (約 0.16 eV) であることもわかる。申請者 2 の作成した光学系の特徴は、発生する中赤外パルスの中心周波数を自由に換えられるという点にある。しかし本研究では、ポンプ光の中心周波数依存性は測定せず、以下に述べるすべての実験で中心周波数が約 40 THz のパルスを用いた。図 4.1 に示した中赤外パルスの電場波形は典型的なものであり、光学系の調整を行うと、その電場波形は少しずつ変化する。そのため、4.2 以降に述べる実験を行う前には、そ

の都度 EO サンプリングを行い、電場波形を測定している。

最後に、中赤外パルスの電場強度について述べる。中赤外パルスの強度については 3.1 ですでに述べたが、本自発融合研究で実験を行った時とは若干条件が異なるので、ここで改めて述べる。銅酸化物における測定を行った際に使用した中赤外のパルス当たりのエネルギーは集光地点で約 2  $\mu$ J、ビーム系は約 32  $\mu$ m である。これらの値と電場波形を合わせると、中赤外パルスの電場の尖頭値が約 33 MV/cm であることがわかる。3.2 で述べた銅酸化物におけるテラヘルツ波ポンプの先行研究では、電場強度の先頭値は約 400 kV/cm であった。それと比較すると、本研究では 100 倍に近い強度を持った電場を試料に印加できることがわかる。

#### 4.2 SCOC における MIR パルス励起

図 4.2 (a) に SCOC において中赤外パルス励起を行った際の反射率変化の時間発展を示す (緑実線)。フォトディテクターの前にバンドパスフィル

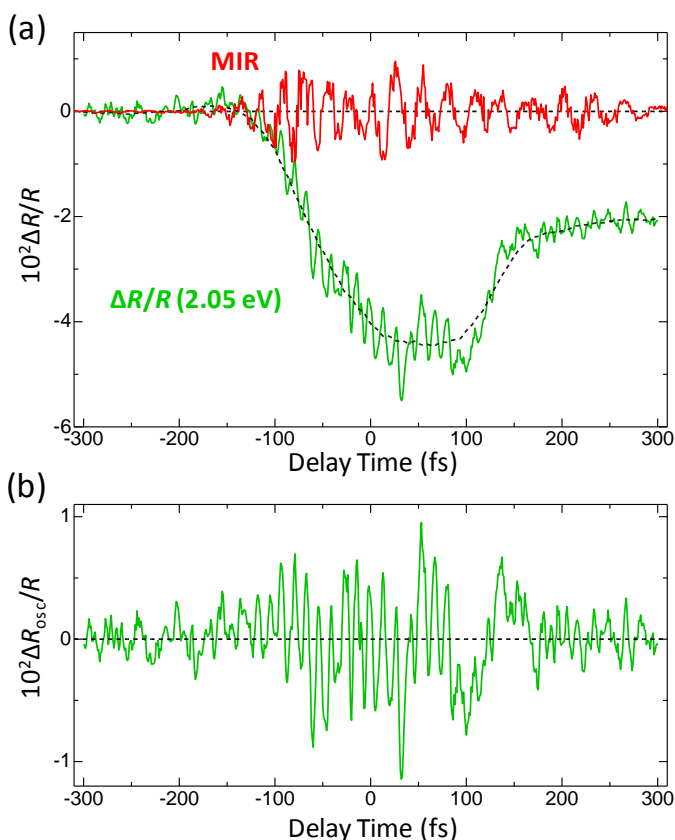
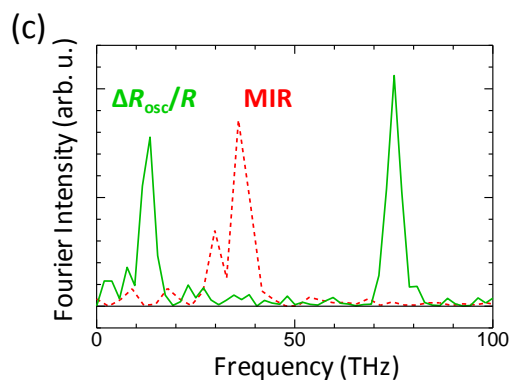


図 4.2 (a) SCOC で測定した 2.05 eV における反射率変化の時間発展 (緑実線)。赤実線は中赤外パルスの電場波形、黒点線は振動成分を抜き出す際に差し引いたバックグラウンド。(b) 反射率変化に含まれる振動成分。(c) 振動成分のフーリエ変換 (緑実線)。赤点線は中赤外パルスの電場波形のフーリエ変換。



ーを挿入することで、2.05 eV の反射率変化をプローブしている。図には赤実線で中赤外パルスの電場波形も示してある。中赤外パルスの入射と同時に、ブロードな負の反射率変化が生じていることがわかる。また、-100 fs から+100 fs には鋭い振動構造が表れている。この振動成分を抽出するために、黒の破線で示した反射率変化のバックグラウンドを差し引いた。そのようにして得られた反射率変化の振動成分が図 4.2 (b) である。また、この振動成分を-200 fs から 300 fs までフーリエ変換したのが図 4.2 (c) である (緑実線)。同じ図には中赤外パルスのフーリエ変換も示してある (赤点線)。フーリエ変換から反射率変化には 13 THz と 75 THz の振動成分が含まれていることがわかる。このうち、75 THz の振動は、中赤外パルスの中心周波数 36 THz のほぼ倍の周波数である。このような励起光のパルス幅や電場周期よりも短い周期の振動は、CEP 制御された励起光と、十分な時間分解能をもつプローブ光という二つの条件を満たして初めて観測できるものである。その意味で、このような振動成分が観測できたことは、サブサイクルプローブのデモンストレーションに成功したことを表している。もう一つの振動成分である 13 THz の振動については、4.3 で後述する。

次に、様々な中心周波数のバンドパスフィルターを用いて測定した、反射率変化のプローブエネルギー依存性を図 4.3 に示す。中赤外パルスの入射と同時に生じるブロードな形状の反射率変化は、すべてのプローブエネルギーにおいて観測された。ただし、反射率変化の符号は低エネルギー側で負、高エネルギー側で正となっている。図 4.4 (b) には図 4.3 のピーク値をプロットすることで得られた反射率変化のスペクトルを示してある (赤丸)。2.11 eV の反射率変化は時間によって信号の符号が異なるのでプロットしていない。青丸で示したのは、先行研究で観測されているテラヘルツ波励起時の反射率変化スペクトルである。また、図 4.3 (a) には SCOC の定常反射率 (黒実線) と  $\epsilon_2$  (赤

実線) のスペクトルをプローブ光である可視超短パルスのスペクトル (黒点線) と共に示した。テラヘルツ波励起の場合には、三次の非線形光学効果によって Mott ギャップを中心にして、低エネルギー側から正、負、正の反射率変化が生じる。中赤外パルスによって生じる反射率変化も、スペクトルを見るとテラヘルツ波励起の場合と類似しているが、反射率変化の時間発展は両者で大きく異なる。図 3.6 に示したように、テラヘルツ波励起の場合には反射率変化の時間発展は、ポンプ光であるテラヘルツ波の電場波形の 2 乗に完全に一致する。一

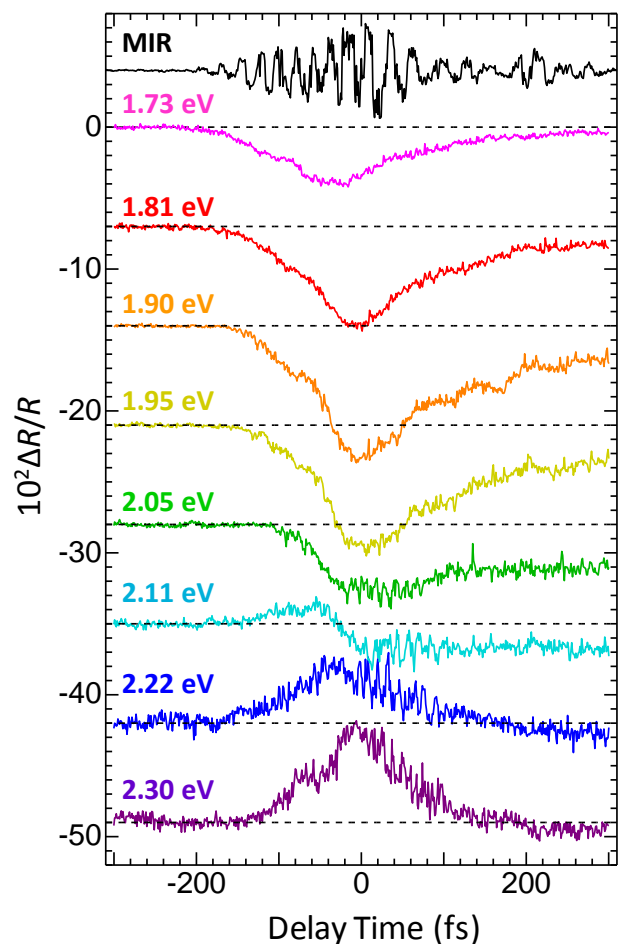


図 4.3 SCOC における反射率変化のプローブエネルギー依存性。フォトディテクター前のバンドパスフィルターを入れ替えることにより、プローブエネルギーを変化させている。



方で、中赤外パルス励起の場合には、反射率変化は電場波形の 2 乗というよりもパルスの包絡線に沿ったブロードな形状をしている。前述した 75 THz の振動成分は、中赤外パルスの電場周期の 2 倍であることから、この振動が電場波形の 2 乗に対応したものである可能性はある。しかし、この振動は高エネルギー側 (2.05 ~ 2.30 eV) のみで観測されており、全エネルギー領域で電場の 2 乗に対応した反射率変化が観測されたテラヘルツ波励起のときとは異なる結果になっている。

以上のようなことを踏まえると、中赤外パルス励起によって生じている反射率変化は、テラヘルツ波励起の時とは異なり、3 次の非線形光学効果

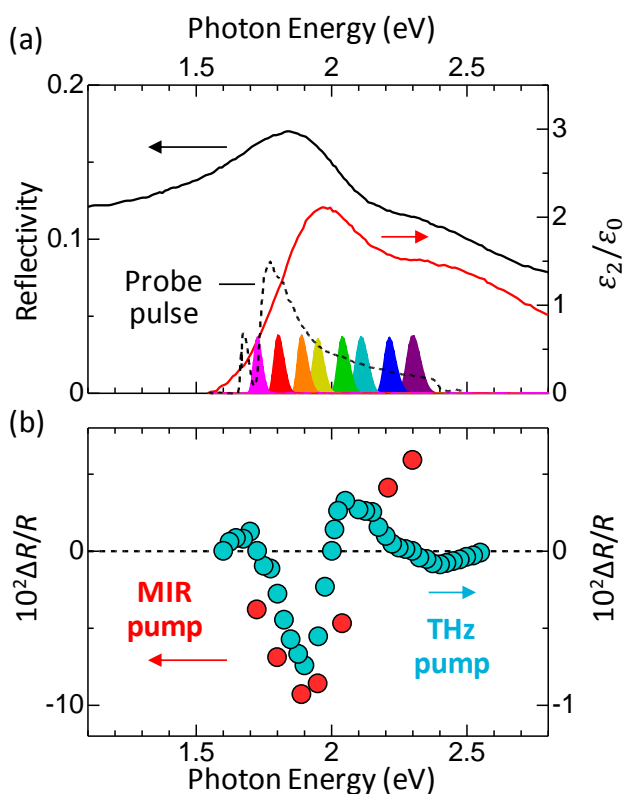


図 4.4 (a) SCOC の定常反射率スペクトル (黒実線)、定常 $\epsilon_2$ スペクトル (赤実線)、プローブ光のスペクトル (黒点線)。プローブ光のスペクトルと並んで示してあるのはバンドパスフィルターのスペクトル。(b) 中赤外励起時の反射率変化スペクトル (赤丸)。青丸は先行研究で観測されているテラヘルツ波励起時の反射率変化スペクトル。

以外の効果によるものである可能性がある。このような反射率変化が生じる原因はまだ不明であるが、「5. まとめと展望」で述べるような実験を行うことでさらなる情報が得られると考えられる。

### 4.3 NCO における MIR パルス励起

図 4.5 に NCO において中赤外パルス励起を行った際に観測された反射率変化の時間発展を、プローブエネルギーごとに示す。中赤外パルスの入射と同時に反射率変化が生じる点は SCOC と同様だが、NCO の場合には中赤外パルスの電場が消失した後も反射率変化が持続していることが特徴である。次に、図 4.6 (b) に反射率変化のピーク値をプロットすることで得られたスペクトルを示した (赤丸)。SCOC の時と同様に、テラヘルツ波励起時の反射率変化スペクトルも示してある (青丸)。また、図 4.6 (a) には、NCO の定常スペクトルが示してある。反射率変化スペクトルを見ると、測定したエネルギー領域全体で負の反射率変化が生じていることがわかる。このことから、NCO では SCOC とは異なる機構によって反射率変化が生じていると考えられる。

NCO において生じている現象の一つの可能性として考えられるのが、ポンプ光によるキャリアの生成、もしくは絶縁体 - 金属転移である。NCO を含む二次元銅酸化物では、Mott ギャップを超える光子エネルギーをもつパルスを入射することでキャリアが生成され、瞬時に絶縁体 - 金属転移が生じることが報告されている [15]。このとき、キャリアの生成によって Mott ギャップの吸収が減少するので、Mott ギャップ近傍では負の反射率変化が生じる。このことは、申請者 1 の所属する研究室において、7 fs の可視超短パルスを用いたポンプ - プロブ測定によって確かめられている [16]。このことから、本研究においても中赤外パルスによって試料中にキャリアが生成されている可能性が存在する。

ここで注意したいのは、本研究でポンプ光とし

て用いている中赤外パルス光子エネルギーは約 0.16 eV であり、NCO の Mott ギャップ (約 1.5 eV) よりもはるかに小さいということである。このような透明領域の励起では通常キャリアは生成されない。しかし、このような場合でもポンプ光の電場強度が極めて強い場合にはトンネルイオン化と呼ばれる機構によってキャリアが生成されることが理論的に予測されている [17]。トンネルイオン化の機構を説明したのが図 4.7 である。高強度の電場によってバンドに十分なエネルギー勾配が生じると、バンド間を電子がトンネリングしキャリアが生成される。実験的にも、Mott 絶縁体

である VO<sub>2</sub> において、高強度のテラヘルツ波や中赤外パルスによってトンネルイオン化が生じているという報告がある [18,19]。トンネルイオン化に必要な電場強度は Doublon と Hole の相関長や Mott ギャップの大きさに依存している。[17]の理論的研究ではいくつかの次元 Mott 絶縁体の場合に閾値的な電場強度が 3~16 MV/cm であると予想されている。今回測定した NCO は二次元系であるため単純な比較はできないが、本研究で用いた 33 MV/cm という強い電場強度であれば、トンネルイオン化によりキャリア生成が生じる可能性は十分にあるといえる。

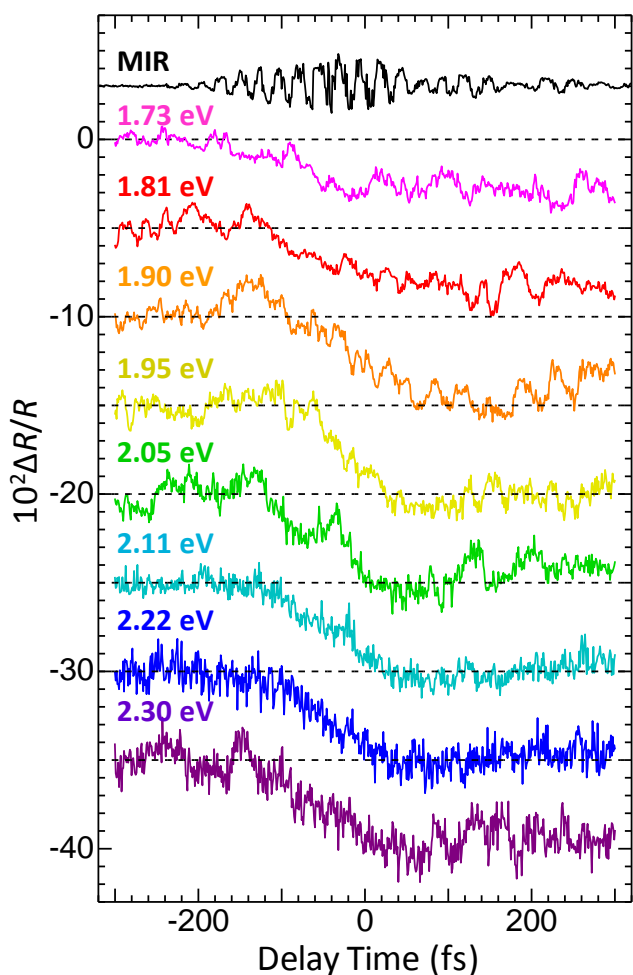


図 4.5 NCO における反射率変化のプロープエネルギー依存性。フォトディテクター前のバンドパスフィルターを入れ替えることにより、プロープエネルギーを変化させている。

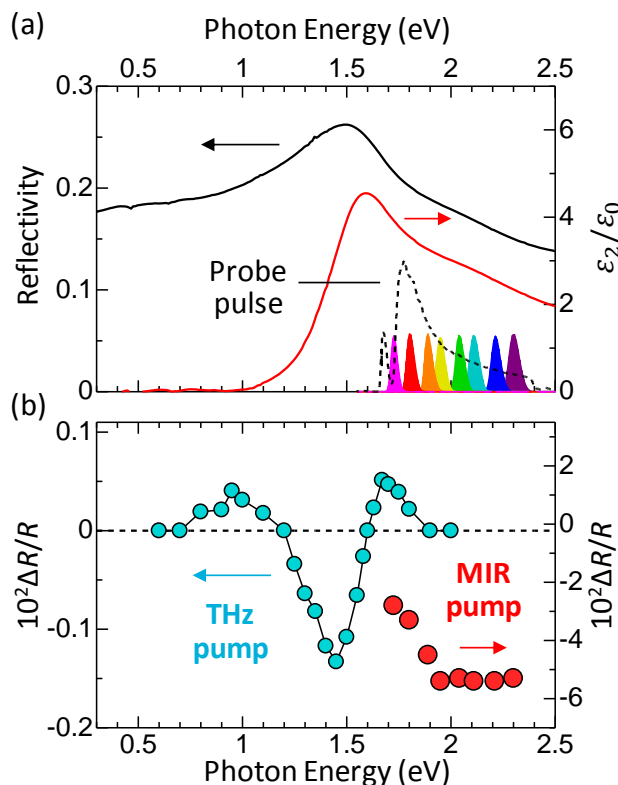


図 4.6 (a) NCO の定常反射率スペクトル (黒実線)、定常  $\epsilon_2/\epsilon_0$  スペクトル (赤実線)、プローブ光のスペクトル (黒点線)。プローブ光のスペクトルと並んで示しているのはバンドパスフィルターのスペクトル。(b) MIR 励起時の反射率変化スペクトル (赤丸)。青丸は先行研究で観測されているテラヘルツ波励起時の反射率変化スペクトル。

最後に、キャリアの生成という観点から SCOC の結果についても考察を加える。図 4.3 の反射率変化の時間発展をよく見ると、NCO の場合ほど大きくはないが、SCOC の場合でも 200 fs 以降はすべてのエネルギー領域で負の反射率変化が生じていることがわかる。このことから、SCOC においても中赤外パルスによってキャリアが生じている可能性がある。また、コヒーレント振動として観測された 13 THz の振動は、その振動数からキャリアとの相互作用で生じるフォノンのコヒーレント振動ではないかと考えられる。キャリア生成が NCO の場合に強く生じているのは、SCOC に比べて NCO のほうがギャップのエネルギーが小さいからではないかと考えられる。

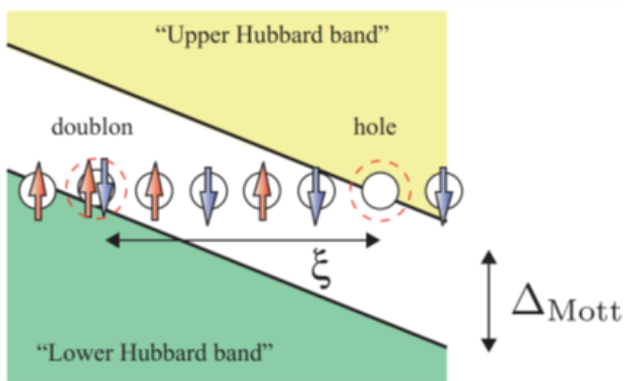


図 4.7 トンネルイオン化の模式図。電場によりバンドが傾き、空間的に離れた位置に Doublon と Hole が生成される。[17]

## 5. まとめと展望

本自発融合研究では、申請者 2 が開発した CEP 安定な高強度中赤外パルスと可視領域の超短パルスを用いることで、サブサイクル分光を可能にする光学系を構築し、さらにその実験手法を強相関電子系物質に対して適用することを目的とした。まず、ポンプ - プローブ光学系を構築し、EO サンプリングを行うことで、中赤外パルスの電場波形を測定することに成功した。続いて、その光学系を用いて、二次元銅酸化物 SCOC、NCO において

中赤外ポンプ - 可視プローブのサブサイクルポンプ - プローブ測定を行った。SCOC では中赤外パルスの入射とともに、Mott ギャップの高エネルギー側では正の、低エネルギー側では負の反射率変化が観測された。さらに、Mott ギャップの高エネルギー側では、反射率変化の中に中赤外パルスの電場周期の 2 倍周期で振動するコヒーレントな振動成分が観測された。このような励起光の電場周期よりも短い周期の応答は、従来のポンププローブ分光では観測できず、サブサイクル分光を行うことで初めて観測できたものである。その意味で、本自発融合研究を行った価値は大いにあったといえる。SCOC における反射率変化、及び 2 倍周期の振動成分の起源は現時点では不明であるが、THz 波ポンプで観測されていた三次非線形光学効果に起因する反射率変化とはその時間発展が大きく異なることから、それとはことなる新たな応答が観測されたのだと考えられる。一方、NCO においては中赤外パルス励起によってプローブしたエネルギー領域全体で負の反射率変化が観測された。Mott ギャップの吸収が減少するというこのような振る舞いから、中赤外パルス励起によってキャリアが生成されている可能性が示唆される。本実験では、中赤外パルスの光子エネルギーは光学ギャップよりもはるかに小さいため、キャリア生成の機構として考えられるのは、中赤外パルスの電場によるトンネルイオン化である。これは数十 MV/cm クラスの高強度の電場によって生じる非摂動的な応答であり、これまでにわずかな報告しかない興味深い現象である。

以上のように、本自発融合研究では CEP 安定な高強度中赤外パルスを励起光としたサブサイクルポンプ - プローブ分光システムを二次元銅酸化物に適用することで、これまで観測されていなかった新たな応答を観測することに成功したといえる。次の課題は、上記のような応答が生じるメカニズムを解明することである。まず必要な測定の一つが励起光の電場強度依存性である。今回は測定系

の関係で行えなかったが。電場強度依存性は重要な情報を含んでいる。特に、NCO で生じているのがトンネルイオン化であれば、その反射率変化は中赤外パルスの電場強度に対して強い非線形性を示すと考えられる。また、広域にわたる反射率変化スペクトルを取得することも有効であると考えられる。そのよう測定は汎用の OPA を用いれば可能であるが、その場合プローブ光のパルス幅が長くなるのでサブサイクル分光を行うことはできない。ただし、今回得られた反射率変化の一部は比較的ブロードなものなので、汎用の OPA を用いた測定でもある程度の情報は得られると考えられる。そのようにして幅広い領域にわたる過渡反射率変化スペクトルを取得することで、今回の研究だけでは起源が不明であった SCOC の応答についても理解が進むのではないかと考えられる。

## 6. 謝辞

本自発融合研究の実地を快く許諾して下さった指導教員、副指導教員の岡本博教授、板谷治郎准教授、石坂香子准教授に深く御礼申し上げます。また、このような研究の機会を与えて下さった MERIT プログラムに感謝致します。

## 7. 参考文献

- [1] P. B. Corkum and F. Krausz, “Attosecond science,” *Nat. Phys.* **3**, 381 (2007).
- [2] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, “Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation,” *Opt. Express* **10**, 1161 (2002).
- [3] J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, M. Yu. Ivanov, F. Krausz, and P. B. Corkum, “Attosecond Streak Camera,” *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173903 (2002).
- [4] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, “Direct Measurement of Light Waves,” *Science* **27**, 1267 (2004).
- [5] M. Schultze, K. Ramasesha, C.D. Pemmaraju, S.A. Sato, D. Whitmore, A. Gandman, J. S. Prell, L. J. Borja, D. Prendergast, K. Yabana, D. M. Neumark, and S. R. Leone, “Attosecond band-gap dynamics in silicon,” *Science* **12**, 1348 (2014).
- [6] Q. Wu and X. C. Zhang, “Ultrafast electro-optic field sensors,” *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1604 (1996).
- [7] T. Kampfrath, K. Tanaka, and K. A. Nelson, “Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients,” *Nat. Photon.* **7**, 680 (2013).
- [8] S. Ghimire, G. Ndabashimiye, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, M. I. Stockman, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, “Strong-field and attosecond physics in solids,” *J. Phys. B* **47**, 204030 (2014).
- [9] A. Sell, A. Leitenstorfer, and R. Huber, “Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm,” *Opt. Lett.* **33**, 2767 (2008).
- [10] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, “Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal,” *Nat. Phys.* **7**, 138 (2011).
- [11] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, “Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations,” *Nat. Photon.* **8**, 119 (2014).
- [12] K. Kaneshima, N. Ishii, K. Takeuchi, and J. Itatani, “Generation of carrier-envelope phase-stable mid-infrared pulses via dual-wavelength optical parametric amplification,” *Opt. Express* **24**, 8660 (2016).
- [13] K. Kaneshima, N. Ishii, and J. Itatani, “Generation of spectrally-stable 6.5-fs visible pulses via filamentation in krypton,” *High Power Laser Sci. Eng.* (submitted)
- [14] T. Terashige *et al.*, In preparation

- [15] H. Okamoto, T. Miyagoe, K. Kobayashi, H. Uemura, H. Nishioka, H. Matsuzaki, A. Sawa, and Y. Tokura, “Photoinduced transition from Mott insulator to metal in the undoped cuprates  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  and  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ ,” *Phys. Rev. B* **83**, 125101 (2011).
- [16] T. Miyamoto, Y. Matsui, T. Terashige, N. Osawa, Y. Miyata, H. Yada, Y. Watanabe, S. Adachi, T. Ito, K. Oka, B. -S. Li, A. Sawa, and H. Okamoto, “Probing ultrafast photocarrier relaxation via emission of magnons in the cuprate Mott insulator  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ ,” In preparation.
- [17] T. Oka, “Nonlinear doublon production in a Mott insulator: Landau-Dykhne method applied to an integrable model” *Phy. Rev. B* **86**, 075148 (2012).
- [18] Mengkun Liu, Harold Y. Hwang, Hu Tao, Andrew C. Strikwerda, Kebin Fan, George R. Keiser, Aaron J. Sternbach, Kevin G. West, Salinporn Kittiwatanakul, Jiwei Lu, Stuart A. Wolf, Fiorenzo G. Omenetto, Xin Zhang, Keith A. Nelson, and Richard D. Averitt, “Terahertz-field-induced insulator-to-metal transition in vanadium dioxide metamaterial” *Nature* **487**, 345 (2012).
- [19] B. Mayer, C. Schmidt, A. Grupp, J. Buhler, J. Oelmann, R. E. Marvel, R. F. Haglund, Jr., T. Oka, D. Brida, A. Leitenstorfer, and A. Pashkin, “Tunneling breakdown of a strongly correlated insulating state in  $\text{VO}_2$  induced by intense multiterahertz excitation” *Phy. Rev. B* **91**, 235113 (2015).