

# 強相関電子系における超高速赤外分光

芦田昌明

独立行政法人 通信総合研究所  
関西先端研究センター

## 共同研究者

### 遷移金属酸化物の超高速赤外分光

ERATO: 小笠原剛(現 CERC)、永井正也(現 京大)、  
(東大工) 小嶋映二、島野亮、五神真(兼 科技団)

### 超広帯域THz分光

通総研: 河野俊介(現 NEC)、谷正彦(現 阪大)、  
齋藤伸吾、飯田勝、阪井清美

# Outline

1. 強相関電子系の光学応答
2. 光パラメトリック増幅器を用いた超高速近・中赤外域ポンププローブ分光
3. 遠赤外 (THz) 域ポンププローブ分光
4. 超広帯域 THz 分光の現状と展望

# 強相関電子系

電子間相互作用が物性を支配

特異な現象

ペロブスカイト型銅酸化物

高温超伝導

ペロブスカイト型マンガン酸化物

巨大磁気抵抗

GaAs FET 構造

量子ホール効果

電気伝導

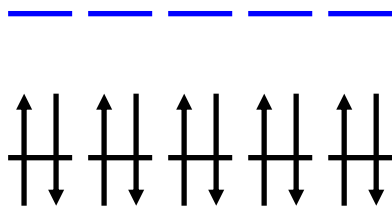
磁性

光学応答

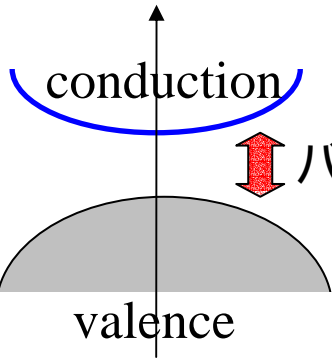
光誘起相転移 (金属絶縁体転移、光誘起磁性)

強い電子間相互作用      大きな光学非線形性

# バンド絶縁体



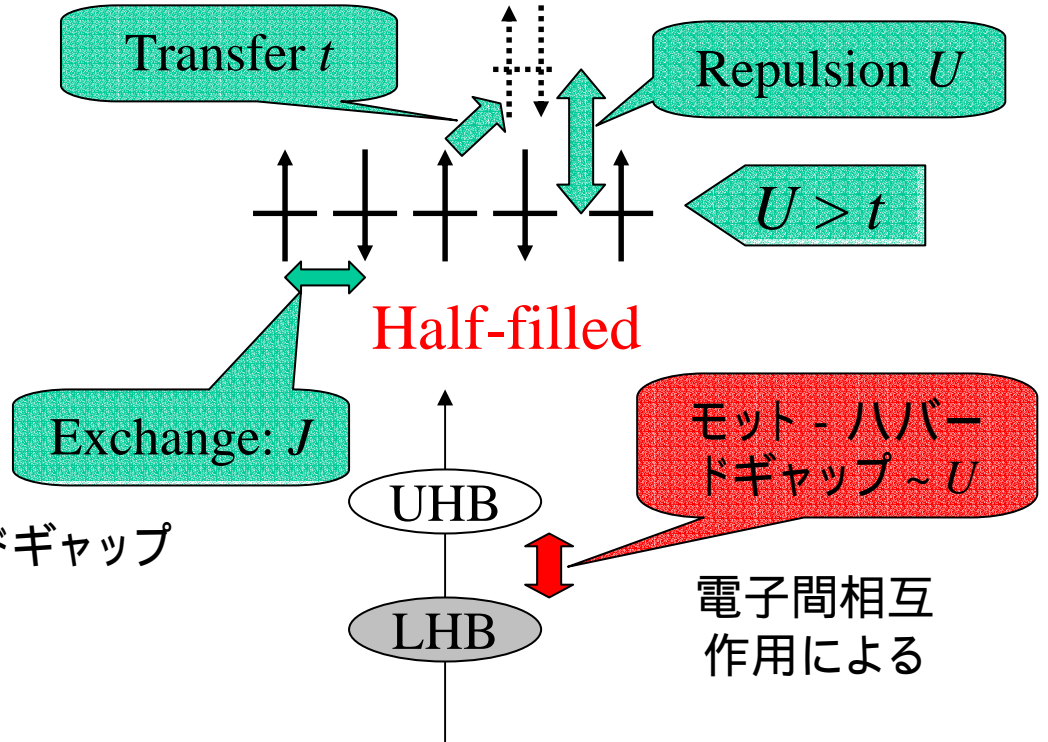
Full-filled



バンドギャップ

異なる軌道  
スピン自由度は凍結

# モット絶縁体



Half-filled

モット-ハバード  
ドギャップ  $\sim U$

電子間相互  
作用による

同じ軌道  
スピン自由度の存在

# バンド絶縁体 vs モット絶縁体

バンド絶縁体  
(filled band)

モット絶縁体  
(half-filled)

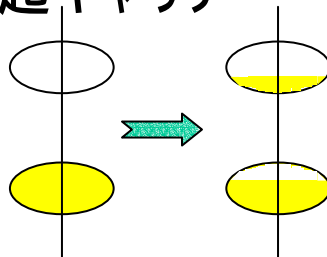
電子間相互作用  
( $U$ )

弱い ( $U < t$ )  
独立粒子近似  
「バンド理論」

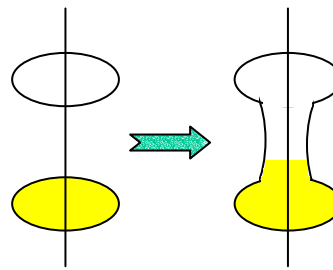
強い ( $U > t$ )  
強相関電子系  
「多体効果」

光励起効果

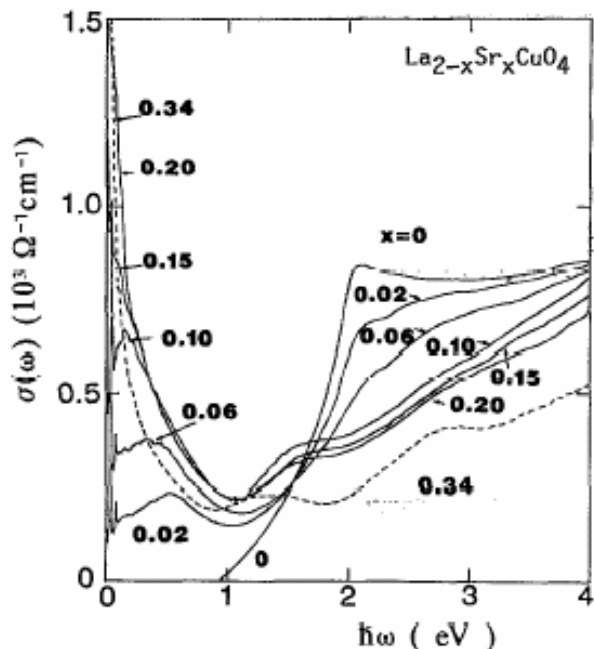
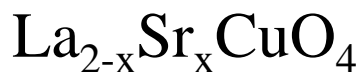
素励起描像  
光励起キャリア



バンド構造自体の変化

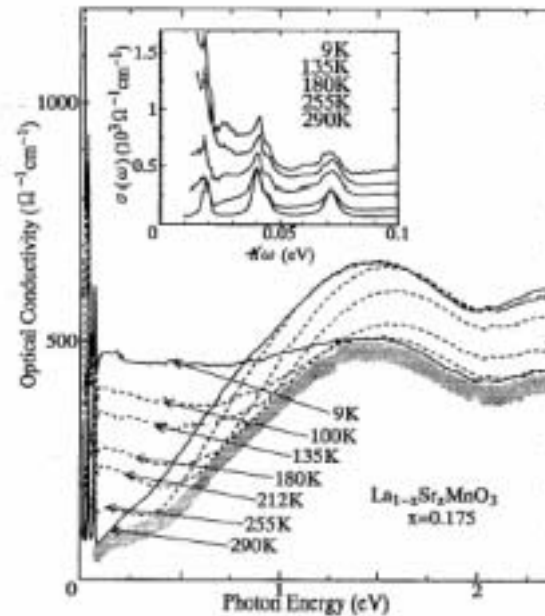
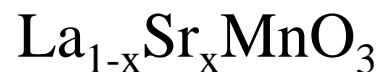


# 遷移金属酸化物における金属 絶縁体転移



ホールドーピング依存性

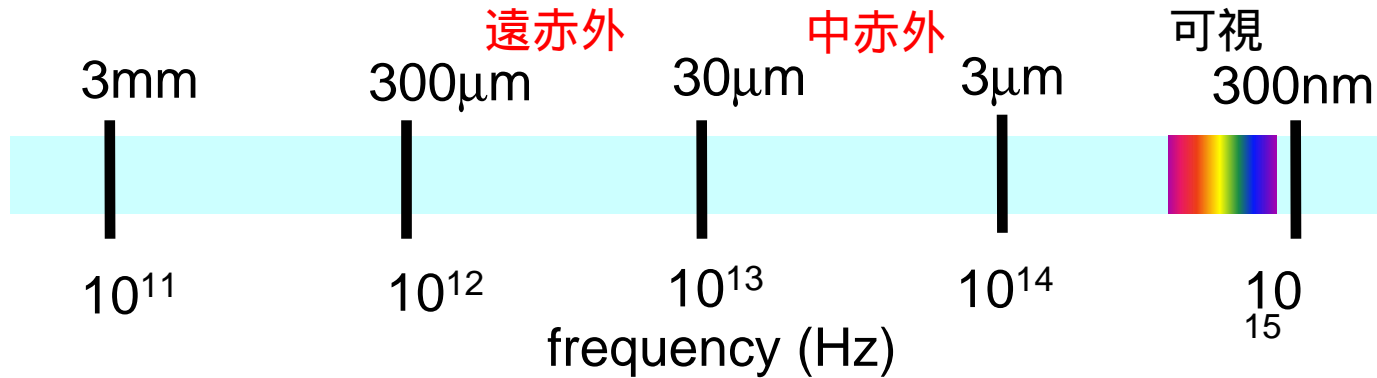
S. Uchida *et al.*, PRB 43 7942 ('91).



温度依存性

Y. Okimoto *et al.*, PRL 75 109 ('95).

# 超短パルス光の波長変換



光整流  
ダイポールアンテナ  
半導体表面

THz 発生・検出

差周波発生 (DFG)

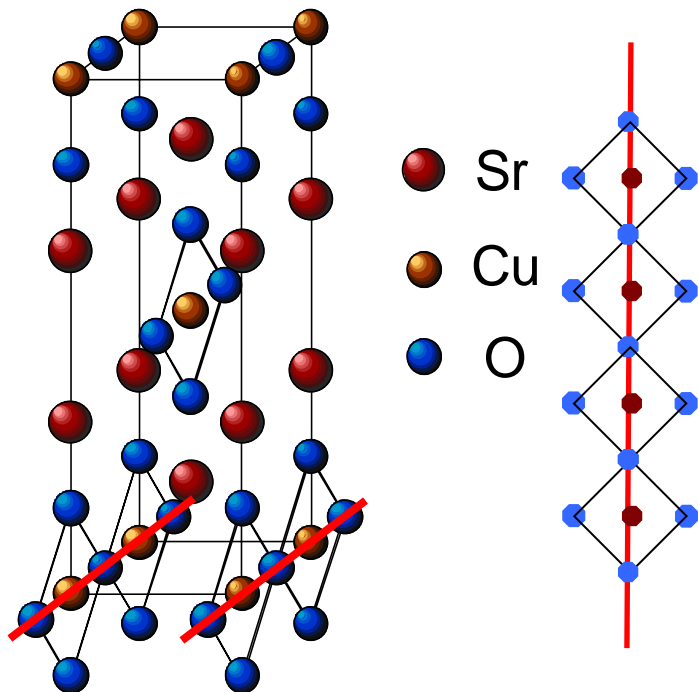
パラメトリック増幅 (OPA)  
+  
高調波発生 (SHG, SFG)

エレクトロニクス  
(電気伝導)  
(バンド内遷移)

フォトンクス  
(光学応答)  
(バンド間遷移)



# 一次元銅酸化物 $\text{Sr}_2\text{CuO}_3$ : 結晶構造



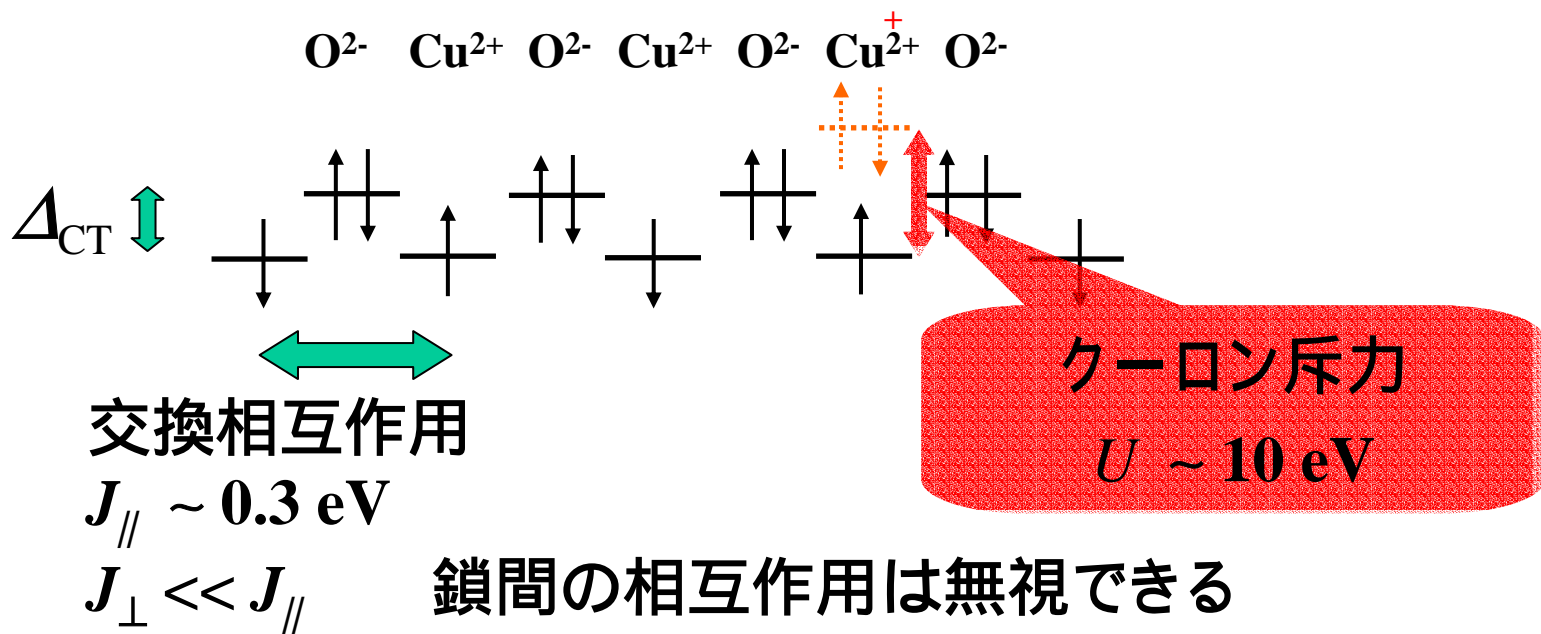
典型的な一次元モット絶縁体

弱い電子格子相互作用

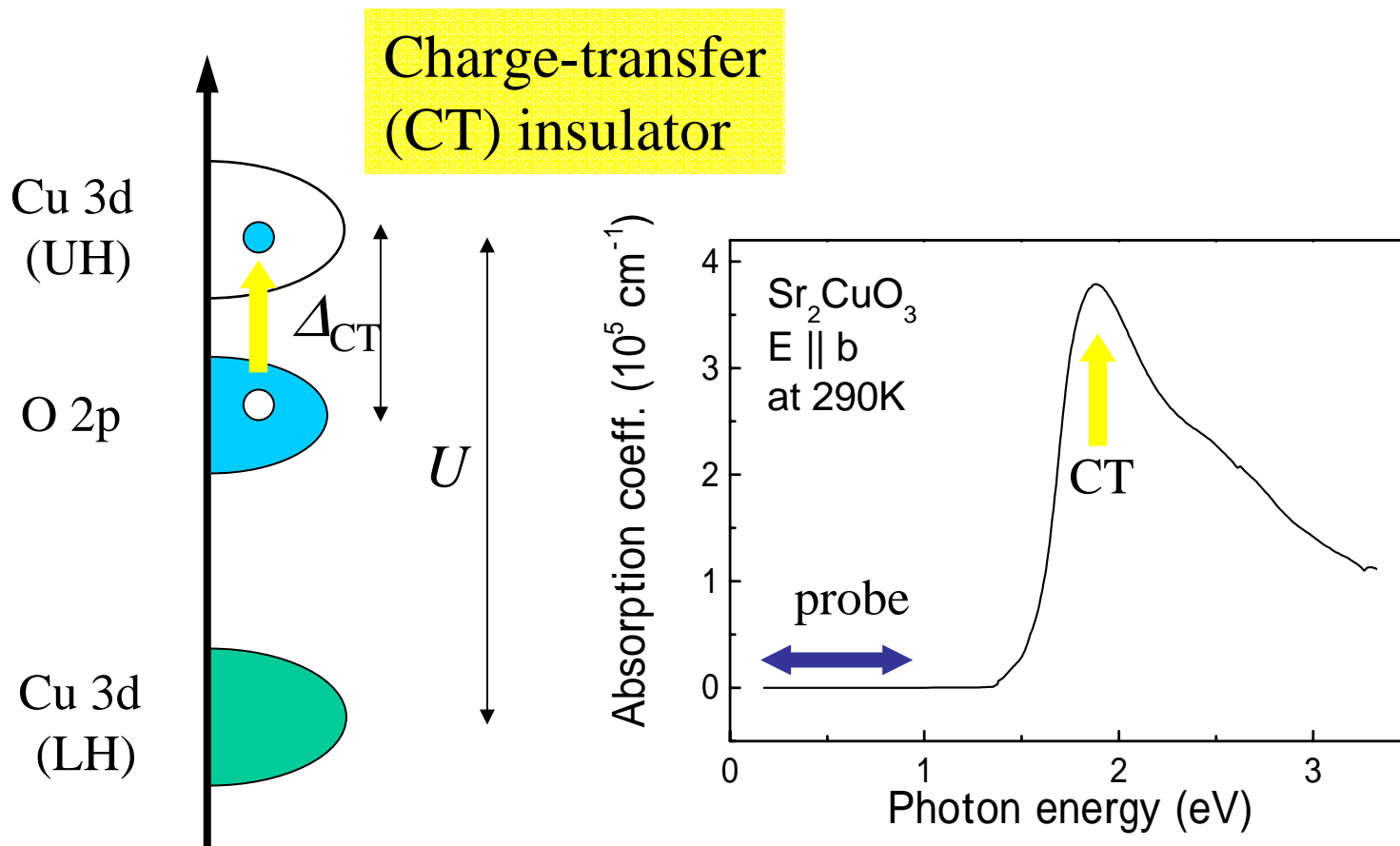
10K 以下でもスピンパイエルス  
転移を示さない

ギャップのないスピン励起

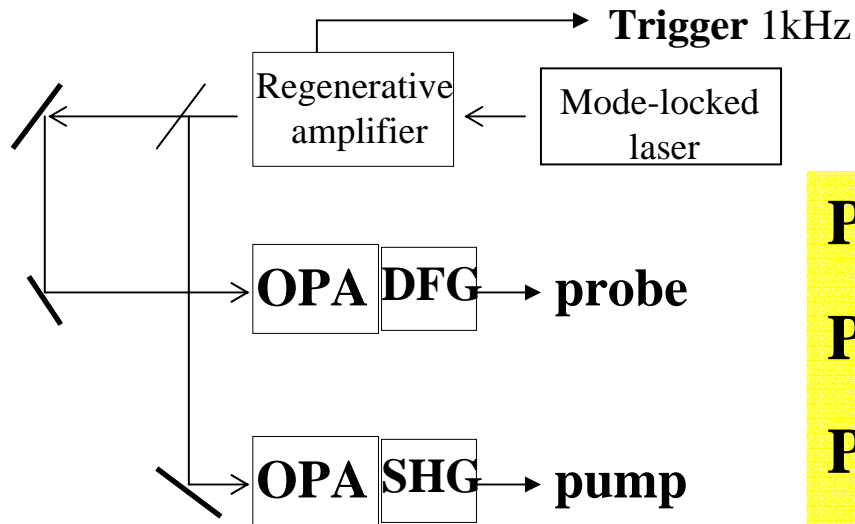
# 一次元銅酸化物 $\text{Sr}_2\text{CuO}_3$ : 電子構造



# 一次元銅酸化物 $\text{Sr}_2\text{CuO}_3$ : 光学スペクトル



# 実験配置：光源系



**Probe: 1.1-10 $\mu$ m (20 $\mu$ m)**

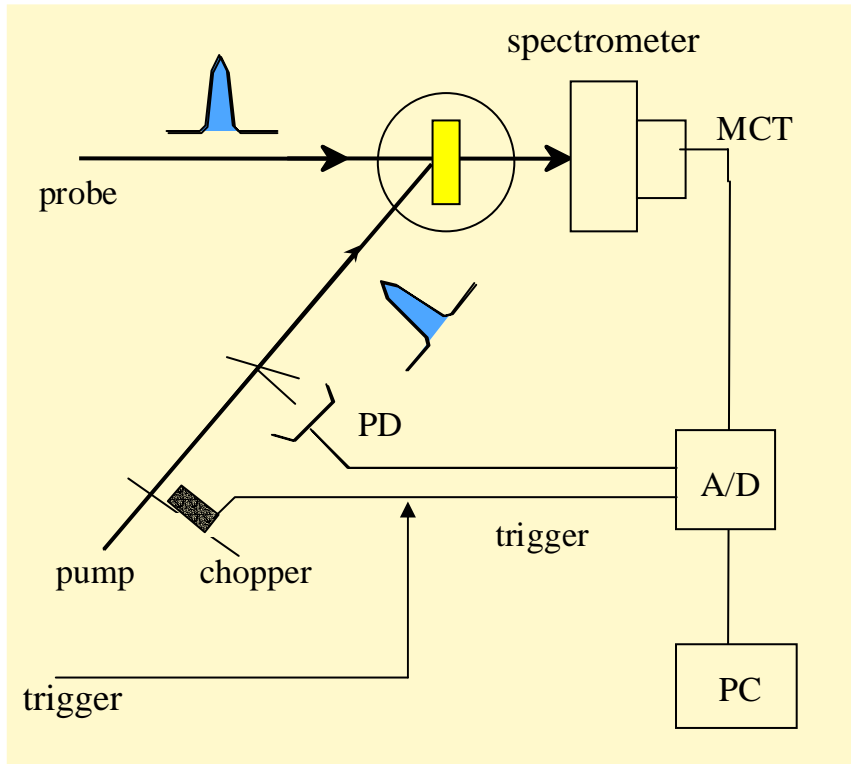
**Pump: 0.6-2 $\mu$ m**

**Pulse width: 200fs**

**DFG: AgGaS<sub>2</sub> (GaSe)**

**SHG: BBO**

# 実験配置： 検出系



透過率変化:

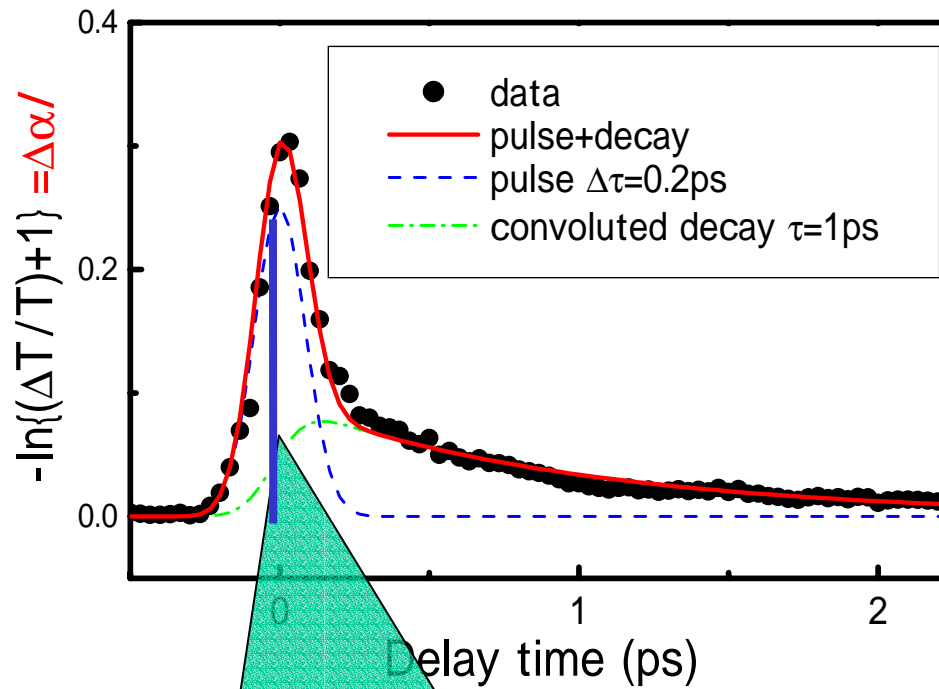
$$\Delta T/T = (I_{\text{on}} - I_{\text{off}}) / I_{\text{off}}$$

(繰り返し 1kHz で

$\Delta T/T < 10^{-3}$  検出可能)

$$\overbrace{\{I_{\text{on}}, I_{\text{off}}, I_{\text{on}}, I_{\text{off}}, \dots\}}^{500\text{Hz}}$$

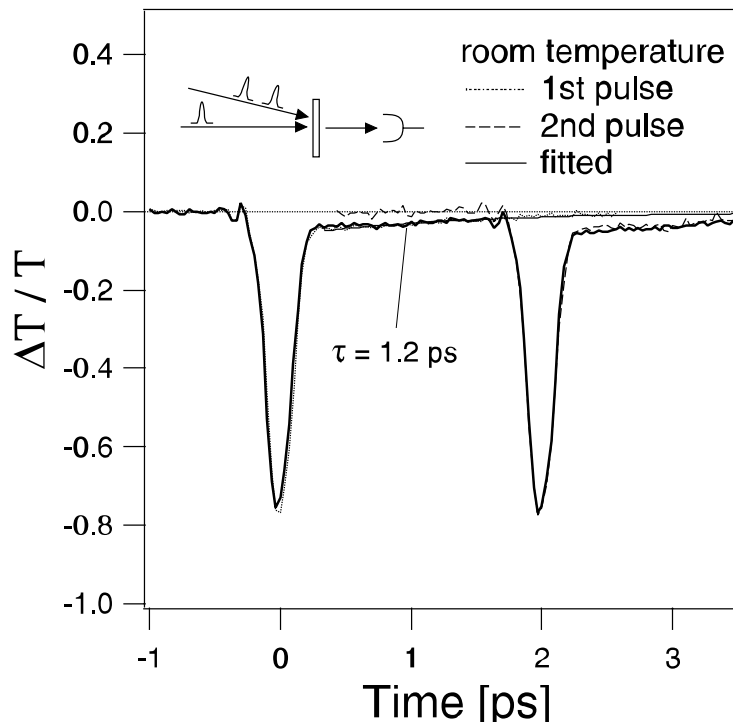
# 典型的な時間応答



コヒーレントな二光子吸収

Two photon absorption coefficient  $\beta = \Delta\alpha/I$

# Sr<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub>の室温光ゲート動作デモンストレーション



**Double pump: 1.2 $\mu$ m**

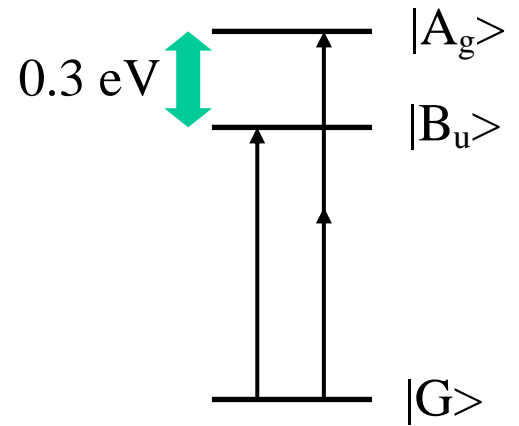
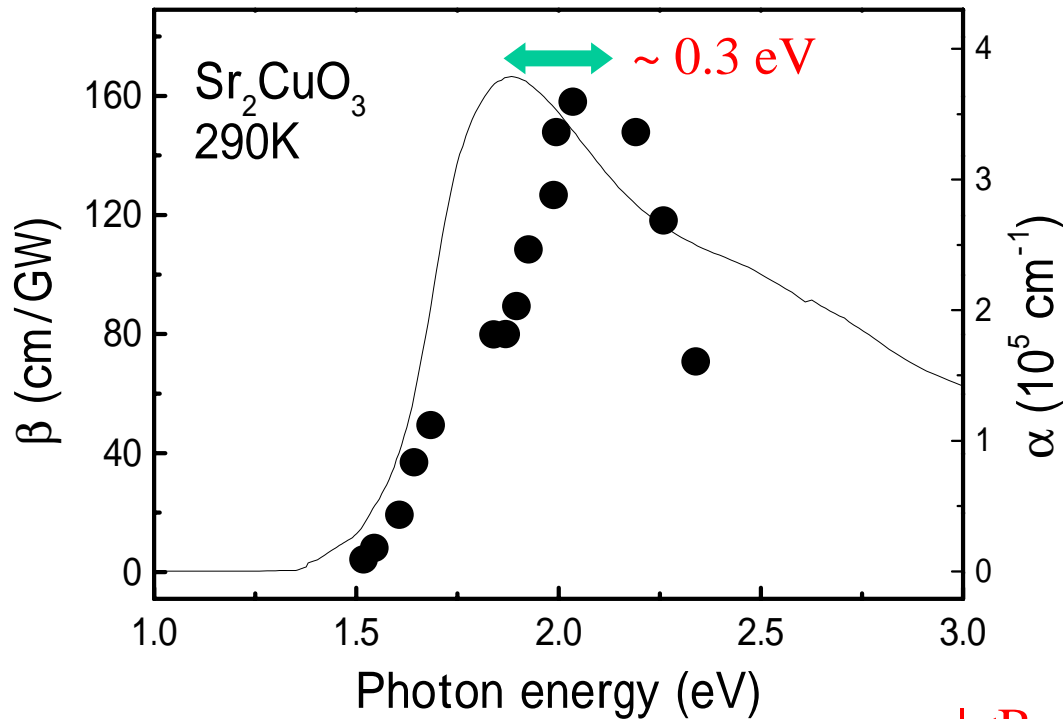
**probe: 1.4 $\mu$ m**

**Terabit operation is possible!**

$f_{\max} \sim 10$ Tbits/s

(T. Ogasawara *et al.*: Phys. Rev. Lett. **85**, 2204 ('00).)

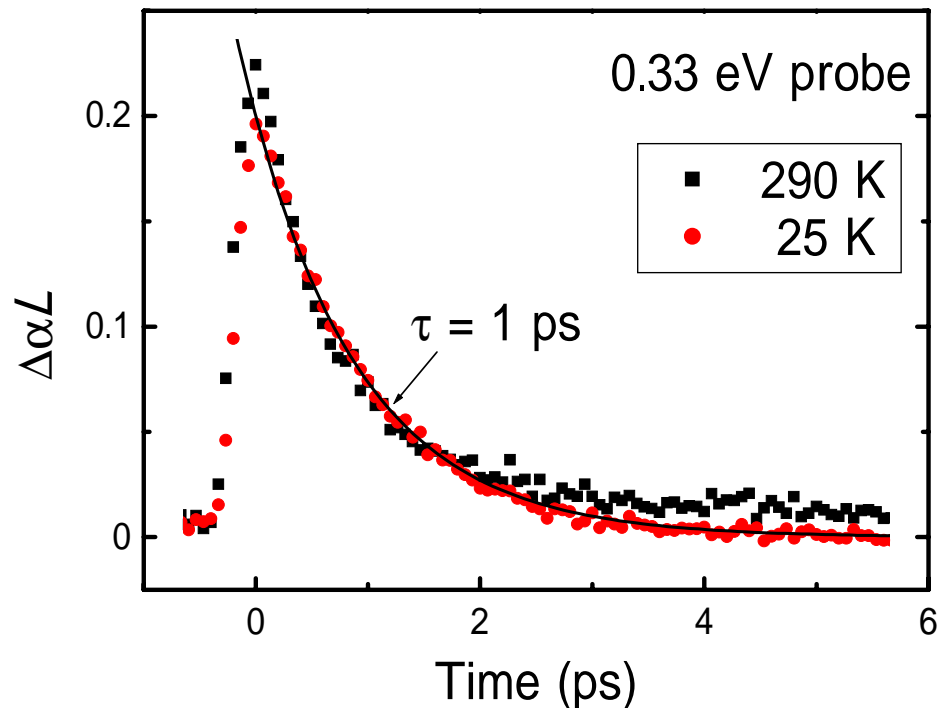
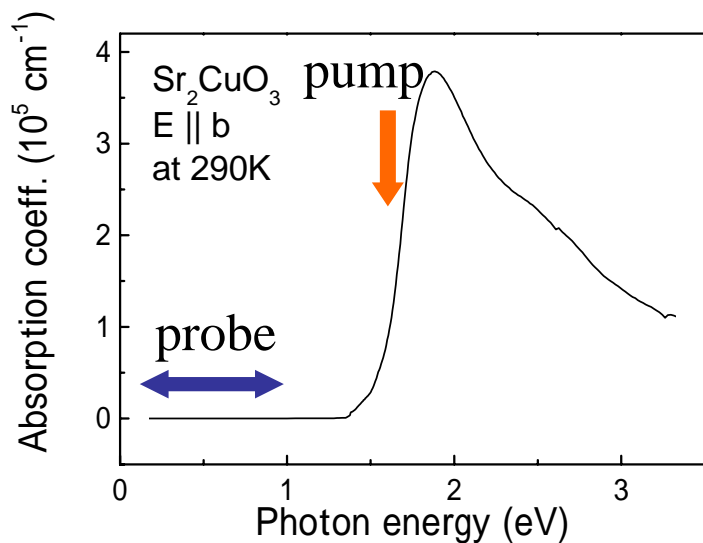
# 一光子吸収と二光子吸収スペクトルの比較



$$|\langle B_u | r | A_g \rangle / \langle G | r | B_u \rangle|^2 \sim 10$$

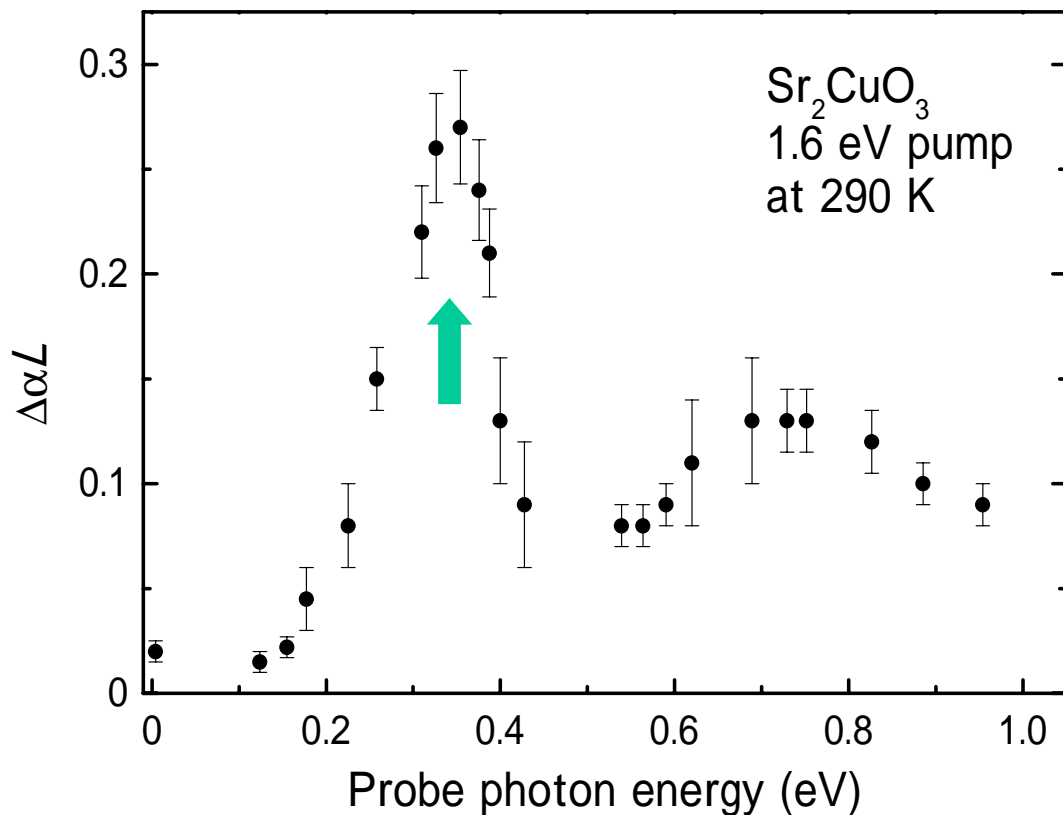


# Sr<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub>の中赤外域過渡吸収



プローブエネルギー依存性なし

# Sr<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub>の中赤外域過渡吸収スペクトル

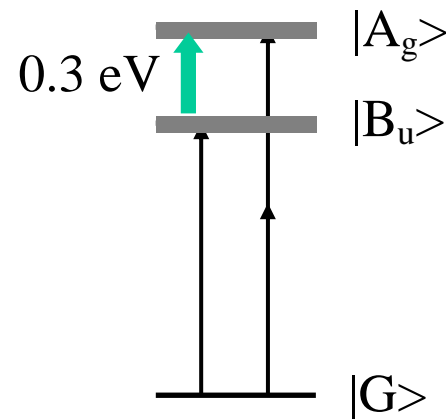


Peak around 0.3 eV!

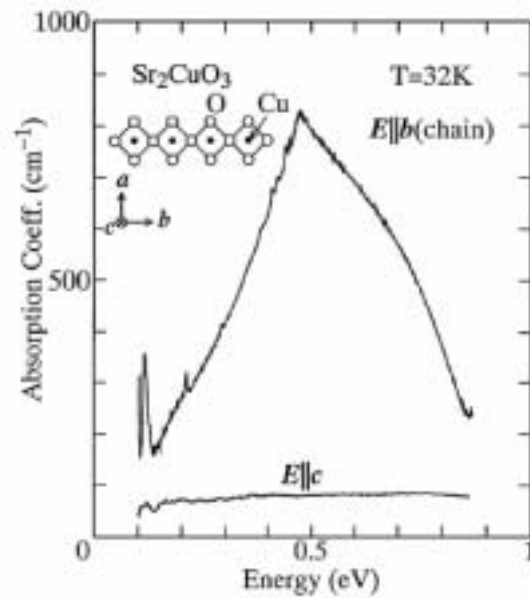
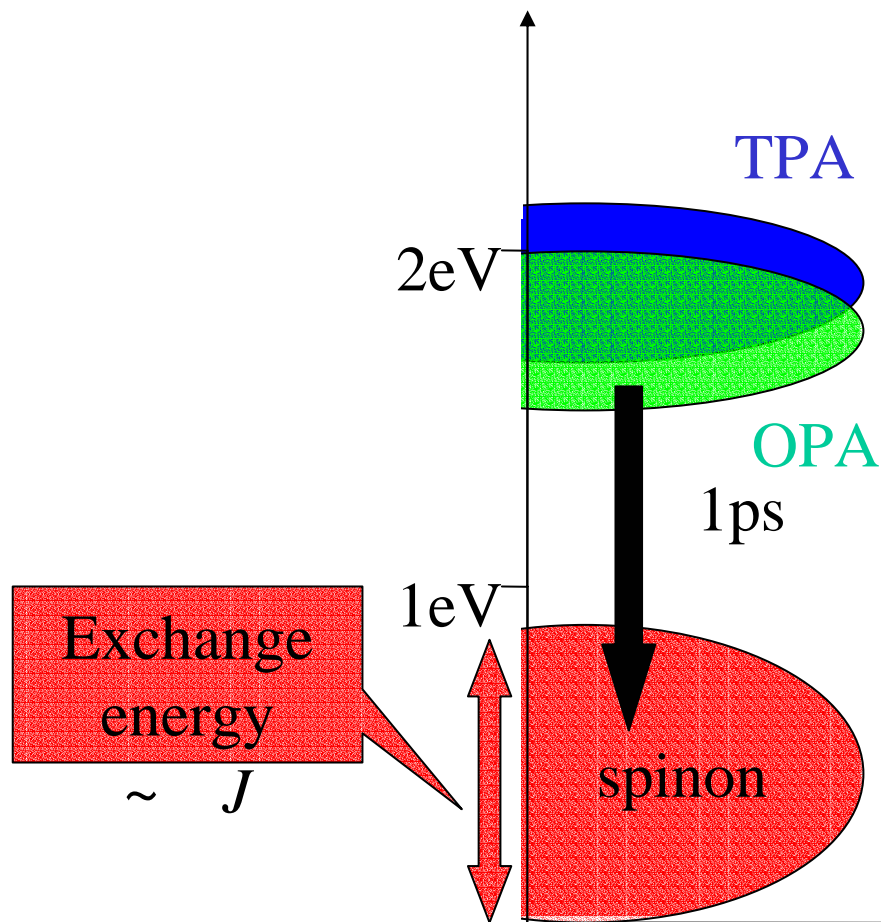
$$\begin{aligned} \sqrt{N_{\text{ex}}} &= 1 \times 10^{-16} \text{cm}^2 \\ (\mu_{\text{CT}}/\sqrt{N}) &= 4 \times 10^{-17} \text{cm}^2 \end{aligned}$$

Transient absorption

$$\mu_{\text{transient}} / \mu_{\text{CT}} = 15$$

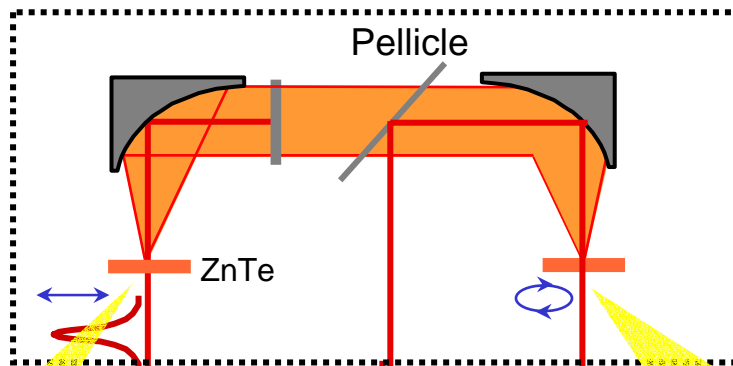


# Sr<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub> のエネルギー準位図



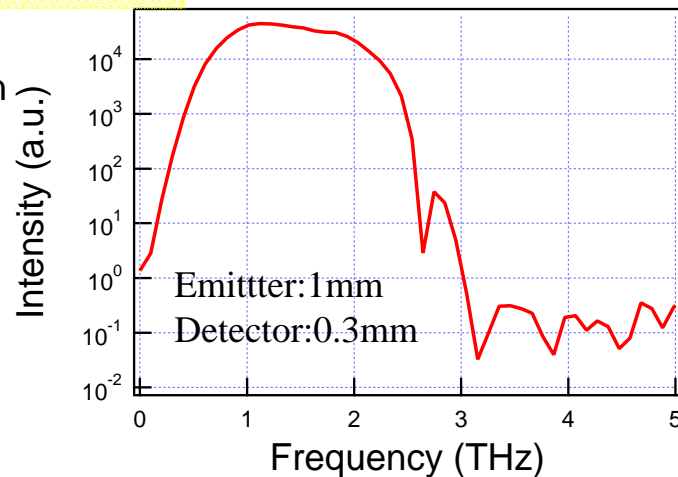
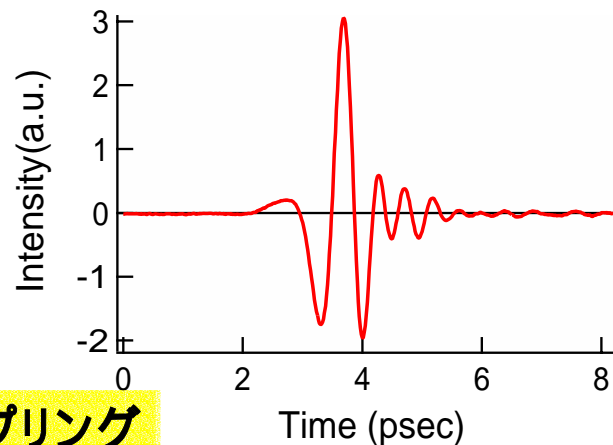
Suzuura *et al.*: Phys. Rev. Lett. **76**, 2579 (1996).

# THz時間領域分光法



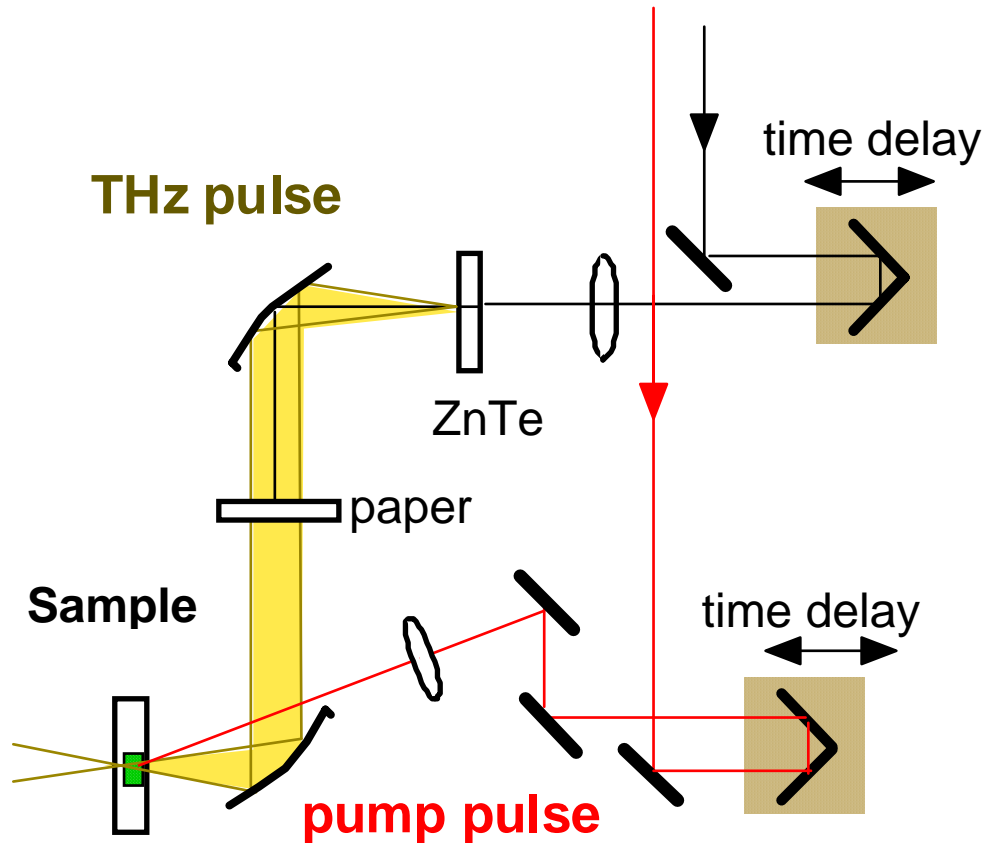
光整流

EO サンプリング



R. Shimano *et al.*

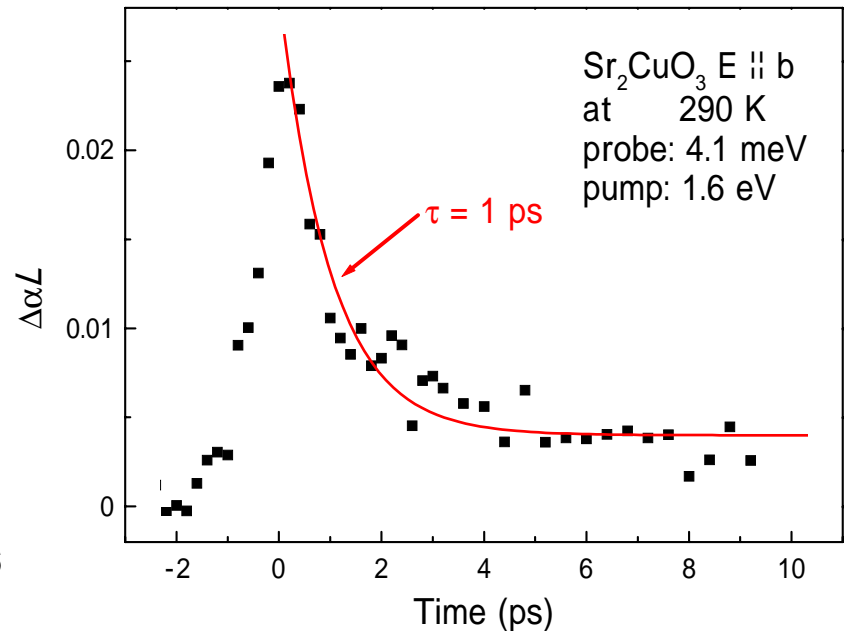
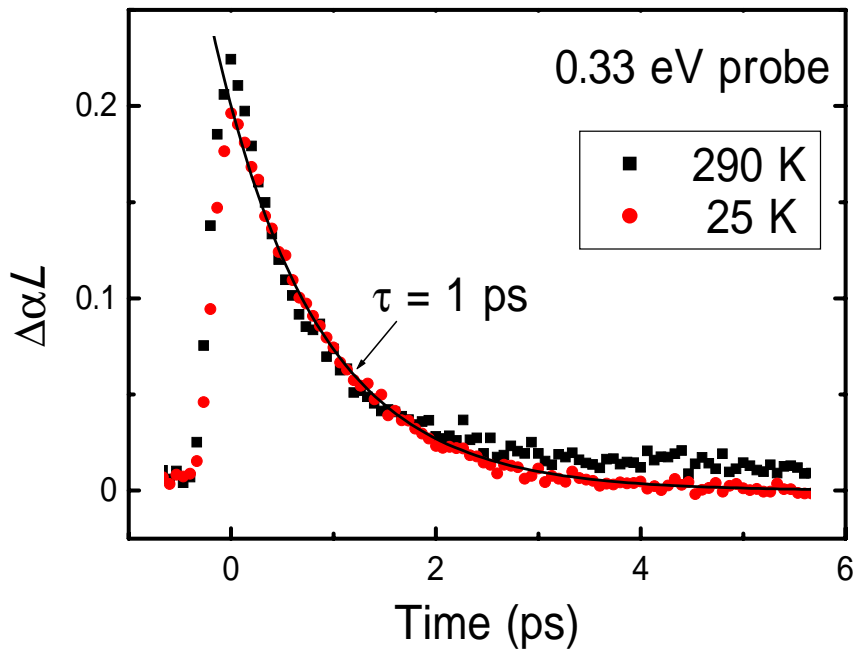
# THz ポンプ-プローブ分光法



時間遅延ステージ  
2台

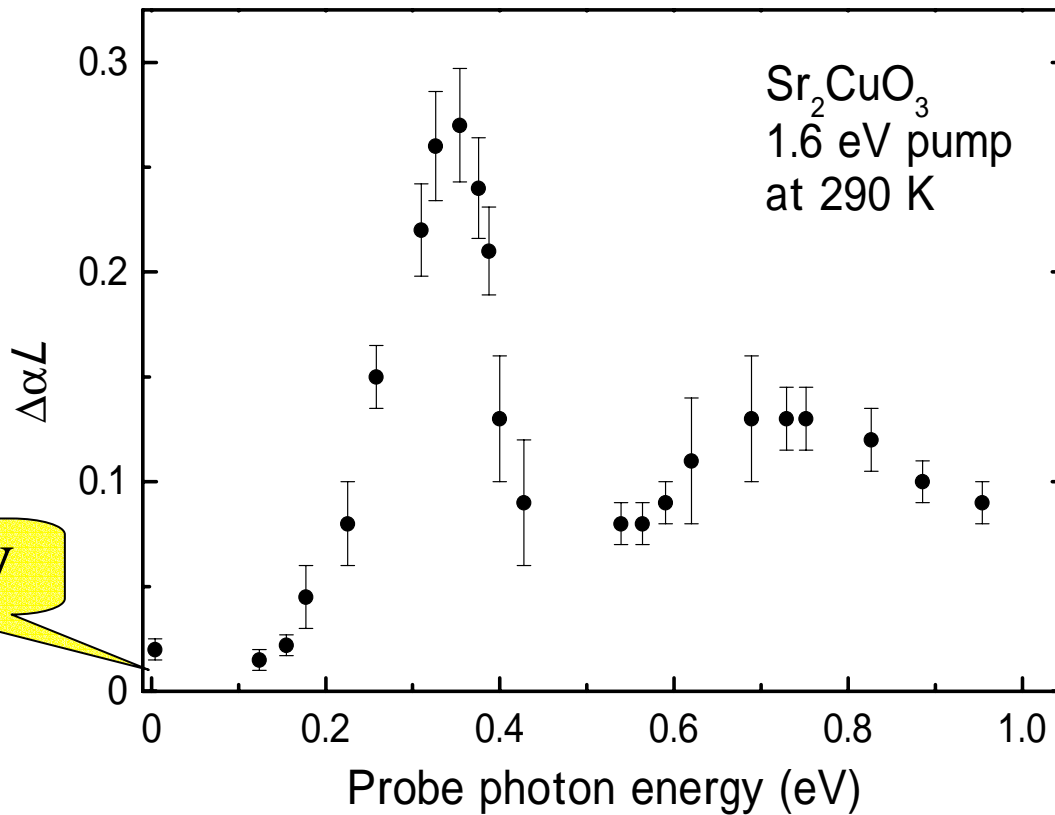
二次元的なデータ  
取得

# Sr<sub>2</sub>CuO<sub>3</sub> の中・遠赤外域吸収



遅い成分の存在

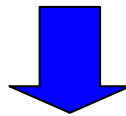
# 中・遠赤外域における過渡吸収スペクトル



## 今後の課題

波長変化に伴う光軸のずれ  
ポンププローブ近・中赤外、THz分光の簡便化  
広帯域白色光発生(レーザーとSORの組合せ)

時間分解能 ( $> 1\text{ps}$ ) の不足



**超広帯域THz光源開発**



# 超短パルスレーザー技術の進展と広帯域化

チャープ補償ミラーの開発 10fs Ti:Sa 発振器

700-950 nm <10fs

非同軸光パラメトリック増幅器(NOPA)の開発

450-700 nm <20fs

700-1600 nm <50fs

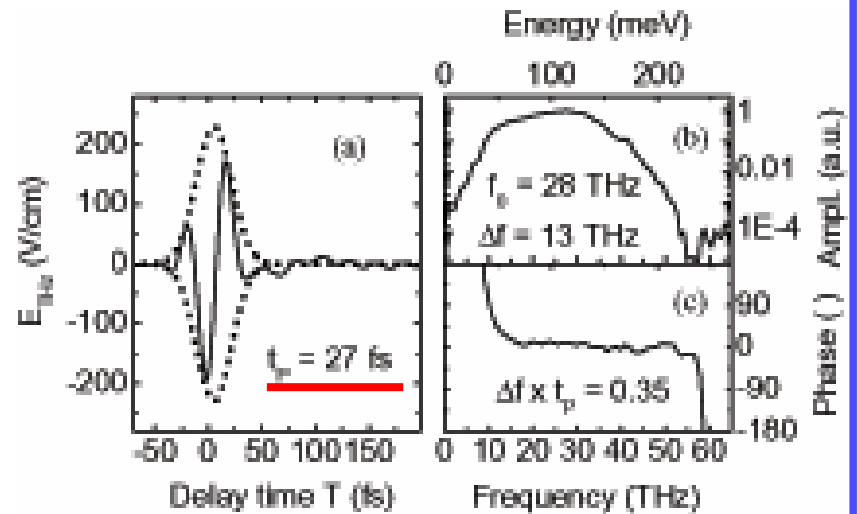
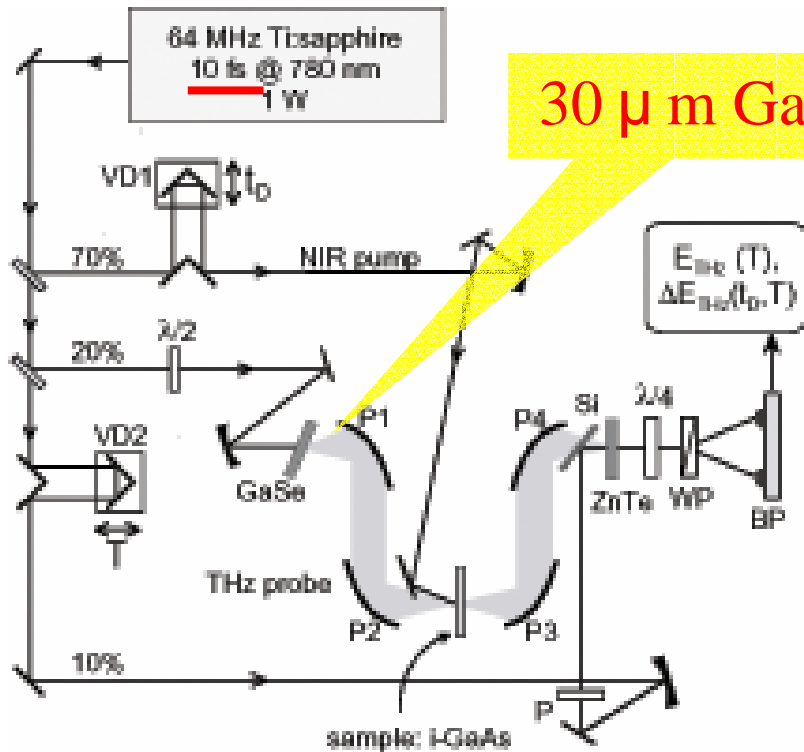
GaSe 結晶による差周波発生

9-20  $\mu\text{m}$  <150fs (R. A. Kaindl *et al.*:  
Science **287**, 470 (2000).)

GaSe 薄結晶による位相整合光整流

100GHz(3mm) – 100 THz(3  $\mu\text{m}$ ) <30fs

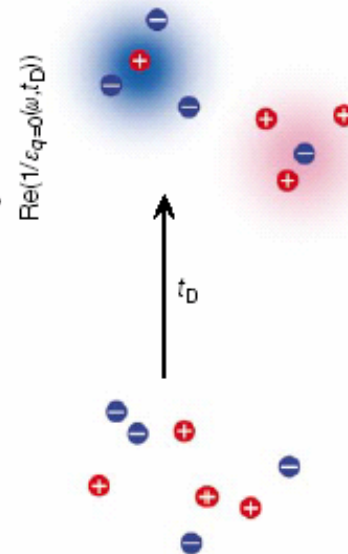
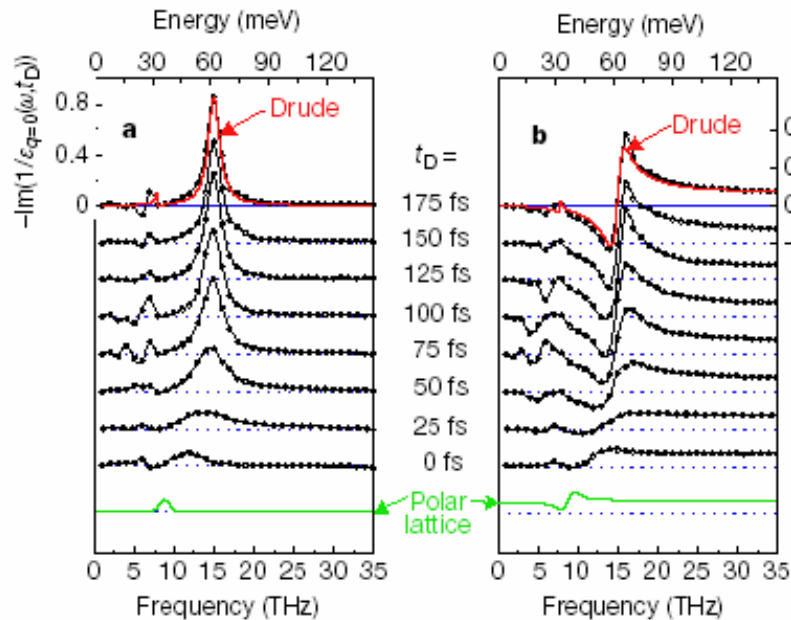
# 超広帯域THzポンププローブ分光



R. Huber *et al.*: J. Lumin. **94-95** 555 (2001).

# 超広帯域THzポンプ-プローブ分光の適用例

“How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma,” R. Huber *et al.*: Nature **414**, 286 ('01).



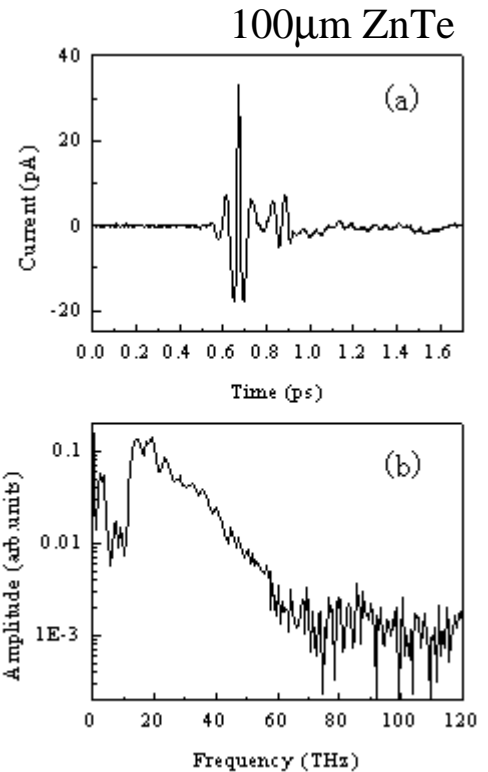
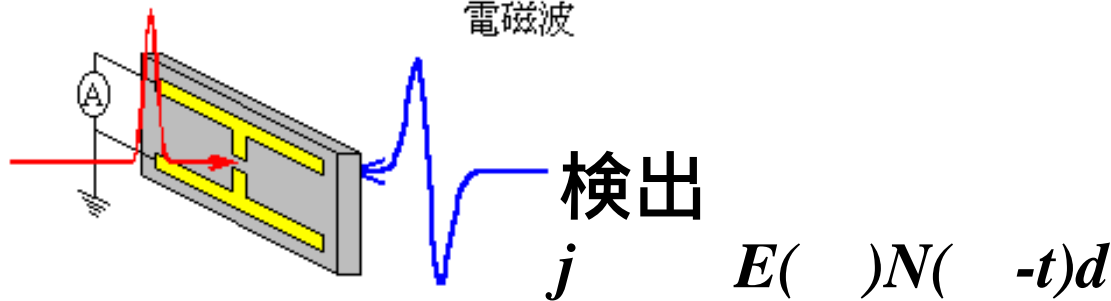
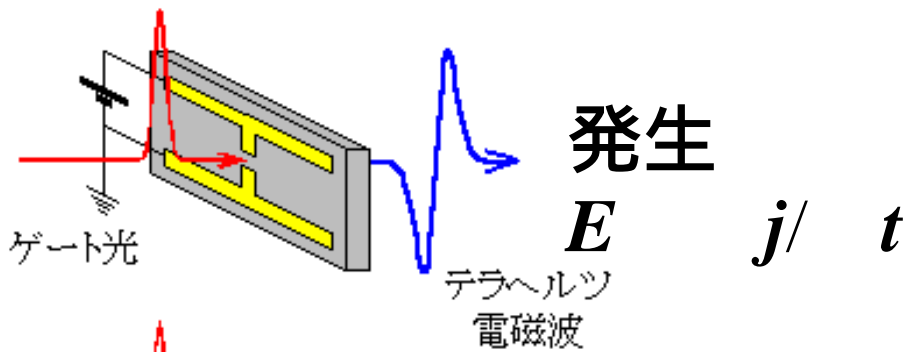
スクリーニング  
形成に時間遅延

30fs THz pulse produced  
on 30  $\mu$  m GaSe pumped  
with 10fs Ti:S

200nm GaAs on diamond

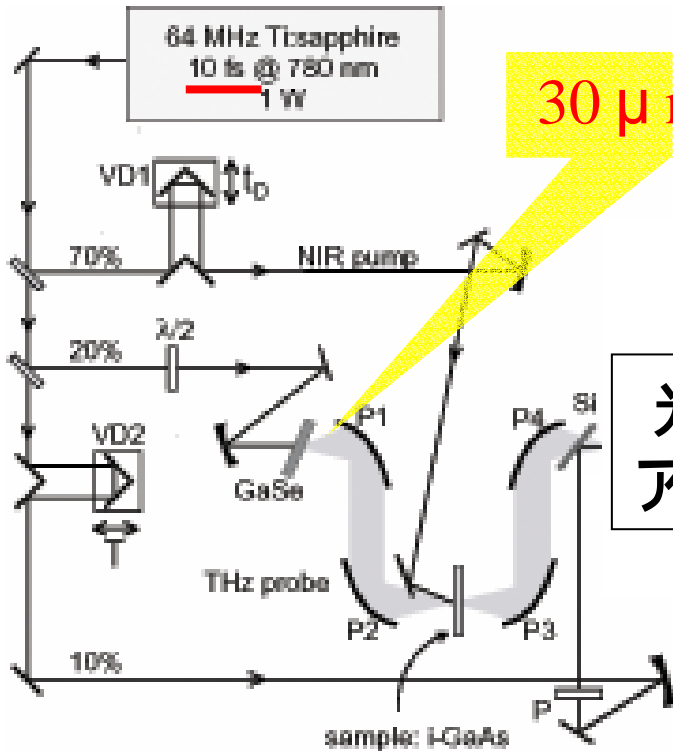
# アンテナによるTHz時間領域分光法

## 光伝導アンテナを用いる発生・検出



S. Kono *et al.*: Appl. Phys. Lett. **79**, 898 ('01).

# 開発中の超広帯域THzポンププローブ分光法



30  $\mu$  m GaSe

位相整合光整流

100GHz-100THz  
(3mm - 3 $\mu$ m)

光伝導  
アンテナ

利点:  
EO結晶の吸収の影響なし  
光軸調整が容易

エネルギー・時間分解能トレードオフ  
波長による回折限界の違い  
空中のH<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>による吸収排除

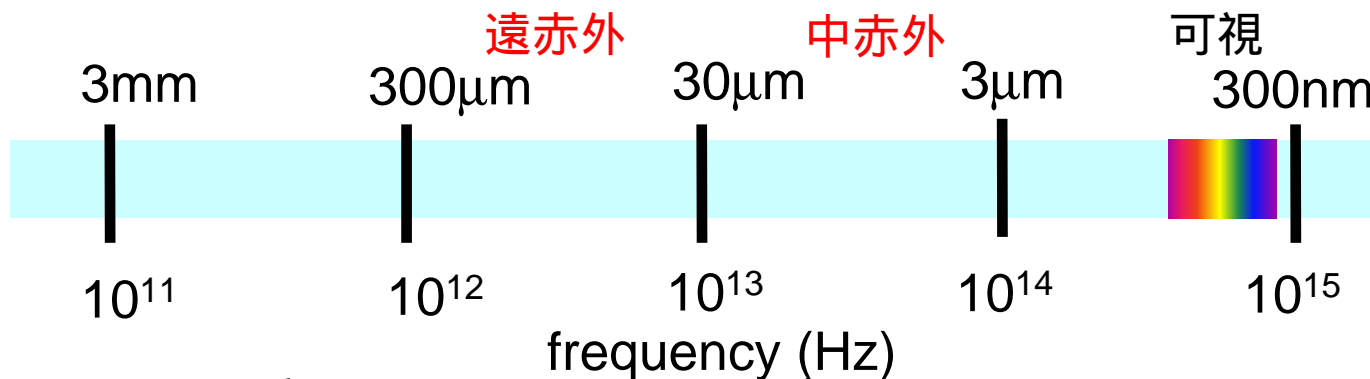
# 超広帯域THz発生・検出分光法の現状

FEMTOSOURCE  
PRO 800nm, 10fs  
80MHz, 5nJ



GaSe thin film  
30 $\mu$ m

位相整合光整流



キャリア      フォノン      スピノン・マグノン      光通信