

強相関電子系における非線形光学応答に新奇な法則を発見

—強い光と強い電子相関をもつ物質の相互作用の解明へ—

概要

京都大学大学院理学研究科 内田健人 特定助教、Giordano Mattoni 特定研究員、米澤進吾 准教授、前野悦輝 教授、田中耕一郎 教授らの研究グループは、久留米工業大学 中村文彦 教授との共同研究によって、強相関物質^[1]の一種であるモット絶縁体^[2] Ca_2RuO_4 において、強い赤外レーザー光を入射すると可視光に変換される高次高調波発生^[3]をはじめて観測し、その信号強度が驚くほど単純な法則に従うことを発見しました。

近年、超短パルス光の発生技術の発展に伴い強い光を物質にあてるのが可能になっています。これにより、目に見えない赤外レーザー光を物質に当てたときに放出される光の色が可視域に変わる高次高調波発生などの現象が生じます。高次高調波発生は半導体などの良く知られた材料ではその発生機構がおおよそ分かっています。一方、電子同士が強く相互作用して複雑な性質を示す強相関物質では高次高調波がほとんど観測されておらず、またどのような発生機構なのか分かっていませんでした。

本研究グループは、強相関電子系の1種である典型的なモット絶縁体 Ca_2RuO_4 において、高次高調波の観測に初めて成功しました。驚くことに高調波信号は材料を冷やすと急激に増加しました。この効果はこれまでの材料でも観測されず、また理論予測もなかったものです。さらに研究グループは、この効果が電子相関により開く絶縁体ギャップエネルギー^[4]と高調波の光子エネルギーに対する驚くほど単純な法則(図中右上)に従うことを明らかにしました。これは複雑な物理現象が単純で美しい法則を示すことの一例と言え、研究グループは電子相関に由来した新しい高調波発生機構がこの法則に関与していると考えています。本成果は、強相関物質における非平衡ダイナミクスを解明する助けとなるでしょう。また、私たちの生活にも身近なレーザーポインターや光変調器などに使われる非線形光学材料にも新たな設計指針を与える可能性があります。

本成果は、2022年3月23日(現地時刻)に米国物理学会が発行する学術誌「Physical Review Letters」にオンライン掲載されました。

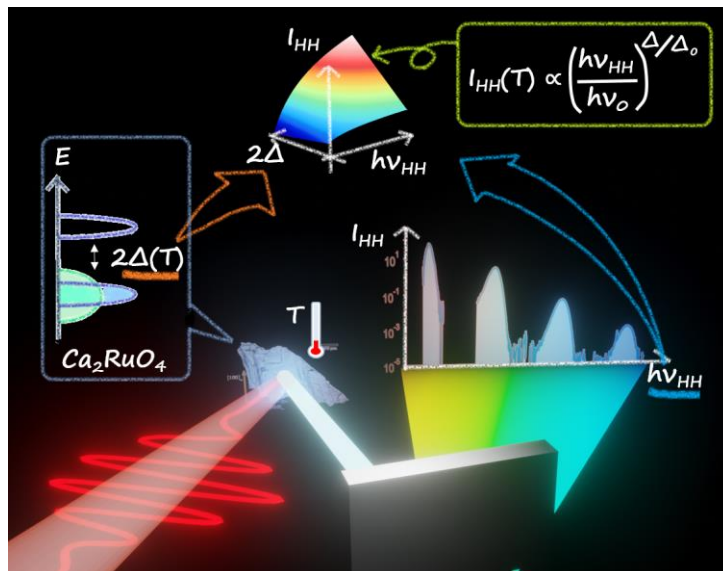


図 本研究のイメージ。温度 T を変えると高調波信号 I_{HH} が大きく変わる。その背後にはギャップエネルギー Δ と高調波の光子エネルギー $h\nu_{HH}$ に関する法則 (図右上の式) がある。

1. 背景

重ね合わせの原理は学校の授業でも習う光波の性質の一つですが、物質中で光の強度が十分強い場合には成り立たず、異なる光子エネルギーをもつ光への変換等の現象が生じることが知られています。このような現象は、光と物質の相互作用の非線形性に由来するため非線形光学現象と呼ばれ、レーザーポインターなど私たちの生活の中にも活用されています。非線形光学現象で最も典型的なのが、入力光の光子エネルギーの n 倍の光子エネルギーの光が発生する、 n 次高調波発生です。2 次高調波発生に関してはレーザー発明の翌年には確認されていましたが、高強度な超短パルスレーザー発生技術の進展により高次($n > 1$)の高調波(以下、高次高調波)の観測が可能になりました。高次高調波は原子ガス系ではじめて観測され、従来の非線形光学の枠組みではその特性が説明できませんでした。その後、スリーステップモデルと呼ばれる光の電場による電子の半古典的な運動を考えることで理解できること、さらにカットオフ則と呼ばれるシンプルな法則が存在することが明らかになっています。

近年、赤外領域の高強度な光源が実現したことにより固体においても高次高調波が観測されるようになってきました。固体結晶の高次高調波では、固体の電子構造を反映した高調波が発生し、そこからバンド構造などの情報が取り出せることから新たな物性測定技術として期待されています。これまで、固体における高次高調波発生は、電子が互いにほとんど独立して運動しているとみなせる半導体で主に研究が行われ、原子系と類似した機構での高調波発生が議論されてきました。一方、固体では電子同士が強く相互作用して運動する強相関物質が存在し、電子相関やその他の物質中の自由度との相互作用によって多様な物性を示すことが知られています。強相関電子系で高次高調波発生がどのような特性を持つかは、電子同士が強く相互作用している場合に、光の電場によってどのような運動をするかという基本的な問題と関わっています。しかし、実験による観測や特性の解明はほとんど行われてきませんでした。

2. 研究手法・成果

本研究では、強相関物質の 1 種であるモット絶縁体の典型的な例である Ca_2RuO_4 に着目して、その高次高調波の観測と特性の解明を目指しました。モット絶縁体には電子同士のクーロン反発に由来してエネルギーギャップが生じますが、 Ca_2RuO_4 ではこのギャップエネルギーが温度に依存して 290 K から 50 K までで 2 倍以上変化します。このギャップエネルギーの温度依存性を利用することで、モット絶縁体を特徴づけるギャップエネルギーと高次高調波強度の間の関係を調べました。

実験では、光子エネルギー 0.26 eV の高強度な中赤外光を発生させて、試料(Ca_2RuO_4 単結晶)に絞って生じた高次高調波のスペクトルを分光器と検出器を使って測定しました。図 1a は、実際に Ca_2RuO_4 で初めて観測に成功した高次高調波のスペクトルです。図 1b は、温度を変化させながら n 次高調波強度を測定した結果とギャップエネルギーの温度依存性を使って、高調波強度のギャップエネルギー依存性をプロットしたものです。9 次高調波ではギャップエネルギーの増加によって、強度が 2 桁以上増幅するという顕著な変化が生じることが分かりました。また、各次数の高調波強度の増幅率はギャップエネルギーに対して指数関数的増加を示しています。さらに、0.19 eV の中赤外光を使った高調波測定も組み合わせることで、増幅率は高調波の光子エネルギーに対してべき乗で増加することが分かりました(図 1c)。本研究グループは、これら 2 つの結果をよく説明できる Ca_2RuO_4 の高調波増幅率のシンプルな経験的法則を見出しました(図 1c 中の式)。通常の半導体である InAs では、ギャップエネルギーに依存した高調波強度の変化がほとんど生じず、この法則が電子相関に由来していることが分かりました。

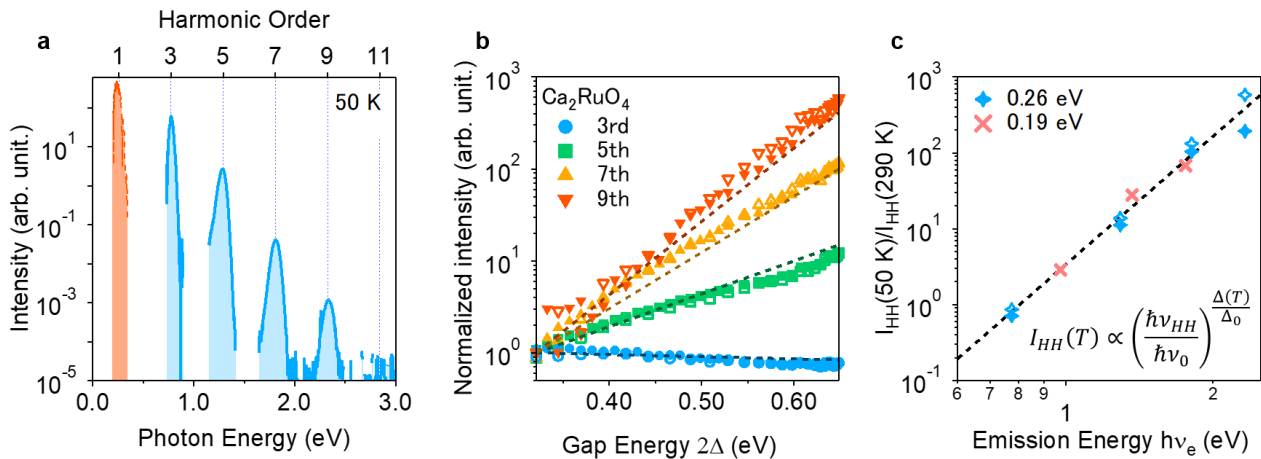


図1 Ca_2RuO_4 の高次高調波の性質 **a.** 高調波スペクトル **b.** 高調波強度 (3次~9次) のギャップエネルギー依存性 **c.** 高調波の増幅率を、高調波の光子エネルギーに対してプロットしたもの色の違いは、入力光子エネルギーの違い。 **b,c** の破線は今回発見した法則を表す式 (図 **c** 中) でのフィッティング結果。

この成果は、強相関電子系ならではの高次高調波の特性を実験的に世界で初めて明らかにしたものであり、シンプルながら驚くべき法則の背後に、強相関電子系における電子ダイナミクスの特徴があると考えられます。

3. 波及効果、今後の予定

本研究によって、強相関電子系において高調波の特性がシンプルな法則に従うことが分かりましたが、その微視的な起源は明らかになっておらず、これまでのモット絶縁体における高次高調波の理論研究では今回の結果を説明できていません。観測された法則が別の強相関物質でも成り立つかの検証や、強相関電子系の様々な自由度(電荷・スピン・軌道など)との相互作用を取り込んださらなる理論的研究が重要となります。法則の普遍性や微視的な起源が明らかになれば、強相関電子系における非平衡ダイナミクスの理解が大きく進展することが期待されます。また、本研究は強相関電子系における非線形光学特性のキーパラメータを明らかにしており、強相関物質を用いた非線形光学材料の設計にも指針を与えるものです。

4. 研究プロジェクトについて

本成果は以下のプロジェクトによる支援を受けて行われました。

- ・日本学術振興会科学研究費補助金・基盤研究(S)「固体の高強度場光科学の学理構築と物質科学への展開」(田中耕一郎、21H05017)
- ・日本学術振興会科学研究費補助金・基盤研究(S)「テラヘルツ高強度場物理を基盤とした非線形フォトエレクトロニクスの新展開」(田中耕一郎、17H06124)
- ・日本学術振興会科学研究費補助金・基盤研究(S)「直流電場・電流：強相関電子系の新しい制御パラメータ」(前野悦輝、17H06136)
- ・科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 ACCEL「半導体を基軸としたテラヘルツ光科学と応用展開」(RD：田中耕一郎、PM：深澤亮一、Grant Number JP17942998)
- ・日本学術振興会 研究拠点形成事業 A (JSPS Core-to-Core program A)「酸化物超伝導体・強磁性体界面と微細構造素子での新奇超伝導開拓の国際ネットワーク」(JPJSCCA20170002)
- ・日本学術振興会科学研究費補助金・若手研究「金属および相転移点近傍における高次高調波を用いた非平

「平衡電子状態の研究」(内田健人、19K14632)

・ Dutch Research Council (NWO) through Rubicon Grant No. 019.183EN.031. (Giordano Mattoni)

<用語解説>

[1] **強相関物質**：現在のエレクトロニクス材料を担う半導体と異なり多体効果はその性質を決める上で本質的な役割を果たす物質群。高温超伝導体や巨大磁気抵抗を示す材料となっている。

[2] **モット絶縁体**：バンドに電子が部分的にしかつまっていない結晶は、バンド理論では金属と予測されるが、電子同士のクーロン反発が大きい場合には、電子の運動が凍結する。このようにして絶縁化した物質をモット絶縁体と呼び、電子の相互作用が大きな強相関電子系の1種である。本研究で用いた Ca_2RuO_4 は前野グループが発見し、典型的なモット絶縁体であることを明らかにした物質である。

[3] **高次高調波発生**：高強度なレーザーを物質に照射した際に、物質からレーザー光の光子エネルギーの整数倍の光子エネルギーを持つ光が放射される現象。近年の赤外光技術の発展により、固体においても試料を破壊することなく高次高調波の観測が可能になった。

[4] **ギャップエネルギー**：モット絶縁体では、絶縁化によってもと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する。このときの分裂エネルギーをここではギャップエネルギーと呼んでいる。ただし、本実験で用いた Ca_2RuO_4 は軌道の自由度も電子構造に影響を与えてより複雑な電子構造をしている。

<論文タイトルと著者>

タイトル：High-order Harmonic Generation and its Unconventional Scaling Law in the Mott-insulating Ca_2RuO_4

(モット絶縁体 Ca_2RuO_4 における高次高調波発生とその型破りなスケーリング則)

著者：K. Uchida, G. Mattoni, S. Yonezawa, F. Nakamura, Y. Maeno, K. Tanaka

掲載誌：Physical Review Letters DOI : 10.1103/PhysRevLett.128.127401