

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 電子相関による光と電子の双方向制御の実現

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

宮野 健次郎(東京大学先端科学技術研究センター 教授)

主たる共同研究者

岡本 博(東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻 教授)(平成 18 年 10 月～平成 24 年 3 月)

3. 研究実施概要

電子相関とは固体中の電子間の相互作用が強いために、一つの代表的な電子の統計平均では固体全体が記述されない現象を指す。電子相関の程度が著しい物質群を強相関系と呼び、本チームでは強相関系と光の相互作用について研究を行った。光と物質は微視的には一粒子相互作用として記述される。したがって、強相関系において光励起は一電子から始まって固体全体の電子に波及する効果をもたらす。この機構を通じて、光と物質の強い結合を生み出し、究極的には結晶格子一層であっても光と物質の相互の影響が容易に観察できるような物質を作り出すことを目標に掲げて研究を進めた。そのためには試料の開発と、光・物質相互作用の解明が必要と考え、前者に実績を持つハロルド・ファン(東大新領域、現スタンフォード大)と後者のエキスパートである岡本博(東大新領域)を繋ぐ形で双方に経験のある宮野健次郎(東大先端研)がチームをまとめた。

試料作製は pulsed-laser deposition (PLD) 法を用いた。PLD 法は熱平衡から遥かに外れたダイナミックな製膜法であるため制御すべきパラメータが非常に多い。ファングループは通常注目されないレーザー照射面積の影響を調べ、その調整によって原子層単位で精密に制御された薄膜作りに成功した。超格子において、原子層単位で界面が急峻であることはバンド制御の上から必須である。実際、このようにして作製された $\text{SrTiO}_3/\text{LaAlO}_3$ 超格子の第二高調波の位相・強度を宮野グループが精密に測定した結果、界面電位勾配の及ぶ範囲(～4 格子層)を明瞭に示すことができた。精密な作製条件制御は特に層数の少ない薄膜においては決定的に重要である。宮野グループは構造の良く規定された一連の薄膜を作製し、実際に永続的光誘起相転移を起こす試料を見出すとともに、光励起によってのみ到達できる状態(「隠れた」相)が存在する事を示した。強相関系の一電子励起が温度揺らぎを遥かに越えるとき、全く異なる基底状態に至る可能性を初めて示したものである。

岡本グループは光・光変調の立場から、超高速・高繰り返しで強相関系に起きる光学的変化を追求した。そのために、20 フェムト秒の時間分解能をもつポンプ・プローブ分光装置を開発し、絶縁体/金属転移においては、転移に伴う構造変化が少ない場合に瞬間的な光誘起転移効果が大きいことを明らかにした。これは宮野グループが見出した安定相への光誘起相転移の条件と丁度逆の関係にあり、両グループで目指している現象が対照的な関係にあることが分かった。

ところで、電子相関がもたらす拮抗状態はさらに多様である。岡本グループはハロゲン架橋遷移金属錯体を例にとり、電荷密度波/モット絶縁体/金属の三者の間を励起光強度や波長の違いによって選択的に遷移することが可能である事を示した。これは、光励起パルスを選択することによって、自由に電子状態間を行き来する新しいタイプの光スイッチの方向性を示したものである。これらの錯体は一次元強相関系であり、励起状態の電子対称性が非常に強い電子光相互作用を生むことが本質的に重要である。

さて、以上の光効果は全て強相関系の励起状態をそのまま利用するものであった。しかし、近接する他の材料を光励起して、励起キャリアを強相関系に注入するというシナリオも成り立つ。このようなアイデアに立つて、岡本グループは強相関系へ Ti 酸化物から光キャリアを注入することに成功した。注入されたキャリアの寿命は単純に強相関系を光励起した場合よりも格段に長く、光ドーピングによる物性制御がより現実性のあ

るものになった。一方、ファングループは Ti 酸化物の光励起安定性を利用して、SrTiO₃ 結晶表面に厚さとキャリア濃度を自在に制御できる二次元電子系を実現し、三次元通常金属から量子極限までの状況を一つの試料で実現した。

宮野グループが見出した定常的な光誘起相転移は、薄膜における基板歪みが、強相関係の強い電子格子相互作用を通して現れた結果である。特に歪みがテンソル量であることに由来する新しい対称性に基づく選択則がバルク試料では不可能な相をもたらすことが明らかになった。その一例がずり歪みに伴う電気分極の発現であり、マルチフェロイックに至る道筋の一つを示している。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

本研究の目標は、光と強相関係の相互作用を最適・最大化し、光が電子系全体の秩序を遷移させる、あるいは、電子系が光の状態を変化させるという双方向の制御関係が、究極的には単一の界面や結晶格子一層によっても実現できることを示すことである。

より具体的には、光によって物質に大きな電子状態の変化を生じさせること(光誘起相転移)、またその結果、物質の光学的性質が変化する光・光スイッチングを少量の物質を使って実現することであり、そのために、光・物質相互作用を検出するための光学測定系の開発・整備、そして、強い光・物質相互作用を生み出すための薄膜試料の設計・作製に取り組んだ。

主な研究成果は次のとおりである。

1. Mn 酸化物を用いて、絶縁体/金属の光誘起相転移のメカニズムを解明、また、光によって大きなエネルギー障壁を越え、熱平衡状態では出現しえない相(隠れた層)を新たに発見した。
2. 時間分解能 20fs を有する超高速分光測定系を構築し、モット絶縁体の光誘起相転移ダイナミクスを測定、その結果、光誘起金属状態の寿命は<1ps であり、超高速光スイッチングに利用できることを実証。また、新たに励起光子密度の選択(光強度)によって電荷密度波—モット絶縁体—金属の三相間の光誘起相転移を実現、Pd 錯体モット絶縁体では光波長による相制御を見出した。さらに、臭素架橋 Ni 錯体では、10⁻⁹esu を越える大きな三次非線形感受率を得ている。
3. パルスレーザ堆積法(PLD)を用いて、原子層レベルで高品質なペロブスカイト酸化物薄膜を作製、新たな量子相およびδドープ構造を用いた二次元電子系を実現した。

上記の結果は一部であるが、東大内における三つのグループが密に連携して、光誘起相転移に関わる酸化物薄膜材料の開発研究を精力的に推進し、超高速光スイッチングなど、新たな光機能素子につながる数多くの重要な知見を得ている。

原著論文は 110 編を越え、2件の国内特許を出願。まだ実用までにはかなりの距離があるが、10~20 年後の光デバイスを展望する上で、貴重なデータが数多く得られており、CREST 研究として大変優れた研究であると評価できる。

これらの研究によって、強相関係電子系では、光照射によって多くの系で電気的性質(絶縁性、金属性や超伝導)や磁氣的性質(強磁性、反強磁性や常磁性)など多彩な相変化を示す事を、多様な物理測定で明確に示してきた。絶縁性—金属相転移や反強磁性—強磁性相転移が光照射によって永続的に誘起されることを発見してきた。また、光誘起で始めて実現する永続的な「隠れた」相の発見、および異種絶縁性金属酸化物結晶の界面に現れる2次元金属的面や2次元強磁性の発見などは特筆に値する。この様な測定が可能になったのは、理想的な境界面を作製する技術が世界で初めて開発したお陰である。この様な観点で、科学的な成果は高く評価できる。

4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

異種遷移金属酸化物結晶の理想的界面を持って成長させる技術を習得し、界面における超伝導、強磁性、電気分極などを実現して、固体物理学に新たな研究分野を開拓した。国内外でも、本研究に匹敵するほどの技術は見当たらない。これらの物性を活かした新たな固体デバイスの開発の可能性が期待でき、工

学的インパクトも大いに期待できると思われる。

光・光スイッチの実現も目指しているが、実用化に耐えるほどに光吸収を低減できておらず、また、Mn酸化物の光誘起相転移も室温で実現していない。現時点では、実用化にはほど遠いが、新たに発見された物理現象の実用化に向けた努力を今後も継続することが望まれる。

4-3. 総合的評価

光・物質相互作用を検出する光学測定系を開発、整備するとともに、強い光・物質相互作用を生み出す試料を設計、製作し、光科学の進展に寄与することはもちろんのこと、工学的応用の可能性を秘めた多くの新知見を得ているが、将来社会にインパクトをもたらす研究であると評価される。