

有機超伝導体におけるペタヘルツ電子ダイナミクス

岩井伸一郎 〈東北大学大学院理学研究科 s-iwai@tohoku.ac.jp〉

川上洋平 〈東北大学大学院理学研究科 y.kawakami@tohoku.ac.jp〉

伊藤弘毅 〈東北大学大学院理学研究科 hiroitoh@tohoku.ac.jp〉

米満賢治 〈中央大学理工学部 kxy@phys.chuo-u.ac.jp〉

近年の超短パルスレーザー技術の発展は、電子温度の上昇に隠されていた物質の光励起の「内側」をもあらわにしつつある。わずか数フェムト秒（1フェムト秒＝千兆分の1秒）に集中した \sim V/Åにも及ぶ瞬時電場振幅は、「ペタ（千兆）ヘルツ」というとてつもない高周波数で駆動される新たな光エレクトロニクスを創成しつつある。こうした研究は、主にバンド絶縁体やグラフェン、ナノ金属などで進められているが、電子の多体効果が顕著な強相関電子系では、一電子描像を超えた光強電場効果も予想される。電子間クーロン反発のエネルギーが数eV ($h/(1$ フェムト秒)： h はプランク定数)であることを考えれば、こうした極短時間のアプローチが、相関電子の本質に迫り、その潜在能力を活かすための突破口になる可能性も期待できる。

一般に、光パルスの照射は瞬時に物質の電子温度を上昇させ、強相関物質の特徴的な秩序状態を熱的に壊してしまう。仮に電子温度が上昇する前に光電場の印加を完了できたら何が起きてくるのだろうか？ よく知られているように、光の振動電場 $E(t)$ を物質に印加しても通常パルス全体で正味の電流密度 j は生じない。オームの法則($j(t)=\sigma E(t)$ 、 σ は伝導度)が成り立てば、光によって生じる光電流の時間積分はゼロになるからである。しかし、光による電場の印加が電子間散乱の時間よりもずっと短時間で完了するならば、電子は光電場 $E(t)$ によって加速され、電流は電場の時間積分

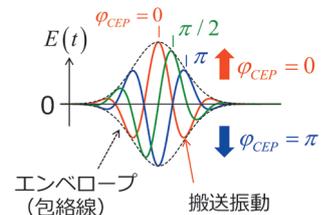
$j(\tau) \propto \int_0^\tau E(t) dt$ で与えられる。この無散乱電子加速による電流（無散乱電流）は、キャリアエンベロープ位相（CEP）と呼ばれる時間軸上における振動電場の位相パラメータ（包絡線関数と光の搬送振動の相対位相）に依存して変化する。このように、「電子温度が上昇する以前の時間」には、これまでの常識とは異なる新たな光物性や光機能への鍵が隠されている。

我々は、有機超伝導体を対象に、パルス幅6フェムト秒の極超短パルスとそのCEP制御技術を用いた光強電場効果の測定を行った。電子温度の上昇に要する時間が比較的長い（ \sim 40フェムト秒）有機物質を対象とすることによって、無散乱電流による光強電場効果を捉えることに成功した。注目すべきことに、これらの光強電場現象（電荷の同期振動による誘導放出と、無散乱電流による（電流誘起）第二高調波発生（SHG））は、超伝導転移温度よりも高い温度領域で観測される超伝導ゆらぎ（クーパ対の短距離相関）によって異常増大を示す。10フェムト秒以下という極超短時間における誘導放出の温度依存性は、超伝導の微視的機構が、超伝導ギャップよりもはるかに高エネルギーの相互作用と関係していることを強く示唆している。このように、電子温度の上昇に隠されてきた光励起の「瞬間」を捉えることによって、強相関電子系の新たな物性研究と光機能探索が可能になると筆者らは考えている。

用語解説

キャリアエンベロープ位相（CEP）：

電場の時間波形が $E(t) = E_0(t) \cos(\omega t - \varphi_{\text{CEP}})$ であらわされるとき、包絡線 $E_0(t)$ と搬送振動 $\cos(\omega t - \varphi_{\text{CEP}})$ の相対位相をCEPと呼ぶ。CEPを光の振動周期の半周期分（例えば0から π ）に変化させることによって、最大電場振幅の符号を変えることができる。高次高調波発生など、非摂動的な強電場効果は、電場の向きに敏感であるため、しばしばCEPに対して特徴的な依存性を示す。



誘導放出：

物質に光を入射した時、入射した光よりも強い光が放出される増幅現象であり、レーザー発振の原理としても知られる。反転分布（励起状態が基底状態よりも多数存在する状態）により生じる。

電流誘起第二高調波発生：

強誘電体などの空間反転対称性の破れを有する絶縁体では、第二高調波発生（SHG）が活性になる。一方、不純物半導体やグラフェン、BCS型の超伝導体などでは、電流によってSHGが生じる。この現象は、運動量空間における電子分布の（正、負の波数間の）不均衡を反映して、二次の非線形電気感受率 $\chi^{(2)}$ がゼロでなくなることによる。