

# 強相関電子材料における光誘起相転移の 超高速ダイナミクス

東工大院理工  
沖本洋一

## Collaborators

●<sup>1</sup>CERC-AIST, <sup>2</sup>Univ. of Tokyo

松原正和<sup>1</sup>、松崎弘幸<sup>1,2</sup>、富岡泰秀<sup>1</sup>、I. Kezsmarki<sup>2</sup>、  
小笠原剛<sup>1</sup>、岡本博<sup>1,2</sup>、十倉好紀<sup>1,2</sup>

●東工大院理工

遠藤将人、腰原伸也

●東北大多元研

有馬孝尚

# Outline

---

## 1. Introduction...

ペロブスカイト型Mn酸化物の電荷整列絶縁体—強磁性  
金属相転移とPhoto-induced phase transition (PIPT)

## 2. フェムト秒レーザーを用いた

電荷整列絶縁体 $\text{Gd}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  結晶の  
超高速ポンププローブ分光

① 反射率変化  $\Delta R/R$                       電荷の応答

*Y.Okimoto et al., JPSJ 76, 043702 (2007).*

② カー回転  $\Delta \theta$                               スピンの応答

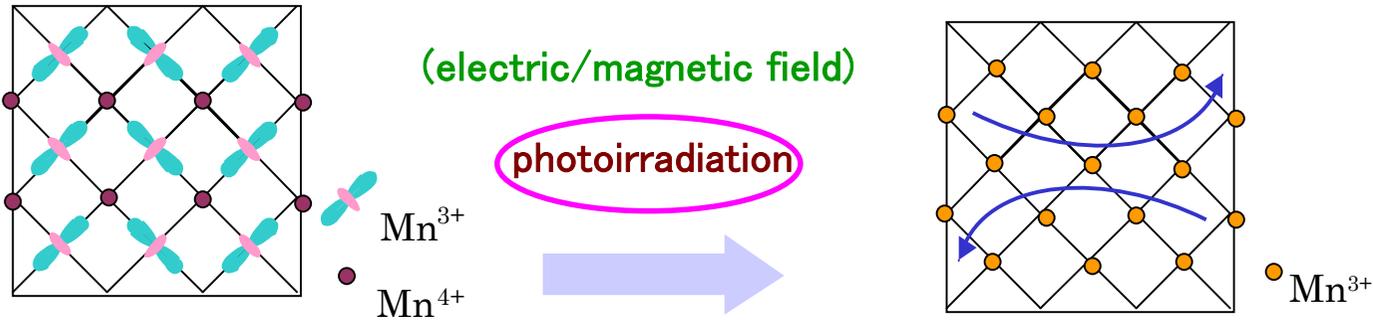
*M. Matsubara, Y.O. et al., submitted.*

- ・「光誘起強磁性金属状態」はどのように光で見えるのか？
- ・その生成・緩和の時間スケールはどうなっているのか？

## 3. 光誘起強磁性金属相の緩和状態は？？？

# Introduction

マンガン酸化物 ⇒ 全く異なる二つの基底状態



電荷整列絶縁体

外場による電子相制御が可能！

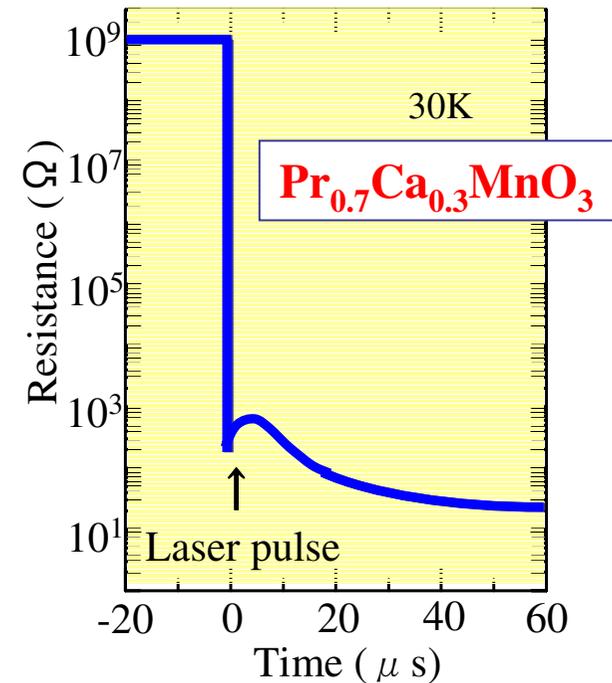
強磁性金属

光誘起相転移....

Miyano *et al.*, PRL (1998)

in  $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

レーザーパルス電気抵抗率の急激な落下  
⇒ 強磁性金属相発生を示唆



# Motivation

---

Miyano *et al.*, PRL (1998): current injection is essential to keep the photo-induced FM domains.

⇒ 光照射によって発生したドメインはそのままでは維持できず、始状態へ緩和して行く

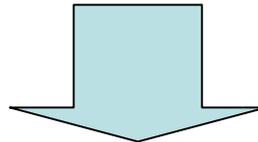
## Questions:

・光誘起状態の発生・緩和のダイナミクス

生成・緩和の時間スケール？

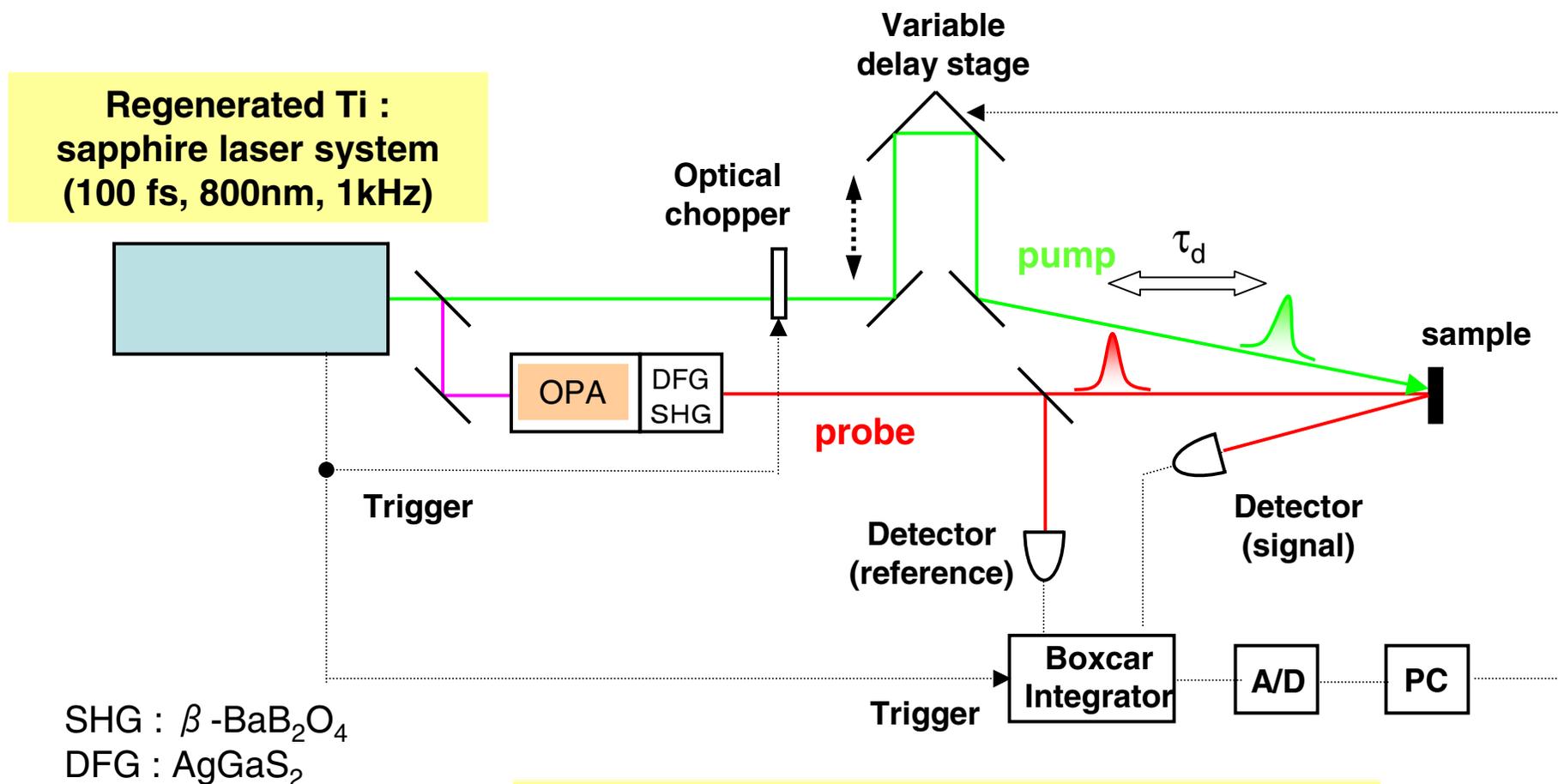
・光誘起相はどのような電子状態なのか？（強磁性金属相？）

「光誘起強磁性金属状態」はどのように光で見えるのか？



フェムト秒レーザーパルスを用いた時間分解反射分光

# 時間分解ポンププローブ反射分光



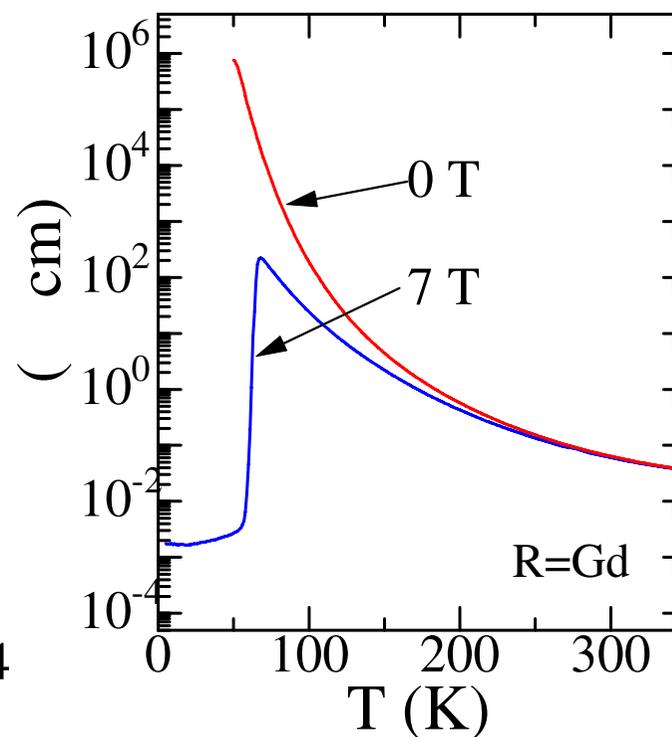
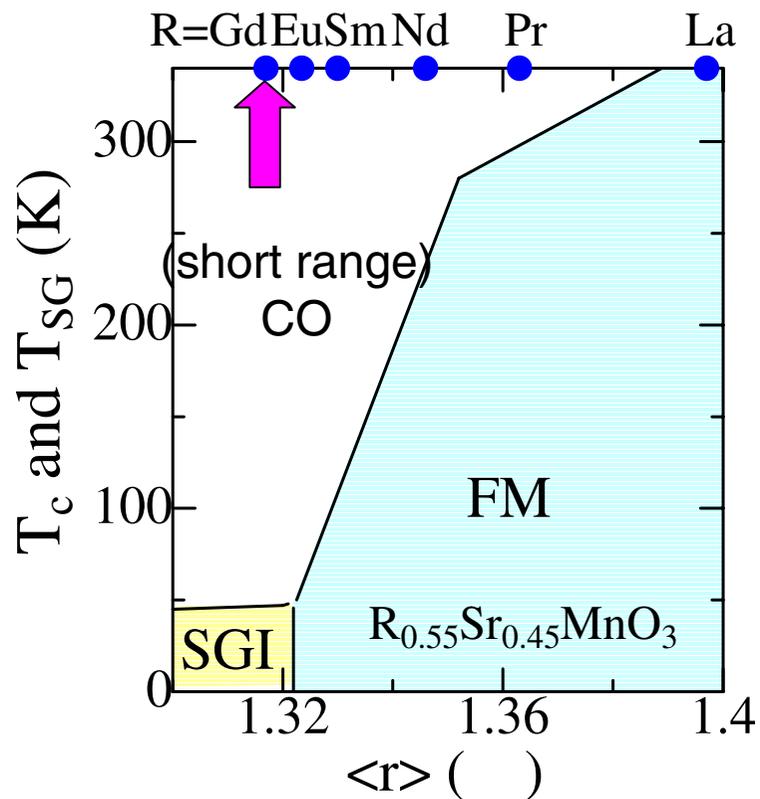
時間分解能 ~ 150 fs

Pump光 (電荷整列を壊す励起光): 800 nm

Probe光 (電子状態を見る光): 0.5 ~ 9  $\mu$ m

# Target: $\text{Gd}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$

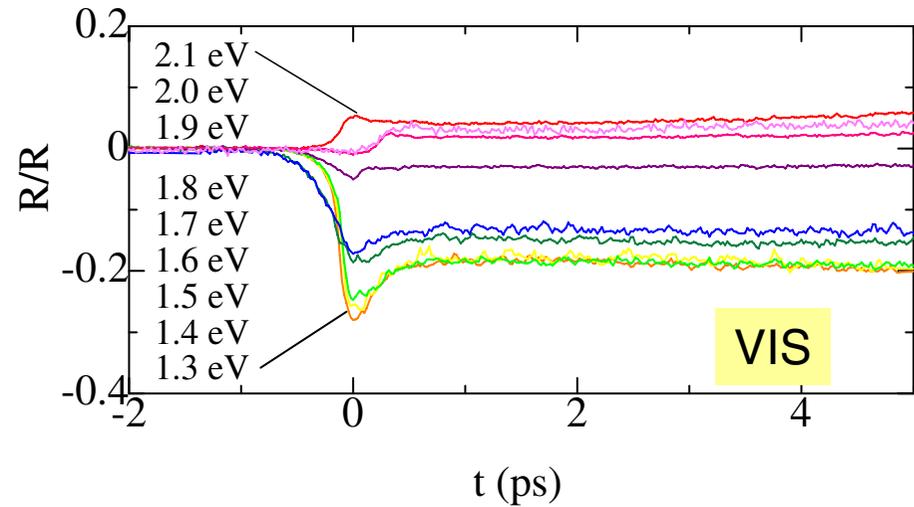
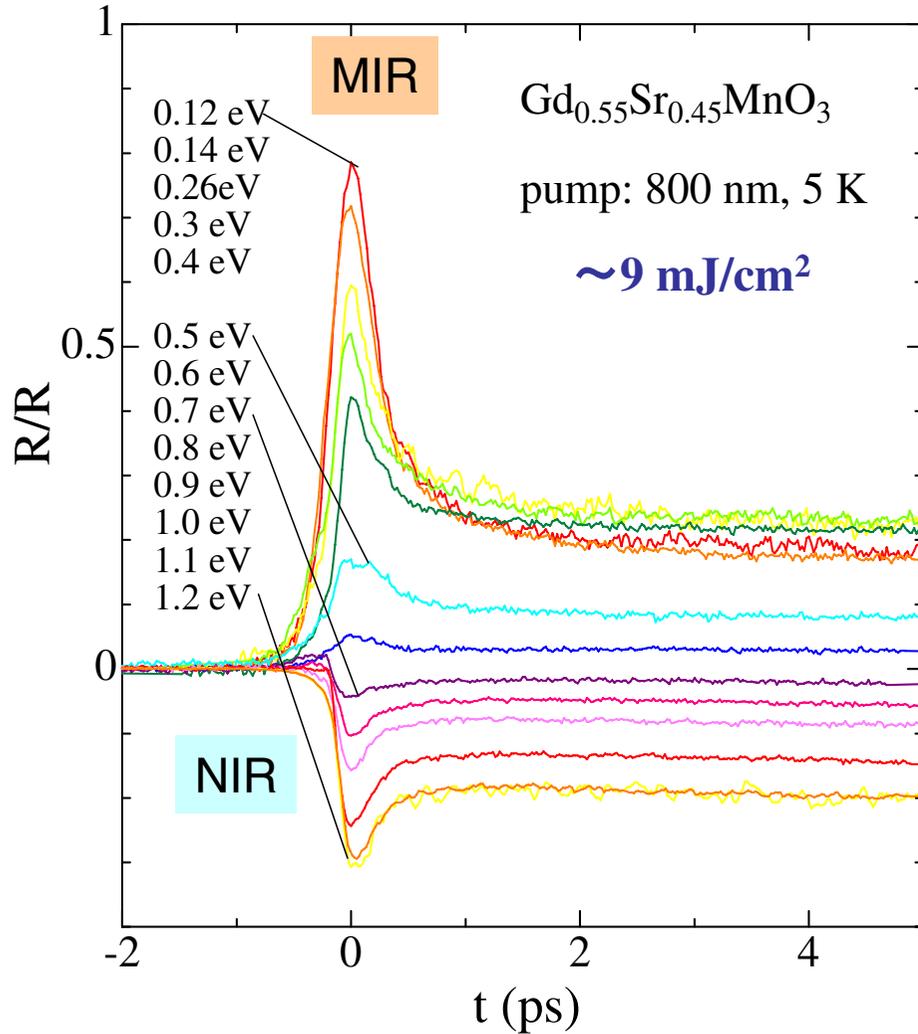
強磁性金属相に近い (短距離相関) 電荷整列絶縁体



*Ionic radius* small  $\longrightarrow$  large  
 ..... Gd, Eu, Sm, Nd, Pr, La  
*Bandwidth* insulator / Ferromagnetic metal

R=Gd: Magnetic field-induced CO-FM transition in 7 T

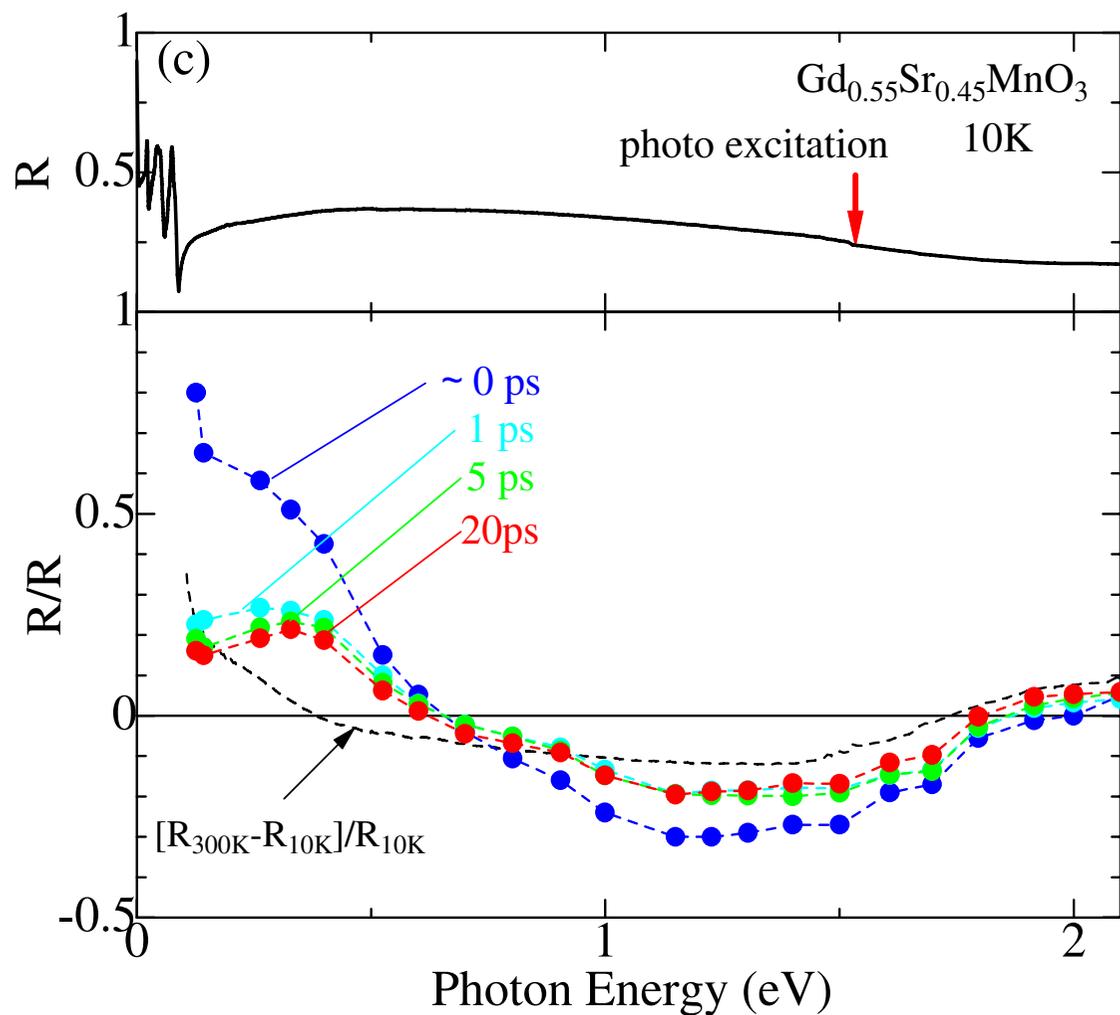
# ① $\text{Gd}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ の時間分解測光： 反射率変化



★すべての波長においてに緩和する高速成分 と その後変化しないフラット成分

★  $\Delta R/R$  の符号は  $\sim 0.7 \text{ eV}$  と  $\sim 1.9 \text{ eV}$  で変化する

## Spectra of $\Delta R/R$



★ 1 ps後の反射率変化は少ない  
⇒ 高速成分+フラット成分

★ レーザパルス照射により 0.7 eV  
以下の中赤外部が増大し、それより  
高エネルギー側が減少する  
⇒ 光誘起金属化の示唆

★ 得られた光誘起状態のスペクトル  
は、測定温度と室温との差分スペクトル

$[R(300\text{K}) - R(10\text{K})]/R(10\text{K})$   
とは全く異なる

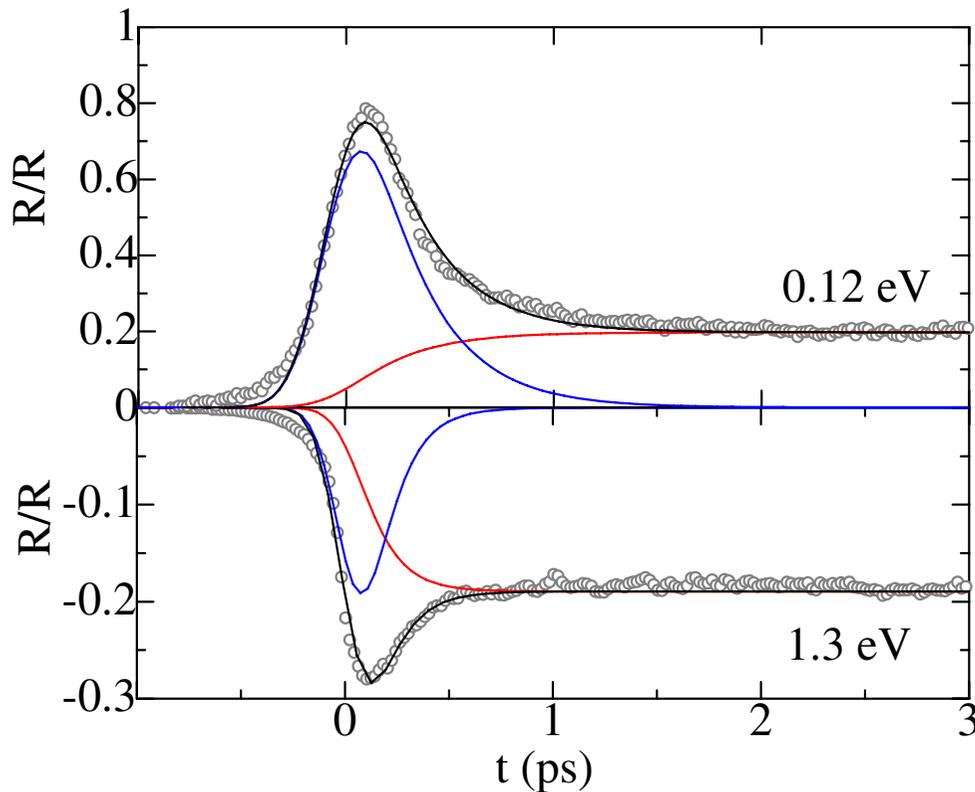
⇒ 光誘起された相は高温相とは  
異なる

# Analysis of time-profile

• Response:  $f(t) = \underbrace{a_1 e^{-\frac{t}{\tau_1}}}_{\text{高速成分}} + \underbrace{b_1(1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}})}_{\text{Flat成分}}$

• Spectral function: 畳み込み (★) with pump & probe pulse (gaussian-type)

$$I(t) = [f(t) \star e^{-\frac{t^2}{\tau_{pump}^2}}] \star e^{-\frac{t^2}{\tau_{probe}^2}}$$



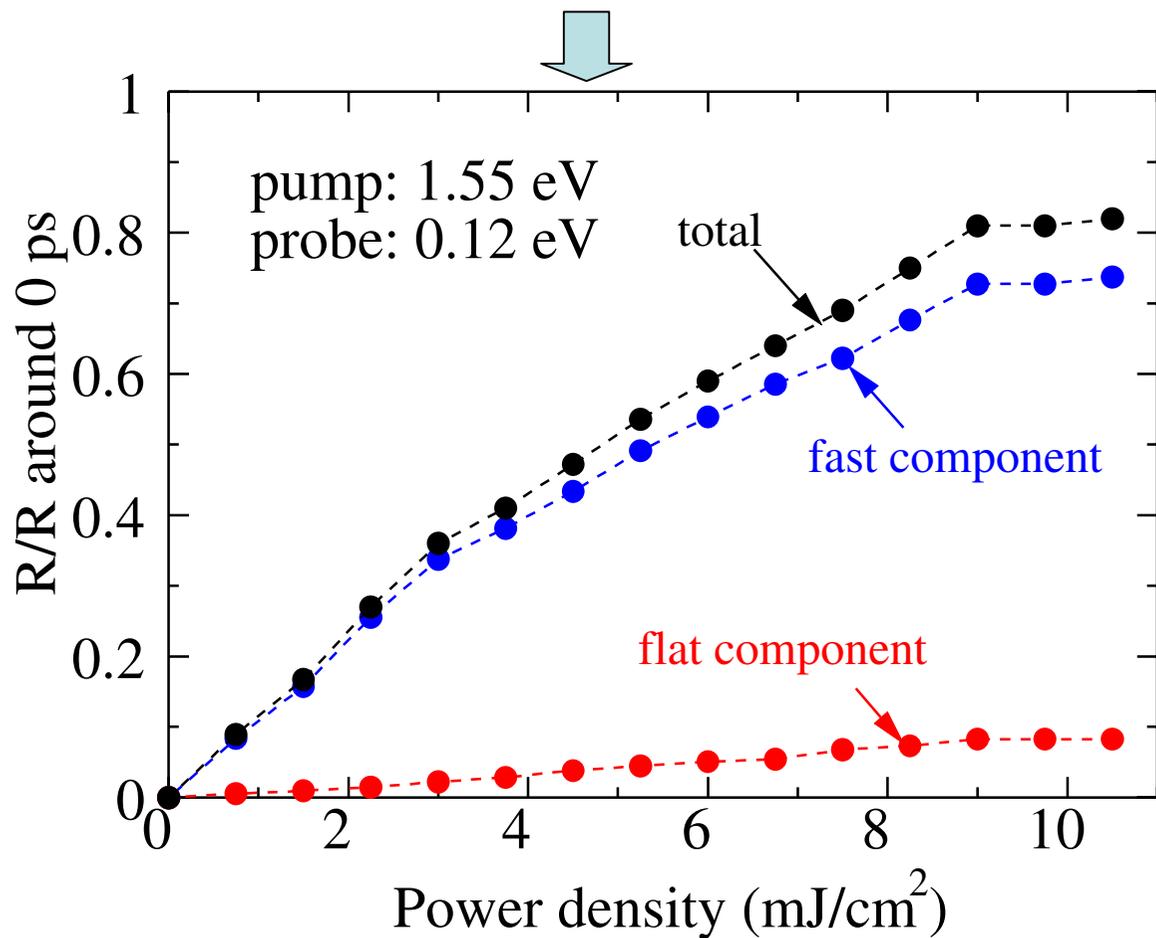
★ The two components were divided by the convolution fitting.

★ 高速成分の緩和のタイムスケール.....  $\tau_1 \sim 280$  fs @ 0.12 eV

⇒ **Ultrafast!**

## Power dependence in $\Delta R/R$

Pr<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>系の閾値



★  $\Delta R/R$ は、照射したレーザー光の強度にほぼ比例して増大 (入れた光分だけ変化)

★ 変化は $\sim 9\text{mJ/cm}^2$ で飽和

★ damage threshold が高い (PCMO系では $3\text{-}4\text{ mJ/cm}^2$ )

## 光誘起状態の考察

The pumping light is exponentially diminished with  $z$ .

[ the penetration length  $d \sim 530 \text{ \AA}$  ]

The photo-induced domain also decays with the power of the pump light.

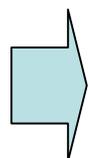
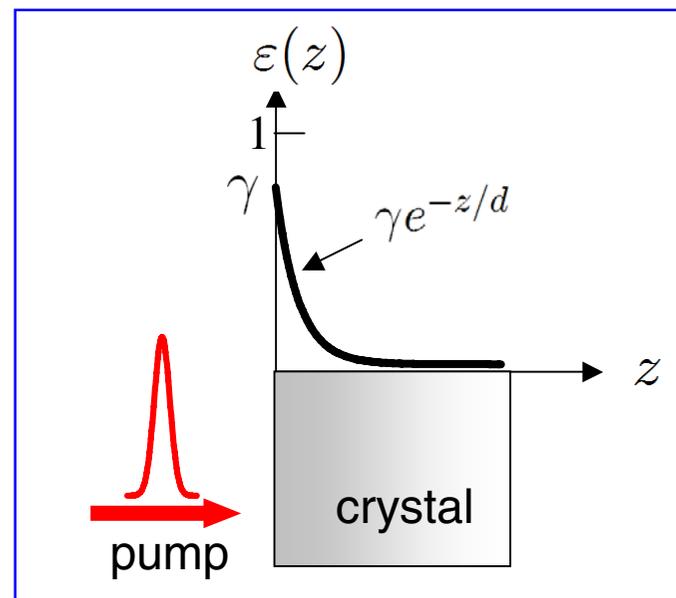


Linear combination of the initial and final states:

$$\varepsilon(z) = (1 - \gamma e^{-z/d}) \varepsilon^{\text{CO}} + \gamma e^{-z/d} \varepsilon^{\text{PIPT}}$$

$\varepsilon^{\text{CO}}$ : dielectric constant of  $\text{GdSrMnO}_3$  (known)

$\varepsilon^{\text{PIPT}}$ : dielectric constant of the photo-induced phase (unknown!)



$\Delta R/R$  は  $\varepsilon^{\text{PIPT}} (= (n^{\text{PIPT}} - i k^{\text{PIPT}})^2)$  の関数として計算される。  
(多層膜の複素フレネル係数の計算)

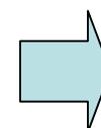
# 光誘起状態の誘電関数 $\epsilon^{\text{PIPT}}$ の算出

Step1:  $R^{\text{exp}} = R(1 + \Delta R/R)$

Step2: Kramers-Kronig analysis:  $R^{\text{exp}} \Rightarrow \Theta^{\text{exp}}$

Step3: Solves Maxwell's equation:

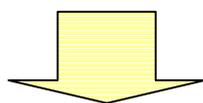
$$R = R(n^{\text{PIPT}}, k^{\text{PIPT}}), \quad \Theta = \Theta(n^{\text{PIPT}}, k^{\text{PIPT}})$$



$$R^{\text{exp}} = R(n, k)$$

$$\Theta^{\text{exp}} = \Theta(n, k)$$

*Nonlinear equation*



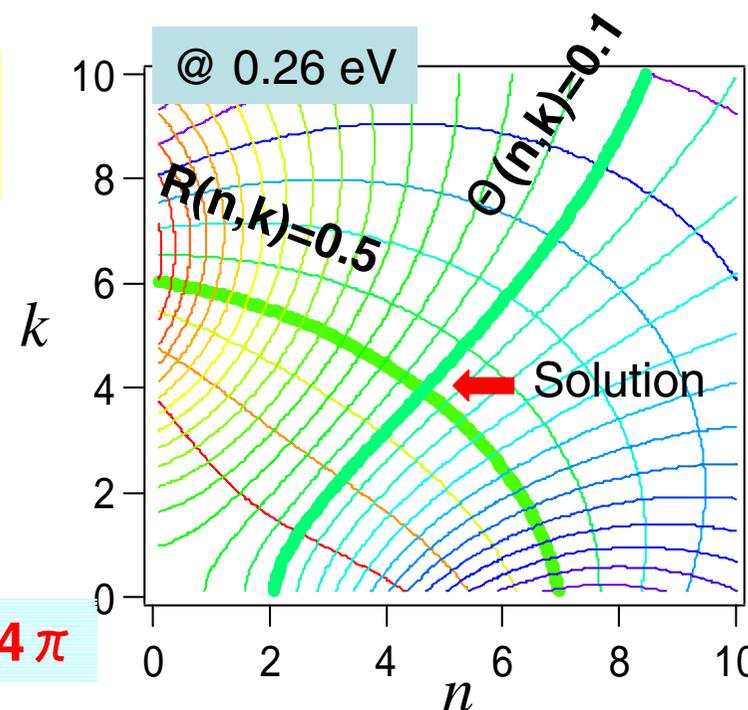
Numerical solution:  $(n_{\text{PIPT}}, k_{\text{PIPT}})$   
*only one solution!*



Reflectivity:  $R^{\text{PIPT}} = \frac{(n_{\text{PIPT}} - 1)^2 + k_{\text{PIPT}}^2}{(n_{\text{PIPT}} + 1)^2 + k_{\text{PIPT}}^2}$

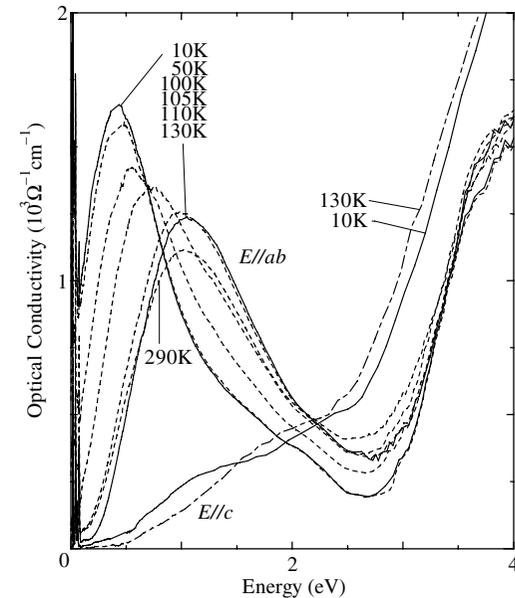
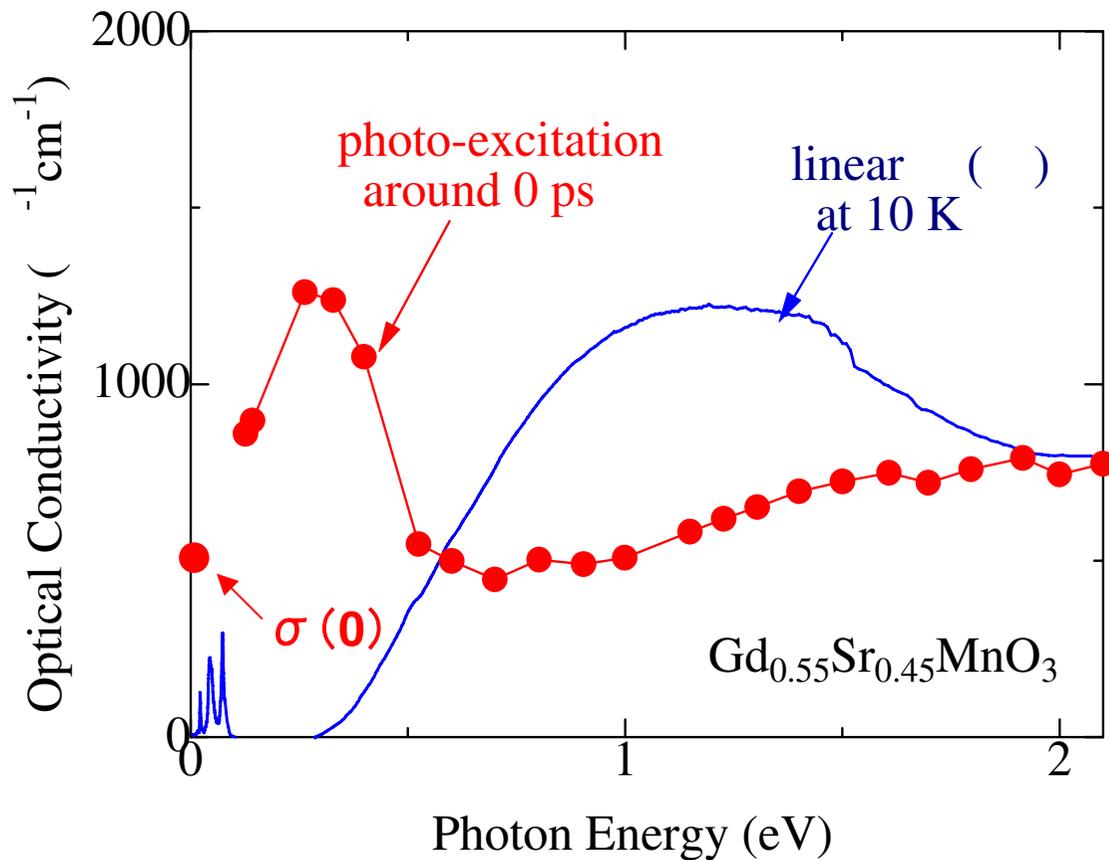
Optical conductivity :  $\sigma^{\text{PIPT}} = \omega \text{Im} \epsilon^{\text{PIPT}} / 4 \pi$

Contour plot of  $R(n, k) / \Theta(n, k) = \text{const.}$



# 光誘起相の電子状態.....光学伝導度スペクトル

⇒光学伝導度(光吸収)スペクトル:  $\sigma^{\text{PIPT}} = \omega \text{Im} \epsilon^{\text{PIPT}} / 4\pi$



T. Ishikawa et al., PRB



Photo-induced Ultrafast FM phase

# Summary

---

電荷整列絶縁体マンガン酸化物  $\text{Gd}_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$  に対して超高速分光を行った。

## ★反射分光の結果:

- ・反射率スペクトルの瞬時的(パルス幅以内)変化
- ・スペクトルの形状の変化: 絶縁体的 $\Rightarrow$ 強磁性金属的
- ・緩和の時間スケール  $\sim 240$  fs, at 0.12 eV

## ★カー回転測定の結果:

- ・光照射により正のカー回転角 $\Rightarrow$ 強磁性ドメインの生成
- ・ $\Delta\theta$ は $\sim 1$  psかけて増大し、 $\sim 10$  psかけて減衰

マンガン系の光誘起相転移 $\Rightarrow$

光誘起強磁性ドメインの緩和 と ドメインが回転し磁場方向にそろう効果  
の二つの要因で説明可能