

一次元銅酸化物 Sr_2CuO_3 及び Ca_2CuO_3 の巨大非線形光学応答

東大新領域, PRESTO 岸田 英夫

低次元電子系は大きな非線形光学効果を示すことが期待されている。特に、一次元系においては、共役系高分子を中心に非常に多くの研究がなされてきた。一方、同じ一次元絶縁体でありながら、一次元モットハバード絶縁体は光学材料として、これまでほとんど着目されてこなかった。しかし、最近、我々は、一次元モットハバード絶縁体である二つの物質系、ハロゲン架橋ニッケル錯体及び一次元銅酸化物が、大きな三次の非線形感受率を示すことを見出した[1]。本講演では、この一次元モットハバード絶縁体である Sr_2CuO_3 及び Ca_2CuO_3 の非線形光学応答について、電場変調分光法[1]及び第三高調波発生法[2]から求めた三次非線形感受率スペクトル⁽³⁾について議論を行う。

電場変調法(Electroreflectance, ER)とは、単結晶試料に電場(~数 10kV/cm)を印加し、それによる反射率変化(R/R)を観測する方法である。得られたスペクトルを Kramers-Kronig 変換することにより、

⁽³⁾スペクトルが求められる。また第三高調波発生法(Third Harmonic Generation, THG)とは入射光の光子エネルギーを3倍にする非線形過程である。試料からの THG 強度を、参照試料(石英)からの THG 強度と比較することにより、⁽³⁾を求めることができる。

図(a),(b)に Sr_2CuO_3 及び Ca_2CuO_3 の吸収スペクトルを示す。このピークは酸素の p バンドから、銅の 3d 上部ハバードバンドへの電荷移動(CT)励起に対応している。THG スペクトルを図(c)(d)に示す。鋭い共鳴ピーク A における $|\chi^{(3)}|$ は Sr_2CuO_3 において $1 \times 10^{-9} \text{esu}$ に達している。この値は、大きな光学非線形性を示すことで知られるポリジアセチレンとほぼ等しい。共鳴ピーク A は吸収スペクトルでみられる一光子遷移許容準位(odd)への三光子共鳴ピークである。また、その高エネルギー側に肩状の構造 B がある。これは、電場変調分光法の結果(図(e),(f))と考えあわせると、一光子遷移許容準位の近傍にある一光子遷移禁制準位(even)への二光子共鳴によるものと推測される。ここで観測された一光子禁制な状態のエネルギーは一光子許容な CT 励起状態に近く、同じく CT 励起状態であると考えられる。一次元モットハバード絶縁体における大きな非線形効果は一光子遷移許容、一光子遷移禁制な CT 状態がほぼ縮退し、その間の遷移双極子モーメントが大きいことによる。このような電子状態の特徴は、一次元モットハバード絶縁体におけるスピン-電荷分離によることが理論的に示唆されている[3]。

本研究は、以下の方々との共同研究である。
 岡本博(東大新領域,CERC-AIST)、小野円佳、
 松崎弘幸(以上、東大新領域)、田口康二郎(東北大金研)、
 十倉好紀(東大工、CERC-AIST)、和泉真(東大先端研)、
 真子隆志(NEC 基礎研)、川崎雅司(東北大金研、CERC-AIST)(以上、
 敬称略)

- [1] H. Kishida *et al.*, Nature **405**, 929 (2000).
- [2] H. Kishida *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 177401 (2001).
- [3] Y. Mizuno *et al.* Phys. Rev. **62**, R4769(2000).

