

フェムト秒レーザー照射による TTF-CA からの テラヘルツ電磁波発生

真崎勇介, 木下雄斗, 貴田徳明, 森本剛史, 宮本辰也, 岡本博 (東大新領域)

TTF-CA は、ドナー (D) の TTF 分子と、アクセプター (A) の CA 分子からなる交互積層型の電荷移動錯体であり、81 K 以下で中性相からイオン性相への相転移を起こす典型的な物質である。低温のイオン性相では、分子間の電荷移動によって自発分極が生じ、強誘電性を示すことが明らかにされている。また、イオン性相において電荷移動遷移 (0.65 eV) 以上の光子エネルギーの光を照射すると、イオン性相から中性相へ光誘起相転移を起こすことが知られている [1]。特徴的なことは、光照射後、瞬時にイオン性→中性転移を起こすと同時に、自発分極が消失することである。そのため、自発分極の変調によるテラヘルツ電磁波の発生が期待できる。TTF-CA のテラヘルツ帯には、赤外活性な分子振動構造が存在しており、他の有機強誘電体で行われているような透過配置 [2]でのテラヘルツ電磁波の検出が難しい。そこで、本研究では、反射配置でテラヘルツ電磁波を検出する測定系を新たに構築した。15 K (イオン性相) において、TTF-CA の単結晶に対して DA 積層軸 (a 軸) 方向に偏光したフェムト秒レーザーパルス (パルス幅 130 fs, 中心波長 1169 nm, 繰り返し周波数 1 kHz、照射光強度 0.12 photon/DA pair) を照射したところ、 a 軸方向に偏光したテラヘルツ電磁波が発生することを見出した。さらに、テラヘルツ電磁波発生の励起密度依存性を測定したところ、過去に報告されているポンププローブ分光測定における反射率変化の励起密度依存性とおおむね一致していた [1]。このことから、テラヘルツ電磁波の発生機構が光誘起相転移に伴う分極変調に起因していることが示唆される。

[1] H. Okamoto *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 165202 (2004).

[2] M. Sotome *et al.*, Appl. Phys. Lett. **105**, 041101 (2014).