

整理番号	2024-J-089	報告者氏名	金島 圭佑
------	------------	-------	-------

## 研究課題名

光誘起相転移に伴う位相特性変化の評価と超高速光スイッチングデバイスへの応用

<代表研究者> 機関名：兵庫県立大学 大学院理学研究科・物質科学専攻  
職名：助教 氏名：金島 圭佑

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：  
機関名： 職名： 氏名：  
機関名： 職名： 氏名：  
機関名： 職名： 氏名：

## &lt;研究内容・成果等の要約&gt;

本研究では、将来的な超高速光スイッチングデバイスへの応用を視野に入れ、強相関物質である二酸化バナジウム ( $\text{VO}_2$ ) におけるフェムト秒オーダーの光誘起相転移に伴う光学位相応答の超高速ダイナミクスを実験的に明らかにすることを目的とした。フェムト秒時間分解干渉計測を用いることで、光誘起相転移過程における光学位相の超高速ダイナミクスを定量的に評価した。

$\text{VO}_2$ は金属-絶縁体転移を示す代表的な物質であり、フェムト秒レーザー励起によってサブピコ秒からピコ秒スケールで相転移が誘起されることが知られている。一方で、屈折率変化を直接反映する光学位相の時間発展をフェムト秒時間分解で定量的に評価した研究例は限られていた。

本研究では、フェムト秒パルス光を用いた時間分解干渉計測法により、光励起後の光学位相変化をフェムト秒時間分解で測定し、励起フルエンス依存性を系統的に調べた。その結果、光誘起相転移の閾値を境に、位相応答が明確に異なる二成分のダイナミクスを示すことを明らかにした。低フルエンス領域では即時的な電子応答が支配的であるのに対し、閾値以上では有限の立ち上がり時間を伴う高速成分と、ピコ秒スケールで進行する遅い成分が共存する位相応答が観測された。

得られた位相応答は、二成分立ち上がりモデルを用いた解析により定量化され、モデルの妥当性は統計的指標を用いて検証された。さらに、白色光を用いたマイケルソン干渉計測により熱相転移に伴う光学位相応答も測定し、光誘起相転移の場合との違いについて詳細な比較を行った。

これらの結果は、 $\text{VO}_2$ における光誘起相転移の応答時間を明らかにしただけでなく、その応答が電子的応答と構造的変化から成る複合過程であることを示唆している。さらに、本研究成果は、 $\text{VO}_2$ を用いた超高速光位相変調器や光スイッチングデバイスの設計に対して重要な指針を与えるものである。本研究で得られた成果は論文としてまとめ、**Optical Materials Express** 誌に投稿した。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

■ 口頭発表

安友 悠馬, 金島 圭佑, 菅田 秀太, 中村 悠太郎, 野村 飛雄, 藤谷 海斗, 堀田 育志, 田中 義人, 「時間分解干渉計測による VO<sub>2</sub> の超高速光誘起位相シフト」, 第 73 回応用物理学会春季学術講演会 (2026 年 3 月, 発表予定)

■ ポスター発表

安友 悠馬, 「二酸化バナジウムの光誘起相転移に伴う過渡的な位相変化の時間分解測定」, 第 32 回レーザー夏の学校 (2025 年 9 月)

■ 論文発表

Keisuke Kaneshima, Yuma Yasutomo, Shuta Sugeta, Yutaro Nakamura, Hiyu Nomura, Kaito Fujitani, Yasushi Hotta, Yoshihito Tanaka, “Ultrafast optical phase response associated with photoinduced phase transition in VO<sub>2</sub>,” *Optical Materials Express* (under review)

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

### ① 研究の目的

光学位相の制御は、光通信、光情報処理、ならびに超短パルスレーザーを用いた先端光科学において基盤的な機能である。現在広く用いられている光位相変調技術としては、シリコンにおける熱光学効果を利用した位相変調器や、音響光学変調器、電気光学変調器などが挙げられるが、これらの応答時間はそれぞれミリ秒からマイクロ秒、マイクロ秒からナノ秒、ナノ秒からピコ秒程度に制限されている。そのため、フェムト秒スケールで光学位相を制御する手法はいまだ確立されておらず、超高速光制御の観点から重要な課題となっている。

二酸化バナジウム ( $\text{VO}_2$ ) は金属-絶縁体転移を示す代表的な強相関物質であり、約 340 K 付近での熱相転移に加えて、フェムト秒レーザー励起によって超高速な光誘起相転移を示すことが知られている。これまで、 $\text{VO}_2$  の光誘起相転移については、光学分光、テラヘルツ分光、光電子分光、電子線回折、X線計測など、さまざまな超高速分光手法を用いて詳細な研究が行われてきた。その結果、フェムト秒オーダーの高速応答と、それに続くピコ秒スケールの遅い応答が存在することが明らかになっている。

一方で、これらの研究の多くは反射率や吸収率、構造変化に着目したものであり、屈折率変化を直接反映する光学位相の時間発展をフェムト秒時間分解で定量的に評価した研究は限られている。光学位相は、光位相変調器や光スイッチングデバイスの動作原理に直結する重要な物理量であることから、光誘起相転移に伴う位相応答の詳細な理解は、応用の観点からも不可欠である。

本研究では、将来的な超高速光スイッチングデバイスへの応用を念頭に置き、 $\text{VO}_2$  におけるフェムト秒オーダーの光誘起相転移に伴う光学位相応答の超高速ダイナミクスを実験的に明らかにすることを目的とした。そのために、フェムト秒時間分解干渉計測を構築し、光励起下における  $\text{VO}_2$  薄膜の光学位相変化を直接測定した。さらに、熱相転移の場合の光学位相応答とも比較することで、光誘起相転移に特有な位相応答の特徴を明らかにすることを目指した。

### ② 研究の経過

本研究では、二酸化バナジウム ( $\text{VO}_2$ ) 薄膜における光誘起相転移に伴う光学位相応答を評価するため、フェムト秒時間分解干渉計測を基盤とした実験手法の構築から着手した。光学位相の測定には干渉計を用いる必要があるが、干渉計測は空気の揺らぎや温度変動、機械振動などの外乱に極めて敏感であり、特にフェムト秒時間分解測定においては長時間にわたる高い安定性が要求される。

そこで本研究では、干渉計全体を外乱から隔離するため、光学系を密閉構造内に収めるなどの工夫を行い、空気擾乱や温度変動の影響を低減した。その結果、長時間にわたり安定した干渉縞を維持できる測定環境を実現し、励起条件を変えながら系統的な時間分解測定を行うことが可能となった。

構築した実験系では (図 1)、フェムト秒レーザーを用いて  $\text{VO}_2$  薄膜試料を光励起し、干渉計測により光励起後の光学位相変化をフェムト秒時間分解で測定した。加えて、試料表面からの反射光を測定することで時間分解反射率測定も同時におこなった。取得した干渉信号からは数値解析により位相情報を抽出し、光誘起相転移に伴う位相応答の時間発展を評価した。さらに、光誘起相転移に特有な位相応答を明確にするため、熱相転移条件下における光学位相応答の測定も行い、光励起条件との比較が可能なデータを取得した。

図 2 には、本研究で測定した干渉データの一例を示す。図 2 (a) は、励起フルエンス  $6.47 \text{ mJ/cm}^2$  における干渉スペクトル (交流成分) のポンプ-プローブ遅延時間依存性を示したものである。光励起に伴い、時間原点近傍で干渉縞のシフトが観測されていることが分かる。また、図 2 (b) には、代表的な遅延時間における干渉スペクトルを抜粋して示した。光励起前 ( $-500 \text{ fs}$ ) のスペクトルに対するピーク位置を赤の破線で示しているが、光励起後には遅延時間に応じて干渉縞のピーク位置がわずかにシフトしていることが確認できる。

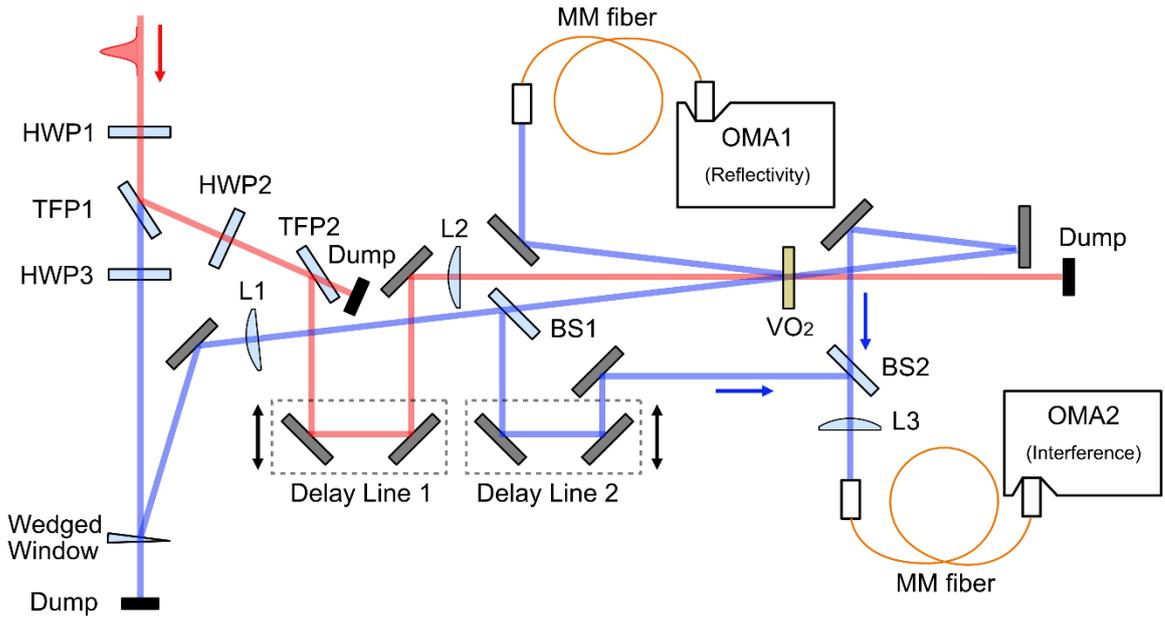


図1. フェムト秒時間分解干渉計測の実験装置概略図.

フェムト秒レーザーを用いて試料を光励起し、光励起後の光学位相変化を時間分解で測定するための干渉計測系を示す。ポンプ光およびプローブ光は同一のレーザー光源から生成されており、遅延線によりポンプ-プローブ間の時間遅延を制御している。干渉計内の参照光と信号光の遅延は独立に調整可能であり、安定した干渉縞の取得が可能である。光励起に伴う反射率変化と干渉縞はそれぞれ分光器により同時に測定され、光学位相応答をフェムト秒時間分解で評価することができる。

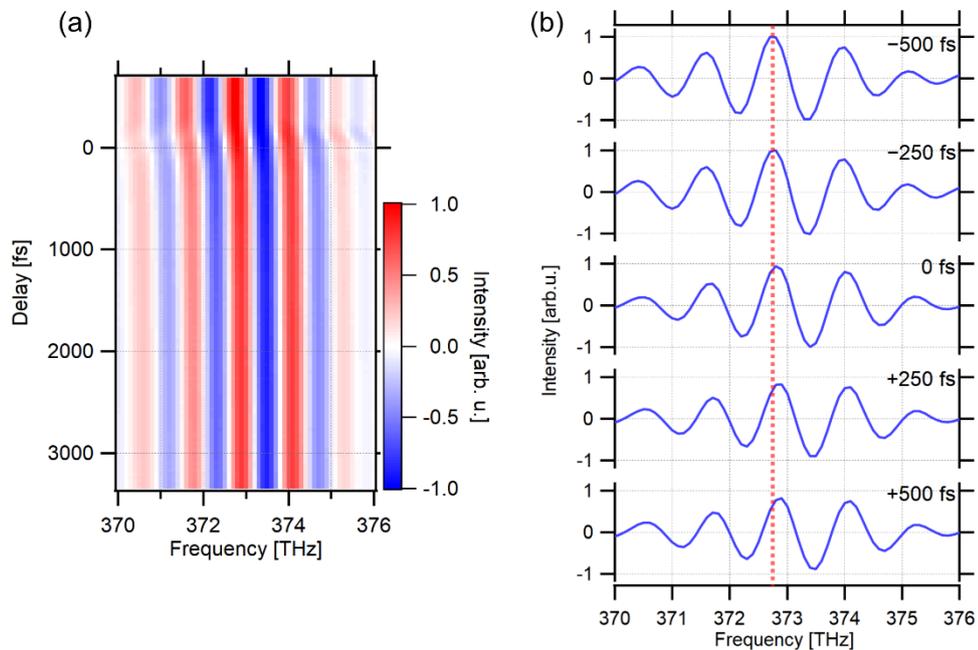


図2. フェムト秒時間分解干渉計測により取得した干渉スペクトルの一例.

(a) 励起フルエンス  $6.47 \text{ mJ/cm}^2$  における干渉スペクトル (交流成分) のポンプ-プローブ遅延時間依存性を示す。強度は、遅延時間  $-500 \text{ fs}$  における参照スペクトルの最大振幅で規格化している。

(b) 代表的な遅延時間における干渉スペクトルを抜粋して示す。遅延時間の増加に伴い、干渉縞のピーク位置がわずかにシフトしていることが分かる。このピーク位置の時間変化は、光励起後の屈折率変化に起因する光学位相変化を反映している。赤色破線は  $-500 \text{ fs}$  における干渉スペクトルのピーク周波数を示す。

### ③ 研究結果

図2に示した干渉縞のピーク位置の変化は、光励起に伴う屈折率変化、すなわち光学位相の変化を直接反映したものである。この結果は、本研究で用いたフェムト秒時間分解干渉計測法により、光誘起相転移に伴う光学位相応答を高感度に捉えられていることを示している。

本研究では、励起光強度を変化させながら系統的に時間分解測定を行い、得られた干渉縞に対してフーリエ解析を適用することで、光励起後の位相変化を抽出・解析した。その結果、VO<sub>2</sub>における光誘起光学位相応答は励起フルエンスに強く依存し、相転移の閾値を境に明確に異なる時間発展を示すことが明らかとなった。

低フルエンス条件では、光励起直後に即時的な位相変化が観測されるものの、その後の時間発展はほとんど見られず、電子系の瞬時応答が支配的であることが示唆された。一方、相転移の閾値以上のフルエンスでは、即時的な位相変化に続いて、約200 fsの有限の立ち上がり時間を伴う高速成分と、ピコ秒スケールで進行する遅い成分が共存する位相応答が観測された。閾値以上で現れるこの有限の立ち上がり時間は、光誘起相転移が単なる瞬時応答ではなく、時間を要する集団的な過程であることを示唆している。

得られた光学位相の時間応答については、二成分立ち上がりモデルを用いた解析を行い、各成分の時定数や振幅を定量的に評価した。これにより、励起強度に応じた光学位相応答の詳細な挙動を明らかにした。これらの結果は、VO<sub>2</sub>を光駆動型の超高速位相変調器として応用する際の基礎的な指針を与えるものである。

さらに、同一試料を用いて熱相転移に伴う光学位相応答と光誘起相転移の場合の応答を比較した。その結果、光励起後約3 psの時点において、光誘起相転移による位相変化は、熱相転移の場合に観測される位相変化のおよそ半分程度であることが定量的に明らかとなった。

### ④ 考察および今後の展望

本研究では、フェムト秒レーザーパルスを用いた時間分解干渉計測系を新たに構築し、VO<sub>2</sub>薄膜における光誘起相転移に伴う超高速光学位相応答を直接観測することに成功した。光学位相は屈折率変化を直接反映する物理量であり、従来の反射率や吸収変化測定では得られない情報を含んでいる。本研究で用いた干渉計測法により、VO<sub>2</sub>の光誘起相転移に伴う位相応答を高感度かつ定量的に評価できることが実証された。

以上の成果は、VO<sub>2</sub>を用いた超高速光位相変調器や光スイッチングデバイスの設計に対して、応答時間や位相変化量の観点から重要な基礎的指針を与えるものである。特に、フェムト秒からピコ秒スケールで制御可能な光学位相応答は、従来の光変調技術では達成困難であった超高速動作の実現に向けた可能性を示している。

今後は、本研究で確立した時間分解干渉計測手法を基盤として、VO<sub>2</sub>薄膜の構造や厚み、基板条件の最適化を進めるとともに、実際のデバイス構造を想定した光位相変調の実証実験へと発展させる予定である。具体的には、VO<sub>2</sub>を用いた光位相変調によって、超短パルスレーザーに同期したパルス光の切り出しや時間的制御を行うなど、超高速光スイッチングへの応用を視野に入れた研究展開を計画している。

本研究で得られた成果は論文としてまとめ、Optical Materials Express 誌に投稿した。