PRESS RELEASE

2026 年 11 月 12 日
東京大学
東北大学
名古屋工業大学

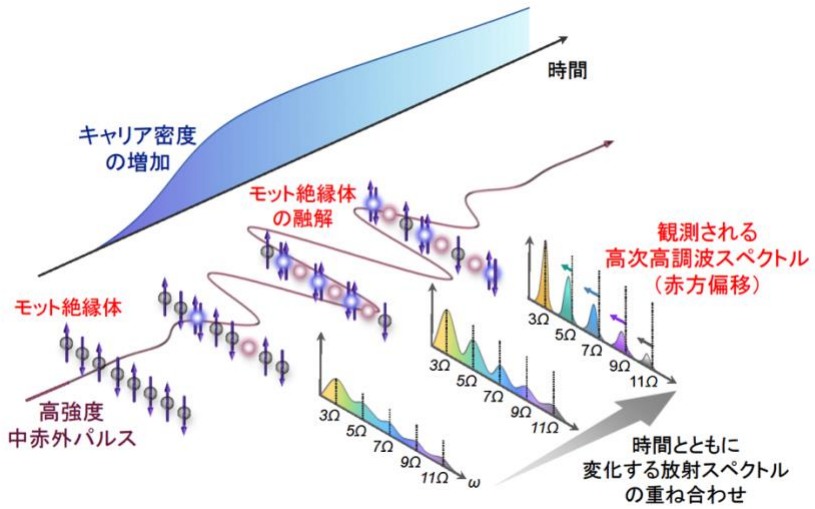
高次高調波でモット絶縁体が融ける過程を捉える
――強い光による電子状態変化を高次高調波のエネルギーのずれから解明――

発表のポイント

◆ 強い中赤外光を一次元モット絶縁体である Sr_2CuO_3 に照射すると、5 次以上の高次高調波が低エネルギー側へ移動すること（赤方偏移）を発見しました。

◆ この赤方偏移が、キャリアの生成と運動によるモット絶縁体状態の融解を反映することを示しました。

◆ 高次高調波を用いて、強い光による電子状態の変化を光電場の一周期より短い時間スケール（サブサイクル時間領域）で読み出す、新しい分光法への発展が期待されます。



強い中赤外光によるモット絶縁体状態の融解を高次高調波の赤方偏移として検出

概要

東京大学大学院新領域創成科学研究科の岡本博教授（研究当時）、池田良平助教（研究当時）、東北大学金属材料研究所の村上雄太准教授、名古屋工業大学物理工学類の宮本辰也准教授、産業技術総合研究所の伊藤利充博士らによる研究グループは、強い中赤外光（注 1）を一次元モット絶縁体（注 2）である Sr_2CuO_3 に照射し、モット絶縁体が超高速に融解する過程を高次高調波（注 3）の赤方偏移（注 4）として捉えることに成功しました。実験では 3 次から 15 次までの奇数次高調波を観測し、約 6 MV/cm（MV：メガボルト）を超える光電場で、5 次以上の高調波が入射光の奇数倍に相当する位置から低エネルギー側へ移動することを見いだしました。ポンプ・プローブ反射分光（注 5）により中赤外電場で生成されたキャリア（注 6）の密度を評価するとともに、時間依存動的平均場理論（注 7）による計算を行いました。その結果、この赤方偏移は、周期的な光電場のもとでキャリアが生成され、電子の局在が崩れて金属的な状態へ変化

する光誘起相転移（注 8）の過程で、電子構造が光電場の半周期ごとに変化することに起因すると分かりました。

本成果は、高次高調波分光（注 3）によって、強相関物質（注 9）の光誘起電子状態をサブサイクル時間領域（注 10）で調べられることを示すものです。

発表内容

物質中の電子は通常の金属では自由に動けますが、電子同士の強い反発によって動けなくなり、絶縁体となることがあります。この状態をモット絶縁体と呼びます。モット絶縁体は高温超伝導などの量子現象と深く関連するため、その電子状態を光で制御し、変化の過程を捉えることが重要な研究課題となっています。しかし、強い光による変化は光電場の一周期程度の極めて短い時間に進むため、通常のポンプ・プローブ分光だけでその途中経過を追うことは困難でした。

研究グループは、銅と酸素からなる一次元鎖を持つモット絶縁体 Sr_2CuO_3 を対象とし、光子エネルギー約 0.26 eV（電子ボルト）の強い中赤外パルスを、その電場の振動方向（偏光）が一次元鎖に平行になるように照射しました。その結果、入射光の 3 倍から 15 倍の周波数を持つ奇数次の高次高調波を反射方向で観測しました。偏光を一次元鎖と垂直にすると高次高調波はほとんど発生せず、この現象が一次元鎖方向の電子の運動に由来することも確認しました。

光電場が約 6 MV/cm を超えると、5 次以上の高次高調波が入射光の奇数倍に相当する位置から低エネルギー側へ移動しました（図 1（a））。7 次以上で赤方偏移が明瞭になり、9 次以上ではその大きさが 40 meV を超えました（図 1（b）下）。一方、3 次高調波は 12 MV/cm までほとんど移動しませんでした。さらに、ポンプ・プローブ反射分光から求めた中赤外パルスによるキャリアの生成量は、高次高調波の赤方偏移の電場依存性とよく対応しました（図 1（b）上）。

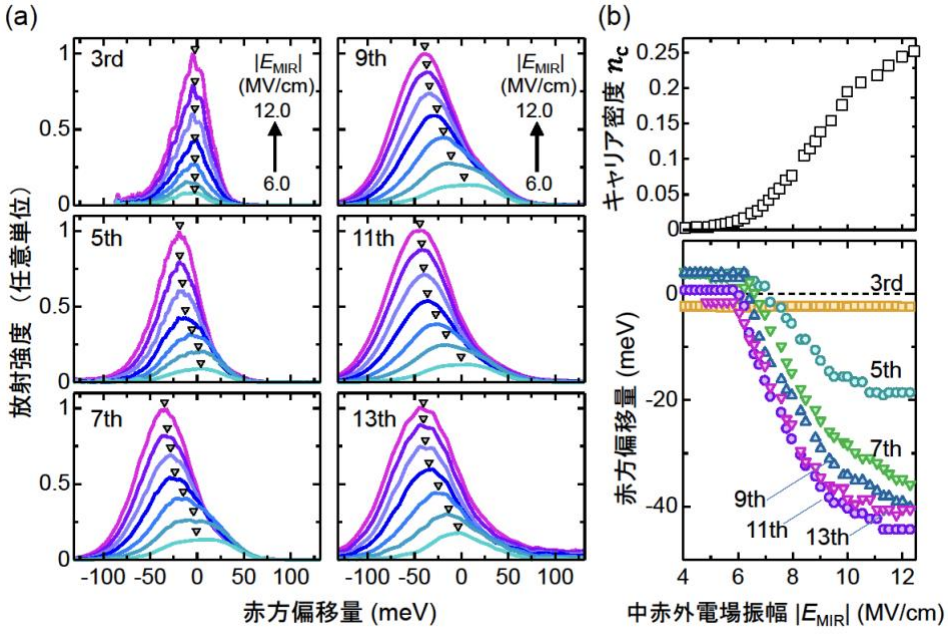


図 1：高次高調波の赤方偏移とキャリア密度の相関

図（a）の各パネルは、異なる電場振幅（$|E_{MIR}|$）をもつ中赤外パルスで観測した各次数の高次高調波スペクトルである。縦軸の各スペクトルの強度は、ピーク位置が見易いように適当に規格化してある。横軸は、それぞれの高調波について入射光の光子エネルギー（$\hbar\Omega$）の奇数倍（$n\hbar\Omega$）からの差であり、逆三角形はピーク位置を表す。電場を強くすると、3 次高調波のピーク位置はほとんど変化しない一方、5 次以上の高調波は低エネ

ルギー側へ移動（赤方偏移）する。図（b）上パネルは、ポンプ・プローブ反射分光から求めたキャリア密度（n_c）、下パネルは、各高調波ピークの $n\hbar\Omega$ からのシフトの$|E_{MIR}|$依存性である。約 6 MV/cm を超えると、n_c の増加と高次高調波の赤方偏移がともに顕著になり、両者が密接に関係していることが分かる。

この起源を調べるため、研究グループは時間依存動的平均場理論を用いて、強い周期電場のもとにあるモット絶縁体の電子状態と高次高調波を計算しました。計算は、3 次高調波がほとんど移動しないこと、7 次以上では一定の電場強度を境に赤方偏移が現れること、5 次高調波がその中間的な振る舞いを示すことを再現しました。

高次高調波は、半導体の電子と正孔に相当するダブロンとホロン（注 11）が光電場によって生成され、運動した後に再結合する際に放射されると理解できます。この放射は、中赤外光の半周期ごとに繰り返されます。本研究では、キャリアの生成によってモット絶縁体状態が次第に不安定化し、その特徴としてダブロン・ホロン対のエネルギーに対応するモットギャップ（注 12）が低下するため、各半周期に放出される光の位相が変化することが分かりました（図 2（a））。この半周期ごとの位相変化が、最終的な高次高調波スペクトルの赤方偏移を生みます（図 2（b））。結晶内部を光が伝わることによる位相変化は十分小さく、観測された赤方偏移の主因ではないことも確認しました。

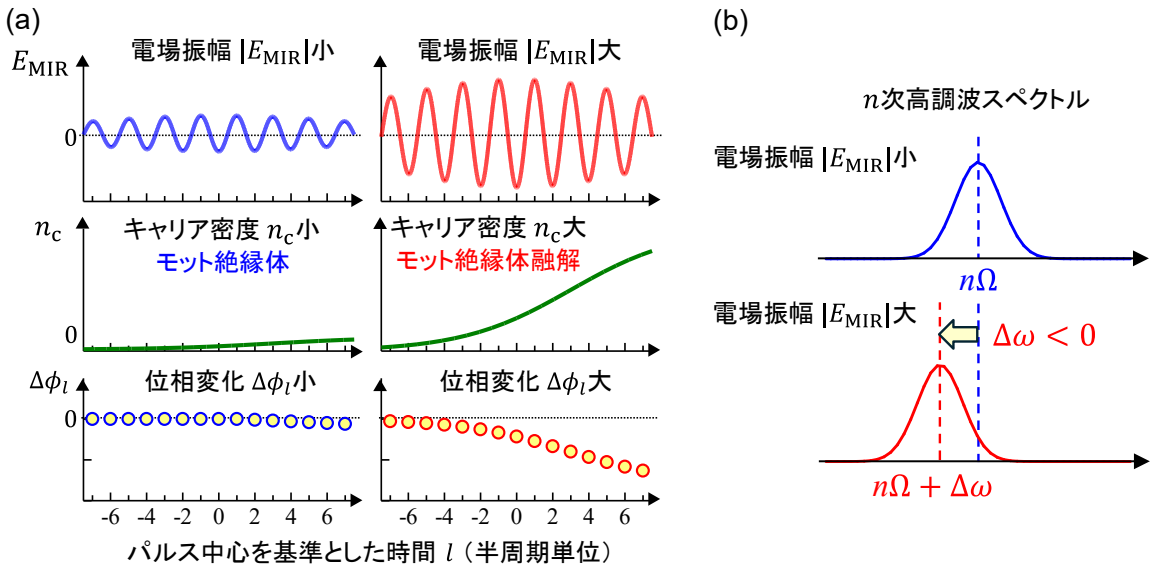


図 2　モット絶縁体の融解によって高次高調波が赤方偏移する機構の概念図

図（a）左は、中赤外電場が弱い場合を示す。生成されるキャリアの密度n_cは小さく、ある半周期 l と次の半周期 $l+1$ に放射される光の位相（それぞれ ϕ_l および ϕ_{l+1}）の差 $\Delta\phi_l = \phi_{l+1} - \phi_l$ はほぼゼロであるため、放射が干渉して入射光の周波数 Ω の奇数倍 $n\Omega$ に高調波ピークが現れる。この位相 ϕ_lは、ダブロン・ホロン対のエネルギーによって決まる位相であり、半周期ごとに反転する放射電場の符号に由来する位相とは別のものである。図（a）右は、電場が強い場合を示す。時間とともにキャリアが蓄積してモット絶縁体の融解が進み、モットギャップが低下するため、後の半周期に放射される光ほど位相がずれる。その結果、図（b）に示すように、干渉によって生じる高調波ピークは $n\Omega$ から $n\Omega+\Delta\omega$（$\Delta\omega<0$）へ移動し、赤方偏移として観測される。

より詳細な解析の結果は、高次高調波の赤方偏移が、単純なモットギャップの低下だけを表すのではなく、キャリアの生成と運動によるモット絶縁体状態全体の融解を反映することを示しています。本研究は、高次高調波分光が、これまで直接捉えることが難しかった強相関物質

のサブサイクルの電子状態変化を調べる新たな手法となることを実証したものです。今後、同様な一次元モット絶縁体である有機分子化合物や二次元モット絶縁体である銅酸化物など、他の強相関物質へ展開することにより、光誘起相転移の機構解明と、強い光による量子物質制御への応用が期待されます。

発表者・研究者等情報

東京大学 大学院新領域創成科学研究科 物質系専攻
岡本　博　研究当時：教授
現：日本大学理工学部 物理学科 特任教授/東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 上席研究員/東京大学大学院新領域創成科学研究科 物質系専攻 客員連携研究員/東京大学 名誉教授
池田　良平　研究当時：助教
現：東京大学 物性研究所 助教

東北大学金属材料研究所
村上　雄太　准教授

名古屋工業大学 物理工学類
宮本　辰也　准教授

論文情報

雑誌名：Nature Photonics
題名：High-harmonic generation during ultrafast melting of a Mott insulating state
著者名：Ryohei Ikeda, Yuta Murakami*, Daiki Sakai, Tatsuya Miyamoto, Toshimitsu Ito, and Hiroshi Okamoto*
DOI： 10.1038/s41566-026-02031-w
URL： https://www.nature.com/articles/s41566-026-02031-w

注意事項（解禁情報）

日本時間 11 月 13 日 19 時（英国時間：13 日午前 10 時）以前の公表は禁じられています。

研究助成

本研究は、日本学術振興会科学研究費助成事業(課題番号:JP21H04988、JP21H05017、JP24H00191、JP25K07235、JP25K17961、JP26K00648、JP26H01281、JP26K00646）、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業チーム型研究（CREST）（課題番号：JPMJCR1661）の支援により実施されました。

用語解説

（注 1）中赤外光：赤外光のうち、可視光よりも光子エネルギーが低く、分子振動や固体中の低エネルギー励起と同程度のエネルギーを持つ光。本研究では、光子エネルギー約 0.26 eV（波長約 4.7 μm）の中赤外光を用いた。

（注 2）モット絶縁体：電子同士の強い電気的な反発（クーロン反発）のために電子が動けなくなり、通常のバンド理論では金属になると予想されるにもかかわらず絶縁体となる物質。本研究でいう『モット絶縁体の融解』は、結晶そのものが融けることではなく、電子が動きにくいモット絶縁体状態が崩れ、電子が動ける状態へ変化することを指す。

（注 3）高次高調波・高次高調波分光：物質に強い光を入射したときに発生する、その入射光の整数倍の周波数を持つ光。本研究では、反転対称性を持つ物質で現れる奇数次の高調波を観測した。また、高次高調波の性質を解析し、物質中の電子状態やその変化を調べる手法を、高次高調波分光という。

（注 4）赤方偏移：光のスペクトルが低エネルギー（低周波数・長波長）側へ移動すること。

（注 5）ポンプ・プローブ反射分光：ポンプ光で物質の状態を変化させ、時間をずらして照射する弱いプローブ光の反射率変化から、光励起後の電子状態を調べる方法。

（注 6）キャリア：物質中を移動して電荷を運ぶ電子や正孔などの総称。本研究のモット絶縁体では、光によって生成されるダブロンとホロン（注 11）がキャリアに相当する。

（注 7）時間依存動的平均場理論：電子同士が強く相互作用する物質の記述に長けた動的平均場理論を、時間と共に変化する状態に拡張した理論手法。局所的な電子相関を詳しく扱い、光で駆動された電子状態の時間発展を計算する。

（注 8）光誘起相転移：光の照射によって物質の電子状態や物性が大きく変化し、別の相へ移行する現象。本研究では、モット絶縁体状態から金属的な状態への変化を指す。

（注 9）強相関物質：電子同士の相互作用が強く、個々の電子を独立に扱う近似では性質を十分に説明できない物質。モット絶縁体はその代表例である。

（注 10）サブサイクル時間領域：光電場が一回（一周期）振動する時間よりも短い時間領域。本研究で用いた中赤外光では、一周期は約 16 フェムト秒である。

（注 11）ダブロンとホロン：モット絶縁体において、一つのサイトに電子が二つ存在する状態をダブロン、電子が存在しない状態をホロンと呼ぶ。両者は光励起によって対として生成され、それぞれ半導体における電子と正孔に対応する。

（注 12）モットギャップ：電子同士の強いクーロン反発によって生じる、電子を別のサイトに動かすために必要なエネルギー。モット絶縁体が絶縁性を示す原因となる。

問合せ先

〈研究内容について〉
東京大学名誉教授
岡本　博（おかもと　ひろし）
　現：日本大学 理工学部 物理学科 特任教授
　　東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 上席研究員
Tel：03-3259-0914　E-mail：okamotoh@edu.k.u-tokyo.ac.jp

〈機関窓口〉
東京大学 大学院新領域創成科学研究科 広報室
Tel：04-7136-5450　E-mail：press@edu.k.u-tokyo.ac.jp

東北大学 金属材料研究所 情報企画室 広報班
Tel：022-215-2144　E-mail：press.imr@grp.tohoku.ac.jp

名古屋工業大学 企画広報課
Tel：052-735-5647　E-mail：pr@adm.nitech.ac.jp