

時空間制御光を用いた低次元物質のコヒーレントダイナミクス

戸田泰則

北海道大学 大学院工学研究科

1. 研究のねらい

通常、固体中の電子(キャリア)コヒーレンスは熱浴となる格子との相互作用により擾乱を受ける。したがってキャリアのコヒーレント状態を用いる応用を考えるならば、格子との相互作用の小さい量子状態や物質を選ぶのが一般的である。本研究課題では全く逆のアプローチを試みた。すなわち電子-格子相互作用を積極的に利用した新しい量子状態制御の開拓を目的とした。強い電子-格子相互作用を有する物質系として、本講演では低次元導体を取り上げる。低次元導体では、電子系がフェルミ面でギャップを開いて安定化すると共に格子変形を伴った電荷密度波(CDW)を形成することが知られている。時空間制御光により、量子状態制御に向けたCDWのコヒーレントダイナミクスを明らかにした。

2. 研究成果と考察

低次元物質におけるキャリア及びCDW集団ダイナミクスは、フェムト秒パルスレーザーによるポンプ-プローブ過渡反射率応答で測定される。試料寸法を考慮して顕微分光系により励起光を照射し、CCDカメラで試料表面を同時観察しながら励起場所を特定する。また必要に応じて液晶空間変調器を用いたパルス波形整形を施した。

図1(a)は擬1次元導体NbSe₃の過渡反射率応答であり、指数関数的な応答にコヒーレント振動が重畳している様子がわかる。前者はギャップをまたいで励起されたキャリアの緩和過程、後者は集団励起に対応する。図1(b)は2次の指数関数近似から見積られたバンド間緩和時間の温度依存性である。相転移温度に近づくにつれ、緩和時間は大きな温度依存性を示す。相転移温度付近の緩和時間の発散はギャップの温度依存性から説明できる。すなわち相転移温度付近ではギャップが小さくなり、フォノンを介した再励起が支配的となることを示唆している。

他方、過渡応答におけるビート信号から確認できるように、集団励起はいくつかの振動モードを含んでいる。複数の振動モードは高速フーリエ変換によるパワースペクトル(PS)から区別できる。図2(a)はPSから見積られた振動周波数の温度依存性であり、振動モードのひとつは著しいソフトニングを示すことがわかる。先述の通りCDWの電子秩序は相転移温度付近で大きな温度依存性を有する。したがって観測されたソフトモードはCDWの振幅(AM)モードと同定される。NbSe₃におけるAMモードの重要な特徴のひとつは、相転移温度に達する以前に消失する点である。この温度はキャリアのバンド間緩和時間の逆数がAMモード周波数を超える点に対応しており、CDWコヒーレント振動がキャリア緩和による瞬時的なイオンポテンシャル変位により励起されていることを示唆している。別の振動モード(P1)に着目すると、周波数の温度依存性は小さく、さらに相転移やキャリア緩和時間に依存すること無く観測される。この結果はP1がフォノンモードに対応することを示唆している。しかしながら振幅および緩和時間の温度依存性はAMと強い相関を有しており、例えば緩和時間に着目すると、その大きさはAMと共存するときと比較して著しく低下する。また時間分解PSからP1モードがAMモードと反相関的なソフトニングを示すことを見出した。キャリア励起によるソフトニングはバルク物質においても観測されているが、低次元物質では著しく弱い励起エネルギーで観測される。以上の結果は電子-格子相互作用を通じた量子制御の可能性を強く示唆している。

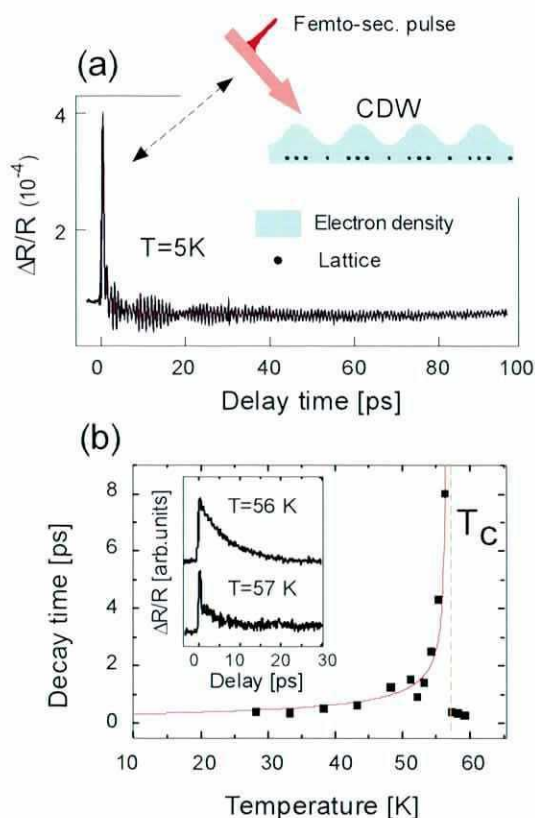


図1(a) NbSe₃の過渡反射率応答. 瞬時励起の後、振動応答が観測される。(b) キャリア緩和時間の温度依存性. T_cは相転移温度に対応する. 実線は平均場近似による理論曲線

NbSe₃を用いるとトポロジカル構造が作製可能である。その結果、トポロジー変化がもたらす新しい物性の探索が可能となる。針状結晶は図1(b)に示すように相転移温度で発散する振る舞いが観測されるのに対し、リング結晶では発散の度合いが著しく小さいことが見出された。閉じた1次元の鎖状構造では鎖間の相互作用による位相ゆらぎが針状構造に比べて大きいことが予測され、巨視的な秩序構造の形成を阻害していると考えられることができる。

また擬2次元導体TaS₂との比較も行った。この物質の大きな特徴は格子周期と整合したCDW(C-CDW)を形成する点にある。C-CDWへの相転移は物理量の不連続変化とヒステリシスを伴う1次相転移で表されることが知られており、過渡反射率測定 of the temperature characteristics are reflected. また1次元系と異なり、相転移温度以下のキャリア緩和時間の温度依存性は小さい。このキャリア緩和の特徴はAMモードの振幅の温度依存性が相転移温度以下でほぼ一定であることから確認される。TaS₂では

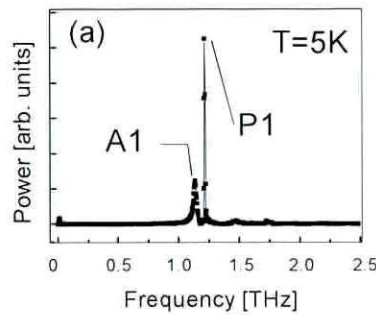
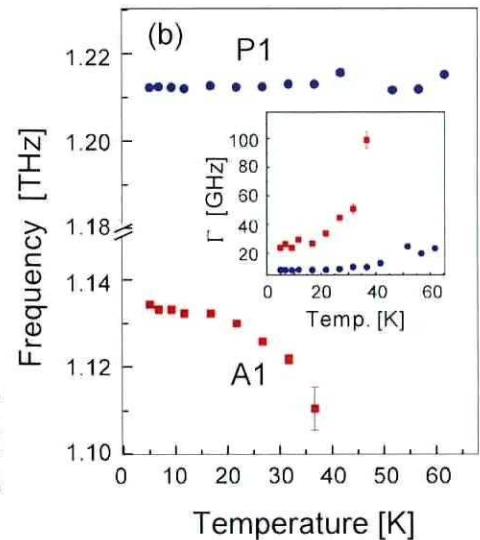


図2 (a) コヒーレント振動のFFTパワースペクトル. (b) ピーク周波数の温度依存性. 半値幅の温度依存性を内挿図に示す.



ギャップを一部閉じたままCDWを形成することが光電子分光で観測されており、小さな温度依存性は擬ギャップを経由したキャリア緩和が支配的であることを示唆している。TaS₂における集団励起の特徴は、多数の微細な振動モードが重畳している点にある。これらのモードは相転移温度を超えると消失するため、2次元超格子に起因する折り返しフォノンモードと同定される。多パルスを用いた選択励起から時間的に異なる位相をもって振動するモードの存在が確認され、対称性の異なる超格子振動が励起されていることがわかった。

以上、本研究ではCDW相のキャリア緩和からCDWギャップの温度依存性を明らかにし、次元性やトポロジー変化にもとづく温度依存性の違いを見出した。またコヒーレント集団励起のメカニズムを明らかにし、フォノンとの相関が振動増強や周波数変化をもたらすことを見出した。これらの知見は時空間制御光によるCDW集団励起の制御につながる。

3. 謝辞

日頃よりご指導賜わる神谷領域代表および領域アドバイザーの先生方に感謝する。さきがけ課題に関して多大なるご協力とご助言をいただいた荒川泰彦教授と中岡俊祐博士(共に東京大学生産技術研究所)、大津元一教授(東京大学)、また本講演内容の共同研究者である北大の丹田聡助教授および修士学生の島竹克大氏に感謝する。また個々の名前は割愛させていただくが、大場良次教授をはじめとする研究室の皆様へ感謝したい。

4. 主な論文

- 1) "Anomalous coherent phonon oscillations in the commensurate phase of the quasi-two-dimensional 1T-TaS₂ compound", Y. Toda, K. Tateishi, and S. Tanda, *Physical Review B* 70, (2004) 033106.
- 2) "Coherent optical control of molecular motion using polarized sequential pulses", K. Itoh, Y. Toda, R. Morita, and M. Yamashita, *Japanese Journal of Applied Physics*, 43, (2004) 6448.
- 3) "Selective excitation of self-assembled quantum dots by using shaped pulse", Y. Toda, R. Morita, T. Nakaoka, M. Yamashita, T. Inoue, and Y. Arakawa, *Physica E* 21, (2004) 180-183.
- 4) "Two-photon absorption and multiphoton-induced photoluminescence of bulk GaN excited below the middle of the bandgap", Y. Toda, T. Matsubara, R. Morita, M. Yamashita, K. Hoshino, T. Someya and Y. Arakawa, *Applied Physics Letters*, 42, (2003) 2458-2461.

5. その他

特許 「光入力方法、光出力方法及び光入出力装置」 特開 2004-258303、戸田泰則
出願中 1件

著書

- 1) "Optical Characterization of In(Ga)As/GaAs Self-assembled Quantum Dots Using Near-Field Spectroscopy", Y. Toda and Y. Arakawa, *Progress in Nano-Electro-Optics I*, M. Ohtsu Eds., Springer (2002) 83.
- 2) "ナノオプティクス: ナノスケールの光物性", 齋木敏治、戸田泰則, ISBN4-274-19738-7 オーム社 (2004)