

新しいテラヘルツ分光法を用いたモット絶縁体における 光誘起現象の超高速ダイナミクスの研究

宮本 辰也*

Investigation of Ultrafast Dynamics of Photoinduced Phenomena in Mott Insulators Using a Novel Terahertz Spectroscopy

Tatsuya MIYAMOTO*

We investigated the ultrafast dynamics of photoinduced carriers and excitons in a one-dimensional Mott insulator ET-F TCNQ using near-infrared pump and broadband terahertz probe spectroscopy. By employing a newly developed measurement scheme, we successfully resolved terahertz optical conductivity spectra with sub-picosecond relaxation times. Upon 1.55 eV photoexcitation, both free carriers and excitons were found to be simultaneously generated. Furthermore, the excitonic absorption peak was observed to redshift over time, which is attributed to the gradual screening of the inter-site Coulomb interaction by the photo-carriers.

1. 背景

物質に光を照射することで電子構造や物性が劇的に変化する現象は光誘起相転移と呼ばれ、物性科学における新たなパラダイムとして広く研究されてきた。この現象では高速かつ高効率な相転移が生じる場合があり、これを応用した高速光スイッチの実現が期待されている。光誘起相転移の実用化に向けては、相転移をいかに効率的かつ迅速に引き起こすかが本質的な課題となる。この観点から注目を集めてきた材料が強相関電子系物質である。例えば、各サイトに一つの電子が配置されたハーフフィリング系においては、電子間クーロン反発が隣接サイト間のホッピング積分を上回る場合に、電子が各サイトに局在してモット絶縁体が形成される。モット絶縁体は、元素置換による化学的キャリアドーピングによって電子秩序が乱れ、金属化することが知られている。照射によるキャリアドーピングによっても同様に絶縁体相から金属相への転移が誘起され、これがモット絶縁体における光誘起絶縁体-金属転移である。この現象は、一次元モット絶縁体である臭素架橋 Ni 錯体および分子性結晶 ET-F₂TCNQ などにおいて観測されている [1, 2]。特に ET-F₂TCNQ では、光励起後 0.2 ps 以内に励起状態から基底状態へと緩和することが報告されている。

従来の研究では、光励起後の光学スペクトル変化を中赤外から可視領域 (0.1-3 eV) にわたって測定する手法が主に用いられてきた。しかし、光キャリアおよび金属化ダイナミクスを詳細に解明するためには、テラヘルツ領域 (0.1 eV 以下) における光学スペクトル変化の検出が不可欠である。光励起によって金属化が生じている場合、テラヘルツ領域には自由キャリアに特有のドルーデ応答が現れることが期待される。また、分子振動や格子振動によってキャリア伝導が阻害される場合には、スペクトル形状に歪みが生じることが知られており (ドルーデ-アンダーソンモデル[3])、励起子やポーラロン (格子歪みを伴う束縛状態) に由来する吸収がテラヘルツ領域で観測される可能性もある。これらの特徴的な応答は、光励起後に形成される電子および正孔の状態を直接的に反映しており、テラヘルツ領域における光学スペクトル変化の詳細な解析が重要であることを示している。しかし、モット絶縁体の光励起状態の緩和時間は一般的なテラヘルツパルスの周期 (約 1 ps) よりも短く、従来の測定手法ではテラヘルツ領域での時間分解測定が技術的に困難であった。

2. 狙い・目的

本研究は、上記の問題を解決するために新たな測定手法を導入し、テラヘルツ領域における光学スペクトル変化の測定を通じて、モット絶縁体における光誘起相転移現象および光キャリアの超高速ダイナミクスの解明を目的とする。テラヘルツ領域の光学スペクトル変化を測定する一般的な手法では、ポンプ光とテラヘルツパルスの遅延時間を固定したうえで、テラヘルツ電場波形を取得するためのサンプリングパルスの遅延時間を走査する (図 1(a))。しかし、光励起状態の緩和時間が短い場合、テラヘルツ電場波形の取得中に光キャリア密度が変化するため、正確なスペクトル測定が困難となる。

2026年3月1日 受理

* 豊田理研スカラー

名古屋工業大学大学院工学研究科工学専攻

この課題を克服する手法として、ポンプ光とサンプリングパルスの遅延時間を固定し、テラヘルツパルスの遅延時間を走査する方法がある (図 1(b))。この手法により、各測定時点における光キャリア密度を一定に保つことが可能であることが、理論的に示されている [4]。一方、通常の半導体においては光キャリアの緩和時間が十分に長いため、本手法を適用する必然性は低い。本研究ではこの手法をモット絶縁体に適用することで、超高速の光誘起現象の機構解明を目指す。

3. 研究内容

本研究では、有機一次元モット絶縁体 ET-F₂TCNQ に対して、近赤外ポンプ-広帯域透過型テラヘルツプローブ分光測定を行った。プローブ光として用いたテラヘルツ波は、空気プラズマ発生法によって生成した。ポンプ光の光子エネルギーは 1.55 eV とし、ポンプ光およびプローブ光の偏光はともに一次元鎖方向に設定した。励起光子密度は、ET 分子あたり 0.093 光子の条件とした。

図 2 は、従来の手法 (図 1(a)) によって測定した、ポンプ光照射後 0.08 ps における複素光学伝導度スペクトルである。従来の手法では、光キャリアに起因すると考えられるブロードな構造のみが観測された。一方、新しい手法 (図 1(b)) による測定結果を図 3 に示す。従来の手法で得られた構造に加え、14 THz 近傍に明確なピーク構造が観測された。ET-F₂TCNQ は一次元モット絶縁体として、エネルギーの低い二つの励起状態間の遷移双極子モーメントが大きく、かつ両準位のエネルギー差が小さいことが知られている [5]。したがって、観測された誘導吸収は、これらの励起準位間の遷移に起因するものと推測される。

次に、時間原点近傍における光学伝導度スペクトルの時間変化について詳細に議論する。各スペクトルに対して、光キャリアによるドルーデ応答と励起子によるローレンツ応答の和を用いたフィッティング解析を行った結果を実線で示すが、実験データをよく再現していることが確認できる。時間の経過とともに、ピーク周波数が低エネルギー側へシフトしている。これは、光キャリアによるスクリーニング効果によってサイト間クーロン相互作用が弱まり、励起子の束縛エネルギーが減少することに起因すると考えられる。スクリーニング効果が発現するまではプラズマ周波数の逆数程度の時間を要することが知られている。本実験条件においては、これが約 36 fs に相当する。観測された低エネルギーシフトが同程度の時間スケールで生じていることは、本研究の解釈と矛盾しない。

4. まとめ

近赤外ポンプ-広帯域透過型テラヘルツプローブ分光測定により、一次元モット絶縁体 ET-F₂TCNQ における光キャリアおよび励起子のダイナミクスを調べた。新しい測定手法を導入したことで、1.55 eV の光照射によって光キャリアと励起子が同時に生成されることを明らかにした。また、光キャリアによるスクリーニング効果が時間とともに発現することで、励起子の誘導吸収ピークが低エネルギー側へシフトすることを示した。本研究で用いた手法は、緩和時間の短い光励起状態を持つ他の強相関電子系物質に対して広く適用可能である。

REFERENCES

- 1) S. Iwai, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003) 057401.
- 2) H. Okamoto, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **98** (2007) 037401.
- 3) H. Yada, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **115** (2019) 143301.
- 4) H.-K. Nienhuys and V. Sundström, *Phys. Rev. B*, **71** (2005) 235110.
- 5) T. Miyamoto, *et al.*, *Commun. Phys.*, **2** (2019) 131.

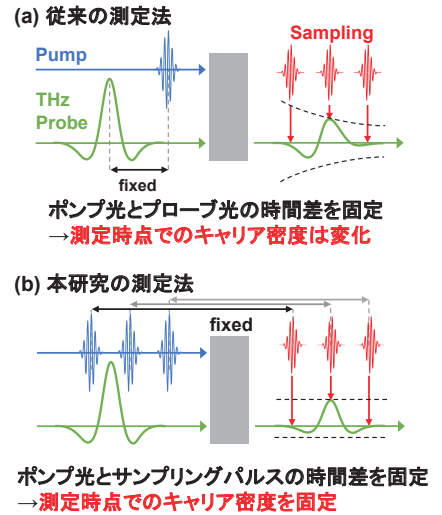


図 1 測定手法.

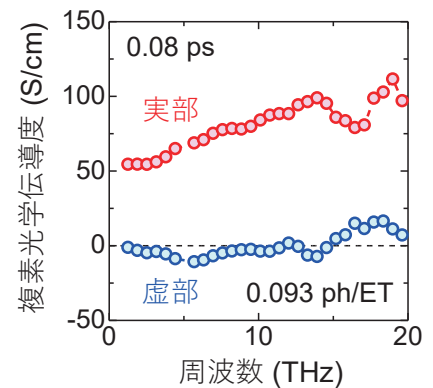


図 2 従来手法による複素光学伝導度.

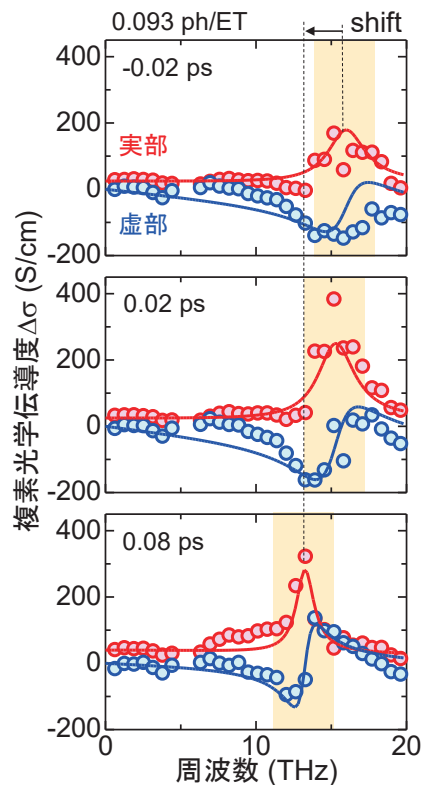


図 3 新手法による複素光学伝導度.