

## 1.1 島野研究室

本研究室では、レーザー分光の手法を用いて、凝縮系を中心とする光と物質の相互作用の解明、光励起によって発現する多体の量子現象の探求に取り組んでいる。特に、基底状態、光励起状態における電子相関、多体効果によって発現する秩序をプローブするために、可視光領域の光学応答に加えて、低エネルギー ( $\sim \text{meV}$ )、テラヘルツ (THz) 周波数帯での電磁応答に着目し、その分光手法の開拓を進めている。

研究対象としては、高密度光励起半導体電子正孔系、カーボンナノチューブ、擬一次元有機導体を取り上げている。2005年度からは大学院修士課程学生を迎え、本格的に研究を開始することができた。

### 1.1.1 新分光法の開発

#### 低温強磁場環境下での THz 分光計測

低温、強磁場環境下での THz 分光装置の開発を進めた。強磁場低温下での測定を行う上では、磁石やクライオスタット光導入部の開口径の制限や窓材の吸収により入射光量が減衰し、計測のダイナミックレンジが減少することが難点であった。この点を補うために、THz 波発生の高出力化、検出の高感度化を行った。高強度の THz 波を発生させる方法として、半導体 p 型 InAs 表面からの THz 発生を試み、電気光学 (e-o) サンプルング法を用いて THz 波電場振幅の定量的な評価を行った。高繰り返しモード同期フェムト秒レーザー 76MHz、500mW の励起条件下で、瞬間電場強度で 10kV/m の THz パルスを発生させることが可能となった。さらに、InAs の結晶方位依存性、励起強度依存性の系統的な測定を行い、p 型 InAs の表面電場に起因する光励起瞬時電流と表面電場誘起の二次的非線形光学過程の両者により THz 波が発生していることを明らかにした。検出系についても改善を進め、THz 波の代表的な検出法の一つである e-o サンプルング法の高感度化を進めた。光のショットノイズ限界で動作する差動光検出器を作成することで、光電流変化率  $\Delta I/I = 2 \times 10^{-8}$  の検出が可能になった。この THz 発生、検出器の最適化により、電場振幅で 5 桁弱のダイナミックレンジを得ることができた (図 1)。同手法を用いて、最低到達温度 1.3K、最大磁場 7T の環境下での THz 透過計測が可能となった。

#### THz エリプソメトリーによるホール測定

磁気光学カー効果、ファラデー効果などの磁気光学効果は、電子の軌道運動や磁化を光学的に検出する手段として利用されている。例えば磁気光学スペクトルの測定によりホール伝導度の周波数依存性を評価することで、キャリアの微視的な散乱機構についてより深い知見が得られるものと期待される。しかし、光領域でのホール伝導度測定では、バンド間

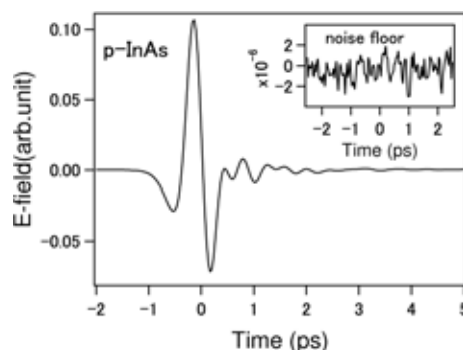


図 1.1.1: p 型 InAs から発生した THz 波の時間波形。挿入図は検出系のノイズレベルを示す。

遷移などの寄与が加わる為、直流測定の結果とはつながらないことも多い。そこで輸送現象測定の高周波極限として THz 周波数帯におけるホール測定に注目し、THz 周波数帯における偏光分光法、磁気光学分光法の開発を進めている。現時点では、電場振幅計測としての THz 時間領域分光法の特徴を利用し、室温下で 0.1mrad の偏光回転検出感度を得るに至った。本手法を前述した低温強磁場環境下での測定システムに組み込み、半導体のホール効果測定、超伝導体の磁束量子のダイナミクスを観測に用いる予定である。

#### 局所領域における THz 分光と FDTD シミュレーションによる電磁波解析

THz 光の波長はサブ mm のオーダーと可視光に比較して非常に長い為、レンズや放物面鏡で回折限界まで絞ってもそのスポット径が測定対象物質に比べ無視できない程大きいことが多い。例えば、次節で述べるゼオライト空孔中カーボンナノチューブの試料は、幅が約 100 $\mu\text{m}$  程度であり、1THz (300 $\mu\text{m}$ ) の場合の回折限界 150 $\mu\text{m}$  以下の大きさとなっている。このため、テラヘルツ光を試料上だけに集光することができず、試料周辺から回り込んだテラヘルツ光が検出器に入ることにより、定量的な透過測定を行うことが非常に困難となる。

この問題を回避するため、微小開口 (ピンホール) 型の THz 顕微分光計測を検討した。具体的には、試料と同程度あるいはそれ以下の直径のピンホールを試料直前に配置し、余分な背景光を除去し試料を透過した光のみを検出するようにした。ピンホール透過後に試料を配置した場合としない場合とを比較することにより試料の透過率スペクトルを波長以下のサイズ領域で計測することができる。一方、このような波長以下のサイズ領域では、通常の幾何光学的取り扱いによる透過率解析を行うことができない。そこで我々は時間領域差分法 (FDTD 法) を用いてマックスウェル方程式を数値的に解き、微小開口配置におけるテラヘルツ電磁波透過率のシミュレーション

を行った。シミュレーションコードは自作した。回折限界以下のサイズ領域では、ピンホール背後に誘電体が存在することによって幾何光学で予想される値より透過率が著しく増大することを見出し、半導体 (Si) を用いた実験によりそれを実証した。さらに、誘電率が既知の試料 (Si) について、幾何光学近似による透過解析の妥当性、適用限界を調べた。

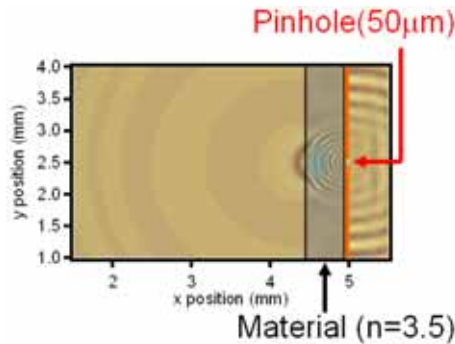


図 1.1.2: ピンホールに誘電体を貼り合わせた時の、透過テラヘルツ電場の空間分布 (数値計算シミュレーション)。テラヘルツ波は図の右側から左側へと伝播し、ピンホール透過直後の電場分布を等高線表示している。

## 1.1.2 擬 1 次元電子系の THz 分光

### カーボンナノチューブ

カーボンナノチューブは、構造 (直径と螺旋構造) によって、金属、半導体どちらにもなり、1 次元系の物性を探求する格好の舞台となっている。金属ナノチューブでは電子の後方散乱の消失が予想され、バリステックな伝導による高移動度の電子デバイスへの応用が期待されている。半導体ナノチューブでは、大きな光非線形性と速いキャリア緩和が見出され、超高速の光-光制御素子材料の有力候補と考えられている。さて、1 次元電子系の特徴の一つは、電子間相互作用の顕在化である。実際、コンダクタンスの温度依存性や光電子分光の結果には 1 次元系特有のべき乗則が見出され、朝永ラッティンジャー液体の発現が示唆されている。1 次元系では、電子相関は高周波の伝導、光学応答両者に本質的な影響を及ぼすものと予想されるが、その影響は dc あるいは低周波領域の伝導測定の結果からは必ずしも外挿されない。そこで我々は、カーボンナノチューブにおける電子相関の役割を浮彫りにさせる新しい切り口として、テラヘルツ (THz) 分光法による光学伝導度計測に注目し、カーボンナノチューブの基底状態、光励起状態のダイナミクスの研究を開始した。

本年度は、電極フリーの非接触伝導計測としてのテラヘルツ分光の利点を活かし、まずナノチューブ

の線形伝導度スペクトルの計測を進めた。チューブ間相互作用のない環境下で、単層ナノチューブ本来の応答を調べるために、1) ゼオライト空孔中に成長された完全配向ナノチューブ、2) ポリマー中に孤立分散したナノチューブ、を対象としている。1) は試料の典型的なサイズが、幅 100 $\mu\text{m}$ 、長さ 300 $\mu\text{m}$  (典型値) であり、プローブとする THz 波の波長より小さいことから、前述の微小開口型 THz 顕微分光を適用した。偏光依存性の測定から、完全配向したナノチューブに起因する信号を示唆する結果が得られた。2) については、THz 帯での実効複素誘電関数の決定が可能となった。目下、有効媒質理論 (Maxwell-Garnett Theory) に基づき、実験により得られた実効誘電関数から媒質中に分散しているナノチューブの誘電応答を評価することを試みている。今後は、周波数帯域を拡充し、得られた誘電応答の起源について明らかにしていく予定である。

### 擬 1 次元有機導体

擬 1 次元有機導体 (TMTSF)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub> は、12K で金属絶縁体転移を起こしスピン密度波 (SDW) 相が出現する。この低温相における光誘起絶縁体金属転移、SDW 相における光励起ダイナミクスを調べることを目的として、その THz 分光を開始した。試料は THz 周波数帯で不透明であることから、反射配置の測定系が必要となる。そこで我々は新しい光学系を構築し、0.5 THz-2.5 THz (光子エネルギー 2 meV-10 meV) の範囲での THz 反射分光測定を可能とした。さらに、冷凍器を用いることで室温から 15K までの測定が可能となった。冒頭に述べた p 型 InAs による強いテラヘルツ電場の発生とショットノイズレベル差動検出器との組み合わせにより、反射測定系では現在電場振幅で約  $1 \times 10^3$  の S/N 比を実現している。今後はより低温下での測定を目指すとともに、まず基底状態における複素誘電関数 (光学伝導度) を計測することを計画している。

< 報文 >

(原著論文)

- [1] R. Shimano, H. Nishimura, and T. Sato, Frequency Tunable Circular Polarization Control of Terahertz Radiation, Japanese Journal of Applied Physics, Part2-Letters 44, L676-L678 (2005).

< 学術講演 >

(国際会議)

一般講演

- [2] H. Nishimura, Y. Ikebe, S. Watanabe, and R. Shimano: THz spectroscopy of Subwavelength space region, the 3rd COE workshop "Frontiers of Laser and Optical Sciences" (the University of Tokyo, October 1-2, 2005)

招待講演

- [3] Ryo Shimano: Terahertz Hall measurements by magneto optical spectroscopy, The 3rd COE workshop "Frontiers of Laser and Optical Sciences" (the University of Tokyo, October 1-2,2005 )

(国内会議)

一般講演

- [4] 西村久明、島野 亮:周波数可変円偏光テラヘルツ発生法の開発, 日本物理学会 2005 年秋季大会, (同志社大学、2005 年 9 月)
- [5] 島野 亮: 高感度 THz 磁気光学測定と半導体評価への応用, 応用物理学会 THz 電磁波技術研究会主催「テラヘルツデバイス研究会」, (箱根、2005 年 12 月)

(セミナー)

- [6] Ryo Shimano : Polarization sensitive THz spectroscopy: application to ac Hall measurements, (Rensselaer Polytechnique Institute, New York, USA, May 2005).
- [7] 島野 亮: テラヘルツ電磁波で観る固体の高密度光励起現象、物理学教室物性セミナー (東京大学、2005 年 4 月) .

# 1 Shimano Group

**Research Subjects:** Optical and Terahertz Spectroscopy of Condensed Matter

**Member:** Ryo Shimano and Shinichi Watanabe

We study light-matter interactions and many body quantum correlations in optically excited high density electron-hole systems in semiconductors, low dimensional systems involving carbon nanotubes, quasi-1D organic conductors. Currently, we are focusing on the low energy ( $\sim$  meV) electromagnetic responses, i.e., in terahertz (THz) frequency range where the responses are dominated by free carriers, quasi-particle excitations, and/or various collective excitations.

The research summary in this year is as follows.

## 1. Instrumental Developments

### THz time domain spectroscopy at low temperature and in high magnetic field

In order to perform THz time domain spectroscopy (TDS) at low temperature and in high magnetic field, we have improved the dynamic range of THz spectroscopy. By using a p-type InAs for THz generation, THz radiation with the electric field amplitude of 10kV/m is generated. A shot-noise level balanced detector is developed for electro-optic sampling of THz pulse. These improvements on THz generation and detection allow us to obtain the dynamic range of THz-TDS as  $5 \times 10^4$  in amplitude, which could compensate the transmission loss due to the multiple windows of the superconducting magnet.

### THz ellipsometry

Magneto-optical effect such as Faraday effect or magneto-optical Kerr effect enables us to investigate the ultrafast spin dynamics and transport properties under magnetic field, by optical means, i.e., without using electrodes. We have developed the magneto-optical measurements scheme in THz frequency range, by highly sensitive THz ellipsometry. Polarization rotation as low as 0.1mrad can be detected in the frequency range between 0.5THz to 2.5THz.

### THz spectroscopy in subwavelength space region

We have examined an aperture type THz microscopy in order to apply the technique to small samples in subwavelength size. An aperture which diameter is smaller than the wavelength, is attached on a sample. Transmissivity is obtained by comparing the sample with an aperture and a blank aperture. We have applied the technique to determine the dielectric function of doped semiconductors, in the frequency range between 0.5THz to 2.5THz. FDTD simulation analysis of the transmitted THz spectrum is performed and compared with the experimental results.

## 2. THz spectroscopy of one-dimensional system

### Carbon Nanotube

Carbon nanotubes are considered as one of the promising materials for one dimensional electron systems. Various exotic behaviors in optical and transport phenomena reflecting 1D nature have been observed. The dynamical aspects of transport properties, and photo-excited dynamics are also important issues to understand the many body effects in such 1D electron system. In this context, we are studying the low energy ( $\sim$  meV) electromagnetic responses of ground state and photo-excited state of nanotubes. By using THz-TDS, the dielectric response of nanotubes in the relevant frequency range has been investigated.

### Quasi-1D Organic Conductor

(TMTSF)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub> is a quasi-1D organic conductor which exhibits metal-insulator transition at 12K accompanied with spin density wave (SDW) formation. For the study of the photo-excited dynamics of SDW phase, and photo-induced phase transition in such low temperature exotic phases, we have developed a reflection type THz-TDS.