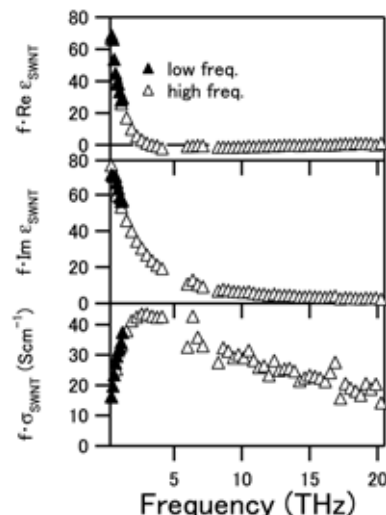


1.1 島野研究室

島野研究室では、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索に取り組んでいる。特に、基底状態、光励起状態における電子相関、多電子系の相轉移ダイナミクス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、テラヘルツ (THz) 周波数帯での電磁応答に着目している。本年度は、多体の電子相関が顕わに発現する系として、一次元電子系 (カーボンナノチューブ)、光励起された半導体高密度電子正孔系、超伝導体、強相関マルチフェロイクス系を対象として以下の研究を進めた。



1.1.1 1次元電子系

カーボンナノチューブ

カーボンナノチューブは、1次元電子系を研究する上での候補物質として多くの関心を集めている。半導体ナノチューブでは、1次元性を反映して van Hove 特異点における状態密度の発散や、励起子束縛エネルギーの増大が予想され、ごく最近その実験的検証もなされるようになってきた。一方金属ナノチューブでは、後方散乱の消失、パリステック伝導など特異な振る舞いが示されている。我々は、このナノチューブの基底状態における1次元的な伝導、光励起されたキャリアのダイナミクスを分光的手法により明らかにすることを目的として、そのTHz分光を進めている。

本年度は、定常状態の線形分光から、単層カーボンナノチューブ (SWNT) のフェルミ面近傍での電子構造を調べることを目標とした。チューブ間伝導やチューブ接触によるギャップ生成の影響を除去するため、カーボンナノチューブをポリマー (セルロース) 中に希薄分散した試料を用いた。後述する超短パルス 14fs のモード同期レーザーを用いた広帯域 THz 分光系を用いて、0.5THz から 20THz (15 μ m) に及ぶ広い範囲で、HiPco 法で合成された単層カーボンナノチューブ/ポリマー複合膜の複素誘電率スペクトルを決定することができた。得られた実効誘電率から有効媒質理論を用いて、ポリマー中に分散したナノチューブの誘電率を求めた結果、図に示すように HiPco カーボンナノチューブは低周波領域では巨大な正の誘電率を示すことを見出した。一方高周波 3THz 以上では誘電率実部は負になることがわかった。誘電率スペクトルの形状から、観測された誘電応答は狭ギャップカーボンナノチューブによるものであると解釈された。

1.1.2 半導体高密度電子正孔系

半導体中に高密度に光励起された電子正孔系は、電子正孔対の密度、温度によって励起子ガス、電子

図 1.1.1: HiPco カーボンナノチューブの広帯域 THz 帯複素誘電率、伝導度スペクトル。ポリマー中の SWNT の体積分率 ($f \sim 0.02$) 倍されている。低周波で非常に大きな誘電率を持つことがわかる。

正孔プラズマ、電子正孔液体といった多彩な相を示す。この光励起電子正孔系の相轉移ダイナミクスを調べることを目的として、光励起 THz プローブ実験の構築を進めている。電子正孔プラズマ中の自由キャリア応答、励起子内部遷移が THz 帯に現れることを利用して、光励起直後の高温の電子正孔プラズマ相から低温励起子気体、あるいは電子正孔液体への相轉移のダイナミクスを調べることができると期待される。本年度はまず、電子正孔液体が安定に存在する間接遷移型半導体 Si で、定常的な光励起下での THz 帯誘導吸収、励起子吸収測定を進めた。

1.1.3 超伝導

超伝導体の THz 周波数帯電磁応答は、超伝導ギャップの観測や準粒子励起のダイナミクスを調べる手段を与えてくれる。磁束量子の振る舞いや光励起による超伝導相の破壊と回復を調べることも可能となる。本年度より金属超伝導体 NbN 薄膜のテラヘルツ分光を開始し、NbN 薄膜の透過測定から伝導度スペクトルを抽出することが可能となった。伝導度スペクトルには、超伝導転移温度 15K に対応する周波数 $2\Delta = 1.1$ THz に明瞭な BCS ギャップ構造が観測された。第二種超伝導体である NbN では、磁場印加により磁束量子が生成される。磁場増強に伴い、混合状態全体の伝導度スペクトルからは超伝導ギャップが消失していく様子が観測された。

1.1.4 マルチフェロイクス系

強誘電反強磁性マンガン酸化物のスピン波励起の観測

強誘電性と（反）強磁性が共存する物質、マルチフェロイクスは、強誘電秩序の磁場による制御、あるいは磁性の電場による制御といった新しい機構に基づくエレクトロニクス材料として期待されている。マルチフェロイクス系における強誘電秩序の発現にはスピン構造が本質的な役割を果たしているが、その微視的な発現機構は必ずしも明らかになっていない。スピン、電荷、格子の結合を微視的な観点から理解するためには、静的な誘電率測定、磁化測定に加えて、（反）強磁性秩序の発現にともなって現れるスピン波（マグノン）の観測、あるいは強誘電秩序消失に伴うソフトフォノンモードの観測といったダイナミカルな測定が有効である。この目的のもとに、マルチフェロイクス系のテラヘルツ分光を進めている。本年度は、強誘電反強磁性体 DyMnO_3 のスピン波励起（マグノン）の観測を行った。反強磁性秩序の発現に伴うマグノンの出現を THz 周波数帯に見出した。さらに強誘電転移温度以下での誘電応答との相関を詳細に調べた。

1.1.5 新しい分光計測技術の開発

フェムト秒光パルスを用いたテラヘルツ時間領域分光法を中心とする新しい分光手法の開発を平行して進めている。本年度は低温、強磁場環境下での複素誘電関数、電気伝導度計測、高感度 THz エリプソメトリーによる磁気光学測定、広帯域 THz 分光法の開発を進めた。

低温磁場環境下での THz エリプソメトリーと非接触ホール測定

THz 時間領域分光法による複素伝導度スペクトルの測定は、半導体、あるいは金属のキャリア濃度および移動度を非接触で計測することを可能とする。さらにスペクトル形状解析による緩和の周波数依存性などから電子散乱機構についてのより詳しい情報が得られる。しかしこの手法が有効となるのは、対象物質が観測領域に適切なスペクトル構造を持つ場合に限定される。たとえばキャリアの濃度、即ちプラズマ周波数が THz 帯より大きく外れている場合には、これらのパラメータ評価は困難である。この制限を克服し、キャリア濃度、移動度を広いパラメータ範囲で計測する手法として、THz 帯における磁気光学ファラデー効果、カー効果を利用した高感度非接触ホール測定法の開発を進めている。この手法では、物質に直線偏光が入射した際、非対角（ホール）伝導度の存在（例えば磁場下でのキャリアのサイクロトロン運動）によって、透過光あるいは反射光の偏光面が回転する効果を利用する。偏光面の回転角と楕円率を計測することにより、ホール伝導度を決定することができる。回転角検出感度を高めること

によって低キャリア濃度、低移動度の試料評価が可能となる。

本年度は、低温強磁場環境下でのテラヘルツエリプソメトリーを開発し、低温 1.6K、磁場は最大 7T の条件下でスペクトル計測を行うことが可能となった。動作確認実験として厚さ $525\mu\text{m}$ の n 型 Si 基板を用いてサイクロトロン共鳴スペクトルの観測を行った（図）。さらに、THz 時間領域分光の特徴である電場振幅位相測定の利点を活かし、0.5mrad の高感度ファラデー回転角検出に成功した。同 Si 基板に対してこの手法を適用し、低キャリア濃度領域 $6 \times 10^{12}\text{cm}^{-3}$ までの評価が可能となった。

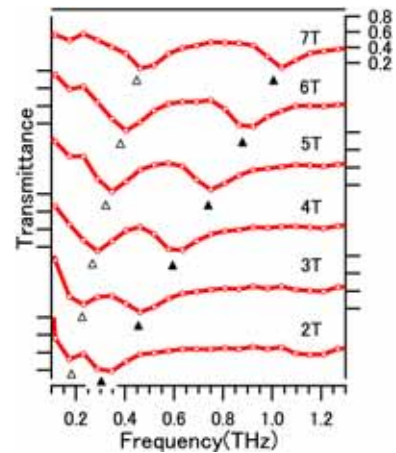


図 1.1.2: n 型 Si の磁場下透過スペクトル (50K)。二つの有効質量に対応するサイクロトロン共鳴吸収が観測される。

超小型可搬汎用 THz 分光装置の開発

低温、強磁場環境下での THz 分光装置開発の一環として、測定を簡便に行うことができるよう可搬式の超小型分光装置の開発を進めた。超小型装置は分光装置をまるごと低温・強磁場測定環境下に簡便に導入できるメリットがある。これまでも他グループで光ファイバーや THz 用 Si レンズと組み合わせた装置の開発が進められているが、今回我々は、より空間分解能の高い分光系の実現を目指し、数値計算による構造最適化のもと、反射光学系による色収差の無い超小型 THz 分光装置の開発に成功した。特に測定試料の直近に集光レンズを配置することで空間分解能の高い分光系が実現できたところに特徴がある。

図 1 に作成した分光装置（サイズ： $\phi = 20\text{ mm} \times 61\text{ mm}$ ）を示す。直径 25 mm のサンプル槽を持つクワイオスタットにも導入できる大きさである。THz 波発生には ZnTe 非線形結晶あるいは GaAs ポウタイアンテナ、検出には同ダイポールアンテナを使用し、0.3-2.0 THz 周波数範囲内で有効開口数 0.45 の高い空間分解能で定量的な THz 分光測定が行える

ことを示した。また、窓のない測定環境にも対応できるように、チタンサファイアレーザーから出力されるフェムト秒光パルスを光ファイバーで導き THz 光発生・検出のデモンストレーションを行った。なお、光ファイバー通過中の励起光の分散を補正するため、ファイバー導入前にプリズムペアで適切に補償を行っている。

このように高い有効開口数、ひいては高い測定空間分解能を実現できたのは、装置を小型化するに伴い測定試料の直近に集光レンズ（放物面鏡）を配置できたことによる。テストサンプルとしてシリコンに金を線上にパターンニングした試料の透過率イメージング測定を行ったところ、テラヘルツ波の波長程度の構造まで透過率イメージング測定が行え、2倍の波長程度以上の構造では定量的な透過率を導き出すことも可能であることを示した。このように装置外部から THz 光を導く通常の分光系では測定装置系の制限から達成することが難しい高い空間分解能が達成できた。この装置はより小さいサンプルの定量的な分光測定を行うのに特に適していると考えられる。

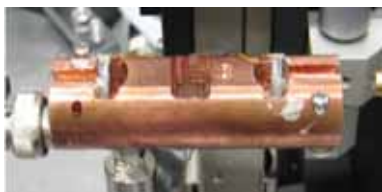


図 1.1.3: 超小型可搬汎用 THz 分光装置

広帯域 THz 分光

超短光パルス 14fs のモード同期レーザーを用いた広帯域 THz 分光系を開発した。光学素子の群速度分散によるパルス幅の広がりを防ぐために全て反射光学系で構成された THz 分光系を構築した。THz 発生には ZnTe 結晶による光整流を利用し、検出には低温成長 GaAs ダイポールアンテナを用いることで、0.5THz(0.6mm) から 30THz(10 μ m) に及ぶ広範囲の複素誘電率計測が可能となった。

<受賞>

- [1] 渡邊 紳一, 第 22 回 (2007 年春季) 応用物理学会講演奨励賞, 「高空間分解能を有する超小型テラヘルツ分光装置の開発」(青山学院大学, 2007 年 3 月)

<報文>

(学位論文)

- [2] 西村久明, 「THz 時間領域分光法による単層カーボンナノチューブの遠赤外電磁応答の研究」, 修士論文, 2007 年 1 月

(会議抄録)

- [3] H. Nishimura, N. Minami, and R. Shimano: Broadband THz time-domain spectroscopy of single-wall carbon nanotubes, Proceedings of Quantum Electronics and Laser Science Conference 2007(in press).

- [4] Yohei Ikebe and Ryo Shimano: High sensitive terahertz Faraday rotation measurements of doped semiconductors, Proceedings of Quantum Electronics and Laser Science Conference 2007(in press).

< 学術講演 >

(国際会議)

一般講演

- [5] N. Kida, Y. Ikebe, R. Shimano, Y. Yamasaki, T. Arima, and Y. Tokura: Electrodynamics at terahertz frequencies of a multiferroic perovskite manganite American Physical Society, March Meeting 2007, (Denver, Colorado, March 2007)

(国内会議)

一般講演

- [6] 西村久明, 島野 亮, 南 信次: 単層カーボンナノチューブ/ポリマー複合膜の THz 帯における複素誘電率計測, 日本物理学会 2006 年秋季大会, (千葉大学, 2007 年 3 月)
- [7] 西村久明, 島野 亮, 宮下香苗, 南 信次: 単層カーボンナノチューブ/ポリマー複合薄膜の THz 帯誘電率の温度依存性, 日本物理学会 2007 年春季大会, (鹿児島大学, 2007 年 3 月)
- [8] 渡邊 紳一, 島野 亮: 低温・強磁場下測定に向けた小型テラヘルツ分光装置の開発, 日本物理学会 2007 年春季大会, (鹿児島大学, 2007 年 3 月)
- [9] 貴田徳明, 池辺洋平, 島野亮, 山崎裕一, 有馬孝尚, 十倉好紀: テラヘルツ電磁波時間領域分光法を用いたマンガン酸化物強誘電体における磁気励起の観測, 日本物理学会 2007 年春季大会, (鹿児島大学, 2007 年 3 月)
- [10] 池辺洋平, 島野 亮: THz 時間領域分光法による n 型 Si の高感度ファラデー効果測定, 日本物理学会 2007 年春季大会, (鹿児島大学, 2007 年 3 月)
- [11] 渡邊 紳一, 島野 亮: 高空間分解能を有する超小型テラヘルツ分光装置の開発, 第 54 回応用物理学関係連合講演会, (青山学院大学, 2007 年 3 月)
- [12] 渡邊 紳一, 島野 亮: モノリシック型小型テラヘルツ分光装置, 応用物理学会 THz 電磁波技術研究会主催「テラヘルツ分光法」研究討論会, (加賀山代温泉, 2007 年 3 月)
- [13] 島野 亮: テラヘルツ時間領域分光法-固体分光の視点から-, 東京大学レーザーアライアンスシンポジウム (東京大学, 2006 年 12 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: 1) optically excited high density electron-hole systems in semiconductors, low dimensional systems such as 2) carbon nanotubes, 3) quasi-1D organic conductors, 4) superconductors, and 5) strongly correlated electron systems. In order to investigate the dynamics of phase transition in those materials, we are focusing on their low energy electromagnetic responses in terahertz (THz) ($1\text{THz}\sim 4\text{meV}$) frequency range where quasi-particle excitations and various collective excitations exist. The research summary in this year is as follows.

1. THz spectroscopy

(1) **Carbon nanotubes:** Carbon nanotubes are considered as one of the promising materials for the study of one dimensional electronic systems. The dynamical aspects of their transport properties, and photo-excited dynamics are important issues to understand the Coulomb correlation in such 1D electron system. In this context, we are studying the low energy ($\sim \text{meV}$) electromagnetic responses of their ground state and photo-excited state. We determined the complex dielectric function of HiPco single-wall carbon nanotubes (SWNTs) by terahertz time-domain spectroscopy in the broad spectral range from 0.2 to 20 THz. Real part of the dielectric function exhibits extremely large and positive value at low frequency below 2THz, indicating the response of small gap SWNTs.

(2) **Superconductors:** Vortex lattice, or glass in superconductor can be recognized as a new class of material phase which can be controlled by external perturbation such as magnetic field or temperature. We study the interaction among the vortices and their dynamics as well as the quasi-particle dynamics by THz conductivity measurements. A clear gap at 1.1THz is observed in NbN film of $T_c=15\text{K}$, which disappears with increasing the applied magnetic field. The conductivity spectrum is analyzed based on effective medium theory.

(3) **Multiferroics:** Antiferromagnetic resonance is observed in multiferroic material DyMnO_3 , where ferroelectric and antiferromagnetic order coexist at low temperature. The correlation between ferroelectricity and magnetism is systematically examined in THz frequency range, in order to investigate the collective excitation of the ferroelectric order.

2. Instrumental Developments

(1) **THz time domain ellipsometry at low temperature and under high magnetic field:** THz time domain ellipsometry at low temperature as low as 1.6K and under high magnetic field as high as 7T is achieved. The available frequency range is between 0.2 to 2THz, which covers the BCS gap of conventional superconductors, antiferromagnetic resonances, and cyclotron frequencies in typical semiconductors such as Si, InAs, GaAs under the relevant magnetic field. A high sensitive polarization spectroscopy, namely the THz time domain ellipsometry, is combined with this system, which allows one to measure the magneto-optical Faraday rotation angle as small as 0.5mrad.

(2) **Broadband THz spectroscopy system:** In order to extend the conventional THz spectroscopy range of 0.2 to 3THz of which upper limit is restricted by the laser pulse width 160fs, we installed a much shorter femtosecond laser system with pulse width of 14fs. By adopting the optical rectification and dipole antenna for THz generation and detection scheme, we succeeded in obtaining a broad spectral range of 0.5 to 30THz ($600\mu\text{m}$ to $10\mu\text{m}$), which covers interesting response range of those abundant materials listed above.

(3) **Development of compact THz spectroscopy system:** Compact and mobile terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS) measurement system is quite useful as one can perform the measurements anywhere including what conventional setup cannot be accessible, e.g. inside a cryogenic system with no optical windows. Also useful is a diffraction-limited THz imaging system with high spatial resolution, as one can quantitatively extract the spectroscopic information of small objects, particularly when their sizes are in the order of mm, comparable to the wavelength of THz waves. For this purpose, we have developed a very compact THz-TDS imaging system with high diffraction-limited spatial resolution, which is designed so as to put the whole system except for pump and probe laser lines inside a cryostat with 25 millimeter diameter sample space.