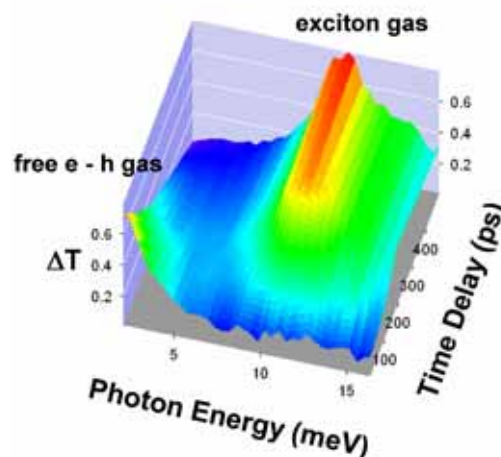


1.1 島野研究室

島野研究室では、レーザー分光の手法を用いて、凝縮系におけ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、多電子系の相転移ダイナミクスを調べるために、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、光励起された半導体高密度電子正孔系、分子性導体、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 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。この電子正孔系の相転移ダイナミクスを調べる新たな手法としてテラヘルツ電磁波パルスを用いた分光手法の開拓を進めてきた。今年度は、多段増幅されたパルス幅 30 フェムト秒の超短パルスレーザーを用いて従来 10meV までに限られていた観測エネルギー範囲を拡張し、2-24meV の広いエネルギー領域での時間分解分光システムを開発した。このシステムを用いて、間接遷移型半導体 Si において高密度電子正孔系のダイナミクスの観測実験を開始した。Si の光励起キャリアの寿命は μs 程度と比較的長く、相転移ダイナミクスにキャリア寿命の効果がさほど影響しないと考えられる。つまり、高密度下での相転移ダイナミクスとクーロン相関の効果を準熱平衡状態で調べることが可能になると期待される。そこでまず、低密度領域で、光生成された自由な電子正孔気体から、励起子が形成される様子を観測した。図 1.1.1 に示すように、励起子 1s-2p 準位間遷移がちょうどテラヘルツ周波数帯 (10meV) にあることに着目し、この準位間遷移をプローブとすることで間接遷移型の”見えない”励起子を観測することに成功した。励起直後に見られるドルーデ応答のスペクトルは自由な電子正孔気体の存在を示している。一方、励起子は約 200 ピコ秒後に形成されることがわかった。励起子モット転移濃度以上の実験からは、金属相である電子正孔プラズマから実空間で凝縮した電子正孔液体 (液滴) と励起子気体に相分離していく様子も観測された。現在、様々な密度、温度領域での系統的な測定により、高温高密度下で遮蔽されていたクーロン相関が時間の経過 (密度、温度の変化) とともに形成されていく様子や、励起子モット転移濃度近傍でのバンドギャップ収縮効果の振る舞いについて調べている。

図 1.1.1: Si におけるテラヘルツ帯透過率の差分スペクトル。光照射直後の電子正孔気体から励起子が形成されていく様子。

エネルギーは THz 領域に存在する。そこで、THz 時間領域分光法により、ピコ秒の時間スケールでギャップ周波数領域の複素伝導度スペクトルが決定できれば、SDW 相のスピ及び電荷の光励起ダイナミクスを実時間で追うことが可能になると考えられる。こうした時間分解測定に先立ち、我々は (TMTSF) $_2$ PF $_6$ の SDW 相の複素伝導度スペクトルを THz 時間領域反射分光法を用いて決定した。特に、高い NA の集光光学系を構築し試料上での光のスポットサイズを回折限界程度まで小さくすることが可能となった。このため、典型的な試料サイズが 1mm 以下であり観測するテラヘルツ波の波長と同程度である有機導体単結晶に対しても、反射分光による定量的な複素誘電率決定が可能になった。

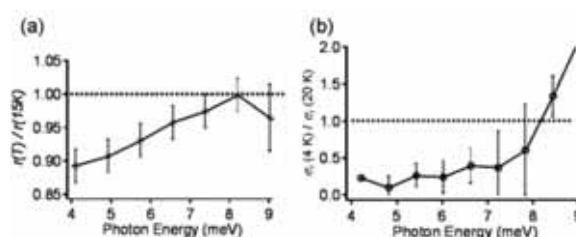


図 1.1.2: 擬一次元有機導体 (TMTSF) $_2$ PF $_6$ の (a) T_c 前後における振幅反射率、および (b) $T = 4\text{K}$ (SDW 相) の複素伝導度。

1.1.2 擬 1 次元有機導体

擬一次元有機導体 (TMTSF) $_2$ PF $_6$ は転移温度 $T_c = 12\text{K}$ 以下においてスピン密度波 (SDW) を形成することが知られている。この SDW 形成に伴う一粒子ギャップ

図 1.1.2(a) に $T = 4\text{K}$ における試料 b' -軸偏光の振幅反射スペクトルを示す。なお反射率の値は $T = 15\text{K}$ の値で規格化してある。 $T = 12\text{K}$ 以下において 8meV より低エネルギー数域で明瞭な反射率の低下が見られる。これはスペクトルが SDW ギャップの形

成を反映していることを強く示唆する。図 1.1.2(b) に複素誘電率解析から決定した $T = 4$ K における試料の光学伝導度スペクトルを示す。 $T = 4$ K では 8meV より低エネルギー領域で確かに光学伝導度のスペクトルウェイトに減少が生じており、これはいわゆる SDW ギャップであると考えられる。このように THz 時間領域反射分光法を用いて金属-絶縁体転移を伴う SDW の形成、一粒子励起スペクトルを観測することに成功した。本研究は東京大学鹿児島研究室との共同研究である。

1.1.3 超伝導磁束量子系

超伝導体中の磁束量子 (vortex) は電流の下で運動し、超伝導体の伝導特性に寄与を与える。この vortex の運動機構を明らかにするために金属超伝導体 NbN (転移温度 15K 、ギャップ周波数 1.1THz) を対象として磁場下テラヘルツ時間領域分光測定を行い、ギャップ周波数近傍の光学伝導度スペクトルから vortex ダイナミクスの影響を調べた。

図 1.1.3 に得られた NbN の光学伝導度を示す。ゼロ磁場下では超伝導状態の光学伝導度に超伝導ギャップ周波数に相当する立ち上がりが明瞭に観測された。これに対し磁場下では常伝導状態における光学伝導度に漸近する結果が得られた。これは磁場の印加により vortex が生じ、超伝導体中の準粒子密度が増加したことによるものと解釈された。さらに、散逸の起源として vortex 自身の運動の寄与も取り入れ有効媒質理論による解析を行ったところ、実験結果をよく説明することがわかった。このモデルに基づき、vortex の占有する面積を求めたところ、その磁場依存性が磁場に対し比例しないことを見出した。この結果はコヒーレンス長が磁場に依存していることを示唆していると考えられる。本研究は東北大学川崎研究室との共同研究である。

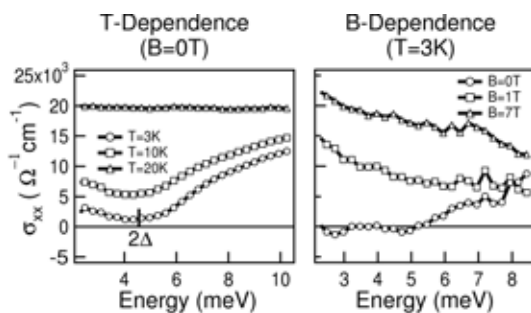


図 1.1.3: NbN のテラヘルツ帯光学伝導度

1.1.4 マルチフェロイクス系

希土類マンガン酸化物のスピนว励起の観測

近年、希土類マンガン酸化物において、低温下で強誘電反強磁性相が見出され、さらに外部磁場により自発分極を制御できることが明らかとなってきた。(反)強磁性と強誘電性を兼ね備えたマルチフェロイック物質は電場による磁化の制御、あるいは磁場による分極の制御を可能にするため、新しい電子-スピン素子の候補として関心を集めている。このマルチフェロイック物質における、スピンと誘電性の強い結合の起源を明らかにするとともに、電場成分で励起されるスピนว (エレクトロマグノン) の探索を目的として、 RMnO_3 ($R=\text{Eu}_{1-x}\text{Y}_x, \text{Tb}, \text{Dy}$) の強誘電反強磁性相における電磁応答をテラヘルツ時間領域分光法により調べた。その結果、いずれの物質においても、磁気秩序と関連のある巨大な吸収をテラヘルツ帯に見出し、これが電場応答に由来しているものであることを明らかにした。結晶方位及び偏光依存性から、この大きな吸収が常に特定の結晶軸方向にのみ観測されること、外部磁場によって強誘電自発分極がフリップしてもこの大きな吸収は影響を受けないことを見出した。これらの結果から、観測された大きな吸収が Mn スピンのスパイラル面の揺らぎに対応するゴールドストーンモードではなく、2-マグノン吸収に対応するものと結論された。本研究は科学技術振興機構 ERATO 十倉マルチフェロイックプロジェクトとの共同研究である。

< 報文 >

(原著論文)

- [1] H. Nishimura, N. Minami, and R. Shimano: Dielectric properties of single-walled carbon nanotubes in the terahertz frequency range, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 011108 (2007)
- [2] S. Watanabe and R. Shimano: Compact terahertz time domain spectroscopy system with diffraction-limited spatial resolution, *Review of Scientific Instruments* **78**, 103906 (2007)
- [3] Y. Ikebe and R. Shimano: Characterization of doped silicon in low carrier density region by terahertz Faraday effect, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 012111 (2008)

(著書)

- [4] 島野 亮: 「テラヘルツ技術総覧」中「磁気光学」(執筆分担) (エヌジーティー、2007年)

(学位論文)

- [5] 岩宮賢: 「THz 電磁波による半導体 Si の励起子モット転移に関する研究」(修士論文)
- [6] 池辺洋平: 「テラヘルツ周波数帯におけるホール効果測定と超伝導体への応用」(修士論文)

< 学術講演 >

(国際会議)

一般講演

- [7] H. Nishimura, N. Minami, and R. Shimano: Broadband THz time-domain spectroscopy of single-wall carbon nanotubes, Quantum Electronics and Laser Science Conference 2007, May 2007, Baltimore, USA
- [8] Yohei Ikebe and Ryo Shimano: High sensitive terahertz Faraday rotation measurements of doped semiconductors, Quantum Electronics and Laser Science Conference 2007, May 2007, Baltimore, USA
- [9] S. Watanabe and R. Shimano: Very compact THz-TDS imaging system with diffraction limited spatial resolution, Joint 33rd International Conference on Infrared and Millimeter Waves, and 16th International Conference on Terahertz Electronics (IRMMW-THz2007), September 2007, Cardiff, UK
- [18] 貴田徳明, 池辺洋平, 高橋陽太郎, 何金萍, 金子良夫, 山崎裕一, 島野亮, 有馬孝尚, 永長直人, 十倉好紀: テラヘルツ電磁波時間領域分光法を用いた磁性強誘電体 DyMnO_3 における光で誘起される磁気励起の全貌, 日本物理学会 2008 年春季大会 (於 近畿大学)
- [19] 高橋陽太郎, 貴田徳明, 山崎裕一, 藤岡淳, 賀川史敬, 村川寛, 金子良夫, 何金萍, 有馬孝尚, 島野亮, 十倉好紀: THz・遠赤外分光によるマルチフェロイクス物質 RMnO_3 におけるエレクトロマグネットの観測, 日本物理学会 2008 年春季大会 (於 近畿大学)
- [20] 岩宮賢, 芝沼隆太, 島野亮: 広帯域 THz 分光法による Si の高密度光励起電子正孔系のダイナミクスの観測, 日本物理学会 2008 年春季大会 (於 近畿大学)

(集中講義)

- [21] R. Shimano : University of Joensuu, Summer School, Introduction to terahertz time domain spectroscopy August6 -9, Joensuu, Finland

招待講演

- [10] R. Shimano : Terahertz spectroscopy of multiferroics and superconductors 2007CERC International Symposium, Akihabara, Tokyo, May 23, 2007
- [11] R. Shimano: Low energy electromagnetic responses of Condensed matter, Univ. of Yonsei-Univ. of Tokyo 1st Joint Workshop, Univ. of Tokyo, August 31, 2007
- [12] R. Shimano: Terahertz Electromagnetic Responses of Photo-excited High Density Electron-Hole System in Semiconductors, The 21st century COE International Symposium - Linear Response Theory in Commemoration of its 50th Anniversary-Recent Developments in Equilibrium and Non-Equilibrium Response, Univ. of Tokyo, November 7, 2007

(国内会議)

一般講演

- [13] 島野 亮: 高感度テラヘルツ光学活性計測技術の開発, 科学技術振興機構さきがけ研究「構造機能と計測分析」領域 成果報告会議 2007 年 12 月 13 日
- [14] 渡邊紳一, 島野亮, 近藤隆祐, 鹿兒島誠一: 有機導体 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ のテラヘルツ領域反射分光測定, 日本物理学会 2007 年秋季大会 (於 北海道大学)
- [15] 岩宮賢, 島野亮: THz 分光法による間接遷移型半導体 Si の励起子及び電子正孔プラズマの観測, 日本物理学会 2007 年秋季大会 (於 北海道大学)
- [16] 池辺洋平, 島野亮, 池田将洋, 福村知昭, 川崎雅司: THz 時間領域分光法による超伝導 NbN 薄膜の磁場下伝導度測定, 日本物理学会 2007 年秋季大会 (於 北海道大学)
- [17] 渡邊紳一, 島野亮, 近藤隆祐, 鹿兒島誠一: テラヘルツ時間領域分光法による $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ のスピン密度波ギャップの観測, 日本物理学会 2008 年春季大会 (於 近畿大学)

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) multi-ferroic materials. In order to investigate the role of electron correlations on the excited state as well as the ground state, we are focusing on the 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. High density electron-hole system :

Photo-excited electron-hole system in semiconductors exhibits various phases depending on their density and temperature, such as exciton gas, electron-hole plasma, electron-hole liquid (droplets). Insulator-metal transition in e-h system, namely the exciton Mott transition has long been one of the central issues, while the role of Coulomb correlation is yet to be solved problem. We approach this problem by terahertz spectroscopy which can directly reflect the effect of electron correlation with high temporal resolution. For this purpose, we developed optical pump and terahertz probe measurements setup which covers broad frequency range from 2 to 24 meV. We applied the scheme to Si, the most well-known material which is also attractive for the study of high density e-h phenomena due to relatively long carrier lifetime and also due to the existence of electron-hole droplets. Temporal evolution of 1s-2p Lyman transition of exciton in indirect semiconductor was for the first time observed. The behavior in high density region around Mott transition is currently under the investigation.

2. Quasi-1D organic conductor :

We studied the optical responses of quasi-1D organic conductor $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ which shows metal-insulator transition below 12K accompanied by spin density wave formation. Since the single particle excitation energy in SDW phase is located in terahertz frequency range, it is possible to investigate the spin and charge dynamics of SDW phase under photo-excitation by terahertz time domain spectroscopy. We have developed a reflection type measurement system with diffraction-limited spatial resolution, which allows one to determine the complex dielectric function of small samples less than 1mm that is typical for organic conductor single crystals. A clear SDW gap is observed in optical conductivity spectrum in b'-axis direction.

3. Vortex dynamics in superconductor :

Transmission type terahertz polarization spectroscopy setup combined with 7T superconductor magnet was developed to investigate the complex diagonal and off diagonal conductivity of materials. By using the developed system, vortex dynamics in superconductor NbN film was investigated. The change of conductivity spectrum around 1.1THz (the BCS gap of NbN) under the magnetic field was obtained. We analyzed the results based on effective medium theory and determined the magnetic field dependence of the volume fraction of vortex. The results were well explained by taking into account the dissipation due to quasi-particles in vortex and also the dissipation caused by vortex motion.

4. Multiferroics :

Low energy (1-10meV) electromagnetic dynamics of spin excitations in multi-ferroic rare-earth manganites RMnO_3 , (R=Eu_{1-x}Y_x, Tb, Dy) were investigated by terahertz time domain spectroscopy. Electric-dipole active pronounced absorptions were observed in all the above materials when electric field vector was along a-axis. The possible origin of the observed absorption was discussed in terms of 2-magnon excitations and dipole active 1-magnon excitation (electromagnon).

References

- [1] H. Nishimura, N. Minami, and R. Shimano: Dielectric properties of single-walled carbon nanotubes in the terahertz frequency range, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 011108 (2007)
- [2] S. Watanabe and R. Shimano: Compact terahertz time domain spectroscopy system with diffraction-limited spatial resolution, *Review of Scientific Instruments* **78**, 103906 (2007)
- [3] Y. Ikebe and R. Shimano: Characterization of doped silicon in low carrier density region by terahertz Faraday effect, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 012111 (2008)