

電荷密度波におけるトポロジカル効果の光学的検証

学位論文内容の要旨

本研究ではトポロジー構造をもつ電荷密度波 (CDW) 物質に特徴的な物性を、光学測定により明らかにすることを目的とした。特に針状結晶とリング結晶の電子緩和ダイナミクスの違いに着目し、トポロジカル効果を反映した物性変化を検証した。

電荷密度波 (CDW) は低次元導体特有の量子現象であり、電子密度の波と格子の新たな周期ひずみによって生じる電子の巨視的量子状態である。CDW のコヒーレンス長は伝導軸方向に対して μm オーダーに達することが知られており、端を持たず、繋がった結晶構造をもつトポロジカル結晶上では閉ループコヒーレンスを反映した物性変化が顕在化する可能性がある。例えば抵抗ゼロで電荷の波を伝え得る CDW の並進運動 (フレリッヒ超伝導) は、トポロジカル結晶上で顕著となる可能性が指摘されている。このような結晶トポロジーに起因した電子物性を調べるため、本研究では非接触・非破壊な光学測定を用いる。さらにコヒーレンスを反映した物性変化を捉えるため、超短パルスレーザー励起による電子緩和ダイナミクスについて調査する。高品質かつ比較的大型のトポロジカル結晶の作製が確立されている擬 1 次元 NbSe_3 を測定対象とし、光励起による一粒子緩和と集団励起からトポロジカル効果の定量的な検討を実現した。

本論文は全五章から構成される。以下に各章の要旨をまとめる。

第一章では、序論として巨視的な量子現象である CDW 物性について述べる。またトポロジカル結晶における CDW 物性の重要性と期待されるトポロジカル効果について研究背景と共に示す。

第二章では、測定に用いた NbSe_3 トポロジカル結晶試料と光学測定手法について述べる。トポロジカル結晶は化学気相輸送法 (CVT) によって作製可能であり、半径 $50 \mu\text{m}$ 程度のリング結晶を得ることに成功した。また、微細な NbSe_3 結晶を測定するためにフェムト秒パルスレーザーを用いた二色励起顕微分光を確立した。異なるエネルギーをもつ二色励起では、ポンプ光とプローブ光を同軸で結晶に照射できるため回折限界励起と高感度化が同時に実現される。顕微分光ではさらに実空間解析を実現した。

第三章では、CDW 相の選択検出を行った。 NbSe_3 は単位胞内に 6 本 3 種類の一次元伝導軸が存在し、そのうち 2 種類が $T_{C1}=145 \text{ K}$ 、 $T_{C2}=59 \text{ K}$ で CDW 相転移することが知られている。そのため、各伝導軸における電子緩和を正確に見積もるためには、光学遷移を利用した選択検出が有効である。 NbSe_3 の励起状態はいくつかの共鳴が重なって存在しているため、励起エネルギーを変化させながら一粒子緩和の温度特性から選択性を見積もった。その結果、プローブエネルギーを 1.56 eV に調整したとき、 $T_{C2}=59 \text{ K}$ の相転移応答が $T_{C1}=145 \text{ K}$ の応答に対して約 5 倍程度増強されることが明らかとなった。この選択性にもとづき、BCS 温度依存性を正確に反映した緩和時間の増大が観測され、低温での緩和時間に比べ 20 倍程度大きい約 10 ps の緩和時間を持つことが明らかになった。相転移温度付近の緩和時間の発散は急峻であることから、高感度な相転移ダイナミクス

の検出が実現されたと言える。一方、集団励起においては低温で2つの共鳴ピークを示し、そのシフト量が過去に報告された CDW ギャップ値 ~ 100 meV と同程度であることを見出した。以上の結果から、エネルギーによる単一の CDW 相の選択励起メカニズムを明らかにした。これにより得られた知見は、高温超伝導体等の複数の秩序相を持つ物質に対して、選択的な検出を実現できる可能性がある。

第四章では、一粒子緩和と集団励起スペクトルから、結晶トポロジーに依存した電子緩和ダイナミクスの違いを明らかにし、トポロジカル効果の詳細について議論する。一粒子緩和に関して、前章の結果を踏まえた相転移近傍の緩和時間の変化を比較対象とする。その結果、リング結晶と針状結晶との間に著しい相違が存在することを見出した。針状結晶は BCS 温度依存性を反映した緩和時間の増大が観測されたのに対して、リング結晶では緩和時間が抑制され、臨界緩和の顕在化が明らかとなった。このことは、針状結晶上では CDW の隣接鎖間の秩序形成がスムーズであるのに対し、リング結晶上では隣接鎖間の位相ゆらぎが顕著となることを示唆している。リング結晶における位相ゆらぎの顕在化は、伝導軸方向のコヒーレンスが高いことを意味しており、閉ループコヒーレンスを反映した結果であると解釈することができる。この解釈をさらに検証するために、一粒子緩和の実空間特性を調べた。その結果、緩和時間がリング半径に依存した特性を示すことを発見し、隣接鎖間のディスロケーション(位相欠陥)モデルを用いて定量的にトポロジカル効果を検証することに成功した。リング結晶中心付近では、ディスロケーションによって隣接鎖間の相関が著しく抑制され、位相ゆらぎが顕著となる。このディスロケーションは動径方向に沿って緩和され、リング端付近では針状結晶と同程度の緩和時間に近似される。このことは、CDW のトポロジカル効果がコヒーレンス長程度の範囲内でのみ発現可能であることを示唆しており、実験結果の信頼性を高めている。なお、ディスロケーションモデルはリング上で閉じた CDW が形成されることを前提としており、結果は閉ループコヒーレンスを裏付けている。集団励起に対しても、同様の比較を行った。集団励起は格子間の相関を反映しているため、両結晶における結晶性を評価することができる。その結果、集団励起スペクトルが、リング結晶と針状結晶において同程度の半値幅を示すことを見出した。これは、結晶トポロジーに付随する歪の効果については十分小さく、結晶性についても同等であることを示唆している。さらに、本章の後半では、結晶性の影響を取り除き、照射面を一致させた比較が可能な針状部とリング部を併せ持つ結晶を作製し、その電子緩和ダイナミクスを測定した。これにより上述と同一の結果が得られ、リング部でのみ、閉ループコヒーレンスを反映した位相ゆらぎが顕在化することを見出した。

第五章では、本研究により得られた CDW のトポロジカル効果に関する知見をまとめた。以上、本研究では光学的手法により、結晶トポロジーの異なる場で振る舞う CDW 物性を観測し、そのトポロジカル効果を検証した。研究成果として、トポロジカル結晶上で CDW が閉ループコヒーレンスを獲得するため、位相ゆらぎが顕在化することを見出した。この研究で得られた知見は、普遍的であり、様々なトポロジー場での応用が期待できる。

学位論文審査の要旨

主査	准教授	戸田泰則
副査	教授	森田隆二
副査	教授	丹田聡
副査	教授	折原宏
副査	准教授	根本幸児 (理学研究院)

学位論文題名

電荷密度波におけるトポロジカル効果の光学的検証

本論文ではトポロジー構造をもつ電荷密度波 (CDW) 物質に特徴的な物性を、光学測定により明らかにすることを目的としている。CDW は低次元導体特有の量子現象であり、電子密度の波と格子の新たな周期ひずみによって生じる電子の巨視的量子状態である。CDW のコヒーレンス長は伝導軸方向に対して μm オーダーに達することが知られており、端を持たず、繋がった結晶構造をもつトポロジカル結晶上では閉ループコヒーレンスを反映した物性変化が顕在化する可能性がある。このような結晶トポロジーに起因した電子物性を調べるため、著者は非接触・非破壊な光学測定を用いることを提案した。CDW コヒーレンスを捉えるため、超短パルスレーザー励起による電子緩和ダイナミクスの観測手法を確立し、一粒子緩和と集団励起からトポロジカル効果の検証を実現した。

本論文は全五章から構成される。以下に各章の要旨を示す。

第一章では、序論として巨視的な量子現象である CDW 物性について述べている。またトポロジカル結晶における CDW 物性の重要性と期待されるトポロジカル効果について研究背景と共に示している。

第二章では、測定に用いた NbSe_3 トポロジカル結晶試料と光学特性、および超短パルスレーザーを用いた時間分解分光手法について述べている。トポロジカル結晶は化学気相輸送法 (CVT) によって作製可能であり、半径 $50 \mu\text{m}$ 程度のリング結晶を得ることに成功した。また、微細な NbSe_3 結晶を測定するためにフェムト秒パルスレーザーを用いた二色励起顕微分光を確立した。異なるエネルギーをもつ二色励起では、ポンプ光とプローブ光を同軸で結晶に照射できるため回折限界励起と高感度化が同時に実現されている。顕微分光ではさらに実空間解析を実現した。

第三章では、CDW 相の選択検出を確立した。 NbSe_3 は単位胞内に 6 本 3 種類の一次元伝導軸が存在し、そのうち 2 種類が $T_{C1}=145 \text{ K}$ 、 $T_{C2}=59 \text{ K}$ で CDW 相転移することが知られている。そのため、各伝導軸における電子緩和を正確に見積もるためには、光学遷移を利用した選択検出が有効である。 NbSe_3 の励起状態は複数の共鳴から成ることに着目し、励起エネルギーを変化させながら選択性を見積もった。その結果、プローブエネルギーを 1.56 eV に調整したとき、 $T_{C2}=59 \text{ K}$ の相転移応答が $T_{C1}=145 \text{ K}$ の応答に対して約 5 倍程度増強されることが明らかとなった。この選択

性にもとづき、BCS 温度依存性を正確に反映した緩和時間の増大が観測され、低温での緩和時間に比べ 20 倍程度大きい約 10 ps の緩和時間を持つことが明らかにされた。相転移温度付近の緩和時間の発散は急峻であることから、高感度な相転移ダイナミクスの検出が実現されたと言える。一方、集団励起においては低温で 2 つの共鳴ピークを示し、そのシフト量が過去に報告された CDW ギャップ値 ~ 100 meV と同程度であることを見出した。以上の結果から、エネルギーによる単一の CDW 相の選択励起メカニズムを明らかにした。このメカニズムは、高温超伝導体等の複数の秩序相を持つ物質に対しても適用できるため、将来的な展開も見込める。

第四章では、一粒子緩和と集団励起スペクトルから、結晶トポロジーに依存した電子緩和ダイナミクスの違いを明らかにし、トポロジカル効果の詳細について議論している。一粒子緩和に関して、前章の結果を踏まえた相転移近傍の緩和時間の変化を比較対象とする。その結果、リング結晶と針状結晶との間に著しい相違が存在することを見出した。針状結晶は BCS 温度依存性を反映した緩和時間の増大が観測されたのに対して、リング結晶では緩和時間が抑制され、臨界緩和が顕在化されることを見出した。このことは、針状結晶上では CDW の隣接鎖間の秩序形成がスムーズであるのに対し、リング結晶上では隣接鎖間の位相ゆらぎが顕著となることを示唆している。リング結晶における位相ゆらぎの顕在化は、伝導軸方向のコヒーレンスが高いことを意味しており、閉ループコヒーレンスを反映した結果であると解釈することができる。この解釈をさらに検証するために、一粒子緩和の実空間特性を調べている。その結果、緩和時間がリング半径に依存した特性を示すことを発見し、隣接鎖間のディスロケーション (位相欠陥) モデルを用いて定量的にトポロジカル効果を検証することに成功した。リング結晶中心付近では、ディスロケーションによって隣接鎖間の相関が著しく抑制され、位相ゆらぎが顕著となる。このディスロケーションは動径方向に沿って緩和され、リング端付近では針状結晶と同程度の緩和時間に近似される。このことは、CDW のトポロジカル効果がコヒーレンス長程度の範囲内でのみ発現可能であることを示唆しており、実験結果の信頼性を高めている。なお、ディスロケーションモデルはリング上で閉じた CDW が形成されることを前提としており、モデルと実験結果との一致はトポロジカル結晶上で閉ループコヒーレンスが存在することを裏付けている。他方、集団励起に対しても比較を行っている。集団励起は格子間の相関を反映しているので、両結晶における結晶性を評価することができる。その結果、集団励起スペクトルが、リング結晶と針状結晶において同程度の半値幅を示すことを見出した。これは、結晶トポロジーに付随する歪の効果については十分小さく、結晶性についても同等であることを示唆している。さらに結晶性の影響を取り除き、照射面を一致させた比較が可能な針状部とリング部を併せ持つ結晶を作製し、その電子緩和ダイナミクスを測定している。これにより上述と同一の結果が得られ、リング部でのみ、閉ループコヒーレンスを反映した位相ゆらぎが顕在化することを見出した。

第五章は総括である。

これを要するに、本研究はトポロジーに起因した新物質のコヒーレンス変化を時間分解分光手法により初めて捉えることに成功したものであり、応用物理学、特に物性と技術の新領域開拓に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。