光励起キャリア緩和におけるバンドギャップ効果の 統一解釈

学位論文内容の要旨

光と物質の相互作用を活用した原子・分子・固体の物性制御・物性評価技術は、量子論の完成以前から現在に至るまで各時代の先端分野を支えてきた基盤技術である。1960年にレーザー光発生装置が開発されると、既存理論では説明できない分子・固体の非線形光学応答が数多く観測され、非線形光学と呼ばれる新しい物性研究分野が誕生した。さらに周波数の異なる光の重ね合わせにより発振するパルス光の時間幅がピコ秒またはフェムト秒オーダーの時間スケールになると、分子・固体で発現する超高速現象を対象とする研究分野も誕生した。この超高速現象の研究にはポンプ・プローブ分光法と呼ばれる実験技術が利用され、その適用例は金属におけるエネルギー緩和現象や量子ドットにおけるスピン緩和現象など非常に多岐にわたっている。その中でも最も興味深い超高速現象の一つに、エネルギーギャップを持つ物質において発現する光励起キャリア緩和現象が挙げられる。光励起キャリアとは系にパルス光を入射したときにギャップ上端に生成される励起電子のことであり、そのエネルギー緩和過程にはフォノンボトルネック効果と呼ばれる緩和抑制効果はたらく。この効果に伴い、キャリアの緩和時間はギャップの大きさに反比例する(=転移温度直下で発散する)ことが多くの超伝導物質や密度波物質で実験的に確認されている。しかし理論的予測に反し、緩和時間が転移温度直下で発散しない物質も存在し、既存理論との矛盾は解決に至っていない。さらに後者の物質群では転移温度よりも低温側における緩和時間の温度依存性が、既存理論の帰結と一致しておらず、その統一的な理解には達していないのが現状である。

本論文では、エネルギーギャップを示す物質の光励起キャリア緩和について転移温度直下でキャリア緩和時間の発散・非発散、および低温での単調増大現象を統一的に説明する新規理論を展開する。また、構築した理論の計算結果と実験結果とを比較し、理論の正当性を検証する。本論文は全8章で構成され、各章の概要は以下の通りである。

第1章は序論であり、本論文の主題である光励起キャリア緩和に関する研究の背景を概説する。次に当該研究分野の問題点を明らかにし、本論文の研究目的を述べる。

第2章では、ギャップ形成物質の光励起キャリア緩和に関する理論的研究と実験的研究について説明する。特に、キャリア緩和を抑制するフォノンボトルネック効果について詳しく説明する。この章で既存理論から予測される緩和時間の温度依存性と実験データとを比較することにより、解決すべき理論的課題を再度明確にする。

第3章では、直鎖型 C_{60} 重合体の基礎物性に関する先行研究を述べる。 C_{60} 重合体は温度 $T = 60K$ 以下で電荷密度波ギャップを持つ物質であり、その光励起キャリア緩和時間は $T = 60K$ で発散せず低温で増大する温度依存性を示す。この現象は従来の理論では説明されないため、その発現メカニズムの解明が急務の課題となっている。本章では、この現象

を解明するための手がかりとなる C_{60} 重合体の電子物性とフォノン物性を紹介する。

第4章では、ギャップを持つ系の光励起キャリア緩和現象を統一的に解釈するキャリア緩和理論を構築する。まず、従来のキャリア緩和理論が縦波フォノンモードのみを考慮した不自然なモデルに基づいていることを指摘する。本研究ではその不自然さを解消するため、フォノンモデルに横波モードを取り入れて理論を再構築する。その結果、縦波モードから横波モードへのエネルギー散逸量をパラメータとしたとき、散逸量を増加させると緩和時間の温度依存性は転移温度直下で発散する「発散型」から発散しない「非発散型」へと変化することが明らかになった。また、従来のキャリア緩和理論で導出されていた衝突積分を正しく評価することにより、緩和時間の「低温で単調増大する」現象が再現されることが明らかになった。

第5章では、第4章の理論を直鎖型 C_{60} 重合体のキャリア緩和に関する実験結果に適用する。理論を実験結果に適用するとき、系のフォノン状態密度における限界周波数の値が必要になる。この周波数の値を求めるために、はじめに直鎖型 C_{60} 重合体を構成している円筒チューブ型の一本の一次元ナノ構造を考え、このナノ構造のフォノン状態密度を計算する。次にその状態密度を再現する一次元鎖(一次元格子モデル)をつくる。最後にその一次元鎖を多数本用意し、その鎖間を鎖自体を構成するバネよりも弱いバネで連結させて三次元的な積層構造をつくる。このときのフォノン状態密度から限界周波数を見積もる。以上の準備のもと、直鎖型 C_{60} 重合体のキャリア緩和時間を計算した。その結果、縦波モードから横波モードへのエネルギー散逸を考慮することにより、実験結果が定量的に再現されることが確かめられた。

第6章では、直鎖型 C_{60} 重合体の電荷密度波転移を考察する。転移の発現機構が、系の電子物性およびフォノン物性に作用する幾何形状効果で理解できることを示す。本章前半では直鎖型 C_{60} 重合体を一次元凹凸ナノチューブが束になって凝縮した物質とみなし、凹凸チューブの電子-フォノン相互作用ハミルトニアンを構築する。次に後半では一次元系に特有のフォノンソフト化現象を議論し、Peierls 転移温度の定義を与える。最後に、系を構成する凹凸ナノチューブの幾何形状パラメータや弾性パラメータを適切に設定すると、実験的に報告されている転移温度の値が自然に導かれることを示す。

第7章は本論文の結論である。エネルギーギャップが発現する系の光励起キャリア緩和に関する理論の要約、および理論と実験とを比較した結果を述べる。最後に今後の課題について述べる。一つ目は、本研究で構築したキャリア緩和理論を C_{60} 重合体以外の系で発現する現象に適用し、理論の妥当性を検証することである。二つ目は、直鎖型 C_{60} 重合体の格子構造を決定し、系の電子およびフォノン物性に関する未解決問題を解明することである。

第8章は Appendix である。本章では各章で省略した理論の導出過程を詳述する。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 矢久保 考 介
副 査 教 授 明 楽 浩 史
副 査 教 授 西 口 規 彦
副 査 准教授 戸 田 泰 則

学位論文題名

光励起キャリア緩和におけるバンドギャップ効果の 統一解釈

光と物質の相互作用を活用した固体の物性制御・物性評価技術は、量子論の完成以前から現在に至るまで各時代の先端分野を支えてきた基盤技術である。1960年から続いているパルス光発生装置の研究開発によりパルス幅がフェムト秒オーダーの時間スケールになった現在、固体で発現する超高速現象を対象とする研究分野が誕生している。最も興味深い超高速現象の一つに、エネルギーギャップを持つ物質において発現する光励起キャリア緩和現象が挙げられる。光励起キャリアとは系にパルス光を入射したときにギャップ上端に生成される励起電子のことであり、そのエネルギー緩和過程にはフォノンボトルネック効果と呼ばれる緩和抑制効果がはたらく。この効果に伴い、キャリアの緩和時間はギャップの大きさに反比例する(すなわち転移温度直下で発散する)ことが多くの超伝導物質や密度波物質で実験的に確認されている。しかし理論的予測に反し、緩和時間が転移温度直下で発散しない物質も存在し、既存理論との矛盾は解決に至っていない。さらに後者の物質群では転移温度よりも低温側における緩和時間の温度依存性が、既存理論の帰結と一致しておらず、その統一的な理解には達していないのが現状である。

本論文で申請者は、エネルギーギャップを示す物質の光励起キャリア緩和について転移温度直下でのキャリア緩和時間の発散・非発散、および低温での単調増大現象を統一的に説明する新規理論を展開した。また、構築した理論の計算結果と実験結果とを比較し、理論の正当性を検証した。

本研究の結果、以下の事実が明らかになった。(1) 光励起キャリアの緩和時間の温度依存性は縦波フォノンモードから横波フォノンモードへの単位時間当たりのエネルギー散逸量に強く依存し、散逸量が増大するとき緩和時間は転移温度直下で発散する「発散型」から発散しない「非発散型」へと変化することを明らかにした。(2) 従来のキャリア緩和理論で導出されていた衝突積分を正しく評価することにより、緩和時間の「低温で単調増大する」現象が再現された。(3) 構築された理論は直鎖型 C_{60} 重合体の実験データを定量的に説明した。

本論文は以下のように構成されている。第1章は序論であり、本論文の主題である光励起キャリア緩和に関する研究背景と問題点を概説し、本論文の研究目的を述べている。第2章では、ギャップ形成物質の光励起キャリア緩和に関する理論的研究と実験的研究について説明している。この章で既存理論から予測される緩和時間の温度依存性と実験データとを比較することにより、解決すべき理論的課題を再度明確にしている。第3章では、直鎖型 C_{60} 重合体の基礎物性に関する先行研究を述べている。 C_{60} 重合体の光励起キャリア緩和時間は電荷密度波転移温 $T = 60\text{K}$ で発散せず低温

で増大する温度依存性を示す。本章では、この現象を解明するための手がかりとなる C_{60} 重合体の電子物性とフォノン物性を紹介している。第 4 章では、ギャップを持つ系の光励起キャリア緩和現象を統一的に解釈するキャリア緩和理論を構築している。従来のキャリア緩和理論が不自然なモデルに基づいていることを指摘し、フォノンモデルに横波モードを取り入れた新規理論を構築している。その結果、縦波モードから横波モードへのエネルギー散逸量をパラメータとすることにより、転移温度直下での緩和時間の発散・非発散および低温での単調増大現象が再現されることが明らかになっている。第 5 章では、第 4 章の理論を直鎖型 C_{60} 重合体のキャリア緩和に関する実験結果に適用している。系のフォノン状態密度における限界周波数の値を近似的に見積もった後で直鎖型 C_{60} 重合体のキャリア緩和時間を計算し、計算結果が実験結果を定量的に再現することを確かめている。第 6 章では、直鎖型 C_{60} 重合体の電荷密度波転移を考察している。転移の発現機構が、系の電子物性およびフォノン物性に作用する幾何形状効果で理解できることが示されている。第 7 章は本論文の結論と今後の課題について述べられている。第 8 章は Appendix であり、各章で省略された理論の導出過程が詳述されている。

これを要するに著者は、エネルギーギャップが発現する系の光励起キャリア緩和に関する新規理論を構築し実験結果を定量的に説明することで、物性物理学と超高速光学に対する深い理解と新たな知見を得たものであり、応用物理学に対して貢献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。