

モット絶縁体である有機一次元物質の光キャリアダイナミクスの直接観測

最近、光照射によって物質の電子構造や物性が変化する現象が様々な物質で見出されている。この現象は光誘起相転移と呼ばれており、光物性物理学の新しいトピックスとして活発に研究されている。典型的な現象の一つに、光照射によって絶縁体が金属に変わる現象がある。例えば、モット絶縁体と呼ばれる物質に光を照射すると、瞬時に金属状態への転移が起こり、ピコ秒（1 ピコ秒は 10^{-12} 秒）の時間スケールで元の絶縁体状態に戻ることが知られている。モット絶縁体のこのような超高速応答は、通常の半導体では得ることができないものであり、将来の光スイッチングの動作原理としても期待されている。しかし、その超高速応答のダイナミクスや物理的機構は、十分に解明されていないのが現状である。

東京大学の岡本博氏らのグループは、モット絶縁体である有機一次元物質系において、光照射によって生じる伝導キャリアのダイナミクスを 40 フェムト秒（1 フェムト秒は 10^{-15} 秒）という高い時間分解能で調べた。その結果、伝導キャリアの緩和および消滅のダイナミクスが電子格子相互作用の大きさに応じて系統的に変化すること、また、電子格子相互作用が弱い物質では“絶縁体 金属 絶縁体”という変換（スイッチング）が 200 フェムト秒という極めて短い時間で起こること、を明らかにした。この研究は、日本物理学会発行の英文誌「Journal of Physical Society of Japan」2008 年 11 月号に掲載される。

電子間に強いクーロン反発が働く系は強相関係と呼ばれ、遷移金属酸化物やある種の有機物質がこれに属する。この強相関係は、高温超伝導や巨大磁気抵抗をはじめとして興味

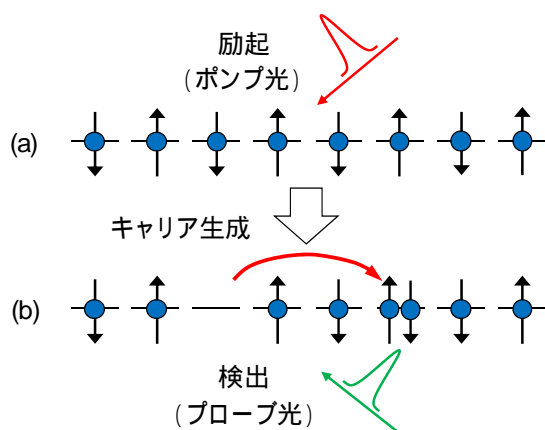


図 1 一次元モット絶縁体の電子状態(a)と光励起によるキャリア生成(b)の概念図。本研究で用いられたポンプ-プローブ分光は、ポンプ光の照射によって生じる金属化や光キャリアのダイナミクスを、プローブ光の反射率変化によって検出する手法である。

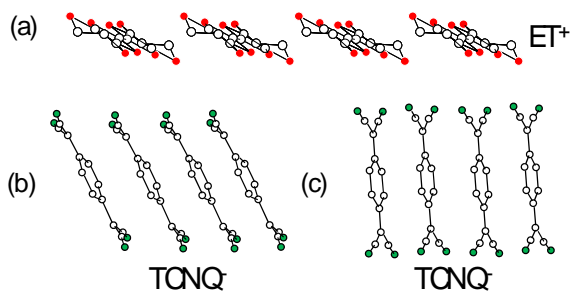


図 2 一次元モット絶縁体、(a) ET-F₂TCNQ、(b) Rb-TCNQ、(c) K-TCNQ の一次元的分子積層構造。

深い伝導性や磁性を示すことから、活発な研究が行われてきた。その舞台となるのが、モット絶縁体と呼ばれる電子構造である。各分子の軌道に一つの電子がいるとき、隣り合う分子間の軌道の重なりが大きい場合には電子は分子間を容易に移動することができるため金属になる。一方、軌道の重なりが小さい場合は、分子上での電子間のクーロン反発が重要になり、電子はクーロン反発を避けるように各分子に局在して絶縁体となる（図 1(a)）。これが、モット絶縁体である。モット絶縁体にキャリアドープを行い電子の数を変化させると、電子がクーロン反発を受けずに分子間を移動できるようになり金属に転移することが知られている。岡本氏らのグループは、これまで、この絶縁体-金属転移が光照射によっても引き起こされることを実証してきた。光を照射すると図 1(b)のように電子が別の分子に励起されるが、これは電子と正孔（キャリア）の注入に相当するため金属化が起こり得る。しかし、すべてのモット絶縁体が光照射によって金属になるわけではない。注入されたキャリアが、電子格子相互作用によって周りの分子変位を誘起し、安定化して動きにくくなってしまふこと（ポーラロン形成）もしばしば生じる。

本研究では、電子格子相互作用がこの順で大きくなる三種類の一次元モット絶縁体 ET-F₂TCNQ、Rb-TCNQ、K-TCNQ（図 2）について、時間幅約 25 フェムト秒のレーザーパルス光を用いたポンプ-プローブ分光と呼ばれる手法によって、光キャリアのダイナミクスが詳細に調べられた。電子格子相互作用は、分子面と一次元鎖方向の角度が小さくなるにつれ抑制される傾向にある（図 2）。電子格子相互作用が小さい ET-F₂TCNQ では、光照射によって瞬時に金属化が生じ、その金属状態は 200 フェムト秒という極めて短時間でもとの絶縁体状態に戻る。一方、Rb-TCNQ および K-TCNQ では、光照射によって生じたキャリアは 70 フェムト秒の時定数でただちに局在化し、約 0.8 ピコ秒（Rb-TCNQ）および約 1.3 ピコ秒（K-TCNQ）の時定数で対消滅することがわかった。この 70 フェムト秒という時間は、キャリアを局在化させる分子変位に対応する格子振動の周期に関係している。また、キャリア消滅の時定数は、電子格子相互作用が大きくなり、キャリアの局在性が強まるにつれて長くなるものと解釈できる。

今回の研究に用いられたポンプ-プローブ分光の時間分解能は約 40 フェムト秒であり、これまで広く使われてきたポンプ-プローブ分光の時間分解能（約 200 フェムト秒）に比べて高くなっている。この高い時間分解能が可能にした、有機一次元モット絶縁体に対する光キャリアダイナミクスの実時間観測の結果は多くの研究者から注目を集めている。今後、さらに高い時間分解能の測定を行うことにより、様々な強相関係物質の伝導電子のダイナミクスが解明されるものと期待される。

論文掲載誌: J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) No.11, p. 113714

電子版: <http://jpsj.jpap.jp/>

< 情報提供: 岡本 博 (東京大学) >