

低次元物質の光励起状態と 光学応答に関する理論的研究

—物質の新しい存在様式を光で探り光で創る—

小川 哲生

大阪大学大学院 理学研究科 教授



物質と光との相互作用に起因する諸現象を理論的解明することにより、光学応答の理解を微視的立場からすすめ、光エレクトロニクス分野への応用に役立つ基礎的知見を得ることが、本研究を貫く問題意識です。本研究には、物質の光励起状態、特に励起子系の動的光学応答の解明という一本柱が通っていますが、光の使い方に関して、さらに二つの研究テーマに大別されます。

テーマA: 従来のレーザー分光学や光物性物理学のように、物質の電子状態やフォノン状態の知見を得るために、光を物性の《プローブとして》用いる立場。

テーマB: 物質の諸性質を光で制御したり、光照射によって新たな物質相を創成するような、物質に対する《より積極的な役割》を光に担わせる立場。

私は、これら双方を研究してきました。その概要をご紹介します。

テーマAの研究: 低次元励起子系の動的応答

励起子と呼ばれる光励起状態の解明とその状態の線形および非線形応答の解明が本テーマの中心です。半導体微細加工技術と結晶成長制御法の進展により、バルクのみならず薄膜・細線・微小球などの低次元半導体が作成されるようになりました。電子のド・ブロイ波長やフェルミ波長と同程度まで小さいサイズの低次元結晶では、いわゆる「量子閉じ込め効果」が顕著になり、バルクでは得られなかった新しい物性出現すると思われています^[1]。この量子閉じ込めが、励起子という素励起にどのような効果をもたらすのか、励起子が低次元空間に複数個あるいは多数個存在する系で何が起こるか、これらを理論的に明らかにすることが本テーマを貫く支柱です。

1個および2個の励起子系と 励起子非線形光学応答の理論

擬1次元半導体(量子細線)での励起

子散乱状態の応答を初めて議論し^[2]、バルクや擬2次元系と定性的に極めて異なる擬1次元励起子固有の特徴を明らかにしました。GaAs量子細線やポリシラン鎖結晶では、本理論結果と実験結果とが定量的に比較検討され、1次元励起子の特徴が明確に確認されています。また、非線形応答が励起子の低次元性の峻別に本質的に重要であることを指摘し、低次元半導体特有の励起子2光子吸収の偏光方向依存性を理論的に予測しました^[3]。これも実験で検証されています。さらに、低次元系での励起子分子問題を2バンドハバードモデルの数値厳密対角化法で考察し、励起子分子サイズの大きなワニエ極限から、電子-正孔束縛の強いフレンケル極限までを連続的に追跡できるようになりました。

高密度の電子と正孔とが共存する 1次元系の量子秩序相形成の理論

1次元半導体を光で強励起した場合の「高密度電子-正孔系」の非平衡相図を、可解な2バンド朝永-ラッティンジャーモデルを用

いて明らかにしました^[4]。これによって、多励起子系固有のポーズ-アインシュタイン凝縮(エキシチック相)と正孔の電荷密度波・スピン密度波との競合の様子が分かりました。

1次元金属の光学応答理論と 多体励起子描像の構築

低次元金属中での励起子(Mahan励起子)の応答問題に取り組んだ研究です。朝永-ラッティンジャー流体での電磁応答のべき特異性(フェルミ端特異性と呼ばれます)が初めて明らかにされました^[5]。また、光吸収過程と(内殻)光電子放出過程での励起子効果とスペクトル異常の違いも解明されました^[6]。

励起子ボソン化法の開発と 励起子非線形性の起源の解明

3次の非線形光学応答には、励起子-励起子相関が非常に強く効いています。そこで、2次元1s励起子状態の非線形応答への寄与を、励起子の純ボソンからのずれを正

しく取り扱うことのできるボゾン化法を開発して考察しました^[7]。この手法を用いると、相互作用するフェルミ粒子系(励起子系)を相互作用するボゾン系に厳密に写像することができます。そこには、励起子が電子と正孔との複合粒子であることから生じる非ボゾン性、パウリ排他律、電子(正孔)間相互作用とが正しく含まれ、光学的3次非線形性の起源を分類することができます。

テーマBの研究: 光誘起相転移現象の理論

特定の波長や強度の光(レーザー光)を物質に照射すると、物質全体の性質(色などの光学的性質、電気伝導などの輸送現象、磁性、誘電性など)が劇的に変化する現象「光誘起相転移」が最近注目されています。非平衡統計物理学からの視点だけではなく、光スイッチや光メモリなどへの応用の観点からも注目を浴びつつあります。電子-格子系での光誘起相転移には、¹非平衡(光励起)状態を経由した相転移現象と、²非平衡(光励起)状態での相転移現象の二種類のタイプがあります。この差異を初めて明確に指摘し、それぞれの新しい研究フロンティア領域を切り開きました。前者は、1次元電荷移動錯体などの低次元多重安定系で観測されている光誘起相転移です。このような多重安定な低次元電子-格子系で観測されている光誘起相転移現象では、光励起状態の局所的領域が生成され、相互作用を通じた協力的現象によって、大域的な励起

領域に次第に移り変わっていく過程が重要です。後者の光誘起相転移は、光で強励起した化合物半導体、アルカリ(銅)ハライド結晶などで観測されています。特に、多数の励起キャリアや励起子がお互いにクーロン相互作用しながら、有限寿命の下で相分離過程や凝縮過程を示す点に関心が集まっています。

今後の「光」物理学

周波数、波数(指向性)、強度、時間のいずれにおいても制御性の極めて高いレーザー光の物質プローブとしての重要性は、今後も減ることはないと思われます。むしろ今後は、上記のテーマBのような、光と物質系との「対等の共存」によって、新しい物質状態を創成する研究がさらに展開するのではないのでしょうか。物質への光照射は、物質の励起状態を生成しその性質を探るという意味があるだけではありません。光照射によって、物質の「見かけの基底状態(false vacuum)」を一旦壊すことにより「真の基底状態(true vacuum)」を探索すること、それによって物質の現存在様式の由来を明らかにしうること、という《メタな立場》からの物性研究を可能とする大きな意味があるはずです。

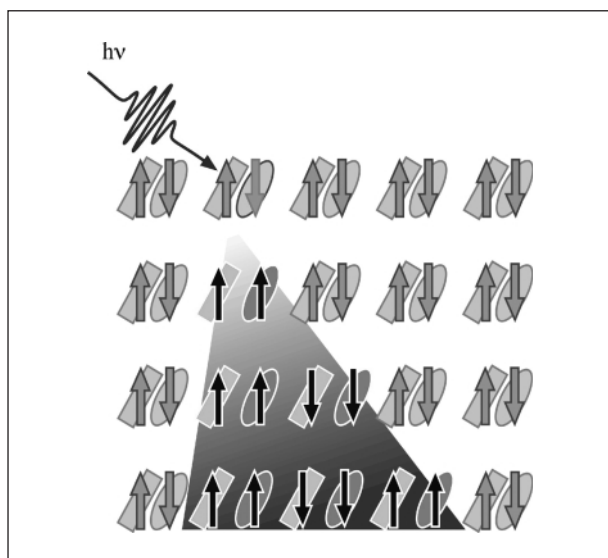


図 有機1次元電荷移動錯体での「光誘起中性-イオン性転移」を想定した光誘起ドミノ倒し過程の概念図

補足説明

1 光励起状態を経由した相転移ダイナミクス:光誘起ドミノ倒し過程の理論

非平衡(励起)状態を経由した相転移現象において、結晶構造・電子構造・スピン状態の変化を伴う局所的な光励起状態領域が生成され、それらが大域的な「相」にどのように移行変わっていくのか、その条件は何かを明らかにしました。この現象は、電子励起状態を経由した(非平衡)1次相転移現象の量子ダイナミクスの典型例であり、その初期過程は「ドミノ倒し過程」で記述されます【8,9】。多重安定系での非平衡協力的現象における光誘起核生成過程の発現条件とダイナミクスを、視覚的にわかりやすく明らかにしました。海外との共同研究にまで発展しています。

2 光励起状態での相転移ダイナミクス:有限寿命系の相分離ダイナミクスの理論

非平衡光励起状態での相転移・相分離を議論するモデルとして、励起子のような寿命を伴う粒子のスピン-ダル分解ダイナミクスを追跡する理論を構築しました。本理論では、平均場描像では落とされている空間相関情報(空間揺らぎ効果)も取り入れ、寿命による粒子消滅と光照射による粒子生成の効果を考慮したのが新しい点です。本研究では、Ginzburg-Landau-Wilson流古典現象論を基にした取り扱いと、「格子気体モデル」を基にした取り扱い【10】の双方を行って理論的枠組みを完成し、数値計算によりダイナミクスを追跡しました。

References(参考文献)

- 【1】 T. Ogawa and Y. Kanemitsu, Optical Properties of Low-Dimensional Materials, Vols. 1 and 2, (World Scientific, Singapore, 1995 and 1998).
- 【2】 T. Ogawa and T. Takagahara, "Optical absorption and Sommerfeld factors of 1D semiconductors: An exact treatment of excitonic effects", Phys. Rev. B, vol.44, pp.8138, 1991.
- 【3】 A. Shimizu, T. Ogawa, and H. Sakaki, "Two-photon absorption spectra of quasi-low-dimensional exciton systems", Phys. Rev. B, vol.45, pp.11338, 1992.
- 【4】 T. Ogawa, "Photoinduced Fermi-edge singularity in 1D semiconductors", Phys. Stat. Sol. (b), vol.188, pp.83, 1995.
- 【5】 T. Ogawa, A. Furusaki, and N. Nagaosa, "Fermi-edge singularity in one-dimensional systems", Phys. Rev. Lett., vol.68, pp.3638, 1992.
- 【6】 T. Ogawa, "Spectral singularities in 1D electron liquids", Mater. Sci. & Engineering B, vol. 48, pp.131, 1997.
- 【7】 S. Okumura and T. Ogawa, "Boson representation of two-exciton correlations: An exact treatment of composite-particle effects", Phys. Rev. B, vol.65, pp.35105, 2002.
- 【8】 T. Ogawa, "Domino mechanisms in photoinduced phase transitions", Phase Transitions, vol.74, pp.93, 2001.
- 【9】 小川哲生, 越野和樹, "光誘起ドミノ倒し過程の理論", 表面科学, 第23巻, pp.695, 2002.
- 【10】 A. Ishikawa and T. Ogawa, "Dynamics of spinodal decomposition in finite-lifetime systems", Phys. Rev. E, vol.65, pp.26131, 2002.