

## テラヘルツパルス光を用いた遷移金属酸化物の光励起状態と光キャリアダイナミクスに関する研究

著者	寺重 翼
学位授与年月日	2017-03-23
URL	<a href="http://doi.org/10.15083/00076112">http://doi.org/10.15083/00076112</a>

# 論文審査の結果の要旨

氏名 寺重 翼

近年のフェムト秒レーザー技術の進歩によって、テラヘルツ領域のパルス光（テラヘルツ光）を発生・検出することが可能になり、それを物性研究へ利用しようという試みが盛んに成りつつある。固体中を運動するキャリアの光学応答は、主にテラヘルツ領域に現れる。したがって、テラヘルツ分光は、キャリアの性質を調べる上で極めて有効である。また、テラヘルツ光は、位相が一定のほぼ単一サイクルの電場パルスとして得ることができる。そのため、強度が高いテラヘルツ光を使えば、固体にサブピコ秒の時間だけ数 100 kV/cm の強電場を印加することが可能であり、それを物質の電子状態制御に利用する試みも開始されている。

本論文では、チタン酸化物および銅酸化物にテラヘルツ分光を適用し、光キャリアのダイナミクスや励起子効果の機構を調べた結果が述べられている。チタン酸化物は、光触媒としての機能を有する。一方、銅酸化物は、光キャリアの高速緩和や大きな三次光非線形性といった通常の半導体では得られない特異な光学応答を示す。そのため、これらの遷移金属酸化物において、光機能性に関する光キャリアダイナミクスや励起子効果を明らかにすることは重要な課題である。

光キャリアのダイナミクスを調べるには、可視光を励起（ポンプ）光とし、テラヘルツ光をプローブ光としたポンプ・プローブ分光が有効である。しかし、一般的な方法、すなわち、時間幅 100 フェムト秒の近赤外パルス为非線形光学結晶に入射する方法で得られるテラヘルツ光は、帯域が 2.5 THz 以下に限られるため、広帯域の分光には不十分である。そこで、本研究では、時間幅 25 フェムト秒の近赤外パルスを用いた空気発生法を採用し、より広帯域のテラヘルツ光を発生させ、上記の遷移金属酸化物の光キャリアダイナミクスを調べた。一方、光励起状態における励起子効果を明らかにするには、テラヘルツ光をポンプ光とし、可視-近赤外光をプローブ光としたポンプ・プローブ分光が有効である。この手法では、テラヘルツ光による非線形光学効果を通して、励起子準位に関する知見を得ることができる。本研究では、この手法によって、銅酸化物における励起子効果の起源が調べられた。

本論文は5章からなる。第1章には、序論として、研究の背景知識と先行研究、研究の目的、論文の構成が述べられている。第2章には、試料作成と光ポンプ・テラヘルツプローブ、および、テラヘルツポンプ・光プローブ分光測定系の構築と手法の概要が説明されている。

第3章には、最初に、新規に構築した光ポンプ・テラヘルツプローブ分光測定系を用いて、シリコンの光キャリアによる光学伝導度スペクトルを測定した結果が述べられている。スペクトルの解析から、光キャリアの散乱機構に関する情報を引き出せることが実証された。次に、この手法をアナターゼ型チタン酸化物に適用し、光学伝導度スペクトルを求めた結果が示され、光キャリアの散乱確率に周波数依存性があること、高周波領域の散乱にはチタンと酸素の伸縮振動が重要な役割を果たしていることが明らかにされた。最後に、同じ手法を高温超伝導体の母物質であるモット絶縁体相の銅酸化物に適用した結果が

示されている。結果の解析から、キャリア密度が非常に低い場合にも、テラヘルツ領域にドラーデ的な応答が現れることが明らかとなった。

第4章には、テラヘルツポンプ・光プローブ分光を銅酸化物に適用し、テラヘルツ電場による反射率変化スペクトルから励起子準位構造を解明した結果が述べられている。ここでは、偶と奇の二つの励起子準位の分裂が励起子の束縛エネルギーに対応することが示された。また、束縛エネルギーの物質依存性から、励起子の束縛がスピン間相互作用に起因することが明らかにされた。さらに、理論研究との比較から、偶の励起子がs波的であり、奇の励起子がp波的であることが指摘され、励起子状態がキャリアドーピングによる超伝導状態と対比して議論された。

第5章には、本論文の総括が述べられている。

なお、第3章については、岡本博、矢田祐之、松井裕太、宮本辰也、貴田徳明、内田隆介、松崎弘幸（東京大学）、澤彰仁（産総研）、Bingsheng Li（ハルビン大）各氏との共同研究、第4章については、岡本博、矢田祐之、宮本辰也、森本剛史、山川大路、小野貴晃、貴田徳明（東京大学）、遠山貴巳（東京理科大）、伊藤利充（産総研）、笹川崇男（東工大）各氏との共同研究であるが、いずれも論文提出者が主体となって研究を遂行したもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上から、本論文は、テラヘルツ分光法の発展に寄与するとともに、遷移金属酸化物の光機能性の鍵となる光キャリアの性質や励起子効果の解明に大きく貢献するものである。したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。

以上1985字