

論文の内容の要旨

論文題目: テラヘルツ分光法による励起子モット転移近傍の

電子正孔相関の研究

(Electron-Hole Correlation around Exciton Mott

Transition Investigated by Terahertz Spectroscopy)

関口 文哉

半導体に対してバンドギャップを超える光を照射すると、正負の電荷対=電子と正孔の対励起が起こる。対励起が高密度に起こると、半導体中には互いにクーロン相関し、全体として電荷中性な電子正孔の多体系ができる。この系はその温度・密度に応じて多様な相をとり、凝縮系物理に普遍的な多くの現象を内包しているが、中でも励起子モット転移は非常に基礎的で興味深い問題である。本研究は励起子モット転移の性質を解明することを目的としている。

低温・低密度領域では電子と正孔がクーロン引力によって水素原子様に束縛した励起子が形成される。励起子は電荷中性の擬ボソンであり、励起子相は絶縁的である。一方、密度が増加し平均粒子間距離が減少すると励起子は不安定化し、高密度領域では金属的な電子正孔プラズマとなる。高密度領域での励起子の解離は、クーロン相互作用が遮蔽効果によって実効的に短距離化するために生じると考えることができる。この励起子相から電子正孔プラズマ相への移り変わりを励起子モット転移と呼ぶ。励起子モット転移は、クーロン相互作用の変化により引き起こされる絶縁体金属転移という、物性物理において非常に基礎的な現象である。更に、電子正孔の対相関という観点からみると、低密度励起子相、高密度プラズマ相はそれぞれ強結合・弱結合領域であり、励起子モット転移は **BEC-BCS** クロスオーバー（凝縮系に普遍的な現象であり、電子正孔系においても長い探究の歴史がある）を考える上での基礎を与える。

励起子モット転移の研究には長い歴史があるが、その転移の性質について、すなわち励起子から電子正孔プラズマへの移り変わりが相転移なのかクロスオーバーかといった問題や、モット転移密度では電子正孔の相関はどうなっているかという問題は、未だに明らかになっていない。本研究ではこの問題の実験からの解明を目指し、テラヘルツ分光法を用いた実験を行った。典型的な半導体において、電子正孔相関の重要なエネルギースケール、すなわち励起子の束縛エネルギーや電子正孔プラズマのプラズマ周波数は meV の低エネルギー領域に存在するため、テラヘルツ分光法を用いれば相の移り変わりを敏感に峻別できる。さらにテラヘルツ分光法の強力な点は、ピコ秒程度の時間分解能で、電子正孔系の複素誘電率をクラマース-クロニツヒ変換なしで決定できることである。

励起子モット転移については過去に多くの理論的・実験的研究が成されてきたが、そのほとんどが有限温度・準熱平衡での性質を対象としてきた。従来の描像では、キャリア密度が増加すると、クーロン力が遮蔽されることにより励起子の束縛エネルギー E_b が連続的に減少していき、 $E_b = 0$ となった密度でモット転移に至ると考えられていた。しかし、近年これに反する実験結果が報告され、議論になっている。そこで本研究では Ge を用いて、有限温度・準熱平衡での励起子モット転移の観測を行った。Ge は間接遷移型半導体であり、光励起キャリアがマイクロ秒程度の長い寿命を持つため、電子正孔系は寿命内に格子系との準熱平衡に到達する。比較的高温の領域($k_B T/E_b > 0.2$)で、伝導度、誘電率スペクトルの密度・温度依存性を調べ、さらに各スペクトルに対してドルーデ-ローレンツモデルによるフィッティングを行い、励起子と電子正孔プラズマの各密度を求めた。これにより、モット転移において本質的な量である励起子イオン化率 α を実験的に決定することができた。測定した温度領域では、 α の密度依存性は連続的であり、励起子モット転移はクロスオーバーとして観測された。さらに、得られた α を温度-密度相図上にマップし、励起子相関が強く現れる領域を調べた。その結果、高温・低密度ではエントロピーの効果によって、低温・高密度ではモット転移によってイオン化率が高くなり、励起子が安定な領域は低温・低密度の領域に限定されていることが明らかになった。また、一連の測定において、モット転移近傍まで密度が上昇しても、励起子の $1s-2p$ 遷移エネルギーはほとんど変化しないことが分かった。この観測結果は、励起子束縛エネルギーの連続的な減少を考える従来の描像とは相容れないものであり、励起子相関の性質が遮蔽効果に対して堅牢であることを示唆している。この性質は Ge に限らず、他の物質系での観測結果と併せて、半導体電子正孔系に普遍的なものであると考えられる。

モット転移についてさらに興味深い問題として、古くはランダウやモット自身が議論しているように、長距離のクーロン力が働く系では低温でモット転移が1次転移になるという予想がある。また、近年の理論計算からは温度-密度相図上で極低温のモット転移点近傍に空間不均一性を伴う特異な領域が存在することが示唆されている。このようなモット転移の異常性に実験から迫るため、本研究では励起子共鳴励起に着目した。直接遷移型半導体の励起子 $1s$ 準位を共鳴的に光励起した場合、 $1s$ 励起子のみが高密度に存在する状態が初期状態として生成される。熱的に励起された電子正孔プラズマ成分がないことを考えると、この状況は極低温の励起子高密度状態と捉えることができ、極低温でのモット転移と対比することができる。

実験に用いた試料は直接遷移型半導体である **GaAs** であり、結晶の基底状態から励起子状態への光学遷移が大きな振動子強度を持つため、共鳴励起により高密度に励起子を生成できる。光励起には $4f$ 光学系とスリットにより、再生増幅器からの超短パルスレーザーを狭線幅化・波長選択した光パルスを用いた。本研究の特徴は、弱い電場強度と強い電場強度をもつ2種類のテラヘルツプローブを用いて、電子正孔相関の効果を実験的に抽出する点である。弱い電場強度をもつテラヘルツ波で系をプローブすると、励起子と電子正孔プラズマの両方の寄与を含む線形応答の複素誘電率スペクトルが得られるが、 3 kV/cm 程度の強い電場強度をもつテラヘルツ波によってプローブすると系の応答は自由な電子正孔プラズマのものが得られる。これは、強いテラヘルツ電場の印加によって **GaAs** の励起子が完全にイオン化していることを反映している。この現象に着目し、測定から得られる伝導度・誘電率スペクトルのプローブテラヘルツ電場強度に依存した変化を見ることで、電子正孔相関効果が応答関数に与える影響を抽出できることが明らかになった。この手法を用いて、まず非共鳴バンド間励起後のキャリアダイナミクスを調べたところ、励起直後の電子正孔プラズマが時間とともに冷却され、 1 ns スケールの時間をかけて励起子が形成される様子を観測することに成功した。

次に、励起子共鳴励起でのモット転移を観測した結果、モット密度を超えた高密度領域において、異常金属的な状態 (**CM**) が実現することが示唆された。**CM** は自由なドルーデ的金属に比べ、低エネルギーの伝導度スペクトルウェイトが抑制され、その分が高エネルギー側へ移行している。拡張ドルーデモデルを用いた解析では、**CM** の特徴は質量増強や散乱率の特殊な周波数依存性として観測された。さらに、格子温度が 60 K を超える高温の領域では、**LO** フォノンによる温度上昇によって **CM** が失われることも分かり、**CM** は励起子共鳴励起によって低温で実現する特異な電子正孔相関の現れであることが分かった。加えて、**CM** の形成・消失のダイナミクスを調べた結果、その実現は過渡的であることが明らかになった。**CM** は数十から数ピコ秒程度の有限の時間をかけて形成され、その後比較的長い時間をかけて消失するが、それぞれの時間は高密度ほど

速くなることが分かった。CMの形成は、長く議論されてきた未解決問題であるモット転移の低温での特異性の現れであり、冷却原子系から強相関物質まで広範な凝縮系物理に新たな視点を与えるものと考えられる。