

2021 年 2 月 15 日

報道関係者各位

国立大学法人筑波大学

光が引き起こす励起子の超高速ダイナミクスの機構を解明

半導体や絶縁体などの固体物質の中では、負の電荷を持つ電子と正の電荷を持つ正孔が互いの引力によって結びつき束縛された励起子と呼ばれる状態が生成されることがあります。本研究では、アト秒(10 の 18 乗分の 1 秒)時間分解ポンプ・プローブ分光実験をフッ化マグネシウム(MgF₂)単結晶に適用し、光が引き起こす励起子の超高速なダイナミクスを高い時間分解能で観測することに成功しました。

これにより、光が誘起する励起子のダイナミクスには二つの時間スケールの現象が共存していることが明らかとなりました。一つは励起子ダイナミクスを駆動する光の周期よりも長い時間スケールで生じる現象で、もう一つは光の周期よりも短い時間スケールの現象です。

微視的な数値シミュレーションにより解析を進めたところ、励起子は、長い時間スケールでみると、電子と正孔が結びついた「原子」のような振る舞いを示す一方、短い時間スケールにおいては、電子と正孔がそれぞれ空間内を自由に移動する「固体物質」的に振る舞うことが分かりました。

本研究で明らかとなった、超高速励起子ダイナミクスにおける励起子の二面性（原子的性質と固体的性質の共存）は、励起子を光制御することで物質の様々な性質を得るための、新しい方法論の可能性を示唆しています。

研究代表者

筑波大学計算科学研究センター

佐藤 駿丞 助教

研究の背景

固体物質の内部では、負の電荷を持った電子と正の電荷を持った正孔という二種類の荷電粒子が運動しており、これらの粒子の振る舞いによって、電気伝導性や光学特性など様々な物質の性質が決まります。また、物質中に生じた電子と正孔が互いの引力によって結びついて束縛された状態は励起子と呼ばれ、物質の性質に大きな影響を与えることがあります。これまでの研究では、強い光によって固体物質内の電子や正孔の運動を駆動し、物質の性質を制御しようという試みが、盛んに研究されてきました。このような取り組みは、将来の光エレクトロニクス技術の基盤となるものですが、電子と正孔の束縛状態である励起子が、強い光の下でどのようなダイナミクスを示し、その背後にはどのような物理的機構があるのかということについては未解明です。今回、本研究チームは、時間分解ポンプ・プローブ分光実験と微視的数値シミュレーションにより、光が誘起する励起子の超高速ダイナミクスの微視的機構に迫りました。

研究内容と成果

本研究では、時間分解ポンプ・プローブ分光法をフッ化マグネシウム(MgF_2)の単結晶に適用し、固体内に引き起こされる超高速な励起子のダイナミクスの実時間観察を行いました。ポンプ・プローブ分光法は、ポンプ光（強い光）のパルスによって励起子のダイナミクスを駆動し、そのダイナミクスを、プローブ光（弱い光）のパルスによって観測する実験手法で、励起子の挙動を、アト秒(10^{-18} 秒)の時間分解能で観察することができます（参考図1）。この実験から、強い光によって駆動された励起子のダイナミクスには、二つの時間スケールの現象が共存していることが分かりました。一つは励起子ダイナミクスを駆動する光の周期よりも長い時間スケールで起きる遅い現象で、もう一つは光の周期よりも短い時間スケールで起きる速い現象です。

これら二つの時間スケールの現象の物理的な発生機構を明らかにするために、量子力学に基づく数値シミュレーションを行いました。励起子は、互いに逆符号の電荷を持つ電子と正孔の束縛状態であるため、電子と原子核が結合した原子のようなものとして理解されることがありますが、数値シミュレーションの結果、この「原子的性質」が遅い時間スケールの現象を支配していることが明らかとなりました。また対照的に、電子と正孔が空間内を自由に動き回る「固体的性質」が速い時間スケールの現象を支配していることが、シミュレーションの結果から明らかとなり、励起子の超高速なダイナミクスにおいて、「原子的な性質」と「固体的な性質」が共存していることが分かりました（参考図2）。

今後の展開

本研究により明らかとなった、励起子における「原子的な性質」と「固体的な性質」の共存は、励起子を光制御するための新しい方法論の可能性を示唆するものであり、物質の様々な性質を超高速に制御する技術につながると期待されます。

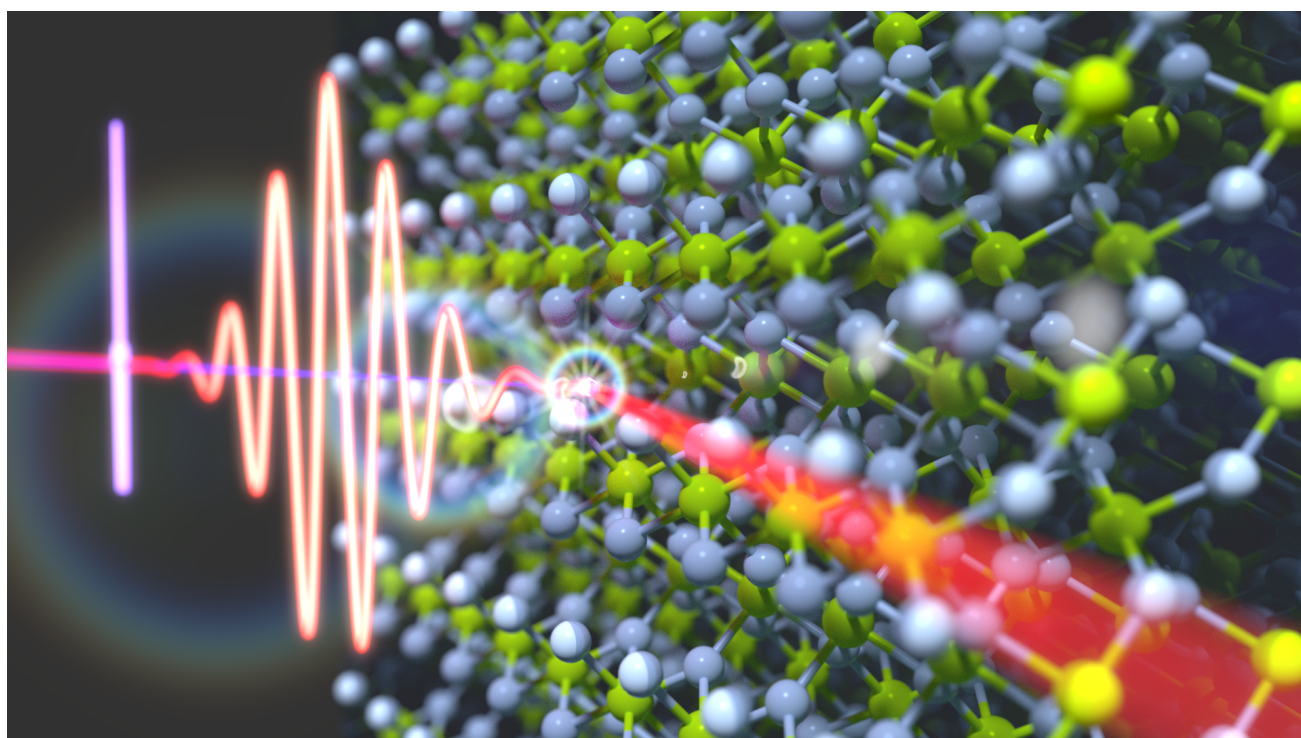
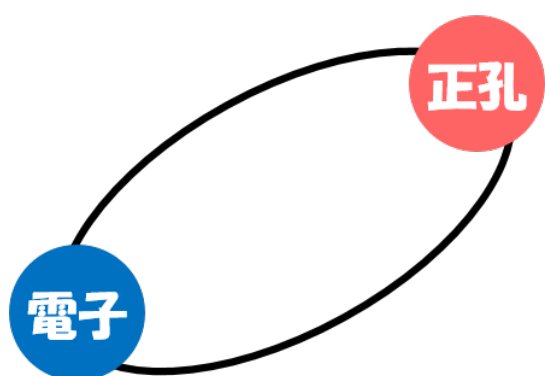


図1 本研究に用いたポンプ・プローブ分光実験の模式図。図左には実験に用いられる二つの光パルス(赤と青の波形)が示されており、光のパルスがフッ化マグネシウム(MgF_2)の単結晶の表面で反射されている様子が描かれている。©Matteo Lucchini, Politecnico di Milano

原子的振る舞い



固体的振る舞い

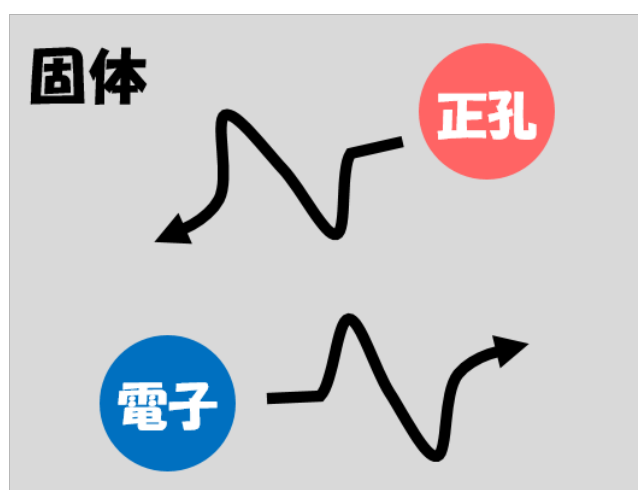


図2 励起子の原子的振る舞いと固体物質的振る舞いの模式図。

研究資金

本研究は、European Research Council (ERC) under the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme (Grant Agreement No. 848411 title AuDACE)、MIUR PRIN aSTAR (Grant No. 2017RKWTMY)、European Research Council (ERC-2015-AdG-694097)、Grupos Consolidados UPV/EHU (IT1249-19)の研究プロジェクトの一環として実施されました。

掲載論文

【題 名】 Unravelling the intertwined atomic and bulk nature of localised excitons by attosecond spectroscopy.

(アト秒分光法による局在励起子の織り合わされた原子的性質と固体的性質の解明)

【著者名】 Matteo Lucchini, Shunsuke A. Sato, Giacinto D. Lucarelli, Bruno Moio, Giacomo Inzani, Rocío Borrego-Varillas, Fabio Frassetto, Luca Poletto, Hannes Hübener, Umberto De Giovannini, Angel Rubio, Mauro Nisoli

【掲載誌】 Nature Communications

【掲載日】 2021 年 2 月 15 日

【DOI】 10.1038/s41467-021-21345-7

問合わせ先

【研究に関すること】

佐藤 駿丞 (さとう しゅんすけ)

筑波大学計算科学研究センター 助教

URL: https://shunsuke-sato.github.io/page/index_ja.html

【取材・報道に関すること】

筑波大学計算科学研究センター 広報・戦略室

TEL: 029-853-6260