

ナノカーボンのディラック電子=フォノン間相互作用 ダイナミクス

片山 郁文* (横浜国立大学工学研究院)

武田 淳 (横浜国立大学工学研究院)

北島 正弘 (横浜国立大学工学研究院, (株)ルクスレイ)

超短パルスレーザー技術の進展により、1パルスの包絡線内に数サイクルの電磁波しか含まない極短パルスが、マイクロ波領域だけでなく、テラヘルツ領域、近赤外～可視光領域、さらには、紫外・X線領域でも得られるようになってきた。これらを光源として、原子・分子、液相・固相物質中の電子や原子核の光応答を、光の振動周期に匹敵する非常に短い時間分解能で捉えることが可能になっている。さらに、パルス光の高い電場強度に起因する物質の極限的な非線形光学応答も、様々な周波数領域で観測されるようになってきた。パルス内の各周波数成分を変調して、化学反応や凝縮系の物性を自在に制御するといった試みも視野に入ってきている。

時間と周波数(エネルギー)の不確定性関係から、このようなパルスの周波数帯域は極端に広く、現在では1オクターブ(周波数で2倍)以上のスペクトル幅を持つ光源も実現されている。これに伴って、従来のポンププローブ分光法において行われていたようにプローブ光全体の強度を測定して反射率・透過率などの時間変化を調べるだけではなく、プローブ光をエネルギー分解してスペクトル情報も含めた実験を行うことで、分子や物質の共鳴吸収などの変化が超短時間分解能で得られるということが分かってきた。この手法では物質と相互作用した後の広帯域光を周波数分解するため、あらかじめ狭帯域のパルスを物質に入射した場合は異なり、周波数分解によって時間分解能が悪化することはない。そのため短い時間分解能と高い周波数分解能を両立することが可能となる。

このような分光が効果的に応用された例として、グラファイト系材料における電子格子相互作用の共鳴効果が挙げられる。グ

ラフェンやカーボンナノチューブに代表される低次元炭素系物質においては、電子バンド構造が線形になり、質量ゼロのディラック電子が現れることが良く知られている。線形の電子バンドが交差するディラック点近傍では、テラヘルツ波や格子振動など低周波領域の励起であっても効率的に電子遷移が起こり、それに伴って非常に強い電子格子相互作用が生じる。このような系でのフォノンスペクトルの特異なふるまいは、これまで定常(非時間分解)ラマン散乱分光法を用いて研究されており、Kohn異常に起因する強い電子格子相互作用などが報告されてきた。

我々は、これらの物質中のディラック電子とコヒーレントフォノン相互作用を波長分解コヒーレントフォノン分光法で調べた。広帯域のプローブ光を波長分解し、励起されたコヒーレンスがどの波長域で強い信号をもたらすかを調べることによって、電子格子相互作用の詳細を明らかにできる。グラフェンにおいては、二重共鳴ラマン散乱によって励起されるDモードの強度、ピーク周波数が顕著な検出波長依存性を示すことから、コヒーレントなナノ波束を形成していると考えられる。金属型カーボンナノチューブでは、二次のラマン過程を介して生成される2Dモードが共鳴的に増強され、フォノンスクウィーズド状態の形成を示唆している。このように、超短パルスレーザー光源を用いてコヒーレントフォノンを励起することにより、定常ラマン分光では知ることのできなかった様々な興味深いコヒーレント状態を観測することができる。また、広帯域のプローブ光を波長分解し、励起されたコヒーレンスがどの波長域で強い信号をもたらすかを調べることによって、電子格子相互作用の詳細を明らかにできる。

—Keywords—

ディラック電子：

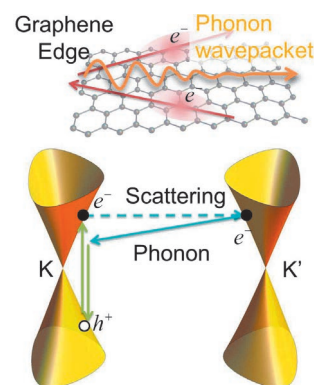
結晶中の伝導帯・価電子帯のエネルギーは通常波数の二乗で近似される。これに対して、グラフェンでは、エネルギーはフェルミ面近傍で波数に比例することから、質量0のディラック方程式に対応するバンド構造を持つ。このような電子をディラック電子と呼ぶ。

二重共鳴ラマン散乱：

共鳴効果を含んだ二次ラマン散乱の一種であり、入射光による共鳴励起状態が別の共鳴中間状態を経て、フォノンを放出する場合を特に二重共鳴ラマン散乱と呼ぶ。特に欠陥を含むカーボン系材料がよく知られており、励起波長によって信号強度や周波数が変化するなど通常のラマン散乱とは大きく異なるふるまいを示す。

スクウィーズド状態：

通常一次のラマン過程を通して励起されるコヒーレントフォノンは、フォノンの振幅が振動するコヒーレント状態を形成するが、二次のラマン散乱を通じた場合、二次のコヒーレンス(揺らぎや共分散)が振動すると考えられることから、このような状態をフォノンスクウィーズド状態と呼ぶことがある。



* 編集委員が著者に含まれておりますが、このような場合、会誌編集委員会では別の委員を担当編集委員に選び、記事の審査の公正さを保つという内規に従っております。