

時間分解角度分解光電子分光による モリブデンブルーブロonzの電荷密度波の研究

真木 一、松尾一輝、古賀絵美、山本 勇^A、東 純平^A

佐賀大学理工学部、^A佐賀大学シンクロトン光応用研究センター

電荷密度波(CDW)は、低次元電子系でしばしば観測される電子の秩序状態である。一般には、フェルミ面の形状がもとで、電子系がフェルミ波数の2倍の変調に対して強い不安定性をもつ場合に、系を安定化するため、周期的な格子歪み(PLD)と共に CDW が生じる(パイエルス機構)と理解されている。物性研究の舞台では、CDW(および CDW に類する電子状態)と、超伝導をはじめとする他の秩序との共存・競合関係がよく問題になる。また、そもそもパイエルス機構だけでは CDW の出現は説明できないという指摘もある。そこで我々は、典型的なパイエルス型 CDW 物質と考えられているモリブデンブルーブロonz $K_{0.3}MoO_3$ 単結晶で、時間分解角度分解光電子分光(trARPES)測定を行い、CDW 秩序のダイナミクスを調べることにした。CDW 状態の試料にポンプ光を照射すると CDW ギャップが変化する。プローブ光で CDW ギャップを介した電子-正孔対の緩和と集団励起モードを検出し、CDW 秩序を微視的に解明することが狙いである。

まず放射光を用いて ARPES 測定を行ったところ、バンド計算とよく一致する分散関係が得られた。ただ、モリブデンブルーブロonzの劈開面は光照射に対して安定ではなく、高いエネルギーの光を長時間照射すると表面が劣化することも分かった。そこで、trARPES 実験ではフルエンスの小さいレーザー光を使用し、表面の経時変化が影響しない、再現性の高い測定を目指した。

図1に、20Kにおけるフェルミ波数近傍での光電子強度の時間変化を示す。非占有状態、占有状態で、それぞれ

電子と正孔の光励起の様子分かる。一方、フェルミ準位近傍では、準粒子の緩和に比べて長い、特徴的なスペクトル変化が見られる。その形状は CDW 転移(180K)前の 300K とも異なっており、CDW に関わる緩和現象を反映したものと考えられる。

当日は、測定結果の詳細と共に、得られた知見を報告したい。

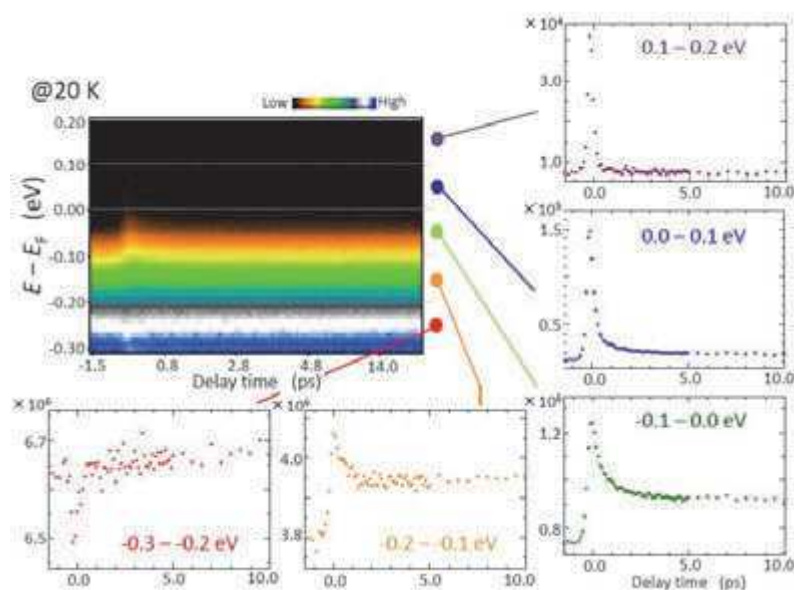


図1 モリブデンブルーブロonzにおける光電子強度の時間変化



時間分解角度分解光電子分光による モリブデンブルーブロonzの電荷密度波の研究

佐賀大学工学部
佐賀大シンクロtron光応用研究センターA

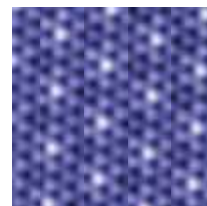
真木 一、松尾一輝、古賀絵美、山本 勇^A、東 純平^A

はじめに

物質が絶縁体になる機構

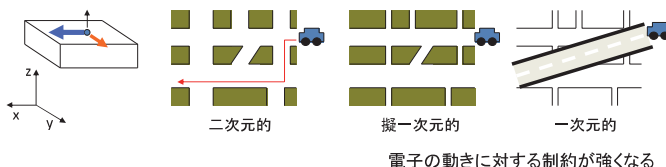
- ・バンド絶縁体 (結晶構造+電子濃度)
- ・モット絶縁体 (電子相関)
- ・電荷秩序系 (電子相関+結晶との整合度)
- ・電荷密度波 (電子格子相互作用)
- ・アンダーソン局在 (乱れ)

電荷密度波(CDW)



2H-NbSe₂
S.H. Pan

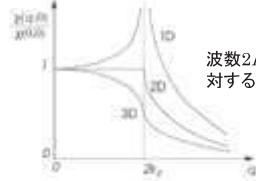
低次元導体



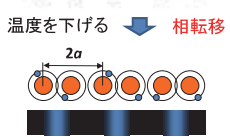
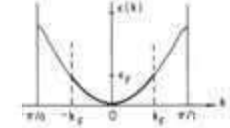
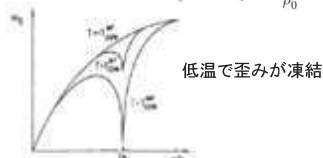
低次元電子系の不安定性

リンドハート応答関数

$$\chi(q, T) = \frac{1}{N} \sum_k \frac{f(\epsilon(k)) - f(\epsilon(k+q))}{\epsilon(k+q) - \epsilon(k)}$$



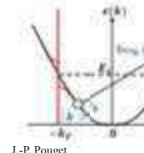
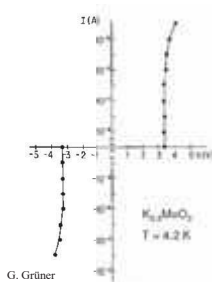
フォノン周波数低下 (格子のソフト化) $(\omega_q^{ph})^2 \approx \omega_q^2 + \frac{|V_q|^2 q^2}{\rho_0} \chi(q, 0)$



周期格子歪みとの混成波 = CDW

巨視的量子凝縮体としてのCDW

非線形伝導: CDWの並進運動



電子-正孔ペアの凝縮

Cf.

超伝導におけるクーパーペア凝縮と等価

巨視的波動関数

$$\psi = |\psi| \exp(i\varphi)$$

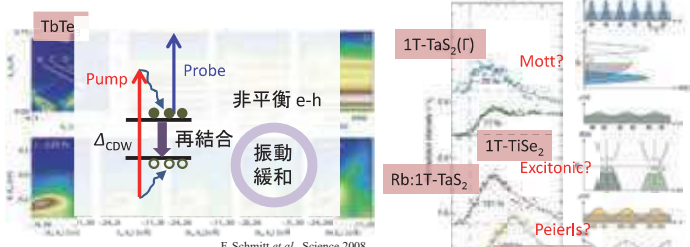
集団励起モード



Amplitude mode
Phase mode

低次元なのに長距離秩序? 超伝導との共存・競合 実際のCDWは違う機構?

時間分解光電子分光法によるCDW研究



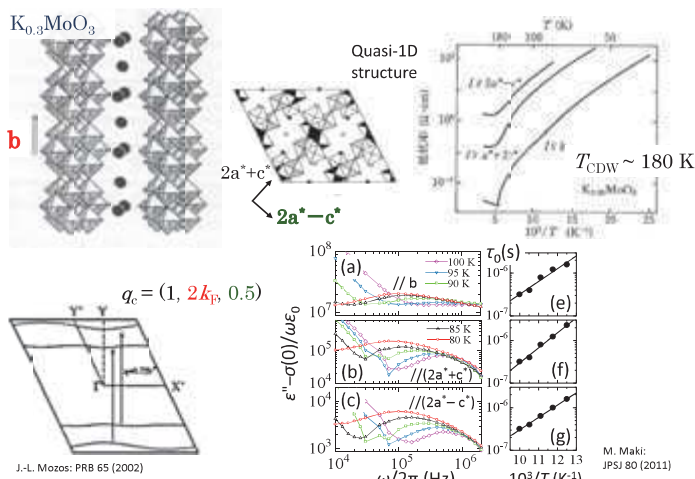
超高速CDW融解, 集団励起モード
時定数によるCDW形成機構の分類
非平衡CDW状態, 光誘起相転移

- 一方で
- ◆ Strong Coupling
 - ◆ 2D structure
 - ・格子歪み: 大
 - ・コヒーレンス長: 短
 - ・コン異常: ブロードに
 - ・Δ, k空間で断片的

典型的なCDW物質で時間変化を調べたい

モリブデンブルーブロonz

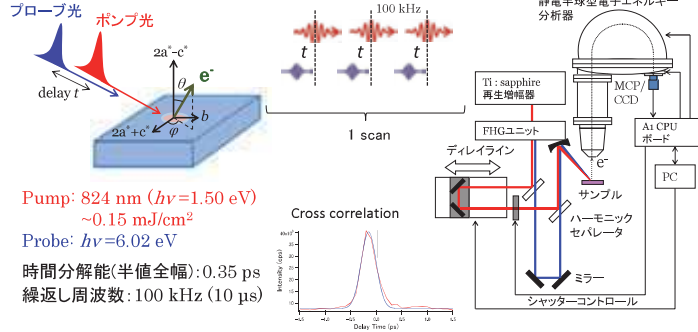
“弱結合BCS型”CDW物質



実験手法

★ 単結晶試料: 電解還元法で作製

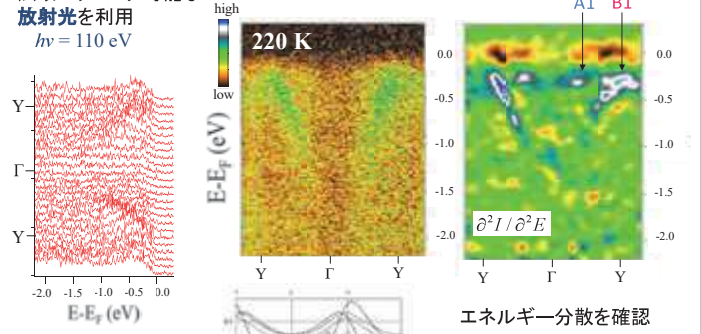
★ 時間分解光電子分光 (trARPES):



★ Δ_{CDW} (charge) ~40 meV (75 meV in optical measurement) → ポンプ光はギャップとcoupleしない

角度分解光電子分光 (ARPES) の測定結果

広域マッピング可能な放射光を利用
 $h\nu = 110$ eV



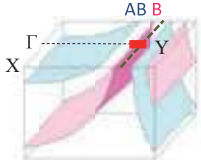
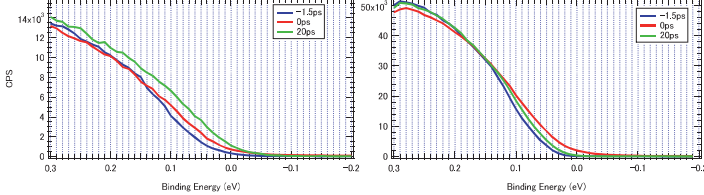
J.-L. Mozos; PRB 65 (2002)

時間分解光電子分光 (trARPES) では

放射光照射による表面損傷が懸念された

損傷を受けた表面

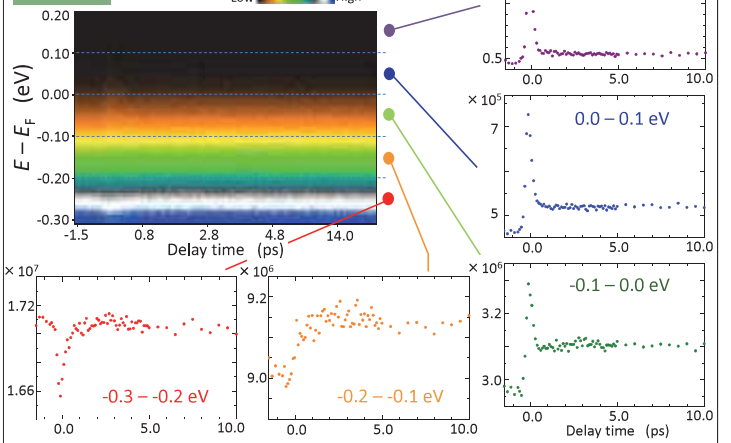
清浄表面



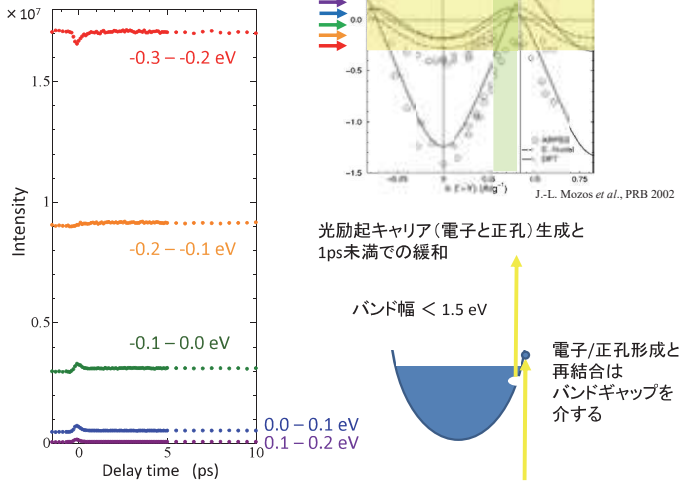
- trARPES測定面には放射光を照射しない
- 光照射による経時的な表明劣化に注意
- 光量を小さく (0.15 mJ/cm²)
- まず基本的な光励起・再結合の描像を

trARPESの結果

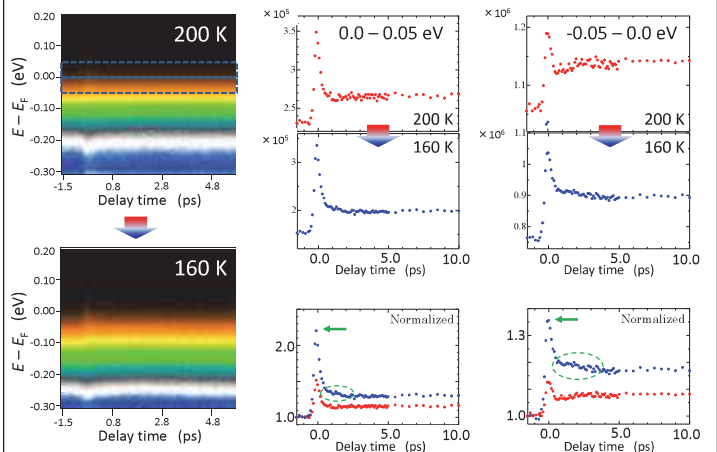
@ 300 K

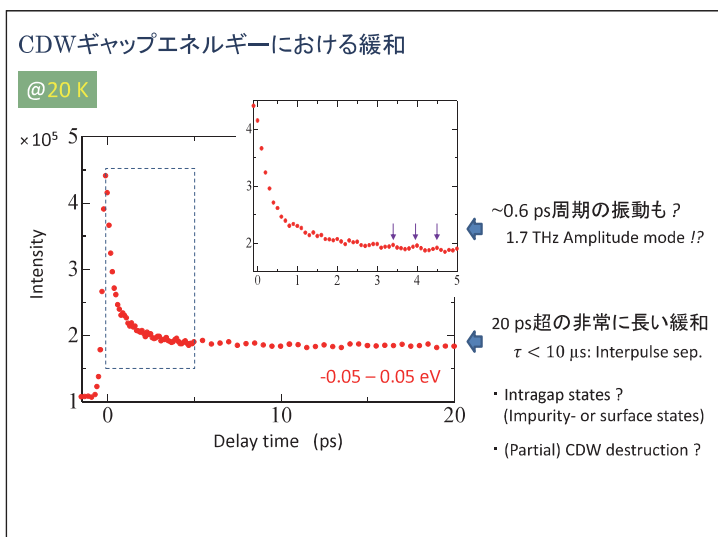
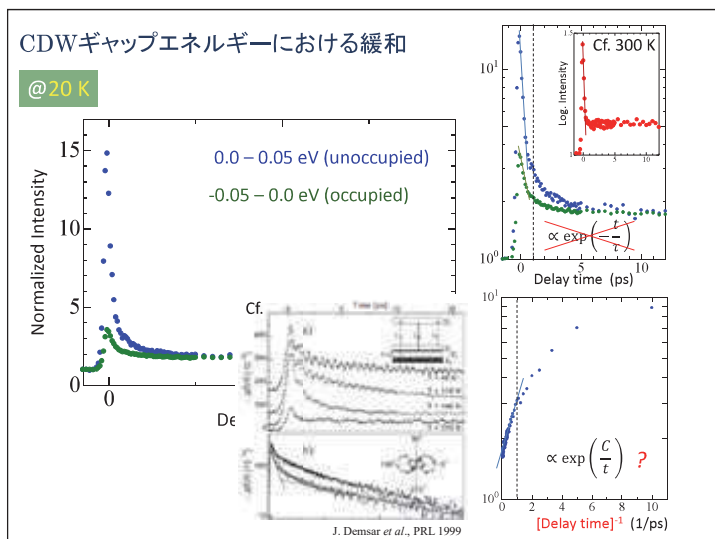
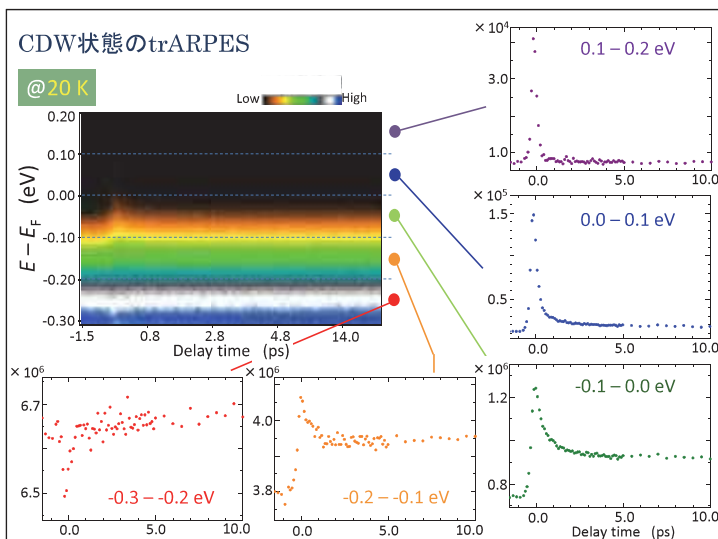


@ 300 K



CDWギャップの影響について





まとめ

- モリブデンブルーブロンズの trARPES 測定で、光励起(単励起)の描像を得た
- CDW状態では、光電子強度の時間変化に特徴が現れた
 - ~5 psの裾をひく緩和現象
 - ~0.6 ps周期の振動現象
 - 20 ps超の長い緩和現象
- 集団励起、トポロジカル欠陥などの観点でも注目している
- Moの一部をWで置換した試料でも測定を行った(現在解析中)
- 解析を進め、CDWの非平衡状態の理解を確立したい