

大阪大学 大学院理学研究科 物理学専攻 量子物理学講座 小川研究室



小 川 哲 生*

Department of Physics, Graduate School of Science, Osaka University

Key Words : Nonequilibrium phase transitions, Exciton Mott transition, Electron-hole systems,
Low-dimensional quantum systems, Photoexcited states, Nonlinear optical processes

1. はじめに

凝縮系(いわゆる「物質」)は、多数の構成要素(原子や分子など)が相互作用し合いながら構成されている。小川研究室では、要素還元論的立場から、このような巨視的集合体の性質や特徴的振る舞いを、量子力学と統計力学に基づく解析のおよび計算物理的手法を用いて研究している。特に、低次元電子-正孔系や励起子-フォノン系における協力現象・時空間発展現象・光学応答など、低次元量子多体系の励起状態が関与する諸現象を、微視的理論と現象論の双方から理解し予測することを目標としている^[1]。すなわち、「非線形性」と「非平衡性(時空間変化)」とが関連する多体物性物理学が関心の中心である。基底状態のみならず励起状態をも考察するため、量子ダイナミクスや緩和・散逸の問題にも関わることになる。

2. 低次元電子-正孔系の 量子状態と光学過程の理論

擬1次元半導体である半導体量子細線の高密度光励起状態は、多数の電子と正孔とが擬1次元空間に閉じこめられ、お互いに相互作用を及ぼしあいながら共存している非平衡量子多体系である。この半導

体量子細線の高密度励起状態(低密度励起状態は^[2])の理論的理解を目指す。そのために、1次元あるいは擬1次元空間内の多電子-多正孔系を、クーロン相互作用や交換相互作用を取り入れた量子力学の多体理論によって記述し、量子力学の秩序形成過程や非平衡相の動的電磁場応答を考察している。たとえば、擬1次元高密度電子-正孔系の電子状態を、ボゾン化法と繰り込み群法を用いて解析した^[3]。その結果、1次元電子-正孔系の特徴として、粒子数密度(励起光強度)を増加していった際に、高次元系では存在すると信じられている「励起子Mott転移」と呼ばれる絶縁体→金属転移が生じないことや、電荷ギャップが開いた励起子分子の液体状態になっていることなどが明らかになった。

1次元系の特徴を明らかにするためには、2次元以上の高次元系との比較を行う必要もある。そこで、高次元系からのアプローチである動的平均場理論(無限次元で厳密に正しい)を用いた研究も行っている^[4]。これによって、励起子Mott転移が、電子-電子斥力(正孔-正孔斥力)と電子-正孔引力の大きさにどのように依存するかが明らかになった。励起子ボーズ-アインシュタイン凝縮と励起子BCS状態のクロスオーバーも解明しつつある。

3. 低次元金属の光学過程の理論

低次元系での電子-正孔相関効果をより深く理解するためには、電子と正孔の密度に差がある系の研究も必要で、これによって電子-電子相関、正孔-正孔相関、電子-正孔相関の効果を分離して考察できる。このために、変調ドーピングを施した量子細線半導体や量子井戸半導体、すなわち1次元や2次元金属の量子状態とその動的応答とを理論的に研究



* Tetsuo OGAWA
1962年1月生
1988年東京大学大学院工学系研究科
物理学専攻中退
現在、大阪大学・大学院理学研究科・
物理学専攻、教授、工学博士、物性
理論
TEL 06-6850-5350
FAX 06-6850-5351
E-Mail ogawa@mailaps.org

している。線形応答と発光(ルミネッセンス)だけでなく非線形光学応答も研究対象で、電子相関と低次元性とが金属の光学的非線形性とどのように繋がっているのかを解明中である。

金属のようなシャープなフェルミ面を有する物質の励起状態への遷移には、赤外発散効果が現れる。その最も端的な現象は、バンド間光遷移や光電子放出などのスペクトルに現れるべき異常で、「フェルミ端特異性」といわれる^[5]。絶縁体の光学吸収端には励起子に起因するピーク構造が、金属のフェルミ端にはフェルミ端特異性に起因するべき状ピーク構造が現れることが知られているが、この低密度と高密度極限をつなぐ理論を構築した。束縛状態の存在を考慮した上でスピン自由度を取り入れることが重要であり、電子-正孔間のクーロン相互作用は時間依存型結合クラスター展開法で取り込む。この研究によって、高密度領域でのフェルミ端特異性の基礎吸収端ピークが低密度領域における励起子ピークにつながる従来の考えは誤りで、電子2つと正孔1つの束縛状態である「トリオン(荷電励起子)」束縛状態のピークにつながる事が明らかになった。これは、複数の実験結果をうまく説明している。光吸収スペクトルや発光スペクトルの有限温度効果も議論した。

4. 少数励起子系のボゾン理論と非線形応答

半導体や絶縁体の光励起状態は、非線形光学応答を示す。中でも、励起子準位に共鳴する周波数の光による四光波混合過程は、物質内の素励起である励起子及び励起子分子とそれらの相関効果を理解する上で、最も直接的な過程と考えられている。従来は、「フェルミオン描像」といわれる、2バンドの電子・正孔モデルを用いた研究が試みられてきたが、非線形応答の記述は煩雑で見通しが悪い。そこで、励起子を「相互作用する複合ボゾン」と捉え直すことによって、新たなボゾン描像による四光波混合理論を提案した^[6]。

励起子系の3次光学的非線形性の起源は、励起子間の相互作用および励起子-光子間相互作用にあるという立場から、励起子のボゾン化法を検討した。従来のボゾン化法(Usui変換法やMarumori写像など)での欠点(点ボゾン近似)を克服し、さらに偏光依存性や角運動量依存性をも取り込んだ新しい励起

子ボゾン化法を完成した。この方法では、励起子が複合粒子であることに起因する純ボーズ統計からのずれ(複合粒子効果と呼ぶ)を系統的にかつ厳密に取り扱うことができる。このボゾン理論を、半導体バルク系と半導体量子井戸系に適用し、ボゾン-ボゾン間相互作用とボゾン-光子間相互作用の表式を得た。励起子の1s準位だけでなく、相対運動波動関数の歪みをも考慮して、2s, 2p状態までをも取り入れたボゾン理論まで発展させた。

5. 光誘起相転移の理論

物質と光との相互作用の研究において、物質の状態(電子状態やフォノン状態など)を探るプローブとしての光の「副次的役割」だけでなく、物質の新しい存在様式を光誘起創成するための光の「能動的役割」に着目し、光照射下あるいは光照射後の物質の励起状態や励起緩和状態、すなわち非平衡状態に着目した理論的研究を行っている。「光誘起相転移」という言葉には二つの意味：

- 光励起非平衡状態を経由して、ある相から別の相に転移する現象
- 光励起非平衡状態において生じる様々な相とその間の競合現象が含まれている。

前者の研究では、光励起状態を経由して生じる相転移現象がどのような条件下で生じるのか、また、その時間発展過程はどのようなものを理解することが大切である。「ある相から別の相」への転移は、2通りの方向がある：(A)自由エネルギーが高い状態(準安定状態)から、あるポテンシャルバリアを越えることによって、エネルギーを散逸しながら、低エネルギーの絶対安定状態へ遷移する過程。(B)外界から連続的にエネルギーを注入されながら、絶対安定状態から準安定状態へ移行し、過渡的に準安定相を生成する過程。転移ダイナミクスは、この両者で大きく異なっている。

(A)「光誘起ドミノ倒し」機構

光誘起相転移が生じる前はエネルギー的に準安定な相にあり、光励起状態を経由して、エネルギー的にさらに低い(安定な)相に転移していく過程を考察した。特に、たった1ヵ所(1単位胞)の構造が光誘起変化するだけで、結晶全体にその効果がドミノ倒しのように伝播拡大していく光誘起核生成の可能性

とその発現条件を、1次元局在電子-格子モデルを用いて解明した^[7]。断熱極限と透熱極限の双方で、エネルギー散逸が強く短距離力で適当な強度を持つ相互作用の場合に、ドミノ倒しによる大域的な構造相転移を引き起こす。前者を「決定論的ドミノ倒し」(ドミノ倒し速度が一定で自然放出を伴わない)、後者を「確率的ドミノ倒し」(ドミノ倒し速度が不定で自然放出を伴う)と言う。

(B) 光誘起スピン状態転移の現象論

外界から連続的にエネルギーを注入して、絶対安定状態から準安定状態に移行させる過程の代表例として、スピנקロスオーバー錯体(2価鉄ピコリルアミン錯体)の光誘起スピン状態転移がある。低スピン状態にある低温でのスピנקロスオーバー錯体に連続光を照射し、高スピン状態のドメインを結晶中に過渡的に注入する過程で、外部光強度や時間発展に非線形効果が観測されている。この非線形性の起源を明らかにするために、平均場理論を完成し、実験で観測された重要な非線形現象をほとんど説明した^[8]。さらに、平均場近似を超えて空間揺らぎ効果を考察するために、モンテカルロ法を用いた研究も行った。

6. 有限寿命のある多粒子系の相分離ダイナミクス

これは、光励起非平衡状態において生じる様々な相とその間の競合現象の代表例である。励起状態における相転移ダイナミクスの研究では、非平衡状態での「相」の定義をも含めて、多くの未解決な問題が残されている。まずは、励起状態に不可欠な有限寿命効果が、相転移過程にどのような影響を及ぼすかを理解することが第一である。そこで、エネルギー緩和(縦緩和)に伴う粒子の消滅過程を取り入れたスピノードル分解の理論を構築し、従来の熱平衡状態での相分離ダイナミクスとの違いを明らかにした。具体例としてイメージした対象は、半導体での高密度光励起状態(電子-正孔プラズマ状態)での気体-液体相分離ダイナミクスである。

非平衡状態での相転移モデルとしてGinzburg-Landau現象論を出発点とし、空間相関情報を2点相関関数のフーリエ変換である構造因子に取り込む方法を用いた。系の時間空間発展は、1点分布関数と構造因子との連立時間発展方程式として、閉じた偏微分方程式系で記述される。寿命による粒子消滅

と光照射による粒子生成の効果は、Master方程式の方法で取り入れる。これを用いて、定常励起の場合の数値計算を行った。また、格子気体模型の粗視化による理論定式化も行い、スピノードル分解特有の「オンセット時間」と寿命との間のユニバーサルなスケーリング則を発見している^[9]。

7. 今後の「光」物理学

周波数、波数(指向性)、強度、時間のいずれにおいても制御性の極めて高いレーザー光の物質プローブとしての重要性は、今後も減ることはないであろう。しかし今後は、5節のような、光と物質系との「対等の共存」によって、新しい物質状態を《光で創成する》研究が特に進展するのではないだろうか。さらに、物質への光照射は、物質の励起状態を創成しその性質を探るという意味があるだけではない。光照射によって、物質の「見かけの基底状態(false vacuum)」を一旦壊すことにより「真の基底状態(true vacuum)」を探索すること、それによって物質の現存在様式の由来を明らかにしうること、という《メタな立場》からの物性研究を可能とする大きな意味がある。当研究室では、このような研究を世界に先立って進めていく。

8. おわりに

大学の研究室であるからには、次世代の基礎研究を担う研究者を養成・教育することも義務である。そこで、私の目指す大学院教育を効果的に実施し、その教育が最大限有意義な成果として現れるように、「小川研究室のアドミッションポリシー」(のようなもの)を策定し、webで公開している(<http://www.wacty.phys.sci.osaka-u.ac.jp/~ogawa/cover.html>)。

最後に、現在進行中の研究プロジェクトに触れておこう。2002年11月から、科学技術振興機構の戦略的創造研究推進事業(CREST)での研究プロジェクト「量子細線レーザーにおける電子間相互作用と低次元性」(代表者: 東京大学物性研究所秋山英文助教)が推進中である。このプロジェクトでは、量子細線レーザーなどの擬1次元系に特徴的な物性・デバイス特性を、擬1次元高密度電子-正孔状態での多体電子相関効果の立場から、実験的に(秋山研担当)理論的に(小川研担当)、明らかにしつつある。

参 考 文 献

- [1] T.Ogawa and Y.Kanemitsu, Optical Properties of Low-Dimensional Materials, Vols.1 and 2, (World Scientific, Singapore, 1995 and 1998) ; T.Ogawa, J.Phys. : Condens. Matter 16, S3567(2004).
- [2] T.Ogawa and T.Takagahara, Phys. Rev. B 44, 8138(1991); A.Shimizu et al., Phys. Rev. B 45, 11338(1992).
- [3] K.Asano and T.Ogawa, J. Lumin (in print); T.Ogawa, Phys. Stat. Sol. (b) 188, 83(1995).
- [4] Y.Tomio and T.Ogawa, J.Lumin. (in print).
- [5] T.Ogawa et al., Phys. Rev. Lett. 68, 3638(1992); T.Ogawa, Mater. Sci. & Engineering B 48, 131(1997); M.Takagiwa and T.Ogawa, J. Phys. Chem. Solids 63, 1587(2002).
- [6] S.Okumura and T.Ogawa, Phys. Rev. B 65, 35105(2002).
- [7] T.Ogawa, Phase Transitions 74, 93(2001); 表面科学 23, 695(2002).
- [8] K.Koshino and T.Ogawa, J. Phys. Soc. Jpn. 68, 2164(1999).
- [9] A.Ishikawa and T.Ogawa, Phys. Rev. E 65, 26131(2002).

この記事をお読みになり、著者の研究室の訪問見学をご希望の方は、当協会事務局へご連絡ください。事務局で著者と日程を調整して、おしらせいたします。

申し込み期限：本誌発行から2か月後の月末日

申し込み先：生産技術振興協会 tel 06-6395-4895 E-mail seisan@maple.ocn.ne.jp

必 要 事 項：お名前、ご所属、希望日時(選択の幅をもたせてください)、複数人の場合は
それぞれのお名前、ご所属、代表者の連絡先

著者の都合でご希望に沿えない場合もありますので、予めご了承ください。