

高次高調波時間分解光電子分光による非平衡電子状態の観測

東京大学物性研究所

岡崎浩三

大強度超短パルスレーザーを希ガスに集光すると(典型的にはピーク電場強度 $>1 \times 10^{14}$ W/cm²)、集光したレーザーの奇数次の高次高調波が発生する。我々は、多層膜ミラーを用いてこの高次高調波の単一次数を選択することで、ポンプ-プローブ型時間・角度分解光電子分光(TARPES)のプローブ光に用いている。非線形光学結晶による波長変換を用いた時間分解光電子分光に比べると、変換効率が低いため高い繰り返し周波数での測定は難しい一方で、軟 X 線・真空紫外線をプローブ光に用いることで広いエネルギー・運動量領域での測定が可能になる、ポンプ光の1パルスあたりのエネルギーを大きくすることで強励起が可能になる、等の特徴がある。我々は、このような特徴を生かした TARPES 測定による非平衡電子状態の観測を行っている。

講演では、ホールドープ、電子ドープ、等原子置換など、様々な方法で超伝導を発現する鉄系超伝導体母物質 BaFe₂As₂、328 K での構造相転移が電荷秩序等の長距離秩序を示さないこと等から、励起子絶縁体の候補物質と考えられている Ta₂NiSe₅ 等についての結果を紹介する。BaFe₂As₂ においては、広い運動量領域での測定が可能という特徴を生かし、ブリルアンゾーン(BZ)中心にあるホール面、BZ 端にある電子面双方においてコヒーレントフォノン励起による光電子強度の振動を観測することに成功した。興味深いことに、ホール面と電子面とで振動の位相が反転していることを見出した。講演では、その位相反転の起源と鉄系超伝導体母物質における光誘起超伝導の可能性等についても議論したい。

Ta₂NiSe₅ においては、強励起が可能であるという特徴を生かすことで、絶縁体-半金属転移を観測することに成功した。図 1 は、ポンプ光のエネルギー密度 1.56 mJ/cm² でのポンプ光照射前後での TARPES スペクトルである。ポンプ光照射前のスペクトルは、励起子絶縁体に特徴的なフラットバンドを示しているのに対して、照射後のスペクトルではフェルミ波数が一致する金属的なホールバンドと電子バンドが明瞭に観測され、半金属的になっていることがわかる。講演では、よりバンドギャップの大きい Ta₂NiS₅ の結果も紹介すると共に、観測された光誘起絶縁体-半金属転移のメカニズムについても議論したい。

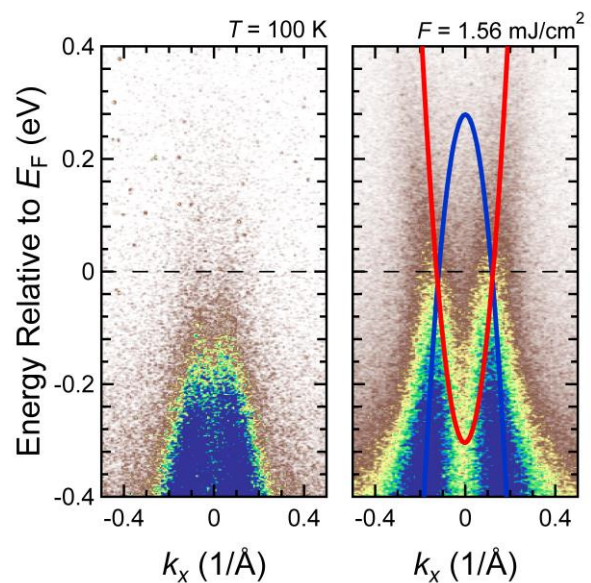


図 1. 100 K においてポンプ光のエネルギー密度 1.56 mJ/cm² で測定した Ta₂NiSe₅ のポンプ光照射前後での TARPES スペクトル