

電荷移動型有機導電体における電子コヒーレンスを利用した物性制御

(東工大理工¹, さきがけ/JST², CREST/JST³, 名城大農⁴, 京大低物セ⁵)

恩田健^{1,2}, 松原圭考¹, 荻原将¹, 石川忠彦¹, 沖本洋一¹, 腰原伸也^{1,3},

平松孝章⁴, 中野義明⁵, 矢持秀起⁵, 斉藤軍治⁴

Control of Physical Properties in a Conducting Charge Transfer Complex Using Electronic Coherence

(Tokyo Tech¹, PRESTO/JST², CREST/JST³, Meijo Univ.⁴, Kyoto Univ.⁵)

Ken Onda^{1,2}, Yoshitaka Matsubara¹, Sho Ogihara¹, Tadahiko Ishikawa¹,

Yoichi Okimoto¹, Shin-ya Koshikara^{1,3}, Takaaki Hiramatsu⁴, Yoshiaki Nakano⁵,

Hideki Yamochi⁵, Gunzi Saito⁴

【序】一般に凝集系における電子コヒーレンスの寿命(デコヒーレンス時間)は熱浴による擾動のため室温付近では極めて短い。またこの場合、デコヒーレンス時間は温度の逆数の n 乗 ($n=1-2$ 程度)に比例して減少することが実験的、理論的に知られている[1]。しかし近年、このような法則に従わない例が相次いで報告され、基礎、応用の両面から改めて注目を集めている。その一例として光合成反応中心が挙げられる。この系では、室温付近で数百フェムト秒の長いデコヒーレンス時間が観測され、光合成初期過程における超高速、高効率な電子移動の起源として注目されている[2, 3]。一方、半導体における電子コヒーレンスは、将来の量子コンピューターへの応用を目指して、量子井戸、量子ドットなど準孤立系において盛んに研究が行われ、低温で数百ピコ秒、室温でも 100 フェムト秒程度のデコヒーレンス時間が実現されている[4, 5]。また固体表面やプラズモンなどでも短いながらも温度に依存しない、あるいは室温で有限のデコヒーレンス過程が観測されている[6, 7]。しかしながら依然として、凝集系における電子コヒーレンスの緩和過程の詳細については分かっていない。そこで我々は新規な物理現象が数多く観察される低次元強相関電子系に着目し、その電子コヒーレンスの観測及び光誘起相転移現象を利用した物性のコヒーレント制御を試みている。特に有機結晶を用いた電荷移動型錯体は、電子相関や移動積分、スピンなど様々な内部相互作用を有機合成の手法を用いて容易に制御できるため、系統的に電子コヒーレンスを研究するのに適している。本講演では特に光誘起による巨大な反射率変化が観測され[8]、さらにその詳細な光誘起ダイナミクスも研究[9, 10]

されている $(\text{EDO-TTF})_2\text{PF}_6$ を用いた結果について紹介する。

【実験】測定は 10 fs のレーザーパルスを用いたポンプ・プローブ法により行った。10 fs パルス光の発生は、まず貴ガスを充填した石英中空ファイバー(内径 200 μm)にフェムト秒チタンサファイア再生増幅器の出力(800nm, 120 fs, 1kHz, 400 $\mu\text{J}/\text{pulse}$)を集光し、自己位相変調により広帯

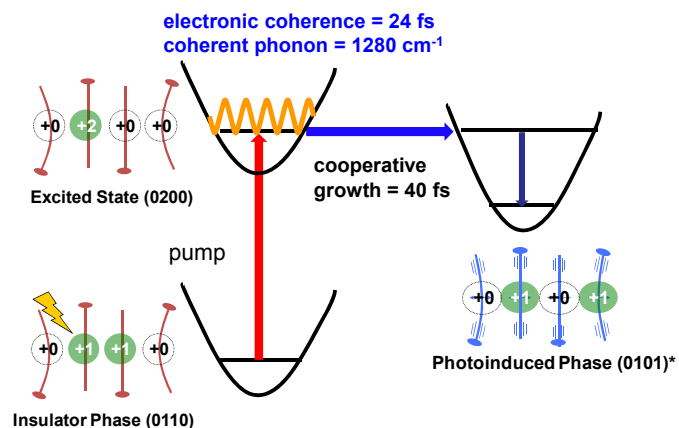


図1. これまでに明らかにされた $(\text{EDO-TTF})_2\text{PF}_6$ 光誘起ダイナミクス

域(線幅 150 nm 程度)の光を得た。さらにその光を性質の異なる3種類の負分散ミラーを用いて圧縮した。電子コヒーレンスを利用したコヒーレント制御のためには、ピエゾ素子を用いた干渉系を用いて相対位相を光学サイクル(2.7 fs @ 800 nm)の10分の1以下の精度で制御したダブルパルスを発生させ、励起光として用いた。

【結果、議論】図1はこれまで明らかになっている(EDO-TTF)₂PF₆の光励起ダイナミクスの初期過程である。ここで電荷移動遷移励起直後の状態(Franck-Condon 状態)が24 fsのデコヒーレンス時間を持ち、1280 cm⁻¹のフォノンのコヒーレント振動を伴うことは昨年の本討論会で報告した。本研究ではまず、このデコヒーレンスの起源を探るため温度依存性を測定した。その結果、25 K, 180 Kと大きく温度が異なる条件でもほぼ同じデコヒーレンス時間が得られた。これはデコヒーレンスが熱浴によらないことを示している。さらに、このような複雑な固体系としては比較的長く、熱浴に影響されない電子コヒーレンスを利用して、光誘起相転移のコヒーレント制御を試みた。始めに2つの励起パルス間の位相を固定し、プローブ光を掃引して反射率変化を測定した。それにより、励起パルス間の位相が同位相(in-phase)の場合と逆位相(out-of-phase)の場合で反射率変化(=光誘起相生成)に大きな違いが見られた。同様にプローブ光の遅延時間を固定し、2励起パルス間の遅延時間を光の電場振動の位相レベルで制御した測定も行った。図2はその測定結果および3準位を仮定した密度行列の運動方程式を解いて得られた光誘起相の分布変化である。このシミュレーションでは以前の実験で求められたデコヒーレンス時間 $T_2 = 24$ fs および 光誘起相の生成時間 $T_1 = 40$ fs を仮定した。これらの結果が良く一致していることは、光の位相に従い光誘起相の生成が制御出来ていることを示している。このことは将来、電気伝導性や磁性などの物性を光の振動電場変化の時間スケール(数フェムト秒)で制御できる可能性を示している。

【参考文献】

- [1] R.M. MacFarlane and R.M. Shelby, *J. Lumi.* **36**, 179 (1987).
- [2] H. Lee, Y.-C. Cheng, G.R. Fleming, *Science*, **316**, 1462 (2007).
- [3] A. Ishizaki and G.R. Fleming, *Annu. Rev. Condens. Matt. Phys.* **3**, 333 (2012).
- [4] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, et al. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157401 (2001).
- [5] J.A. Davis, L.V. Dao, X. Wen, et al. *App. Phys. Lett.* **89**, 182109 (2006).
- [6] S. Ogawa, H. Nagano, and H. Petek, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 1931 (1999).
- [7] A. Kubo, K. Onda, H. Petek, et al. *Nano Lett.* **5**, 1123 (2005).
- [8] M. Chollet, L. Guerin, N. Uchida, et al. *Science*, **307**, 86 (2005).
- [9] K. Onda, S. Ogihara, K. Yonemitsu, et al. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 067403 (2008).
- [10] N. Fukazawa, M. Shimizu, T. Ishikawa, et al. *J. Phys. Chem. C*, **116**, 5892 (2012).

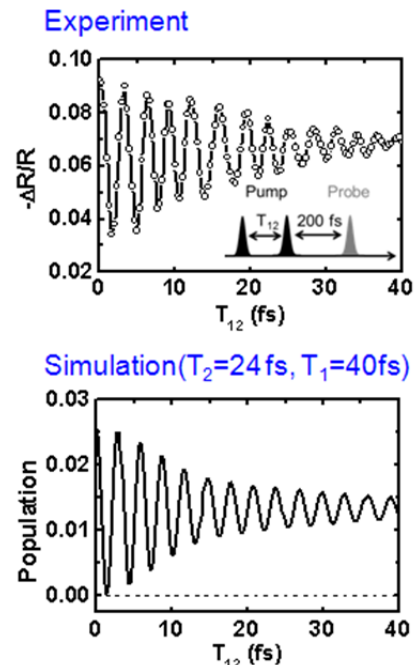


図 2. 位相制御ダブルパルス励起による反射率変化(上)と密度行列を用いたシミュレーション結果