

研究課題名

金属絶縁体転移を示す二酸化バナジウム における光学応答の光制御

[1] 組織

代表者：福井一俊

(福井大学大学院工学研究科)

対応者：原 和彦

(静岡大学電子工学研究所)

分担者：

沖村邦彦 (東海大学工学部)

北浦 守 (山形大学理学部)

小南裕子 (静岡大学大学院工学研究科)

光野徹也 (静岡大学大学院工学研究科)

[2] 研究経過

チタンやバナジウムなどの遷移金属酸化物は、室温近い温度で金属絶縁体転移を示す物質として知られる。その抵抗率変化の大きさは $1\Omega\text{cm}$ から $10^3\Omega\text{cm}$ までの3桁におよび、その転移速度は100フェムト秒と速く驚くべき速度である。こうした外場の変化によって複数の物性が同時多発的に発現・消失する現象は、電子相関効果の強い系、いわゆる強相関電子系に特有のものであり、その機構の解明および制御は基礎物理のみならず応用物理においても重要な課題として位個づけられる。現在、そのフェーズは基礎研究から応用研究へと移行しつつあり、国内外の多くのグループが精力的に研究を展開している。

金属絶縁体転移の研究がもっとも進んでいるのは二酸化バナジウムである。二酸化バナジウムの金属絶縁体転移では、単斜晶M相から正方形R相への構造相転移を伴うことが知られている。M相は隣接したバナジウムダイマーの形成を伴うモット型の絶縁相であり(パイエルス型の絶縁体であるという説もあり今なお論争は続いている)、R相は電荷秩序が破れたフェルミ液体型の金属相である。最近、時間分解X線構造回折実験によって、構造相転移の光誘起

効果が調べられ、光励起直後には準安定状態の存在を示唆する過渡応答が観測されている。この準安定状態の緩和現象は、光誘起金属絶縁体転移を実現するための重要な鍵であると思われるが、その起源は現時点において全く不明である。

本研究では、光励起されたM相で観測される準安定状態の起源と緩和の素過程をポンププローブ分光により調べた。光誘起金属絶縁体転移は、不可視域の赤外光を使って超高速で駆動する光スイッチ・光メモリ素子、光変調素子といった極限デバイスへと応用できる可能性を秘めており、その要素技術の確立において必要不可欠な知見を得ようとするのが本研究の目的である。そこで、本研究では、スパッタリング法で作製した金属絶縁体転移を示す二酸化バナジウム膜において光誘起金属絶縁体転移を観測することを目標とし、光励起状態における電子緩和の素過程を明らかにすることを目指した。

本実験では、スパッタリング法によってサファイア基板上に成膜された二酸化バナジウム膜を用いた。その膜厚は500nmであった。また、Nd:YAGレーザーからの第三高調波 (355 nm) とヘリウムネオンレーザー (632nm) をそれぞれポンプとプローブ光として利用して室温で反射率変化を測定した。この時に生ずる反射率変化の時間応答、その時定数の温度変化、ポンプ光強度依存性などを調べた。ヘリウムネオンレーザーの赤色光によって金属絶縁体転移が起こらないことは確認した。

[3] 成果

(3-1) 研究成果

本年度は、以下に示す研究成果を得た。

温度上昇に伴って70°C近傍で反射率が急激に減少し、その変化分は30%を超える。この温度では熱によって絶縁相が金属相へと転移することが知られており、この反射率変化は金属絶縁体転移によると考えら

れる。

室温で光照射を行うと、光照射直後に反射率が急激に低下し、1 マイクロ秒以内に回復する。この反射率変化は励起光強度が 0.1 ミリジュールから起こり明確な閾値を示す。励起光強度が約 1 ミリジュールに至るまで反射率変化の大きさは線形的に増加する。この場合、試料表面が部分的に R 相に転移したか、あるいは R 相とは別の金属相に転移したか、の二つの可能性が考えられる。1 ミリジュールを越えると飽和し、その大きさは約 0.3 である。この大きさは熱による金属絶縁体転移の場合とほぼ一致する。この場合、光励起によって試料表面が R 相に変化したと考えられる。

励起光の侵入長を $1/e$ に減少する膜厚として定義すると、約 10 ナノメートルと見積もられる。このことから、光励起で反射率変化が飽和するのはおそらく試料表面が R 相に転移したためと考えられる。励起光強度が 1 ミリジュールでは、バナジウム原子あたり 0.5 個の電子が励起されていることになる。つまり、バナジウムダイマーの結合電子 1 個を光で取り除くことで、電子間相互作用および分子結合を弱めることになり、これが金属絶縁体転移の引き金となると予想される。

反射率変化は時間とともに 1 マイクロ秒以内に回復する。励起光強度が 2 ミリジュールの範囲内で、時間応答は単一指数減少関数によって近似される。このことは、光励起によって形成された R 相ドメイン間での相互作用がほぼ無視できることを示唆する。一方、回復時定数は励起光強度とともに線形的に増加する。励起パルスの時間スケールからすると、光励起ドメイン内部は熱平衡状態にあると考えられるので、伝導電子の密度が回復現象の寿命を左右されると考えれば一応の理解はできる。しかし、光励起が金属絶縁体転移の引き金となっているのはほぼ間違いない。相転移を示唆する信号は 0.2 mJ の励起エネルギーで観測されており、比熱を元にして薄膜全体の温度上昇を見積もるとその大きさは約 3 °C である。二酸化バナジウムの場合、金属絶縁体転移の臨界温度は約 65 °C であり、見積もられた温度上昇を考慮しても光励起によって熱による金属絶縁体転移が起こっているとは考え難い。従って、光励起で観測された反射率変化は光誘起金属絶縁体転移によると考えられる。

(3-2) 波及効果と発展性など

光照射で電気特性や磁気特性などマクロな物性が変化する現象はその物理的機構を解明することもさることながら、超高速スイッチング素子など新たなデバイス開発などへの応用もまた期待される。

前述したように、二酸化バナジウムでは成膜条件によって幾つかの異なる結晶相が現れる。現時点では、観測された光誘起金属絶縁体転移では M1 相が R 相に変化すると考えられるが、実際にどのような結晶相が現れているのか、明らかではない。これを確認しない限り、真の意味での光誘起金属絶縁体転移が起こっているかどうかについては不明である。現在、光励起による構造変化を追跡するために、時間分解ラマン散乱の測定系を構築している最中であり、この実験によって真の意味での光誘起金属絶縁体転移を観測できると期待される。また、励起レーザー光パルスの時間幅の制限のために、本研究では未だ非平衡状態における電子間相互作用や電子格子相互作用を観測するには至っていない。より本質に迫るのは、短パルス光を用いた実験が必要不可欠であり、そのための光源開発にも取り組み始めたところである。

[4] 成果資料
該当なし

出張報告

なし