

研究助成報告書（中間・終了）

No.1

整理番号	2023-J-029	報告者氏名	鈴木 剛
------	------------	-------	------

研究課題名

遷移金属テルライド物質における新規光機能性の開拓

<代表研究者> 機関名：東京大学物性研究所 職名：助教 氏名：鈴木 剛

<共同研究者> 機関名： 機関名： 機関名： 機関名：
機関名： 機関名： 機関名： 機関名：
機関名： 機関名： 機関名： 機関名：
機関名： 機関名： 機関名： 機関名：

<研究内容・成果等の要約>

本研究は、光照射によって物質の電子状態および格子状態を超高速に制御し、特に電子バンドのトポロジーを光で操作することを目的とする。近年、フェムト秒レーザーや自由電子レーザーの発展により、光誘起相転移や非平衡状態の観測が可能となり、超高速デバイス応用への期待が高まっている。中でも、遷移金属ダイカルコゲナイト MTe_2 ($M=V, Nb, Ta$) は電荷密度波 (CDW) 相転移とトポロジカル相が密接に関連しており、光によるトポロジー制御の有望な候補である。

本研究では、 $VTe_2 \cdot NbTe_2 \cdot TaTe_2$ を対象に、時間分解光電子分光と時間分解X線回折を用いて、光励起後の電子・格子ダイナミクスを詳細に調べた。

まず VTe_2 では、光励起後にトポロジカル表面状態が約 600 fs で出現することを時間分解光電子分光測定により発見した。これは測定の時間分解能では説明できず、その起源が不明であった。そこで時間分解X線回折測定を実施したところ、強励起下で $1T'$ 相から $1T$ 相への構造相転移が起こることが確認され、600 fs の遅延は格子の相転移ダイナミクスに起因することが明らかになった。すなわち、光誘起トポロジー変化は格子構造変化と密接に結びついていることを解明した。

次に $TaTe_2$ では、室温 ($1T$ 相) において時間分解光電子測定及び時間分解X線回折測定の双方で 2.2 THz の振動モードを観測した。これは $1T$ 型と $1T'$ 型の間の格子変調に対応するが、 $TaTe_2$ は平衡状態では $1T$ 相を取らないため、光励起により非平衡的に $1T$ 型に近づく新たな格子状態が瞬間的に形成されることが示唆された。ただし、 VTe_2 のような永続的な相転移は起こらず、緩和により元の状態へ戻ることが分かった。

一方、低温 (LT 相) では、時間分解光電子測定により 2.4 THz に加えて 1.4 THz の新たな振動が観測された。また光電子強度の永続的減少が見られ、 LT 相が融解して $1T'$ 相へ転移することが示唆された。時間分解X線回折測定では、10 K で光励起直後に回折強度が増大し、400–500 fs (1.4 THz の半周期) で LT 相が融解することが確認された。

以上の結果から、遷移金属ダイカルコゲナイトにおける光誘起ダイナミクスは、電子状態と格子状態が強く結合した複雑な非平衡過程であり、CDW 相の制御を通じてトポロジカル相を操作できる可能性が示された。これは、超高速電気光学デバイスや量子情報処理に向けた新たな光機能性の創出に重要な知見を提供する。

＜研究発表（口頭、ポスター、誌上別）＞

口頭

- 鈴木剛、久保田雄也、三石夏樹、赤塚俊輔、古賀淳平、坂野昌人、増渕覚、田中良和、富樫格、玉作賢治、矢橋牧名、高橋英史、石渡晋太郎、町田友樹、松田巖、石坂香子、岡崎浩三、「時間分解X線回折測定におけるTaTe₂における超高速格子変調ダイナミクスの観測」、第37回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、姫路、(2024年1月10-12日)、一般講演
- Takeshi Suzuki, "Ultrafast lattice dynamics of quantum materials", 日本物理学会2024年春季大会、オンライン (2024年3月18-21日)、招待講演
- Takeshi Suzuki, "Ultrafast lattice dynamics of quantum materials studied by time-resolved X-ray diffraction measurements using X-ray free electron laser", OPICS & PHOTONICS International Congress (OPIC 2024), LSC2024, Yokohama, Japan (April 22-26, 2024)、招待講演
- 鈴木剛、久保田雄也、三石夏樹、赤塚俊輔、古賀淳平、坂野昌人、増渕覚、田中良和、富樫格、玉作賢治、矢橋牧名、高橋英史、石渡晋太郎、町田友樹、松田巖、石坂香子、岡崎浩三、「時間分解X線回折測定におけるTaTe₂における超高速格子変調ダイナミクスの観測」、日本物理学会第79回年次大会、札幌、(2024年9月16-19日)、一般講演
- Takeshi Suzuki, "Time-resolved ARPES and XRD study for transition metal ditellurides", ISSP international workshop "Materials Science of Solids and Surfaces using Radiation Field Controlled in Time/Space Domain", Kashiwa, Japan (Oct. 28-31, 2024)、一般講演
- 鈴木剛、「物性物理におけるテーブルトップレーザーと自由電子レーザーの協奏利用」、VUV・SX高輝度光源利用者懇談会シンポジウム「物性研究のためのVUV・SXレーザー光源と加速器光源の協奏利用」、仙台、(2024年11月28日)、招待講演
- 鈴木剛、「高次高調波レーザー時間分解ARPESを用いた非平衡固体物性の研究」、ナノテラスARPES若手シンポジウム—放射光ARPESによる新たなサイエンスと将来展望—、仙台、日本(2025年3月22日)、招待講演
- Takeshi Suzuki, "Time-resolved ARPES and XRD study for transition metal ditellurides", OPICS & PHOTONICS International Congress (OPIC 2025), LSC2025, Yokohama, Japan (April 21-25, 2025)、招待講演
- 鈴木剛、「自由電子レーザーを用いた格子ダイナミクスの研究と非線形フォノニクスへの挑戦」、非平衡固体物性の最前線2025、仙台、日本(2025年11月10日)、招待講演

ポスター

- Takeshi Suzuki, Yuya Kubota, Natsuki Mitsuishi, Shunsuke Akatsuka, Jumpei Koga, Masato Sakano, Satoru Masubuchi, Yoshikazu Tanaka, Tadashi Togashi, Hiroyuki Ohsumi, Kenji Tamasaku, Makina Yabashi, Hidefumi Takahashi, Shintaro Ishiwata, Tomoki Machida, Iwao Matsuda, Kyoko Ishizaka, Kozo Okazaki, "Ultrafast control of the crystal structure in VTe₂", Ultrafast Surface Dynamics 2024(USD2024), Gottingen, Germany (May 26-31, 2024).

誌上

- T. Suzuki, Y. Kubota, N. Mitsuishi, S. Akatsuka, J. Koga, M. Sakano, S. Masubuchi, Y. Tanaka, T. Togashi, H. Ohsumi, K. Tamasaku, M. Yabashi, H. Takahashi, S. Ishiwata, T. Machida, I. Matsuda, K. Ishizaka, and K. Okazaki, "Ultrafast control of the crystal structure in a topological charge-density-wave material", Phys. Rev. B **108**, 184305 (2023).
- Takeshi Suzuki, Yigui Zhong, Kecheng Liu, Teruto Kanai, Jiro Itatani, and Kozo Okazaki, "Time- and angle-resolved photoemission spectroscopy with wavelength-tunable pump and extreme ultraviolet probe enabled by twin synchronized amplifiers", Rev. Sci. Instrum. **95**, 073001 (2024).

3. Joseph A Hlevyack, Sahand Najafzadeh, Yao Li, Tsubaki Nagashima, Akifumi Mine, Yigui Zhong, Takeshi Suzuki, Akiko Fukushima, Meng-Kai Lin, Soorya Suresh Babu, Jinwoong Hwang, Ji-Eun Lee, Sung-Kwan Mo, James N Eckstein, Shik Shin, Kozo Okazaki, Tai-Chang Chiang, "Uniform Diffusion of Cooper Pairing Mediated by Hole Carriers in Topological Sb₂Te₃/Nb", ACS Nano **18**, 31323 (2024).
4. Yigui Zhong, Takeshi Suzuki, Hongxiong Liu, Kecheng Liu, Zhengwei Nie, Youguo Shi, Sheng Meng, Baiqing Lv, Hong Ding, Teruto Kanai, Jiro Itatani, Shik Shin, and Kozo Okazaki, "Unveiling van Hove singularity modulation and fluctuated charge order in Kagome superconductor CsV₃Sb₅ via time-resolved ARPES", Phys. Rev. Research **6**, 043328 (2024).
5. Y. Chen, T. Nakamura, H. Watanabe, T. Suzuki, Q. Ren, K. Liu, Y. Zhong, T. Kanai, J. Itatani, K. Okazaki, H. S. Suzuki, S. Shin, K. Imura, N. K. Sato, and S. Kimura, "Photo-Induced Nonlinear Band Shift and Valence Transition in SmS", J. Phys. Soc. Jpn. **94**, 013702 (2025).
6. T. Suemoto, S. Ono, A. Asahara, T. Okuno, T. Suzuki, K. Okazaki, S. Tani, and Y. Kobayashi, "Comprehensive study of the luminescence properties of elemental metals", Phys. Rev. B **111**, 035150 (2025).
7. Y. Kubota, T. Suzuki, S. Owada, K. Tamasaku, H. Osawa, T. Togashi, K. Okazaki, and M. Yabashi, "A simple method to find temporal overlap between THz and x-ray pulses using x-ray-induced carrier dynamics in semiconductors", Appl. Phys. Lett. **126**, 052101 (2025).
8. T. Suemoto, H. Morino, S. Ono, T. Okuno, T. Suzuki, K. Okazaki, S. Tani, and Y. Kobayashi, "Composition-dependent ultrafast luminescence in Cu-Ni alloys: Combined experimental and *ab initio* study", Phys. Rev. B **112**, 035138 (2025).
9. Christopher L Smallwood, Rachel Owen, Matthew W Day, Takeshi Suzuki, Rohan Singh, Travis M Autry, Smriti Bhalerao, Fauzia Jabeen, and Steven T Cundiff, "Indirect excitons and many-body interactions in InGaAs double quantum wells", Phys. Rev. B **112**, 035305 (2025).
10. Kecheng Liu, Takeshi Suzuki, Yigui Zhong, Teruto Kanai, Jiro Itatani, Linda Ye, Maya Martinez, Anisha Singh, Ian R Fisher, Uwe Bovensiepen, and Kozo Okazaki, "Distinct Amplitude Mode Dynamics Upon Resonant and Off-resonant Excitation Across the Charge Density Wave Energy Gap in LaTe₃ Investigated by Time- and Angle-resolved Photoemission Spectroscopy", J. Phys. Soc. Jpn. **94**, 104706 (2025).
11. Akifumi Mine, Yigui Zhong, Jinjin Liu, Takeshi Suzuki, Sahand Najafzadeh, Takumi Uchiyama, Jia-Xin Yin, Xianxin Wu, Xun Shi, Zhiwei Wang, Yugui Yao, and Kozo Okazaki, "Observation of Fermi-surface-dependent anisotropic Cooper pairing in kagome superconductor CsV₃Sb₅", Commun. Mater. **6**, 276 (2025).
12. Akifumi Mine, Takeshi Suzuki*, Yigui Zhong, Sahand Najafzadeh, Kenjiro Okawa, Masato Sakano, Kyoko Ishizaka, Shik Shin, Takao Sasagawa, and Kozo Okazaki*, "Direct Observation of the Surface Superconducting Gap in the Topological Superconductor Candidate β -PdBi₂", Phys. Rev. Lett. **135**, 236002 (2025).

＜研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）＞

研究の目的

レーザーに代表されるように近年の光技術における目覚しい進歩により、光により過渡的に物質の状態を変化させる光誘起相転移現象が多くの固体物質で発見されて精力的に研究されており、現在ではDVDなどを媒体として相変化記録技術として実用化されている。さらに、フェムト秒の時間スケールを有する超短パルスレーザーの登場により、物質の状態を瞬間的に変化させることができなくなってきた。例えば、パルス光を照射することにより絶縁体から金属に性質を変える物質が発見され、それにより光スイッチングなどの超高速電気光学デバイスが実現している。また最近では、光照射により過渡的ながら超伝導状態が発現することが発見され、その機構解明と共にデバイス化を目指した研究が加速している。図1に示すように、非平衡状態の研究では様々な超高速分光法とそれにより得られるそれぞれの観測量がある。デバイス動作においては電子応答が主役を果たすため、テラヘルツ分光法による伝導応答や時間分解光電子分光法によるバンド構造計測など、電子状態の観測が非平衡研究の主流であるが、物質の状態を決めるのは電子状態だけではなく格子状態が大変重要であり、このことは特にそれぞれの状態が複雑に絡み合う量子物質において顕著に表れる。最近、自由電子レーザーの登場により格子のX線回折を時間分解計測することができるようになってきた。したがって現在では、量子物質における光励起後の非平衡状態について、電子状態に加えて格子状態を観測することでその全貌を捉えることが可能である。

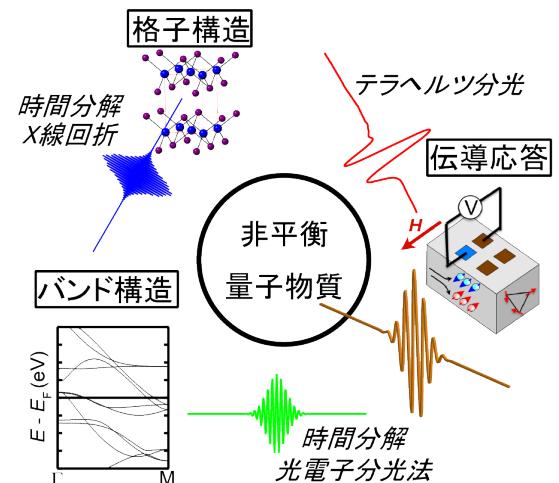


図1 様々な超高速分光法と観測量

そのような中、ごく最近、光を用いた電子バンドのトポロジー操作が実証され、デバイス応用に向けた研究が精力的に行われている。電子バンドのトポロジーについてであるが、例えば、トポロジカル絶縁体はバルクが絶縁体的な性質を有しながら、表面だけ金属的な性質を示す。ここで、表面状態の電子バンドはスピンと運動量が一対一に対応付けられた特殊な状態であるため、物質の表面に電流のみならずスピン流を流すことができ、さらに不純物や格子欠陥などの散乱が抑制されるため、無散逸な情報伝達を可能とする。これはエレクトロニクス及びスピントロニクスにおいて革新的な性質であり、様々なデバイス応用が期待されている。そこで、本研究では電子バンドのトポロジーについて超高速な制御性を与えるために、光を用いたトポロジー操作を実現させることを目的とする。

上記に述べた目的を実現させる物質として、本研究では遷移金属ダイカルコゲナイト物質を対象とし、中でも遷移金属ダイテルライド $M\text{Te}_2$ ($M = \text{V}, \text{Nb}, \text{Ta}$, etc)を中心として研究していく。遷移金属ダイカルコゲナイト物質では、物質中の伝導を担う電子の電荷・スピン・軌道の自由度が複雑に絡み合い、金属絶縁体相転移や超伝導、電荷・スピン秩序といった様々な物性を示す。特に最近では、剥離・転写技術の進歩による単層化や、さらに層間のねじれ角を制御することなどが可能になり、さらに多くの新規物性の発現が報告されている。遷移金属ダイカルコゲナイト物質の中でも遷移金属ダイテルライドは、 $1T$ 型と呼ばれる特異な格子ゆがみを伴い電荷密度波(CDW)相転移を示すことから、電子・格子相互作用の観点から興味深く研究されてきた。図2(a)に VTe_2 における結晶構造変化の温度依存性を示す。 VTe_2 では、480 K 以下で $1T$ 型から $1T$ 型に構造相転移することが知られている。さらに図2(b)に示すように、 VTe_2 における最近の角度分解光電子分光測定により、構造相転移するのに伴って特定の波数においてトポロジカル表面状態が消失することが報告された。これは、トポロジカル相と CDW 相が密接に関係していることを強く示唆するものであり、CDW 相を外場により制御することで電子バンドのトポロジーを操作できることを示唆する結果となった。

本研究では遷移金属ダイテルライドとして、 VTe_2 に加えて NbTe_2 と TaTe_2 を研究対象とする。 VTe_2 が格子歪みのない $1T$ 型(金属相)から $1T'$ 型(CDW 相)に構造相転移するのに対し、 TaTe_2 では $1T'$ 型からさらに対称性の低い LT 相(Ta 原子の七量体)に構造相転移する。一方 NbTe_2 では温度に対して相転移を示さず、常に $1T$ 型の構造に留まる。このように系統的に結晶構造の対称性が異なる物質間を比較することで結晶構造の好条件を探索することが可能になる。そして、本申請課題では外場として超短光パルスを用いて、遷移金属ダイテルライド物質における CDW 相を瞬間的に制御することでトポロジカル相を操作して、超高速電気光学デバイスや量子演算処理における新しい素子など、次世代の光機能性を発現させる。

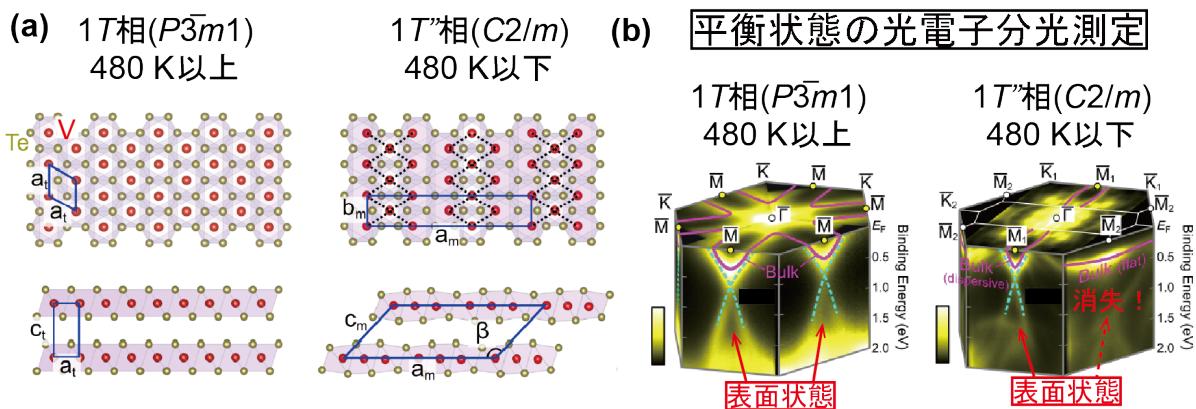


図 2 (a) VTe_2 の結晶構造と(b)光電子分光測定による電子状態の温度依存性

研究の経過、結果、考察

本研究では測定手法として時間分解光電子分光測定と X 線回折の時間分解測定を用いた。まず VTe_2 を対象とした。図 3(a)に示すように、光電子分光測定により光励起後の電子バンドトポロジーが超高速に変調できることを発見した。さらに時間スケールに着目すると、光励起後に表面状態が現れるのに約 600 fs 要することが明らかになった。しかしながら、光電子分光測定の時間分解能は約 80 fs 程度であることから、上記の現象は時間分解能に制約された現象ではなく、600 fs の起源は分からぬ状況であった。

そこで、次に、自由電子レーザー-SACLA を用いて時間分解 X 線回折測定を実施した。図 3(b)に超格子反射 $2/3\ 0\ 3$ の強度ダイナミクスの励起強度依存性を示す。弱励起条件下(0.4 mJ/cm^2)では周波数が約 1.5 THz(半周期 340 fs)の CDW 振幅モードが明瞭に観測される一方で、強励起条件下(4.9 mJ/cm^2)

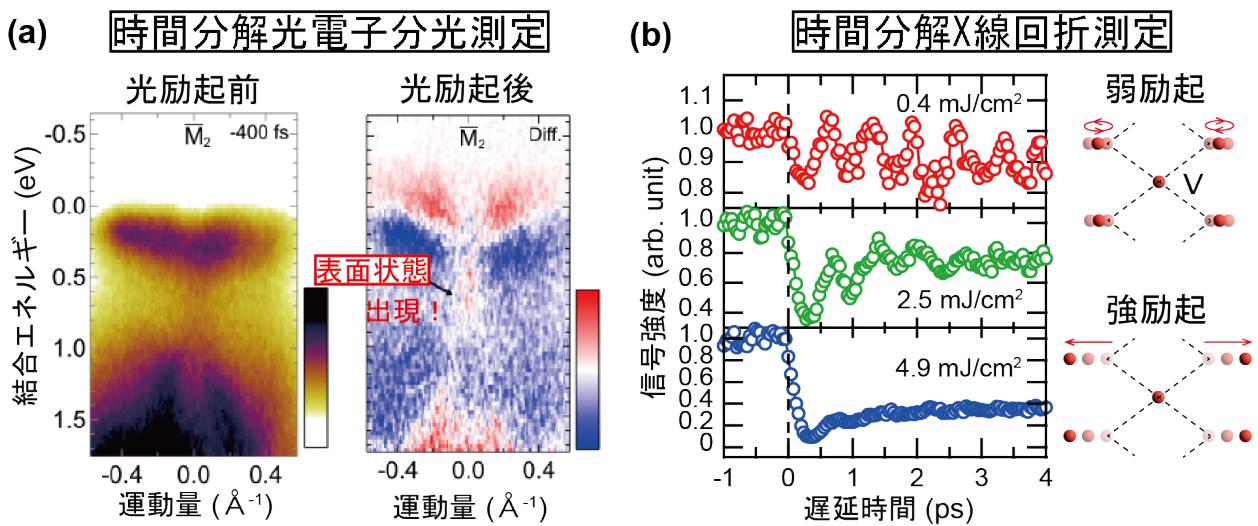


図 3 (a) VTe_2 における時間分解光電子分光測定と(b)時間分解 X 線回折測定の結果