

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 1日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22540334

研究課題名（和文）電子系のコヒーレンス制御による大振幅コヒーレントフォノンの生成

研究課題名（英文） Generation of large coherent phonon amplitude via coherent control of electron system

研究代表者

櫻田 英之 (KUNUGITA HIDEYUKI)

上智大学・理工学部・助教

研究者番号：50296886

研究成果の概要（和文）：本研究では、格子の非調和効果のみによるコヒーレントフォノンのソフト化をめざす。

まず、パルス列で励起を行うと、多光子吸収を抑制しつつ、大きな振幅を持つコヒーレントフォノンを作成できることを明らかにした。このことは、パルス整形技術によって、試料の電子系を低温に保ちつつフォノンのソフト化への可能性を示唆している。

さらに、二準位電子系とみなせる CdSe 量子ドットで、初めてコヒーレントフォノンの観測に成功した。

研究成果の概要（英文）：As steps to realize coherent phonon softening originated only from lattice anharmonicity,

We performed mainly two experiments below.

First, by a pulse train excitation, we observed large amplitude of coherent phonon with suppressing multi-photon absorption. This suggests a possibility of phonon softening keeping low temperature electron system.

In addition, we observed coherent phonon oscillations in CdSe quantum dots which can be regarded as a two-level system.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
2012年度	600,000	180,000	780,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：コヒーレントフォノン、光物性

1. 研究開始当初の背景

固体における格子振動の固有周期よりも十分短い（～10フェムト秒）光パルスで固体中を励起すると、パルスの入射した瞬間から原子が同じ位相で振動する（コヒーレントフォノン）。

格子振動の振幅が増大すると、そのふるまいは調和振動子からずれ、ソフト化が起きるとされる。これは非熱的かつ電子が寄与しない融解の前駆現象として興味深く、強い光パルスを使って観測が試みられてきた。しかし、現時点では非調和性に関する明確な

議論は出来ていない。その理由は、コヒーレントフォノン生成の過程にある。通常、このような実験には、バンドギャップが小さいビスマスやテルルが使われ、電子が実励起される。その結果、原子の平衡位置が瞬間的に変化し、それに追従する原子の動きが格子振動の駆動力となる（Displacive Excitation of Coherent Phonons : DECP）。しかし、同時に電子は反結合軌道をより含む高エネルギー状態へと励起されるため、格子結合自体が弱くなる。つまり、これまで観測されてきたコヒーレントフォノンのソフト化は、むしろ電子状態の変化に由来すると考えられるようになっている。

2. 研究の目的

コヒーレントフォノンのソフト化をめざし、以下の二点を行った。

(1) 透明な物質の場合、光パルスが入射すると、瞬間的なラマン過程を経てコヒーレントフォノンが励起される（Impulsive Stimulated Raman Scattering : ISRS）。この場合、DECP過程に比べ、格子振動の駆動力は弱い。しかし、電子励起を伴わないため、コヒーレントフォノンの大振幅化が達成できたら、格子の非調和性のみ由来するソフト化の実現が期待できる。そこで本研究では、高強度極短光パルスを用いて、非共鳴励起による（格子非調和性のみ由来する）コヒーレントフォノンのソフト化の実現を目指す。

(2) 上で述べたように、電子遷移を伴う励起のほうが、振動の駆動力自体は大きい。そのため、コヒーレントフォノン生成の初期段階では電子遷移の共鳴励起を利用し、その後、電子系を基底状態へと制御できれば、やはり格子系のみ由来するダイナミクスを議論できる。そこで本研究では電子系のコヒーレンス制御が可能な物質系でのコヒーレントフォノン生成を試みる。

3. 研究の方法

(1) 非共鳴励起下での大振幅コヒーレントフォノン

①高強度単一光パルスによる大振幅コヒーレントフォノンの生成

コヒーレントフォノンの振幅はポンプパルスの強度に比例する。そのため、格子系のみに着目すれば、単純に高強度の光パルスを用いればよい。

現実には、光強度の増加に伴い、多光子電子励起や、その結果生じる光損傷によって、測定そのものが困難になる。

そこで、まず、単一パルスにおけるコヒーレントフォノンの強度依存性を広い範囲にわたって測定し、パルス強度の限界を確定させた。

②光パルス列によるコヒーレントフォノンの大振幅化

複数の光パルスを使ってコヒーレントフォノンを励起すると、各パルスによって生成されたコヒーレントフォノン同士が干渉することが知られている。これを利用し、複数のパルスの各間隔をフォノンの周期に合わせれば、コヒーレントフォノンの振幅を増大させることができる。

この手法は、ほとんどの場合、特定の振動モードのみを選択的に増強させるために用いられてきたが、一つの振動モードに着目した場合には、強度の総和が等しい単一パルスの場合と同じ現象がみられるにすぎなかった。一方、高強度励起でのコヒーレントフォノン生成では、上記のような問題が生じる。これに対して、同じ強度のパルスを分割し、パルス列として用いると、多光子励起を抑制しつつ強度の総和に比例したコヒーレントフォノンの生成が期待できる。

そこで、本研究では、多段マイケルソン干渉計を用いて、パルス列によるコヒーレントフォノン大振幅化の可能性を模索した。

(2) 量子ドットにおけるコヒーレントフォノンの観測

通常の固体では、電子のコヒーレンスが保たれない。しかし、二準位電子系とみなすことが可能な量子ドットを用いれば、電子系を制御しつつコヒーレントフォノンを操作できると期待される。そこで、これまで観測例のなかった CdSe 量子ドットのコヒーレントフォノン生成を試みる。

4. 研究成果

(1) 非共鳴励起下での大振幅コヒーレントフォノン

①高強度単一光パルスによる大振幅コヒーレントフォノンの生成

「研究の方法」で述べたように、まず、試料を損なわずにコヒーレントフォノンの生成が可能なパルス光強度の上限を見積もった。今回の研究では透明物質として、ワイドギャップ半導体を用いている。

励起強度を増加させると、多光子吸収によって物質内にキャリアが生じ、極性 (LO) フォノンの場合には、キャリア-フォノン間のフレリッヒ相互作用によって、コヒーレントフォノンの寿命が短くなることが知られて

いる。一方、ウルツ鉱構造における E_2 モードのような非極性フォノンでは、図 1 で示すように、キャリアの増加による影響を受けにくい。

そこで、本研究ではウルツ鉱型の半導体である ZnO の単結晶を使用し、チタンサファイヤ再生増幅器からの出力光 (パルス幅: 200 fs) で励起可能な Low- E_2 モードを対象に実験を行った。

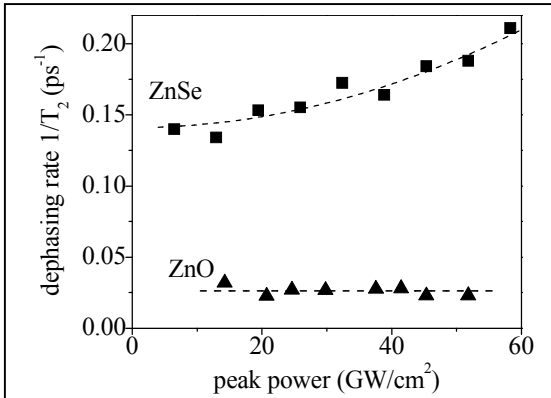


図 1 コヒーレントフォノン位相緩和とレートの励起強度依存性: ZnSe LO フォノンと ZnO E_2 フォノンとの比較

従来の実験と同様に、励起強度の増大とともにコヒーレントフォノン振幅の増大が見られ、プローブ光透過率の変化は最大で 0.1 パーセント以上に達したが、ある強度を境に、むしろ信号は減少した。この原因を考察するために、この閾値より上から励起光強度を下げた。信号強度が戻らないことから、多光子イオン化による光損傷が起き、これがコヒーレントフォノンの増大の限界を決めていると結論付けた。

② 光パルス列によるコヒーレントフォノンの大振幅化

光パルスを二分割し、その間隔がフォノンの周期になるようにすれば、上で述べたように、期待されるコヒーレントフォノンの振幅は変わらない。二光子吸収強度は二分の一となるため、光損傷の閾強度を上げられると期待できる。

そこで、マイケルソン干渉計をポンプパルスの光路に入れ、ポンプパルス強度の総和と信号との関係を調べた。

図 2 に示すように、信号強度は頭打ちにはなかったが、明らかに同じ強度の単一パルスに比べて、信号の増大が見られた。

さらに、マイケルソン干渉計を増設して 4 パルスまでの実験を行った結果、信号の増大を確認した。このことから、空間位相変調器等

で多重パルス列を作成すれば、ソフト化に至る大振幅のコヒーレントフォノンの観測が期待できる。

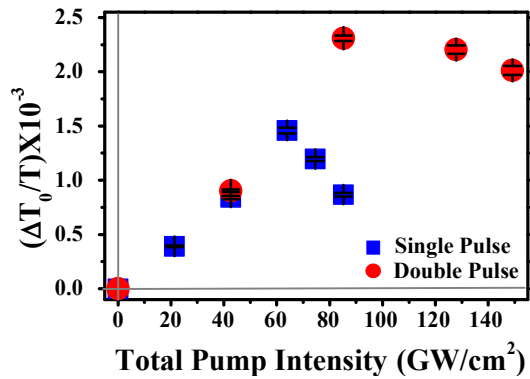


図 2 単一パルスおよび 2 パルス励起によるコヒーレントフォノン信号の強度依存性

(2) 量子ドットにおけるコヒーレントフォノンの観測

量子ドットでは閉じ込め効果によって励起子の束縛エネルギーが増強されている。その結果、上で述べたように、電子状態は二準位系とみなすことができる。

本研究では、将来的な電子系のコヒーレンス制御を見据え、可視域に共鳴がある CdSe 量子ドットを用いた。

光源には可視全域で波長可変であり、かつフォノンの周期に比べて十分に短いパルス幅

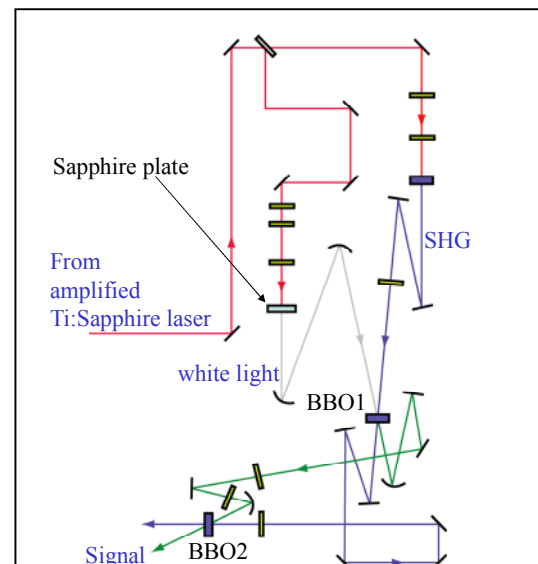


図 3 非同軸パラメトリック増幅器の構成

を出力できる、非同軸パラメトリック増幅器（自作、図3）を用いた。ポンプ光によるプローブ光の偏光回転を検出する、いわゆる電気光学サンプリング測定を行ったところ、図4に示すように、非線形光学効果に伴う時刻ゼロ付近の急激な透過率変化ののちに、明らかな周期的な信号を観測した。

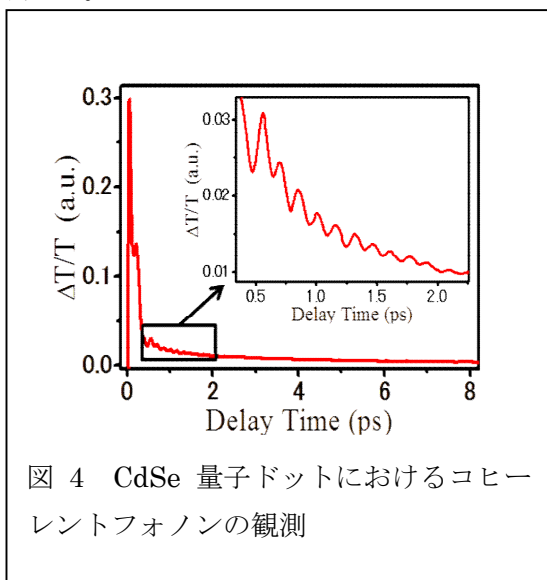


図4 CdSe量子ドットにおけるコヒーレントフォノンの観測

この量子ドットもウルツ型の結晶構造をしており、測定の偏光選択則からは、 E_2 モードのみが観測されると考えられるが、その一方で、振動周期はバルク型CdSeのLOフォノンに近いものであった。

さらに、CdSe量子ドットのラマン散乱の報告でもLOフォノンのみの観測がなされており、現時点ではこの信号がどのモードに由来するものなのかは明らかにはなっていない状況である。

しかしながら、CdSeの量子ドットにおける初めてコヒーレントフォノンの観測であり、今後の励起子共鳴効果を利用した、電子-格子系のコヒーレント制御へとつながると考えている。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計1件）

- ① 樫田英之、ワイドギャップ半導体におけるコヒーレントフォノンの観測、表面科学、査読無、32巻、2011、761-766
DOI : 10.1380/jssj.32.761

〔学会発表〕（計6件）

- ① 樫田英之、「光触媒二酸化チタンの光励起キャリアダイナミクス」第5回超高速光エレクトロニクス研究会、2012年12月8日、

箱根

- ② 橋本一弘, 関根寛, 相澤隆之, 江馬一弘, 樫田英之、「半導体 ZnO におけるコヒーレントフォノンの大振幅化 II」日本物理学会
2012年3月24日、関西学院大学
- ③ 相澤隆之, 橋本一弘, 関根寛, 江馬一弘, 樫田英之、「CdSe 量子ドットにおけるコヒーレントフォノン」日本物理学会
2012年3月24日、関西学院大学
- ④ K. Hashimoto, K. Ema and H. Kunugita, “Multi-pulse Excitation of Coherent Phonon in ZnO”
International Workshop on Ultrafast Chemical Physics & Physical Chemistry
2011年12月15日、英国、グラスゴー
- ⑤ 橋本一弘, 江馬一弘, 樫田英之、「半導体 ZnO におけるコヒーレントフォノンの大振幅化」
日本物理学会、
2011年9月21日、富山大学
- ⑥ 橋本一弘, 樫田英之, 江馬一弘、「ワイドギャップ半導体 CdS におけるコヒーレントフォノンの振る舞い」日本物理学会
2010年9月25日、大阪府立大

6. 研究組織

(1) 研究代表者

樫田英之 (KUNUGITA HIDEYUKI)
上智大学・理工学部・助教
研究者番号：50296886