

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23684018

研究課題名(和文)フェムト秒時間分解電子線回折による超高速格子ダイナミクスの研究

研究課題名(英文)Ultrafast lattice dynamics studied by femtosecond time-resolved electron diffraction

研究代表者

下志万 貴博(Shimajima, Takahiro)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：70581578

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 22,700,000円、(間接経費) 6,810,000円

研究成果の概要(和文)：時間分解電子線回折装置を完成させた。本装置を用いHOPGやマイカ等の標準試料を用いて透過型及び反射型配置においてフォトカソード電子銃による電子線回折像を得た。さらに透過型配置において、膜厚11nmの金の単結晶薄膜を用いた時間分解測定に成功し、ブラッグピーク強度が10psの時間スケールで減衰する様子を観測した。また、マイクロームで薄片化したIrTe<sub>2</sub>単結晶のブラッグピーク観測からは、更に早い12psの時間応答を観測し電子系と格子系との強い結合が示唆された。現状の装置の総合時間分解能は少なくとも2ps以下と見積もられた。鉄系超伝導体FeSeに対する実験は現在も進行中である。

研究成果の概要(英文)：We constructed the ultrafast electron diffraction system. We obtained the electron diffraction images of HOPG or mica by using photocathode electron gun in the transmission and reflection geometries. In the transmission geometry, we successfully obtained the time-resolved signal from the Bragg spots of thin Au single crystals, which decreases within 10 ps. We also measured the IrTe<sub>2</sub> which shows the decay of the Bragg spot intensity within 2ps, indicative of the electron-phonon coupling stronger than that of gold. At the same time, total time resolution of this system was estimated to be better than 2ps. Investigation on the iron-based superconductors are now in progress.

研究分野：物性I

科研費の分科・細目：物性I

キーワード：時間分解電子線回折 構造相転移 レーザー

## 1. 研究開始当初の背景

電子の内部自由度が巨視的物性に寄与する強相関電子系は、高温超伝導発現や金属絶縁体転移などの多彩な相転移を示すことが知られている。特に多軌道強相関物質ではヤーンテラー効果により電子と格子が強く結合している。このような系に対して熱平衡的な物性観測を行う場合、様々な自由度が一緒に変化するため、相転移の起源の解析は困難であった。近年では、レーザー技術の発展により、パルスレーザー光照射を外部刺激とした超高速励起過渡現象から電子と格子の分離が可能となりつつある。

超高速緩和過程を調べる「時間分解型」の実験手法は大きく3つに分類される。電子状態の応答を調べる光電子分光、誘電応答を見る反射率及びラマン散乱と、格子の応答を見るX線回折及び電子線回折などである。これらの実験手法は互いに相補的な関係にあり、固体の光応答の完全な理解には3者が不可欠である。

本研究で対象とする時間分解構造解析についての過去の報告は少ない。しかし近年、パルス電子線を用いた時間分解測定技術が海外で急速に発展している。特に時間分解電子線回折は、大部分の報告が海外からであり、日本では未開拓の研究分野と言える。時間分解構造解析実験のプローブとして、これまでは主にX線が用いられてきた。短パルスかつ高強度のX線を得るためには放射光が有用であるが、約100ps以下のパルス幅を得ることは難しい。近年はレーザーライジング法や自由電子レーザーの開発が進み、fsオーダーの超短パルスX線が実用化されつつある。しかし大型放射光施設を用いるため、実験の自由度やマシンタイム取得等の制限が懸念される。更に、プローブである高エネルギーX線はポンプ光より侵入長が長いいため、励起されていないバ

ルク成分を多分に含んでしまうという原理的な問題点がある。一方の電子線では、侵入長がポンプ光程度であることに加え、物質との散乱断面積がX線の $10^4$ 倍も大きい利点がある。fs時間分解電子線回折は、卓上サイズの装置で実験可能な点にも特色がある。このような利点を持つ時間分解電子線回折実験は、強相関電子系における多彩な相転移現象の理解に不可欠な実験手段として注目されている。

## 2. 研究の目的

近年、高温超伝導体や熱電材料、超高速スイッチングデバイスへの応用から強相関電子系が注目されている。強相関電子系では電子の内部自由度である電荷・スピン・軌道が密接に絡み合い、時に格子変形を伴って物性に劇的な変化を引き起こす。特に、鉄ニクタイトやマグネタイトでは構造相転移が軌道整列を伴って生じている指摘がなされ、それらの因果関係の解明が求められている。時間分解電子線回折法では、電子系と結合した特異な格子変形をa,b,c軸毎にフェムト秒オーダーで時間追跡することができる。本研究の目的は、時間分解電子線回折法を用いて、強相関物質における構造相転移の起源を軌道秩序の観点から明らかにし、新機能材料開拓のための知見を得ることである。

## 3. 研究の方法

本研究では初めにフェムト秒時間分解電子線回折装置の建設を行った。本装置は光学系と測定系の2つに分けられる。光学系ではフェムト秒レーザーより出射した1030nmの基本波を2本に分岐し、一方を基本波のままポンプ光として用い、他方について非線形光学結晶を2つ用いて4倍波を生成させた。生じた4倍波は4.8eVのエネルギーを持つことから金の薄膜(4.3eV

の仕事関数)からなるフォトカソードに照射すると光電効果を生じ、フェムト秒パルス電子線を発生させる。発生したパルス電子線を60kVまで加速し、電子レンズを経て試料に集光させた。測定系ではパルス電子線をプローブとして用い、ポンプレーザーにより励起された試料の格子情報を検出する。本装置は反射型と透過型の2通りの実験配置が可能であり、薄膜試料及びバルク単結晶の構造解析が行える仕様とした。

本装置ではパルスレーザーで試料を励起し、パルス電子線により非平衡状態の格子をプローブする。試料配置を変えることにより、回折点を三次元的に観測することができる。回折点位置の変化はそのまま原子位置の変化となる。更に、回折点強度の減衰は格子間隔の乱雑な変位を反映するため、デバイワラ因子から格子温度  $T_p$  及び  $T_l$  が見積もられる。これらの情報を  $x, y, z$  軸毎に時間分解することで、実空間における構造変化の動的イメージが得られ、初期過程としての局所的格子変位を知ることができる。電子格子相互作用の起源の考察の際、軌道と格子系の分離は長年困難であったが、初期過程の時間スケール及び異方性の決定からそれが可能になると考えられる。

#### 4. 研究成果

初年度から建設を進めてきた時間分解電子線回折装置を完成させた。本装置を用いHOPGやマイカ等の標準試料を用いて透過型及び反射型配置においてフォトカソード電子銃による電子線回折像を得た。さらに透過型配置において、膜厚11nmの金の単結晶薄膜を用いた時間分解測定に成功し、ブラッグピーク強度が10psの時間スケールで減衰する様子を観測した。また、マイクロームで薄片化したIrTe<sub>2</sub>単結晶のブラッグピーク観測からは、更に早い2psの時間応答を観測し電子系と格子系との強い結合が示唆された。現

状の装置の総合時間分解能は少なくとも2ps以下と見積もられた。鉄系超伝導体FeSeに対する実験は現在も進行中である。これまでに格子応答の時間スケールに温度依存性が見られ、低温においてより速い励起時間が見積もられた。FeSeでは軌道秩序と構造相転移がほぼ同温度において生じることが知られている。本結果は、これら相転移温度以下において電子と格子の結合が強くなったことを示唆している可能性がある。

本研究では電子系と格子系が同時に相転移を生ずる強相関物質を研究対象としている。時間分解電子線回折実験に適した試料を探索するために、角度分解光電子分光を用いた様々な物質の電子状態観測を並行して行った。その結果、格子変位と反強磁性秩序がほぼ同時に生ずる鉄系超伝導体BaFe<sub>2</sub>(As,P)<sub>2</sub>において軌道秩序の形成を見出した。さらに軌道秩序温度近傍から生ずる擬ギャップ相を見出し、本物質の異常な常伝導電子状態の存在を明らかにした。本結果はPhysical review Bに掲載されている。

#### 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)

T. Shimojima (1人目、他3人),

Phys. Rev. B 89, 045101 (2014)

、査読有

DOI: 10.1103/PhysRevB.89.045101

[学会発表](計 2件)

下志万 貴博、中村飛鳥、出田真一郎、石坂香子、卓上フェムト秒電子線回折装置の開発

日本物理学会 2014/3/27

下志万貴博

角度分解光電子分光から見た鉄系超伝導体  
の軌道秩序

日本物理学会 2014/3/29

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://ishizaka.t.u-tokyo.ac.jp/UED.htm>

|

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

下志万貴博 (Takahiro Shimojima)

東京大学・工学系研究科・助教

研究者番号 : 70581578