

平成 21 年 5 月 1 日現在

研究種目：基盤研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19360028
 研究課題名 (和文) フォノン-フォノン相互作用に関する研究
 研究課題名 (英文) Phonon-Phonon interaction in crystal
 研究代表者
 弘中 陽一郎 (HIRONAKA YOICHIRO)
 大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・特任研究員
 研究者番号：20293061

研究成果の概要：本研究では、フェムト秒のパルス X 線源をもちいて、結晶中のフォノンを時間分解 X 線回折法を用いて測定することによって、ラマン散乱や中性子散乱などの非弾性散乱法と異なり、格子のダイナミクスの、より直接的な構造的解釈が可能になった。パルス X 線源を新たに改良し、3 次元的なフォノンの緩和状態を計測するための手法を考案し、フォノン計測としての x 線回折法の予備実験にも成功した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	10,200,000	3,060,000	13,260,000
2008 年度	4,300,000	1,290,000	5,590,000
年度			
年度			
年度			
総計	14,500,000	4,350,000	18,850,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用光学・量子光工学

キーワード：光学フォノン・時間分解計測・x 線回折・フェムト秒レーザー

1. 研究開始当初の背景

材料科学的見地からすれば、原子あるいは格子の振動は、物質の特性を左右する極めて重要な物理現象である。特に、物質の構造相転移を考慮する場合には不可欠の要素であり、従来は温度というパラメータを用いて制御されてきた。固体物理的見地からは、フォノンとして量子化され、光吸収過程や、超伝導などのダイナミクスの理解において極めて重要な役割を果たしている。結晶中では様々なモードのフォノンが混在しており、光励起過程、たとえばラマン過程を考えた場合、ブリルアンゾーン中心の光学フォノンが励

起される場合を考えると、運動量を保存した形で音響モードへの遷移が起こりうる。このダイナミクスは、異なるフォノン間でのエネルギーの授受を引き起こし、結晶中に運動量保存に伴うフォノンのネットワークがあることを意味している。通常、フォノン間の衝突により起こるとされているこのダイナミクスは、直接測定することが非常に難しい。これらのダイナミクスを観測するためには、特定のフォノンを励起して追跡する方法がもっとも一般的である。近年の短パルスレーザー技術の発達に伴い、位相のそろったフォノン (コヒーレントフォノン) を誘起するこ

とが可能となった。この技術を用いると、特定のフォノンを励起し、その緩和過程を追跡することができ、フェムト秒領域の反射率測定法を用いて、研究されている。ところが、反射率測定では間接的な情報となってしまう、その詳細を論ずることは非常に難しいといえる。たとえば、反射率測定では、緩和過程が生じたときに、異なるモード間での違いが明白ではない。したがって、これらの違いを明白に捕らえることの可能な測定手法が必要となる。そこで、近年注目されているのが時間分解 X 線回折法である。従来、X 線回折では光学フォノンを測定することは不可能であると考えられていた。しかし、X 線パルスのパルス幅がフォノン周波数と同程度になると、時間分解 X 線回折法によって、光学フォノンが測定可能であることが理論的に示される。

時間分解 X 線回折法はまだ、開発段階にある手法であるといわざるを得ないが、上記の理由から、結晶中でのフォノンのダイナミクスを観測する最も適した手法であり、本研究者は、従来からこの手法を研究してきた。近年、放射光施設における X 線の短パルス化が計画されるようになり、将来的には放射光の潤沢な X 線を用いて測定されるであろうと予測しているが、国内では、短パルス（数百フェムト秒）高輝度 X 線を発生する手法としては、高輝度フェムト秒レーザーが唯一の手段となる。X 線発生が可能な高輝度フェムト秒レーザーは、放射光ほどの安定性がなく、その扱いもきわめて難しい。しかし、通常の実験室レベルで実験を行うことができ、従来から培ってきた技術を持ってすれば、測定は十分に可能であると考えられた。

2. 研究の目的

本研究では、時間分解 X 線回折法を適用して、固体中でのフォノン-フォノン相互作用のダイナミクスを明らかにすることを目的としている。時間分解 X 線回折法を用いて、フォノンの緩和過程の時定数やフォノン振幅、コヒーレンスの関係を明らかとし、光照射に伴う結晶中でのフォノンネットワークを明らかとすることである。

3. 研究の方法

本研究目的を達成するためには、時間分解 X 線回折測定法の測定精度の向上がもっとも重要な点であり、パルス X 線の安定化および高輝度化と時間分解能を制御するステージやその制御方法に大別される。

パルス X 線の安定化のためには、これまで

に用いてきた、x 線発生装置の問題点などを考慮して、x 線発生装置の改良を行った。

一方で、結晶中でのフォノンのダイナミクスをより明確にとらえるためには、複数の逆格子ベクトルを同時にとらえることが必要となり、そのために必要な、広角 X 線回折法を取り入れた、測定法を提案した。

4. 研究成果

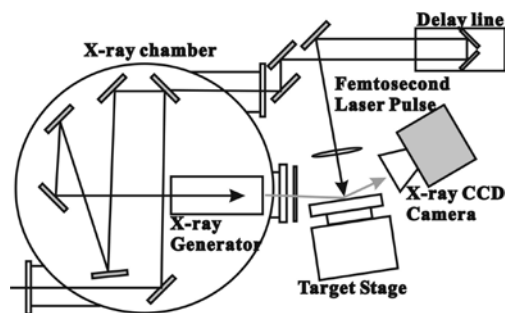


図 2. 基本的な計測配置

従来の時間分解 X 線回折法によるフォノン測定配置。本研究では、Delay line は、パルスモータから、ピエゾ型のステージに交換し、CCD ではなく、リニアダイオードアレーと IP を用いた。

従来、レーザー光を金属表面に集光してパルス X 線を発生させている。発生する X 線の安定性をさらに向上させるため、金属表面への集光角度や、マグネットの配置など、さまざまな改良を施した X 線源を開発した。図 3 は 90 度のパラボラミラーと、安定化したテーブターゲット、並びに、X 線射出用マグネットなどの配置を示してある。

この配置により、パラボラ鏡の表面に到達する金属デブリが軽減され、また、効率的な X 線射出を行えるように、ネオジウム磁石を配置してある。発生容器自体を独立化させ、およそ 40cm 四方のチャンバー内に収めた。

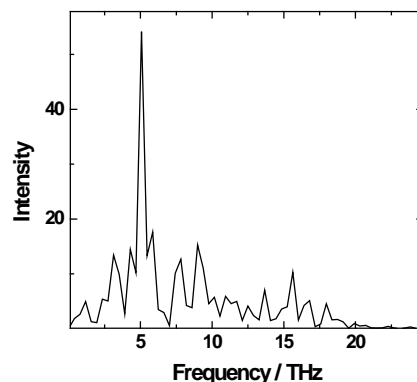


図 1. 時間分解 X 線回折法による CdTe の光学フォノンモード



図3. パルス X 線発生装置

軸外しパラボラミラーは、90 度のものに変更され（従来は 30 度のものを使用していた）デブリの影響を最小限に抑える。テープターゲットは、従来のパルスモーターから DC モーターに切り替え、安定性を確保した。

測定された回折強度の時間履歴をフーリエ変換することで、図 1 のような結果を得る。ピークは用いた CdTe の光学モードに相当する周波数を示している。時間分解 X 線回折で、光学フォノンが計測できたことは大きな成果であるが、本研究では、将来的な展望として、広角 X 線回折法を提案した。

本研究で用いる時間分解 x 線回折法の原理は、本研究で提唱した式により説明される。その式では、逆格子ベクトルと、原子の変位ベクトルとの内積が含まれており、測定にかかるフォノンの選択則が存在する。特に、両者の内積がゼロとなるフォノンに関しては、測定できない。このことは、利点でもあり、欠点でもある。

しかし、逆格子が直交していなければ、フォノンモードを測定できることから、うまく逆格子を選ぶと、互いに直行するモードを測定できることを意味する。

そのためには、複数の逆格子を同時に計測することで、3 次元的な格子の振る舞いを時

間分解で測定することが必要になる。

本研究では、広角 X 線回折法を従来の時間分解 X 線回折法に適応することで、上記の問題を解決することを試みた。

時間分解 x 線回折法でフォノンを計測する場合、回折線の強度の時間履歴をフェムト秒の時間分解能で測定する。（その回折線が禁制反射であってもよい。）このような短い時間に複数の逆格子に対して、回折線を測定するためには、多結晶体を用いたり、ラウエ法などの回折法を用いることができれば、よ

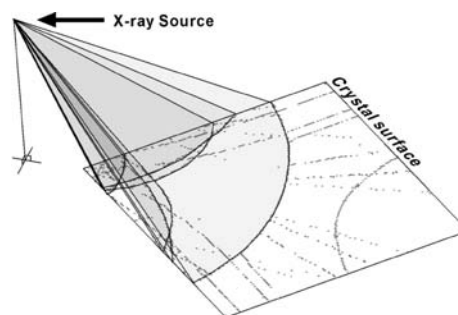


図4. 広角 X 線回折による格子の 3 次元計測。結晶表面での回折点が曲線であるため、回折線は計測器（イメージングプレート）上で曲線を描く。予備実験では 50×60 程度の大きさのイメージングプレートを用いて、多くの回折線を同時にとらえることができた。時間分解計測を行う場合は、集光結晶を用いて、結晶表面に X 線を集光し、そこから回折されてくる X 線を面で受けることによって、同様の測定が行え、かつ、結晶上でのレーザー励起領域を小さくすることが必要である。

り簡単に計測ができる。しかし、現状、レーザー誘起 X 線源では、輝度が圧倒的に足りない（時間分解能を優先しなければならない）。したがって、単結晶を用いなければならないが、単結晶を用いると、複数の逆格子を同時に測定することが難しくなる。そこで用いたのが、広角 X 線回折法である。

単結晶のすぐ近くに X 線の点光源を配置し、単色の X 線を放射状に発生させると、回折条件は、点光源を頂点とする円垂に似た曲面状で回折条件を満たす。図 4 は CdTe の (100) 面を用いた場合の回折を起こす入射 X 線の一部を計算した結果である。四角で囲った領域はレーザー照射領域と一致させるために、点光源の位置が計算される。今回行った予備実験では、図 4 に示されるような配置で行ったが、将来的には、X 線集光結晶を用いて、単結晶

表面の一点に大きなダイバージェンスをもったX線を集光することで、空間コヒーレンスを保つことができる。

この方法では、単結晶でも、同時に複数の逆格子を計測できる。格子面(200)に対して、有限の角度を持つ(311)や(402)などの格子面が測定できると、その強度の時間発展から、[100]に垂直な方向も測定できるため、フォノンの緩和過程を3次的に計測できることを意味している。

本研究期間では、広角X線回折法を用いた時間分解測定には至らなかったが、レーザー誘起X線源を用いて、広角X線回折法の測定に成功し、将来的な展開としてフォノンのダイナミクス計測が、十分に期待できることが示された。

広角X線回折法の予備実験では、イメージングプレートを用いて回折線を計測したが、いくつかの回折線に限れば、X線CCDやダイオードアレーを用いた計測器にすることで、はるかに早い測定が行える。

このことは、本研究の目的であるフォノン-フォノン相互作用を観測するうえで、非常に適した手法となり、現在においても、世界中で、その詳細を測定できた例はない。

そもそも、X線回折は構造を直接見ているという意味で、しばしば用いられてきたが、特に、時間分解X線回折では、完璧に構造を測定しているわけではなく、ある構造情報の断片を計測していたにすぎない。特に、フォノンの測定において重要な意味を持つ単結晶の計測において、時間分解X線回折はそのような傾向にある。しかし、ここで、示した広角X線回折法を適用した時間分解計測を実施することによって、真の意味での構造（電子密度分布）を計測することが可能となり、フォノンの緩和過程を三次元で測定できる可能性が高いことが示された。

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)

K. Nakamura, S. Ishii, S. Ishitsu, M. Shiokawa, H. Takahashi, K. Dharmalingam, J. Irisawa, Y. Hironaka, K. Ishioka and M. Kitazawa, "Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from optical coherent phonons in CdTe(111) crystal". Appl. Phys. Lett. 93, 2008, 061905 (査読有)

[図書] (計1件)

Y. hironaka, Springer, Springer series in Optical Sciences, Ultrafast Optics V, 2007, 4

6. 研究組織

(1) 研究代表者

弘中 陽一郎

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・特任研究員 (客員准教授)

研究者番号: 20293061

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

近藤 建一

東京工業大学・応用セラミックス研究所・教授

研究者番号: 50111670