

機関番号：92704

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20750021

研究課題名(和文) 絶対位相制御光による固体の超高速光ダイナミクスの解明

研究課題名(英文) Ultrafast dynamics in solids studied by carrier-envelope phase locked laser pulses

研究代表者

加藤 景子 (Keiko Kato)

日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・研究員

研究者番号：40455267

研究成果の概要(和文)：

レーザー光電界の絶対位相が制御された光(絶対位相制御光)を用い、固体中の光励起キャリアおよびフォノンのダイナミクスを時間分解反射率測定によって調べた。ドーピングしたシリコンでは非等方に分布するホールによってコヒーレントフォノンが駆動されることがわかった。また金属型カーボンナノチューブでは自由キャリアとコヒーレントフォノンとの間でカップリングが起きることがわかった。

研究成果の概要(英文)：We performed time-resolved reflectivity measurements to study ultrafast carrier and phonon dynamics by carrier-envelope phase locked laser pulses. In heavily doped Si, the anisotropic hole-distribution drives coherent phonons. In metallic single-walled carbon nanotube, we found the coupling between carriers and coherent phonons.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2009年度	400,000	120,000	520,000
2010年度	400,000	120,000	520,000
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：反応動力学

1. 研究開始当初の背景

近年のインターネットの普及に伴い、情報処理・通信の高速化が求められるようになった。結果、電子デバイスの大きさは原子レベルまでに到達し、従来の半導体技術の延長のみでは信号処理速度の限界を迎える日もそう遠い日ではなくなってきた。そこで光を使って信号を制御する超高速光エレクトロニクスに関する研究が進められている。たとえば超高速光スイッチを用いれば、時間の遅れなく、大量の情報を送受信することができるようになる。超高速光エレクトロニクスでは、

光照射による物質の超高速光応答を利用していることから、「光で物質を制御する」ことが非常に重要であると考えられる。

光を固体に照射すると電子が光電界に追従して運動を始める。この時、電子は光電界の位相を反映して運動する。しかし、光照射後、時間経過と共に電子・電子散乱過程を経て、電子は初期に獲得した光電界の位相情報を失っていく。同時に電子・格子相互作用を介して、電子のエネルギーが格子に移行し、位相の揃った格子振動(コヒーレントフォノン)が発生する。

近年のレーザー技術の進歩に伴い、格子振動より十分に短い時間幅を持つレーザーパルスが得られるようになり、ポンプ・プローブ分光計測によって、固体中のキャリアおよび格子振動ダイナミクスを実時間観測できるようになった。これらの研究を通じ、超高速光通信に用いる材料の光応答や、固体表面における吸着分子の光反応・脱離に関する理解が深められてきた。

しかし、従来のレーザー技術では光電界の絶対位相を固定することが困難であったために、光電界が持つ位相情報は平均化され、物質中に伝播されることなく失われていた。そのために本来であれば反応初期過程を決定づける光電界の持つ位相が、物質中の電子および格子にどのような影響を及ぼすか、明らかにされていなかった。

2. 研究の目的

本申請では、光の絶対位相を制御した光(絶対位相制御光)を用い、光電界に追随した電子の運動ならびに、電子・格子相互作用を介して駆動される位相の揃った格子振動(コヒーレントフォノン)を生成し、時間分解分光測定を通じてこれらのダイナミクスを実時間で追跡し、レーザー電界が固体のキャリアおよび格子振動ダイナミクスにどのような影響を及ぼすか明らかにすることを目標とした。

本申請を遂行することで、光電界が固体に及ぼす影響を明らかにすることが可能となり、ひいては光電界による固体のキャリアおよび格子振動の時間変化の追跡、すなわち固体中の光反応の追跡が可能になると考える。

3. 研究の方法

超短パルスレーザーを用いた時間分解反射率測定装置を製作し、下記の物質を対象として光励起キャリア・フォノンダイナミクス計測を行った。

・代表的な半導体であるシリコンであるは、不純物を添加(ドーピング)することでその物性を制御する。そこで本研究ではシリコンの超高速キャリア・フォノンダイナミクスにおけるドーピングの影響を調べた。

・空間的に非等方な光電界を有する絶対位相制御光を低次元構造物質に照射すれば、1次元、2次元上でのキャリア・フォノンダイナミクスの制御が可能になると考える。そこで本申請では金属型カーボンナノチューブの超高速光キャリア・フォノンダイナミクスを調べるためにサブ 10 フェムト秒レーザーを用いた時間分解反射率測定を行った。

・GaAsなどに代表される極性半導体は、デバイス応用が盛んであり電子・格子相互作用の解明を目指したコヒーレントフォノンに関する研究が数多く行われている。特にGaAsでは、定電場印加によるコヒーレント

フォノンの制御の報告例があり、絶対位相制御光を用いた場合のモデルケースとして物理的記述が可能であると考え。本課題の遂行により絶対位相制御光と固体との相互作用に関する基礎情報の獲得を目指した。

4. 研究成果

(1) 時間分解反射率測定システムの構築

サブ10 fsレーザーを用いて、時間分解反射率測定装置を製作した。製作に当たってはダイナミックレンジの高い検出器を用い、高感度化に努めた。

製作した装置の性能を評価するために、本装置の理論上の測定限界である振動周期(20 fs)のフォノンを持つ炭素系化合物(グラファイトなど)で時間分解反射率測定を行った。炭素間伸縮振動に由来するコヒーレントフォノンの信号を測定することが出来た。このことから、本装置で測定限界の時間分解能が達成できていることがわかった。また、従来の装置と比較して10倍程度よい信号対ノイズレベルで信号が検出できていることもわかった。

(2) ドープしたシリコンのコヒーレントフォノンダイナミクス

p型シリコンでは空間的に非等方に分布するホールによってコヒーレントフォノンが駆動されることがわかった。また、ドーピングの極性に依存してコヒーレントフォノンの寿命が変化することがわかった。本結果はドーピングによってフォノンのコヒーレンスが制御できることを示唆する。

(3) 金属型カーボンナノチューブにおけるコヒーレントフォノンダイナミクスの観測

これまで観測が不可能だと報告されていた金属型カーボンナノチューブのコヒーレントフォノンの観測に成功した。直径が伸縮するラジアルブリージングモード、炭素伸縮振動モードの縦ならびに横モード、さらには欠陥に由来するDモードのコヒーレントフォノンを観測した。光励起キャリアの密度に依存して、キャリア・フォノン相互作用によってラジアルブリージングモードの周波数が変化することがわかった。さらにカーボンナノチューブの凝集が、時間分解反射率測定によって従来の分光学的手法より高感度に検出できることがわかった。

(4) 絶対位相制御光を用いた極性半導体における超高速キャリア・コヒーレントフォノンダイナミクスの観測

絶対位相制御光を用いて、GaAs, SiC, GaNなどの極性半導体において時間分解反射率測定を行い、キャリア・フォノンダイナミクスの観測を行った。しかしながらいずれの物質においても、絶対位相依存性の観測には至らなかった。いずれの半導体も1光子過程が起きていることから、光電界の絶対位相を抽出するには非線形性が弱くその検出に至らな

かったものと考えられる。

(5)絶対位相制御光を用いたワイドバンドギャップ半導体における超高速光キャリア・フォノンダイナミクスの観測

絶対位相制御光の影響を効率よく取り出すために多光子励起過程に着目し、GaNなどのワイドバンドギャップ半導体を対象として時間分解反射率の測定を行った。しかしながら信号強度が非常に低く、光励起キャリア・フォノンダイナミクスにおける絶対位相依存性の観測にはまだ至っていない。今後は実験手法ならびに、観測対象の見直しを行い、引き続き固体キャリア・フォノンダイナミクスにおいて光電界の位相が与える影響について調べていきたい。

(6)表面二次高調波発生による固体表面・界面ダイナミクスの観測

固体表面・界面に局在する空間的に非対称な電場を有する系において、光電界の絶対位相が及ぼす効果を調べるために、表面二次高調波発生によるキャリア・フォノンダイナミクスの測定システムの構築に着手した。酸化亜鉛表面からの二次高調波発生に成功した。今後は表面二次高調波の時間分解計測を行い、固体表面・界面の超高速光ダイナミクスにおける絶対位相制御光の影響について調べていきたい。

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 7 件)

1. K. Kato, K. Ishioka, M. Kitajima, J. Tang, R. Saito, and H. Petek, “Coherent Phonon Anisotropy in Aligned Single-Walled Carbon Nanotubes, 査読あり, Nano Lett., vol. 8, 2009, 3102-3108
2. K. Kato, A. Ishizawa, K. Oguri, K. Tateno, T. Tawara, H. Gotoh, M. Kitajima, and H. Nakano, “Anisotropy in Ultrafast Carrier and Phonon Dynamics in p-Type Heavily doped Si”, 査読あり, Jap. J. Appl. Phys. vol. 48, 100205 (2009).
3. H. Takahashi, K. Kato, H. Nakano, M. Kitajima, K. Ohmori, and K. G. Nakamura, “Optical control and mode selective excitation of coherent phonons in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ”, 査読あり, Solid State Comm., vol. 149, 1955-1957 (2009)
4. 加藤景子, 石澤淳, 小栗克弥, 舘野功太, 俵毅彦, 後藤秀樹, 中野秀俊, “p型シリコンにおける超高速キャリア・フォノンダイナミクスの観測”, 査読あり, レーザー研究, 38巻, 130-135 (2010).
5. K. Kato, K. Oguri, A. Ishizawa, H. Gotoh, H. Nakano, and T. Sogawa, “Observation of

coherent phonons in metallic single-walled carbon nanotubes”, 査読あり, Appl. Phys. Lett. vol. 97, 121910 (2010).

6. 加藤景子, 北島正弘, “カーボンナノチューブのコヒーレントフォノン”, 査読あり, 真空, 53巻, 317-326 (2010).
7. K. Kato, K. Oguri, A. Ishizawa, K. Tateno, T. Tawara, H. Gotoh, M. Kitajima, H. Nakano, and T. Sogawa, “Doping-type dependence of phonon dephasing dynamics in Si”, 査読あり, Appl. Phys. Lett., vol. 98, 141904 (2011).

[学会発表] (計 25 件)

1. 加藤景子, 石岡邦江, 北島正弘, 唐捷, Hrvoje Petek, “単層カーボンナノチューブのコヒーレント振動ダイナミクス”, 第55回応用物理学学会学術講演会, 船橋, 2008
2. K. Kato, K. Ishioka, M. Kitajima, J. Tang, and H. Petek, “Ultrafast dynamics of coherent phonons in the aligned single-walled carbon nanotubes”, Ultrafast Phenomena 2008, Italy, 2008.
3. K. Kato, K. Ishioka, M. Kitajima, J. Tang, R. Saito, “Real-time Study of Coherent Phonons in Aligned Single-Walled Carbon Nanotubes”, 5th Japan-Korea Symposium on Carbon Nanotube, Korea, 2008.
4. H. Takahashi, K. Kato, H. Nakano, M. Kitajima, K. Ohmori, and K. G. Nakamura, “Optical control of coherent phonons in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin film”, International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science, Japan, 2008.
5. 加藤景子, 石澤淳, 小栗克弥, 舘野功太, 俵毅彦, 中野秀俊, “p型Siにおけるコヒーレントフォノンダイナミクス”, 第56回応用物理学関係連合講演会, つくば, 2009
6. 高橋弘史, 久木宮領, 中村一隆, 加藤景子, 中野秀俊, 北島正弘, 大森賢治, “ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ におけるコヒーレントフォノンのモード選択励起”, 第56回応用物理学関係連合講演会, つくば, 2009
7. K. Kato, A. Ishizawa, K. Oguri, K. Tateno, T. Tawara, M. Kitajima, and H. Nakano, “Ultrafast dynamics of coherent phonons in p-type heavily doped Si”, STAC3, Yokohama, 2009.
8. K. Kato, A. Ishizawa, K. Oguri, K. Tateno, T. Tawara, M. Kitajima, and H. Nakano, “Dephasing dynamics of coherent phonons in heavily doped Si under non-resonant photoexcitation”, CLEO Europe-EQEC, Germany, 2009.
9. 高橋弘史, 久木宮領, 加藤景子, 中野秀俊, 北島正弘, 大森賢治, 中村一隆, “高温超電導酸化物のコヒーレントフォノンと制御”,

第3回分子科学討論会, 2009

10. 古賀翔, 片山郁文, 武田淳, 島田透, 加藤景子, 藤田大介, 北島正弘, “炭素系材料におけるコヒーレントフォノンとその欠陥効果”, 第20回光物性研究会, 大阪, 2009
11. 加藤景子, “サブ10フェムト秒レーザーによるコヒーレントフォノンダイナミクス”, 東京工業大学応用セラミックス研究所講演会, 2010.
12. 加藤景子, 高木大輔, 小林慶裕, 日比野浩樹, 石澤淳, 小栗克弥, 後藤秀樹, 中野秀俊, “コヒーレントフォノンによるバンドルしたカーボンナノチューブの環境効果の観測”, 第38回ナノチューブ・フラーレン総合シンポジウム, 名古屋, 2010
13. 加藤景子, 高木大輔, 小林慶裕, 日比野浩樹, 石澤淳, 小栗克弥, 後藤秀樹, 中野秀俊, “カーボンナノチューブのコヒーレントフォノンにおける環境効果”, 春季第57回応用物理学関係連合講演会, 東海大学, 2010
14. 加藤景子, 石澤淳, 小栗克弥, 後藤秀樹, 中野秀俊, “金属型単層カーボンナノチューブのコヒーレントフォノンに及ぼす光励起キャリアの影響”, 春季第57回応用物理学関係連合講演会, 東海大学, 2010
15. 古賀翔, 片山郁文, 武田淳, 島田透, 加藤景子, 菱田俊一, 藤田大介, 北島正弘, “グラファイトのコヒーレントDモードフォノン”, 春季第57回応用物理学関係連合講演会, 東海大学, 2010
16. 加藤景子, 石澤淳, 小栗克弥, 後藤秀樹, 中野秀俊, “金属型カーボンナノチューブのGモードのコヒーレントフォノンの観測”, 日本物理学会第65回年次大会, 岡山, 2010
17. 古賀翔, 片山郁文, 武田淳, 首藤健一, 島田透, 加藤景子, 菱田俊一, 藤田大介, 北島正弘, “カーボン系材料におけるコヒーレントフォノンのプラズモン増強”, 日本物理学会第65回年次大会, 岡山, 2010
18. 加藤景子, “サブ10フェムト秒レーザーによるコヒーレントフォノンダイナミクス”, 第7回AMO討論会, つくば, 2010
19. K. Kato, K. Oguri, A. Ishizawa, H. Gotoh, H. Nakano, and T. Sogawa, “Ultrafast Coherent Phonon Dynamics in Metallic Single-Walled Carbon Nanotubes”, Conference on Ultrafast Phenomena 2010, U. S. A, 2010
20. I. Katayama, S. Koga, T. Shimada, K. Kato, S. Hishita, D. Fujita, J. Takeda, and M. Kitajima, “Dynamics of Coherent Phonons in Disordered Graphite”, Conference on Ultrafast Phenomena 2010, U. S. A, 2010
21. 加藤景子, 石澤淳, 小栗克弥, 中野秀俊, 寒川哲臣, “フェムト秒レーザーによるSiCのコヒーレントフォノンの観測”, 第71回応用

物理学会学術講演会, 長崎, 2010

22. 小栗克弥, 加藤景子, 西川正, 後藤秀樹, 館野功太, 寒川哲臣, 中野秀俊, “59次高調波パルスを用いたポンプ・プローブ型半導体表面光電子分光”, 第71回応用物理学会学術講演会, 長崎, 2010
23. 小栗克弥, 加藤景子, 西川正, 後藤秀樹, 館野功太, 寒川哲臣, 中野秀俊, “高次高調波パルスによるGaAs表面起電力効果の時間分解計測”, レーザー学会第407回研究会「短波長光の発生とその応用」, 浜松, 2010
24. 加藤景子, “サブ10フェムト秒レーザーパルスによるカーボンナノチューブのコヒーレントフォノンの観測”, ナノカーボン物質の基礎と応用～現状と展望に関する若手研究会～, つくば, 2010
25. 小栗克弥, 加藤景子, 西川正, 後藤秀樹, 館野功太, 寒川哲臣, 中野秀俊, “高次高調波光電子分光によるGaAs表面バンド変化のダイナミクス計測”, レーザー学会学術講演会第31回年次大会, 東京, 2011

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称: 半導体の特性測定方法

発明者: 加藤景子, 小栗克弥, 中野秀俊

権利者: 日本電信電話株式会社

種類: 特願

番号: 2009-139989

出願年月日: 2011/6/11

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

加藤 景子 (KATO KEIKO)

日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所・研究員

研究者番号: 40455267