

波長分解ポンプ・プローブ法による コヒーレントフォノンの研究

溝口 幸司 〈大阪府立大学理学系研究科〉

大畠 悟郎 〈大阪府立大学理学系研究科〉

物質中の原子振動、分子振動や格子振動（フォノン）は、電子のエネルギー緩和や伝搬、熱伝導、相転移、および、超伝導など多くの物理現象に関わっている。例えば、光励起された電子がフォノンなどと相互作用し、緩和する典型的時間領域はフェムト秒領域からピコ秒領域であり、電子とフォノン間の結合ダイナミクスを明らかにすることは興味深い研究内容である。これを実験的に解明する手法のひとつとして、コヒーレントフォノンの時間分解観測が挙げられる。コヒーレントフォノンとは、物質中のフォノンの振動周期より短いパルス幅を有する超短パルスレーザーをその物質に照射することで、誘起される時空間領域で位相が揃ったフォノンのことをいう。1990年にはじめて半導体でコヒーレントフォノンが観測されて以来、半金属、誘電体、超伝導体、ナノ構造半導体などの様々な物質でも、コヒーレントフォノンが報告されている。このコヒーレントフォノンの観測を介して、電子-格子結合のダイナミクス、励起キャリアの緩和ダイナミクス、相転移のダイナミクスなどが明らかにされてきた。その一方で、コヒーレントフォノン自体の生成機構や検出機構には未解明な点が多い。

コヒーレントフォノンの観測手法には、実験手法の簡便性から、超短パルスレーザーを光源とした反射型（または透過型）ポンプ・プローブ法が最も広く用いられている。通常のポンプ・プローブ法では、ポンプパルスを物質に照射することでコヒーレントフォノンを誘起した後、そこに時間遅延させたプローブパルスを入射し、物質から反射（透過）してきたプローブパルスを検出することで、反射（透過）率の周期的変調としてコヒーレントフォノンを観測する。一方で、超短パルスレーザーのパルス光は数10～数100フェムト秒のパルス幅を持つため、不確定性関係から、数meV

～数10 meVのエネルギー幅が広がったスペクトルを示す。この特徴を利用することで、物質から反射（透過）してきたプローブパルスをエネルギー分解検出すること（波長分解ポンプ・プローブ法）が可能になる。

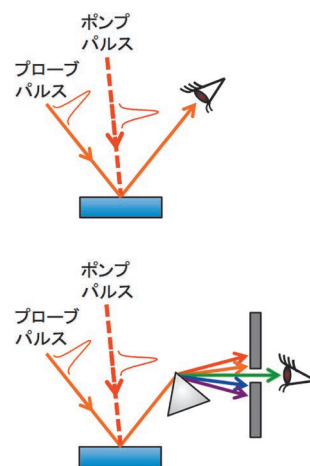
波長分解ポンプ・プローブ法では、反射（透過）してきたプローブパルスにおいて、どのエネルギーで反射（透過）率変化が生じているのか、その時間発展を調べることができる。ここでは、CdTe半導体結晶中に生成されたコヒーレントフォノンによって生じる、過渡的反射率変化が検出エネルギーに対してどのように観測されるのかを示す。波長分解ポンプ・プローブ測定の結果、レーザーパルスの中心エネルギーが、CdTeのバンドギャップエネルギーより低い場合（透明領域）と高い場合（不透明領域）では、コヒーレントフォノンの検出エネルギー依存性に大きな相違が見られた。得られたコヒーレントフォノンの振幅は、レーザーパルスの中心エネルギー ϵ_{exc} で最小となり、そこから高エネルギー側と低エネルギー側にシフトしたエネルギー $\epsilon_{\text{exc}} \pm \delta\epsilon$ でピークを示す。透明領域でのシフト量 $\delta\epsilon$ はフォノンのエネルギーに相当するが、不透明領域ではその2倍のエネルギーでシフトが見られる。この結果は、コヒーレントフォノンが反射率変化を引き起こす過程に、それぞれ1つおよび2つのフォノンの放出・吸収が含まれることを表している。

波長分解ポンプ・プローブ法は、コヒーレントフォノンの生成・検出過程を議論するための情報を与えるだけでなく、電子や励起子などのダイナミクスや電子-格子結合ダイナミクス、相転移ダイナミクスなどの研究にも多くの知見を供給するものと期待される。

—Keywords—

ポンプ・プローブ法：

2つの光（または粒子線）を用い、その中の1つの光（ポンプ光）を物質に照射することで物質に変化を起こし、もう1つの光（プローブ光）でその変化を測定する手法の総称であり、変調測定法の一つ。ポンプ・プローブ法の多くは光パルスを用いている。第1のポンプパルスが対象物質中に過渡的变化（例えばコヒーレントフォノン）を誘起し、第2のプローブパルスで対象物質の状態（例えば反射光強度）を計測する。ポンプパルスとプローブパルスの時間間隔を変えて計測することにより、ポンプパルスで誘起された過渡現象の時間発展を観測する。この方法により、電気的手法では追従することが困難なピコ秒以下の時間分解測定も可能となる。また、ポンプ・プローブ法において、対象物質を反射または透過してきたプローブパルスを分光する手法を波長分解ポンプ・プローブ法という。



ポンプ・プローブ法（上図）と波長分解ポンプ・プローブ法（下図）の模式図。