

超短パルスレーザーを用いた原子運動過程の実時間計測

中村一隆

東京工業大学科学技術創成研究院フロンティア材料研究所

はじめに

圧力や温度に依存した平衡状態での物質の構造は多くの物質で詳細に調べられている。しかし、非平衡状態における物質構造や、構造相転移するときのミクロスケールでの原子運動のダイナミクスは、その過程がナノ秒時間スケール以下と非常に短いために、よく分かっていない。衝撃圧縮法は、短時間に超高压状態を発生できることから、物質構造変化のダイナミクス研究に適している。特に、レーザー衝撃圧縮法とパルス光源（レーザーパルスやX線パルス）を観測に用いることで構造相転移の速度や転移経路を調べることも可能である。たとえば、放射光施設で発生するX線パルスとレーザー衝撃圧縮法を組み合わせることで、過渡的な超高压状態を100psの時間分解能を持つX線構造解析することが可能である。我々は、約10GPaの衝撃圧縮下のビスマス単結晶が約5nsの圧縮過程内にI相構造からV相構造に途中の高压構造（II,III相）を経ずに直接構造変化するのに対して、圧力解放過程においては、V-III-II-I相と順次構造変化をすること実時間測定により明らかにした[1]。このように、構造変化の速度や通過する相の経路を調べることは可能であるが、構造転移する際の原子運動の方向や経路という原子ダイナミクスを調べるためには、さらに高速の計測が必要不可欠である。ビスマス単結晶の場合、光学フォノンの振動周期は約300fsであり、それよりも高時間分解計測が必要である。本研究では、フェムト秒レーザー（パルス幅50fs以下）を用いたフェムト秒時間分解過渡反射光強度測定法により、構造変化の起因となる原子運動のダイナミクス（励起および緩和過程）を実時間計測により明らかにすることを目的と

している。さらに、量子力学モデルを構築し、量子状態の時間発展を密度演算子形式により計算し、理論的に説明するとともに、レーザー衝撃圧縮法との組合せ測定の可能性を探ることを目的としている。

研究内容と成果

これまでにバルクの半導体単結晶 n-GaAs を試料として、サブフェムト秒の精度で相対位相をロックしたフェムト秒パルス対を用いた、ポンプ・プローブ型の過渡反射光強度測定により、電子フォノン結合系のコヒーレント制御に成功している[2]。その際に、ポンプパルス対の光偏光は平行の設定してあり、パルス間隔が100fs程度までの範囲では、光干渉および電子干渉の影響を観測している。本年度は、パルス対の光偏光を垂直に設定し、光干渉の影響が消滅するのかどうかを検証した。

フェムト秒レーザーパルス（中心波長800nm、パルス幅~50fs）を用いた、ポンプ・プローブ型の過渡反射光強度測定により光学フォノンをコヒーレントに励起し、その原子運動の様子を実時間で計測した。反射光強度はヘテロダイン測定を行い、electro-optical サンプリングした。実験は東京工業大学フロンティア材料研究所の装置を用いて行った。シングルパルス励起で、ポンプ・プローブ過渡反射率計測を行うと、8.7THzと7.7THzのLOフォノンおよびLOフォノンプラズモン結合振動（LOPC）により振動が観測される。位相制御ポンプパルス対は、ポンプ光パルスを自家製のマイケルソン型干渉計システムを用いて生成した。この際、各アームに波長板と偏光子を設置し、各パルスの偏光方向を制御できるように改良した。本年度は、直交偏光条件でのダブルパルス励起実験を行った。

謝辞

本研究を行うにあたって、大阪大学レーザーレーザー科学研究所の共同利用研究に加えて、以下の研究支援を受けている：科学研究費補助金 15K13377, 17H02797, 17K19051、東京工業大学フロンティア材料研究所共同利用研究、熊本大学パルスパワー科学研究所共同利用研究。

参考文献

- [1] J. Hu et al, Appl. Phys. Lett., **103**, 161904 (2012).
- [2] S. Hayashi et al., Sci. Rep. **4**, 4456 (2014).

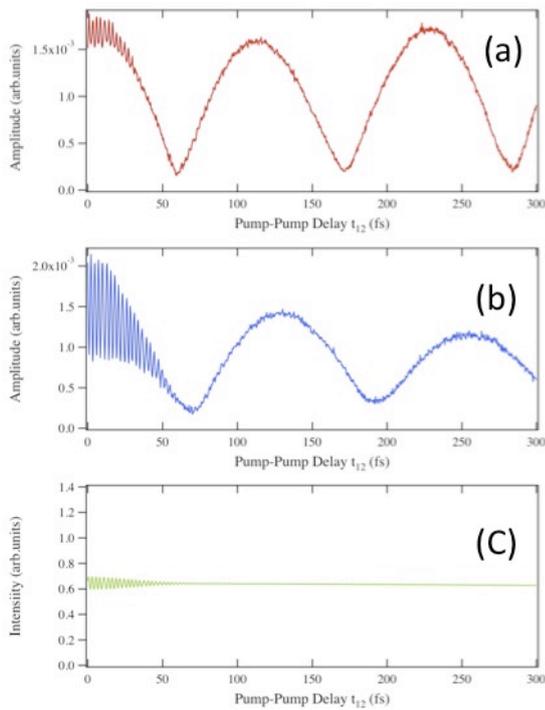


図1 ダブルポンプ励起による LO フォノン(a) および LOPC 振動(b)振幅の変化。横軸はダブルポンプ時間間隔で、ポンプ間の光学干渉を(c)に示す。

ダブルポンプ励起による LO フォノン(a)および LOPC 振動(b)振幅の変化を図1に示した。(c)にパルス対の光学干渉の様子を示したが、直交偏光であるために、パルス重なりによる干渉は非常に小さいことが分かる。LO フォノンの強度は、ポンプパルス対間隔を変化させることで、コヒーレント制御できていることが分かる。また、光パルスが重なる時間領域でも光干渉による非常に小さな変調だけが観測され、平行偏光の場合のような電子状態の干渉は抑制されていることが分かった。LO フォノン強度は、ポンプパルス間隔がフォノン振動周期の整数倍のときに増幅され、半整数倍のときに抑制されている。密度行列形式を用いた量子力学計算を行うと、この現象はフォノンのコヒーレンスが保持されているために、はじめのパルスで励起されたフォノンと二つ目のパルスで励起されたフォノンが区別されないうために、建設的な干渉あるいは破壊的な干渉が起こっているためであることが示された。