

「SACLA 利用装置提案課題」

報告書（研究内容）

課題名 「コヒーレントフォノンによるパルス同期と構造ダイナミクス研究」

代表機関： 東京工業大学 応用セラミックス研究所

研究代表者： 中村 一隆

1) 研究代表者および研究参画者

研究代表者： 中村一隆

東京工業大学応用セラミックス研究所 准教授

研究参画者： 佐藤堯洋

理化学研究所 X 線自由電子レーザー計画推進本部 研究員

胡 建波

東京工業大学大学院物質科学創造専攻 博士課程 3 年

原田慎一

東京工業大学大学院物質科学創造専攻 修士課程 1 年

2) 研究目的

本研究課題の主目的は、フェムト秒レーザー光で誘起される物質固有の振動であるコヒーレントフォノンをクロックとして用いることで、X 線自由電子レーザーから発振する X 線パルスと外部のフェムト秒レーザーパルスとのタイミングを 100 fs 以下の精度で計測することである。

3) 研究実施内容と成果

上記の最終的な目的を達成するために、まず SACALA から発振する X 線パルスとフェムト秒レーザー光を用いたポンプ・プローブ計測実験装置の立ち上げおよび性能評価を目的とした研究を行った。またポンプ・プローブ計測を実際に行うことで、X 線検出系、同期系やデータ取得・転送系における問題点の検討を行った。また、SACLA を使った実験とは別に、コヒーレントフォノンをより良く活用するために、レーザーこのパルスに

よるフォノン制御の実験を東京工業大学で行った。

3-1) Si(111)X線回折実験

硬 X 線パルスの利用が可能となった 10 月に、ポンプ・プローブ実験をビームライン開発チームと一緒にいった。実験には結晶性が高く、X 線回折強度も強い Si 単結晶を試料として用いて、ポンプ・プローブ X 線回折実験を本格的におこなうための準備実験を行った。施設のフェムト秒レーザー、汎用ステージを用いた回折計、タイミング調整、空間ポインティングモニター、データ転送系などを用いて、Si(111)結晶を用いて X 線回折測定を行った。対称反射を photo diode (PD)を用いて計測し、ロッキングカーブを取得した。さらに、対称反射角度位置においてレーザー照射を行った。この結果から、PD を用いての X 線回折測定ができることを確認した。

3-2) CdTe(111)X線回折実験

CdTe は約 200fs の振動周期の L0 フォノンを持っており、このフォノンのコヒーレントな励起を 100fs 以下のレーザーパルス照射（中心波長 800nm）によって起こすことができる。東京工業大学のグループでは、これまでにこのコヒーレントフォノン振動と非熱的・熱的格子変形を、レーザープラズマ X 線を用いてフェムト秒時間分解 X 線回折測定により検出することに成功している。理化学研究所のグループは、この CdTe 単結晶の (111)表面を用いて、フェムト秒レーザー照射下での時間分解 X 線回折を SACLA からの X 線パルスを用いて行った。

フェムト秒レーザーの CPA システムからの光を直径 2.4mm に集光し、 $60\text{mJ}/\text{cm}^2$ で CdTe(111)面の光励起を行った。レーザー光と X 線パルスの照射は非同軸型の配置をとった。X 線パルスとレーザーパルスの同期は CANDOX(高精度遅延時間生成装置)を用い、約 1ps のステップで遅延時間の制御を行った。また X 線回折強度は PD を検出器として用い、積算型の計測 (200 ショット積算) を行った。レーザーパルス照射直後に X 線回折強度の減少が観測された。減少過程は 2 段階であり、1ps 以内に約 10%の強度減少が見られ、その後約 100ps かけて 20%程度の強度減少が観測された。この早い成分(約 1ps) は non-thermal melting によるもので、遅い成分 (約 100ps) は熱的な格子膨張過程によるものと考えら、これまでのレーザープラズマ X 線による実験の結果と良く一致していた。今回測定した X 線回折の時間分解能は、ビームサイズによる効果 (約 150fs) とタイミングジッターとの両方の効果を含んでいると考えられる。上記のような回折強度減少に加えて、約 30ps の周期の強度変調が観測された。振動数にすると 33GHz に対応するため、音響フォノン振動が観測されている可能性があるが、レーザーパルスのパル

ス形状等の影響の可能性もあるので、今後の詳細な実験が必要である。

3-3) GaAs(100) コヒーレントフォノン制御実験

コヒーレントフォノンをクロックとして用いるにあたって、フォノンモードを選択的に励起することが重要である。東京工業大学のグループではこれまでに、酸化物超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$ を試料に用いて、基準振動モード Ba-O と Cu-O のコヒーレントフォノン振動強度を、ダブルパルス励起によって選択的に制御することに成功している。次に、こうした線形領域では相互作用を持たない基準振動のモードではなく、相互作用を含む振動モードでも、光によるコヒーレントフォノン制御が可能かどうか、が問題である。ここでは $\text{GaAs}(100)$ を対象物質として、フェムト秒パルス列照射を用いて、LO フォノンと LO フォノン-プラズモン結合(LOPC)モードの選択励起実験を行った。LOPC モードは LO フォノンと同程度の振動数を持つプラズモンとの結合によって発生する振動である。試料には p-型と n-型の半導体結晶を用いた。またフォノン振動の計測にはフェムト秒過渡反射率計測法を用いた。励起レーザー照射を行うと、p-型と n-型ともに、過渡反射率に 8.8THz の LO フォノンと 7.8THz に LOPC モードによる強度変調が観測された。

ダブルパルスを用いたフォノン制御実験を行ったところ、p-型と n-型半導体ではその振る舞いに大きな違いが見られた。n-型半導体では、酸化物超伝導体同様に LO フォノンと LOPC モード振動を独立に制御することができた。すなわち、LO フォノンはその振動周期の整数倍のタイミングでダブルパルス照射することで増幅され、半整数倍のタイミングでダブルパルス照射することで抑制された。また、LOPC モードは、LO フォノンの振動周期とは異なる LOPC 振動の周期の整数倍のタイミングでダブルパルス照射することで増幅され、半整数倍のタイミングでダブルパルス照射することで抑制された。LO フォノンと LOPC 振動が独立に制御できることが示された。これに対して、p-型半導体では、LO フォノンは n-型半導体同様に、LO フォノンの振動周期を持って制御されたが、LOPC モードに関しては LOPC モードの振動周期ではなく LO フォノンの振動周期で振動強度が変化することが分かり、LOPC モード振動が LO フォノンの影響を強く受けていることが分かった。この現象は、「光励起によって生成された LO フォノンとプラズモンとが結合モードを形成するのに約 100fs 程度の遅延があること」と「n-型半導体では LOPC モード振動の寿命が著しく短い」ことによるとして説明することができた。