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

北島正弘・長谷宗明・Hrvoje PETEK*

物質・材料研究機構 ☎ 305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

*Department of Physics and Astronomy, University of Pittsburgh, 3941 O'Hara Street, Pittsburgh, PA 15260, USA

(2005 年 7 月 11 日受理)

Coherent Phonon Dynamics Studied by fs-laser Pulses

Masahiro KITAJIMA, Muneaki HASE and Hrvoje PETEK*

National Institute of Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047

*Department of Physics and Astronomy, University of Pittsburgh, 3941 O'Hara Street, Pittsburgh, PA 15260, USA

(Received July 11, 2005)

The progress in femtosecond laser has enabled us to observe coherent motions of lattice and molecular vibrations in solids. Nevertheless the study of coherent phonons in Si, which is an important material for modern device application, has not been made so far. We report the dynamics of transient interaction of electrons with phonons, followed by generation of coherent optical phonon, in which the pump-probe technique with 400 nm, 10 fs laser is used for the observation. A comparison of the results is made with other semiconductors.

1. はじめに

結晶には様々な振動数と波数ベクトルを有するフォノンが存在する。熱励起フォノンの密度関数 $n(\omega)$ は、系が熱平衡にある場合、プランク分布 $n(\omega) = [\exp(\hbar\omega/kT) - 1]^{-1}$ で与えられる。熱的に励起されたフォノンの位相は全く乱雑である。このような時・空間的にランダムに振動するフォノンをインコヒーレントフォノンと呼んでいる。したがって、時・空間平均をとると、個々のフォノンの動きに対応した変化は互いに相殺され、巨視的な物理量としての観測信号には現れない。この場合、ラマン散乱や赤外吸収等の通常の周波数領域の分光によって研究される¹⁾。

ところで、ここにフォノンの 1 周期よりも十分短い時間幅のパルスレーザーを照射すると、その衝撃により位相がばらばらだったフォノンが瞬間的に一斉に励起され、時・空間的に位相の揃った振動となる。そのコヒーレントな振動は、統計的平均を取っても相殺されず観測可能な巨視的物理量（屈折率や分極など）の変化が引き

起こされ、それがコヒーレントな応答成分として検出される。このようにパルスレーザー励起による位相の揃ったフォノンをコヒーレントフォノンと呼んでいる。超短パルス（ポンプ）レーザーによって発生したコヒーレントフォノンは、このパルスから τ だけ時間遅延したプローブパルスにより τ の関数として応答信号を検出する「ポンプ-プローブ法」により観測できる。この時間領域におけるコヒーレント振動の測定は従来の周波数領域分光と対比して、時間領域分光法と呼ばれる¹⁾。コヒーレントフォノンの最初の報告は誘電体物質について Nelson らによって 1979 年になされた²⁾。以来これまでに、半導体、半金属・金属、高温超伝導体など多くの系で観測されている。最近では半導体表面や金属上に吸着されたアルカリ金属膜³⁾のコヒーレント表面フォノンの検出も行われている。固体のコヒーレントフォノンについての測定法、およびその性質と発生・緩和の機構の詳細については、既にいくつか重要な解説書があるので^{1, 4, 5)}、興味ある方はそれらを参照して頂きたい。

固体におけるコヒーレントフォノン分光も 2000 年頃には成熟期に入り、更なる高時間分解能や新しい物理現象への挑戦へとモチベーションが変化しつつある。コヒ

E-mail: kitajima.masahiro@nims.go.jp

ーレントフォノン分光の利点はいうまでもなく、直接時間変動を観察できることである。すなわち、フォノンの振動振幅や振動数の時間変動および位相の緩和 (dephasing) を直接計測可能である。このような利点を生かして、例えば、通常の振動分光によっては検出できないような、フォノンの量子的特性が極短スケールの時間領域でのコヒーレントフォノンには顕れる可能性がある^{6, 7)}。振幅制御がうまく行われれば、大振幅フォノンの生成により非調和性フォノンダイナミクスの情報が得られ、さらには固体の相変態や化学反応のダイナミクスの研究への応用も期待できる^{3, 6~10)}。また位相緩和時間の決定からは、励起キャリアとフォノンとの相互作用^{11, 12)}や格子欠陥による欠陥散乱などが直接議論できる^{13~18)}。

コヒーレントフォノン分光のもう1つ重要な利点は電子系からのコヒーレントな応答を、フォノンからの応答と、同時に検出できることである。超短パルス光で励起された電子・正孔キャリアが発生後、どのように格子と相互作用していくかを知ることが金属・半金属、半導体におけるコヒーレントフォノンの生成を理解する上で必須である。100 fs (1 fs = 10^{-15} 秒) 以下に現れるコヒーレントフォノン生成のダイナミクスは未知の研究領域であり、このような光励起キャリアとフォノンとの相互作用ダイナミクスの観測が期待できる。我々はシリコン等の半導体において、通常のラマン散乱分光などの周波数領域ではなし得ない、電子系と格子系との結合による過渡的なファノ干渉、およびそれに引き続くコヒーレント光学フォノンの励起を観測した¹⁹⁾。本稿ではその結果を中心に紹介する。

始めにコヒーレントフォノン生成機構のモデル、引き続きシリコンにおけるコヒーレントフォノン分光の現状とファノ効果について紹介する。その後、測定方法と観測結果を紹介し、最後にその物理的意義について説明する。

2. コヒーレントフォノン生成機構

生成機構については、現在以下のようなモデルが提案されている：

1) 瞬間的誘導ラマン散乱機構 (Impulsive Stimulated Raman Scattering : ISRS)²⁰⁾

誘導ラマン散乱のなかで、特に励起光として超短パルスレーザーを用いたときの非線形光学過程を ISRS とよぶ。フェムト秒パルスレーザーの場合、スペクトル幅が広いので誘導ラマン散乱の条件を満たす2つの周波数成分 (励起光 ω_i および散乱光 $\omega_s (= \omega_i - \omega_q)$, ω_q : フォノン周波数) が存在するので、ポンプパルス光を照射す

ると瞬時に誘導ラマン散乱が起きてコヒーレントなフォノンが励起される。この場合、原子の熱平衡位置の周りで振動が瞬間的に誘起されるので、時間変化として sine 関数的に振る舞うと考えられる。

2) 変位型励起機構 (Displacive Excitation of Coherent Phonon: DECP)²¹⁾

レーザーパルスを物質に照射すると、フランク-コンドン原理にしたがって、瞬時に電子が励起状態に光励起され、その後励起状態の最も安定なエネルギー位置まで緩和する。このとき、格子は新しい電子励起状態によって要求される平衡位置に引きずられる。すなわち、大量の励起電子生成により格子周辺の遮蔽が劇的に変化するためポテンシャルが変動する。このため、結晶格子の位置が瞬時に平衡位置からずれるため、格子原子は一斉に新しい平衡位置に向かって移動し始める。瞬間的な電子励起により格子の平衡位置がずれるため、振動は cosine 関数的に振る舞うと考えられる。

共鳴散乱では、位相は非共鳴のラマン散乱から $\pi/2$ ずれるので、やはり cosine 的な振動が予想される。このため、DECP メカニズムは共鳴的な誘導ラマン散乱 (ISRS) で説明できるとの提案も有力である²²⁾。

3) 表面空間電荷超高速遮蔽機構 (Ultrafast screening of space-charge/surface-depletion field)²³⁾

表面空乏層、あるいは表面空間電荷層の電場が光励起された電子-正孔対によって瞬間的に遮蔽された時に起きる電氣的衝撃が引き金となって縦波光学 (LO) のコヒーレントフォノンが発生するとするモデルである。表面電場が発生する極性半導体 (GaAs など) をバンドギャップより高いエネルギーの光で励起した時、この機構が働くと考えられる。この機構では DECP と同じように、 $t=0$ で平衡位置がずれるため cosine 型となる。

透明物質では実励起が伴わないので、ISRS 機構ではほとんどの場合が説明できる。一方、金属、半導体等の物質で見られる不透明領域での励起の場合では、物質、励起条件あるいは振動のモード等、個々のケースでの励起機構は研究されているが、一般的な法則は必ずしも確定されているとは言えない。

3. シリコンにおけるコヒーレントフォノン分光

半導体シリコンは、デバイス利用性の高さから、電子の輸送問題 (移動度) や電子系の光応答特性 (光励起キャリアの緩和速度) などの研究が活発に行われている。シリコンのような固体では、伝導電子は結晶格子を形成している多数のイオンに取り囲まれており、電子の運動状態は格子から強い影響を受ける。ところが、フォノン

Fig. 1. Band structure of Si along the Δ and Λ directions.³¹⁾ Arrows indicate vertical transitions excited with 400 nm (3.06 eV) light.

の物性、特に電子との相互作用の研究についてはラマン散乱測定にほとんど限定されており、コヒーレントフォノン分光からのアプローチはなかった。その1つの理由としてSiの直接遷移バンドギャップ (3.32 eV; E_0 : 臨界点) と比べて、市販のチタン・サファイアレーザーの発振エネルギー (中心 1.55 eV) は半分以下と小さく、したがってコヒーレントフォノンを駆動するのに十分な光励起キャリアが生成されないことがあげられる (Fig. 1)。つい最近 800 nm 励起によって Si のコヒーレントフォノンの観測が報告されているが信号強度が非常に小さいため、精密な解析までは行われていない²⁴⁾。

コヒーレントフォノン生成については、前節で述べたようにいくつかの理論モデルが発表されている。一方、実験的観測については、高い感度で、かつ特に遅延時間ゼロ付近での高い時間精度をもつ測定が要求されるため、これまでは大半の論文ではコヒーレントフォノン生成後の挙動が研究対象であり、生成前の信号は全て“coherent artifact”として扱われ、議論から外されてきた。

4. ファノ効果

ファノ効果とは固体において観測される量子効果の1つであり、エネルギー的に離散的な準位と連続的な準位間でおきる量子的な干渉をいう。この現象は非対称的なスペクトル波形として観測される。分子性固体、半導体、ナノ量子構造体の固体系あるいは表面の問題においても、周波数領域の分光学的手法を用いて広く研究されている一般的な物理現象である。

半導体系では、不純物ドーピングしたシリコン等において、ファノ干渉に起因する光学フォノンのラマン散乱スペクトルの非対称的な幅の広がりがよく知られている²⁵⁾。すなわち、格子系 (離散準位) と電子系 (連続準

Fig. 2. (a) Fano interference of phononic discrete and electronic continuum in solid. (b) Fano line shapes calculated by using Eq. (1) for various asymmetric parameters q .

位) との間で起こるカップリングである (Fig. 2)。ファノ効果をより詳しく説明すると、スペクトル形状 $F(\epsilon, q)$ は^{25, 26)},

$$F(\epsilon, q) = c \frac{(q + \epsilon)^2}{1 + \epsilon^2} \quad (1)$$

ここで $\epsilon = (\omega - \omega_0 - \Delta\omega)/\Gamma$, c は振幅, ω_0 はフォノンの周波数である。 $\Delta\omega$ と Γ はそれぞれ周波数シフトと線幅に対応するパラメータであり、ともに格子系と電子系との相互作用に関係する。 q は $q = \frac{\langle \varphi_p | T | \psi_i \rangle}{\pi V^*_{\epsilon} \langle \psi_E | T | \psi_i \rangle}$ で表される非対称性パラメータであり、 ψ_i は始状態, ψ_E は電子連続準位, φ_p はこの電子準位との間のカップリング V^*_{ϵ} により修正されたフォノン離散準位, および T は遷移演算子である。 $\epsilon = -q$ の条件で、反共鳴、すなわち電子系の格子系との干渉効果の結果、両成分寄与がちょうど打ち消しあうこと (破壊的干渉) が起きる (Fig. 2b 参照) と説明される²⁶⁾。

5. コヒーレントフォノンの測定

コヒーレントフォノンを検出する方法としては反射・透過型ポンプ-プローブ法, 4 光波混合法, THz 電磁波測定法などがある。シリコンの光学フォノンの検出には、この反射型の中で、時間分解電気-光学 (E-O) サンプ

リング検出と呼ばれる方法を用いた (Fig. 3)。光源はパルス幅 10 fs 以下、中心波長約 800 nm のチタン・サファイアレーザーを、BBO 結晶へ集光することにより得られた第 2 高調波 (中心波長 400 nm, パルス幅約 10 fs, 出力約 100 mW) をもちいた。Si では 400 nm (3.06 eV) の光励起により主にブリルアンゾーン端の L 点でのバンド間の直接遷移 ($E_i=3.396$ eV) および Γ 点でのバンド間遷移 ($E_0=3.32$ eV) が起こると考えられる。結晶方位との関係を調べるために、ポンプ光の偏光は Si [110] 結晶軸に対し平行方向 (Γ_{25}) および 45° 方向 (Γ_{12}) に行った¹⁹⁾。

観測結果について述べる前に、E-O サンプリグ法の特徴について述べたい：試料から反射されたプローブ光は偏光ビームスプリッターによって縦偏光成分と横偏光成分に分離され、それぞれフォトダイオードで光電流として検出される。それらの光電流の差から異方的な反射率変化を信号として捉える。非線形光学特性との関係について簡単に述べる。励起光との強い相互作用を受け、試料には 2 次の非線形分極 $P_J^{(2)}(\tau)$ が発生する：

$$P_J^{(2)}(\tau) = \chi_{jkl}^{(2)}(\tau-t) E_k(t) E_l(t) + \int_{-\infty}^{\tau} J_j(t') dt' \quad (2)$$

ここで、 τ は遅延時間、第 1 項は光整流効果の項であり、 $\chi_{jkl}^{(2)}(\tau-t)$ は 2 次の非線形感受率、および $E_{k,l}$ はポンプ光の電場成分を表す。第二項は、キャリア移動度の差異に起因して生じる光デンプー効果に対応する項 (J_j は光デンプー電流) であり、その寄与は余り大きくない。ここで $\chi_{jkl}^{(2)}$ の中身について言及しよう。Si 結晶の対称性よりバルクの双極子モーメントの $\chi_{jkl}^{(2)}$ への寄

与は 0 とみなされるので、表面の双極子モーメントおよびバルクの 4 重極モーメントが $\chi_{jkl}^{(2)}$ を支配する。本実験のような共鳴条件で、強く励起されるコヒーレントな電子-正孔対とフォノンの運動が $\chi_{jkl}^{(2)}(\tau-t)$ の変動の原因となる。E-O サンプリグではこのような非線形分極の変化が非等方的な反射率変化として検出される。また、プローブ光の電場の影響を考慮すると、3 次の非線形感受率 $\chi^{(3)}$ による応答を考慮する必要がある。この場合非線形分極は式 (2) に $\chi_{jklm}^{(3)}(\tau-t) E_k(t) E_l(t) E_m(t)$ (ここで E_m はプローブ光の電場成分) が加わる形で表現されるであろう¹⁹⁾。

6. コヒーレントフォノンの観察とスペクトル波形

Fig. 4 は、E-O サンプリグの効果を示すために、通常の等方的な反射率変化との違いを表わしたものである。 ΔR_s , ΔR_p はそれぞれ、挿入図のように反射率変化の横偏光、縦偏光成分に相当し、時間領域では 100 fs 程度で立ち上がり、その後 1 ps 程度で減衰している。これは価電子帯から伝導体に光励起された電子・正孔プラズマの生成と緩和に起因していると考えられる。しかし、このように等方的なキャリアのバックグラウンドがあると、その信号上に現れているコヒーレント信号の詳細な解析は困難である。そこで、これらの等方的な反射率変化の差を取った E-O サンプリグ信号を見ると、上手くキャリアのバックグラウンドが相殺され、コヒーレント信号が S/N 比良く反映された非等方的な反射率変化のみの信号が得られていることがわかる。このようにして E-O サンプリグを行うことにより Si 等半導体におけるコヒーレント信号を得ることができる。

Fig. 5 は Γ_{25} のポンプ-プローブ配置 (Fig. 6 (b) 挿入図) で得られた時間分解 E-O サンプリグ信号の光エネルギー依存性である。励起光エネルギーが 2.99 eV の

Fig. 3. The optical set-up for electro-optic (E-O) sampling measurements.

Fig. 4. The isotropic reflectivity changes (ΔR_s , ΔR_p) and E-O signal ($\Delta R_{s-p(eo)} = \Delta R_s - \Delta R_p$) from Si(100).

Fig. 5. The E-O signal from Si(100) for different pump energies. The amplitude for the observed coherent phonons increases with the pump energy. The Fourier-transformed spectrum is well reproduced by Fano Fit (solid line).

Fig. 6. (a) Transient E-O signal for n-Si(100) and (b) its continuous wavelet transform. The excitation is performed in the $\Gamma_{25'}$ pump-probe configuration. The [001]-direction is parallel to the surface-normal (the inset in Fig. 6 (b)).

時、電子系の非周期的応答成分のみが時間ゼロ付近に観測される。高エネルギー側では、シリコンの光学フォノンに対応する約 66 fs の周期 (周波数 $\omega_0=15.2$ THz) のコヒーレントな振動成分が明瞭に現れる。フォノンの振幅は光エネルギーが増加するとともに、単調に増加した。これはコヒーレントフォノンの生成が期待したように直

接光学遷移、すなわち共鳴励起により起こっていることを示している。

観測された振動は cosine 関数的時間変化を示した。一方 800 nm 励起による Si のコヒーレントフォノンは sine 関数的変化を示すと報告されている²⁴⁾。前者の光励起が共鳴条件で、後者が非共鳴であることを考慮して、シリコンのコヒーレント光学フォノンの生成は誘導ラマン過程 (ISRS) の範疇でも説明が可能である。時間領域信号のフーリエ変換より得られた光学フォノンのスペクトルは非対称性を示し、その形状はファノの式 (1) によるフィッティングでよく再現された (Fig. 5 挿入図)。得られたパラメータのうち、非対称性パラメータ q は -12 であった。 q の値が負であることの意味について考えてみよう。 q は電子と格子間カップリングに対応するものであり、共鳴励起の条件ではフォノンが電子と結合する時 $q>0$ 、また正孔と結合する時は $q<0$ となるべきである²⁷⁾。したがって、光励起により価電子帯に生成した正孔が伝導帯に励起された電子より強くフォノンと結合することが示唆される。

7. 時間ゼロ付近での詳細：電子系と格子系との破壊的干渉の観察

Fig. 6 (a) は、始めの ~1 ps までの E-O サンプリグ信号の変化である。これにより励起電子と格子間の相互作用をより精密に見てみよう。遅延時間ゼロから 100 fs 付近には、非常に鋭く複雑な応答が見られる。これは、電子系からの非周期的応答と格子系からの応答とが複雑に絡み合っている時間領域に対応する。引き続き、その後すぐにコヒーレントフォノンによる振動が観測される。このフォノンの時間周期は約 66 fs であり、ラマン散乱分光でも観測される光学フォノンである。一方、Ge については、コヒーレント光学フォノンに対する Scholz らの理論²⁸⁾によると、光励起キャリアのうち、正孔の逆格子空間における非等方的な分布が変形ポテンシャルの不均衡な変動をもたらし、これがコヒーレントフォノン生成の駆動力となると考えられる。

このメカニズムを適用すれば、Si における Si-Si 結合の非等方的な変動を説明することが可能である。すなわち、Fig. 6 (b) 挿入図に表すように、[110] 方向に偏光したポンプ光で試料を励起すると ($\Gamma_{25'}$ のポンプ-プローブ配置)、等価な 4 つの Si-Si 結合のうち、この偏光に平行な 2 つの結合に属する電子のみが励起される。このようにして瞬間的に誘起されるキャリアの分布がフォノンと結合し、コヒーレント光学フォノンが発生する。

一方、試料を 45 度回転させて検出される Γ_{12} のポンプ-プローブ配置では対照的な結果であった。すなわち、

コヒーレントフォノン励起されず、電子系からの非周期的応答のみ観測された。この時、励起光の偏光により光励起される電子が属する結合は4つとなるため、励起されるキャリア分布も等方的である。したがって $\Gamma_{25'}$ 配置では生じたような非等方的なキャリア分布は生じなかったと考えられる。

さて、単なるフーリエ変換 (Fig. 5 挿入図) は時間に対しての平均操作であるので、電子系と格子系とが重なり合う時間ゼロ近傍で変動する複雑な応答から特異な情報を取り出すことはできない。そこで時間領域波形を連続ウェーブレット変換 (CWT)²⁹⁾して得られたクロノグラム (時間-周波数マップ) を使うと、現象はより鮮明に見ることができる。Fig. 6 (b) は $\Gamma_{25'}$ のポンプ-プローブ配置の場合である。時間ゼロ付近で縦方向に延びる応答成分はホットな電子・正孔プラズマによる応答である。また周波数 15 THz 付近で横方向に延びる成分はコヒーレント光学フォノンである。特に注目すべきは、遅延時間ゼロ付近 (22 fs, 15.3 THz) に現れた穴 (dip) である¹⁹⁾。これは、離散準位を持つコヒーレント光学フォノンと連続準位をもつコヒーレント電子の各々の振幅が (反共鳴的に) 打ち消し合うように干渉することを表すと考えられる。また、これはファノの非対称関数で議論される干渉の一部を時間分解測定したものであり、電子ラマン散乱における電子と格子の終状態相互作用に相当すると考えられる。

一方、 Γ_{12} のポンプ-プローブ配置で得られた時間波形の CWT には、 $\Gamma_{25'}$ 配置で観測された dip が観測されなかった。これは電子と格子が結合できず、コヒーレントフォノンが励起されなかったことによる。

Fig. 6 で見てきたダイナミクスの内、50 THz 以上まで周波数が広がる電子系の応答は、既に述べたように、ファノ干渉に寄与する一方の成分である電子系の連続準位に対応するものであり、その主たる寄与は L 点および Γ 点での光励起により生成されるホットキャリアによる電子ラマン散乱と考えられる (Fig. 1)。ホットキャリアのバンド内散乱がその有力な過程である (一方、通常ラマンで見られるファノ干渉は熱キャリアによるものである)。

8. 他の半導体との比較

コヒーレント光学フォノンの励起について、他の半導体 Ge および GaAs と比較してみよう。Ge では Si と同じく、 $\Gamma_{25'}$ のポンプ-プローブ配置ではコヒーレント光学フォノンは生成するが、 Γ_{12} のポンプ-プローブ配置では全く観測されない。Ge の場合、直接遷移バンドギャップは 0.66 eV と、ポンプ光エネルギー (3.06 eV) に

Fig. 7. Transient E-O signals for n-GaAs(100) exited in the $\Gamma_{25'}$ and Γ_{12} pump-probe configurations.

比べて遙かに低い。したがって、共鳴から大きくはずれるため、実際生成するフォノンの振幅はシリコンと比べて小さく、そのため観測された反共鳴の効果も小さい。

一方、GaAs の直接遷移バンドギャップは 1.47 eV であり、この場合も光エネルギーより小さく Γ 点での E' の遷移は共鳴的ではない。ところが L 点でエネルギーギャップは 3.1 eV とほぼ光エネルギーに等しく、共鳴励起 (E_1 遷移) は十分に起き得る。そのため、強いコヒーレント LO フォノンの励起が観測される (Fig. 7)。したがって、時間ゼロ近傍にはシリコンで見られたような反共鳴による破壊的干渉も観察された。GaAs のコヒーレントフォノン励起は Si や Ge とは異なる。すなわち、これらの半導体では励起されない Γ_{12} ポンプ-プローブ配置でも、光学フォノンによるコヒーレントな応答が観測される (フォノン振幅は $\Gamma_{25'}$ 配置と比べると小さいが)。GaAs のコヒーレントフォノンの生成については、これまでよく研究されており^{23, 30)}、表面空間電荷の超高速遮蔽機構に基づき議論されてきた。観察された Γ_{12} 配置の励起はこの機構によるものと思われる。すなわち GaAs ではホットキャリアの非等方的な分布による変形ポテンシャルの変動に加えて、LO フォノン振動が電気分極を誘起するフレリヒ型の電子・格子相互作用³¹⁾の寄与が大きいことが示唆される ($\Gamma_{25'}$ 配置では変形ポテンシャル相互作用とフレリヒ相互作用が同時に働く)。

9. おわりに

本稿では、これまでフェムト秒レーザーパルス幅の中に埋もれていた電子と格子の間で起きる相互作用ダイナミクスについて、コヒーレントフォノン生成機構やファノ干渉と関連させて説明した。時間-周波数領域で観測された dip が示すものは、光励起で生成されたホットな電子・正孔プラズマが結晶格子に力を及ぼし、結晶格子を形成している原子集団の運動が一斉に開始される瞬間である (Fig. 8)。別の見方をすれば、電子と格子は別々

Fig. 8. A schematics of interactions between the excited electrons and the lattice atoms: a) Before excitation by pump laser pulse, the lattice contains few free electrons, and atoms in the crystal lattice are virtually at rest. b) The pump creates a localized cloud of excited electrons, which interacts with surrounding lattice and causes characteristic vibrations. c) This is described in terms of the generation of quasiparticles (coherent phonons).

の存在として振る舞うのではなく、強い相互作用により互いにまといつかれながら (dressed) 一体となって運動する準粒子 (この場合はコヒーレント光学フォノン) の誕生する瞬間が観察されたと言える。また、コヒーレント光学フォノンの生成は電子・フォノン相互作用 (変形ポテンシャル相互作用およびフレリヒ相互作用) によって誘起され、その応答は物質のバンド構造や電気分極などに強く左右される。紙面の関係で紹介しなかったが、フォノンのコヒーレント制御および超短時間領域におけるコヒーレントフォノンの量子性などに関する研究も興味あるところであり、今後の一層の発展が期待される。

文 献

- 1) 中島信一, 長谷宗明, 溝口幸司, 播磨 弘: 表面科学 **19**, 64 (1998).
- 2) K.A. Nelson, D.D. Dlott and M.D. Fayer: Chem. Phys. Lett. **64**, 88 (1979).
- 3) K. Watanabe, N. Takagi and Y. Matsumoto: Chem Phys. Lett. **366**, 606 (2002); Phys. Rev. Lett. **92**, 57401 (2004).
- 4) 溝口幸司, 長谷宗明, 谷 正彦: “超高速光エレクトロニクス技術ハンドブック”, 7.4 節 “コヒーレントフォノン” (小林孝壽企画・監修) (リアライズ理工センター, 2003) p 372.
- 5) T. Dekorsy, G.C. Cho and H. Kurz: in “Light Scattering in Solids VIII”, ed. by M. Cardona and G. Guentherodt (Springer-Verlag, Berlin, Ch. 4, 2000).
- 6) O. Misochko, M. Hase, K. Ishioka and M. Kitajima: Phys. Rev. Lett. **92**, 197401 (2004).
- 7) O. Misochko, M. Hase, K. Ishioka and M. Kitajima: Phys. Lett. A **321**, 381 (2004).
- 8) M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima and K. Mizoguchi: Phys. Rev. Lett. **88**, 0677401 (2002).
- 9) M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima and K. Mizoguchi: Phys. Rev. Lett. **93**, 109702 (2004).
- 10) M. Hase, M. Kitajima, S. Nakashima and K. Mizoguchi: Appl. Phys. Lett. **83**, 4921 (2003).
- 11) M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, S. Nakashima and K. Sakai: Phys. Rev. B **58**, 5448 (1998).
- 12) M. Hase, K. Ishioka, J. Demsar, K. Ushida and M. Kitajima: Phys. Rev. B **71**, 184301 (2005).
- 13) M. Hase, K. Ishioka, M. Kitajima and K. Ushida: Appl. Phys. Lett. **76**, 1258 (2000).
- 14) K. Ishioka, M. Hase, M. Kitajima and K. Ushida: Appl. Phys. Lett. **78**, 3965 (2001).
- 15) M. Hase, K. Ishioka, M. Kitajima and K. Ushida: Appl. Phys. Lett. **82**, 3668 (2003).
- 16) 石岡邦江, 長谷宗明, 北島正弘, 丑田公規: 表面科学 **24**, 288 (2003).
- 17) M. Kitajima, M. Hase, K. Ishioka and K. Ushida: Nucl. Instrum. Methods **206**, 99 (2003).
- 18) K. Ishioka, M. Hase and M. Kitajima: Solid State Commun. **130**, 327 (2004).
- 19) M. Hase, M. Kitajima, A.M. Constantinescu and H. Petek: Nature **426**, 51 (2003).
- 20) Y-X. Yan, E.B. Gamble and K. Nelson: J. Chem. Phys. **83**, 5391 (1985); Y-X. Yan and K. Nelson: J. Chem. Phys. **83**, 6240 (1987).
- 21) H.J. Zeiger, J. Vidal, T.K. Cheng, E.P. Ippen, G. Dresselhaus and M.S. Dresselhaus: Phys. Rev. B **45**, 768 (1992).
- 22) G.A. Garrett, T.E. Albrecht, J.F. Whitaker and R. Merlin: Phys. Rev. Lett. **77**, 3661 (1996).
- 23) T. Pfeifer, T. Dekorsy, T. Kütt and H. Kurz: Appl. Phys. A **55**, 482 (1992); T. Dekorsy, T. Pfeifer, W. Kütt and H. Kurz: Phys. Rev. B **47**, 3842 (1993).
- 24) A.J. Sabbah and D.M. Riffe: Phys. Rev. B **66**, 165217 (2002).
- 25) F. Cerdeira, T.A. Fjeldly and M. Cardona: Phys. Rev. B **8**, 4734 (1973).
- 26) U. Fano: Phys. Rev. **124**, 1866 (1961).
- 27) T.E. Stevens, J. Kuhl and R. Merlin: Phys. Rev. B **65**, 144304 (2002).
- 28) R. Scholz and A. Stahl: Phys. Stat. Sol. (b) **173**, 199 (1992).
- 29) ウェーブレットとは周波数が時間とともに変動する信号を時間と周波数の両面から捉えるための時間周波数解析法の1つであり, 近年急速に発展した数学的手法である。参考書として, 例えば, 榊原 進: “ウェーブレットビギナーズガイド” (東京電機大学出版局, 1998).
- 30) A.V. Kuznetsov and C.J. Stanton: Phys. Rev. Lett. **73**, 3243 (1994).
- 31) P.Y. Yu and M. Cardona: “Fundamentals of Semiconductors” (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1996); “半導体の基礎” 末元 徹他訳 (シュプリンガーフェアラーク東京, 1999).