

4P030

ルブレンのコヒーレント振動モードのダブルパルスによる選択励起

¹奈良先端大・物質

○矢野 敬祐¹, 鈴木 頼乙¹, 香月 浩之¹, 柳 久雄¹

Selective excitation of coherent oscillation modes in rubrene

○Keisuke Yano¹, Raiitsu Suzuki¹, Hiroyuki Katsuki¹, Hisao Yanagi¹

¹ Graduate School of Materials Science, Nara Institute of Science and Technology, Japan

【Abstract】

Coherent phonons are collective excitation of phonons which can be generated using ultrashort laser pulses, whose time duration is shorter than the period of the lattice vibration. Rubrene is an organic semiconductor material famous for its high carrier mobility. Its phonon dynamics has been observed by transient absorption [1] and transient grating [2]. We are interested in the controllability of coherent phonons and low-frequency intra-molecular vibrational modes which can be excited simultaneously. In this study, single crystalline rubrene films were fabricated by physical vapor transport (PVT) [3]. These samples were characterized by X-ray structural analysis and polarization microscopy. The results indicated that our samples can be assumed as macroscopically single crystal. The response of coherent phonons and low frequency vibrational modes are detected by the pump-probe reflectivity measurements at 90 K. Several oscillation modes at 2.4 THz, 3.1 THz and 4.2 THz were observed, and the selective excitation by double-pulse excitation will be demonstrated.

【序】

結晶中の位相の揃った集団的な分子や原子の振動はコヒーレントフォノンと呼ばれ、原子変位等の超高速ダイナミクスを観測に有用とされている。コヒーレントフォノンは格子振動の周期より十分に短いパルス幅を持つ光を照射することで発生させることができ、その観測方法はポンプ・プローブ法による反射率もしくは透過率の周期的な変化として検出する方法が一般的である。本研究では有機分子性結晶であるルブレンをターゲットとした。ルブレンは低波数領域に、本質的に局在化した分子内振動と非局在化したフォノン（分子間）振動が混在していることが報告されており[4]、実際のルブレン結晶中ではこれらの運動が複雑に混在していると予想される。本研究ではこれらのルブレン結晶における振動モードに対してダブルパルスを用いたコヒーレント制御による選択励起を行うことにより局在性が与える影響やそれぞれのモードの振る舞いの違いについて議論する。

【方法 (実験・理論)】

本研究で使用したルブレン結晶はPVTを用いて作製した。PVTではガラス管内の温度勾配により場所によって板状や針状結晶、コットン状と

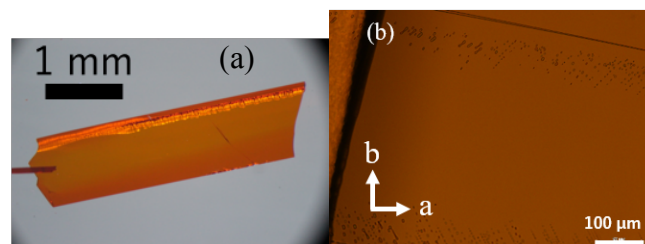


Fig.1 Polarization microscopy pictures of rubrene crystal (a)entire (b)magnification.

いった異なる形のルブレンが生成されるがコヒーレントフォノンの観測、制御には板状結晶を用いる。実験に用いるルブレン単結晶はX線構造解析による面指数付け及び、Fig.1に示すように偏向顕微鏡観察により評価したところ、マクロなサイズで良好な単結晶を作製できていることがわかった。

本研究で使用している反射型ポンプ・プローブ光学系図を Fig.2 に示す。本測定手法では 20 Hz の周波数で 15 ps の光路差を掃引するシェイカーを用いてプローブにディレイをかけているため、短時間での測定が可能である。また、レーザーの揺らぎを補正するためにバランスディテクターを採用しており、S/N 比よくシグナルを検出できる。ルブレン単結晶は真空クライオスタット中に設置し、90 K で測定を行う。また、両パルスは結晶の a 軸に平行な向きに偏光方向を合わせている。

【結果・考察】

Fig.3(a)に観測したコヒーレント振動シグナルを示す。縦軸が反射率変化、横軸がプローブのディレイ時間を表しており、 < 1 ps から 3.2 ps の領域まで振動のコヒーレンスが継続していることがわかる。Fig.4(a)はフーリエ変換スペクトル示しており、2.4 THz、3.1 THz、4.2 THz モードが観測されている。フーリエ変換強度が一番大きい 3.1 THz の振動モードに対する増幅とキャンセルをダブルパルス励起で行った結果を Fig.3(b)、(c)、それらのフーリエ変換スペクトルを Fig.4(b)、(c)に示す。Fig.4(a)における 3.1 THz の強度と比較すると(b)では大きく、(c)では小さくなり、4.2 THz の強度が大きくなっていることがわかる。これは 3.1 THz のキャンセル条件と 4.2 THz の増幅条件が重なるためと考えられる。しかし、3.1 THz は約 320 fs、4.2 THz は約 240 fs の周期に相当するため、本来の増幅、キャンセル条件と実験値が一致していない。現時点では初期ディレイをマニュアル動作で決定していたために 100 fs 程度のズレが生じたと考えている。当日までに正確なディレイの原点の決定と他の振動モードにおける選択励起についても行い議論したいと考えている。

【参考文献】

- [1] K. Miyata et al. *Nat. Chem.* DOI: 10.1038/NCHEM.2784 (2017)
- [2] B. A. West et al. *J. Phys. Chem. C* **114**, 10580 (2010)
- [3] A. R. Ullah et al. *Proc. SPIE.* **6800**, 680005 (2008).
- [4] E. Venitu et al. *J. Phys. Chem. C* **112**, 17416 (2008)

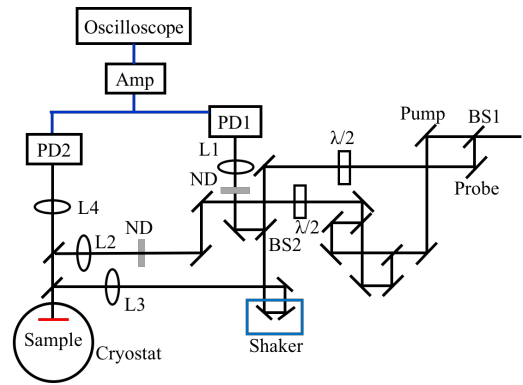


Fig.2 Reflectance pump-probe set-up: BS1, 2, beamsplitter; L1~4, lens; ND, neutral density filter.

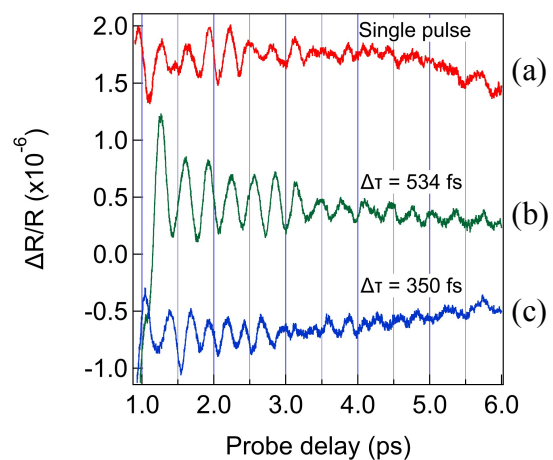


Fig.3 Coherent oscillations signal

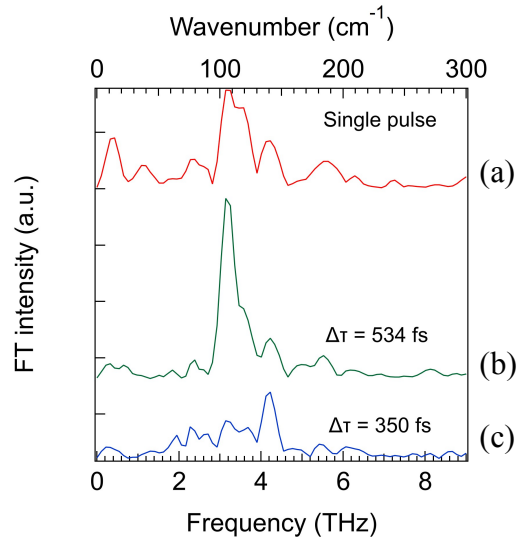


Fig.4 Fourier transform spectra