

遅延ダブルパルス励起を用いたルブレン結晶のフォノン振幅制御

¹奈良先端科技大・物質

○矢野 敬祐¹, 香月 浩之¹, 柳 久雄¹

Mode Selective Excitation of Coherent Phonons in Single Crystalline Rubrene

○Keisuke Yano¹, Hiroyuki Katsuki¹, Hisao Yanagi¹

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

【Abstract】

Coherent phonons are collective excitation of phonons which can be generated by ultrashort laser pulses with their temporal widths shorter than the period of the lattice oscillation. Rubrene is an organic semiconductor famous for its high carrier mobility. Coherent phonons of rubrene have been previously observed by transient absorption [1] and transient grating spectroscopy [2]. 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 ultrafast response of coherent phonon modes is detected by the pump-probe reflectivity measurements at 90 K. Several oscillation modes at 3.2, 3.7 and 4.2 THz were observed. We have focused on one target mode and tried to control its amplitude by double-pulse excitation, and successfully demonstrated the precise control of the phonon amplitudes. Such techniques are useful for the detailed study of the electron-phonon coupling in the ultrafast time scale.

【序】

コヒーレントフォノンとは結晶中の位相の揃った原子や分子の集団的な振動であり、フォノンの振動周期より十分に短い時間幅を持つ光を照射することで励起できる。コヒーレントフォノンの発生メカニズムにはキャリアの励起と密接に関連したものもあり、エネルギーの緩和過程や電子フォノン相互作用などの超高速ダイナミクスを研究する上でコヒーレントフォノンの観測は有用である。本研究では光のコヒーレンスを利用し、物質の量子状態を制御するコヒーレント制御と呼ばれる手法を応用して特定のフォノンモードの選択励起を行なった。研究の対象としては有機分子性結晶であるルブレンを用いた。ルブレンは有機半導体の中でも最も高い移動度を示し、高効率な太陽電池やトランジスタなどのデバイス応用に向けて理論・実験の両面から研究されている[1-2]。また、ルブレンのコヒーレントフォノンの観測は過渡吸収や過渡回折格子による実験で報告されている。しかし、特定のフォノンモードを選択的に励起することが電子励起状態やキャリアの移動度にどのような影響を与えるかという視点からの報告はされておらず、大変興味深い。今回は遅延時間をつけたダブルパルスによって、電子基底状態における特定のフォノンモードを選択的に励起し、観測した結果について報告する。

【方法 (実験・理論)】

本研究で使用したルブレン単結晶は PVT 法により作製し[3]、X 線構造解析により結

晶方位を決定した。ルブレン単結晶におけるコヒーレントフォノンには反射型ポンプ・プローブ法により測定した。光源は出力 1.5 W、中心波長 830 nm、パルス幅 100 fs、繰り返し周波数 76 MHz のチタンサファイアレーザーを使用している。ポンプパルスに対するプローブパルスの遅延は 20 Hz で 15 ps 相当の光路差を掃引するシェイカーにより制御している。ポンプパルスは干渉計を用いてダブルパルスとし、パルス間の遅延時間はピエゾステージにより高精度に制御可能である。試料はクライオスタット中に設置し、液体窒素で 90 K まで冷却している。また、偏光方向はポンプ、プローブパルス共に結晶の a 軸に対して平行に合わせている。まず、干渉計の片方のパスを閉じてシングルパルス励起によりコヒーレントフォノンを観測した。次に観測された振動モード周波数を元に遅延時間を設定してダブルパルス励起を行い、シグナルを計測した。

【結果・考察】

作製したルブレン単結晶は厚さ 10 μm 、大きさ 1 \times 3 mm 以上の板状結晶であり、X 線構造解析から結晶は長軸を a 軸とし(001)面が成長していることが分かった。図 1(a)、(b)はルブレンのコヒーレントフォノンのシグナルとそのフーリエ変換スペクトルである。赤(中央)はシングルパルスで励起した結果であり、3.2、3.7、4.2 THz に振動モードが観測されている。図 1(a)、(b)の青(上)と水色(下)は、それぞれ 3.2THz の振動モードが強め合う、弱め合う条件にポンプ間のディレイ時間を合わせてダブルパルス励起した結果である。フーリエ変換スペクトルにおいて、3.2THz のモードの強度がそれぞれ増幅、減衰しており、他のモードもタイミングに応じて振幅が増減していることがわかる。図 1(b)の黒の点線はフーリエ変換スペクトルをガウシアンでフィッティングした結果である。弱め合う条件ではシングルパルス励起時の 10%程度の強度にまで落とせたことから、3 つ以上のモードが存在していても選択的にモードを打ち消すことができることを示している。以上の結果から、特定のフォノンを選択的に脱励起して、フォノンのスペクトルを操作できることが示された。

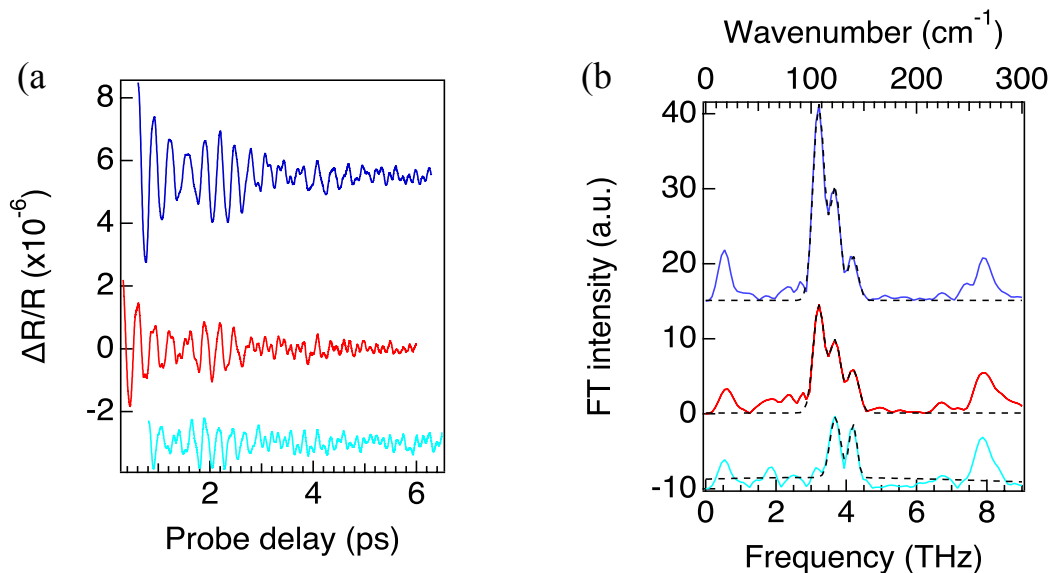


Fig.1 (a) Signals of coherent phonons in single-crystal rubrene and (b) their Fourier transform spectra under single pulse excitation (red), and double pulse excitations with constructive timing (blue) or destructive timing (cyan) for 3.2 THz mode.

【参考文献】

- [1] K. Miyata *et al.* *Nat. Chem.* **9**, 983 (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).