

## 論文内容の要旨

博士論文題目 ルブレン単結晶におけるテラヘルツコヒーレント  
フォノンモードの選択的励起手法の開発

氏名 矢野 敬祐

### (論文内容の要旨)

コヒーレントフォノンとは、熱励起されたフォノンとは対照的に位相を揃えた協調的な結晶中のフォノン運動であり、振動周期よりも短い時間幅を持った超短パルスレーザーを照射することで励起できる。コヒーレントフォノンの励起メカニズムにはいくつかのモデルがあり、その運動には電子状態とフォノン振動の相互作用の影響が現れるため、結晶中での超高速過渡現象を理解する手法として有効である。従来、コヒーレントフォノンの計測は構造の単純なビスマスやガリウム砒素などの無機半導体結晶で発展してきた。有機半導体では、構成要素である分子が複雑な振動モードを保有しているために、通常の光励起では複数の振動モードが同時に励起され、特定のフォノン振動と電子状態との関連性を理解することが難しい。

このような状況を解決する手法として、本研究では量子コヒーレント制御の技術を有機半導体結晶のフォノン振動に応用し、各振動波動関数の振幅を量子干渉によって制御する手法の開発を行った。実験対象としてルブレン単結晶を用い、励起には時間遅延をつけたフェムト秒ダブルパルスを用いることで、結晶中でのコヒーレントフォノン励起状態間の量子干渉を引き起こし、その励起モード分布を選択的に制御することを試みた。PVT法によって作成したルブレン単結晶を液体窒素温度まで冷却し、フェムト秒 pump-probe 法により反射率の時間変化を測定した結果、3-4THz の周波数領域において、ルブレンの分子内振動モードに由来する複数のコヒーレントフォノンを検出した。これらのモードは ISRS (impulsive stimulated Raman scattering) 機構によってルブレンの基底電子状態中に生成していると考えられる。ダブルパルス励起において、パルス間の遅延時間を各フォノンの振動周期の整数倍、半整数倍に固定することにより、対象とするフォノンの振幅を選択的に増幅、減衰させることに成功した。この結果により、結晶を構成する各分子振動のポピュレーション分布の高精度な制御が可能であることが示された。

本論文で示された有機半導体フォノンの選択的励起手法は、結晶中の分子の特定方向の歪みを選択的に励起することにより、フォノン-電子間相互作用を通じて電子の物性に影響を与える、というフォノン誘起による電子物性制御の実現において基本となる技術である。その技術を確立したことは今後、有機半導体物性の光制御の可能性を拡げることが期待される。

氏名	矢野 敬祐
----	-------

#### (論文審査結果の要旨)

本論文ではルブレ単結晶を対象とし、テラヘルツコヒーレントフォノンモードの選択励起手法の開発を行なった。コヒーレントフォノンとは、結晶中の構成分子が同じ位相で振動するフォノンの状態であり、フォノンの振動周期よりも短い衝撃力を与えることで励起できる。本研究ではフェムト秒超短パルス照射することでインパルスラマン遷移を引き起こし、電子基底状態中にコヒーレントフォノンを励起する。このようなフォノンに対し、時間遅延をつけたダブルパルスを用いて複数のフォノンモードの励起を選択的に行う技術を開発し、実際にその様子を観測することに成功した。

第1章ではコヒーレントフォノンの定義とその励起手法および観測手法について紹介がなされ、ダブルパルスを用いたコヒーレント制御手法の基礎的な側面について紹介がなされている。

第2章ではまず physical vapor transport 法を利用したルブレ単結晶の作製方法および、X線回折、顕微鏡計測を利用したその結晶性の評価について説明がなされている。この結晶を試料として、反射型ポンプロープ測定光学系の立ち上げとその装置を用いたコヒーレントフォノンの計測を行った。測定系では短時間での遅延時間掃引を可能とするために fast scan 方式を用いて 20Hz での測定が可能であり、反射率の微小な差を計測するためにバランス型の検出器を用い、 $10^{-6}$  程度の微小な反射率変化を測定した。本装置系を用いてルブレ単結晶の測定を行い、3-4THz の領域で十分な強度を持つ3つのフォノンモードを観測した。

第3章ではマイケルソン型干渉計を導入し、サブフェムト秒制御可能な遅延ダブルパルスの導入を行った。第2章で観測された3つのフォノンモードに対し、ダブルパルス励起の遅延時間差を各フォノン周期の整数倍、半整数倍に設定することにより、波動関数を干渉させた結果、各フォノンの振幅を 0-2 倍の範囲内で変化させることに成功した。別途行った光学干渉の測定との比較から、今回得られた実験結果では励起パルス同士が時間的に重なっていない領域でフォノン振幅の変調が達成されており、フォノン波動関数の量子干渉に由来する効果であることが確認された。得られた結果は減衰調和振動子モデルによって定量的に再現できることが示された。

以上のように本論文では、有機半導体結晶の複数のテラヘルツフォノンモードのうち特定のモードを選択的に励起し、結晶中の特定の歪み運動を誘起する手法を確立した。今後の展望として、本研究で示されたモード選択励起手法は、光励起電流計測と併用することで、結晶中での電子フォノン間相互作用を積極的に応用し、フォノン励起による電子物性制御を実現するための有力な手法になりうると評価できる。よって、審査委員一同は、本論文が博士(理学)論文として価値あるものと認めた。