

SPring-8における時間分解 および光照射下での赤外分光

神戸大学自然科学研究科
岡村英一

太野垣健、田中耕一郎(京大)

秋元郁子(和歌山大)

有本收(岡山大)

SPring-8 BL43IR

→ 赤外放射光の特長を活かした実験

★ 吸収反射分光ステーション

- ★ 光励起下の赤外分光 (Tsunami併設)
- ★ SRのパルス性を活かした実験
- ★ レーザーポンプ、赤外SRプローブによる過渡現象の時間分解赤外分光
- ★ レーザーでは困難な実験 (白色光)

★ 顕微分光ステーション

- ★ 光励起下の赤外分光 (微小試料)

パルスレーザーによる実験例: CuCl における強励起効果

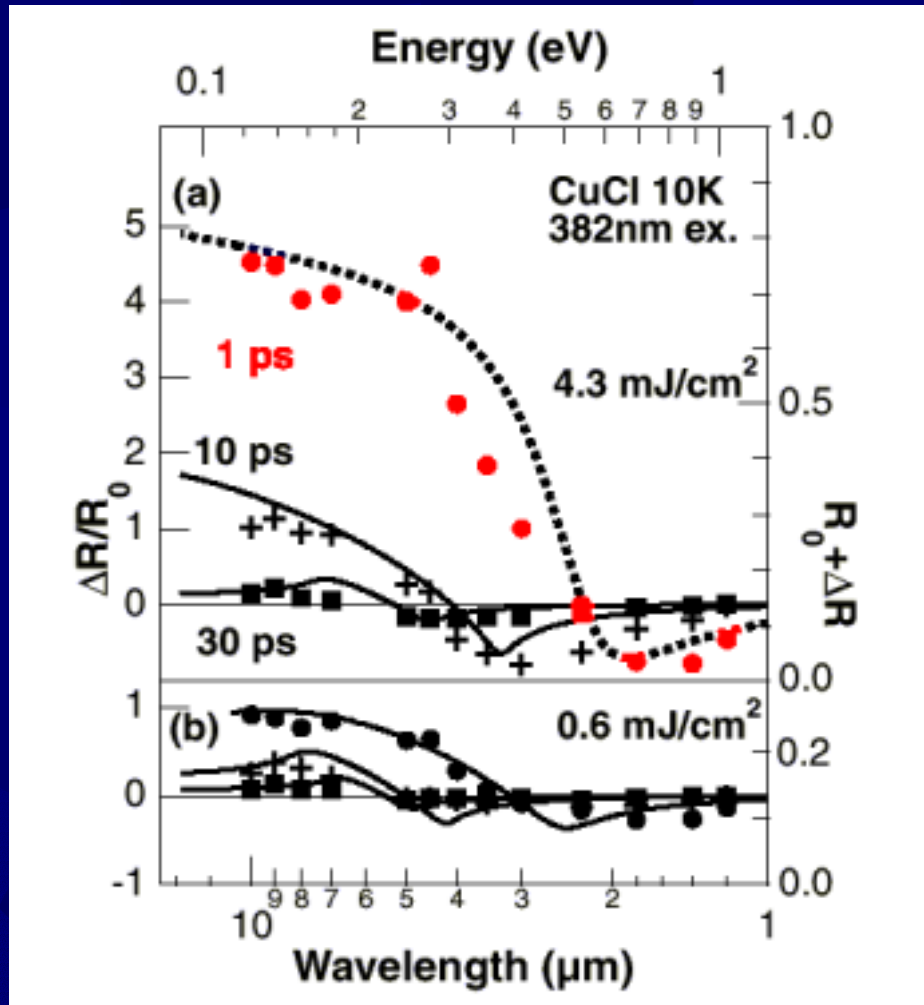
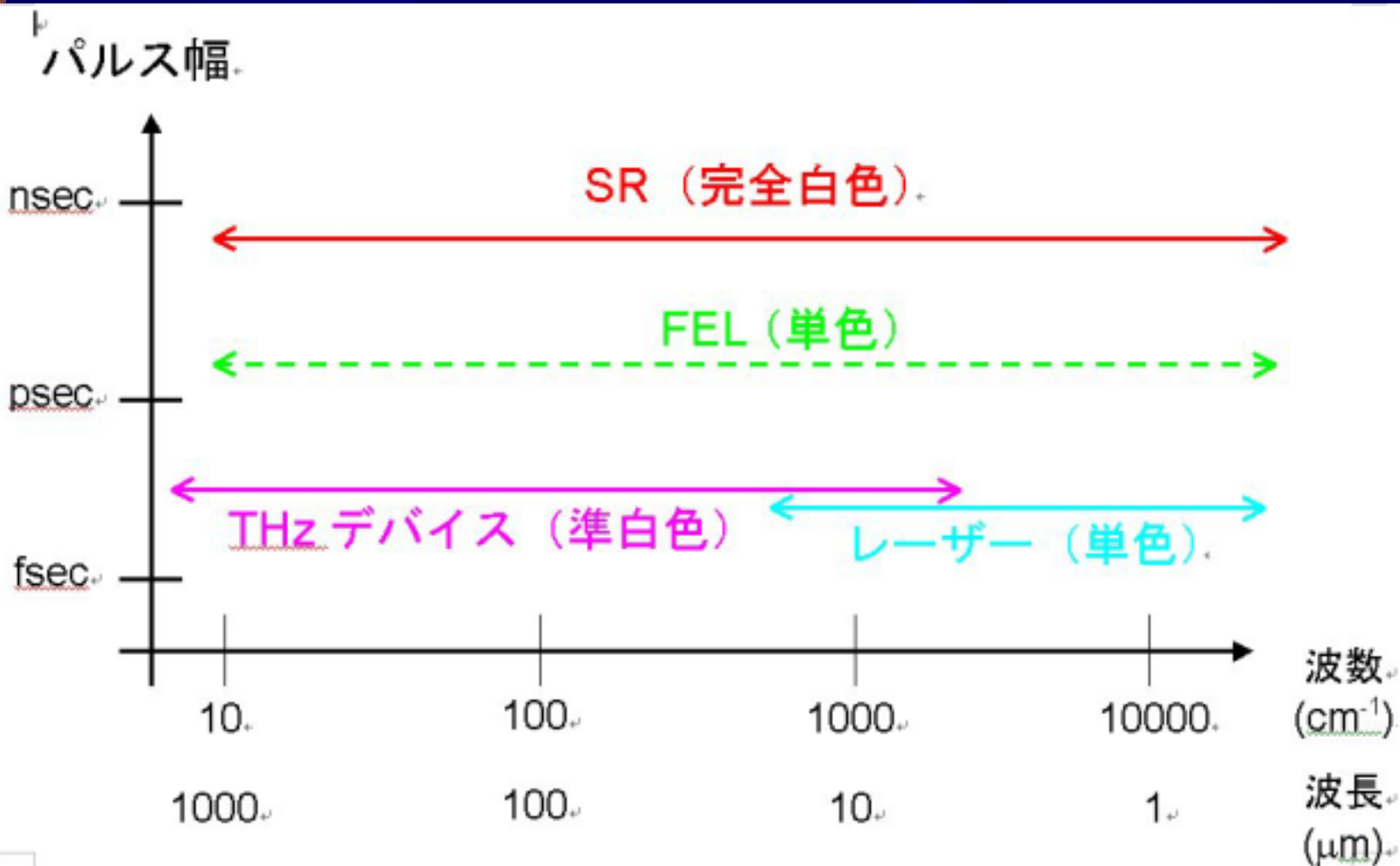


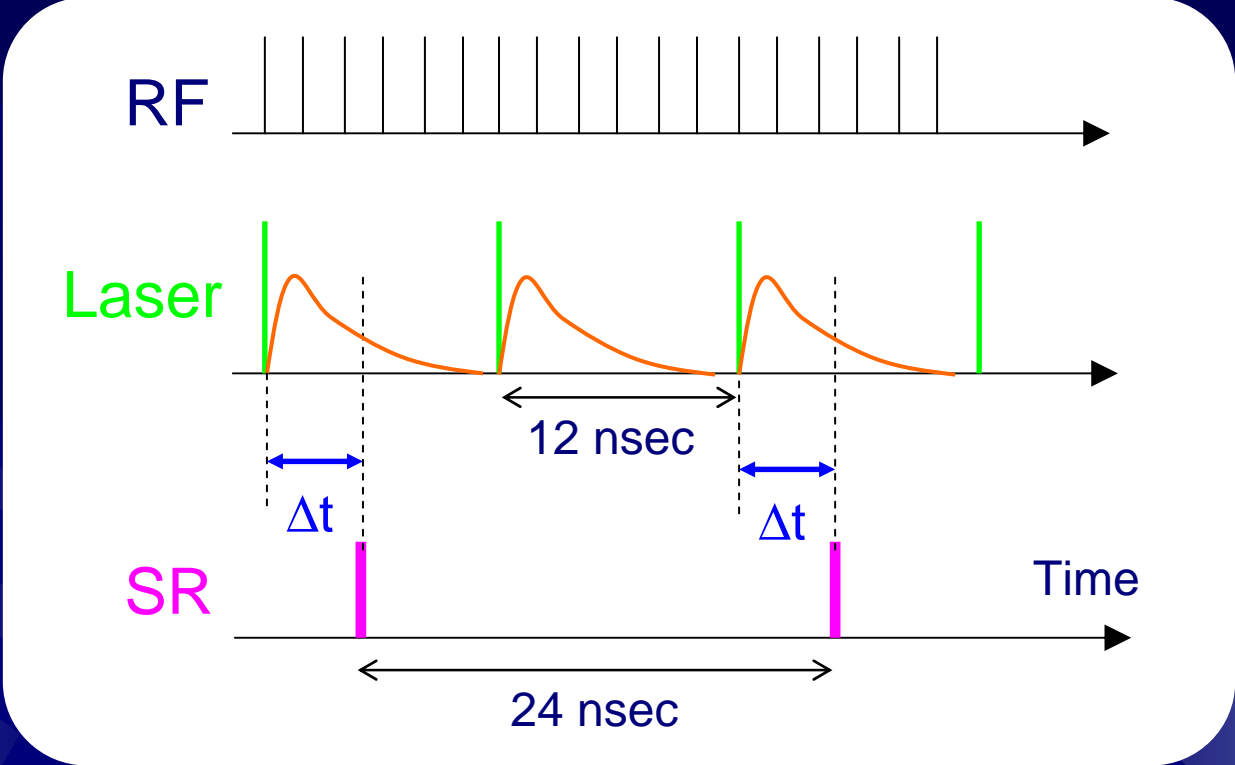
Fig. 3; from Nagai et al., PRL 86, 5795 (2001).

各種パルス光源の比較

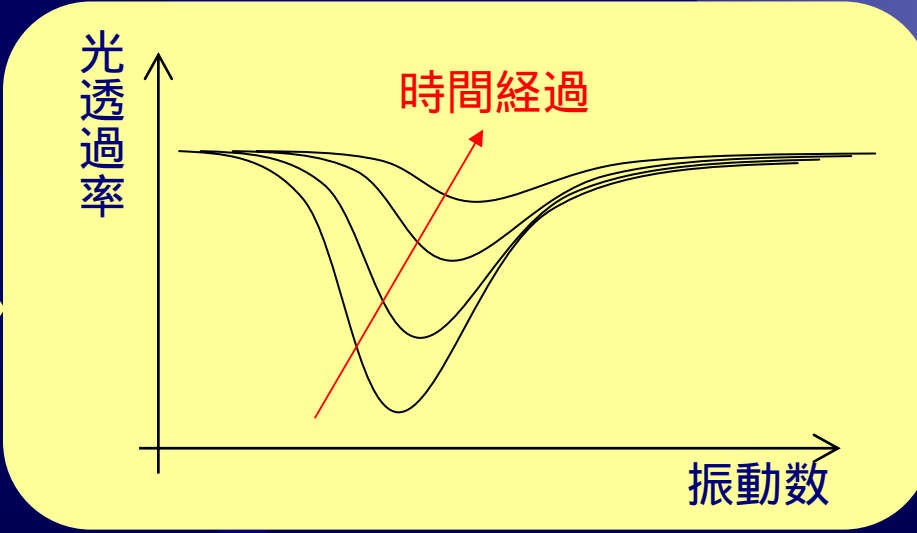


SPring-8におけるパルス時間構造

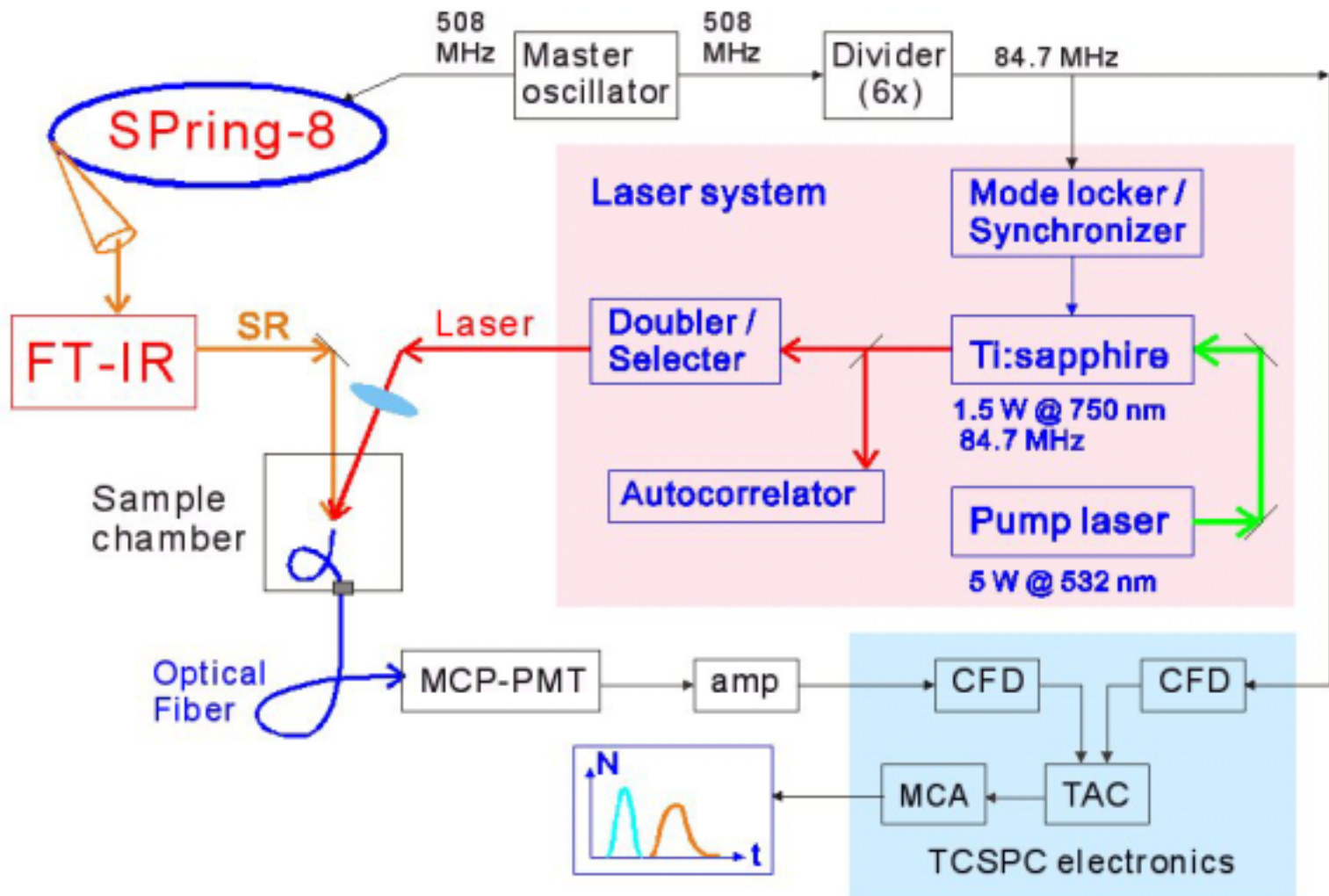
- ★ RF bucket数 : 2436個 / 1周 (508 MHz)
- ★ 電子バンチ長 : 約40 psec
- ★ 時間分解測定 → 203バンチ運転利用
(203バンチ運転 = RFの12分周)
- ★ RFの6分周(85.7 MHz)にTsunamiを同期



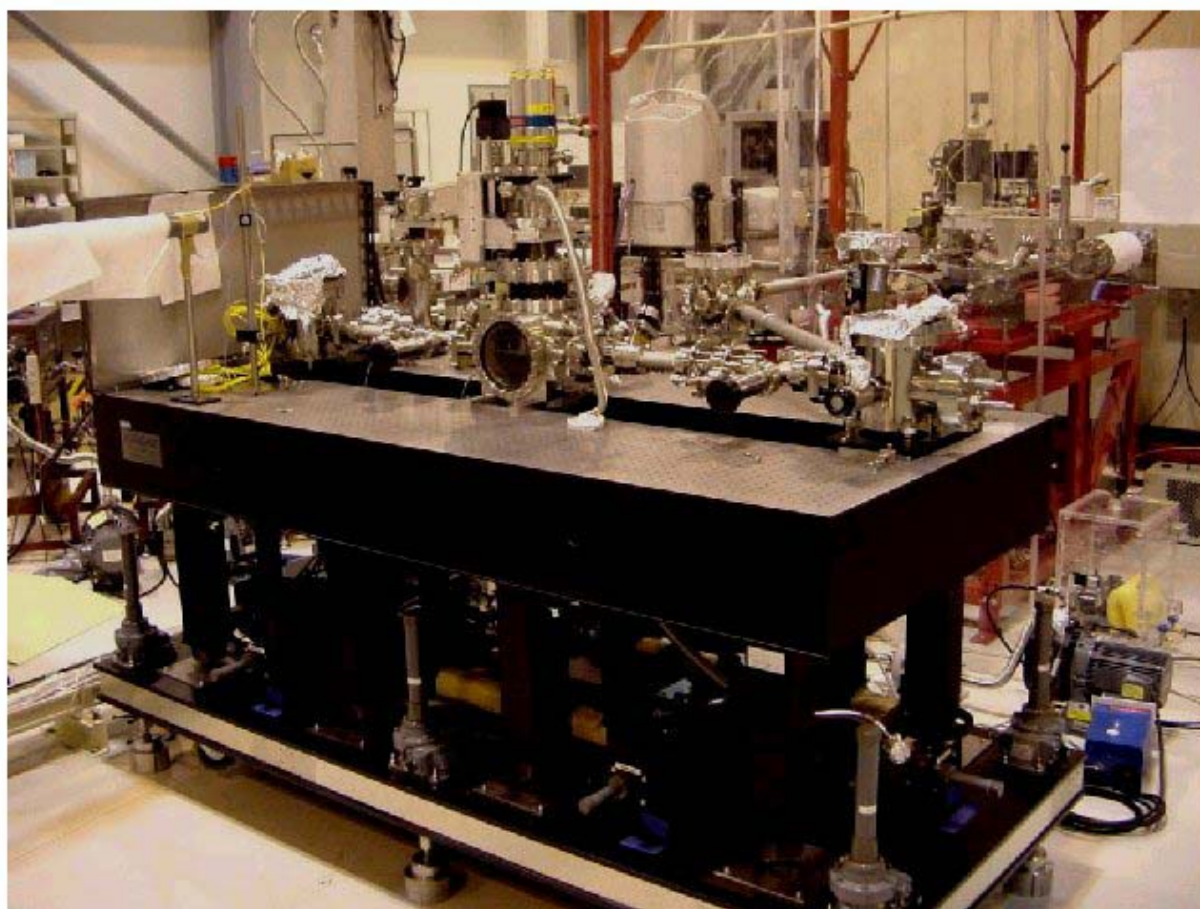
FT-IR
(広い振動数範囲)



時間同期、分解システム

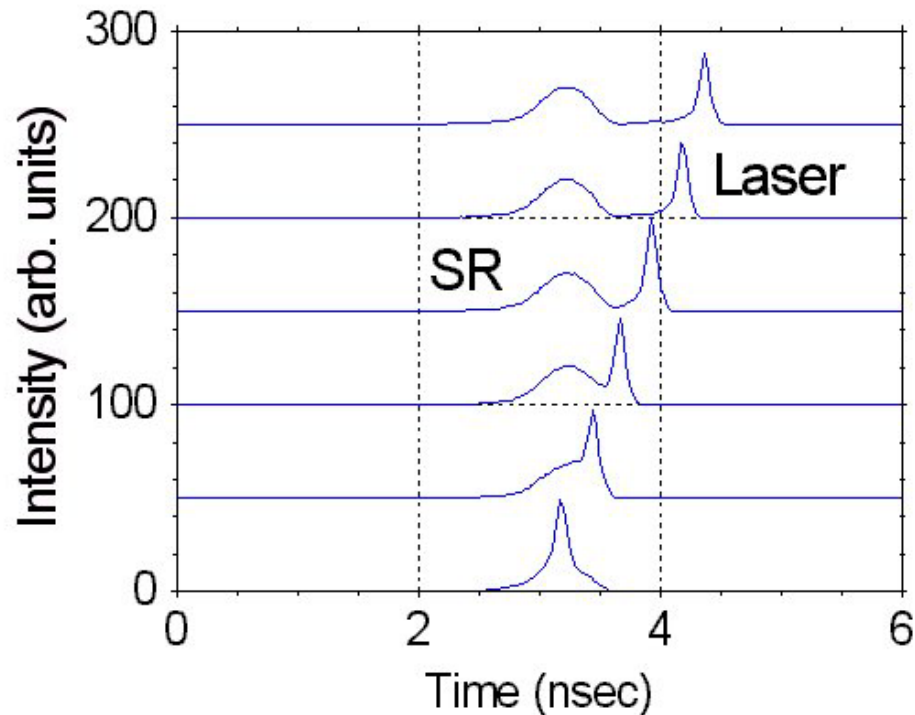


吸収反射分光ステーション



- ・超高真空仕様
- ・6 - 300 K
- ・多くのビューポート + 光学ベンチ

パルスタイミング測定例



Measured Pulses

- Time spread of the system ~ 100 psec (actual laser width ~ 1.5 psec)
- **SR pulse width ~ 400 psec** (FWHM at the sample position)

信号強度変化の検出限界

★ 中赤外： 10^{-4} 程度

(KBr B.S. + MCT検出器)

★ 遠赤外 10^{-3} 程度

(マイラー-B.S. + Siボロメーター)

時間分解実験の測定対象

- ★ 測定対象: サブナノ秒領域の過渡現象
- ★ 白色光の利点を活かせる実験



- ★ 半導体(量子構造)の光励起過渡吸収
自由キャリア、励起子、電子正孔プラズマなど
- ★ 低次元有機伝導体の光誘起赤外吸収
励起子、ソリトン、ポーラロン、などの緩和
- ★ 光敏感生体物質
光合成物質、光活性タンパク質、などの緩和

これまでに時間分解測定した物質

- ★ GaAs (バルク、量子井戸)

- 光励起キャリアの吸収

- ★ TTF-CAにおける中性・イオン性転移

- 電荷移動度の変化によるピークシフト

→時間変化は見えなかった

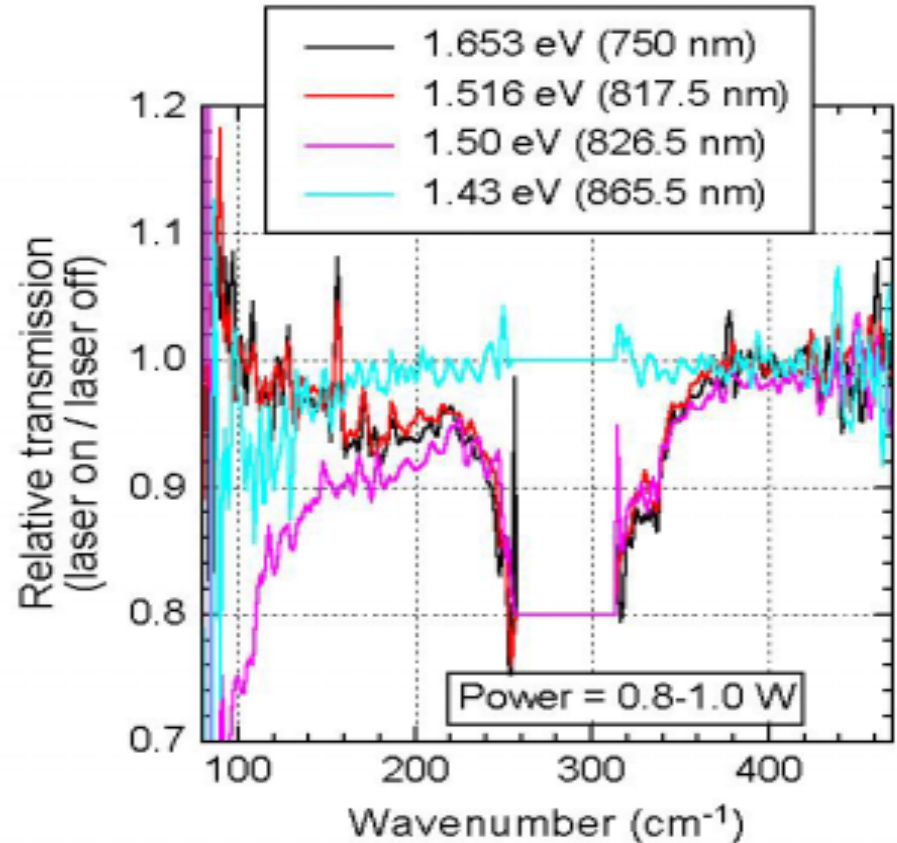
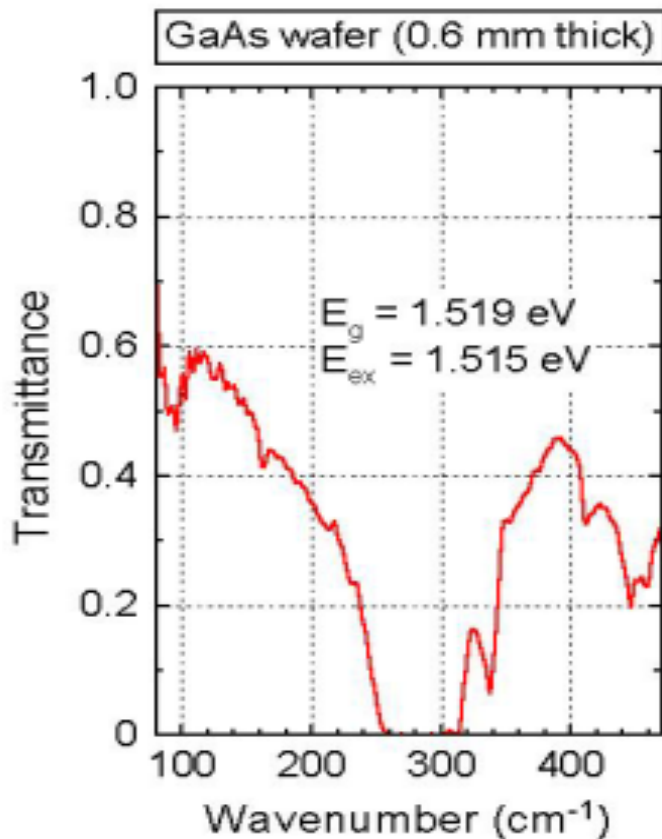
- ★ 問題点:

- 測定対象の選択が難しい

- 繰り返しが12 nsecより落とせない

→パイルアップしてしまう

バルクGaAsのレーザー励起・遠赤外分光



時間変化は見えなかった

→12 nsよりも緩和が遅い吸収をみている

現状と今後の方針

- ★ 半導体: バルクで1 nsec前後の緩和時間を持つものを (-ZnP_2 など)
- ★ 有機物: 時間分解は難しいか?
(繰り返しを落とせない限りは...)
- ★ まずは定常光励起での赤外分光を!

現在進行中のテーマ

- ★ スピントロニクスオーバーラップ
- ★ SrTiO_3 の紫外光誘起赤外吸収
- ★ TTF-CA の中性・イオン性転移

-ZnP₂の励起子、光励起キャリア (岡山大・有本)

★ -ZnP₂: $E_G \sim 1.60$ eV, $Ry^* \sim 44$ meV

(GaAsの場合: $E_G \sim 1.52$ eV, $Ry^* \sim 4.2$ meV)

→ 励起子系列がきれいに見える

★ 励起子緩和時間: 1~2 ns (TR-PLの結果)



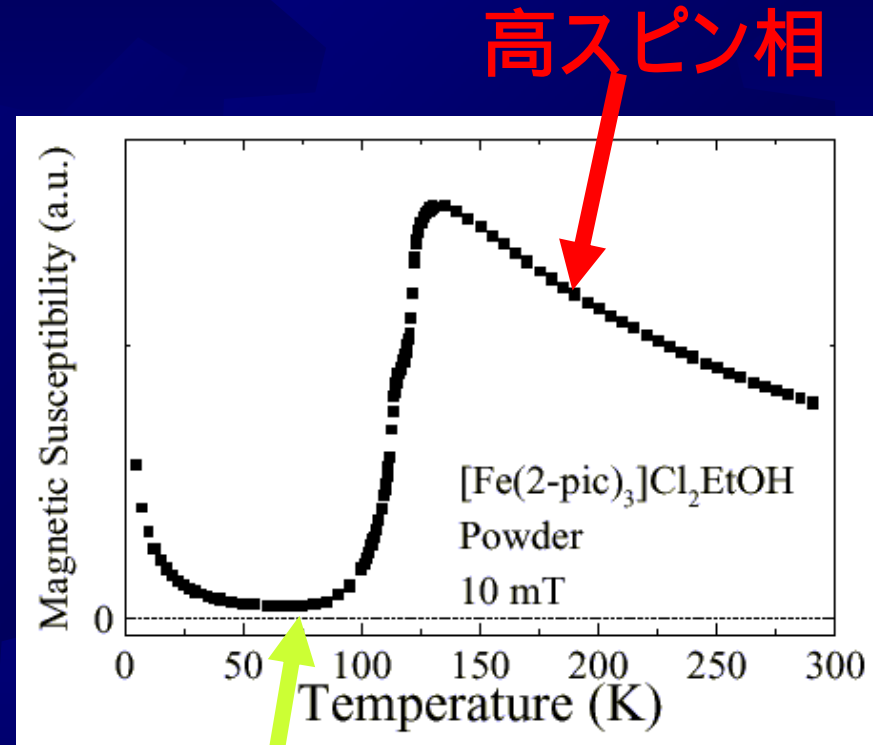
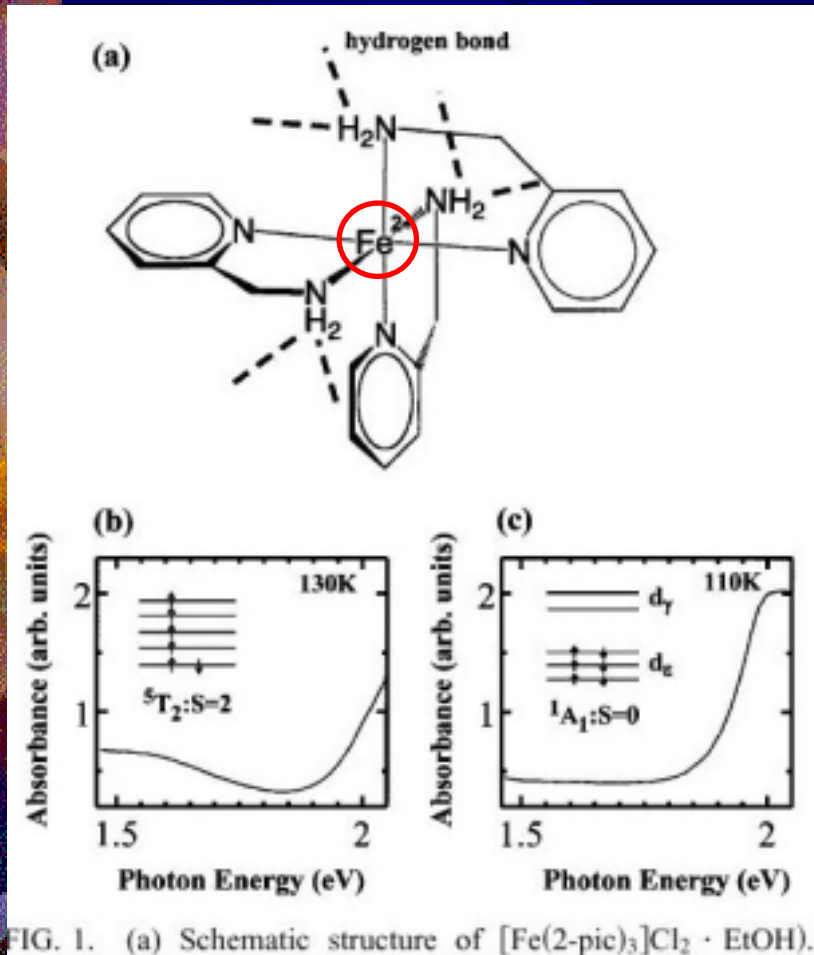
★ レーザー励起下の遠赤外吸収、反射

★ 励起子の内部遷移

★ 励起強度: 励起子ガスからEHPへ

(励起強度とスペクトル、時間緩和)

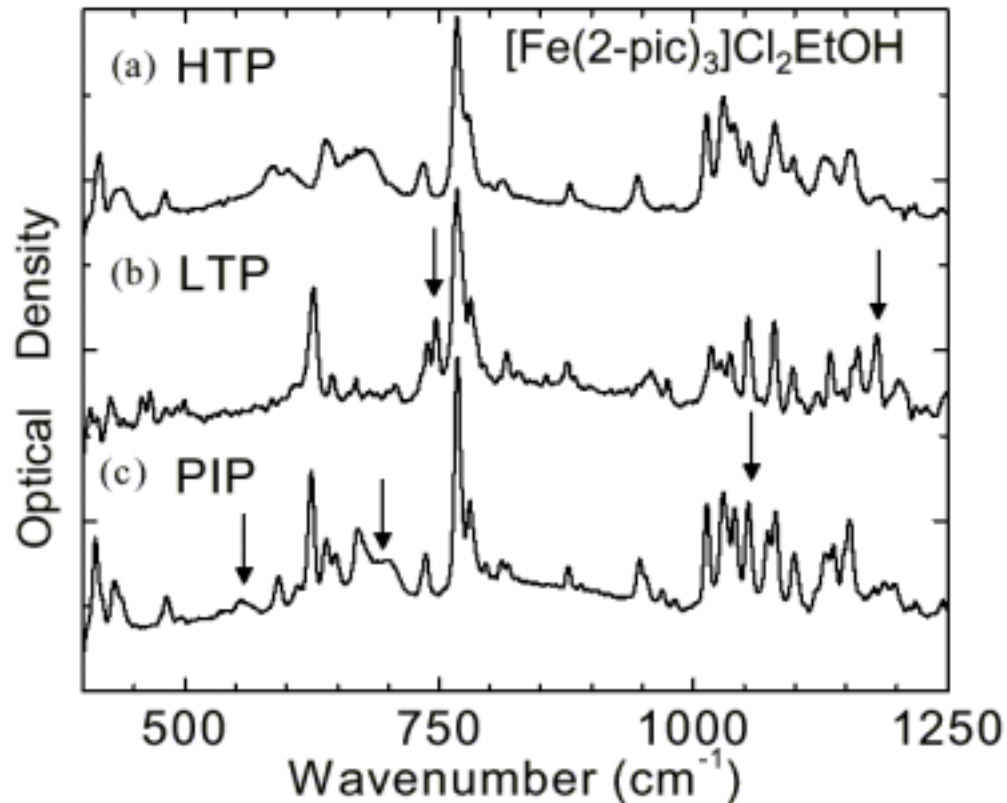
スピントロニクスオーバー物質・鉄ピコリルアミン (京大・太野垣、田中)



低スピン相

- 光励起 → 高スピン相へ再転移・準安定化
- 光誘起相：新たな長距離相互作用？

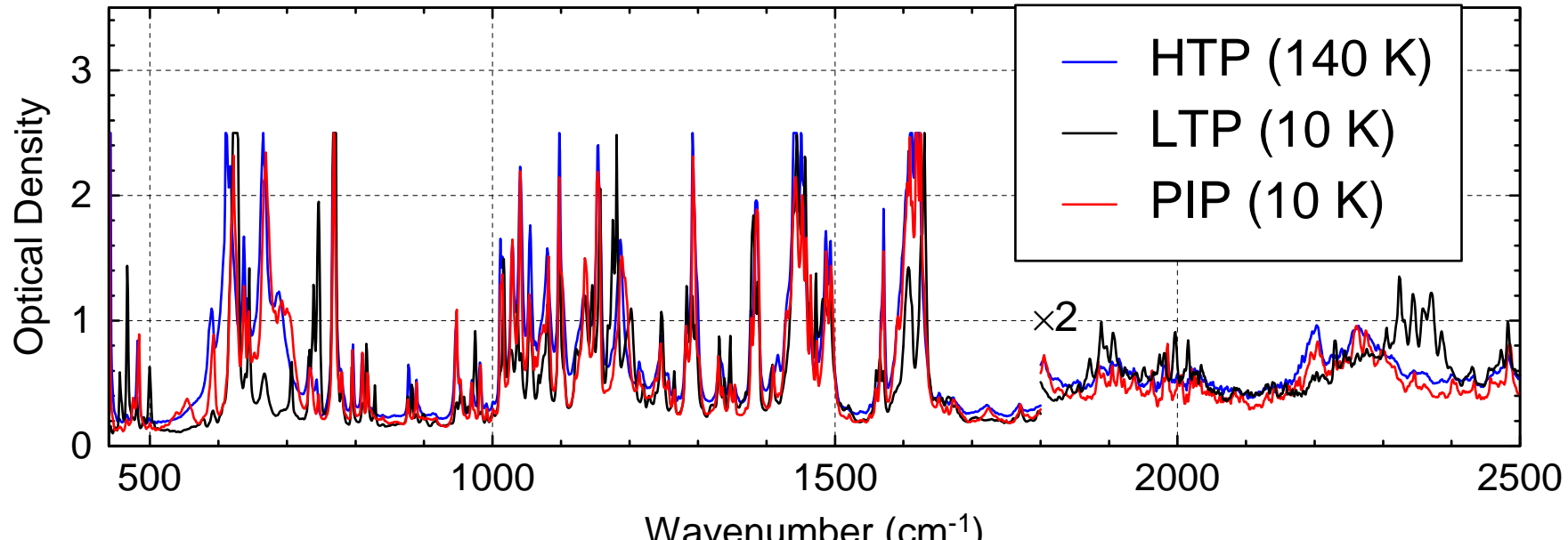
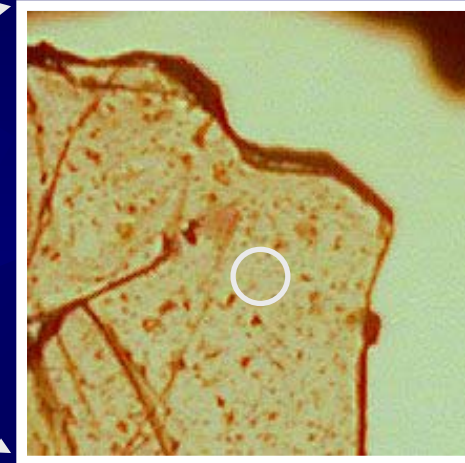
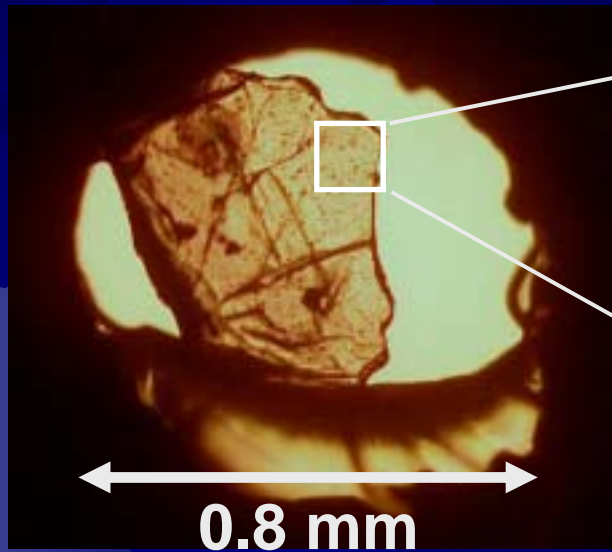
鉄ピコリンアミンの赤外分光 従来のデータ (KBrペレット)



Tayagaki, Tanaka;
J. Lumin. 94-95,
537 (2001)

- ペレットでの測定→圧力の影響？
→結晶試料を顕微分光ステーションで測定

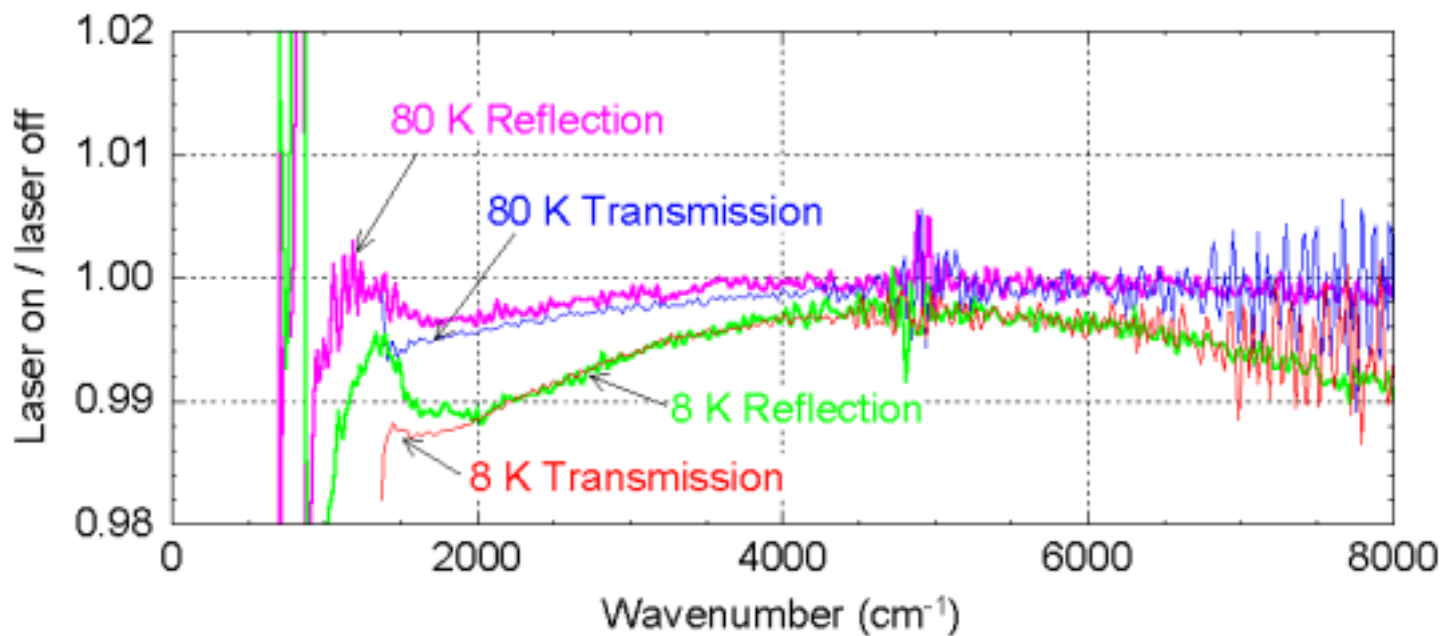
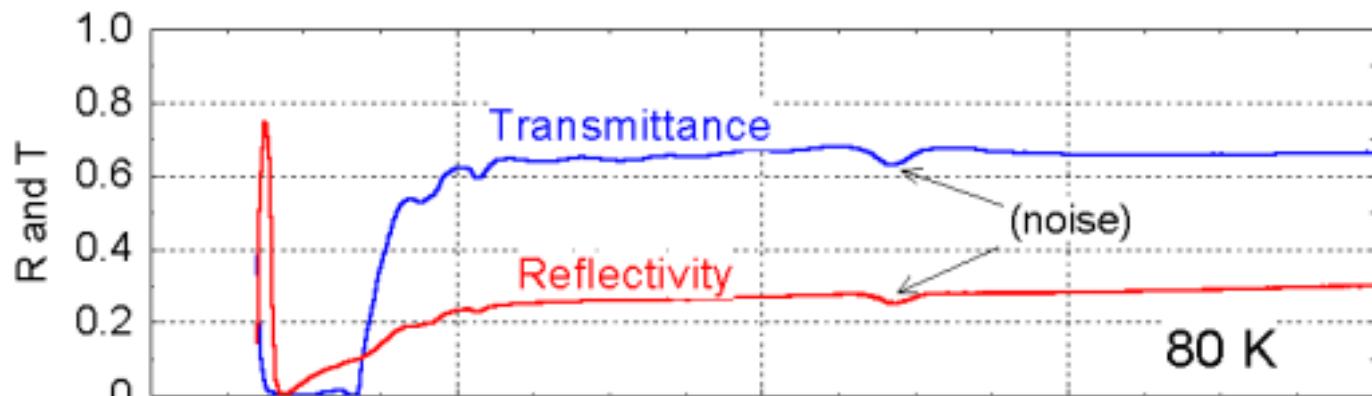
結晶試料での結果(顕微ステーション)



量子常誘電体SrTiO₃(京大・田中)

- ★ 室温から4 Kで誘電率が2ケタ増加
~200 (室温) → 20000 (低温)
- ★ 強誘電体にはならない→強い量子揺らぎ
- ★ 強い可視発光→大きな緩和過程
(光励起で3d⁰ → 3d¹: STE, ポーラロンetc)
- ★ 紫外線照射でさらに誘電率が2ケタ増加
- ★ 紫外光誘起可視・赤外吸収
- ★ ソフトモードの振る舞い？

SrTiO₃の紫外光励起赤外分光



まとめ

現状

- ★ 時間分解測定: まだ成果が上がっていない
- ★ まずは定常光励起での光誘起現象を

現在進行中のテーマ

- ★ -ZnP_2 の励起子、キャリア(時間分解)
- ★ スピントロニクスオーバー物質
- ★ SrTiO_3 の光誘起電子状態
- ★ TTF-CAの中性・イオン性クロソオーバー