

干渉 2 光子相関法を用いた固体表面の sub-10 フェムト秒ダイナミクス

恩田 健 (ERATO/JST, 東工大院理工)

紫外から赤外領域のフェムト秒レーザーはパルス幅及びエネルギーが価電子や核の運動に近い化学反応等の分子系のダイナミクスを観測する手段として有用である。しかしながら一般に用いられているポンプ・プローブ法では、レーザー光の特徴であるコヒーレンスな性質は利用されていない。一方で量子状態の波としての性質を考えると、分子系のダイナミクスを理解し、さらに積極的にコントロールするためには光のコヒーレンスな性質を利用する必要があると考えられる。このような測定は干渉計を用い、その一方の腕の光路長を光の波長以下(数ナノメートル)でコントロールすることにより可能になる。本講演では、このような干渉計を用いた干渉 2 光子相関(I2PC)法により、固体表面で起こるダイナミクスについて研究した下記の 3 つの例について紹介する。

1. 二酸化チタン表面上の光触媒反応

二酸化チタン上では紫外光の照射により超親水性、有機物の分解など多くの有用な光触媒反応が起こる。その基礎的な過程を解明するため、清浄 $\text{TiO}_2(110)$ 表面上に様々な分子を吸着した表面を作成し、干渉 2 光子を用いた光電子分光法により励起状態のダイナミクスを測定した。図 1 には例として 1.3 分子層水が吸着した表面における結果を示した。さらに吸着の種類、被覆率等を変えた実験を行うことにより、水の吸着表面では 2 次元的に水和した電子を見出し[1]、またメタノール吸着表面ではプロトンと結合した電子移動の存在を明らかにした[2]。

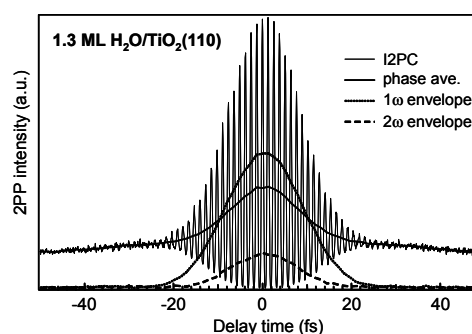


図 1 水吸着 TiO_2 表面の干渉 2 光子相関

2. 銀表面上のプラズモンダイナミクス

固体表面において、銀微粒子のプラズモンはその電場増強効果から表面増強ラマンをはじめとする様々な分光法に利用されている。そのようなプラズモンのコヒーレントダイナミクスを明らかにするために、数十 nm の空間分解能をもつ光電子顕微鏡(PEEM)と干渉 2 光子パルスを組み合わせた測定を行った。それにより、生成したプラズモン同士がコヒーレントに干渉する様子を観測することに成功した[3]。

3. 有機伝導体の光誘起相転移

電荷移動型錯体の有機伝導体(EDO-TTF) $_2$ PF $_6$ は、フェムト秒オーダーで光誘起絶縁体-金属相転移を起こすことから高速なスイッチングデバイスとしての応用が期待されている[4]。そこでその相転移のメカニズムを明らかにするために光励起後の反射率変化の時間依存性を可視から中赤外に渡る広い波長領域で測定した。その結果、光誘起により生成した金属相の電子状態が熱による相転移によるものとは異なることが明らかになった。さらに干渉 2 光子パルスを励起光とし、ピコ秒オーダーの反射率変化の振動を観測することにより、電子励起状態のコヒーレンスが格子振動に影響を与えていることを示す結果を得た。

[1] K. Onda, B. Li, J. Zhao et al. *Science*, **308**, 1154 (2005). [2] B. Li, J. Zhao, K. Onda, et al., *Science*, in press. [3] A. Kubo, K. Onda, H. Petek, et al. *Nano Lett.* **5**, 1123 (2005). [4] M. Chollet, L. Guerin, N. Uchida et al. *Science*, **307**, 85 (2005).