

ピコ秒光パルスによる超音波パルス生成・検出を利用した超高速分光

松 田 理・オリバー ライト

Ultrafast Spectroscopy Using Ultrashort Acoustic Pulses Generated and Detected by Picosecond Light Pulses

Osamu MATSUDA and Oliver B. WRIGHT

Ultrashort light pulses form effective ultrasound generators when incident on an opaque solid. Ultrasonic pulses with frequencies up to and beyond 1 THz can be produced with subpicosecond light pulses. These sound pulses propagate into the solid and can be reflected from underlying layers back to the surface. Using ultrashort light pulses for detection as well, these brief sound pulses can be monitored in real time through the photoelastic effect or through transient sample displacements. This technique, known as laser picosecond acoustics, can be used to investigate the interior of microstructures or nanostructures. Moreover, by examining the ultrasonic pulse shapes, fundamental ultrafast physical processes can be studied in the picosecond time domain. Here we introduce some recent developments in this field: light scattering in multilayers perturbed by picosecond acoustic pulse propagation, effects of ultrafast photoexcited carrier dynamics on ultrasonic pulses in metals, and the generation and detection of picosecond shear acoustic pulses.

Key words: laser picosecond ultrasonics, photoelastic effect, pump-probe measurement, ultrafast carrier dynamics, multilayer, shear acoustic wave

本稿では、光と音の相互作用を用いて物質を調べる方法について解説する。ハンマーで被検物を叩きその反響を聴く検査法は、鉄道車輛・自動車などの機械類やトンネル壁などの構造物の検査に幅広く用いられている。あるいは西瓜をぼんぼんとやって味の良し悪しを判じることは、その成否はともかく誰もが経験するところであろう。これらに対して、ここで紹介する方法では、ハンマーや手のかわりにサブピコ秒時間幅の超短光パルスを用いてナノメートルからマイクロメートルスケールの構造物を叩き、耳のかわりに同じく超短光パルスを用いてギガヘルツからテラヘルツ周波数域の反響を聴く。この測定手法は、レーザーピコ秒音響法と呼ばれる。

レーザーピコ秒音響法の測定対象となるものは、金属¹⁻⁶⁾・半導体^{1,7,8)}・誘電体⁹⁻¹¹⁾の単層膜・多層薄膜・微細構造をもつ試料など多岐にわたる。例えば、多層膜試料にこの測定法を用いると、各層膜厚や界面特性などの非破壊検

査が可能となる^{4,10,12)}。また、実験結果の詳しい解析から、物質の弾性的性質^{1,5,9,13)}、超音波減衰^{1,11)}、光弾性効果^{4,9,10,12)}、圧電効果^{7,13)}、熱拡散^{1,5)}、電子格子相互作用^{1-3,6)}、超高速光励起キャリアダイナミクス^{2,3,6,8)}などのさまざまな物性を調べることもできる。

本稿では、1章で、レーザーピコ秒音響法の原理と実験方法について述べる。以降の章では、筆者らの最近の研究成果を紹介する。第2章では、超短光パルスで生成した縦音響パルスによる透明・半透明多層膜における光散乱の理論と実験について述べる。第3章では、超短光パルスによる縦音響波生成過程の観測に基づく、遷移金属中の超高速光励起キャリアダイナミクスの研究について述べる。第4章では、超短光パルスによる剪断音響パルスの生成と検出について紹介する。第5章では、まとめと今後の展望について述べる。

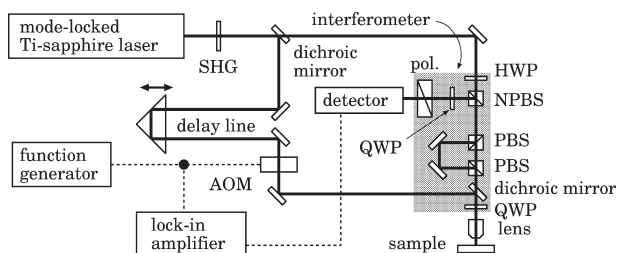


図1 干渉計を用いたレーザーピコ秒音響法測定光学系の例。SHG：第二高調波発生結晶，AOM：音響光学変調器，QWP： $\lambda/4$ 板，HWP： $\lambda/2$ 板，PBS：偏光ビームスプリッター，NPBS：無偏光ビームスプリッター，pol.：偏光子。

1. レーザーピコ秒音響法の原理

レーザーピコ秒音響法の測定原理を、図1に示した光学系を例に説明する。試料として、基板上に100 nm厚程度の金属薄膜が形成されたものを考える。モードロックチタンサファイアレーザーからの光パルス（繰り返し周波数80 MHz，時間幅100 fs，波長830 nm，パルス強度1 nJ）を，試料上の直径20 μm 程度の領域に集光して照射する。この光をポンプ光と呼ぶ。金属薄膜で吸収された光エネルギーは，薄膜表面近傍に局所的かつ瞬間的な温度上昇（10 K程度）をもたらす。この部分に生じる熱応力によって音響波（超音波パルス）が生成される。光照射領域の横方向広がり熱応力の深さ分布長よりも十分に大きい場合，超音波パルスは（表面波を除けば）主として試料表面に垂直な方向に伝播し，その典型的な時間幅は数ps～100 ps程度である。

この超音波パルスの一部は薄膜基板界面で反射されて試料表面に戻り，試料表面を変位させるとともに，光弾性効果を通して試料の光学定数を変調する。この変調を検出するために，非線形光学結晶（ $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ）によってレーザーパルスの第二高調波（波長415 nm，パルス強度0.2 nJ）を生成し，これをポンプ光パルス照射位置に集光して照射する。この光をプローブ光と呼ぶ。試料から反射したプローブ光電場の振幅と位相は，先述の表面変位および光弾性効果によって変調される。以下では，これらをあわせて試料の振幅反射係数 r の変化 δr とみなす。遅延光路を用いてポンプ・プローブ光パルス間の試料到着時間差（遅延時間）を変化させ，反射係数変化を遅延時間の関数として記録する。

図1の網かけ部分は筆者らの開発した時間分割・共通光路型の変形サニャック干渉計になっており，反射係数変化率 $\delta r/r$ の実部 ρ と虚部 $\delta\phi$ を独立に測定する^{4,5,14,15}。以下，その動作の概略を述べる。 $\lambda/2$ 板によって45°方向の直線偏光とされた入射プローブ光パルスは，2個の偏光ビー

ムスプリッター（PBS）を用いて時間軸上で2つの光パルスに分割され，試料に到着する。第1のプローブパルス，ポンプ光パルス，第2のプローブ光パルスの順序で試料に光が入射するように光路長を選んでおく。2つのプローブ光パルスは試料前の $\lambda/4$ 板により偏光の垂直・水平が入れ替わり，往路と異なる経路をたどって1つの光パルスに再合成される。このとき，垂直偏光成分はポンプ光入射前の，水平偏光成分はポンプ光入射後の試料の反射係数をみている。これらを適切な角度に設定された $\lambda/4$ 板と偏光子を用いて干渉させることにより，ポンプ光入射前後の反射係数変化を光強度変化として観測する。この干渉計は，能動的な安定化機構なしにきわめて安定に動作する。検出される ρ や $\delta\phi$ はきわめて微小なので，ポンプ光をメガヘルツ程度の周波数で変調しロックイン検出を行う。この方法による反射係数変化率の検出感度は 10^{-6} 程度である。

測定された過渡的な反射係数変化率は，薄膜の厚さあるいは薄膜中の音速，ひいては薄膜の弾性的性質を与える。さらに，励起された超音波パルス形状に着目して詳しい解析を行うことにより，光励起電子から超音波パルスが生成される過程に関係するさまざまなフェムト秒からピコ秒領域の超高速物性や，ギガヘルツからテラヘルツ領域の超音波伝播に関する知見が得られる。

2. 多層膜試料測定への応用

前章の例のような不透明な試料では，反射係数は，主として超音波パルスが試料表面付近（プローブ光侵入長程度）に到達した場合のみ変化する。一方，透明な試料においては，試料内部での光弾性効果による屈折率変調や界面変位も反射係数変化に寄与する^{9,10,12,16,17}。

このような透明層をもつ試料の測定例を紹介する。SiO₂ガラス基板に100 nm厚のクロム薄膜を，次いでその上に1 μm 厚のアモルファスSiO₂膜をRFスパッターによって形成したものを試料とした。前章で説明した測定系（図1）を用いてこの試料の測定を行った。図2に，反射係数変化率の実部 ρ と虚部 $\delta\phi$ を示す。熱拡散などに起因する背景信号は除いてある。 ρ ， $\delta\phi$ にみられる25 ps程度の周期をもつ速い振動は，試料中を伝播する超音波パルスによって散乱された光と試料表面・界面で反射された光との間の干渉による。振動の周波数 f ，光の波長 λ ，透明膜の屈折率 n ，縦波音速 v の間には $f=2nv/\lambda$ の関係がある。180 psの整数倍において ρ ， $\delta\phi$ にみられる階段的な変化は，超音波パルスが試料表面・界面に到達した際のこれらの変位によって，透明膜中での多重光反射の条件が変化するため生じる。

実験結果をより定量的に解析するために、透明または半透明な層を含む N 層多層薄膜に、界面変位と不均一な屈折率変調とが加わった場合の反射係数変化を求める式を導出した¹²⁾。この式では、膜中の多重光反射の影響も正しく考慮されている。各層は均質かつ等方的であるとし、表面から第1層、第2層、と呼ぶ。基板は第 $N+1$ 層とする。第 j 層の厚さを d_j 、複素誘電率を $\epsilon^{(j)}$ とする。 $j=0$ は試料外の領域を表すものとする。複素誘電率と複素屈折率 n_j の間には、 $\epsilon^{(j)} = n_j^2$ の関係がある。膜の積層方向に z 軸をとる、第 j 層と第 $j+1$ 層との間の界面の z 座標を z_j とする。試料表面位置を $z_0=0$ とし、試料外の領域 $z<0$ から単色の光（真空中の波数 k ）を試料に垂直に入射する。光は直線偏光で、偏光方向を x 軸にとる。無摂動状態の試料の第 j 層内の電場強度は、 $a_j \exp(ik_j \xi_j) + b_j \exp(-ik_j \xi_j)$ と表される。ただし、 $\xi_j = z - z_{j-1}$ ($j \geq 1$) とした。 k_j は第 j 層での（複素）波数ベクトルで、 $k_j = n_j k$ である。係数 a_j , b_j は各境界面での電磁場の接続条件により決定される。

次に、試料内部を縦音響波が z 軸方向に伝播しており、このために歪み分布 $\eta_{zz}(z, t)$ が生じているとする。膜が等方的であるために、歪み η_{zz} が光弾性効果を介して引き起こす変化は誘電率テンソルの対角成分に限られ、この実験配置で反射係数変化に寄与する成分は $\Delta \epsilon_{xx}(z, t) = P_{12}^{(j)} \eta_{zz}(z, t)$ のみとなる。ここで、 $P_{12}^{(j)}$ は第 j 層の光弾性テンソルの成分である。また、縦音響波の伝播によって、試料内の各点では z 軸方向に

$$u_z(z, t) = - \int_z^\infty \eta_{zz}(z', t) dz' \quad (1)$$

の変位が生じる。すべての摂動の外部点 $z<0$ における反射係数変化率は、

$$\begin{aligned} \frac{\delta r}{r} = & \frac{ik^2}{2k_0 a_0 b_0} \left[\int_z^0 P_{12}^{(0)} \eta_{zz}(z') \{ a_0 \exp(ik_0 z') \right. \\ & + b_0 \exp(-ik_0 z') \}^2 dz' + \sum_{n=1}^{N+1} \int_0^{d_n} P_{12}^{(n)} \eta_{zz}(z' + z_{n-1}) \\ & \{ a_n \exp(ik_n z') + b_n \exp(-ik_n z') \}^2 dz' \\ & \left. + \sum_{n=1}^{N+1} (a_n + b_n)^2 (\epsilon^{(n-1)} - \epsilon^{(n)}) u_z(z_{n-1}) \right] \quad (2) \end{aligned}$$

となる。ここで $d_{N+1} = +\infty$ である。大括弧内の第1項は試料外媒質の光弾性効果による寄与を表しており、空気中の実験では無視してよい。第2項は試料中の歪みによる光弾性効果の寄与、第3項は表面・界面変位の寄与を表している。

以上の結果を用いて、実験のシミュレーションを行う。まず、クロム層に吸収されたポンプ光パルスによる縦超音波パルス生成を考える。光励起電子の余剰エネルギーが熱エネルギーに変換される際に電子の拡散が伴うので、初期

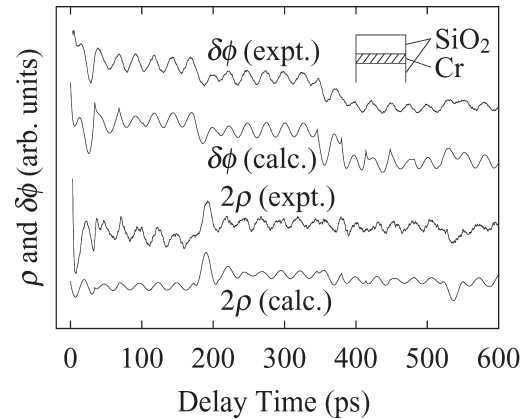


図2 SiO₂(1 μm 厚)-Cr(100 nm 厚)-SiO₂ 基板試料の反射係数変化率 $\delta r/r = \rho + i\delta\phi$ の実験結果 (expt.) と計算結果 (calc.)。挿入図は試料の構造の概略。

吸収エネルギー分布形状と実際の熱応力分布形状とは一般に異なる。詳細な取り扱いには次章に譲ることにして、ここでは簡単のために光吸収係数 ($\alpha = 6.5 \times 10^{-2} \text{ nm}^{-1}$) を実効的に 1/2 倍にして吸収エネルギー分布を計算し、これに比例した熱応力分布を仮定して超音波パルスを生成させた。次に、弾性方程式に従って、この超音波パルスを伝播させて歪み分布 $\eta_{zz}(z, t)$ を計算した。これを式(2)に代入して反射係数変化率を遅延時間の関数として求めた結果を図2 (calc.) に示す。 ρ と $\delta\phi$ の相対強度を含め、細かな強弱までよく再現されている。実験結果と計算結果の比較により、各層の膜厚、音速、屈折率、光弾性係数、弾性係数、密度などが（従属的に）決定される。

式(2)は、例えば GaAs/AlGaAs 量子井戸のような、より複雑な系での反射率変化の計算にも応用されている¹⁸⁾。また、温度分布などのさまざまな要因による不均一な屈折率（誘電率）変調が引き起こす反射係数変化率を計算することもできる^{19,20)}。

3. 光励起電子の超高速ダイナミクス測定への応用

レーザーピコ秒音響法は、金属中の光励起電子の超高速ダイナミクスの研究にも用いられている。アルミニウム、金、銀などでは生成される超音波パルスの空間的な広がり（ポンプ光の侵入長より）はるかに長く、含まれる周波数成分は数十 GHz の程度である^{2,3)}。一方、ニッケルやクロムなどではずっと短い超音波パルスを生成することが可能で、含まれる周波数成分は数百 GHz に達する^{1,6)}。ここでは、クロム薄膜についての筆者らの研究の概略を述べる。

Si(100) 基板上に電子ビーム蒸着により形成した厚さ 190 nm のクロム薄膜に対して、図1と同様の測定系を用いて測定を行った。ポンプ、プローブ光の波長はそれぞれ

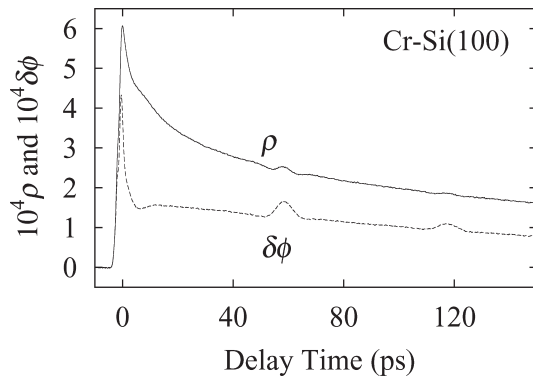


図3 Cr(190 nm 厚)-Si(100) 基板試料の反射係数変化率 $\delta r/r = \rho + i\delta\phi$. 三次元熱拡散によるゆっくりと変化する信号に重畳して、超音波パルス伝播によるピークが60 psおよび120 ps 付近に観測される。

830 nm と 415 nm, パルスエネルギーはそれぞれ 0.03 nJ および 0.003 nJ で, 直径 20 μm の領域に集光した. クロム結晶粒径は 100 nm 程度で光スポットの大きさに比して十分に小さく, 薄膜は弾性的に等方的であるとみなされる. 図3に測定結果を示す. 遅延時間ゼロ付近の鋭いピークは光吸収による電子系の励起と緩和による. また, 緩やかに変化する背景信号は三次元的な熱拡散による. 60 ps 付近のピークは, クロム薄膜表面で生成された縦超音波パルスが薄膜を往復して表面に戻ってきたことによる. 以下, これを第1エコーと呼ぶ. このパルスは表面で反射された後, 120 ps 付近で再び表面に戻ってくる (第2エコー). これらの時間は, クロム膜の厚さおよび縦波音速から求められる伝播時間とよく一致する.

測定された ρ , $\delta\phi$ 信号形状から, 光パルスによる超音波生成機構に関するさらなる情報を引き出すことができる. 前章で述べたように, 測定される反射係数変化は試料中の歪み分布によって決まるが, その対応関係は単純ではない. そこで, さまざまな超音波パルス生成モデルを仮定してパルス形状を計算し, これに対応して求められた反射係数変化率を実験結果と比較することにより, 各モデルの妥当性を評価した.

最も簡単なモデルでは, 試料中の各点で吸収されたポンプ光のエネルギーがすべて瞬間的にその点における熱エネルギーに変換されると考えて, 試料各点における温度上昇を求める. 熱拡散は無視する. 次に, この温度上昇による熱応力を生成項とする弾性波動方程式に従って超音波パルス形状を計算する. 第1エコーと第2エコーのフーリエ成分を比較することによって得られる超音波減衰の効果は, これ以降のすべての超音波パルス形状計算において考慮されている. 得られた超音波パルス形状より計算した反射係

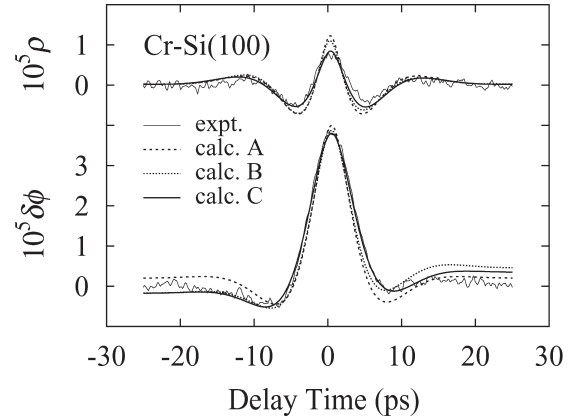


図4 Cr(190 nm 厚)-Si(100) 基板試料の反射係数変化率の実験結果とモデル計算結果の比較. A: 熱拡散と電子拡散を共に無視, B: 一次元熱拡散のみを考慮, C: 二温度モデル.

数変化率を図4の粗い破線 (calc. A) に示す. 時間原点はパルスの中心に一致させてある. 図中の細実線 (expt.) で示される実験結果 (背景信号は除いてある) の ρ 信号のピーク幅と比較すると, 計算結果のピーク幅は狭い. また, 実験結果の $\delta\phi$ は計算結果と異なり, $t=0$ を中心に非対称である.

第2のモデルでは, 格子に与えられた温度分布が, ピコ秒時間域の一次元的な熱拡散により時間的に変化的なことを考慮する. 熱拡散方程式を用いて時間と空間の関数として温度を求め, これによる熱応力を生成項とする弾性波動方程式を解く. 得られた歪み分布に基づく反射係数変化率を図4の細かい破線 (calc. B) で示す. $\delta\phi$ の非対称性はある程度再現されているが, ρ の幅についてはあまり改善されていない.

最も現実的なモデルでは, 電子系と格子系がそれぞれ独立に熱平衡に達すると考え, それぞれの温度 T_e , T_i を定義する. これは二温度モデルと呼ばれる. 吸収されたポンプ光のエネルギーはすべてがまず電子系を加熱することに費やされ, その後, 電子格子相互作用により格子系に伝達されていく. 電子系の熱拡散方程式は,

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - g(T_e - T_i) + \alpha S(t) e^{-\alpha z} \quad (3)$$

となる²¹⁾. ここで, C_e は電子系の比熱, κ は熱伝導率, g は電子格子結合定数, $S(t)$ は単位面積あたりに吸収される光エネルギーの時間プロファイル, α はポンプ光の吸収係数である. 右辺第2項が電子系から格子系への熱伝達を表す. 第3項はポンプ光による熱生成を表す. 格子系の熱拡散係数は小さいとして無視すると, 格子系の温度は

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = g(T_e - T_i) \quad (4)$$

となる。式(3)、(4)により得られる T_i から熱応力を決定し、超音波パルス形状を計算する。図4の太実線に示された反射係数変化率の計算結果 (calc. C) は実験結果とよく一致している。モデル計算と実験結果の比較により、電子格子結合定数 g などが求められる。計算で求められた超音波パルスの周波数スペクトルは 200 GHz 以上にまで伸びている。

以上、クロム薄膜中の光励起キャリアのピコ秒時間域ダイナミクスは、二温度モデルでよく記述されることが示された。レーザーピコ秒音響法を用いたこのような方法により、半導体中のキャリアダイナミクスも研究されている⁸⁾。

4. 剪断音響波生成・検出への応用

蒸着によって作製した多層膜は通常、面内方向に等方的である。この対称性のもとでは光照射で生成される超音波は縦波に限られる。このため、従来のレーザーピコ秒超音波法では、主として縦超音波パルスのみが調べられてきた。しかし、例えば等方弾性体において、縦・横波音速はそれぞれ独立した弾性テンソル成分 c_{11} 、 c_{44} に関係しており、試料の剪断的弾性に関連した c_{44} を調べるためには横超音波パルスを生成検出する必要がある²²⁾。本章では、結晶の異方的熱膨張を利用して剪断超音波パルスを生成する方法について述べる¹³⁾。また、透明等方的弾性体中を伝播する横超音波パルスを検出する方法についても述べる。

亜鉛結晶は六方晶系に属し、弾性的異方性および異方的熱膨張を示す。亜鉛結晶の c 軸が表面に 24° をなすように粗加工し、ダイヤモンドナイフを備えたウルトラマイクロトームにより、粗加工時に形成された結晶性の崩れた表面層を削り取り平滑にした。この平滑表面に、 $1.1 \mu\text{m}$ 厚のアモルファス SiO_2 膜を RF スパッターにより形成し、これを試料とした。この試料にポンプ光パルスを照射することにより、亜鉛層において試料深さ方向に伝播する超音波パルスを生成する。この超音波パルスは擬似縦音響波と擬似横音響波の2つのモードからなると予想され、これらは SiO_2 層に縦音響波と横音響波を伝播させる。

等方性物質における横音響波の光検出について考える。横音響波の伝播方向(試料表面に垂直)を z 軸方向とすると、その歪みテンソル成分は η_{xz} 、 η_{zx} または η_{yz} 、 η_{zy} であり、これにより誘電率テンソルの xz 、 zx または yz 、 zy 成分のみが変調される。したがって、横音響波によってプローブ反射光を変調するためには光の電場の z 成分が関与

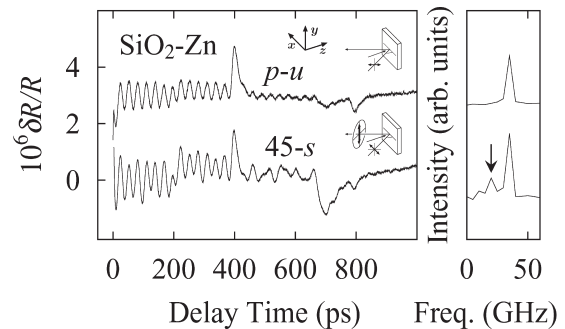


図5 (左図) $\text{SiO}_2(1.1 \mu\text{m 厚})\text{-Zn}$ 基板試料の(強度)反射率変化率。挿入図は測定した偏光配置を示す。(右図) 0~200 ps のフーリエ変換。p-u 偏光配置では、 SiO_2 層を伝播する縦音響波による 35 GHz の振動のみが観測される。45-s の偏光配置では、横音響波による 20 GHz の振動(矢印)も観測される。

する必要がある。プローブ光を試料に斜めに入射しその p 偏光成分を用いることが必須である。光の入射面に平行に x 軸をとろう。詳しい考察によると、検出にあたって、さらに以下の条件を考慮する必要がある。1) 検出可能な剪断歪み成分は yz 、 zy 成分のみである。2) s(p) 偏光は p(s) 偏光に散乱される。3) 散乱光の電場強度は歪みに比例する。したがって、歪みに比例した光強度変調を得る 1 つの方法は、s, p 偏光成分をあわせて入射させ、反射光の p または s 偏光成分のみを検出することである。このとき、例えば $s \rightarrow s$ と反射された光と、剪断歪みによって $p \rightarrow s$ と散乱された光とが干渉し、歪みに比例した強度変調が得られる。

上記の検出法を実現するために、プローブ光を試料に 45° 入射する光学系を用いた。ポンプ、プローブ光の波長はそれぞれ 814 nm, 407 nm, パルス強度は 1.4 nJ, 0.5 nJ, スポット直径は $60 \mu\text{m}$, $35 \mu\text{m}$ で、干渉計は使用しない。p 偏光を入射し、反射光をそのまま検出器に導いて、(強度)反射率変化率 $\delta R/R$ を測定した結果を図5の p-u に表す。0~400 ps における速い振動は、第2章の場合と同様に、 SiO_2 中を伝播する縦超音波パルスによるものである。また、400 ps にみられる大きなパルスは亜鉛の光弾性効果による信号で、亜鉛表面で生成された縦超音波パルスが試料表面で反射され、再び亜鉛基板に到達したことに対応している。

45-s の曲線は、 45° 方向の直線偏光を入射し、s 偏光成分を測定した場合の(強度)反射率変化率 $\delta R/R$ である。0~400 ps にみられる振幅の変調された速い振動は、2 つの周波数成分を含んでいる。図右側に示した 0~200 ps の信号のフーリエ変換スペクトルにおいて、p-u では 35 GHz 付近に単一ピークをもつものに対して、45-s では 20 GHz 付

近に横超音波パルスによるものと考えられる2つ目のピークが表れる。周波数 f 、音速 v 、屈折率 n 、プローブ光波長 λ 、物質中での光入射角 θ の間には $f=2nv\cos\theta/\lambda$ の関係がある。35 GHz と 20 GHz に対しては音速 5.5 km/s と 3.2 km/s が得られ、これらは SiO₂ の縦・横波音速に対応する。また、横波検出能の偏光依存性は先述の考察と合致している。

以上の結果は、異方性結晶に超短光パルスを照射することで剪断超音波パルスを発生したこと、および SiO₂ 中を伝播する横超音波パルスを検出したことを示している。この技術は、さまざまなナノ構造の評価にピコ秒剪断超音波パルスを用いる道を拓くものである。

5. まとめと展望

超短光パルス照射によって生成した超音波パルスの伝播を、光弾性効果や表面・界面変位を介して測定するレーザーピコ秒音響法と呼ばれる方法について解説した。不均一な光学定数変調を受けた透明または半透明多層膜による光散乱の理論が構築され、測定結果の定量的解析が容易になった。理論を拡張することにより、さらに複雑な構造、例えばフォトニック結晶中を伝播する超音波パルスによる光学的性質の変調の解析などへの応用が期待される。金属中に生成された縦超音波パルス形状の詳細な解析からは、超音波生成にかかわる電子・格子の超高速ダイナミクスについての情報が得られた。これはテラヘルツ超の超音波トランスデューサーの開発につながる。また、異方性媒質の利用により、従来困難であったピコ秒領域の剪断音響波の発生が可能になった。より異方性の強い物質や異方性多層薄膜構造などを用いることにより、剪断波発生効率の向上と、それを用いた剪断波音響分光の分野の開拓が期待される。

さまざまな音響波伝播モードを駆使した測定を行い、超高速物性に基づく現象の定量的なシミュレーションによって実験結果を解析する研究手法は、レーザーピコ秒音響法の適用範囲をさらに広げるものと期待される。

本稿で紹介した筆者らの研究に寄与した斎藤貴博（現三井金属）、D. H. Hurley（米アイダホエネルギー環境研究所）、V. E. Gusev（仏メイン大学）、清水健一（慶応義塾大学）の各氏に感謝します。

文 献

- 1) C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris and J. Tauc: Phys. Rev. B, **34** (1986) 4129-4138.
- 2) G. Tas and H. J. Maris: Phys. Rev. B, **49** (1994) 15046-15054.
- 3) O. B. Wright: Phys. Rev. B, **49** (1994) 9985-9988.
- 4) B. Perrin, B. Bonello, J. C. Jeannet and E. Romatet: Prog. Nat. Sci., **S6** (1996) S444-S448.
- 5) C. J. K. Richardson, M. J. Ehrlich and J. W. Wagner: J. Opt. Soc. Am. B, **16** (1999) 1007-1015.
- 6) T. Saito, O. Matsuda and O. B. Wright: Phys. Rev. B, **67** (2003) 205421.
- 7) C. K. Sun, J. C. Liang and X. Y. Yu: Phys. Rev. Lett., **84** (2000) 179-182.
- 8) O. B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda and V. E. Gusev: Phys. Rev. B, **64** (2001) 081202(R).
- 9) O. B. Wright: J. Appl. Phys., **71** (1992) 1617-1629.
- 10) O. B. Wright: Opt. Lett., **20** (1995) 632-634.
- 11) C. J. Morath and H. J. Maris: Phys. Rev. B, **54** (1996) 203-213.
- 12) O. Matsuda and O. B. Wright: J. Opt. Soc. Am. B, **19** (2002) 3028-3041.
- 13) O. Matsuda, O. B. Wright, D. H. Hurley, V. E. Gusev and K. Shimizu: Phys. Rev. Lett., **93** (2004) 095501.
- 14) D. H. Hurley and O. B. Wright: Opt. Lett., **24** (1999) 1305-1307.
- 15) オリバライト, 菅原美博, 松田 理: 応用物理, **73** (2004) 732-740.
- 16) J. A. Moon and J. Tauc: J. Appl. Phys., **73** (1993) 4571-4578.
- 17) V. E. Gusev: Acustica, **82** (1996) S37-S45.
- 18) O. Matsuda, I. Ishii, T. Fukui, J. J. Baumberg and O. B. Wright: Physica B, **316-317** (2002) 205-208.
- 19) O. B. Wright, R. Li Voti, O. Matsuda, M. C. Larciprete, C. Sibilila and M. Bertolotti: J. Appl. Phys., **91** (2002) 5002-5009.
- 20) H. Hirori, T. Tachizaki, O. Matsuda and O. B. Wright: Phys. Rev. B, **68** (2003) 113102.
- 21) S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich and T. L. Perel'man: Sov. Phys. JETP, **39** (1974) 375-377.
- 22) D. H. Hurley, O. B. Wright, O. Matsuda, V. E. Gusev and O. V. Kolosov: Ultrasonics, **38** (2000) 470-474.

(2004年9月13日受理)