

令和元年6月5日現在

機関番号：63903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05410

研究課題名(和文) 複素誘電率の直接測定によるコヒーレントフォノン生成機構の解明

研究課題名(英文) Studies on generation mechanism of coherent phonons with optical interferometric technique

研究代表者

岡野 泰彬 (OKANO, Yasuaki)

分子科学研究所・技術課・技術職員

研究者番号：00393819

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、コヒーレントフォノンの位相情報に着目し、これまでコヒーレントフォノン計測に用いられてきたフェムト秒過渡反射率測定法を拡張した新たな白色干渉法による位相差計測法の開発と、理論的に測定データを再構築することでコヒーレントフォノン生成過程を実験的に明らかにすることを目的とし研究を進めた。特に、瞬間的誘導ラマン過程によるコヒーレントフォノン生成および検出方法に関する理論の構築を進め、位相推定法の観点から理論と測定に対応関係を明らかにし、構築した理論モデルがフェムト秒光パルス対によるコヒーレントフォノンの位相および振幅の制御性を良く説明できることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

コヒーレントフォノンは、フォノンの振動周期よりも短い時間幅を持つ光パルスで励起することにより、振動のタイミングが揃ったフォノンの集団として形成される。物質の反射率・透過率などのマクロな物理量の変化としてフォノンダイナミクスを実験的に直接計測することができることから、半金属、半導体、超伝導物質など多くの物性研究に用いられてきた。本研究で用いた試料の一つであるダイヤモンドの光学フォノンは振動数が高く熱的な影響を受けにくいことから、近年、室温で動作する量子メモリーへの応用に向けた研究が行われている。このようにフォノン生成機構の解明は、物性研究のみならず量子デバイス開発研究への応用も期待される。

研究成果の概要(英文)：In this work, we have investigated generation mechanism of coherent phonons with a combination of a new experimental method using optical interferometric technique and theory focusing on phase information of the coherent phonons. By adapting our developed generation and detection theory of coherent phonons, especially for impulsive Raman scattering process, the amplitude and phase modulations of coherent phonons have been well explained when the phonons were coherently controlled with a precisely tuned pair of femtosecond laser pulses.

研究分野：光物性

キーワード：コヒーレントフォノン 光物性 超短パルス光 誘電率 量子ダイナミクス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

結晶を構成する原子の集団振動である格子振動を量子化したものがフォノンであるが、コヒーレントフォノンは、いくつかの振動量子状態の重ね合わせで構成されたフォノン波束であり、フォノンの振動周期よりも短いパルス光を照射し振動のタイミングを揃えて励起することで生成することができる。一般に、固体の光学フォノンの振動数は数テラヘルツ (THz、 $10^{12}$ Hz) から数十テラヘルツの領域にあるため、1ピコ秒 ( $10^{-12}$ s= $1/1$ THz) より短いパルス、つまりフェムト秒 ( $10^{-15}$ s) 領域のパルス幅を持つレーザーを用いれば励起できる。

フォノンは通常、ラマン散乱や赤外吸収などの周波数領域分光法で測定されるが、コヒーレントフォノンについては時間領域分光法により格子振動の時間変化を直接観察できるのが特徴である。この分光法では、ポンプ・プローブ型の過渡反射率測定により、格子歪が作り出す複素誘電率の変化をフォノン振動として検出する。また、物質中の原子の振動であるフォノンは、電子のエネルギー緩和をはじめ、相転移や超伝導など多くの物理現象に関わっている。そのため、パルスレーザーで瞬間的にコヒーレントフォノンを励起し、その緩和過程を時間分解で計測することは、光励起過程や電子とフォノン間の結合ダイナミクスを明らかにする上で有効な研究手法であることから、様々な報告がなされてきた。

一般に、コヒーレントフォノンの生成には以下の3つの機構が提案されている；(a)瞬間的光吸収過程、(b)瞬間的誘導ラマン過程、(c)空間電荷の超高速遮蔽。しかし、研究分担者の鹿野らの研究グループによって、量子力学の2準位系モデルでフォノンの波動関数を解析的に解くことにより、光共鳴条件下では瞬間的光吸収過程と瞬間的誘導ラマン過程が共存していることが理論的に示された。コヒーレントフォノンの生成機構についてはこれまでは理論的説明のほとんどは現象論的なものであり、光と物質の相互作用に基づく微視的なメカニズムの詳細はよく分かっていないことも多く、これらの理論モデルの真偽を確かめるためにも実験的な検証が不可欠である。

### 2. 研究の目的

本研究では、コヒーレントフォノンの生成機構の実験的検証を念頭に、従来型の時間分解過渡反射率測定によるコヒーレントフォノン観測法を発展させ、(1)複素誘電率変化の直接的測定を目指した位相差計測法の開発を行うこと、さらに、コヒーレントフォノン生成および検出方法に関する理論の構築を進め、(2)測定データを理論的に再構築しコヒーレントフォノン生成過程を実験的に明らかにすることを目的とし研究を行った。

### 3. 研究の方法

(1) 新たなコヒーレントフォノン観測手法としては、一般に光学素子の分散測定（群速度遅延分散）にも用いられる位相差に敏感な白色干渉法を従来型の時間分解過渡反射率測定によるコヒーレントフォノン観測法に組み込み、時間分解複素誘電率測定システムを開発する。

(2) コヒーレントフォノン生成および検出過程を説明するために、振動準位を2準位、電子準位を2準位の合計4準位レベルのモデルを考え、光と物質の相互作用に関してフォノンの生成・制御・計測過程まで含めたモデルを構築する。ガウス関数型パルス波形を仮定した計算で、実験結果の再現を検証する。

### 4. 研究成果

(1) 白色干渉型位相差測定系を組み込んだコヒーレントフォノン測定装置

図1(左図)は、製作した時間分解過渡反射率測定によるコヒーレントフォノン測定装置であり、右図に示した白色干渉計測部を測定に共有できるように組み込んだ。しかし、測定を進めていく過程で、いつ、どのように位相が揃っていくマイクロな素過程があるのか、コヒーレントフォノン生成の初期過程にアプローチするには、精密なフォノン励起パルス照射タイミング制御および、フォノン信号観測までの初期応答内の情報を得るためのさらなる測定技法の開発が課題であることが明らかになってきた。本研究課題で得た知見をもとに、本測定装置を改良しフォノン生成初期過程に着目した実験的および理論的研究への展開を計画している。

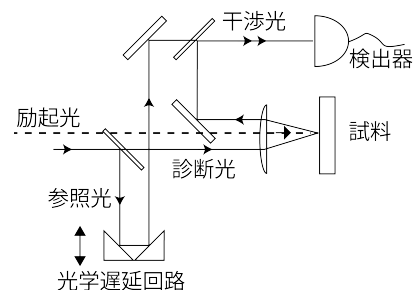
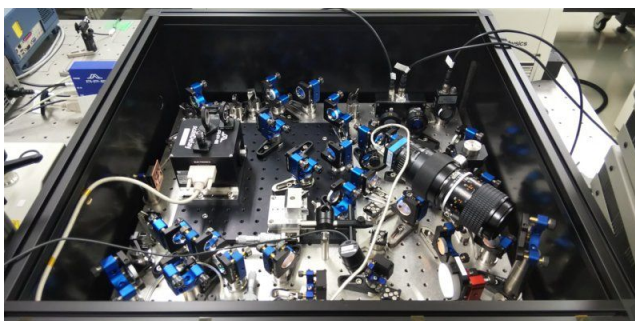


図1. 製作したコヒーレントフォノン測定装置

(2) コヒーレントフォノン生成および検出方法に関する理論の構築と実験による検証

超短フェムト秒レーザーパルス光により生成した 40 テラヘルツの周期で原子が集団振動するダイヤモンドのコヒーレント光学フォノンの量子状態制御の実現とその理論モデルの構築を行い、制御性を検証した。コヒーレントフォノンの励起には 10 フェムト秒以下の時間幅を持つ近赤外光パルスを用い 25 フェムト秒周期で振動するダイヤモンドコヒーレントフォノンにより変化する透過率を実時間計測した。さらに高精度にタイミング制御したパルス対を励起に用い、ダイヤモンドコヒーレント光学フォノンの量子状態を制御した。また振動準位および電子準位で構成される系において光応答過程を計算し、ダイヤモンドのコヒーレント光学フォノンに対するコヒーレント制御の理論モデルを構築し実験結果を再現した。図 2(左図)に超短パルス光対を用いて制御したコヒーレント光学フォノンのフォノン信号を示す。ポンプパルス対の時間間隔を 237.9 フェムト秒から 263.9 フェムト秒まで精密に調整することで、二つ目のパルス光であるプローブ光照射以降の振動成分が変化していることが分かる。振動成分の振幅とその初期位相のポンプパルス対時間間隔依存性を図 2(右図)に示す。実線は構築した理論モデルから計算される結果であり、実験を良く再現していることが分かる。

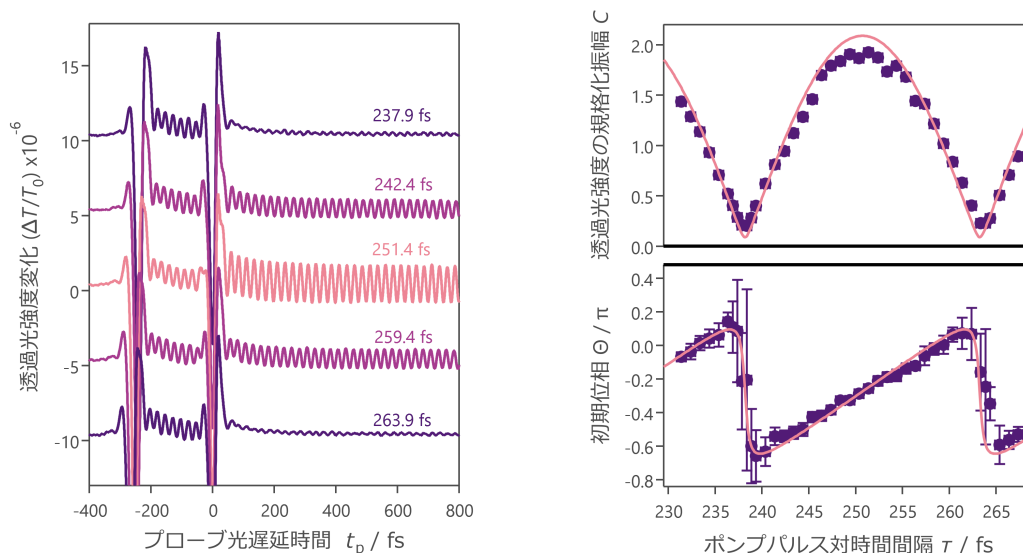


図 2 . フェムト秒パルス対により制御された時間分解コヒーレントフォノン信号(左図)と構築した理論により再現したフォノンの振幅と位相の制御性の実験データとの比較 (右図)

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 4 件)

Kazutaka G. Nakamura, Kensuke Yokota, Yuki Okuda, Rintaro Kase, Takashi Kitashima, Yu Mishima, Yutaka Shikano, and Yosuke Kayanuma, “Ultrafast quantum-path interferometry revealing the generation process of coherent phonons,” *Physical Review B* **99**, 査読有, 180301 (R) 1-5 (2019).

DOI: 10.1103/PhysRevB.99.180301

Hiroya Sasaki, Riho Tanaka, Yasuaki Okano, Fujio Minami, Yosuke Kayanuma, Yutaka Shikano, Kazutaka G. Nakamura, “Coherent control theory and experiment of optical phonons in diamond,” *Scientific Reports* **8**, 査読有, 9609 1-9 (2018).

DOI: 10.1038/s41598-018-27734-1

Kazutaka G. Nakamura, Kazuma Ohya, Hiroshi Takahashi, Tetsuya, Tsuruta, Hiroya Sasaki, Shin-ichi Uozumi, Katsura Norimatsu, Masahiro Kitajima, Yutaka Shikano, and Yosuke Kayanuma, “Spectrally resolved detection in transient-reflectivity measurements of coherent optical phonons in diamond,” *Physical Review B* **94**, 査読有, 024303 1-7 (2016).

DOI: 10.1103/PhysRevB.94.024303

[学会発表](計 10 件)

Yasuaki Okano, Hiroya Sasaki, Riho Tanaka, Kazuma Ohya, Hiroshi Takahashi, Tetsuya Tsuruta, Hiroya Sasaki, Shin-ichi Uozumi, Katsura Norimatsu, Masahiro Kitajima, Fujio Minami, Yosuke Kayanuma, Yutaka Shikano, and Kazutaka G. Nakamura, “Optical manipulation of 40-THz coherent phonons in diamond,” APS (American Physical Society)

March Meeting (2019).

Yasuaki Okano, Hiroya Sasaki, Riho Tanaka, Fujio Minami, Yosuke Kayanuma, Yutaka Shikano, Kazutaka G. Nakamura, "Coherent Control of 40 THz optical phonons in diamond," International Conference on Quantum & Nonlinear Optics (2018).

Kazutaka G. Nakamura, Rintaro Kase, Yuki Okuda, Takashi Kitajima, Yu Mishima, Fujio Minami, Yosuke Kayanuma, Yutaka Shikano, "Coherent Control of Electron-Phonon Coupled States in a GaAs crystal using Phase-locked Femtosecond Pulses," International Conference on Quantum & Nonlinear Optics (2018).

鹿野 豊, 佐々木 寛弥, 田中 利歩, 岡野 泰彬, 南 不二雄, 萱沼 洋輔, 中村 一隆, "コヒーレントフォノンのコヒーレント制御に関する理論," 第 65 回 応用物理学会 春季学術講演会 (2018).

佐々木 寛弥, 田中 利歩, 岡野 泰彬, 南 不二雄, 萱沼 洋輔, 鹿野 豊, 中村 一隆, "ダイヤモンド中のコヒーレントフォノンに対する量子制御," 日本物理学会 第 73 回 年次大会 (2018).

Yasuaki Okano, Hiroya Sasaki, Riho Tanaka, Fujio Minami, Yosuke Kayanuma, Yutaka Shikano, Kazutaka G Nakamura, "Coherent control of optical phonons in diamond using a pair of femtosecond pulses," 第 37 回量子情報技術研究会 (2017).

[その他：プレスリリース]

超短パルス光を用い固体中の量子経路干渉を観測

- 新しい光励起過程計測方法の開発に成功 -

<https://www.keio.ac.jp/ja/press-releases/2019/5/22/28-53275/>

超短パルス光を用いてダイヤモンドの光学フォノン量子状態を制御

- 量子メモリー開発につながる成果 -

<https://www.keio.ac.jp/ja/press-releases/2018/6/25/28-45051/>

## 6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：鹿野 豊

ローマ字氏名：(SHIKANO, Yutaka)

所属研究機関名：慶應義塾大学

部局名：理工学研究科(矢上)

職名：特任准教授

研究者番号(8桁): 80634691

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。